

67. Si 系半導体における点欠陥と不純物の欠陥複合体・クラスターの学理深化

名古屋大学 大学院工学研究科 講師 横井 達矢

概要

本研究では、Si 半導体において複数の点欠陥や不純物原子により形成される欠陥複合体や拡張欠陥の原子・電子構造を解明することを最終目的として、第一原理計算データを学習させた機械学習ポテンシャルを構築した。その結果、まず予備検討として行った Si における様々な格子欠陥について、本研究で構築した機械学習ポテンシャルは、これまで先行研究で報告された機械学習ポテンシャルに比べて系のポテンシャルエネルギーの予測能力が高いことが示された。今後、本手法を多元系に拡張することで、欠陥複合体や拡張欠陥の原子構造を高精度・高速で予測できることが期待される。

背景および目的

Si 系半導体は、既存技術だけでなく超高速・省電力ナノデバイスや量子コンピュータなどの次世代技術でも不可欠であり、さらに緻密な材料設計が求められる。他方、材料作製過程で導入される点欠陥や軽元素・金属不純物どうしの相互作用により、ナノ・メゾスケールの欠陥複合体や拡張欠陥が形成し、孤立欠陥にはない特性が発現する。例えば、再結合中心やドーパント不活性を引き起こす一方、有害な不純物の捕獲や機械強度の向上をもたらす。よって欠陥複合体や拡張欠陥の形成機構と原子・電子構造を根本から理解し、次世代の要求を満たす原子レベルでの欠陥制御が必須である。

これまで主に密度汎関数理論（DFT）計算による原子・電子レベル解析がされてきた。しかし莫大な計算コストのため、多くは数原子の欠陥複合体のみであり、数十から数百原子が関与する欠陥は多くが未解明である。現状では欠陥複合体や拡張欠陥の原子・電子構造の系統的理解には程遠く、それらの制御方法も確立されていない。そこで申請者は人工知能技術により、上記の課題解決を試みた。まず DFT データを学習させた機械学習ポテンシャルを構築し、高速・高精度で原子構造を予測する手法の確立を試みた。この方法をまず Si 中の空孔・格子間原子を含む様々な格子欠陥に適用することで、予測能力を検証した。

方法

本研究では、まず人工ニューラルネットワークポテンシャル（NNP）の実装を試みた。この方法では、ニューラルネットワークに DFT 計算から得られるポテンシャルエネルギー、原子にかかる力、応力を学習させることで、DFT 計算を直接行うことなく、DFT 計算結果を高精度・高速で予測する。Behler の先行研究[1]にもとづき 2 層の隠れ層をもつ NNP を実装した。また結晶構造データを NNP の入力とする際、記述子としてチェビシェフ多項式と対称関数により各原子周りの原子環境を数値化した。さらに記述子の部分も機械学習に置き換えた学習可能な記述子を実装した。以上 3 つの記述子にもとづく NNP に加えて、NNP 以外の機械学習との予測能力を比較するため、Gaussian approximation ポテンシャル[2]や Deep ポテンシャル[3]、Moment Tensor ポテンシャル[4]についても検証した。学習アルゴリズムには拡張カルマンフィルタを用いた。

モデル系として、Si における空孔や格子間原子、表面、粒界といった多様な格子欠陥を対象として、上記の NNP および機械学習ポテンシャルの予測能力を検証した。まず学習データを収集するため、完全結晶および格子欠陥を含む計算セルを参照構造として作製し、それに対して DFT 計算による構造緩和や分子動力学計算を適用することで系のポテンシャルエネルギーの DFT データを収集した。

結果および考察

まず原子間ポテンシャルの調整パラメータ数（モデルサイズ）に対する学習データの誤差を評価した。その結果、本研究で提案した機械学習にもとづく記述子は、対称関数に比べて 50%程度、チェビシェフ多項式に比べて 65%程度の誤差であり、これまでの記述子に比べて誤差が小さいことが明らかとなった。さらに NNP 以外の機械学習ポテンシャルに対しても、本研究の記述子の方が誤差が小さいことが示された。また同程度のモデルサイズの NNP および機械学習ポテンシャルについて、学習データを拡張した場合でも、本研究の記述子は誤差が最も小さかった。以上より、本研究で構築した手法は、点欠陥を含む格子欠陥に対して原子構造とポテンシャルエネルギーの関係を高精度で予測できることが示された。本研究期間では Si 単元系の解析に留まったが、今後は多元系に拡張し、また多層化するなどしてさらに NNP の近似能力を向上させて、Si 中の欠陥複合体や拡張欠陥に展開していく。

(完)

発表論文

- 1) M. Uchida, T. Yokoi, Y. Ogura, K. Matsunaga, Artificial-neural-network descriptor enhancing accuracy of machine-learning interatomic potential and its application to lattice defects in Si, Phys. Rev. Mater. 8 (2024) 103805.

引用文献

- 1) J. Behler and M. Parrinello, Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces, Phys. Rev. Lett. 98 (2007) 146401.
- 2) A. P. Bartok et al., Gaussian approximation potentials: The accuracy of quantum mechanics without the electrons, Phys. Rev. Lett. 104 (2010) 136403.
- 3) H. Wang et al., WDeePMD-kit: A deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics, Comput. Phys. Commun. 228 (2018) 178-184.
- 4) I. I. Novoselov et al., Moment tensor potentials as a promising tool to study diffusion processes, Comput. Mater. Sci. 164 (2019) 46.