

ナノスケールにおける多端子電気伝導シミュレータの開発

飛松啓司, 寺澤麻子, 山本貴博, 多田朋史, 渡邊聡

東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻

tobimatsu@cello.t.u-tokyo.ac.jp

概要: 電気伝導を計測する手法として現在広く用いられている4端子法の測定結果の解析は、試料サイズがナノメートルスケールになると量子干渉効果などの影響により困難になってくる。そこで我々は、多端子電気伝導シミュレータの開発を進めている。本講演では、このシミュレータの概要と、解析例を紹介する。

1 はじめに

近年の加工プロセスの微細化は、ナノメートルスケールにまで達している。これに伴いナノスケールの試料の電気特性をより精密に知る必要性が高まっている。ナノスケールにおける電気伝導では、量子干渉効果などのために古典電磁気学だけでは理解できないことも多いため、ナノスケール電気伝導の研究は現在活発に進められている。

電気特性の測定においては、しばしば試料と測定端子との間の接触抵抗の影響が大きい。そこでマクロスケールでは、電流を流すための電流端子2本、電圧を測定するための電圧端子2本の合計4本の端子を用いて測定し、試料-端子間の接触抵抗の影響を除いた試料本来の電気抵抗を評価できる4端子法が広く用いられている。近年、この4端子法において端子間距離を μm スケールないし数10nmスケールまで近づけた測定が可能になっており[1]、ナノスケール電気特性測定の高力な手法として期待されている。他方、ゲート電圧による4端子抵抗の振動や、負の4端子抵抗の出現など、古典電磁気学では理解できない現象もカーボンナノチューブ(CNT)に対する4端子測定で報告されている[2]。このため、このような興味深い現象の解析を助け、ナノスケールでの電気伝導の振舞いを解明し得る理論計算が強く求められている。

これに対し、ナノスケールの電気伝導を扱う理論計算は盛んであるものの、そのほとんどが2電極間の電気伝導特性を扱うものであり、多端子系における電気伝導特性を扱った研究はあまり進んでいないのが現状である。そこで本研究では、多端子電気伝導シミュレータの開発を進めている。特に、前述のような実験研究の現状に鑑み、数10nm程度の規模の系に対する計算まで視野に入れている。本講演では、このシミュレータの概要と現状を紹介すると共に、CNTの4端子測定に対するシミュレーションをスーパーコンピュータを用いて実行・解析した事例を報告する。

2 手法

ナノスケール電気伝導特性の計算では端子から電子が流入出する開放系を扱う必要があるため、分子や結晶に対して確立している電子状態計算法

を用いることができない。近年の研究の中で、Green関数法がナノスケール電気特性計算の有効な方法論として注目されており、多くのプログラム(例えばQuantumWise社のATK[3])に採用されている。本研究でもこの方法を採用した。

本研究で開発しているシミュレータの特長は、まずGreen関数法を3端子以上の多端子系に対して実装した点である。次に、数10nm以上の大規模系の計算を念頭に、計算負荷の軽さと信頼性とを両立しうる密度汎関数強束縛法(DFTB法)を採用した点である。

DFTB法は、第一原理計算の中で最もよく使われている密度汎関数法と計算に必要な行列要素を簡便に求めることにより高速な計算が可能な強束縛法とを組み合わせた手法である。簡便に行列要素を計算するために必要なパラメータを密度汎関数法で求めることにより、高い信頼性を得ることができる。

以下に、Green関数法とその本研究での実装の概略を述べる。Green関数 $G(E)$ は次式で表される。

$$G(E) = [ES - H - \sum_{p=1}^{N_p} \Sigma_p(E)]^{-1}$$

E は電子のエネルギー、 S は重なり行列、 H はハミルトニアン行列、 $\Sigma_p(E)$ は端子の自己エネルギーである。このGreen関数は、ハミルトニアン行列を通じて電荷分布に依存する。一方、各原子の電荷 q_I はGreen関数から次式のように求めることができる。

$$\Delta q_I = 2 \sum_{\mu \in I} \sum_{\nu} D_{\mu\nu} S_{\nu\mu} - q_I^l,$$
$$D = - \int \frac{1}{\pi} dE f(E - \mu) \text{Im}[G(E)].$$

実際のシミュレーションにおいては、Green関数の計算に必要な入力電荷分布とそのGreen関数から計算される出力電荷分布とが求める精度の範囲で一致するまで自己無撞着計算を行う。出力電荷分布を求めるためには、 D を計算する際の積分

経路をメッシュで区切り、その各点での Green 関数を逆行列計算から求める必要がある。その上で前述の自己無撞着計算が必要であるため、大量の逆行列計算を必要とする。この計算コストを軽減するために、(1)Extended Anderson 法[4]により自己無撞着計算の収束を高速化し、(2)Green 関数の積分計算を留数の和に置き換えるアルゴリズム[5]により Green 関数の計算が必要なエネルギー点の数を低減し、さらに(3)並列計算機利用による高速化をはかるために MPI を用いて留数別に並列計算を実装した。なお、各々の留数における計算時間はあまり変わらないことから、(3)の並列化は妥当といえる。

