プロジェクト名	発光分光と機械学習による薄膜特性のリアルタイム評価と成膜プロセス制御法の確立
代　表　者	先端マテリアル研究開発協創機構，教授，今宿 晋
達成に資するSDGs 目標	3, 4, 7, 8, 9, 11, 12, 13
プロジェクトの意義、成果及び波及効果	**[プロジェクトの意義]** 本プロジェクトでは、**スパッタリング成膜における薄膜特性のばらつき（歩留まり低下）の要因を、プラズマ発光測定と機械学習を用いて理論的に解明し、成膜プロセスをリアルタイムで制御する技術の確立**を目的とする。これにより、**経験則に依存していた従来の成膜プロセスを物理モデルとデータ科学に基づくデータ駆動型プロセスへと転換し、高性能かつ高再現性を有する薄膜デバイスの創製を実現する**。本手法の有効性は、全固体リチウムイオン電池($LiCoO_2$/$LiPO_4$/Si)、薄膜太陽電池(ZnO/Cu_2O)、および呼気診断用ガスセンサー(SnO_2)といった薄膜デバイスに適用することで実証する。 **SDGs との関連** 3：呼気診断用ガスセンサーの開発を通じた健康･医療分野への応用 4：分光計測、プラズマ物理、材料科学、データ科学を融合した教育研究を通じて、高度専門人材の育成に貢献 7：薄膜電池材料の安定製造に寄与し、エネルギーデバイスの高効率化に貢献 8：製造プロセスの自動化･高度化により、生産性向上と働きやすい環境の実現 9：発光分光とデータ科学を融合した新しいプロセス制御技術の確立による、製造プロセスの高度化･スマート化 11：製造プロセスの高度化を通じて地域産業の競争力を強化し、持続可能な地域社会の構築に寄与 12：歩留まり向上による資源ロスの削減と持続可能な生産の実現 13：電池材料の高性能化と製造プロセスの効率化による CO_2 の排出削減 **[研究内容]** 本研究では、スパッタリング成膜中に観測されるプラズマの発光スペクトルおよび温度分布･形状と成膜条件を統合的に解析することで、薄膜の組成･化学状態･結晶構造などの特性をリアルタイムで評価する手法を確立する。さらに、得られた多次元データ(薄膜特性)を機械学習により体系的に解析することで、薄膜デバイス性能に影響を与える要因を抽出するとともに、その因果関係を定量的に解明する。得られた知見に基づき、スパッタリング中のプラズマ情報を用いたフィードバック制御を実装し、成膜プロセスの自動最適化と歩留まり向上を実現する。全固体リチウムイオン電池($LiCoO_2$/$LiPO_4$/Si)、薄膜太陽電池(ZnO/Cu_2O)、および呼気診断用ガスセンサー(SnO_2)といった薄膜デバイスを対象として実証する。具体的には以下の研究を行う。 **I. 薄膜特性のリアルタイム測定法の確立　(担当:今宿)** ここでは、組成, 化学状態, 結晶構造, 表面エネルギー, 密度, 歪, 欠陥濃度, 密着性などの薄膜特性をスパッタ中に測定する手法を確立する。 **組成**：申請者はこれまでに、特定の発光線の強度比から薄膜の組成比を推定できることを実証している。本研究では、これに加え、分光カメラによって測定したプラズマ温度(=励起温度)分布･形状と成膜条件から基板に到達する各原子の個数を推定することで、より高精度な組成推定法を構築する。(対象：$LiCoO_2$, $LiPO_4$, ZnO, Cu_2O, SnO_2) **化学状態**：薄膜を構成する元素の化学状態は薄膜表面の反応で決定され、その表面反応は原子の励起状態に依存すると考えられる。例えば、Cu では、$[Ar]3d^{10}4p$ などの 3d 軌道に電子が 10 個占有されている励起状態を持つ Cu 原子は Cu^+ ($[Ar]3d^{10}$)が関与する $2Cu+O \rightarrow Cu_2O$ の反応が、$[Ar]3d^94s4p$ などの 3d 軌道に電子が 9 個占有されている励起状態を持つ Cu 原子は Cu^{2+} ($[Ar]3d^9$)が関与する $Cu+O \rightarrow CuO$ の反応が関与しやすいと考えられる。そこで、発光スペクトルから各励起状態が関与する発光線の強度を測定し、ボルツマン分布を仮定することで、対応する励起状態の分布を求める。得られた励起状態の分布とX 線光電子分光法で得られる化学状態との対応関係を明らかにし、化学状態のリアルタイム評価手法を確立する。(対象：$LiCoO_2$, Cu_2O, SnO_2) **結晶構造など**：ターゲットから放出された原子は、基板に吸着後、表面拡散による再配列を経て薄膜を形成する。この再配列には、原子が十分な運動エネルギーを有した状態で基板に到達する必要がある。そこで、プラズマ温度分布と成膜条件から基板表面に到達する原子の運動エネルギー分布を推定し、X 線回

