

第一原理バンド計算ソフトウェア Advance/PHASE

小池 聰*

Outline of the First Principles Band Calculation Software

Advance/PHASE

Soh Koike*

1. はじめに

電気を良く通す性質をもつ金属、電気を通さない性質をもつ絶縁体、不純物を少量添加すると電気を通す性質をもつ半導体等、導電性1つを取っても物質により性格が異なる。物質における導電性は、量子力学を導入して初めて理解することができる。材料の研究・開発において、量子力学的效果を考慮することが、きわめて重要である場合が少なくない。

原理的には量子力学の基礎方程式であるシュレーディンガ方程式により、すべての材料の物性は予測できるはずである。しかし、シュレーディンガ方程式は、無限次元のヒルベルト空間上に解を持つ固有値方程式となっており、ごく一部の特殊な場合を除き、厳密に解くことはできない。近似を導入しても、ニュートン方程式に比べ膨大な計算量が必要となる。

近年のコンピュータの進歩により、膨大な計算量が必要となる第一原理バンド計算（量子論効果を取り入れた計算手法）も、現実的な時間で計算できるようになってきた。第一原理バンド計算ソフト自体の質の向上も手伝って、近年、企業の材料研究・開発の現場でも用いられるようになっている。文部科学省もこの状況を踏まえ、材料研究・開発の現場で用いられるソフトウェアの開発を目的としたプロジェクトを2002年より発足させた[1]。PHASE[2]はこのプロジェクトにおいて開発された第一原理バンド計算ソフトである。

アドバンスソフト株式会社は、当初よりプロジェクトに参画し、開発に携わってきた。また、産業界

*アドバンスソフト株式会社 技術第2部

2nd Technical Division, AdvanceSoft Corporation

での広範な利用を目指した使い易さを特長とする商用版である、Advance/PHASE[3],[4]を提供している。本稿では、Advance/PHASEの使い方について、Advance/PHASEの付属品であるチュートリアルマニュアルをもとに紹介していく。

2. Advance/PHASE の活用分野

表1に材料開発に応用された主な解析例と実施機関を示す。

表1 PHASEを用いた解析例と実施機関

No	課題	分野
1	仕事関数	半導体産業、研究機関
2	SiC/SiO ₂ 界面構造	半導体産業、自動車産業
3	Li ₂ 次電池	化学産業、自動車産業、研究機関
4	水素貯蔵合金	研究機関
5	触媒反応	自動車産業、研究機関
6	Na/H ₂ O 反応	研究機関
7	高誘電率材料	半導体産業、研究機関
8	化学反応経路	化学産業、研究機関
9	STM, AFM	分析機器メーカ、研究機関
10	XPS	分析機器メーカ

3. 機能

Advance/PHASEの機能を以下に列挙する。

- 全エネルギー、バンド構造
- 原子に働く力、構造最適化、弾性定数
- 分子動力学

定エネルギー、定温、温度制御は空間指定も可。

- 状態密度
系全体、原子軌道射影、層ごとの局所状態密度、原子の周り（球、ボロノイ多面体）での局所状態密度の表示可。
 - 仕事関数
 - 電子誘電関数
 - ボルン有効電荷
 - 格子振動
ラマン活性、IR活性の判別、分散曲線、状態密度表示が可能。
 - 格子誘電関数
 - ピエゾ定数
 - ヘルムホルツ自由エネルギー
 - 化学反応経路探索
Blue Moon 法
各種の拘束条件を用意
NEB (Nudged Elastic Band) 法
Meta-Dynamics 法
 - 剛体緩和法
基板への高分子の吸着解析のような場合に有効。高分子を剛体とみなした緩和を行うことで吸着サイトを高速で検索。
 - DFT+U 法
 - XPS
 - STM
表面からの高さに応じた電子密度の 2 次元マップの表示可。
 - AFM
各点での力曲線の計算。2 次元マップ表示はサポートしていない。

4. Advance/PHASE の使用例

本節では、Advance/PHASE 購入時に付属するチュートリアルマニュアルの中から使用例を抜粋して紹介する。より詳細な使用方法については、弊社までお問い合わせいただければ幸いである。

4.1. GUI の立ち上げ

GUI を立ち上げると図 1 の画面が現れる。以降、

図 1 の左側の①の部分をディレクトリブラウザと呼ぶ。ディレクトリブラウザにはプロジェクトとサブプロジェクトが表示される。ここで、プロジェクトとは、いくつかの計算を 1 まとめで管理するためのものであり、サブプロジェクトとは、実際の計算用ファイルが置かれたり、あるいは、計算が実行されるディレクトリのことである。