電気特性を解析するためには、Green 関数から次式により端子 $p - q$ 間の透過率 $T_{pq}(E)$ を求める。

$$T_{pq}(E) = \text{Tr}[\Gamma_p(E)G(E)\Gamma_q(E)G^\dagger(E)],$$

$$\Gamma_p(E) = i[\Sigma_p(E) - \Sigma_p^\dagger(E)] = -2\text{Im}[\Sigma_p(E)].$$

この透過率から、2 端子抵抗および 4 端子抵抗を容易に計算できる[6]。なお、本研究においては端子間のバイアス電圧は 0 V の極限を考え、またフォノン等による非弾性散乱は無視する。上記の透過率は入射電子のエネルギーに依存しており、評価したい入射エネルギー E に対してそれぞれ逆行列計算から Green 関数を求める必要があるため、この部分もエネルギー別に並列計算した。

また、本講演で扱う対象は、実験でコヒーレント伝導（非弾性散乱のない伝導）が観測されやすい CNT に絞った。

3 結果とまとめ

図 1, 2 に計算に用いたモデルを示す。試料・端子ともに(5, 5)単層 CNT である。左右に無限に伸びている試料に 4 本の半無限の端子（中央 2 本が電圧端子、その外側 2 本が電流端子）が接触しており、合計で 6 端子の系といえる。

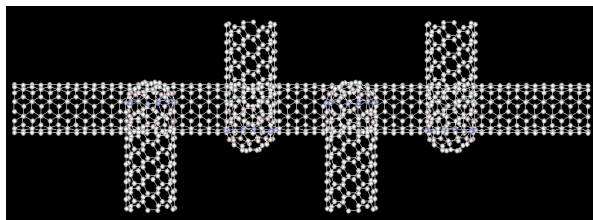


図 1：上から見た CNT の 4 端子測定図

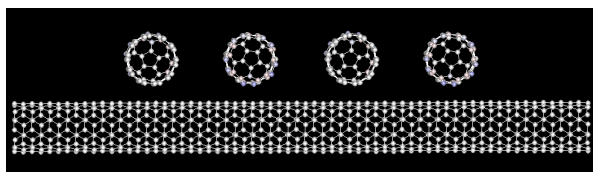


図 2：横から見た CNT の 4 端子測定図

系の全原子数は 1020 であり、本大学情報基盤センターの T2K オープンスーパーコンピュータ (HITACHI HA8000 クラスタシステム)にて MPI を用いた 64 並列で計算を行った。端子の接触の仕方が抵抗値に及ぼす影響を調べるために、試料 - 端子間距離が 2.8 Å と 2.1 Å の 2 つの場合について計算した(図 3, 4)。なお、計算にはそれぞれ約 45 時間を要した。

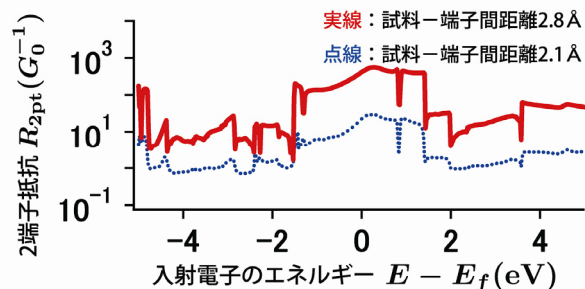


図 3：電子のエネルギーに対する 2 端子抵抗

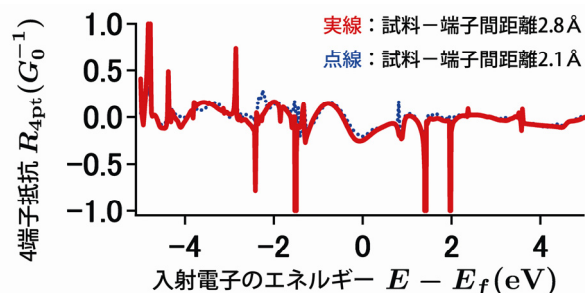


図 4：電子のエネルギーに対する 4 端子抵抗

図 3, 4 から、2 端子抵抗の値は接触距離により大きく変化するのに対し、4 端子抵抗の値は接触距離に対してあまり変化していないことがわかる。これは 4 端子抵抗に期待される物理的意味と合致する。他方、4 端子抵抗における入射電子エネルギーによる振動や負の抵抗値の出現のようなマクロスケールでは生じ得ない振舞いも現れている。この点は、より小さな系に対する計算で見られた振舞い[6]と一致している。

今回の計算に用いた系の端子間隔は約 0.7nm であり、実験[1,2]よりずっと短い。実験とのより詳細な比較に向けて、より並列度の高い計算を行えるよう、シミュレータをさらに改良していく必要がある。

参考文献

- [1] S. Yoshimoto *et al.*, Nano Lett. **7**, 956 (2007).
- [2] B.Gao *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 196802 (2005).
- [3] Atomistic ToolKit, <http://www.quantumwise.com/>
- [4] V. Eyert, J. Comp. Phys. **124**, 271 (1995).
- [5] T. Ozaki, Phys. Rev. B **75**, 035123 (2007).
- [6] A. Terasawa *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 195436 (2009).