

[共同研究成果]

波動関数の時間発展計算の高速化と ナノ構造体の電子輸送特性シミュレーションへの応用

後藤英和、小野倫也、江上喜幸*、広瀬喜久治
大阪大学大学院工学研究科 精密科学・応用物理学専攻 計算物理領域
* 長崎大学工学部 応用化学科 応用物理化学研究室

スーパーコンピュータによる並列・高速計算に有利な実空間差分法を用いて、波動関数の時間発展計算を高速に行うことが可能な新しい方法の提案・開発を行った。さらに、この計算方法を応用し量子力学における散乱問題の定常解を効率的に求めることが可能な **Impulse-Response** 法を提案した。プログラムを作成し簡単なモデルによるテスト計算を行った結果、厳密解と一致する結果が得られ、ナノ構造体の電子輸送特性シミュレーションなどへの応用が期待できることがわかった。

1. はじめに

電子デバイスの超微細化が進み、デバイスのスケールが電子の平均自由行程である約 10nm 程度またはそれより小さな構造体になると、構造体内を通過する電子はほとんど散乱を受けなくなるため、電気伝導度などの電氣的・磁氣的特性には量子的効果が顕著に現れ、通常のマクロスケールの電氣的・磁氣的特性に基づいた電子デバイスの設計ができないようになる。一方では、量子コンピューターなど量子効果を積極的に応用した電子デバイスの研究も進められている。このようなナノスケールデバイスの設計・開発を行うためには、電子の散乱、透過、反射、干渉、励起などの動的挙動を高速かつ正確に数値シミュレーションすることが可能な計算手法が必要となってくる。このような背景から、著者らは波動関数の時間発展の高速かつ高精度な数値計算手法の研究に取り組み、スーパーコンピュータによる並列・高速計算に有利な実空間差分法に基づく新しい計算方法を提案・開発することに成功した。さらに、パルス状の初期波動関数の時間発展計算を 1 回だけ行うことで、すべてのエネルギーの入射電子に対する定常散乱解を求めることが可能な高効率シミュレーション手法である **Impulse-Response** 法も提案・開発し、波動関数の高速時間発展計算と併用することで、ナノスケール構造体の電気伝導特性シミュレーションを効率的に行うことを可能にした。本報告では計算手法の概要と簡単なモデルによるテストシミュレーションの結果について報告する。

2. 実空間差分法による波動関数の時間発展計算の高速化

一般に、ナノ構造体に対する電気伝導特性計算は、散乱問題についての定常状態のシュレディンガー方程式を解くことにより行われている。広瀬、小野らにより開発された **OBM (Overbridging Boundary-Matching)** 法[1]がこれにあたる。しかし、本研究で新たに提案した計算方法では、実空間差分法を用いて時間依存シュレディンガー方程式を数値的に解くことで定常状態の解を得る。1 回の時間発展計算ですべてのエネルギーの入射電子に対する定常散乱解が求められるため、既存の計算方法よりも

高速に電気伝導特性計算を行うことが可能である。以下に本計算方法の概要について述べる。

時間依存シュレディンガー方程式 (原子単位系)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = H \psi(\mathbf{r}, t) \quad (1)$$

の解を、時間発展演算子 (プロパゲーター) を用いて表すと次式のようにになる。

$$\psi(\mathbf{r}, t) = e^{-i(t-t_0)H} \psi(\mathbf{r}, t_0) \quad (2)$$

ここで、 $\psi(\mathbf{r}, t)$ は時刻 t 、位置 \mathbf{r} における電子の波動関数、 t_0 は初期時刻、 H はハミルトニアンを表す。これに鈴木-トロッター公式[2]を適用すると、微小時間 Δt 後の波動関数は次式のように表される。

$$\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = e^{-i \frac{\Delta t}{2} V(\mathbf{r}, t + \frac{\Delta t}{2})} e^{-i \Delta t (-\frac{1}{2} \Delta)} e^{-i \frac{\Delta t}{2} V(\mathbf{r}, t + \frac{\Delta t}{2})} \psi(\mathbf{r}, t) \quad (3)$$

