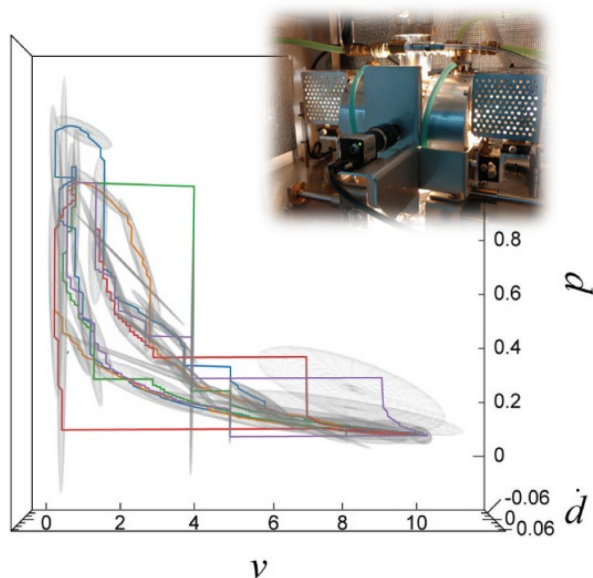


要約

材料プロセスの例として、FZ 法による結晶成長の動作ダイナミクスの予測に混合ガウス回帰を用いた。わずか5つの実例の軌道から、線形回帰やニューラルネットワークを用いるより高精度で混合ガウスモデルを用いた動作ダイナミクスをうまく予測した。今回の結果は、混合ガウス回帰は安定した動作状況から大きく変化しない方が望ましい材料プロセスの動作ダイナミクスの予測によく合っていることを示している。さらに、混合ガウス回帰による正確な予測は動作軌道の最適化や材料プロセスの自動制御につながる。



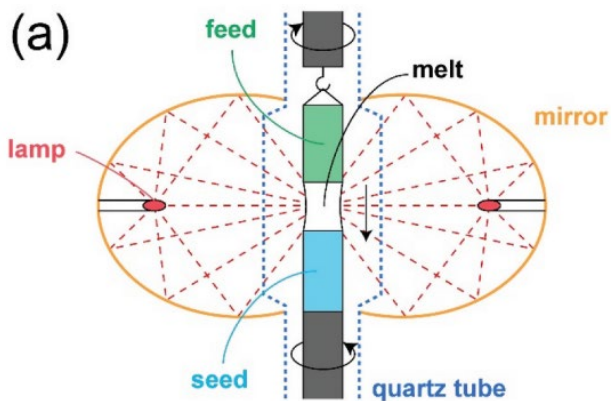
1. イントロダクション

インフォマティクスの発展と適用は、材料プロセスの新時代の先触れとなっている。材料プロセスはベイズ最適化、ニューラルネットワークなどのインフォマティクスにおける様々なアルゴリズムを用いることで改良、自動化、あるいは効果的な最適化がされている。例えば材料プロセスへベイズ最適化を適用することで最適化のための試行回数を減少させ、高効率でより良い結果を出す動作状況を提案する。またニューラルネットワークによる材料プロセスの代理モデリングは、最適な状

況を効率的に探索する。ほとんどの材料プロセスではパラメータが独立して与えられ、一つの入力パラメータのセットに対して一つの出力がされるのにもかかわらず、材料プロセスには動作中に得られる情報に従って手動で操作するものがある。例えば、optical floating-zone (FZ)法では操作者が炉内の溶融物の状態をカメラでモニターし、単結晶の成長に適した状態を保つように入力パラメータを変更する(FZ 法による結晶成長の詳細は後に説明する)。この場合、今まで行われていたベイズ最適化を用いるには数多くの試行を必要とし、ニューラルネットワークによる代理モデルを構築するには大量のシミュレーション結果が必要である。ロボット工学、化学工学、航空宇宙工学などの研究分野では、軌道最適化が様々な研究手法の発展のために長く研究されている。一般に、軌道最適化は実演実験からシステムの動作状態を予測することから始まる。この研究では、工業における材料プロセスの操作軌道の特徴を考慮した混合ガウス回帰(GMR)を用いる例として、集光式 FZ 法による結晶成長の動作の研究を行った。

