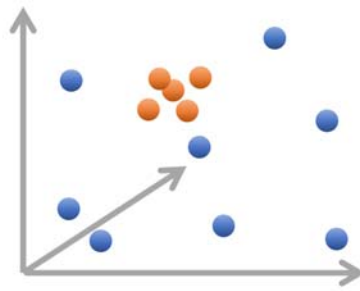


プロセスエンジニア
低次元空間での
局所的な最適化



機械学習(ベイズ最適化)
高次元空間での大域的な最適化



専門知識と機械学習を融合した最適化手法 ～ 最適な成膜条件により生産効率を約2倍に ～

名古屋大学未来材料・システム研究所の長田 圭一（当時大学院生）、宇治原 徹教授、理化学研究所革新知能統合研究センターの沓掛 健太郎研究員およびグローバルウェーハズ・ジャパン株式会社の共同研究グループは、逐次最適化のための機械学習手法であるベイズ最適化を、化学気相成長法（CVD 法）によるエピタキシャル Si 膜の成長プロセス条件の最適化へ応用することにより、成膜品質を維持しながら、成長速度を約2倍に高めることに成功しました。

材料分野の製造現場では、製造プロセスの条件検討が欠かせませんが、目的とする材料特性値そのものに加えて、限られた実験回数や特性評価に要する時間・コスト、装置エラーが発生する条件など、考慮すべき要素が多くあります。本研究で開発した最適化手法は、ベイズ最適化をベースに、考慮すべき要素に基づいた複数の制約を、状況に応じて適応的に用いる方法です。さらに、ベイズ最適化による大域的な最適化と、プロセスエンジニアの専門的な知識・経験を生かした局所的な最適化を組み合わせることで、3か月の非常に短い開発期間の中でも12個という多数のプロセス条件パラメータの最良な組み合わせを見出すことに成功しました。この最適化手法は、本研究対象のCVD法に限らず、様々な材料プロセスに応用可能で、製造プロセス開発の有効化・効率化に貢献する方法です。

この研究成果は、2020年8月13日付科学雑誌 Materials Today Communications オンライン版に掲載されました。（2020年9月10日 2020年第81回応用物理学会秋季学術講演会にて発表）

【ポイント】

- ・Si エピタキシャル成長のプロセス条件の最適化にベイズ最適化を応用することで、3か月という非常に短い開発期間の中でも成膜品質を維持したまま、成長速度を約2倍にするプロセス条件を見い出した。
- ・製造現場のプロセス最適化における課題（限られた実験回数・期間、特性評価に要する時間・コスト、目標達成困難度、装置エラー条件など）を考慮した複数の制約を適応的に用いることで、効果的な最適化を実現した。
- ・ベイズ最適化による大域的な最適化と、プロセスエンジニアの専門的な知識・経験を生かした局所的な最適化を組み合わせることで、より良い条件の取得を達成した。

【研究背景と内容】

1. 背景

材料作製では、そのプロセスの条件によって、材料の品質や生産効率が大きく左右されます。しかし、温度、圧力、基板位置など多岐にわたるプロセス条件パラメータについて最適な条件の組み合わせを見つけるためには、作製実験を何度も繰り返しながら探索する必要があり、多くのコスト（時間、費用、原料、人手など）がかかります。また、条件探索の仕方によっては、良い条件が見つからない場合もあります。よって、プロセス条件の最適化は、材料分野における大きな課題でした。

近年、逐次的最適化のための機械学習手法であるベイズ最適化が注目されています。逐次的最適化では、これまでの経験から良いと予測される条件（活用）と、まだ実験していない未知の条件（探索）の両方を検討することが重要です。ベイズ最適化は、同時にモデリングされる予測の不確実性を利用することで、活用と探索をバランス良く行う手法で、材料分野では原子・分子シミュレーションにおける最安定構造の探索など、シミュレーションを中心に応用されています。しかし、今回の研究対象である実際の製造現場では、後述するように評価コストや装置エラーなど、従来のベイズ最適化を単純に用いるだけでは解決できない問題がありました。

2. シリコンエピタキシャル膜の成長とプロセス条件の最適化

シリコン (Si) ウェーハは、メモリー（記憶素子）やロジック（演算素子）、イメージセンサー（撮像素子）などの半導体デバイスの基板材料として使われています。近年では、PC やスマートフォン等の民生用途に加え、AI や IoT、5G 等の技術進歩に伴い、産業用のビッグデータの保存や解析などの需要も伸びています。それにより、半導体デバイスの市場は急速に拡大しており、基板材料である Si ウェーハの品質や生産量に対する要求も年々高まっています。特に、先端の半導体デバイス材料には、高品質な Si ウェーハが求められており、不純物濃度や欠陥密度の低い高品質な結晶膜を得るために、化学気相成長法 (CVD 法) [1] を用いて Si ウェーハ上に Si エピタキシャル膜 [2] を成膜します。この CVD 法では、基板加熱条件や基板位置、基板回転速度、原料ガスの流量など、多くのプロセス条件パラメータがあります。また、得られる Si エピタキシャル膜にも、成長速度、ウェーハ面内の膜厚均一性、ウェーハ面内の抵抗率均一性、

欠陥密度など、考慮すべき品質パラメータが多く存在します（図 1）。これらのプロセス条件パラメータと品質パラメータは複雑に関係しているため、すべてのパラメータを考慮した大域的な条件探索は難しく、従来は既存条件の近傍に限定した探索やパラメータ数を絞った探索を行うことが一般的でした。本研究では、ベイズ最適化を応用することで、3 か月という非常に短い開発期間の中でも 12 個という多数のプロセス条件パラメータを同時に考慮した大域的な探索を行い、従来の条件とは大きく異なるプロセス条件パラメータ値の組み合わせで、5 つの品質パラメータの値を基準値以下に維持したまま、成長速度を従来の約 2 倍にすることに成功しました。

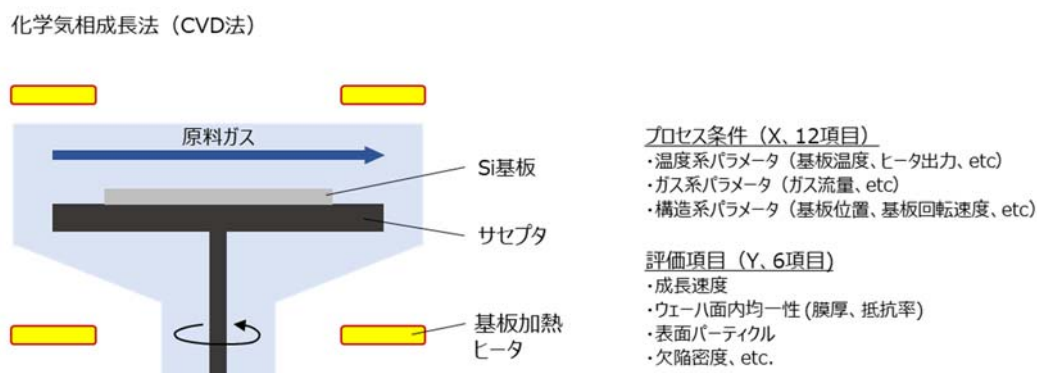


図 1 本研究で対象とした化学気相成長法の概略。成長速度を最大かつその他の 5 つの評価項目を基準値以下にするプロセス条件パラメータ値の組み合わせを見つけることが、本研究の最適化の目的。

3. 異なる制約を適応的に用いたベイズ最適化

本研究では、5 つの品質パラメータ値が基準値以下かつ成長速度が最大となるプロセス条件パラメータの組み合わせを得ることを目的として、5 つの品質項目に対する制約の下で成長速度を目的関数としたベイズ最適化を行いました。一般的に材料評価は、材料作製後に、複数の評価パラメータに対して順番に測定が行われますが、これには多大なコスト(時間、費用、人手など)が必要です。本研究では、Si エピタキシャル膜を作製した後に、Si エピタキシャル膜の各品質パラメータを順番に測定しましたが、成長速度も含めて評価項目が 6 個あるため、すべてを評価するには長い時間を要します。また、初期実験の段階で、品質パラメータ間で、満たすべき品質基準に対して達成容易度の差があることもわかりました。そこで、評価のための時間コストが低く、かつ基準達成が難しい品質パラメータを一つ選択し、この品質パラメータだけを制約とした単制約ベイズ最適化と、すべての品質パラメータを制約に用いた多制約ベイズ最適化を状況に合わせて選択することで、最適化の効率を向上させました。さらに、ベイズ最適化によって得られた大域的な最適条件候補をもとに、プロセスエンジニアの専門的知見をもとにした局所的な探索を併せて行うことで、最適化の効果を高めました（図 2）。

さらにベイズ最適化では、これまでにプロセス条件として検討したことのない条件を多く試しましたが、一部の条件では装置エラーが発生しました。装置エラーが発生した場合、その実験データは最適化に用いることができません。そこで本研究では、

装置エラーに付随して変動する評価パラメータ値を機械学習によって予測し、この予測値に関する制約式によって装置エラーが発生する条件を除外するアルゴリズムを構築することで、装置エラーを発生させることなく、得られた実験結果をすべて有効に使用できるベイズ最適化を実現しました。

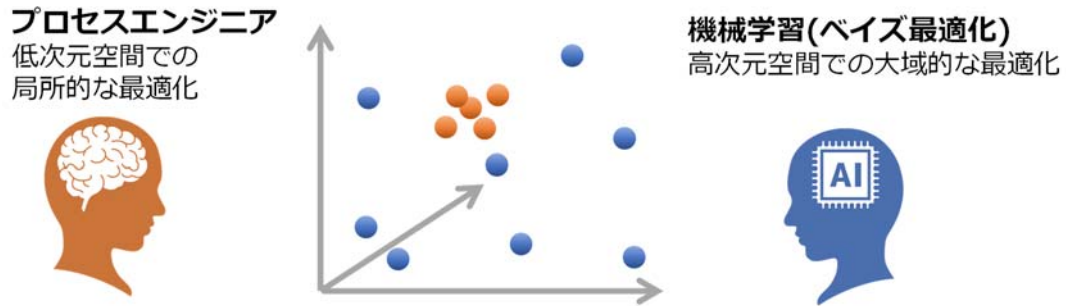


図 2 本研究では、機械学習（ベイズ最適化）による大域的な最適化と、プロセスエンジニアの知見をもとにした局所的な最適化を組み合わせることで、最適化の効率を最大限に高めた。

