

## 研究課題別事後評価結果

### 1. 研究課題名： ナノ物性計測シミュレータの開発

### 2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点)

研究代表者

渡邊 聡 (東京大学大学院工学系研究科 教授)

主たる共同研究者

渡辺 一之 (東京理科大学理学部物理学科 教授)

### 3. 研究内容及び成果

#### 【研究構想】

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。一方本研究代表者は、局所物性測定の前段階である局所構造・電子状態測定においてさえ実験結果だけでは解釈が困難な場合があり、シミュレーションによる解析支援が大変有用であることを、走査トンネル顕微鏡(STM)像に関する理論解析の中で実感していた。しかし、ナノ物性計測に関するシミュレーションは、ごく限られた計測法についてしか研究されていなかった。そこで、ナノ物性計測に対するシミュレータを開発するという本研究の構想に至った。

「ナノ物性計測」といっても、その範囲は大変広い。そこで本研究では、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こととした。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した。そして、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、本研究チーム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きいくつかの方法論を用いてシミュレータの作成を進めることとした。

#### 【研究実施内容】

本研究では、以下の4つのサブテーマを設けて研究を進めた。

① 走査プローブ計測シミュレータの開発: STMや原子間力顕微鏡(AFM)等の走査プローブ顕微鏡を応用したナノ物性計測として代表的な、局所トンネル障壁高さ計測とケルビン力顕微鏡のシミュレータを開発した。さらに開発したシミュレータを用い、これらの計測法における計測量と微視的電子状態との相関について解析した。

② 多端子電気特性計測シミュレータの開発: 多探針プローブ等を用いた多端子電気特性計測をシミュレーションする方法論として、3つのアプローチを検討した。その中でもっとも有望な密度汎関数強結合法を用いたアプローチにより、多端子電気特性計測シミュレータのプロトタイプを開発した。

③ キャパシタンス計測シミュレータの開発: 電気特性として重要な物理量であるにもかかわらず研究例が少なかったキャパシタンスについて、電極間距離が短い場合にはトンネル電流の考慮が必須であり、他方長い場合にはトンネル電流の考慮により逆に困難が生じることを踏まえ、条件に応じ適切な方法を選択する形のシミュレータのプロトタイプを開発した。

④ 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れを用いた理論解析: 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及ぼす影響を解析し

た。またこのために、ナノスケール熱伝導を評価する方法論をはじめ、様々な計算プログラムと解析法を開発した。

以上に加え、実験家を含む多くの研究者に使用してもらえる実用的シミュレータの開発という観点から、( ) 局所トンネル障壁高さ計測について簡便なシミュレーション方法を考案、( ) 基本プログラムの高速化・高性能化の他、シミュレータによっては計算コストと信頼性とのバランスの点から密度汎関数強結合法を導入したプログラム開発、および ( ) 開発したシミュレータ群のグラフィカルユーザーインターフェイスの整備、の3点も実施した。

また当初の予定外であったが、( ) 本研究のキャパシタンス解析に関する実験研究者からの示唆を踏まえ、非接触AFMにおけるエネルギー散逸の振舞いについて解析(共同研究)、( ) プローブ間単分子架橋の溶液中電気特性計測への注目が高まったことを踏まえ、溶液分子が電気特性に与える影響を解析、等も実施した。

以上の研究を遂行するために、主に ( )、( ) に必要な半無限電極計算法を開発していた本研究代表者のグループと、( ) に必要な空間分割密度汎関数法および ( ) に有用な時間依存密度汎関数法・分子動力学法プログラムを開発していた主たる共同研究者のグループとが連携して研究を進める体制をとった。グループ間で緊密に議論・情報交換を行った結果、当初から予定していたサブテーマ ( ) 以外にも共著の成果が生まれ、その他にもグループ間の議論・情報交換が役立った場合が多々あった。

