

スーパーコンピュータを用いたシミュレーションによる ナノスケール構造体の電子輸送現象の解析

広瀬喜久治 後藤英和 稲垣耕司 小野倫也

大阪大学 大学院工学研究科 精密科学専攻、超精密科学研究センター

われわれは、量子力学に基づくコンピュータシミュレーションプログラムを開発するとともに、これを用いて加工プロセスやナノ電子デバイスの電気的特性を解明する研究を行っている。本稿では、新たに開発したナノ構造の電気伝導特性シミュレーションについて述べるとともに、シミュレーションを利用した成果について述べる。

1. はじめに

近年、デバイスのサイズの微細化が進むにつれ、ナノスケールの電子素子の電気伝導特性に対する興味が高まってきている。通常のマクロスケールの金属や半導体中の電子伝導は、電界で加速されつつ非弾性散乱を繰り返して運動エネルギーを失うために、電場の大きさに比例する平均速度を示す。これはいわゆるオームの法則である。一方、平均自由行程より小さいナノスケールの素子が電極に挟まれた構造体では、素子内を伝導する電子の大部分は散乱されずに構造体の端から端まで弾道的(ballistic)に透過することができるので、オームの法則とはかなり趣の異なる伝導現象が発現する。たとえば、巨視的な系では隠されていた電子運動のコヒーレンスが顕著になり、コンダクタンスの量子化、非線形な電流－電圧特性、クーロン・ブロッケード効果など、さまざまな特異な物性が現れてくる。実際に、ベンゼンチオールや DNA 分子、自己組織化単分子膜 1 層などのコンダクタンスが、 $G_0(=2e^2/h$: e は電気素量、 h はプランク定数)を単位とした電気伝導性を示すことが実験的手法により明らかにされている¹⁾。

このようなナノスケールの物質の特異な電気伝導を動作原理とすることで、これまでの MOS トランジスタなどとは全く違う、微細で高速処理が可能な新しい情報処理回路素子が実現できるのではないかと期待されている。しかし、それらを探索する実験的手法は非常に手間がかかるため、シミュレーションに基づく手法を用いて効率的に研究開発を進めることが不可欠である。近年の計算機および計算手法の発展により、このようなナノスケールでの電子輸送現象を量子力学の第一原理から計算で予測することが可能になってきた。本稿では、われわれが開発した Overbridging boundary-matching (OBM) 計算法²⁻⁴⁾とそのプログラミングについて述べるとともに、

最近の研究から、フラーレンの電子輸送現象を例として紹介したい。

2. ナノスケール構造体における電気伝導の理論とそのプログラミング

金属や半導体のナノ細線における電気伝導の基礎理論は、久保⁵⁾およびランダウアー⁶⁾によってほぼ同時期に発表された。ナノスケールの電気伝導特性解析に限れば、ランダウアーの公式の方が使い勝手がよく、この公式によれば、電気伝導は次式で与えられる。

$$G = G_0 \sum_i T_i \quad (1)$$

ここで、 T_i は透過確率と呼ばれる量である。われわれは、散乱波動関数を直接計算し、透過確率を求める方法を採用し、OBM法²⁻⁴⁾を開発した。本手法は半無限の結晶電極に挟まれたナノスケール構造体の電子輸送現象を高精度にかつ能率的に計算できる第一原理計算手法である。

この種の半無限のモデルを扱う場合、急激な振幅の増大を伴う波の解が（非物理的であり捨てられるべきではあるが）必ず存在するため、必要とされる物理的に意味のある解を算出するためには、桁落ちしない十分な数値計算精度が要求される。この状況では、近似の精度を上げようとモデルを分割するメッシュ数を増加させると、さらに深刻な桁落ちが生じ、かえって計算精度が低下するというジレンマに陥る場合が多い。われわれのOBM法はこの困難を取り除く手法であり、これによってはじめて実用的な計算の可能性が開けたといっても過言ではない。アルゴリズムの詳細は参考文献²⁻⁴⁾を参照していただきたいが、数値計算のカナメの部分は、ハミルトニアン行列の逆行列の演算である。一般に大規模行列の逆行列演算の計算量は行列次数 N の 3

