

データ駆動型プラズマプロセス薄膜形成モデルの構築

九州大学 大学院システム情報科学研究所 電気電子工学専攻

鎌滝 晋礼

1. はじめに

現在、プラズマプロセスは大規模集積回路製造前工程の70%以上に用いられており、現代社会を支える基幹科学技術として発展している。特に半導体デバイスの微細化・高集積化・三次元化が進む中で、プラズマ CVD やエッチングなどのプラズマプロセスには、従来以上に高い精度と再現性が求められている。絶縁膜、保護膜、ハードマスクなどの各種薄膜に対して、膜厚、密度、屈折率、内部応力、水素含有量などを高精度に制御することは、最終的なデバイス性能や信頼性に直結するため、極めて重要である。

一方で、プラズマプロセス中では、電子、イオン、ラジカル、中性分子などが複雑に相互作用し、さらに基板表面での吸着、反応、脱離、イオンボンバーメントが同時に進行する^{1,3}(図1を参照)。そのため、外部パラメータから膜質を一意に理論予測することは容易ではなく、長年にわたり、所望の膜質を得るためのプロセス条件は実験的・経験的に探索されてきた。近年では、半導体構造の複雑化に伴い、最適条件を見いだすために1,000~10,000回規模の試行が必要とされることもあり、このことが研究開発の効率や製造コストの面で大きな課題となっている。

こうした状況に対し、近年、AI・機械学習を活用したデータ駆動型のプロセス解析・最適化が注目を集めている。機械学習は、多変量かつ非線形な関係をデータから抽出することに優れており、プラズマプロセスのような複雑系に対しても有効な手法となり得る。実際、熱プラズマプレーにおける飛行粒子特性予測⁴、水中プラズマ OES スペクトルからの導電率予測⁵、スパッタ成膜に対する統一的予測モデル^{6,7}など、既に複数の先行研究が報告されており、プラズマプロセスと機械学習の親和性は高いことが示されている^{1,2}。特に、装置への実装性が高く、多くの半導体製造装置で利用可能な発光分光計測を用いれば、成膜中に得られるプラズマ情報から膜質を予測し、さらにプロセス制御へ展開することが期待できる。

本研究では、このような課題に対して、単に発光情報を機械学習へ入力するのではなく、プラズマ物理・化学の理解と材料情報を結びつける新たな枠組みとして、PaMIS (Plasma and Material Information Science) の概念を創出した^{8,9}。PaMIS は、プラズマ診断情報を材料特性予測に資する物理的特徴量へ変換し、機械学習と統合することで、膜質予測とプロセス理解を両立させる考え方である。本研究では、TEOS/O₂/Ar 混合ガスを用いた PECVD-SiO₂ 成膜プロセスを対象として、プラズマ発光情報から膜質を予測するデータ駆動型プラズマプロセス薄膜形成モデルの構築を進めた。特に、発光スペクトルと機械学習を組み合わせることで、成膜速度や膜質に関与するプラズマ内部状態を抽出し、膜質予測へと結びつけることを目指した。

2. 課題と目的

本研究の背景にある本質的課題は、プラズマプロセスから膜質を理論的に同定する方法論が、非線形・非平衡・多成分反応系であるがゆえに明確に確立されていないことである。

TEOS/O₂/Ar プラズマのような多成分混合ガス系では、TEOS の解離、中間生成物の生成、酸素原子との反応、アルゴン励起種の関与、さらには基板表面での成膜・改質反応が同時に進行する。このため、たとえば特定の発光強度と成膜速度の間に一部の条件では相関が見られたとしても、圧力やガス流量比が変化するとその関係は容易に崩れ、普遍的な関係式を得ることが難しい。

申請者らは、予備検討として、TEOS/O₂/Ar プラズマにおける H α (656 nm) が示す高エネルギー電子情報と SiO₂ 成膜速度との間に、一部条件で正の相関があることを見いだしていた。しかし、それは限られた条件下で成立するものであり、広い実験条件にわたって一般化するには、より包括的な発光情報の利用と、物理的背景を考慮した機械学習モデルが必要であった。