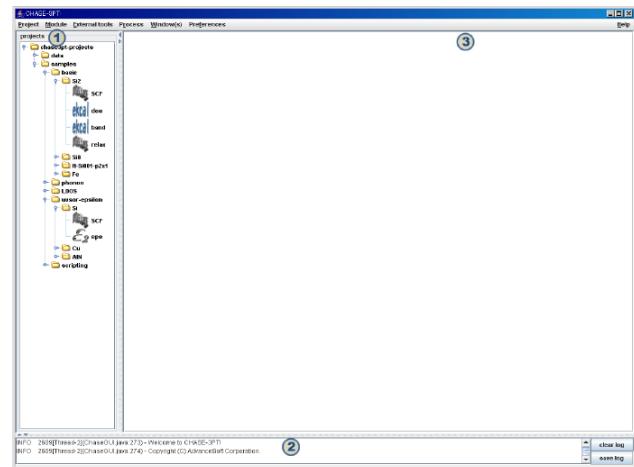


図 1 GUI 立ち上げ時の画面

プロジェクトは、図 2(a)で表示され、サブプロジェクトは図 2(b)～(e)で表示される。

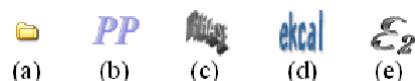


図 2 ディレクトリブラウザにおける表示

計算の進め方としては、以下の 2 種類が考えられる。

- (1) 予め準備されているサブプロジェクトの実行
 - (2) プロジェクト/サブプロジェクトを作成して実行

本稿では(1)の場合について説明する

4.2 SCF 計算

まずサンプルを使って Advance/PHASE で SCF 計算を行う。ディレクトリブラウザから samples →basic→Si2→SCF というノードをダブルクリックすると、計算制御用 GUI (図 3) が現れる。



図 3 計算制御用 GUI

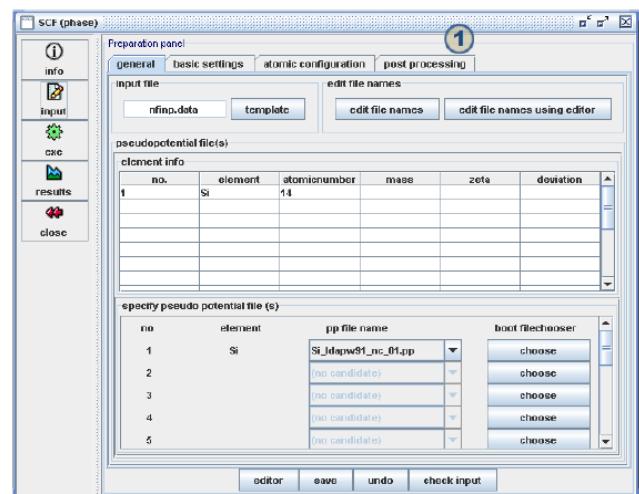


図 4 PHASE 入力編集画面

これはサンプルなので、計算はこのままでも実行できるが、ここではさらに、電荷密度の書き出しを行いうように修正してみる。図 3 の”input”ボタンをクリックすると、図 4 に示す PHASE 入力編集画面が得られる。この画面で、PHASE による計算条件の変更が可能である。図 4 中の①の”post processing”タブ選択し、”charge”タブをクリックすると図 5 の電荷密度出力設定画面が現れる。図 5 中の①の”charge output”を”on”とし、②の”file type”を”cube”とし、③の”save”ボタンをクリックすると、電荷密度が Gaussian の Cube ファイル形式で出力される。図 3 左側の”exe”ボタンをクリックすると計算が実行される。

計算が終了したら図 3 左側の”results”ボタンをクリックして結果の解析を行う。”results”ボタンをクリックすると、図 6 の計算結果解析画面が現れる。図 6 中の②の部分の”log”をクリックしたのち”SCF”タブを選択すると、図 7 が得られる。図 7において、”iteration”列をマウスで選択し、Control キーを押しながら”edelt”列をマウスで選択し、図 7 中の①の”quick plot”ボタンをクリックすると、図 8 が得られる。このようにして計算がきちんと収束しているかどうかを確認する。

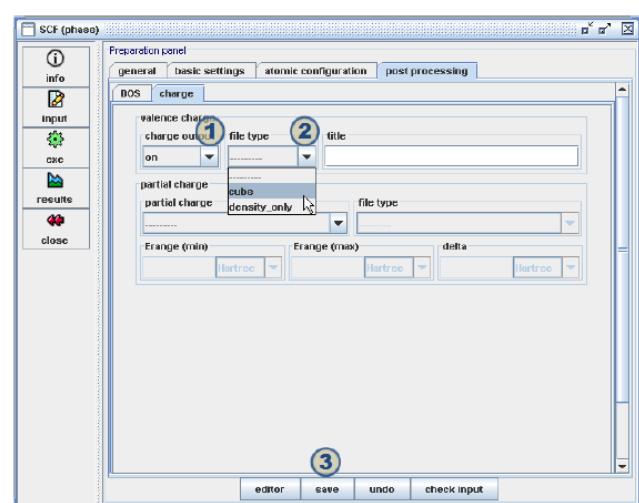


図 5 電荷密度出力設定画面



図 6 計算結果解析画面

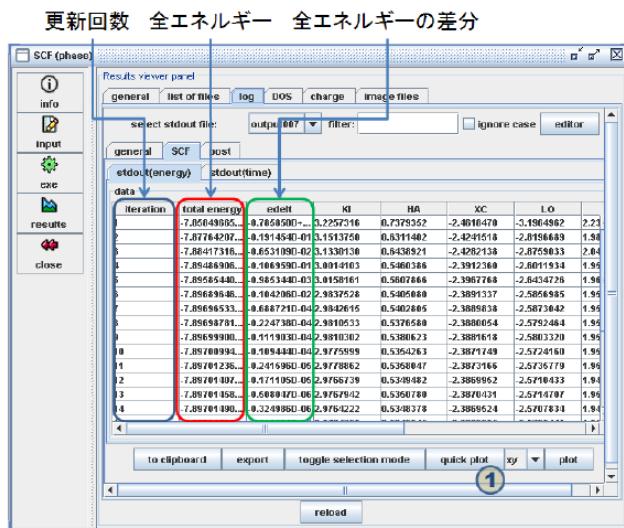


図 7 計算結果のログ表示

次に電荷密度を表示する。メニューから”Tools”→”charge density”→”isosurface”を選択し、等値面の値を入力したのち、”apply”ボタンをクリックする。図 9 のような等値面表示の絵が得られる。図 9 のディスクの絵をクリックすれば、この絵を電子ファイルとして保存することができる。このように、Advance/PHASE は GUI により、容易に計算の実行および結果の図を得ることができる。