#### 【研究成果】

以下にサブテーマ毎の主な研究成果を記す。

##### ( ) 走査プローブ計測シミュレータの開発

まず局所障壁高さ計測のシミュレータを開発し、走査像のシミュレーションを初めて行った。また、局所障壁高さ像と走査トンネル顕微鏡像の原子レベルの凹凸が定性的に同じになり「トンネル障壁の高い所では電子が透過しにくい」という直感と矛盾する原因を、実験で評価される局所障壁高さに繰り込まれているトンネル電子の表面平行方向の運動の観点から解明した。さらに、欠陥の有無、探針原子種、バイアス電圧等による変化について同じ観点からの統一的理解に成功した。以上により、局所障壁高さ像に対する既存の物理的解釈の問題点を明確化し、シミュレータの有用性を実証した他、局所障壁高さ像をより簡便に評価する方法論を考案した。

次に、ケルビン力顕微鏡のシミュレータを開発し、量子論に基づくシミュレーションを初めて行った。また、トンネル電流が無視できない短距離領域で2電極の力がつりあわず、系全体を動かす力が働くことを見出した。

以上の他、半無限電極法(境界マッチング密度汎関数法)計算プログラムの性能向上では、SR8000において128プロセッサで1プロセッサ時の77倍という、実用アプリケーションプログラムとして大変良好な値を達成した。

##### ( ) 多端子電気特性計測シミュレータの開発

ヒュッケル法レベルの多電極電気特性計算プログラムにより、ポルフィリン分子内の電流分布の電極接続数や接続位置による顕著な変化、2電極を表面に接続した単純立方格子結晶の表面伝導における特定の入射電子エネルギーでの大きな異方性の出現等を見出した。また、自己無撞着な密度汎関数強結合法に基づくより実用的なシミュレータを開発し、4端子抵抗の値が負になる場合があることを確認した。このうち表面伝導の異方性についてはその後の文献調査で類似の報告が見つかったが、探針まで考慮した計算は本研究が初めてである。以上の結果は、ナノスケール多端子電気特性計測において興味深い新現象が生じる可能性を示唆している。

##### ( ) キャパシタンス計測シミュレータの開発

トンネル電流が無視できない電極間距離については、平行平板系で電極間距離1nm程度以下の場合に距離の減少と共にキャパシタンスも減少する量子効果を確認し、この領域でのキャパシタンスが電極表面構造に大きく依存することを見出した。また解析の過程で、トンネル電流が大きい場合にはバイアス電圧の定義にも注意を要することを見出した。さらに、非接触AFMにおけるエネルギー散逸を解析し、探針振動に伴うエネルギー散逸が探針 - 試料間距離の減少と共にある所までは増え、ごく近距離で逆に減少するという実験結果を、振動に伴うキャパシタンス変化に起因するジュール熱散逸で説明できる可能性を初めて指摘した。

トンネル電流が無視できる場合については、様々なナノスケール電極構造に対するキャパシタンス計算により、

電極を構成する原子種・電極構造・電子構造がキャパシタンスに大きな影響を与えていること、および直径1nm以下の小さな構造体では自己キャパシタンスに現れる量子効果が顕著になること等を見出した。

#### ①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れを用いた理論解析

ナノスケール熱伝導については、カーボンナノチューブ(CNT)において、数十ケルビンの低温領域で熱伝導度の量子化を見出した。また室温での熱伝導については、金属CNTにおいてさえも伝導電子は熱伝導へ寄与せず、フォノンによって熱流が運ばれることを理論的に示した。さらにCNTが原子欠陥を含む場合には、温度の上昇と共に欠陥による散乱で熱伝導度が減少することを見出した。

局所発熱とその電気伝導への影響については、最小フラーレンC<sub>20</sub>を架橋した金の二電極間を流れる電流と分子振動の相互作用を解析し、振動モードによりエネルギー散逸への寄与の度合いが大きく異なることを見出した他、バイアス電圧100mV未満の範囲では発熱が大部分電極内部で生じることを明らかにした。

