

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 4 月 25 日現在

機関番号：12102  
研究種目：研究活動スタート支援  
研究期間：2010 ～ 2011  
課題番号：22810003  
研究課題名（和文）大規模量子伝導シミュレーション法の開発とナノカーボン・有機薄膜系への応用  
研究課題名（英文）Development of large-scale quantum transport simulation method and application to nano-carbon materials and organic semiconductors  
研究代表者  
石井 宏幸（ISHII HIROYUKI）  
筑波大学・数理物質系・助教  
研究者番号：00585127

研究成果の概要（和文）：研究代表者が独自に開発した「時間依存波束拡散法」を2次元系へと拡張し、さらにポーラロン効果を取り入れることによって従来の手法では困難だった現実的なスケールのグラフェンナノリボンや有機薄膜の伝導物性を扱うことに成功した。その結果、実験で測定されているような幅数十ナノメートルのグラフェンナノリボンの室温における伝導物性や、ペンタセン有機薄膜の移動度の温度依存性などを数値的に明らかにした。

研究成果の概要（英文）：To clarify the transport properties of various materials from the atomistic viewpoint, I developed the “Time-dependent Wave-packet diffusion method”. Furthermore, by taking the polaron effects into account, I have succeeded in calculating transport properties of organic materials. As the results, I clarified numerically the carrier-scattering mechanism of graphene nanoribbons with realistic edge roughness and organic thin films.

交付決定額

（金額単位：円）

|         | 直接経費      | 間接経費    | 合 計       |
|---------|-----------|---------|-----------|
| 2010 年度 | 1,050,000 | 315,000 | 1,365,000 |
| 2011 年度 | 1,050,000 | 315,000 | 1,365,000 |
| 年度      |           |         |           |
| 年度      |           |         |           |
| 年度      |           |         |           |
| 総 計     | 2,100,000 | 630,000 | 2,730,000 |

研究分野：計算物理

科研費の分科・細目：ナノマイクロ科学・ナノ構造科学

キーワード：伝導理論、時間依存、波束ダイナミクス、分子動力学、カーボンナノチューブ、グラフェン、有機半導体

1. 研究開始当初の背景

様々な物質の電気伝導物性を原子スケールから理解することは重要である。ナノスケール系において、従来、電気伝導特性は拡散領域から弾道領域へと移り変わるとされているだけであり、その解析は拡散伝導に対しては古典的なボルツマン方程式、弾道伝導に

対しては量子論に基づく非平衡グリーン関数法と異なる手法が用いられてきた。そこで私は、弾道領域から拡散領域までを量子力学に基づき統一的に扱える電気伝導計算法の開発を先駆的に行ってきた。

## 2. 研究の目的

私が独自に開発した計算理論を用いて、カーボンナノチューブ、グラフェン、有機薄膜の伝導機構を統一的に解析する。この手法は、量子論を使って原子の尺度から有限温度における伝導物性を統一的に解析できる新手法である。伝導度、平均自由行程、移動度、及びその温度依存性を定量的に評価するとともに、手法の改良・拡張を行い様々な物質の伝導機構解明の解析手法として確立させる。

## 3. 研究の方法

1次元CNTから1次元グラフェンナノリボン、そして2次元グラフェンへと空間次元が徐々に変化した際の伝導特性変化に着目した。最初に、1次元系であるCNTとグラフェンナノリボンの伝導特性を互いに比較しながら解析する。分子動力学の計算から、ナノリボンの端に空間的に局在するエッジフォノンの存在を発見した。そこで、このナノリボンとエッジフォノンを持たないCNTの伝導物性を比較しながら、エッジフォノンの散乱効果を定量的に研究する。さらに大規模計算が可能な本計算手法の特徴を生かし、ナノリボンの幅を広げて2次元グラフェンに近づけていくに従い、電気伝導特性がどのように変化するのか解明する。この2次元系の電気伝導特性に関する計算結果の蓄積を積んだ後、同じ2次元系の有機薄膜系の伝導研究へ進む。

有機薄膜は、弱いファンデルワールス力で各分子が結合されている。そのため有機分子のイオン化による分子変形の再構築エネルギーが重要となる。本研究課題では、この再構築エネルギーを新たに取り入れる。具体的には、Holstein結合項を導入する。これがポーラロン形成を引き起こす。この部分の計算には密度汎関数法を用いた第一原理に基づく計算と連携して行う。上記のポーラロン効果を取り入れて拡張した本計算手法を、高移動度を示すことで有名なペンタセン単結晶分子薄膜系に適用する。計算によって得られた移動度やその温度変化などを実験結果と比較・検討する。実験との対応などから、有機薄膜系で支配的な伝導機構の解明に取り組む。

