

ナノ物質の構造と機能のシミュレーション

- 戦略的基盤ソフトウェアの開発 -

大野隆央

独立行政法人 物質・材料研究機構
計算材料科学研究センター

戦略的基盤ソフトウェア開発プロジェクト

実施内容

我が国の基礎的レベルにある科学技術計算基盤ソフトウェアに対し重点投資を行い、新技術分野において国際競争力を確保するために不可欠な戦略的基盤ソフトウェアを開発。

次世代量子化学計算
タンパク質-化学物
質相互作用解析
ナノシミュレーション・
システム
次世代流体解析システム
次世代構造解析システム
HPCミドルウェア
統合プラットフォーム

試行錯誤から科学に基づく研究開発, 設計へ

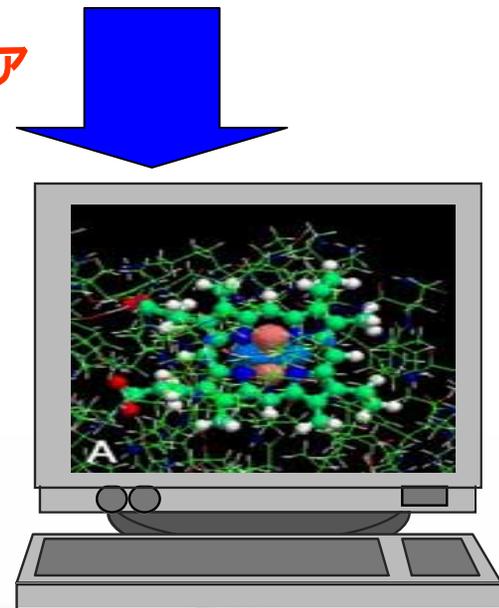
例: 医薬品開発



経験と感に基づく
じゅうたん爆撃的
探索

戦略的ソフトウェア
の開発

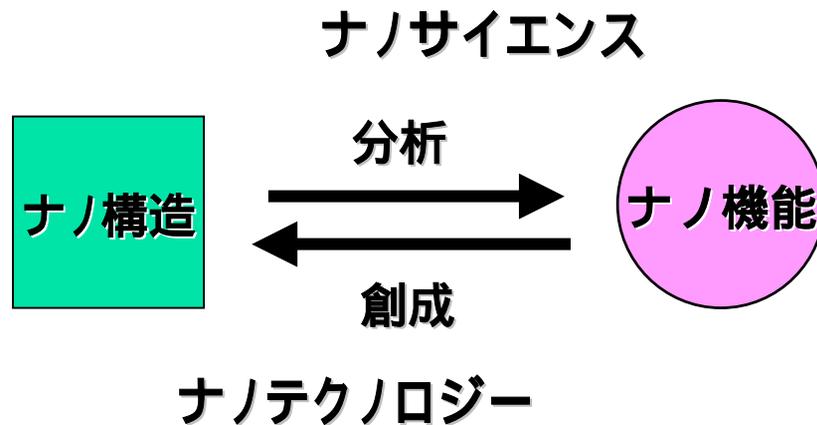
シミュレーション
に基づく効率的
医薬品の設計



戦略的基盤ソフトウェア開発プロジェクト

グループ名 「代表ソフトウェア名」	2003年6月公開ソフトウェア	
	名 称	機 能
次世代量子化学計算 「Protein DF」	Protein DF	大規模タンパク質の 量子化学計算
タンパク質・化学物質 相互作用解析 「ABINIT-MP BioStation」	ABINIT-MP BioStation Viewer	非経験的FMO法による 相互作用解析・可視化
ナノシミュレーション 「CHASE-3PT」	PHASE ※2003年9月公開	第一原理擬ポテンシャル バンド計算
次世代流体解析 「FrontFlow」	FrontFlow-blue FrontFlow-red	ターボ機械・流体音解析 燃焼・混相流解析
次世代構造解析 「NEXST」	NEXST-FMM-Fracture2D NEXST-MPS-Solid2D NEXST-FEM-Solid	2次元FMM破壊力学解析 2次元MPS法構造解析 3次元有限要素法構造解析
統合プラットフォーム 「RINDOW」	PSEワークベンチ	PSE対応ワークベンチ編集
HPCミドルウェア 「HPC-MW」	hpc-mw-solver-test	並列反復法ソルバー のテスト

ナノシミュレーション



理論とシミュレーションが必要不可欠

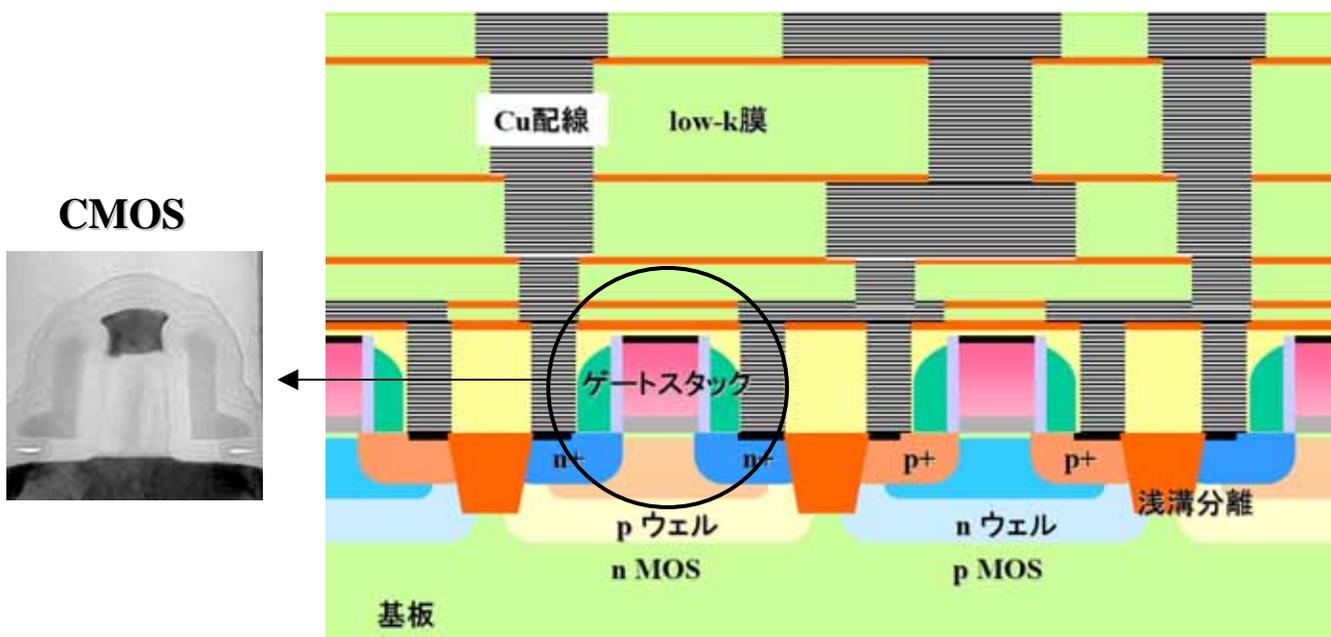
文部科学省ITプログラム「戦略的基盤ソフトウェアの開発」 (H14~H16)

ナノ物質分野: 「CHASE-3PT」

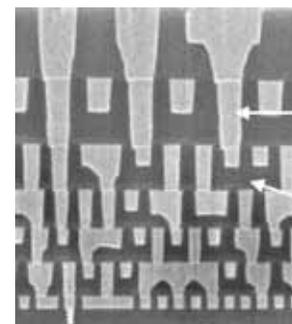
量子化学分野: 「Protein-DF」 「ABINIT-MP」

CMOSトランジスタの極微細化

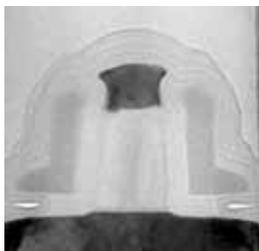
Si-CMOS-LSIの断面構造の概念図



多層配線構造



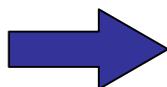
CMOS



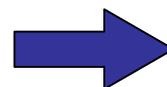
ATP合成酵素
(10nm)

CMOS-LSIの課題： ゲートリーク電流の増大

極微細化

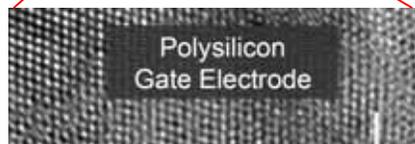
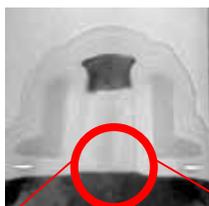


