

(技術資料)

機械学習による酸化物半導体薄膜評価の高精度化

Improvement in Evaluation Accuracy of Oxide Semiconductors by the Machine Learning

岸 智弥*¹ (博士(工学))

Dr. Tomoya KISHI

細川佳之*²

Yoshiyuki HOSOKAWA

Microwave-detected photoconductance decay (μ -PCD) is a technique for evaluating the quality of oxide semiconductors without fabricating TFTs. Its evaluation parameters, however, are set on the basis of the electronic structure of IGZO, a common material in the field of FPDs, and may cause variation in evaluation results depending on the materials and processes. Hence, a data analysis based on machine learning was performed to improve the accuracy of μ -PCD in the evaluation of oxide semiconductors. A prediction model was created by multi-regression analysis with μ -PCD parameters as explanatory variables and V_{th} shift under NBTIS as target variables. The results revealed that the prediction accuracy could be improved by adopting multiplications of μ -PCD parameters as explanatory variables and by increasing the process steps for μ -PCD measurement.

まえがき = 近年、ディープラーニングなどの機械学習手法の高度化や計算機の発達、ビッグデータの一般化により、人工知能 (Artificial Intelligence, 以下 AI という) を活用するデータ科学が注目されている。AI はすでにインターネットの検索システムや言語翻訳などに応用されており、今後も医療や気象予報、社会インフラ、研究開発など幅広く活用されていくと見込まれる技術である。とくに、後述するデータベースの構築が可能になってきたことから、材料開発にデータ科学を用いるマテリアルズ・インフォマティクス (Materials Informatics, 以下 MI という) への期待が高まっている^{1)~5)}。MI はオバマ政権の下、2011年に立ち上げられた Materials Genome Initiative²⁾ に端を発し、その後ヨーロッパや中国など世界中で国家事業として位置づけられている。他国に後れをとりながらも、日本においても2015年に国立研究開発法人物質・材料研究機構を拠点としたプロジェクト (MI²I)³⁾ が発足した。大量の材料データが得られるコンビナトリアルケミストリ (Combinatorial Chemistry) や、実験のパラメータを必要とすることなく物質の電子状態を計算する第一原理計算によって、統一的な材料データベースの構築が可能となってきている。

従来の材料開発では、有効な添加元素の候補の選定において研究者の勘に頼る部分が大きかった。しかし MI では、このような材料データを解析することによって材料組成を抽出する。米国マサチューセッツ工科大学と韓国サムスンの研究チームはすでに、MI を用いて材料開発を進めている。この研究チームは、日本の自動車メーカーが10年近くかけて開発したりチウムイオン電池の固体

電解質と同じ材料を短期間で発見し、大きなインパクトを与えた⁴⁾。当社でも、鉄鋼やアルミなどの構造材料のほか、半導体や電池といった機能材について MI を用いた材料開発に向けた取り組みを開始している。

本稿では、機能材に関する MI による取り組みの一例として、マイクロ波光導電減衰 (Microwave Photo Conductivity Decay, 以下 μ -PCD という) 法による酸化物半導体薄膜評価において、機械学習によって薄膜トランジスタ (Thin Film Transistor, 以下 TFT という) 特性の予測精度を改善した結果を報告する。

1. μ -PCD 法による酸化物半導体薄膜の評価における課題と機械学習導入の必要性

μ -PCD 法は、半導体試料中の微量の欠陥や汚染を、電極付けなどを必要とすることなく非接触、非破壊で高感度に評価できる手法である。シリコンインゴットやシリコンウエーハの代表的な管理技術として利用されている評価手法である⁶⁾。近年、本手法がフラットパネルディスプレイ (Flat Panel Display: FPD) に用いられる酸化物半導体の膜質評価に適用可能であることが分かり、注目されている^{7), 8)}。

μ -PCD の測定原理を図 1 に示す。半導体にレーザを照射すると過剰キャリア (電子, 正孔) が生成され、時間の経過とともに再結合して消滅する。消滅するまでの平均的寿命はライフタイムと呼ばれ、試料の物理的特性 (欠陥の単位, 密度など) によって決まる時間である。過剰キャリアの生成は試料の抵抗率を減少させるため、同位置に照射しているマイクロ波の反射率は過剰キャリア

