

jh220037

TOMBOによるネットワーク型エネルギー絶対値算定 マテリアルズ・インフォマティクス

○川添良幸¹⁾、水関博志²⁾、佐原亮二³⁾、大野かおる⁴⁾、
南里豪志⁵⁾、本郷研太⁶⁾

¹⁾東北大・NICHe、²⁾KIST、³⁾NIMS、⁴⁾横浜国立大、
⁵⁾九州大、⁶⁾JAIST

📄 JHPCN1報告会 2022年7月7日～8日

TOMBO=TOhoku Mixed-Basis Orbitals *ab initio* Program Package

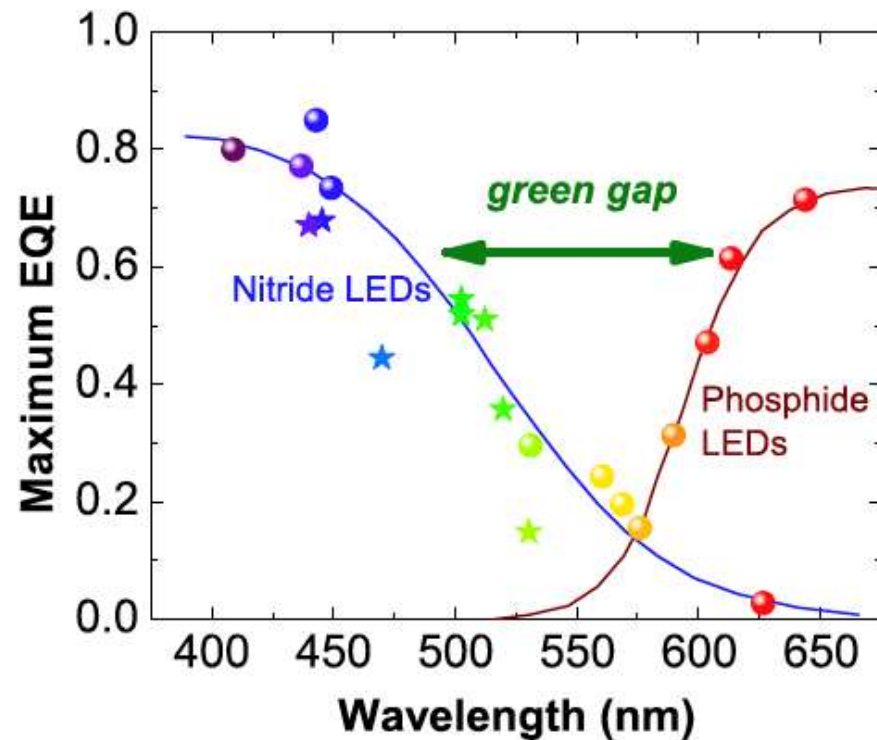
- 全電子 = 系のエネルギー絶対値算定可能
(超微細構造定数、各種光学スペクトル等、算定可能)
- 混合基底 = 平面波 + 原子軌道関数
(over-complete basis set)
- 密度汎関数理論 + **GW**近似
(伝導帯エネルギー算定可能)
- 時間依存密度汎関数理論 (TDDFT)
(化学反応の時間追跡可能)

ネットワーク型とは？

- 研究担当者6名の所属が全て異なる。
- 九大スパコン、富岳を活用し、データを共有

- 東北大 = 統括
- 横国大 = プログラム開発
- 九大 = プログラムチューニング
- NIMS = シミュレーション実行
- JAIST = AI部分
- KIST = シミュレーション実行と結果の公表

RGB中緑発光が弱い (Green gap)

