

D²MatE 智慧とデータが拓く エレクトロニクス新材料開発拠点

NEWS LETTER

2022 年度



研究主宰者

神谷 利夫 東京工業大学 元素戦略 MDX 研究センター 教授 ※研究代表者

舟窪 浩 東京工業大学 物質理工学院 教授

平松 秀典 東京工業大学 科学技術創成研究院 教授

大場 史康 東京工業大学 科学技術創成研究院 教授

多田 朋史 九州大学 エネルギー研究教育機構 教授(東京工業大学 特任教授)

真島 豊 東京工業大学 科学技術創成研究院 教授

山田 智明 名古屋大学 大学院工学研究科 教授(東京工業大学 特定教授)

寺山 慧 横浜市立大学 大学院生命科学研究科 准教授(東京工業大学 特定准教授)

大橋 直樹 物質·材料研究機構 機能性材料研究拠点 拠点長(東京工業大学 特定教授)

上田 茂典 物質·材料研究機構 機能性材料研究拠点 主任研究者

佐賀山 基 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 准教授(東京工業大学 特定准教授)

門野 良典 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 特別教授

幸田 章宏 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 准教授

阿部 仁 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 准教授

本田 孝志 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 助教

組頭 広志 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 協力研究員

東北大学 多元物質科学研究所 教授

森分 博紀 ファインセラミックスセンター ナノ構造研究所 主席研究員(東京工業大学 特定教授)

中村 伸宏 東京工業大学 元素戦略 MDX 研究センター 特任教授 ※企画マネージャー

AGC 株式会社より出向

目 次

拠点の紹介 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3
関連リンク ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4
研究紹介	
DX システムの開発と公開・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5
超ワイドギャップ半導体の開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5
(神谷利夫、片瀬貴義、井手啓介)	
-(Y,Hf,Zr)O2 の強誘電性の系統的な組成探索-・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	6
(舟窪浩)	
ワイドギャップ半導体・キャリア注入層新材料の候補物質の検討・・・・・・・・・・	6
(平松秀典、大場史康)	
理論計算・データ科学手法による新規半導体・誘電体開拓の支援・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7
(大場史康、高橋亮)	
ベイズ推定を用いた固体材料中不純物配置の効率的電子状態計算ワークフローの構築・・	7
(多田朋史)	
ナノ構造誘起法による強磁性ナノワイヤ - 高保磁力単結晶ナノワイヤの新しい作製方法-・	8
(真島豊)	
低温度係数高誘電体の開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	8
(山田智明)	
AI・機械学習を用いたデータ駆動型の新奇材料・例外材料の探索に向けて・・・・・・・・	9
(寺山慧)	
硬 X 線光電子分光による電子状態測定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	9
(上田茂典)	
AIN の強誘電性 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1 0
(清水荘雄)	
協奏的量子ビーム利用による材料の評価・評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1 0
(佐賀山基)	
データ科学を援用したミュオンスピン緩和法による材料の評価・・・・・・・・・・・	1 1
(幸田章宏、門野良典)	
データ科学を援用した放射光電子分光による材料の評価・評価・・・・・・・・・・・	1 1
(組頭広志)	
量子マルチプローブを用いた計測評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1 2
(山浦淳一)	

拠点の紹介

当「智慧とデータが拓くエレクトロニクス新材料開発拠点」は、文部科学省「データ送出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト (DxMT) 事業」の 2021 年度フィージビリティスタディを実施後、2022 年 10 月より本格事業が開始されました。本事業の目的である「従来とは全く異なる先駆的なデータ駆動型研究手法を生み出し、事業内にとどまらず全国展開することで、データ駆動型研究の推進をはかる」を実現するため、パワーエレクトロニクスならびに情報端末用半導体・誘電体の新材料を発掘するマテリアルデータトランスフォーメーション (MDX) を構築し、新材料の開発を高速・効率的に促進することを狙っています。

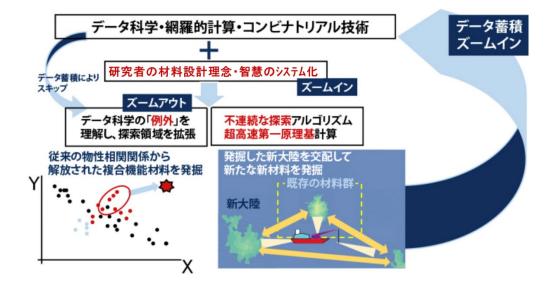
従来の材料探索は、研究者の着想に基づく試行錯誤が繰り返されたのち、最近ではマテリアルズインフォマティクスやデータ科学の支援により、材料特性の改善、新材料の開発が行われるようになってきました。しかしながら、従来のデータ科学では、学習データの内挿領域あるいはごく近傍の外周からしから新材料候補が抽出できないという問題がある一方、これまでの新材料開発のブレークスルーは、異分野の知識の導入による不連続な発見によってもたらされてきました。私たちは、電子が動いて機能を発現する「半導体」と電子が動かずイオンが動くことで機能を発現する「誘電体」の境界領域には、それぞれの特徴を最大限に伸ばした新材料があると考え、これら異分野材料を当拠点で同時に研究し、データを共有することとしました。さらに下図のように、従来の計算材料科学とデータ科学に「研究者の材料探索に関する智慧」を取り入れ、例外データの発掘や不連続な領域からの材料発掘から、「真の新材料」の開発を行うことを目指しています。

この目標を実現するには、研究者が日々の研究から得たデータを自然な形で蓄積すること、蓄積したデータを共有して解析・活用することが必要であり、そのための DX システムの構築から始める必要があります。また、個々の研究者が、これらの IT・DX システムをどのように使うかという知識と成功体験を積み上げていく必要があります。そのため、本拠点では研究開発のほか、チュートリアルコース、講演会などの開催、開発システム・プログラムの情報共有・公開などを進めています。

本拠点では、産業界・人文社会分野からも広く意見を集め、拠点運営に反映しています。会員制である「エレクトロニクス D^2 材料開発フォーラム (https://www.d2mate.titech.ac.jp/organization/forum.html)」を発足し、本拠点の件開発状況、開発 MDX システムの情報共有、技術相談などを行っています。興味がありましたら是非ご参加いただきたく、お願い申し上げます。

代表研究者 神谷利夫

東京工業大学 国際先駆研究機構 元素戦略 MDX 研究センター



関連リンク

文部科学省 「データ送出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業」につい



https://www.mext.go.jp/a_menu/kagaku/nano/data_driven_fs_00001.html



東京工業大学 国際先駆研究機構 (IRFI): https://www.irfi.titech.ac.jp/ 元素戦略 MDX 研究センター (MDXES)

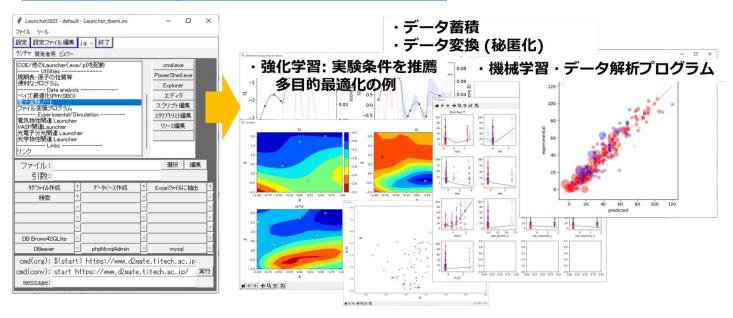
https://www.mces.titech.ac.jp/

開発プログラム情報・公開 Web: http://conf.msl.titech.ac.jp/D2MatE/D2Mate programs.html エレクトロニクス D² 材料開発フォーラム:

https://www.d2mate.titech.ac.jp/organization/forum.html

DX システムの開発と公開

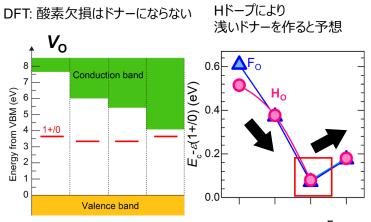
当拠点では、電子実験ノート、強化学習、データ解析、数値解析等の DX プログラム群を開発しており、開発プログラム情報・公開 Web: http://conf.msl.titech.ac.jp/D2MatE/D2MatE programs.html にて公開しています。また、研究者の DX 活用の促進を支援するため、チュートリアルコースを開催しています。2022 年度には、上記のプログラムを使った実演とともに、機械学習・数値解析に関する 5 回のチュートリアル (http://conf.msl.titech.ac.jp/D2MatE/2022Tutorial/tutorial/2022.html) を開催しました。



超ワイドギャップ半導体の開発

東京工業大学 神谷 利夫、片瀬 貴義、井手 啓介

東工大神谷・片瀬・井手グループでは、 Ga_2O_3 の次を見据えた、新しい超ワイドギャップ半導体の開発指針の開拓と材料開発を行っています。ここでは、ワイドギャップが非常に大きい絶縁体にドーピングする技術を開発することによって新半導体を開発するという指針を取っています。しかしながら、バンドギャップが大きくなるほど補償欠陥の形成によりドーピングが難しくなります。酸化物半導体でよく用いられている「酸素欠損によるドナー形成」は、酸素欠損自身が深い捕獲準位を形成し(左下図)、超ワイドギャップ材料では機能しません。第一原理による欠陥・ドーピング計算の結果、5 eV 以上のバンドギャップを持つある候補材料に水素ドープすることで n 型半導体化できると予測しました(右下図)。実際の材料合成を進めたところ、薄膜に水素ドープすることに成功し、電気伝導度 54 S/cm の伝導体かに成功しています。



東京工業大学 舟窪 浩

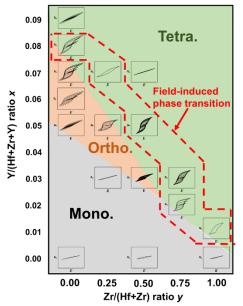


図1 Y/(Hf+Zr+Y) および Zr/(Hf+Zr) が異なる膜の成膜時の組成と分極一電界(*P-E*) 特性 図中には成膜時の構成相も記入

成膜時が常誘電相の正方晶で電界誘起によって強誘電相になる組成が成膜時に強誘電相の直方晶相の Zr/(Zr+Ti)比の多い組成に存在することが分かった。結果として、成膜時に強誘電性が得られない組成も含めて、広い組成範囲で強誘電性が得られること明らかになった。

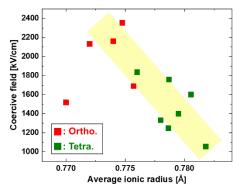


図2 抗電界(Ec)と平均イオン半 径の関係

(図1参照)

分極反転のための抗電界の Ec は、成膜時に強誘電相が得られるものより、電界誘起の相 転移で強誘電性が出現する組 成の方が、小さいことが明らか になった。(図2参照)

【参考文献】

ACS Appl. Electron. Mater. 2023, 5, 3, 1600–1605

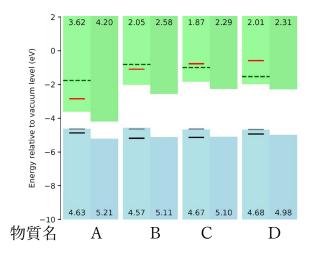
ワイドギャップ半導体・キャリア注入層新材料の候補物質の検討

超ワイドギャップ半導体については、全く新しい材料、p型ドーピング技術、キャリア注入電極材料・構造の開発が求められている。また、デバイスの省電力化・高性能化には、効率的な電子・正孔注入が必須と

なるが、一般的に、有機 EL 材料では電子注入が難しく、超 ワイドギャップ半導体では正孔注入が難しい。そこで、本 グループでは、超ワイドギャップ新半導体の探索と、仕事 関数 3.5 eV 未満の電子注入材料、5.5 eV 以上の正孔注入材 料や、超ワイドギャップ半導体への高効率な多層キャリア 注入構造の開発を目的としている。

アプローチとしては、第一原理計算によるバンドアライメントの計算結果と、機械学習による構造・物性予測を活用し、実験する有望物質を絞りこむ。具体的には、酸化物・カルコゲナイド新材料の探索に向けた、実験・計算基礎データの蓄積(図)を行うため、第一原理計算による欠陥形

成・ドーピングの網羅的な検討結果からの具体的な候補物質の選定、および合成・物性評価等の実験を開始した。



東京工業大学 平松 秀典、大場 史康

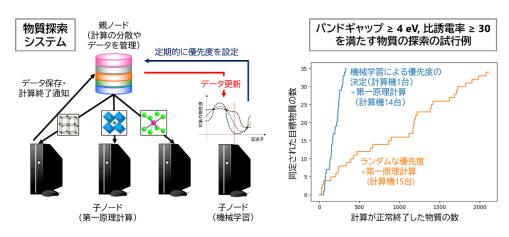
図:表面及び点欠陥の第一原理計算結果 に基づいたバンド端及び仕事関数の上 限・下限の予測例

理論計算・データ科学手法による新規半導体・誘電体開拓の支援

東京工業大学 大場 史康、高橋 亮

次世代の半導体・誘電体の開拓を支援するため、その有望な候補となる物質を理論計算・データ科学手法を駆使して的確に提案することが本グループのミッションである。そのために、第一原理計算データの蓄積と機械学習手法による傾向解析並びに有望物質推薦のための手法の開発を進めている。本グループの高橋を中心として、下図(左)に示すように複数の物性要件を同時に満たす物質を的確に推薦し、推薦された物質に対して自動的に高精度第一原理計算を実行し、更なる物質提案を進める材料探索システムを構築している。また、その有効性をデモンストレーションした結果が下図(右)であり、機械学習による推薦に従うことにより、ランダムに計算対象物質を選択する場合に対して約5倍の効率で、設定した物性要件を満たす

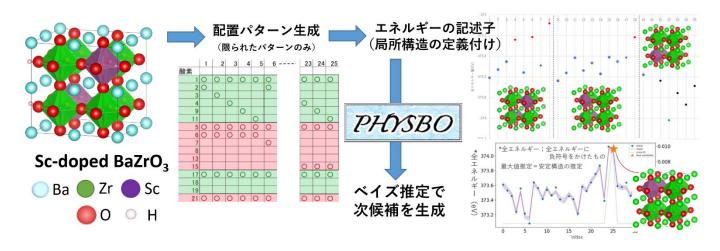
物質が選出できていることが わかる。今後は本アプローチ による探索を更に高効率化 し、より多様な物性を考慮可 能にすることで汎用化を進 め、本拠点における具体的な 開発ターゲットを踏まえて半 導体・誘電体候補物質の探索 に応用する計画である。



ベイズ推定を用いた固体材料中不純物配置の効率的電子状態計算ワークフローの構築

九州大学 多田 朋史

固体材料の電子状態計算では材料中に存在する不純物(ドーパント、格子欠陥等)の存在により、計算を実行すべきモデル数は膨大なものとなり得る。そこで、少ない計算結果をもとに安定な不純物配置を効率よく導けることが望ましい。そこで今年度は、ベイズ推定法を用いてペロブスカイト型酸化物の不純物配置の推定を実施することで(下図)、全探索に比べて少ない計算量で最安定配置にたどり着けることを確認した。今後、同手法をウルツァイト型誘電体材料に適用する予定である。



ナノ構造誘起法による強磁性ナノワイヤ - 高保磁力単結晶ナノワイヤの新しい作製方法-

東京工業大学 真島 豊

強磁性ナノワイヤは、トンネル磁気抵抗(TMR)素子、磁気メモリ(MRAM)、磁気センサなどさまざまな用途で利用されている。 $L1_0$ 型規則相を持つ強磁性合金薄膜は、正方晶規則格子により $10^7 \mathrm{erg/cm^3}$ を超える高い一軸結晶磁気異方性エネルギー(Ku)と 10 kOe を超える大きな保磁力(Hc)を有することから、スピンデバイス材料として精力的に研究されている。 $L1_0$ 規則化構造を持つ強磁性ナノワイヤを作製するには、結晶性基板上でアニール処理をすることにより強磁性合金薄膜を形成してから、エッチングによってナノワイヤ化する手法が従来用いられてきた。しかしシリコン基板などの非晶質基板上に先にナノワイヤを作製し、アニール処理のみで $L1_0$ 規則相とする手法はこれまでなかった。

我々はシリコン基板上にナノワイヤを直接形成し、アニール処理のみで強磁性ナノワイヤを作製する「ナノ構造誘起法」を新たに開発した。ナノ構造規則化法では、コバルトと白金の交互積層ナノワイヤをアニール処理するだけで、線幅が 30 nm のどんぐり型の断面形状で、双晶を含む L10 規則化単結晶構造からなり、10 kOe 以上の高保磁力を有する強磁性ナノワイヤ作製することができる。

今回開発した「ナノ構造誘起法」では、結晶性基板を用いる必要がなく、アニール 処理のみで高保磁力強磁性単結晶ナノワイヤを作製できることから、従来手法よりも 広い範囲の基板でスピンデバイスを簡便に作製でき、産業用途への応用が期待される。

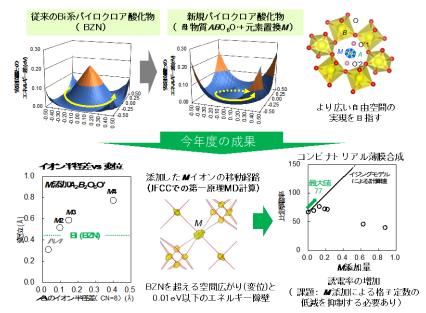


低温度係数高誘電体の開発

名古屋大学 山田 智明

小型・高容量でありながら様々な温度環境で容量が変化しないコンデンサの実現には、低温度係数の高誘電

率材料が必要となる。我々は、新しい材料として、パイロクロア型酸化物 A2B2O6O'に注目している。第一原理計算により、いくつかの系で A サイトイオンを M イオンで置換することで、従来の Bi 系パイロクロア型酸化物を超える M イオンの空間広がり(変位)が得られることがわかった。実際にコンビナトリアル薄膜合成により誘電率の増加が利用された。一方で、元素置換で格子定数が れることもわかった。今後、複数元素の置換等でこれらの課題の解決を図る予定である。



AI・機械学習を用いたデータ駆動型の新奇材料・例外材料の探索に向けて

横浜市立大学 寺山 慧

新たな研究領域を切り開くきっかけとなる物質や材料は、しばしば「例外」的なものです。複数の特性を考慮した上で例外的な特性を持つ物質を効率的に発見できれば、かつてない機能を持った材料の開発に繋がる可能性があります。近年、AI・機械学習を用いた新物質・材料設計が盛んに行われていますが、我々は敢えて「例外」を積極的に探索する手法として、BLOX(BoundLess Objective-free eXploration)という手法を開発しました[Chem. Sci. 2020]。この手法は、注目している特性・物性の空間で出来るだけデータがバラ

バラ(一様分布)になるように次に実験すべきデータを推薦します。図1に、BLOXを用いて、市販分子データベースである ZINC の中から、例外的な光吸収特性を持つ化合物を探索した例を示します。ランダムに探索した場合に比べ分子の分布が大きく広がり、例外的な分子を発見できました。今後の課題として、様々な材料でのBLOXの検証が挙げられます。また、BLOXは真に新奇で高い価値を持つ材料の探索にはまだ力不足です。今後より手法を改善しエキスパートの智慧を生かした探索手法を開発したいと考えています。

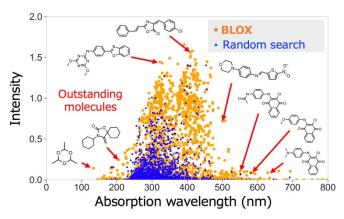


図 1 BLOX による例外材料探索例

硬X線光電子分光による電子状態測定

物質·材料研究機構 上田 茂典



AIN の強誘電性

ウルツ鉱型の化合物半導体は、青色発光ダイオードやパワー半導体に用いられているが、結晶構造中に極性を有していることから、圧電材料としての応用も拡大している。このウルツ鉱型材料の極性は、これまで外場による反転(強誘電性)は起きないと考えられてきたが、2019 年に Al_{1-x}Sc_xN において強誘電性が確認された。現在は Al_{1-x}Sc_xN 以外の材料でも強誘電性が報告されているが、固溶体ではない AlN の強誘電性については、局所的な分極反転が 100℃以上の温度で報告されているのみであった。今年度は圧電材料としても使用される AlN について室温の分極反転の実証を行った。図 1 には室温で測定した AlN 薄膜の分極-電界曲線を示す。大きな分極が示されているものの、試料中に流れる電流のために正確な残留分極の値を見積もることができない。そこでダブルパルス応答測定によって分極の値を見積った結果を図 2 に示す。パルス電界の大きさに対して、飽和する傾向が示されており、残留分極の値は 150 μC/cm²程度の値と見積もられた。

物質・材料研究機構 清水 荘雄

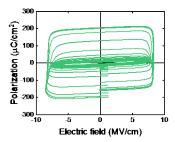


Fig. 1 P-E curve measured for AIN film.

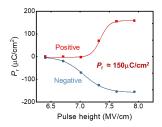


Fig. 2 Remanent polarization as functions of pulse field strength.

協奏的量子ビーム利用による材料の評価・評価

高エネルギー加速器研究機構 佐賀山 基

ここでは、本プロジェクトにおける高エネルギー加速器研究機構(KEK)の役割と現在の進行状況について総合的に述べます。高度な機能性デバイス材料では複数の自由度が空間的時間的に多階層的をとり機能を発現しているので、その機構を微視的に解明するためには、それぞれの自由度や階層構造に適した方法で複数の計測評価を多角的に行い、統合的に理解することが有効です。KEK では、つくばキャンパスで放射光と低速陽電子実験が、東海キャンパスでは中性子散乱実験とミュオン実験が可能です。物質構造科学研究所量子ビーム連携研究センター(ClQuS)において佐賀山、山浦(以下敬称略)(放射光回折散乱)、阿部、丹羽(放射光吸収分光)、組頭((東北大)光電子分光)、本田(中性子散乱)、幸田、門野(ミュオンスピン回転)がチームを組んで連携し、それぞれの専門の知識と経験を持ちより複合的に研究を進めます。既にいくつかのグループの試料について共同研究を開始し、放射光や中性子の計測を実施しています。未発表のためまだ具体的に記述できませんが、近い将来に News Letter でもご報告できるはずです。

複数の量子ビーム計測手法を使うことのメリットは大きいのですが、デメリットも当然ながら存在します。例えば、それぞれの測定において結果やその解釈が異なり、結論が出ないこと等がありえます。そのような場合には、測定や解析において属人的な要素をなるべく排して客観的にそれぞれの結果を評価するために、DX の技術は極めて有用です。神谷代表やデータ活用促進グループのサポートを頂きながら、本プロジェクトで開発された材料を評価する過程において、DX 技術の実装を目指しています。

データ科学を援用したミュオンスピン緩和法による材料の評価

高エネルギー加速器研究機構 幸田 章宏、門野 良典

量子ビームの連携利用による革新的エレクトロニクス材料の計測評価において、放射光、中性子とともにミュオンスピン緩和法 (μ SR 法)を用いて貢献したいと考えています。この目標達成には旧元素戦略プロジェクトで整備された J-PARC 物質・生命科学実験施設(MLF)のミュオン S1 エリア、汎用 μ SR 実験装置 ARTEMIS を継続利用していく計画です。