ゲートリーク電流の増大
消費電流・発熱の増大



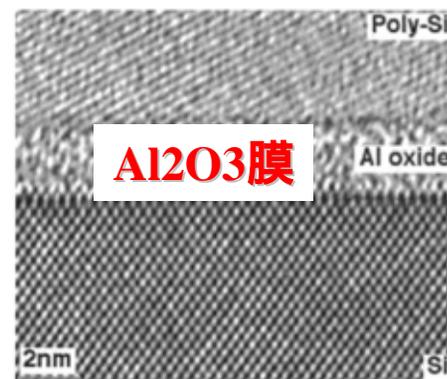
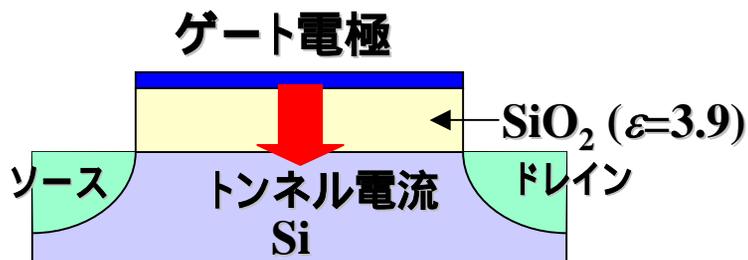
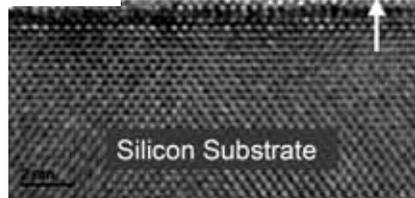
High-kゲート膜

90nm CMOS

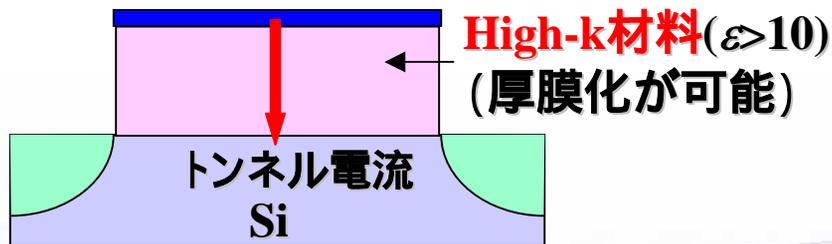


SiO₂膜

1.2nm



High-kゲートCMOS

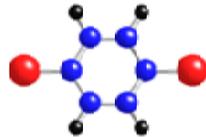
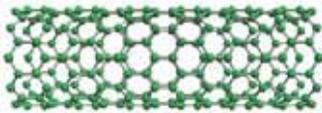


ナノデバイス戦略: Paradigm shift

Bottom-up paradigm



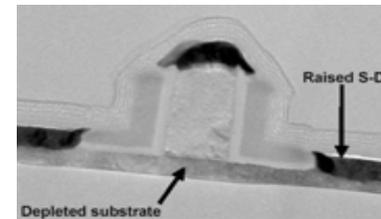
ナノサイズ構成要素



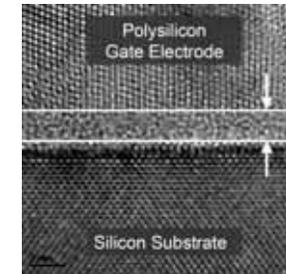
自己組織化

Chem/Bio-inspired assembly
Pre-patterning

Top-down paradigm



微細加工



Micro/nano fabrication
Micro/nano lithography
Micro/nano contact printing

ナノテクノロジーのためのシミュレーション

ナノ構造の創成・制御、機能の解析・予測
のための基盤シミュレーション技術

ナノスケール構造の複合体

- 大規模系
- マルチな空間・時間スケール
- マルチフェノメナ

量子論的大規模解析

第一原理手法：電子状態の高精度解析 (N^3 に比例)

オーダーN 第一原理手法：計算量が原子数に比例

Hybrid法：量子力学 - 古典力学 - 連続体力学

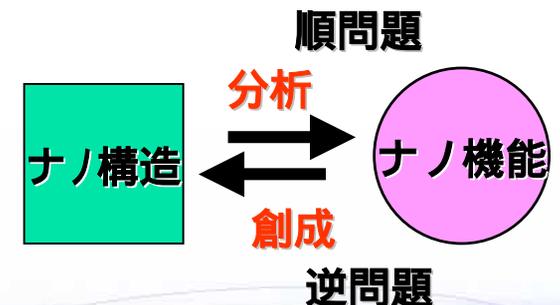
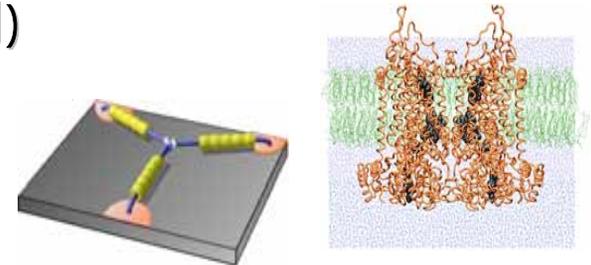
物性・機能解析

量子伝導、誘電的・磁氣的・光学的特性、機械的特性

逆問題解析

特性・機能から原子構造を決定(最適化法)

コンビナトリアル計算科学



密度汎関数理論

1964: 密度汎関数理論 (Density-Functional Theory) → 基礎理論

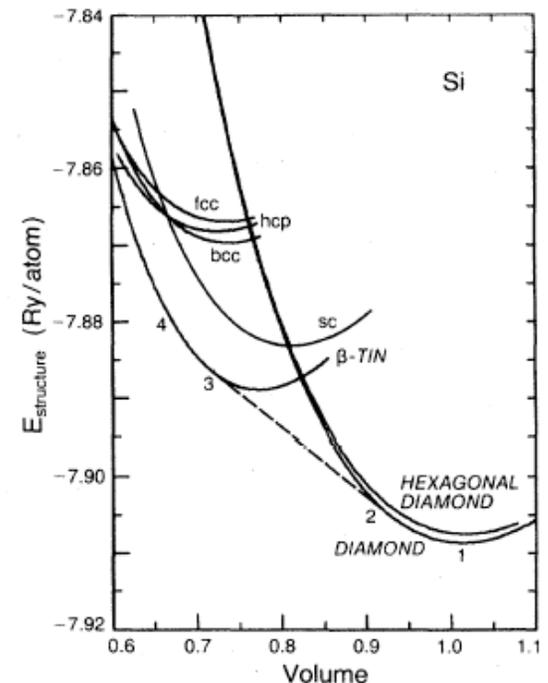
Walter Kohn: ノーベル化学賞(1998)

1982: 第一原理擬ポテンシャル法 (BHS) → 高精度な計算

Si結晶の構造 (1982)

格子定数等を1%以下の精度で解析

	Lattice constant (Å)	Cohesive energy (eV/atom)	Bulk modulus (Mbar)
Si			
Calculation	5.451	4.84	0.98
Experiment	5.429 ^a	4.63 ^b	0.99 ^c
Ge			
Calculation	5.655	4.26	0.73
Experiment	5.652 ^a	3.85 ^b	0.77 ^c



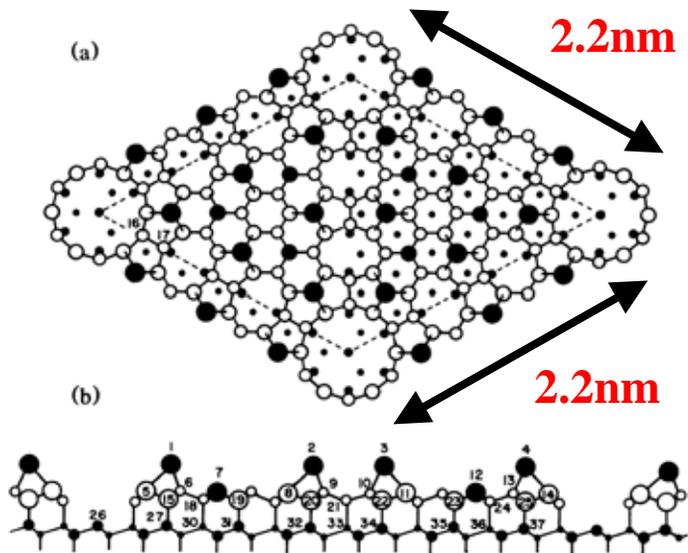
密度汎関数理論

1985: Car & Parrinello 法 → 大規模計算へのマイルストーン

Si(111)-(7x7)表面

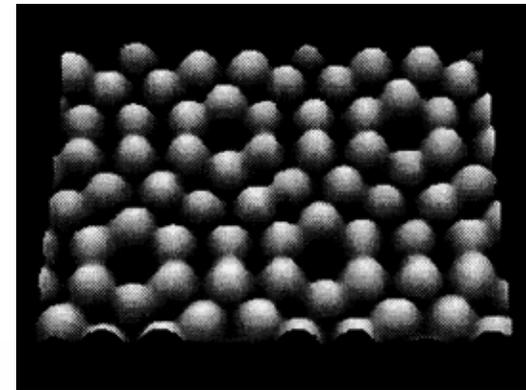
DASモデル(Dimer-Adatom-Stacking fault)
(高柳1985)

nmサイズの表面構造



第一原理計算による
DAS構造の検証 (1992)

