

課題番号 11-NA17

原子衝突による材料科学のための大規模シミュレーション基盤

青木学聡（京都大学） 佐竹信一（東京理科大学） 剣持 貴弘（同志社大学）
岩下 武史（京都大学） 松尾二郎（京都大学） 瀬木利夫（京都大学）

概要

イオンビーム、プラズマ、超音速ジェットによる材料加工プロセスの詳細な解析を行うため、並列計算機上で原子衝突現象を扱うための分子動力学シミュレーションプログラム、そしてこれに付随する多量の原子座標データを扱う解析環境の開発を行っている。本年度は、原子衝突現象の分子動力学シミュレーションの周辺を支える、プリ/ポストプロセスの並行実行、および衝突領域が重なりあう逐次衝突現象の検証の際に必要なとされるタスクの同時実行処理を、Xcrypt を用いたスクリプトにより実装した。また、これらを用い、多数の原子の衝突の繰り返しによるスパッタリング現象のシミュレーションを実施し、得られた原子座標のデータから原子衝突に起因する欠陥の形成過程および表面加工プロセスの検証を行った。

1. 研究の目的と意義

(1) 研究の目的

本課題では、数 eV から MeV という幅広い範囲での粒子線と固体材料表面との衝突素過程を解明するための、大規模分子動力学法を中心とした原子シミュレーション手法の技術展開を図ることを目的とする。入射エネルギーが数 keV から MeV 領域での原子・固体衝突では、高効率の二次イオン脱離や局所的な材料変性など特異な現象が見られる。この現象の解明には、常温に比べて 5~8 桁という高いエネルギーの局所領域への導入とその散逸、そしてこれに伴う大規模な標的原子の移動がサブナノメートル~マイクロメートルの空間スケール、サブピコ~ナノ秒の時間スケールで追跡することが必要となる。一方、運動エネルギー 1keV 以下の低エネルギーイオンビーム、プラズマプロセス、超音速分子流の領域では、材料極表面における超微細加工、表面クリーニング等、多数の原子衝突に繰り返しの後に生じる表面脱離反応や、原子種に応じた表面反応特性に関する、より詳細な理解が求められる。

これらの衝突現象を原子スケールで再現・解析するため、分子動力学法、モンテカルロ法による、

最大 1 億(10^8)原子の標的材料を扱う、あるいは 1 万サンプル以上の衝突現象を容易に実現するための原子衝突シミュレーション基盤を開発することが求められる。また、大規模分子動力学シミュレーションにより得られる、極めて多量の原子位置情報に対する多面的な解析を可能とし、さらにマルチスケール、マルチフィジクスシミュレーションとの連携を行うための、並列・分散処理、他階層の記憶領域等を前提とするソフトウェア基盤の整備を進める。原子の脱離過程や表面構造等、原子座標を一次情報とする特徴的なパラメータの空間、時間的変化の抽出により、粒子衝突シミュレーションデータに対する解析方法を提示し、ナノスケール材料プロセス、計測技術の進展に資する。

(2) 研究の意義と必要性

イオンビーム、プラズマ、超音速ジェット技術は、常温以上の運動エネルギーをもった原子や分子を精密に制御し、標的材料に衝突させる技術であり、これらは半導体製造プロセスと筆頭とするナノテクノロジーにおける製造、計測技術に必須の手法である。ナノテクノロジーの発展に伴い、これらの粒子線技術も更なる高度化、多様化が求められるようになってきている。本課題で実施する分子動力学シミュレーションをはじめとする大規模

原子衝突シミュレーションにより，エネルギー粒子と固体表面の相互作用を原子レベルで詳細に調べることで，材料表面衝突素過程の解明と応用に関する知見が得られることが期待される。

分子動力学法は，系内に存在する原子間の相互作用を求めた後，ニュートンの運動方程式に従い，全ての粒子の運動の時間発展を追跡する手法である。この方法は，近年の計算機資源(計算速度，記憶容量)の増大とともに，ナノスケール物理シミュレーションの手法として，生命科学，材料科学分野において広く利用されるようになってきている。現状においても，分子動力学シミュレーションソフトウェアは市販品およびオープンソースソフトウェアとして多数存在するが，その多くは比較的小規模，静的な状態を対象としたものに限定されている。本課題が対象とする原子衝突過程の解析には，最大 10^8 個という巨大な標的材料，最大数桁に及ぶ非熱平衡状態からの緩和過程等，原子衝突特有の現象に対応させる必要がある。また，分子動力学シミュレーションより得られる原子座標データを多量に収集することにより，電子顕微鏡イメージ，X 線回折，RBS 測定などの測定原理を直接再現する他，マルチスケール，マルチフィジクスシミュレーションモデルとのシームレスな連携が期待できる。このような巨大原子座標データを対象とした多面的な解析手法を容易に実現するためには，並列，分散処理，複数の記憶階層を前提とした原子座標データへのアクセスモデルを設計する必要がある。これらの背景より，本研究が対象とするシミュレーション技術，データ解析技術は，加速器物理学，表面材料科学，計算理工学，計算機科学の連携により実現される，超大規模数値計算系応用分野の課題に相当するものと考えられる。

