

ポスト「京」(スーパーコンピュータ「富岳」)重点課題⑦ 第5回シンポジウム

次世代の産業を支える 新機能デバイス・ 高性能材料の創成

CDMSI

日程: **2019年8月9日(金)**

会場: 伊藤謝恩ホール(東京大学本郷キャンパス)

産業競争力の鍵を握る プロセスインフォマティクスの展開と スパコン「富岳」の役割

Process informatics as a key technology for strengthening the industrial competitiveness and the role of supercomputer “Fugaku”

天野 浩

名古屋大学
未来材料・システム研究所

 金属ガリウム (Ga) と窒素 (N) からなる化合物半導体 GaN は青色 LED で有名になったが、発光のみならず、電力の制御や無線通信などへの応用に関して、Si や GaAs など従来の半導体材料と比して圧倒的に優れた物性を有する。そのため青色 LED としてばかりでなく、大電力駆動と高速動作を両立した次世代省エネパワーデバイスや超大容量無線通信用高周波デバイスなどへの応用が期待されている。

コンピュータ関連で説明すると、例えば 2030 年次世界のデータサーバーの予測電力消費量は 1200TWh、このうち、従来の Si 系トランジスタを用いた電源を GaN 系トランジスタを用いた電源に置き換えると 2% 程度、24TWh の節電が可能、CO₂ 排出量では 13.4Mt の削減である。スパコンの使用で電気料金の増加に後ろめたさがあるのであれば、GaN 系の開発はそれを補って有り余るほどの効果を得ることができる、と言える。

 次に、プロセスインフォマティクスの重要性について説明する。2050 年までに政府目標である温室効果ガス排出 80% 減を実現するためには、再生可能エネルギーを中心とした社会システムへの転換が必要である。その実現には電力網の刷新、および時々刻々と変わる発電・需要に的確に対応し判断を下す制御用 AI チップ、および瞬時に発送電を制御可能なインテリジェントな電力モジュールが用いられる。そのために次世代 AI チップ製造、および SiC や GaN などハイパワー用新規半導体材料を用いた新しいスイッチングデバイスの社会実装を急ぐ必要がある。

そのため、マテリアルズインフォマティクスに加えて、プロセスインフォマティクスの構築が急がれる。ビッグデータを用いたマテリアルズインフォマティクスは、世界的にはアメリカや中国、日本でも物質・材料研究機構等を先頭に進められている。しかし、実際に社会実装し



て社会システムを根底から変えるには、マテリアルズインフォマティクスによる材料の選定後、いかにそれを製造するか、というプロセスインフォマティクスの構築が欠かせない。

我々は、文部科学省“省エネルギー社会の実現に資する次世代半導体研究開発プロジェクト”および“ポスト「京」プロジェクト”を実施しており、そのなかでデバイスの製造方法である有機金属化合物気相成長(MOVPE)法による GaN の結晶成長過程を解析している際に、プロセスインフォマティクスの重要性に気が付いた。従来は、Ga 原料であるトリメチルガリウム(TMGa)と窒素原料であるアンモニア(NH₃)は気相中で付加体、いわゆるアダクト(Ga(CH₃)₃:NH₃)を形成し、基板表面に輸送され、徐々に分解して GaN が形成されるというプロセスモデルが信じられていた。

ところが、このモデルでは、Ga が表面をマイグレーションするという実験結果を説明できない。そこで、スパコンを用いて反応プロセスを詳細に解析しなしたところ、TMGa は気相中、単独で Ga に分解し、基板表面に輸送されることを確認した。従来と比べて 1000 倍以上の質量分解能を有する高分解能飛行型質量分析装置を用いて MOVPE 中の気相中その場観察を行ったところ、従来のモデルのような付加体はほとんど気相中から検出されず、TMGa は単独で分解していることを実験的に確認した。

 最後に「富岳」への期待を説明する。新しい AI チップ製造や新規半導体材料製造装置の設計・製造に AI 技術を取り入れる場合、1) 正確な実験データ、2) 正確な結晶成長シミュレーション手法、3) 正確なシミュレーションによって得られるビックデータ、および 4) ビックデータを基に「どう作るか」を提案する AI 技術が必要である。1) については正確なデータを収集する実験研究者が必要である。2) については、“省エネルギー社会の実現に資する次世代半導体研究開発プロジェクト”および“ポスト「京」プロジェクト”の連携によって、GaN の MOVPE 成長において手法開発と正確な反応決定に成功している。3) については、現在の「京」レベルのスパコンでは、少数のデータは得られるがビックデータは得られない。「京」の 100 倍のアプリケーション性能を目指す「富岳」により、はじめてビックデータが得られる。

これらに 4) の AI 技術が揃うと、結晶成長装置の短期間での正確な設計・製造が可能になり、世界に先駆けて AI チップや新規半導体材料の結晶成長法の構築ができる。

市場規模に関して言えば、マテリアルズインフォマティクスは年間 1000 億円程度、一方、プロセスインフォマティクスは、半導体市場全体の 54 兆円に加え、製造装置市場の 6.5 兆円、合計で年間 60 兆円以上の大きな市場が期待できる。

以上のように次世代半導体デバイス製造の点から、「富岳」ができるだけ早い時期に稼働することを期待している。

天野研究室：名古屋大学

<http://www.semicond.nuee.nagoya-u.ac.jp/index.html>

http://www.imass.nagoya-u.ac.jp/r_introduction/amano_lab.htm

<https://www.chunichi.co.jp/article/shizuoka/tokai-news/CK2019052302000099.html>

「富岳」でひらく未来社会

スーパーコンピュータ「京」が2012年に共用開始してから7年を経た現在、「京」と同等かそれ以上の性能のスパコンが大学など複数の機関に設置され、超並列計算環境がより身近になっています。また、機械学習やディープラーニングなどAI手法によるインターネット上の大規模データの利用が進むにつれて、スパコンが生み出す大規模データ自体の価値も注目されるようになり、AIを活用した課題解決の取り組みが、計算科学の各分野で活発になってきています。

グローバルに利用されている物質科学のアプリケーションソフトウェア(アプリ)の普及は欧米に先行されています。また、AIの取り組みにおいても、欧米や中国の勢いへのキャッチアップが課題となっています。これらを巻き返して、デバイス・材料分野における日本の産学の国際競争力をより強化するためには、先端的な研究インフラとそれを活用した先端科学技術を、より早く社会実装する必要があります。

本プロジェクトは、「京」で培った量子論に基づくシミュレーション手法や新しいマルチスケールシミュレーション手法を、「富岳」(ポスト「京」)で飛躍させることが目的です。IT社会の発展に不可欠な先端電子デバイスや高性能物質・材料の究極的洗練化、新しい物理原理に基づく材料機能創出、将来のイノベーションの源泉となる学理の構築を行い、我が国の次世代産業・社会基盤の構築に寄与することを目指しています。さらに、AIとシミュレーションを融合させた、新しい材料設計手法の開発にもチャレンジしています。

CDMSI課題責任者

常行真司

東京大学

理学系研究科/物性研究所

本プロジェクトでは、社会実装を加速させるため、下記の点をプロジェクト実施ポリシーに据えて課題を推進しています。

- 1) 開発アプリは公開し、プロジェクト外の方もPCからスパコンまで幅広く利用できるように整備する。
- 2) プロジェクト終了(2019年度末)までに、「富岳」を用いた成果の社会実装に向けた研究推進体制を構築する。

すでに、開発アプリの殆どを公開し、いくつかのアプリは物性研や「京」、HPCI等にプレインストールされています。また、公開アプリは物質科学計算ポータルサイト「MateriApps」に掲載し、物質科学関係者にアプリの特徴を周知する仕組みを整えています。「MateriApps」の閲覧回数は毎月1.5万回にもなりますが、そのうち25%は海外からアクセスされています。開発アプリを手持ちのパソコンで手軽に利用できるパッケージソフト「MateriApps LIVE!」は、大学の講義や実習で使われているほか、海外からのダウンロード数も増えています。さらに、アプリ講習会を実施し、産学問わず利用者を増やす努力を行っています。

本シンポジウムでは、これまで開発してきたアプリの紹介、そのアプリを「京」等で利用してこれまで創出された成果、そして、「富岳」で取り組む未踏領域の課題を紹介します。参加者の皆様には、是非、アプリや取り組む課題に興味を持っていただければ幸いです。本シンポジウムが、皆様とプロジェクトメンバーとの新たな協創や、開発したアプリ利用による皆様の課題解決につながることを期待しています。

MateriApps とは？

計算物質科学(理論、実験、応用)・
計算機科学の研究者のための、
物質科学シミュレーションのポータルサイトです。

MateriApps には 300 近いアプリケーション・ツールが掲載されています。そのサイトは、利用者が「何をやりたいのか」、すなわち対象となる物質、興味のある現象・物理量、そして計算方法までの多面的な視点を「見える化」して構成されています。また、それぞれのアプリケーションの魅力、将来性、応用性について、開発者自身の生の声を伝えると同時に、キーワード解説、事例紹介、レビューなど、ユーザサイドの情報を提供します。

MateriApps は、CDMSI の研究者だけでなく、計算物質科学に関わるすべてのプロジェクトや研究者に開かれていて、自由に活用することができます。

今後の計算物質科学の発展には、計算機や手法の進歩だけでなく、コミュニティーコードを育てていくことが不可欠です。MateriApps では、アプリ公開や講習会開催のサポートなどを通じて、アプリケーション利用者と開発者の両者にとって役立つコミュニティー創出をめざしています。



次世代の産業を支える 新機能デバイス・高性能材料の創成(CDMSI)

プログラム

2019年8月9日(金)

会場:伊藤謝恩ホール

本紙掲載
ページ

10:00 開会の辞 **常行真司** (東京大学・CDMSI課題責任者)

プロジェクトで取り組む研究課題の成果をポスターで報告

10:00 - 10:30 フラッシュトーク (1分間のプレゼンテーション)

10:30 - 11:50 ポスターセッション(会場:多目的スペース)

*ポスターは意見交換会終了時まで展示します。

7

11:50 - 13:00 休憩

13:00 - 13:10 挨拶 文部科学省・五神 真 (東京大学総長)・森 初果 (東京大学 物性研究所長)

13:10 - 13:30 プロジェクト概説 **常行真司** (東京大学・CDMSI課題責任者)

3

座長 **常行真司** (東京大学)

13:30 - 14:30 特別講演:**天野 浩** (名古屋大学)

「産業競争力の鍵を握るプロセスインフォマティクスの展開とスパコン『富岳』の役割」

1

14:30 - 15:00 **サブ課題 A** 高機能半導体デバイス

押山 淳 (名古屋大学)

「第一原理物質計算と量子論デバイス・プロセスシミュレーション」

11

15:00 - 15:15 休憩

座長：毛利哲夫 (東北大学)

- 15:15 – 15:35 **サブ課題 B** 光・電子融合デバイス
矢花一浩 (筑波大学) ————— 13
「第一原理計算に基づく光科学ソフトウェアSALMONの開発と応用」
- 15:35 – 15:55 **サブ課題 C** 超伝導・新機能デバイス材料
今田正俊 (早稲田大学) ————— 15
「強相関電子系の超伝導、トポロジカル相」

座長：赤井久純 (東京大学)

- 15:55 – 16:15 **サブ課題 D** 高性能永久磁石・磁性材料
三宅 隆 (産業技術総合研究所) ————— 17
「大規模シミュレーションと機械学習による永久磁石開発」
- 16:15 – 16:35 **サブ課題 E** 高信頼性構造材料
香山正憲 (産業技術総合研究所) ————— 19
「金属材料の微細組織の高精度マルチスケール計算技術」

座長：川島直輝 (東京大学)

- 16:35 – 16:55 **サブ課題 F** 次世代機能性化学品
松林伸幸 (大阪大学) ————— 21
「ポリマー系の物質分配と相溶性の全原子解析」
- 16:55 – 17:15 **サブ課題 G** 共通基盤シミュレーション手法
尾崎泰助 (東京大学) ————— 23
「汎用第一原理大規模電子状態計算ソフトウェアOpenMXの開発と応用」

- 17:15 – 17:20 総括 高田 章 (ロンドン大学)
クロージング 常行真司 (東京大学)

- 17:20 – 19:20 意見交換会
*計算物質科学の「見える化」技術を展示します。

ポスターセッション

2019年8月9日(金)

会場:多目的スペース

サブ課題 **A** 高機能半導体デバイス

本紙掲載
ページ

A1	RSPACE を用いた電子デバイス用高機能界面のデザイン 小野倫也 (神戸大学)	27
A2	オーダー N 法第一原理計算による Si/Ge コアシェルナノワイヤの理論研究 宮崎剛 (物質・材料研究機構)	28
A3	転位および不純物がある GaN の第一原理計算とリーク電流モデルの構築 原嶋庸介 (名古屋大学)	29
A4	第一原理計算と熱力学的解析による GaN MOVPE 成長中の炭素取り込みの考察 大河内勇斗 (名古屋大学)	30
A5	第一原理計算による超格子型相変化メモリのスイッチング機構の考察 小川湧太郎 (名古屋大学)	31
A6	第一原理計算による GaN らせん転位中の Mg 不純物の研究 中野崇志 (名古屋大学)	32
A7	量子輸送デバイスシミュレータ開発 森 伸也 (大阪大学)	33
A8	デバイスシミュレーションによる Si ナノシートトランジスタの解析 鎌倉良成 (大阪工業大学)	34
A9	ナノスケールデバイスにおける離散不純物モデルの構築とその実装 吉田勝尚 (筑波大学)	35

サブ課題 **B** 光・電子融合デバイス

本紙掲載
ページ

- B1** 第一原理計算によるシリコンの波数励起
野田真史 (筑波大学) 36
- B2** 大規模計算をもちいた極限パルス光・固体物質相互作用の第一原理シミュレーション
植本光治 (筑波大学) 37
- B3** A64FX プロセッサに対する電子動力学アプリケーション SALMON のコデザイン
廣川祐太 (筑波大学) 38

サブ課題 **C** 超伝導・新機能デバイス材料

- C1** 高精度量子多体計算手法を用いた銅酸化物高温超伝導体の第一原理的研究
大越孝洋 (早稲田大学) 39
- C2** ボルツマン機械で迫る高温超伝導の起源
山地洋平 (東京大学) 40
- C3** 強相関トポロジカル物質の励起スペクトル
山地洋平 (東京大学) 41
- C4** テンソルネットワーク法の開発とキタエフスピン液体への適用
大久保毅 (東京大学) 42
- C5** パイロクロア格子上的イリジウム酸化物における量子スピン液体の数値的研究
Rico Pohle (早稲田大学) 43

サブ課題 **D** 高性能永久磁石・磁性材料

- D1** ベイズ最適化を利用した高効率な結晶構造探索
佐藤 暢哉 (産業技術総合研究所) 44
- D2** 磁性材料の高性能化—大規模電子状態計算による探索
合田 義弘 (東京工業大学) 45

サブ課題 **E** 高信頼性構造材料

本紙掲載
ページ

- E₁** 大規模第一原理計算による鉄中の粒界特性の解明と機械学習との連携
徐 卓 (産業技術総合研究所) 46
- E₂** 第一原理(FP) フェーズフィールド(PF)法の開発
PHAM Thi Nu (横浜国立大学) 47
- E₃** 一方向凝固過程における柱状粒の競合成長: フェーズフィールド法による研究
Chunwen Guo (京都工芸繊維大学) 48

サブ課題 **F** 次世代機能性化学品

- F₁** 分子動力学シミュレーションを用いた長鎖高分子化学ポテンシャルの高速計算手法の開発
山田一雄 (大阪大学) 49
- F₂** 有機/無機界面シミュレータの接着への適用
浦長瀬正幸 (名古屋工業大学) 50

サブ課題 **G** 共通基盤シミュレーション手法

- G₁** 全電子 FLAPW 計算コード HiLAPW の開発
小口多美夫 (大阪大学) 51
- G₂** 不完全な実験データを用いたデータ同化による結晶構造探索
吉川誠司 (東京大学) 52
- G₃** 第一原理ベースの新 CALPHAD 相図計算手法の探索と開発
Theresa Davey (東北大学) 53
- G₄** コデザインに基づく数理アルゴリズムとライブラリの開発
星 健夫 (鳥取大学) 54
- G₅** 超並列 100 ナノメートル電子状態計算と有機デバイス材料研究の産業展開
星 健夫 (鳥取大学) 55
- G₆** 革新的表面構造解析に向けた超並列データ駆動科学と測定技術の融合
星 健夫 (鳥取大学) 56
- G₇** 大型実験施設との連携 — 強相関電子系・量子スピン系の磁気・電荷励起 —
遠山貴巳 (東京理科大学) 57

口頭発表

第一原理物質計算と 量子論デバイス・プロセスシミュレーション

First-Principles Condensed-Matter Calculations and
Device-Process Simulations Based on the Quantum Theory

押山 淳 (名古屋大学 未来材料・システム研究所)

課題の目標

「デバイス構造における乱れの理解と制御そして新機能発現」および「新材料からの量子論デバイス創製シミュレータ開発」のふたつのサブサブ課題のもと、「京」コンピュータおよび「富岳」コンピュータのアーキテクチャに最適な実空間シミュレーション手法の高度化を行い、それにより高機能半導体開発に資する、先端的物質科学計算と量子論デバイスシミュレーションを実行する。対象となる物質ターゲットは、半導体ナノ構造、2次元原子層物質、そして SiC、GaN に代表される次世代パワー半導体と、その異種物質界面・成長表面である。

アプリケーションの開発

RSDFTコードの高速化・高度化

量子論の第一原理に基づいた密度汎関数理論 (Density-Functional Theory: DFT) による構造最適化・電子状態計算を、超並列アーキテクチャ・コンピュータ上で高効率に実行する RSDFT (Real-SpaceDFT) コードは、Si ナノワイヤー 10 万原子系に対する計算により、2011 年のゴードンベル賞を受賞したが、本サブ課題遂行中にも更なる高速化、高度化が行われた。それにより、高速化の観点では、「富岳」において対「京」比較で 30 倍以上の高速化が見込まれている。また高度化の代表的成果は、分子動力学法 (Molecular Dynamics: MD) の導入であり、実空間スキームによる Car-Parrinello (CPMD) シミュレーション部分 (RS-CPMD) が RSDFT

コードにインプリメントされた。現時点では、1500 原子系のサブナノ秒に亘る動的シミュレーションが、日常的なコンピュータ・リソースで実行可能となっており、電界効果トランジスタ (MOSFET) に欠かせないアモルファス SiO₂ の物性解明、パワー半導体 GaN のエピタキシャル成長機構解明などが進んでいる。¹⁾

RSDFTとデバイスシミュレータNEGFの統合

ナノデバイスにおける電流輸送では、非平衡グリーン関数法 (Non-Equilibrium Green's Function: NEGF) などの量子論的アプローチが必要である。本サブ課題実行中に、この NEGF コードと前出の RSDFT コードの統合が行われた。これによりナノデバイスの電流を量子論の第一原理から計算するデバイスシミュレータが完成した。図1は開発された RSDFT-NEGF シミュレータによって得られた、Si ナノワイヤー MOSFET のゲート電圧ドレイン電流特性である。デバイス内での分極を RSDFT で求めることにより、正確な電圧電流特性が得られた。

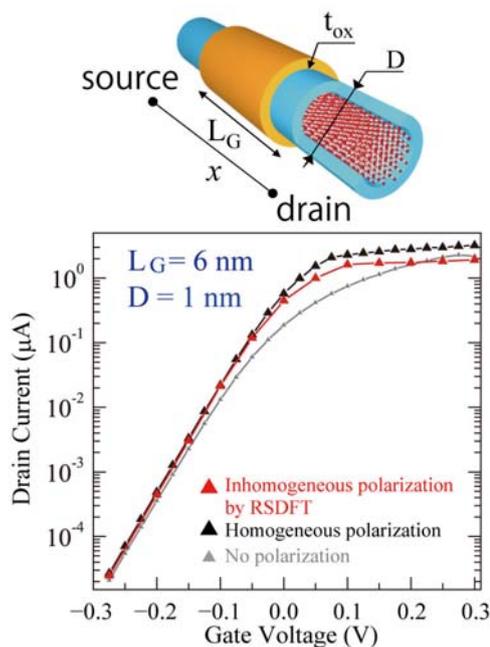


図1: RSDFT-NEGF 統合デバイスシミュレータによる Si ナノワイヤートランジスタの電流電圧特性。赤三角:分極電荷を RSDFT により自己無動着に計算した場合、黒三角:分極を経験的パラメータで取り入れた場合、灰三角:分極を考慮しなかった場合。重要なゲート電圧領域で一桁程度の違いが生じる。

研究開発成果

Floating状態と SiC/SiO₂MOSFETでの電子トラップ

多くの共有結合半導体は図2aに示すように四面体を構成要素としている。これら半導体のエネルギーギャップは sp³ 混成軌道の結合状態と反結合状態のエネルギー差であると信じられてきたが、それは必ずしも正しくないことがわかった [1]。図2b はパワー半導体 SiC の伝導帯下端の波動関数である。Si と C の間を結ぶ sp³ 軌道ではなく格子間のチャンネルに広がっていることが一目瞭然である。つまり結晶の内包空間に広がった floating 状態である。さらにこのことは、SiC のバンドギャップの多型依存性を見事に説明する。すなわち SiC は、ウルツ

共同研究者

白石賢二(名古屋大学)
Bui Kieu My(名古屋大学)
岩田潤一(アドバンスソフト)
松下雄一郎(東京工業大学)
森伸也(大阪大学)
美里劫夏南(大阪大学)
Boero Mauro(名古屋大学/Strasbourg大学)
制野かおり(X-Ability)
井本文裕(早稲田大学)
寒川義裕(九州大学)
重田育照(筑波大学)

脚注 1) その他の高度化の例としては、GP-GPUを用いたハイブリッド汎関数計算の効率的コード開発、複雑系電子スペクトル解析のためのband-unfolding法開発、DFT摂動論による誘起電荷密度計算ルーチン開発などがあげられる。2) その他のRSDFT等による物質科学計算の成果としては、(i) SiC酸化の原子スケール機構解明とSiC/SiO₂界面での炭素起因のトラップレベルの同定、(ii) SiC表面でのナノファセット形成機構解明とそこでのエピタキシャルグラフェン成長の成因探索、(iii) 二層グラフェンでの層間振れによるディラック電子の局在化発見、(iv) 銀表面上2次元物質シリセンの電子スペクトル解明、などがあげられる。また新たな展開として、次世代パワーデバイス材料であるGaNのエピタキシャル薄膜成長機構の解明および薄膜成長シミュレーション技術の構築に取り掛かった。未だ予備的段階ではあるが、Gaリッチな成長表面では窒素が容易に薄膜中へとりこまれること、成長温度ではGa原子が2次元液体化していること、など基礎的な知見が得られている。

参考文献 [1] Y.-i. Matsushita, A. Oshiyama, Phys Rev Lett, 112, 136403 (2014); J Phys Soc Jpn, 86, 054702 (2017). [2] Y.-i. Matsushita, A. Oshiyama, Nano Lett, 17, 6458 (2017)

問い合わせ先: Atsushi Oshiyama <oshiyama@imass.nagoya-u.ac.jp>

鉱(2H)、閃亜鉛鉱(3C)、4H(図2a)、6H、等々さまざまな結晶多型を示す。すべての多型は第三近接原子までの構造は同一である。異なるのは図2aに示すような正四面体の重なり方(原子層スタッキング)である。さらにそのバンドギャップは多型の違いにより40%も異なる。sp³混成軌道の考え方では説明できない。この謎は、原子層スタッキングの違いが格子間チャンネルの長さの違いを生みだしていることに気づけば氷解する。伝導帯の下端の電子は、格子間チャンネルに閉じ込められたfloating状態であり、その量子閉じ込めの程度はチャンネルの長さ、言い換えれば多型の相違によって決まっており、それによりバンドギャップの顕著な違いが生み出されるのである。

さて、SiC-MOSデバイス動作の根幹であるSiC/SiO₂界面には多くのキャリアトラップが存在する。酸化プロセスによる余剰炭素原子の挙動が怪しまれているが、それとは別に、上述の原子層スタッキングの問題があるこ

とがわかった[2]。図2cおよび図2dは界面での原子層スタッキングの違いにより、伝導帯下端に電子トラップが出現することを明らかにしたものである。通常の完全なスタッキングで界面が形成された場合は(図2c)理想的なバンドオフセットになっているが、スタッキング・フォールトが生じると(図2d)、上述のチャンネルの長さが界面付近で変調され、チャンネル長さが伸びる場合には量子閉じ込めが緩み、伝導帯下端が下方にシフトする。図2dの場合は理想的な伝導帯下端より0.3eVギャップ中にずれ込み、これが電子トラップとなるのである。このfloating状態に起因する効果の大小はSiC面方位に依存し、非極性面では効果は抑えられる。最近の実験で、このことが検証されている。

スーパーコンピューター「富岳」で取り組む課題 量子論シミュレーションによる パワーデバイスの科学と技術の構築

パワーエレクトロニクスの発展に資するため、以下の3点を柱として、RSDFT、NEGFコード等を軸に据えた先端的シミュレーションを行う。

①パワー半導体とアモルファス絶縁膜界面の原子・電子構造の解明と界面近傍欠陥の同定。ターゲットはSiCとGaNおよびそれらと整合しうる種々のアモルファス絶縁体。②エピタキシャル成長の量子論的解明とマルチスケールシミュレーション技術の構築。ターゲットはGaNのMOCVD成長を例としたエピ成長の量子論の構築。③パワーデバイス構造における、RSDFT-NEGFさらにはモンテカルロ輸送シミュレーションを用いたデバイスデザイン。

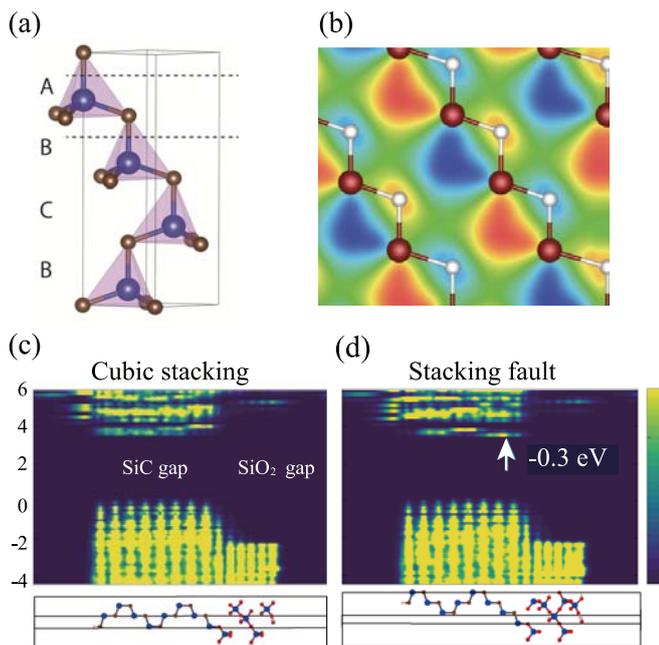


図2: (a)結晶多型のひとつである4H構造の模式図。(b)SiCの伝導帯下端の波動関数の振幅。格子間位置での振幅が最も高い。(c)および(d)SiC/SiO₂界面での局所電子密度。正常な原子層スタッキングの場合(c)と界面スタッキング乱れがある場合(d)。(d)の場合は界面近傍において伝導帯下端が局所的に下方移動している。

第一原理計算に基づく光科学ソフトウェア SALMONの開発と応用

Development and applications of first-principles software SALMON for optical sciences

矢花一浩 (筑波大学計算科学研究センター)

課題の目標

今日の先端の光科学では、光電磁場と物質中の電子・イオンが強く結合することにより起こる新しい現象や、それを利用した新奇な光デバイス原理の探求が、急速に進展している。高強度な超短パルス光を用いたレーザー加工技術も、産業応用で重要性が増している。本課題では、このような光と電子が強く結びついた系を記述する第一原理計算に基づく新しい計算法を発展させる。時間依存密度汎関数理論に基づき、光が照射した物質中で起こる電子やイオンの運動を実時間で記述し、孤立系、ナノ構造体、周期系バルク、表面・界面等、様々な系を対象として、近接場光励起や高強度パルス光励起の解明を行う。これにより、光と電子の結合による新奇な光デバイス原理の開拓や、非熱レーザー加工プロセスの初期過程の解明を行う。

アプリケーションの開発

光・電子・イオンの運動を実時間で第一原理計算

本課題で、分子研が開発を進めてきたパルス光と分子やナノ構造体の相互作用を記述するプログラム GCEED と、筑波大が中心となり開発を進めてきたパルス光と固体の相互作用を記述するプログラム ARTED を統合し、汎用の光・物質相互作用に対するオープンソース計算コード SALMON (Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience) を開発した。SALMON はウェブページ <https://salmon-tddft.jp> において公開し、コード論文を Comp. Phys. Comm. 誌に出版している [1]。

SALMON の基本となる機能は、時間依存密度汎関数理論に基づく電子軌道関数の時間発展計算である。

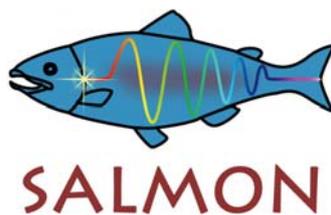


図1: SALMON (<https://salmon-tddft.jp>) のロゴ

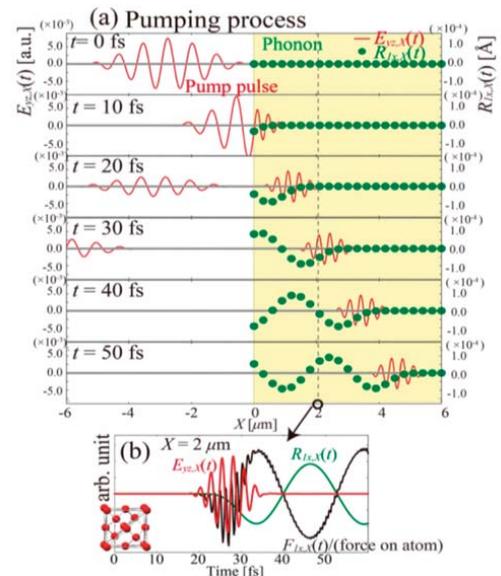


図2: パルス光をダイヤモンド表面に照射した時に発生するコヒーレントフォノンと、パルス光の伝搬 [2]。

軌道関数は3次元空間格子を用い表現しており、計算する空間領域や軌道・k点などを分割し、高効率な並列計算が可能である。これを用いて、弱い光に対する物質の応答を特徴づける分極率・誘電関数から、任意の波形や偏光、強度を持つパルス光電場に対する電子とイオンの非線形応答を調べることができる。さらに SALMON では、光伝搬と電子・イオンのダイナミクスを連結した計算により光伝搬の第一原理計算が可能であり、これは他に例のないユニークな機能である。

SALMONの開発では、計算機科学者との密接な連携を行ってきた。最も計算時間を要する軌道関数に対するステンシル計算に関し、メニーコアプロセッサ向けに高度な最適化を行いOakforest-PACSの全ノード計算を実施するとともに、理研R-CCSが提供するポスト「京」プロセッサシミュレータでの性能評価も実施し、ポスト「京」システムの早期活用のための準備を進めている。

共同研究者

八井 崇 (東京大学)
飯田健二 (分子科学研究所)
朴泰祐 (筑波大学)
野田真史 (筑波大学)
植本光治 (筑波大学)
廣川祐太 (筑波大学)
山田篤志 (筑波大学)
山田俊介 (筑波大学)
竹内 嵩 (筑波大学)
乙部智仁 (関西光科学研究所)
佐藤駿丞 (筑波大学)

参考文献 [1] M. Noda et.al, Comp. Phys Comm. 235, 356 (2019). [2] A. Yamada, K. Yabana, Phys. Rev. B99, 245103 (2019). [3] M. Noda et.al, Phys. Rev. Appl. 11, 044053 (2019). [4] T. Yatsui et.al, Comm. Phys. 2, 62 (2019). [5] M. Lucchini et.al, Science 353, 916 (2016).

問い合わせ先: Kazuhiro Yabana <yabana@nucl.ph.tsukuba.ac.jp>

研究開発成果

近接場光励起やアト秒科学など先端の光科学で成果

間接ギャップ半導体であるシリコンは、可視光領域の光をごくわずかしか吸収しないため、受光素子や太陽電池材料として使う場合に、光の吸収を強くする工夫が必要になる。我々は、微細なナノ構造の周囲に形成される近接場光を用いることで、シリコンの光吸収を増強させることが可能であることを示した。空間的に局在した光である近接場光は有限の波数を持つため、異なる波数状態間の電子励起、「波数励起」が可能になる。図3に、計算で得られた波数空間での遷移の様子を示す[3]。この効果に対する実験による検証を、シリコンの基板の上に金のナノ粒子を配置して行い、バンドギャップ波長領域の光応答が増大する結果が得られた[4]。

また、高強度超短パルス光と物質の相互作用では、アト秒科学の創生や高次高調波の発生、非熱レーザー加工など、様々なフロンティアが展開している。我々はアト秒実験グループと協力して、高強度パルス光と誘

電体薄膜の相互作用において、誘電体の光学特性が光の1周期よりも短い時間スケールで変化することを明らかにした[5]。さらに誘電体薄膜を用いると、パルス光の波形を制御できることが計算と実験により明らかにされつつある。これらはペタヘルツで動作する未来の光デバイス原理の開拓や、パルス波形の整形につながるものである。

スーパーコンピューター「富岳」で取り組む課題

光デバイスや光加工に対する原子スケールからの第一原理計算

「富岳」では、近接場光励起や高強度パルス光を用いた新しい光デバイス原理の開拓や非熱的なレーザー加工過程の解明のため、光電磁場・電子・イオンの運動を結合した実時間第一原理シミュレーションを実施する。物質表面に金属のナノ粒子を置き光を照射すると、ナノ粒子の周囲に近接場光が発生し、間接的ギャップ半導体であれば波数励起による光励起が起こり、導電性物質に対しては表面プラズモンが誘

起される。また高強度パルス光を誘電体の表面に照射すれば、表面からの電子やイオンの放出や、パルス光から電子・イオンへのエネルギー移行が起こる。これらの過程を、数千から数万原子からなる現実に極めて近い系に対し、原子サイズの空間スケール・フェムト秒以下の時間スケールで計算を行うことにより、新奇な光デバイス原理の開拓をさらに進めるとともに、非熱レーザー加工プロセスに対するミクロな理解を獲得する。

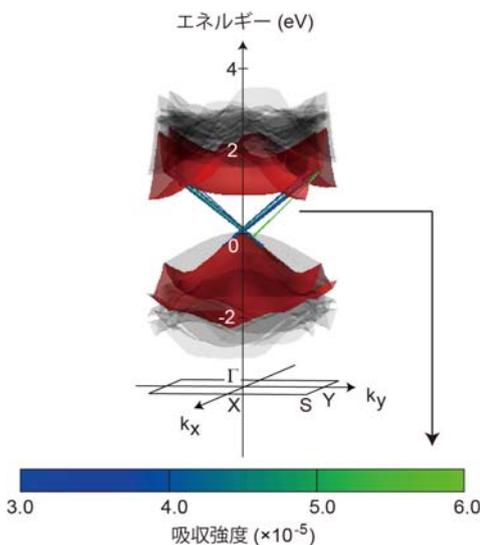


図3: シリコンの近接場光による電子励起を波数空間で示す[3]。

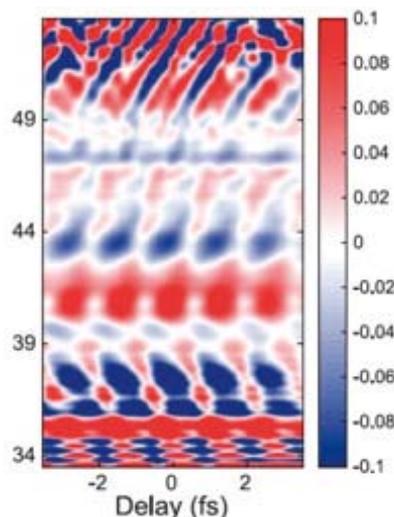


図4: ダイヤモンドの光学的性質の超高速変化に対する第一原理シミュレーション[5]。

強相関電子系の超伝導、トポロジカル相

Superconductivity and topological phase in strongly correlated electron systems

今田正俊 (豊田理研、早稲田大学)

課題の目標

第一原理計算を基礎に強相関電子物質の電子構造解明に適用できるアルゴリズムの開発・応用と、「富岳」を活用するための手法開発。特に、銅酸化物などの高温超伝導機構、トポロジカル機能物質の新概念実証、界面や非平衡への概念適用を可能にするコード開発と適用。

アプリケーションの開発

強相関電子系の予測、設計のための手法、ソフトウェア開発公開

強相関有効ハミルトニアンを第一原理的に導出し、 $H\Phi$ [1]、mVMC[2]などの低エネルギーソルバーを用いて解く一貫スキームを構築、実装した(図1)。さらにスピン軌道相互作用、電子格子相互作用、非平衡時間発展[3]を組み込み、テンソルネットワーク[4]などを含める等の高精度化と機能拡張を行なった。機械学習によるニューラルネットワークを取り込む手法も開発した[5,6](図2)。高度な機能拡張のみならず、実験家も使えるソフトとしても、コード公開と普及活動を進め[7]、21世紀初頭までは不可能であった強相関電子系に対する有力な第一原理手法・一貫シミュレータとしての地位を確立した。これは次世代機能素子として注目される強相関デバイス、トポロジカルデバイス、機能素子開発の武器となる。第一原理的な一貫手法とその公開は世界的にもほとんど例がない。

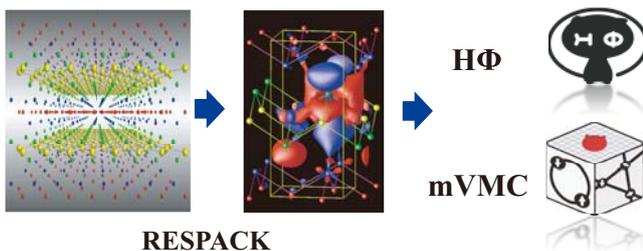


図1: 「富岳」で有用な強相関電子系ソフト開発

研究開発成果

高温超伝導と量子スピン液体の実験に隠れた本質抽出、機構提唱

銅酸化物超伝導体の2つの化合物について第一原理有効ハミルトニアンを導出して[8,9]、「京」を活用して解き、銅酸化物での強相関電子系特有の超伝導と電荷不均一相の激しい競合を明らかにし、ハバード模型のような単純な模型で電荷不均一相が支配的であるのに対して[10,11](図3)、これを抑えて現実物質で超伝導が優越する機構を定量的に解明した[12](図4)。特にサイト間有効相互作用がこの逆転を生み、モット転移に伴う電子構造再構成が電荷の不安定性や強い有効引力につながり超伝導を生むことを明らかにした。本成果は第一原理的にかつ物質の個性に基づき任意パラメタなしに銅酸化物超伝導体や鉄系超伝導体を含む高温超伝導体の発現機構に関する30年以上の難問を解く道を開き、より広範な物質群と候補に対し、「富岳」で系統的、包括的な解明を進める出発点にもなる。また、今までの実験では隠れていた超伝導が「高温化」する機構を抽出し、これを検証するために機械学習を活用して実験研究者と連携する道を開いた[13]。スピン液体の候補であるイリジウム

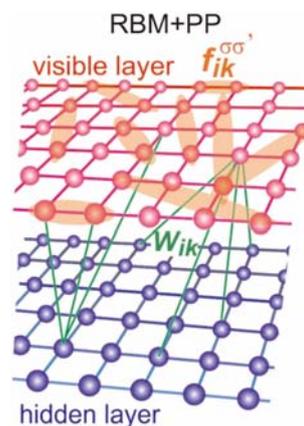


図2: 量子多体問題を解くための制限ボルツマンマシンの構造

やルテニウム化合物で現実に実験で実現する磁性相を定量再現するとともに[14]、磁性の裏にあるスピン液体の兆候を実験的に評価する方法を与えた[15-18](図5)。またイリジウムパイロクロア化合物の磁壁の持つトポロジカル機能を

共同研究者

山地洋平(東京大学)
川島直輝(物性研)
藤堂眞治(東京大学)
三澤貴宏(物性研)
大久保毅(東京大学)
野村悠祐(理研)
森田信史(物性研)
大越孝洋(早稲田大学)
Rico Pohle(早稲田大学)
金子隆成(物性研)
井戸康太(物性研)

参考文献 [1] M. Kawamura, K. Yoshimi, T. Misawa, Y. Yamaji, S. Todo, and N. Kawashima; *Compt. Phys. Commun.* 217, 180 (2017) [2] T. Misawa, S. Morita, K. Yoshimi, M. Kawamura, Y. Motoyama, K. Ido, T. Ohgoe, M. Imada, T. Kato *Compt. Phys. Commun.*, 235 (2019) 447. [3] K. Ido, T. Ohgoe, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 92 (2015) 245106. [4] H.-H. Zhao, K. Ido, S. Morita, M. Imada; *Phys. Rev. B* 96 (2017) 085103. [5] Y. Nomura, A. S. Darmawan, Y. Yamaji, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 96 (2017) 205152. [6] G. Carleo, Y. Nomura, and M. Imada; *Nat. Commun.* 9 (2018) 5322. [7] <https://> [8] M. Hirayama, Y. Yamaji, T. Misawa, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 98 (2018) 134501. [9] M. Hirayama, T. Misawa, T. Ohgoe, Y. Yamaji, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 99 (2019) 245155. [10] K. Ido, T. Ohgoe, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 97 (2018) 045138. [11] A. S. Darmawan, Y. Nomura, Y. Yamaji, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 98 (2018) 205132 [12] T. Ohgoe, M. Hirayama, T. Misawa, K. Ido, Y. Yamaji, M. Imada; *arXiv:1902.00122*

[13] Y. Yamaji, T. Yoshida, A. Fujimori and M. Imada; *arXiv:1903.08060*. [14] Y. Yamaji, Y. Nomura, M. Kurita, R. Arita, M. Imada; *Phys. Rev. Lett.* 113 (2014) 107201. [15] Y. Yamaji, T. Suzuki, T. Yamada, S. Suga, N. Kawashima, M. Imada; *Phys. Rev. B* 93 (2016) 174425. [16] Y. Yamaji, M. Imada; *Phys. Rev. B* 93 (2016) 195146. [17] T. Okubo, K. Shinjo, Y. Yamaji, N. Kawashima, S. Sota, T. Tohyama, M. Imada; *Phys. Rev. B* 96 (2017) 054434. [18] M. Gohlke, G. Wachtel, Y. Yamaji, F. Pollmann, and Y. B. Kim; *Phys. Rev. B* 97 (2018) 075126. [19] Y. Yamaji, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 93 (2016) 195146. [20] K. Ido, T. Ohgoe and M. Imada; *Sci. Adv.* 3 (2017) e1700718. [21] T. Misawa, Y. Nomura, S. Biermann, M. Imada; *Sci. Adv.* 2 (2016) e1600664. [22] T. Tadano, Y. Nomura, and M. Imada; *Phys. Rev. B* 99 (2019) 155148.