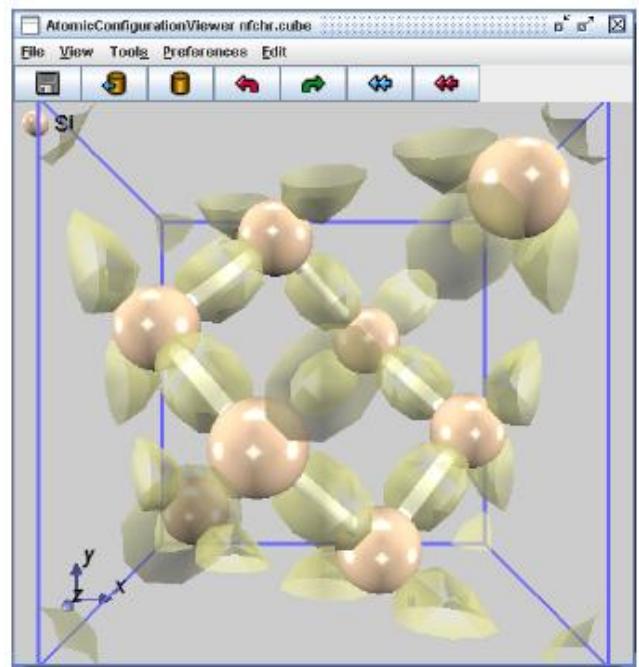


図 9 Si 結晶の計算結果（等電子密度面）

4.3. 状態密度計算

状態密度の計算に関しては、4.2 節の流れで計算する方法と、4.2 節の電荷密度の結果を用いて固定電荷の計算を行う方法がある。後者のほうが精度よく求められる。ここでは、後者の方法を用いて状態密度の計算を行う例を紹介する。

後者の方法を用いて状態密度を計算するためには、まず、4.2 節の計算を実行し、電荷密度を求める。k 点サンプリングは Monkhorst-Pack 法で求めておく。次に得られた電荷密度で固定化 tetrahedron 法による状態密度の計算を実行する。この時、k 点サンプリングは mesh 法にする。このように、固定電荷の計算を行うにあたって、電荷密度を求めるために行った 4.2 節の計算の時に用いた k 点サンプリング法やメッシュ数、バンド数は、同一である必要はない。

4.2 節と同様、Si₂における状態密度計算を実行した例を以下で紹介する。ディレクトリブラウザから samples→basic→Si2→dos というノードをダブルクリックすると固定電荷計算制御編集画面が開く（図 10）。

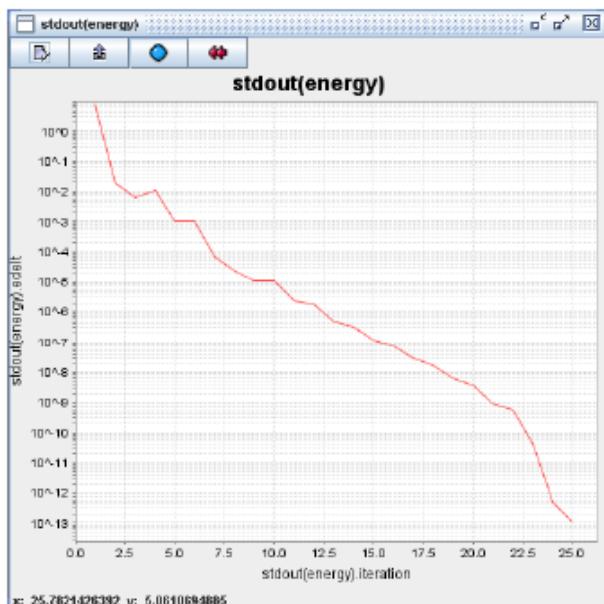


図 8 エネルギーの収束履歴

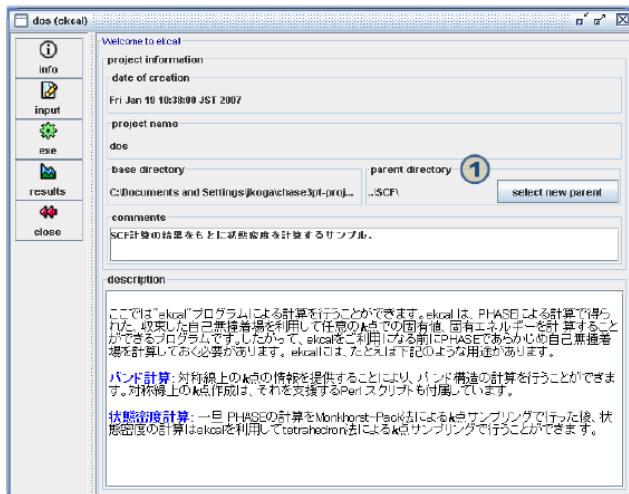


図 10 固定電荷計算制御編集画面

図 10 中の①のところに 4.2 節の計算を行ったディレクトリを指定し、また、以下の設定を確認する。

- k 点サンプリング法が mesh となっている
- smearing の方法が tetrahedron になっている
- 状態密度計算を行う設定となっている
- 状態密度計算は tetrahedron 法を利用するようになっている

