

「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

ナノメートルスケールで制御して微細な構造を作製する技術が近年進んでいる。これを用いて新規な素子を作製する可能性を探索する上で、作製されたナノ構造の局所的な物性を計測し(ナノ物性計測)、有用な構造を設計するための指針を導くことが重要である。しかし、ナノ物性計測の実験データの正しい解釈は必ずしも容易でない。対象とプローブとの相互作用や計測時に印加される電場(バイアス電圧を含む)の影響がナノ物性計測においては大きくなること等がその原因である。

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(バイアス電圧を含む)を印加する計測に焦点をあて、外場やプローブの影響を取り込んで電流などの計測量を予測するシミュレータを作成する。さらに、このシミュレータを用いた解析により微視的な物理現象・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に関する情報を信頼性高く導出するための解析手法を確立する事を目指す。

最終的には実験家が実験データ解析に利用できるナノ物性計測シミュレータを目指し、本研究グループがこれまでに開発してきた方法論をはじめとした、主に密度汎関数法に基づくいくつかの方法論を用いてシミュレータの作成を進めている。既に小規模系を対象としたシミュレータは多くのサブテーマについて試行計算可能な段階に達しており、試行計算の結果、局所障壁高さ像の持つ物理的意味を明確にした、分子架橋を流れる電流と分子振動モードおよび電子状態との関連を明らかにした等の顕著な成果を挙げている。

本研究の成果としては、開発するシミュレータが広く実験解析に使用されることが期待されるのに加えて、ナノ物性計測結果の解釈に関して本研究の過程で得られる上記のような数々の知見自体、今後のナノ物性計測解析に大変有用であると期待される。また、本研究における計測結果の理論解析が新しい計測モードの提案につながる可能性もあり、この可能性も常に念頭において本研究を進めている。

2. 研究実施内容

本研究は 4 つの研究項目からなる。各項目の平成 17 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、走査プローブ顕微鏡のプローブ位置の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)等のナノ物性計測法に対するシミュレータを、本グループで開発済の境界マッチング密度汎関数(BSDF)法を用いて作成する。さらに、得られる計測量の解釈法を確立することを目指す。

まず局所トンネル障壁高さ計測については、平成 16 年度に走査像のシミュレーションを世界で初めて行ってトンネル障壁高さ像とポテンシャル分布とで凹凸が反転していることを見出したので、平成 17 年度はこの結果についてさらに解析を進めた。そして、探針位置を表面平行方向に走査した際にトンネル電流の広がり方が探針位置により異なることからこの結果を理解できることがわかった。この結果は、実験データの解釈の際に有用な指針となるものである。今後は、ユーザーインターフェイス等の整備を行うと共に、試行計算とその解析を続け、より簡便な計算で障壁高さの振舞を予測する方法を探索する。同時に、「局所障壁高さ」という物理的イメージにより近い結果を与える計測法の考案も試みたい。

次にケルビン力顕微鏡については、シミュレータの根幹となる、プローブに働く力を計算するサブルーチンの開発を平成 16 年度に引き続いて行い、一応の完成をみた。しかし試行計算の結果、電極間距離が短くトンネル電流が無視できない領域では 2 電極の力がつりあわず、系全体として一方向に働く力が働くことを見出した。さらに、これが BSDF 法だけでなく類似の他の方法論にも見られるものであることを明らかにした。これは従来気づかれていなかった問題であるため、重要な知見といえる。今後は、この点についてさらに解析・考察を行った上で、ケルビン力顕微鏡像のシミュレータ作成を進めていく。

以上の他に基本プログラムの性能向上も引き続き図っているが、平成 17 年度は多原子種に対応するための非局所擬ポテンシャルの組み込みが第二周期元素についてほぼ完了した。重元素についても完成を急いでいる。

(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。

平成 16 年度までに、ヒュッケル法レベルの強結合法を用いて3個以上の半無限電極と接続した分子の電気特性を計算するプログラムを開発した。平成 17 年度は、このプログラムを用いて表面上に置かれたナノ構造に対する 2 探針電気特性計測のシミュレーションが可能であることを試行計算で実証した。具体的にはナノ構造として 5 原子からなる原子鎖を用いたが、原子鎖と表面との相互作用による電流の表面への染み出し方の違いなど、興味深い結果が得られている。

