

## 論文の内容の要旨

論文題目 First-Principles Analyses of Capacitance of Nanostructures and  
Their Applications to Interpretations of SPM Measurements  
(第一原理計算によるナノ構造キャパシタンスの解析と  
走査プローブ顕微鏡を用いた計測結果の理論的解明への応用)

氏名 田中 倫子

### 1. 緒言

近年、ナノスケール構造の作製や物性計測技術が急速に進展し、ナノ構造の諸物性に対し、量子効果を考慮する必要がでてきている。静電容量はデバイスの動作や走査プローブ顕微鏡(SPM)で得られる測定量と密接に関係する物理量であるため、精力的に研究が行われている。

例えば半導体デバイスの MIS 構造に対し走査容量顕微鏡(SCM)を用いると、試料中のキャリア分布の評価などが可能である。また、走査トンネル顕微鏡(STM)や原子間力顕微鏡(AFM)を用いて探針-試料間静電容量を調べることもでき、SPM を用いた静電容量計測は活発化している。ところが実験では、測定条件などにより静電容量が敏感に変化するため、報告例により異なる振舞いを示すことが多く、ナノスケールでの静電容量について基本的な理解は進んでいない。

一方、理論的にはメゾスコピックサイズキャパシタの静電容量が電子の電極間トンネル確率と電極の状態密度に依存するという Büttiker による理論があるが、これは電極表面原子構造など原子レベルの効果を考慮していない。Lang らは電子の電極表面から外部へのしみ出しが有効電極間距離減少の効果をもたらすと指摘したが、定量的な評価は行っていない。原子構造を陽に考慮して電圧印加下でのナノ構造の静電容量を計算した例もあるが、トンネル効果や原子の構造緩和を無視しており、不十分な研究といえる。よってナノスケールでの静電容量の振舞いをより深く理解するための理論研究が望まれている。

そこで本研究では、電圧印加下のナノ構造の静電容量を原子レベルで解析し、電極表面原子構造や電子状態と静電容量の関係を解明することを目的とした。また、静電容量の結果を応用し、SPM の測定から得られた解釈の困難な振舞いを理論的に解明することを試みた。

### 2. 研究方法

静電容量の振舞いを原子レベルで評価するには、半無限電極に接続した系に対し、バイアス電圧非印加時、印加時の電子状態を、半無限電極中の状態を正しく考慮しながら自己無撞着に計算する必要がある。本研究では、散乱理論を基にした境界マッチング密度汎関数(BSDF)法を用いる。この手法は、電極表面と電極真空部分を含む領域の波動関数を、解析的に波動関数を求められる二電極の十分奥との境界で波動関数の接続条件を満足するように決定する。BSDF 法では半無

限電極をジェリウム模型で表し、その正電荷密度は Wigner-Seitz 半径  $r_s$  によって指定する。電極表面原子構造は局所擬ポテンシャルを用いて考慮する。電子間交換相関ポテンシャルは局所密度近似を採用する。静電容量は、バイアス電圧印加によって電極表面に誘起された電荷量を計算し、(誘起電荷量)/(バイアス電圧)から求める。

### 3. 平行平板コンデンサの静電容量

本研究の前段階として電極間が真空の電極平行平板キャパシタの静電容量を評価した。図 1 に、静電容量の電極間距離依存性を、古典電磁気学から得られる値(点線)と共に示す。計算した静電容量は、距離が十分に広い領域では古典値と一致するが、若干狭い領域では、電極表面からの電子のしみ出しによる有効電極間距離の減少により古典値よりも大きくなった。極端に狭い領域では、古典的な静電容量が距離 0 で発散するのに対し、計算による静電容量は距離の減少と共に急激に減少した。また、静電容量は  $r_s$  が小さいほど大きくなった。この理由は、 $r_s$  が小さいほど真空領域への電子のしみ出し量(有効距離の減少)が大きくなり、 $r_s$  が小さくなると仕事関数の増大により電子の透過率が小さくなるためである。