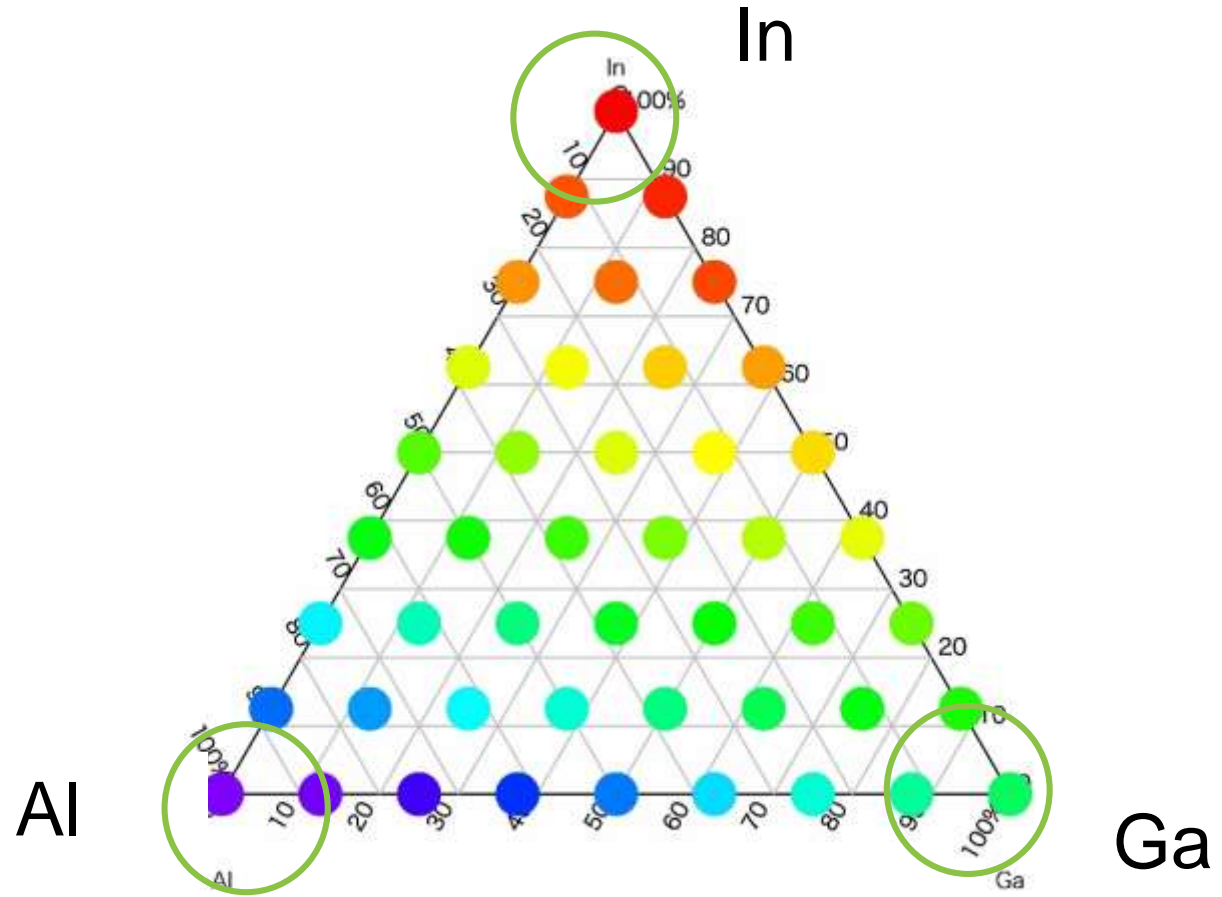


同一成分で**RGB**発光が望ましい。

FIG. 1. The green gap. Maximum external quantum efficiency (EQE) of different commercial nitride and phosphide LEDs (spheres), illustrating the green gap problem. Data points have been taken from Ref. [7]. The lines are guides to the eye. The stars give the EQE of the nitride single-quantum-well LEDs from Ref. [8] which we have used for comparison with simulations.

PRL **116**, 027401 (2016)

