

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：32678

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K04175

研究課題名（和文）支配方程式を教師とした機械学習による液膜塗布時の膜厚ムラ予測モデルの構築

研究課題名（英文）Prediction of thickness undulations in coating of liquid films by means of physics-informed machine learning

研究代表者

白鳥 英 (Shiratori, Suguru)

東京都市大学・理工学部・准教授

研究者番号：10803447

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：半導体デバイスや各種カラーフィルターの製法などの微細加工技術における液膜塗布工程で発生する各種膜厚ムラを効率的に予測する方法として物理法則の機械学習法であるPhysics-Informed Neural Network(PINN)を応用した研究である。検証例がなかった、空間4階微分と4次の非線形性を含む液膜流れの偏微分方程式に適用してPINNの有効性を調べた。適切に学習させるには、学習対象の時空間データ点を解の変化が激しい位置に密に配置すること、浮動小数点演算を倍精度とすること、中間変数を導入して偏微分方程式の階数を削減することで自動微分の演算量を減らすことが有効であることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液膜に生じる膜厚ムラを予測するシミュレーション方法として、従来の有限差分法等の計算法では時間発展計算に長時間を要するため、膜厚ムラを回避・抑制するための最適塗布条件の探索に供するのは非現実的状況にあった。本研究で有効性を検証したPhysics-informed neural networkは一度学習計算を終えれば、任意の時刻と位置における膜厚を即時に計算することができるため、最適塗布条件への活用が現実的になると期待される。

研究成果の概要（英文）：This research applied Physics-Informed Neural Network (PINN), to efficiently predict various film thickness irregularities that occur in the liquid film coating process in microfabrication technologies such as semiconductor device and various color filter manufacturing methods. The effectiveness of PINN was investigated by applying it to the partial differential equation of liquid film flow, which includes a fourth-order spatial derivative and a fourth-order nonlinearity, for which was not validated. We found that for proper learning, it is effective to (1) densely place the spatio-temporal residual points where the solution changes rapidly, (2) use double precision floating-point operation, and (3) reduce the number of automatic differentiation operations by introducing intermediate variables and reducing the highest order of derivatives in the partial differential equation.

研究分野：流体工学

キーワード：液膜流れ 物理法則の機械学習 膜厚ムラ データ同化

1. 研究開始当初の背景

半導体デバイスやMEMS デバイス、ディスプレイや撮像素子のカラーフィルター等の微細加工プロセスにおいて、機能的樹脂と揮発性溶媒から成る塗膜を基板に均一に塗布する工程がある。この工程において種々の膜厚ムラが発生して最終製品の寸法精度を悪化させる問題があり、膜厚ムラの発生を予測できるシミュレーション技術が重要となっている。従来の数値シミュレーション方法として有限差分法などが普及しているが、自由表面の変形を伴う現象の時間発展計算には長時間を要するため、これらの従来法を用いて膜厚ムラを回避・抑制できるような最適塗布条件を探索するのは非現実的状況にあった。このような状況を解決し得る方法として、近年提案された Physics-Informed Neural Network (PINN) が挙げられる。この方法は、支配方程式の解をニューラルネットワークで予測し、支配方程式の誤差を最小化するように学習させるものであり、物理法則による事前知識を機械学習に反映させることができる。この PINN を用いることで、少ない学習データセットで支配方程式の解を予測できる可能性が示されているが、検証されているのは極めて単純な系のみであり、液膜流れ等の実用的な系に対する有効性の検証は皆無であった。

2. 研究の目的

本研究は、物理法則の機械学習法である PINN を液膜流れの方程式に適用してその有効性を検証することを目的に実施した。

3. 研究の方法

対象とする液膜流れの支配方程式として、表面張力による液面の曲率の緩和を考慮した空間 4 階微分と 4 次の非線形を含む偏微分方程式を採用し、これに PINN を適用した。PINN は Python ベースで tensorflow と keras を用いて実装し、東京大学情報基盤センターの Readbush および Wisteria/BDEC-01 にて実行した。

4. 研究成果

(1) 液膜流れの方程式における PINN の有効性検証

学習済みの PINN による計算結果を、従来法である有限差分法 (FDM) の結果と比較検証した。損失関数値が十分に低下するまで学習させれば、図 1 に示すように PINN と FDM の結果は定量的に十分な精度で整合することを確認した。

