

結晶成長の外挿に適した物理の知識に基づくベイズ最適化

若林 勇希^{*1}, 小林 亘², 大塚 琢馬³, 鄭 源宰²¹NTT 物性科学基礎研究所, ²NTT 先端集積デバイス研究所,³NTT コミュニケーション科学基礎研究所^{*}E-mail: yuuki.wakabayashi@ntt.com, wtr.kobayashi@ntt.com,

takuma.otsuka@ntt.com, gensai.tei@ntt.com

近年、機械学習技術を材料科学に統合することで、高効率な材料・物質開発を行うマテリアルズインフォマティクスが加速している [1-4]。機械学習における一般的な課題として、既存のデータセットの存在しない領域での実験結果を予測する外挿予測の困難さがある。本研究では、III-V 族化合物半導体の結晶成長における物理的な知見（ベガード則と、ガス流量と組成の間の線形関係）を活用した、物理の知識に基づくベイズ最適化（PIBO）を開発し、III-V 族半導体 $\text{In}_{(1-x)}\text{Ga}_x\text{As}_y\text{P}_{(1-y)}$ (InGaAsP) の有機金属化学気相成長（MOCVD）に適用した。これにより、既存の（学習）データセットに含まれない成長条件領域で、目標とするバンドギャップ波長 (λ_g) と格子定数 (d) を持つ InGaAsP を少ない試行回数で効率的に合成することが可能となった。

InGaAsP は、半導体レーザー、光変調器、光増幅器など、光ファイバーシステムに関連するさまざまな光学部品で広く使用されており、そのため、所望の光学特性を持つ InGaAsP を合成することは産業的に重要な課題である。PIBO の概要は以下の通りである。まず最初に目的とする物性値 (λ_g, d) を、目的となる InGaAsP の組成 (x, y) にベガード則によって変換する。これにより目的値が正規化され、多変量最適化におけるスケール不一致問題を回避することができる。そして、Ga と As のガス流量 ($F_{\text{Ga}}, F_{\text{As}}$) に対する組成 (x, y) の関係を予測するために、($F_{\text{Ga}}, F_{\text{As}}$) と (x, y) 間の線形増加の関係を仮定し、線形な変化からのズレを、統計的機械学習モデルであるガウス過程 (GP) により予測した。ガス流量と組成の間の線形関係を取り入れたことにより、未探索領域においても外挿可能な予測が実現する。

図 1. に学習データとして InGaAsP、6 サンプルの ($F_{\text{Ga}}, F_{\text{As}}$) に対する実験的に決定した組成 (x, y) のデータセットを用いた際の、($F_{\text{Ga}}, F_{\text{As}}$) に対する組成 (x, y) の予測結果を示す。この例では、目的物性値は (λ_g, d) = (1180 nm, 5.8688 Å) で、対応する目組成は (x, y) = (0.1953, 0.4247) である。ガス流量と組成の関係に関する物理知識を予測モデルに組み込んだ結果、予測された x および y の値は、 F_{Ga} および F_{As} の増加に伴い単調に増加している。この単調増加の関係は、実験データが存在しない領域でも成り立っており、予測が外挿に適していることを示している。この予測に基づいて、目的組成が得られると予想された次の実験条件(図 1、十字)では、(λ_g, d) = (1175 nm, 5.8688 Å) の InGaAsP が得られ、目的とする光学特性を持った InGaAsP が実際に得られた [5]。

本研究は、堅牢な物理学的知識を統合することで、外挿可能な機械学習モデルが実現できることを示しており、これにより高速かつ自律的な材料合成の効率が向上することが期待される。

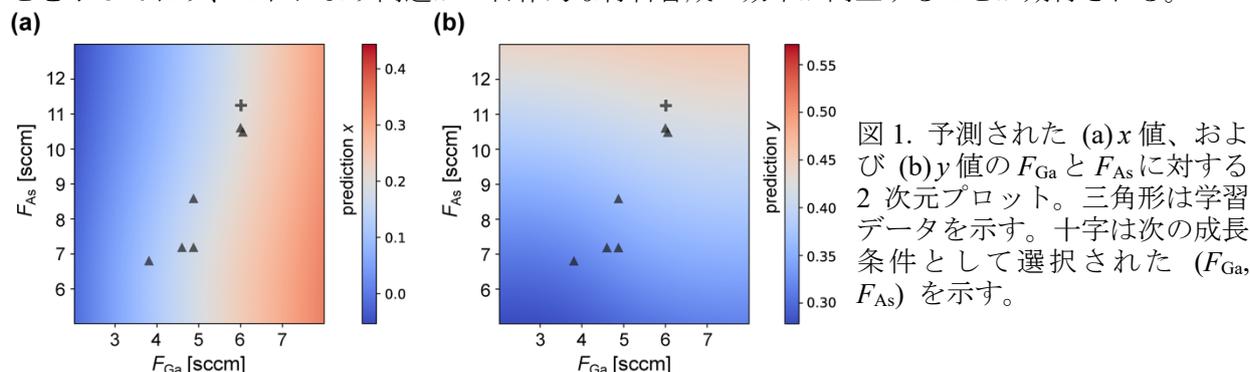


図 1. 予測された (a) x 値、および (b) y 値の F_{Ga} と F_{As} に対する 2 次元プロット。三角形は学習データを示す。十字は次の成長条件として選択された ($F_{\text{Ga}}, F_{\text{As}}$) を示す。

[1] Y. K. Wakabayashi^{*}, T. Otsuka *et al.*, APL Mater. **7**, 101114 (2019). [2] R. Shimizu *et al.*, APL Mater. **8**, 111110 (2020). [3] Y. K. Wakabayashi^{*}, T. Otsuka^{*} (co-1st) *et al.*, npj. Comput. Mater. **8**, 180 (2022). [4] Y. K. Wakabayashi^{*}, T. Otsuka^{*} (co-1st) *et al.*, APL mach. learn. **1**, 026104 (2023). [5] W. Kobayashi^{*}, T. Otsuka^{*} (co-1st), Y. K. Wakabayashi^{*} (co-1st), and G. Tei^{*} (co-1st), submitted.