*¹ 技術開発本部 応用物理研究所 *² コベルコシステム(株)

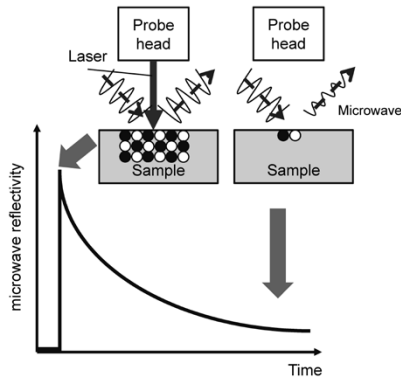


図1 μ-PCD法の測定原理
Fig. 1 Measurement principle of μ-PCD method

アの密度に比例して変化する⁶⁾。そのため、図1に示したような減衰曲線が観測される。このようにμ-PCDは、マイクロ波の反射率の時間変化から試料の膜質を反映するライフタイムを測定することのできる方法である。

In-Ga-Zn-O (IGZO) に代表される酸化物半導体はフラットパネルディスプレイにおける次世代半導体材料として期待されている。しかしながら、信頼性、とくに光照射+負バイアスストレス (Negative Bias Thermal Illumination Stress: NBTIS) 下におけるTFTのしきい値電圧 (V_{th}) シフトの改善が課題となっている⁹⁾。 V_{th} シフトを評価するにはTFTを作製してストレス試験測定を行う必要がある。いっぽう、μ-PCDはTFTを作製することなく特性を予測できるため、酸化物半導体の開発を加速させることが可能である。

酸化物半導体では、そのバンドギャップ中に不純物に起因して局在準位ができ、移動度や V_{th} シフトなどのTFT特性に影響を与える。酸化物半導体の電子状態は、一般的には図2に示すような裾状準位と浅い局在準位、深い局在準位で議論される。このうち、浅い欠陥準位はNBTISにおけるTFTの V_{th} シフトに影響することが分かっている。浅い欠陥準位の増減は、μ-PCD信号において比較的遅い時間領域において観測される⁸⁾。当社ではこれまで、μ-PCDの減衰曲線に見られる遅い減衰と V_{th} シフトとの関係を見出し、 V_{th} シフトに相関する τ_2 などの評価パラメータを開発した。そして、(株)コベルコ科研LEO事業本部が製造・販売しているμ-PCD装置に搭載してきた^{7), 8)}。

しかし、これら評価パラメータはIGZOの電子状態をベースに設計しているため、材料組成が変わった場合に

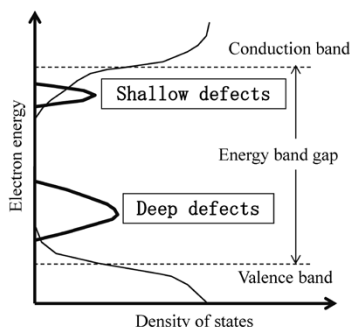


図2 酸化物半導体の代表的な状態密度
Fig. 2 Typical density of states for oxide semiconductors

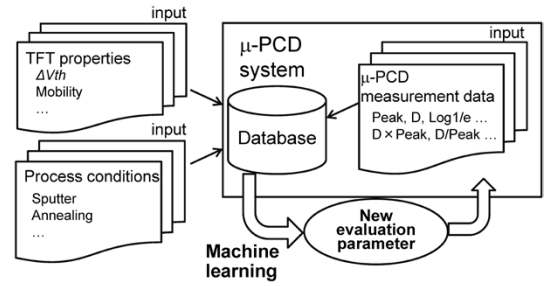


図3 機械学習によるμ-PCD評価パラメータ抽出システム
Fig. 3 System for extracting evaluation parameter of μ-PCD by machine learning