問い合わせ先 : Masatoshi Imada <imada@aoni.waseda.jp>

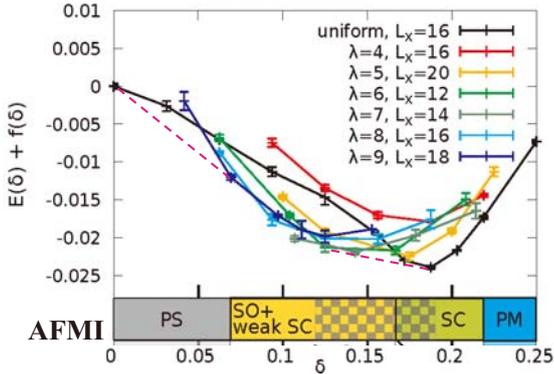


図 3: 超伝導と不均一への競合

解明した [19]。これらの成果は解析の難しい強相関電子系の実験結果に隠れる本質を第一原理計算や機械学習を用いて解明していく先駆例の一つである。実験結果の解析で実験研究者と連携が進み、実験と計算科学が連携して機能開発、探索していくデータ科学手法の展望を開くとともに、これを発展させていく方向での「富岳」での課題が明らかにもなった。また、強相関電子系の界面や非平衡という物性科学のフロンティアを研究する道筋と手法が開拓された。強相関電子の非平衡状態で超伝導が増幅する機構の一つを見出し [20](図 6)、界面で超伝導が最適化される一般的な機構の発見 [21] の基礎付け [22] に寄与した。

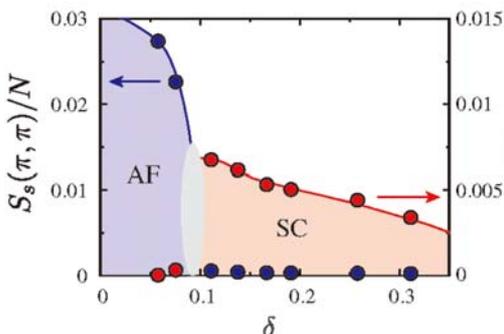


図 4: 水銀系銅酸化物第一原理有効ハミルトニアンによる超伝導相が支配的な実験相図の再現

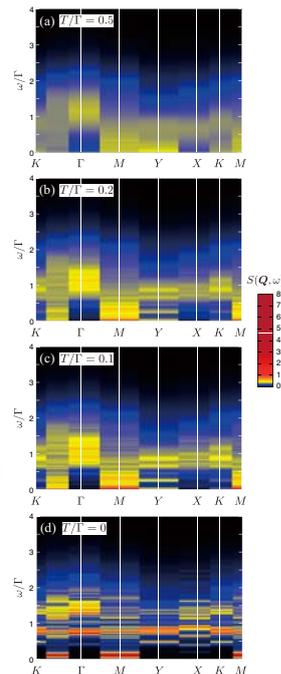


図 5: スピン液体候補の有限温度分光学

スーパーコンピューター「富岳」で取り組む課題

強相関系におけるトポロジカル相、超伝導の機能開拓と機構解明

開発、実装した強相関電子系のための階層的第一原理手法と高精度ソルバーを駆使し、格段に大きな空間サイズや長い実時間のシミュレーションを実現し、解明が進んできた高温超伝導の隠れた機構や、量子スピン液体、磁壁界面などのトポロジカル相の発見、解明、開発という、物理学における重要な基礎科学課題を推進する。また強相関電子系が固有に生む、粒子の分数化や流体化などの創発的現象を発見、基礎を確立し、そこから生まれる機能を開拓する。このために第一原理手法の予言力を活用して、現実物質群での個性を定量的、系統的に明らかにし、実験と連携して高機能トポロジカル相、超伝導相の実現をめざす。また高精度計算や解析に有効な機械学習

手法を第一原理手法と組み合わせ、データ科学手法を併用して、光電子分光、トンネル分光、中性子散乱、磁気共鳴、ミュオンなどの磁気情報、共鳴 X 線散乱、電子エネルギー損失分光などが明らかにする電荷ダイナミクスなどを組み合わせ、実験で求められる物理量から、そこに隠れている機構や理論情報を抽出することで、この機能開拓と機構解明を加速する。

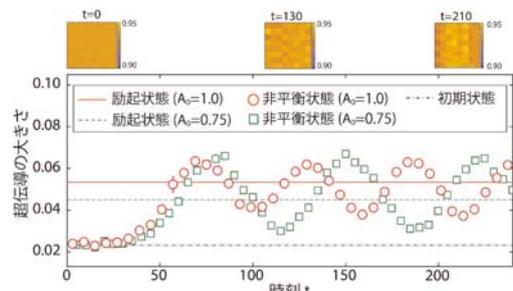


図 6: 高温超伝導が動的に増幅されていくシミュレーション結果

大規模シミュレーションと機械学習による永久磁石開発

Development of permanent magnets by large-scale simulation and machine learning

三宅 隆 (産業技術総合研究所)

課題の目標

電動車の駆動モータや風力発電機等に用いる高性能永久磁石の消費量は年々増加しており、小型化、耐熱性、希少元素低減などの要請から高保磁力、高飽和磁化、高キュリー温度の条件を満たす磁石材料が求められている。保磁力は粒界や材料組織に依存するが、その微視的機構は未だに解明されていない。本課題では原子スケールからの保磁力機構の解明に向け、磁化反転の鍵を握るネオジム磁石界面に対する1万原子規模の大規模第一原理計算を可能にするアプリケーション開発を行う。また、ネオジム磁石に代わる新規磁石開発に向けて、磁石材料の主相・副相物質の探索を行うためのマテリアルズ・インフォマティクス手法を開発する。

アプリケーションの開発

8500 原子規模のネオジム磁石界面の第一原理計算

• ネオジム磁石主相($\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$)に対する定量的な原子論的スピンモデルを構築し、有限温度磁性を解析す

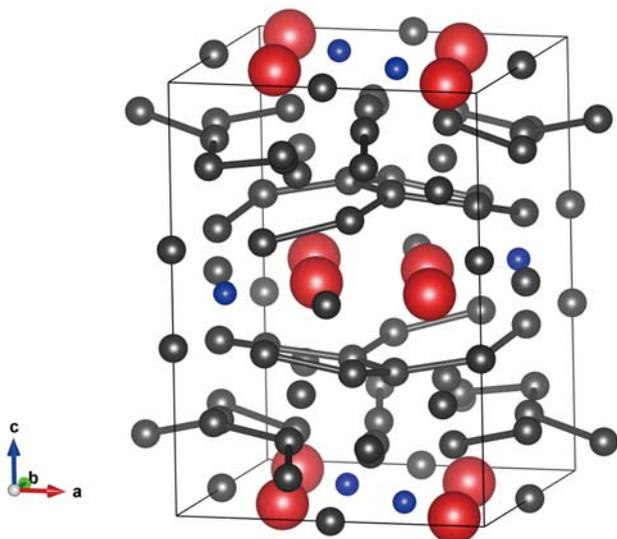


図1: $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ (ネオジム磁石主相)の結晶構造



図2: 全8,463原子からなる、ネオジム磁石界面($\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ /アモルファスNd-Fe相)の構造

る手法を開発した [1]。Wang-Landau 法を用いた制限モンテカルロ法で $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の飽和磁化と結晶磁気異方性の温度依存性を算出し、実験とよく一致する結果を得た。

• 第一原理計算により、希土類磁石粒界の原子スケールの磁気物性値を評価する技術を開発した [2]。サブ課題 G と協力して OpenMX コードを高度化し、ネオジム磁石界面に適用した。4000 原子規模のネオジム磁石の主相・副相界面の構造最適化を行った。また 8500 原子規模の界面系に対して動作確認を行った。

• OpenMX では、スピン多重度、結晶の量子数である k 点、固有状態(いわゆるバンド並列)に対して MPI と OpenMP のハイブリッド並列が 3 重に実装されており、高速計算が可能である。また、高速計算を可能とするためにスピン分極した 4f 電子を内殻に配置するオープンコア法を実装している。8,463 原子系でのテストでは、約 8 時間で 25 ループの自己無撞着計算を回すことに成功した。

研究開発成果

磁性材料開発に有効な機械学習手法

• 物性値を予測するための汎用的な記述子である軌道場行列 (OFM) を考案した [3]。4,220 種類の遷移金属化合物の生成エネルギーや 658 種類の化合物の局所磁気モーメントに対して有効性を検証した。

• 階層クラスタリングを用いて重要な記述子や記述子

共同研究者

石橋章司(産業技術総合研究所)
 佐藤暢哉(産業技術総合研究所)
 赤井久純(東京大学物性研究所)
 合田義弘(東京工業大学)
 寺澤麻子(東京工業大学)
 田中友規(東京工業大学)
 ソ・インソン(東京工業大学)
 馬場啓太(東京工業大学)
 濱崎恭孝(東京工業大学)
 塩沢知春(東京工業大学)

参考文献 [1] Y. Toga et al., Phys. Rev. B 98, 054418 (2016) . [2] Y. Tatetsu et al., Phys. Rev. Appl. 6, 064029 (2016) . [3] T.L. Pham et al., Sci. Technol. Adv. Mater. 18, 756 (2017) . [4] H.C. Dam et al., J. Phys. Soc. Jpn. 87, 113801 (2018) . [5] T. Fukazawa et al., Phys. Rev. Mater. 3, 053807 (2019) . [6] T. Yamashita et al., Phys. Rev. Mater. 2, 013803 (2018).

問い合わせ先: Takashi Miyake <t-miyake@aist.go.jp>

グループを特定するサブグループ関連性解析を開発した [4]。希土類遷移金属合金のキュリー温度の実験データに適用し、重要な記述子グループを特定した。

- ベイズ最適化とデータ同化を用いた効率的な化学組成の最適化手法を開発した [5]。Nd₂Fe₁₄B を超える磁気特性を有する RFe₁₂ 型希土類化合物に適用し、飽和磁化、キュリー温度、生成エネルギーを目的変数として 5 変数を最適化する探索効率を検証した結果、適切な記述子を選択するとランダムサンプリングよりも圧倒的に高効率であることがわかった。
- ベイズ最適化を用いた結晶構造予測手法を開発した [6]。

スーパーコンピューター「富岳」で取り組む課題

保磁力機構の解明と新規磁石開発

- 元素戦略 PJ 等の最新の実験情報とネオジム磁石主相・副相界面の第一原理計算に基づき、Nd₂Fe₁₄B のスピン模型を拡張した界面系のスピン模型を構築する。その磁化反転シミュレーションを実行し、粒界近傍の磁化反転機構の解明を行う。すでに 30nm 程度の Nd₂Fe₁₄B 孤立粒子のシミュレーションに成功しており、空間スケールを拡大した界面系の計算を実行する。
- マテリアルズ・インフォマティクス手法による新規磁石開発を行う。新たな鉄基希土類化合物の結晶構造探索、仮想スクリーニングによる主相・副相物質の絞り込み、ベイズ最適化による化学組成の最適化など第一原理計算と機械学習 (AI) を組み合わせた手法により高性能新磁石の提案を目指す。

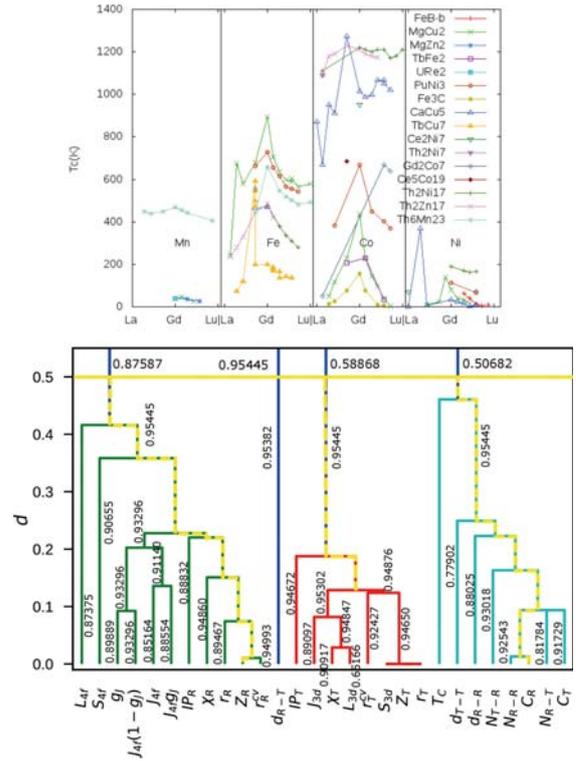


図 3: 希土類遷移金属合金のキュリー温度のサブグループ関連性解析

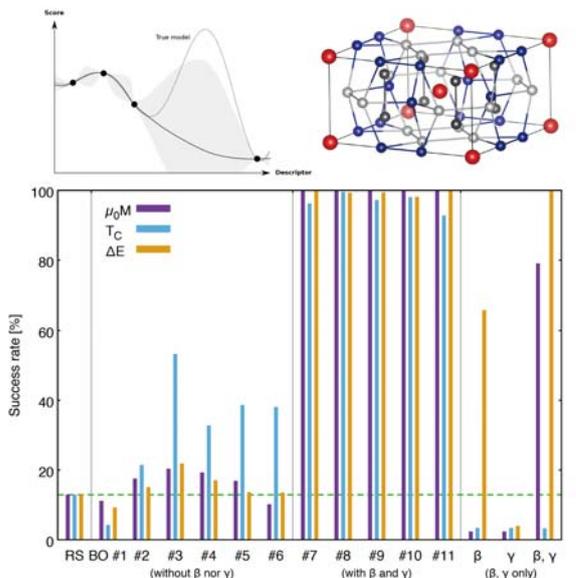


図 4: ベイズ最適化を用いた希土類磁石化合物の化学組成最適化

金属材料の微細組織の 高精度マルチスケール計算技術

Accurate and reliable multi-scale simulations to understand and design the micro-structures in structural metals

香山正憲 (産業技術総合研究所)

課題の目標

飛躍的に優れた金属系構造材料の開発は、安全・安心の社会インフラの構築やエネルギーの高効率利用など持続可能社会の構築に大きく貢献する。大規模計算機の活用と計算科学の方法論の革新により、金属材料の高精度の計算技術・設計技術を構築し、飛躍的に優れた構造材料の開発を実現することを目的とする。金属系構造材料では、ミクロの原子間結合の強度や性質に加え、結晶粒界や析出相、合金元素や転位網等からなる微細組織を形成させ、転位や欠陥の動きを制御することで、優れた強度・靱性・加工性を実現する。従って、原子・電子からメゾ・マクロのマルチスケール計算による微細組織の解明と設計が必要である。ポスト「京」計算機(「富岳」)の活用により、大規模な第一原理計算や分子動力学法(MD)計算を通じて、微細組織の構成要素や形成過程の構造や性質、微視的挙動を解明するとともに、それらのデータをメゾ・マクロに連結することで、高精度の大規模フェーズフィールド(PF)法計算を行い、微細組織の解明と設計を実現する。

アプリケーションの開発

大規模MD法・大規模PF法

両手法を高度に並列化するとともに融合・連結のためのプログラム開発・整備を進めた。特にMDによる多結晶構造を効率的にPF法にマッピングする技術、MDとPFのデータ同化の技術、また大規模PF法とLattice-Boltzmann法の連成による重力効果(自然対流)を扱う技術の開発に成功。

第一原理局所エネルギー・局所応力法、第一原理PF法

QMASコードでの第一原理局所エネルギー・局所応力法について、各種解析用のプログラムの開発・整備、機械学習と組み合わせて粒界など乱れた構造のエネルギーを予測する技術の開発・整備を行った。合金系の

自由エネルギーの第一原理計算をクラスター展開法とポテンシャル繰り込み理論の連携により行い、PF法に落とし込む手法(第一原理PF法)の開発に成功。

研究開発成果

大規模MDと大規模PFの連結・融合による微細組織形成過程の計算

並列計算技術を駆使して、鉄の融体から核生成・凝固・粒成長を経て微細組織に至る過程の超大規模MD法計算を達成(図1)。この核生成・凝固過程の構造を大規模PF法に連結し、その後の粒成長計算を、同一空間スケールでMDとPFの両法で実行することに成功(図2、世界初[1])。これにより原子レベル情報が自然にメゾ・マクロの組織形成過程に繋がるとともに、「データ同化」によりMD法の原子レベル情報をPF法に同時的に抽出・伝達できる。原子スケール(MD)情報を大きなスケール域(PF)に高効率・高精

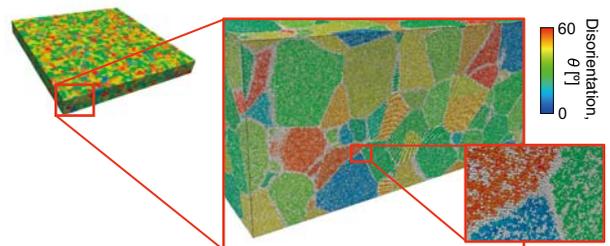


図1: 鉄の融体からの核生成・凝固・粒成長の過程の超大規模(100億原子分子動力学(MD)計算(東大・濹田ら)。高温の液体状態の鉄を冷やしていくと多数の結晶の核が生まれ、凝固が進み、微細粒の集合体になる。色は各粒子の方位の差を示す。

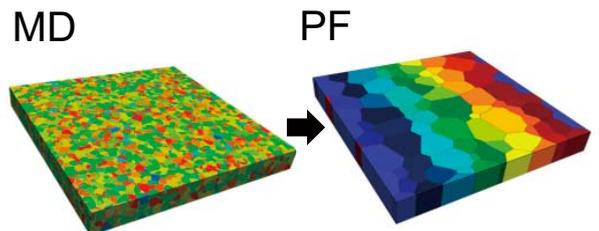


図2: 大規模MD法と大規模フェーズフィールド(PF)法の連結(東大・濹田ら)。大規模MDで得られた核生成・凝固直後の微細粒集合体(図1)を保持すると粒成長が起きる(小さい粒子が消滅し、大きな粒子が成長)。微細粒集合体の構造(左)を効率的にPF法の初期構造に移行させ、大規模PF法で粒成長過程の計算を続行(右)。

共同研究者

徐卓(産業技術総合研究所)
田中真悟(産業技術総合研究所)
石橋章司(産業技術総合研究所)
譚田真人(物質・材料機構)
田村友幸(名古屋工業大学)
伊藤一真(日本製鉄株式会社)
澤田英明(日本製鉄株式会社)
大野かおる(横浜国立大学)
Pham Thi Nu(横浜国立大学)
佐原亮二(物質・材料機構)
毛利哲夫(東北大学金研)
市坪哲(東北大学金研)
大野宗一(北海道大学)
高木知弘(京都工芸繊維大学)
Chunwen Guo(京都工芸繊維大学)
澁田靖(東京大学)

脚注 フェーズフィールド(PF)法: 場の秩序変数(状態変数)を用いて不均一場の連続体モデルとして、物質・材料の凝固や粒成長、相変態等を表現する計算手法。全系の自由エネルギーを表す非線形方程式の時間発展を解き、自由エネルギーの減少過程として現象の進行・変化・発展を調べる。原子スケールよりも大きなスケールで金属材料の微細組織を効率的に扱う。

QMAS: Quantum MAterials Simulator。産業技術総合研究所で開発されている平面波基底PAW法の汎用コード。主たる開発者は石橋章司。

合金の組織予測: 合金では複数種の元素が混ざって存在。高温では均一に混ざっているが、温度を下げると異種元素が規則的に並んだ析出相が出現する。この現象を支配するのはエントロピーを含んだ自由エネルギーで、様々な配列を想定して厳密に計算する必要がある。純粋な金属の場合と大きく異なる。

参考文献 [1] Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, T. Takaki and M. Ohno, Model. Sim. Mater. Sci. Eng. 27 (2019) 054002 [2] T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta and T. Aoki, Acta Mater. 164 (2019) 237 [3] Z. Xu, S. Tanaka and M. Kohyama, J. Phys. Condens. Matter 31 (2019) 115001 [4] S. Bhattacharyya, R. Sahara and K. Ohno, Nature Communications, in press (2019)

問い合わせ先: Masanori Kohyama <m-kohyama@aist.go.jp>

度に伝達する技術の開発で、融体から凝固、微細組織形成までの高精度マルチスケール計算の基幹部分が確立できた。また、大規模PF法による凝固計算(デンドライト成長)で重力による自然対流効果を取り入れる技術開発にも成功(世界初[2])。自然対流など凝固デンドライト組織を決定する環境因子(温度、流体等)を取り入れることが可能となり、実プロセスに近い条件の計算が実行できる。

第一原理計算をメゾ・マクロに接続する新規計算技術の開発

微細組織中の合金(溶質)元素の挙動や相変態、粒界など乱れた構造を高精度に扱うには第一原理計算が必要。鉄の粒界・転位と一連の合金(溶質)元素との相

相互作用を大規模第一原理計算(OpenMX、QMAS)で解明、その機構を局所エネルギー法(QMAS)で詳細に明らかにした(世界初[3])。また第一原理局所エネルギー法による粒界等の各原子の局所エネルギーと局所環境の情報を機械学習で処理することで、一般粒界まで含めたエネルギー予測が可能であることが示された(図3)。一方、粒子内の合金の相変態には、第一原理計算に基づく(エントロピーを含む)自由エネルギー計算が不可欠。第一原理計算とPF法を組み合わせた独自の合金の組織予測技術(第一原理PF法)を確立(図4、世界初[4])。こうした第一原理計算をメゾ・マクロに繋ぐ手法の確立は、大規模MD・大規模PFの計算と組み合わせ、一層の高精度化や合金・溶質の扱いを可能にする。

スーパーコンピューター「富岳」で取り組む課題

金属材料の現実的な微細組織構造の高精度マルチスケール計算の実行

高精度マルチスケール計算による微細組織の解明と設計・制御は、技術的・社会的インパクトが極めて大きい。微細組織は金属系構造材料の性能を支配し、融体から凝固・粒成長を経て形成される過程を理解することで厳密なプロセス設計が可能となる。微細組織は様々な結晶粒からなる集合体で、全系が大きいほど現実に近い組織が扱える。大規模MD・大規模PF法は高度に並列化されており、「富岳」による大規模並列計算で現実的な大規模構造が扱える。一方、大規模MD・大規模PF法の計算をより高精度化し、扱えない問題(合金成分や溶質の挙動、合金系のエントロピーを含む自由エネルギー計算による組織予測)を扱うために、第一原理計算をメゾ・マクロに繋ぐ手法(局所エネルギー法と機械学習の連携、第一原理PF法)が重要である。これらも「富岳」により一層の大規模化・高速化が可能で、現実的な微細組織の高精度マルチスケール計算を可能にする。

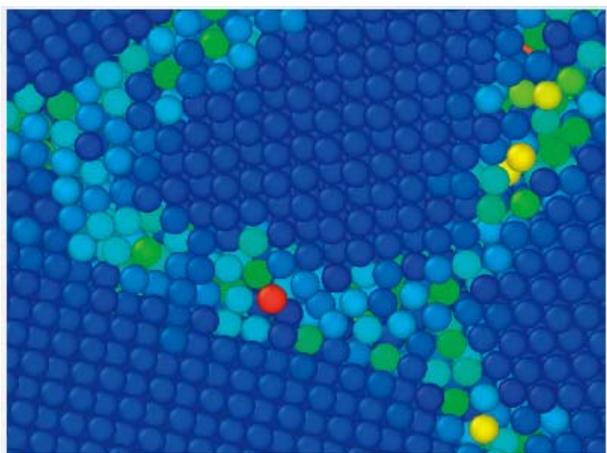


図3: 第一原理局所エネルギー法と機械学習の連携による複雑な粒界の局所原子エネルギー予測のテスト例(名工大・田村ら)。乱れた構造の各原子のエネルギーを第一原理局所エネルギー法で求め、各原子の局所環境情報との相関を機械学習で見出し、未知の粒界構造に適用。赤い原子ほど高エネルギー。

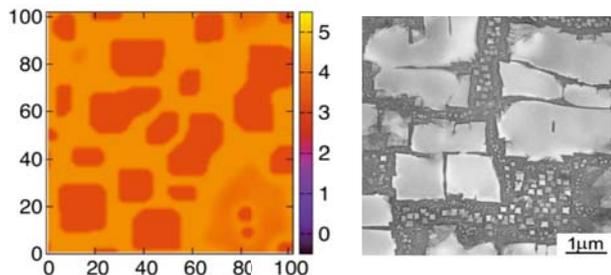


図4: 第一原理PF法による合金組織予測(横国大・大野ら)。NiAl合金(Ni82%、Al18%)の例。右は実験観察結果。

ポリマー系の物質分配と相溶性の全原子解析

All-Atom Analysis of Small-Molecule Absorption and Mutual Solubility of Polymer Systems

松林伸幸 (大阪大学基礎工学研究科)

課題の目標

ポリマーや有機／無機界面からなるソフト材料は、原子レベルの相互作用およびメゾレベルの集合様態の両方に依存して多様な物質分配・輸送の機能を発現し、分離能を活用した脱塩処理・水質浄化・ガス精製、あるいは、異素材接着における機械的・熱的特性の向上など、環境・医療やものづくりに直結する幅広い応用分野を有する。本課題は、海水淡水化や透析、自動車部品で広く使われるソフト材料の設計指針を策定することを目標とし、全原子モデルを用いた大規模分子シミュレーションと不均一系における量子-古典ハイブリッドシミュレーションによって、共重合体を含むポリマー構造のトポロジーと水・ガスの吸収性の関係を明らかにし、樹脂／金属界面の接着強度と劣化機構を探る。

アプリケーションの開発

ポリマーに対する自由エネルギー計算ソフト ERmodの機能拡張

ポリマー材料の分離機能を特徴付ける物理量は、分離される溶質分子のポリマー媒体への溶解自由エネルギーであり、水素結合や分散引力、排除体積効果を敏感に反映するため、その計算には全原子ポテンシャルを用いた分子動力学シミュレーション(MD)が必要となる。自由エネルギー変化の標準計算手法では、変化の前後を結ぶ多数の「中間状態」を導入する必要があるため膨大な計算時間が必要とされるが、本研究では、中間状態の計算を行わず、溶液統計力学理論と組合せるこ

とで自由エネルギー計算の高速化を図っている。溶液理論としてエネルギー表示溶液理論を採用する。ポリマーは、非常に柔軟な分子種であり分子内自由度の取扱いが重要となる。エネルギー表示溶液理論では、溶質-溶媒相互作用の値の分布関数から溶解自由エネルギーを汎関数として構成することで、分子内自由度を粗視化・簡略化せずにMDと同じレベルで取り扱うことができる。ERmodはエネルギー表示溶液理論に基づく自由エネルギー計算ソフトであり、ポリマーを対象とする機能拡張を本研究で行なっている。ポリマー内セグメントの相互作用から溶解自由エネルギーを構成する手法を実装することで、溶解性を決定するポリマー内構造要素を同定することが可能になり、さらに、ポリマーの繰り返し単位であるモノマーと周囲との相互作用を逐次的に導入する手法を定式化することで、これまで不可能とされていたポリマー全体の過剰化学ポテンシャルの全原子計算ができるようになってきている。また、1000原子を超える量子領域を含む有機／無機界面を量子-古典ハイブリッド計算によって扱うことのできるhybridQMCLの開発を進め、高分子で複雑に装飾された金属の界面における反応素過程の原子レベル解析が可能になっている。



図1: ERmodによるポリマー系の自由エネルギーの高速計算

共同研究者

尾形修司(名古屋工業大学)
山田一雄(大阪大学)
浦長瀬 正幸(名古屋工業大学)
茂本 勇(東レ)
川上智教(東レ)
森 穂高(デンソー)
田中宏一(デンソー)

問い合わせ先: Nobuyuki Matubayasi <nobuyuki@cheng.es.osaka-u.ac.jp>

研究開発成果

多様なトポロジーにおける共重合体の物質分配機能を評価

ブロック共重合体やグラフト共重合体への小分子(水やガス)の分配挙動の予測、および、相溶性を規定するポリマー全体の化学ポテンシャルの全原子計算が可能になっている。ポリエチレンとポリアクリルアミドの共重合体における吸水自由エネルギーが、各モノマー種の配置にはほぼ依存せず共重合比によって決定されることを見出した。ポリマーの力学特性は構造トポロジーに依存することが知られているが、溶解性を規定するエネルギー特性はトポロジーを反映しないことを示す。また、固体高分子形燃料電池の材料となるイオン性樹脂(アイオノマー)への酸素の吸収性と透過性をポリマーの分岐度やフッ化度を変えて検討し、ポリマー鎖の柔軟性や含水量が透過性の制御因子であることを明らかにした。燃料電池材料の設計指針の策定に、全原子MDと自由エネルギー計算が有用であることを示す。さらに、ポリマーが同一モノマーの繰り返しであるという普遍的な性質に着目し、モノマー相互作用の逐次的導入に関わる自由エネルギー変化をポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレートなどで計算した。その結果、ポリマー相溶性を決定する過剰化学ポテンシャルの主要項は数十モノマー程度の全原子計算から得られることが見出された。有機/無機界面の計算では、量子-古典ハイブリッドシミュレーションをAl金属とエポキシ樹脂の接着界面に適用し、基板金属と樹脂の接触部に侵入した水分子によって接着強度が減少する機構を明らかにした。

スーパーコンピューター「富岳」で取り組む課題

メゾ不均一性をもつ長鎖化合物複合系の物質分配と構造強度

本課題で確立した手法に立脚して、多成分ポリマー

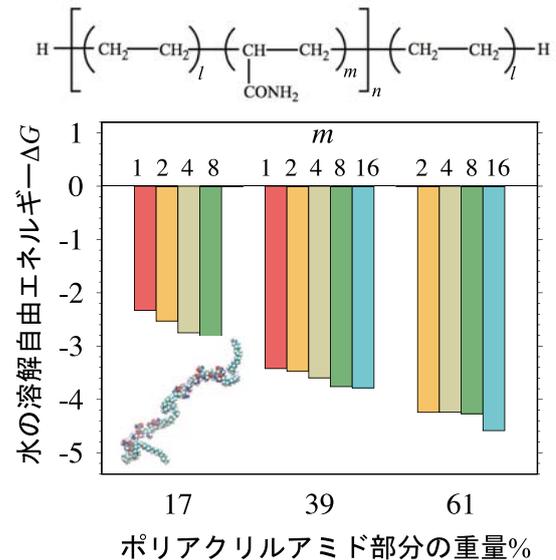


図2: ポリエチレンとポリアクリルアミドのブロック共重合体における水の溶解自由エネルギー

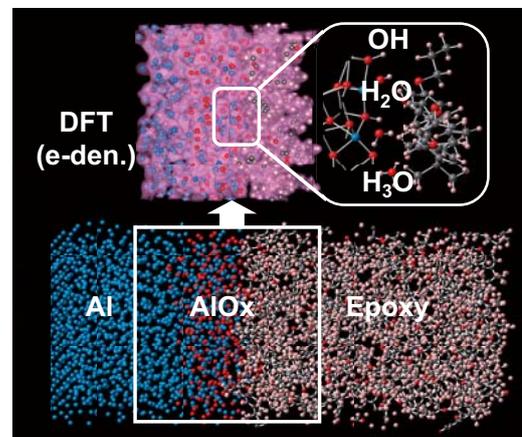


図3: Al基板/樹脂における接着劣化の量子-古典ハイブリッドシミュレーション

ブレンドの相溶性を分子設計との相性の良い全原子モデルで評価するとともに、共重合ポリマーやブレンド系における水やガス、さらに、生体関連の機能性分子の吸収および吸着の自由エネルギーを、メゾスケールの構造不均一性に着目して解析する。また、量子-古典ハイブリッド計算を用いた有機/無機界面のモデリングを進め、接着性の劣化をもたらす侵入分子の分子間相互作用を自由エネルギー計算によって同定し、異素材接着の強度向上のための分子設計指針を探る。

汎用第一原理大規模電子状態 計算ソフトウェアOpenMXの開発と応用

Development of large-scale DFT software: OpenMX and its applications

尾崎泰助 (東京大学)

課題の目標

光・電子デバイス材料、磁石材料、構造材料、機能性化学品等の材料シミュレーションにおいて共通してニーズの高い基盤的シミュレーション手法・アプリケーションがある。これらの手法をサブ課題ごとに個別に開発するのではなく共通する部分を見極め、基盤的シミュレーション手法・アプリケーションとして開発・整備することにより、課題間の横串的な役割を果たす。

(i) 基盤的第一原理電子状態計算ソフトウェアの開発・整備、(ii) 物質構造と相変化の探索手法の開発、(iii) 基盤的超並列計算アルゴリズムの開発、の三つのサブサブ課題を設定し、各サブ課題で開発された個別的手法と併用することで、次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創製に向けて産業応用に即した現実系の材料シミュレーションを可能とする。また(iv) 大型実験施設(J-PARC, SPring-8, SACLA)との連携窓口を務め、シミュレーション研究者と実験研究者の共同研究を加速させる。

アプリケーションの開発

汎用第一原理電子状態計算ソフトウェア及び基盤的超並列計算ソフトウェアの開発

サブ課題 G で開発を進める基盤的第一原理電子状態ソフトウェアは全電子計算手法 (HiLAPW)、平面波手法 (QMAS、xTAPP)、局在基底法 (OpenMX) に大別され、計算精度と計算効率の観点から相補的な関係にあり、相互に情報交換を行いながら開発を行っている。これらの基盤的第一原理電子状態ソフトウェアはサブ課題 C、D、E、F の研究においても基盤的な役割を果たしているため、各サブ課題におけるニーズの調査を実施し、開発項目を明確にした上でソフトウェアの開発・整備を実施した。汎用的な超並列向け複合型固有値ソルバルーチン EigenKernel 及び k-ep の

開発を進め、従来の行列サイズを大幅に超える対角化計算が可能となった。また動的密度行列繰り込み群法に基づく DDMRG の整備を進め、密度汎関数理論に基づく第一原理計算では取り扱いが困難である多軌道クーロン相互作用項を正確に記述する DDMRG 計算が可能となった。時間で 25 ループの自己無撞着計算を回すことに成功した。

研究開発成果

第一原理大規模電子状態計算ソフトウェア OpenMXの開発と応用

計算量が原子数に比例するオーダー N 第一原理計算手法は 1990 年代初頭より、活発に研究が進められてきたが、計算精度、数値安定性、汎用性の面から未だ万能な手法は

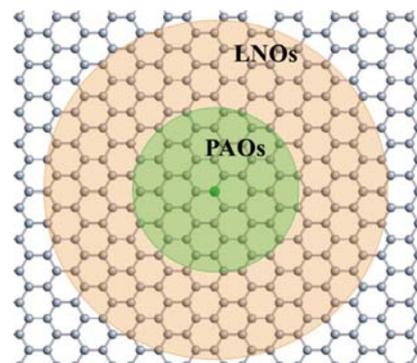


図 1: DC-LNO 法の概念図

開発されていない。我々は局在自然軌道法と分割統治法を融合することで、従来の手法を超える汎用性の高い計算手法 (DC-LNO 法) の開発に成功した [1]。本手法により絶縁体のみならず、金属に対しても高精度計算が可能であり (図 1)、その超並列性から、「富岳」コンピュータ上での高い並列効率が期待される。また密度汎関数理論の枠内で内殻電子の絶対束縛エネルギーを高精度で計算する手法を新たに開発し、光電子分光スペクトル (XPS) と直接、比較できるようになった [2]。固体中での内殻電子の絶対束縛エネルギーを決定する化学的環境、スピン軌道相互作用、磁

共同研究者

毛利哲夫(東北大学)
逸山貴巳(東京理科大学)
陳迎(東北大学)
星健夫(鳥取大学)
福田将大(東京大学)
Chi-Cheng Lee(東京大学)
Theresa Davey(東北大学)
Nguyen Dung Tran(東北大学)
森田克洋(東京理科大学)
杉本貴則(東京大学)

参考文献 [1] T. Ozaki, M. Fukuda, and G. Jiang, Phys. Rev. B 98, 245137 (2018) . [2] T. Ozaki and C.-C. Lee, Phys. Rev. Lett. 118, 026401 (2017) . [3] K. Yamazaki, Y. Maehara, C.-C. Lee, J. Yoshinobu, T. Ozaki, and K. Gohara, J. Phys. Chem. C 122, 27292-27300 (2018) . [4] C.-C. Lee, B. Feng, M. D'angelo, R. Yukawa, R.-Y. Liu, T. Kondo, H. Kumigashira, I. Matsuda, and T. Ozaki, Phys. Rev. B 97, 075430 (2018) . [5] C.-C. Lee, J. Yoshinobu, K. Mukai, S. Yoshimoto, H. Ueda, R. Friedlein, A. Fleurence, Y. Yamada-Takamura, and T. Ozaki, Phys. Rev. B 95, 115437 (2017).

