

第 70 回応用物理学会春季学術講演会

プラズマエレクトロニクス分科会主催シンポジウム

T16 「プラズマ駆動型科学とは何か～プラズマプロセスの新展開に期待して～」開催報告

代表世話人 石川健治 (名古屋大学)

低温プラズマは高速電子を生成し、その電子がガスと衝突することで化学的な活性種を
生み出す効果によって、誤解を恐れずに言えば、1 万度の高温でなければ起きないような反
応を、系の温度を上げることなく供する特徴をもつ。すなわち、電子衝突が引き起こす複
雑な化学反応プロセス（電離、解離、励起、電子付着など）を介して、化学的に励起され
た系の反応場に、さらには、この励起反応場の緩和する過程で新たな活性種を逐次連鎖的
に生成する。そのため、系の温度に依らず、低温であっても熱力学的非平衡状態で、反
応前駆体を供して進む化学反応場は、現在のほぼ全てのモノづくり産業に活かされていて、
この工学の深化・高度化がプラズマエレクトロニクスの研究テーマの一つとなっている。

最初のセッションは、2018 年に提唱された「プラズマインフォマティクス」に焦点をあ
てており、大阪大学の浜口智志教授より、「はじめに：プラズマインフォマティクス [1]」
と題して、プラズマ科学分野における機械学習や人工知能の活用について、ごく最近の発
展が紹介された。幅広い産業応用を有する低温プラズマが半導体デバイスの量産技術に革
新をもたらすキーテクノロジーであり、プラズマが生成するイオンを被加工表面に照射し
て生じる製膜や加工のプロセスに非平衡化学反応が活用されている。製造装置内のプラズ
マ密度分布やプロセスに与えるイオン照射の効果など、シミュレーション技術が発展し、
計算で再現できるようになった [2]。しかしながら、表面スパッタリング量の計算などには
時間が掛かるために、事前に計算させた結果を内容させるようなサロゲートモデルを組み
込むなど、データ駆動型プラズマ科学 (Data-driven plasma science [3]) の手法の活用によ
って計算時間を短縮し、最新の研究開発の成果の中から、プラズマ密度分布の実時間処
理やデータベースにない材料のスパッタ率予測 [4] などについて講演された。続いて、量
研機構の成田絵美博士より、「磁場閉じ込め核融合プラズマのデータ駆動型研究の進展」と
題して、磁場閉じ込め核融合炉において、プラズマを制御する磁場と加熱、ならびにプラ
ズマの閉じ込め領域外に排出される粒子や熱に関連する汎用性をもつ機械学習モデルの開
発やデータ駆動型の研究が説明された。2022 年の状況として、多層パーセプトロンをもつ、
いわゆる深層学習によって、強化学習を利用したニューラルネットワーク (NN) モデルに
より磁場によるプラズマ形状制御 [5] や加熱によるプラズマの温度制御 [6] が実現している。
この背景として、プラズマの挙動を模擬する数値計算が高精度かつ低計算コストでできる
ようになった点は忘れてはならない。計算コストを抑えつつ数値計算の精度をさらに上げ
るため、乱流の第一原理モデルとなるジャイロ運動論方程式をとりいれたシミュレーショ
ンが NN モデルを利用することで実現している [7]。すなわち、プラズマの制御に欠かせな
い熱と粒子の流入と流出を、輸送の物理機構に基づき精度の高い計算を行いながら、理解

