

「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

ナノメータ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は、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。既に多くのサブテーマについて小規模系を対象とした試行計算が行える段階まで開発が進み、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、ナノ物性計測の計測量の物理的意味や計測時の物理的現象を明らかにする種々の成果を挙げている。平成 18 年度は、これに加えてシミュレータの公開を念頭においたグラフィカルユーザーインターフェイスの整備も一部のサブテーマについて行った。最終年度である平成 19 年度は、シミュレータによる物理的解析をもう一段進めて集大成すると共に、開発したシミュレータの公開に向けたシミュレータの整備を行う。

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つのサブテーマからなる。それぞれのサブテーマについての平成18年度の研究内容を以下に記す。

(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17年度までのシミュレーションにより、実験から得られるトンネル障壁高さ像にはトンネル電流の広がり具合に依存した補正項が加わっていること等、計測量の物理的意味を明確化する知見を得ることができた。これを踏まえ、18年度はそれまで金属表面のみで解析を進めていたのに対し半導体であるシリコン表面を取り上げて同様の解析を行った。前年度までに得た結果の妥当性・一般性を確認できた他、半導体に特有な印加バイアス電圧によるバンド湾曲についても情報が得られそうで、現在詳細な解析を進めている。最終年度は、ユーザーインターフェイス等を整備すると共に、より簡便な計算で障壁高さの振舞を予測する方法の確立にも取り組む。

次にケルビン力顕微鏡については、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ないという現象を17年度までに見出したことを踏まえ、BSDF法だけでなく類似の他の方法論も用いて試験計算と解析を行った。前年までの解析では計算精度が不十分だった点等も明らかとなったが、この点を解決してもなおシミュレータ実用化に問題が残っており、最終年度はこの解決に全力を注ぐ。

(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17年度までに、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なプログラムをヒュッケル法レベルの強結合法を用いて開発し、試行計算を行った。18年度は、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た。既にバイアス電圧を印加しない場合については自己無撞着計算が可能なプログラムを完成させており、最終年度はバイアス電圧印加計算まで含めてこのプログラムを完成させることを目指す。

(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 17 年度までに平行平板電極系を中心に解析を進め、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等の問題点についてもその原因をほぼ解明できた。平成 18 年度は、これを踏まえて両電極に突起構造をもつ量子点接触系等についても解析を行った。開発したシミュレータがこのような系にも問題なく適用できることが確認できたが、キャパシタンスの電極間距離依存性については予想と異なる振る舞いが得られた。最終年度は、この振る舞いの物理的意味を解析すると共に、公開に向けたシミュレータ整備を行う。

一方トンネル電流が無視できる場合については、様々なナノ構造系の静電容量についての試行計算の蓄積を踏まえ、他のサブテーマに先駆けて、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 (Quantum Capacitance Simulator (QCAPS)) の開発に取り組んできた。平成 17 年度までにプログラム本体とマニュアル作成を行ったことを踏まえ、平成 18 年度はユーザーインターフェイス部分作成を業者に外注し、それを GUI of QCAPS (G-CAP) として QCAPS 支援ソフトウェアを整備した。その際、QCAPS も入出力部分を中心に改良を行った。一方、QCAPS を用いて炭素クラスターとアルカン分子の自己キャパシタンスを計算し、それをデータベース QSCM として公開する予定である。平成 19 年度は、G-CAP を使って実際にシミュレータを動作させ、必要であれば QCAPS のチューニングも行いながら、ノウハウを蓄積し、これを他のサブテーマのシミュレータ開発・整備に活かしていく。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。

平成18年度は、まず熱伝導解析に用いてきた分子動力学 (MD) 法と相補的な手法である非平衡グリーン関数 (NEGF) 法を使ったフォノン熱伝導の理論を構築し、それによってカーボンナノチューブの低温熱伝導度が示す量子性と構造欠陥依存性を定量的に明らかにした。一方、MD 法を応用して開発したフォノン波束打ち込みシミュレータによって、フォノンの欠陥による散乱の素過程が可視化できるようになった。このプログラムも汎用性を高め一般ユーザーが使いやすいプログラムに整備してゆく。