2. FZ 法とその軌道の特徴

るつぼを使わない FZ 法は、他の物質と触れる溶融帯を持たない高純度のシリコン単結晶を成長させる手段として発展した。直径 200mm までのシリコンは誘電加熱を用いた FZ 法で製造され、半導体の生産に使用される。シリコン結晶だけでなく半導体、金属、合金、金属間化合物、酸化物、ホウ化物、炭化物、ケイ化物など、特にこれらのうち融点が高い結晶は集光式 FZ 法で生産される。図 1 は典型的な集光式 FZ 法を行う機械の図と写真である。FZ 結晶成長プロセスは主に集光ミラーの前面の穴から挿入されたカメラで監視される。2 つの多結晶の棒が、楕円体のミラーの焦点で接するように設置されている。ハロゲンあるいはキセノンのランプは、ミラーのもう一方の焦点の位置に



(b)

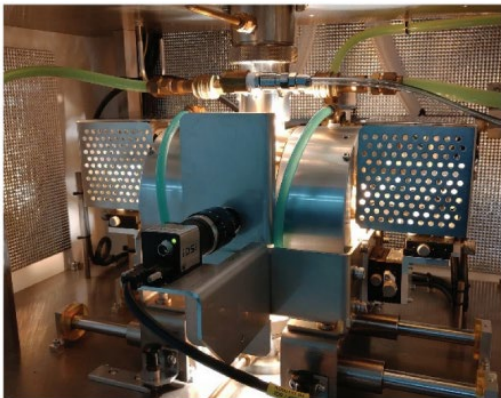


図 1 (a)は FZ 法の図解、(b)は典型的な FZ 法を行う機械の写真(SCW-1、Cannon Machinery、日本)。

設置されている。光学 FZ 法ではまず、多結晶の棒の先端を溶かして下の棒(種結晶)と上の棒(試料棒)の間に浮遊帯(floating zone)と呼ばれる溶融物を作る。その後試料棒と種結晶を下げて(あるいはミラーを上げて)浮遊帯を上を移動させ、溶融物を冷却すると種結晶で結晶が成長する。結晶成長の間、棒を同方向あるいは反対の方向に一定の速度で回転させる。操作者は、溶融物が途切れたり垂れたりすることのないようランプのパワーや試料棒の移動速度などの入力パラメータを制御する(種結晶の移動速度は結晶の成長速度と仮定され、たいてい結晶成長の間は固定される)。ランプのパワーが低すぎると種結晶と試料棒の先端が潰れて溶融物は簡単に分離する。一方でランプのパワーが高すぎると溶融物が表面張力による形を保つのが難しくなり、簡単に零れ落ちる。この状況で、操

作者は結晶の直径が最初は減少し(ネックングという)、その後徐々に必要なサイズまで大きくなるよう形作ることによって単結晶を作ろうとする。

操作者が溶融物の状態に従って入力パラメータを制御する理由は、試料棒や種結晶の状態や形状、クォーツ管、ハロゲンランプやその他の FZ 炉の構成要素のわずかな差によって全く同じ操作軌道でも得られる結果が異なるためである。入力パラメータに対する溶融物の状態の反応がほとんど同じであっても、溶融物の状態のわずかな差が堆積して結果は操作ごとに徐々に変化する。これは監視された状態に従って人間が手動で操作するほかの材料プロセスについても同様である。

FZ 法や他の監視された状態に従って手動で制御される材料プロセスの軌道は、アルゴリズムに反映すべき以下の特徴がある：

- (1) 実験の回数(モデル構築のための操作軌道)が限られている。
- (2) それぞれの軌道は似通っており、限られたパラメータ空間で予測するのが効果的である。