問い合わせ先: Taisuke Ozaki <t-ozaki@issp.u-tokyo.ac.jp>

氣的交換相互作用を統一して取り扱うことにより、高精度でかつ実用的な第一原理計算が初めて可能となった。X線光電子分光における理論解析の標準手法として、新二次元物質の構造解析や、触媒の原子レベルでの反応機構の解明に大きく寄与することが期待される。本手法を用いて、実験グループとの共同研究を行い、新規表面構造の特定に成功した [3-5]。特にこれまで長く論争のあった ZrB_2 上のシリセン構造の特定に成功した(図2)。またグラフェンに単原子分散したPt原子のPt4f絶対束縛エネルギーを計算し、実験結果との比較より原子レベルでの担持構造とその電子状態を初めて明らかにした(図3)。

スーパーコンピューター「富岳」で取り組む課題 多元合金系及び多元ナノクラスターの構造探索

新規結晶構造の探索は物質デザインの出発点であり、実験に先立って新しい構造の予測が出来れば、真の意味でシミュレーション駆動型の物質デザインが実現するものと考えられる。最近、遺伝的アルゴリズム等に基づく結晶構造探索アルゴリズムの開発により、実験に先立って新しい結晶構造が見出されるようになってきた。しかしユニットセルに含まれる原子数は20原子程度にとどまっており、また新規結晶構造を得られたとしても俯瞰的な立場からその構造が構造空間において、どの様に

位置付けられるのか通常は不明である。本研究では多元合金系及び多元ナノクラスターの構造マップの作製に取り組み、俯瞰的な立場から構造空間を把握した上で新規結晶構造の探索に取り組む。具体的には古典計算と第一原理計算を併用し、まず古典計算に基づき3元系の網羅的構造マップを作製する。得られた網羅的構造マップを利用して、新規結晶構造が得られる可能性の高い探索空間を抽出し、熱力学的な安

定性を含めて第一原理計算によって精査する。網羅的構造マップはデータベースとして整備し、広く一般に公開する。

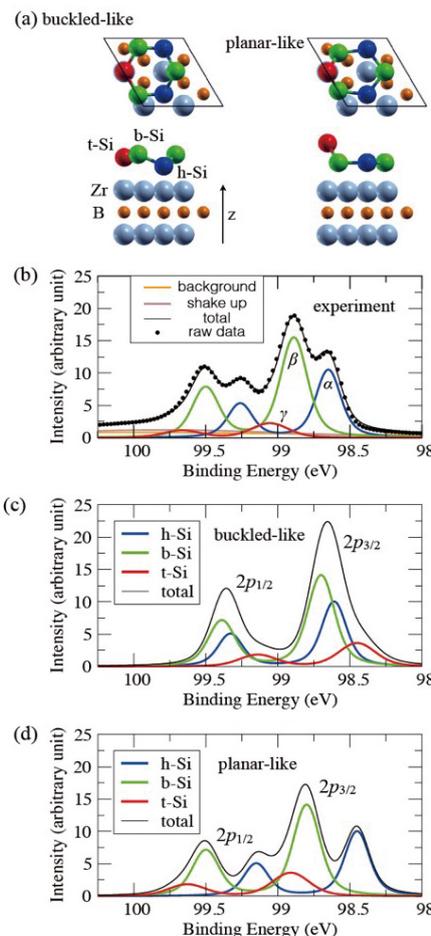


図2: ZrB_2 上のシリセン構造とXPSスペクトル。(a)最適化構造。(b)実験によるXPS(東京大学物性研究所吉信研究室により測定)。(c)計算で得られたbuckled-like構造のXPSスペクトル。(d)計算で得られたplanar-like構造のXPSスペクトル

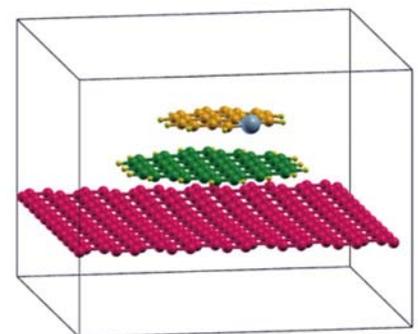


図3: 単原子分散Ptの担持構造

ポスター発表

小野倫也 (神戸大学大学院工学研究科)

共同研究者

江上喜幸 (北海道大学大学院工学研究科)

塚本 茂 (Forschungszentrum Jülich)

I 課題の目標 Development goal

自動車などの電動化が進むなか、ワイドバンドギャップ半導体を用いたパワーエレクトロニクスデバイスは、電力変換時のエネルギー損失が小さく、世界規模で増え続けるエネルギー消費を大幅に削減できるデバイスとして期待されています。なかでも、SiCはバンドギャップの大きさがパワーエレクトロニクスデバイスの用途に適していることと、熱酸化でSiC/SiO₂界面を作成できることから、盛んに研究されています。ところが、SiC-MOS界面のキャリア移動度はSiCバルクよりもはるかに低く、現在のところ省エネルギーの効果と実用化の範囲は限られています。低いキャリア移動度は、エネルギーの高効率利用に対する課題であり、SiC-MOSデバイスのさらなる省エネルギー化と本格普及のためには、SiCのバンドギャップやキャリア移動度といった物性を活用できる界面原子構造の探索が必要です。本課題では、SiC-MOSに限らず、量子力学の第一原理に基づいてシミュレーションにより界面の機能を予測できる汎用的な計算手法の構築と、これに基づく計算コードRSPACEの開発、さらにRSPACEを用いてSiC-MOS界面の電子状態とキャリア散乱特性を調べ、高いキャリア移動度を実現できるSiC-MOS構造のデザインを目的としています。

3 研究開発成果 Research & development results

▶ 電子デバイス中の電子の流れを原子・電子スケールで高精度に解明

SiC-MOS界面は、結晶に比べて電気抵抗が極めて大きいという課題があり、その原因はSiC基板とゲート絶縁膜との接合面近くに生じる界面欠陥であると考えられていました。この課題を解決するには、デバイス中のSiCとゲート絶縁膜との間の電子の流れの解明が必要でした。

本グループでは、超並列計算機を活用してデバイス中の電子の流れを原子・電子スケールで高速・高精度に予測できる理論計算コードRSPACEを開発し、SiC-MOS界面での電流を予測しました。本研究で対象としているSiCを用いるトランジスタは、図2に示すようにソース電極から入力した電流をドレイン電極から出力する際に、ゲート電極に電圧をかけることで、ON/OFFするものです。本研究[2]は、このSiCを用いたトランジスタに関して、図3のように熱酸化時にSiC基板のpウェル領域とゲート絶縁膜との界面に侵入した酸化ガスの酸素原子や界面に生成される欠陥が、電気抵抗に与える影響を調べたものです。

図4は、酸素原子の侵入や界面欠陥のない理想的な界面と、理想的な界面に酸素原子が侵入した界面、酸素原子侵入後に欠陥ができた界面の単位長さあたりの電気抵抗の比を示しています。この結果より、界面欠陥生成による電気抵抗の増大は、酸素原子の侵入による電気抵抗の増大に比べて小さいことがわかります。さらに、界面欠陥の生成は酸素原子侵入に対して10,000分の1以下の頻度でしか起こらないことが知られており、界面への酸素原子侵入は、界面欠陥を生じない場合でも界面の電気抵抗に影響を与える可能性があることが示されています。

このような界面に高頻度で起こる酸素原子侵入が電気抵抗を増大させるメカニズムは、従来のSiデバイスでは検討されてこなかった現象であり、SiCデバイスの電気抵抗の改善には、従来のSiデバイスでは考慮されてこなかった要因も追加検討する必要があることを意味します。

2 アプリケーションの開発 Application development

▶ 実空間差分法を用いた第一原理電子状態・伝導特性計算コードRSPACE

密度汎関数理論(DFT)に基づく電子状態計算は、固体の電子状態や化学反応の解析計算において多くの成功を収めてきました。超並列計算機の進化により、大規模かつ様々な境界条件の下で高精度なシミュレーションを実現することが、DFTに基づく計算法の開発方向のひとつになっています。平面波を基底関数に用いた計算法は、高速フーリエ変換を用いるため、超並列計算に適していません。また、周期関数である平面波を基底関数に用いるため、境界条件が周期境界条件に限定されます。原子波動関数を基底関数に用いた方法は、基底関数の完全性に関して問題を指摘されています。一方、実空間差分法に基づく計算法は、これらの欠点を持たない方法として注目されています。本グループでは、第一原理計算をMOS界面のキャリア伝導特性予測に応用すべく、実空間差分法に基づく第一原理電子状態・伝導特性計算法の開発を進め、図1で紹介するアイデアをまとめた専門書[1]を出版しました。さらに、これに基づく計算コードRSPACEの開発を進めてきました。RSPACEは、従来の第一原理計算コードで扱う原子構造・電子状態計算の他に、ナノ構造の伝導特性計算ができます。また、「京」やOakforest-PACSのような超並列計算機で優れた並列性能を示すことが確認されており、これらの計算機を用いて、最近では不純物がドープされた30,000原子超からなるカーボンナノチューブの

伝導特性計算も実現しています。さらには、擬ポテンシャル法のなかでも最も高精度なProjector-Augmented Wave法を用いているため、スピン軌道相互作用のような内殻部分での電子の振る舞いが重要な現象も正確に扱うことができます。

これまでRSPACEは、図1に示すようなMOS界面の電子状態、原子・分子架橋系の伝導特性、表面原子吸着系に対するラッシュバ効果、MOS界面での界面欠陥によるリーク電流解析、次の節で示すようなMOS界面でのキャリア散乱特性の解析・解明に用いられ、新しい現象の発見に活用されてきました。

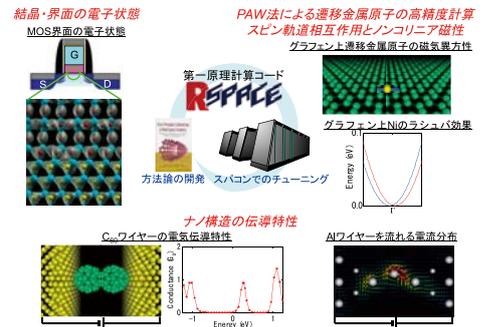


図1: RSPACEの開発指針とRSPACEを紹介した専門書(中)とRSPACEで可能なシミュレーション(外)。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 計算科学手法によるデバイスデザイン

加工・計測技術の進展につれ、デバイスサイズの微細化が進んでいるとはいえ、現状のデバイス界面に対する計算モデルは、デバイスの機能を予測するために十分なサイズとは言えません。たとえば、MOS界面の絶縁膜は、多くの場合アモルファスです。「京」により第一原理計算でアモルファス/半導体界面をモデル化できるようになったとはいえ、現状の第一原理計算で取り扱い可能なサイズと数種類のモデルでは間接的な予測にとどまり、デバイス機能を正確に予測することは容易ではありません。「富岳」を用いれば、モデルサイズの拡大や従来の計算の高速化が見込めます。より現実的なモデルサイズで、より多くのサンプルに対してのデバイス機能予測シミュレーションができるようになることから、本グループでは、実際のデバイス開発で計測されている現象を、直接的に計算できるように目指します。さらには、これまで計算コストの問題で、DFTの局所密度近似でしか行えなかった伝導計算に、Hartree-FockとのHybridやGW近似など、高精度近似の組み込みも現実的になってきました。本グループでは、高精度近似を組み込み、計算で得られる電流値の絶対値の信頼性を向上させることにも取り組みます。

参考文献

- [1] K. Hirose, T. Ono, Y. Fujimoto, and S. Tsukamoto: First-Principles Calculations in Real-Space Formalism - Electronic Configurations and Transport Properties of Nanostructures -, Imperial College Press, London, (2005). [2] S. Iwase, C. J. Kirkham, and T. Ono: Intrinsic origin of electron scattering at the 4H-SiC(0001)/SiO₂ interface, Phys. Rev. B 95(4) 041302 1-5 (2017).

問い合わせ先 Contact information

小野倫也 Tomoya ONO
t.ono@eedept.kobe-u.ac.jp

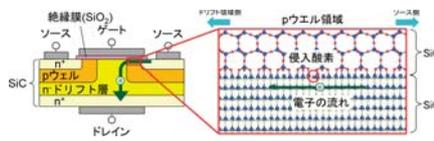


図2: SiCデバイスの模式図と計算モデル。

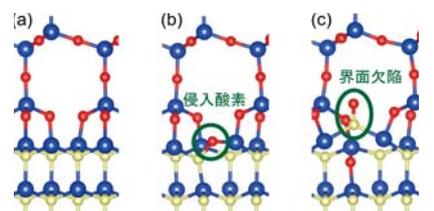


図3: 本研究でのシミュレーションに用いた界面近傍の原子構造。(a) 理想的な表面。(b) 酸素原子が1個侵入した界面。(c) 酸素原子2個侵入後に界面欠陥ができた界面。

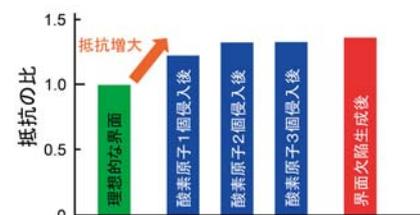


図4: 酸化による酸素原子の侵入も界面欠陥もない理想的な界面と、酸素原子侵入のみ及び酸素原子侵入と界面欠陥生成後の界面における単位長さあたりの電気抵抗の比較。

宮崎 剛 (物質・材料研究機構)

共同研究者

林建 波 (物質・材料研究機構)

中田 彩子 (物質・材料研究機構)

D. R. Bowler (University College London)

1 課題の目標

Development goal

次世代の高機能半導体デバイスを実現する半導体ナノ構造物質に対して、現実用いられる物質、デバイスと同サイズの系に対する大規模第一原理計算を実現し、原子スケールの構造と電子状態を明らかにする。具体的には、

- ・ナノ構造物質を構成する原子の安定位置
- ・フェルミ準位付近の電子状態
- ・ナノ構造物質におけるヘテロ界面の構造安定性と電子状態

等を明らかにすることを目標とする。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶大規模第一原理計算プログラムCONQUESTを開発

オーダーN法、局在軌道を用いた第一原理計算プログラム CONQUEST コードを開発。プログラムの並列化効率は極めて高く、オーダーN法を用いることが可能な場合は、100万原子を含むような超大規模系に対する第一原理計算を実現できる(図1)。超大規模系に対する全原子第一原理計算による構造最適化や分子動力学、さらにフェルミ準位付近の電子状態解析も可能となっている。局在基底、擬ポテンシャルのデータベースが整備され、今年度中に一般公開される予定である。独自の高效率、高精度の局在軌道を用いることにより、オーダーN法を用いなくても数千から1万原子以上の系を扱うことが可能であり、様々な物質群に適用できる。

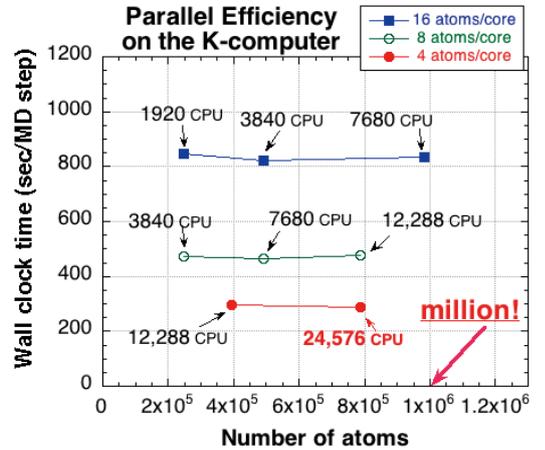


図1: Parallel Efficiency of CONQUEST on K-computer

3 研究開発成果

Research & development results

▶Si/Ge コアシェルナノワイヤの構造と電子状態の解明

次世代デバイスとして有望な物質であるSi/GeもしくはGe/Si コアシェル型ナノワイヤに対してオーダーN法を用いた大規模第一原理計算による理論研究を行なった。現実には作られているナノワイヤと同程度のサイズ(直径10-20ナノメートル)を持つ系に対する構造最適化計算を実現し、構造と電子状態を明らかにした。具体的には、

- ・ナノワイヤ内の歪み分布(図2)
- ・フェルミ準位付近の電子状態(図3)のサイズ依存性を明らかにした。さらに、コア、シェル間の界面の乱れに関して、
- ・界面におけるGe原子とSi原子の交換による構造と電子状態の影響(図4)を調べた。さらに、ナノワイヤの構造安定性を調べるために、高温におけるオーダーN法第一原理分子動力学を行なった。(図5)

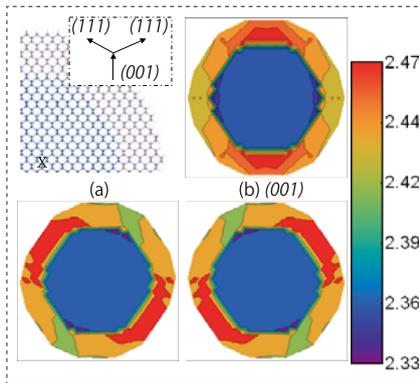


図2: Strain (bond length) distribution in the cross section of Si/Ge core(3.6nm)-shell(1.6nm) nanowire

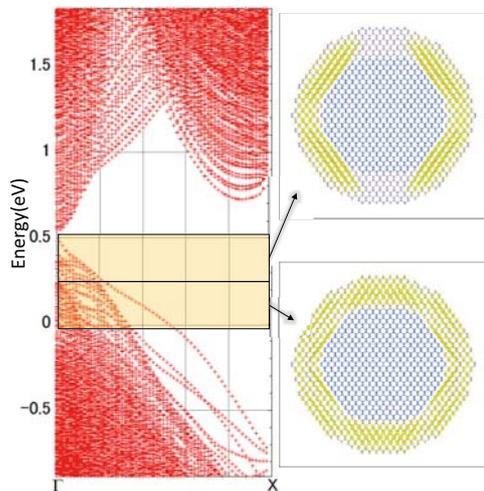


図3: Band structure and Molecular orbital distribution of Si/Ge core(3.6nm)-shell(1.6nm) nanowire

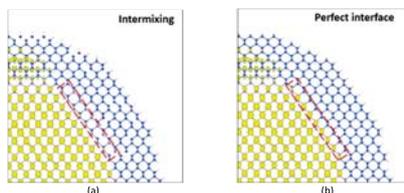


図4: Molecular orbital distribution of Ge/Si core(3.6nm)-shell(1.6nm) nanowire. (a) The interface with intermixing and (b) The perfect interface.

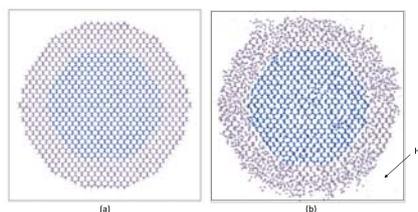


図5: Snapshot structure from Molecular dynamics simulation of Si/Ge core(3.6nm)-shell(1.6nm) nanowire at (a) 900K, 0.75ps and (b) 3000K, 1ps.

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶次世代デバイス構造におけるナノ構造物質の性能予測と最適化

・半導体ナノ構造物質における不純物の安定性や高温における構造安定性、不純物レベルを高精度、高效率に計算を行うことが可能となる。複数の半導体ナノ物質(アモルファス構造を含む)から構成されるデバイス構造におけるヘテロ界面での構造安定性、電子特性が計算可能となる。これらの結果からナノ構造物質の最適化が行えるようになる。

脚注

CONQUEST web page: <http://www.linear-scaling.org>

参考文献

T. Miyazaki, ECS Transactions 86, 269 (2018).

問い合わせ先 Contact information

宮崎 剛 Tsuyoshi MIYAZAKI
MIYAZAKI.Tsuyoshi@nims.go.jp

原嶋庸介 (名古屋大学未来材料・システム研究所)

共同研究者

中野崇志 (名古屋大学大学院工学研究科)

押山 淳 (名古屋大学未来材料・システム研究所)

白石賢二 (名古屋大学未来材料・システム研究所、名古屋大学大学院工学研究科)

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ 第一原理計算による局在準位の解析

本研究では転位と不純物の混在する系の第一原理計算を行う必要がある。これらは両者ともに系の周期性を破るもので、一般的に取り扱いが難しい。我々は数百原子のGaN超格子に転位および不純物Mgが同時に含まれる系の第一原理計算を行った。計算には projector augmented-wave 法にもつづいた第一原理計算コード VASP (Vienna Abinitio Simulation Package)[3] を用い、交換相関汎関数には GGA-PBE を用いた。これを用いて状態密度、highest occupied level、highest occupied level 近傍の局在状態の空間的な広がり(図

2)を解析した。その結果、GaNのband gap中に局在準位が現れること、highest occupied levelの分布が転位とMgの相対位置によっておよそ1.0 eVの幅で分布すること、局在準位の空間的な広がりがおよそ1Å程度であることがわかった。これらはリーク電流のモデルを構築する上で重要な要素である。

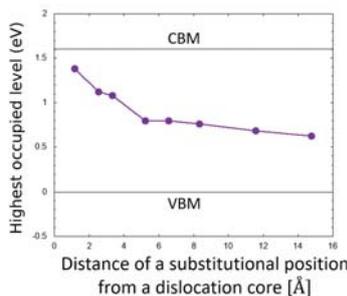


図1: Highest occupied levelの転位とMgの相対位置依存性。Valence Band Maximum (VBM)とConduction Band Minimum (CBM)も示す。

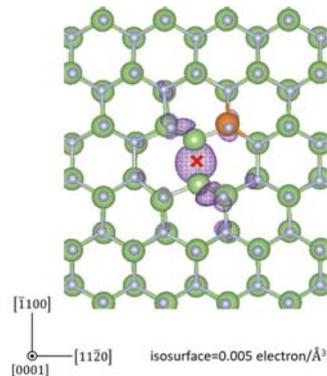


図2: Highest occupied level近傍で生じる局在状態の一例。転位芯は赤のクロス、Mgはオレンジ球で示し、緑と灰色の球はGaとNである。

I 課題の目標

Development goal

パワー半導体デバイスは整流作用のように高電圧下で動作することが想定されているが、正常に動作させるにはリーク電流の抑制が重要な課題である。実験の先行研究からリーク電流の発生と素子を貫く貫通転位の存在に相関があることが報告されている[1]。さらに、転位の周囲を観測してみると不純物Mgが多く集まっていることもわかっている[2]。これらの事実から転位および不純物の相互作用によって伝導チャンネルが生じていることが予想される。本研究の目標は、転位および不純物によってバンドギャップ中に生じる電子状態を、第一原理計算を用いて解析するとともに、その結果を反映させた外部電圧下での電流特性を解析するためのモデルを構築することである。

3 研究開発成果

Research & development results

▶ hopping伝導モデルの構築

文献[4,5]などを元にして、hopping電流は以下の式で表される。

$$j = e v_{e-ph} n^2 V S \int dR R e^{-2\alpha|R|} \int dE_1 dE_2 \rho_o(E_1) \rho_u(E_2) \begin{cases} e^{-\beta(E_2 - E_1 - eRF)}, & (E_2 - E_1) \geq eRF \\ 1, & (E_2 - E_1) < eRF \end{cases} \quad (1)$$

e は電子の電荷、 v_{e-ph} は電子-phonon振動数、 n はhoppingサイトの濃度である。 V と S はリーク箇所の体積と面積であり、転位と不純物が混在して伝導チャンネルを作る有効値をとる。 $\rho_o(E_1)$ と $\rho_u(E_2)$ とは遷移元と遷移先のエネルギー準位の分布、 F は外部電圧である。

本研究では、占有・非占有を分ける準位の直下から直上へ遷移すること、その準位の転位とMgの相対位置による分布が矩形分布になることを仮定する。この仮定からエネルギー準位差 W の分布は以下ようになる。

$$P(W) = \int dE_1 dE_2 P(E_1) P(E_2) \delta(W - (E_1 - E_2)) = \begin{cases} \frac{1}{2D} \left(1 - \frac{W}{2D}\right), & W \geq 0 \\ \frac{1}{2D} \left(1 + \frac{W}{2D}\right), & W < 0 \end{cases} \quad (2)$$

D は準位分布の幅である。

式(2)を代入すると式(1)は解析的に求まり、

$$j \propto \left(\frac{2D}{eF}\right)^2 \left[h_2^{ff}(\alpha') + \left(\frac{1}{2} + \tau - \tau^2\right) h_2^{ff}(\alpha') + (1 - \tau) h_2^{ff}(\alpha') - \frac{1}{2} h_4^{ff}(\alpha') + \tau^2 e^{-\frac{1}{2}} h_2^{ff}(\alpha' - \frac{1}{2}) + \left(\frac{1}{2} + \tau + \tau^2\right) h_2^{fb}(\alpha') + (1 + \tau) h_2^{fb}(\alpha') + \frac{1}{2} h_4^{fb}(\alpha') + \tau^2 \left(e^{\frac{1}{2}} - 2\right) h_2^{fb}(\alpha' + \frac{1}{2}) + \tau^2 \left(e^{\frac{1}{2}} + e^{-\frac{1}{2}} - 2\right) h_2^b(\alpha' + \frac{1}{2}) \right], \quad (3)$$

$$\alpha' = \frac{2D}{eF}, \quad \tau = \frac{\hbar\omega_T}{2D}, \quad (4)$$

$$h_m^{ff}(y) \equiv (n-1)! \sum_{m=1}^n \frac{y^{-m}}{(n-m)!} e^{-y}, \quad (5)$$

$$h_m^{fb}(y) \equiv -(n-1)! \sum_{m=1}^n \frac{y^{-m}}{(n-m)!} e^{-y - y^{-1}}, \quad (6)$$

$$h_m^b(y) \equiv (-1)^{m-1} h_m^{ff}(y), \quad (7)$$

$$h_m^f(y) \equiv (-1)^{m-1} h_m^{fb}(y). \quad (8)$$

となる。

図3に $D=0.1, 0.5, 1.0$ eVの場合の結果を示す。ここでは $a=0.1$ nm、温度 T は300 Kを用いた。図から大きな D で電流が減少することがわかる。

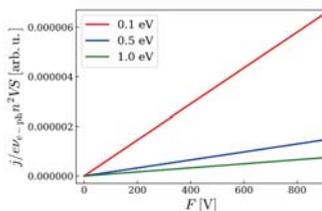


図3: 式(3)の外部電圧依存性。 $D=0.1, 0.5, 1.0$ eVの場合について示す。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ p-n接合界面におけるhopping伝導

p-nダイオードには順方向と逆方向があり、それぞれで伝導機構が異なる。順方向は熱励起によって生じた伝導帯の電子および価電子帯の正孔が電流を担い、逆方向では局在準位間のhopping伝導により電流が生じていると考えられる。今回のモデルは後者のhopping伝導を記述するものになっており、p-相、n-相の伝導特性の解析に役立つと期待されるが、p-n接合の影響は考慮されていない。p-n接合の影響を取り込むには、転位、不純物に加えてさらにp-n接合界面を含めた系の第一原理計算をする必要があり、その規模は数千原子ほどになる。我々は「富岳」を用いて、このような大規模な不規則系の第一原理計算を行い、その結果をモデルに反映させて伝導特性の解析を行う。

謝辞

本研究の一部は文部科学省「省エネルギー社会の実現に資する次世代半導体研究開発」の委託を受けたものです。

参考文献

- [1] S. Usami, et al., Appl. Phys. Lett. 112, 182106 (2018). [2] S. Usami, et al., Appl. Phys. Lett. 114, 232105 (2019). [3] G. Kresse, et al., Phys. Rev. B 54, 169 (1996). [4] N. F. Mott, Phil. Mag. 19, 835 (1969). [5] A. Miller, et al., Phys. Rev. 120, 745 (1960).

問い合わせ先 Contact information

原嶋庸介 Yosuke HARASHIMA
yosuke.harashima@imass.nagoya-u.ac.jp

Yuto Okawachi (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ)

共同研究者

Kenta Chokawa (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ)

Masaaki Araidai (IMaSS, Nagoya Univ)

Akira Kusaba (Computer Center, Gakushuin Univ)

Yoshihiro Kangawa (RIAM, Kyushu Univ) (IMaSS, Nagoya Univ)

Koichi Kakimoto (RIAM, Kyushu Univ)

Zheng Ye (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ)

Yoshio Honda (IMaSS, Nagoya Univ) (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ)

Shugo Nitta (IMaSS, Nagoya Univ) (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ)

Hiroshi Amano (IMaSS, Nagoya Univ) (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ)

Kenji Shiraishi (IMaSS, Nagoya Univ) (Graduate School of Engineering, Nagoya Univ)

1 課題の目標

Development goal

GaN is a promising semiconductor material for next generation power device, and the crystal growth of high-quality GaN by MOVPE has been intensively studied for the mass production. One of the main issues in GaN-MOVPE for vertical power devices is carbon contamination during the growth procedure. Fig.1 shows that carbon forms levels of 0.90eV from the Valence Band Minimum(VBM). Such a level due to a carbon atom behaves as an p-type dopant [1]. In order to realize high-quality low concentration n-GaN in GaN devices, a low C concentration of 10¹⁶ or less is required. In this study, we theoretically investi-

gate the origin of carbon contamination from the viewpoint of gas phase reaction by comparing CH₄, Ga(CH₃) and HCN which are candidates for the origin of carbon contamination.

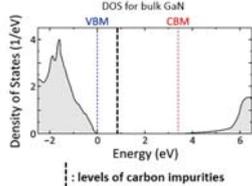


Figure 1: DOS for bulk GaN and levels of carbon impurities.

3 研究開発成果

Research & development results

▶ The equilibrium partial pressure of each molecule near the GaN MOVPE substrate was calculated by methodology above.

Fig.3 and Fig.4 show that the temperature dependence of equilibrium partial pressure of molecules containing Ga atom and Carbon atom, respectively. The equilibrium partial pressures of gas molecules at 1300K, which is the typical growth temperature in GaN-MOVPE, are listed in Table II. We immediately find from Table II that Ga and GaH are the main sources of Ga in GaN-MOVPE at 1300K [4]. On the other hand, the equilibrium partial pressures of CH₄, Ga(CH₃) and HCN are , and (atm), respectively. Next, the V/III ratios dependence of the ratio of the partial pressure of CH₄, Ga(CH₃) and HCN to that of GaH are shown in the Fig.5. The ratios of the partial pressure of CH₄ and HCN to that of GaH have no V/III ratio dependency. However, the ratio of the partial pressure of Ga(CH₃) to that of GaH has V/III ratio dependency. The result that the ratio of the partial pressure of Ga(CH₃) to that of GaH decreases as the V/III ratio increases, is consistent with the experimental result Fig.6 [5]. This suggests that Ga(CH₃) is the origin of carbon contamination.

Table II: Equilibrium partial pressure(atm) at 1300K

TMG	DMGH	MMGH ₂	MMG	GaH ₃	GaH
2.65×10 ⁻¹⁴	5.87×10 ⁻¹¹	2.13×10 ⁻¹⁰	3.16×10 ⁻⁷	2.25×10 ⁻⁸	1.46×10 ⁻⁴
Ga	CH ₄	NH ₃	NH ₂	H ₂	N ₂
1.71×10 ⁻⁵	4.90×10 ⁻⁴	0.165	1.67×10 ⁻⁷	0.500	0.334
C ₂ H ₄	C ₂ H ₂	C ₂ H ₆	HCN		
2.18×10 ⁻¹⁰	2.60×10 ⁻⁹	1.07×10 ⁻¹⁰	7.35×10 ⁻⁹		

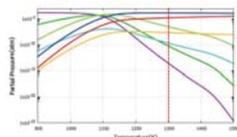


Figure 3: The temperature dependence of equilibrium partial pressure of molecules containing Ga atom.

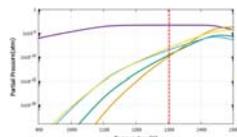


Figure 4: The temperature dependence of equilibrium partial pressure of molecules containing Carbon atom.

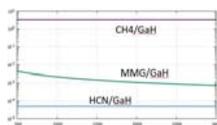


Figure 5: The V/III ratios dependence of the ratio of the partial pressure of CH₄, Ga(CH₃) and HCN to that of GaH.

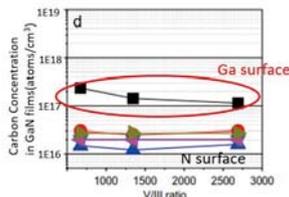


Figure 6: V/III ratio dependency of carbon concentration in GaN films.

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ First-Principles Calculations and Thermodynamic Analysis

We define the gas phase reactions as in Table I. The direction of each reaction is determined by the difference of Gibbs free energy between reactants and products (formation energy), which can be calculated by the statistical-mechanical approach together with the first-principles calculations [2]. We used the calculation software VASP to calculate the molecular structure optimization and the energy of electrons in the ground state, and used the exchange correlation

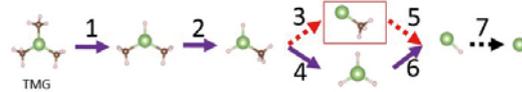


Figure 2: Image of TMG decomposition reactions.

functional GGA-PBE. Each formation energy is related to the equilibrium constant of each reaction which can be written by the partial pressure of reactants and products. Setting the partial pressures of source gases: Ga(CH₃)₃ and NH₃, and carrier gases: N₂ and H₂, to the experimental condition, we can obtain the partial pressures of gas molecules. The details of thermodynamic approach are given in Ref. 3.

Table I: List of the gas phase reactions. No.1-7 are the main decomposition processes of TMG. No.8-11 are reactions of hydrocarbons molecules.

1	Ga(CH ₃) ₃ + 2NH ₃ → HGa(CH ₃) ₂ + 2NH ₂ + CH ₄
2	HGa(CH ₃) ₂ + 2NH ₃ → H ₂ Ga(CH ₃) + 2NH ₂ + CH ₄
3	H ₂ Ga(CH ₃) + 2NH ₃ → Ga(CH ₃) + H ₂
4	H ₂ Ga(CH ₃) + 2NH ₃ → GaH ₃ + 2NH ₂ + CH ₄
5	Ga(CH ₃) + 2NH ₃ → GaH + 2NH ₂ + CH ₄
6	GaH ₃ → GaH + H ₂
7	GaH → Ga + 1/2 H ₂
8	2CH ₄ + 2NH ₃ → C ₂ H ₆ + 2NH ₂ + 3H ₂
9	C ₂ H ₄ + H ₂ → C ₂ H ₆
10	C ₂ H ₄ → C ₂ H ₂ + H ₂
11	C ₂ H ₆ + 2NH ₃ → 2HCN + 3H ₂

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ Collaboration of gas phase reactions and surface reactions.

Calculation of surface reactions is more expensive than gas phase reactions and solid calculations. We currently consider only gas phase reactions, but using "Fugaku" directly enables large-scale surface calculations. Although currently calculations are performed assuming that the reaction has reached equilibrium, it will also be possible to calculate non-equilibrium state directly.

参考文献

[1] L. Lyons, A. Janotti, and C. G. Van de Walle, Appl. Phys. Lett. 97, 152108 (2010). [2] Y. Kangawa, et al., Surf. Sci. 493, 178 (2001). [3] Inatomi, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 56, 38002 (2017). [4] K. Sekiguchi, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 57, 04FJ03 (2018). [5] N.A. Fichtenbaum et al., J. Crystal Growth 310 (2008)

問い合わせ先 Contact information

Yuto Okawachi

okawachi.yuto@g.mbox.nagoya-u.ac.jp

小川湧太郎 (名古屋大学大学院工学研究科)

共同研究者

野原弘晶 (名古屋大学大学院工学研究科)

白川裕規, 洗平昌晃 (名古屋大学大学院工学研究科, 名古屋大学未来材料・システム研究所)

白石賢二 (名古屋大学大学院工学研究科, 名古屋大学未来材料・システム研究所)

I 課題の目標 Development goal

近年、クラウドサービスや IoT などが普及し高度に情報化する社会において、高速かつ、データ保持に電力が必要でない不揮発性のメモリの必要性が高まっている。そんな中で超格子 GeTe/Sb₂Te₃ は、新しい不揮発性の相変化メモリである iPCM(Interfacial Phase Change Memory) の素材として注目されている。GeTe 層と Sb₂Te₃ 層が積層された超格子構造を持ち、GeTe 層における Ge 原子の並び方によって電気抵抗が異なる様々な構造が考えられ [1]、実験的には電流印可によって構造変化が引き起こされて電気抵抗が異なる別の状態へスイッチすると分かっている [2]。白川らは、低抵抗状態 (LRS) と高抵抗状態 (HRS) の両構造の詳細とスイッチングメカニズムを図 1 と図 2 のように提案した [3]。白川らはホールトラップの有無がスイッチングに大きく関与すると考え、GeTe 層をランダムに配置した中間的な構造から、第一原理分子動力学計算を用いて両構造を導いた。しかし、それらの構造の間で起きるスイッチングを見ただけではない。そこで本研究では密度汎関数法による第一原理分子動力学 (MD) 計算によって電流印可時のジュール熱で加熱された状態を模擬することで、白川らの提案したメカニズムに基づいてジュール熱とホール注入によって起きる低抵抗・高抵抗状態の間のスイッチングを検証することにある。

3 研究開発成果 Research & development results

▶ 超格子 GeTe/Sb₂Te₃ のスイッチングを理論計算によって検証

MD 計算によって得られた結果を示す。図 3 は HRS から LRS へのスイッチングで、電荷中性の状態のまま 900K で加熱したあと 150ps かけて冷やした温度履歴で行っている。左にある HRS を初期状態とする。c 軸 (超格子の積層方向) に沿った各原子の質量分布を見ると、2 つの Te のピークの左・右に分布している。電子の状態密度を見るとフェルミ準位付近にバンドギャップが開き、HRS である。MD 計算によって得られた構造をその右に示す。質量分布は 2 つの Te によるピークの間で 2 つの Ge のピークがあり、白川らの提案した LRS へとスイッチングしたと考えられる。電子の状態密度を見てもバンドギャップが閉じ、LRS を示している。

また、メモリへの応用として LRS から HRS へスイッチングした後で、再び LRS へスイッチすることも検証した。はじめの LRS から HRS へのスイッチングは先ほどの図 4 のような計算であり、その後続けて MD 計算したものを図 5 に示す。質量分布は、2 つ

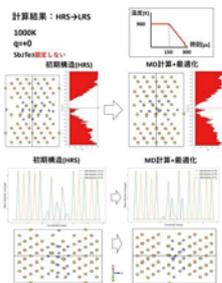


図 3: HRS から LRS へのスイッチングにおける構造の変化と質量分布と温度履歴。

の Te のピークの左・右に Ge のピークがある HRS から、2 つの Te のピークの中に 2 つの Ge ピークがある LRS へと変化している。電子の状態密度を見ても、フェルミ準位付近にあったバンドギャップが閉じ、LRS になったと見ることができる。このように、HRS から LRS へ、および LRS から HRS へのスイッチングを MD 計算することで、実際にスイッチングすることを検証した。また LRS から HRS へ変化した後に、再び LRS へ戻ってくるのが可能だと分かった。HRS から LRS へスイッチした後、HRS へ戻ってくるかの検証は今後行っていく予定である。

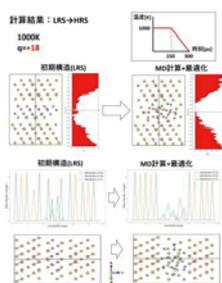


図 4: LRS から HRS へのスイッチングにおける構造の変化と質量分布と温度履歴。

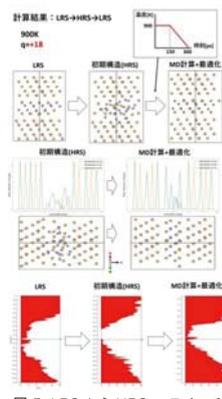


図 5: LRS から HRS へスイッチした後で、その HRS から LRS へのスイッチングにおける構造の変化と質量分布と温度履歴。

2 アプリケーションの開発 Application development

▶ 第一原理計算コード VASP による密度汎関数法に基づく第一原理 MD 計算

今回行った第一原理計算は、コードに VASP (Vienna Ab initio Simulation Package) [4-7] を用いた。また超格子 GeTe/Sb₂Te₃ には GeTe 層と Sb₂Te₃ 層の間に vdW 力による隙間が空いている。そのため一般化勾配近似に vdW 力補正を入れた PBE-D2 交換相関汎関数 [8] を用いて MD 計算を行った。原子核と電子の相互作用として PAW (Projected Augmented Wave) ポテンシャル [9] を用いた。基底関数は平面波基底であり、カットオフは 218.7eV である。Sb₂Te₃ はトポロジカル絶縁体であるためスピン軌道相互作用が比較的強い物質であるが、これを考慮すると計算コストが非常に大きく、またスピン軌道相

相互作用はたかだか 10meV のオーダーの相互作用であるから MD 計算ではこれを無視した。

白川らのメカニズムによれば、スイッチングにはジュール熱に加えてホール注入が不可欠な要因である。そのため、VASP においてホール注入を取り入れるために電子数を操作した。すなわち、LRS から HRS へのスイッチングにおいては、LRS のバンドオフセット (図 1) のようにホールをトラップする構造ができ、これにより HRS のほうが最安定構造となってスイッチングすると考えられるため、電子数を 18 個取り除いてホール注入を再現した。

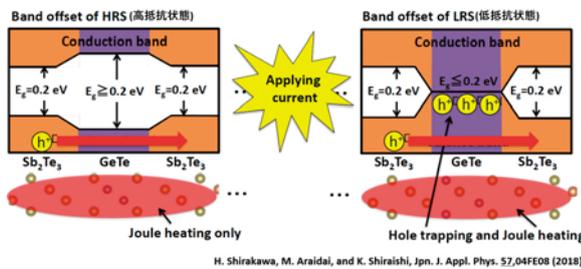


図 1: 超格子 GeTe/Sb₂Te₃ バンドオフセットの模式図。紫色で描かれた GeTe 層のバンドギャップが変化することによるホールをトラップする構造の有無があり、白川らのメカニズムによるとホールをトラップしなければ LRS が最安定、トラップすれば HRS が最安定の構造となることでスイッチングする。

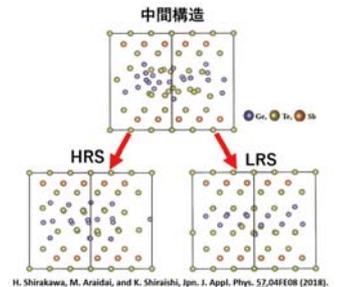


図 2: 中間構造 (上) は GeTe 層がアモルファス状に原子が配置されたものとなっており、これを初期状態として電荷中性条件で得た構造が HRS (左)、電荷正条件で得られたのが LRS (右) となっている。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 長時間 MD 計算による実際の時間スケールでの第一原理計算

iPCM は実験ではおよそ 600K、5ns 程度でスイッチングすることからそのオーダーでの MD 計算が必要だが、現在の計算機では 150ps あたり 48 時間程度かかるため、ここでは 900K 程度まで温度を上げて 150ps 以内にスイッチングが収まるようにしている。より忠実な MD 計算のため、「富岳」においては実験に即した温度における長時間シミュレーションに多く取り組みたい。

参考文献

- [1] H. Nakamura, I. Rungger, S. Sanvito, N. Inoue, J. Tominaga and Y. Asai, *Nanoscale* 9, 9386, (2017)
- [2] R. E. Simpson, P. Fons, A. V. Kolobov, T. Fukaya, M. Krbal, T. Yagi, and J. Tominaga, *Nature nanotech.* 6, 501 (2011).
- [3] H. Shirakawa, M. Araidai and K. Shiraishi, *Jpn. J. Appl. Phys.* 57, 04FE08 (2008)
- [4] G. Kresse and J. Hafner, *Phys. Rev. B* 47, 558 (1993).
- [5] G. Kresse and J. Hafner, *Phys. Rev. B* 49, 14251 (1994).
- [6] G. Kresse and J. Furthmüller, *Comput. Mat. Sci.* 6, 15 (1996).
- [7] G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* 54, 11169 (1996).
- [8] S. Grimme, *J. Comput. Chem.* 27, 1787 (2006).
- [9] P. E. Blöchl *Phys. Rev. B* 50 17953 (1994).