2. 当拠点公募型共同研究として実施した意義

(1) 共同研究を実施した大学名と研究体制

本研究では京都大学，東京理科大学，同志社大学から 6 名の研究員による共同研究体制を立ち上げた。このうち 3 名が原子衝突シミュレーション，2 名が原子衝突現象の基礎実験と応用，1 名が HPC

分野を主な研究領域としている。原子衝突に関するシミュレーションプログラムの開発，データ解析を中心として，実際の実験および大規模計算手法に関する助言を受けながら研究を進めている。

(2) 共同研究分野

入射エネルギーが数 keV から MeV 領域での原子・固体衝突では，高効率の二次イオン脱離や局所的な材料変性など特異な現象が見られる。この現象の解明には，常温に比べて 5~8 桁という高いエネルギーの局所領域への導入とその散逸，そしてこれに伴う大規模な標的原子の移動がサブナノメートル~マイクロメートルの空間スケール，サブピコ~ナノ秒の時間スケールで追跡することが必要となる。このようなスケールでの大規模原子集団の運動を解析する手法として，分子動力学法が挙げられる。本研究課題では，大規模並列計算環境上における原子衝突現象の分子動力学シミュレーションを主な対象とし，核となるシミュレーションプログラム及び，ポスト・プリプロセスを含めた，シミュレーション環境全体の高度化に取り組んでいる。

(3) 当公募型共同研究ならではの事項など

本研究制度への応募を機に，シミュレーション技術を中心とし，実験，計算機理論の分野が相互に連携できる研究コミュニティの運営を進めている。また，シミュレーションプログラムの開発及びその実施に際し，京都大学学術情報メディアセンターのスーパーコンピュータシステムの提供を受けた。最大 4 ノード 64CPU からなる計算機資源を年間を通じて利用できるという支援により，単独の PC では時間的(繰り返し数)，空間的(扱う原子数)に困難な規模の原子衝突シミュレーションを実施している。

3. 研究成果の詳細と当初計画の達成状況

(1) 研究成果の詳細について

平成 22 年度での本研究課題において，分子動力学シミュレーションプログラムの大規模並列化に取り組み， 10^8 原子系からなる原子衝突シミュレーションを実施することができた。そこで本年度は，

ポストプロセスにおける並行分散処理, およびジョブ単位での並行実行の手法について検討を進めた.

分子動力学シミュレーションにおいてシミュレーションプログラムから得られる情報は, 多数の原子の位置と速度のみである. 一方, 種々の実験より観察される物理量は, 表面形状, 格子周期, 原子結合状態といった, 原子座標からみれば間接的な情報である. シミュレーション結果の妥当性に関する検討や, 多面的な解析を行うためには, 核となるシミュレーションプログラムの高速化はもとより, その出力結果の収集, および解析過程の迅速化, 効率化も合わせて重要となる.

様々なプラットフォーム上で複数タスクの並行実行を実現するツールとして, 京都大学学術情報メディアセンターにおいて開発されている Xcrypt¹がある. XcryptはPerlによるDSLであり, その記載内容はリスト1に示すように, 並行に実施する命令をテンプレートとして記述する. Xcryptはテンプレートから逐次的な変数(リスト1中ではRANGE0)を展開, 個別の命令(ユーザー定義部はexe0@で記載される)を生成し, これらを個々の環境に対応した形式で実行する. ここでいう環境とは「ローカルまたはsshによるリモート実行」「shellまたはNQS, PBS等へのバッチ投入」を指し, これらを任意の組み合わせで設定できる.

Xcryptを利用したMDシミュレーションのポストプロセスとして, シリコン(Si)の集束イオンビーム(Focused Ion Beam)加工前後の電子顕微鏡像の生成を取り上げた.