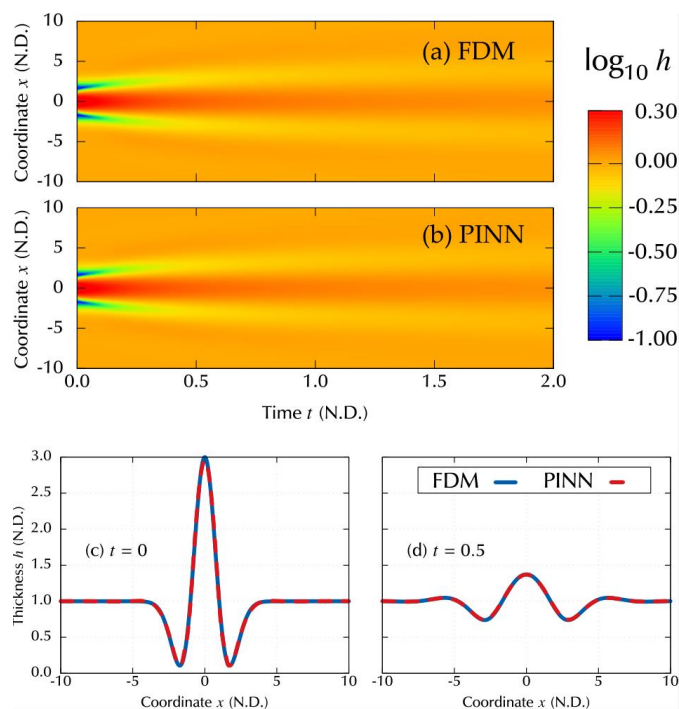


図 1: 有限差分法 (FDM) と PINN による数値計算結果。(a, b) 時間 t , 位置 x に対応する解 $h(t, x)$ を対数で色付けしたもの。(c, d) 特定時刻における膜厚分布のスナップショット

(2) 有効な学習のための要件

図 1 には十分な精度で得られた解を示したが、この結果を得るにはネットワークサイズや学習点の配置などに工夫を要した。ただし、これらの留意点は問題に依存する部分もあり、一般論として有効とは限らない点には注意されたい。

① 中間変数の導入による微分階数の低減

まず、PINNs では導関数の計算に自動微分 (AD) を用いるが、AD では局所の導関数を得るためにもネットワーク全体を参照する必要がある。多くのライブラリでは 1 階の AD の再帰として計算せざるを得ないため、微分の階数に対して AD の計算コストは指数関数的に増加する。ラプラス圧項を含む液膜流れの空間 4 階微分を含むため、AD の計算コストが極めて高くなる。この計算コストを低減する方法として、中間変数を導入して PDE を分割し、微分の階数を下げることによって、約 1/3 の時間で同程度の精度で学習できることを示した。

② 浮動小数点演算の精度

浮動小数点演算の精度も学習結果に影響する場合がある。本研究で対象とした 4 階の PDE では浮動小数点演算を倍精度 (FP64) としなければ十分な精度の解が得られなかった。損失関数の推移を調べたところ、FP32 では反復回数 2×10^4 付近で計算が途中終了したのに対し、FP64 ではまだ損失関数の減少が続いている。FP32 での途中終了は、損失関数値が有効桁数の範囲内で変化しなくなったために起きており、損失関数がいったん停留に近い状態になったことで、桁落ちによって勾配の有効数字が不足したためと考えられる。

③ Residual points の配置

PINNs の収束性と解の精度は、Residual points と呼ばれる学習点の配置に強く依存する。多くの PINNs の応用例では、学習点の配置はラテン超方格サンプリングなどを用いて時空間に均等に分散させることが多いが、本研究で対象とした曲率緩和問題では、初期に激しい緩和が起こり、その後のダイナミクスは穏やかになる。この場合、時間的に初期の段階に学習点の密度を高めたほうが解の精度は高い結果となった。

(2) 初期条件を可変とする PINN

PINNs では、初期条件を教師データとして損失関数に組み込むため、初期条件を変えた場合は再学習が必要になる。実用的な数値シミュレーションの多くでは初期条件も不確かさを含むため、前述したデータ同化においては初期条件も同化対象のパラメータとすることが多い。PINNs を用いたデータ同化法においては、初期条件を変えた場合に再学習が必要になるため、初期条件に対する勾配の計算ができなくなる。この問題を解決するために、著者らは図 2 に示すような初期条件を可変とするように拡張した PINNs を提案した。基本的には初期条件も NN の入力に取るようにしているが、初期条件の離散点を直接入力に取ると次元が膨大になるため、オートエンコーダによる低次元化を導入している。このオートエンコーダは、想定される初期条件の変化範囲内で事前に学習させておく。PINNs での学習においては、初期条件の離散点はオートエンコーダのエンコーダ部分で次元圧縮し、これを初期条件の識別子 g とする。 g の次元は、考慮する初期条件のバリエーションの範囲に基づいて決める必要がある。この初期条件の識別子を PINN の入力に与え、初期条件の誤差を評価する際には元の離散点 h_i を用いる。このように拡張した PINNs によって、初期条件を変えた場合の解を同一の PINN によって予測できるようになる。この構造とすることの利点は、初期条件を変えた際の解の変化を自動微分によって計算できるようになる点であり、データ同化において初期条件も同化対象パラメータとすることができる。