そこで本研究では、以下を目的とした。第一に、TEOS/O₂/Ar プラズマの発光情報から、電子密度、イオン密度、成膜前駆体密度、電子温度、イオンエネルギーなどのプラズマパラメータを推定するモデルを構築すること。第二に、これらのプラズマパラメータと膜質、特に成膜速度および膜中水素量との関係を整理し、膜質予測モデルを構築すること。第三に、これらを統合し、発光分光計測に基づく普遍的なデータ駆動型薄膜形成モデルを確立することである。このモデルが確立されれば、半導体プラズマプロセスのハイスループット化、研究開発の迅速化、さらには製造ラインでの異常検知や歩留まり向上にもつながることが期待される。

加えて本研究では、発光情報、推定されるプラズマ内部状態、最終的な膜質という異なる階層の情報を一つの枠組みの中で統合的に扱うことを目指した。すなわち、PaMIS の考え方に基づき、外部条件から直接膜質を当てるのではなく、発光情報から物理的意味を持つ中間表現を構築し、それを介して膜質を理解・予測することを目的とした。この点に、本研究の方法論的な新規性がある。

3. 実験装置と機械学習モデル

対象としたプロセスは、TEOS/O₂/Ar 混合ガスを用いた PECVD による SiO₂ 薄膜形成である。実験には 13.56 MHz 高周波電力を用いた容量結合型プラズマ (CCP) 装置¹⁰を用い、Si

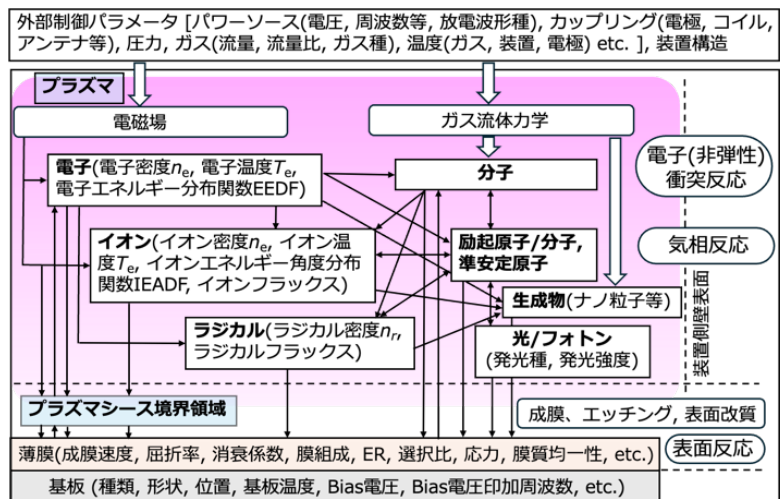


図 1 反応容器内のプラズマプロセスの概要図 (参考文献 1),3)を参照に申請者が作成

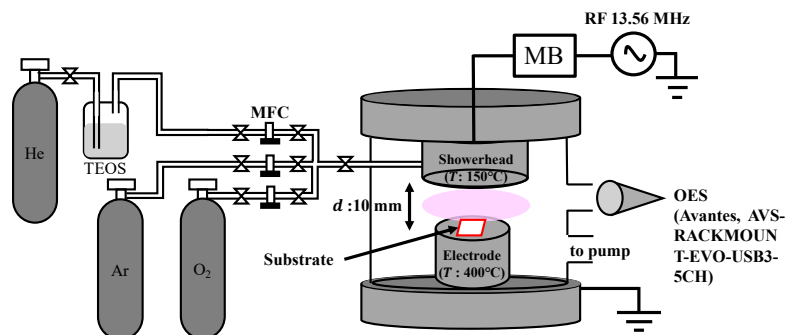


図 2 実験装置

基板上に SiO₂ 薄膜を成膜した(図 2)。プロセス条件としては、プラズマ電力、圧力、TEOS/O₂/Ar 混合比を変化させ、複数条件でデータを取得した。成膜後には、膜厚、成膜速度、必要に応じて屈折率や膜中水素量などの膜特性を評価した。また、成膜中にはプラズマ発光分光計測を行い、Ar、O、H、CO、OH など多くの発光ピークを取得した(図 3)。

本研究では、装置への実装性と汎用性を考慮し、基本的には OES による発光スペクトル情報を中核データとした。一方で、イオンエネルギーのように空間構造の影響が大きい量については、発光分布情報を補助的に用いる可能性も考慮した。すなわち、発光情報を単なる強度データとして扱うのではなく、必要に応じて空間分布や勾配などの情報も加味しながら、プラズマ内部状態に結びつける設計を採った。