電流およびバイアス電圧による力の解析では、まずNa原子鎖において、バイアス電圧1Vを境に原子変位の振舞いが大きく変化することを見出した。次にCNTに吸着した原子に働く力について、力のCNT軸方向成分は原子の実効電荷に比例して大きさと方向が定まり、方向はバイアス極性によって反転すること、一方軸と垂直方向の力の成分はバイアス極性には依存せず、その大きさが吸着原子種によって顕著に異なることを見出した。

次にゲート電極の影響を有限幅の単層グラファイトを例に解析し、電極によって挟まれたデバイス部分を微量にn型にドーピングする事で飽和電流値を制御出来ること、デバイス領域と静電的に結合されたゲート電極への印加電圧により飽和電流値の制御や飽和特性・非飽和特性のスイッチング制御が可能になること等を見出した。

これらの他にも、電極間を架橋する単分子の伝導特性に及ぼす周囲の溶媒水分子の影響を初めて解析し、水分子の存在により伝導度が10%程度減少することを明らかにした等の成果を挙げた。

以上のように「世界初」といえる多数の成果を得ることができたが、中でもナノスケール熱伝導とキャパシタンスの解析は注目を集め、多数の招待講演や解説の依頼を受けた。また、多くの研究者に使用してもらえるシミュレータの開発という点でも、統一的なユーザーインターフェイスを整備した走査プローブ計測シミュレータ、多端子電気特性計測シミュレータ、キャパシタンスシミュレータを平成20年3月末には公開できる見込みである。

## 4. 事後評価結果

### 4 - 1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

学会等の発表については、招待・口頭・ポスターの合計で国内会議128件、国際会議144件であり、研究チームの規模からみてかなり多い研究成果であると評価できる。論文発表の原著論文49件、その他の著作16件という数も妥当である。特にナノスケール熱伝導の解析およびキャパシタンスにおける量子効果の解析については、多数の招待講演や解説執筆の依頼を受けるなど、注目度の点から科学的インパクトが高い。電気伝導に対する溶媒分子の影響の解析についても、大多数がポスター講演に回される国際会議において口頭講演に採択される等注目されている。

当初の研究計画に対して走査プローブ顕微鏡で走査像のシミュレーションを行ってトンネル障壁高さを計測したこと、ケルビン力顕微鏡で量子的シミュレーションを行ったこと、多端子(3以上)について自己無撞着なシミュレーションを行ったこと、ナノ構造のキャパシタンスで量子効果を解明したこと、局所物理現象を解明したことなどそれぞれが大きな成果を出している。

### 4 - 2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

ナノスケール熱伝導、キャパシタンス、伝導特性への溶媒分子の影響等について、類似研究成果と比較してレベルは高いと判断する。

局所トンネル障壁高さ計測、ケルビン力顕微鏡については、これまで金属系について原理的解析を行ったが、今後半導体・絶縁体系への適用で一段とインパクトの高い成果が期待できる。多端子電気伝導特性計測につ

いては、実験でプローブの影響が見えつつあり、本研究成果にバイアス電圧印加の影響まで取り込んだ段階で様々な系を解析する事により一層興味深い知見が得られると期待できる。キャパシタンスについても、真空でなく絶縁膜を挟んだ場合や交流有限周波数での解析等、多くの興味深いテーマが残っており、本研究の成果を展開する余地が大きい。ナノスケール熱伝導や局所発熱については、周辺環境への熱拡散まで研究を展開するとナノスケールデバイスの研究に一層大きな貢献が期待でき、またゲート電圧効果の検討もナノスケールデバイスの設計への展開が期待できる。以上のように、本研究の成果のさらなる展開は大いに期待できるといえる。

#### 4 - 3 . その他の特記事項(受賞歴など)

ナノ物性計測の実験は、この5年間に一段と進歩している。その中で、ナノ物性計測シミュレーションの意義・有用性もますます大きくなっているように思われる。

本研究の今後の展開は、ソフトウェアを用いて多くの複雑なケースについての対応が考えられるが、必ずしもナノ物性計測に限るものではない。ナノスケールデバイスの動作の解析や設計指針の導出、さらにはナノスケール集積回路の動作解析といった課題に展開していくことを期待する。