は V_{th} シフトに対するばらつきが大きくなる。従来、このような場合には物理解析によってプロセス条件の異なる複数のサンプルの電子状態を調べ、TFT特性と相関する評価パラメータを新たに抽出し、TFT特性の良否に関する基準を設定する必要があった。とくに、装置ユーザが材料を変更した場合には、ユーザとの間でのサンプルやμ-PCD、TFTデータの交換が必要となる。さらに、ユーザへのサンプル条件のヒヤリングも必要となり、パラメータの設定に多くの時間を要していた。

そこで当社は、TFT特性に相関するパラメータを自動的に抽出するシステム(図3)の開発を検討している。本システムでは半導体中の欠陥に関する物理モデルを考慮する^{6), 7)}と同時に、TFT特性の評価に機械学習手法を適用する。これによって、TFT特性、プロセス条件およびμ-PCDの減衰曲線を入力することによって所要のパラメータを自動的に抽出することができる。

装置ユーザが本システムを使用することによって材料組成変更時における装置の停止時間が低減できることに加えて、高精度予測モデルによるTFT製造歩留りの向上が期待できる。また、本システムを量産ラインの装置ソフトに搭載することによってμ-PCD装置の付加価値向上が期待できる。

本システムの開発にあたっては、パラメータ抽出の予備検討としてまず既存パラメータの組み合わせによる高精度予測モデルを構築した。次章以降でその概要を述べる。

2. TFTの V_{th} シフトおよびμ-PCD減衰曲線データの取得方法

図4に示す製造工程で実際にガラス基板上に作成したTFTに対してストレスを2時間印加し、そのときの V_{th} シフトを測定した。TFTの構造としては、半導体層の上に保護膜としてSiO₂などのエッチストップ層(ESL)を形成するESL-TFT(図5(a))、およびESLを形成しないバックチャネルエッチ(BCE)-TFT(図5(c))がある。

μ-PCDでは、マイクロ波をプローブとして使用している(図1)。図5の緑色部分で示すように、酸化物半導体の測定領域に金属があるとマイクロ波が過剰に反射されるため、金属電極のあるTFTを直接測定することはできない。そこで、μ-PCD減衰曲線データを取得するために図5(b)および図5(d)に示すようなμ-PCD

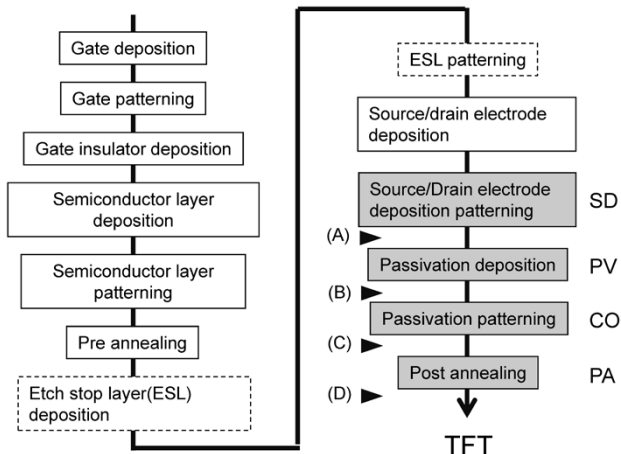


図4 TFT作製プロセス
Fig. 4 Flow of fabricating TFT

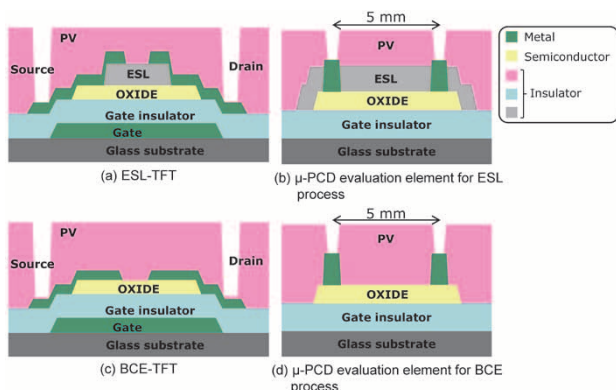


図5 TFTおよびμ-PCD評価素子の断面

Fig. 5 Cross-sectional schematics of TFT and μ-PCD evaluation elements

の測定用評価素子を作製した。測定用評価素子では、TFTと比較して測定領域内から金属層を排除している点以外はTFTのチャネル領域と同じ処理が施されるようにしている。