問い合わせ先 Contact information

小川湧太郎 Yutaro OGAWA
ogawa.yutaro@j.mbox.nagoya-u.ac.jp

中野崇志 (名古屋大学大学院工学研究科)

共同研究者

原嶋庸介 (名古屋大学未来材料・システム研究所)

長川健太 (名古屋大学未来材料・システム研究所)

洗平昌晃 (名古屋大学未来材料・システム研究所, 名古屋大学大学院工学研究科)

白石賢二 (名古屋大学未来材料・システム研究所, 名古屋大学大学院工学研究科)

押山 淳 (名古屋大学未来材料・システム研究所)

草場 彰 (学習院大学計算機センター)

寒川義裕 (九州大学応用力学研究所, 名古屋大学未来材料・システム研究所)

田中敦之 (名古屋大学未来材料・システム研究所)

本田善央 (名古屋大学未来材料・システム研究所, 名古屋大学大学院工学研究科)

天野 浩 (名古屋大学未来材料・システム研究所, 名古屋大学大学院工学研究科)

1 課題の目標

Development goal

GaN は Si に比べデバイス特性に優れた次世代半導体としてパワーデバイスの幅広い分野で注目されている。GaN パワー半導体素子においてリーク電流が生じている箇所には、貫通転位が観測されている。実験報告によると、Mg 不純物がらせん転位の周りにドーピング濃度を超過して高濃度 (10^{19}cm^{-3}) で凝集し、らせん転位周りへの Mg 不純物の凝集がリーク電流に寄与する可能性が示されている。リーク電流を低減するには、らせん転位および Mg 不純物との関係を明らかにしなければならない。そのために、転位に対する不純物凝集およびその電子状態を詳細に解明する。

3 研究開発成果

Research & development results

▶ Mg不純物のらせん転位周りへの凝集による電子構造の変化

らせん転位および Mg 不純物とリーク電流の寄与を解明するため、密度汎関数理論に基づく第一原理計算 (VASP) を用いて、らせん転位に対する Mg 原子の凝集およびその電子構造を解析した。

はじめに、らせん転位の周りで Mg 原子がどこで安定となるか解析した(図2)。Mg 原子が転位芯に近づくほど、系の形成エネルギーが低減し安定化することが分かった。この結果は、Mg 不純物がらせん転位の周りに凝集するという実験の結果と一致している。

次に、転位芯からの Mg 原子の距離が様々離れた各系に対して電子構造を解析した(図3)。Mg 原子が転位芯に近づくほど、系の Highest occupied level が Conduction band minimum に徐々に近づくことが分かった。この結果は、Mg 不純物がらせん転位の周りに凝集し、それによって p 型領域においても転位近傍で n 型領域が形成されることを示す。そのため、らせん転位周りへの Mg 不純物の凝集は、リーク電流に寄与する可能性がある。

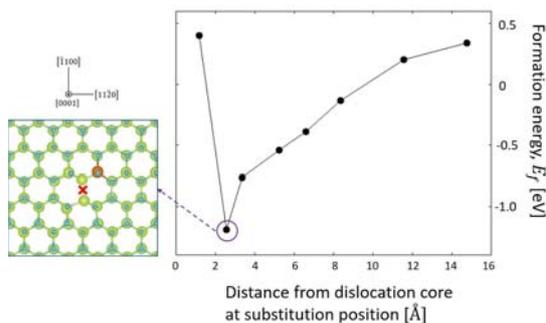


図2: Mg 原子の置換位置の転位芯からの距離と形成エネルギーの関係。形成エネルギーが小さいほど、系はより安定となる。左図は最安定な Mg+らせん転位モデルの転位芯構造を示す。赤いバツ印が転位芯を示しており、緑、青、橙はそれぞれ Ga、N、Mg を示す。

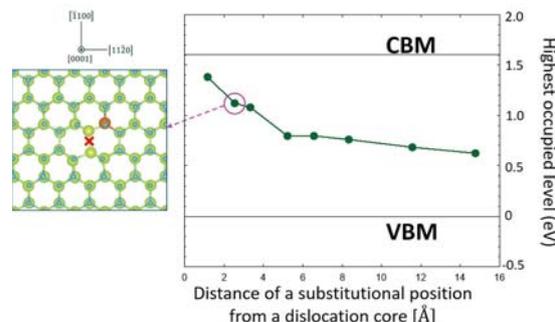


図3: Highest occupied level の Mg 位置依存性。CBM と VBM はそれぞれ Conduction band minimum、Valence band maximum を示す。エネルギーの基準をバルクの Valence band maximum の位置に合わせている。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ 密度汎関数理論に基づく第一原理計算

本研究では密度汎関数法に基づく第一原理計算を行い、Kohn-Sham 方程式をセルフコンシステントに解くことによって得られた電子密度から、多電子系の基底状態のエネルギーを計算した。その際、擬ポテンシャルとして Projector Augmented Wave (PAW) 法を用いており、交換相関汎関数として GGA-PBE を用いた。計算プログラム

は Vienna Ab initio Simulation Package (VASP) を用いており、高精度な計算が可能となる。貫通転位の原子モデルは、転位芯を中心としたひずみ場の様子から、大規模な原子数が必要とされ(図1)、本研究においても約 800 原子の系を用いてその電子構造を解析している。

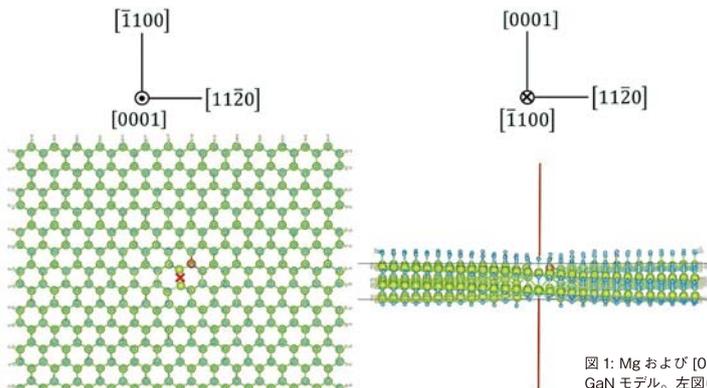


図1: Mg および [0001] らせん転位が含まれる GaN モデル。左図において赤いバツ印が転位芯を示しており、右図において赤線が転位線を示す。転位芯は Ga-filled core 構造。緑、青、橙、薄橙の丸はそれぞれ Ga、N、Mg、H を示す。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ より現実的な Mg+転位モデルの電子構造解析で、リーク原因解明へ

図1に示した Mg 不純物およびらせん転位を含む系においては、リーク電流の伝導方向である [0001] 方向に関して GaN のバルクの厚さと同じ 5.27 Å 程度をとっており、Mg 不純物が伝導方向に非常に密に並んでいる (Mg 不純物密度: 10^{20}cm^{-3})。GaN 基板上 p-n ダイオードにおけるリーク電流の観測結果によると、リーク電流が観測される素子では Mg がらせん転位周りに高濃度 (10^{19}cm^{-3}) で凝集する。実験で観測される Mg 不純物密度に近づけるには、らせん転位および Mg を含む系の [0001] 方向の厚さをより大きくとった系において、電子構造を解析する必要がある。そのため系に含まれる原子数としては数千原子が想定され、これを「富岳」を用いて解析することにより、より現実的な詳細な電子状態が明らかとなり、リーク電流が生じる原因の解明への貢献が期待される。

謝辞

本研究は文部科学省「省エネルギー社会の実現に資する次世代半導体研究開発」の委託を受けたものです。

参考文献

S. Usami, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, Appl. Phys. Lett. 114 232105 (2019).

問い合わせ先 Contact information

中野崇志 Takashi Nakano
nakano.takashi@h.mbox.nagoya-u.ac.jp

森 伸也 (大阪大学)

共同研究者

美里 劫夏南 (大阪大学)

岩田 潤一 (アドバンスソフト)

押山 淳 (名古屋大学)

I 課題の目標 Development goal

半導体デバイスの微細化が進み、極めて微細なトランジスタが量産化されています。しかし、デバイスが極度に微細化された結果、単純な比例縮小則のみによるデバイス性能向上の限界が顕在化してきました。このような状況を打破するため、新しい構造・新しい材料・新しい原理に基づくデバイスの研究が進められています。そのような多くの選択肢の中から、デバイス開発の指針を早期に得るため、デバイス性能を予測できるシミュレータの開発が望まれています。以上のような背景のもと、本課題では、新材料・新構造からなる次世代半導体デバイスの性能予測・最適化を可能にすることを目標に、量子論に立脚した先端的計算手法をポスト「京」アーキテクチャ上で開発し、次世代半導体デバイスシミュレータを構築しています。これにより、新たな産業の発展に資すると同時に、世界のものづくりの新たなパラダイム形成を目指します。具体的には、「京」コンピュータ上での高速化が達成されている実空間密度汎関数理論に基づく RSDFT コードと非平衡グリーン関数法 (NEGF) デバイスシミュレータとを連成した次世代量子輸送デバイスシミュレータ (RSDFT-NEGF コード) を開発しています。

3 研究開発成果 Research & development results

▶ ナノワイヤトランジスタの量子輸送シミュレーション

R 行列理論と等価モデルを用いた RSDFT-NEGF デバイスシミュレータの実現に向けて、はじめに、一様な Si ナノワイヤの透過関数を計算しました。一様なナノワイヤの透過関数は、モード数で決まる整数値をとることが知られています。数値計算の結果、透過関数は数値誤差の範囲で、整数値となることを確認しました。このことから、等価モデルで記述した電極と RSDFT で記述したチャネル領域との界面で、非物理的な反射が生じないことを確認しました。

つぎに、可動電子状態のみを NEGF 自己無撞着ループに組み込んだプロトタイプを作成しました。すなわち、はじめに、RSDFT を用いて価電子帯も含めた電子状態を 1 回だけ計算しておき、そこで得られたハミルトニアンを用いて、デバイス内の可動電子状態を、NEGF 方程式とポアソン方程式との自己無撞着計算により決定し、伝達特性などのトランジスタ特性を計算しました (図 1(a))。

可動電子状態のみ NEGF 自己無撞着ループ内に組み込んだ場合、非平衡状態におけるチャネル領域の誘電応答を考慮することができません。そのため、ポアソン方程式を解く際に、バルク Si の誘電率をパラメータとして入力する必要があります。しかし、一般的には、ナノ構造における誘電応答は、バルクの場合と異なると考えられます。そこで、可動電子計算だけでなく、分極電子状態も NEGF 自己無撞着ループ内に組み込んだシミュレータを開発しました (図 1(b))。

図 2 に、直径 1 nm、ゲート長 6 nm の Si ナノワイヤ FET の伝達特性の計算結果を示します。青丸が分極電荷を考慮した場合の結果であり、この計算では、有効質量や誘電率という経験的なパラメータが不要です。図より、バルク Si の誘電率を仮定すると、オン電流を過大に評価することなどが分かります。

2 アプリケーションの開発 Application development

▶ RSDFT-NEGF 量子輸送デバイスシミュレータを開発

ドリフト拡散方程式など半古典的な輸送方程式に基づいた半導体デバイスシミュレータが一般的に用いられています。しかし、極めて微細なデバイスの輸送現象には、量子閉じ込めやトンネル効果など量子力学的な効果が重要な役割を演じます。そのため、極微細デバイスを解析対象とする場合、量子効果を考慮できる手法を用いてシミュレータを開発することが必須です。我々は、NEGF 法を用いてシミュレータ開発を行なっています。NEGF 法では、電子状態を記述する系のハミルトニアンから計算されるグリーン関数が中心的な役割を演じます。従来、電子状態の記述には、有効質量近似、近似、強束縛近似など、経験的な手法が用いられてきました。しかし、予測機能を持たせるためには、電子状態を第一原理的に求める必要があります。第一原理計算は、種々の定式化が可能ですが、デバイスシミュレータへの応用を図る場合、実空間メッシュを用いた形式が望ましいと考えられます。我々は、RSDFT コードを用いてデバイスシミュレータの開発を行なっています。

RSDFT-NEGF デバイスシミュレータの開発におけるおもな課題は以下の通りです。

- ① ハミルトニアン行列のサイズ
- ② 非平衡境界条件
- ③ 電極の自己エネルギー

我々は、R 行列理論と等価モデルを用いて上述の困難を回避したシミュレータの開発を行なっています。

R 行列理論は、共鳴核反応を記述するために Wigner と Eisenbud が提唱した理論です [1]。共鳴核反応を起こす内

部領域と外部領域とに空間を分割し、その境界で、2 つの領域をつなぐ R 行列を定義し、散乱断面積などを求めるというのが基本的なアイデアです。デバイスの輸送問題にも応用でき、チャネル (内部領域) とソース・ドレイン電極 (外部領域) とにデバイスを分け、その境界で定義される R 行列から、グリーン関数を計算します [2,3]。R 行列は電極が接続されていない閉じたチャネルを記述するグリーン関数の表面成分に対応します。このことから、R 行列理論を用いることにより、②の困難を解決します。

R 行列理論には、分割統治法の一つである R 行列伝搬法という計算手法が知られており、系を、任意のサイズに分割した小さい系の集まりとして、小さい系の R 行列から、系全体の R 行列を再帰的に計算できます [4]。これにより、①の困難を解決します。

R 行列理論により、チャネルと電極とを分割しても、依然、電極の自己エネルギーの計算は必要です。実際のデバイスでは、抵抗の低いオーミック電極が接続されている限り、デバイス特性は電極の詳細には依存しないと考えられます。数値計算においても、電極とチャネルとの界面において反射が生じない限り、どのような電極を接続しても、デバイス特性は変わらないと考えられます。我々は、電極状態を等価モデルにより記述することを試みています。等価モデルとは、大きなサイズのハミルトニアンが記述する広いエネルギー範囲の中で、任意の狭いエネルギー範囲のみを再現できる小さな基底系を抽出したモデル [5] です。電極を等価モデルにより記述することにより、③の困難を解決します。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 大規模量子輸送デバイスシミュレータ開発

R 行列理論と等価モデルを用いた、RSDFT-NEGF デバイスシミュレータは、現在、分極電荷を考慮しない場合、弾道輸送の範囲で、現実的なデバイスサイズのシミュレーションが可能になっています。しかし、分極電荷を考慮した場合、現状、直径 1 nm 程度の小さなデバイス (図 2) しか扱うことができません。さらに、室温・有限バイアス下でデバイスを動作させるため、フォノン散乱などの非弾性散乱過程の導入も不可欠です。スーパーコンピュータ「富岳」では、非弾性散乱を含む大規模量子輸送計算プログラム開発に取り組み、真に予測機能を有するデバイスシミュレータを実現します。

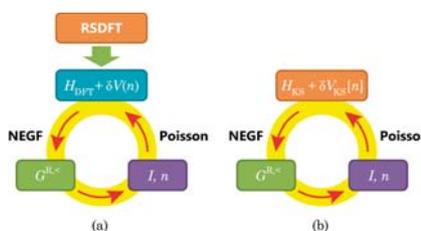


図 1: (a) 可動電子状態のみを NEGF 自己無撞着ループに組み込んだ RSDFT-NEGF デバイスシミュレータのプロトタイプ。(b) 可動電子状態だけでなく、分極電子状態も NEGF 自己無撞着ループ内に組み込んだ RSDFT-NEGF デバイスシミュレータ。

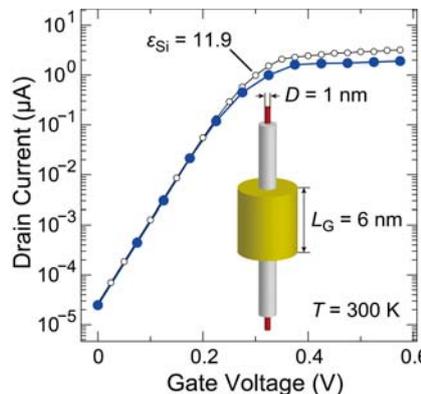


図 2: 直径 1 nm、ゲート長 6 nm のシリコンナノワイヤトランジスタの伝達特性。青丸は分極電子状態計算も NEGF 自己無撞着ループ内に組み込んだシミュレータを用いて計算した結果。白丸はバルクシリコンの比誘電率を仮定して計算した結果。

参考文献

- [1] E. P. Wigner and L. Eisenbud, Phys. Rev., 72, 29 (1947)
- [2] G. V. Mil'nikov, N. Mori, Y. Kamakura, and T. Ezaki, Appl. Phys. Express, 1, 063001 (2008).
- [3] G. Mil'nikov, N. Mori, Y. Kamakura, and T. Ezaki, J. Appl. Phys., 104, 044506 (2008).
- [4] G. Mil'nikov, N. Mori, and Y. Kamakura, Phys. Rev. B, 79, 235337 (2009).
- [5] G. Mil'nikov, N. Mori, and Y. Kamakura, Phys. Rev. B, 85, 035317 (2012).

問い合わせ先 Contact information

森 伸也 Nobuya Mori
nobuya.mori@eei.eng.osaka-u.ac.jp

鎌倉良成 (大阪工業大学)

共同研究者

山下大輝 (大阪大学)

森 伸也 (大阪大学)

1 課題の目標

Development goal

次世代の極微細トランジスタでは、キャリアの準弾道輸送や量子閉じ込め等の効果が素子の電気特性に本質的な影響を及ぼすため、それらを考慮できるデバイスシミュレータの開発が精力的に行われている。ただ、粒子法(モンテカルロ法)や非平衡グリーン関数法に基づく高精度なシミュレーションは膨大な計算時間を要することから、半導体素子や回路設計の現場において活用することはあまり現実的でない。そこで、これら原理的なシミュレーションから得られたパラメータやモデル式等の知見を、従来から広く用いられてきた流体デバイスシミュレータに落とし込むアプローチも重要な課題である。本研究では、モンテカルロシミュレーションによって得られた半導体デバイスの電気特性に関する解析結果をドリフト拡散モデルに基づく流体型デバイスシミュレータに反映するためのモデル構築を最終的な目標としている。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶モンテカルロデバイスシミュレータの開発

電子を粒子として表し、ボルツマン輸送方程式をモンテカルロ法で解くことで、極微細電界効果トランジスタ中の電子伝導を解析するデバイスシミュレータを開発している。デバイスを構成する材料としてはSiを想定し、非放射物線性を取り入れた解析式バンド構造モデル、音響フォノン散乱、および光学フォノン散乱を考慮した[1]。解析対象としたデバイスは、Siナノシート型電界効果トランジスタであり、10 nm級のチャネル長を有する素子内部における電子の準弾道輸送効果等を調べることができる。なお、このシミュレーションでは、ポアソン方程式による電位計算ソルバを電子輸送解析部に結合することで、電子運動による場の変化を考慮した。その際にはタイムス

テップ0.1 fs毎にポアソン方程式を解いているが、これは電子のプラズマ振動がドレイン電流に与える影響を解析することを意図したものである。図1にモンテカルロシミュレーションのフローチャートを示す。ポアソン方程式の求解には連立一次方程式を直接解法(LU分解法)で解くIntel MKL-PARDISOを用いた。図2には、メニーコア計算機でシミュレーションを実行した際の計算時間とコア数の関係を示す。当モンテカルロデバイスシミュレーションでは、その計算時間の大半をポアソン方程式による電位計算部が占めており、大規模並列計算を利用した効率の良い高速化が今後強く望まれる。

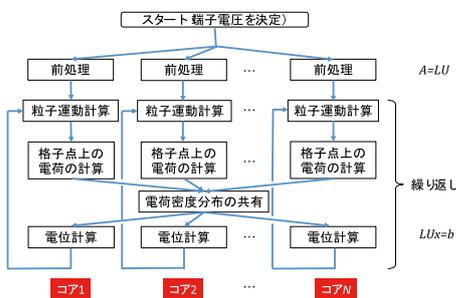


図1: モンテカルロデバイスシミュレーションのフローチャート

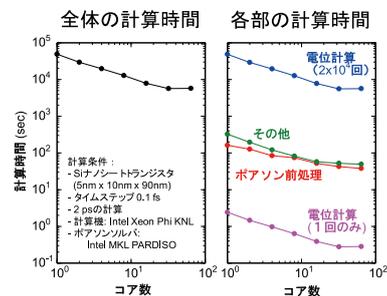


図2: モンテカルロデバイスシミュレーションの計算時間のコア数依存性

3 研究開発成果

Research & development results

▶流体型シミュレーションによるSiナノシートトランジスタの解析

産総研によって開発されたImpulse TCAD [2,3]を用い、ドリフト拡散モデルに基づく流体型デバイスシミュレーションによるSiナノシート電界効果トランジスタ(図3)の電気特性解析を行った。Impulse TCADは、物理モデルを組み込み易くするための自動微分機能を備えており、半導体輸送モデル開発者が様々な新規モデルを容易に試行することが可能である。本研究では、モンテカルロシミュレーションによって計算したSi中の電子の移動度の電界強度依存性(図4)をCaughey-Thomasモデル[4]に基づきImpulse TCADに取り込み、トランジスタの電流-電圧特性に与える影響を調べた。解析結果を図5に示す。ここでは、電界に依らず一定の値を持つ移動度モデルとCaughey-Thomasモデルを用いた場合の結果を比較した。高電界下における速度飽和現象のため、定数移動度モデルと比べてCaughey-Thomasモデルを用いた場合の方がより小さなドレイン電流を示している。

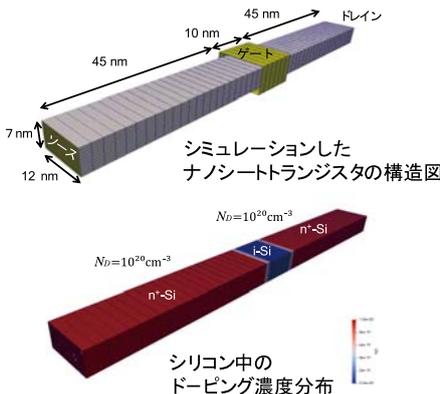


図3: シミュレーションしたSiナノシートトランジスタの構造

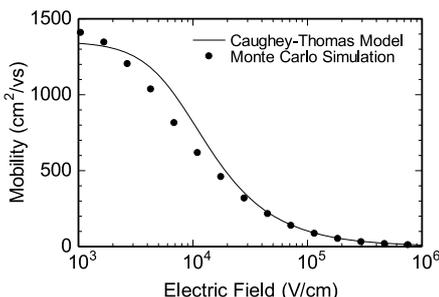


図4: 電子移動度の電界強度依存性

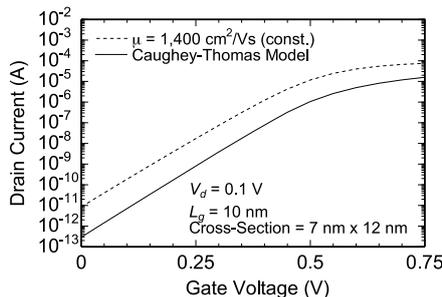


図5: 電流-電圧特性のシミュレーション結果

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶並列計算モンテカルロデバイスシミュレータの開発

電子のプラズマ振動を考慮したモンテカルロデバイスシミュレーションを実行するためには、0.1 fs程度のタイムステップで高頻度に電位計算を行う必要がある。一方、デバイスや回路の動作解析を目指すならば、全体でナノ秒以上に渡るシミュレーションを実施することも予想されることから、大規模並列計算を利用したポアソン方程式求解の高速化は大変重要な課題といえる。このような解析から得られた極微細トランジスタの電気特性に関する知見やモデルを流体型デバイスシミュレータに取り込むことで、次世代デバイスの電気特性予測を高精度かつ高速に行うことができると考えられる。

参考文献

- [1] C. Jacoboni and L. Reggiani; Rev. Mod. Phys. 55, 645 (1983). [2] H. Ota, K. Fukuda, T. Ikegami, J. Hattori, H. Asai, S. Migita, and A. Toriumi; Tech. Dig. IEDM 2017, p. 361 (2017). [3] <https://unit.aist.go.jp/neri/en/ImpulseTCAD/index.html> [4] D. Caughey and R. Thomas; Proc. IEEE 52, 2192 (1967).

問い合わせ先 Contact information

森 伸也 Nobuya Mori
nobuya.mori@eei.eng.osaka-u.ac.jp

吉田勝尚 (筑波大学大学院数理物質系)

共同研究者

佐野伸行 (筑波大学大学院数理物質系)

2 アプリケーションの開発 Application development

▶半導体/絶縁膜境界に対応した離散不純物モデル

チャネル長を 20 nm とした Fin 型 Si-MOSFET 構造を (図 1) に示す。チャネル内のアクセプタ個数は 6 個程度であり、Fin 構造であるため絶縁膜に Si 基盤が囲まれる構造となっている。これらデバイス内に離散的に存在するイオン化不純物によるクーロンポテンシャルをデバイスシミュレーションの枠組みの中で考慮する必要がある。デバイスシミュレーションにおいて、イオン化不純物を作るポテンシャルを散乱に寄与する短距離成分と、キャリアの運動に寄与する長距離成分に切り分けてそれぞれ取り扱いを行なっている (図 2)。短距離ポテンシャルは散乱ポテンシャルとして散乱頻度、もしくはキャリア移動度として輸送方程式で考慮される。一方、長距離ポテンシャルは不純物周辺のキャリア濃度等に依存、即ちデバイスの動作条件に応じて変化するためポアソン方程式において考慮し、輸送方程式内でキャリアの運動に影響を及ぼすものである。通常、散乱ポテンシャルは、バルク半導体中において、電荷中性条件を課した際にキャリアによって遮蔽されずに残ったイオン化不純物のポテンシャルを用

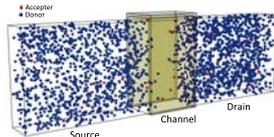


図 1: Fin 型 MOSFET における不純物の離散性。基盤アクセプタ濃度を 10^{18}cm^{-3} と想定した場合、チャネル内に存在するアクセプタ個数は Fin 幅 10 nm, Fin 高さ 30 nm、チャネル長 20 nm に対して 6 個程度となる。

いてモデル化されるため、長距離成分は電荷中性条件で遮蔽を受けたポテンシャルと等価である。このことから遮蔽に関わるキャリア分布を不純物を作る電荷分布としてポアソン方程式で考慮することにより、長距離成分のみを同方程式の解としてシミュレーションに組み込みを行うことができる。バルク半導体中であれば、ポテンシャルはキャリアによってのみ遮蔽を受けるが、半導体/絶縁膜界面近傍に不純物が存在する場合、誘電率差に起因した分極による遮蔽効果を導入する必要がある。この影響はデバイスサイズが小さくなるに従い顕著となるため取り扱いは必須となる。この問題に対し、分極効果を考慮した長距離ポテンシャルに対する不純物電荷の物理モデルを構築した [1]。このモデルでは、電荷中性状態における遮蔽に関わるキャリア分布を分極遮蔽の影響を組み込んだ状態で導出することで、電荷分布を不純物の電荷中心と界面との距離および誘電率差の関数として記述できるため、デバイスシミュレーションに組み込み可能なモデルとなっている。

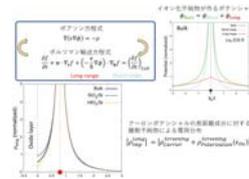


図 2: デバイスシミュレーションの枠組みと離散不純物を作るクーロンポテンシャルの取り扱いの関係。クーロンポテンシャルの長距離成分に対する離散不純物に対する電荷分布モデルと酸化膜誘電率依存性。

1 課題の目標 Development goal

Fin 構造を用いた Si-MOSFET に代表されるように、今日実用化されているトランジスタはナノスケールに微細化され、また、立体ゲート構造を導入することで高速化ならびに低消費電力化を実現している。このようなナノスケールデバイスでは半導体積が小さいことから、半導体中に導入されるドーパント (イオン化不純物) の個数が数個程度となり、不純物の位置および個数に対するばらつきが、デバイス特性ばらつきの大きな要因の一つとなっている。これらイオン化不純物に起因する特性ばらつきは、デバイス内で不純物の離散性の顕在化に伴うポテンシャル揺らぎであり、この揺らぎをモデル化しデバイスシミュレーションにおいて考慮することが特性予測において必須である。また立体ゲート構造により誘電率の異なる半導体/絶縁膜界面によるポテンシャル揺らぎへの影響についても考慮する必要がある。本研究では、半導体/絶縁膜近傍に局在する離散不純物に伴ったポテンシャル揺らぎをデバイスシミュレータに適用可能な物理モデルを構築し、その有効性を現実的な立体デバイス構造において検証する。

3 研究開発成果 Research & development results

▶3次元デバイスシミュレータによる特性バラつきの解析

・ドリフト拡散シミュレータへの実装

半導体/絶縁膜界面での分極効果を組み込んだ不純物モデルを用いた Fin 型 Si-MOSFET に対してドリフト拡散シミュレータを用いて特性バラつきに対する解析を行なった (図 3)。クーロンポテンシャルの長距離成分に対する離散不純物の電荷分布をポアソン方程式で考慮するため、離散不純物による電荷分布は、不純物電荷の中心に局在するのではなく、空間的に広がりを持つものとなる。また、界面による分極効果による電荷分布に対する補正成分は界面近傍で強く、界面から離れるに従いその影響は減衰していく。また、補正電荷の符号は半導体との誘電率差により決定され、半導体の誘電率よりも絶縁膜誘電率が大きい (小さい) 場合は、分極による遮蔽が強く存在するため、不純物電荷分布をより小さく (大きく) するように決定されている。これら分極の影響を考慮することにより、単に実効酸化膜

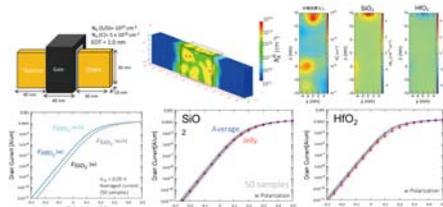


図 3: ドリフト拡散デバイスシミュレータによる特性解析。Si の比誘電率 11.8 に対して SiO₂ および HfO₂ はそれぞれ 3.9、23.9 であることから、アクセプタ分布に対して補正効果 ΔN_A を導入している。 N_A は補正効果のない場合のアクセプタ分布を表す。

厚だけではなく、離散性に起因する分極効果によるデバイス動作特性への影響を明らかにした。

・モンテカルロシミュレータへの実装

半導体/絶縁膜界面での分極効果はイオン化不純物だけではなく、電子-電子間の長距離相互作用に対して影響を及ぼすことが想定される。そこで同モデルを電子が作る電荷分布に適応し 3次元自己無撞着モンテカルロ法への実装を行なった。電子が作るポテンシャルの影響のみに着目するため、不純物の分布は一樣であるとした。酸化絶縁膜を SiO₂ とした際に誘電分極効果の有無によるポテンシャル分布への影響を図 4 に示す。SiO₂ の誘電率は Si よりも小さいため、誘電分極に対する補正により界面近傍で大きな電荷密度が与えられ、ポテンシャルがより大きくなっている。また、誘電分極効果が小さくなる半導体中央では分極効果による影響はほとんど見られない。

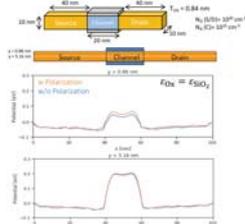


図 4: 3次元モンテカルロデバイスシミュレータを用いた静電ポテンシャルに対する誘電分極効果の解析。電子に対する電荷分布のみ離散性を考慮し不純物については一樣モデルを用いた。誘電分極により電子に対するポテンシャルが大きくなる。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶大規模デバイスシミュレーションによるデバイス特性解析

本研究で構築した離散不純物モデルは不純物の離散性を考慮するため、一定程度細かいメッシュ (遮蔽長程度) を必要としている。また、ばらつき問題に対する解析では、ランダムに不純物を配置した多くのサンプル数に対してデバイスシミュレーションを実施する必要があるため大規模なシミュレーションを行うことが不可欠である。さらに単一のデバイスだけではなく、複数の Fin 型もしくはナノワイヤ MOSFET を有するデバイスに対して計算を行うことで、MOSFET 間の相互作用等についてもドリフト拡散シミュレータを用いて実施できる。また、計算コストの高い 3次元モンテカルロシミュレーションにおいても離散不純物に対するばらつき問題を現実的なデバイス構造に対して実施する。

参考文献

[1] N. Sano, K. Yoshida, C.-W. Yao, and H. Watanabe, Materials 2018, 11, 2559.

問い合わせ先 Contact information

吉田勝尚 Katsuhisa Yoshida
yoshida@bk.tsukuba.ac.jp

野田真史 (筑波大学)

共同研究者

飯田健二 (分子科学研究所)

山口真生 (東京大学大学院)

八井 崇 (東京大学大学院)

信定克幸 (分子科学研究所)

1 課題の目標

Development goal

光・電子機能を持ったデバイスの例として、プラズモン導波路、化学・バイオセンサー、光触媒や太陽電池などが挙げられる。これらの機能を理解し設計するには、数~数十 nm 程度の実在のナノ構造体における光励起電子ダイナミクスの解明が重要だが、第一原理計算によってその詳細を明らかにした研究例は殆ど存在しない。そこで我々は電子ダイナミクスの大規模並列計算プログラムを開発し、ナノ構造体光励起ダイナミクスに適用する。そして、そこから得られた知見により新奇光・電子デバイスの創製を目指す。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ 実時間・実空間光励起電子ダイナミクスプログラムSALMONを開発

我々は実時間・実空間光励起電子ダイナミクスプログラム SALMON の開発を行ってきた [1,2]。SALMON においては差分法に基づく簡便なアルゴリズムが用いられているため、並列化が容易である。並列化については、k 点、軌道、空間での MPI 並列化と、OpenMP による並列化が用いられているため、様々な対象系に対して非常に高い実行性能と並列効率を有する。一例として、図 1 に理化学研究所「京」で測定した金属誘起構造体のベンチマークを示すが、9216 ノードまで良いスケラビリティを保っており、実行性能も 11.7% 出ていることが分かる。アルゴリズムが簡便なために、「京」以外の他計算機種に適したチューニングも容易であり、「京」以外のスーパーコンピュータ (名古屋大学 FX100、東大・筑波大 Oakforest-PACS、及び SGI ICEXA 等) でも高い並列化効率が見られている。

本プログラムでは、孤立系・3次元周期系から表面・界面まで、対象系を制限せず取り扱う事が可能である。また伝搬光や近接場光など、様々な光源を取り扱うことができる。過去には有機金属構造体中の分子の二倍波励起のシミュレーションや、MoS₂-graphene における光誘

起電子移動のメカニズムの理解を行った [3,4]。本プログラムは公開されており、Web ページにも詳細な情報が記載されている。

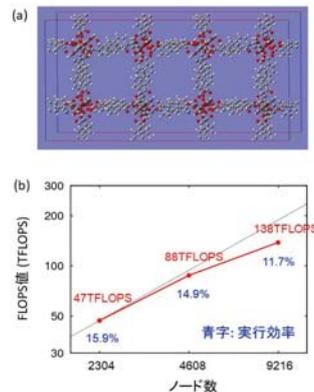


図 1: (a)有機金属構造体、(b)理化学研究所「京」で行ったベンチマーク測定結果。

3 研究開発成果

Research & development results

▶ 近接場光励起により、シリコンの高い吸収強度を実現

シリコン半導体は間接バンドギャップ型の物質であるため、可視光による直接的な励起をすることができない。しかし、極めて狭い空間領域に局在する近接場光の高い波数成分を用いれば、異なる波数間においても直接的に光励起できると考えられる。我々はまず、解析モデルを用いて間接バンドギャップ型物質を直接的に光励起 (波数励起) できることを示した [5]。そこで本研究では、より現実的なシリコンの波数励起を第一原理計算により解析した [6]。

第一原理計算で一般に用いられる Bloch の境界条件では、異なる波数間の遷移を表現することができないため、本計算では Born-von Kármán の境界条件を用いた。この境界条件では k 点に比例した空間領域を直接計算する。本研究では水素終端シリコン 3 bilayer を用いた。Born-von Kármán の境界条件を適用すると、スラブの表面積は 12 nm×11 nm となり、セルには 8192 原子が含まれる。そこで、計算には大規模計算に適している「京」を用いた。その際、近接場の周波数一つの計算に対して 4096 ノードで 13 時間を要した。

伝播光と近接場光による光吸収について比較を行った。その結果、伝播光を用いた場合の誘電関数の吸収端が 2.1 eV であるのに対し、近接場光による吸収強度の吸収端は 1.6 eV であり、近接場光を用いることで吸収端が低くなることが明らかになった。図 2 に吸収強度の比較を示すが、近接場光励起では 1.6 eV 付近において、伝播光の場合に比べて吸収強度が数桁大きくなっている。この強度の増大は、実在系表面の複雑なバンド構造に由来して、異なる波数間の遷移が多数誘起されるためであり、従来のプラズモンによる電場増強とは全く異なる。遷移経路の解析からは、近接場光による励起では異なる波数間の励起が強く生じていることが見出された (図 3)。これらの遷移は、波数の差 Δk が 4 nm⁻¹ のときによく起こっている。このことは、nm オーダーで局在した近接場光の高い波数成分によって波数励起が起こっていることを示している。以上の結果は高い検出効率を持つシリコン光検出器の実現を示唆している。

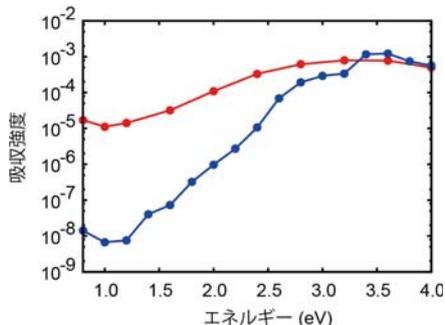


図 2: 伝搬光と近接場光の吸収強度の比較。

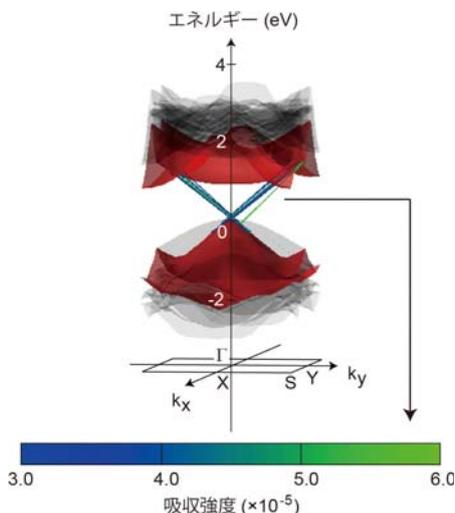


図 3: 1.6 eV の近接場光励起における、最も高い価電子帯から 2 番目に低い伝導帯への遷移強度図。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ より現実的な近接場光源でのシリコンの吸収強度を検証

今回の研究では、近接場光源を点で表される双極子放射場源として扱っている。一方、現実の系においてはシリコンの上に金ナノ粒子が並び (図 4)、レーザー照射下の金ナノ粒子が双極子放射場源となる。金ナノ粒子から発生するプラズモンを利用することにより、今回の計算よりも吸収強度が高くなることが期待される。また、波数励起は近接場の空間的な非一様性に起因するため、励起強度は金ナノ粒子の形状に強く依存すると予想される。このような系の計算を行うことで実験との比較が進み、より現実的な光・電子デバイスの提案が可能となる。

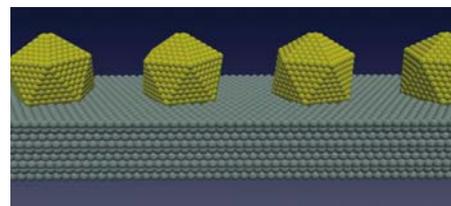


図 4: シリコン基板上の金ナノ粒子。

参考文献

- [1] <http://salmon-tddft.jp> [2] M. Noda et al., Comput. Phys. Commun. 235, 356 (2019). [3] M. Noda et al., J. Phys. Chem. C 121, 11687 (2017). [4] K. Iida et al., J. Phys. Chem. C, 122, 21651 (2018). [5] M. Yamaguchi and K. Nobusada, Phys. Rev. B, 93, 195111 (2016). [6] M. Noda et al., Phys. Rev. Applied 11, 044053 (2019).