FZ 結晶成長などの材料プロセスは概して準備に長い時間がかかりビッグデータを生成するのは難しいため、サンプルとなるデータを効率的に用いたアルゴリズムが必要になる。一方で、これらの材料プロセスは特に大量生産において安定した操作軌道から大きく逸れない方が良いため、すべてのパラメータ空間で軌道を予測する必要はない。これらの材料プロセスの軌道の特徴を考慮すると、混合ガウス回帰は実演実験で示された周辺のパラメータ空間で効果的に非線形ダイナミクスを構築できることがロボットの駆動に関する学習で実証されているため、混合ガウス回帰を用いた軌道の予測が良い選択である。

3. 学習のための FZ 結晶成長軌道の模倣

FZ 結晶成長の実際のダイナミクスは不明であるため、予測は与えられたダイナミクスによる FZ 結晶成長のエミュレータを用いた仮想実験で確認した。与えられたダイナミクスが実際の法則と矛盾するかどうかは、予測の確認とは関連がないことを明記する。まずはランプのパワー(P)、試料棒の速度(u)と種結晶の速度(v)、を制御できる入力パラメータとして、溶融物の高さ(h)と成長した結晶の直径(d)を以下のダイナミクスに従って決定した：

$$h = aP \quad (1)$$

$$\frac{1}{2}h\dot{d} = vd_0 - ud \quad (2)$$

a は定数、 d_0 は試料棒の直径である。ここでは P は時間について独立であり、試料棒、溶融物、結晶の体積は 2次元の面積で表せると仮定している。(2)の左辺は溶融物の面積の時間微分であり、右辺は試料棒が溶融物に変化することによる溶融物の増加と溶融物が結晶に変化することによる溶融物の減少を表している。 h は時間について独立で P によって決定され d は時間に依存し方程式(2)によって決定される。一定値 P と u による FZ 結晶成長の状態は d と \dot{d} で表せる。図 2 は FZ 結晶成長とそのパラメータを図示したものと、GUI を用いたエミュレータプログラムのスクリーンショットである。このプログラムで FZ 結晶成長実験を模倣して入出力パラメータの軌道を得ることができる。これを事前に用いて、学習(訓練)に用いる軌道(#1~5)と実際の FZ 結晶成長実験のダイナミクスの確認(テスト)に用いる軌道(#6~10)の 10 個の軌道を手動で用意した。この研究では、試料棒の移動速度 v とランプのパワー P を 1.0 で固定した。図 3 は以下の結晶の形を目指した学習に用いる 5 つの軌道である。

(1) 最初の段階では($100 < t$)、結晶の直径が試料

棒と同じになるように保つ($d = 1.0$)。

(2) その後($100 < t < 300$)、ネッキングプロセスに対応して直径を 0.1 に減少させる。

(3) ネッキングプロセスの後、($300 < t < 500$)、直径を 1.0 に増やす。

(4) 結晶成長が終わるまで、結晶の直径を 1.0 に保つ($500 < t < 1000$)。

軌道はエミュレータプログラムを使って手動で準備されたためそれぞれ異なり、また上記の目標を完全には満たしていない。

4. 混合ガウス回帰によるダイナミクスの予測

FZ 結晶成長のダイナミクスの予測のため、ロボットの駆動の非線形ダイナミクスを効率的に学習したと報告されている混合ガウス回帰を用いた。ここでは FZ 結晶成長を仮定した混合ガウス回帰による軌道の予測を説明した。時間($t + 1$)での溶融物の状態である溶融物の高さ h と直径 d は $\mathbf{x}_{t+1} = (h_{t+1}, d_{t+1})$ で表されるとし、これは時間 t の溶融物の状態(\mathbf{x}_t)とランプのパワー、試料棒と種結晶の速度からなる入力 $\mathbf{y}_t = (P_t, u_t, v_t)$ で次のように決定されると仮定した：