まず, FIB衝突過程の分子動力学シミュレーションを京都大学HX600上で実施し, 原子座標データを生成した. 21.72nm×21.72nm×25.9nm, 644400個のSi原子からなる標的材料に対し, Ar原子を逐次的に衝突させる. Arイオンの加速エネルギーは50keVとし, これを基板表面中心の4.0nm×4.0nmの領域に連続的に衝突させる². 1回の衝突毎に原子座標データを収集した後, 原子座標データより,

リスト 1: Xcrypt スクリプトの例

```
use base qw (core);

# リモートで実行する場合の環境を追加 (オプション)
my $remote_kyoto_env = &add_host(
    {'host'=>'t123@thin.kudpc.kyoto-u.ac.jp',
     'sched' => 't2k_kyoto',
     'wd' => '/home/t/t123/multislice.xy',
     'xd' => '/home/t/t123/local/opt/xcrypt'});

# テンプレートの記述
my %template = (
    'id' => 'job',
    # ジョブ毎に変化させるパラメータ
    'RANGE0' => [0..59],
    # 実行するユーザー定義スクリプト
    # $VALUE[0] が 上記RANGE0の値で置換される
    'exe0@' => sub { "/asi_auto_byid_200keV.sh
SVALUE[0] || exit 1"; },
    # リモートジョブのオプション
    'JS_cpu' => 1,
    'JS_node' => 1,
    'JS_memory' => '1000MB',
    'JS_limit_time' => '30:00',
    'JS_queue' => 'qh123',
    'JS_group' => 'qh123',
    'env' => $remote_kyoto_env,
);

# テンプレートから個別のジョブを生成
my @jobs = prepare(%template);

# ジョブの実行, 終了を待機
submit_sync(@jobs);
```

マルチスライス法³を用いて透過型電子顕微鏡(Transmitting Electron Microscope, TEM)イメージを生成する. マルチスライス法の概要は以下の通りである.

1. 標的材料をオングストロームレベルの薄い層毎に分解する
2. 各層の原子配置から, 電子線の散乱の伝達関数を求める
3. 各層の重ね合わせにより, 試料全体の伝達関数を求める
4. 試料透過後の電子線と対象とする電子顕微鏡の光学定数より, 結像したイメージを作成する

ここで1~3の処理は, 対象となる原子数に従い増大する. このようなポストプロセス処理についても, プログラムレベルでの並列化により高速化が期待されるものの, ポストプロセスの多様性, 即応性等の問題から対応することは困難である. このような場合, Xcryptに代表されるような簡便な手法により, 大規模バッチシステム上での並行実行環境が利用できることは, 解析時間の大幅な短縮につながる. なお, Xcrypt導入時に行った解析

¹ <http://super.para.media.kyoto-u.ac.jp/xcrypt/index.html>

² 詳細は平成23年度中間報告を参照

³ E. J. Kirkland, "Advanced Computing in Electron Microscopy" (Plenum 1998, Springer 2010)