問い合わせ先 Contact information

野田真史 Masashi Noda
noda@ccs.tsukuba.ac.jp

植本光治 (筑波大学計算科学研究センター)

共同研究者

矢花一浩 (筑波大学計算科学研究センター)

山田 篤 (筑波大学計算科学研究センター)

I 課題の目標

Development goal

高強度・超短パルスのレーザー光と物質(特にナノスケール構造物)の相互作用の理解は、今日の光科学分野のフロンティアとして注目されている。これらは非線形光学効果をもちいた新奇デバイス創出や、固体材料の非熱レーザー加工プロセスの解明といった工学・産業応用の点からも重要な課題である。

本研究では、時間依存密度汎関数理論(TDDFT:Time Dependent Density Functional Theory)にもとづく第一原理電子ダイナミクス計算と電磁気学、さらには格子ダイナミクスを結合させた多階層連結シミュレーションの手法開発を行っている。スーパーコンピュータをもちいた大規模計算を駆使して、「ポンプ・プローブ分光」、「コヒーレントフォノン発生」、「高次高調波発生」、「ナノ構造による光近接場発生」、さらには、レーザー加工の初期過程についても重要となる「光物質間エネルギー移動」など、多様な対象を目標に第一原理計算にもとづく研究に取り組んでいる。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ マルチスケール計算による巨視的物質の光学応答

本プロジェクトでは、光科学分野のための第一原理計算ソフトウェア SALMON(Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience) [1]の開発を進めている。

SALMON コードには、TDDFTによる電子ダイナミクス計算のほか、これをFDTD(Finite-difference Time-Domain: 時間領域差分法)による電磁界計算を結合させたマルチスケール法(Maxwell+TDDFT multiscale method)

[2-3]が実装されており、巨視的物質による光伝搬・光散乱のシミュレーションが可能である。特に物質の非線形光学応答が重要となる高強度レーザー場下での物理など、従来の電磁界解析で取り扱いが困難な対象に威力を発揮する。本手法では、巨視的電磁場に関するMaxwell方程式をFDTD法で計算し、離散化された各点(マクロ点)における物質からの誘電応答を、TDDFTをもちいた微視的な電子ダイナミクス計算から決定する(図1)。

我々は、巨視的電磁場計算を様々な次元性をもった問題(1~2次元:薄膜・斜方入射・軸対称ビーム、3次元:ナノ粒子)に適用可能なようにマルチスケール法の拡張を行っ

ており、さらに、メニーコアプロセッサをもちいた大規模計算環境向けにOpenMP/MPIによるHybrid並列化されたコードの開発を行っている。また最近では、Ehrenfest分子動力学法による格子ダイナミクスと結合させたマルチスケール法(Maxwell+TDDFT+MD Multi-scale) [4]により、フォノンを取り扱うことができるよう拡張がなされ、コヒーレントフォノン、誘導ラマン散乱といった対象へも適用されている。

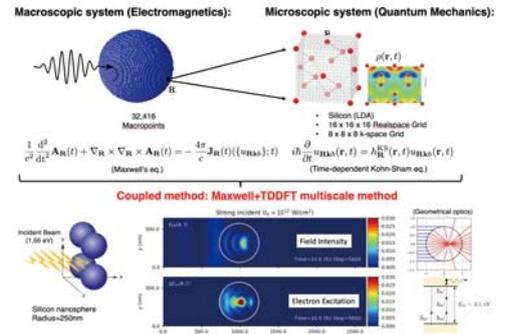


図1: 3次元 Maxwell+TDDFT マルチスケール計算の計算例: シリコンナノ球の光励起

3 研究開発成果

Research & development results

▶ 大規模マルチスケール計算の実現

2017年4月に、3次元 Maxwell+TDDFT マルチスケール法による大規模計算チャレンジの機会を得て、シリコンナノ構造のレーザー励起シミュレーションを実施した。計算環境として、Intel Xeon Phiをもちいた国内2位の計算性能を持つJCAHPC(東京大学情報基盤センター)と筑波大学計算科学研究センター)で運用する大規模メニーコアシステム Oakforest-PACSにおける全系(約8000ノード)を使用した(図2)。ナノ構造は数百nmオーダーのサイズで約3万2千のマクロ点から構成される(各点が独立した電子ダイナミクス計算と対応付けられる)。ナノ構造による集光や近接場により誘起される多光子吸収過程が観察された(図2下部)。

また、3次元ナノ粒子のほかに、薄膜へ斜方入射されたレーザーパルスの伝搬問題を取り扱うための改良も行っている [5]。本プロジェクトに関連してマックスプランク研究所(実験)と筑波大学(計算)の共同研究を進めて

おり、これまで SALMON コードをもちいたアト秒分光実験の計算機シミュレーションを試み、理論計算は実験をよく再現する結果を得ている。前述した Maxwell+TDDFT+MD マルチスケール計算は、光電磁場・電子・格子振動(フォノン)のシミュレーションが試みられ、ダイヤモンドにおいて誘導ラマン散乱によるラマンパルス光の発生再現・解析に成功している [4]。

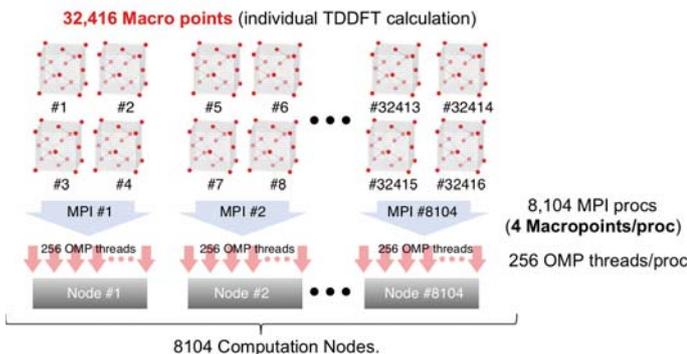


図2: 大規模マルチスケール計算: 約3万2千マクロ点を用いたシミュレーション、スーパーコンピュータ「Oakforest-PACS」全系による。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 固体表面の非熱レーザー加工に対する第一原理シミュレーション

スーパーコンピュータ「富岳」では、Maxwell+TDDFT+MD シングルスケール計算(電磁気学と量子力学を同一空間スケールのグリッドで扱う)により高強度レーザーによる透明物質加工の第一原理シミュレーションを計画している。フェムト秒レーザーによる微細加工技術の産業応用は近年著しい進歩を示し、そのシミュレーション・予測手法の開発は重要な課題である。本課題では、バルク表面を含む巨大なスーパーセルへの高強度レーザー入射(図3)のもとで、電磁場と電子・原子ダイナミクスの時間発展を計算し、レーザー励起の効果の第一原理的予測を試みる。

▶ 半導体物質のナノオプティクスに対する第一原理シミュレーション

Maxwell+TDDFT+MD マルチスケール計算は、光電磁場・電子・格子振動(フォノン)のシミュレーションが試みられている。スーパーコンピュータ「富岳」の計算能力を生かして、ナノ構造の非線形光学応答を利用した、レーザーパルスの波形整形デバイス設計への応用や、フォノン介在した高次高調波発生・テラヘルツ発振への適用を考えている。

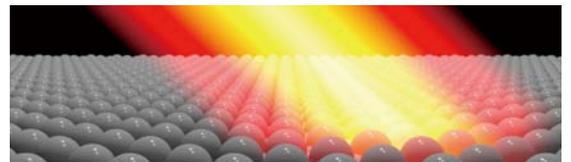


図3: 大規模 Maxwell+TDDFT+MD 計算: 固体表面へのレーザー入射のイメージ図

参考文献

- [1] M. Noda et al. Comm. Comp. Phys. 235, 356 (2019) . [2] K. Yabana et.al, Phys. Rev. B 85, 045134 (2012) . [3] S.A. Sato et.al, Phys. Rev. B 92, 205413 (2015) . [4] A. Yamada, K. Yabana, Phys. Rev. B 99, 245103 (2019) . [5] 植本光治、矢花一浩、第29回光物性研究会論文集, pp.205-208 (2018)

問い合わせ先 Contact information

植本光治 Mitsuharu Uemoto
uemoto@ccs.tsukuba.ac.jp

廣川 祐太 (筑波大学計算科学研究センター)

共同研究者

植本 光治 (筑波大学計算科学研究センター)

野田 真史 (筑波大学計算科学研究センター)

矢花 一浩 (筑波大学計算科学研究センター)

1 課題の目標

Development goal

近年の大規模高性能計算機は、メモリアーキテクチャによるスレッド並列性と長SIMD化によるベクトル並列性が大幅に増加しているが、一方でByte/FLOPは低下している。計算機の性能を引き出すためには、計算科学とHPC (High Performance Computing) のコデザインによってアプリケーションの開発と高速化を並行実施する必要がある。本研究は、各種最先端アーキテクチャの性能を引き出すためのアプリケーションの最適化について着目している。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ 電子動力学アプリケーションSALMONのコデザイン

本サブ課題参加者・協力者を中心に開発を行っている第一原理計算(時間依存Kohn-Sham方程式)に基づく電子動力学アプリケーションSALMONに対し、コデザインによる各種最先端アーキテクチャへの最適化を実施している(図1)。これまでに、「京」コンピュータ、FX100システム、Intel Xeon Phi (Knights Landing) などへのアプリケーションのコデザインを実施した。

特に、Intel Xeon Phi に対しては国内2位の計算性能を持つJCAHPC (東京大学情報基盤センターと筑波大学計算科学研究センター) で運用する大規模メモリアーキテクチャ Oakforest-PACS における全系計算を実施し、大規模シミュレーションを実用レベルで遂行可能であることを示した(図2)。

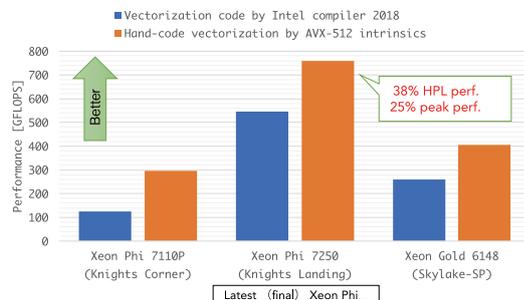


図1: キステンシル計算のIntel Xeon/Xeon Phi プロセッサでの性能



図2: メモリアーキテクチャ Oakforest-PACS での性能評価

3 研究開発成果

Research & development results

▶ A64FXプロセッサに対する最適化により高性能化を達成

本研究では、理化学研究所が性能評価環境として提供している理研「富岳」プロセッサシミュレータを活用し、SALMONの主要計算である電子の波動関数に対するハミルトニアンで計算される25点ステンシル計算の最適化とシミュレータ上での性能測定を行った。

「富岳」に搭載されるプロセッサA64FXは、Armアーキテクチャを採用しSIMD命令SVE (Scalable Vector Extension) を初めて実装する。A64FXでは512-bit長のSIMD計算が可能で、これはIntel Xeon Phiと同じSIMD長であり、またメモリアーキテクチャであることから、我々がこれまでに実施してきたIntel Xeon Phiへの最適化ノウハウをスーパーコンピュータ「富岳」で活用できると期待される。

我々はIntel Xeon Phiで実施した512-bit SIMD命令のハンドコーディングによるベクトル化コードを、命令または処理レベルでA64FXが提供するSVEに変換・最

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 「富岳」への最適化により成果の早期社会還元へ

理研「富岳」プロセッサシミュレータとIntel Xeon Phiへの最適化ノウハウを活用し、主要計算の最適化を早期に実施できた。本研究成果により、スーパーコンピュータ「富岳」の早期活用と成果創出の準備を他に先駆けて始めることができたと考えている。

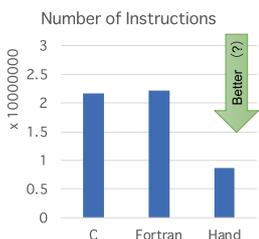
しかし、15万ノード以上とされる計算資源をすべて利用したときに、SALMONが期待される動作ができるか、今までは影響がなかったノード間通信がボトルネックとならないか、なったときにSALMONはどのように対処できるのか、などが課題として挙げられる。

最適化を実施し、性能評価を行った。

シミュレータ環境より、L1キャッシュミスが発生する問題サイズで性能評価を実施した結果、富士通が現在開発している「富岳」向けコンパイラ(以下、富士通コンパイラ)に対し、約2.8倍の性能を達成した(図3)。

本研究成果は、計算科学アプリケーションでは頻出する計算パターンであるステンシル計算に対するものであり、他のアプリケーションに対する波及効果も大きいと期待できる。

	Fujitsu C vectorized	Fujitsu Fortran vectorized	Hand-vectorized
Execution time [msec]	9.7	9.5	3.4



	Fujitsu C vectorized	Fujitsu Fortran vectorized	Hand-vectorized
Number of L1D misses	28135	80016	29793
L1D miss rate	0.22%	0.6%	1.22%
Number of L2 misses	22	22	20
L2 miss rate	0.01%	0.02%	0.01%

図3: 本課題実装と富士通コンパイラ(開発版)の性能比較(2019年2月実施)

免責事項

一評価で使用したコンパイラ等のソフトウェアは開発中のものであり、「富岳」供用開始時の性能と異なる可能性がある。利用したソフトウェアの版は以下のとおり。

Fujitsu compiler version 0.28 (20190110)

・理研シミュレータの結果は推定値であり、「富岳」供用開始時の性能を保証するものではない。

児玉他、「理研ポスト京プロセッサシミュレータの評価」、情報処理学会、情報処理学会、研究報告ハイパフォーマンスコンピューティング(HPC)、2019-HPC-168(5)、pp. 1-7 (2019-02-26)

参考文献

[1] SALMON: <https://salmon-tdfft.jp/> [2] Yuta Hirokawa, et al.: "Performance Optimization and Evaluation of Scalable Optoelectronics Application on Large Scale KNL Cluster", ISC High Performance 2018, Frankfurt, June 2018, https://doi.org/10.1007/978-3-319-92040-5_11 [3] 廣川祐太, 他: "AVX-512 Intrinsicsで実装されたステンシル計算のScalable Vector Extensionへの展開", 第168回HPC研究会, Vol. 2019-HPC-168 No. 4, 石川, 2019年3月, <http://id.nii.ac.jp/1001/00194686/>

問い合わせ先 Contact information

廣川祐太 Yuta HIROKAWA
hirokawa@ccs.tsukuba.ac.jp

大越孝洋 (早稲田大学)

共同研究者

平山元昭 (理化学研究所)

三澤貴宏 (東京大学)

井戸康太 (東京大学)

山地洋平 (東京大学)

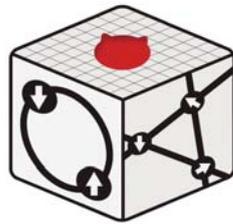
今田正俊 (早稲田大学、豊田理化学研究所)

2 アプリケーションの開発
Application development

汎用量子格子模型ソルバー-mVMCの開発と機能拡張

私たちは、高温超伝導や量子スピン液体といった強相関量子系の物理を研究するために、汎用量子格子模型ソルバー mVMC を開発してきた。本ソフトウェアは、数万個の変分パラメータを導入した高精度な変分波動関数を用いる変分モンテカルロ法(多変数変分モンテカルロ法)を実装したものである。本手法では、基底状態や低エネルギーの励起状態の計算が可能となっている。最近では、電子・格子結合系、有限温度系、非平衡状態など、従来の適用範囲を超えた計算を可能にするための独自のアル

ゴリズムを開発し、機能拡張にも成功している。さらに、より高精度な計算を可能にするために、テンソルネットワーク法や機械学習を取り入れた拡張も行ってきた。本ソフトウェアは、物質の相互作用パラメータを評価する第一原理ソフトウェア RESPACK ともインターフェース面で連携しており、これらを融合した手法を用いることで、第一原理に立脚した強相関物質の高精度電子状態計算が可能となっている。



mVMC

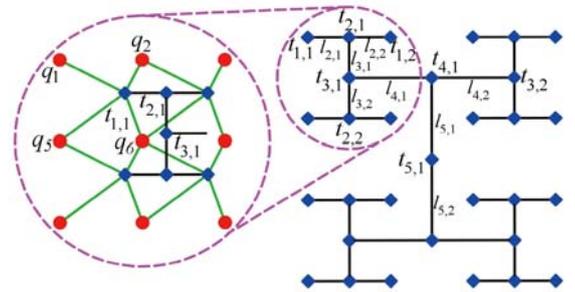


図1: 汎用量子格子模型ソルバー mVMC のロゴ。公式ページ: <https://github.com/issp-center-dev/mVMC>

図2: mVMC と組み合わせたテンソルネットワーク構造。H.-H. Zhao et al., Phys. Rev. B 96, 085103 (2017) より転載

1 課題の目標
Development goal

本課題では、強相関物質を用いた新機能デバイス設計を目指している。このために、第一原理ダウンフォールディング法と量子多体計算手法のソフトウェア開発、さらに、より高精度な解析を行うための方法論の精緻化を行う。このような第一原理に立脚した強相関物質の高精度電子状態計算パッケージを構築することで、広範な強相関量子物質を用いた新機能デバイス設計に貢献し、大きな波及効果が期待できる。特に本サブサブ課題では、近年実験で報告されている薄膜・界面における超伝導転移温度上昇の機構解明と、その理解に基づいた新物質設計を目指す。

3 研究開発成果
Research & development results

第一原理計算と高精度量子多体計算手法を組み合わせ、銅酸化物高温超伝導体の相図の再現に成功

銅酸化物高温超伝導体は、その発見から 30 年以上経つ今でも超伝導機構など多くの物理現象が未解明である。特に最近では、ホールドープ型の銅酸化物高温超伝導体における低ドープ領域において電荷秩序が広く観測され、関心を集めている。これまでの理論研究では、銅酸化物超伝導体の単純な模型として、ハバード模型がしばしば扱われてきた。しかし、最近の高精度数値計算によって、ハバード模型の基底状態は、広範囲にわたって電荷・スピンのストライプ状態であり、その周期も実験結果と異なることがわかってきている。従って、正しく実験結果を再現し、物理現象を理解するためには、単純化されたハバード模型では不十分であり、第一原理に基づくより現実的な有効ハミルトニアン

を用い、ゼロ分散への外挿を行った。その結果、ホールドープ領域による広範な超伝導相、ホールドープ量 $\delta \sim 0.1$ における電荷秩序との競合など、実験と整合する基底状態相図を得ることに成功した。また、従来の研究においてしばしば無視されてきたオフサイト・クーロン相互作用が超伝導秩序の大きさや超伝導状態のエネルギー安定性に対して、大きな影響を与えていることを明らかにした。さらに、先行研究で明らかにされたハバード模型や鉄系高温超伝導体における超伝導増大機構と同様に、銅酸化物高温超伝導体においても電荷揺らぎの増大が重要な役割を果たしていることがわかった。

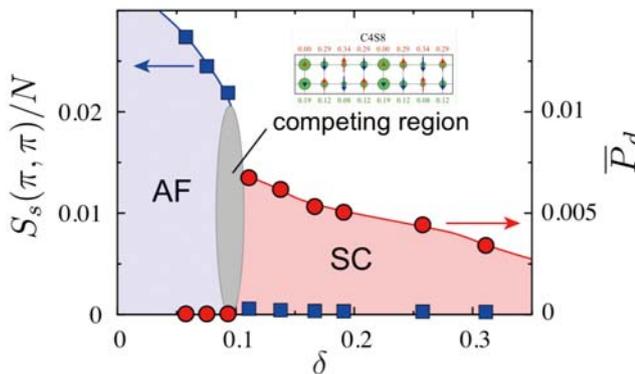


図3: 銅酸化物高温超伝導体HgBa2CuO4+δの低エネルギー有効ハミルトニアンの基底状態相図。

の扱いが必要である。本研究 [1] では、最近第一原理に基づいて導出された銅酸化物高温超伝導体 Hg-Ba₂CuO_{4+δ} の低エネルギー有効ハミルトニアン [2] に対し、多変数変分モンテカルロ法ソフトウェア mVMC を用いた高精度数値解析を行なった。特に、エネルギーの高精度計算のために、ランチョス法やテンソルネットワーク法を組み合わせ試行波動関数を

4 スパコン「富岳」で取り組む課題
Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

高温超伝導体薄膜・界面の理論解明と超伝導転移温度上昇指針の探求

近年薄膜や界面において、従来のバルクでの超伝導転移温度を超える高温超伝導体を実現され、注目を集めている。なかでも SrTiO₃ 基板上に作成された鉄系超伝導体 FeSe 薄膜は、バルクの超伝導転移温度 8K より遥かに高い転移温度(約 60K)を示すことが報告されている。この超伝導転移温度上昇のメカニズムとして、電子・格子相互作用が超伝導形成を助けているというシナリオが提唱されているが、未だ解明されていない。このメカニズムを理解することで、超伝導転移温度上昇のための一般的な指針が得られることが期待される。この解明のためには、フォノン自由度も含めた大規模な計算が必要であるが、これまで開発してきた RE-SPACK 及び mVMC とスーパーコンピュータ「富岳」を用いることで本機構の解明を行い、得られた知見をもとに室温超伝導実現に向けた物質設計を目指す。

参考文献

[1] T. Ohgoe, M. Hirayama, T. Misawa, K. Ido, Y. Yamaji, and M. Imada, arXiv:1902.00122 (2019) [2] M. Hirayama, T. Misawa, T. Ohgoe, Y. Yamaji, and M. Imada, Phys. Rev. B 99, 245155 (2019)

問い合わせ先 Contact information

大越孝洋 Takahiro OHGOE
ohgoe@aoni.waseda.jp

山地洋平 (東京大学)

共同研究者

今田正俊 (豊田理化学研究所、早稲田大学)

1 課題の目標

Development goal

・分光実験データから高温超伝導の起源に迫り、超伝導転移温度の向上につながる知見を引き出す。

3 研究開発成果

Research & development results

▶ 銅酸化物における高温超伝導の起源

機械学習による強相関電子系超伝導体の自己エネルギー推定を行った。銅酸化物高温超伝導体 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8-x} について超伝導転移温度 T_c 以下の低温で測定された角度分解光電子分光 (ARPES) データ [2] から、自己エネルギーの常伝導成分 Σ^{nor} と異常成分 Σ^{ano} をそれぞれ独立に抽出することに成功した [1]。自己エネルギーの全体 Σ^{tot} は、常伝導成分 Σ^{nor} と、異常成分 Σ^{ano} から構成される超伝導からの寄与 W に分解できる: $\Sigma^{\text{tot}} = \Sigma^{\text{nor}} + W$ 。分解された常伝導成分 Σ^{nor} と W を解析することで、同じ自己エネルギー ω に顕著なピーク構造が現れることがわかった。さらに W のこのピーク構造が実際に高温超伝導をもたらしていることが確認できた [1]。銅酸化物高温超伝導の発見から30年あまり、このようなピーク構造は観測されてこなかった。 Σ^{nor} と W で発見されたピーク構造が、総体としての自己エネルギー Σ^{tot} ではお互いに打ち消し合い、顕著な構造が消失するために、これまで観測することができなかったのである。さらに互いに打ち消しあうピーク構造から見積もった電子間有効引力と、このピーク構造をもたらす強い電子-電子散乱による非弾性緩和時間の逆数の積が、超伝導転移温度を決めていることを突き止めた [1]。

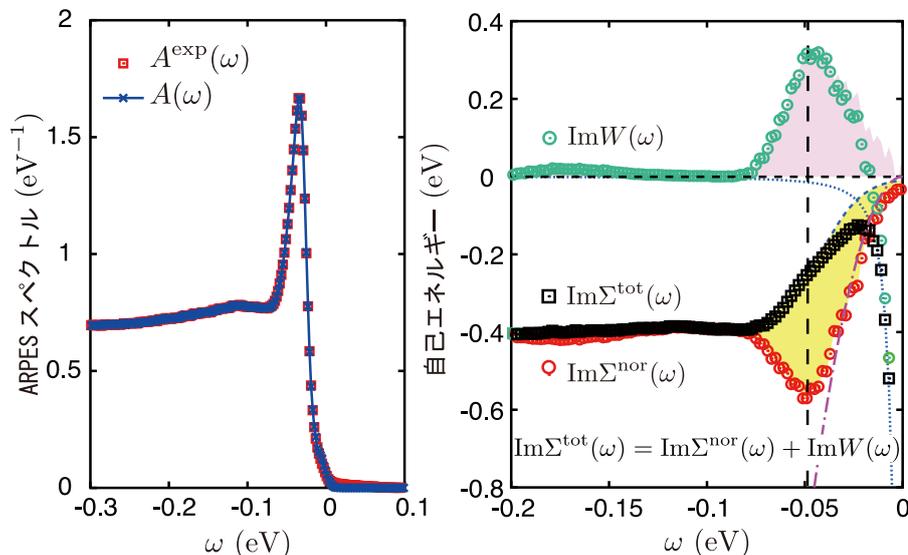


図2: 銅酸化物高温超伝導体 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8-x} (最速ドーピング、T_c=90K) の ARPES 実験で得られたスペクトル (赤い四角) と最適化された自己エネルギーから再現されたスペクトル (青線) の比較 (左図)、および最適化された自己エネルギー (右図)。自己エネルギーの全体 Σ^{tot} (黒い四角) は、常伝導成分 Σ^{nor} と異常成分 Σ^{ano} から構成される超伝導からの寄与 W に分解できる: $\Sigma^{\text{tot}} = \Sigma^{\text{nor}} + W$ 。常伝導成分 Σ^{nor} と W には同じ自己エネルギーに顕著なピーク構造が現れる一方、総体としての自己エネルギー Σ^{tot} ではピーク構造が消失している。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ ボルツマン機械によるARPESデータからの自己エネルギー抽出

グリーン関数法は固体結晶や分子に閉じ込められた多体電子の標準的な表現手法の一つである。グリーン関数法では、一電子の時間発展を追いかけている。グリーン関数の枠組みでは、他の電子や結晶中の欠陥や不純物に散乱される様子が自己エネルギー Σ と呼ばれる複素関数によって表現されてきた。超伝導を理解する上で、グリーン関数ひいては自己エネルギーが重要な役割を果たしてきた。超伝導状態での自己エネルギー Σ には、通常の金属状態を記述する常伝導成分 Σ^{nor} と、クーバー対形成に由来する異常成分 Σ^{ano} の2成分が現れる。とくに、異常部分 Σ^{ano} には、クーバー対形成の原因となる電子間引力の周波数、あるいはエネルギー軸上の分布情報が織り込まれており、超伝導の起源を解明する上で非常に重要となる。事実、バーディーン-クーバー-シュリーファー (BCS) による超伝導発見機構を実験的に検証する上で、走査型トンネル分光スペクトルから得られた Σ^{ano} と量子化された結晶格子の振動、フォノンの分布関数との比較が決定的な役割を果たした。

しかし残念ながら、BCS 超伝導体に用いられた手法は銅酸化物高温超伝導体に適用できず、異常成分 Σ^{ano} を実験から抽出することは困難であった。中心的な困難は、一成分関数である分光スペクトルから、2つの自己エネルギーの成分を別々に取り出すことにある。BCS 超伝導体ではミグダル-エリASHUBERG理論と呼ばれる標準的な理論を用いることで2成分の分離が可能となったが、銅酸化物を始めとする強相関電子系では理論が破綻することが知られている。

そこで我々は物理的知見を事前知識として取り入れた機

械学習によって、強相関電子系超伝導体の自己エネルギー抽出を可能とするアルゴリズムを開発した [1]。学習機械の一つであるボルツマン機械の柔軟な表現能力を生かして自己エネルギーの常伝導成分 Σ^{nor} と異常成分 Σ^{ano} を表現することで、角度分解光電子分光法 (ARPES) から得られた単独のスペクトルデータから、それらの2成分を決定することができる。

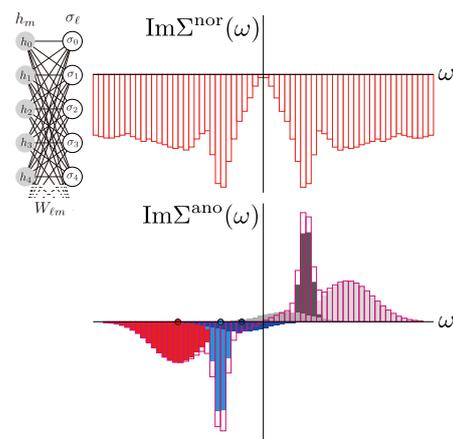


図1: 自己エネルギー Σ のボルツマン機械表現。自己エネルギー Σ の虚数部分を矩形関数の集まりとして表現している。一つ一つの矩形関数の重みが機械学習で用いられる学習機械の一つであるボルツマン機械 (上段左) の柔軟な表現能力で与えられている。超伝導状態では自己エネルギー Σ には、常伝導成分 Σ^{nor} (上段) とクーバー対形成に由来する異常成分 Σ^{ano} (下段) の2成分が存在している。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 機械学習で迫る分光実験データの統合と自己エネルギー推定

固体結晶や分子の中に閉じ込められた多体電子系の情報を取り出すための実験手段は多岐にわたる。光電子分光とその発展型であり運動量分解能を有する角度分解光電子分光 (ARPES) に加え、電子エネルギー損失分光 (EELS)、共鳴 X 線散乱 (RIXS)、および走査型トンネル分光法 (STS) によって得られる相補的な分光実験データには、強相関電子系において電子がどのように相互作用しながら運動しているのかという情報が含まれている。富岳の高い演算能力と並列性、使いやすさを生かすことで、多彩かつ膨大な分光実験データを同時に訓練データとして用いることで、どのように電子が相互作用しているかを詳細に記述する自己エネルギーの機械学習による推定を、ハイスループットかつ高精度なものへと発展させる。これにより、高温超伝導を始めとする強相関電子系が示す多彩な機能の起源により短時間でより詳細に迫れるようになることが期待される。

参考文献

[1] Y. Yamaji, T. Yoshida, A. Fujimori, and M. Imada, arXiv:1903.08060. [2] T. Kondo, et al., Nat. Phys. 7, 21 (2011).

問い合わせ先 Contact information

山地洋平 Youhei Yamaji
yamaji@ap.t.u-tokyo.ac.jp

山地洋平 (東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻)

共同研究者

鈴木隆史 (兵庫県立大学工学部)

河村光晶 (東京大学物性研究所)

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ HΦとKωの融合による有限温度スペクトル計算アプリケーション

サブ課題 C では数値厳密対角化アプリケーション HΦ の開発を物性研究所の支援のもと進めてきた [1]。適応できる系のサイズは限られるが、強相関電子系の基底状態のみならず有限温度の物理量、加えて絶対零度での非弾性中性子散乱や X 線散乱、光電子分光などの分光学測定に対応する励起スペクトルの計算が可能である。これらの機能の実装には、物性研究所の支援およびサブ課題 G との連携によって最新の数値アルゴリズムが導入されている。シフト型クリロフ部分空間法はその一例である。HΦにはシフト型クリロフ部分空間法を実装した数値ライブラリ Kωが統合されている。近年、さらなる機能の拡張として、従来計算が困難であった強相関電子系の数値的に厳密な有限温度励起スペクトル計算のためのアルゴリズム (有限温度クリロフ部分空間法スペクトル計算手法、FTKω) の開発を進めてきた [2]。これにより大規模実験施設での測

定が進む中性子散乱スペクトルおよび X 線散乱スペクトルの高精度なシミュレーションが可能となる。

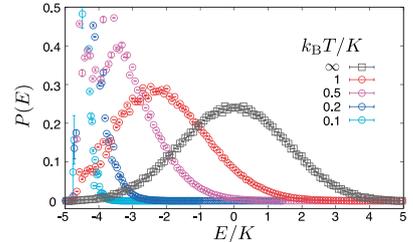


図1: 新しいアルゴリズム FTKωを用いることで、強相関系のカノニカル分布 $P(E)$ を、基底状態のスペクトル計算と同等のコストで計算できる。例として、マヨラナ粒子励起が発現することが厳密に示されているキタエフ模型について FTKωを用いて求めたカノニカル分布を上図に示す。

1 課題の目標

Development goal

- ・強相関電子系特有のトポロジカルな機能に着目することで、コヒーレンスが短距離で失われるため易動度が低く界面の質に強く依存するという、デバイスへの応用を阻んできた強相関電子系の弱点を長所へと変換
- ・無損失・高易動度の純粋スピんキャリアの強相関トポロジカル物質表面での実現により、スピントロニクス革新に貢献
- ・量子計算への応用が期待されるマヨラナ粒子励起の強相関トポロジカル物質での実現により、量子計算デバイスの革新に貢献

3 研究開発成果

Research & development results

▶ 強相関トポロジカル物質候補の中性子散乱スペクトル

強相関トポロジカル物質を開発して (スピノンと呼ばれる) 純粋スピんキャリアおよびバルク結晶中のマヨラナ粒子を応用するためには、実際にこれら強相関電子系に特有の創発的な粒子を観測する必要がある。分数励起とも呼ばれるスピノンやマヨラナ粒子は、電子自由度の一部が電子相関によってフェルミ粒子として量子化されたもののため、電子自由度、あるいは電子の持つスピンの自由度を取り出して観測を行う観測手段では、複数の分数励起を同時に観てしまう。実験で直接それらの粒子を観ることができないため、シミュレーションと実験の直接比較によって分数励起の兆候を捉えることが必要不可欠となる。

我々は、マヨラナ粒子物質の候補として注目を集める NaZrO_3 の第一原理有効ハミルトニアンおよび $\alpha\text{-RuCl}_3$ の最もシンプルな有効ハミルトニアンであるキタエフ-Γ 模型 (図2参照) に対して、開発を行ってきた新たなアルゴリズム FTKωを適用、量子計算への応用が期待される分数励起、マヨラナ粒子の兆候を中性子散乱実験によって捉えるための数値シミュレーションを行った。

マヨラナ粒子などの分数励起が発現するシナリオの一つとして、巨視的な数の古典的な多体スピン状態が有限温度で示す縮退が、低温で発達するスピン自由度の零点振動によって解ける過程が研究されてきた。今回我々が実行したシミュレーションによって、実際に零点振動による縮退の解放がマヨラナ粒子物質で起こることが明らかとなった [3]。マヨラナ粒子が現れることが期待されている系の一つ、Γ 模型と呼ばれる有効ハミルトニアンに対する中性子散乱スペクトル $S(Q, \omega)$ のシミュレーション結果を図3に示している。相互作用スケール $\Gamma=1$ に対して十分高温 ($T=0.5$) では、巨視的な古典スピン配置の縮退を反映したスピン自由度の緩和とデコヒーレンスを伴う歳差運動による連続励起スペクトルが現れる。一方、絶対零度に向かって低エネルギー極限 ($\omega=0$) 付近では、零点振動による縮退の解放によってスペクトル強度が減少している。今後、第一原理有効ハミルトニアンを用いた解析およびマヨラナ粒子の観測に適している熱応答現象を含め、より詳細な実験との比較へと発展することが期待される。

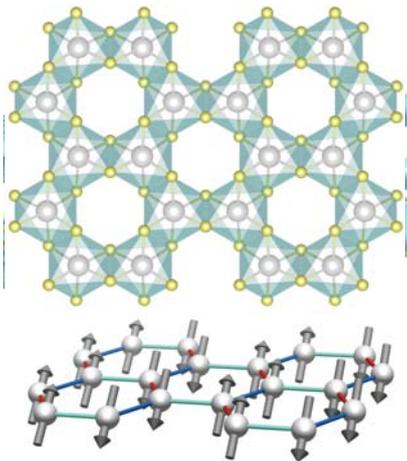


図2: NaZrO_3 および $\alpha\text{-RuCl}_3$ に共通する結晶構造。スピン自由度を担うイリジウム/ルテニウム・イオン (灰色の球) が蜂の巣状のネットワークを構成している。

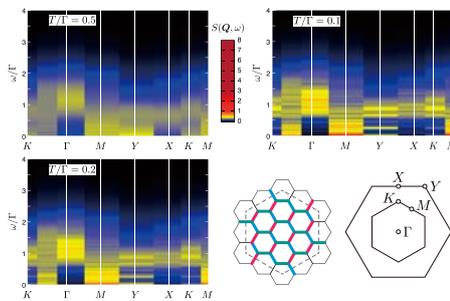


図3: マヨラナ粒子が現れることが期待されているΓ模型と呼ばれる有効ハミルトニアンに対する中性子散乱スペクトル $S(Q, \omega)$ のシミュレーション。相互作用スケール $\Gamma=1$ に対して十分高温 ($T=0.5$) では、巨視的な古典スピン配置の縮退を反映したスピン自由度の緩和とデコヒーレンスを伴う歳差運動による連続励起スペクトルが現れる。一方、絶対零度に向かって低エネルギー極限 ($\omega=0$) 付近では、零点振動による縮退の解放によってスペクトル強度が減少している。右下段ではシミュレーションに用いたΓ模型の有限サイズ・クラスターと運動量 $Q=K, \Gamma, M, Y, X$ の逆格子空間内の配置が示されている。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 分光学データを用いた有効ハミルトニアン推定

「富岳」向けのチューニングが進む HΦ、および FTKω を統合することで、強相関電子系の多彩かつ詳細な有効ハミルトニアンに対して、あらゆる温度領域において多岐にわたる観測量のシミュレーションが可能となる。HΦ+FTKωの柔軟な適用範囲と並列性能を「富岳」上で最大限に生かすことで、比熱や磁化測定などの熱力学的な測定データ、さらには、中性子散乱、共鳴 X 線散乱、光電子分光、電子スピン共鳴など分光学実験データから有効ハミルトニアンの推定が可能となるであろう。実験データと HΦ+FTKωのシミュレーション結果をベイズ最適化の枠組みによって統合し、多岐にわたる実験データを同時に記述できる有効ハミルトニアンを探し出す。これにより、個々の物質のミクロな電子状態の理解を精緻化、分数励起を示す物質の開発を強力に支援することが可能となる。

参考文献

- [1] M. Kawamura, K. Yoshimi, T. Misawa, Y. Yamaji, S. Todo, and N. Kawamura, *Compt. Phys. Commun.* 217, 180 (2017).
- [2] Y. Yamaji, T. Suzuki, and M. Kawamura, arXiv:1802.02854.
- [3] A. M. Samarakoon, G. Wachtel, Y. Yamaji, D. A. Tennant, C. D. Batista, and Y. B. Kim, *Phys. Rev. B* 98, 045121 (2018).

問い合わせ先 Contact information

山地洋平 Youhei Yamaji
yamaji@ap.t.u-tokyo.ac.jp

大久保毅 (東京大学)

共同研究者

金子隆威 (東京大学)

Hyun-Yong Lee (東京大学)

山地洋平 (東京大学)

川島直輝 (東京大学)

1 課題の目標

Development goal

Na_2IrO_3 や Li_2IrO_3 に代表されるイリジウム酸化物や、ルテニウム化合物 $\alpha\text{-RuCl}_3$ といったスピん軌道相互作用が強い物質では、相互作用の方向に依存して異なるスピん成分が相互作用する、異方的なKitaev相互作用の存在が期待されている。仮にKitaev相互作用のみが存在する場合(Kitaevモデル)、その基底状態は、磁気的な長距離秩序を持たない、スピん液体と呼ばれる状態になる[1]。一方で、実際の物質では、Kitaev相互作用以外の相互作用の影響により、基底状態は磁気的な長距離秩序を持つことが多いが、その近傍にスピん液体状態が存在すると期待されている。

解析的に基底状態が計算できるKitaevモデルとは異なり、その近傍にあるモデルの基底状態を調べるためには、量子多体系の高精度な数値計算手法が必要になる。我々は、このような物質近傍のスピん液体状態を研究するため、量子多体系の波動関数をテンソルのつながり、「テンソルネットワーク」を用いて表現し、それを変分波動関数として基底状態を計算する、テンソルネットワーク法の開発を進めている。本課題の大きな目標は、テンソルネットワーク法の高精度化・高並列化により、スピん軌道相互作用が強い物質群の基底状態の物性を明らかにすることである。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶テンソルネットワーク法による量子多体系の有限温度物性計算

重点課題7、および、萌芽的課題での活動を通して、テンソルネットワーク法を用いた二次元量子スピんモデルの基底状態が高精度に行えるようになった。「富岳」では、これまでに開発したアプリを用いて、スピん軌道相互作用が強い物質のスピん液体相、トポロジカル相の探索を続ける他、実験との比較をより意識した有限温度物性の計算にも取り組みたい。有限温度では、基底状態に比べて「温度」の軸が加わることで、単純に計算すべきパラメータが増えるだけでなく、密度行列を取り扱う必要性から、波動関数を用いる場合に比べて計算コストそのものも増大する。近年提案されている密度行列のテンソルネットワーク表現を用いて、効率的に情報を圧縮することで計算コストの低減を図り、かつ、多数のパラメータに関するバルクジョブ実行も用いることで、「富岳」を用いた有限温度物性の高精度計算を実現したい。

参考文献

[1] A. Kitaev, Ann. Phys. 321, 2 (2006) . [2] S. Morita, <https://github.com/smorita/mptensor> [3] T. Okubo, <https://github.com/TsuyoshiOkubo/pTNS> [4] H.-Y. Lee, R. Kaneko, T. Okubo, and N. Kawashima, arXiv:1901.05786.