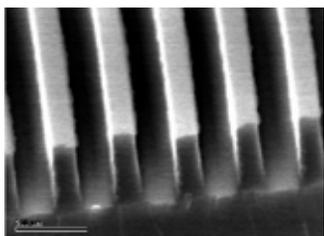
DAS構造の安定性
STM像計算と実験との一致



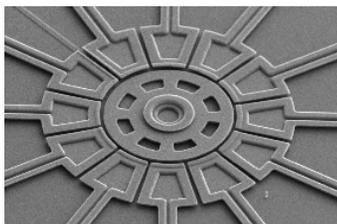
実効700Si原子

ナノシミュレーションシステム CHASE-3PT

ナノプロセス解析システム



MEMS解析システム



CHASE-3PT

基盤ソフト

PHASE
ABCAP
CIAO

大規模系

Hybrid
OrderN

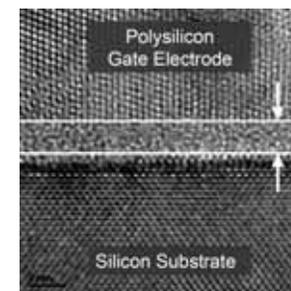
実験解析

STM
XPS

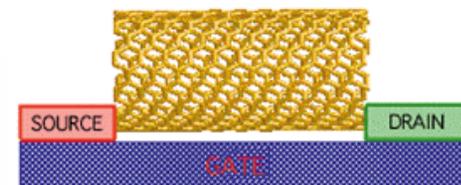
物性予測

Phonon
UVSOR
Trans

誘電体設計システム



伝導特性解析システム



基盤プログラム: PHASE, CIAO, ABCAP

基盤プログラム: PHASE, CIAO, ABCAP

- 擬ポテンシャルによる第一原理計算プログラム (**PHASE**)
 - 理論: 密度汎関数理論
 - 基底関数: 平面波(PW)
 - 交換相関汎関数: LDA, GGA
 - 擬ポテンシャル: Ultrasoft, Troullier-Martins (**CIAO**)
- 全電子による第一原理計算プログラム (**ABCAP**)
 - 理論: 密度汎関数理論 + GW近似
 - 基底関数: FLAPW
 - 交換相関汎関数: LDA, GGA, LDA+U

平成15年9月: プログラム公開 (基盤プログラム)

平成16年6月: PHASE機能拡張

平成17年6月: プログラム公開予定 (UVSOR, Hybrid)

<http://www.fsis.iis.u-tokyo.ac.jp/theme/nanoscal/>

擬ポテンシャル・データベース

2005年2月15日現在 **118元素**作成

Pseudopotentials (PP) generated by CIAO

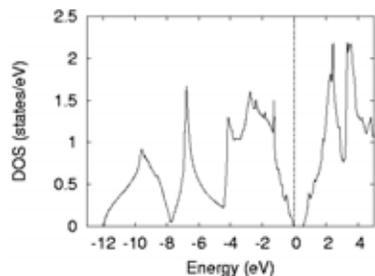
CIAOとPHASEで検査済
CIAOで検査済
未作成

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
	IA	IIA	IIIB	IVB	VB	VIB	VIIIB	VIII	VIII	VIII	IB	IIB	IIIA	IVA	VA	VIA	VIIA	VIIIA
1	H																	He
2	Li	Be											B	C	N	O	F	Ne
3	Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
4	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
5	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
6	Cs	Ba	L	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
7	Fr	Ra	A	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Uub	Uut	Uuq	Uup	Uuh	Uus	Uuo
L	Lanthanides		La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	
A	Actinides		Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr	

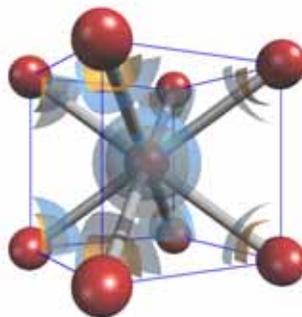
基盤プログラム: PHASE, CIAO, ABCAP

PHASE, ABCAP, CIAO

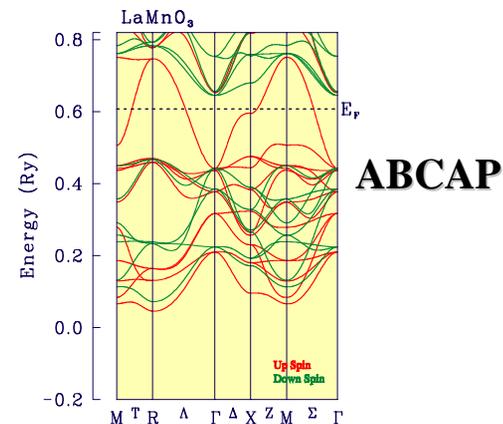
半導体Siの状態密度



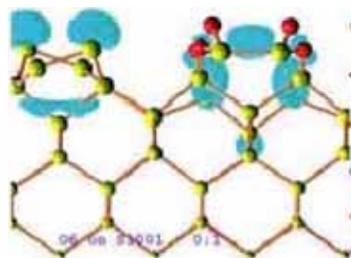
強磁性体Feのスピンドensity



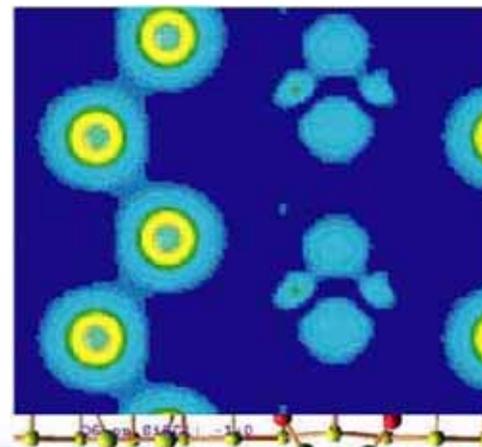
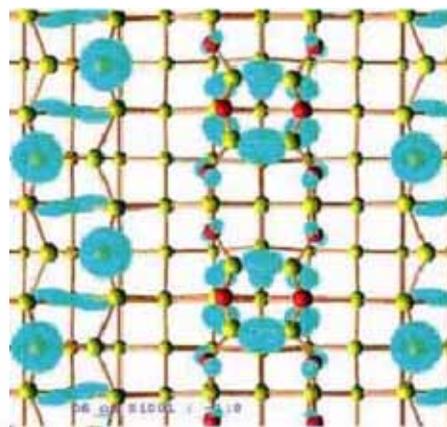
強磁性相LaMnO₃のバンド構造



酸化Si(001)表面の等電子密度面とSTM像



PHASE

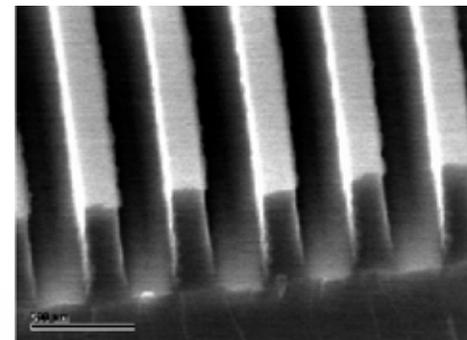
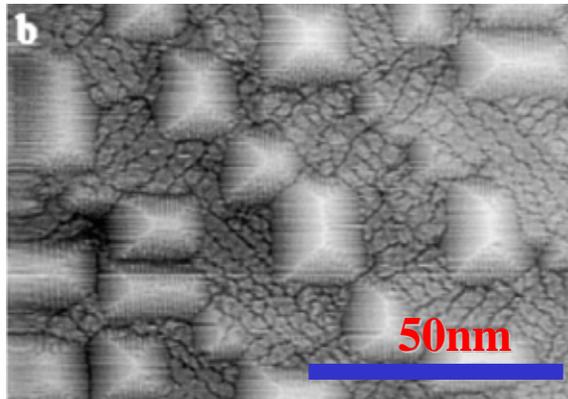


