

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 23 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560919

研究課題名(和文) 反応プロセスを対象とした自動研究開発システムの開発

研究課題名(英文) Development of the automatic R&amp;D system for reaction processes

研究代表者

高橋 崇宏 (Takahashi, Takahiro)

静岡大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50324330

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、半導体デバイスの製造等に用いられるCVDプロセスを対象とし、研究開発の高速化、省力化を目的として、CVD装置内部における反応機構の解析やモデル化を、人手を介さず自動的に行うシステムの開発を行った。システムの能力の向上のため、自動解析工程の根幹をなす最適化アルゴリズムの探索・評価を行い、実数値遺伝的アルゴリズムから有望な候補を発見することに成功した。そして、システム全体の解析精度と計算速度を向上することができた。また、実用的に用いられる複雑な構造を持つCVD反応装置をシステムに適用するためにCFDシミュレーターと本システムを連動する仕組みを考案し、実装・評価した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we developed the automatic system to model the reaction mechanisms of CVD processes, in order to decrease the labor requirement and increase the speed of R&D in semiconductor industries. We evaluated the various optimization algorithms, which is dominant to the performance of the system, and found the real-coded genetic algorithms as the candidates for the implementation to the system. As a result, we successfully improved both the accuracy and the cost of the calculations of the system. In addition, we proposed and evaluated a mechanism for interlocking the system and a CFD simulator in order to apply the system to the commercial CVD reactor with complex physical and chemical phenomena.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学・反応工学・プロセスシステム

キーワード：化学気相堆積法 CVD 実数値遺伝的アルゴリズム Bio-inspired algorithms 反応機構 モデリング  
自動化 微細加工

### 1. 研究開始当初の背景

化学気相堆積法(CVD)法は、ULSI などの半導体デバイス作製における微細加工の主力プロセスとなっているが、近年における高機能デバイスの開発競争は止まるところがなく、それに伴い、研究者には果てしない製造プロセスの改善、開発の繰返しが強いられている。そのため、研究開発の高速化、省力化が切望されており、研究開発作業の自動化、無人化が現状を打破する鍵となると考えられる。

一方、実験データを解析して CVD 反応器内部における反応モデル(反応機構)を解明することはプロセス開発で重要な意義を持っている。反応機構を用いてシミュレーションを行うことで実験結果の予測が可能となり、効率的に制御や最適化の指針を得ることのできるからである。このような知的作業の自動化は極めて困難であったが、申請者らは CVD の実験結果を入力すると自動的にデータ解析を行い、妥当な反応モデルを提案、決定する進化論的反應機構解析法(EARS)の開発に成功した。そして、実際に、反応器内の膜厚分布データをもとに EARS による反応機構の自動解析を試み、この手法が研究者に匹敵する解析、モデリング能力を有することを実証した。

しかし、自動解析システムの開発は未だ初期段階にあり、システムの利用は、反応速度論に基づく一次反応系による反応モデルや単純な構造の外熱型反応器などを対象としたものに限定されている。実用上重要となる、プラズマや表面吸着など複雑な物理化学現象を伴う非線形反応系や、構造の複雑な大規模商用反応装置における自動解析を可能にすることが、自動研究開発システムの実現には不可欠となっている。

また一方、システムの高度化は計算時間の莫大な増加を引き起こし、実用的な時間でシステムが解析を行うことが困難となっていた。しかし、進化論的計算手法の分野は、過去 10 年で飛躍的な進歩を遂げ、高速で効率のよい計算手法が提案されつつあった。そのため、研究開始当初は、進化論的計算手法の最新の成果を取り入れ、高機能なシステムを構築する好機であった。

### 2. 研究の目的

本研究課題では、申請者らが開発中の反応機構自動解析システムに、最新の計算アルゴリズムを取り入れることで発展・高度化することを目的とした。

具体的には、実用上重要だが系統立てた解析手法が確立していない複雑な物理化学現象を伴う非線形な反応機構の解明が可能なシステムの作製を目指し、自動解析工程の根幹をなす最適化アルゴリズムの探索とシステムへの実装および評価を行うことで、システムの解析能力と計算速度の向上を目指した。

さらに、構造の複雑な大規模商用反応装置における反応モデル解析を自動的に行うことが可能なシステムの作製を目指し、CFD(数値流体力学)シミュレーターと本システムとが連動する仕組みを提案し、検証・評価することを目的とした。