問い合わせ先 Contact information

大久保毅 Tsuyoshi Okubo
t-okubo@phys.s.u-tokyo.ac.jp

2 アプリケーションの開発

Application development

▶テンソルネットワークによる量子多体系の基底状態計算法の開発

量子多体系の波動関数を表現するためのヒルベルト空間の次元は、粒子数に対して指数関数的に増大するため、大きな系でそれを厳密に取り扱うことは不可能である。一方で、本課題が対象とする量子スピん系などでは、その基底状態の量子的な相関、「エンタングルメント」に、面積則と呼ばれる性質が存在することが期待されており、この面積則が成立する場合には、ヒルベルト空間の次元に比べて大幅に情報を圧縮して波動関数を表現することができる。このような波動関数のエンタングルメントの特徴を、テンソルのつながり、「テンソルネットワーク」を用いて表現することで、情報を圧縮する表現方法が、テンソルネットワーク状態である。

本課題が対象とするスピん軌道相互作用の強い物質群は、磁性イオンが二次元ハニカム格子を形成しているとみなすことができる。我々は、テンソルネットワーク状態の一つである、「テンソル積状態」を変分波動関数として、

種々の二次元量子スピんモデルの基底状態を計算できるテンソルネットワーク法の開発を進めてきた。テンソルネットワーク法の強力な点は、ネットワークを適切に選ぶことで無限系の波動関数を直接計算できることであり、少数サイトの厳密対角化では捉えられなかった長いスケールの物理を議論できる点である。我々は、ポスト「京」萌芽的課題「基礎科学の挑戦」のサブ課題Dで開発された、MPI並列化されたテンソル演算ライブラリ mptensor[2] にもとづく、大規模並列化されたテンソルネットワーク法アプリ[3]を重点課題の計算用に改変した。「京」におけるベンチマークで、このアプリは数千ノードまで十分な並列性能が発揮できることを確認できている。また、スピん軌道相互作用が強い物質を含む種々の量子スピんモデルへの適用も進めており、テンソルネットワーク法を用いた量子多体系問題の高精度計算が手軽に行える状況が整備されつつある。

3 研究開発成果

Research & development results

▶テンソルネットワーク法によるKitaevスピん液体の探索

本課題では、テンソルネットワーク法を用いたKitaevスピん液体物質の探索に向けて、以下の三点の研究を行った。

第一に、Kitaevスピん液体を精度よく近似するテンソルネットワーク表現を提案した。従来のテンソルネットワーク法を用いたKitaevスピん液体の研究では、虚時間発展法によるテンソルの最適化において、初期状態依存性が非常に強く、局所的なエネルギー極小にトラップされる問題があった。我々は、Kitaevスピん液体の特徴を捉えた、適切なテンソルネットワーク状態を見出すため、Kitaevスピん液体では、フラックスと呼ばれる保存量が、全ての六角形で1となることに着目し、任意の波動関数をその状況へ射影する演算子を考察した。

その結果、射影演算子のコンパクトなテンソルネットワーク表現を発見すると共に、その演算子がKitaevスピん液体に期待される種々の対称性を保持することを示した[4]。この、Kitaevスピん液体のテンソルネットワーク表現を用いることで、現実の物質近傍に現れると期待されるスピん液体状態の高精度計算が進展すると期待される。

第二に、 Na_2IrO_3 の近傍に期待されるスピん液体状態について、上記のテンソルネットワーク表現を初期状態とした虚時間発展によるテンソルの最適化により解析した。その結果、従来、厳密対角化法を元に提案されていたものと同様に、 Na_2IrO_3 の格子定数を実際よりも大きくすることで、スピん液体状態が確かに安定化することを確認できた。この成果は、 Na_2IrO_3 近傍のスピん軌道相互作用が強

い物質の探索に対して、一つの指針を与えること期待している。

第三に、 $\alpha\text{-RuCl}_3$ で強く存在していると期待される $\text{SxSy}+\text{SySx}$ 型の非対角相互作用(ガンマ相互作用)の影響を検討した。Kitaevスピん液体のテンソルネットワーク表現を活用したスピん液体領域の高精度な計算により、Kitaev相互作用の5%未達の弱いガンマ相互作用によりスピん液体が不安定化し、他の秩序相に転移することが明らかとなった。Kitaevスピん液体が存在する領域は従来の密度行列くりこみ群や厳密対角化による見積もりよりも小さく、本研究の成果は $\alpha\text{-RuCl}_3$ の物性理解に新しい知見を与えること期待される。

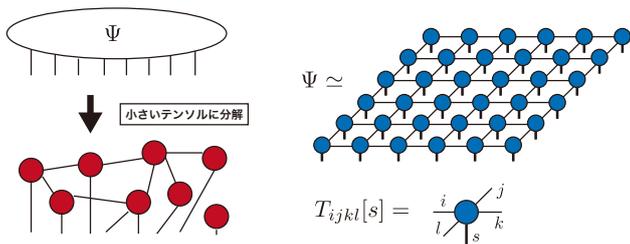


図1: 波動関数をテンソルのつながりによって表現するテンソルネットワーク状態の模式図。二次元系では、テンソル積状態を用いることで大幅な情報圧縮が可能になる。

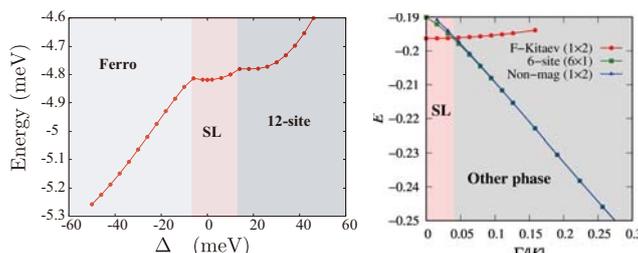


図2: Na_2IrO_3 の格子定数を拡大した場合の基底状態。横軸は三方晶歪みの大きさ、縦軸はエネルギーであり、色で相を表している。

図3: Kitaev-F-Gammaモデルの基底状態相図。横軸はガンマ相互作用の相対的な大きさ、縦軸はエネルギーであり、色で相を表している。

Rico Pohle (早稲田大学)

共同研究者
山地洋平 (東京大学)
今田正俊 (早稲田大学)

I 課題の目標
Development goal

Information technology is a fundamental issue of our rapidly evolving global environment. Novel phases of matter, like quantum spin liquids, offer a new type of dissipation-less spin carriers, so-called spinons, which can be utilized for information transport with future application in e.g. spintronics. Recent studies show that pyrochlore iridate compounds – Mott insulators with notably strong spin-orbit coupling [Fig.1] – are candidate materials to provide such a spin liquid ground state [1]. To quantify this statement, we employ state-of-the-art many-variable Variational Monte Carlo (mVMC) [2,3] simulations to investigate the quantum S=1/2 Heisenberg model with Dzyaloshinskii-Moriya (DM) interactions on the pyrochlore lattice [Fig.2]. Our goal is to show clear evidence of a spin liquid ground state in this model, and to predict a corresponding, well-determined range of model parameters in order to specifically search for future device materials.

3 研究開発成果
Research & development results

► The ground state phase diagram for the S=1/2 Heisenberg model on the 2-dimensional checkerboard and 3D pyrochlore lattice

We use the highly parallelized many-variable variational Monte Carlo (mVMC) [2, 3] quantum solver package to benchmark our results on the 2-dimensional checkerboard lattice. In Fig.3 we present the normalized system energy as a function of Dzyaloshinskii-Moriya (DM) interactions and confirm 3 ordered phases, All-in/All-out phase, plaquette Valence Bond Crystal (pVBC) and Non-collinear phase, as found in the literature [5, 6].

By stacking the checkerboard lattice along the third dimension we allow for a transition from the 2-dimensional checkerboard to the 3-dimensional pyrochlore physics. For the bilayer pyrochlore case we could re-obtain for large values of |DM| the two magnetically-ordered states (All-in/All-out and Non-collinear) [Fig.4], as found on the checkerboard lattice [Fig.3]. Those two states are adiabatically connected along the whole phase diagram (red and green data points in Fig.4).

However, for small DM we find a lower energy state by optimizing from a random trial wave function (blue data points in Fig.4). This state shows a diffuse scattering pattern in the dipole-dipole correlation function S(q), indicating the absence of magnetic order. On the other hand, the singlet-singlet correlation function O(q) shows intensity singularities which indicate dimer ordering, as proposed in the past [7,8]. But, if those features will remain in the thermodynamic limit is still an open question.

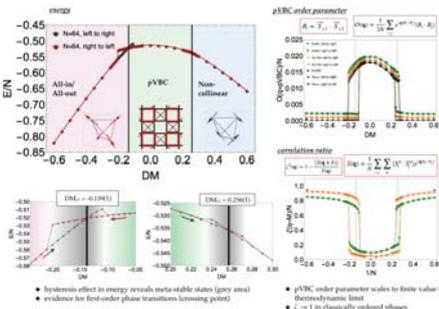


Figure 3: phase diagram for the checkerboard lattice model

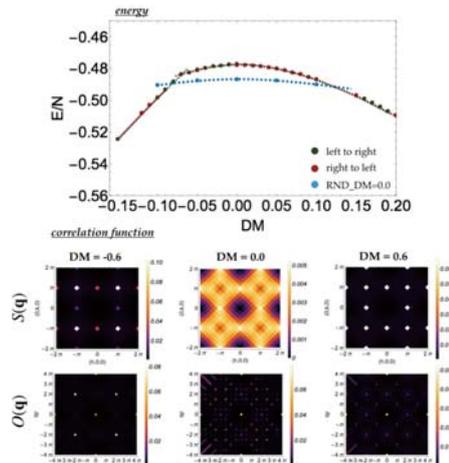


Figure 4: phase diagram for the bilayer pyrochlore lattice model

2 アプリケーションの開発
Application development

► Large-scale many-variable Variational Monte Carlo simulations

We make use of the many-variable Variational Monte Carlo (mVMC) [2,3] quantum solver package, particularly optimized for the K-computer. In order to distinguish a spin liquid ground state from a conventionally ordered ground state, we extended the source code to obtain higher-order correlation functions, namely 4-body Green's functions. With those 4-body Green's functions we are able to calculate the spin-singlet order parameter on the lattice bonds, as shown for O(q) in Fig.3 on the checkerboard lattice, and in Fig.4 for the pyrochlore lattice.

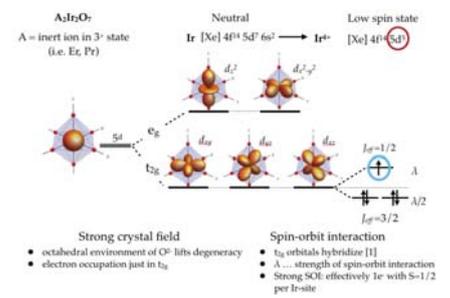


Figure 1: spin-orbit coupling in pyrochlore iridates

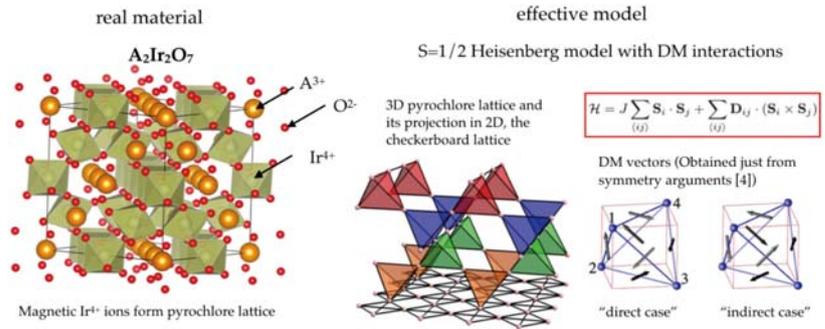


Figure 2: minimal model to study pyrochlore iridates

4 スパコン「富岳」で取り組む課題
Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

► Optimization and further development of many-variable Variational Monte Carlo simulations

We plan to push our calculations to larger system sizes (N>1000 sites), in order to perform proper finite size analysis. We plan to extend our analysis to the full 3 dimensional pyrochlore lattice case, which is currently on the K-computer only possible to a limited level. We need more available memory per node to store 4-body Green's functions for such large system sizes. We also plan to optimize sub-routines in mVMC like the conjugate gradient (CG) method, to retain its efficiency even for the super computer Fugaku.

参考文献

[1] D. Pesin and L. Balents Nature Physics 6, 376-381 (2010) [2] Tahara et al. J.Phys. Soc. Jpn. 77, 114701 (2008) [3] Misawa et al. Comp. Phys. Commun. 235 (2019) 447-462 [4] Elhajal et al. PRB 71, 094420 (2005) [5] Morita and Shibata, PRB 94, 140404(R) (2016) [6] Capponi, PRB 95, 014420 (2017) [7] Tsunetsugu, JPSJ 70, 640 (2001) [8] Moessner et al., PRB 73, 094430 (2006)

問い合わせ先 Contact information

Rico Pohle
rico.pohle@aoni.waseda.jp

ベイズ最適化を利用した高効率な結晶構造探索

Efficient crystal-structure prediction using the Bayesian optimization

佐藤 暢哉 (産業技術総合研究所)

共同研究者

山下 智樹 (物質・材料研究機構、大阪大学産業科学研究所)

小口 多美夫 (物質・材料研究機構、大阪大学産業科学研究所)

福島 孝治 (物質・材料研究機構、東京大学先端科学研究所)

三宅 隆 (産業技術総合研究所、物質・材料研究機構)

1 課題の目標

Development goal

磁性材料の新たな結晶構造の探索

ネオジム磁石は現在最も強力な磁石であるが、これを超える磁気特性を持った材料の開発が産業的に求められている。ネオジム磁石の主相 Nd₂Fe₁₄B は、磁石に用いられる希土類遷移金属化合物に第3の元素を加えることで発明され、その結晶構造はこれまで未知のものであった。そのため、新たな結晶構造の発見が新規磁性材料の発見に繋がると期待できる。

結晶構造探索手法の構築

磁性材料に限定したとしても、その化学組成・原子数・原子配置の組み合わせは無数にあり、結晶構造を網羅的に探索することは不可能である。そのため、結晶構造を効率的に探索する手法が必要である。機械学習の利用することで高効率な探索手法の開発を目指す。

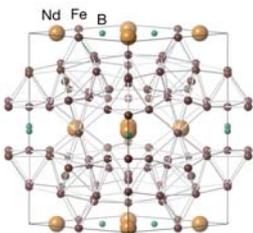


図1: Nd₂Fe₁₄Bの結晶構造。

2 アプリケーションの開発

Application development

結晶構造探索コードCrySPYの機能拡張

結晶構造探索では、様々な初期構造から構造緩和を行い、安定構造のエネルギーを比較する必要がある。構造緩和には多くの計算資源を要する上、化学組成を固定したとしても原子配置は無数に存在するため、有望な初期原子配置を選択的に探索することが必要である。CrySPY[1]はこの構造選択にベイズ最適化などを用いて[2]効率良く結晶構造探索を行うことを目標にしたコードである。ベイズ最適化には common Bayesian

optimization library (COMBO) [3] を利用し、構造緩和は外部コードを呼び出して実行する。この利用可能な外部コードに、第一原理計算コード Quantum ESPRESSO および古典分子動力学コード LAMMPS・soiap を追加した。オープンソースのコードの利用や古典分子動力学法による構造緩和が可能になったことで利便性が増し、利用の拡大が期待される。

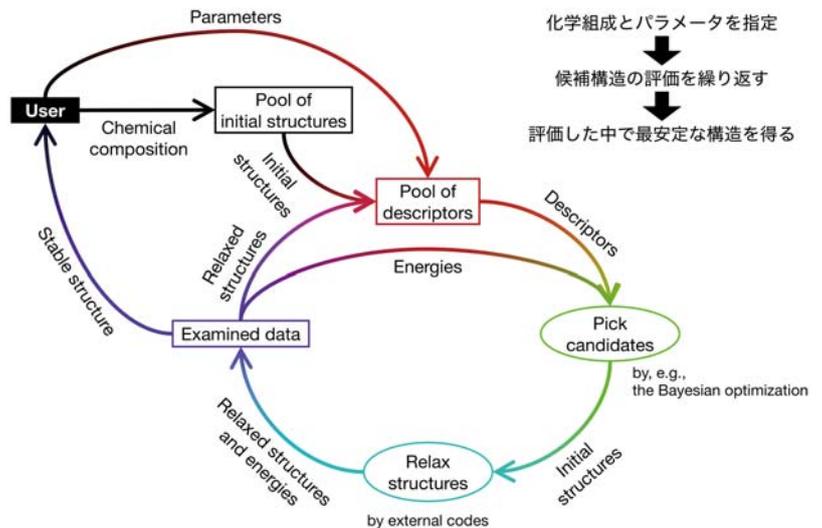


図2: CrySPYによる結晶構造探索のプロフローチャート。

3 研究開発成果

Research & development results

結晶構造探索の効率を高めるパラメータ値の選択指針を提案

- ベイズ最適化を用いた結晶構造探索では、結晶構造は記述子というベクトルデータで表される。既に探索した緩和後の構造とエネルギーを学習データとして次の候補を選択する(図3)。
- 記述子には事前に決定すべきパラメータが存在するため、パラメータの値によって結晶構造探索の効率も異なることが予想される。実際、Si₁₆結晶を例にとると、探索効率はパラメータの値に強く依存し、場合によってはランダムサーチよりも効率が悪いことが明らかになった(図4)。
- 結晶構造の類似度に基づく情報量を導入し、その最大点から探索効率が高いパラメータ値を選択できることを見出した(図5)。

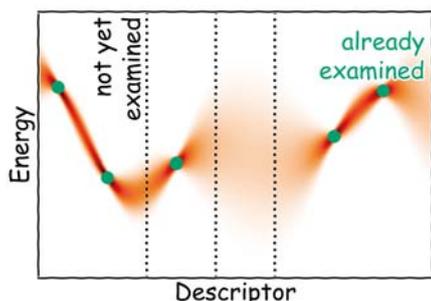


図3: ベイズ最適化の概念図。

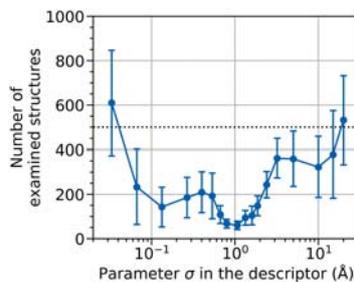


図4: 記述子のパラメータσに対する、最安定構造を発見するまでに評価した構造数。値が小さいほど効率良く探索が行えたことを示す。エラーバーは100回の独立した探索の標準偏差。探索は1000個のSi₁₆結晶に対して行った。点線はランダムサーチの平均。

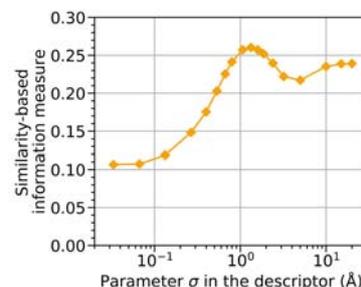


図5: 記述子のパラメータσに対する、結晶構造の類似度に基づく情報量。最大となるσが最も効率良く探索が行えるσ(図2の最小点)と一致している。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

手法の適用可能範囲の拡張により高効率で広範な材料探索へ

- 磁石に使われる化合物は主に希土類-遷移金属化合物であり、その化学組成は様々である。しかし現状の手法には、結晶構造探索を固定した化学組成において行うという制限が存在する。この制限を取り払うことができれば、安定構造をより効率良く探索できることが期待できる。
- ネオジム磁石の主相であるNd₂Fe₁₄Bは単位胞あたりに68原子を含む比較的巨大な結晶構造を持つ。新規磁性材料の探索には、これと同程度もしくはこれ以上に原子数が多い結晶構造の探索が可能で求められる。しかし、このように原子数が多い結晶構造の探索は、原子配置の組合せ爆発のために一般に困難である。磁性材料の新たな結晶構造の発見には、このような多原子の結晶構造の探索を行える手法の開発が必要である。

参考文献

- [1] <https://github.com/Tomoki-YAMASHITA/CrySPY> [2] T. Yamashita, N. Sato, H. Kino, T. Miyake, K. Tsuda, and T. Oguchi, Phys. Rev. Materials 2, 013803 (2018). [3] T. Ueno, T. D. Rhone, Z. Hou, T. Mizoguchi, and K. Tsuda, Mater. Discovery 4, 18 (2016).

問い合わせ先 Contact information

佐藤 暢哉 Nobuya Sato
n.satou@aist.go.jp

合田義弘 (東京工業大学 物質理工学院)

共同研究者

寺澤麻子 (東京工業大学 物質理工学院)

立津慶幸 (東京工業大学 物質理工学院、現所属：名桜大学)

高成柱 (東京工業大学 物質理工学院)

田中友規 (東京工業大学 物質理工学院)

塩沢知春 (東京工業大学 物質理工学院)

尾崎泰助 (東京大学 物性研究所)

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ 第一原理計算ソフトOpenMXの高度化と磁性解析機能の開発

・希土類磁石材料組織の局所磁性を第一原理計算により評価する技術を開発した。サブ課題 G と協力して OpenMX コードを高度化し、4000 原子規模のネオジム磁石の主相・副相界面の原子配置を決定した。また、8500 原子規模の界面系に対してコードの動作を確認した(図 1)。

・微視的なスケールで支配的な磁氣的相互作用である交換結合の第一原理計算機能の改良とグラフ理論の適用により、アモルファス磁性を理論解析する技術基盤(図 2)を整備した[1]。



図 1: 全 8463 原子からなる、Nd₂Fe₁₄B / アモルファス Nd-Fe 相の原子構造。方位は主相の結晶方位をあらわす。

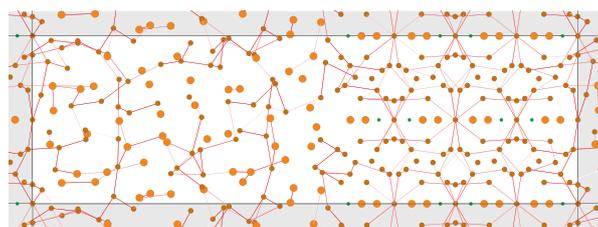


図 2: ネオジム磁石材料組織界面近傍で定量化された交換結合定数の可視化。

1 課題の目標

Development goal

風力発電機のタービンや電動車の駆動モータに用いる高性能磁石には、高温領域における高い保磁力が求められる。保磁力は材料組織によって支配されるが、その微視的発現機構は未だ解明されていない。元素戦略 PJ 等の最新の実験情報と大規模第一原理計算を組み合わせることにより、実用磁石材料の粒界近傍の磁化反転機構の解明が進展すると期待できる。本課題では、1 万原子程度を含む磁石材料組織の第一原理計算を可能にする技術基盤を整備し、磁石材料組織界面近傍の局所磁性や組織構成相の構造・安定性を明らかにすることにより、磁石材料組織の基礎的理解を深化させることを目標とする。

3 研究開発成果

Research & development results

▶ 永久磁石材料組織の構成相と異相界面の局所構造と磁気状態を解明

・異種元素を添加したネオジム磁石において材料組織中での安定位置と添加元素の局所磁気特性への影響を精査した。添加により保磁力が向上することが知られている Cu は、主相内部には入り込まず、主相・副相界面近傍に安定に存在する事を明らかにした[2]。また、界面における Cu は隣接 Nd 原子の磁気異方性を垂直方向に改善し、その起源は、Fe 原子を Cu が置換する事により遷移金属の 3d 電子と Nd の 5d 電子との相互作用が弱くなることであると定めた[3]。そのため、5d 電子の分布が相対的に Nd 原子を中心として面直方向に分布するため、それを避ける様に大きな軌道角運動量を持った 4f 電子が(001)面内に分布し、面直異方性を増強する(図 3)。

・大型実験施設 SPring-8 と連携し[4,5]、ネオジム磁石材料の昇温時における dhcp Nd 相の特異な体積膨張の原因を酸素固溶効果と定めた[4]。また、実験で観察される fcc NdO_x 相は酸素固溶により dhcp 相よりも安定化していることを明らかにし、商用磁石と薄膜成長磁石との fcc NdO_x 相の格子定数の差異は酸素固溶量に応じて酸素位置が変化しているためであることを突き止めた(図 4)。

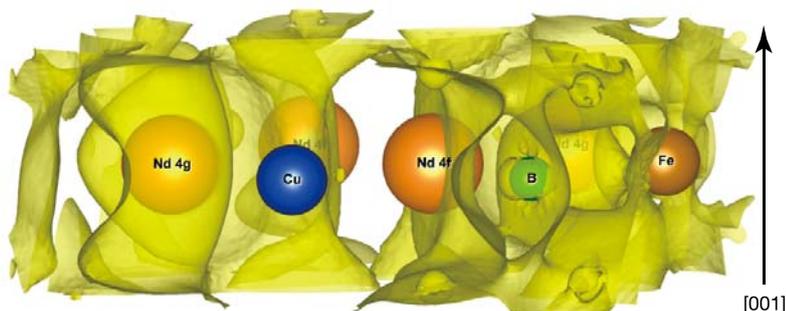


図 3: Nd₂Fe₁₄B 相において、4c サイト(Nd-Fe-B(001)面内の Fe サイト)の Fe 原子 1 個を Cu で置換した場合と置換しない場合に対し、4f 電子以外の電子密度分布の差を取り、Cu 置換により電子密度の増大した領域を、Nd-Fe-B(001)面近傍の領域に対して示したものの[3]。

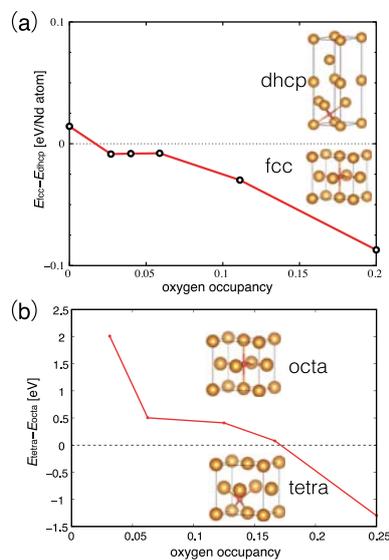


図 4: (a) Nd 金属相における安定相の酸素濃度依存性。(b) fcc NdO_x 相における酸素位置の酸素濃度依存性。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 磁性材料における複雑界面構造の磁性と組織制御

・本課題において磁性材料界面の大規模第一原理計算を行うための技術基盤を整備した。スーパーコンピュータ「富岳」では、ネオジム磁石主相(001)面以外において現れる非平坦な界面構造などにおいて、突起部における交換磁場や磁気異方性の振る舞いを精査する事により、材料組織の理解とその設計指針の整備を促進する。スピン格子模型と大規模第一原理計算を組み合わせ、現実的な磁性材料の磁化反転挙動を理論解析する。

・磁石材料組織の制御などの磁性材料のデザインにおいては、熱力学的性質の理解は欠かせない。従来の計算機では大規模・系統的な評価の難しかったマグノン・非調和格子振動・およびそれらの相互作用などの有限温度特性の第一原理的評価により、相平衡まで含めた磁性材料の理論設計を目指す。その際、Bayes 最適化などの機械学習の手法も併用する。

脚注

大規模第一原理計算の一部は、HPCI「京」(課題番号hp170269, hp180206, hp190169)、東京大学物性研究所スパコン、および東京工業大学TSUBAMEにおいて実行されたものである。

参考文献

- [1] A. Terasawa and Y. Gohda, J. Chem. Phys. 149, 154502 (2018). [2] Y. Tatetsu, S. Tsuneyuki, and Y. Gohda, Phys. Rev. Appl. 6, 064029 (2016). [3] Y. Gohda, Y. Tatetsu, and S. Tsuneyuki, Mater. Trans. 59, 332 (2018). [4] N. Tsuji, H. Okazaki, W. Ueno, Y. Kotani, D. Billington, A. Yasui, S. Kawaguchi, K. Sugimoto, K. Toyoki, T. Fukagawa, T. Nishiuchi, Y. Gohda, S. Hirose, K. Hono, and T. Nakamura, Acta Mater. 154, 25 (2018). [5] T. Nakamura, A. Yasui, Y. Kotani, T. Fukagawa, T. Nishiuchi, H. Iwai, T. Akiya, T. Ohkubo, Y. Gohda, K. Hono, and S. Hirose, Appl. Phys. Lett. 105, 202404 (2014).

問い合わせ先 Contact information

合田義弘 Yoshihiro GOHDA
gohda.y.ab@m.titech.ac.jp

大規模第一原理計算による鉄中の粒界特性の解明と機械学習との連携

Large-scale first-principles calculations of grain boundary properties in bcc Fe and the combination with machine-learning techniques

徐卓 (産業技術総合研究所)

共同研究者

香山正憲 (産業技術総合研究所)

澤田英明 (日本製鉄)

譯田真人 (物質・材料機構)

尾方成信 (大阪大学)

田村友幸 (名古屋工業大学)

田中真悟 (産業技術総合研究所)

石橋章司 (産業技術総合研究所)

伊藤一真 (日本製鉄)

2 アプリケーションの開発
Application development

▶ QMASによる第一原理局所エネルギー・局所応力法の開発と適用

平面波基底 PAW 法ソフト QMAS において、局所エネルギー・局所応力を計算する技術の開発、さらに機械学習と連結した粒界など乱れた原子配列のエネルギー予測技術の開発を進めている。通常の第一原理計算ではスーパーセル全体のエネルギーや応力しか求まらない。QMAS によりエネルギー密度・応力密度の第一原理計算を行い、各密度に含まれる gauge 依存項が積分して消えるような局所領域

を選んで各密度を積分することで、セル内の局所領域のエネルギー、応力が求まる [1-3]。粒界や転位・欠陥・表面等の性質、溶質原子との相互作用を掘り下げて解明できる。また、粒界・欠陥の乱れた原子配列での原子の局所エネルギーと原子の局所環境の情報との相関を機械学習で処理することで、未知の粒界や乱れた構造のエネルギーを各原子の局所環境から予測できる可能性がある。

1 課題の目標
Development goal

飛躍的に優れた金属系構造材料の開発は、安全・安心の社会インフラやエネルギーの高効率利用など持続可能社会の構築に貢献する。金属系構造材料では、ミクロの原子間結合の性質に加え、粒界や析出相、合金元素や転位網等からなる微細組織を形成させ、転位や欠陥の動きを制御することで、優れた強度や機械的性質を実現する。従って、原子・

電子からメゾ・マクロのマルチスケールでの現象の解明と設計が必要となる。大規模計算機の活用で、微細組織の構成要素やそこでの合金(溶質)元素の挙動など、大規模構造の第一原理計算を実現し、原子・電子の挙動を通じた解明を深めるとともに、高精度データを粗視化手法でメゾ・マクロのスケールの計算に連結することで、高精度マルチスケール計算

を実現する。本課題では、典型例として、鉄の粒界と溶質元素の相互作用(偏析エネルギー)を電子挙動に基づき解明する。また第一原理計算をメゾ・マクロに連結する技術として、第一原理局所エネルギー計算と機械学習の連結で、粒界のような乱れた原子配列の構造のエネルギーを予測する技術の開発を行う。

3 研究開発成果
Research & development results

▶ 鉄中の結晶粒界での3d遷移金属溶質原子の偏析機構の解明

溶質元素の粒界偏析エネルギーに局所エネルギー分解 [4] が有効である。偏析エネルギーは、溶質と入れ替わる粒界の母相原子のエネルギー変化(T1)、偏析した溶質原子自身のエネルギー変化(T2)、溶質が存在することによる粒界の周囲の母相原子のエネルギー変化(T3)、バルク中に存在した溶質原子が粒界に移動することによるバルク中の周囲の母相原子のエネルギー変化(T4)の四項の和で表され、偏析エネルギーの起源が分析できる。鉄の典型的な対応粒界(図1)の二種のサイト(looser site, tighter site; 原子体積が大と小)への一連の3d遷移金属溶質の偏析を扱った。QMASによる局所エネルギー分解(図2)と局所状態密度による電子構造分析から以下の機構が判明 [5]。Early TM (Sc, Ti, V) は looser site に偏析、粒界の周囲の Fe 原子を d-d 混成で安定化させることで偏析する(T3項)。Late TM (Co, Ni, Cu) は、バルク Fe 結晶中で溶質周囲の Fe との d-d 混成が安定でなく、周囲の Fe 原子を不安定化させ(T4項)、溶質原子自体は tighter site で安定化すること(T2項)で偏析する。3d 周期の中央の Mn は偏析エネルギーが特異的に大きい。Fe 結晶中で Mn d 電子が周囲の Fe d 電子と混成するより高スピン状態で原子周囲に局在化した方が安定になり(Hund 則)、周囲の Fe を不安定化する(T4項)が、粒界では周囲の Fe d 電子と普通に混成するので偏析エネルギーが

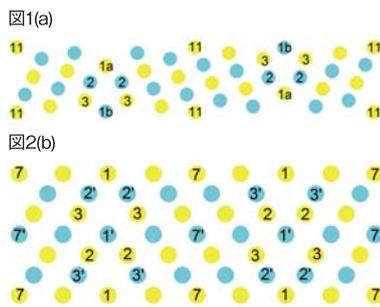


図1: 鉄の粒界の原子配列モデル(スーパーセル)。(a)Σ11(332)粒界、(b)Σ3(111)粒界。[110]方向からの投影図。丸は各原子、色は[110]方向の高さの違い。番号は界面からの原子層の順。1a、1b、1、1'が界面原子層を構成。界面は周期構造を持ち、スーパーセル内に一周期分が含まれ、反転対称な二界面がスーパーセル内に存在。偏析サイトは(a)では1aと1b、(b)では1と2。1aと1が原子体積の大きなlooser site、1bと2が原子体積の小さいtighter site。

大きくなる。3d遷移金属の粒界偏析エネルギーは転位芯と3d遷移金属溶質の相互作用 [6] と合致し、その相互作用も同様の機構と考えられる。

▶ 局所エネルギー法と機械学習の連結による粒界エネルギー予測技術

第一原理計算をメゾ・マクロに繋ぐ手法として、QMASを用いて、粒界のように乱れた原子配列の系の各原子の局所エネルギーを求め、各原子の局所構造・環境の情報との相関を機械学習(線形回帰法等)で処理することで、粒界や乱れた原子配列の系のエネルギー予測技術に繋げることが期待される。規則的な対応粒界について取り組みが進んでいる [7]。乱れの大きな一般粒界や様々な欠陥、アモルファスを含めた展開が期待される。

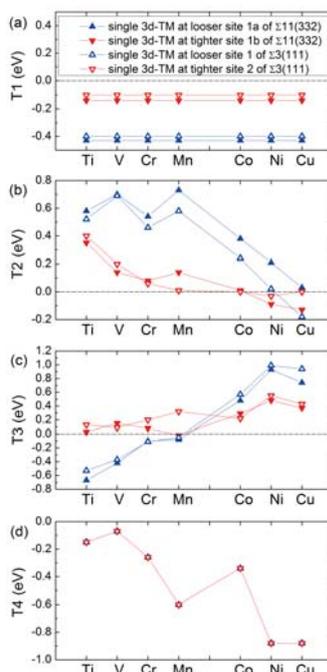


図2: 鉄粒界での一連の3d遷移金属原子の偏析エネルギーの局所エネルギー分解。偏析エネルギー利得(負の値)を四項の和に分解。(a)T1項、(b)T2項、(c)T3項、(d)T4項の一連の溶質元素にわたる変化を二種類の粒界の各々の二種のサイトごとに示す。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題
Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 金属系構造材料のマルチスケール計算を支える第一原理計算技術

金属系構造材料の微細組織の解明と設計のためのマルチスケール計算技術として、大規模分子動力学(MD)法と大規模フェーズフィールド(PF)法の連結をメインにした開発をサブ課題Eで進めている。マルチスケール計算をより高精度化し、扱えない問題(合金成分・溶質の挙動、合金系のエンタロピーを含む自由エネルギー計算)を扱えるようにするために第一原理計算技術との連携が不可欠。当該グループの第一原理計算技術を用いて、①合金成分や溶質の挙動を解明し、機械学習等を通じてメゾ・マクロに繋げる、②複雑な粒界や欠陥構造のエネルギーを局所エネルギー法と機械学習との連結により、大規模MD法、大規模PF法に繋げる、③異相界面や異種物質界面での原子間ポテンシャルや相互作用モデルの構築を第一原理計算と機械学習との連結等を通じて進める、などの課題が重要。

脚注

QMAS: Quantum Materials Simulator。産業技術総合研究所で開発されている平面波基底PAW法のコード。主たる開発者は石橋章司。

参考文献

- [1] S. Ishibashi, T. Tamura, S. Tanaka, M. Kohyama and K. Terakura, Phys. Rev. B 76, 153310 (2007) [2] Y. Shiihara, M. Kohyama and S. Ishibashi, Phys. Rev. B 81, 075441 (2010) [3] H. Wang, M. Kohyama, S. Tanaka and S. Shiihara, J. Phys. Condens. Matter 25, 305006 (2013) [4] S. Kr. Bhattacharya, M. Kohyama, S. Tanaka and Y. Shiihara, J. Phys. Condens. Matter 26, 355005 (2014) [5] Z. Xu, S. Tanaka and M. Kohyama, J. Phys. Condens. Matter 31, 115001 (2019) [6] M. Wakeda, T. Tsuru, M. Kohyama, T. Ozaki, H. Sawada, M. Itakura and S. Ogata, Acta Mater. 131, 445 (2017) [7] T. Tamura, M. Karasuyama, R. Kobayashi, R. Arakawa, Y. Shiihara and I. Takeuchi, Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. 25, 075003 (2017)

問い合わせ先 Contact information

徐卓 Zhuo Xu
xu.zhuo@aist.go.jp

香山正憲 Masanori Kohyama
m-kohyama@aist.go.jp

第一原理(FP)フェーズフィールド(PF)法の開発

Development of First-Principles (FP) Phase Field (PF) Method

PHAM Thi Nu (横浜国立大学)

共同研究者

大野かおる (横浜国立大学)

佐原亮二 (物質・材料研究機構)

1 課題の目標

Development goal

- Develop the "First-Principles (FP) Phase-Field (PF) Method" as a new technology for predictable multi-scale simulation without using any experimental parameter. The "first principle (FP) calculation", "potential renormalization theory" and "cluster expansion theory" are used in combination to calculate the free energy function, then map it to the PF model.
- Apply the new method to simulate and predict the microstructure of alloys.

3 研究開発成果

Research & development results

▶ FPPF Simulations of Ni-Al and Ti64 Alloys

(1) FPPF Simulation of Ni-Al Alloy. The present method was successfully applied to reproduce evolution of microstructure of Ni-Al alloy at 1027°C as shown in Fig.3. Microstructures corresponding to the experimental phase diagram were successfully obtained without using any thermodynamic parameter. Fig.4 compares the calculation for Ni 82% and the experiment [1], and it can be seen that the correspondence of patterns is very good. Fig.5 is the spatial distribution of ϕ , free energy F , stress $|\nabla F|$ at 60% Ni, and it can be seen that local stress is concentrated at the γ/γ' interface. Thus, this research method excels at the point that local stress distribution can be calculated non-empirically. The research results will be published in Nature Communications [2].

(2) FPPF Simulation of Ti64 Alloy. This method is applied to a practical Ti alloy Ti₆₄ (90 wt%Ti-6 wt%Al-4wt%V) alloy at 977 °C, and succeeded in getting the microstructure (Fig.6) which is very similar to the experiment (Fig.7) [3], without using any thermodynamic parameters.

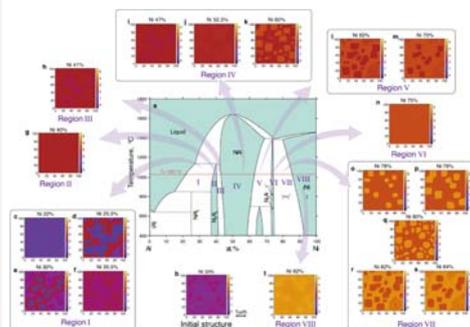


Figure 3: Microstructure of Ni-Al alloy at 1027 °C at various composition by FPPF method.

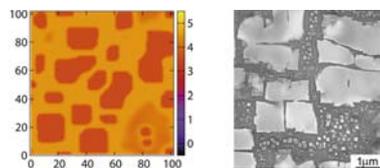


Figure 4: Compare the simulation results with available experimental microstructure [1] for Ni82%.

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ FPPF Simulation Code and Automatic Submission FP-Calculation Protocol

(1) Development of a FPPF Simulation Code. Using the stepwise free energy function (Fig.1), we succeeded in developing a code that adopted "Modified Chan-Hilliard equation", which evaluates the chemical potential as its concentration difference. The code can be paralleled easily, and as an application to the Exacomputer, 100% parallel execution under different composition ratio conditions of multi-component alloys is efficient, which makes it possible to obtain all the results at once in a short time.

(2) Development of an Automatic Submission FP-Calculation Protocol. Using Pipeline Pilot made by Dassault Systèmes, Inc., and CASTEP for FP calculations, we developed a protocol that automatically submits a huge number of FP calculations to find the step function of the free energy F in the cases of FCC, BCC, and HCP, which are required as inputs for the FPPF simulation.

In the FPPF method, local energy is calculated by cluster expansion method including atomic vacancies and intersti-

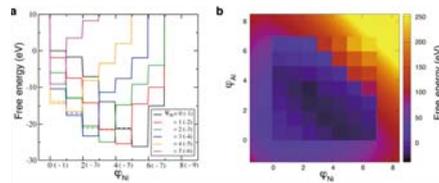


Figure 1: Stepwise free energy function

tial atoms in each minute cell by finely dividing the space (Fig.2). Based on potential renormalization theory, the partition functions of discrete space Z is set equal to that of continuous space.

$$Z = \int \frac{U(r_1, r_2, \dots, r_N)}{k_B T} dr_1 dr_2 \dots dr_N = \sum_{S_1, S_2, \dots, S_N} \exp \left[-\frac{F(S_1, S_2, \dots, S_N)}{k_B T} \right]$$

Here $U(r_1, r_2, \dots, r_N)$ is the original potential in the continuous space, then one can calculate the local free energy $F(S_1, S_2, \dots, S_N)$. From the continuity equation $\partial \phi_X / \partial t = -\nabla \cdot J_X$ and the flux: $J_X = -M_X \nabla \mu_X$, the generalized Cahn-Hilliard equation is derived as $\frac{\partial \phi_X}{\partial t} = M_X \nabla^2 \mu_X$

Where ϕ_X is the concentration of element X , M_X is the mobility and μ_X is the chemical potential.

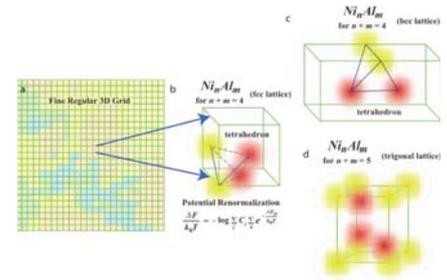


Figure 2: Pictorial representation of cluster expansion and potential renormalization theory (Ni-Al alloy).

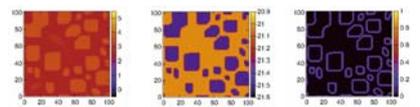


Figure 5: ϕ Ni, Free energy F and magnitude of free energy gradient for Ni60%.

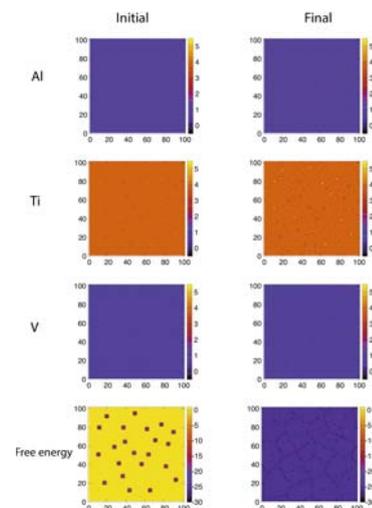


Figure 6: The simulation microstructure of Ti64 alloy at 977°C and the free energy distribution.

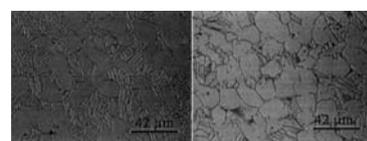


Figure 7: The experimental microstructure of Ti64 alloy[3].