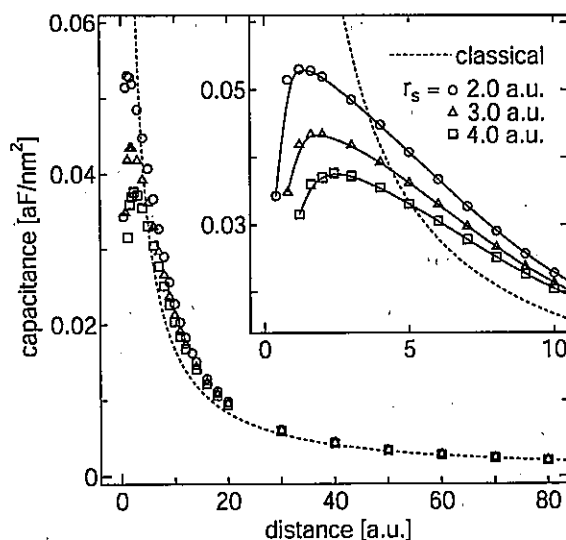


図 1. 平行平板キャパシタの静電容量の電極間距離依存性

### 4. NC-AFM 探針-試料間に誘起する変位電流によるジュール熱散逸

非接触 AFM (NC-AFM) は原子分解能を有する顕微鏡であるが、これを利用した測定法の一つに探針振動エネルギーの散逸量計測がある。探針と試料が接近していくと、通常は両者の相互作用の増加により散逸量が増加するのに対し、Arai らは、探針-試料間距離が非常に短い領域で散逸量が急激に減少するという未解明の振舞いを報告した。一方、散逸の起源として、探針の振動による探針-試料間静電容量の変化から生じる変位電流が誘起するジュール熱が挙げられる。そこで本研究では、ジュール熱が静電容量と密接な関係にあること

に注目し、静電容量から変位電流を計算してジュール熱を評価した。探針と試料は平行平板ジェリウム模型で表した。

計算結果を図 2 に示す。探針の振動振幅( $z_1$ )が小さい場合、距離が極端に短い領域でジュール熱が減少するという非古典的振舞いを示した。また、ジュール熱は  $r_s$  に依存した。これらの結果は、静電容量に現れる量子効果をそのまま反映したものである。よって Arai らの実験で測定された散逸量が減少する振舞いは、静電容量の減少によるジュール熱の減少から説明ができる可能性がある。

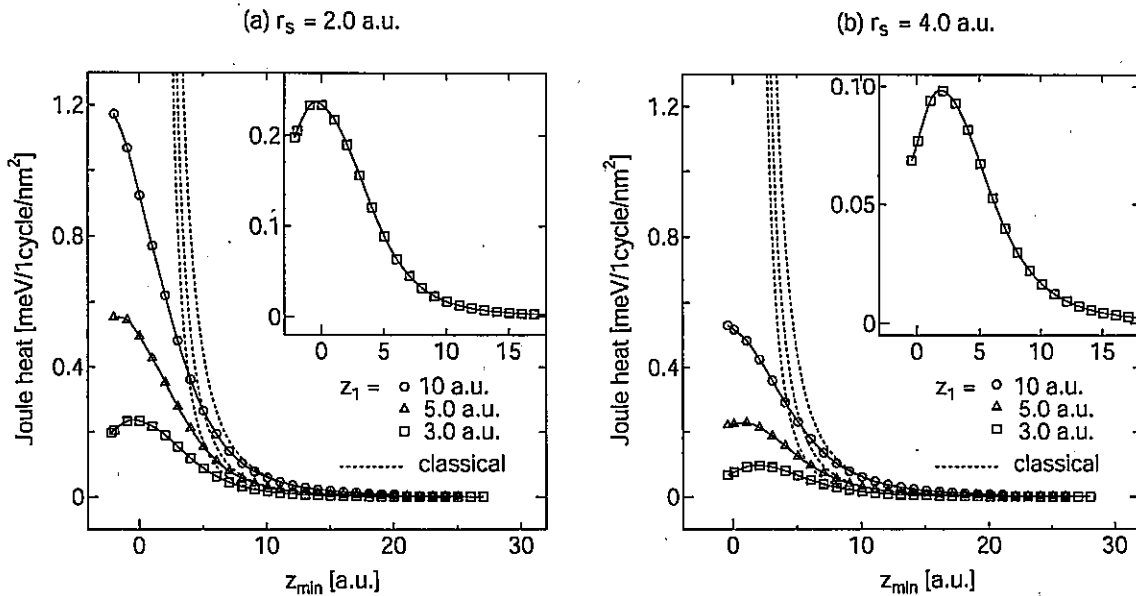


図 2. ジュール熱の探針-試料間距離依存性。  $r_s$ =(a) 2.0 a.u.、(b) 4.0 a.u.の場合。

## 5. STM 探針-試料間静電容量

Wang らは STM 探針-試料間の静電容量を計算し、探針-試料間距離が短い領域では、距離の減少に伴い静電容量が減少するという振舞いを報告した。しかし彼らは電圧印加時の電子状態を自己無撞着に計算しておらず、結果の信頼性は低い。STM を用いて Wang らの振舞いを再現したものに Hou らの実験があるが、この結果は他の実験によって再現されておらず、Wang らの系とは異なるために単純な比較ができない。そこで本研究では、Wang らの結果の妥当性を検証するため、彼らと同様の Al 探針-試料の系に対し静電容量を評価した。なお、探針の構造緩和が静電容量に及ぼす影響と探針-試料の物質依存性も調べたが、これらの影響はほとんど見られなかった。

