

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 12 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2008 ～ 2011

課題番号：20740216

研究課題名（和文） ナノ物質の電子構造とキャパシタンス

研究課題名（英文） Electronic Structure and Capacitance of Nano-Materials

研究代表者

内田 和之（UCHIDA KAZUYUKI）

東京大学・大学院工学系研究科・助教

研究者番号：10393810

研究成果の概要（和文）：密度汎関数法に基づく第一原理的な電子状態計算の枠組みにおいて、ナノスケール系のキャパシタンスを計算する理論手法を確立し、プログラムに実装した。プログラムを用いて、カーボンナノチューブ等の具体的な物質からなるキャパシタの電子状態を計算し、キャパシタンスの定量的な値、ナノキャパシタ特有の量子効果、さらにそれらがキャパシタを構成する物質の電子構造とどのように関連しているのかを明らかにした。得られた知見は、次世代のナノスケール・エレクトロニクスにおける効率的なデバイス設計に重要である。

研究成果の概要（英文）：We have developed a new first-principles method to calculate capacitance in nano-scale systems. We have applied the method to nano-materials, to clarify capacitance with quantum effects. We have shown how the electronic structures of materials are reflected on their capacitances.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	800,000	240,000	1,040,000
2009 年度	600,000	180,000	780,000
2010 年度	600,000	180,000	780,000
2011 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
総計	2,600,000	780,000	3,380,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学,数理物理・物性基礎

キーワード：ナノ物質,ナノデバイス,キャパシタンス,電子構造計算,密度汎関数法,第一原理計算

1. 研究開始当初の背景

電界効果型のトランジスタ（FET）は電子技術の鍵を握る重要なデバイスであり、その電流増幅機能・スイッチング機能は、ゲート-チャンネル間のキャパシタがこれを担っている。従って、次世代のナノスケール・エレクトロニクスを成功へと導く為には、ナノ系におけるキャパシタの量子論的な動作を理論

的に予測する強力なシミュレーション手法とプログラムを構築し、物理的な理解に基づいた効率的なデバイス設計を行うことが極めて重要である。

2. 研究の目的

ナノキャパシタの電子構造と特性を第一原理的に計算する計算手法とプログラムを

確立し、実際のナノ構造に対する計算を行って、広くナノデバイスの設計指針となる普遍的な物理と知見を抽出する。

3. 研究の方法

(1) 理論手法の構築：密度汎関数理論に基づく第一原理的な電子状態計算でナノ系のキャパシタンスを取り扱う手法を確立する

(2) 計算プログラムの実装：広く使われている第一原理電子状態計算プログラムに、今回開発したキャパシタンスの計算アルゴリズムを組み込む。

(3) ナノ物質系への応用：作成したプログラムをスーパーコンピュータ等を用いて実行し、ナノ構造におけるキャパシタンスを計算して、物理現象の解釈および知見の抽出を行う。

4. 研究成果

(1) ナノキャパシタの第一原理電子状態計算法の開発およびプログラムへの実装

従来の第一原理電子状態計算は、系の全エネルギーを最小化する波動関数を探索することで基底状態を得る。この従来法を用いた場合、キャパシタに蓄積電荷の無い状況(=キャパシタの基底状態)の電子構造を計算することはできるが、キャパシタに電荷の蓄えられた状況(=キャパシタの励起状態)の電子構造を得ることはできない為、キャパシタンスを計算することができなかった。

今回、系の第一原理的な全エネルギーからバイアス印加分の仕事を差し引いた自由エネルギー汎関数を新たに定義し、これを最小化するという電子状態計算の新しい定式化を提案し、プログラムへの実装を行った。プログラムを用いて2重壁カーボンナノチューブの同軸円筒型キャパシタとしての挙動を計算し、蓄積電荷の電極からのしみ出しの為に有効的な電極間距離が減少し、みかけの電極間距離を用いて見積もった場合よりもキャパシタンスが大きくなるという量子効果を見いだした。また電極の状態密度の形状がキャパシタンスのバイアス依存性として観測されるという量子効果を明らかにした。これらの量子効果が、キャパシタを構成する物質の波動関数の空間分布や系の次元性といったナノ物質の個性を強く反映することを明らかにした。([雑誌論文]⑤[学会発表]⑧⑩)。

(2) ナノトランジスタのゲートキャパシタにおける蓄積電荷の空間分布とチャンネルの

空間分布の研究

ナノトランジスタにおいて電流の流れるチャンネルが物質と物質の界面に偏って分布した場合、界面に多く存在する欠陥の為に電気抵抗が増大してしまう。従って、そのようなチャンネル分布を避けるデバイス設計を行うことが重要である。ナノ物質において、チャンネルにバイアスが印加されない時のチャンネルの空間分布は従来型の第一原理電子状態計算で求めることが出来るが、チャンネルにバイアスが印加された時のチャンネルの空間分布は、これまで第一原理的に計算する方法が無く、知見が存在しなかった。

