

機械学習ポテンシャルを用いた HfO₂ 結晶のモデリングの検討 Investigation of modeling HfO₂ crystals using machine learning potentials

東大生産研¹, 東大 d.lab²

°(D2)糸矢 祐喜¹, 小林 正治^{1,2}

The Univ. Tokyo, °Yuki Itoya, and Masaharu Kobayashi

E-mail: itoya@nano.iis.u-tokyo.ac.jp

背景と目的: HfO₂系強誘電体(FE-HfO₂)は、CMOSの微細化プロセスとの整合性から高密度かつ低消費電力なメモリを実現する材料として期待されている。これまでに第一原理計算を用いた HfO₂ のモデリングにより結晶相の安定性とドーパ元素の関係や配向の関係が示されてきた[1-3]。HfO₂系強誘電体は多結晶での実用化が想定されており、結晶の大きさは10~20 nm程度とされている。そのような大きい系では通常の第一原理計算では計算量が多く計算が困難である。そこで、計算負荷の高いポテンシャル計算部分を機械学習により作成したエネルギーポテンシャル面(MLPs)に置き換えることで計算負荷を低減する手法が提案されている。本研究では、機械学習ポテンシャル手法として Pickard らが提案した Ephemeral Data Derived Potentials (EDDP)を用いてモデリングを行い、学習パラメータとモデリング精度の関係を評価した[4]。

結果と考察: ポテンシャルモデルの学習に用いるデータ数やカットオフ半径(Rc)などのパラメータを振り、エネルギーの二乗平均平方誤差(RMSE)を調べた。これにより、データ数を増やすと RMSE が減少し、カットオフ半径は5.5 Å程度で RMSE の減少が緩やかになる結果を得た。次に、得られた EDDP に対して、フォノンバンドを用いて評価を行った。まず、RMSE を減少させたデータ数とカットオフ半径の調整を行い作成した orthorhombic 相(o-相)の HfO₂ のフォノンバンドを図1に示す。この結果からパラメータの最適化によりフォノンバンドでエネルギーが負となり不安定となる部分が縮小していることが示され、モデリングの妥当性が向上することが確認された。さらに、学習ポテンシャルの数を増やすことによる妥当性の向上を示す結果を得た。得られたモデルによるフォノンバンドの精度の評価のため、度汎関数法(DFT)のフォノンバンドと EDDP のフォノンバンドを比較した(図2)[5]。この結果から orthorhombic 相の低エネルギー側においては DFT 計算の結果と良く一致していることが示された。しかし、tetragonal 相(t-相)については低エネルギー側においても不一致が見られた。これは作成した MLPs は t-相が安定する状態を学習できていなかったことを示唆している。

まとめ: 本研究は機械学習ポテンシャルとして EDDP を用いた HfO₂ 結晶のモデリングについて、学習パラメータとフォノンバンド計算の妥当性および精度との関係を調べた。その結果データ数、カットオフ半径、学習ポテンシャル数が重要であることを示した。そして、この手法は HfO₂ の一部の結晶を再現可能であるが、すべての結晶相を再現する MLPs の作成には学習データや学習手法の改善が必要であることが

示唆された。

謝辞: 本研究は東京エレクトロンテクノロジーソリューションズ株式会社におけるインターンシップで行われた。

References: [1] R. Batra et al., J. Phys. Chem. C 121 4139–45 (2017). [2] Y. Zhou, et al., Computational Materials Science, Volume 167, Pages 143–150, ISSN 0927-0256, (2019). [3] M. Kobayashi et al., Nano Convergence 9, 50 (2022). [4] C.J. Pickard, Phys. Rev. B 106, 014102 (2022). [5] Fan, S., Singh, S., Xu, X. et al. npj Quantum Mater. 7, 32 (2022).

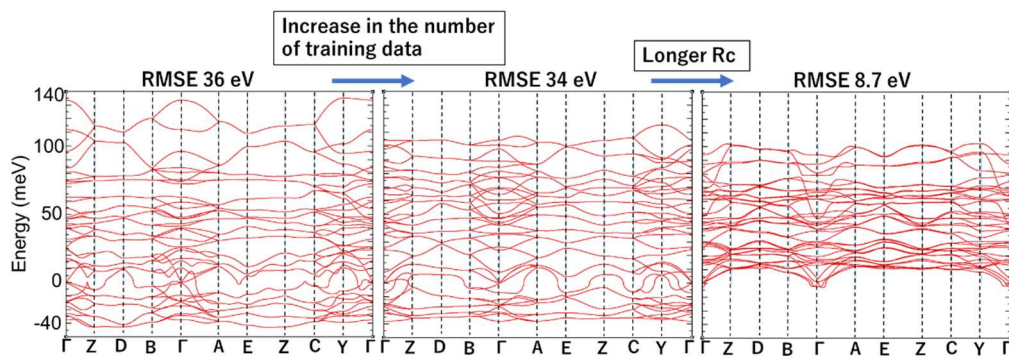


Fig. 1: Phonon dispersion of o-phase HfO₂.

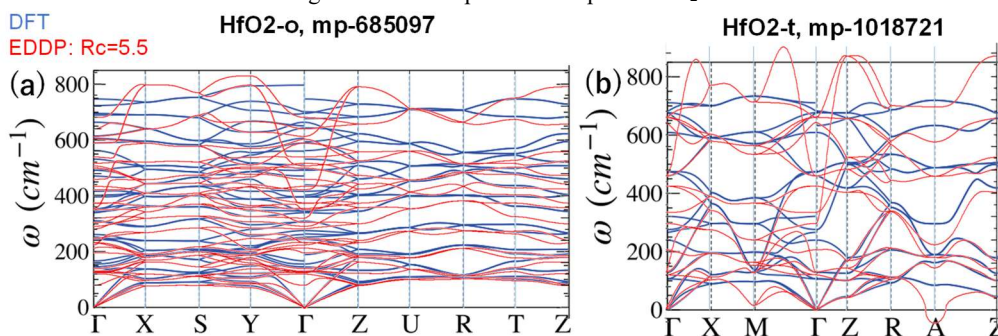


Fig. 2: Phonon dispersion of o-phase HfO₂.