

準粒子自己無撞着 *GW* 法による界面電子状態解析に向けた 基盤整備と試行計算

課題責任者

小幡 正雄 金沢大学理工研究域数物科学系

著者

小幡 正雄^{*1}, 真砂 啓^{*2}, 小谷 岳生^{*3}

^{*1} 金沢大学理工研究域数物科学系, ^{*2} 海洋研究開発機構付加価値情報創生部門地球情報科学技術センター,

^{*3} 鳥取大学工学部

キーワード: 準粒子自己無撞着 *GW* 法, 第一原理計算, 超格子, 半導体, GPU 計算

1. はじめに

本課題では、準粒子自己無撞着 *GW* 法 (QSGW 法) [1] を界面電子状態の系統的研究へ適用するための基盤整備と試行計算を目的とする。近年、半導体デバイス、スピントロニクス材料、酸化物ヘテロ界面など、多様な機能性材料において界面が電子物性を決定づける主要因となっている。界面におけるバンドオフセットや電荷移動、局所的な電子相関の変化はデバイス性能に直結する重要な物理量であり、その高精度予測は材料開発において不可欠である。しかし、従来の密度汎関数法 (DFT) ではバンドギャップや 3d 電子帯の位置を正確に再現できず、界面電子状態の信頼性ある予測には限界があった。

これに対し、QSGW 法は電子励起の記述において高い信頼性を持ち、バンドギャップ、有効質量、局在軌道の位置などを実験値と整合的に再現できる手法として知られている。一方で、QSGW 法は計算コストが DFT と比較し極めて大きく、特に界面のような大規模超格子系では実用的な計算時間を達成することが困難であった。本課題では、この問題を解決するため、GPU を活用した QSGW 計算の高速化と、界面系への適用に向けた準備を進めた。A100 GPU を用いた QSGW の高速化により [2]、40 原子規模の系において、CPU 実装 (4CPU ノード) に対して 1GPU ノード (4GPUs) で最大 10 倍超の高速化が得られており、混合精度法では 30 倍以上の高速化が可能であることを示した。本課題では、地球シミュレータにおける GPU ノードの界面系への適用可能性を検証し、既存の研究結果や実験値との比較を通じて QSGW 法の妥当性の評価、将来的な界面データベース構築の基盤となる知見を得ることを目指す。

2. 計算手法および計算モデル

本課題では、半導体界面における電子状態を高精度に評価するため、準粒子自己無撞着 *GW* (Quasiparticle Self-Consistent *GW*, QSGW) 法に基づく第一原理計算を実施する。QSGW 法は、電子励起を独立粒子近似で記述するための有効一体ハミルトニアンを自己無撞着に決定する手法であり、従来の ワンショット *GW* 法に比べてバンドギャップ、有効質量、局在軌道のエネルギー位置などを高精度に再現できる。また、材料依存性の強い交換相関効果をパラメータに依存せず取り扱えるため、異種材料界

面のようなモデルでは記述が困難な電子構造を持つ系に対しても信頼性の高い準粒子エネルギーを与える。

本研究で対象とする界面モデルとしては、(i) 閃亜鉛鉱型構造 InAs/GaSb 界面 (c 軸接合)、(ii) ウルツ鉱型構造 GaN/AlN 界面 (c 軸接合) の 2 種類を採用する。これらはいずれも実験的・産業的に重要な III-V および III-N 系半導体界面であり、バンドアライメントや界面準位の精密評価が求められている。

さらに、将来的な界面データベース構築を見据え、計算条件・モデル構築手順・解析指標を標準化し、系統的研究を可能とするための基盤整備も本研究の重要な目的の一つである。これにより、多様な界面系に対して一貫した精度で電子構造データを蓄積できる枠組みを構築する。

本研究で用いる QSGW 実装は第一原理パッケージ *ecalj* に基づいており [3, 4]、全電子・フルポテンシャルの枠組みで PMT (Muffin-tin + Augmented Plane Wave) 基底を用いる点にも特徴がある。本コードは AGPLv3 ライセンスのもとでオープンソースとして公開されており、GitHub 上で開発が継続されている。GPU 実装部分も同様に公開されている

(<https://github.com/tkotani/ecalj/>)。

3. 結果と議論

i) InAs/GaSb 超格子

InAs/GaSb は Type-II バンドアライメントを示す典型的な界面系であり、電子と正孔が空間的に分離される構造を持つため、界面電荷移動やバンドオフセットの定量的評価が極めて重要である。(InAs)_n(GaSb)_n (n=1, 2, 3, 4, 5, 6, 8, 10, 12: n=12 はユニットセルあたり 48 原子を含む) 超格子モデルに対して、QSGW 法を GPU ノード上で適用した。スピン軌道相互作用を考慮したバンドギャップの層数 (n) 依存性を図に示す。n に対する QSGW バンドギャップは、光吸収 (Abs) およびフォトルミネッセンス (PL) 実験値と良好な一致を示し、層数依存性の再現にも成功している。狭バンドギャップ物質のため、従来の LDA/GGA 法では金属的なバンドが得られるのに対し、QSGW 法が界面系においても信頼性の高い電子構造予測を可能にすることを示している。単位胞に 40 原子では、4GPU で準粒子自己エネルギー計算は約 3 時間、48 原子