さらに、この結果と関連研究の状況を踏まえ、強結合法の計算速度と密度汎関数法の信頼性をあわせ持つ密度汎関数強結合(DFTB)法と非弾性散乱等の効果を組み込むことが比較的容易であるグリーン関数法とを実用的シミュレータのベースに選定し、より本格的なシミュレータの作成を進めている。今後はまずこのプログラムの早期完成を目指す。

(3) キャパシタンス計測シミュレータ

この項目では、ナノ構造の電気特性計測やナノデバイスの動作において重要な物理パラメータになることが多いにもかかわらずナノスケールでの定量的評価がほとんどされていないキャパシタンスを計算するシミュレータを開発する。また、キャパシタンスが様々な物理現象を利用して間接的に推定されることに鑑み、単一電子トンネル特性計測やエネルギー散逸計測等、キャパシタンスが強く関係する計測に対する理論解析を進める。トンネル電流が無視できない場合には BSDF 法を用いたシミュレータで、電極間トンネル電流が無視できる場合については本研究グループで開発した空間分割密度汎関数(PRDF)法プログラムを利用したシミュレータで、それぞれ対応していく。

トンネル電流が無視できない場合については、平成 16 年度に平行平板電極系の片側の電極に突起がある場合を解析し、他グループが信頼性の劣る方法論で計算したものと定性的に異なる結果を得た。平成 17 年度はこの違いについて検討を続け、他グループが自己無撞着には計算していない点と共に、計算におけるバイアス電圧の定義の違いが原因である可能性を明らかにした。バイアス電圧の定義の問題はナノスケール電気特性計算の既存の方法論への重要な問題提起となる可能性があり、今後引き続き考察を進めていく。また、非接触原子間力顕微鏡におけるエネルギー散逸計測に対して我々のキャパシタンス計算が有用との示唆を実験研究者から受け、当初の計画外ではあるがこの計測に対する解析も進めた。探針振動に伴うキャパシタンス変化からジュール熱発生によるエネルギー散逸を評価したところ、「探針－試料間距離を短くしていくとある所までは散逸が増え、ごく近距離で逆に減少していく」という実験結果を定性的に再現することができた。

一方、トンネル電流が無視できる場合については、平成 16 年度までに様々なナノ構造系の静電容量を計算・解析し、開発し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できた。そこで平成 17 年度には、実験家を含む一般ユーザーが利用しやすいシミュレータ開発に向けたプログラム整備を行った。また、マニュアル作成を進めるとともに、ユーザーインターフェイス部分の検討にも着手した。

平成 17 年度には、キャパシタンスに関連した興味深い現象として代表的なクーロンブロックード効果の解析を行うために、PRDF 法を応用したプログラム開発に着手した。今後、このプログラム開発を進めると共に、完成した部分の整備作業も引き続き進め、電子デバイス応用技術に関連した分野で実験解析・設計の補助手段として利用されると期待されるソフトウェアの完成・公開を目指す。

(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どのように影響を及ぼすか解明することを目的とする。具体的には特に重要な原子振動あるいは熱発生・熱伝導のための手法・プログラム開発、および熱振動の電流への影響の解析手法・プログラムの開発を中心とし、それ以外の種々の現象、例えばナノ計測時の電界電子放射や光学応答などの非平衡局所電子現象の解析手法の開発にも検討対象を広げていく。

熱伝導解析については、平成 16 年度までに開発した分子動力学法プログラムを用いて平成 17 年度はカーボンナノチューブに混入される原子状欠陥の種類・数・分布が熱伝導度を与える影響を解析した。特に、欠陥周辺の局所温度分布は熱伝導のミクロな側面を浮き彫りにした新しい知見である。図1にその結果の一例を示す。空孔欠陥が1%混入するだけで温度分布の傾きが急になっていることが見て取れるが、熱流量を見積もった結果からこの場合に熱伝導率が著しく減少することがわかった。今後は、炭素以外の原子種用のポテンシャル組み込みの後、高速化チューニングを進める。