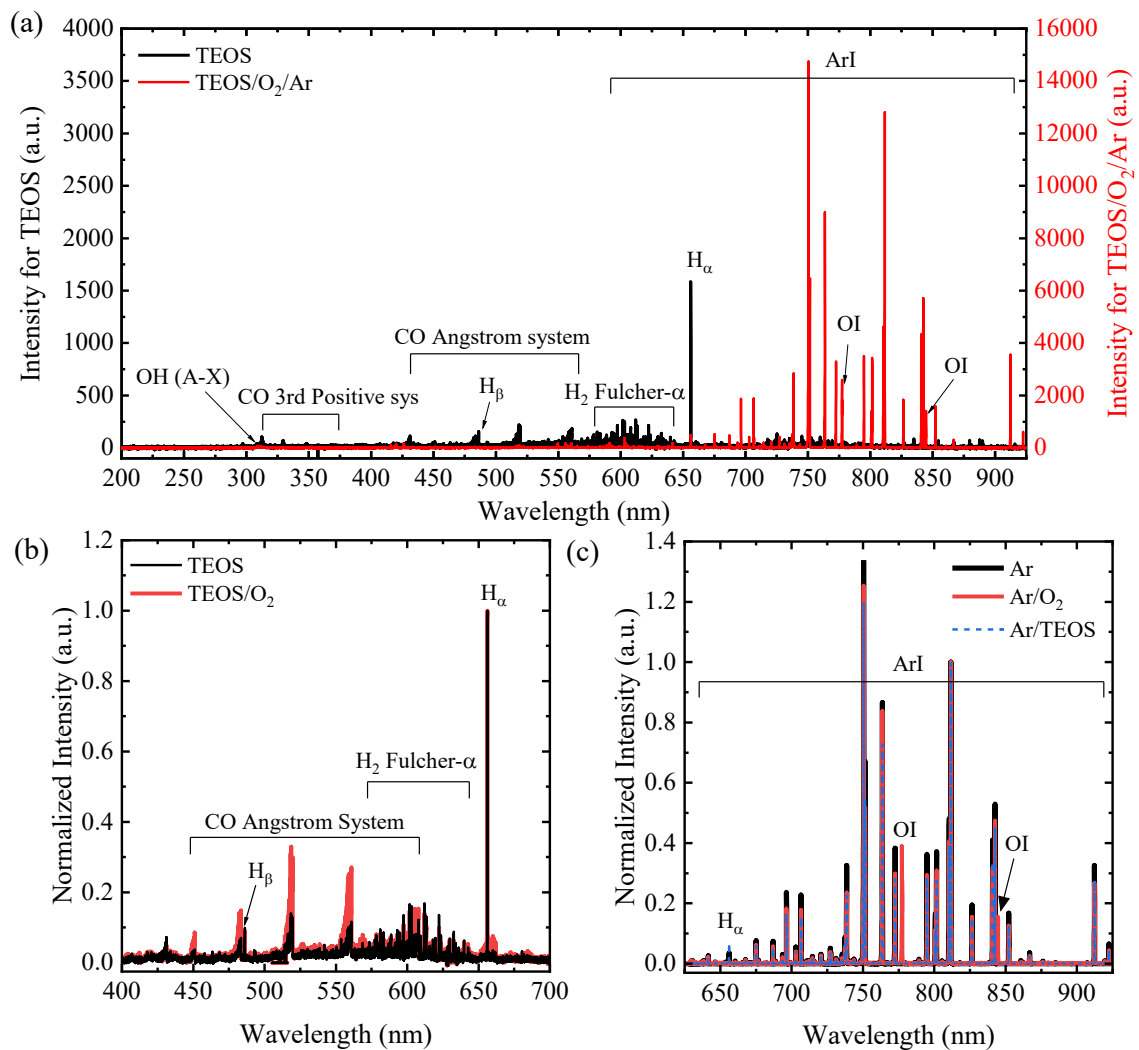


図 3 (a) 200–925 nm における TEOS および TEOS/O₂/Ar の発光スペクトル、(b) 400–700 nm における TEOS および TEOS/O₂ の発光スペクトル、(c) 625–925 nm における Ar、O₂/Ar、および TEOS/Ar の発光スペクトル