式(3)に実空間差分法[1,3]を適用する。 x 方向の運動エネルギーは次式で表される。

$$-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x_j, t) = -\frac{1}{2} \sum_{n=-N_f}^{N_f} c_n \psi(x_j + n h_x, t) + O((h_x)^{2N_f+2}) \quad (4)$$

ここに、 h_x は x 方向における空間の刻み幅、 j はグリッド番号、 N_f は差分近似の次数、 c_n は重み係数である。例えば、 $N_f = 1$ 、すなわち中心差分近似を適用すると、 x 方向の運動エネルギー項は次式で表される[1,3]。

$$-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x_j, t) \approx -\frac{1}{2} \frac{\psi(x_{j+1}, t) - 2\psi(x_j, t) + \psi(x_{j-1}, t))}{h_x^2} \quad (5)$$

式(3)と(5)により、次式が得られる[4,5]。

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = & e^{-i \frac{\Delta t}{2} V(\mathbf{r}, t + \frac{\Delta t}{2})} \\ & \times \sum_{j'_x} \sum_{j'_y} \sum_{j'_z} \left[\prod_{v=x,y,z} \frac{1}{N_v} \sum_{n=-N_v/2}^{N_v/2-1} e^{-i \frac{2\pi n}{N_v} (j_v - j'_v)} e^{-i \frac{\Delta t}{h_v^2} (1 - \cos \frac{2\pi n}{N_v})} \right] \\ & \times e^{-i \frac{\Delta t}{2} V(\mathbf{r}', t + \frac{\Delta t}{2})} \psi(\mathbf{r}', t), \end{aligned} \quad (6)$$

ここに、 N_v は $v (= x, y, z)$ 方向におけるグリッド数である。式(6)を用いることの利点は、式中に現れる n に関する積算値が $j_v - j'_v$ の増加に対して速やかに減衰することである。図1に積算値の減衰の様子を示す。例えば、 $h_v = 0.5$ 、 $\Delta t = 0.2$ としたとき、 $j_v - j'_v = 5$ における積算値は 8.31×10^{-5} である。従って、式(6)における j'_v の

積算を j_v の近傍数個程度で打ち切っても計算精度は低下せず、波動関数のノルムも高い精度で保存される。また、計算量はシステムの大きさに比例することが予想される。さらに、この積算値は電子の座標に依存せず、 $j_v - j'_v$ のみの関数であるため、時間発展計算を始める前に、あらかじめ計算して記憶しておくことが可能である。以上のことから、時間発展計算のための計算量を激減させることができ、数値計算を高速かつ高精度に行うことが可能となる。

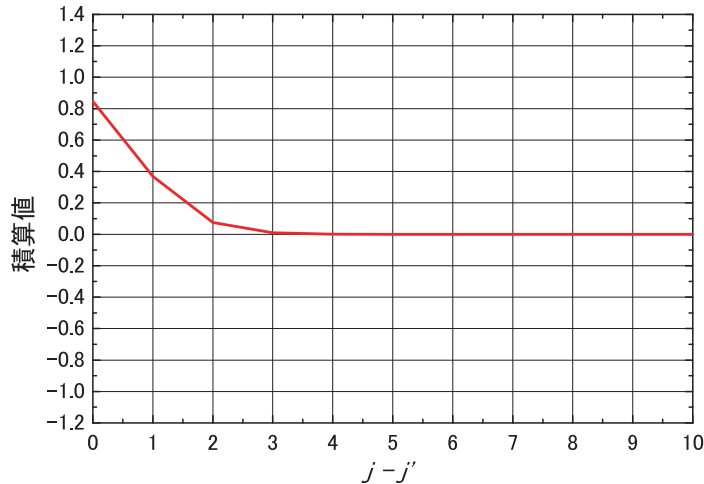


図 1 式(6)における n に関する積算値の減衰特性。ただし、 $\Delta t=0.2$, $h_x=0.5$ とした。

3. 周波数解析による散乱波動関数の計算方法 (Impulse-Response 法)