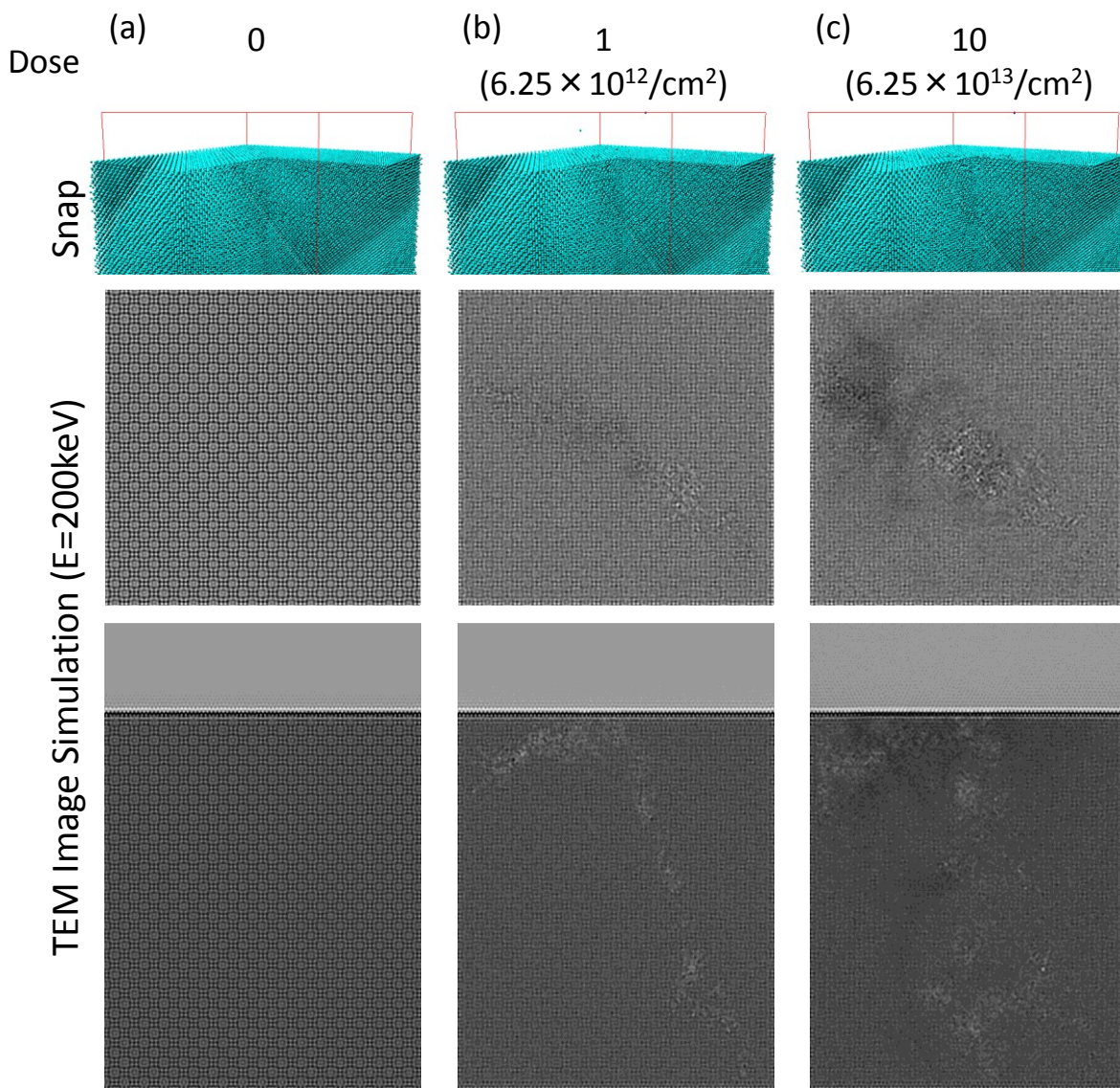


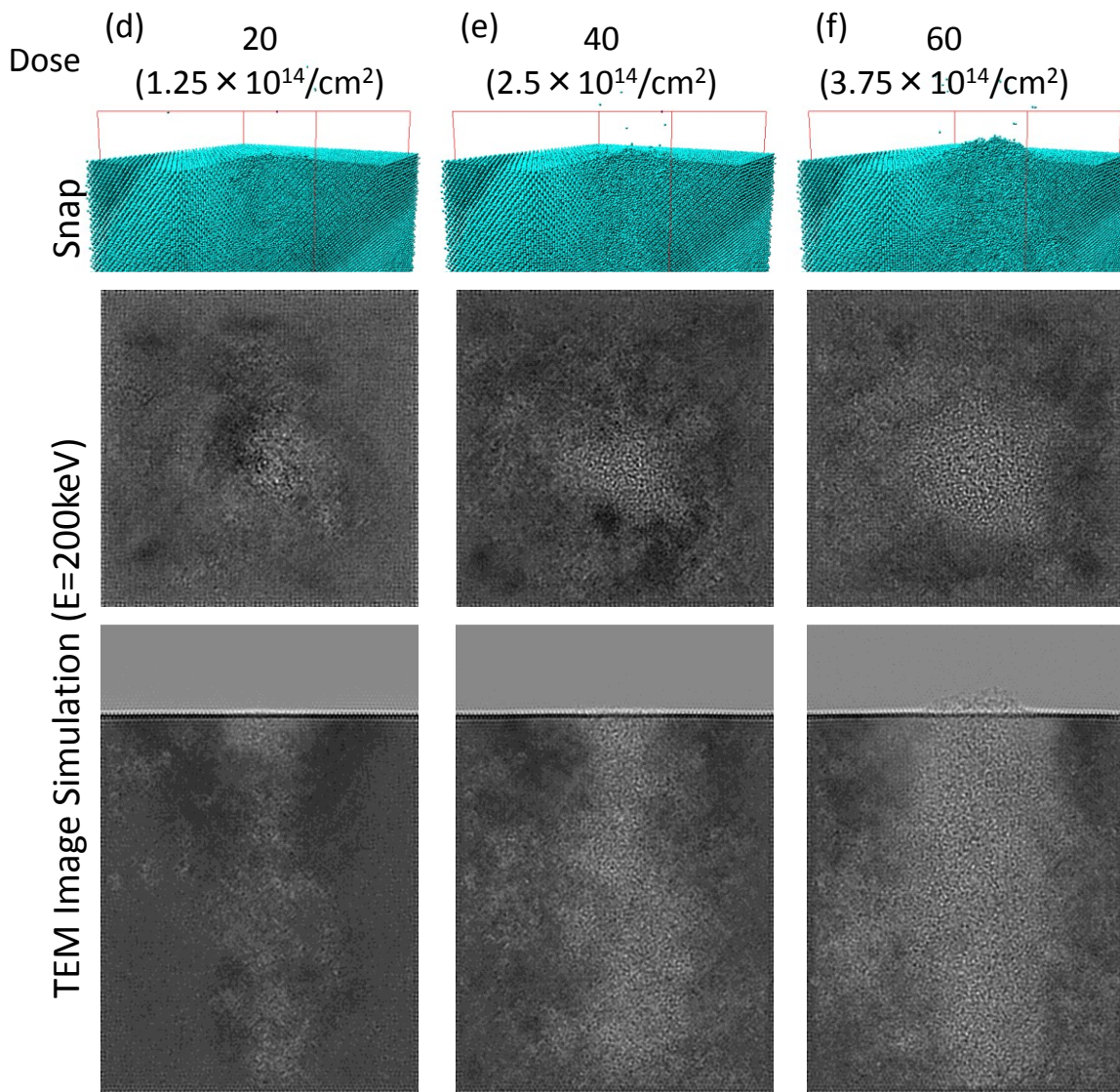
図 1: 50keV Ar イオンの Si への逐次衝突シミュレーションの結果. 上段のスナップショットでは第 4 象限を切り欠いている.