μ-PCD装置に用いられているマイクロ波導波管サイズは短辺で2.5 mmであるため、この実験で作製した5 × 5 mmのサイズの素子で測定が可能である。

3. 機械学習に用いるデータセットの作成方法

機械学習における目的変数としてNBTISにおける V_{th} シフトの値を用いた。また、説明変数として各工程におけるμ-PCD減衰曲線から算出される評価パラメータを用い、 V_{th} シフトの値と合わせて一つのデータセットとした。μ-PCDの評価パラメータは、減衰曲線のピーク値、ピーク値からμ-PCDの信号が $1/e$ になるまでの時間、いわゆる $1/e$ ライフタイム値 τ_1 、さらに $1/e$ から $1/e^2$ までの時間である遅い領域の減衰曲線の傾きから算出される τ_2 値、および D 値とした(図6)。前述のように、μ-PCDはサンプルのバンドギャップ中の欠陥準位に起因する電子状態を観察している。また、ピーク値や $1/e$ ライフタイムは深い欠陥準位、 τ_2 や D 値は浅い欠陥準位というように異なるエネルギー範囲の電子状態を反映している。いっぽう、 V_{th} シフトに関連する欠陥準位のエネルギーは材料によって異なる。そのため、μ-PCDの評価パラメータを組み合わせることによって材

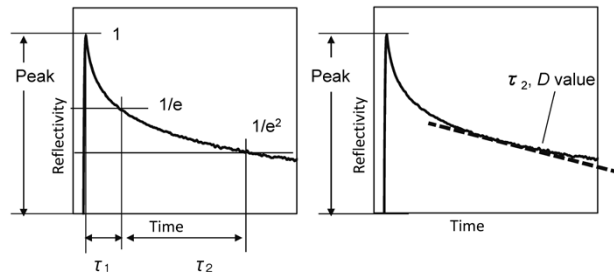


図6 μ-PCDの減衰曲線と評価パラメータ

Fig. 6 Decay curve and valuation parameters measured by μ-PCD method

料に適切なエネルギー準位での評価ができると考え、これらを用いてデータ解析を行った。

またμ-PCDでは、半導体層の上下に絶縁体の保護膜がある場合でも減衰曲線の測定が可能である。そのため、半導体層の成膜工程だけでなく、その後の工程である保護膜形成後やアニール後でのμ-PCD減衰曲線の取得が可能である。すなわち、図4の各工程において測定したデータを機械学習に用いることができる。ここでは、このうちのESL-TFTおよびBCE-TFTに共通するソース・ドレイン電極形成(SD)以降の4つの工程(SD, PV, CO, PA)における測定データを用いた。

機械学習に用いたデータセットの数は、ポストアニール後の(D)における測定値のみを説明変数とした場合は289個、ソース・ドレイン電極形成後からポストアニール後までの各工程(A)~(D)での測定値を説明変数とした場合は180個である。

4. データ解析結果

4.1 ESL-TFT

ESL-TFTのそれぞれのパラメータについて、 V_{th} シフトとの相関を調べた。その結果、ポストアニール(PA)後の D 値($D(PA)$)が相関係数0.441と、他のパラメータに比べて高い相関を示すことが分かった。 $D(PA)$ と V_{th} シフトが相関することはこれまで物理解析から得た結果と同様であり、妥当な解析結果であるといえる。

図7に $D(PA)$ と V_{th} シフトの関係を示す。図から ΔV_{th} は D に対して $D=1.25$ 付近に極値を持つ2次関数的な振る舞いを示していることが分かる。そのため、次の機械学習による予測モデルの作成においては D の2次式($D-1.25$)²をモデルに組み込んで解析を行った。