計算の結果、距離が非常に短い領域でも静電容量が増加をし続けるという、Wang らの結果とは定性的に異なる振舞いを得た(図 3(a))。一方、バイアス電圧印加時の電子状態を非自己無撞着に計算すると、定量的には異なるものの定性的に Wang らと同様の振舞いを得た(図 3(b))。さらに、非自己無撞着計算では電子間相互作用がうまく取り込めず、誘起電荷が正しく評価できてい

ないことがわかった。また、距離が短い領域でも静電容量が増加をし続ける理由は、誘起電荷分布から説明できる。距離が長い場合、誘起電荷は探針先端に局在するが、短い場合は探針を取り巻くように分布する。よってトンネル電流の影響が平行平板の場合に比べ小さく、誘起電荷が減りにくいためと考えられる。

なお、本研究では探針と試料のフェルミ準位の差をバイアス電圧としているが、トンネル電流が流れる場合、探針と試料の内部で電荷中性条件を満たすようにフェルミ準位を調整する。この調整量はトンネル電流が大きいと大きくなることがわかった。この調整の効果は一般的な散乱状態を取り扱う電子状態計算ではあまり考慮されておらず、今後議論を要する点である。

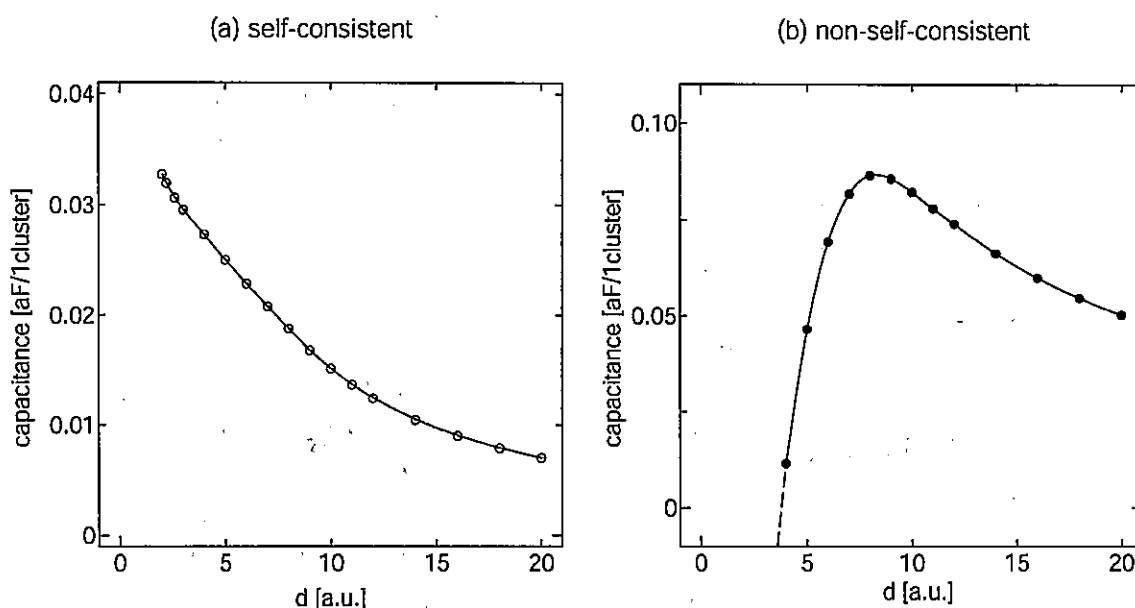


図 3. STM 探針-試料間静電容量の距離依存性。(a) 自己無撞着、(b) 非自己無撞着計算の場合。

## 6. 量子点接触の電気特性

量子点接触などの原子サイズ伝導体は、電極と伝導体の接合状態や原子構造などによりその電気特性を敏感に変化させる。これまでに量子点接触のコンダクタンスについては多くの研究が行われているものの、それらを破断させた際の静電容量の振舞いは解明されていない。そこで、量子点接触の電気特性を解明するため、電極表面原子構造も陽に取り入れた 3 つのモデルについて電極間距離の変化に伴う静電容量とコンダクタンスの変化を評価した。

計算結果の静電容量とコンダクタンスの変化を図 4 に示す。静電容量は表面構造により、電極の引き伸ばしと共にはじめ増加を示した後に減少する場合と、古典的に単調に減少する場合にわかれることがわかった。これらの振舞いは全て誘起電荷量分布から説明ができる。コンダクタンスは接触部破断後、距離の増加に伴い指数関数的に減少するが、表面構造によっては実験で得られる破断直後にピークの値を示す振舞いを示した。