プログラム側の変更は、Xcrypt スクリプトのテンプレート中で生成される通し番号(リスト 1 中の \$VALUE[0])に対し、これを入出力ファイル名といった実行パラメータに変換する部分をシェルスクリプトのレベルで追加したのみであった。

50keV の Ar 原子を逐次的に Si(001)基板に衝突させたときの原子配置スナップショット(図中上段), および TEM イメージシミュレーションの結果(中及び下段)を図 1 に示す. 図からわかるように、原子座標をそのまま 3 次元投影しただけでは、原子間の結合状況や、本来の結晶構造からの歪みを見積もることは困難である. これに対し、電子顕微鏡の撮像原理には原子配置のフーリエ変換が

本質的に含まれることから、TEM イメージ像は原子配置の乱れに対し極めて敏感な応答を示す. 図 1(b)に示すように、1 回の原子衝突時において入射原子および入射原子との衝突により高速ではじき出された原子の軌跡に沿って形成される欠陥構造が明確に観察される. また、衝突回数の増加に伴い、基板中心部の結晶構造が乱されていき、図 1(g)の 60 回衝突(約 $3.75 \times 10^{14} / \text{cm}^2$ 相当)ではロッド状のアモルファス領域が形成されるとともに、衝突箇所の表面が大きく盛り上がることも観察された.

Xcrypt によるタスク並行実行のもう一つの応用として、巨大材料に対する原子衝突現象の解析を検討した. 模式図を図 2 に示す. 巨大材料系に対



(図 1 続き)

する原子衝突シミュレーションを計算機資源の許す範囲で実現するには、局所的な時刻の同時性に関する厳密性を緩和、すなわち、個々の原子衝突による損傷形成・緩和過程については完全に独立であると仮定する。この場合、大きな空間スケールに渡って生じるような、極めて大規模な原子移動については再現することはできないが、原子衝突の繰り返しによる逐次的なロックオン現象による原子移動については検証することが可能である。具体的な手続きは以下ようになる。

1. ランダムに衝突箇所を選択
2. 標的材料全体を構成する原子座標データベースから、衝突箇所近傍の原子座標データのみを取り出す(チェックアウト)

3. 取り出した原子座標データに対し、境界条件を適切に設定し、原子衝突シミュレーションを実施

4. 更新された原子座標データを標的全体の座標データベースに書き戻す(チェックイン)

これらの手続きは、原子衝突による影響が重なり合わない範囲で並行に実施できる。逆に原子衝突が重なりあう条件については、衝突の順番を維持するために、後続のシミュレーション実行をブロックする必要がある。さらに、何らかの理由で衝突シミュレーションが失敗した場合、後続のシミュレーションの実行をスキップする必要も生じる。

