

「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」

平成14年度採択研究代表者

渡邊 聡

(東京大学大学院工学系研究科 教授)

「ナノ物性計測シミュレータの開発」

## 1. 研究実施の概要

原子・分子レベルでの微細加工技術が進んできた現在、この技術を用いて新規な素子を作製する可能性が真剣に探索されている。そのため、作製されたナノ構造の局所的な物性の計測(ナノ物性計測)が重要課題の一つとなっている。しかし、ナノ物性計測の実験データの正しい解釈は、対象とプローブとの強い相互作用や計測時に印加される電場・バイアス電圧の影響等のために必ずしも容易でない。そこで本研究では、ナノ物性計測の中でも特に重要な電氣的刺激を印加する計測について、外場やプローブの影響も取り込んで計測量を予測するシミュレータを作成すると共に、微視的な物理現象・ナノ構造物性と計測量との相関を明らかにし、計測量からナノ構造の物性やナノ領域での物理現象の情報を信頼性高く得るための解析手法の確立を目指している。

平成15年度は前年度に引き続き主にシミュレータ作成のための予備検討を行い、ナノ構造物性と計測量との相関および計測時の微視的物理現象について考察を深める一方、計算プログラム的高速化についても本格的な取り組みを開始した。得られた主要な成果としては、1) ナノ構造の自己キャパシタンスが内部構造によって変化することを見出した、2) 電極間距離が1nm未満の平行平板電極のキャパシタンスが電極表面構造に敏感であることを見出した、3) 計測から得られる見かけの局所トンネル障壁高さを実際の障壁高さとはは探針原子種への依存性が大きく異なることを見出した、4) 半無限電極系計算の基本プログラムを7倍以上高速化した、5) カーボンナノチューブ等の低温熱伝導を解析し、温度の適切なスケーリングにより熱伝導度が物質形状の詳細に寄らない普遍的な形で表されることを見出した、等が挙げられる。

一方で、半無限電極系の基本プログラムで特殊な場合に解が正しく求まらないことが判明する等、想定外の問題も生じた。しかし、重大なものではなく、全体としておおむね順調に研究が進んでいるといえる。

## 2. 研究実施内容

本研究は4つの研究項目からなる。各研究項目の平成15年度の研究内容は下記の通りである。

### (1) 走査プローブ計測シミュレータ

この項目では、本グループが開発した試料-プローブ対向系の電子状態・電気特性計算プログラム（以下半無限電極法と呼ぶ）を基に、プローブ位置微小変化による電流変化検出（局所トンネル障壁高さ計測）やバイアス電圧微小変化に対するプローブ-試料間力変化検出（ケルビン力顕微鏡）等に対するシミュレータを作成する。またこのために必要な基本プログラムの改良を行う。

まず局所トンネル障壁高さ計測については、平成15年度は探針原子種の影響を解析した。Al探針とNa探針についてAl表面の局所トンネル障壁高さのバイアス電圧依存性を調べたところ、ポテンシャル分布自体から推定した場合には両者で定性的な差がないのに対し、実験と同様にトンネル電流から推定すると探針原子種による有意な差がみられた。これは実験で得られる見かけの局所トンネル障壁高さの解釈には注意が必要であることを改めて示すものであると共に、我々が提案するシミュレータの有用性を示唆する結果である。

次にケルビン力顕微鏡については、力を計算するサブルーチンの信頼性チェックを行った。通常の場合にはプログラムが正常に動作することを確認したが、電極間ナノ構造がある条件を満たす電子状態を持つ場合には問題があることも判明した。この問題点の解決は次年度の課題である。

半無限電極法プログラムの改良については、多くの原子種に対応するための非局所擬ポテンシャルの導入に引き続き取り組むと共に、計算速度の向上に取り組んだ。前者の完成は次年度の見込みである。後者については、SR8000上で既に十分並列化していたと思っていたプログラムのノード内並列化効率が悪いことを見出し、この点を改良することによって7倍以上の高速化を達成した。さらに、ロードバランス等のチューニングによりスケールビリティも一段と改善した。一方、ノード内の効率向上をMPI並列化で達成したため、ノードあたりのメモリ使用量が増加している。これは大規模系のシミュレーションに際し問題となるので、次年度改善を図りたい。