以上のこととを確認したら、図 10 の”exe”ボタンをクリックする。固定電荷計算が開始される。

計算が終了したら”results”ボタンをクリックし、図 11 中の②をクリックすると図 12 のように状態密度解析画面が得られる。図 12 の”run dos.pl”ボタンをクリックすると図 13 の状態密度の絵が得られる。

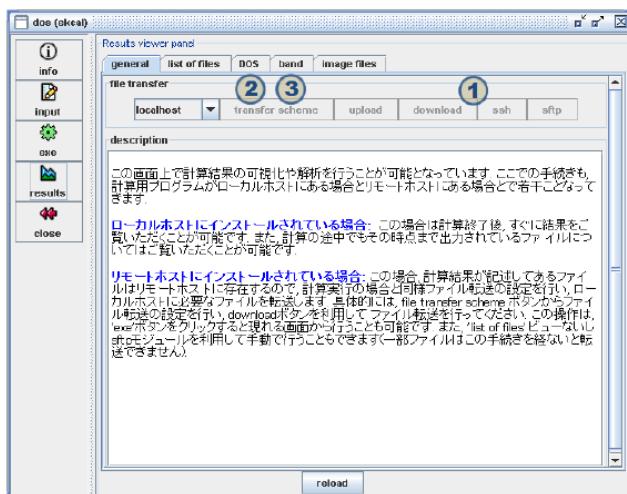


図 11 固定電荷計算結果解析画面

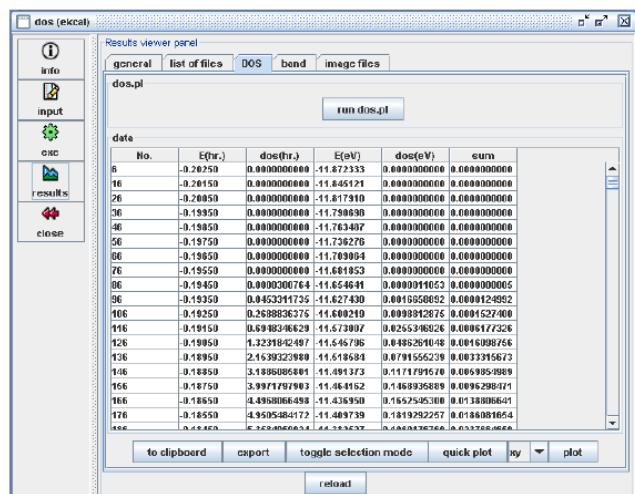


図 12 状態密度解析画面

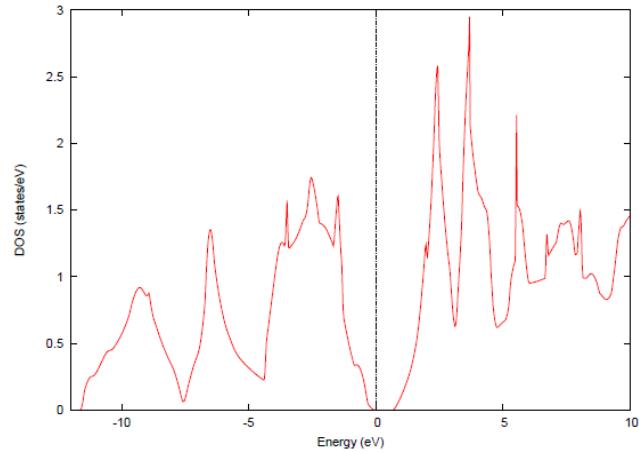


図 13 シリコンの状態密度

4.4. バンド計算

4.2 節で得られた電荷密度を利用してバンド構造を求めることができる。ディレクトリブラウザから samples→basic→Si2→band というノードをダブルクリックすると、図 10 の画面が開く。図 10 の input ボタンをクリックすると、バンド計算のための設定の確認や編集ができる。

図 10 の”exe”ボタンをクリックし、バンド計算を実行する。計算が終了したら、得られた固有値データからバンド図を作成する。バンド図の作成は図 10 の”result”ボタンをクリックして、バンド構造解析画面（図 14）を開き、”run band.pl”ボタンをクリックする。バンド計算の結果の絵（図 15）が得られる。