波動関数の時間発展計算を 1 回だけ行うことで、あらゆるエネルギーの入射電子に対する散乱問題の定常解を求めることができる方法 (Impulse-Response 法)[4,5] について概説する。図 2 に示すような散乱問題において、 z 軸の正の方向に電子が流れるとし、 z 方向におけるパルス関数を初期波動関数として、散乱体左側のポテンシャルが一樣な領域 (Jellium 電極) 内に設定する。例えば、 xy 方向に周期境界条件を用いる場合、初期パルス波動関数は次式を用いる。

$$\psi(\mathbf{r}, t_0) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{N_x N_y}} \exp[i(G_{n_x} h_x j_x + G_{n_y} h_y j_y)] & \cdots j_z = 0 \\ 0 & \cdots j_z \neq 0 \end{cases}, \quad (7)$$

ここに、 $G_{n_x} = 2\pi/L_x n_x$, $G_{n_y} = 2\pi/L_y n_y$ は逆格子ベクトルの成分であり、 n_x, n_y は整数、 L_x, L_y は x, y 方向のセルの大きさである。

この初期波動関数の時間発展計算を行い、その結果について次式のようなエネルギー E に関する周波数解析を行うことで、任意の入射エネルギー E に対する定常散乱解 $\phi(\mathbf{r}; E)$ が得られる。

$$\phi(\mathbf{r}; E) = \frac{1}{h_z} v_z(E) e^{ik_z z_0} \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{t_0}^T dt e^{iE(t-t_0)} \psi(\mathbf{r}, t) \quad (8)$$

ここに、 $v_z(E) = \sin k_z h_x / h_x$ は入射電子の z 方向の群速度、 k_z は z 方向の波数である。
 以上の方法を用いれば、パルス関数を初期波動関数として 1 回の時間発展計算を行うことで、すべての入射エネルギー E についての散乱波動関数を求めることが可能であり、入射エネルギーごとに解を求める従来の計算方法と比較して非常に効率的な計算方法である。図 3 にシミュレーションの流れを示す。なお、散乱体の左側から右側への電子の透過率は、上式により求めた散乱波動関数の流量を、散乱体の右側電極内で計算することにより求めることができる[4,5]。

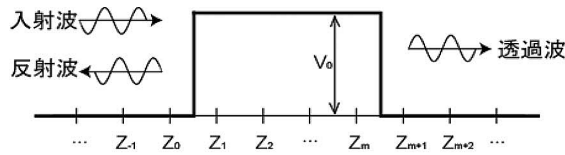


図 2 ポテンシャルによる散乱問題

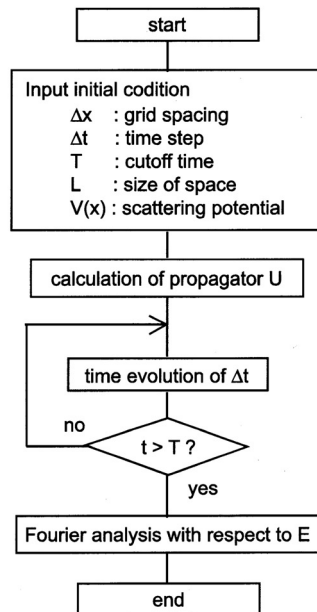


図 3 Impulse-Response 法による電子輸送特性シミュレーションの流れ

4. ナノ構造体の電子輸送特性シミュレーションへの応用

既述した波動関数の時間発展の高速計算手法と Impulse-Response 法を併用することで、ナノ構造体の電子輸送特性シミュレーションを効率的に行うことが可能になる。ここでは、1次元問題と2次元問題に適用し、OBM法[1]による厳密解と比較した結果を紹介する。