このような依存性のあるジョブを制御するために、開発者である京都大学学術情報メディアセン

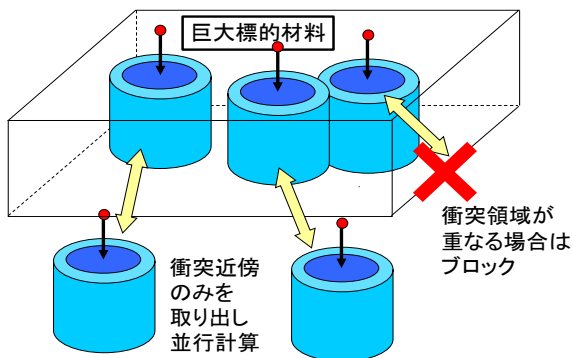


図 2: 巨大標的的材料に対する原子衝突シミュレーションの模式図

ターにより、下記の機能を付与する Xcrypt の拡張モジュールが追加された。

- ジョブの依存性を登録するための 'depend_on' キーワードの導入
- ジョブを submit する直前に呼び出されるサブルーチン before にて、depend_on キーワードに登録されたジョブ ID の終了を待機させる機能
- 同じく before ルーチンにて、依存するいずれかのジョブの終了ステータスが aborted である場合、自分自身を abort する機能

拡張モジュールとこれを使った Xcrypt スクリプトの例をリスト 2, 3 に示す。リストに示すように、極めて簡潔な記述により、ジョブ間依存関係の定義、アボートメッセージの伝達が実現される。

Xcrypt は、拡張元である Perl の特徴を生かし、モジュール毎の独立性が高く設計されていることから、ユーザーは特定の機能を取捨選択することが可能である。また、これまでに開発されてきた Perl の膨大なライブラリを活用できる。例えばリスト 3 ではジョブ間の依存性は YAML 形式のファイルで与えるようになっている。このように、汎用的なプログラミング言語およびデータ構造基盤を最大限活用することで、スクリプトの作成、ユーザー教育のコストを大幅に削減できる。

実際に、リスト 2, 3 に示すスクリプトを利用し、実際に単一標的に材料の広領域への連続衝突シミュレーションを実施した。表面が 54nm×54nm、深さ 16nm、2,400,000 原子からなる Si(100)表面に対し、1keV に加速した Xe 原子を垂直に複数回逐次的に衝突させた。この際、衝突近傍より半径 7nm の円柱領域を図 2 に示すように個別に取りだし、

リスト 2: 依存関係のあるジョブ制御のための Xcrypt 拡張モジュール

```
package dependency_abortable;

use strict;
use NEXT;
use common;
use builtin;

#テンプレートに 'depend_on' キーワードを追加
&add_key('depend_on');

# job をsubmitする前に実行するルーチン
sub before {
    my $self = shift;
    my @dep_jobs0 = @({mkarray ($self->{depend_on})});
    my @dep_jobs = ();
    foreach my $j0 (@dep_jobs0) {
        if ( ref $j0 eq '' ) {
            my $j = jobsched::find_job_by_id ($j0);
            if ($j) {push (@dep_jobs, $j);}
        } elsif ( ref $j0 eq 'user' ) {
            push (@dep_jobs, $j0);
        }
    }
    sync (@dep_jobs); # 依存するジョブによって実行をブロックする
    # abort myself if any of @dep_jobs is aborted
    foreach (@dep_jobs) {
        if ( jobsched::get_job_status($_) eq 'aborted' ) {
            core::abort($self);
            last;
        }
    }
}

1;
```

リスト 3: 依存関係のあるジョブ制御のための Xcrypt の例

```
use base qw (dependency_abortable core);

# 依存関係(兼ジョブパラメータ)ファイル
# structure
# [ { 'param' : { 'x':f, 'y':f, 'in_rad':f, 'out_rad':f },
#   'graph' : { 'linkfrom': [d], 'linkto': [d] } } ]
use YAML;
my $y = YAML::LoadFile("depend_graph.yaml");

my $params = $#$y + 1;
my $sids = [0..$params-1];

my %template = (
    'id' => 'job',
    'RANGE0' => $sids,
    'exe0' => sub { "./mysh.sh $VALUE[0] || exit 1"; },
);

my @jobs = prepare(%template);

# ジョブ依存関係を登録
foreach my $i ( @{$sids} ) {
    $jobs[$i]->{depend_on}
        = [map { $jobs[$_]; } @{$y->{$i}->{graph}->{linkfrom}}];
}

submit_sync(@jobs);
```

