

機械学習を用いた薄膜作製プロセスの高速化

物質・材料研究機構 大久保 勇男、侯 柱鋒*
東京大学 物性研究所 Mikk Lippmaa
*現 中国科学院

はじめに

我々は日常の生活において、五感を通して得る情報から、対象を分類する能力や、事象の背後にある規則性を獲得し、様々な状況に対応している。これらに匹敵する能力を、コンピュータに与えることを目指したものが「機械学習」である。今日、この「機械学習」は、社会の様々な場所に導入され、その活躍の場は広がり続けている。しかし、最先端の科学技術研究を行う研究所や大学の実験室を見ると、アナログ的な現場が少なくない。最先端研究を支えている、時間と労力を必要とする、地道な繰り返しを伴う実験・作業の全部もしくは一部でも、この「機械学習」で置き換えることであれば、研究活動の効率化と短縮化を促すことが期待できる。

厚さがサブナノメートルから数百ナノメートルの薄膜試料は、基礎研究のみならず電子産業等をはじめとする種々の分野で幅広く利用されており、現在、薄膜作製プロセスは、重要な物質・材料作製手法の一つとなっている。所望の特性を示す薄膜試料を作製するためには、複数種ある薄膜作製パラメータを最適化し、その最適な組み合わせを見出すプロセスが不可欠である。また、その再現性も重要で、時々刻々変化する装置のコンディションに合わせて、定期的に薄膜作製パラメータの見直しが求められる。用途・目的により異なるが、最適な薄膜作製パラメータの組み合わせを決定するために、膨大な回数(数十回から百回程度)の薄膜作製実験を必要とされることも珍しくない。このため、薄膜作製パラメータ最適化プロセスの高効率化は、研究開発や生産工程における労力と時間の低減化、再現性の確保・向上を達成する上で、切実な課題の一つである。

本稿では、遷移金属窒化物の新物質開拓研究のために新規開発した有機金属分子線エピタキシー装置を用いた窒化チタン(TiN)薄膜作製実験に、機械学習の1つであるベイズ最適化手法を用いた研究[1]について紹介する。

研究内容

TiN 薄膜の作製は、独自開発した有機金属分子線エピタキシー装置[1]を用いて行った。安定した原料供給が困難な高融

点・低蒸気圧金属である Ti の原料として有機金属分子・TDMAT(tetrakis dimethylamino titanium, $\text{Ti}[\text{N}(\text{CH}_3)_2]_4$)を供給し、プラズマソースから供給される励起窒素原子種との基板上での反応を経て、TiN 薄膜が形成される。

薄膜作製パラメータの推定には、物質・材料研究のために開発されたベイズ最適化計算コード COMBO (COMmon Bayesian Optimization Library)[2]を用いて行った。この研究では、ベイズ最適化の目的関数として、TiN 薄膜の X 線回折測定で得られる、規格化された TiN(002)面の X 線回折強度 I_{norm} ($I_{\text{norm}} = I_{\text{TiN}(002)}/I_{\text{基板}}$ d , ここで d は TiN 薄膜の膜厚)を用いた[3]。 I_{norm} の値は、薄膜の結晶化度と結晶性を表しており、高品質エピタキシャル薄膜を得るための目的関数として適当な値である。薄膜成長制御における thermodynamics と kinetics に関係する 4 つの薄膜作製パラメータ (①薄膜成長温度[基板温度]、②Ti の原料である TDMAT 供給圧力、③④励起窒素原子種を供給するプラズマソースのパワーと窒素ガス供給量)をベイズ最適化により、目的関数である I_{norm} が最大になるように推定を行った。一連の実験は、図 1 に示すように、本研究で得られる実験データのみを用いてベイズ最適