図2に示した1次元散乱問題におけるポテンシャル障壁透過率の計算結果を図4に示す。ポテンシャル障壁の高さ V_0 は0.3(a.u.)、幅は10.5(a.u.)である。厳密解と一致した結果が得られていることがわかる。透過率が最大となる入射エネルギー(a)(b)と極小値を示す入射エネルギー(c)における、時間発展波動関数の周波数解析結果(定常散乱解)も示した。透過率最大となる入射エネルギーの場合には、共鳴状態が形成されていることがわかる。

次に、2次元のナノ構造体モデルを図5(a)に、導電率の計算結果および電荷密度を図5(b)に示す。障壁の高さは5(a.u.)である。1次元の場合と同様、OBM法による計算結果と合致する解が得られることが確認できている。透過率最大となる入射エネルギーでは共鳴状態が形成されていることがわかる。

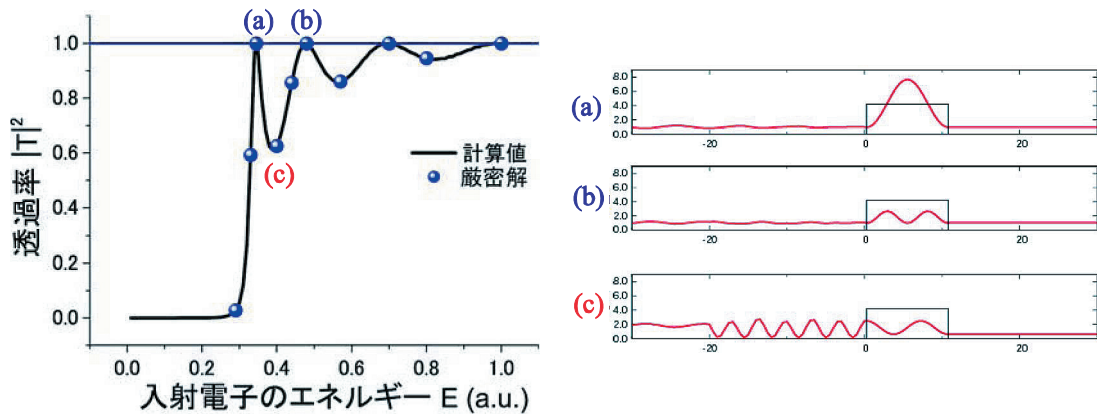
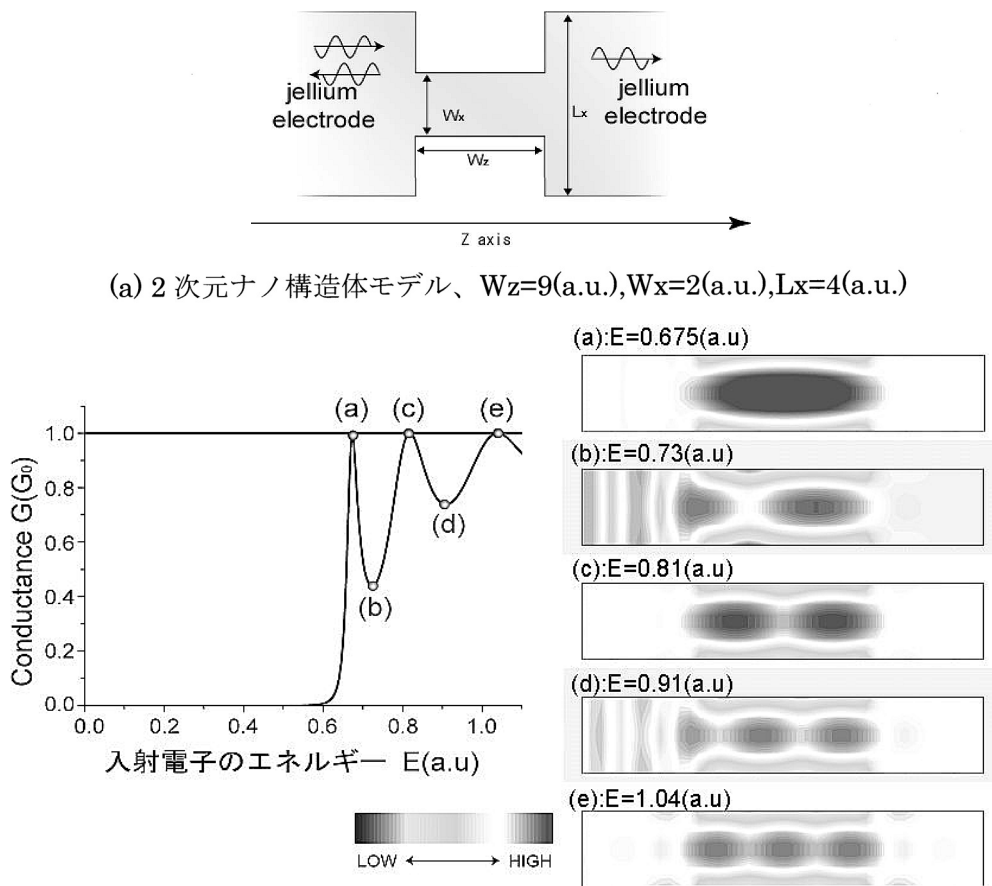