$$\mathbf{x}_{t+1} = f(\mathbf{z}_t) \quad (3)$$

$$\mathbf{z}_t = (\mathbf{x}_t, \mathbf{y}_t) \quad (4)$$

関数 f は局所的な線形の関数として以下のように表した：

$$\mathbf{x}_{t+1} = \mathbf{F}_z \cdot \mathbf{z}_t + \mathbf{F}_0 \quad (5)$$

\mathbf{F}_z と \mathbf{F}_0 はそれぞれ係数行列またはベクトルである。線形回帰(LR)では、これらの係数は 2 乗和誤差が最小になるように \mathbf{z} から独立して決定される。しかし混合ガウス回帰では、これらの係数は混合ガウスモデルによって推定される。混合ガウスモデル

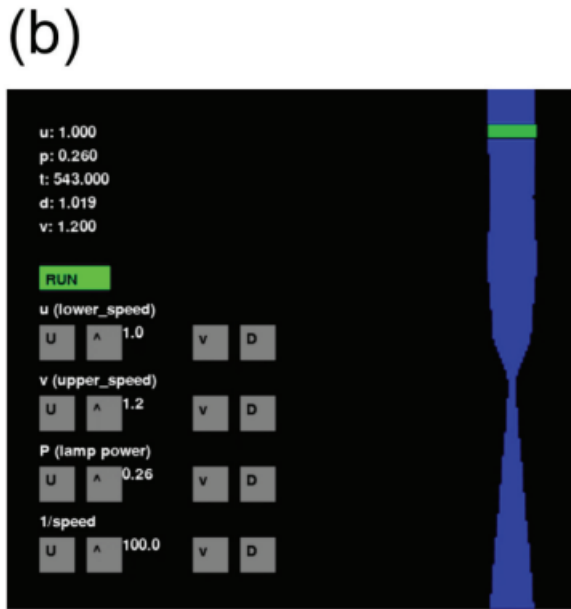
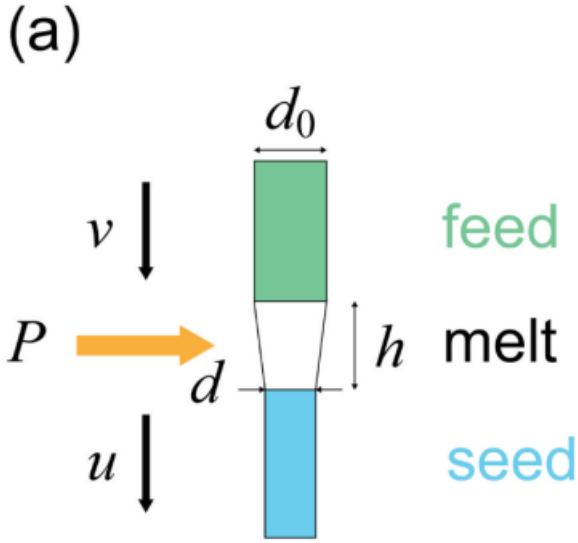


図 2 (a)は FZ 結晶成長モデルとパラメータの図解、(b)は GUI を用いたエミュレータプログラムのスクリーンショット。

は、実験軌道から構築された有限個のガウスカーネルの非線形結合で表される関数である。混合ガウスモデルは n 個のガウス要素の混合分布として、現在の状態と入力、実験軌道を通して得る次の時間の状態の同時分布 $P(\mathbf{z}_t, \mathbf{x}_{t+1})$ を定義する。 k 番目のガウス要素は $G(\mathbf{z}_t, \mathbf{x}_{t+1} | \boldsymbol{\mu}^k, \boldsymbol{\Sigma}^k)$ ($k = 1, 2, \dots, n$) で平均 $\boldsymbol{\mu}^k$ と共分散 $\boldsymbol{\Sigma}^k$ を用いて表せ、混合ガウス分布は以下ようになる：