$$H = \begin{pmatrix} * & * & & & & & \\ & * & * & & & & \\ * & * & * & & & & \\ & * & * & * & & & \\ & & * & * & * & & \\ & & & * & * & * & \\ & & & & * & * & * \\ 0 & & & & & * & * & * \\ & & & & & & * & * \\ & & & & & & & * \end{pmatrix} \quad H^{-1} = \begin{pmatrix} \boxed{***} & * & * & * & * & * & \boxed{***} \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ \boxed{***} & * & * & * & * & * & * & \boxed{***} \\ * & * & * & * & * & * & * & * \\ * & * & * & * & * & * & * & * \end{pmatrix}$$

図1 扱うスパースなハミルトニアン行列と、その逆行列のうち必要な要素（概要）

乗に比例して大きくなるが、OBM 法は実空間差分法⁷⁾をベースとした計算手法であるため行列がスパースとなり、共役勾配法などの反復法を用いることにより計算量を低減できる。また、逆行列のうち実際に必要な要素は図 1 に示すような四隅の領域に限定されているので、さらに計算量を減らすことが可能である。このような計算のためのプログラムは、汎用的ではないためライブラリには含まれていないが、プログラムを開発すればスーパーコンピュータのベクトル化・並列化機能を生かした高速計算を実現できる可能性がある。また逆に、そうしなければシミュレーションを用いた研究開発は実用的なものとならない。そこでわれわれは、東北大学情報シナジーセンターとの共同研究を活用することにより、プログラム開発を効率的に行うことにした。最終的にプログラム要素として活用された手法は、これまでに発表されているものの延長線上であるため、テクニックの詳細は省略する⁸⁾。

3. フラーレンを介した電気伝導のシミュレーション

ここでは、最も小さいフラーレンである C_{20} 分子の電子輸送特性について紹介する。

図 2 に、計算に用いたモデルを示す。1 つあるいは 2 つの C_{20} 分子が金のジェリウム電極で挟まれており、電極表面とは単結合[図 2 (a), (c)]、または二重結合[図 2 (b), (d)]で結ばれている。通常、バンドギャップを持つ物質は電気伝導性を示さないが、 C_{20} 分子は孤立状態ではバンドギャップを持っているにもかかわらず、電極に挟むとある程度のコンダクタンスを持つ。計算の結果、電極から分子に電子が流れ込んでバンドギャップが無くなり、分子が導体になるためであることが分かった。分子の部分

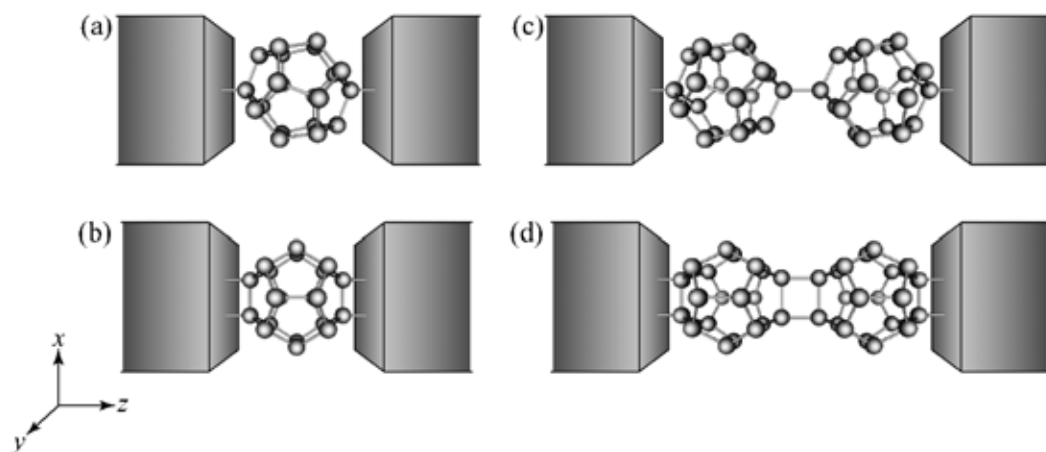


図 2 計算モデル。(a) 単結合モノマー。(b) 二重結合モノマー。(c) 単結合ダイマー。
(d) 二重結合ダイマー。

で増えた電子の量は、単結合のモノマーで 3.15%、二重結合のモノマー場合で 2.30%、単結合のダイマーで 0.68%、二重結合のダイマーで 0.68%であり、モノマーの方が多くの電子が流れ込んでいることが分かった。