最終的には、得られた知見を基に、弾道・拡散・熱活性型ホッピング伝導など多岐に渡る様々な伝導機構の統一的な理解に取り組む。そして本計算法を様々な物質の伝導機構を解明するための解析手法として確立させる。

## 4. 研究成果

研究代表者は、カーボンナノチューブに対して確立された「時間依存波束拡散法」を2次元系へと拡張し、1次元グラフェンナノリボンから2次元グラフェンシートへのバンドギャップの変化や伝導物性の連続的变化（拡散伝導～弾道伝導）などを調べ、その支配的な散乱原因などを明らかにしてきた。

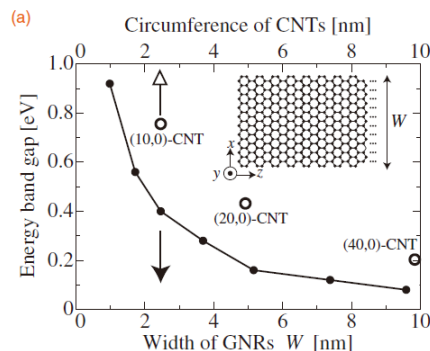


図1 グラフェンリボンの幅とバンドギャップの変化。比較のため、CNTのバンドギャップの円周依存性も示してある。

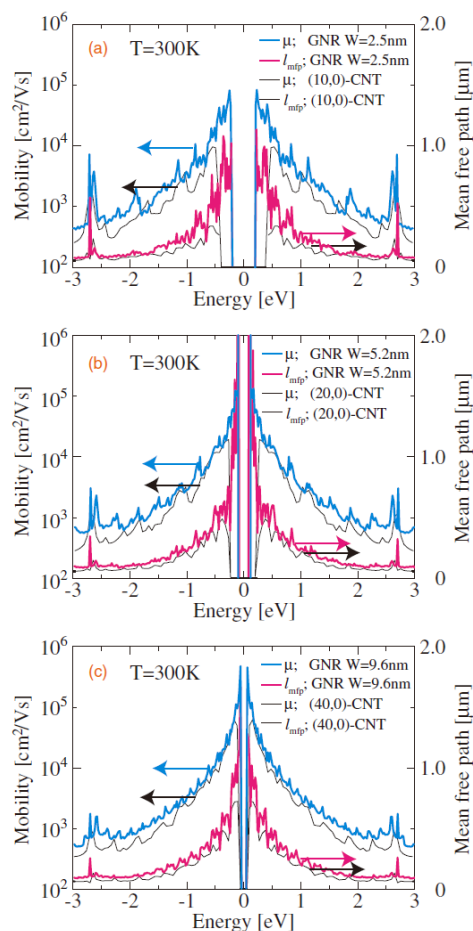


図2 グラフェンリボンの移動度と平均自由行程のエネルギー依存性。CNTの値も示してある。

共有結合系結晶であるナノカーボン系材料の他に、フレキシブルデバイス材料として期待される分子性結晶を扱うために、波束ダイナミクスと分子動力学を毎時間ステップ毎に連立して解くことで、ポーラロン効果を取り込んだ。これにより、有機半導体において重要な結晶格子歪みを伴う電子伝導の計算を可能にした。この新手法の確立によって、電子-フォノン散乱とポーラロン効果、さらに不純物散乱などを同時に扱うことが可能となり、実験結果と定性的にも定量的にも比較することができるようになった。これは世界的にも他に類の無い初めての計算法と言える。これを用いて、カーボンナノチューブと有機半導体のキャリア伝導機構の違いや、有機半導体に特有な移動度の温度依存性などを数値的に明らかにした。ここで得られたキャリア伝導機構に関する知見は、有機半導体デバイスの実用化を目指す際に課題となる移動度の向上にも非常に有益なものである。