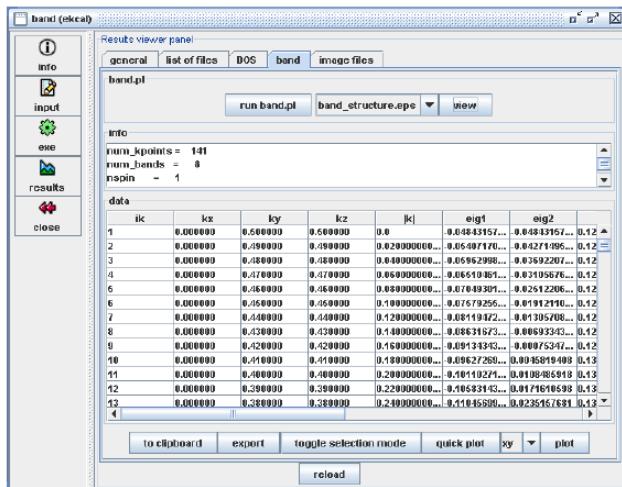


図 14 バンド構造解析画面

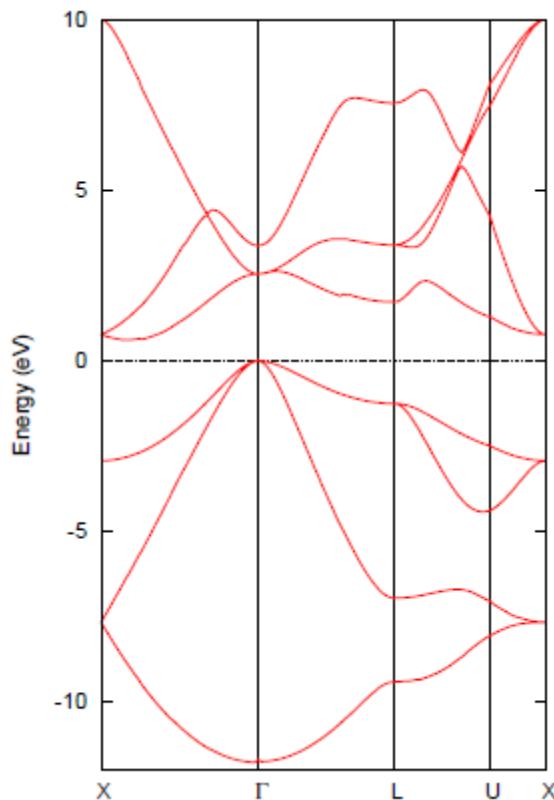


図 15 シリコンのバンド構造図

4.5. 誘電関数計算

4.2 節で得られた電荷密度を利用して誘電関数を求めることができる。ディレクトリブラウザから samples→basic→Si2→eps というノードをダブルクリックすると、誘電関数計算制御画面が開き(図 16)、シリコン結晶の誘電関数を計算することができる。

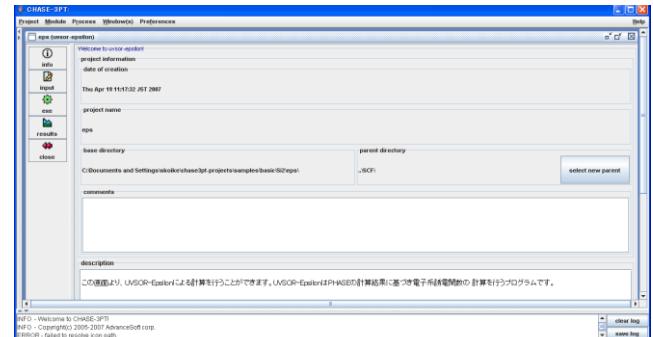


図 16 誘電関数計算制御画面

図 16 で"input"ボタンをクリックすると、誘電関数計算のための入力の確認、編集が可能である。"exe"ボタンをクリックすると、誘電関数の計算が実行できる。

計算が完了したら、"results"ボタンをクリックする。"epsout"タブを選択すると、誘電関数結果解析画面(図 17)が得られる。

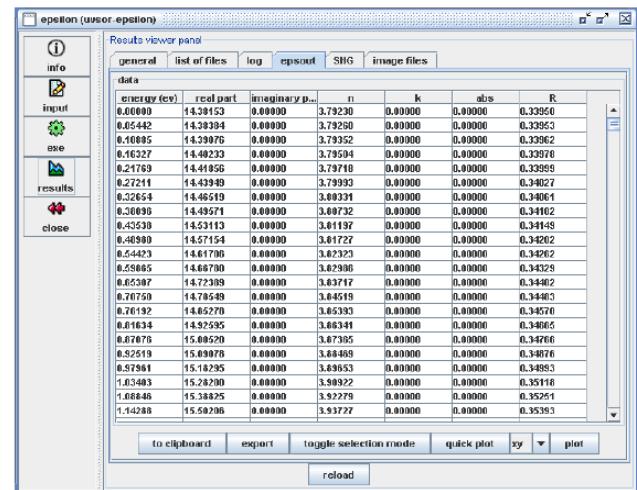


図 17 誘電関数結果解析画面

ここで、"energy (eV)"をクリックした後、"real part"をコントロールキーを押しながらクリックして、データを選択し、その後"quick plot"ボタンをクリックすると、シリコンの誘電関数の実部の絵が得られる(図 18)。

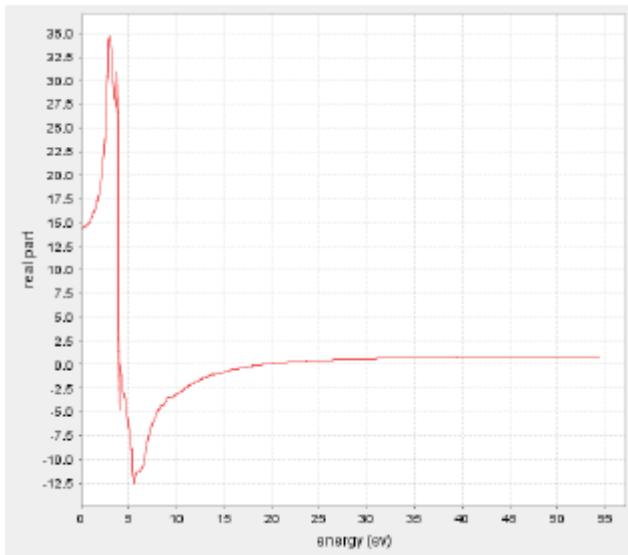


図 18 シリコンの誘電関数の実部

同様に、”energy (eV)”をクリックし、”imaginary part”をコントロールキーを押しながらクリックして、データを選択し、その後”quick plot”ボタンをクリックすると、シリコンの誘電関数の虚部の絵が得られる（図 19）。