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ FPPF Prediction for Steels and High Entropy Alloys

Although the FPPF method can be applied to multi-element alloys without any problems, there will be a huge number of the required first-principle calculations, and it becomes difficult to perform FPPF simulations for all composition ratios. Therefore, it will be necessary to use the "Fugaku" supercomputer. Using "Fugaku", we carry out first principles phase-field simulations of steel materials, six-element transition metal alloys, transition metals, and multi-element alloys with Al and Mg, calculate the composition ratio dependency of and clarify each feature. This makes it possible to elucidate the essence of steels, high-entropy alloys, and other alloys that have been discussed only by empirical rules, and to realize the necessary properties such as strength, toughness, ductility, plasticity, and lightness to the maximum. It will help to predict and design alloys quickly.

参考文献

- [1] D. Li, et al., Intermetallic 16, 1317 (2008). [2] S. Bhat-tacharyya, R. Sahara, and K. Ohno, Nature Comm. to appear. [3] R. Pederson, et al., Mater. Sci. Tech. 19, 1533 (2003).

問い合わせ先 Contact information

ファム、ティヌー PHAM, Thi Nu
pham-nu-xg@ynu.ac.jp

Chunwen Guo (Kyoto Institute of Technology)

共同研究者

Tomohiro Takaki (Kyoto Institute of Technology)

Munekazu Ohno (Hokkaido University)

Yasushi Shibuta (The University of Tokyo)

Tetsuo Mohri (Tohoku University)

1 課題の目標

Development goal

This project mainly focuses on clarifying the mechanism of the competitive growth of columnar grains during directional solidification. To realize this goal, the development, test and optimization of phase-field program for both two-dimensional (2D) and three-dimensional (3D) simulations should be firstly completed. Based on the well-developed phase-field program, we can investigate the process of microstructure evolution during competitive grain growth in both 2D and 3D conditions and relate the overgrowth outcome with the mechanism of competitive grain growth.

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ Development of scaling-well phase-field program

The phase-field model is a powerful tool for studying the microstructure evolution in directional solidification. Some previous studies based on the phase-field model clearly illustrated the mechanism of competitive grain growth under some special configurations. The scaling-well phase-field program which can be performed efficiently in supercomputer has been written to simulate the competitive grain growth during directional solidification. Fig. 1 shows the strong and weak scaling test results of the MPI phase-field program. The strong scaling tests were executed in a computation domain with 512×512 grid points. The weak scaling tests were executed in a computation domain with $16 \times 16 \times 16$ grid points in a single CPU (Central Processing Unit) core. It can be seen that in both strong and weak scaling tests the performance increased linearly with the increase in the number of MPI processes, which proves that the present phase-field program is well scaling. Further, we have

proved that the present program can be optimized by using OpenMP (Open Multi-Processing) and also have got excellent acceleration results.

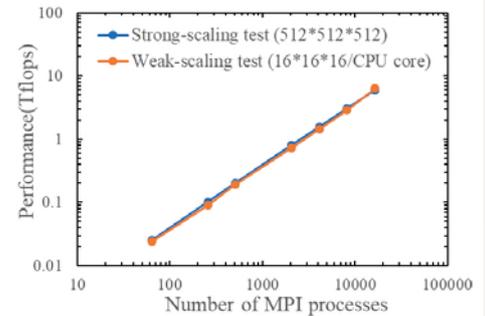


Figure 1: Strong and weak scaling tests of the MPI phase-field program

3 研究開発成果

Research & development results

▶ Dendritic growth: from the single crystal growth to bi-crystal competitive growth

Based on the scaling-well phase-field program, the simplest cases, i.e., single crystal growth in 2D, were firstly simulated to clarify the reliability of the present program. Simulation results of single crystal growths with different inclination angles ($\theta = 0^\circ, 15^\circ$ and 30°) are shown in Fig. 2.

Previous studies of competitive grain growth mainly focused on the uniplanar configurations, which means primary arms of bi-crystals are in the same plane or

parallel planes. Compared to the uniplanar growth, the non-uniplanar configuration is a more common bi-crystal configuration encountered in real solidification process, so it is needed to extend the study of competitive grain growth to the non-uniplanar growth in 3D. The converging competitive growth of bi-crystals with the non-uniplanar configuration in the thin sample was investigated and the microstructure evolution process is shown in Fig.3. With the dendrite growth, the unfavorably oriented (UO) dendrites grew towards the favorably oriented (FO) dendrites, the FO dendrites UO1 and UO2 were overgrown by the FO dendrite FO3. However, with the further growth of bi-crystals, when the calculation time was 2420000 step, the FO dendrite FO1 was overgrown by the UO dendrite UO3, which is called unusual overgrowth. This phenomenon was also observed in previous ideal converging growth of bi-crystals during directional solidification [1-3].

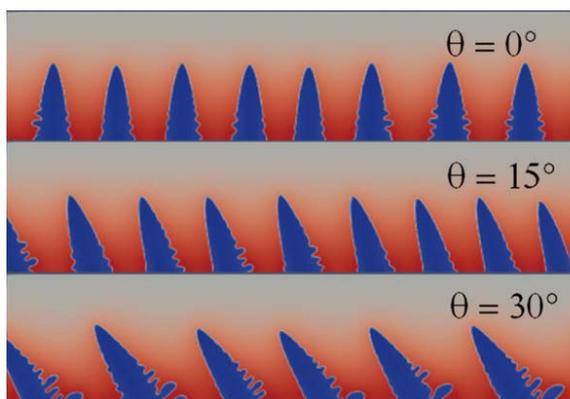


Figure 2: Simulation results of single crystal growth under different inclination angles θ during directional solidification in 2D.

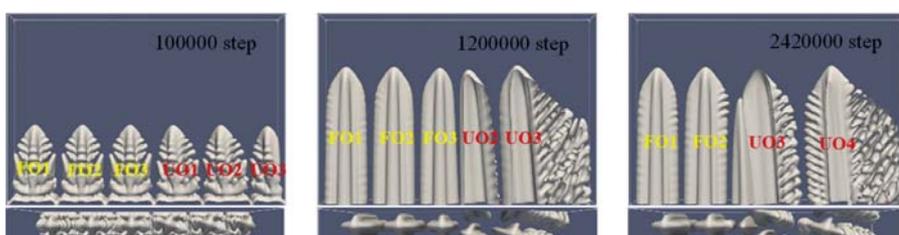


Figure 3: Process of bi-crystal converging growth under the non-uniplanar condition during directional solidification in thin sample.

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ The competitive grain growth in real production processes

Present studies about the competitive grain growth during directional solidification mainly focus on the theory study such as the mechanism of grain growth. Actually, in many real production processes the competitive grain growth also exists such as the additive manufacturing, which is also called 3D printing. Additive manufacturing is a very hot topic in material processing fields, the competitive growth of multiple grains in the laser molten pool is a key factor influencing the final microstructure and mechanical properties of products in this process. In the next step of research, we plan to use phase-field method to investigate the microstructure evolution of multiple grains in the laser molten pool of additive manufacturing.

参考文献

- [1] Li J J, Wang Z J, Wang Y Q, Wang J C. Phase-field study of competitive dendritic growth of converging grains during directional solidification. *Acta Mater.* 2012, 60: 1478-1493.
 [2] Takaki T, Ohno M, Shimokawabe T and Aoki T. Two-dimensional phase-field simulations of dendrite competitive growth during the directional solidification of a binary alloy bicrystal. *Acta Mater.* 2014, 81:272-283. [3] Tourret D and Karma A. Growth competition of columnar dendritic grains: A phase-field study. *Acta Mater.* 2015, 82:64-83.

問い合わせ先 Contact information

Chunwen Guo
guocw@kit.ac.jp

山田一雄 (阪大院基礎工)

共同研究者

松林伸幸 (阪大院基礎工)

2 アプリケーションの開発
Application development

▶ 汎用自由エネルギー計算ソフトERmodの機能拡張

従来の全原子分子動力学計算では、高分子全体の自由度の大きさ・緩和時間の長さなどの問題からサンプリング時間が膨大となってしまう、計算コストが高くなっていくことから高分子化学ポテンシャル計算を遂行することは難しい。そこで本課題では、高分子がモノマーの繰り返し構造で構成される点に注目した“incremental calculation method”を援用し、高分子全体ではなく高分子の構成要素であるモノマーの化学ポテンシャルを計算することを考えた。その際、対象モノマーを「溶質」部分、それ以外の高分子を「溶媒」部分と見なすことでモノマーの溶媒と自由エネルギー（化学ポテンシャルの過剰部分）を計算する。この場合、「溶質」部分であるモノマー分子は高分子全体に比べて極めて小さく、小分子と同程度のサイズとなる。そのため、上で述べた高分子溶質の自由度の大きさや緩和時間の問題は解消される。このような、高分子に属するモノマー単位の化学ポテンシャルは incremental chemical potential と呼ばれ、繰り返しモノマーの数が多く、鎖長の長い高分子ほど一定になることが期待される [1]。高分子鎖全体の化学ポテンシャルはモノマー単位化学ポテンシャル incremental chemical potential のモノマーごとの総和であるため、少数の incremental chemical potential 計算から全体の化学ポテンシャルを見積もることで高効率に高分子の化学ポテンシャルを評価することが可能となる。

本課題で扱うアプリケーションは、高分子の全原子分

子動力学計算による平衡状態サンプリング計算ソフトと、得られたトラジェクトリをインプットとして自由エネルギー計算を行う自由エネルギー近似計算ソフト (ERmod) の2つに別れる。本課題では、従来の分子動力学計算ソフトウェアと自由エネルギー計算ソフトウェアに我々の手法を追加する形で高速計算の開発を行った。

分子動力学計算に関して、汎用分子動力学計算ソフトウェアに原子ごとの分子内・分子間相互作用の on/off 選択機能を追加することで我々の提案したスキームを組み込んだ。また、T-REMD (温度レプリカ分子動力学) 計算機能を追加し、全原子分子動力学計算のサンプリング効率向上を達成した。モノマー単位の自由エネルギー計算に関しては、汎用高速自由エネルギー計算ソフト ERmod [2] と python スクリプトを組み合わせることで、自由エネルギー計算ソフトウェア ERmod のインプットファイルを操作して「溶質」モノマー部分を適切に指定する手続きを確立した。これにより、任意の Gromacs トラジェクトリに対して incremental chemical potential 計算を行う手続きを組み込むことができた。また、ERmod コードのポスト「京」アーキテクチャ上のアプリ高度化の解析を行い、ポスト「京」を想定したコードのチューニングを進めた。

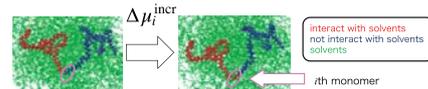


図1: i 番目のモノマーの Incremental chemical potential.

1 課題の目標
Development goal

ポリマーブレンド材料は、高機能性材料として高分子産業界で広く利用されている。その際、物性の異なるポリマー同士を混合させることで望ましい物性・機能を発現する高分子材料を開発することができる。ポリマーブレンドの物性は混ぜ合わせるポリマーのお互いへの溶けやすさである相溶性に依存することが知られており、目的となる系の相溶性を見積もる手法の確立が求められている。従来は実験室で各ポリマーを合成・混合し、物性測定実験を行うことでブレンドの設計が行われてきたが、計算機性能の発展により、新規なポリマーブレンド材料を設計する安価な手段として計算機実験を用いた相溶性の解析を行う手法が期待されている。しかしながら、現在の分子動力学計算に基づく解析では、高分子全体の緩和時間の問題などにより、計算コストが膨大となってしまいう問題があった。本課題では、現状の問題を解決する高効率な計算手法を確立することを目指す。さらに、現時点で実験・理論でアクセス不能なナノスケールのポリマーブレンド集合状態の詳細情報を取り入れた化学ポテンシャル評価手法の開発と、同手法を用いた新規高機能高分子材料の探索を目標としている。計算スキームに関しては、汎用ソフトウェアを組み合わせることで一般に広く利用可能であることを目標としている。

3 研究開発成果
Research & development results

▶ 高分子化学ポテンシャルの高効率評価手法の開発

長鎖高分子が同一モノマーの繰り返しであるという普遍的な性質に着目して、数十万原子からなるポリマー系の全原子分子動力学計算と溶液理論に基づく自由エネルギー計算を組み合わせて各ポリマー鎖のモノマー単位の化学ポテンシャル (自由エネルギー) 計算を行うスキームの開発を行った。実際に、具体的なモデルとして polyethylene (PE), polypropylene (PP), poly-methyl methacrylate (PMMA), polyvinylidene difluoride (PVDF) といった様々な種類の高分子溶融系 (鎖長 $N=100$) を対象に、分子動力学計算による平衡化・平衡状態サンプリングおよび自由エネルギー計算を行った。高分子の力場には GAFF (General Amber Force Field) を使用した。自由エネルギー計算の結果、高分子 4 種類全ての場合で incremental chemical potential のモノマーインデックス依存性がほぼ無視できることが判明した (図 2、3)。自由エネルギーと同様に、「溶質」モノマー-「溶媒」モノマー間相互作用エネルギーに関して、モノマーインデックスに依存せず一定の値をとることを確認した。これらの結果は、モノマー分子間の動径分布関数計算による局所構造が「溶質」モノマーのインデックスに依存しないという解析結果からも妥当であると考えられる。高分子全体の化学ポテンシャルは incremental chemical potential の総和として表現できるため、高分子の化学ポテンシャルはモノマー数にほぼ比例することが今回の結果から判明した。

さらに、PE に関して鎖長 $N=25,50$ で自由エネルギーを計算し、incremental chemical potential の溶質鎖長依存性を調べた。その結果、incremental chemical potential のモノマー平均は鎖

長にほぼ依存せず一定となること、および、高分子化学ポテンシャルが鎖長にほぼ線形に比例することがわかった。この結果は、分子シミュレーションで計算することが難しい鎖長の長い高分子に関して、ある程度鎖長の短い高分子について incremental chemical potential を計算した結果を外挿することで目的の鎖長の高分子の化学ポテンシャルを計算することが可能であることを示唆している。

最後に、PE-水溶液系で厳密な自由エネルギー計算法である widom insertion method と ERmod の結果を比較し、ERmod 計算の結果の信頼性を検証した。その結果、計算した全てのモノマーに対して、化学精度である 0.1kcal/mol の精度で 2 つの手法で計算した incremental chemical potential が一致することを確認した。このことは、自由エネルギー近似計算ソフトウェア ERmod による incremental chemical potential が信頼できる結果であることを示している。

以上の結果から、十分長い鎖長の高分子について、本手法を用いて incremental chemical potential を計算することで高分子全体の化学ポテンシャルを高速に見積もることが可能であることを示した。

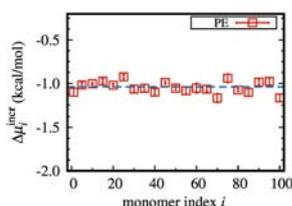


図 2: polyethylene 溶融系における incremental chemical potential のモノマーインデックス依存性。

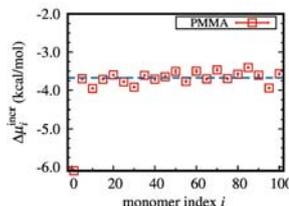


図 3: polymethyl methacrylate 溶融系における incremental chemical potential のモノマーインデックス依存性。いずれの場合も、端の部分を除いてはほぼ一定の値に収束している。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題
Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 高効率自由エネルギー計算を用いた高分子相溶性評価手法の開発

本課題で確立した手法を用いて、数十万原子程度の多成分ポリマーブレンド系の相溶性を分子動力学計算と自由エネルギー計算を組み合わせることで評価する。具体的に計算する量はポリマーブレンドの混合前後の自由エネルギー変化である混合ギブス自由エネルギープロファイル (組成依存性) である。混合ギブス自由エネルギープロファイルが下に凸な関数形となる場合、そのブレンドは相溶性を示すと判断できる。

混合ギブス自由エネルギーは各高分子の混合前後の化学ポテンシャル差によって決まるため、本課題の自由エネルギー計算手法を適用して混合ギブス自由エネルギーを評価することが可能である。ポリマーブレンドの組成比を逐次的に変化させながら、ブレンドが混合状態にある系と各成分が分離した状態にある系の分子動力学計算を行っていく。モノマー単位化学ポテンシャルを ERmod を用いた自由エネルギー計算から算出することで各組成における混合ギブス自由エネルギーを評価することが可能となる。得られた関数形の性質からブレンドの相溶・非相溶を調べることが可能となる。

参考文献

- [1] Kumar, S., Szleifer, I., Panagiotopoulos A., ; Phys. Rev. Lett. 66, 2935 (1991) [2] Shun Sakuraba, Nobuyuki Matubayasi.; J. Comput. Chem. 35, 1592-1608 (2014).

問い合わせ先 Contact information

山田一雄 Kazuo YAMADA

k.yamada@cheng.es.osaka-u.ac.jp

浦長瀬正幸 (名古屋工業大学)

共同研究者

尾形修司 (名古屋工業大学)

田中宏一 (株式会社デンソー)

1 課題の目標
Development goal

様々な工業製品において、有機／無機界面がその機能実現の鍵を握っている。有機／無機界面での原子間相互作用や反応ダイナミクスは大変複雑であり実験のみで解明することは困難であるため、原子スケールのシミュレーションを用いた研究が、機能の解明および高度化のために期待されている。有機／無機界面での複雑な原子間相互作用を高精度に取り扱うには電子を直接扱う量子力学的手法を用いることが理想であるが、計算量が非常に大きくなるため取り扱える原子数に強い制限が生じる。そこで化学反応する界面近傍のみを量子力学的に、それ以外の領域については古典力学に基づいた手法を用いるハイブリッド法を、有機／無機界面にも適用することで計算量に対する困難を克服する。特に、金属／樹脂界面の接着に関する諸問題について、原子スケールからの解明を目指す。また、固体表面に新たな性質を付与するために表面を高分子で修飾することが産業的にも行われていることから、高分子で修飾された表面と液体との界面の接着に関係する自由エネルギーの分子動力学シミュレーションを用いた評価法を開発し、接着力の定量的評価を容易に可能とするアプリを提供することも目標とする。

2 アプリケーションの開発
Application development

▶ 有機／無機界面の物性計算に関する二つのシミュレータ hybridQMCL & FE-CLIP

hybridQMCL: 有機／無機界面での量子古典ハイブリッド計算を用いた原子スケールシミュレーションを実行可能とするアプリケーションとして hybridQMCL を開発した。量子力学に基づく電子状態計算には我々のグループで開発した実空間密度汎関数理論のソルバである DC-RGDFT [1] を用いている。従来の密度汎関数理論のソルバでは原子数の三乗のオーダーで計算量が増加するのに対し、DC-RGDFT では分割統治法を活用することで計算量を原子数のオーダーに抑えることが可能であるため大規模計算に適している。尚、DC-RGDFT の本課題への適用に際し、プログラムのチューニングを実施し、小幅ながら計算速度の高速化を達成している。量子力学的な計算を実施する領域と古典力学的計算のみ実施する領域の接続には Buffered cluster 法 [2] を採用している。Buffered cluster 法では量子領域に存在する原子と古典領域に存在する原子の間にも作用・反作用の法則が満たされているため、各原子にはたらく力を計算することが必要となる分子動力学シミュレーションに適している。また、本課題で Buffered cluster 法を有機／無機界面に適用するために高分子系での量子領域と古典領域の接続に新たな方法を導入した。

FE-CLIP: 固体-液体間の接着力の評価を分子動力学シミュレーションにより実施する手法では、人工的に導入されたポテンシャルを用いて液体を固体表面から引き剥がす

操作が含まれている。本課題で新たに開発した固体-液体間の接着力を評価するアプリ FE-CLIP では、複数の球対称ポテンシャルを固体表面の原子に中心が来るように配置し、ポテンシャルの直径を少しずつ大きくすることで表面の形に応じて液体を引き剥がすことを可能にしている [3]。本手法により、高分子を修飾した固体表面に代表される複雑な表面での計算効率が従来の手法と比べて改善されている。また、分子動力学シミュレーションにより評価される自由エネルギー勾配を数値積分することで自由エネルギーを計算しているため、自由エネルギー勾配の変動が大きいと数値積分の精度が低下するという問題が生じる。そこで FE-CLIP では自由エネルギー勾配の変動を抑制するようにパラメータをアダプティブに自動変化させることを実現している。

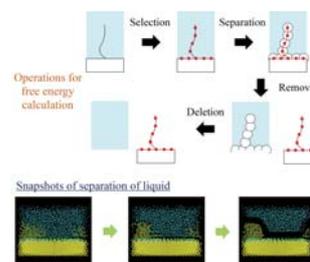


図1: アプリケーションの開発、球形ポテンシャルを用いた固体-液体界面自由エネルギー計算における操作

3 研究開発成果
Research & development results

▶ シミュレータによる有機／無機界面の接着への新たな知見

hybridQMCL: 接着の分野で良く知られている問題に湿潤環境下における接着力の低下がある。シミュレーションによる取り扱いでは、化学反応を再現する必要があることから量子力学レベルの精度が必要となる。電子状態計算コードを適用した過去の例では、計算量が膨大となるため小規模なモデルとなり、接着力に関する実験結果を再現出来なかった。そこで我々はアルミニウム-エポキシ樹脂界面に対して hybridQMCL を適用し、初めて実験結果と同程度の接着力を再現することに成功すると共に、界面に存在する水分子と接着力との関係を系統的に調べた [4,5]。その結果の概要は以下の通りである。エポキシ樹脂の重合度が0のエポキシ樹脂を採用したシミュレーションでは、界面の水分子が増加することで接着力が低下するという傾向は再現できたものの、接着力自体は非常に大きい値となっていた。これは接着にポリマー両端のエポキシ基が大きな寄与を及ぼしていることが理由と考えられる。実際の樹脂では重合度が大きいことや接着剤に添加される硬化剤によりエポキシ基が接着に及ぼす影響は小さいと考えられる。そこで重合度を1とし、ポリマー両端のエポキシ基の酸素を水素に置換したモデルに対してシミュレーションを実施したところ、実験と同程度の接着力が得られ、その水分による低下も再現できた。このことは実験結果と対応させるには現実に近いモデルを採用することが重要であることを示唆している。また、水分子が存在することで、アルミニウム樹脂界面に生じていた特異的な化学結合の切断に必要な自由エネルギーが大きく低下していることも見出した。

FE-CLIP: ポリエチレングリコールにより修飾された金基板表面-水界面に対し FE-CLIP を適用し、自由エネルギー勾配の変動を抑制するように、多数の引き剥がしポテンシャルに含まれるパラメータをアップデートする方法について検討した。この界面を選んだ背景には、ポリエチレングリコールで金基板を修飾することでタンパク質が吸着しない金基板が実現出来るという生物工学での重要な表面装飾技法がある。FE-CLIP で導入して

いる引き剥がしポテンシャルには、直径に対応するパラメータ σ と深さに対応するパラメータ ϵ が存在するが、 σ は液体分子を引き剥がす距離に直接関係しているので一定の割合で少しずつ大きくし、それに伴って自由エネルギー勾配の変動を小さくするような ϵ のアップデート法について検討した。最初に、 ϵ のアップデートにある関数形を仮定し、その関数について最適なパラメータを試行錯誤を通して見つけ出すことにより自由エネルギー勾配の変動を十分に小さくすることが可能であることを見出した [3]。ただしこの方法により決定したアップデート法が別の界面にそのまま適用可能とは言えず、界面ごとにアップデート法を変更するという煩雑な作業が必要となる。そこで、シミュレーションで得られた結果から自動的に次の ϵ の値を決定する方法を考案し、その方法でも自由エネルギー勾配の変動を抑制できることを見出した。この方法を用いることで、種々の界面に対して自動的にパラメータを調節することが可能となり、FE-CLIP を容易に利用することができるようになった。

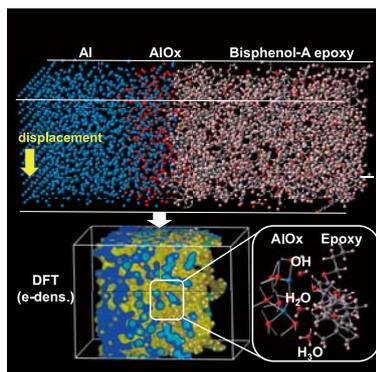


図2: 研究開発成果、アルミニウム-エポキシ樹脂界面のモデル

4 スパコン「富岳」で取り組む課題
Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 「富岳」のパワーでさらに現実に近い有機／無機界面の計算

hybridQMCL: これまでの研究において現実の事象に対応づけることが可能なシミュレーションを実施するには現実に近いモデリングを行うことが重要であることが明らかとなった。その観点から見ると、現在用いているモデルもまだ単純化しすぎていると考えられる。例えば実用されている接着剤には硬化剤が添加されており、樹脂のポリマーは非常に複雑に結合している。このような複雑な高分子を含む界面の有意義なシミュレーションを行うためには、界面の表面積を非常に大きくする必要があり、計算量が膨大になる。新たなスパコン「富岳」では、このように複雑で現実に近い有機／無機界面の物性評価のシミュレーションに挑戦したい。

FE-CLIP: 大規模な分子動力学シミュレーションでは領域分割を実施し、MPI 並列により高速化を実現しているが、現時点で FE-CLIP は領域分割を含む MD に対応していないことが課題として残されている。従って、FE-CLIP を大規模 MD に適用可能なモジュールに改良し、現実に観察される不均一に修飾された基板表面など大規模 MD が必要となる界面の自由エネルギー評価を「富岳」において実施する。

参考文献

- [1] N. Ohba, S. Ogata, T. Kouno, T. Tamura, and R. Kobayashi, Comput. Phys. Comm. 183, 1664 (2012). [2] S. Ogata, Phys. Rev. B 72, 045348 (2005). [3] M. Uranagase, S. Ogata, K. Tanaka, H. Mori, and S. Tajima, J. Chem. Phys. 149, 064703 (2018). [4] S. Ogata and Y. Takahashi, J. Phys. Chem. C 120, 13630 (2016). [5] S. Ogata and M. Uranagase, J. Phys. Chem. C 122, 17748 (2018).

問い合わせ先 Contact information

浦長瀬正幸 Masayuki Uranagase
uranagase.masayuki@nitech.ac.jp

小口多美夫 (大阪大学)

共同研究者

獅子堂達也 (ウィスコンシン大学ミルウォーキー校)

1 課題の目標 Development goal

HiLAPW はフルポテンシャル線形化補強平面波 (FLAPW) 法 [1,2] に基づく汎用的で精度の高い密度汎関数理論電子状態計算を実現する第一原理計算コードである。全電子計算であり、擬ポテンシャルを用いないこと、また内殻の電子状態計算も SCF 計算の中で同時に解かれるため、スピン分極の系に対して高い精度の計算が期待される。本研究では、HiLAPW による電子状態計算に基づき、種々の物性値を計算する計算手法とコードの開発を行っている。

3 研究開発成果 Research & development results

▶ 内殻ホールを考慮したX線吸収スペクトル計算

Δ SCF 法の範囲での励起エネルギーとして内殻ホールのある系と基底状態の系のエネルギー差をスペクトルの閾値とすることで絶対値を含めたスペクトルの計算が可能となった。スーパーセル法を用いることで、終状態の空間的広がりを考慮した遮蔽効果をより正確に表現することができ、実験をよく再現するスペクトルを得た。図1に MgO における Mg の K 吸収端スペクトルの計算結果を示す。

▶ スーパーセル法によるフォノン計算

フォノン計算においては、一般にスーパーセル内の構成原子の3倍の微小変位から原子に働く力を求め、動的行列を構成する必要があるが、対称性 (ボンド群) を考慮することにより独立な力の定数成分を求め計算量を最小化することができる。本計算コードを種々の物質系に応用し格子振動計算の精度を検証した。図2に、ハード材料の WC に対して計算されたフォノンバンド構造と状態密度を示す。また、準調和近似の範囲での有限温度計算の可能性を探った。

▶ 薄膜系に対する電場付加計算

本計算では薄膜系に対して三次元的周期スラブモデルを用いており、周期境界条件を満たすため外部電場に対応したノコギリ型のポテンシャルを付加し、薄膜の周期的配置に伴い現れる電気双極子場を取り除く補正を行っている。計算精度の評価のため、Fe、Co、Ni の単層膜に対する結晶磁気異方性エネルギーにおける電場の効果を計算し、Nakamura らによる二次元スラブモデルの計算 [3] を定量的にもよく再現する結果を得た (図3)。

▶ デフォルト計算パラメータの決定と計算精度の確認

典型元素からなる 82 種類の二元化合物半導体に対して、FHI-aims を用いた岩塩構造と硫化亜鉛構造の全エネルギー差 ΔE とそれぞれの構造における平衡格子定数 a_0 の数値データが公開されている [4]。HiLAPW に含まれる計算パラメータを見直し、同じ化合物半導体に対して全エネルギー計算を実行し、その精度比較を行ったところ、 ΔE に対しては二乗平均平方根誤差として 7meV/atom を得 (図4)、 a_0 に対しては両構造とも 0.01Å 程度を得た。

2 アプリケーションの開発 Application development

▶ 内殻ホールを考慮したX線吸収スペクトル計算

内殻励起 X 線吸収スペクトル計算において内殻ホールの効果を明示的に含める計算コード開発を行い、スーパーセル近似と併用して内殻ホールを考慮し複数の物質系でのテスト計算を実施した。

▶ スーパーセル法によるフォノン計算

HiLAPW は全エネルギーに加えて、その座標微分である原子に働く力も高精度で計算でき、構造最適化や動力学計算を実現するだけでなく、微小変位に対する力の計算から力の定数を求め、動的行列を構築し、調和近似の範囲での格子振動を計算することが可能である。ここではスーパーセル法と組み合わせることで格子振動計算を可能とする計算コードの開発を行った。

▶ 薄膜系に対する電場付加計算

磁性薄膜系に対して最近注目を浴びている電場による磁性の制御に関して、周期スラブモデルを仮定した際に薄膜に垂直方向に電場を加えることができるようにプログラムを開発を行った。

▶ デフォルト計算パラメータの決定と計算精度の確認

データ科学手法の応用に向けて、第一原理計算によるデータ収集が進められているが、第一原理計算における精度 (precision) を事前に確認しておくことが重要である。ここでは、HiLAPW にデフォルトとして含まれる計算パラメータを最適化し、全エネルギー計算を実行して既発表の計算データと比較することにより精度確認を行った。

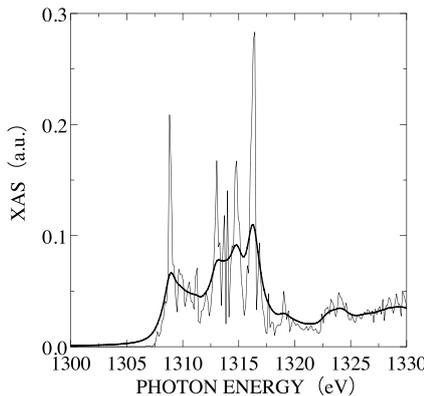


図1: MgOにおけるMg-K端での吸収スペクトル。太線は計算値(細線)に内殻ホールの寿命によるぼけ幅を考慮している。

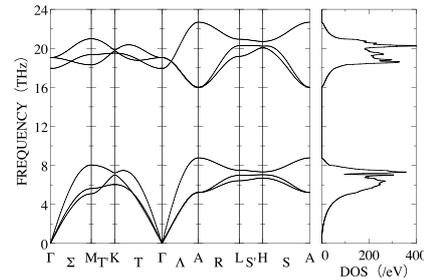


図2: 六方晶WCのフォノンバンド構造と状態密度。

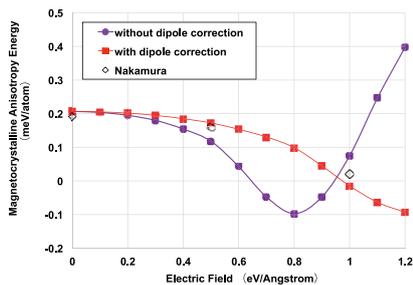


図3: Fe 単層膜に対する結晶磁気異方性エネルギーにおける電場効果。四角印(丸印)は電気双極子補正を考慮した(考慮しない)計算結果であり、菱形印は Nakamura らによる二次元スラブモデルによる計算結果である。

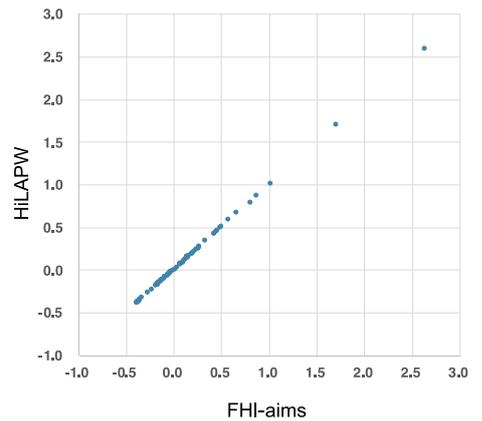


図4: 82種の単体及び二元化合物半導体に対して計算された岩塩構造と硫化亜鉛構造の全エネルギー差のFHI-aimsコードとHiLAPWコード比較。単位はeV/atom。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 全電子FLAPW法の高度化

HiLAPW コードをベースに、全電子 FLAPW 法のさらなる高度化や物性値計算の手法開発に取り組む。また、電子状態計算の自動化や他アプリケーションとの連携に向けた計算設定の標準化やデータベース化も行う。

参考文献

- [1] E. Wimmer, et al., Phys. Rev. B 24, 864 (1981) . [2] J. M. Soler, A. R. Williams, Phys. Rev. B 40, 1560 (1989) . [3] K. Nakamura, et al., Phys. Rev. Lett. 102, 187201 (2009) . [4] L. M. Ghiringhelli, et al., Phys. Rev. Lett. 114, 105503 (2015).

問い合わせ先 Contact information

小口多美夫 Tamio Oguchi
oguchi@sanken.osaka-u.ac.jp

吉川 誠司 (東大院理)

共同研究者

辻本 直人 (atama plus)

足立 大樹 (東大院理)

佐藤 龍平 (東大院理)

明石 遼介 (東大院理)

藤堂 真治 (東大院理、東大物性研、物材機構)

常行 真司 (東大院理、東大物性研)

1 課題の目標

Development goal

理論的に構造を決定するには、ポテンシャルエネルギーが最小となる原子配置を探索する。原子数が増えるほど、探索空間は広く高次元となり、ローカルミニマム(局所安定構造)の数も指数関数的に増大する。エネルギーを第一原理電子状態計算によって求め、原子配置を変えながらエネルギー計算を何度も繰り返す場合には、計算コストによって探索できる範囲が狭まってしまふ。そのため、グローバルミニマム(最安定構造)を系統的かつ効率的に探索する必要があり、盛んに研究が行われている。

本研究では、データ同化に基づいて実験データを理論的な構造探索に組み込むことで、効率的に最安定構造を探索する手法の開発を行っている [1, 2]。データ同化手法により計算と実験の早期連携を図り、材料創成に貢献する。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶ 第一原理計算と実験のデータ同化による結晶構造探索コードの開発

我々は、データ同化に基づいて実験データを理論的な構造探索に組み込む手法の開発と実装を行っている [1]。本手法では、参照する実験データと結晶構造 R に対する計算値との「差異」を表すペナルティ関数 $D(R)$ を定義し、これをポテンシャルエネルギー $E(R)$ に加えたコスト関数 $F = E + D$ を最小化する(図1)。これにより、エネルギーが低くかつ実験データと合う構造に探索範囲が制限され、効率的に最安定構造を探索することができる。

本手法を用いることで、それだけでは構造が決まらないような不完全な実験データでも、理論的な構造探索を加速させることができる。また、ポテンシャルエネルギーをこのようなコスト関数に置き換えるだけで既存の構造探索手法に取り入れることができることも、本手法の利点の一つである。

本研究では、粉末 X 線回折(XRD)パターンによるペナルティ関数を実装している(図2)。先行研究 [1] では、参照 XRD パターンの強度

情報を用いないペナルティ関数(「結晶化度」)を採用していた。本研究では、参照 XRD パターンの強度情報を陽に含むペナルティ関数を採用することで、構造探索の成功確率とロバスト性の向上に取り組んでいる。

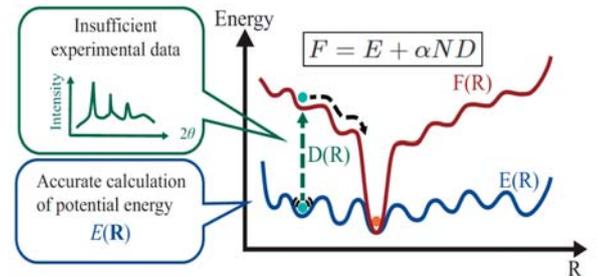


図1: コスト関数 $F(R)$ の模式図 [1] 位をあらわす。

$$D = 1 - \frac{\int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} I_{\text{calc}} d\theta}{\int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} I_{\text{calc}} d\theta} \quad D = 1 - \frac{\int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} (I_{\text{calc}} - \bar{I}_{\text{calc}})(I_{\text{ref}} - \bar{I}_{\text{ref}}) d\theta}{\sqrt{\int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} (I_{\text{calc}} - \bar{I}_{\text{calc}})^2 d\theta} \sqrt{\int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} (I_{\text{ref}} - \bar{I}_{\text{ref}})^2 d\theta}}$$

図2: XRD パターンによるペナルティ関数。I_{calc} と I_{ref} はそれぞれ XRD パターンの計算値と参照値である。

3 研究開発成果

Research & development results

▶ ペナルティ関数の改良による成功確率とロバスト性の向上

先行研究 [1] と同様に、ポテンシャルエネルギーとしてモデルポテンシャルを用いて、コーサイトでのテスト計算を行った。

計算条件

- 初期構造(図3)
 - セルサイズ: $N = 48$ 原子
 - 格子定数: 正解構造と同じ
 - 原子の内部座標: ランダム(原子間距離 $> 0.5 \text{ \AA}$)
- 参照データ(図4)
 - sharp and clear: 正解構造での XRD パターンの理論値(実験値でない)
 - broad and noisy: ピーク幅を広げ、バックグラウンドとして白色ガウシアンノイズを加えた
- ペナルティ関数: D
 - 2θ のレンジ: $[20, 45] \text{ deg}$
 - α (重み): 50 eV (sharp and clear の場合)
 - 5 eV (broad and noisy の場合)
- 最適化(図5)
 - 手法: Simulated Annealing
 - 熱浴: Nose-Hoover
 - 初期温度: 5000 K
 - 時間刻み: 1 fs / step
 - 温度刻み: -1 K / step

各条件に対して 100 回ずつテスト計算を行った。参照 XRD パターンが「sharp and clear」の場合は、正解構造を発見する成功確率は 60% ほどとなった。これは先行研究 [1] での 10% から大幅に改善している。また、参照 XRD パターンが「broad and noisy」の場合でも、成功確率は 5% ほどとなった。ペナルティ関数を用いずにポテンシャルエネルギーのみを最小化した場合には成功確率がほぼ 0 となるため、不完全な実験データも活用できることがわかる。

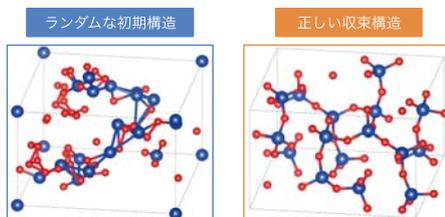


図3: 探索に成功したときのコーサイトの結晶構造

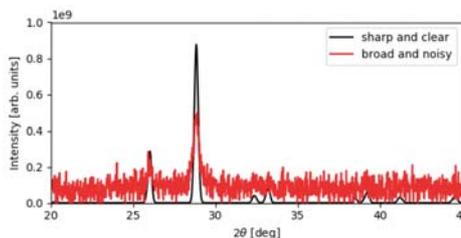


図4: コーサイトの参照 XRD パターン

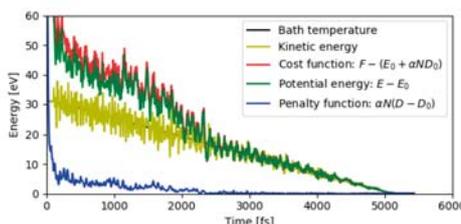


図5: 探索に成功したときの Simulated Annealing のエネルギー推移。E₀ と D₀ はそれぞれ正解構造での E と D である。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 既存の構造探索コードの活用と未知物質への適用

SiO₂ のような既知の物質を対象としたテストでは、本手法によって探索効率が格段に向上することがわかった。実験家との共同研究により、いくつか未知物質への適用を始めているが、三元系のような複雑な系や、実験からは組成が決まらない場合などでは、さらなる手法の改善が必要となっている。

これまでは実装の単純さから、Molecular Dynamics による Simulated Annealing を用いてコスト関数の最小化を行っていた。他のより高度な構造探索コードとデータ同化による構造探索手法を組み合わせることで、構造探索のさらなる効率化と適用範囲の拡大が期待できる。また、「富岳」と高並列化された第一原理計算のプログラムを使うことで、より大規模な構造の探索が可能となると期待される。

参考文献

- [1] N. Tsujimoto, D. Adachi, R. Akashi, S. Todo, S. Tsuneyuki, Phys. Rev. Materials 2, 053801 (2018) [2] D. Adachi, N. Tsujimoto, R. Akashi, S. Todo, S. Tsuneyuki, Comput. Phys. Commun. 241, 92-97 (2019)

問い合わせ先 Contact information

吉川 誠司 Seiji Yoshikawa
yoshikawa@cms.phys.s.u-tokyo.ac.jp

Theresa Davey (School of Engineering, Tohoku University)

共同研究者

Nguyen-Dung Tran (Tohoku University)

Arkapol Saengdeejing (Tohoku University)

Ying Chen (Tohoku University)

2 アプリケーションの開発 Application development

▶ Obtaining the required parameters from first-principles

The Al-Ni system was chosen as a prototype system as it exhibits various commonly occurring features, such as order-disorder transitions and a variety of invariant reactions. The widely accepted experimentally-based Al-Ni phase diagram [1] is shown in Figure 1 (a).