衝突シミュレーションを並行実施した。それぞれのシミュレーションジョブでは、「高速 Xe 原子の衝突・緩和(10 万ステップ、4ps 相当)」「冷却(5 万ステップ、40ps 相当)」と、2つのシミュレーションを続けて実施した。この時 Si 或いは Xe 原子が該当する円筒領域外に出た場合、これらの原子は「無効」のフラグを付与した状態でチェックインを行い、以後チェックアウトの対象とならないようにした。

今回、衝突箇所のパラメータ、および衝突領域

シミュレーション前

140回 ($8.6 \times 10^{12}/\text{cm}^2$ 相当)衝突後

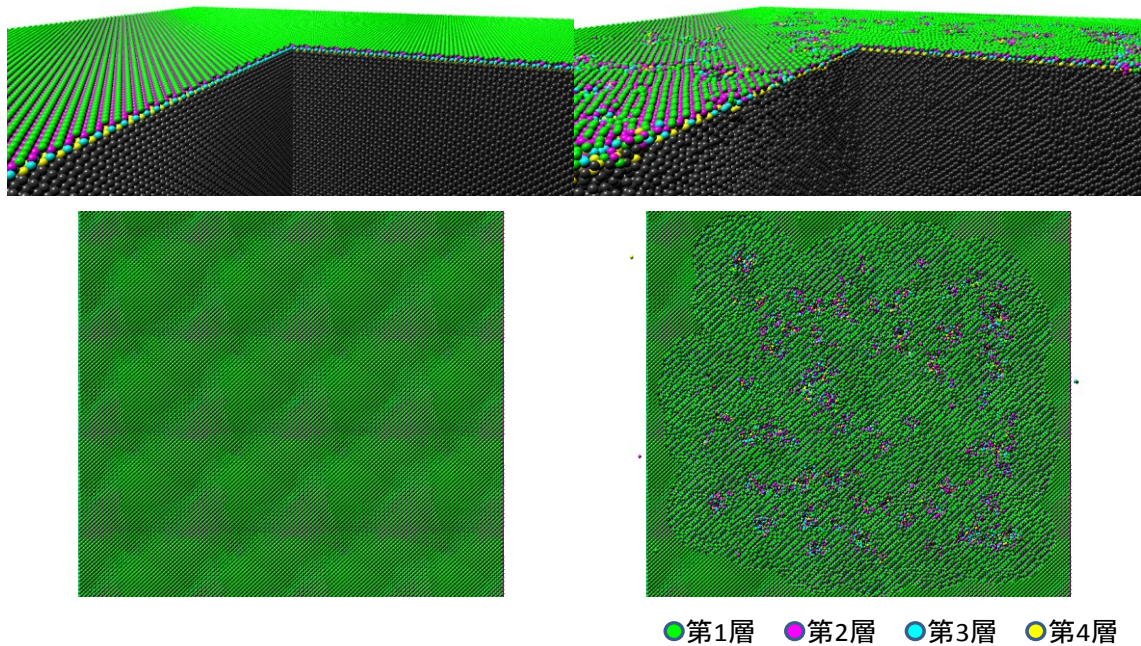


図 3: 1keV の Xe 原子を Si(100)表面に対し逐次的に衝突させる分子動力学シミュレーションの結果.

の依存関係グラフを作成には、以下のような単純な方法をとった.

- ・j 番目のジョブ担当領域が i 番目のジョブ(ただし $i < j$)と重なる場合, j の linkfrom の要素に i を付加.
- ・リスト 3 の要領で Xcrypt スクリプト内において依存関係が構築される.

この方法では、依存関係のリンクは単純にジョブ数の 2 乗で増加するため、ジョブ数の増加に従い Xcrypt は多量のメモリが要求される結果となった。そこで、今回のシミュレーションではジョブを 20 毎に分割し Xcrypt のスクリプトを実行することとした。より多量のジョブを一度に取り扱うためには、依存関係のリンクを直近のもののみに限定する、といった簡略化の手続きをあらかじめ実施する必要がある。

Si(100)表面への Xe 原子の衝突シミュレーションを 140 回実行した結果を図 3 に示す。この照射量はおよそ $8.6 \times 10^{12}/\text{cm}^2$ に相当する。図 3 では Si 表面の第 1 層から 4 層までが見分けられるよう異なる色で表現している。図より、Xe 原子の衝突箇所において原子配置が大きく乱されることが観察