つづいて、TFT特性の予測モデルを作成するために、上記ESL-TFTのデータに対して機械学習を行った。機械学習の手法のうち、重回帰分析では係数減少法によって説明変数の取捨選択を行っている。 D 値を説明変数にとって解析した結果を図8に示す。横軸が実際のTFT測定値であり、縦軸が回帰モデルによる予測値である。すなわち、全ての点が破線(勾配が1の直線)に密集するほど良い予測モデルであるといえる。定量的には、予測式の当てはまりの良さを表す自由度調整済 R^2 値および平均絶対誤差(Mean Absolute Error, 以下MAEという)で評価した。 R^2 値は1に近いほど、またMAEは小さい値ほど良いモデルであるといえる。 D 値のみを用

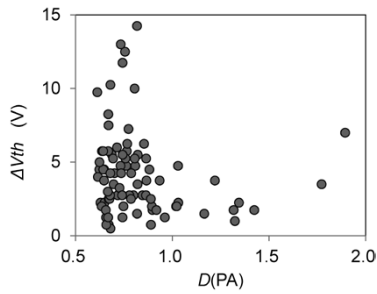


図7 ESL-TFTにおける $D(\text{PA})$ と V_{th} シフトの関係
Fig. 7 Relationship between $D(\text{PA})$ and V_{th} shift for ESL-TFTs

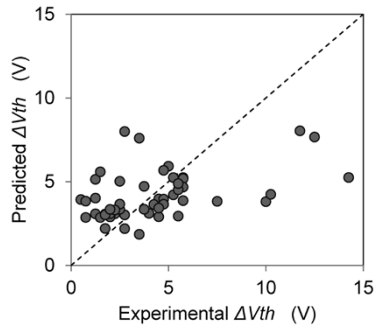


図8 ESL-TFTにおける V_{th} シフトの予測 (線形モデル)
Fig. 8 Prediction of V_{th} shift for ESL-TFTs by linear model

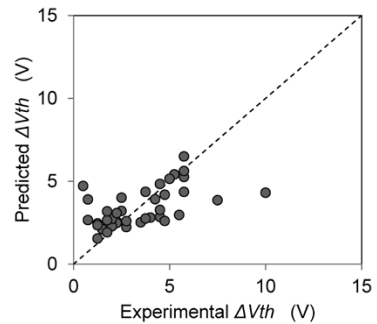


図9 ESL-TFTにおける V_{th} シフトの予測 (2次モデル)
Fig. 9 Prediction of V_{th} shift for ESL-TFTs by quadratic model

表1 ESL-TFTにおける予測モデルと R^2 値およびMAE

Table 1 Prediction model for ESL-TFT, adjusted R^2 value and MAE

Model	Adjusted R^2	MAE (V)
Linear model	0.121	1.94
Quadratic model	0.171	1.18

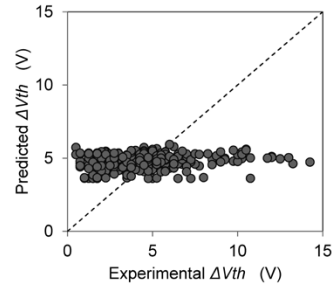
いた線形モデルではばらつきが大きくなっており、 R^2 値は0.121、MAEは1.94 Vとなった。 V_{th} シフトの実測値は大きくても15 V以下であり、MAEは1 V以内であることが求められるため、線形モデルでは不十分であった。

そこで、 D 値の2次式も説明変数に加えた2次モデルで重回帰分析を行った。2次関数の頂点は、個別のパラメータに関して最も相関の良い値とした。 V_{th} シフトの予測値と実測値の関係は図9のようになり、線形モデルの図8よりばらつきが小さくなっている。表1に示すようにESL構造のTFTでは、 R^2 値は0.171であるがMAEは1.18 Vと、2次式を導入することによって改善することができた。

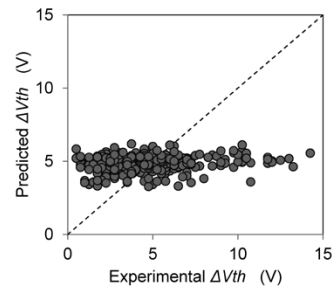
4.2 BCE-TFT

BCE構造のTFTについても V_{th} シフトの予測モデルが作成可能か検証した。前述のESL-TFTのデータにポストアニール後のBCE-TFTデータを追加し、 D 値の2次式も加えた重回帰分析を行った。図10 (a)に示すとおり、ESLのみの場合に比べて、予測精度がかなり悪くなっており、 R^2 値は0.028、MAEは2.02 Vである。