モノマーとダイマーのコンダクタンスを比べてみると、ダイマーの方が極端に小さい。仮にオームの法則が成り立つとすれば、分子と電極の接触抵抗を無視したとして

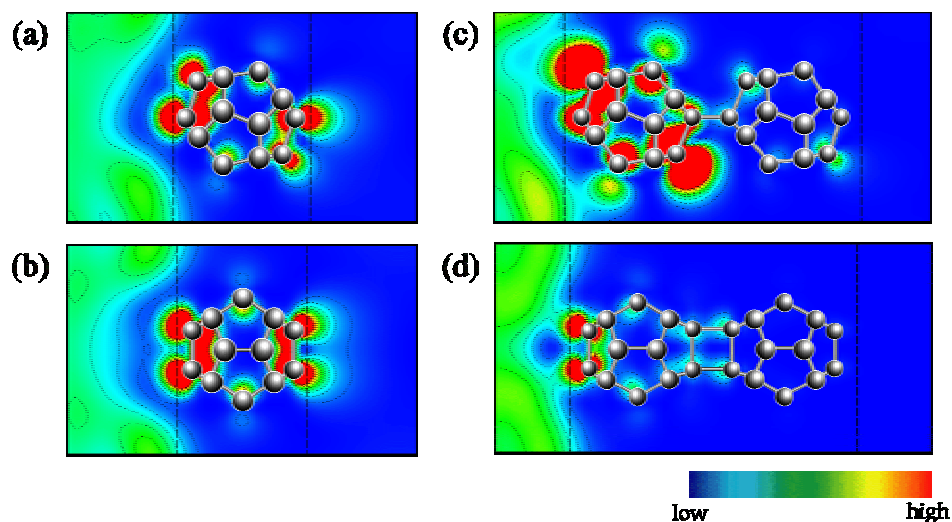


図 3 伝導に関わる電子の空間密度分布。左の電極から入射するフェルミエネルギーを持った電子の分布を示している。文献 10 より転載。

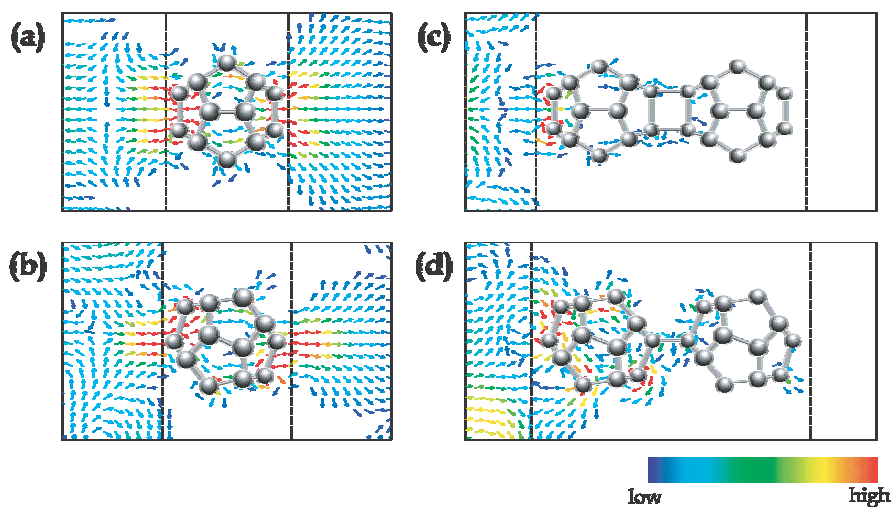


図 4 伝導に関わる電子の電流密度分布。左の電極から入射するフェルミエネルギーを持った電子の分布を示している。文献 10 より転載。

もダイマーのコンダクタンスはモノマーの場合の半分程度になるはずである。このようにダイマーのコンダクタンスが小さくなる理由は、分子内のどこかで多くの電子が散乱されるためである。図 3 に電気伝導に関わる電子の電子密度分布を示す。入射電子の多くは、電極と分子の結合部分で散乱されているが、特に注目すべき点は、ダイマーの場合、C₂₀ 同士の結合部分でも電子が散乱されているところである。このことから、ダイマーよりもモノマーの方が大きいコンダクタンスをもつことが理解できる。