今回、カーボンナノチューブをチャンネルとするナノトランジスタを想定して、チャンネル(カーボンナノチューブ)-ゲート(平板電極)間に構成されたキャパシタ(ゲートキャパシタ)の電子状態計算を行った。この系のキャパシタンスの値に寄与する蓄積電荷の空間分布はカーボンナノチューブのゲートに面した側に大きく偏る事が分かった。一方、トランジスタに用いた場合に電流が流れるチャンネルであるフロンティア軌道の空間分布には、はるかに小さい偏りしか生じないことが分かった。両者の差は、電流には直接には寄与しない非フロンティアの占有軌道の波動関数の空間分布の変形の総和(=誘電分極電荷)で説明されることが分かった([雑誌論文]④)。

(3) 電極間に媒質を挟んだナノキャパシタの電子状態計算およびその解析

(1)(2)では電極間に真空層を挟んだキャパシタの電子構造を調べたが、実際のキャパシタでは電極間に誘電体物質が充填されている場合も多い。特にナノキャパシタでは、誘電体と電極の界面の電子状態がキャパシタの特性に大きく影響する可能性がある為、誘電体を挟んだキャパシタの電子構造について知見を得る必要がある。

今回、三重壁のカーボンナノチューブ(8,0)@(17,0)@(26,0)の、同軸円筒型キャパシタとしての特性を計算した。バンドギャップが小さい内側および外側のチューブは電極として振る舞い、中間のチューブはバンドギャップが大きい為に電極間の誘電体として振舞う。カーボンナノチューブ1層の誘電率は電子の波動関数の閉じ込めを反映して、グラファイト結晶のc軸方向のものよりも小さいことが分かった。又、電極間に蓄えられた電荷と誘電体の誘電分極電荷が空間的に重なるため、蓄積電荷の量を、これまでに用いてきたバイアスの有る場合と無い場合の差電荷を空間積分するという方法で求めることは出来ず、各電極のバンドの充填数

でカウントする必要があることを明らかにした（〔雑誌論文〕③〔学会発表〕⑬⑭⑮）。

（4）スピン自由度・欠陥等の存在を考慮したナノキャパシタの特性予測の為の予備的研究

特定の元素からなるナノ物質や、格子欠陥を含むナノ物質の中には、帯電させた時にスピン分極の生じる系が存在することが知られている。そのような物質をナノキャパシタの電極として用いた場合、バイアスを印加した時に電荷（＝従来型と同じ）に加えて、スピン分極も蓄えられる“スピンキャパシタ”が実現する可能性がある。この着想について検討するための予備的計算を行った（〔雑誌論文〕②〔学会発表〕⑨⑩⑪⑫）。また、ナノキャパシタにおいて電極間の誘電間として有望な物質であるアルミナの電子構造に関する研究も行った（〔雑誌論文〕①）。

（5）ナノキャパシタの大規模電子状態計算の為の、ウルトラソフト型擬ポテンシャルの実空間プログラムへの実装

多くの実験と直接の比較が可能なほどに大規模で現実的な系において、電子構造計算を実行してキャパシタンス等の有用な物理量を得るには、膨大な計算をリーズナブルな時間で遂行する為、①計算精度を落とすことなく計算量を最小化することのできるウルトラソフト型の擬ポテンシャルを用いること、②超並列計算機と並列化言語を用いて実装したプログラムを用いることが、必須である。実空間法を用いたプログラムは、高速フーリエ変換を用いる必要が無い為超並列機の性能を最大限に引き出すことができるが、実空間プログラムへのウルトラソフト型擬ポテンシャルの実装（①②両者の組み合わせ）に成功した例は、これまでにはほとんど無かった。本研究でも、（1）－（4）では平面波プログラムを用いていた為、計算可能な系の規模は比較的小さいものに限定されていた。

今回、実空間第一原理電子状態計算コード RSDFT にウルトラソフト型の擬ポテンシャルを実装した。さらに MPI および Open-MP を用いて実装部を並列化し、大規模系の電子状態計算を実行して動作を確認した。現在は、この実空間ウルトラソフト電子状態計算プログラムに、キャパシタンスの計算が可能となる為のコーディングを進めている。この作業が完成すれば、今後のキャパシタンス研究において、規模のみならず質的にも大きな発展が期待できる（〔学会発表〕①-⑦）。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 5 件）

