

機械学習を活用した closed-loop optimization によるエピタキシャル TiN 薄膜成長と超伝導特性

Realization of closed-loop epitaxial thin-film growth optimization of superconducting TiN via machine learning

物材機構¹, 東大物性研², 東大新領域³, [○]大久保勇男¹, 侯 柱鋒¹, Jiyeon N. Lee², 相澤 俊¹, Mikk Lippmaa², 知京豊裕¹, 津田宏治³, 森 孝雄¹

NIMS¹, ISSP, U. of Tokyo², U. of Tokyo³, [○]Isao Ohkubo¹, Zhufeng Hou¹, Jiyeon N. Lee², Takashi Aizawa¹, Mikk Lippmaa², Toyohiro Chikyow¹, Koji Tsuda³, and Takao Mori¹

E-mail: OHKUBO.Isao@nims.go.jp

【緒言】薄膜作製プロセスは、重要な物質・材料作製手法の一つであり、所望の特性を示す薄膜試料を得るために、複数ある薄膜作製パラメータを最適化するプロセスが不可欠である。時には、膨大な回数の薄膜作製実験を必要とすることから、薄膜作製パラメータ最適化プロセスの効率化は切実な課題の一つである。

本講演では、遷移金属窒化物の薄膜作製のために新規開発した有機金属分子線エピタキシー(MO-MBE)装置を用いた窒化チタン(TiN)薄膜の作製条件最適化に、機械学習の1つであるベイズ最適化を用いた研究[1]を報告する。

【方法】エピタキシャル TiN 薄膜の作製は独自開発した MO-MBE 装置[1]を用い、Ti の原料として 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反応により、TiN 薄膜を形成した。薄膜作製パラメータの推定には、ベイズ最適化計算コード COMBO[2]を用いた。この研究では、ベイズ最適化の目的関数として、薄膜の X 線回折強度($I_{\text{TiN}(002)}$)を基板の回折強度($I_{\text{基板}}$)と膜厚(d)で規格化した $I_{\text{norm}} (= I_{\text{TiN}(002)} / I_{\text{基板}} d)$ を用いた。目的関数である I_{norm} が最大になるように、薄膜作製パラメータの推定を行った。一連の実験は図に示すように、ベイズ最適化計算と実験を繰り返し行う、「closed-loop operation」で行った(図)。

【結果と考察】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の組み合わせを決定することに成功した。作製した TiN 薄膜の電気抵抗の温度依存(ρ - T)を測定した。ベイズ最適化で推定した

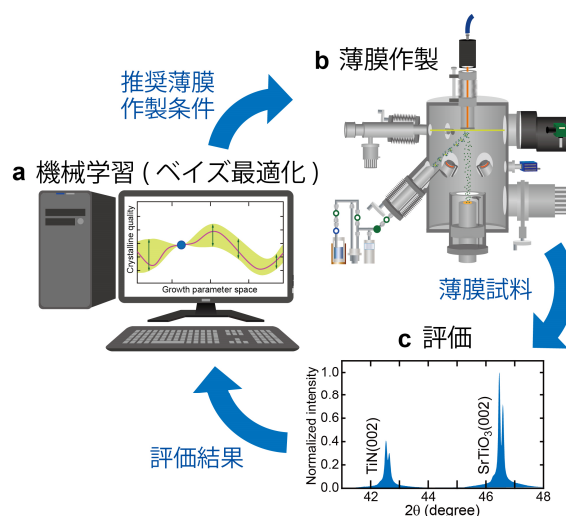


図: Closed-loop operation による薄膜作製パラメータ最適化の概念図。

薄膜作製パラメータで作製した TiN 薄膜の超伝導転移温度は、初期実験で作製した薄膜よりも高い値を示し、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したエピタキシャル薄膜が、最も高い超伝導転移温度($T_{\text{c onset}}=5.25$ K, $T_{\text{c zero}}=5.07$ K)を示した。同手法が薄膜作製条件最適化に有効であることが明らかになった。

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 (2016).

【謝辞】本研究は JST-PRESTO、JST 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(MI²I)」等の支援のもと行われました。