次に結合手の数で比較してみると、モノマーは電極と二重結合した方が単結合の場合よりもコンダクタンスが大きい。これは、二重結合の方が電子の伝わる通路が多いためと考えられる。一方、ダイマーでは状況は一転し、単結合でも二重結合でもコンダクタンスはそれほど変わらない。この理由は、C₂₀ ダイマーの電子状態の考察により理解することができる。すなわち、C₂₀ 同士の単結合で形成される分子は、二重結合のものよりもバンドギャップの幅が小さく⁹⁾、C₂₀ 同士の結合部分での電子の散乱が少ないためであると考えられる。

最後に、電子が分子のどの部分を通して流れているかを調べた。結果を図 4 に示す。いずれのモデルにおいても、電子は C₂₀ 分子内側にある原子のない空間を流れるのではなく、原子配列に沿って流れていることが分かる。また、外側の原子の周りに炭素原子の *p* 軌道が関与してできたループ電流が発生しており、この電流により磁場が誘導される可能性もある。この計算の詳細に関しては、文献 10 を参照されたい。

4. おわりに

本稿では、新たに開発したナノ構造の電気伝導特性シミュレーション手法について述べるとともに、ナノ構造の電子輸送特性解析のシミュレーション例としてフラーレン電極にはさまれた C₂₀ の解析について述べた。この例より、開発したシミュレーションプログラムはナノ構造の特性をよく解析できることが明らかとなった。今後、さらなる高速・大規模化により、次世代の回路素子であるナノ構造デバイスの探索に活用できるものと期待される。

本研究は文部科学省 21 世紀 COE である大阪大学・原子論的生産技術創出拠点超精密加工研究拠点における共同研究の一環として行われた。また、計算ソフトウェアの並列化・高速化については東北大学情報シナジーセンター殿に多大な協力をいただいた。

参考文献

- 1) N. Agrait, A. Levy Yeyati and J.M. van Ruitenbeek: Phys. Rep. **377** (2003) 81.
- 2) K. Hirose (ed.): First-Principles Calculations in Real-Space Formalism —Electronic

Configurations and Transport Properties of Nanostructures— (Imperial College Press, in press). OBM 法の詳細が解説されている。また、OBM 法と他の計算手法(LS 法、RTM 法、およびグリーン関数法)との関連も述べられている。

- 3) Y. Fujimoto and K. Hirose: Phys. Rev. B **67** (2003) 195315; N.D. Lang and M.Di Ventra: Phys. Rev. B **68** (2003) 157301; Y. Fujimoto and K. Hirose: Phys. Rev. B **69** (2004) 119901.
- 4) T. Ono and K. Hirose: Phys. Rev. B **70** (2004) 033403.
- 5) R. Kubo: J. Phys. Soc. Jpn. **12** (1957) 570.
- 6) R. Landauer: IBM J. Res. Dev. **1** (1957) 223; M. Büttiker, Y. Imry, R. Landauer and S. Pinhas: Phys. Rev. B **31** (1985) 6207.
- 7) T. Ono and K. Hirose: Phys. Rev. Lett. **82** (1996) 5016; K. Hirose and T. Ono: Phys. Rev. B **64** (2001) 085105.
- 8) 広瀬、後藤、稲垣、小野：本誌 **37,3** (2004)3; 広瀬、後藤、稲垣、小野、塚本：本誌 **35,3** (2002)59; 広瀬、後藤、稲垣、小野：本誌 **34,3** (2001)27; 稲垣、山内、杉山、広瀬：本誌 **33,3** (2000)25.
- 9) Y. Miyamoto and M. Saito: Phys. Rev. B **63** (2001) 161401.
- 10) M. Otani, T. Ono and K. Hirose: Phys. Rev. B **69** (2004) 121408.