

ニューラルネットワークポテンシャルを用いた H₂O 含有アモルファス Ta₂O₅ 中の Cu 拡散の研究

Cu diffusion in amorphous-Ta₂O₅ containing H₂O studied with high-dimensional neural network potential

東大院工¹ ○(M2)岡本 隼一¹, 清水 康司¹, 渡邊 聡¹

UTokyo¹, °Junichi Okamoto¹, Koji Shimizu¹, Satoshi Watanabe

E-mail: okmt408@cello.t.u-tokyo.ac.jp

Cu/アモルファス Ta₂O₅ (a-Ta₂O₅) /Pt 積層構造の抵抗変化型スイッチは次世代メモリ素子やシナプス素子への応用が期待されている。既報の実験結果から、スイッチングの律速過程はCuの拡散であること[1]や a-Ta₂O₅ 中の H₂O の存在が Cu イオンの拡散に影響を与えていること[2]等が明らかになっている。また密度汎関数理論 (DFT) に基づく計算結果から、H₂O で覆われた a-Ta₂O₅ 表面上では純粋な a-Ta₂O₅ 表面上より Cu イオン拡散障壁が低いことが示されている[3]。しかし DFT の計算コストが高いため、文献[3]では実際の H₂O 含有 a-Ta₂O₅ よりずっと簡便な計算モデルを用いていた。高性能な素子の設計に向け、H₂O の存在が Cu イオンの拡散に与える影響を含め、Cu イオン拡散の微視的挙動についてより深い理解が望まれている。そこで本研究では、機械学習により高予測精度と低計算コストの両立が期待できる高次元ニューラルネットワークポテンシャル (NNP) [4]を用いて a-Ta₂O₅ 中の Cu イオン拡散とそれに対する H₂O の影響を検討した。

少数の Cu 原子と H₂O 分子を含む a-Ta₂O₅ モデルを用いた DFT に基づく分子動力学 (MD) 計算で約 10000 個の構造に対してエネルギーおよび原子に働く力のデータを得、これを用いた機械学習により NNP を構築した。予測精度検証用の構造に対する NNP でのエネルギーと力の予測値の DFT 計算値に対する二乗平均平方根誤差は、それぞれ 6.36 meV/atom、355 meV/Å であった。

NNP を用い温度 1000 K で NVT アンサンブルの条件で MD 計算したところ、H₂O が H と OH に解離し、H は母体 a-Ta₂O₅ の O 原子と結合している様子が見られた (Fig. 1 参照)。また、密度の異なる 3 つのバルク水分含有 a-Ta₂O₅ 構造と H₂O が存在する場合と存在しない場合のバルク a-Ta₂O₅ の MD 計算を行って平均二乗変位 (MSD) の時間発展の 95 %信頼区間を推定したところ

(Fig. 2 参照)、バルク a-Ta₂O₅ の密度による Cu の拡散速度の変化が見られ、大きな空隙がないバルクモデルの構造でも H₂O による Cu の拡散速度の増加が見られることが分かった。

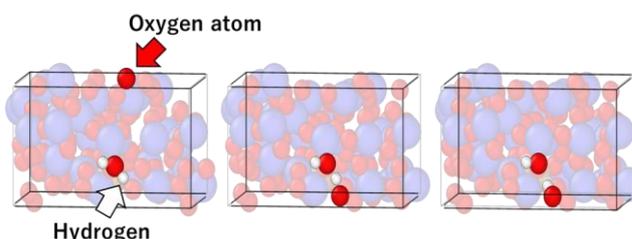


Fig. 1: Snapshots of dissociated H₂O seen in the NNP-MD.

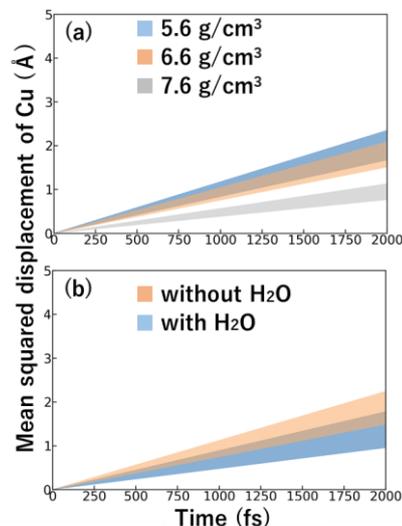


Fig. 2. (a) Density effect to Cu diffusion. (b) H₂O effect to Cu diffusion.

Fig. 2: Dependence of MSD of Cu on the (a) density and (b) presence of H₂O.

参考文献

- [1] Y. Shigeoka et al. Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 035202 (2018).
- [2] T. Tsuruoka et al., Adv. Funct. Mater. **22**, 70 (2012).
- [3] B. Xiao and S. Watanabe, Sci. Technol. Adv. Mater. **20**, 580 (2019).
- [4] J. Behler and M. Parrinello, Phys. Rev. Lett. **98**, 146401 (2007).