- ① T. Kurita, K. Uchida and A. Oshiyama, Atomic and electronic structures of alpha-Al₂O₃ surfaces, Phys. Rev. B 82, 155319 (2010), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.82.155319
- ② K. Uchida and A. Oshiyama, Symmetry and Spin of the Decavacancy in Crystalline Si, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 093711, 2010, 査読有, DOI: 10.1143/JPSJ.79.093711
- ③ K. Uchida and A. Oshiyama, Electronic-Structure Calculations for Carbonnanotube Capacitor with a Dielectric Medium, Phys. Rev. B 79, 235444, 2009, 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.79.235444
- ④ K. Uchida and S. Okada, Electronic properties of a carbon nanotube in a field-effect transistor structure: A first-principles study, Phys. Rev. B 79, 085402, 2009, 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.79.085402
- ⑤ K. Uchida, Quantum Effects of Capacitance in Nano-Scale Devices, ECS transactions Volume 13, Issue 2, pp51-56, 2008, 査読無, <http://www.ecsdl.org/getabs/servlet/GetabsServlet?prog=normal&id=ECSTF8000013000002000051000001&idtype=cvips&gifs=yes&ref=no>

〔学会発表〕（計 16 件）

- ① 内田和之、古家真之介、岩田潤一、押山淳、微少ねじれ角で積層した 2 層グラフェンの大規模電子状態計算による解析、日本物理学会、2012 年 3 月 24 日、関西学院大学
- ② 内田和之、古家真之介、岩田潤一、押山淳、Twisted Bilayer Graphene の RSDFT コードを用いた大規模電子状態計算、文部科学省科学研究費新学術領域「コンピューティクスによる物質デザイン：複合相関と非平衡ダイナミクス」平成 24 年度研究会、2012 年 3 月 16-17 日、東京大学
- ③ K. Uchida, S. Furuya, J.-I. Iwata, and A. Oshiyama, Fermi-velocity reduction in twisted bilayer graphene: large-scale density-functional calculations, APS March Meeting 2012, February 27, 2012, Boston Convention Center, Boston, Massachusetts, US

- ④ 岩田潤一、内田和之、京極真也、小泉健一、重田育照、古家真之介、押山淳、密度汎関数法によるナノ構造の電子機能予測: RSDFT の開発と応用, 東京大学物性研究所 共同利用スーパーコンピュータ成果報告会「次世代ナノ情報機能・材料」計算科学の課題と展望, 2012年2月20日, 東京大学物性研究所,
- ⑤ 重田育照、岩田潤一、古家真之介、内田和之、小泉健一、Mauro Boero、押山淳、実空間密度汎関数法に基づいた Car-Parrinello 分子動力学法の実装, Implementation of Car-Parrinello molecular dynamics based on real-space density functional theory, 第2回 CMSI 研究会, 2012年1月30日, 東北大学金属材料研究所,
- ⑥ 古家真之介、内田和之、岩田潤一、押山淳、実空間密度汎関数法プログラム HP-RSDFT の開発と固体系への適用, 第2回次世代ナノ統合シミュレーションソフトウェア説明会, 2012年1月26日, 学士会館(東京),
- ⑦ K. Uchida, S. Furuya, J.-I. Iwata, and A. Oshiyama, Electronic Structure Calculation of Twisted Bilayer Graphene, Workshop on Carbon Nanotube in Commemoration of The 20th Anniversary of its Discovery (2011-CNT20), December 12-13, 2011, The International House of Japan, Minato-ku, Tokyo, Japan
- ⑧ K. Uchida, A brief review on first-principles calculations and its application to nano-capacitance, The High Performance Computing and Applications Workshop, December 3, 2010, Beijing (China)
- ⑨ K. Uchida and A. Oshiyama, Structure, spin, and charge of decavacancy V10 in crystalline silicon, July 27, 2010, ICPS2010, Seoul (Korea)
- ⑩ 内田和之、押山淳、h-BN シート中の原子空孔のエネルギー論, 日本物理学会, 2010年3月21日, 岡山大学
- ⑪ K. Uchida and A. Oshiyama, Atomic and Electronic Structures of the Deca-vacancy V10 in Crystalline Silicon, ICDS25, July 20, 2009, St. Petersburg (Russia)
- ⑫ 内田和之、押山淳、シリコン結晶中の格子欠陥 V10 の原子構造と電子構造の第一原理的研究, 日本物理学会, 2009年3月27日, 立教大学
- ⑬ 内田和之、押山淳、ナノキャパシタの電気容量における静電遮蔽の効果, 日本物理学会, 2008年9月21日, 岩手大学
- ⑭ K. Uchida and A. Oshiyama, Screening of Electrostatic Field by Dielectric Carbonnanotube, The 1st International Conference of the Grand Challenge to Next-Generation Integrated Nanoscience, June 5, 2008, Tokyo (Japan)
- ⑮ K. Uchida and A. Oshiyama, Multi-Walled Carbonnanotube Capacitor, QSD2008, June 2, 2008, Tokyo (Japan)
- ⑯ K. Uchida, Quantum Effects of Capacitance in Nano-Scale Devices, May 18-23, 2008, 2133th ECS Meeting, Phoenix, Arizona (USA)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

内田 和之 (UCHIDA KAZUYUKI)
 東京大学・大学院工学系研究科・助教
 研究者番号: 10393810

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: