

Graduate School of Advanced Science and Engineering  
Waseda University

博士論文審査報告書  
Doctoral Dissertation Review Report

論文題目  
Dissertation Title

Development of Data-Driven Representation Methods for Microstructures of  
Inorganic Thin Films with Two-Dimensional X-Ray Diffraction

2次元X線回折測定データを用いた無機半導体薄膜微細構造の特徴量抽出  
手法の開発

申請者  
(Applicant Name)  
Akihiro YAMASHITA  
山下 晶洸

Department of Advanced Science and Engineering    Research on Life Science and Medical  
Bioscience

February, 2022

## 1. 論文内容の要旨

データ駆動による材料開発は、旧来の手法に比べて高速に新規材料を探索できると期待されている。特に近年では、Industry 4.0 や Society 5.0 等の旗印の下、持続発展可能な社会を実現するための新規機能性材料がこれまでにない速さで求められているため、この手法に対する期待は大きい。この手法を後押しするため、Materials Genome Initiative(米国)や Novel Materials Discovery (欧州)、Material Research by Information Integration Initiative (日本) 等の国家プロジェクトにより、公的なデータベースの構築が進んでいる。しかしながら、これらのデータベースはシミュレーションから得られた結果を中心に収集しているため、実際の実験に適合させるには限界がある。この状況を改善する手法の一つとして、ハイスループット実験により高速に生成されるデータを活用したデータ駆動型研究が挙げられる。

本論文は、実際に実施したハイスループット実験が生み出す大量の測定生データから特徴量を抽出することにより、材料科学とデータ科学を結合させた効率的な解析手法を開発した研究成果をまとめたものである。対象材料は、現代社会において重要な材料である 2 元系酸化物半導体薄膜である。薄膜の特性は微細構造に大きく影響を受けるため、本研究では、その微細構造の特徴を画像化できる 2 次元 X 線回折(2D-XRD)を測定手法として用いた。

第 1 章では、データ駆動型材料開発の概要と問題点、必要となる事前知識の解説、本研究の意義と目的を述べている。

第 2 章では、特徴量抽出の一手法として、非負値行列因子分解 (Non-negative Matrix Factorization: NMF) を用いている。先行研究において、NMF は X 線回折測定データの自動解析手法として活用が報告されているものの、2D-XRD を用いた実験や多数の成膜条件を変化させた実験などに応用した研究は報告されていなかった。本章では、NMF が薄膜の微細構造の特徴量を、多様な成膜条件を反映した 2D-XRD のデータセットから抽出できることを見出している。

第 3 章では、NMF による特徴量抽出により、深層学習モデルの精度が向上するか否かに着目して論じている。対象モデルは、変分オートエンコーダ(Variational Autoencoder: VAE)であり、VAE は入力変数を連続的な潜在変数に変換することで可視化を容易にすることが知られている。NMF の特徴量抽出により、VAE の学習精度が向上し、対象とした酸化インジウムおよび酸化ガリウムの 2 元系酸化物薄膜に対して基板の差異について学習できていることを確認している。さらに、VAE を用いた可視化により、用いたデータセットは単一の因子が大きく影響していることを明らかにし、材料科学の知見から、その因子は酸化インジウムの結晶性であると考察している。

第 4 章では、第 2 章と第 3 章で考察した手法を用いて、成膜手法・成膜条件間の比較について論じている。薄膜の成膜手法は多数存在し、ある成膜手法を用いてある条件で得られた薄膜の構造を別の成膜手法を用いて再現するには、異なった成膜条件となることが多い。これは所望の薄膜を得る成膜条件が研究段階から量産段階へと移行する際に異なるという、量産化のボトルネックになりうる。本章では異なる成膜手法の間の条件を比較する方法について議論している。対象とした成膜手法は、研究用で高品質膜を作製できる Pulsed Laser Deposition 法と、薄膜の量産性に優れる Sputtering 法とした。まず、VAE を用いた可視化により、成膜手法と成膜条件の比較が容易となると報告している。さらに、潜在空間における組成傾斜膜のデータ分布の比較から、酸

化インジウムと酸化ガリウムの 2 元系薄膜の研究では、Sputtering 法が組成比変化を反映した構造を成膜することに適していることを示唆する結果を得ている。

第 5 章では、2D-XRD の測定生データから、密度形式を特徴量として用いる方法について調べた結果について述べている。密度形式では、画像形式と同様の解析が行えるだけでなく、測定時間の短縮にも有効であることを示し、さらに、密度情報を用いた特徴量として、2D-XRD の測定生データをグラフとして表現する手法を提案し、潜在的な有用性について述べている。

第 6 章では本研究の成果を総括し、将来展望と事業性について述べている。

## 2. 質疑応答、論文審査結果

2022 年 1 月 7 日に行われた公聴会では、学位申請者から上記内容の説明が行われた後、多数の質疑応答が行われた。主な質疑応答は以下に報告する通りである。

- (1) NMF では因子数が重要なパラメータであるか、この数字を調整するにはどのような知識が必要かという問いに対して、材料科学もしくはデータ科学のどちらかの知識があれば十分であるとの説明があった。材料科学の知識があるのであれば、想定される主要なパターン数より、少し大きい程度を因子数とすれば良く、データ科学の知識があるのであれば、入力と出力の誤差などの指標に基づき因子数を決定すればよいと説明があった。
- (2) 4 章の議論において、潜在空間における遷移領域では、新しい構造の発見があるかもしれないと説明があったが、具体的にはどのような構造を想定しているかとの問いに対し、時間の制約の関係で確認していないとの注釈付きで、以下の通りの説明があった。先行研究では、酸化インジウムと酸化ガリウムの最安定状態はそれぞれ cubic と monoclinic であるのに対し、固溶体は hexagonal な構造を取る場合があると報告されているため、これに類した特徴的な構造を取っている可能性があり、これを確認することは、将来、取り組むべき研究の一つである。
- (3) 材料科学においてはデータ数を増やすことは難しいが、今回提案された手法を用いるにはどの程度のデータ数が必要かとの質問に対し、材料や目的により変わり得るものの、100 程度あれば適用できるとの説明があった。
- (4) 画像形式と密度形式の 2 種類の特徴量が提案されているが、実際の活用ではどちらを選べば良いか、またこれら二つを組み合わせることは可能かとの質問に対し、現状は画像形式の方が解釈の観点から優れているとの説明があった。また組み合わせについては、両形式とも表現しているのは同じ薄膜の微細構造となるため、別々に用いた方が変数の独立性という観点から優れているとの説明があった。

以上の学位論文審査を通じ、学位申請者が研究の目的、学術的・社会的意義を理解して研究に取り組み、計測インフォマティクスと呼ばれる研究領域における十分な学識と考察力を備えていると認めるとともに、本研究が、材料科学におけるデータ活用を促進する独創的な研究成果を含み、工学分野の学術の向上に貢献すると評価できることから、主査及び副査は本論文が博士（工学）の学位論文として相応しいものと認める。

2022年1月

審査員

主査 早稲田大学教授 博士（理学）早稲田大学 朝日 透

---

早稲田大学教授 博士（理学）東京大学 勝藤 拓郎

---

山梨大学教授 博士（工学）早稲田大学 宮武 健治

---

日本電気株式会社主幹研究員 博士（工学）筑波大学 石田 真彦

---

物質・材料研究機構グループリーダー 博士（工学）大阪府立大学 長田 貴弘

---

早稲田大学准教授 博士（工学）早稲田大学 谷口 卓也

---