一方でデータ科学とより深く結びついた μ SR 実験の新展開に対しても大いに期待をもっています。近年、 μ SR 実験結果の解釈において、第一原理計算は切っても切れない関係となっています。これらを統合的な解析プラットフォームとして提供し、(ミュオン実験、計算科学、両者の意味での)初心者への障壁を取り除こうという取り組みが世界的に始まりつつあります。さらには、おそらくこれまで μ SR 実験に取り組んでみようと思った人たちにとっての最大の障壁といえる「データをどう解釈して、どうフィッティング解析をおこなうのか」という問に対して、機械学習により答えを導こうとする試みも始まりつつあります。J-PARC の大強度ミュオンビームにより時々刻々と新たなデータが生み出され続ける現状にあって、上記のような DX は必然の流れであると考えています。本プロジェクトに参加されているデータ科学を専門と

される方々の知見や助言を得てμSR実験のDXを加速できれば、これ以上ない展開だと思います。

データ科学を援用した放射光電子分光による材料の評価・評価

東北大学 組頭 広志

旧元素戦略プロジェクトに引き続き、本プロジェクトでもお世話になります。担当は、高エネルギー加速器研究機構(KEK)副拠点における物質・材料の光電子分光評価となります。よろしくお願い申し上げます。KEK 副拠点では放射光のみならず、中性子・ミュオンなどの複数の量子ビームを複合的に用いることで、物質のあらゆる構造・自由度を多角的に明らかにすることができます。

量子ビーム測定技術は飛躍的に向上しており、少し前には「高嶺の花」だった先端計測が物質・材料開発において当たり前のように使用される時代になってきました。量子ビームを用いた先端計測に立脚した物質・材料設計は元素戦略プロジェクトでも遺憾なく威力を発揮してきた経緯があり、現在ではもはや、物質材料研究におけるインフラストラクチャーになったと言っても過言ではないと思います。一方で、現在では測定効率の向上に伴い取得するデータも膨大になってきており、数日のビームタイムで取得したデータ解析に半年以かかるというのが現状です。また、専門でない幾つかの異なる量子ビーム測定結果をどのように理解するかといった解釈の統合問題も生じております。これらの問題をデータ科学で解決すればとても良いのですが、そんなに簡単では無いということは実感しております。実際、「データ科学をどのように活用すればいいんだろう」と途方に暮れている状態ですが、このプロジェクトはその解決方法を模索し、確立するためにうってつけだと考えております。旧元素戦略プロジェクト同様、皆様のお力をお借りしながら、放射光の DX 化を目指していきたいと考えております。

量子マルチプローブを用いた計測評価

高エネルギー加速器研究機構 山浦 淳一

私事で申し訳ありませんが、2023 年 4 月に高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所から 10 年振りに東京大学物性研究所へ戻ることになりました。現在、新しい研究室の立ち上げを行っているところです。旧元素戦略プロジェクトに参加したことで、非常に多くの先生方と交流ができ、人脈が大きく広がったとともに、研究の知見も広がりました。時間的な制約はありますが、引き続き MDX で仕事をさせていただきたいと思います。よろしくお願いいたします。

さて、MDX における間近の目標は、1) 量子マルチプローブ解析による材料評価、2) DX による解析の効率化、3) 新型検出器による解析の高速化・高精度化です。1)については、既にいくつかのグループの試料に

ついて結晶構造解析や測定サポートを行わせていただきました。次回のNEWSLETTERにはご報告できるのではないかと思います。2)については、ハイスループット粉末解析と全グリットサーチによる単結晶構造解析のコーディングを進めています。いずれも数万回から数億回の試行回数を要するので、DX 化の意味は大きいです。3)では、右図のように有機物中の全ての水素原子に異方性温度因子を適用して電子密度を観測しています。これまでの異なる点は、一般のソフトで一昔前の専門家レベルの解析を誰もが行えるという点にあり、波及効果は大きいと考えています。