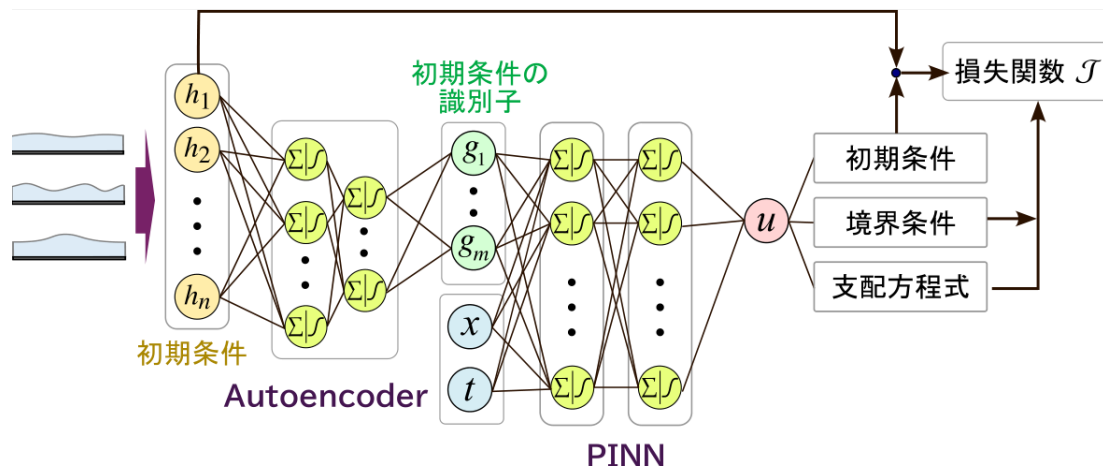


図 2: 初期条件を可変とする PINN の構成

(3) PINN を利用した新たなデータ同化法の提案

PINNs のオリジナルの論文では、PINNs の損失関数に観測データを教師ありで組み込むことで未知のパラメータを同定する方法が data-driven discovery の枠組みで示されている。この方法は PINNs を用いた逆問題の解き方として画期的といえるが、PDE 自体の学習とパラメータの同定を同時に行うため、計算時間を要することが実用面での課題になる。本研究では未知のパラメータを PINNs の入力に取る形式にすることで PDE の学習とパラメータの同定計算を分離できることに着目し、図 3 に示すような PINNs を用いた新たなデータ同化法の枠組みを提案した。前述したように、PINNs では支配方程式の解を代入して評価する際に自動微分を用いるが、この自動微分は学習後に解のパラメータ依存性を計算する際にも利用できる。データ同化は、数値シミュレーションによる予測値と観測値の誤差を評価して、その分散を最小化あるいは尤度を最大化するようにシミュレーションのパラメータを更新する方法である。データ同化がよく活用されている気象予測の分野では、同化対象のパラメータとして初期条件が設定されるが、塗膜の物性値を同化対象とすることもできる。本研究で対象としているレジスト膜の塗布・乾燥現象には、粘性係数・表面張力・密度・拡散係数などの多くの物性値が関与しており、これらを個別に測定するための検討コストが大きいことが課題になっている。データ同化を用いれば、膜厚分布などの 1 種類のデータの観測から複数の物性値を同時に同定することも可能になる。本研究では、問題設定として同化対象のパラメータを 1 種類のスカラー量 c とし、これを評価関数を最小化することで同定する構成とした。 c を変化させた時の解の変化は PINNs の自動微分によって計算できるため、高速な同化計算が可能になる。従来のデータ同化法の一つであるアジョイント法では、仮のパラメータを用いた解の予測には順方向の時間発展計算を行い、パラメータを変えた時の解の変化、すなわち勾配計算の際にはアジョイント方程式を時間逆方向に計算する。このアジョイント方程式を解くために、順方向の計算とは別に計算コードを書く必要があり、この点がアジョイント法の実装の煩雑な部分であった。本研究の提案法では、順方向・逆方向の両方を同じ PINN を用いて計算できるため実装が簡便になる。また、通常データ同化では数値計算の格子点と観測点とが一致しているとは限らず、格子点から観測点へ内挿計算する必要があるが、PINNs では学習点以外の位置と時刻における解を直接予測できるため、内挿計算が不要になる。この点も従来法に比べて優位な点である。

