

# 機械学習原子間ポテンシャルを用いたフッ酸溶液の シミュレーション

阪大院工<sup>A</sup>, 株式会社 SCREEN ホールディングス<sup>B</sup>

久米 世大<sup>AB</sup>, Rizka Nur Fadilla<sup>A</sup>, Harry Handoko Halim<sup>A</sup>, 森川 良忠<sup>A</sup>

Simulation of hydrofluoric acid solution using machine learning inter atomic potentials

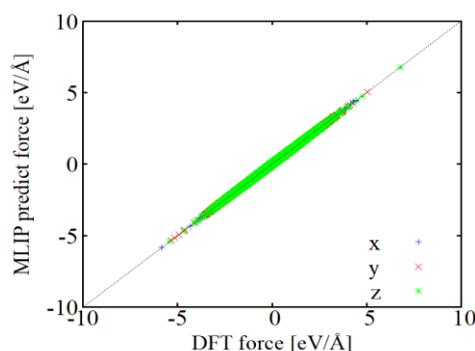
<sup>A</sup> Dept. of Precis. Eng. Grad. Sch. Eng. Osaka Univ., <sup>B</sup>SCREEN Holdings Co., Ltd.

T. Kume<sup>AB</sup> and R. N. Fadilla<sup>A</sup> H. H. Halim<sup>A</sup> Y. Morikawa<sup>A</sup>

【背景】半導体産業における表面処理プロセスではフッ化水素は重要な役割を持ち、特にウェットプロセスにおいてシリカのエッチングに使用されることが知られている。水溶媒中のフッ化水素は低濃度では弱酸性を示し、濃度に依存した溶媒中の解離状態の理解は非常に重要である。我々は第一原理計算とグラフニューラルネットワークを用いて機械学習原子間ポテンシャル (MLIP) を開発し、分子シミュレーションを実施した。

【計算方法】水およびフッ化水素水溶液のバルク系を対象に DFT 計算を実施し、トレーニングデータを用意した。MLIP の作成には、E(3)-同変グラフニューラルネットワークソフトウェア NequIP<sup>[1]</sup>を利用した。低濃度および高濃度の溶液を対象に、r2SCAN0 汎関数を用いた学習データを取得し、DFT の計算結果を用いて HF 水溶液に対応する MLIP を作成した。次に精度向上のため、拘束条件付き MD を実施することで HF 水溶液における不安定な構造を生成し、コミッティーモデルにより独立な構造を抽出し 4,453 構造を取得した。得られた構造をもとに高精度な MLIP の作成を実施した。

【結果】DFT 計算をもとに作成した MLIP は、RMSE\_F:21 meV/Å, RMSE\_E:1.2 meV/atom と十分な学習精度を示している。またアンブレアサンプリングシミュレーションにより HF 分子の解離に対するフリーエネルギーを算出した結果、0.08 eV であることがわかった。MLIP を用いた MD 計算による研究成果の詳細は、当日の発表にて紹介する。



MLIP の精度比較

[1] Batzner, S., et al, Nat Commun 13, 2453 (2022).