AlGaInのみでRGB発光可能



III-V半導体の混和/非混和で混和領域は限られる

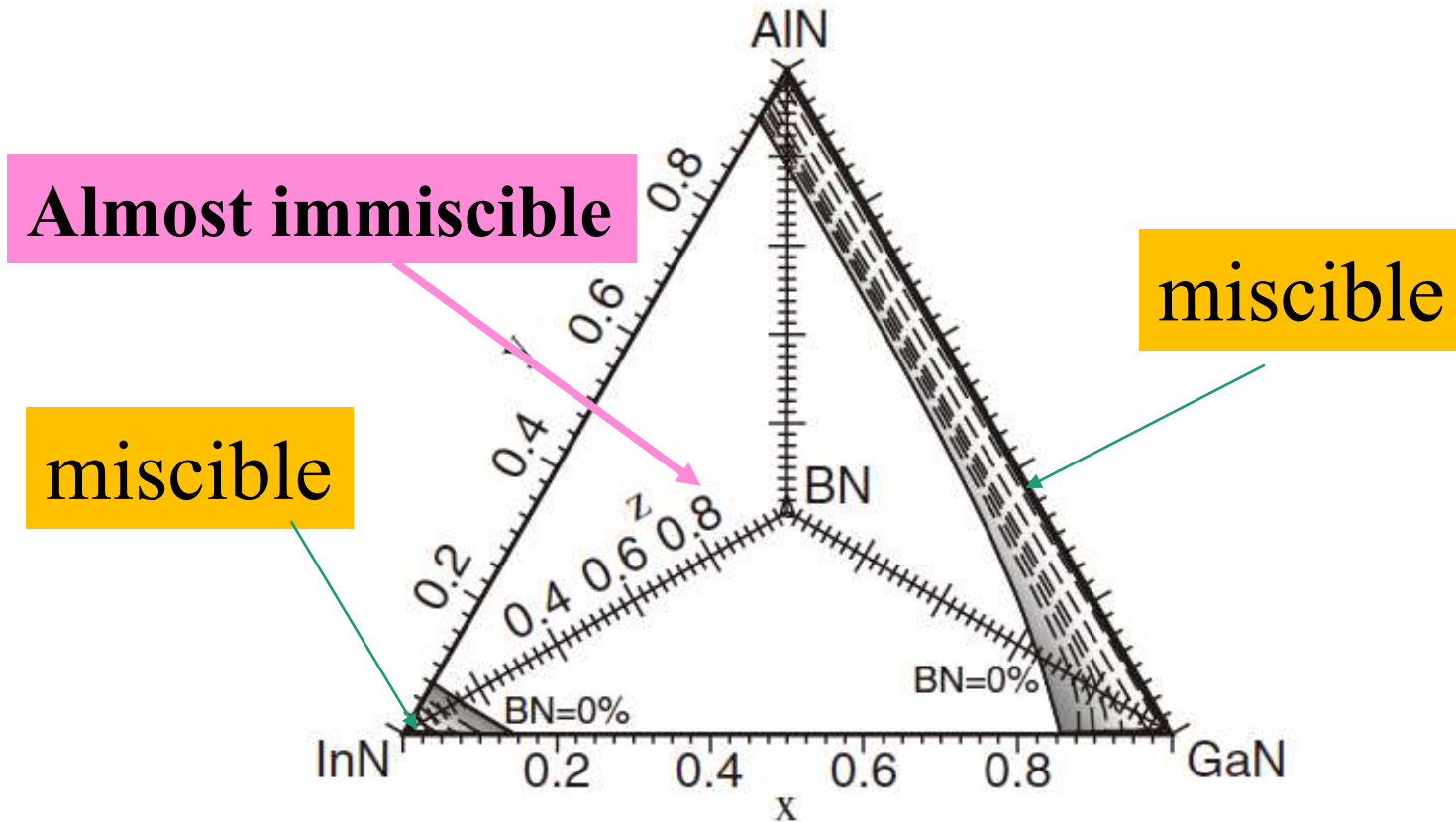
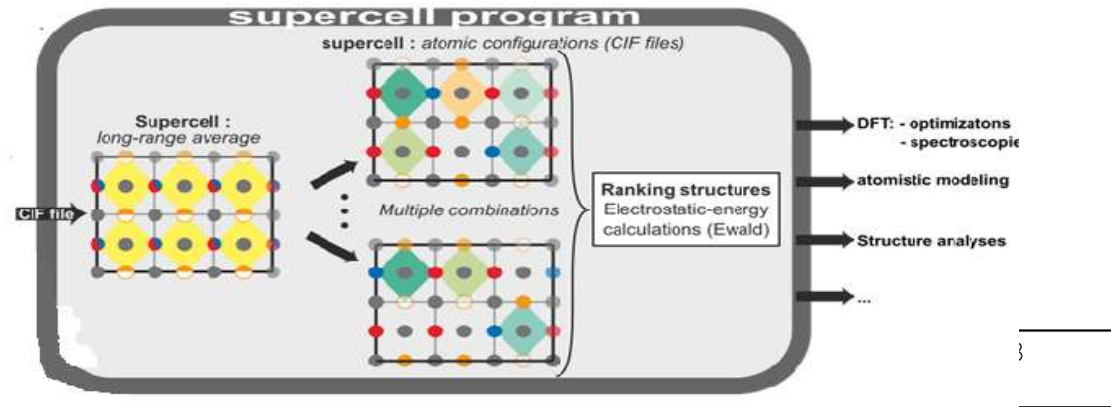
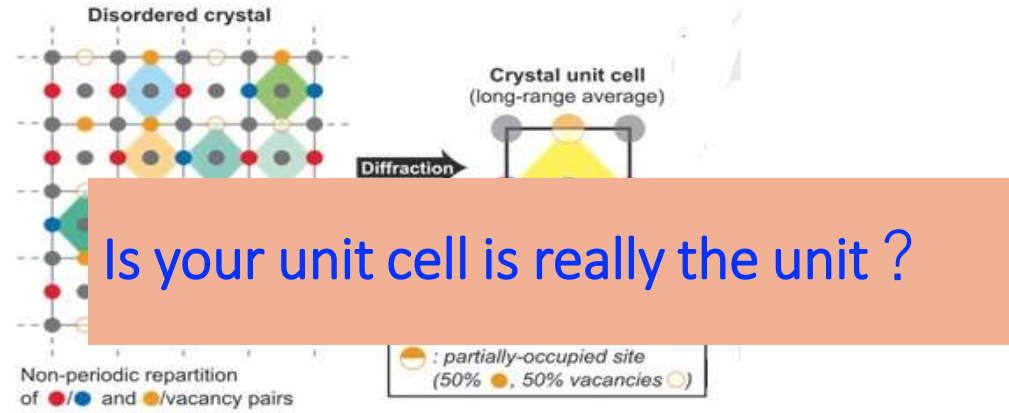