ナノプロセス解析システム

極微細加工

エピタキシャル成長	: CVD成長
エッチング	: Si表面、HfO ₂ 表面
酸化膜形成	: SiO ₂ /Si、HfO ₂ /Si
シリサイド形成	: TiSi ₂ /Si
窒化膜形成	: SiON/Si

Ge/Si Hut clusters



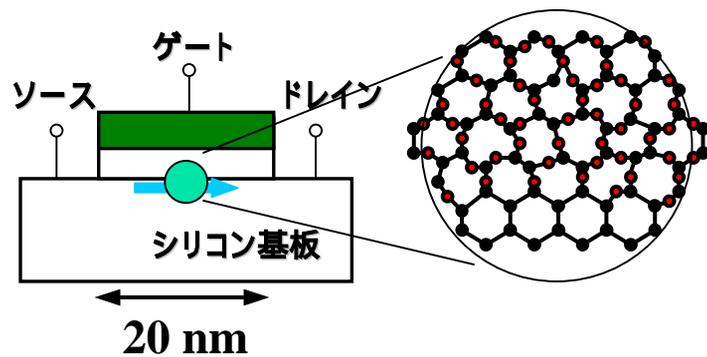
GeH₄ GS-MBE成長

ナノプロセス解析: Si/SiO₂ 界面欠陥構造

PHASE

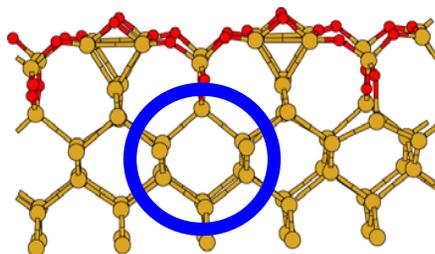
ナノ構造の形成過程・電子状態を第一原理手法に基づき解析

Si/SiO₂界面欠陥構造の生成過程

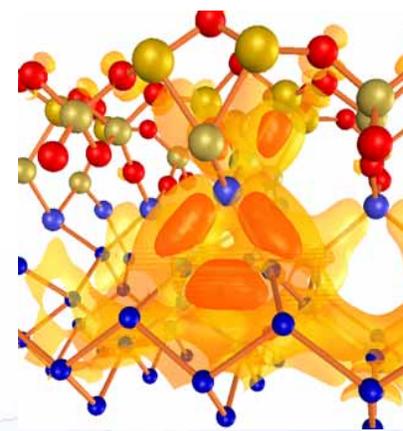
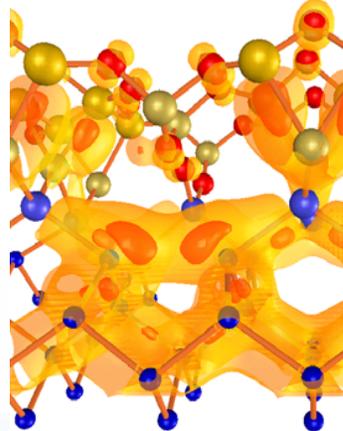
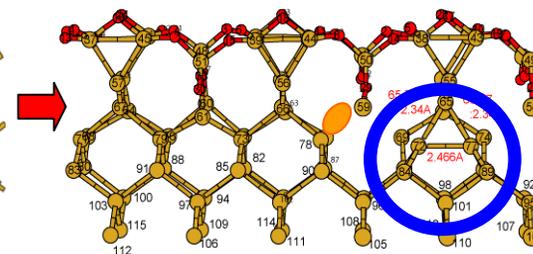


約400原子

weak bond



Pb0 + trimer



界面ナノ構造の解析

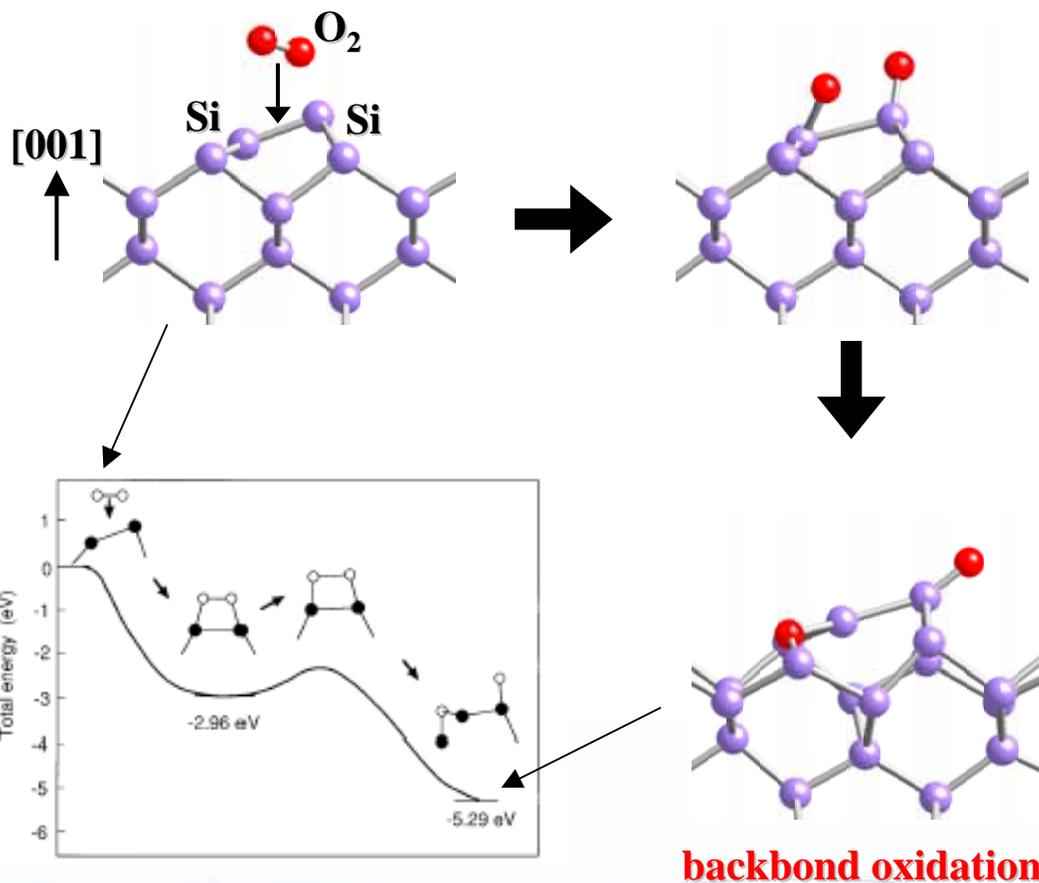
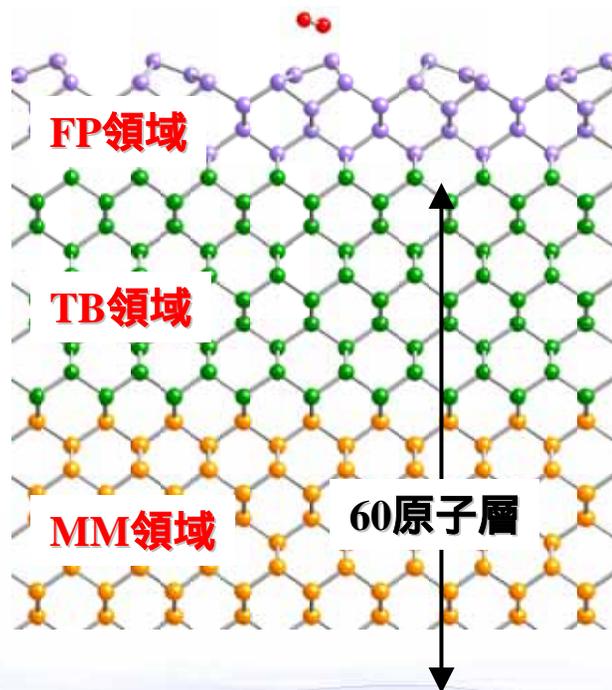
Si/SiO₂ 界面
Si/HfO₂ 界面
表面-分子界面

