

ベイズ最適化を活用した成膜条件探索システムの構築

Development of a thin-film deposition system utilizing Bayesian optimization

東工大物質理工¹、JST さきがけ²、産総研³

°(M1)小林 成¹、清水 亮太^{1,2}、安藤康伸³、西尾 和記¹、一杉 太郎¹

Tokyo Tech¹, JST-PRESTO², AIST³

°Shigeru Kobayashi¹, Ryota Shimizu^{1,2}, Yasunobu Ando³, Kazunori Nishio¹, Taro Hitosugi¹

E-mail: kobayashi.s.az@m.titech.ac.jp

[序]: 実験の効率化に向けた取り組みが急務である。ベイズ最適化とロボット搬送システムを組み合わせれば、全自動で薄膜作製条件を最適化することが可能であり、薄膜材料合成の生産性向上に非常に有効だと考えられる。そこで我々のグループでは、そのような成膜システムを新たに構築し、高速な薄膜材料合成を目指している。その例として本報告では $\text{Li}_3\text{PO}_4\text{-xN}_y$ (LiPON) 薄膜[1]のイオン伝導度を、ベイズ最適化を用いて最大化する試みについて紹介する。

[実験]: LiPON 薄膜は反応性 RF マグネトロンスパッタ法で作製した。ターゲットには Li_3PO_4 焼結体(2 inch)を使用した。基板には $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001)を用い、成膜前に楕型薄膜電極[Au(100 nm)/Cr(5 nm)]を形成した。プロセスガスとして Ar ガスと N_2 ガスを導入し、全圧と全ガス流量を 0.15 Pa と 5 sccm にそれぞれ固定した。得られた薄膜に対し電気化学インピーダンス測定(電圧振幅 50 mV、周波数 1 MHz - 100 mHz)を行い、イオン伝導度を算出した。

[結果]: 最初に成膜条件探索におけるベイズ最適化手法の有効性を検討する。現実の成膜ではガス圧力や出力など 4~5 つの成膜パラメータについて、数千通りの網羅的な条件から最適化することになる。その効率化に向けたベイズ最適化の簡単なシミュレーション結果を Fig. 1 に示す。縦軸と横軸が異なる成膜パラメータに対応し、最も赤い箇所が求める物性値の最大値、逆に最も青い箇所が低い物性値を示す。2 つのパラメータを 50 条件×50 条件の 2500 点のグリッドで区切り、物性値を最大化する(最も赤い箇所を探索する)ように成膜条件を最適化するプロセスを考える。

試行回数を 5 回(Fig. 1 緑色の点)としたときの推定結果を Fig. 1 上段右に示す。この場合、実際の関数(上段左)の赤色領域を正しく推定できていない。しかし、試行回数を 30 回にすると(下段右)、下段左をよく再現し、最大値探索が収束していることがわかる。したがって、2500 の条件を 30 回程度で最適化でき、最大物性値を得る成膜条件探索の高速化が期待できる。

以上のアルゴリズムを導入した成膜システム構築にあたり、まずスパッタ成膜装置を立ち上げ、良好な LiPON 薄膜(イオン伝導度 3.5×10^{-7} S/cm, Fig. 2)を得た。当日は、このイオン伝導度を最大化するためにベイズ最適化を用いた結果を報告する。

参考文献

[1]: Bates *et al.*, J. Power Sources **43-44** (1993) 103.

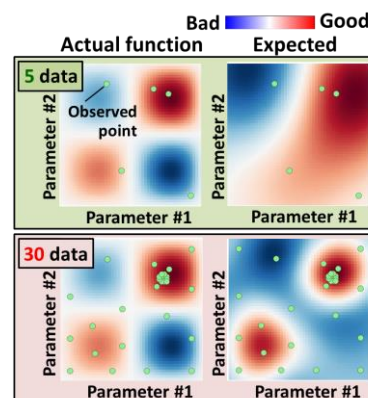


Figure 1. Schematic illustrations of 2D-bayesian optimization process.

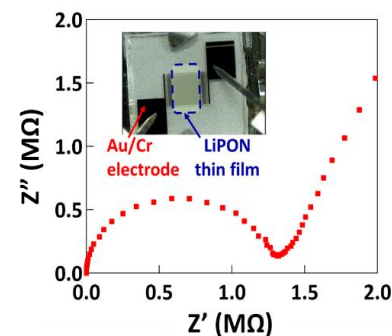


Figure 2. Impedance measurement result of LiPON thin film. (Inset: a photograph during the impedance measurement)