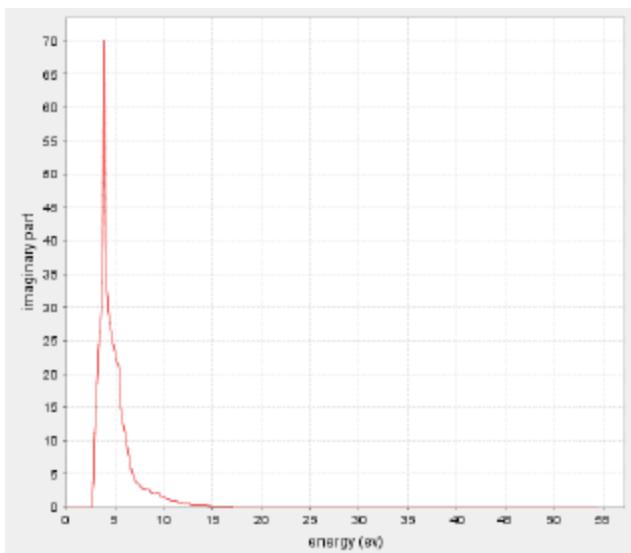


図 19 シリコンの誘電関数の虚部

4.6. 局所状態密度の計算

物質全体の状態密度の情報が欲しい時もあるが、物質のある特定の領域のみの状態密度が欲しい時もある。例えば、物質表面や界面の状態を知りたいときなどである。このような場合は、局所状態密度の計算を行うとよい。

局所状態密度として、「原子分割局所状態密度」と「層分割局所状態密度」の2種類が選択できる。前者は選択した原子群のみの状態密度を計算し、後者は選択した空間領域における状態密度を計算する。

このような例として、samples→DOS→LDOS→BaO-Si の計算を紹介する。これは、酸化バリウムとシリコンの界面構造のデータである。このモデルの構造を図 20 に示す。

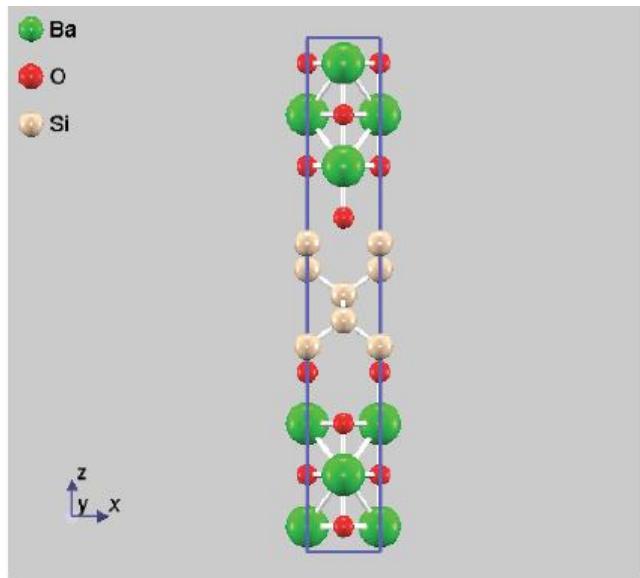


図 20 酸化バリウム-シリコン界面のモデル構造

局所状態密度の設定を行うには、入力ファイル編集画面から”post processing”を選択する。状態密度設定用画面（図 21）が開く。

図 21 中の①の部分で、全状態密度の設定を行う。図 21 中の②の部分で原子分割局所状態密度の設定を行う。図 21 中の③の部分で層分割局所状態密度の設定を行う。図 21 の設定を行うことで、原子分割および層分割局所状態密度の計算が実行できる。

”exe”ボタンをクリックして計算を実行し、完了したら”results”ボタンをクリックして、解析結果画面を開き、”DOS”タブを選択する。状態密度解析画面が開く（図 22）。