図4 透過率の計算結果と各ピークポイントにおける散乱波動関数の電荷密度分布



(a) 2次元ナノ構造体モデル、 $W_z=9(\text{a.u.}), W_x=2(\text{a.u.}), L_x=4(\text{a.u.})$

(b) 導電率の計算結果と各ピークポイントにおける散乱波動関数の電荷密度分布

図5 2次元ナノ構造体モデルにおける周波数解析結果と導電率の計算結果

5. おわりに

数値計算により波動関数の時間発展を追跡することで、いわゆる「電子のダイナミクス」を明らかにしようとする研究は、ナノ電子デバイスの研究・開発にとって重要なスキームであると考えられる。本研究で提案し開発を行っている計算方法により計算負荷を飛躍的に減少させることが可能となるため、より大規模で具体的なモデルに対する正確な電子状態計算を行うことが可能であり、次世代電子デバイスのデザインと開発に対して大きな貢献ができるものと考えている。今後は、擬ポテンシャルを用いた具体的なナノ構造体に対するシミュレーション、および電子相関を取り入れた多電子系の電子輸送特性シミュレーションに適用してゆく。

謝辞

本研究の一部は、東北大学サイバーサイエンスセンター大規模科学計算システムを利用して得られた。また、大阪大学 21 世紀 COE プログラム「原子論的生産技術の創出拠点」、文部科学省科学研究費補助金・特定領域研究「次世代量子シミュレータ・量子デザイン手法の開発」(課題番号:17064012) および「カーボンナノチューブナノエレクトロニクス」(課題番号:19054009) の支援を受けたことを記し、謝意を表します。

参考文献

- [1] K. Hirose, T. Ono et.al., First-Principles Calculations in Real-Space Formalism, Imperial College Press, London (2005)
- [2] M. Suzuki, Prog. Theor. Phys. **56**, 1454 (1976)
- [3] J. R. Chelikowsky, N. Troullier, K. Wu and Y. Saad, Phys. Rev. **B50**, 11355 (1994)
- [4] H. Goto, T. Ono and K. Hirose, A Path-Integration Calculation Method Based on the Real-Space Finite-Difference Scheme, J. Phys.: Condens. Matter **19**, 365205 (2007)
- [5] T. Suzuki, H. Goto and K. Hirose, Electron Transport Simulations of a Multilead System Using the Impulse-Response Method, Surf. Interface Anal., **40**, 1113 (2008)