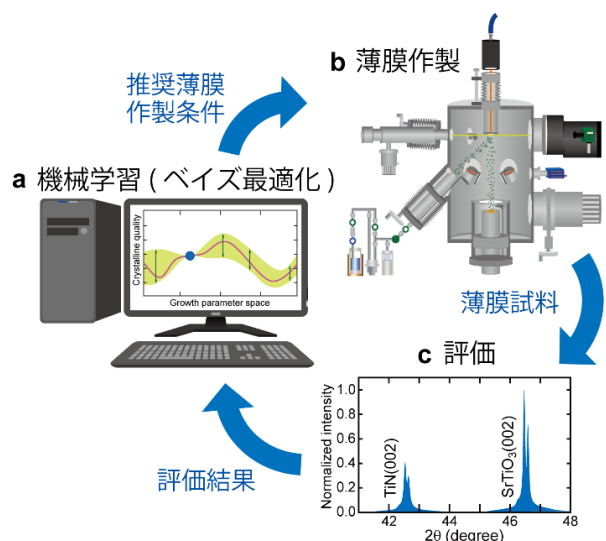


図 1: Closed-loop operation による薄膜作製パラメータ最適化の概念図。

化計算と実験を繰り返し行う、「closed-loop operation」で行った。外部のデータベースを用いる手法に比べて、導入コストを抑えることが可能な手法となっている。6 回分の初期薄膜作製実験の結果を用いて 4 つの薄膜作製パラメータの推定を行い、7 回目の薄膜作製実験からベイズ最適化計算が推奨するパラメータで薄膜を作製した。その後、新しく得られた実験結果をデータベースに加え、ベイズ最適化と薄膜作製実験を繰り返し行った。その結果を図 2 に示す。6 回の初期実験を含む 11 回の薄膜作製実験で、最大の I_{norm} を示す薄膜作製パラメータを決定することに成功した。11 回目の薄膜作製実験以後、20 回までベイズ最適化計算と薄膜作製実験を行ったが、11 回目の薄膜作製パラメータより大きな I_{norm} を示す薄膜作製パラメータの組み合わせを見出すことはできなかった。通常の薄膜作製実験に比べて、極めて少ない回数で薄膜作製パラメータの最適化に成功したが、これは、適切なデータベースを用いてベイズ最適化を行った場合、5%程度の精度の範囲内で、15 回程度で最適解が得られるとする、ベイズ統計にほぼ合致している[4]。実際、著者らの研究以外でも、高分子ファイバー合成実験にベイズ最適化計算を用いた報告[5]で、14 回という少ない回数で最適化に成功している。

ベイズ最適化手法で推定した薄膜作製条件で作製した TiN 薄膜は、図 1c に示されているように、エピタキシャル薄膜であった。薄膜成長中の反射高速電子線回折像は、ストリークで菊池線も確認され、高い結晶性の薄膜であることが示された。格子定数はバルクとほぼ同等の値であった[1]。薄膜の品質評価のために、これらのエピタキシャル TiN 薄膜の電気抵抗の温度依存(ρ -T)を測定した(図 3)。TiN は 5 K 前後で超伝導転移することが知られており、最

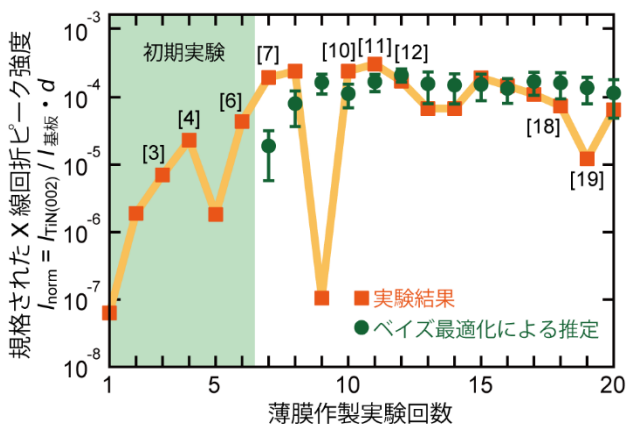


図 2: ベイズ最適化手法を用いた薄膜作製パラメータ最適化の結果。図中の■は実験結果、●はベイズ最適化計算の推測値。[]内の数値はサンプル番号を示す。

近では、低ノイズの量子回路用の超伝導体として着目されている[5]。ベイズ最適化で推定した薄膜作製パラメータで作製した TiN 薄膜(サンプル番号[7]~[19])の超伝導転移温度は、初期実験で作製したサンプル[3]~[6]よりも、高い値を示した。図 2 の薄膜作製パラメータ最適化実験で、11 回目に得られた最も大きな I_{norm} を示す薄膜作製条件で作製されたエピタキシャル薄膜が、作製サンプル中で最も高い超伝導転移温度($T_{c,onset}$ =5.25 K, $T_{c,zero}$ =5.07 K)を示した。これまでの報告で、TiN の最も高い超伝導転移温度は 6.0 K (単結晶)[7]、5.6 K (バルク)[8,9]で、1970 年代以前に報告された値である。これらの値は、その後再現の報告は無い。近年報告されている超伝導転移温度で最も高いのが、Ti 金属を原料に用いた分子線エピタキシー法で作製された TiN エピタキシャル薄膜で、5.25 K の超伝導転移温度が報告されている[10]。本研究で開発した有機金属分子線エピタキシーで作製した TiN とほぼ同等の超伝導転移温度で、同手法が高品質遷移金属窒化物薄膜の作製に有効であることが明らかになった。