この他、NEGF法と密度汎関数 (DFT) 法を組み合わせた (NEGF+DFT法) 電気伝導解析用プログラム開発を行い、カーボンナノチューブとグラフェン架橋構造の電気伝導度がゲート電圧によって容易に制御できることを明らかにした。このプログラムは、(2) 多端子電気特性計測シミュレータとその方法論に近いことから、シミュレータ開発に際しては今後密な連携をとることとする。また、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、欠陥が混入したポリアセチレンとDNAの4種の塩基の光吸収スペクトルを計算し、構造とスペクトルの相関を明らかにした。平成19年度に本プログラムをシミュレータに向け整備するが、その際、先のQCAPSのエンジン部分に時間依存計算ルーチンを組み込む方針で行う。

最後に、ナノ構造に大きな電流が流れる場合に原子構造が受ける影響を明らかにする目的で、カーボンナノチューブ吸着原子に働く力の解析を NEGF+DFT 法で、電界電子放射する Na 表面から表面原子が蒸発する際のポテンシャル計算をリチャージン伝達行列 (RTM) 法で、それぞれ行った。引き続き、平成19年度はナノスケール電気伝導・放射計測に影響を及ぼす局所原子挙動についての知見を総括できるよう、同方法による数値解析を進める。

3. 研究実施体制

(1) 「半無限電極計算」グループ

①グループリーダー

渡邊 聡 (東京大学大学院工学系研究科 教授)

②研究項目

- ・走査プローブ計測シミュレータの開発
- ・多端子電気特性計測シミュレータの開発

- ・キャパシタンス計測シミュレータ（電極間トンネル電流が無視できない場合）の開発
発

(2) 「空間分割・時間依存計算」グループ

① グループリーダー

渡辺 一之（東京理科大学理学部 教授）

② 研究項目

- ・キャパシタンス計測シミュレータ（電極間トンネル電流が無視できる場合）の開発
- ・計測に影響を及ぼす局所物理現象の解析手法の確立

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

- Y. Gohda and S. Watanabe, “Bistability in a H-terminated Si(100)2 × 1 surface obtained by ab initio transport calculations”, Surf. Sci., Vol.600 (2006) pp.62-65
- S. Souma, T. Yamamoto, K. Watanabe, “Electronic Transport Properties of Graphitic Ribbons under Finite Bias Voltages”, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol. Vol.4 (2006) pp.78-83
- N. Kondo, T. Yamamoto, K. Watanabe, “Molecular-dynamics simulations of thermal transport in carbon nanotubes with structural defects”, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol., Vol.4 (2006) pp.239-243
- S. Furuya, Y. Gohda and S. Watanabe, “Dependence of Electric Properties of Al Atomic Chains on the Structure of Chain-Electrode Junction”, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol., Vol.4 (2006) pp.570-573
- T. Kadohira, and S. Watanabe, “First-principles study of conduction through a sodium atomic sheet”, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol., Vol.4 (2006), pp.507-509
- T. Yamamoto, K. Watanabe, “Nonequilibrium Green's Function Approach to Phonon Transport in Defective Carbon Nanotubes”, Phys. Rev. Lett., Vol.96, (2006) pp.255503-1–255503-4
- N. Kondo, T. Yamamoto and K. Watanabe, “Phonon Wavepacket Scattering Dynamics in Defective Carbon Nanotubes”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.45 (2006) pp.L963-L965
- T. Yamamoto, T. Noguchi, and K. Watanabe, “Edge-state signature in optical absorption of nanographenes”, Phys. Rev. B [Rapid Comm.], Vol.74 (2006), pp.121409-1–121409-4.
- T. Tada and S. Watanabe, “Submatrix inversion approach to the ab initio Green's function method for electrical transport”, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol. Vol.4 (2006) pp.

484-489

- S. Tanibayashi, T. Tada, S. Watanabe, H. Sekino, "Effects of energetic stability in transport measurements of single benzene-dithionate by the STM break junction technique", Chem. Phys. Lett., Vol.428 (2006) pp.367-370