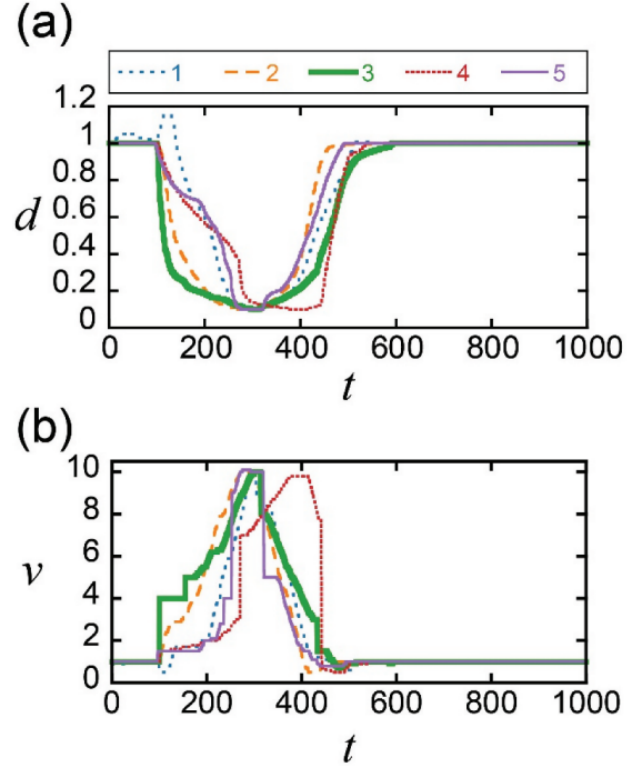


図 3 訓練用のエミュレータプログラムによって手動で準備された操作軌道。(a)は結晶の直径で(b)は試料棒の移動速度。

$$P(\mathbf{z}_t, \mathbf{x}_{t+1}) = \sum_{k=1}^n \pi_k G(\mathbf{z}_t, \mathbf{x}_{t+1} | \boldsymbol{\mu}^k, \boldsymbol{\Sigma}^k) \quad (6)$$

$$\boldsymbol{\mu}^k = (\boldsymbol{\mu}_{z_t}^k, \boldsymbol{\mu}_{x_{t+1}}^k) \quad (7)$$

$$\boldsymbol{\Sigma}^k = \begin{pmatrix} \boldsymbol{\Sigma}_{z_t}^k & \boldsymbol{\Sigma}_{z_t x_{t+1}}^k \\ \boldsymbol{\Sigma}_{x_{t+1} z_t}^k & \boldsymbol{\Sigma}_{x_{t+1}}^k \end{pmatrix} \quad (8)$$

π_k は事前に値を決める。混合ガウス分布は EM アルゴリズムで実験軌道にフィットさせることで最適化した。ここで $\boldsymbol{\mu}^k, \boldsymbol{\Sigma}^k, \pi_k$ の初期値を設定した。 $\boldsymbol{\mu}^k, \boldsymbol{\Sigma}^k$ の値には実験軌道の平均値と共分散を用い、 π_k は一様分布に従って設定した。 $\boldsymbol{\mu}^k, \boldsymbol{\Sigma}^k, \pi_k$ の値は、EM アルゴリズムによって実証実験軌道にフィットするように最適化された。事後確率分布 $P(\mathbf{x}_{t+1} | \mathbf{z}_t)$ から推定される平均値を用いて、関数 f を次のような線形ダイナミクスの非線形結合で推定できる：

$$\mathbf{x}_{t+1} = f(\mathbf{z}_t) = \sum_{k=1}^n h^k(\mathbf{z}_t)(\mathbf{F}_z^k \cdot \mathbf{z}_t + \mathbf{F}_0^k) \quad (9)$$