### 3. 研究の方法

比較検討を行う最適化アルゴリズムとしては、比較的高い最適化能力を持つことが報告されている、生物の挙動から発想を得た(BIA)バイオインスパイアードアルゴリズムから候補を選出した。さらに BIA の中でも特に性能が良いことが報告されている、実数値遺伝的アルゴリズム、ミツバチの採餌行動を模倣した Artificial Bee Colony (ABC)、進化戦略の一種である Covariance Matrix Adaptation Evolution Strategy (CMA-ES) の 3 つのグループを中心に評価を行い、オリジナルのシステムで実装されている古典的な遺伝的アルゴリズムの解析結果と比較した。

システムにこれらの最適化アルゴリズムを実装した後、あらかじめ設定した反応モデルから人工的に作成した成膜実験結果(テストデータ)をシステムに入力して、提案された反応モデルと答えとなるあらかじめ設定した反応モデルを比較することにより、解析能力を比較した。また、解析精度の指標となる評価関数の値を用いて、計算世代ごとの変化と、乱数種を変化させて計算した際の収束値のばらつきを調査することで、解析精度と収束安定性を評価した。さらに解析に要した計算時間の実測値を比較することによって計算速度(または計算コスト)を評価した。

一方、システムと CFD シミュレーターとの連動については、CFD シミュレーターの計算速度が非常に大きいことから現状ではシステムとの連動は実用上不可能である。そのため、CFD シミュレーターの計算コストを大幅に下げるため、シミュレーターの計算条件(入力データ)と計算結果(出力)データの相関関係を回帰分析手法やニューラルネットワークなどを用いてモデル化し、比較的簡単な数式に置き換えることを試みた。すなわち、シミュレーターの計算過程を簡単な数式に置き換え、計算コストの大幅な減少を試み、モデル式の再現性の評価、および、システムとモデル式との連動の可能性を評価した。

### 4. 研究成果

自動解析システムにおいて、実験データとしては、nm~ $\mu$ m サイズの断面形状が台形のトレンチ構造を持つ基板上に、CVD によって生成した薄膜の微細形状を用いた。反応モデルは、原料ガスと反応中間体による最大 4 種類の成膜種を考慮し、定性的な情報とした。気相反応が無視でき、表面反応による成膜が支配的となる Knudsen 拡散領域を対象とし、膜の堆積は各成膜種の 1 次表面反応によって

進行するものとした。成膜種の反応性を表す付着係数を反応モデルの定量的な情報とした。反応モデルの定性的情報の最適化には遺伝的アルゴリズムを用いた。BIAは、付着係数や各実験条件に固有の成膜種ごとのフラックス比を求める定量的情報の解析過程で用いた。

BIAとして、実数値遺伝的アルゴリズムのグループを評価したところ、多親交叉法の  $REX(\phi, n+k)$  (Real-Coded Ensemble Crossover)と世代交代モデルの JGG (Just Generation Gap) を組み合わせた  $REX(\phi, n+k) + JGG$  法、および、この方法を発展させた  $REX^{star} + JGG$  法が優れたパフォーマンスを示した。 $REX(\phi, n+k) + JGG$  法は計算精度と収束安定性に優れ、 $REX^{star} + JGG$  法は計算精度と計算コストに優れていた。収束安定性の比較に関する結果の例を図1に示す。

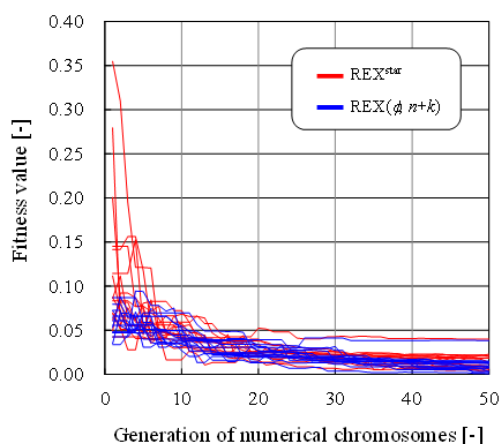


図1 実数値遺伝的アルゴリズムにおける染色体の最良評価値の変化と乱数種依存性

ABCのグループでは、オリジナルのABC法を改良したGABC(Gbest-guided ABC)法が比較的良いパフォーマンスを示した。しかし、グループ全体の傾向として計算コストが高いことが示された。