機械学習モデルとしては、少数サンプルに対しても比較的高い性能を示しやすいアンサンブル学習の一つである勾配ブースティング回帰木 (GBRT) ¹¹ を採用した。GBRT は、非線形性や特徴量間相互作用を扱う能力に優れており、プラズマ発光情報のような複雑な説明変数を入力とするのに適している。また、モデルの予測根拠を可視化するために、説明可能 AI 手法である SHAP¹² を併用した。SHAP により、各発光ピークや入力特徴量が予測結果にどの程度寄与しているかを定量的に評価し、単なる高精度予測にとどまらず、膜形成機構の理解へつなげることを目指した。

4. 研究結果と考察

まず、TEOS/O₂/Ar プラズマの OES データを入力とし、SiO₂ 成膜速度を予測する GBRT モデルを構築したところ、訓練データに対して高い予測性能が得られ、発光情報が成膜速度予測に有効であることが示された。一方で、単純に全ての発光強度をそのまま入力として用いた場合には、テストデータに対する予測の安定性に限界が見られた。これは、発光強度が単に種密度だけを反映しているのではなく、電子密度や電子温度、励起過程など複数の要因の影響を受けるためである¹³。すなわち、発光スペクトルをそのまま使うだけでは、成膜を支配する本質的因子が埋もれてしまう可能性があることが分かった。

そこで SHAP 解析を行った結果、成膜速度に寄与の大きい発光種として、OH、CO、OI、ArI、ArII などが抽出された(図 4)。これらは TEOS の解離、酸素反応、アルゴン励起種の関与、電子エネルギー分布などを反映していると考えられ、機械学習が成膜を支配する重要因子を抽出していることが示唆された。特に、H α のみでは説明しきれなかった条件依存性も、複数の発光種を総合的に扱うことで整理できる可能性が示された点は重要である。

さらに、本研究では、単に OES から直接膜質を予測するだけでなく、発光情報からプラズマパラメータを推定し、それを中間表現として膜質予測へ結びつける考え方を発展させた。対象としたプラズマパラメータは、電子密度、イオン密度、成膜前駆体密度、電子温度、イオンエネルギーである。これらは成膜速度や膜中水素量を決定づける主要因であり、たとえば成膜速度は成膜前駆体密度と酸素密度の関与が大きく、膜中水素量はイオンエネルギーやボンバーメント効果と関係が深いと考えられる。

この考えに基づき、機械学習で抽出された重要な発光特徴量を手がかりとして、成膜速度を成膜前駆体密度、酸素原子密度、酸素イオンフラックスの積として表す物理モデル¹⁴

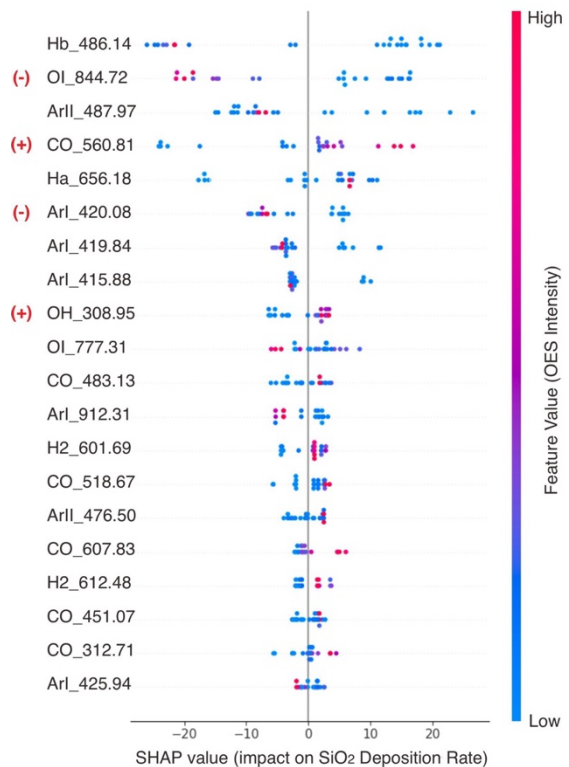


図 4 SiO₂ 成膜速度予測に対する OES 強度の SHAP サマリープロット。"+"および"- "は、各特徴量 (プラズマ種) が SiO₂ 成膜速度に対して正または負の相関を示すことを表す。