Fig. 1. The miscible region in $\text{In}_{1-x-y-z}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{B}_z\text{N}$ at 550°C . The dotted curves show spinodal curves at BN content of 0.3, 0.5, 0.7, 1.0, 1.5, and 2.0%, respectively. The gradation with gray color shows the miscible region for BN content of 0% as an example.

“Calculation of Phase Separation in Wurtzite $\text{In}_{1-x-y-z}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{B}_z\text{N}$ ”,
Takeshi Kimura and Takashi Matsuoka, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L574 (2007)

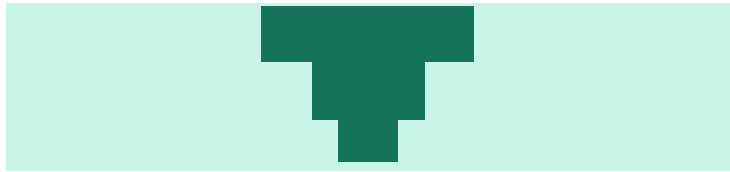
ドーピング = 無秩序結晶 . . . 本当？



構成原子引っ張り効果(compositional pulling effect)

混入率は格子不整合に依存

B



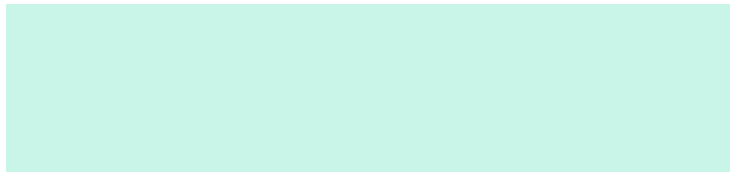
エネルギー差が大きい場合

In



エネルギー差が中程度

Al



エネルギー差が小さい場合

- エピタキシャル成長過程で構造的歪が compositional pulling effectを引き起こす。
- 第一原理計算による説明は昨年の発表が最初：論文発表
- 気相成長で α ガリアを育成：ミストCVD、赤岩グループ

我々の研究（昨年度の発表）

H. Mizuseki, J.S. Gueriba, M.J.F. Empizo, N. Sarukura, Y. Kawazoe, K. Ohkawa, J. Appl. Phys. 130, 035704 (2021), Atomistic origin of compositional pulling effect in wurtzite (B,Al,In)_xGa_{1-x}N: A first-principles study

- (B,Al,In)_xGa_{1-x}N at x=1/8を対象に第一原理計算
- ドーピング原子間の引っ張り効果の存在を確認。
- B > |n > A | の順 = 原子サイズの違い