CMA-ESは、計算精度、収束安定性、計算コストのすべての観点から他のグループを圧倒する性能を示したものの、計算対象と諸条件によって全く最適化が進まない場合があり、人手を介さない自動化という観点からはシステムへの実装には不向きであった。

計算精度、収束安定性、計算コストの観点から総合的に見た場合、 $REX^{star} + JGG$  法がシステムへの実装には最適と結論付けた。さらにシステム中にいくつかのアルゴリズムを組み合わせるハイブリッド実装も有望性が示唆され、その場合は  $REX^{star} + JGG$  法とCMA-ESを組み合わせるのが優れていた。一方、本研究の評価結果は、ローゼンブロック関数などの典型的なテスト関数を用いて比較、評価した既往の研究結果から予測される結果と反するものが多数含まれることが

分かり、本研究の意義が示されたものの、本システム独自の評価方法を確立する必要性も示唆された。

シミュレーターの計算過程のモデル化の研究では、ソフトウェアエージェントがシミュレーターを操作し、モデル化に必要な、計算条件と計算結果が対になった多数のトレーニングデータを自動的に生成する環境を構築し、回帰分析手法の一種であるPLS法とQPLS法、および、ニューラルネットワークを用いて計算過程のモデル化を行った。予測的説明分散による評価から、すべてのモデル化手法によって、比較的良好な計算過程のモデルが作成できることが示された。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4件)

- ① T. Takahashi, K. Kawamura, K. Takahashi and Y. Ema, "A Calculation Method of Deposition Profiles in CVD Reactors Using Genetic Algorithms", *Physics Procedia*, Volume 46, pp. 219-229 (2013). 査読有
- ② T. Takahashi, K. Kawai, H. Nakai and Y. Ema, "Development of the Automatic Modeling System for Reaction Mechanisms Using REX+JGG", *Physics Procedia*, Volume 46, pp. 239-247 (2013). 査読有
- ③ T. Takahashi, N. Fukui, M. Arakawa, K. Funatsu, Y. Ema, "An Automatic System Using Mobile-Agent Software to Model the Calculation Process of a Chemical Vapor Deposition Film Deposition Simulator", *J. Nanosci. Nanotechnol.*, Volume 11, Issue 9, pp. 8004-8008 (2011). 査読有
- ④ T. Takahashi, H. Nakai, H. Kinpara, Y. Ema, "An Automatic Modeling System of the Reaction Mechanisms for Chemical Vapor Deposition Processes Using Real-Coded Genetic Algorithms", *J. Nanosci. Nanotechnol.*, Volume 11, Issue 9, pp. 8044-8048 (2011). 査読有

[学会発表] (計 13件)

- ① T. Takahashi, M. Arakawa, Y. Ema, "An Automatic Modeling System of the Reaction Mechanisms for Chemical Vapor Deposition Processes Using Bio-Inspired Algorithms", *NanoEnergy 2014*, 2014年2月19-21日, University College London (London, UK)
- ② 高橋崇宏, 阿部浩士, 荒川正幹, 江間義則, "バイオインスパイアードアルゴリ

ズムを用いた化学気相堆積プロセスにおける反応機構自動解析システムの開発", 第36回情報化学討論会, 2013年11月7-8日, 筑波大学(茨城県つくば市).

- ③ 高橋崇宏, 稲垣妙香, 成合真吾, 児玉純一, 荒川正幹, 江間義則, "実数値遺伝的アルゴリズムを用いた CVD 装置における成膜速度分布の計算方法(3)", 第36回情報化学討論会, 2013年11月7-8日, 筑波大学(茨城県つくば市).
- ④ 高橋崇宏, 阿部浩士, 荒川正幹, 江間義則, "Bio-inspired アルゴリズムを用いた反応機構自動解析システムの開発と評価", 化学工学会第45回秋季大会, 2013年9月16-18日, 岡山大学(岡山県岡山市)
- ⑤ 高橋崇宏, 河村健, 長谷部恭弘, 江間義則, "GA を用いた CVD の成膜速度分布に関する計算アルゴリズムの開発と評価 (2)", 化学工学会第45回秋季大会, 2013年9月16-18日, 岡山大学(岡山県岡山市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

高橋 崇宏 (TAKAHASHI, Takahiro)

静岡大学・工学研究科・助教

研究者番号：50324330