

ニューラルネットワークを用いたアモルファス物質中の原子拡散の研究

アモルファス酸化タンタル中の銅原子拡散を例に、アモルファス物質中の原子拡散を研究するための原子間ポテンシャルを、ニューラルネットワークを用いて第一原理計算結果を再現するように構成した。この原子間ポテンシャルを用いることで、銅原子の拡散経路や拡散経路に沿ったエネルギー変化等について第一原理計算の結果をよく再現できた他、網羅的に得られた全拡散経路と付随する拡散エネルギー障壁値を用いた動的モンテカルロ法計算の結果も拡散の活性化エネルギーについて実験値とよく一致し、このアプローチが原子拡散の研究に大変有望であることを示した。

固体中の原子拡散は古くから盛んに研究されてきた問題であるが、新材料・原理を用いた不揮発性メモリや全固体型リチウム電池等、近年の情報・エネルギーデバイスの研究の進展の中で、より深い理解が求められてきている。特に界面のごく近傍等、ナノメートルスケールの領域での微視的な振舞いが近年重要視されているが、これを実験により明らかにするのは現在でも難しい。他方、第一原理計算では原子拡散の活性化エネルギーを信頼性高く求めることができ、実際、第一原理分子動力学法や nudged-elastic-band 法により求めた活性化エネルギーは多くの物質において実験結果とよく一致する。しかし、アモルファス物質中の原子拡散については、拡散する原子の周囲の状況が様々に異なるため、その多様性を考慮して第一原理計算を行い、信頼性の高い予測をすることは、現時点でも挑戦的な課題といえる。

一方で、ニューラルネットワークなど機械学習の手法を用い、第一原理計算結果に合うように原子間ポテンシャルを構成する方法が注目されている。原子間ポテンシャルを、第一原理計算結果を再現するように構成する試みは以前から行われ一定の成果を収めてきたが、3 体ポテンシャル等の比較的簡単な関数形を用いた場合、様々な状況にフレキシブルに対応できる原子間ポテンシャルを構成することは極めて難しく、そのパラメータ最適化に膨大な試行錯誤を要したり、結果の精度が不十分だったりすることが多かった。機械学習を用いた場合、原子間ポテンシャルの関数形自体は複雑になるものの、従来の経験的原子間ポテンシャルに比べ、より多様な状況に対応できるポテンシャルを比較的容易に構成できると期待されている。実際、様々な物質の構造やその温度等による相転移、化学反応の素過程の検討等に既にこの方法は適用され、その有望性が示されている。アモルファス物質中の原子拡散はこのような多様な状況に対応できる原子間ポテンシャルがきわめて有効な問題と考えられるが、それにもかかわらずこれまで研究が少なかった。

最近、東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻のメンバーを中心とする研究グループは、アモルファス酸化タンタル中の銅原子拡散を具体的なターゲットに、ニューラルネットワークを用いて第一原理計算結果をよく再現する原子間ポテンシャルを構築し、これを用いてアモルファス内部の銅原子拡散挙動を詳細に調べて、第一原理計算結果や実験データをよく再現できることを示した。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ) の 2017 年 10 月号に掲載された。