ナノプロセス解析: Si表面の酸化過程

CAMUS

Si(001)表面の酸化過程

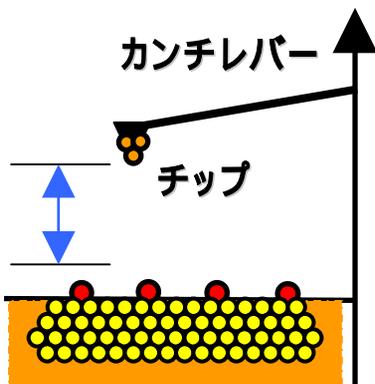
FP/TB/MMハイブリッド計算



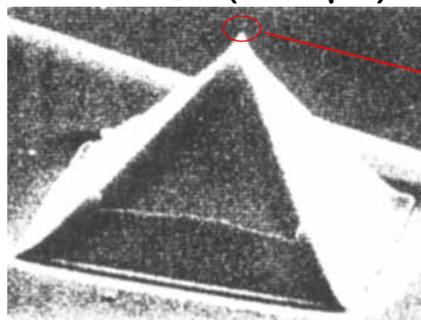
ナノプロセス解析: AFM探針先端構造

CAMUS-FSIS

表面構造の観察: 原子間力顕微鏡 (AFM)

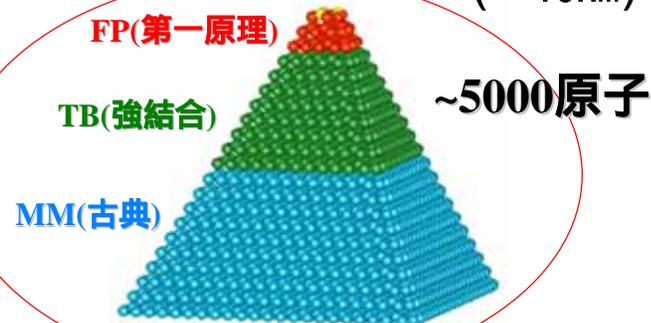


SEM像 (~ 数 μm)

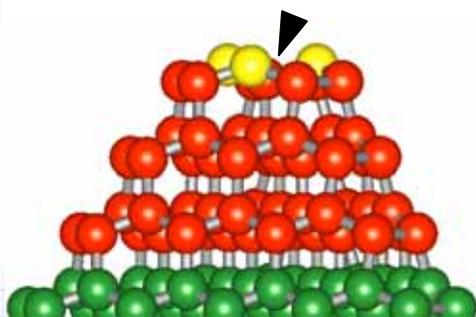


探針先端ハイブリッド計算

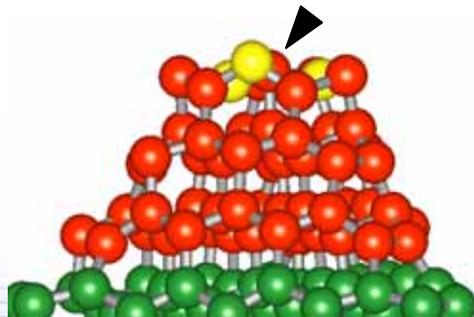
(~ 10nm)



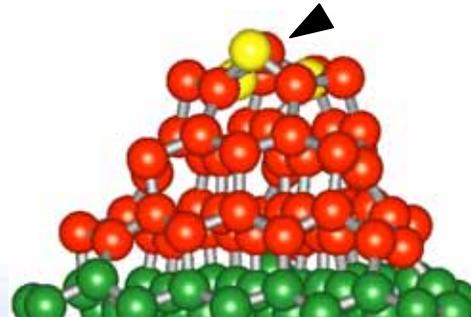
0.0 psec



0.1 psec



0.2 psec

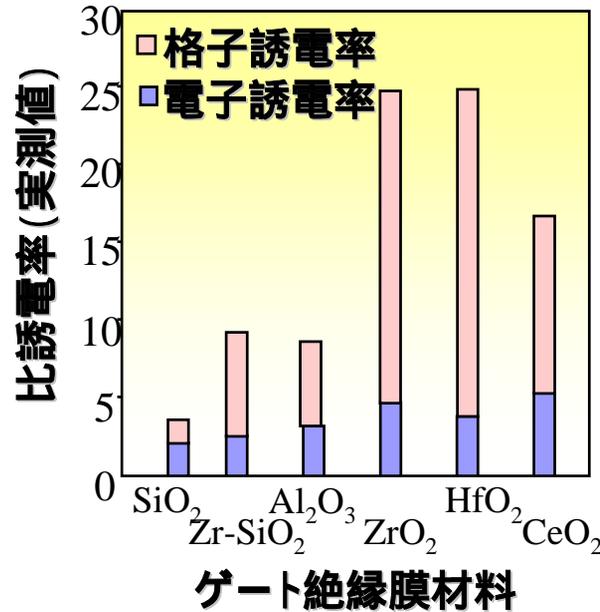
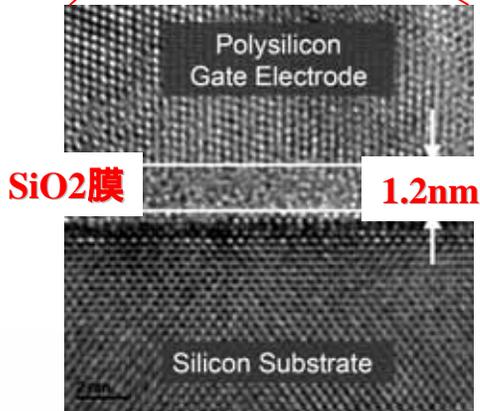
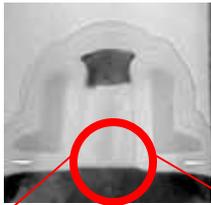


先端Si原子
の突起?

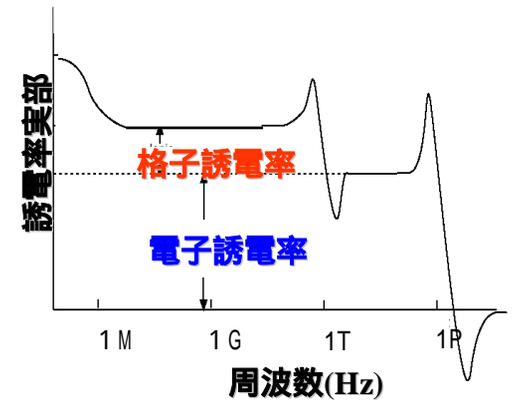
誘電体設計システム

SiO₂に代わる高誘電率ゲート絶縁膜材料の探索

90nm CMOS



本システムの特長：
M-PHz域での誘電応答解析



イオン振動に起因する格子誘電率が大きい

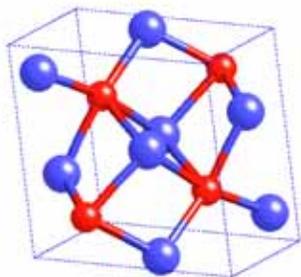
誘電応答: HfO₂, Al₂O₃

UVSOR

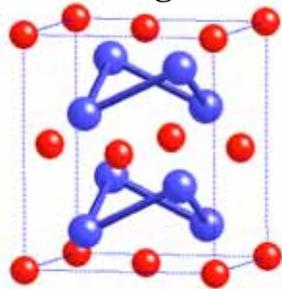
高誘電体HfO₂, Al₂O₃の誘電率

HfO₂結晶

Monoclinic

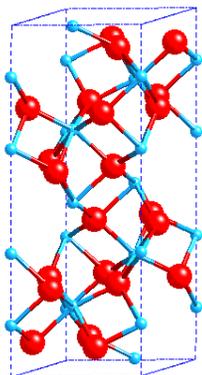


Tetragonal



ϵ_{ave}	Lattice	Electron	Total
Cubic	25.46	5.23	30.69
Tetragonal	39.17	5.04	44.21
Monoclinic	11.14	4.74	15.88
Exper. (mon.)		~5	16~25

α -Al₂O₃結晶

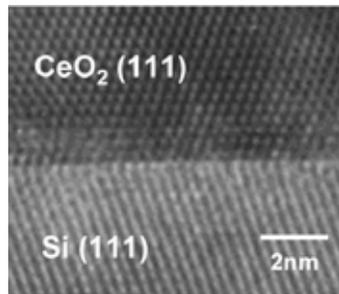


ϵ_{ave}	Lattice	Electron	Total
present	6.86	2.87	9.73
Exper.		3.06	9.68
		3.17	9.25

高誘電体設計： Ce酸化物エピタキシャル膜

UVSOR

Epitaxial CeO₂(111)/Si(111)