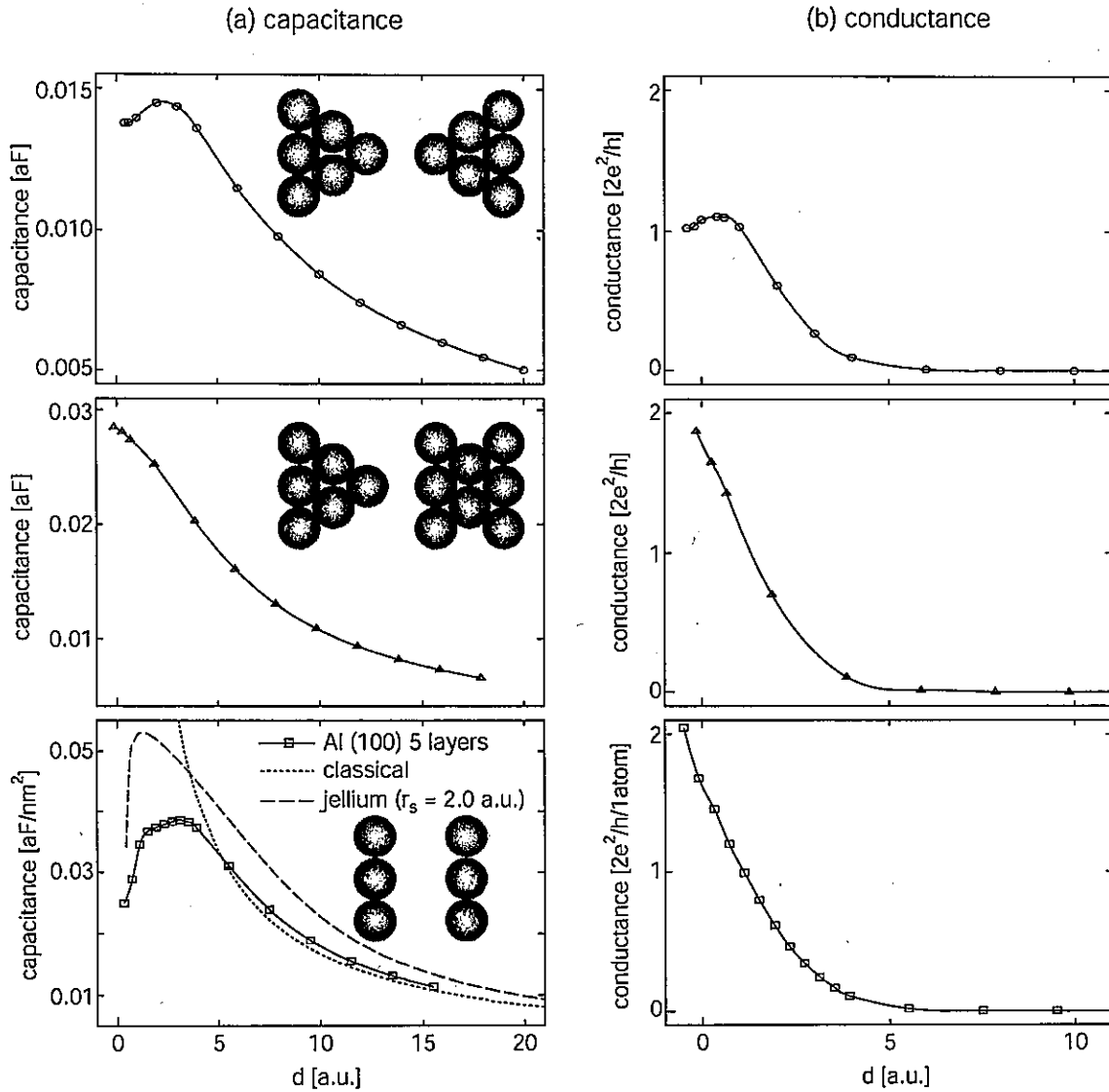


図 4. 3つの量子点接触構造の(a) 静電容量と(b)コンダクタンス。

## 7. 結論

本研究では、電圧印加下でのナノ構造の静電容量を第一原理計算によって評価し、その結果をSPMで計測された実験結果の解釈に応用した。まず、NC-AFM探針-試料間静電容量と深く関係する量である変位電流とジュール熱を計算した。距離が非常に短い領域では静電容量の減少を反映してジュール熱も減少する結果を得た。よって、実験で得られた散逸量の減少は、静電容量に現れる量子効果を反映している可能性があるといえる。次に、STM探針-試料間静電容量を評価すると、距離が非常に短い領域でも静電容量は増加を続けた。結果はWangらの既報の結果と異なるが、これは彼らが電圧印加時に電子状態を非自己無撞着に計算しているためである可能性を示唆する結果を得た。最後に量子点接触構造の静電容量を評価し、原子構造により異なる振舞いを得た。また、原子鎖的な構造のコンダクタンスは、実験で測定された振舞いと定性的、

定量的に一致した。本研究の成果は、新奇デバイスの開発、SPMによって得られるデータの解釈に大きく貢献すると期待される。