折による結晶構造と対応づけることで、結晶構造のその場評価法を確立する。他の薄膜特性(表面エネルギー, 密度, 歪, 欠陥濃度, 密着性など)についても、同様にスペクトル測定およびプラズマ温度·形状の測定を通して分析する手法を確立する。(対象：$LiCoO_2$, $LiPO_4$, ZnO, Cu_2O, SnO_2)　(論文②, ④, ⑤)

II. 歩留まり低下要因の抽出法の確立（担当:白井、今宿、勝部）

I で得られた薄膜特性が、充放電容量($LiCoO_2$/$LiPO_4$/Si), 光電変換効率(ZnO/Cu_2O), ガス応答特性(SnO_2)などのデバイス性能に与える寄与を、深層時系列モデルによる機械学習で解析·定量評価する。発光スペクトル·温度分布·成膜条件·薄膜特性を多変量時系列データとして整備して、Neural Granger Causality モデルにより、各因子の時間的遅延効果と他変数への影響度を定量的に評価し、各デバイス作製における歩留まり低下に寄与する要因を抽出する。(論文⑥)

III. 薄膜特性の精密制御法確立（担当:今宿、白井、勝部）

II の知見を基に、発光スペクトルとプラズマ温度·形状の測定からデバイス性能をリアルタイムでモニタリングする。予測されるデバイス性能が目標範囲から逸脱した場合、自動でシャッターを閉じて成膜条件(真空度·ガス流量·投入電力など)を調整し、成膜プロセスを最適化する(図 1)。このようなフィードバック制御を自動化して、全固体リチウムイオン電池($LiCoO_2$/$LiPO_4$/Si)、薄膜太陽電池(ZnO/Cu_2O)、および呼気診断用ガスセンサー(SnO_2)の各デバイスにおいて、性能ばらつきの抑制と歩留まりの大幅な向上を実現する。(論文⑦)

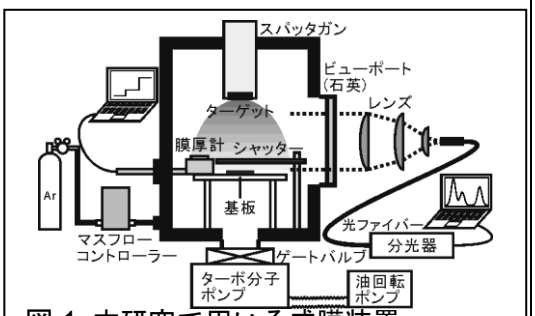


図 1 本研究で用いる成膜装置

ここで確立を目指す手法は、グロー放電発光分析(GD-OES)と共通する発光過程に基づくことから、得られた知見を GD-OES へ展開し、組成のみならず化学状態や結晶構造などの材料特性を評価する手法の確立を目指す。分析対象としては鉄鋼材料, 耐熱鋼被膜および耐火物とする。(論文①, ③)

[成果及び波及効果]

本研究により、物理学、材料科学およびデータ科学を融合した材料プロセスのリアルタイム診断·制御技術を確立し、成膜プロセスの理論·データ駆動化を実現できる。これにより、分光計測·プラズマ物理·材料科学·機械学習を融合した新たな学術領域の創出が期待されるとともに、製造業における品質管理の高度化·スマート化にも寄与できる。特に、本研究で構築する「発光情報に基づくその場評価とフィードバック制御」は、熟練技術者の経験に依存してきた製造プロセスを定量化·標準化するものであり、人手不足や技能継承が課題となる地域産業においても高い波及効果を有する。以上より、**本研究は基礎科学の発展から産業応用、社会実装、地域創生に至るまで幅広い波及効果を有し、持続可能な社会の実現に貢献する**ものである。

また、本研究は、材料科学(今宿)と情報科学(白井)という**専門分野の異なる学内研究室が密接に連携することで、単一の研究室では困難な「物理現象の高度な数理解析」を可能にする**。さらに、今宿および白井の専門領域を補完するため、太陽電池をはじめとする**デバイス作製を専門とする名古屋大学の勝部涼司准教授を共同研究者に加え、実用レベルでのデバイス検証を行う。この強固なネットワークを基盤として、本プロジェクト期間中に得られた成果を元に、大型外部資金(NEDO, JST, 挑戦的萌芽(開拓))の獲得へとつなげる**。