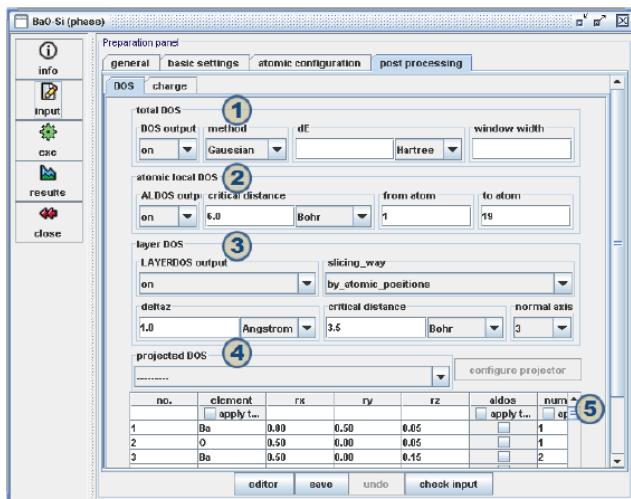


図 21 状態密度設定用画面

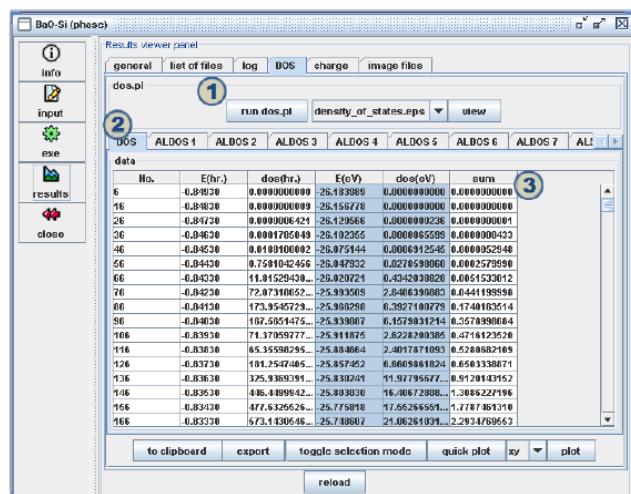


図 22 状態密度解析画面

図 22 中の①の”run dos.pl”ボタンをクリックすると、全状態密度の絵が作成される。局所状態密度は、図 22 中の②のタブを切り替えることにより得られる。例えば、図 22 中の②のタブで”ALDOS1”を選択し、図 22 中の①の”run dos.pl”ボタンをクリックすると、原子分割局所状態密度の絵が作成される。この絵は、dos_a001.eps というファイル名になる。

同様に、層分割局所状態密度を選択すれば、dos_l001.eps というようなファイルが作成できる。これらの絵は、図 22 中の①の”view”ボタンにより、表示できる（図 23、図 24）。

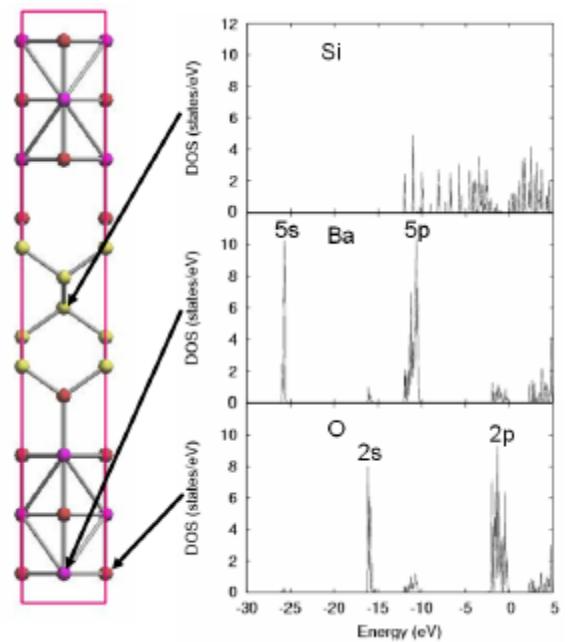


図 23 原子分割局所状態密度

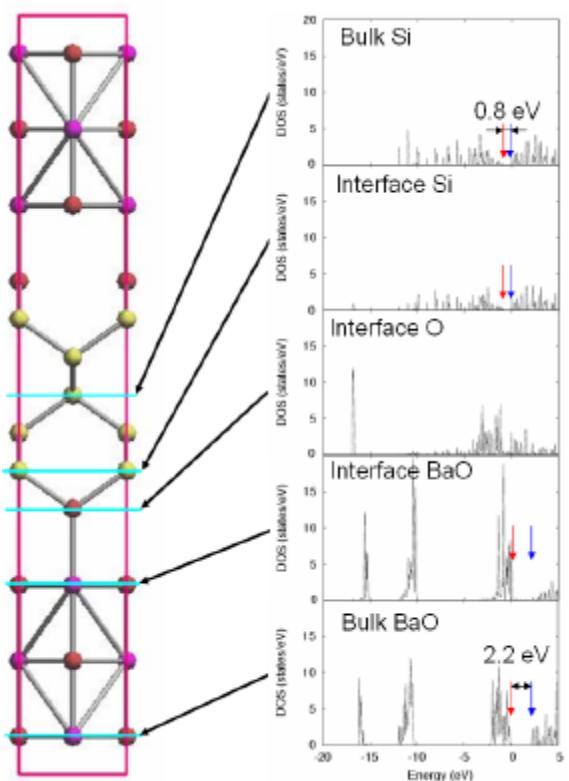


図 24 層分割局所状態密度

4.7. フォノン分散

本節ではフォノン計算の方法を紹介する。フォノンは Γ 点のみでも任意の波数でも計算することができます。ここでは Γ 点での計算例を紹介する。

Γ 点での計算例としてシリコン結晶の振動解析

を紹介する。ディレクトリブラウザから samples →phonon→Gamma→Si2 をダブルクリックする。

入力ファイル編集画面の任意のタブを右クリックし、現れるメニューから”phonon”を選択し、さらにこの操作で得られた”phonon”タブを選択すると、振動解析設定画面が開く（図 25）。 Γ 点の振動解析で必要な設定項目は図 25 中の①の部分に配備されている。

計算を実行するには”exe”ボタンをクリックする。計算が完了したら、”results”ボタンをクリックする。”results”ボタンをクリックすると結果解析画面が開く。任意のタブ上で右クリックし、現れるメニューから”phonon”を選択すると、”phonon”タブが作成される。”phonon”タブを選択すると、フォノン解析画面が開く（図 26）。図 26 中の①の”run freq.pl”ボタンをクリックすると振動数レベル図が作成される（図 27）。図 26 中の②の”run animate.pl”ボタンをクリックすると、基準振動の可視化ができる。

