

デバイス機能予測のための第一原理と強束縛近似を連結した
大規模シミュレーションプラットフォームの開発
Development of large scale multiscale simulation platform
combining first-principles and tight-binding methods
aiming investigation of functionality of future devices

小野 倫也

筑波大学計算科学研究センター

1. 研究目的

近年の実験技術の向上により、数ナノメートルスケールの構造体を作成し、その構造、電子状態、電気伝導特性などを計測することが可能になっている。このように実験的研究のみでは明らかにすることが困難な問題に対し、実験的手法に加えて理論計算により各現象がなぜ起こるのかという内部のメカニズムを明らかにすることができれば、その応用、発展の可能性がさらに広がるはずである。本研究では、第一原理電子状態・量子輸送特性計算のための実空間差分法に基づいた計算コードの開発と、計算モデルの大規模化に向け数理科学分野の研究者と連携した高速アルゴリズムの開発、開発したコードを用いた有機・無機デバイス構造機能予測シミュレーションを行う。

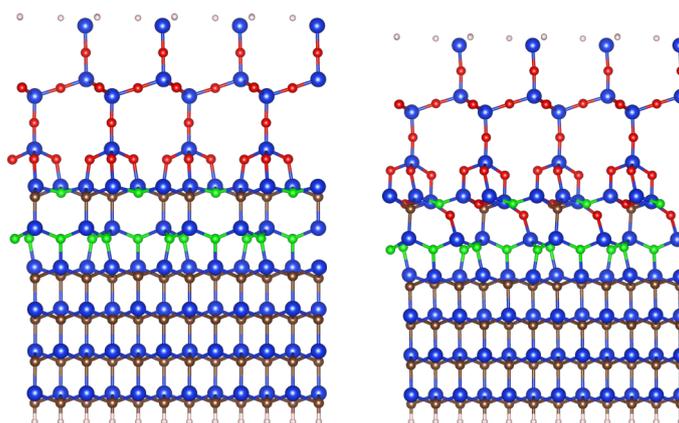
本プロジェクトの最終目標は、データ科学の手法を援用して大規模第一原理輸送特性計算から強束縛近似用のパラメータを抽出する方法を開発し、超大規模デバイス構造解析・機能予測シミュレーションを実現することである。平成30年度の実施項目は、大規模シミュレーションを実現すべく OFP における計算方法、計算コードの改良と高速疎行列問題解法の開発、有機・無機 FET 界面の原子構造と電子移動解析および高機能物質・界面構造のデザインである。

2. 研究成果の内容

第一原理計算コード RSPACE の開発に関しては、伝導計算のボトルネックであった電極自己エネルギー計算部分を改良した。櫻井-杉浦法を用いて電極自己エネルギーを計算する場合、自己エネルギーの要素に急峻なエバネッセント波を取り込む必要がある。しかし、周回積分時に解く疎行列を係数行列とする連立方程式の計算コストは、ブロッホ係数の絶対値の対数に対して2乗に比例して増大することが問題であった。今年度は、周回積分の積分領域を複素平面上でリング状に分割することにより、従来法に対して最大で6倍高速化した。この方法を用いて、カーボンナノチューブの複素バンド構造を計算し、改良法の計算効率と精度の高さを実証した。

また、RSPACE を用いたシミュレーションとして、NO アニール後の SiC/SiO₂ 界面の原子構造探索を行った。パワーデバイスとして期待されている SiC/SiO₂ 界面の移動度は、NO アニールにより向上することが分かっているが、アニールによって導入された

Nの役割や界面にNが入った原子構造は、現在のところ不明である。今年度は、基板側にNが局在すると仮定して、界面原子構造を調べた。その結果、N原子は、基板内部よりも界面第一層に存在する方が安定で、N原子面密度はSIMSの結果と矛盾しないこと、この界面原子構造はSiCのバンドギャップ中に欠陥準位を形成しないことが分かった。



図：NOアニール後のSiC/SiO₂界面原子構造。(左)窒素化界面。(右)酸化界面。青球、赤球、緑球、茶球は、Si、O、N、C原子。

さらに、有機トランジスタ界面を目的とした大規模(数万原子系)電子状態計算の基礎として、OFPでの超並列型の大規模固有値問題密行列ソルバーの構築と性能研究を行った。ミドルウェアEigenKernel2018年版(<https://github.com/eigenkernel/>)を開発し、OFP2048ノードまでの強スケーリング性能を得た。さらに、ベイズ推定(モンテカルロ法)を用いて、実計算前に性能(計算時間)を予測する手法を提案し、有用性を確かめた。そして、開発したコードを用いて、大規模(数万原子系)電子状態計算を行った。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、界面での電子状態の知見が重要となる。本研究では、界面伝導特性の基盤を担う、非理想構造を持つ数十nmスケールペンタセン薄膜の大規模電子状態計算を行った。ESRスペクトル解析(Matsui *et al.*, PRL104, 056602 (2010))と符合する、準局在波動関数(数十分子に広がった波動関数)が得られ、デバイス材料デザインの基礎を与えた。この研究に関し、国際会議招待講演をおこなった。