ただし

$$\mathbf{F}_z^k = \Sigma_{\mathbf{x}_{t+1}|\mathbf{z}_t}^k (\Sigma_{\mathbf{z}_t}^k)^{-1} \quad (10)$$

$$\mathbf{F}_0^k = \mu_{\mathbf{x}_{t+1}}^k - \mathbf{F}_z^k \mu_{\mathbf{z}_t}^k \quad (11)$$

$$h^k(\mathbf{z}_t) = \frac{P(\mathbf{z}_t | \mu_{\mathbf{z}_t}^k, \Sigma_{\mathbf{z}_t}^k)}{\sum_{k=1}^n P(\mathbf{z}_t | \mu_{\mathbf{z}_t}^k, \Sigma_{\mathbf{z}_t}^k)} \quad (12)$$

方程式(9)は、次の状態 \mathbf{x}_{t+1} はEM アルゴリズムによって最適化された混合ガウス分布と現在の状態 \mathbf{x}_t と入力 \mathbf{y}_t によって決定されることを示している。パラメータ探索の結果、今回の研究では FZ 結晶成長のダイナミクス予測に用いるガウス要素の数を $n = 50$ とした。

5. 結果と考察

エミュレータで準備した 10 の軌道のうち、5 つ (Train1~5) を用いて混合ガウスモデルを学習させ、他の 5 つ (Test1~5) を用いて確認を行った。図 4 は 5 つの実験軌道に最適化した混合ガウス分布を示している。混合ガウス分布は実験軌道を覆うように形成されており、実験軌道の近辺で実際のダイナミクスを再現するガウス分布によって予測されるダイナミクスを示唆している。幅が小さく訓練軌道に過度にフィットしているガウス要素があることを明記する。しかし、安定した操作軌道の近辺で正確に予測するモデルを作ることを目的としているためこの過学習は許容される。

図 5 は、混合ガウスモデル、線形回帰、ニューラルネットワークで予測した結晶の直径の軌道と、実際の軌道とのそれぞれの絶対誤差を示している。混合ガウスモデルは線形回帰、ニューラルネット

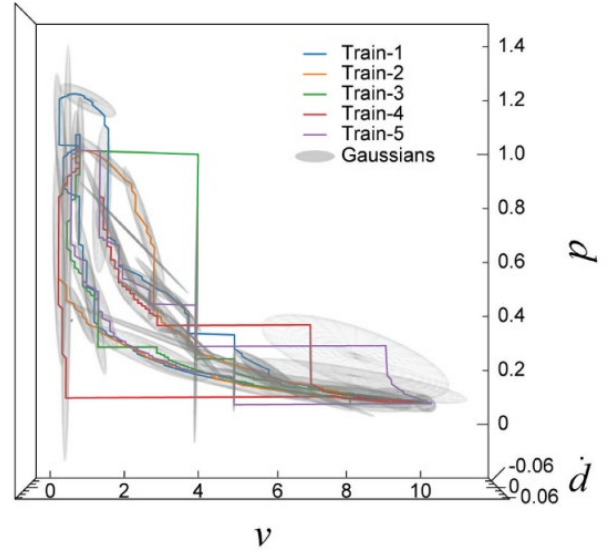


図 4 5 つの訓練軌道と (v, d, \dot{d}) のパラメータ空間の操作軌道に最適化された混合ガウス分布。楕円は混合ガウス要素の 1 標準偏差。

ワークよりもよく実際の軌道を再現している。結晶成長の観点では、混合ガウスモデルを用いた予測軌道は直径 d が $t = 400$ 頃に負の数になっている Test4 を除いては許容される。 d が負の数になることは、溶融物が分離することに対応する。ニューラルネットワークによる予測軌道の多くでは、 $t = 150$ 頃に d が減少した時や $t = 400$ 頃に d が増加した時に実際の値からそれる傾向がある。また、 d が急激に増加する傾向があり、これは単結晶の品質を低下させる。線形回帰による予測軌道は、混合ガウスモデルによるものより差が大きいように見える。