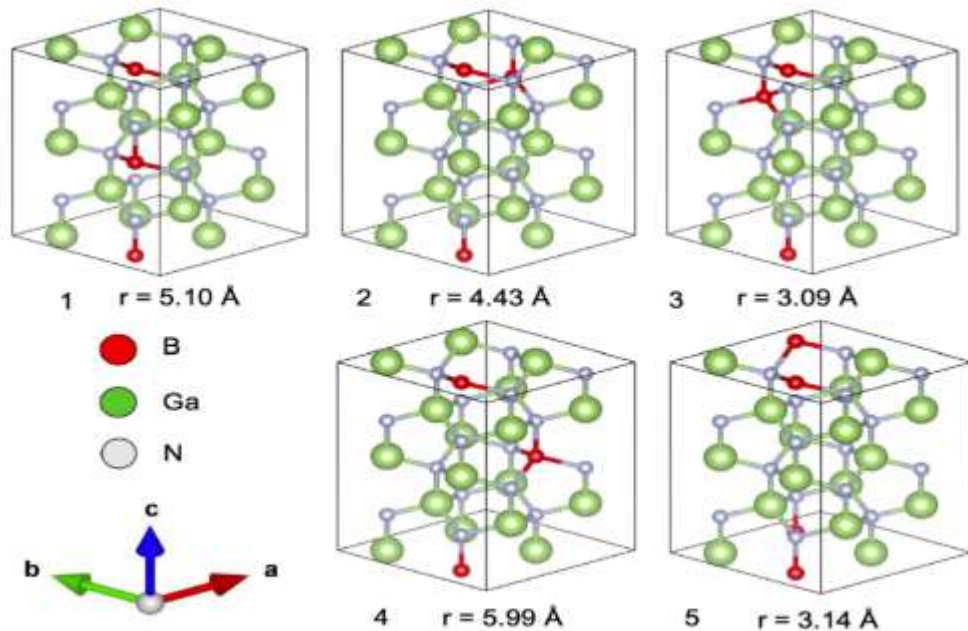


FIG. 1. Five geometric configurations of a $B_{0.125}Ga_{0.875}N$ system in a $2 \times 2 \times 2$ supercell consisting of two B atoms (red spheres), 14 Ga atoms (green spheres), and 16 N atoms (gray spheres). The most stable configuration (panel 1) is obtained when two B atoms occupy Ga sites along the c-axis. $Al_{0.125}Ga_{0.875}N$ and $In_{0.125}Ga_{0.875}N$ also exhibit the same energetically favorable configuration. The interatomic distances between the two nearest-neighbor B atoms are also indicated with r in each configuration/panel.