### (2) 多端子電気特性計測シミュレータ

この項目では、多探針プローブやナノパターニング電極を用いた電気特性計測に対するシミュレータのプロトタイプを開発することを目標にしている。この第一歩として平成14年度にヒュッケル法レベルの強結合計算プログラムを開発したが、15年度は、このプログラムを用いてポルフィリン5量体分子の電気特性を計算して電極接続位置による電気特性の顕著な変化を見出した他、より精度の高い方法論に拡張する具体的な方法について検討を進めた。

### (3) キャパシタンス計測シミュレータ

この項目ではキャパシタンス計測を取り上げるが、その理由は、キャパシタンスが単一電子トンネル現象などの基礎物理現象においても電子デバイスの動作などの応用面でも重要な物理量であるにもかかわらず、原子レベルでの振舞いがまだよく研究されておらず、また様々な計測法で推定された結果が一致するかどうか不明だからである。そこでまず、実験よりも直接的な方法でキャパシタンスの値を計算し、その物理的意味を明ら

かにする研究に取り組んでいる。

平成14年度に引き続き取り組んだ、電極の原子構造・電子状態と自己静電容量との関係の空間分割法による解析では、炭素クラスター内包フラーレン $C_{60}$ において内包されたクラスターの構成原子数と構造の違いが $C_{60}$ 全体の自己容量の値を大きく左右するという、今まで知られていなかった現象を見出した。この結果は、内部構造を有するナノ構造の自己容量を評価することにより外部からは知り得ない内部原子構造の手掛かりが得られることを意味している点で重要である。また、自己容量に現れる電子数密度依存性が、直径1.5nm以上の球状電極ではほとんど見られないのに対し、直径1nm未満のものでは顕著になることを見出した。これもナノスケール量子ドット(電極)の計測で検出が期待される興味深い量子効果である。

次に、トンネル電流の影響が顕著な領域に対する半無限電極法による解析では、電極間距離が1nm未満の平行平板電極系のキャパシタンスが電極表面構造に大きく依存することを見出した。また、一方の電極に突起がある場合を解析した結果、他グループが信頼性の劣る方法論で理論計算したものと定性的に異なる結果を得た。既報の結果が一見妥当なものであり、広く受け入れられているため、この違いは重要である。次年度にこの違いの原因を詳しく解析したい。

#### (4) 計測に影響を及ぼす局所物理現象の理論解析

この項目の目標は、計測時のプローブ近接や外場印加による原子構造変化や原子振動、温度上昇などの局所物理現象が、計測量に及ぼす影響を明らかにすることである。

計測に影響を及ぼす局所物理現象の中で、原子振動あるいは熱発生・熱伝導は第一に考慮すべき重要なものであるため、まず熱伝導シミュレーション用分子動力学法プログラムの開発を進めている。平成15年度にプログラムはおおむね完成したものの、ダイヤモンドなどの代表的な物質の熱伝導度に関する実験データを再現するには至っていないため、次年度にプログラムの問題点洗い出しとその解決を進める。15年度は、これと並行してカーボンナノチューブおよびグラファイトリボンのフォノンバンドの計算とそれに基づく低温熱伝導度の評価を行った。その結果、数十K以下の低温領域では、温度を適切にスケールリングすることにより熱伝導度が物質形状の詳細に寄らない普遍的な形で表されることをはじめて見出した(図1参照)。熱伝導の量子化・普遍現象に関する研究は、世界的に見てもまだほとんどなく、この知見は重要な意義を持つと思われる。