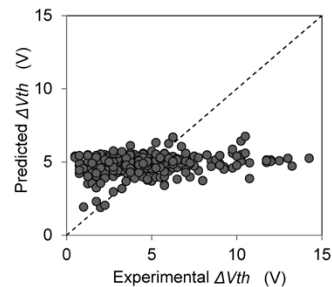
BCEプロセスでは、ポストアニール後における μ -PCD信号の減衰が速くなりすぎる傾向があるため、ノイズ成分の影響が大きくなっていることが原因の一つとして考えられる。そのため、 D 値のほかにノイズの影響を比較的受けにくいピーク値や τ_1 などを説明変数に加えたが、図10 (b)に示すように精度はあまり改善されなかった。さらに、 D 値に対し、ピーク値、 τ_1 などのパラメータの積、商をとったものを説明変数に加えた。すなわち、 $D \times \text{ピーク}$ 、 $D / \text{ピーク}$ 、 $D \times \tau_1 \cdots$ である。 D 値は、浅い欠陥準位に対応する遅い時間領域の減衰曲線から算出される。材料組成によっては V_{th} シフトに関係しない準位がバンドギャップ中に形成され、それが μ -PCDの測定結果に影響するためばらつきの原因となる



(a) 説明変数: $D(\text{PA})$
(a) Explanatory variable: $D(\text{PA})$



(b) 説明変数: $D(\text{PA})$, ピーク(PA), $\tau_1(\text{PA}) \cdots$
(b) Explanatory variable: $D(\text{PA})$, Peak(PA), $\tau_1(\text{PA}) \cdots$



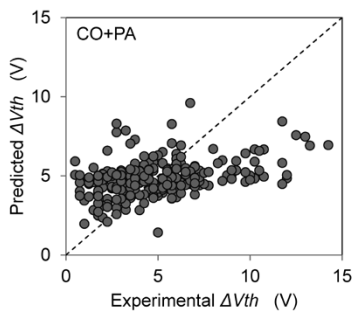
(c) 説明変数: $D(\text{PA})$, ピーク(PA), $\tau_1(\text{PA}) \cdots D \times \text{ピーク(PA)}$, $D / \text{ピーク(PA)} \cdots$
(c) Explanatory variable: $D(\text{PA})$, Peak(PA), $\tau_1(\text{PA}) \cdots D \times \text{Peak(PA)}$, $D / \text{Peak(PA)} \cdots$

図10 ESL-TFT, BCE-TFTにおける V_{th} シフトの予測
Fig. 10 Prediction of V_{th} shift for the ESL-TFTs and BCE-TFTs

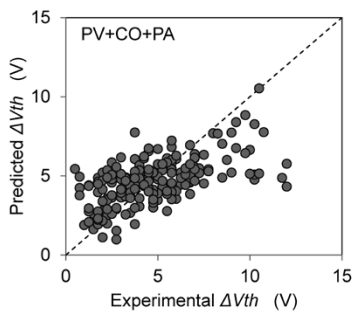
ことが考えられる。そこで、深い欠陥準位を示すピーク値などでこれを補正することを考えた。その結果を図10(c)に示す。このときの R^2 値は0.048となった。表1で示したESL-TFTでの2次モデルによる R^2 値0.171と比べても低い値である。これは、BCE-TFT特性は最終工程のポストアニールのみでは説明できないことを示している。実際、BCE-TFTでは保護膜形成後のアニールがTFT特性の改善に有効であることが分かっており¹⁰⁾、今回の解析結果もそれを支持していると考えられる。

表2 説明変数に用いた工程と R^2 値およびMAE
Table 2 Processes for explanatory variable, adjusted R^2 value and MAE