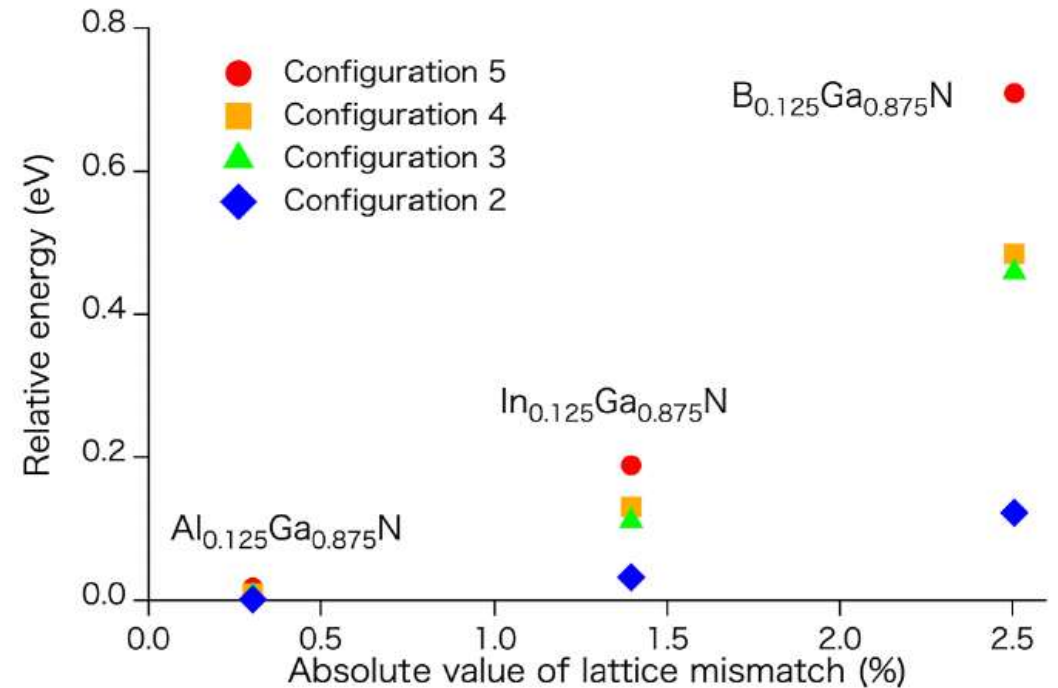


FIG. 2. Relative energies of configurations 2–5 of $B_{0.125}Ga_{0.875}N$, $Al_{0.125}Ga_{0.875}N$, and $In_{0.125}Ga_{0.875}N$ systems as a function of the absolute value of their lattice mismatch with GaN.

令和4年度の研究テーマ

- $\text{Ga}_x\text{B}_{1-x}\text{N}$ の x の大きい混和領域での奇妙な振る舞いの解明
昨年度発表の論文作成時に実験家からの指摘事項
 x 全体はほぼ非混和結晶で実験的に困難
- $\alpha\text{-(X}_n\text{Ga}_{1-n})_2\text{O}_3$ 及び $\beta\text{-(X}_n\text{Ga}_{1-n})_2\text{O}_3$ の計算を継続
昨年度分の口頭発表で結果を発表