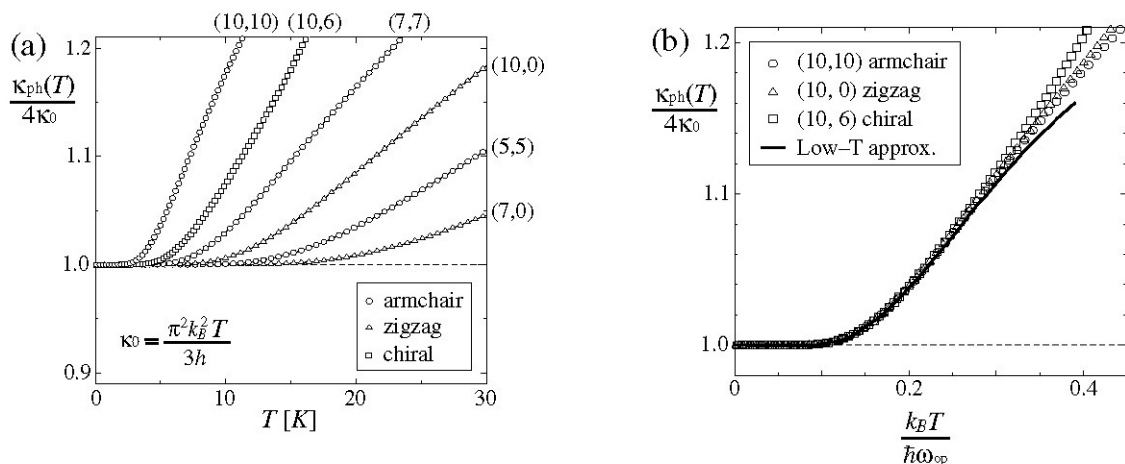


図1：(a)種々のカーボンナノチューブのフォノンによる熱伝導度の計算値。(b)光学フォノン振動数で温度をスケールリングして同じ結果を表したものの。

次に、計測時の原子構造緩和の影響を電極間原子鎖について検討した結果、バイアス電圧が1V程度以上では構造緩和により有意な電流減少が生じることを見出した。また、鎖長によるコンダクタンス変化については、バルク原子間距離を基に構成したモデルに比べ、原子構造を最適化した場合には鎖長依存性が大きく減少することも見出した。以上の結果は、ナノ物性計測シミュレーションにおいては原子構造緩和効果も考慮することが必要であることを強く示唆している。

### 3. 研究実施体制

#### 半無限電極計算グループ

- ① 研究分担グループ長：渡邊 聡（東京大学大学院工学系研究科、教授）
- ② 研究項目：小規模モデル系用シミュレータ開発（特に走査プローブ計測シミュレータの開発と多端子電気特性計測シミュレータの開発）とその成果に立脚した実用的シミュレータ開発

#### 空間分割・時間依存計算グループ

- ① 研究分担グループ長：渡辺 一之（東京理科大学理学部、教授）
- ② 研究項目：小規模モデル系用シミュレータ開発（特にキャパシタンス計測シミュレータの開発と計測に影響を及ぼす局所物理現象の解析手法の確立）とその成果に立脚した実用的シミュレータ開発

### 4. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

#### (1) 論文発表

- M. Tanaka, Y. Gohda, S. Furuya and S. Watanabe: Ab Initio Calculation of Capacitance of Semi-Infinite Jellium Electrodes with a Nano Scale Gap, Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) L766-768

- M. Noda and S. Watanabe: Tight-Binding Calculation of Current Distribution in a Porphin Connected to Two Semi-Infinite Wires, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) L892-894
- M. Araidai, A. Yamauchi and K. Watanabe: Electronic State Origin of Field Emission of Silicon Clusters, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003)6502-6503
- M. Araidai and K. Watanabe: Field Emission of Diamond Surfaces by Time-Dependent Density-Functional Calculations, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) L666-L668
- C. Hu, Y. Gohda, S. Furuya and S. Watanabe: Ab initio calculation of stable structures of a Na atomic chain under bias voltages, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **4** (2003) 585-591
- T. Yamamoto, S. Watanabe and K. Watanabe: Universal Features of Quantized Thermal Conductance of Carbon Nanotubes, *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 0755021-0755024
- C. Hu, S. Furuya, Y. Gohda and S. Watanabe: Effects of structural relaxation on resistance of Na Atomic Chains, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **1** (2003)106-109

(2) 特許出願

H15年度特許出願件数 : 0件 (CREST研究期間累積件数 : 0件)