DFT calculations: Combining theoretical techniques including density functional theory (DFT), phonon calculation, cluster variation method (CVM), cluster expansion method (CEM), and special quasirandom structures (SQS), a methodology has been developed that reproduces all primary topological features of the phase diagram using minimal prior knowledge of the system.

Gibbs free energy model: In the CALPHAD approach, the Gibbs energy of each phase is modelled as a function of temperature and composition, where composition de-

pendence is usually considered using ideal, regular, or subregular solution models. Non-ideal solution behavior is usually obtained from experimental data and indirectly contains non-ideal configurational entropy contributions relating to atomic correlation. We used reciprocal interaction parameters [2,3] in a structure based on the compound energy formalism (CEF). Appropriate sublattice models were then chosen.

The ground state convex hull was partly obtained from fcc and bcc CEM calculations. Other stable or near stable phases were taken from prior knowledge of the system. Higher accuracy ground state and finite temperature calculations were then performed for the stoichiometric stable structures and their corresponding antisite end-member structures (e.g. for $AlNi_3$, the same structure

was considered for secondary end members $AlAl_3$, $NiAl_3$, and $NiNi_3$). The disordered fcc and bcc phases were considered by considering SQS at 12.5% composition intervals. The temperature dependence of the Gibbs energy of each phase (including vibrational and thermal electronic contributions) was considered using phonon calculations.

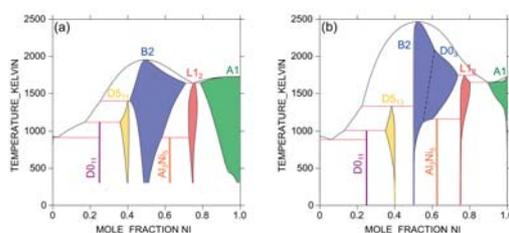


Figure 1: (a) Experimentally-based phase diagram from Dupin et al. [1]. (b) First principles-based phase diagram (solid phases only) from this work combined with liquid description from Dupin et al..

I 課題の目標 Development goal

Phase diagrams are a fundamental tool in materials design but thorough experimental investigation can be challenging, expensive, and time consuming. This work aims to develop a thermodynamic evaluation system whereby physically meaningful phase diagrams based on the underlying thermodynamic description can be obtained from first principles calculations only. Such descriptions have the potential to reduce time and cost in phase diagram assessment and thus in materials design, by providing insight for unknown systems at the prediction stage, and thus providing guidance for experimental investigations.

Generally, using only first principles information in a CALPHAD database does not give a proper description of the system. One reason is that the Gibbs energy models neglect atomic correlation. By combining insight from several theoretical techniques in a modified CALPHAD framework, non-ideal contributions can be directly included in the thermodynamic description.

3 研究開発成果 Research & development results

▶ Examination of the first-principles Al-Ni phase diagram

The phase diagram from the above method can be seen in Figure 1 (b). It can be seen that all major features of Al-Ni are reproduced.

As liquid has not yet been considered using first principles calculations, the same liquid description is used in both Figures 1 (a) and 1 (b) (from the experimentally-based description). As a result of this incompatibility, the calculated liquidus is too high. This is an artefact of the liquid description in the experimentally-based database being determined relative to the solid phases.

The blue ordered bcc and green fcc phases have underestimated solubility as a result of the scheme used to fit the disordered phase data to the required polynomials, which is extremely sensitive. Usually this fitting is done with reference to the resulting phase diagrams, and development of an objective fitting scheme is ongoing. The blue B2 phase does not show the experimentally observed Al-rich solubility. While the Ni-rich solubility is facilitated by antisite atoms, the Al-rich solubility is known to be facilitated by vacancies. Vacancies are not yet included in the models and so this feature does not appear in the phase diagram. Magnetic features are also not yet considered directly, but will be incorporated in the future by using spin-polarized and non-spin-polarized calculations to directly populate magnetic models.

Other future work includes development of a high throughput system based on the AFLOW structure library and OpenMX to determine all relevant stable phases in the ground state convex hull to reduced the required prior

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ Development of a first-principles only thermodynamic evaluation scheme

The methodology outlined above will be combined into a software, "Thermodynamic Evaluation System Supported by Ab initio (TESSA)" that will integrate directly with input and output files for first principles calculations (e.g. VASP, OpenMX) and provide a consistent scheme to produce first principles only thermodynamic descriptions, as displayed in Figure 2. The output will be the standard thermodynamic database format (TDB). Integration with thermodynamic software such as Thermo-Calc or CatCalc will be available during the parameter adjustment stage and at the end to calculate the phase diagram. The high throughput process will

use machine learning to determine correlations between parameters across various materials systems, which will feed back into the adjustment of parameters when producing an "optimized" database.

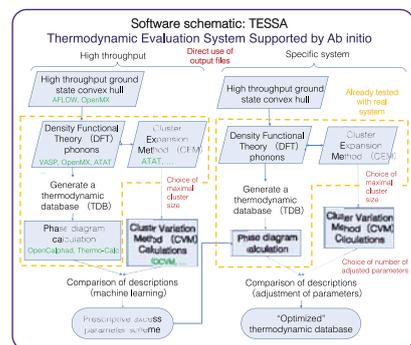


Figure 2: Schematic flowchart for the proposed TESSA software, indicating the single system evaluation process and the high throughput process incorporating machine learning techniques.

参考文献

- [1] Dupin, N., et al. (2001) Calphad, 25 (2) 279 [2] Lindahl, B., et al. (2015) Calphad 51, 211 [3] Kusoffsky, A., et al. (2001) Calphad 25(4) 549

問い合わせ先 Contact information

Theresa Davey
theresa@tohoku.ac.jp

星 健夫 (鳥取大学)

共同研究者

曾我部知広 (名古屋大学)

李東珍 (中央大学)

吉見一慶 (東京大学)

森田亨成 (鳥取大学)

角田皓亮 (鳥取大学)

田中和幸 (鳥取大学)

山本有作 (電気通信大学)

深谷 猛 (北海道大学)

荻田武史 (東京女子大学)

尾崎克久 (芝浦工業大学)

1 課題の目標

Development goal

計算物質科学の共通基盤として、数理・情報科学研究者と共同で、数理アルゴリズム開発・ライブラリ公開を目指している。中核となるのは、アプリケーション・アルゴリズム・アーキテクチャにおけるコデザイン戦略である(図1)。「富岳」・米国エクサマシンのようなトップクラスパソコンから小型計算機(PC)までを考えると、アーキテクチャは質的に多様である。単一のコードで、全てのアーキテクチャに最適性を望むことは困難である。一方、計算科学分野には多種多様なソフトが存在するが、数理的観点(数値線形計算など)からはソフト・分野を超えた共通性がある。コデザイン戦略に基づき数理アルゴリズムとライブラリを共有していくことは、ソフトウェアのエコシステムとして必須である。海外では、例えば米国エクサスケールコンピューティングプロジェクトにおける SLATE Library プロジェクト(Don-garra)がある。

2 アプリケーションの開発

Application development

▶数値計算ライブラリの開発:K ω ,k-ep

主な新規数理アルゴリズムとして、(i)シフト型クリロフ部分空間ソルバー [1, 2]、(ii)選択的固有値ソルバー [3] を開発し、それぞれ、ライブラリ K ω (<https://github.com/issp-center-dev/Komega/>)、k-ep (<https://github.com/lee-djl/k-ep>)として公開した(総説として[4])。両者は数理的に関連しており、図2にまとめた。量子力学の数理的根源は、シュレーディンガー方程式に基づく(一般化)固有値方程式(図2式(1))であるが、(一般化)シフト型線型方程式(図2式(2))に変形させることができる。前者は波動関数計算に、後者はグリーン(伝搬)関数計算に相当する。両者は、図2式(3)を通じて結びついている。シフト型クリロフ部分空間ソルバーは、シフト型線型方程式に対する数理アルゴリズムである。クリロフ部分空間のシフト不変性を使った反復解法

であり、多数のエネルギー点に対して、当該方程式を同時に解く。その結果、例えば数百倍以上の加速を得ることができる。格子QCD分野、超並列電子状態計算(別ポスター「超並列100ナノメートル電子状態計算と有機デバイス材料研究の産業展開」)などでも使われてきた。さらなる発展を目指して、汎用数値計算ライブラリK ω を開発した。選択的固有値ソルバーは、シルベスタ慣性定理に基づき、指定番号固有対のみを選択的に計算できる。疎行列むけ解法であり、中核は疎行列直接解法によるLDL行列分解である。例えば、電子状態計算における、HOMO軌道・LUMO軌道のみを選択的に計算する場合を想定する。

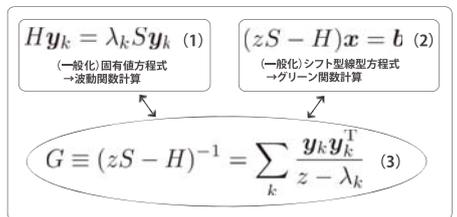


図2: 基本的な数理的関係式。(一般化)固有値問題(1)・(一般化)シフト型線型方程式(2)、および両者の関係式(3)。



図1: 概念図:本課題における、アプリケーション・アルゴリズム・アーキテクチャのコデザイン戦略。

3 研究開発成果

Research & development results

▶ライブラリとアプリケーションの連携、次世代数値計算技術の開発

開発されたライブラリとアプリケーションの連携を述べる(概要図は図3)。K ω については、サブ課題Cで開発された量子格子模型ソルバー H Φ をプライマリターゲットアプリケーションとし、接続した。例えば、山地洋平(東大)らによる、新しい有限温度線形応答計算手法 [5] に用いられた。また、K ω パッケージには、単体動作する小型アプリケーション(ミニアプリ)も付属しており、H Φ を使わなくても利用することができる。H Φ 以外のソフトウェアにアルゴリズムを活かしたい研究者も、簡単に試すことができる。一方、k-epは、第一原理に基づくモデル化(TB型)電子状態計算に対して、1ノード計算でも最大500万次元までの固有値方程式を解くことができた(図4)。従来型(密行列型)解法では京全体でも100万次元が限界であるので、上記は大きなブレークスルーである。さらに、指定番目について自明な並列性を持っており、超並列型計算機に理想的である。2019年度は、サブ課題Aで開発されたグリッド第一原理計算プログラムRSDFTとの連携も進展している(協力者:岩田潤一(アド

バンスソフト社))。さらに、次世代(「富岳」時代)計算科学を想定した数値計算技術の開発も行なっている。特に、(i)ルーチンごとの性能(計算時間)モデリングとベイズ推定(マルコフ連鎖モンテカルロ法)を利用した強スケーリング型並列性能予測(外挿)[6]、(ii)混合精度計算を想定した誤差制御手法(精度保証付き数値計算に基づく)[7]、は、次世代計算科学の共通基盤になる。

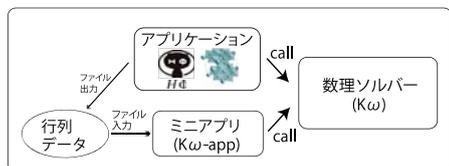


図3: 数値ソルバー K ω (シフト型クリロフ部分空間法)とアプリケーションソフト H Φ (量子格子模型ソルバー)との連携。

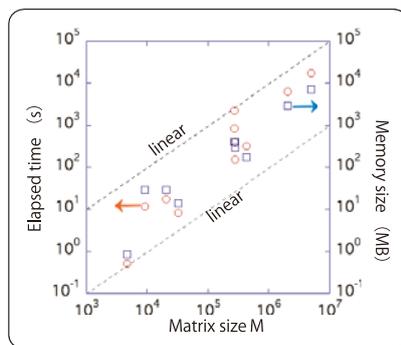


図4: 数値ソルバー k-ep(選択的固有対計算、複数固有対計算版)のテスト計算。行列次元数 M は、最大で M=約 500 万次元。20個の固有対を計算。東大物性研スパコン sekirei の1ノード計算。計算時間(赤丸)・必要メモリ(青四角)の両方が、行列サイズ M にほぼ比例している。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題

Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶「富岳」時代におけるコデザイン戦略とアプリ強化

「富岳」および同時代計算機(米国エクサマシンなど)において、アプリケーション・アルゴリズム・アーキテクチャにおけるコデザイン戦略に基づき、数理ソルバーを共有することで多様な計算物質科学アプリを強化していく。特に、本課題が例となる、(i)目的物理量ごとに最適な計算アルゴリズムを構築する、(ii)自動的に誤差を制御する、など、応用(物質科学)からのニーズに応えていくことが、新たなブレークスルーを生む。さらに、新しい課題としてデータ駆動科学むけの数値計算手法も顕在化しており、取り組んでいく(例として、別ポスター「革新的表面構造解析に向けた超並列データ駆動科学と測定技術の融合」)。

参考文献

[1] S. Yamamoto, et al., J. Phys. Soc. Jpn. 77, 114713 (2008). [2] T. Hoshi and Y. Yamaji, ISSP ACTIVITY REPORT 2016, The University of Tokyo, 31 (2017); T. Hoshi, M. Kawamura, K. Yoshimi, Y. Motoyama, T. Misawa, Y. Yamaji, S. Todo, N. Kawashima, T. Sogabe, in preparation. [3] D. Lee, et al., J. Comp. Phys. 371, 618 (2018); in preration. [4] T. Hoshi, Y. Yamamoto, T. Sogabe, K. Shimamura, F. Shimojo, A. Nakano, R. Kalia, P. Vashishta, 'Numerical methods for large scale electronic state calculation on supercomputer', in 21st Century Nanoscience - A Handbook, ed. K. Sattler, Taylor&Francis, to appear. [5] Y. Yamaji, et al., arXiv:1802.02854. [6] K. Tanaka, et al., J. J. Indust. Appl. Math. 36, 719 (2019) [7] T. Hoshi, et al., arXiv: 1904.06461.

問い合わせ先 Contact information

星 健夫 Takeo Hoshi
hoshi@tottori-u.ac.jp

星 健夫 (鳥取大学)

共同研究者

角田 皓亮 (鳥取大学)

桑田 亨成 (鳥取大学)

藤田 貴敏 (分子科学研究所)

松井 弘之 (山形大学)

2 アプリケーションの開発 Application development

▶ EigenKernel (ELSES)

大規模電子状態計算向けの手法の一つとして、ハイブリッド型密行列ソルバーを用いたライブラリであるEigenKernel (<https://github.com/eigenkernel/>)を開発した。一般化固有値問題として、「京」全体を使った

100万次元(世界最大サイズ)までの強スケーリング計算が達成されている[2]。さらに、シフト型クリロフ部分空間ソルバー(別ボスター「コデザインに基づく数理アルゴリズムとライブラリの開発」)を用いた、超並列ソルバーも開発した。これらソルバーを、自作電子状態計算プログラム ELSES (<http://www.elses.jp>)に用いた。ELSESは、第一原理に基づくモデル化(強束縛)電子状態理論による計算プログラムである。

特にシフト型クリロフ部分空間ソルバーは超並列性に優れ、「京」全体を使った1億原子電子状態計算を達成している[3]。さらに2019年には、Oakforest-PACS全体を使った約3億原子(世界最大)電子状態計算も達成している(図1)。並列効率(強スケーリング型)は $\alpha=0.91$ と非常に高かった。

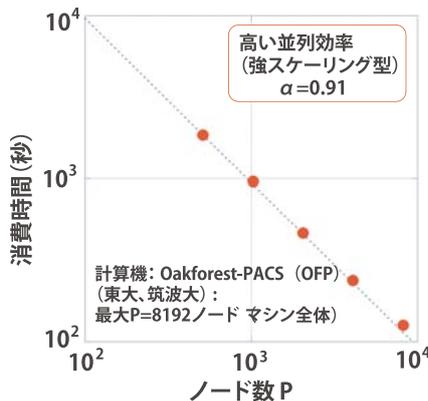


図1: Oakforest-PACS 上での約3億原子(世界最大)電子状態計算の超並列計算(強スケーリング)ベンチマーク。計算系:ダイヤモンド結晶。P=512ノードからP=8192ノード(マシン全体)までの並列効率は、 $\alpha=0.91$ 。

1 課題の目標 Development goal

「富岳」などを想定した超並列(最大100ナノメートルスケール系)電子状態計算を起点として、有機デバイス材料研究での産業展開を目指す。有機材料はフレキシブル(紙のように柔らかい)デバイスの基礎であり、有機トランジスタ・有機EL・有機太陽電池などの光電子デバイスが典型である。構造乱れ(disorder)が本質であり、(高)分子非理想構造集合体を中心課題となる。そのため、大規模(10-100ナノメートルスケール)系の計算が必須となる。我々は、固有値ソルバー(本課題)・シフト型クリロフ部分空間ソルバー(別ボスター「コデザインに基づく数理アルゴリズムとライブラリの開発」)などを基盤的数理手法とし、超並列電子状態計算を「京」上で実現した。2018年度からは、Oakforest-PACS上を主に用いている。これら研究は、HPCI産業実証課題[1]などを通じた、石田雅也・西野信也(住友化学)らと産学連携研究に発展している。

3 研究開発成果 Research & development results

▶ 有機デバイス材料研究への応用

以下4トピックを述べる; (i) 乱れた有機トランジスタ界面の大規模電子状態計算と準局在波動関数(図2): 松井らの電子スピン共鳴(ESR)実験[4]を対象として、ペンタセン(半導体層)・パリレンC(アモルファス状有機高分子絶縁体層)からなる有機トランジスタ界面の大規模(数万原子系)電子状態計算を行った[3,5]。有機トランジスタは絶縁体層との界面で電流が流れるため、絶縁体層の物質選択や界面での電子状態の知見が重要となる。ESRスペクトル解析と符合する、数十分子に広がった準局在波動関数をえた(図2)。(ii) 乱れた有機高分子系に対するデータ駆動科学型分類: 有機デバイス材料の本質である構造乱れを定量的に扱うため、多数(最大1万)個の高分子系の電子状態を計算し、波動関数の空間的広がり(Participation Ratio)を記述とした分類解析(k-means法、主成分解析法)を行い、手法が有用であることがわかった[3]。(iii) 乱れた有機高分子集合体における励起電子計算 [1,6](図3、謝辞: 石田雅也・西野信也(住友化学)): 典型的な有機分子であるポリフルオレン(Poly-(9,9-dioctyl fluorene))に対して、2種の励起電子計算を行った。TDDFT型スペクトル計算(既存。コード名:RSRT)とELSESの電子状態計算を併用し、TDDFTスペクトルにおけるピークが、ELSESにおける数モノマーに広がった準局在波動関数に起因することがわかった。また、波束ダイナミクスによって、ホール波束の分子間伝道を再現した(図3)[6]。(iv) 光電

子デバイスを扱うためには、エキシトンダイナミクスなどの励起状態理論をモデル化して取り扱う必要があり、有機界面を想定したモデル理論構築手法の基礎的研究[7]にも取り組んだ。

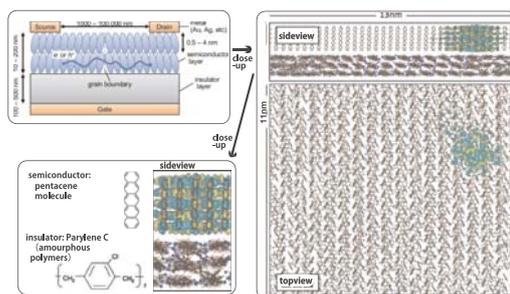


図2: ペンタセン(半導体層)・パリレンC(アモルファス状有機高分子絶縁体層)からなる有機トランジスタ界面の電子状態計算。デバイス概念図(左上)、計算系(右)、計算系の拡大図(左下)。

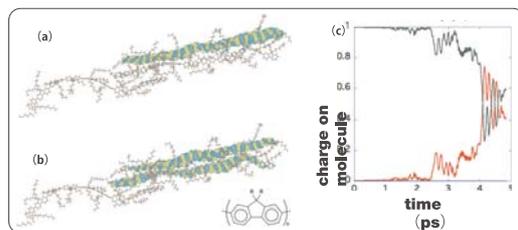


図3: ポリフルオレン集合体における、ホール波束の分子間伝導。時刻 $t=0$ ps (a)と $t=5$ ps (b)の波束の可視化。(b)右下には、モノマーユニットを図示した($R=C_8H_{17}$)。さらに、ホールの重みを分子ごとに計算し、主要な2分子における重み時間変化を描いた(c)。波束が1分子から2分子へと広がっていく様が見て取れる。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶ 大規模計算とデータ駆動科学による有機デバイス材料設計

本課題で得られた大規模(最大100ナノメートル)電子状態計算とデータ駆動科学を、本格的に融合させることにより、有機デバイス材料設計を行なっていく。これまでの(住友化学との)産学連携研究を進展させ、デバイスの「丸ごと」計算を実現したい。そこでは、大規模計算を大量に行い、そのデータをデータ駆動科学型解析にかけていく必要がある。また、キャリア波束ダイナミクス、エキシトンダイナミクスなどの励起状態理論をモデル化して取り扱うことで、光電子デバイスのプロセスを「丸ごと」扱うことを目指す。

参考文献

- [1] HPCI産業利用課題(実証利用): hp180079(京利用), hp190066(Oakforest-PACS利用)。
- [2] T. Hoshi, et al., Proc. ScalA16 in SC16, 33 (2016)。
- [3] T. Hoshi, et al., J. J. Indust. Appl. Math. 36, 685 (2019)。
- [4] H. Matsui, et al., Phys. Rev. Lett. 104, 056602 (2010); 松井他, 物理学会第68回年次大会27pXP-4 (2013)。
- [5] 角田他, 応用物理学会, 2018年9月。
- [6] M. Ishida, et al, HPCI Research Report 4, 37 (2019)。
- [7] T. Fujita, et al, Phys. Chem. Chem. Phys. 20, 26443 (2018)。

問い合わせ先 Contact information

星 健夫 Takeo Hoshi
hoshi@tottori-u.ac.jp

星 健夫 (鳥取大学)

共同研究者

田中和幸 (鳥取大学)

福島孝治 (東京大学)

中西義典 (東京大学)

山本有作 (電気通信大学)

深谷 猛 (北海道大学)

吉見一慶 (東京大学)

1 課題の目標
Development goal

先進数理アルゴリズム研究と次世代超並列計算機(「富岳」、米国エクサマシンなど)を基盤として、先端測定技術に対する高速・高信頼データ解析を実現する。データ駆動科学の普及で、過去実験から実験条件が自動最適化できるようになり、合成・測定は飛躍的に加速した。しかし、構造データ(逆問題)解析は、専門家が知識と経験に基づいて数日~数週間かかり、未解決に終わる場合も多く、物質開発のボトルネックとなっている。この背景から実験家からの要望を受け、取り組んでいる。

本課題では、3種の量子ビーム(陽電子線・エックス線・電子線)回折実験を対象に、先端材料研究に重要な2次元物質(表面・界面)構造解析に注力している(図1)。実験系共同研究者は、陽電子線(全反射高速陽電子回折, TRHEPD)については望月 出海(KEK 物構研)・高山あかり(早稲田大)らであり、エックス線回折・電子線回折(LEED)については白澤徹郎(産総研)ら、である。特に、陽電子実験[1]、高速エックス線実験[2]は、近年の日本発ブレークスルーである。共同研究は2018年から検

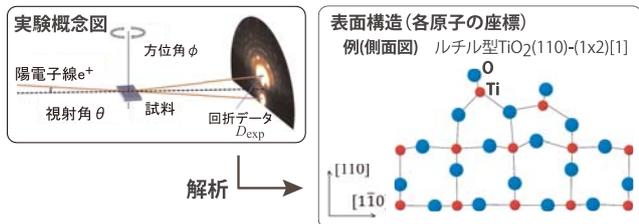


図1: 全反射高速陽電子回折(TRHEPD)を用いた表面構造解析。(左図)実験概要図。(右図)表面構造例[1]。

討を始め、陽電子実験を対象とした科研費(基盤B: 19H04125)に発展した。

2 アプリケーションの開発
Application development

▶PAMC (Population Annealing Monte Carlo)

アルゴリズム全体としては、探索型逆問題解析である。回折データDから、原子構造(原子座標X)を特定する(D→X)。多数回の順問題(X→D)を解き、回折データが実験に一致する原子座標を探す。順問題は、3種ビーム(陽電子線・エックス線・電子線)ともに量子散乱問題(偏微分方程式)を理論基盤とするが、実際に用いられる数値計算手法は異なり、それぞれのソルバープログラムを用いている。

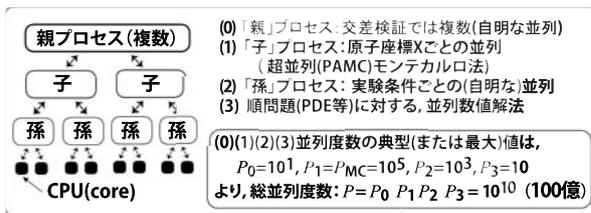


図2: 想定される4階層超並列計算の概念図(最大並列度数P=100億)

探索型逆問題アルゴリズムとしては、(i) 局所探索(Nelder-Mead法など)、(ii) グリッド型大域探索、(iii) モンテカルロ型大域探索(ベイズ推定)、の3種に取り組んでいる((iii)は開発中)。(i)は初期値依存性がある手法である。(ii)(iii)は初期値依存性がない手法であるが、総演算量が多くなる。(ii)(iii)は並列性能に優れており、スパコン向け手法である。上位ルーチンにPython・下位ルーチン(順問題ソルバー)にFortran/C

を用いた、言語複合型プログラムである。MPIを用いた並列化がなされている。3種の順問題ソルバーについても、それぞれのアルゴリズムに基づき、高速化を検討している(並列化、混合精度演算など)。

特に、次世代スパコンを想定した超並列アルゴリズムとして、福島

らによるPopulation Annealing (PA)型モンテカルロ法[3]の実装に取り組んでいる。現在よく使われる並列アルゴリズムであるレプリカ交換法よりもはるかに並列度を高く(10万並列以上)することができる。順問題が持つ並列性などもあり、全体としては4階層超並列計算となり全体としてP=100億までの並列度数を持つ(図2)。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題
Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶超並列計算統計による次世代先端測定技術

超並列アルゴリズムに基づき、実測定とデータ解析の融合による、次世代先端測定技術を創成する。超並列計算統計(モンテカルロ法)ではベイズ推定における事後確率分布として異なる不確かさ(uncertainty)を直接扱える。例えば、軽元素はとらえにくい(当該原子座標の不確かさが大きい)などの知見が、データ駆動科学の元に定量化される。発展として、実測定と同程度時間で解析を行う「リアルタイム」解析を目指す。これら高速・高信頼解析は、例えば高速エックス線解析を用いた電池充放電プロセスの直接観測[2]など、産業利用へと直結する。先端測定技術にデータ解析手法を融合させた革新の先例としてはクライオ電子顕微鏡(2017年ノーベル賞)があり、これに続くことを目指す。

参考文献

[1] Mochizuki, et al, Phys. Chem. Chem. Phys. 18, 7085 (2016); プレスリリース「30年来不明であった光触媒TiO2表面の原子配置を決定」 [2] Shirasawa, et al, J. Phys. Chem. C 121, 24726 (2017); プレスリリース「固体と液体の界面での原子の動きをリアルタイムに観察—燃料電池や蓄電池の性能に関わる固液界面現象の解明に期待—」 [3] Hukushima and Iba, AIP Conf. Proc. 690, 200 (2003) [4] 田中他, 物理学会, 2018年9月; 星, 応物学会(シンポジウム:陽電子回折による表面科学の新展開と高速化データ駆動科学), 2019年3月; Tanaka et al, SLOPOS15, Prague, 2019年9月。

3 研究開発成果
Research & development results

▶陽電子回折を用いた表面構造解析

3種ビーム(陽電子線・エックス線・電子線)のうち、陽電子回折についての成果を述べる[4](他2種は開発中)。スパコンでの予備的ベンチマークとしてはOakforest-PACS (OFP)の結果(図3)があり、OFP全体の1/4までの大規模計算を行って、高い並列効率(強スケーリング型) $\alpha=0.81$ を得ている。

テスト計算として、既知ルチル型TiO2(110)-(1x1)構造

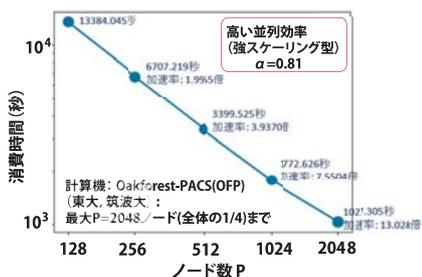


図3: Oakforest-PACSでの超並列計算(強スケーリング)ベンチマーク[4]。計算系:Si(001)-2x1。多波条件(xy方向測定)データを用いた、グリッド型探索。

(TRHEPD 実験は[1])を対象に、大域探索を行い、手法の有用性を確認した(図4)。具体的には、一波条件(z方向のみの測定)実験の回折データを用い、N=5自由度探索(O1, O2, O3, Ti1, Ti2サイトのz座標が探索自由度)を行った。アダプティブメッシュを用いた多段グリッドを利用した。粗い均一グリッドの計算結果に対して(標準的次元削減手法である)主成分分析を行い、酸素3サイトの座標からなる3次元データ空間が支配的(寄与率=99.4%)であることを得て、この知見から多段グリッドが実現した。

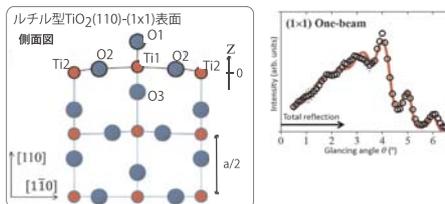


図4: 陽電子回折実験データを用いた、テスト計算[4]。(左図)対象系:ルチル型TiO2(110)-(1x1)表面(既知構造)。(右図)回折データ(ロッギングカーブ)における、実験(黒丸)と計算(赤線)の一致[1]。

問い合わせ先 Contact information

星 健夫 Takeo Hoshi
hoshi@tottori-u.ac.jp

遠山貴巳 (東京理科大学)

共同研究者

森田克洋 (東京理科大学)

曾田繁利 (理学研究所)

柚木清司 (理学研究所)

I 課題の目標 Development goal

強相関効果のために電子状態や励起ダイナミクスが密度汎関数法に基づく第一原理計算では十分に記述できない物質・材料に対しては、第一原理計算から抽出されたパラメータを持つ量子格子模型(ハバード模型やハイゼンベルグ模型など)を解析することがよく行われる。本課題ではそのような量子格子模型で記述される強相関電子系、量子スピン系の磁気・電荷励起(動的スピン構造因子、動的電荷構造因子、光学伝導度など)や非平衡ダイナミクスを計算する動的に拡張された密度行列繰り込み群法(Dynamical DM-RG=DDMRG)を共通基盤シミュレーション手法として開発・整備する。そして、このDDMRGを活用して、大型実験施設(J-PARC, SPring-8など)で行われる非弾性中性子散乱、共鳴非弾性X線散乱などの実験データ解析や新しい実験の提案を行い、大型実験施設との連携を強化することを目指している。

2 アプリケーションの開発 Application development

▶多様な量子格子模型に対応するDDMRGの開発と高度化

強相関電子系や量子スピン系を記述する有効格子模型のスピンの励起スペクトルを計算するDDMRGプログラムの開発と高度化を進めている。動的性質の計算のコア部分である補正ベクトルの計算には、独自開発したルジャンドル関数による多項式展開を使用している[1]。本プロジェクト前半で開発したDDMRGでは、その計算の主要な部分となる基底状態、及び励起状態の計算で必要とされる行列・ベクトル積を行列・行列積に変換し、必要な通信を3つのコミュニケーターに分割して通信を局在化させることで高い並列化効率と実行性能を実現している。DDMRGによる一次元ハバード模型の光学伝導度計算を「京」コンピュータで行った際の測定結果を図1に示す。「京」コンピュータ全ノード(82,944ノード)を用いた計算において理論性能比で70%以上の実行性能が確認された。

さらに、二次元量子格子模型の大規模並列化計算を効率的に行うため、まず全スピンのz成分が保存する特定の格子模型に焦点を当てて開発を進めた。ブロック対角化されたハミルトニアンをブロック間並列化を、異なるブロックを担当するノード間の一対一通信で対応した結果、大幅なメモリ使用量の減少と高速化が実現した。その結果、銅酸化物高温超伝導体を記述する有効格子模型であるt-t'-J模型の動的スピン・電荷構造因子を100格子点程

度で正確に計算できるようになった(研究開発成果参照)。次に、複数の軌道が同一格子点にある格子模型に焦点を当てて開発を進めた。異なる格子点間の複数の軌道に飛び移る電子のホッピング項とともに、クーロン相互作用に起因する、同一格子点内の異なる軌道間の電子ペアのホッピングを記述する項を正確に取り込めるようになった。この他、DDMRGの拡張版として超高速非平衡ダイナミクス計算のための時間依存DMRG(tDMRG)アルゴリズムの開発と高度化を進めている。

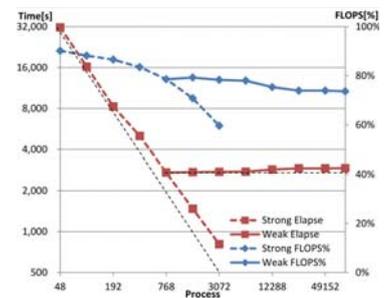


図1:「京」コンピュータにおける一次元ハバード模型の光学伝導度計算の計算時間(四角)と演算性能(三角)。破線はストロングスケールリング、実線はウィークスケールリングでの測定を示す。

3 研究開発成果 Research & development results

▶大型実験施設との連携を目指して

銅酸化物高温超伝導体の磁気励起:共鳴非弾性X線散乱実験との比較

ホールドープ系銅酸化物高温超伝導体では、ストライプ電荷秩序が存在するとき、その秩序の波数ベクトルで磁気励起分散に異常が起こることが共鳴非弾性X線散乱実験によって報告されている[2]。DDMRGで計算された4本足梯子格子t-t'-J模型の動的スピン構造因子は、この実験の特徴を明瞭にとらえた(図2)。波数ベクトル(0,0)-(π,0)方向の磁気励起に飛びが現れるが、その波数ベクトルはストライプ電荷秩序ベクトルと一致することを明らかにした[3]。新規一次元系量子スピン物質の磁気励起:非弾性中性子散乱実験との比較

スピン液体状態を示すことが期待されるダイヤモンド型一次元量子スピン物質K₃Cu₃AlO₂(SO₄)₄が新たに合成され、J-PARCの非弾性中性子散乱実験で多結晶の磁気励起スペクトルが測定された。磁化率の温度依存性から決定された磁気パラメータを持つ240サイトのハイゼンベルグ模型に対してDDMRGによる動的スピン構造因子の計算を行い、低エネルギーの構造は朝永・ラッティンジャー液体と同等、高エネルギーの構造は2本脚梯子量子スピン鎖で説明できることを示した[4]。さらに非弾性中性子散乱実験と多結晶平均化操作を施したDDMRG計算結果比較した(図3)。両者は定性的に良い一致を示しており、K₃Cu₃AlO₂(SO₄)₄は低温では朝永・ラッティンジャー型のスピン液体状態であることが確認された[5]。

その他の成果

6×6サイトt-t'-Uハバード模型のDDMRGによる動的電荷構造因子の計算から電子ドープ型銅酸化物高温超伝導体の特徴的な低エネルギー電荷励起の提案[6]、6×4個の単位胞をもつ3軌道ハバード模型の酸素上の動的電荷構造因子の計算と酸素K吸収端共鳴非弾性X線散乱実験との

比較[7]、一次元モット絶縁体を記述する拡張ハバード模型のポンプ照射による波動関数の時間変化のtDMRGによる計算と解析[8]などがある。

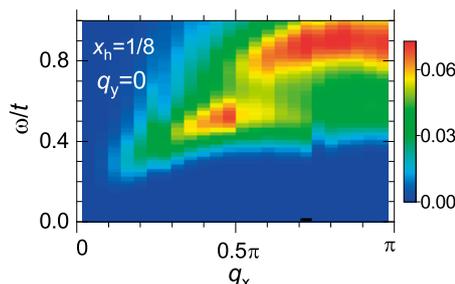


図2: 96格子点4本足梯子格子t-t'-J模型の動的スピン構造因子。横軸は波数ベクトル(0,0)-(π,0)に対応。キャリア密度x=1/8の基底状態ではストライプ電荷秩序を示すが、その波数ベクトル(π/2,0)に磁気励起の異常が見られる。

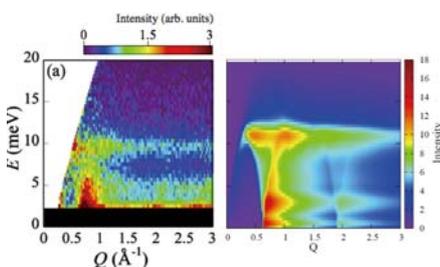


図3: J-PARCで実施されたダイヤモンド型一次元量子スピン物質K₃Cu₃AlO₂(SO₄)₄多結晶試料に対する非弾性中性子磁気散乱スペクトル(左)と240サイト・ハイゼンベルグ模型の動的スピン構造因子の多結晶平均の解析結果(右)。

4 スパコン「富岳」で取り組む課題 Problem target to work on in supercomputer "FUGAKU"

▶二次元系の実時間ダイナミクスと有限温度DDMRGに向けて

二次元強相関量子系の実時間発展

一次元強相関量子格子模型のDMRGに基づく実時間ダイナミクスの計算は本グループを含めて世界各国で行われている。しかし二次元系に対する計算は多くの計算資源を要するためほとんど行われていない。そこで、二次元強相関系のtDMRGのより効率的な大規模並列アルゴリズムを開発したうえで、その実時間ダイナミクスシミュレーションを実現する。

二次元強相関量子系の有限温度DDMRG

「京」コンピュータ利用における有限温度DDMRG法の実行は、一次元強相関量子系への適用に限定されていた。「富岳」を用いた場合には、二次元強相関量子系の有限温度DDMRGの実行も実現可能な計算になることが想定される。そこで、二次元系に対する有限温度計算を効率的に実行できる大規模並列DMRGアルゴリズムを開発し、それをDDMRGに実装することで応用研究を行う。

参考文献

- [1] S. Sota and T. Tohyama, Phys. Rev. B 82, 195130 (2010). [2] H. Miao et al., Proc. Natl. Acad. Sci. USA 114, 12430 (2017). [3] T. Tohyama, M. Mori, and S. Sota, Phys. Rev. B 97, 235137 (2018). [4] K. Morita et al., Phys. Rev. B 95, 184412 (2017). [5] M. Fujihala et al., Sci. Rep. 7, 16785 (2017). [6] T. Tohyama, K. Tsutsui, M. Mori, S. Sota, and S. Yunoki, Phys. Rev. B 92, 014515 (2015). [7] K. Ishii et al., Phys. Rev. B 96, 115148 (2017). [8] K. Shinjo et al., arXiv:1901.07900.

問い合わせ先 Contact information

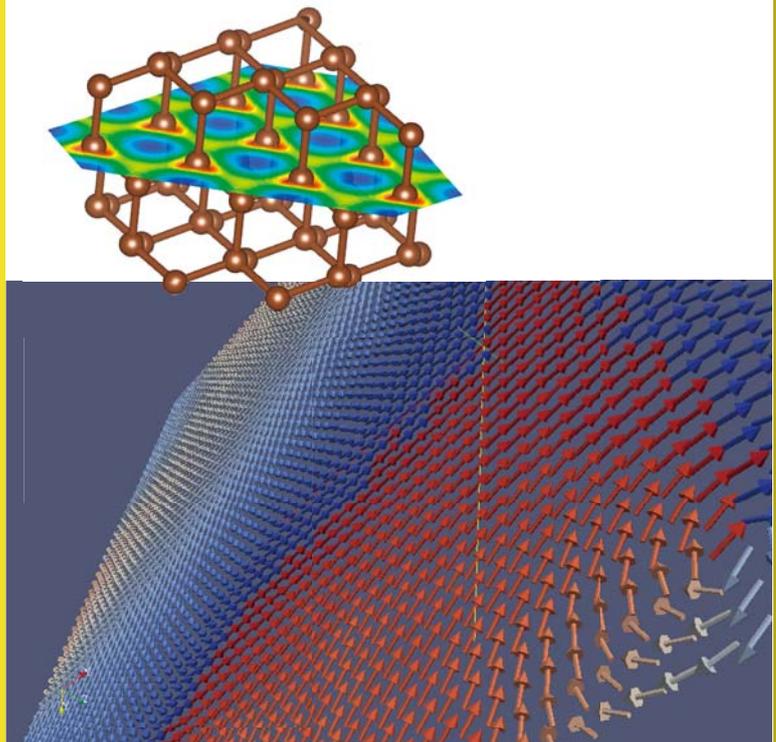
遠山貴巳 Takami Tohyama 曾田繁利 Shigetoshi Sota
tohyama@rs.tus.ac.jp sotas@riken.jp

MateriApps LIVE!

MateriApps LIVE! は、手持ちのノートPC などを使って計算物質科学アプリケーションを実行する環境を提供します。OS、エディタ、アプリケーション、可視化ツールなど、必要な環境が一つのファイルに収められており、仮想化ソフト VirtualBox から起動することで、インストール作業なしですぐにシミュレーションを開始することができます。

左図：OpenMXとVESTAによるダイヤモンドの電子状態の可視化

下図：ALPSとParaViewによる二次元XY模型の低温相におけるスピント状態の可視化



CDMSIに関するお問い合わせ

東京大学物性研究所 計算物質科学研究センター

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5-1-5
adm-office@cms-initiative.jp