図 6 は混合ガウスモデルによる予測軌道の平均絶対誤差(MAE)を示している。他の方法と比較して、ガウス混合モデルはより正確に軌道を予測している。図 7 はあるタイムステップの値 (d, v) から予測された次のタイムステップの値 d の相対誤差を、訓練軌道とともに示している。相対誤差は方程式(2)から計算される次のタイムステップの値と混合ガウスモデルの差を用いて計算された。予測は十分に正確であり、相対誤差は訓練軌道の周辺では

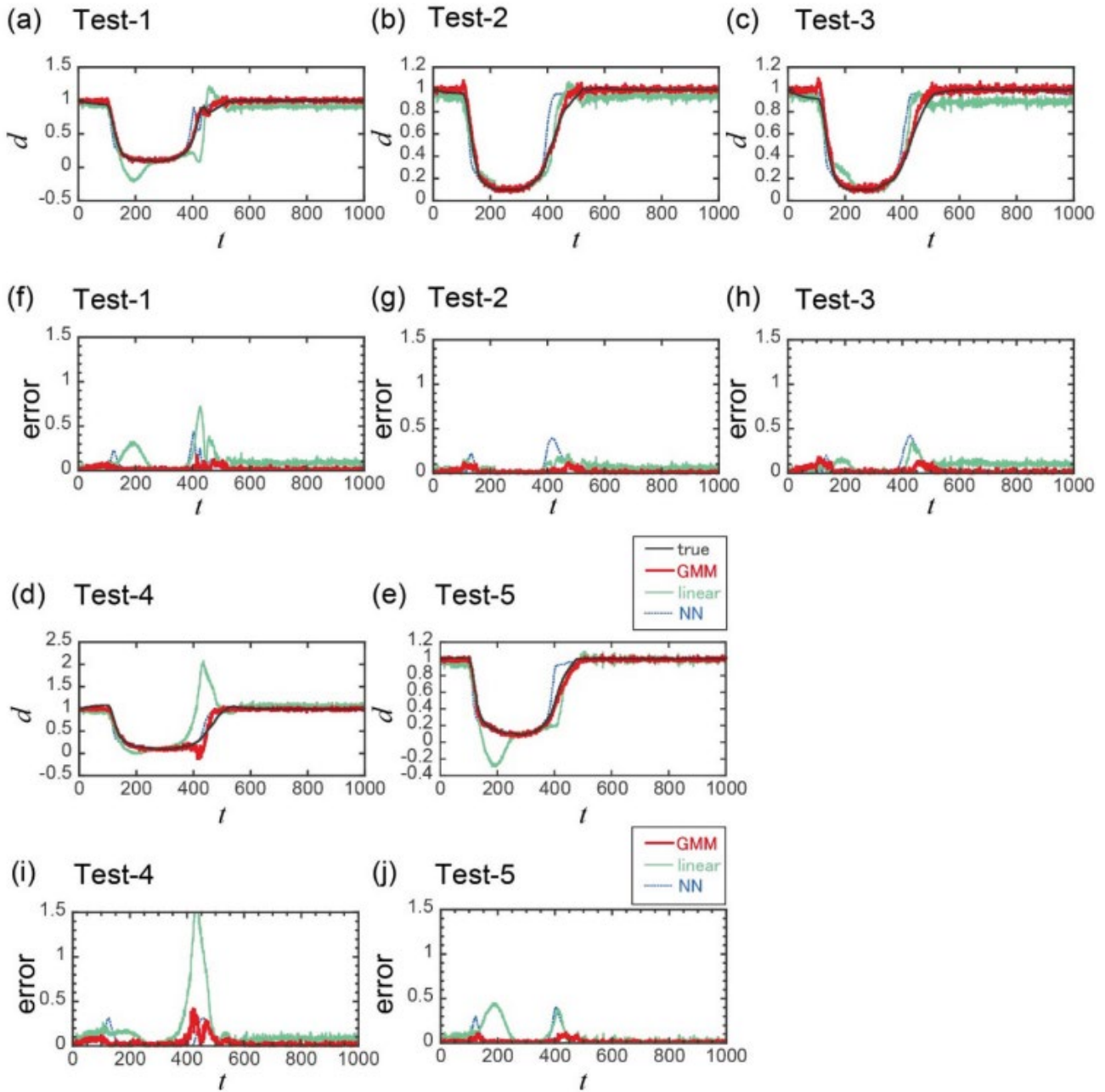


図 5 (a)-(e)は予測軌道、(f)-(j)は混合ガウス分布、線形回帰、ニューラルネットワークと実際の軌道の、結晶直径の絶対誤差。

0.01 以下である。FZ 結晶成長の操作軌道の非線形局所ダイナミクスは、混合ガウスモデルによって訓練軌道の周辺で正確に予測された。操作軌道が訓練軌道に近いかどうかを厳密に定義することは難しいが、直前の状態と混合ガウスモデルを用いて予測した軌道と実際の軌道を比較することで操作中のダイナミクスの予測の正確性を知ることが

できる。

今回の研究では、混合ガウス回帰が FZ 法の操作ダイナミクスを予測するのによい方法であると実証した。たった5つの操作軌道から、混合ガウスモデルは比較的高精度で FZ 結晶成長の実際の軌道を予測することができる。今回の結果はエミュレータプログラムによって作られた操作軌道を用

