

機械学習を用いた結晶成長物性の自動解析 Automated Analysis of Crystal Growth Properties using Machine Learning

筑波大院 °石山隆光, 今城利文, 末益崇, 都甲薫

Univ. of Tsukuba, °T. Ishiyama, T. Imajo, T. Suemasu, and K. Toko

E-mail: ishiyama.takamits.ta@alumni.tsukuba.ac.jp

【はじめに】非晶質膜が結晶成長する過程を理解して制御するには、核発生頻度や結晶化速度、そして活性化エネルギーや頻度因子を知ることが重要となる[1]。これらの値は通常、人の手で「熱処理→観察→計算」を繰り返すことによって導出されてきた。しかし、この方法は膨大な時間と労力を要し、また、測定者ごとの系統誤差が生じやすい。そこで本研究では、Ge 膜の固相成長[2,3]を例とし、その場観察熱処理装置と機械学習を併用した結晶成長過程の高速かつ客観的な解析手法を提案する(Fig. 1)。

【実験方法】石英ガラス基板上に、Ge 前駆体(膜厚 200 nm, As 添加量 $1.2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)を分子線堆積した後、 N_2 雰囲気中で熱処理($T_{\text{anneal}} = 350\text{--}400^\circ\text{C}$)を施し、固相成長過程をその場観察した(Fig. 2(a)) [3]。その後、始状態(非晶質)と終状態(結晶)の観察像を利用して、成長途中の表面様態を再現した疑似画像を教師画像として作成した(ドメイン径: $d = 1\text{--}40 \mu\text{m}$, 核密度: $\rho = 1\text{--}10 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$) (Fig. 2(b),(c))。そして、ImageNet[4]の学習済みResNet[5](Layer 数: 18, 50, 152)をベースとした機械学習モデルに、 d 及び ρ を予測値として疑似画像を学習させた(GPU: Tesla T4、バッチサイズ: 64、最適化手法: Adam[6]、learning rate: 10^{-4})。

【結果・考察】Fig. 3(a)に示す学習曲線より、ResNetの層が深く、教師画像が多いほど、損失が小さくなる典型的な傾向が判る。10.2 $\times 10^3$ 枚の教師画像を学習させた場合、ResNet50において損失は概ね飽和した。この条件における予測値 d_{pred} , ρ_{pred} は、顕微鏡の分解能以上($> 5 \mu\text{m}$)の領域で正答値 d_{true} , ρ_{true} と良く整合した(Fig. 3(b),(c))。本モデルが疑似画像中のドメイン認識能力を有していることが判る。続いて、その場観察像を用いた上で、人による

実測と機械学習モデルによる予測を精度と処理時間の観点で比較した。実測値に対する予測値の誤差は $| \Delta d | \leq 5 \mu\text{m}$, $| \Delta \rho | \leq 1 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 以内に(Fig. 4(a), (b))、核発生および核成長に必要な活性化エネルギーの誤差は各々 $\pm 7\%$ 以内に収まった(Fig. 4(c))。一連の機械学習による解析処理に必要な時間は、疑似画像生成が 5.0 min、223 枚の観察像に対する推論時間が 2.4 min であった。一方、人の手による 21 枚の観察像中の平均ドメイン径と密度の実測には 230 min を要した。機械学習と同じ枚数を人の手で評価して高精度なグラフを生成するためには 2500 min 以上が必要である。

以上のように、本研究で提案するアルゴリズムは人によるドメイン評価と比較して同等以上の性能をもち、主観性を排除した上で測定時間を 1/300 以下に短縮することが可能である。本成果は、結晶成長過程の解析における機械学習の有効性を実証し、AI 時代を迎える結晶工学の新たな姿を提示するものである。

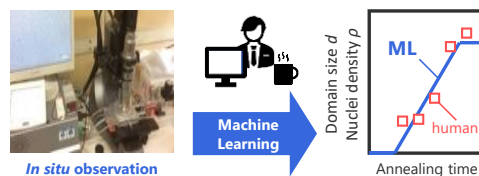


Fig. 1 Schematic of automated domain-recognition system.

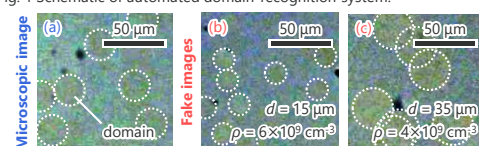


Fig. 2 (a) In situ optical micrographs at $T_{\text{anneal}} = 350^\circ\text{C}$ for 20 h. (b,c) Teacher images for different conditions generated from the micrographs before and after crystallization.

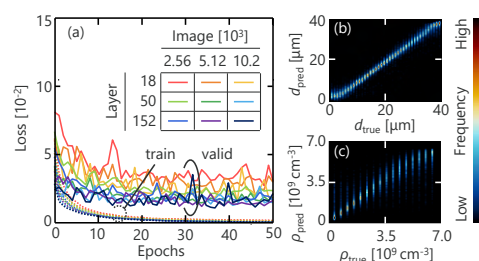


Fig. 3 (a) Training and validation loss for model depth and number of teacher images. The prediction results of the teacher images for (b) d and (c) ρ , where 10.2×10^3 images and ResNet50.

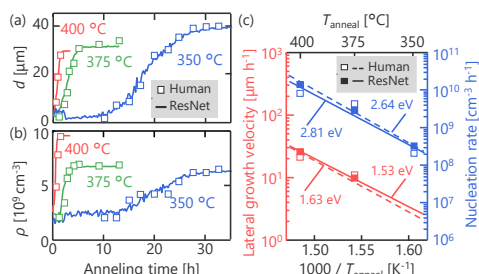


Fig. 4 Annealing time dependence of (a) d and (b) ρ . (c) Arrhenius plots of lateral growth velocity and the nucleation rate. The activation energies are near the lines.

- [1] P. Germain *et al.*, J. Appl. Phys. **50**, 6986 (1979).
[2] K. Toko *et al.*, Sci. Rep. **7**, 16981 (2017).
[3] M. Saito *et al.*, Sci. Rep. **9**, 16558 (2019).

- [4] O. Russakovsky *et al.*, IJCV, **115**(3), pp.211-252 (2015).
[5] K. He *et al.*, Proc. The IEEE Conf. CVPR, pp.770-778 (2016).
[6] D.P. Kingma *et al.*, ICLR, (2015).