

「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16年度は一部のテーマでナノ構造物性－計測量間の相関および計測時の微視的物理事象についての考察を引き続き深めていったが、多くのテーマで前年度までの成果を踏まえて小規模モデル系用シミュレータに対するより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) 局所ポテンシャル障壁高さ計測の走査像計算を初めて行ない、観測されている走査トンネル顕微鏡像と障壁高さ像との見かけの矛盾を再現した、2) 1次元鎖以外の半無限電極に対応できる多端子電気計測シミュレータを開発した、3) MPIとOpenMPの併用により電界・電流下電子状態計算プログラムの一層の高速化とメモリ削減を達成した、4) 熱伝導シミュレーションのための分子動力学法プログラムを開発し、炭素物質の熱伝導率の実験値をほぼ再現することができた、5) 分子架橋を流れる電流が分子振動から受ける影響を電子状態から定量的に明らかにした、等が挙げられる。

一方、一部のテーマでは作成したプログラムの信頼性チェック・不具合修正が予定より遅れ気味である。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16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年度まで探針の表面平行方向位置を固定して原子種やバイアス電圧への依存性等を解析していたのに対し、平成16年度は表面平行方向に探針を走査した像の計算を行なった。局所トンネル障壁高さの走査像を計算したのは世界的にも初めての試みである。これまでに報告されている局所トンネル障壁高さ像の原子レベルの凹凸は、同じ試料に対して得られた走査トンネル顕微鏡像の凹凸と定性的に同じであったが、これは「トンネル障壁の高いところでは電子が透過しにくい」という直感と矛盾していた。今回の計算の結果、既往の実験事実と一致する見かけ上の矛盾が再現されると共に、計算で同時に得られたポテンシャル分布等は上記の直感と一致していることがわかった。この結果は局所トンネル障壁高さ像に対する既存の物理的意味づけの修正を迫るものであり、我々が提案するシミュレータの有用性を示すものであると同時に、今後結果に対する考察を深めることにより実験家にとって大変有用な知見を提供しうる可能性があるといえる。

次にケルビン力顕微鏡は、このシミュレーションに必須となる、半無限電極に作用する力の計算のためのサブルーチンの作成に着手した。このサブルーチンの信頼性チェックの過程で、基本プログラムに精度低下をもたらす不備があることを見出し、修正したが、数値誤差の大きさと振舞いにまだ若干問題が残っており、プログラムの信頼性チェックを続けている。次年度の早い時期にこの問題を解決したい。

半無限電極法プログラムの改良に関しては、まず、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んでいる。コーディング自体は一通り完了しており、試験計算を行ないながら信頼性チェックおよび不備の修正を重ねている段階である。次に計算速度の向上については、前年度までの改良で残された課題であったメモリ使用量の増加の問題を解決するために今年度MPIとOpenMPとの併用による並列化を試み、メモリ使用量のある程度の削減と計算速度の一層の向上を達成できた。平成16年度末に本チームにOpteronプロセッサによる計算機クラスタを導入したこと、また本研究の試験計算に使用している東京大学物性研究所のスーパーコンピュータシステムが平成17年度から新しい機種に更新されることから、平成17年度にはこれらの新しい計算機環境の中でプログラムの性能評価と改良を行っていく。

(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ン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。平成15年度までにヒュッケル法レベルの強結合計算で3個以上の半無限1次元鎖電極に対応できるプログラムを開

発したが、16年度はこのプログラムをさらに改良し、半無限電極が1次元鎖でない場合にも対応できる多端子電気計測シミュレータを開発した。

これを用いて単純立方格子結晶表面の電気伝導を解析したところ、入射電子エネルギーによっては表面伝導に予想外の異方性が現れた。その後の文献調査で類似の結果の報告があることが判明したが、探針まできちんと考慮した計算は本研究が初めてである。この結果は、ナノスケールの多端子電気特性計測によって伝導特性の探針位置への顕著な依存性など興味深い新現象が現れうることを示唆している。実験家に対して具体的な実験の提案を行なって新現象の探索を行なうと共に、より信頼性の高い方法へのプログラム改良を今後行っていく。

(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も明らかでないからである。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。

まずトンネル電流を無視できる系に対しては、平成15年度までにカーボンナノチューブ、フラーレン、有機分子などのナノスケール構造からなる対向電極の静電容量の計算およびジュリウム模型で近似した金属球の自己静電容量と電子状態の相関についての解析を行い、開発してきたプログラムがナノスケール構造の静電容量の定量的評価とその物理解釈を可能にすることを確認した。それを踏まえ、平成16年度は小規模モデル系シミュレータ開発に向けたプログラム整備とマニュアル作成に着手した。三角形グラフェンの自己静電容量の計算をすることで、本シミュレータで計算可能な電極構造・構成原子種の確認、計算条件の洗い出し、パラメータセットの整理を行ってきた。今後、簡潔で解り易いフォーマットを念頭にマニュアル作成を継続し、ユーザーインターフェイス部分の具体的な検討も進めたい。