される。また衝突の状態によっては、上部 4 原子層に相当する領域の Si 原子が移動することで、それより深い領域の Si 原子が露出する、といった深いクレーター状のダメージが形成されることも示された。同時に、Xe の衝突の影響により表面近傍の Si 原子が真空中へ脱離する現象(スパッタリング)も観察された。このようなシミュレーションを通して、Xe 原子 1 回あたりの衝突による脱離数の他、脱離する原子が直前にいた位置情報を得ることにより、スパッタリングモデルの検討を行うことが可能となった。

(2) 当初計画の達成状況について

分子動力学シミュレーションを原子衝突現象に適用する場合の問題として、原子の衝突箇所近傍にのみ極めて高速の粒子が多数存在し、その影響により系全体の時間刻みを短く取らざるを得ないことが挙げられる。この点を改善すべく、本年度は、MD シミュレーションのコアプログラム内での動的な時間刻み配分、並列コアへの資源割り当ての調整法の検討を当初の目標とした。しかし、

リソース配分およびプリ/ポストプロセスへの応用の観点から、Xcrypt を活用したジョブレベルでの並列化によるアプローチという予定とは異なる手法をとることとなった。Xcrypt という軽量言語のフレームワークを用いることで、タスクの並行実行、および依存性のあるタスクの効率的な制御が極めて容易に実現できた。このことは、本年度の目標とした「大規模な系の中から注目すべき領域を抽出し、この部分の精度よく解析する」という目的に合致したものであり、本年度の目標については一応の達成を見たといえる。

4. 今後の展望

大規模分子動力学シミュレーションにより得られた多量の原子座標データに対する、効率的なポストプロセッシングの方法として、Xcrypt による電子顕微鏡イメージシミュレーションプログラムのタスク並行実行を試みた。Xcrypt はローカルとリモート、それぞれのシステムにおけるジョブ実行手順の違いを吸収する。そのため、これまで利用してきたローカル環境でのデータ解析プログラム、スクリプトをほとんど変更することなく、そのまま遠隔のスーパーコンピュータ上にて分散並行処理を行うことができた。本手法は今回示した電子顕微鏡イメージシミュレーションに限らず、各種データの大量一括変換、パラメータサーベイ等、多様なプリ・ポストプロセスを迅速に分散並行処理環境へ移行するための手段として、極めて有用であると考えられる。

一方、巨大標的材料に対する衝突シミュレーションのように、シミュレーションタスクの実行に前後の依存関係が存在する系についても、極めてシンプルなモジュールの導入により実現可能であることが示された。このことは個々のタスクがより複雑に関連するシミュレーションシステムを設計する場合においても、Xcrypt が柔軟に対応できることを示すものであり、さらなる応用展開の可能性を示すものといえる。

一方、ジョブレベルでの効率的な運用が可能となることにより、コアとなるシミュレーションプ

ログラム、および周辺を支える解析ツール群の高機能、高性能化への要求がより明確になった。平成 21 年度より本事業で実施した、コアとなるシミュレーションプログラム、解析プロセスの効率化に加え、今後は特に高速かつ高可搬性を備えた巨大座標データを扱うためのソフトウェア基盤の構築に重点を置くことで、それぞれの基盤要素の連携を図り、原子衝突現象におけるシミュレーション技術の展開に資していきたい。

5. 研究成果リスト

(1) 学術論文

T. Aoki, T. Seki, J. Matsuo, “Molecular dynamics simulations of large fluorine cluster impact on silicon with supersonic velocity” Nucl. Instr. and Meth. B 269 (2011) 1582-1585.

T. Aoki, T. Seki, J. Matsuo, “Molecular dynamics study of crater formation by core-shell structured cluster impact” Instr. and Meth. B 269 in press (available online on 2011).

(2) 国際会議発表

T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo, “Molecular dynamics study of species and structure effect on large cluster impact” E-MRS 2011 Spring Meeting (2011/5/9, Nice, France)

T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo, “Large-scale molecular dynamics simulation of huge fluorine cluster impact on silicon” 21st MRS-Japan academic symposium (2011/12/19-21, Yokohama).

T. Aoki, T. Seki, J. Matsuo, T. Iwashita, T. Hiraishi, S. Satake, T. Kenmotsu, “Concurrent job control of simulations for iterative radiation and post processing”, 11th International Conference on Computer Simulations of Radiation Effects in Solids (2012/06/24-29, Santa Fe, USA)

(3) 国内会議発表

青木学聡, 瀬木利夫, 松尾二郎「巨大クラスター衝突による表面加工プロセスの解析」第 1 回マルチスケールマテリアルモデリングシンポジウム (2011/5/23-24, 大阪大学)