

実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新  
2017 年度採択研究代表者

2018 年度  
実績報告書

大場 史康

東京工業大学科学技術創成研究院  
教授

データ駆動型材料探索に立脚した新規半導体・誘電体の加速的開拓

## § 1. 研究成果の概要

本研究では、高精度・高速第一原理計算による演繹的アプローチと高信頼性データの機械学習による帰納的アプローチの統合により、信頼性の高い *in silico*(計算機中)ハイスループットスクリーニングを実現すること、そして高度な実験技術を基盤とした合成・評価・デバイス化とのインタープレイにより、新材料開発を加速することを構想している。半導体と誘電体のケーススタディを通じて、これをデモンストレーションすることが本研究のねらいである。さらに、得られた大規模データに基づいて物質の再分類、材料設計・探索指針の再構築を行い、材料科学並びに材料研究・開発の発展に広く貢献することを目指す。

本年度は、研究計画に従って、計算・データ科学に立脚した半導体・誘電体の物性、安定性、格子欠陥特性の予測手法の開発と、計算・データ科学の支援によるバルク合成・製膜プロセスの効率化を目指した連携研究を継続した。その結果、以下のような成果が得られた。

- ① 系統的な第一原理計算の実行とその結果の機械学習により、バンドギャップや誘電率等の予測モデルを構築した。また、高・低仕事関数半導体等の探索のための主要な指標となるバンドアライメントについて、その予測のための記述子を検討した<sup>1)</sup>。さらに、半導体のドーピングの阻害要因となるスモールポーラロン(small polaron)の安定性の予測について、計算手法の開発と応用を進めた<sup>2)</sup>。
- ② 相図作成の効率化を目指して、次に合成・測定すべき点を提案するアクティブラーニング手法を開発した。既知の相図に対して本手法を適用することで、機械学習により相図作成が効率化できることを示した。また、種々の合成実験への本手法の適用を開始した。
- ③ 3元系窒化物半導体の合成と物性評価に関して、 $\text{CaZn}_2\text{N}_2$ と $\text{CaMg}_2\text{N}_2$ の全率固溶体を高圧合成法により作製し、可視光ほぼ全域をカバーしたバンドギャップ制御を確認した。また、直接遷移型バンド構造を反映した、バンド端由来の発光を全組成試料において室温で観察することに成功した。さらに、MBEによる $\text{CaZn}_2\text{N}_2$ エピタキシャル薄膜成長に成功した。
- ④ 太陽電池の新規光吸収材料として研究を進めてきた $\text{ZnSnP}_2$ を用いたデバイス作製について、裏面電極と $\text{ZnSnP}_2$ との間にコンタクト層を挿入することで直列抵抗を低減し、エネルギー変換効率を更新した。また、 $\text{Mg}/\text{Zn}_3\text{P}_2$ 太陽電池について、界面に新規 $\text{Mg-Zn-P}$ 系化合物の形成を発見し、この化合物と $\text{Zn}_3\text{P}_2$ との接合により太陽電池として機能していることを明らかにした<sup>3)</sup>。
- ⑤ 層状ペロブスカイト型の新しい酸化物強誘電体を発見した。現状では、多結晶試料において室温で約100の比誘電率が得られている。また、high-*k*誘電体の候補として着目した多元系酸化物について、異種元素置換により、誘電損失を改善しつつ比誘電率が2倍に増強されることを見出した。

### 【代表的な原著論文】

1. Yoyo Hinuma, Yu Kumagai, Isao Tanaka, and Fumiyasu Oba, “Effects of composition, crystal structure, and surface orientation on band alignment of divalent metal oxides: A first-principles study”, *Physical Review Materials*, vol. 2, No. 12, pp.124603-1-20, 2018.
2. Tomoya Gake, Yu Kumagai, and Fumiyasu Oba, “First-principles study of self-trapped holes and acceptor impurities in  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  polymorphs”, *Physical Review Materials*, vol. 3,

No. 4, pp.044603-1-11, 2019.

3. Ryoji Katsube, Kenji Kazumi, Tomo Tadokoro, and Yoshitaro Nose, "Reactive epitaxial formation of a Mg-P-Zn ternary semiconductor in Mg/Zn<sub>3</sub>P<sub>2</sub> solar cells", ACS Applied Materials & Interfaces, vol. 10, Issue 42, pp.36102-36107, 2018.

## § 2. 研究実施体制

### (1)「材料探索」グループ

- ① 研究代表者:大場 史康 (東京工業大学科学技術創成研究院 教授)
- ② 研究項目
  - ・計算科学・データ科学に立脚したインシリコスクリーニング

### (2)「データ科学」グループ

- ① 主たる共同研究者:田村 亮  
(物質・材料研究機構国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点 主任研究員)
- ② 研究項目
  - ・材料探索のためのデータ科学手法の開発と応用

### (3)「材料創製」グループ

- ① 主たる共同研究者:平松 秀典 (東京工業大学科学技術創成研究院 准教授)
- ② 研究項目
  - ・有望物質の合成・物性評価・モデルデバイス化

### (4)「太陽電池」グループ

- ① 主たる共同研究者:野瀬 嘉太郎 (京都大学工学研究科 准教授)
- ② 研究項目
  - ・新規光吸収半導体の創製と太陽電池セル化

### (5)「誘電体」グループ

- ① 主たる共同研究者:谷口 博基 (名古屋大学理学研究科 准教授)
- ② 研究項目
  - ・新規誘電体材料の創製