

外部電場に対する電流密度の線形応答についての局所的解析

(京都大院・工) ○池田 裕治, 吉野 文弥, 瀬波 大土, 立花 明知

研究背景

ナノ材料は、界面や内部構造の不均一性が物性に与える影響が大きくなる。そのため、これまでマクロな平均化された量として扱われてきたような物性量は、ナノ材料に対しては適切な評価手法ではなく、局所的な観点での物性の評価手法が必要とされる。これまで我々は局所分極率、局所誘電率、局所電気伝導率といった局所的物性を定義し[1]、物質の電場応答の評価手段として用いてきた[2-6]。

本研究では特に局所電気伝導率に注目し、ナノ材料モデルに対する計算・解析を行う。我々のこれまでの研究においては、局所物性の計算は、電場存在下での電子状態をSCF計算により直接的に得、差分を取るによって行っていた。本研究では摂動計算を用いて電子状態の電場応答の線形効果を厳密に扱うことにより、より定義に即した形での局所電気伝導率解析を行う。

理論

微視的な視点で誘電特性、電気伝導特性を解析するために、いくつかの局所物性を定義する。局所分極ベクトル $\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r})$ 、局所誘電率テンソル $\hat{\boldsymbol{\alpha}}(\mathbf{r})$ 、局所誘電率テンソル $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}(\mathbf{r})$ 、局所電気伝導率テンソル $\hat{\boldsymbol{\sigma}}(\mathbf{r})$ を以下の式で定義する。

$$\hat{A}_{0A}(\mathbf{r}) = \int_A d^3s \frac{\hat{\rho}(\mathbf{r})}{|\mathbf{r}-\mathbf{s}|}, \quad \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi} \text{grad } \hat{A}_{0A}(\mathbf{r}), \quad \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) = \hat{\boldsymbol{\alpha}}(\mathbf{r})\hat{\mathbf{D}}(\mathbf{r}), \quad \hat{\boldsymbol{\epsilon}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{1-4\pi\hat{\boldsymbol{\alpha}}(\mathbf{r})},$$

$$\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}) = \int_A d^3s \frac{\hat{\mathbf{j}}_T(\mathbf{r})}{|\mathbf{r}-\mathbf{s}|}, \quad \hat{\mathbf{j}}(\mathbf{r}) = \hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\text{ext}}(\mathbf{r})\hat{\mathbf{D}}(\mathbf{r}) = \hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\text{int}}(\mathbf{r})\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r})$$

ここで、 $\hat{\mathbf{D}}(\mathbf{r}), \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r})$ はそれぞれ外部電場、内部電場である。特に $\hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\text{int}}(\mathbf{r})$ は巨視的視点では現れない物性量であり、ナノ材料を微視的視点で解析する際に重要となる。また、各局所テンソル量は一般に非対称行列であり、1組の共役複素固有値を持つ場合がある。この場合、電子は電場に対し回転的に応答する方向を持つといえる。

計算方法及びモデル

本研究では、Coupled Perturbed Hartree-Fock 方程式を解くことにより、電場及び電流に対する電子状態を計算する。ここでは、特に電流に対応する摂動について述べる。まず、電流を表現する関数として、

$$f(\mathbf{r}) = \exp(-a_x x^2 - a_y y^2 + ik_z z) \quad (z \text{ 方向に電流が流れるとき})$$

を仮定する。ここで、本研究では $a_x, a_y = 0$ に固定し、 k_z をパラメータとする。この関数を系の軌道に射影することで電流に対応する軌道を得る。この軌道は無摂動電子状態における HOMO に摂動として加え、それによって生じる他の電子の感じるポテンシャルの変化を摂動ハミルトニアンとして扱う。

本研究では、[011]成長方向を持つシリコンナノワイヤーに対し解析を行う。図1に本研究でのシリコンナノワイヤーモデルを示す。

結果と考察

図2に、水素終端されていないシリコンナノワイヤーにおける、外部電場に対する局所電気伝導率テンソル $\hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ の、各点での固有値及び固有ベクトルを示す。

モデル中で固有値の大きさが様々な値をとることが確認できる。また、第一固有値が正となる傾向にあるのに対し、第二、第三固有値は負となる傾向にあることが

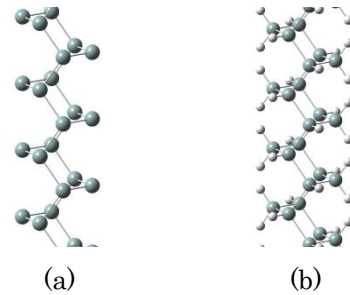


図1. 水素終端されていない(a), 及び水素終端された(b), [011]成長方向を持つシリコンナノワイヤーモデル。

分かる。これは、局所的には電子は特定の方向に流れる傾向にあることを示す。さらに、複素固有値を持ち、電子が回転的に応答する領域が存在することも確認できる。

図3に、同モデルにおける、内部電場に対する局所電気伝導率テンソル $\hat{\sigma}_{\text{int}}(\mathbf{r})$ の、各点での固有値及び固有ベクトルを示す。 $\hat{\sigma}_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ と比較して、特にナノワイヤーの中心部分で、大きく異なる傾向を持つことが確認できる。これは、同モデルにおいて、局所誘電率テンソル $\hat{\epsilon}(\mathbf{r})$ の固有値が負となる領域が広く分布することに起因し、局所的解析によって初めて確認できる特徴といえる。