次に、トンネル電流の影響が顕著な系に対する半無限電極法による解析では、一方の電極に突起がある場合を引き続き解析した。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原因を探るために非自己無撞着計算を試みたところ、キャパシタンスの電極間距離依存性について他グループの計算と定性的に一致する結果を得た。この結果の解釈には注意を要する点もあるが、本研究の結果の信頼性の高さを示唆している可能性は高いといえる。一方、実験では他グループの計算結果と同じ傾向を示すデータが1例だが報告されており、この理由を探るためにキャパシタンス計測時の構造緩和の影響を調べた。試料-探針近接時にはこの構造緩和が有意な影響を与えることを見出したが、今後計算例を増やしてより詳細に解析を進める予定である。

(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(MD)プログラムの開発を進めてきた。平成16年度は、熱伝導率計算のためのMDプログラムとして平衡MD法(直接法)と非平衡MD法のプログラム開発を行なった。特に、ダイヤモンドやカーボンナノチューブに代表される炭素構造の熱伝導率に関して実験データを良く再現することができたのは大きな収穫である。一方、それぞれの手法の長所・短所が明らかになったので、今後対象とする系の構造・原子種によって2つの手法を使い分けてゆく。また、原子間ポテンシャルに従来の短距離力によるものの他にファン・デル・ワールス力のような長距離力によるものを導入することで、プログラムの汎用性を高める計画である。

16年度は、これと並行して電流による熱発生の問題に取り組んだ。このために二電極間を流れる電流を分子振動による非弾性散乱の効果まで含めて非平衡グリーン関数で評価するプログラムを開発した。これを用いて最小フラーレン C_{20} を挟む金の二電極間を流れる電流を調べたところ、 C_{20} の分子振動が励起される特徴的な電圧で微分電気伝導度が増大することを見出し、それに伴う発生熱量も評価することができた。さらに、電流と分子振動の相互作用を定量的に評価することで微分電気伝導度の変化の電子状態起源を明らかにした。この成果は、最近特に注目されているナノスケール電気伝導の研究分野にあって重要な意義を持つと言える。

この他、時間依存法プログラムを用いた解析で炭素物質に含まれる構造欠陥からの電界放射に関する新しい知見を得た。さらに同プログラムを有機分子の光学応答関数の計算に応用し、実験データとよい一致を得た。

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 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

(1) 論文発表

- H. Totsuka, Y. Gohda, S. Furuya and S. Watanabe: Theoretical Analysis of the Bias Voltage Dependence of Apparent Barrier Height, *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 155405 1-5.
- Y. Gohda and S. Watanabe: Theoretical Analysis of Field Emission from Metallic Nanostructures on Si(100) Surfaces, *Journal of Physics-Condensed Matter*, **16** (2004) 4685-4696.
- T. Kadohira, J. Nakamura and S. Watanabe: First-principles study on the atomic and electronic structures of the Au/Si(111)- α ($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30° surface, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.*, **2** (2004) 146-150.
- M. Tanaka, Y. Gohda, S. Furuya and S. Watanabe: Ab initio Evaluation of Capacitance Between Electrodes with a Nano Scale Gap, *Trans. Materials Res. Soc. Jpn.*, **29** (2004) 3691-3694.
- M. Noda and S. Watanabe: Tight-Binding Calculation of Electrical Properties of a Single Molecule Connected to a Few Semi-Infinite Electrodes, *Trans. Materials Res. Soc. Jpn.*, **29** (2004) 3687-3690.
- K. Watanabe, M. Araidai and K. Tada: Field Emission and Electronic Structures of Carbon Allotropes, *Thin Solid Films*, **464-465** (2004) 354-359.
- T. Yamamoto, S. Watanabe and K. Watanabe: Low-Temperature Thermal Conductance of Carbon Nanotubes, *Thin Solid Films*, **464-465** (2004) 350-353.
- N. Nakaoka and K. Watanabe: Density-Functional Calculations of Self-Capacitances of Carbon Nanostructures, *Thin Solid Films*, **464-465** (2004) 346-349.
- M. Araidai and K. Watanabe: *Ab Initio* Study of Field Emission from Hydrogen Defects in Diamond Subsurfaces, *Appl. Surf. Sci.*, **237** (2004) 483-488.
- K. Watanabe, M. Araidai, K. Tada and A. Yamauchi: Time-Dependent Density-Functional Calculations of Field Emissions from Carbon Allotropes, *Trans. Materials Res. Soc. Jpn.*, **29** (2004) 3681-3685.
- T. Yamamoto, K. Watanabe and K. Mii: Empirical Potential Study of Phonon Transport in Graphitic Ribbon, *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 245402 1-7.
- M. Araidai, Y. Nakamura, K. Watanabe: Field Emission Mechanisms of Graphitic Nanostructures, *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 245410 1-5.
- 宋応文、古家真之介、渡邊聡: ナノ物性計測シミュレータのための境界マッチング密度汎関数法プログラムの高速化とその性能評価, *情報処理学会論文誌コンピューティングシステム*, **45** (2004) 144-150.