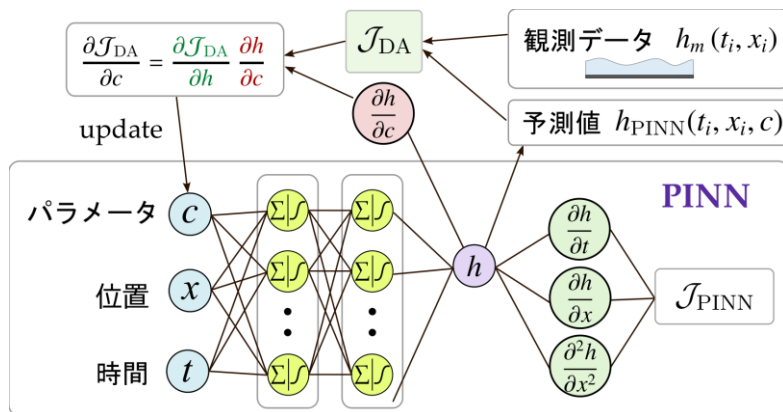


図 3: PINNs を用いたデータ同化法の構成

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Nakamura Yo, Shiratori Suguru, Takagi Ryota, Sutoh Michihiro, Sugihara Iori, Nagano Hideaki, Shimano Kenjiro	4. 巻 early view
2. 論文標題 Physics informed neural network applied to surface tension driven liquid film flows	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal for Numerical Methods in Fluids	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/flid.5093	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Suguru SHIRATORI, Takuro USUI, Shiho KOYAMA, Shumpei OZAWA, Hideaki NAGANO, Kenjiro SHIMANO	4. 巻 38
2. 論文標題 Efficient Implementation of Two-Phase Flow Solver Based on THINC/SW and S-CLSVOF on Unstructured Meshes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Microgravity Science and Application	6. 最初と最後の頁 380301
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.15011/jasma.38.380301	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Shiratori Suguru, Kato Daiki, Sugasawa Kyosuke, Nagano Hideaki, Shimano Kenjiro	4. 巻 154
2. 論文標題 Spatio-temporal thickness variation and transient Marangoni number in striations during spin coating	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 119678 ~ 119678
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.119678	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shiratori Suguru, Nagano Hideaki, Shimano Kenjiro	4. 巻 191-192
2. 論文標題 Semi-analytical solution for deformation of elastic/viscoelastic two-layered films pressed on partially-opened substrate	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Solids and Structures	6. 最初と最後の頁 588 ~ 600
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijsolstr.2019.12.013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Kohei Ono, Suguru Shiratori, Kenjiro Shimano, Hideaki Nagano
2. 発表標題 Modeling of liquid film flow during spin-coating; Marangoni-Benard instability in parallel basic flow
3. 学会等名 8th International Conference on Heat Transfer and Fluid Flow (HTFF ' 21) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yo Nakamura, Suguru Shiratori, Hideaki Nagano, Kenjiro Shimano
2. 発表標題 Physics-Informed Neural Network with Variable Initial Conditions
3. 学会等名 8th International Conference on Heat Transfer and Fluid Flow (HTFF ' 21) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村 耀、白鳥 英、周藤 道宏、永野 秀明、島野 健仁郎
2. 発表標題 Physics-Informed Neural Networkにおける転移学習の効果
3. 学会等名 日本流体力学会年会2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小野 航平、白鳥 英、永野 秀明、島野 健仁郎
2. 発表標題 スピンコート中の液膜流れの3次元非定常数値シミュレーション
3. 学会等名 第35回 数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 白鳥 英、武田 唯、中村 耀、山口 郁斗、永野 秀明、島野 健仁郎
2. 発表標題 Physics-Informed Neural Networkを用いた高速なデータ同化法
3. 学会等名 日本流体力学会年会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小野 航平、白鳥 英、永野 秀明、島野 健仁郎
2. 発表標題 平行流中のMarangoni-Benard不安定性：スピンコート中の液膜内流れのモデリング
3. 学会等名 日本流体力学会年会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中村 耀、白鳥 英、永野 秀明、島野 健仁郎
2. 発表標題 初期条件を可変とするPhysics-Informed Neural Network
3. 学会等名 日本流体力学会年会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 白鳥 英、高木 遼太、中村 耀、永野 秀明、島野 健仁郎
2. 発表標題 液膜流れの方程式に対するPhysics-Informed Machine Learningの有効性
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 白鳥 英、加藤 大輝、島野 健仁郎、永野 秀明
2. 発表標題 スピンコート中の液膜に発生する放射状スジムラ：膜厚分布の時系列変化の測定
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 白鳥 英、加藤 大輝、島野 健仁郎、永野 秀明
2. 発表標題 液膜のスピンコートにおける放射状スジムラの形成過程：膜厚分布の時系列変化
3. 学会等名 日本マイクログラフィティ応用学会 第31回学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関