計算方法

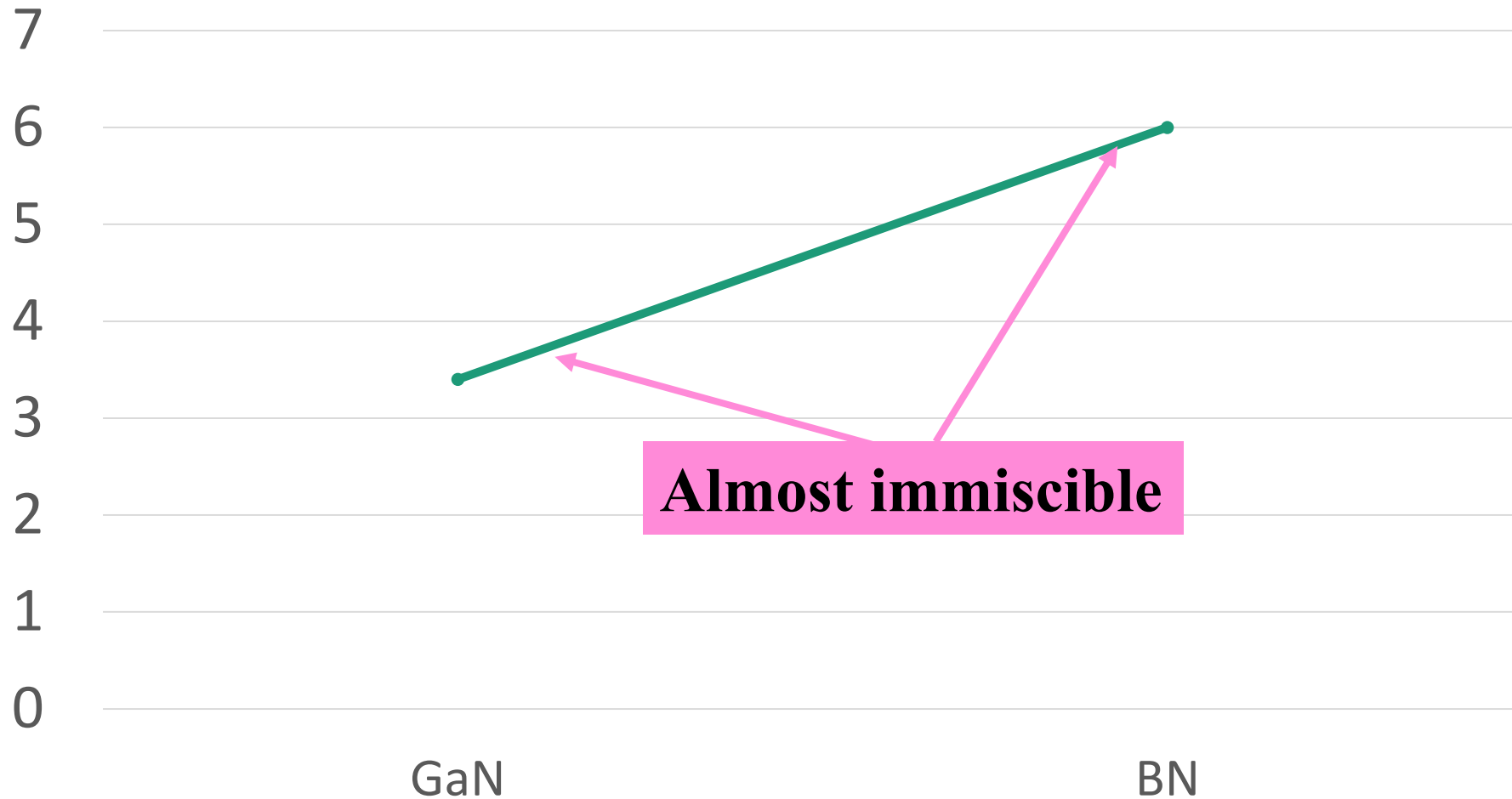
構造最適化：VASPのDFT（PBE）計算、数千ケース

エネルギーの絶対値算定：TOMBOのGW計算

令和3年度には、TOMBOの実効速度アップを図り、同時並行実行を実施。

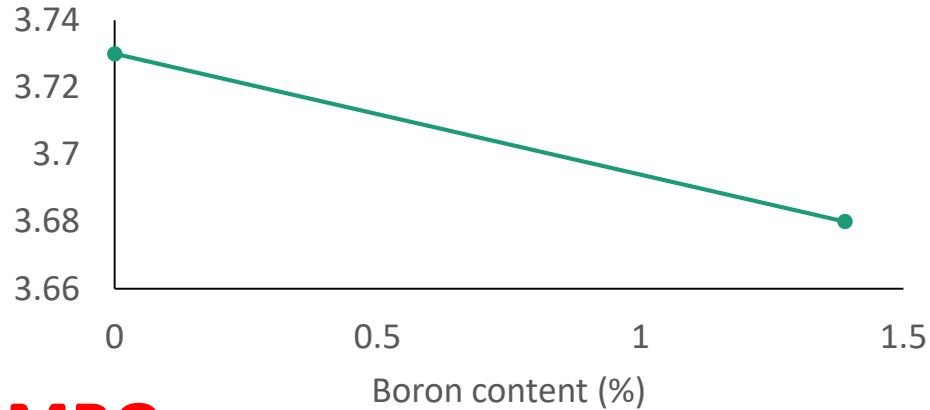
（具体的には、ジョブに割り当てられたノード群を効率的に利用して複数のMPIプログラム実行を進行させる multimpi フレームワークを開発した。これを用いることにより、10%程の高効率化に成功した。同時並列実行なのでターンアラウンドは数倍向上した。）

GaNとBNのバンドギャップは既知
途中の $\text{Ga}_x\text{B}_{1-x}\text{N}$ のバンドギャップは？



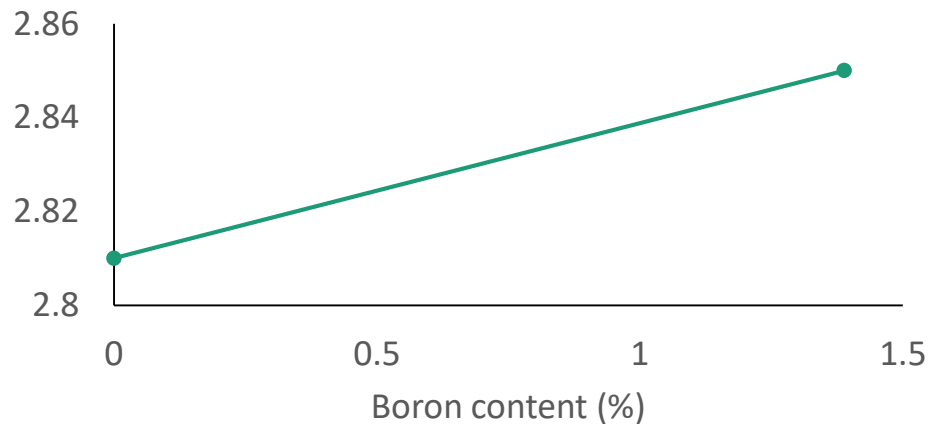
0→1.5%では下がる？

GW Energy Gap (eV)