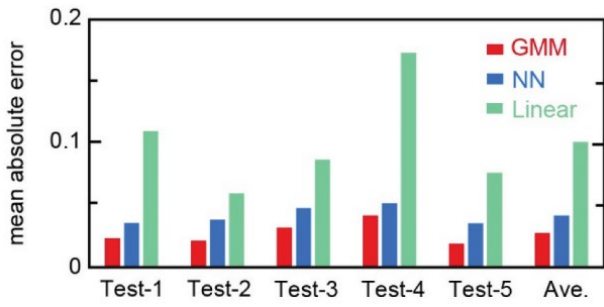


図 6 混合ガウスモデル、ニューラルネットワーク、線形回帰による予測軌道の平均絶対誤差。

プログラムによる実験と複雑で確率的な実際の材料プロセスの適用には未だ差があるが、今回の結果は FZ 結晶成長プロセスの実際にダイナミクス予測の実現可能性を示唆している。これは操作軌道の最適化と材料プロセスの自動制御につながる。

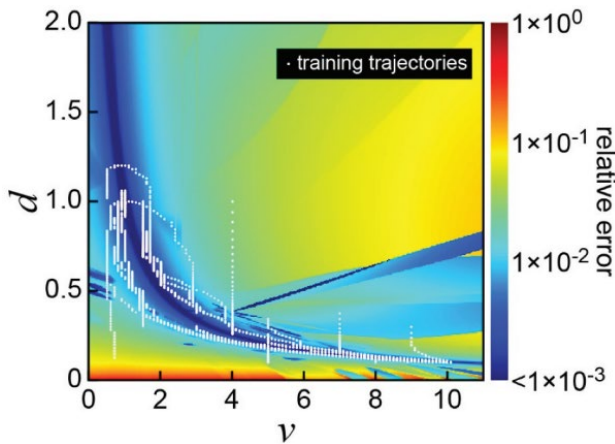


図 7 訓練軌道に収まる現在の値 v, d を用いて予測された次のタイムステップの値 d の相対誤差。

いて実証されたが、実際の FZ 結晶成長のダイナミクスもガウス混合モデルによってうまく予測されると考えられる。今回の実証は最適化された軌道による FZ 結晶成長を含む材料プロセスの自動化の第一歩である。

6. 結論

安定した操作軌道から大きくそれることを避けるべき材料プロセスの例として、FZ 結晶成長の予測を混合ガウス回帰を用いて行った。混合ガウス回帰は、5つの操作軌道からニューラルネットワークや線形回帰よりよく FZ 結晶成長プロセスのダイナミクスを予測する。単純なエミュレーション