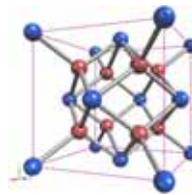


単結晶 CeO₂
(MBE: Ce₂O₃)

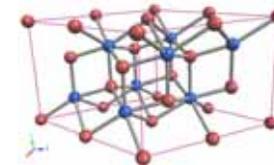
Siとの格子不整合
= -0.35%

- (1) CeO₂膜の誘電率 (= 52) > バルク値 (26)
- (2) CeO₂膜の格子定数aが0.6%増大 => Δε = 1.3
- (3) 酸素欠損の存在 (Ce₂O₃ ?) => 格子誘電率の微減

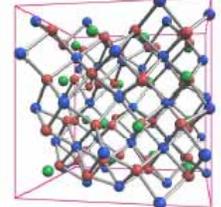
CeO₂ 蛍石型構造



Hexagonal Ce₂O₃

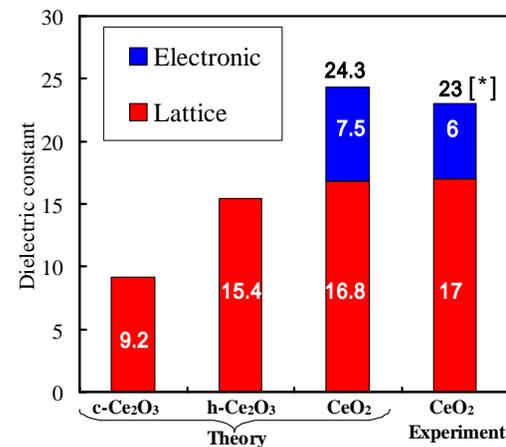
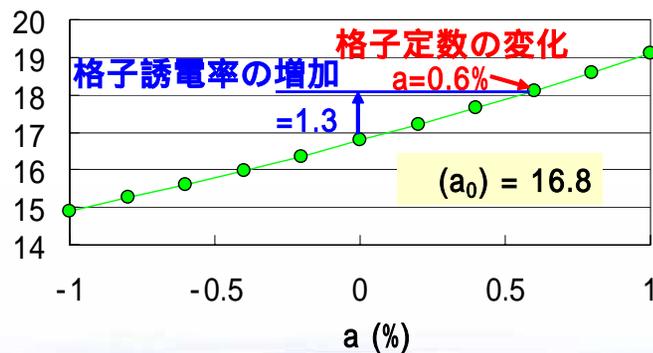


Cubic Ce₂O₃



格子定数a増加による格子誘電率変化

CeO₂の格子誘電率



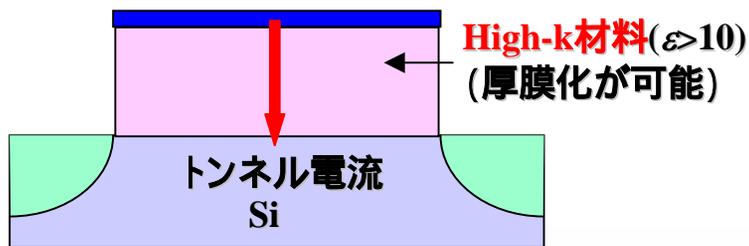
[*] N. I. Santha et al., J. Am. Ceram. Soc., 87 (2004) 1233.

伝導特性解析システム

ナノ領域の伝導特性を第一原理法に基づき解析
top-down型からbottom-up型までナノデバイス開発を加速

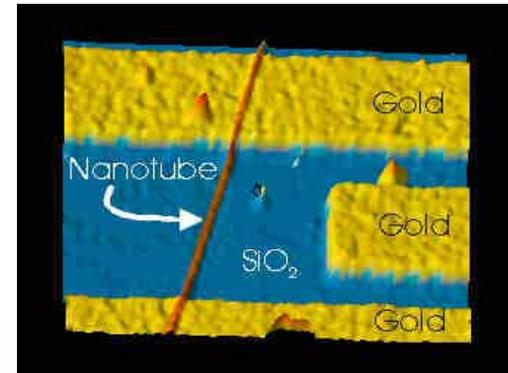
次世代以降半導体ナノデバイス設計

High-kゲートCMOSトランジスタのリーク電流



原子・分子デバイス設計

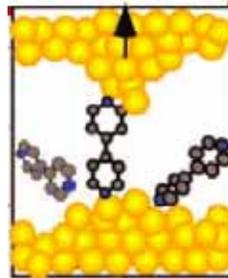
CNTデバイス(実験)



伝導解析

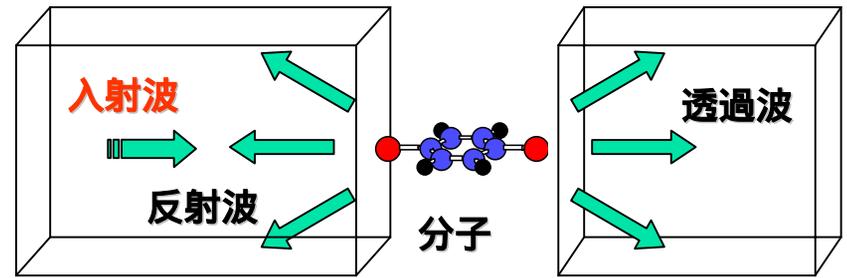
実験

単一分子の伝導特性？
電極 - 分子接点構造？



計算

開放・非平衡系 (vs. 周期系)
解析手法の確立？



Lippmann-Schwinger方程式

N. Lang, Phys. Rev. B 52, 5335 (1995)

広瀬・塚田, Phys. Rev. Lett. 72 150 (1994)、小林・塚田

非平衡Green関数理論 (NEGF)

J. Taylor, Phys. Rev. B 63, 245407 (2001)

M. Brandbyge, Phys. Rev. B 65, 165401 (2002)

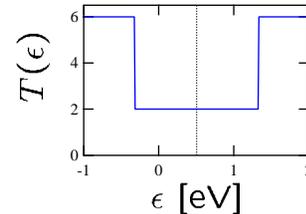
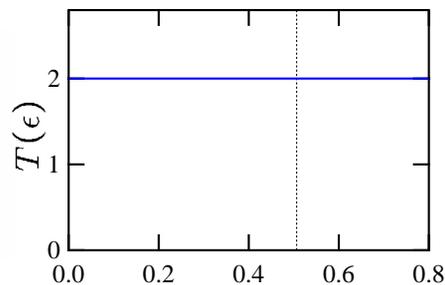
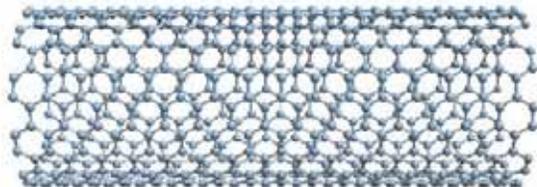
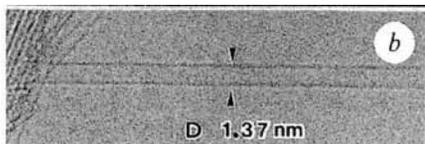
H. J. Choi and J. Ihm, Phys. Rev. B 59, 2267 (1999)

藤本・広瀬, Phys. Rev. B 67, 195315 (2003)

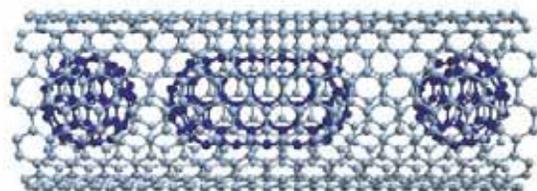
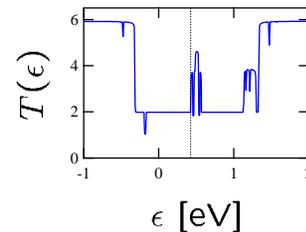
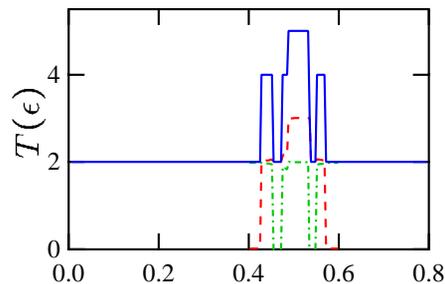
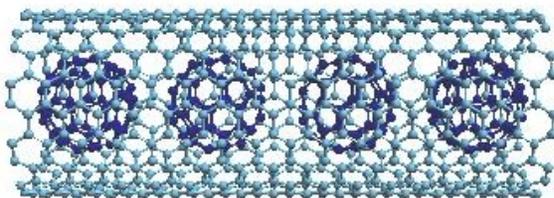
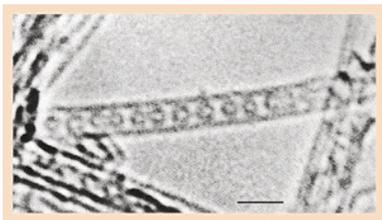
量子伝導：CNT伝導