へと接続した。その結果、実測成膜速度と高い相関を示す整理が可能となり、単なる統計的相関を超えて、発光情報から物理的意味を持つ中間量を経由して膜質を予測する道筋を示すことができた。これは、外部条件と膜質をブラックボックス的に対応付ける従来のデータ解析とは異なり、プラズマ内部状態を介した説明可能なモデル構築に近づくものである。

この成果は、PaMIS の概念が有効に機能したことを示す代表的な結果である。すなわち、プラズマ発光情報から、成膜前駆体密度や酸素密度、イオンフラックスといった“材料形成に効く物理量”を抽出し、それを介して成膜速度や膜質を理解・予測するという枠組みを実証した。これは、単なる AI 利用ではなく、物理に立脚した特徴量設計を伴う情報科学的アプローチであり、PaMIS の核心に位置づけられる。

また、本研究の独創性は、成膜用かつ多成分混合ガスの複雑なプラズマを対象としている点にある。既往研究では、窒素単一ガスのような比較的単純な発光スペクトルを持つプラズマに対して機械学習を適用した例はあるが、TEOS/O₂/Ar のように多数のピークを持ち、中間生成物や複雑な解離反応を含む成膜用プラズマに対して、発光情報からプラズマパラメータや膜質を予測する研究はほとんど存在しない。本研究は、その意味で、実際の半導体製造に近い複雑系に対するデータ駆動型解析の先駆的事例と位置づけられる。

加えて、本研究で得られた知見は、SiO₂ 膜形成だけに限定されない。発光情報からプラズマ内部状態を推定し、それを膜質予測へつなぐという枠組みは、他の成膜系や、さらにはエッチング系への展開も可能である。実際、申請者らは a-C:H 薄膜形成など他のプラズマプロセスへも研究を拡張しており、本研究で構築した方法論がより一般的なプラズマプロセス最適化技術へ発展し得ることを示している。

さらに、本研究を通じて、PaMIS は単なる SiO₂ 成膜のための個別手法ではなく、プラズマプロセス全般に適用可能な概念として整理された。すなわち、診断情報、プラズマ内部状態、材料特性を統合し、プロセス設計からインライン制御へつなぐ包括的な方法論として位置づけられるようになった点も、本研究の重要な成果である。

本研究を通じて明らかになったのは、発光分光計測のような比較的簡便かつ非侵襲な診断手法であっても、機械学習と組み合わせることで、従来は直接把握が難しかったプラズマ内部

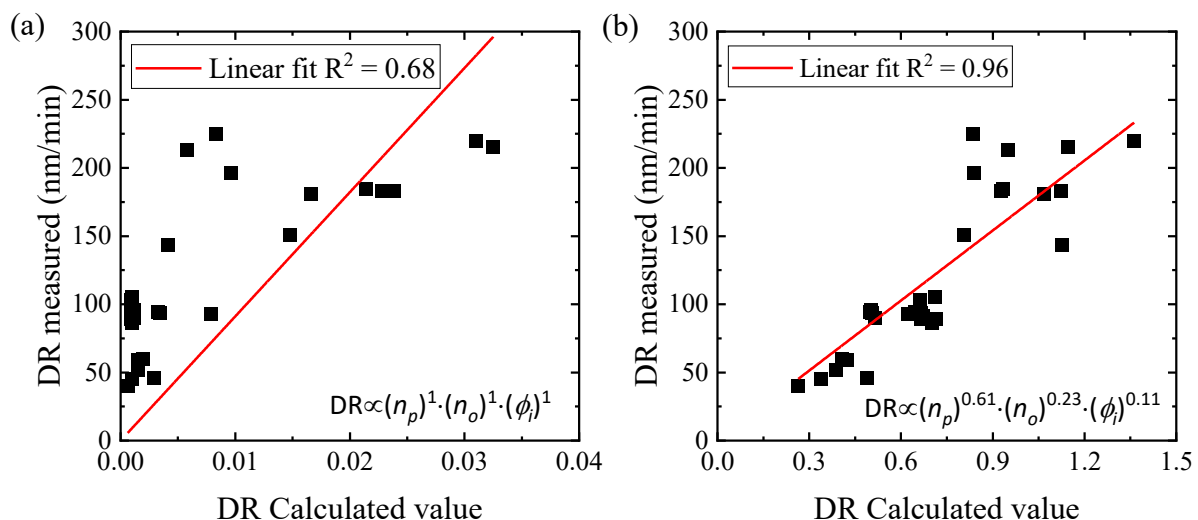


図 5 PECVD により作製した SiO₂ 薄膜における、物理モデルに基づく計算成膜速度と実測成膜速度との相関。(a)各物理量の係数(重み)を 1、(b)各物理量の係数(重み)を重回帰分析により導出