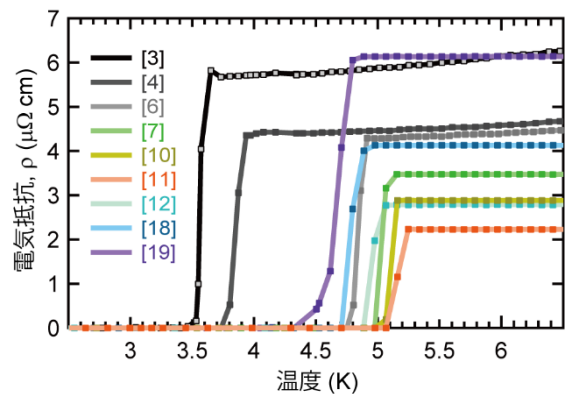


図 3: ベイズ最適化手法で推定した薄膜作製パラメータで作製した TiN 薄膜の電気抵抗の温度依存。[]内の数値は、図 2 で示したサンプル番号。

まとめと今後の展望

「ベイズ最適化によるパラメータ推定」～「薄膜作製」～「評価」の一連のプロセスを「closed-loop operation」で行い、薄膜作製実験回数の著しい減少に成功した。今回は、手法の確立を目指した研究のため、良く知られた TiN の薄膜作製でこの「closed-loop operation」のプロセス開発を行った。今後は既知物質ではなく、新規物質や未知物質の薄膜作製実験に同手法を適用し、より汎用性の高い手法へと発展させたい。

謝辞

本研究は、物質・材料研究機構 相澤 俊、知京豊裕、森 孝雄、東京大学 津田宏治、Jiyeon N. Lee との共同研究により行われました。また本研究は、科学技術振興機構 (JST) 戦略的創造研究推進事業 さきがけ 研究領域「理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した先進的マテリアルズインフォマティクスのための基盤技術の構築」(研究総括：常行 真司) 研究課題「第一原理計算・インフォマティクス主導型新物質開拓 (研究者：大久保 勇男)」(No. JPMJPR15N1)、科学技術振興機構 イノベーションハブ構築支援事業「情報統合型物質・材料開発イニシアティブ」、JST 未来社会創造事業 探索加速型「共通基盤」領域研究開発課題「Materials Foundry のための材料開発システム構築とデータライブラリ作成 (研究開発代表者：知京 豊裕)」(No. JPMJMI18G5)、JST 未来社会創造事業 研究課題「磁性を活用した革新的熱電材料・デバイスの開発 (研究開発代表者：森 孝雄)」(No. JPMJMI19A1)等の一環として行われました。

References

- [1] I. Ohkubo, Z. Hou, J. N. Lee, T. Aizawa, M. Lippmaa, T. Chikyow, K. Tsuda, and T. Mori, *Mater. Today Phys.* **16**, 100296 (2021).
- [2] T. Ueno, T. D. Rhone, Z. Hou, T. Mizoguchi, and K. Tsuda, *Materials Discovery* **4**, 18–21 (2016).
- [3] I. Ohkubo, H. M. Christen, S. V. Kalinin, G. E. Jellison, Jr., C. M. Rouleau, and D. H. Lowndes, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1350–1352 (2004).
- [4] K. Kawaguchi, L. P. Kaelbling, and T. Lozano-Pérez, *Advances in Neural Information Processing Systems* **28**, 2809–2817 (2015).
- [5] C. Li, D. R. de Celis Leal, S. Rana, S. Gupta, A. Sutti, S. Greenhill, T. Slezak, M. Height, and S. Venkatesh, *Sci. Rep.* **7**, 5683 (2017).
- [6] A. Shearow, G. Koolstra, S. J. Whiteley, N. Earnest, P. S. Barry, F. J. Heremans, D. D. Awschalom, E. Shirokoff, and D. I. Schuster, *Appl. Phys. Lett.* **113**, 212601 (2018).
- [7] W. Spengler, R. Kaiser, A. N. Christensen, and G. Müller-Vogt, *Phys. Rev. B* **17**, 1095–1101 (1978).

- [8] B. T. Matthias and J. K. Hulm, *Phys. Rev.* **87**, 799–806 (1952).
- [9] G. F. Hardy and J. K. Hulm, *Phys. Rev.* **93**, 1004–1016 (1954).
- [10] Y. Krockenberger, S. Karimoto, H. Yamamoto, and K. Semba, *J. Appl. Phys.* **112**, 083920 (2012).