TRANS

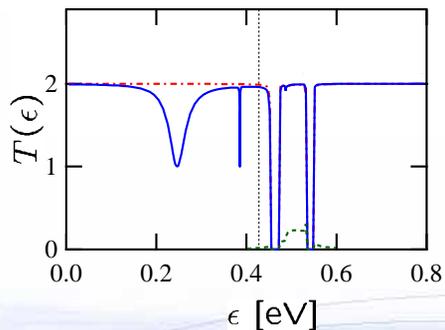
CNT



Peapod: C60@CNT

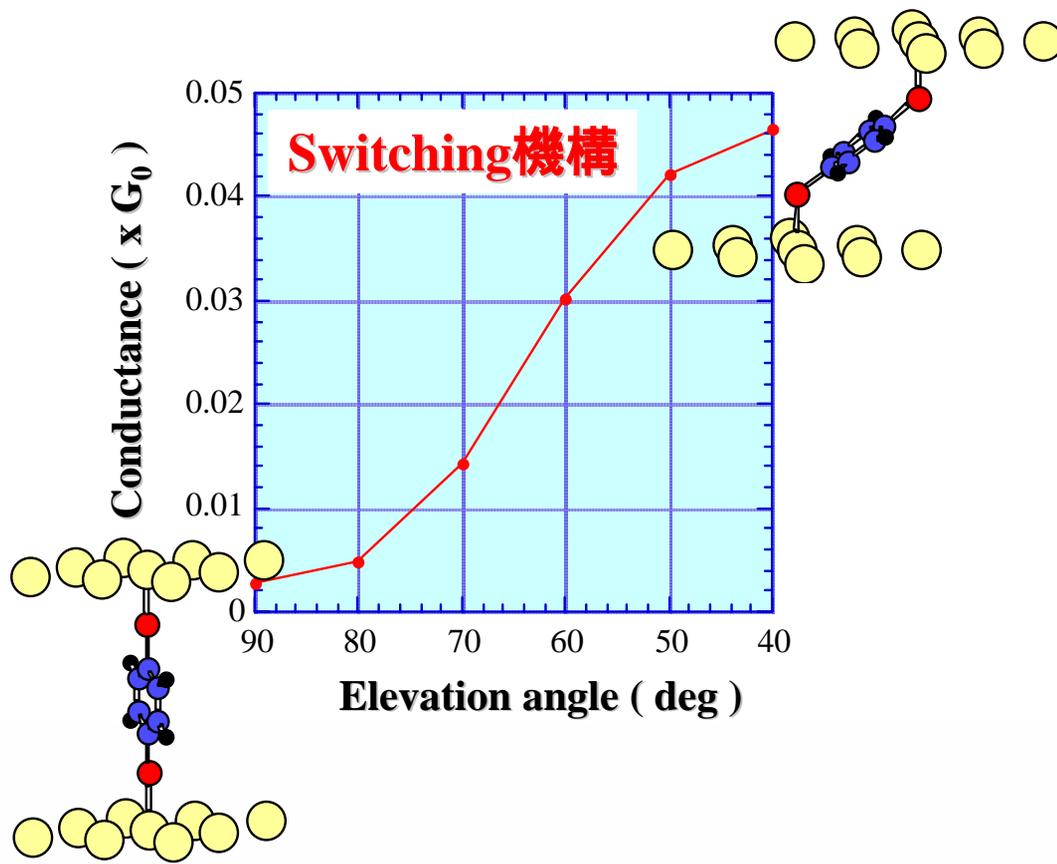


C120形成



分子伝導：吸着角度依存性

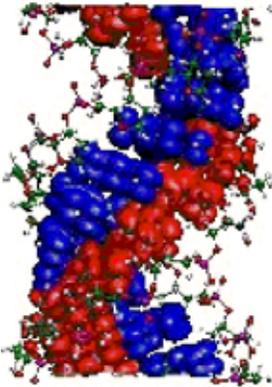
有機分子を通しての伝導特性



DNA: Poly(dG)-poly(dC)

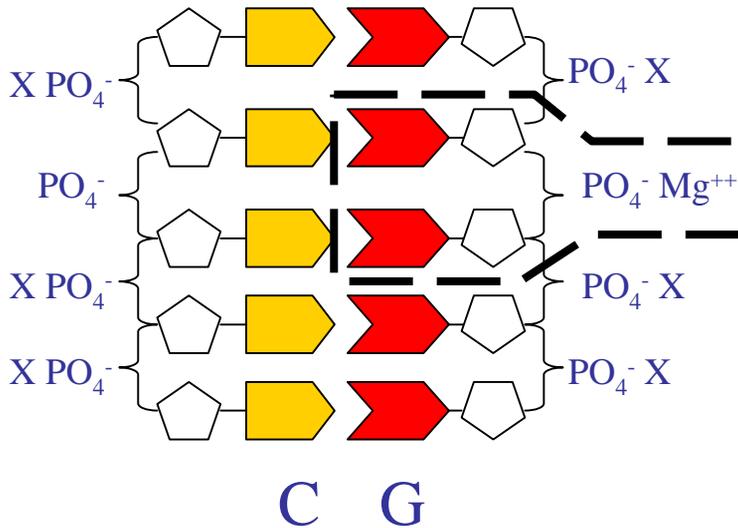
Poly(dG)-poly(dC)

絶縁体 (計算gap=1.4~2 eV)



Blue=LUMO, Red=HOMO

HOMO/LUMOはguanine状態



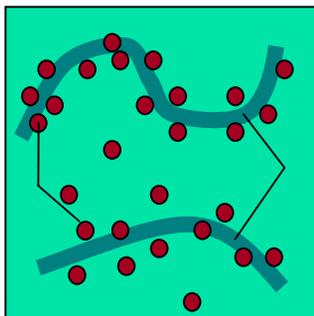
Mg⁺⁺ cation

G: guanine
C: cytosine

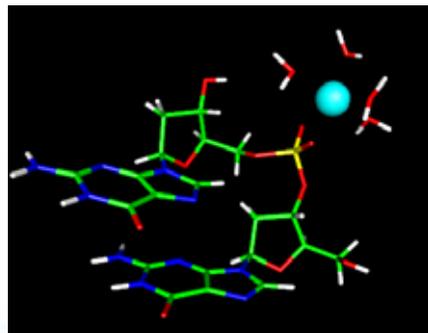
水和

無水化の効果

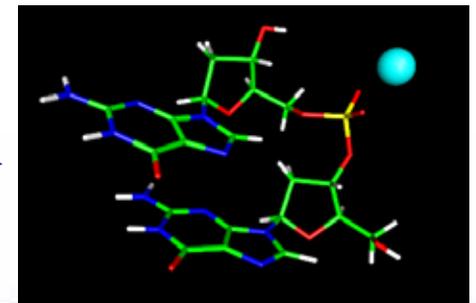
無水化



乾燥



乾燥

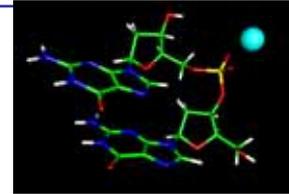
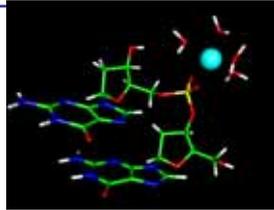


DNA: ドーピング

水和

無水化

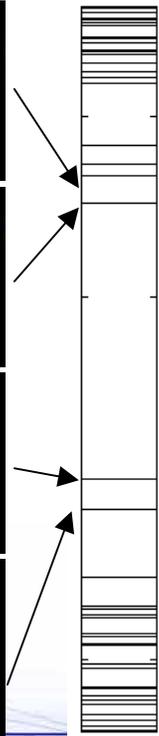
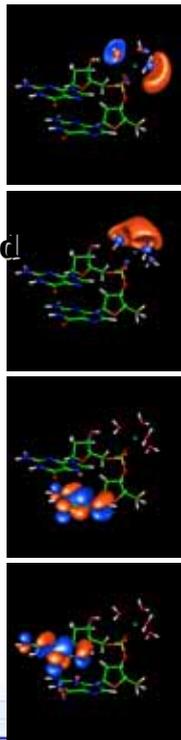
無水化の効果



