

ニューラルネットワークポテンシャルによる Au/Li₃PO₄ 界面近傍での 欠陥挙動解析

○清水 康司^{1*}, 安藤 康伸², 南谷 英美³, 渡邊 聡¹

¹ 東京大学工学系研究科, ² 産業技術総合研究所, ³ 分子科学研究所

Analyses of defects behavior near the interfaces of Au/Li₃PO₄ using neural network potential

○Koji Shimizu^{1*}, Yasunobu Ando², Emi Minamitani³, and Satoshi Watanabe¹

¹The University of Tokyo, ²National Institute of Advanced Industrial Science and Technology,
³Institute for Molecular Science

1. はじめに

固体電解質である Li₃PO₄ を Au (または Ni) と Li で挟んだ積層構造は新規不揮発性メモリ[1]としての応用が検討されており、電極-固体電解質界面の構造や Li イオン分布がその動作機構の理解に重要である。我々はこれまで、密度汎関数法 (DFT) による欠陥生成エネルギーと連続体モデルの連成計算を用いて界面近傍での Li イオン分布の解析[2]を行なってきた。より詳細な解析には DFT 計算による界面モデルの直接的な取り扱いが必要となるが、計算コストの高さから妥当なモデルを用いることはきわめて困難であった。近年、計算の精度と速度の両立が期待できる手法として、ニューラルネットワークを用いた原子間ポテンシャル (NNP) が考案され[3]、Li₃PO₄ のイオン伝導度やアモルファス構造を精度よく計算できることが示されている[4, 5]。以上を念頭に、本研究では NNP を用いて Au/Li₃PO₄ 界面系に対する原子間ポテンシャルを作成し、界面近傍や Li₃PO₄ 中における欠陥挙動の解析を行った。

2. 計算方法

4 元素系 (Au-Li-P-O) の NNP 作成には、Au と Li₃PO₄ のバルク構造および Au(111)/Li₃PO₄ 界面構造を用いた。また、Li₃PO₄ 中の欠陥として、Li 空孔・Li₂O 空孔・格子間 Li をそれぞれ含むデータを作成した。そして、分子動力学計算で作成した様々な構造から多様な構造を抽出し[6]、それらに対して DFT 計算を行った。ここで得られたエネルギーと力の情報をもとに NNP を作成した。NNP の入力には、各原子の周囲の原子環境

を記述する対称性関数[3]を使用し、カットオフ距離は 9 Å とした。

3. 結果と考察

計 24164 構造に対して DFT 計算を行い、これらの構造データをもとに 4 元素系の NNP を作成した。その結果、テストデータ (10%) のエネルギーと力の予測に対する二乗平均平方根誤差は 5.78 meV/atom および 114 meV/Å となった。

次に、作成した NNP を用いて、5520 原子 (Au: 1200 原子、Li₃PO₄: 4320 原子、格子不整合 < 1.6%) を含む Au(111)/Li₃PO₄ 界面モデルで欠陥挙動を解析した。ここではまず、Li₃PO₄ 中の様々な位置での Li 欠陥 (Li 空孔・格子間 Li) を調査したところ、いずれの欠陥においても界面近傍における生成エネルギーがスーパーセル中央に比べて低くなる傾向が得られた。次に、欠陥密度依存性について調査したところ、欠陥密度の増加とともに欠陥あたりの生成エネルギーの増加がみられた。一方で、欠陥密度が高い場合でも欠陥は界面直上に存在しやすい傾向が得られた。本講演では、上記の結果に対する DFT 計算による検証結果についても報告する予定である。

本研究は JST-CREST と JSPS 科研費 (20H05285, 20K15013, 19H02544) の支援を受けたものである。

文 献

- 1) I. Sugiyama et al.: APL Mater **5**, 046105 (2017).
- 2) K. Shimizu et al.: Phys. Rev. Mater. **4**, 015402 (2020).
- 3) J. Behler and M. Parrinello: Phys. Rev. Lett. **98**, 146401 (2007).
- 4) W. Li et al.: J. Chem. Phys. **147**, 214106 (2017).
- 5) S. Watanabe et al.: J. Phys. Energy **3**, 012003 (2021).
- 6) K. Shimizu et al.: Phys. Rev. B **103**, 094112 (2021).

*E-mail: shimizu@cello.t.u-tokyo.ac.jp