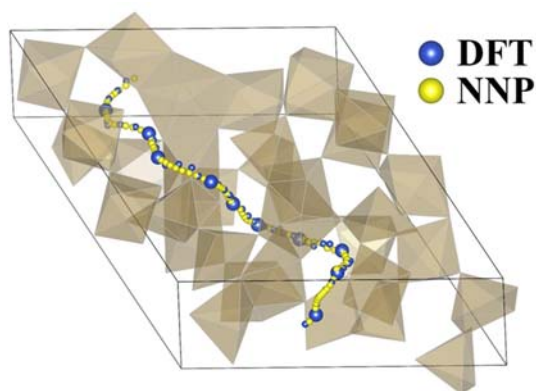


図 1. アモルファス酸化タンタル中の拡散経路の例。第一原理計算（DFT）とニューラルネットワークポテンシャル（NNP）の結果の比較。

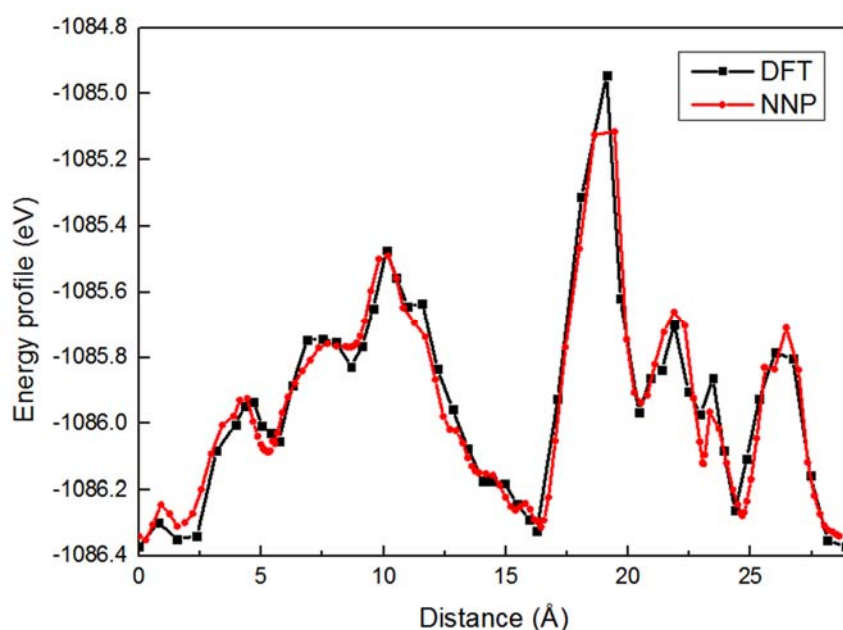


図 2 図 1 の拡散経路に沿ったエネルギー変化の計算結果。

アモルファス酸化タンタル中の銅原子拡散は、「原子スイッチ」と呼ばれる、金属フィラメントの形成・消失により電気抵抗が変化する抵抗変化素子に関連して研究されている。本研究では、アモルファス酸化タンタル母体中の様々な位置に銅原子を挿入し、密度汎関数法に基づく第一原理計算により系の全エネルギーを計算した。そして、銅原子の位置を入力データ、対応する全エネルギー値を出力値として両者を結び付けるニューラルネットワークを考え、上記の第一原理計算データをできるだけよく再現するようにこのニューラルネットワークを訓練する、すなわちニューラルネットワーク中のパラメータを最適化することでアモルファス酸化タンタル中の銅原子のポテンシャルを構成した。ニューラルネットワークを使うアイデア自体は既に以前に提案されており、本研究もその枠組みを用いているが、先行研究では系の全原子の動きを考慮しているのに対し、本研究ではこの系で特に動きやすい銅原子のみに注目することで、ずっと簡便な形のポテンシャルを構成することに成功している。銅原子の移動による周辺タンタル・酸素原子の構造変位は全エネルギー

計算時の構造最適化によって陰に考慮されており、大きな構造変化が起きない条件下では十分良い近似であることが期待される。

1800 個の第一原理計算データで訓練したポテンシャルは、訓練時に用いなかった 200 個の第一原理計算データのエネルギー値もよく再現できた。そして、銅原子の準安定位置や準安定位置をつなぐ拡散経路、その経路に沿ったエネルギー変化計算を第一原理計算の 10^7 倍の速度で計算でき、その結果も第一原理計算とよく一致した。図 1 に拡散経路、図 2 にその経路に沿ったエネルギー変化について、第一原理計算とニューラルネットワークポテンシャルの結果の比較を示す。さらに、網羅的に得られたアモルファス内の全拡散経路とそれに付随する拡散エネルギー障壁値を用いて動的モンテカルロ法計算をし、得られた拡散係数の温度変化から拡散の実効的な活性化エネルギーを見積もった結果、実験値とよく一致した。以上の結果は、アモルファス物質中の原子拡散挙動の詳細な検討にニューラルネットワークを用いた原子間ポテンシャルが大変強力なアプローチであることを示唆しており、今後の研究の展開が期待される。

原論文

[Cu Diffusion in Amorphous Ta₂O₅ Studied with a Simplified Neural Network Potential](#)

[Wenwen Li, Yasunobu Ando, and Satoshi Watanabe: J. Phys. Soc. Jpn. 86 \(2017\) 104004](#)

問合せ先：

安藤 康伸（産業技術総合研究所 機能材料コンピュテーショナルデザイン研究センター）

渡邊 聡（東京大学大学院工学研究科マテリアル工学専攻）