Ferromagnetic状態

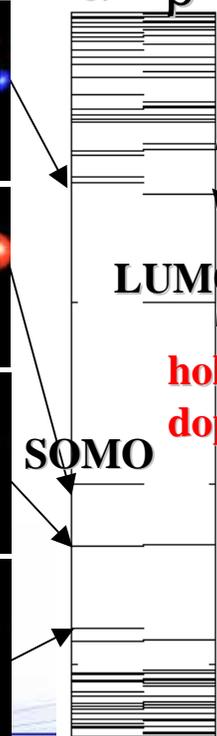
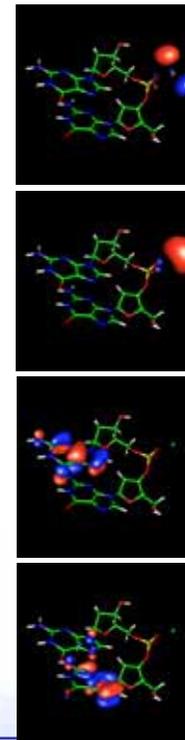
HF計算

s(Mg)-p(O) anti-bond



LUMO

HOMO



LUMO

SOMO

hole-doping

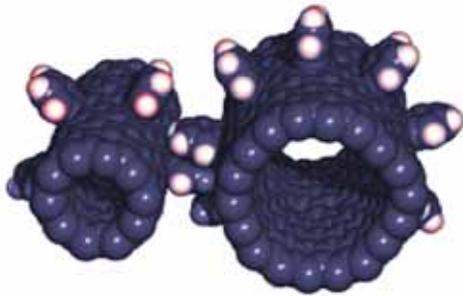
CNTを利用したNEMS

CNT

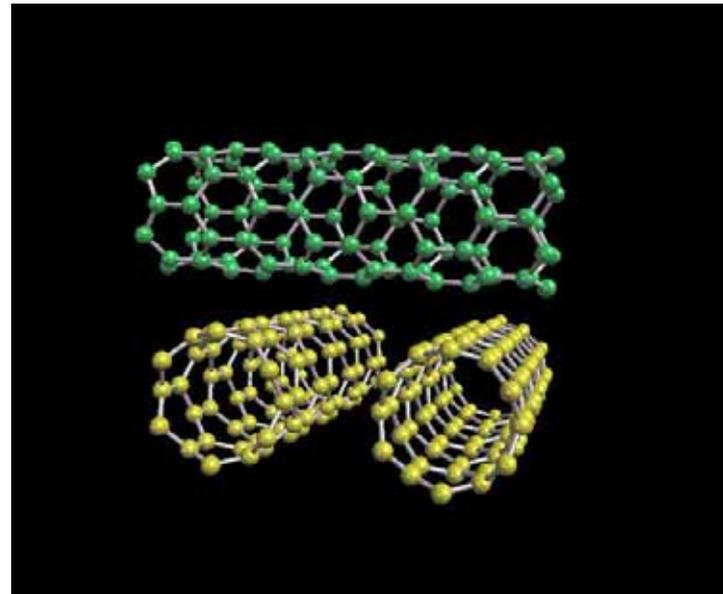
機械的に強靱



ナノ構造接触

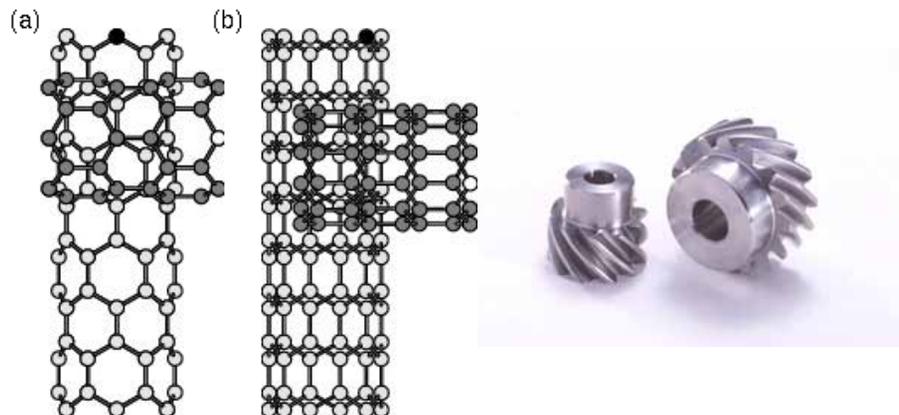


交差したCNTの接触

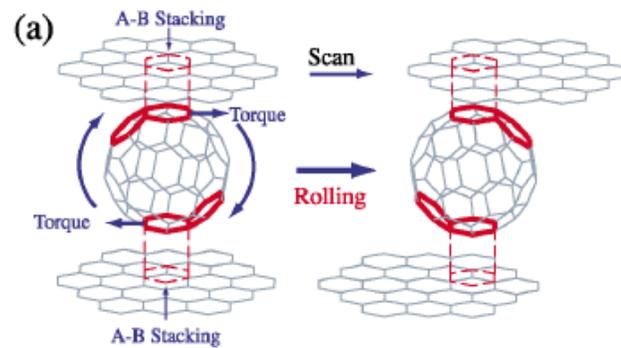


分子ギア： 提案

分子 screw gear

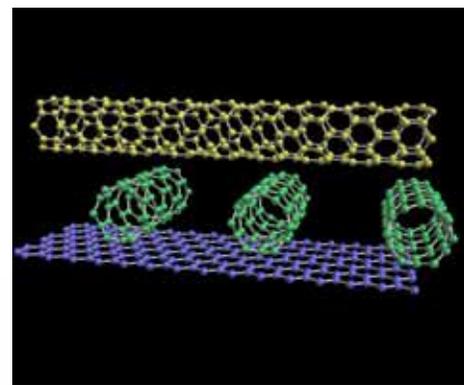
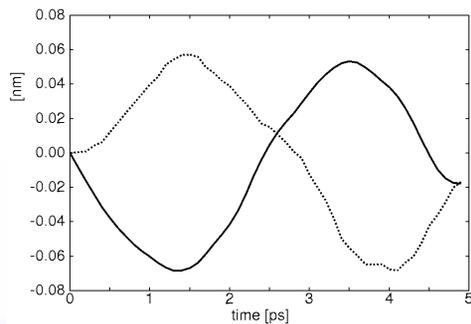


分子 bearing



K, Miura, et al, PRL 90, 055509 (2003)

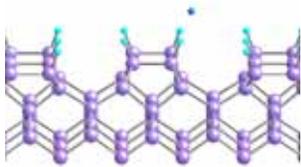
回転角度相関



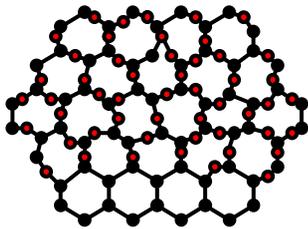
Takagi, Uda, and Ohno: JCP (in press)

ナノシミュレーションシステム CHASE-3PT

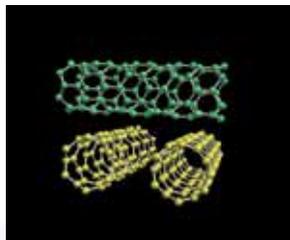
ナノ成長



界面



ナノ接触



CHASE-3PT

基盤ソフト

PHASE

ABCAP

CIAO

大規模系

Hybrid

OrderN

実験解析

STM

XPS

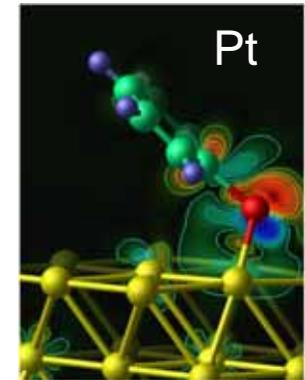
物性予測

Phonon

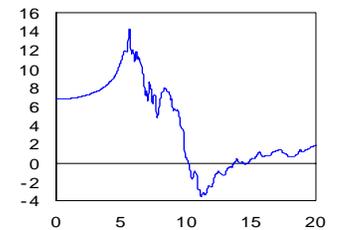
Epsilon

Trans

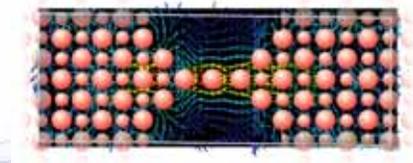
表面-分子系



誘電応答



量子伝導



普及のための施策