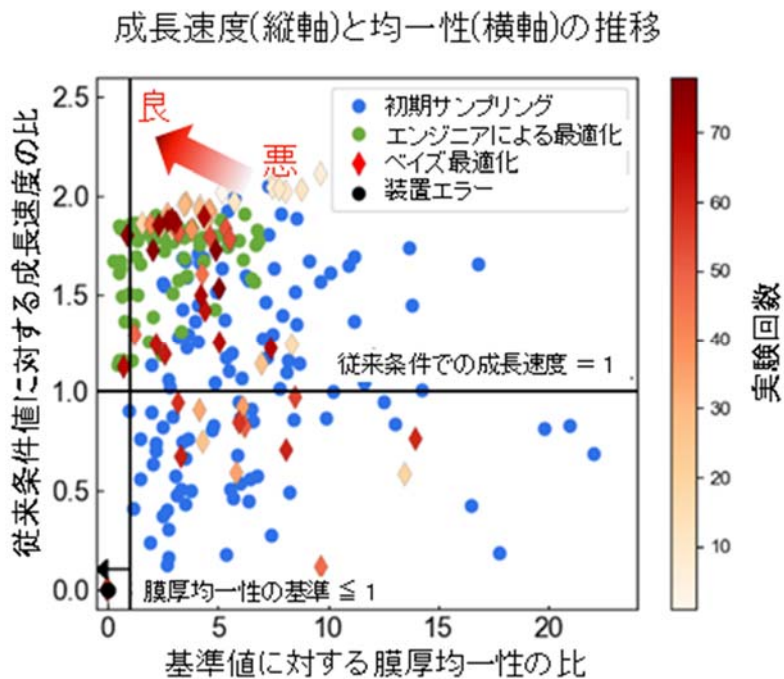


図 3 成長速度（縦軸）とウェーハ面内の膜厚均一性（横軸）の関係。成長速度は従来値を1として規格化し、値が大きいほど望ましい。ウェーハ面内の膜厚均一性は基準を1として規格化し、値が1以下となることが要件。したがって、図中では左上ほど良い条件を表す。青丸は初期サンプリングデータ、緑丸はプロセスエンジニアによる最適化条件、赤色のひし形はベイズ最適化による結果を表し、ベイズ最適化の色は実験回数を表す。ベイズ最適化が進行する（実験回数が増える）にしたがって、実験結果の点が左上に移動しており、より良い結果が得られていったことがわかる。

【成果の意義】

材料分野の製造現場におけるプロセス条件の最適化は、数が多く複雑な関係を持つパラメータの中で行われる難しい課題です。また、実験・評価にかかるコストなど現実的な問題も多くあります。今回研究対象としたSi エピタキシャル成長の成膜条件の最適化（成長速度の最大化）では、限られた時間の中で、5つの品質パラメータ値を基準以下にすること、5つの品質パラメータの評価に要する時間コストと目標達成度を考慮すること、未知の装置エラーの発生条件を考慮することが必須でした。本研究では、機械学習手法の一つであるベイズ最適化を応用し、これらの考慮すべき要素に基づいて、複数の制約を適応的に用いました。さらに、限られた時間の中で最適化の効果を高めるために、上記手法に加えて、プロセスエンジニアの専門的知見による局所的な最適化を行いました。これらの方法でプロセス最適化を進めることで、非常に短い実験期間の中でもプロセス条件パラメータの最良な組み合わせを見い出し、目的を達成する良好なプロセス条件を得ることに成功しました。

近年、材料分野では、手動で調整することが困難な数のパラメータに対して、機械学習を用いた最適化が有効であることが報告されています。その多くは、シミュレーションデータを用いた機械学習による物質探索によって、特定の材料物性値を向上させる物質を見い出すなど、目的が単一でした。こうした機械学習を活用した最適化は、材料分野を含めたものづくり産業において今後ますます盛んになるとともに、適用対象も材料プロセスのような、複数の目的と制約を持つ、より複雑な対象に移っていくものと考えられます。本研究は、材料プロセスの実際の実験という複雑な対象に対して、複数の制約を適応的に用いることを提案しました。提案した手法は普遍的な方法であるため、本研究で応用した材料プロセスはもちろんのこと、多様な逐次最適化に応用可能であり、最適化の有効化・効率化に貢献すると考えられます。

【用語説明】

[1] 化学気相成長法（CVD 法）

反応チャンバ内で、加熱した基板上に原料ガスを供給し、基板表面もしくは気相中の化学反応により膜を堆積する方法。

[2] エピタキシャル膜

基板の結晶方位を受け継いで結晶成長した膜。

【論文情報】

雑誌名 : Materials Today Communications

論文タイトル : Adaptive Bayesian optimization for epitaxial growth of Si thin films under various constraints

著者 : Keiichi Osada^{1*}, Kentaro Kutsukake^{2*}, Jun Yamamoto³, Shigeo Yamashita³, Takashi Kodera³, Yuta Nagai³, Tomoyuki Horikawa³, Kota Matsui², Ichiro Takeuchi^{2,4}, Toru Ujihara¹ (1 名古屋大学未来材料・システム研究所、2 理化学研究所革新知能統合研究センター、3 グローバルウェーハズ・ジャパン株式会社、4 名古屋工業大学大学院工学研究科、* 責任著者)

DOI : [10.1016/j.mtcomm.2020.101538](https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2020.101538)