この他、平成 16 年度までに開発した時間依存密度汎関数法に基づく光学応答関数解析プログラムを用いて、平成 17 年度には芳香族分子の光吸収スペクトルを計算し、実験結果に物理解釈を与えることができた。またグラフェンナノ構造の光吸収スペクトルを計算し、理論予測はされてきたがまだ検証実験のない“エッジ状態”に関係した構造がスペクトルに出現することをはじめて示した。これらのプログラムも、今後、汎用性を高め一般ユーザーが使いやすい形に整備していく。

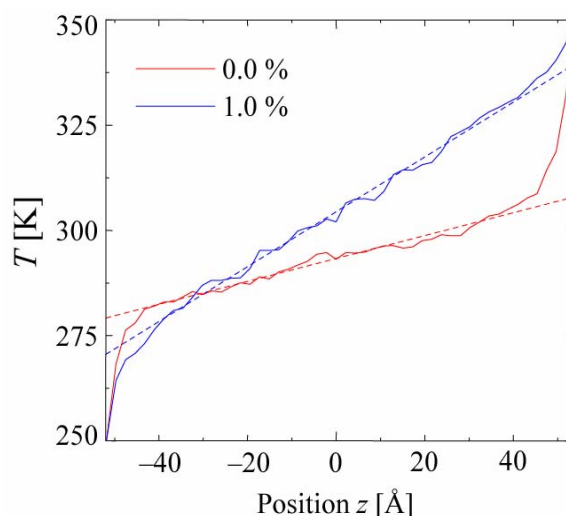


図 1：左端を 250K、右端を 350K の熱浴で挟んだ(8,0)カーボンナノチューブの温度分布の分子動力学シミュレーション結果。

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の開発

4. 主な研究成果の発表

(1) 論文 (原著論文) 発表

- H. Totsuka, S. Furuya, and S. Watanabe, “Theoretical analysis of apparent barrier height on an Al Surface: Difference by measurement methods”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 44 7B (2005) pp.5459–5461.
- T. Yamamoto, K. Watanabe, and S. Watanabe, “Electronic Transport in Fullerene C₂₀ Bridge Assisted by Molecular Vibrations”, Phys. Rev. Lett., Vol. 95 6 (2005) pp.065501-1–065501-4.
- S. Tanibayashi, T. Tada, S. Watanabe, and K. Yoshizawa, “Computational Study on Stable Structures, Formation Energies, and Conductance of Single Benzene-dithiolate between Two Au Electrodes”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 44 10 (2005) pp.7729–7731.
- H. Tanaka, H. Nakayama, K. Watanabe, “Ab Initio Calculation of Work Function of ZrO/W(100) and YO/W(100) Surfaces”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 44 10 (2005) pp.7618–7620.
- T. Tada and S. Watanabe, “Submatrix inversion approach to the ab initio Green’s function method for electrical transport”, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, in press.
- T. Noguchi, T. Shimamoto and K. Watanabe, “Photoabsorption Spectra of Graphitic Nanostructures by Time-Dependent Density-Functional Theory”, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, Vol. 3 (2005) pp.439–443.
- M. Araidai, S. Souma and K. Watanabe, “Comparative Study of Time-Dependent and Scattering-State Ab Initio Calculations for Field Emission”, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, Vol. 3 (2005) pp.457–460.
- S. Souma, T. Yamamoto and K. Watanabe, “Electronic Transport Properties of Graphitic Ribbons under Finite Bias Voltages”, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, Vol. 4 (2006) pp.78–83.
- N. Kondo, T. Yamamoto and K. Watanabe, “Molecular-dynamics simulations of thermal transport in carbon nanotubes with structural defects”, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, Vol. 4 (2006) pp.239–243.
- 山本貴博、渡辺一之、渡邊 聡、「カーボンナノチューブの熱伝導における普遍的量子化現象」、表面科学、24 7 (2005) pp.398–403.