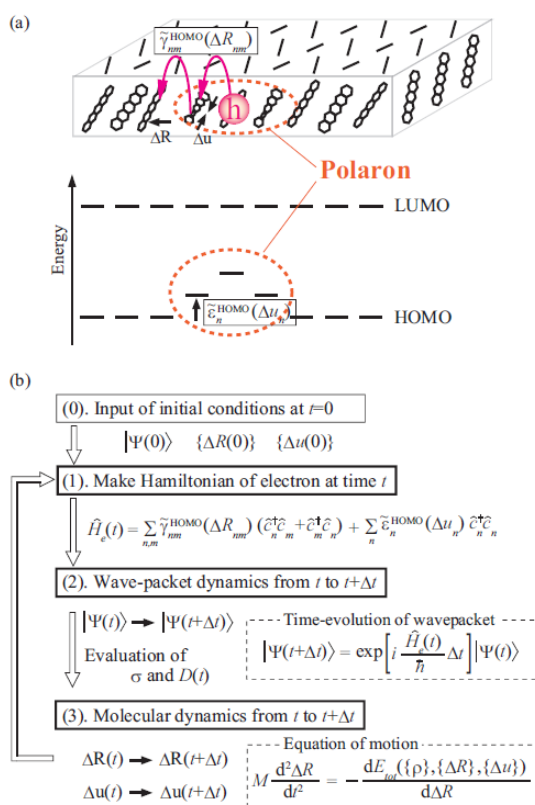


図3 (a) 本研究で扱う有機半導体におけるキャリア伝導のモデル。(b) 動的ポーラロン効果を扱うための数値計算の簡単な流れ図。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計4件)

(1) H. Ishii, N. Kobayashi, K. Hirose, "Hall conductivity calculations by the time-dependent wave-packet diffusion method" *Physical Review B*, 83, 233403-1 ~ 233403-4, (2011), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.83.233403

(2) 広瀬賢二、石井宏幸、小林伸彦、「原子レベルからのマルチスケール量子伝導計算」、*Journal of the Vacuum Society of Japan*, 54, 501-506, (2011), 査読有, DOI: 10.3131/jvsj2.54.501

(3) H. Ishii, N. Kobayashi, K. Hirose, "Order-N electron transport calculations from ballistic to diffusive regime by a time-dependent wave-packet diffusion method: Application to transport properties of carbon nanotubes" *Physical Review B*, 82, 085435-1~085435-9, (2010), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.82.085435

(4) H. Ishii, N. Kobayashi, K. Hirose, "Edge-Phonon Scattering Effects on Electron Transport of Graphene Nanoribbons" *Applied Physics Express*, 3, 095102-1~095102-3, (2010), 査読有, DOI: 10.1143/APEX.3.095102

〔学会発表〕(計13件)

(1) 石井宏幸、「波束ダイナミクス法を用いた有機半導体のキャリア伝導計算」、日本物理学会 第67回年次大会、2012年3月24日、関西学院大学。

(2) 石井宏幸、「波束ダイナミクスによる有機半導体のキャリア伝導計算」、第59回応用物理学関係連合講演会、2012年3月16日、早稲田大学。

(3) H. Ishii, "Charge transport calculations of organic semiconductors by the time-dependent wave-packet diffusion method", 2012 American Physical Society March meeting, 2012年3月2日、Boston, MA, USA.

(4) H. Ishii, “Order-N electron transport calculations for ballistic, diffusive, and polaron transport regimes”, The 14th Asian workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (招待講演), 2011 年 10 月 31 日、東京大学.

(5) H. Ishii, “Order-N Transport Calculations by a Time-dependent Wave-packet Diffusion method: Application to Pi-conjugated Materials”, BIT’ s 1st annual World Congress of Nano S&T (招待講演), 2011 年 10 月 23 日、大連、中国.

(6) H. Ishii, “Charge Transport Calculations of Organic Molecular Crystals by Time-Dependent Wave-Packet Diffusion Method”, International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces, 2011 年 7 月 7 日、Prague, Czech Republic.

(7) 石井宏幸, 「時間依存波束拡散法を用いたナノカーボン系の大規模電気伝導計算」、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 26 日、大阪府立大学。

(8) H. Ishii, “Transport calculations of carbon nanotubes by the Order-N TD-WPD method”, 18<sup>th</sup> International Vacuum Congress, 2010 年 8 月 24 日、北京、中国。

[その他]

ホームページ等

<http://www.bk.tsukuba.ac.jp/~ishii/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

石井 宏幸 (ISHII HIROYUKI)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号：00585127