状態や膜形成機構に迫ることができるという点である。これは、プロセス開発の迅速化、試行回数の削減、省エネルギー化、さらには製造ラインにおける異常検知や原因解析への応用可能性を示している。

5. まとめ

本研究では、TEOS/O₂/Ar 混合ガスを用いた PECVD-SiO₂ 成膜プロセスを対象として、プラズマ発光情報から膜質を予測するデータ駆動型プラズマプロセス薄膜形成モデルの構築を進めた。成膜プロセスは非線形・非平衡・多成分反応系であり、従来は外部条件の試行錯誤に頼った最適化が主流であったが、本研究では、OES によるプラズマ診断と機械学習を組み合わせることで、この課題に新しい方向性を与えた。

具体的には、GBRT と SHAP を用いて、発光スペクトルから成膜速度や関連するプラズマパラメータを予測し、さらに発光情報を物理的意味を持つ中間量へ結びつけることで、説明可能性を持つ膜質予測モデルの基盤を構築した。特に、複雑な TEOS/O₂/Ar 混合プラズマを対象とした点に本研究の独創性があり、実際の半導体製造プロセスに近い条件でデータ駆動型モデルを構築した意義は大きい。

加えて本研究では、プラズマ診断情報と材料特性予測を統合する新たな概念として PaMIS (Plasma and Material Information Science) を創出し、その有効性を SiO₂ 成膜プロセスにおいて実証した。PaMIS により、プラズマ発光情報から物理的意味を持つ特徴量を構築し、それを介して膜質や成膜速度を理解・予測するという、新しい研究方法論を示すことができた。これは、今後の成膜プロセスのみならず、エッチングや他のプラズマ材料プロセスへ展開可能な基盤概念である。

本成果により、プラズマパラメータと膜質の関係則の明確化、発光情報に基づく膜質予測手法の提案、さらには研究開発や製造ラインでの活用可能性が示された。今後は、他の成膜系やエッチング系への展開を進めるとともに、日本の半導体関連企業との共同研究や社会実装へつなげることで、半導体プラズマプロセスの高度化と高効率化に貢献することが期待される。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、公益財団法人 天野工業技術研究所(2024 年度)から多大なご支援を頂きました。ここに記して謝意を示します。

参考文献

- 1) K. Ishikawa, K. Koga, and N. Ohno. *Plasma*, **7**, 1, 160 (2024).
- 2) K. Kambara, *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **62**, SA0803 (2022).
- 3) R. Itatani, *Plasmas & Ions*, **1**, 1, 37 (1998).
- 4) B. Kirsten, *et al.* *J. Therm. Spray Technol.*, **30**, 7, 1751 (2021).
- 5) C.-Y. Wang, T.-S. Ko, and C.-C. Hsu. *Plasma Processes and Polymers*, **18**, 12, 210096 (2021).
- 6) T. Gergs, Tobias, B. Borislavov, and J. Trieschmann, *Journal of Vacuum Science & Technology*, **B 40**, 012802 (2022).

- 7) F. Krüger, T. Gergs, and J. Trieschmann, *Plasma Sources Science and Technology*, **28**, 3, 035002 (2019).
- 8) S. W. Fitriani, K. Kamataki, Y. Yamamoto, Y. Sato, Y. Kurosaki, K Koga, M. Shiratani, *Surface and Coatings Technology*, **504**, 132029 (2025).
- 9) S. W. Fitriani, K. Kamataki, *et al.*, *JJAP*, under Review.
- 10) K. Kamataki, et al., *AIP Adv.* **12**, 0852220 (2022).
- 11) J.H. Friedman, *The Annals of Statistics*, **29**, 1189 (2001).
- 12) S. Lundberg, S.-I. Lee, *A Unified Approach to Interpreting Model Predictions*, (2017).
<http://arxiv.org/abs/1705.07874>.
- 13) T. Nakamura, *J. Plasma Fusion Res.* **95**, 3, 132 (2019).
- 14) H. Li, *et al.*, *Journal of Vacuum Science & Technology B*, **41**, 022208 (2023).