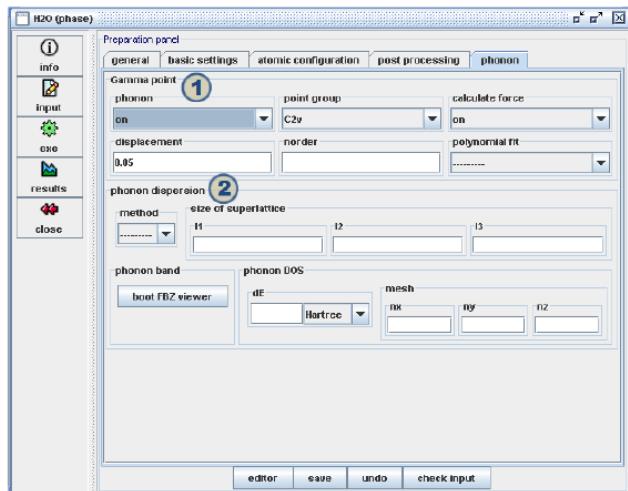


図 25 振動解析設定画面

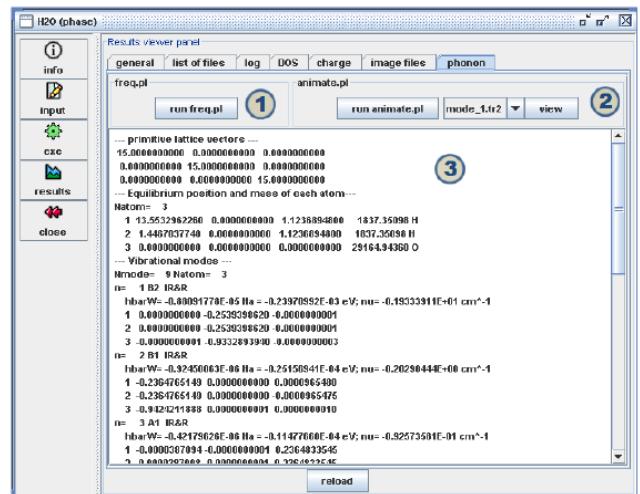
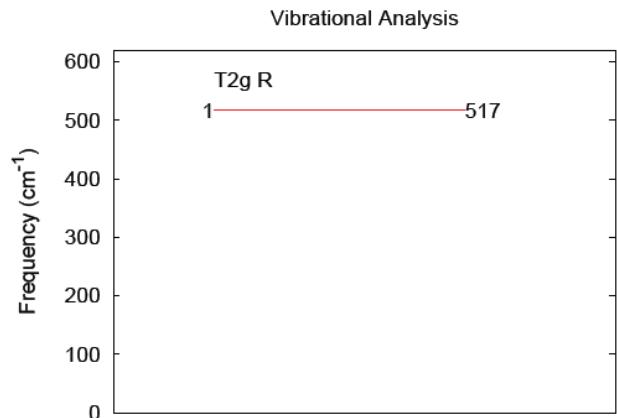
図 26 Γ 点でのフォノン解析画面

図 27 シリコン結晶の振動数レベル図

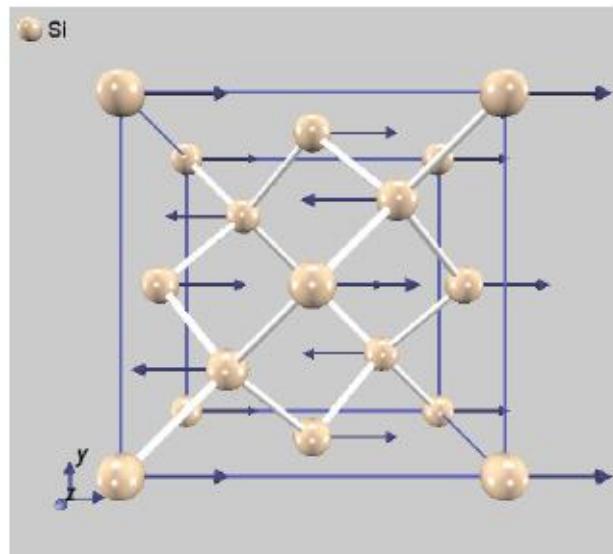


図 28 シリコン結晶の基準振動の可視化

5. まとめ

以上、本稿では、Advance/PHASE の持つ機能に関する使用法について、付属のチュートリアルマニュアルを抜粋する形で紹介を行った。本稿で紹介することができた機能は、Advance/PHASE の中の、ごく一部の機能だけである。本稿で紹介できなかつた他の機能に関しても、本稿で紹介した機能と同様に、GUI を用いて、簡便に使用することができる。興味を持たれた読者は、弊社までお問い合わせいただければ幸いである。

参考文献

- [1] 当プロジェクトは以下の 3 つからなる。
 - 2002～2005：戦略的基盤ソフトウェアの開発
 - 2005～2007：戦略的革新シミュレーションソフトウェアの開発
 - 2007～現在：イノベーション基盤シミュレーションソフトウェアの研究開発
- [2] PHASE は以下の URL よりダウンロードすることができる。
<http://www.ciss.u-tokyo.ac.jp/riss/dl/>
- [3] Advance/PHASE の情報は以下の URL より取得できる。
<http://www.advancesoft.jp>
- [4] PHASE の入門書として、
山本武範、濱田智之、山崎隆浩、岡本政邦、大野隆央、宇田毅：第一原理シミュレータ入門、アドバンスソフト株式会社(2004).