系では 8 時間程度で実行できることが確認され、界面系において実用的な計算時間で QSGW 計算を適用できる見通しを得ている。

ii) GaN/AlN 超格子

GaN および AlN の電子構造について、一般勾配近似による DFT 計算が、それぞれ 1.5-2 eV 程度的大幅なバンドギャップ過小評価を示すのに対し、QSGW 法では GaN: 3.3 eV (実験 3.4 eV), AlN: 6.1 eV (実験 6.0 eV) と、実験値と極めて良い一致を示した。超格子構造の QSGW 計算では、 $(\text{GaN})_1/(\text{AlN})_9$ 構造では量子閉じ込め効果により 4.9 eV (253 nm) の大きなバンドギャップが得られ、バルク GaN (3.4 eV) を大きく上回る深紫外化が確認された。これは、超格子計算によるバンドギャップ増強を示し、また、 $(\text{GaN})_2/(\text{AlN})_8$ 構造では 4.4 eV (282 nm) となり、層厚増加に伴うミニバンド形成の影響が現れることが確認された。これらの結果は、超格子構造における量子閉じ込め効果・界面効果がバンドギャップ制御に大きく寄与することを示している。

iii) 自動計算コードの開発

QSGW 計算の大規模展開に向け、入力生成から QSGW 反復、バンドギャップ抽出、PDOS 生成までを自動化する計算基盤を整備した。これにより、1500 材料以上の QSGW 計算を安定して実行できることを確認している[5]。さらに、得られた大規模データを用いて、DFT 計算(局所密度近似)の部分状態密度 から QSGW バンドギャップを予測する機械学習モデル (DOSnp) を構築し、従来の線形回帰法を上回る精度を達成した。これらの成果は、将来的に界面系の大量計算やバンドラインナップの統計的解析、マテリアルインフォマティクスとの連携を可能にする基盤となる。

4. まとめ

本課題では、界面電子状態の高精度予測に向けて、QSGW 法の GPU 実装を用いた高速計算基盤の整備と、半導体界面系への適用可能性の検証を行った。InAs/GaSb および GaN/AlN 超格子に対する QSGW 計算では、超格子構造や母相材料のバンドギャップが実験値と一致すること、さらに超格子構造における層厚依存性や量子閉じ込め効果が実験と整合的に再現できることを確認した。これにより、QSGW 法が界面系に対しても高い信頼性を持つことが明確となった。

また、1500 材料以上を対象とした自動 QSGW 計算基盤を構築し、PDOS を入力とする機械学習モデル (DOSnp) により QSGW バンドギャップを高精度に予測できることを示した。これらの成果は、将来的な界面データベース構築や大規模材料探索に向けた重要な基盤となる。

今後は、本課題で確立した計算基盤を Fe/MgO や遷移金属/酸化物界面へ拡張し、スピントロニクス材料におけるバンドオフセットやスピン依存電子状態の高精度評価を進める予定である。これにより、界面物性の定量的理解とデバイス設計への応用がさらに加速すると期待される。

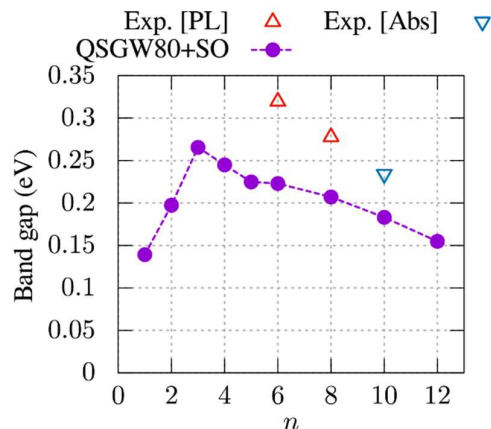


図: InAs/GaSb 超格子系におけるバンドギャップの計算値と実験値 (Exp. [PL] A.P. Ongstad et al., J. Appl. Phys. 89, 2185 (2001), [Abs] B. Klein et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 44, 075102 (2011))

謝辞

数値計算には海洋研究開発機構の地球シミュレータおよび東京大学物性研究所スーパーコンピュータセンターのシステムを利用しました。本研究の一部は、JSPS 科研費 Grant Number 24K08229, 24K17608 の助成を受けて行われました。

文献

- [1] T. Kotani, M. van Schilfgaarde, S. V. Faleev, “Quasiparticle self-consistent GW method: A basis for the independent-particle approximation”, Physical Review B 76(16), 165106, (2007 年 10 月).
- [2] M. Obata, T. Kotani, T. Oda, “Efficient implementation of the quasiparticle self-consistent GW method on GPU”, Computational Materials Science 260, 114190, (2025 年 8 月).
- [3] T. Kotani, “Quasiparticle self-consistent GW method based on the PMT method”, Journal of the Physical Society of Japan 83(9), 094711, (2014 年 9 月).
- [4] D. Deguchi, K. Sato, H. Kino, T. Kotani, “Accurate energy bands calculated by the hybrid quasiparticle self-consistent GW method implemented in the ecalj package”, Japanese Journal of Applied Physics, 55(1), 051201 (2016 年 3 月).
- [5] S. Takano, T. Kotani, M. Obata, K. Sato, H. Saito, H. Fujii, T. Oda, “Machine learning band gap predictions: linking quasiparticle self-consistent GW and LDA-derived partial density of states”, Japanese Journal of Applied Physics, 65, 031002, (2026 年 2 月).