できるようになってきている。最新の取り組みでは、リアルタイムに計測データを計算に取り入れて制御を高度化するデータ同化システム (ASTI [8]) の開発などについても説明された。続いて、九州大学の白谷正治教授より「機械学習・量子アニーリングを活用したプラズマプロセスの解析と制御」と題して、プラズマプロセスの最適化や制御におけるインフォマティクスの利用方法について講演があった。プラズマを制御する因子を入力として、プロセスで得られる結果を出力とすれば、それらの入出力の間の直接関係を求める問題を解いていることにほかならない。その際、対極的には二つのアプローチがあり、一つはデータだけに基づき、物理や化学の理解には盲目的にブラックボックス化するものであり、他方、物理や化学を正確に記述する微分方程式などのモデルに基づけば、理解は明快でホワイトボックス化する反面、取り扱える事象は限られる。したがって、これらを混在させたグレイボックス [9] に注目が集まり、例えば、プラズマプロセスの入出力関係の中間に、ラジカル密度といったプラズマの内部状態の階層を設けることにより、部分的にホワイトボックスすることが有効である。得てして、説明できる変数の依存性を追い求めてデータを取得することに終始して、実験系の最適化の傾向を追いがちな傾向である (図 1)。但し、真に探索すべき値や画期的な目標値について探究の方が重要であり、探索パラメータ空間内の飛び値をとるデータに気付くことや、広域な条件における最適値の在り方を求めるなど、複雑化して複数専門分野に跨がる問題に取り組むほど、インフォマティクスの利用価値が高まり、その目的達成のためには適切なチームを組んで対応すべきであると提唱された。

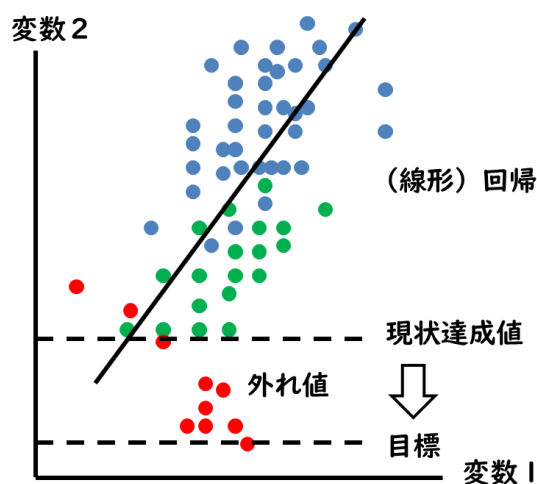


図 1 概念図。入力 (変数 1) と出力 (変数 2) の間に回帰することで、両者の関係を導くことができるが、本来の目標値は外れ値に見られる可能性がある。(聴講を元に著者作成)

二番目のセッションは、マテリアルインフォマティクスに焦点をあてており、ソニーセミコンダクタソリューションズの富谷茂隆博士から、「半導体における計測インフォマティクス」と題して、半導体デバイスの製造での例が紹介された。デバイス製造では、何を

くるか？検討する基礎段階から材料を選定し、デバイス化を進める開発段階、その製造方法を最適化する製造段階を経て、量産過程をスマート化や最適化するビジネス段階の 4 段階に発展していく。何れの段階でも、何をつくるのか？どうつくるか？という問いが投げかけられ、その手段と結果を入出力とする関係の逆問題を解くことであり、材料開発の場合、材料構造から機能予測という仮説検証問題として設定され、その問題を解く上で計測が重要な位置付けとなっている。古くはケモインフォマティクス[10]としてはじまり、現在では計算科学が活用され、コンピュータ内で材料機能が予測できるほど発展し、バーチャルメトロロジー (VM) などと呼ばれる。その背景には、機械的な構造の記述を可能とする記述子とデータベースの存在が欠かせなかった。具体例として、現実のデバイスの原子レベルの解析をアトムプローブトモグラフィーと透過電子顕微鏡を使った窒化ガリウムの構造決定 [11-13] について講演された。大量に取得されたデータから最初に機械学習によって特徴量を抽出するスペクトル解析を進め、第一原理計算を組み合わせた詳細な複合解析を行った結果から GaN 結晶構造の違いを導いた。計測が可能な時間と空間のスケールは限られている。このリミットを超える手法開発の取り組みから、日々その更新がなされている。将来的に、物質構造の 3 次元評価に進み、プロセスと物性の関係も導き、信頼性の観点での時間的変化が解析可能となろう。その観点からマルチモーダル、マルチスケール、オペランドの計測、そして、計測の自律化・自動化の方向の発展の展望が述べられた。続いて、産総研の室賀駿博士から、「マルチモーダル AI 材料インフォマティクスによる複雑材料機能予測」と題して、物理や化学の側面を多角的に取り入れた AI 手法による材料開発について講演された。例として、高分子を取り上げ、熱硬化性樹脂からなる無機・有機の複合材料でフィラーの分散状態といった顕微鏡像からの物理構造と、架橋添加剤などのラマンスペクトルなどの化学構造を統合して深層学習を構築し、幅広い特性予測に成功している [14]。元々の発想は、人間が複数の感覚器の情報を元に物事を判断して推論していることを参考に、物性解析においても複数の計測手法のデータを元に、物性予測の可能性を探ることが出発点であった。プロセスのデータ解析、実験の自動化、シミュレーションの高度化が著しく発展している現状について説明され、今後はさらに、ロボットの導入、手法の共有とデータの非共有の上での装置の共同利用、敵対的生成ネットワーク (GAN) によるデータ生成、人の役割として「ひらめき」の視点で人材育成の在り方など、幅広い問題点を指摘された[15]。

三番目のセッションは、プラズマ化学に焦点をあてており、室蘭工業大学の佐藤孝紀教授から「プラズマ気相・液相の化学的相互作用の解明」と題して、大気圧下において水面上で放電発生された時に、気相と液相で生成される化学種の生成過程を統合的に解析した結果について講演された。気相で放電によって、大気成分の窒素と酸素、水面から蒸発した水の解離を生じて、複数の原子やラジカル、反応生成物が生成される。それらは、液相に溶解し、さらにプラズマのもつ荷電粒子の電荷が液相に転移する。液面の帯電や電気浸透力を発生し、液相の流体移動が発生する[16,17]。続いて、東京工業大学の野崎智洋教授

から「触媒反応における非平衡プラズマ化学の活用」と題して、プラズマ触媒の現象論から振動励起分子やフリーラジカルに係わるプラズマ特異な化学反応について講演された。触媒表面での反応の定式化には、ラングミュア・ヒンシェルウッド (LH)、イレイ・リディール (ER)、マーズ・ヴァンクレバーレン (MK) などの反応式が提唱されている [18]。プラズマ触媒表面反応では、反応前駆体が触媒表面に吸着し、吸着種の活性化があり、さらに反応前駆体が気相から直接反応することで、系の温度によらず活性種の衝突機構が反応収率を決定しうる説明がなされた。反応種と生成種の間で逆反応の存在が総括反応として物質変換の効率を下げている。これらの洞察を総合して、プラズマ触媒に特異な触媒材料をもちいる反応系のシステム構築や、その最適化の意義について説明された。続いて、大阪公立大学の吉田朋子教授から「プラズマ駆動型化学反応系の複合分析と機能材料の開拓」と題して、人工光合成の実現に向けた取り組み、チタン酸化物 (TiO_2) への窒素導入により、窒素ドープ TiO_2 のエネルギーバンド構造が変化することで、可視光応答するレベルまでバンドギャップを下げる事が説明された。このとき、プラズマ・イオンの照射が TiO_2 結晶中の特定箇所に局所的に窒素がドープできる唯一の方法であること、また、 TiO_2 結晶構造内窒素の配置で光触媒活性を示すためには、活性サイト (O 置換) と不活性サイト (NO_2 置換) があり [19]、この配置について、X線吸収微細構造 (XANES) と電子エネルギー損失吸収端微細分光 (ELNES) の統合解析を行い、触媒表面から深さ方向への窒素の K 殻吸収端の微細構造に見られる分布の解析結果について講演された。

口頭セッションに引き続き、パネルディスカッションが開催された。招待講演者をパネラーとして、各パネラーの研究の視点から意見が交わされた。インフォマティクスを利用する上で物理的なモデルは必要なのか? という質問を受け、物理モデルの深層学習 (Physics-informed neural networks : PINNs) に議論の焦点があてられ、偏微分方程式に基づく機械学習や、支配的な偏微分方程式の探索といった視点でのインフォマティクスの利用価値に多くの支持が得られた。プラズマプロセスで得られる結果が到達目標に対して達成していないという実験者の認識が明確化されることで、達成目標に到達できる可能性のある解決策の探究方法としてインフォマティクスの活用が必要である。本分科会をはじめとする学界の係わりは重要である。研究の道具としてインフォマティクスを利用でき、その有用性が高まっている。しかしながら、このアプローチが主題のようにも捉えがちであるが、あくまでも道具であり、それを使う目的が何なのか、どのように使うのか、といった観点が重要である。これまでのプラズマプロセスの発展の中でも、複雑な過程を計測や計算のさまざまな手法によって解明されることで、原理を探究され、工学としてなしてきた。今後も、プラズマバイオ分野などで、複雑な現象を取り扱うプラズマプロセスへの科学がインフォマティクスの活用と共に深化し、工学と為していくことを願ってやまない。「プラズマ駆動型科学」に基づく新たなプラズマプロセスの創成に向け、今後の発展に、ご期待いただきたい。



図2 「プラズマがもたらす新たな現象や新たな法則の発見を導く」ことを討論するパネルディスカッションの様子（写真）

謝辞（敬称略） ご多忙の中、ご講演をいただいた講師の方々、最後まで会場ならびにオンラインで聴講いただいた参加者、この場をお借りして感謝を申し上げたい。本シンポジウムの開催にあたり、講師の先生方、座長をお務めいただいた古閑一憲、辻享志、準備の段階からご担当をいただいた伊藤昌文、熊谷慎也をはじめ、プラズマエレクトロニクス分科会幹事各位に感謝の意を表する。

参考文献

- [1] 浜口智志 静電気学会誌 43, 198 (2019)
- [2] M. Kambara, et al., [Jpn. J. Appl. Phys. 62, SA0803 \(2023\)](#).
- [3] R. Anirudh, et al., [IEEE Trans. Plasma Sci. \(2023\) in press](#).
- [4] H. Kino, et al., [Phys. Plasma, 28, 013504 \(2021\)](#).
- [5] J. Degrave, et al., [Nature 602, 414 \(2022\)](#).
- [6] T. Wakatsuki, et al., [Nucl. Fusion 61, 046036 \(2021\)](#).
- [7] E. Narita, et al., [Nucl Fusion 61, 116041 \(2021\)](#).
- [8] Y. Morishita, et al., [Comput. Phys. Commun. 274, 108287 \(2022\)](#).
- [9] H. A. F. Tulleken, [Automatica 29, 285 \(1993\)](#).
- [10] S. Wold, [Chemom. Intell. Lab. Syst. 30, 109 \(1995\)](#).
- [11] H. Yamamoto, et al., [J. Electron. Mater. 50, 4230 \(2021\)](#).
- [12] H. Mizushima, et al., [Appl. Phys. Lett. 118, 121603 \(2021\)](#).
- [13] Y. Yamaguchi, et al., [Nano Lett. 22, 6930 \(2022\)](#).
- [14] T. Honda, et al., [Commun. Mater., 2, 88, \(2021\)](#).
- [15] 室賀駿 成形加工 34, 250 (2022).
- [16] S. Wakisaka, et al., [IEEE Trans. Plasma Sci. 47, 1083 \(2019\)](#).
- [17] K. Tsuda, et al., [IEEE Trans. Plasma Sci. 49, 1739 \(2021\)](#).
- [18] D-Y. Kim, et al., [J. Am. Chem. Soc. 144, 14140 \(2022\)](#).
- [19] T. Yoshida et al., [Nucl. Instr. Meth. B 365, 79 \(2015\)](#). (see [Sect. 3.3 in the review](#).)