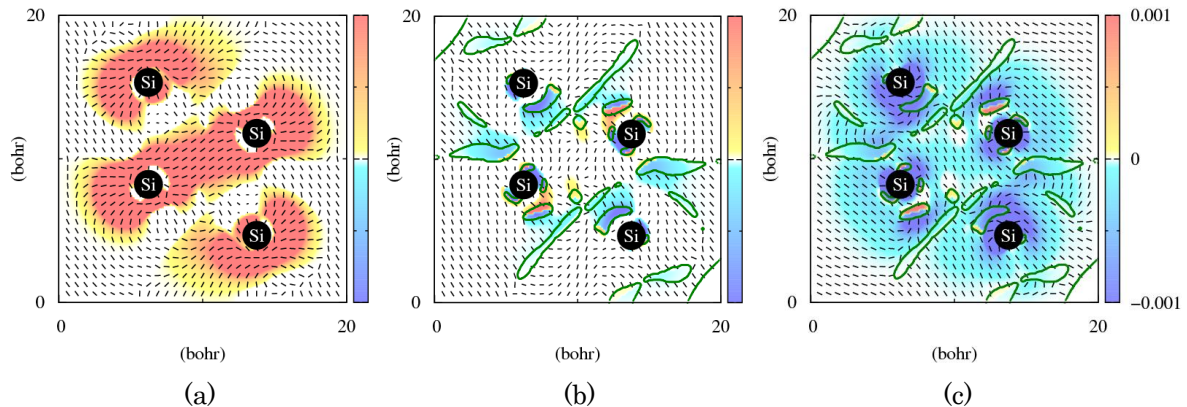


図2. 水素終端されていないナノワイヤーの、 $\hat{\sigma}_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ の第一(a), 第二(b), 第三(c)固有値及び固有ベクトル (黒実線). 複素固有値を持つ領域は緑実線で示される.

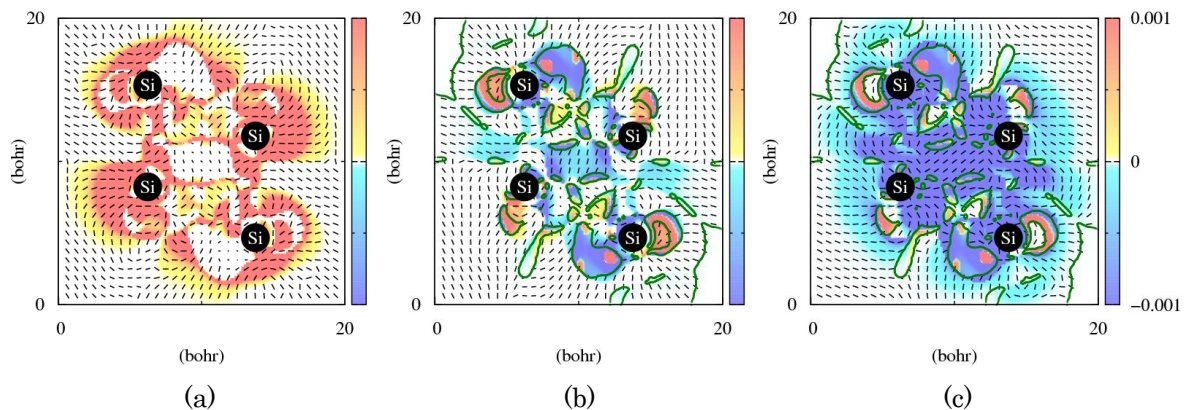


図3. 水素終端されていないナノワイヤーの、 $\hat{\sigma}_{\text{int}}(\mathbf{r})$ の第一(a), 第二(b), 第三(c)固有値及び固有ベクトル (黒実線). 複素固有値を持つ領域は緑実線で示される.

参考文献

- [1] A. Tachibana, J. Mol. Model., 11 (2005) 301; J. Mol. Struct.: THEOCHEM 943 (2010) 138.
- [2] A. Fukushima, M. Senami, Y. Tsuchida, and A. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys., 49 (2010) 111504.
- [3] A. Fukushima, S. Sugino, Y. Tsuchida, M. Senami, and A. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys., 49 (2010) 121504.
- [4] K. Doi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 47 (2008) 205.
- [5] M. Senami, Y. Ikeda, A. Fukushima, and A. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys., 49 (2010) 115002.
- [6] M. Senami, Y. Ikeda, and A. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys., 50 (2011) 010103.