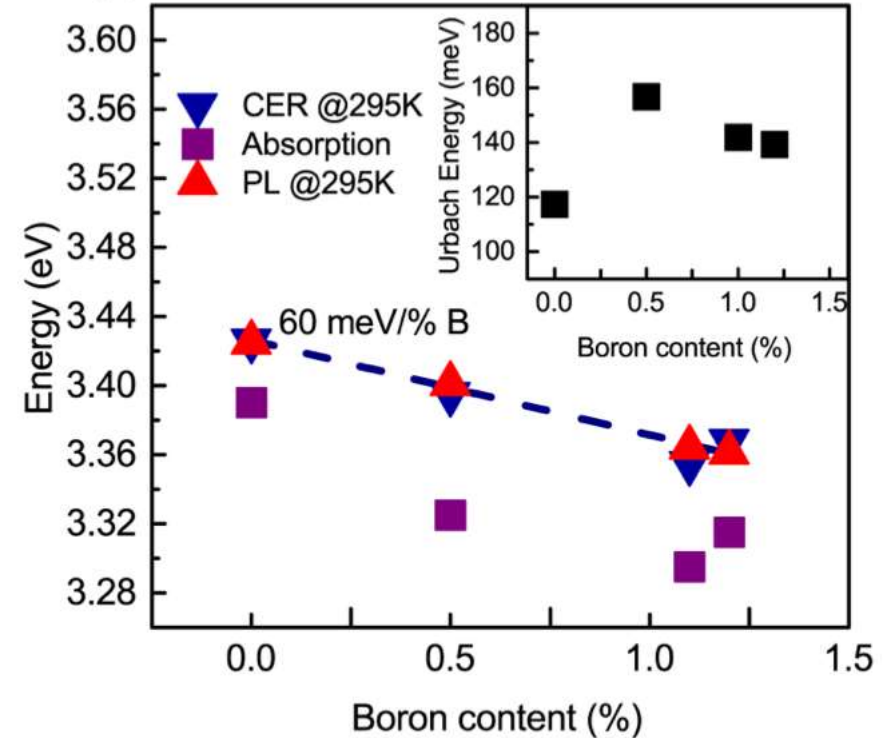


TOMBO

LDA Energy Gap (eV)



Experiment



E. Zdanowicz, D. Iida, L. Pawlaczyk, J. Serafinczuk, R. Szukiewicz, R. Kudrawiec, D. Hommel, and K. Ohkawa, J. Appl. Phys. 127, 165703 (2020).

計算条件

使用プログラム：全電子混合基底法 TOMBO 2022

計算対象：Ga₃₆N₃₆, BGa₃₅N₃₆ (72原子系)

原子軌道関数：Ga: 1s, 2s, 2p, 3s, 3p, 3d, N, B: 1s, 2s, 2p

平面波：Ecut-off = 29.8 Ry (Gベクトル 16,095個)

交換項：Ecut-off = 150.9 Ry (Gベクトル 182,275個)

相関項：Ecut-off = 11.6 Ry (Gベクトル 3,927個)

完全 ω 積分 (分割点 200点)

量子準位数：10,000個

r点のみの計算

原因

- 実験的に見られる $\text{Ga}_x\text{B}_{1-x}\text{N}$ の x の大きい混和領域での奇妙な振る舞いは、電子相関の微妙な兼ね合いで起こる。
これは極めて微妙な問題であり、数値計算の精度を上げて確認
- DFT計算では **Ga** から **B** に向かって単純に増加するだけ。
- 実験は非混和状態で作成が困難。

まとめ

- $\text{Ga}_x\text{B}_{1-x}\text{N}$ の x の大きい混和領域での奇妙な振る舞いの解明
- $\alpha\text{-(X}_n\text{Ga}_{1-n})_2\text{O}_3$ 及び $\beta\text{-(X}_n\text{Ga}_{1-n})_2\text{O}_3$ の計算を継続

謝辭

This work has been supported by the Joint Usage/Research Center for Interdisciplinary Large-scale Information Infrastructures (JHPCN) (Project IDs jh190019, jh21045, and jh220037), the High-Performance Computing Infrastructure (HPCI) (Project IDs hp200040, hp200246, hp210131, hp210218 and hp220064), the GIMRT Program of the Institute for Materials Research, Tohoku University (Subject No. 2112SC0506), the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) through the Program for Creation of Research Platforms and Sharing of Advanced Research Facilities (Photon Beam Platform), and the Korea Institute of Science and Technology (Grant No. 2E31801).