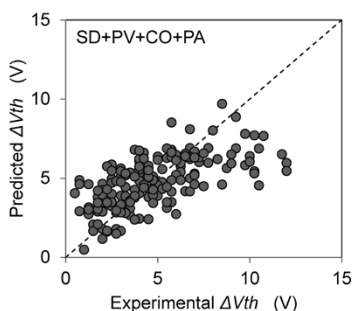
Process	Adjusted R^2	MAE (V)
PA	0.048	1.99
CO+PA	0.132	1.95
PV+CO+PA	0.276	1.57
SD+PV+CO+PA	0.330	1.54



(a) 説明変数に用いた工程: CO+PA
(a) Processes for explanatory variable: CO+PA



(b) 説明変数に用いた工程: PV+CO+PA
(b) Processes for explanatory variable: PV+CO+PA



(c) 説明変数に用いた工程: SD+PV+CO+PA
(c) Processes for explanatory variable: SD+PV+CO+PA

図11 説明変数に用いた工程と V_{th} シフトの予測
Fig.11 Processes for explanatory variable and prediction of V_{th} shift for ESL-TFTs and BCE-TFTs

そこで、説明変数として、ポストアニールより前の工程での測定データを加えて同様に予測モデルを作成した。解析に用いた工程と R^2 値を表2に、また予測値と実測値の関係を図11に示す。ソース・ドレイン電極形成(SD)からポストアニール(PA)までの4工程(SD, PV, CO, PA)の測定値を説明変数に加えることで R^2 値が0.330、MAEは1.54 Vとなった。目標値には及ばないものの、TFT特性に影響が大きい工程の説明変数を増やしていくことで予測精度を向上させ得ることが分かった。

むすび=酸化半導体のTFT特性について、 μ -PCDの測定結果を説明変数として、またNBTISにおける V_{th} シフトを目的変数として機械学習的手法により解析した。その結果、ESL-TFTにおいてポストアニール後の D 値が有効なことが分かった。また、BCE-TFTも含めたデータでは、ポストアニール後の D 値だけでなく、ピーク値など他のパラメータおよび前工程での測定結果が重要であると分かった。

これらの知見は当社が実験で培ってきたものと矛盾しておらず、妥当な結果といえる。また、予測モデルの作成においては、実用水準には未達であるものの物理的考察を導入することで改善されることが分かった。

このように、適切な予測モデルを作成するには物理的な観点に立ち返って意味のある説明変数を取得することが必要である。すなわち、説明変数の取得方法にも工夫が必要と考えられることから、今後は温度や照射といったサンプル測定方法や前処理など、よりTFT特性を反映するような状態でのデータ取得についても検討する。

データ解析の面では、今回は予備検討としてIGZOの電子状態を基にした既存パラメータから予測モデルの作成を行った。このとき、 μ -PCDの減衰曲線からパラメータを抽出することで各材料組成に適したモデルが得られると考えられた。そこで今後は、特徴量抽出方法やノイズ処理などのデータ前処理方法について検討する。

また、実験結果のばらつきや偏りをなくして解析精度を向上させるため、データ数の十分な確保が重要となってくる。そのため、量産ラインにおけるデータ取得などユーザーとの連携体制も整えていく。

参考文献

- 1) Hieu Chi DAMほか. 表面科学. 2015, Vol.36, No.10, p.507-514.
- 2) Materials Genome Initiative ホームページ. <https://www.mgi.gov/>, (参照 2018-04-02).
- 3) 情報統合型物質・材料開発イニシアティブホームページ. <http://www.nims.go.jp/MII-I/>, (参照 2018-04-02).
- 4) S.P. Ong et al. Energy Environ. Sci. 2013, Vol.6, p.148-156.
- 5) A. Seko et al. Phys. Rev. Lett. 2015, Vol.115, p.205901.
- 6) 住江伸吾ほか. R&D神戸製鋼技報. 2007, Vol.57, No.1, p.8-17.
- 7) 野々村勇希ほか. R&D神戸製鋼技報. 2014, Vol.64, No.2, p.105-109.
- 8) H. Goto et al. IEICE Trans. Electron. 2014, Vol.E97-C, No.11, p.1055-1062.
- 9) K. Nomura et al. Nature. 2004, Vol.432, p.488-492.
- 10) 森田晋也ほか. R&D神戸製鋼技報. 2015, Vol.65, No.2, p.72-77.