[(2)-(i),(ii)]

超並列型データ駆動科学として、陽電子回折実験のデータ解析手法を開発した。本年度からの新規研究であり、物質表面構造を探索型逆問題解析(Nelder-Mead法、グリッド型探索)として特定する手法である。既知表面構造に適用し、手法の有用性を確かめた。

3. 学際共同利用として実施した意義

界面の原子構造決定は、多くの計算資源を必要とするため、大規模計算機が必要である。SiC/SiO₂界面の研究成果は、大型計算機計算資源を提供する本学際共同利用があってこそ実現できたものである。また、大規模シミュレーション、基盤的超並列計算、超並列型データ駆動科学など、OFPの超並列性によって初めて可能となった研究である。

4. 今後の展望

代表者の小野は、本プロジェクトで開発中のコードを用いて、ドイツ・ユーリッヒ研究センターの研究者とコードの高速化に関して、共同研究を行っている。また、プロジェクトメンバーの星は、研究成果を、超並列モンテカルロ法(ベイズ推定)へと発展させる科研費基盤(B)(2019-2021年度)をスタートさせた。さらに、星は、有機系計算を対象として、OFPでの全ノード計算を予定している。

5. 成果発表

(1) 学術論文

- (i) K. Takagi, T. Ono, First-principles study on leakage current caused by oxygen vacancies at $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ interface, *Jpn. J. Appl. Phys.* 57(6), 066501 1-4 (2018).
- (ii) S. Iwase, Y. Futamura, A. Imakura, T. Sakurai, S. Tsukamoto, T. Ono, Contour integral method for obtaining the self-energy matrices of electrodes in electron transport calculations, *Phys. Rev. B*, 97(19), 195449 1-15 (2018).
- (iii) S. Tsukamoto, T. Ono, S. Iwase, S. Bluegel, Complex band structure calculations based on the overbridging boundary matching method without using Green's functions, *Phys. Rev. B* 98(19), 195422 1-19 (2018).
- (iv) T. Hoshi, H. Imachi, A. Kuwata, K. Kakuda, T. Fujita, H. Matsui, Numerical aspect of large-scale electronic state calculation for flexible device material, *Jpn. J. Indust. Appl. Math*, in press.
- (v) K. Tanaka, H. Imachi, T. Fukumoto, A. Kuwata, Y. Harada, T. Fukaya, Y. Yamamoto, T. Hoshi, EigenKernel - A middleware for parallel generalized eigenvalue solvers to attain high scalability and usability, *Jpn. J. Indust. Appl. Math*, in press.

(2) 学会発表

- (i) T. Hoshi, HPC challenge in material science, International HPC Summer School 2018, 8 Jul. 2018, SciNet HPC Consortium/RIKEN R-CCS/XSEDE, Czech Republic. (invited talk).
- (ii) T. Hoshi, Organic device material research by the combination of large-scale massively-parallel electronic state calculation and data-driven science, Symposium on Materials Genome Towards Exascale, 10. Jun. 2018, Greece. (invited talk).
- (iii) 田中和幸, 星健夫, 一宮彪彦, 望月出海, 三木一司, 兵頭俊夫, 陽電子回折実験向け解析ソフトウェアの高度化, 物理学会 2018年9月.
- (iv) T. Ono, Evolution of ab-initio calculation based on real-space finite-difference

method for massively parallel computers, International Workshop on Massively Parallel Programming for Quantum Chemistry and Physics 2019, 15-17 Jan. 2019 Kobe, Japan (invited talk).

- (v) A. Hashmi, K. Nakanishi, T. Ono, Graphene and h-BN based symmetric and non-symmetric magnetoresistive junctions, 19th International Workshop on Computational Physics and Material Science: Total Energy and Force Methods, 9-11 Jan. 2019 Trieste, Italy.
- (vi) 星健夫, 陽電子回折における高度数理情報科学と測定技術の融合, 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, 応用物理学会, 2019年3月.(招待講演)

使用計算機	使用計算機 に○	配分リソース※	
		当初配分	追加配分
COMA	○	73,592	0
Oakforest-PACS	○	553,256	0
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。			