

遺伝的アルゴリズムを用いた薄膜の安定構造解析*

宮崎 康次*¹, 井上 剛良*², 土方 邦夫*³

Genetic Algorithm Simulation for Deposited Structure of Atoms

Koji MIYAZAKI, Takayoshi INOUE and Kunio HIJIKATA

In this paper, molecular simulations using a genetic algorithm are conducted to investigate the stability of deposited atoms on a substrate. First, to confirm the validity of the method, the stability of structures of L-J clusters is studied and it is successfully shown that a stable 13-atoms cluster has a well-known icosahedral structure. Then using this method, the stability of structures of deposited atoms on a solid surface is investigated. The results show that deposited atoms have either an island or a layer structure, depending on the combination of intermolecular potentials of the deposited atom and the substrate atom. Furthermore, to apply the method for systems having a certain temperature, a new method using a modified intermolecular potential is proposed. The results of the advanced simulation agree qualitatively with those of the MD simulation. Although the GA simulation gives good results, it also requires much less CPU time than MD simulation. Therefore, it can be concluded that the GA simulation is a superior technique for examining stable structures of many-particle systems.

Key Words: Condensation, Nucleation, Stability, Cluster, Deposition, Thin Film, Genetic Algorithm

1. 緒 言

近年, 半導体産業など最先端分野において薄膜作成技術が利用され, 優れた物性を有する薄膜の要求が高まっている⁽¹⁾が, 薄膜の製作は経験に基づいた諸条件により行っているのが現状である. 作成された薄膜はバルクの構造とは異なることから固有の物性をもつことが実験により観測⁽²⁾⁽³⁾されている. 薄膜の物性はその形状および結晶構造の影響を受けるが, 生成初期における状態が最終的に作成される薄膜に大きく影響するため, 薄膜生成時に見られる核の発生, 成長機構など物理・化学現象に対する理解が重要⁽⁴⁾となる. そのため従来から薄膜の成長過程に対して分子動力学法(MD)やモンテカルロ法(MC)といった分子スケールでの解析手法による研究が行われてきた^{(5)~(7)}. これらにおいては基板と蒸着物質の組み合わせをパラメータとして薄膜形状や結晶構造が調べられているが, それらは系の全自由エネルギーを最小にする原子配置として定めることができ, 系が低温でエントロピーの効果が無視できる場合はエネルギーのみを考慮した静力学で求めることができると考えられる. MC法は静力学に基づいた手法であるが温度 T の系における安定構造を得

る計算時間は $(\log_{10} T)^{-1}$ に比例し⁽⁸⁾, 系の温度が低い場合には不利な手法である. そこで本研究では静力学に基づいた解析手法として遺伝的アルゴリズム(GA)^{(9)~(11)}を利用した手法を提案, 薄膜生成初期における薄膜の安定形状, 構造の解析を行う. GAはロボットの姿勢制御⁽¹²⁾や構造物の強度設計⁽¹³⁾など広い分野で利用されており, 複雑な系の最適値を探索するのに優れた手法である.

はじめに本手法の有用性を確認するため希ガスクラスターの安定構造を調べ, その結果とMDによる計算結果および実験結果と比較検討を行う. 次に基板上に生成される薄膜の安定構造を計算し, 薄膜原子と基板原子のポテンシャルパラメータが薄膜安定構造に与える影響を調べた.

静力学的に解析することは系の温度を絶対零度としたことになるが, 蒸着現象は基板温度の影響を強く受けるため温度の概念を解析モデルに組み込む必要がある. 本手法では擬似的な分子間ポテンシャルを用いて温度の概念を導入することを提案し, 温度が薄膜安定形状に及ぼす影響を静力学的に調べた.

記 号

g : 遺伝子
 f : 評価関数
 ϕ : Lennard-Jonesポテンシャル

* 原稿受付 1998年5月19日.

¹ 正員, 東京工業大学大学院(〒152-8552 東京都目黒区大岡山2-12-1).² 正員, 東京工業大学工学部.³ (故)正員, 東京工業大学工学部.

E-mail: zakio@mes.titech.ac.jp

- r : 原子の位置ベクトル
- N : 構造に含まれる原子の数
- ε : ポテンシャルの深さ
- σ : 原子のサイズ
- P : 確率

添字

- T : 温度
- sub : 基板原子
- $depo$: 蒸着原子
- int : 基板-薄膜原子間相互作用
- $surf$: 補正した基板-薄膜原子間相互作用
- Ar : アルゴン原子
- sel : 自然淘汰
- $comb$: 交差
- mut : 突然変異

2. 解析手法

本解析では対象とする空間を離散化した格子点 (searching point: 遺伝子により表現できる点) 上に原子を配置 (図1黒丸) することを考える. この原子を安定に配置できる位置を求めることで多原子系の安定構造の探索を行う. 格子に配置する原子の座標 $r(x, y, z)$ は遺伝子 g_i の30ビットの文字列で表現し, この原子のポテンシャルエネルギーを遺伝子 g_i の価値とする. GAによる以下のaからfの繰り返し操作からなる世代交代により, 価値の高いすなわちポテンシャルの低い原子位置を見つけることができる. 次に原子を一つだけ系に加え, 再びGAにより加えた原子の安定位置を探索する作業を繰り返した. 原子の数を増やした際にはそのことによる構造の変化を追えるよう, GAでの探索に加えて, 既に存在する原子からいくつかを選択してその位置をランダムに振動させ, 系の全エネルギーを計算することにより安定位置を探索作業も行った.

a. 遺伝子の初期化 初期条件として第一世代となる遺伝子を乱数により決定する. 遺伝子の数(member: 原子を配置する候補点)が多いほど探索能力は高く⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾, 本研究では1000個とした.

b. 価値の計算 世代中に含まれる全ての遺伝子について価値 $f(g_i)$ を計算する. 評価関数は原子の持つポテンシャルエネルギーが低いほど価値が高くなるように, 式(1)を用いた. また本研究ではLJポテンシャルを用いた.

$$f(g_i) = \max(0, -\phi(r(g_i))) \dots \dots \dots (1)$$

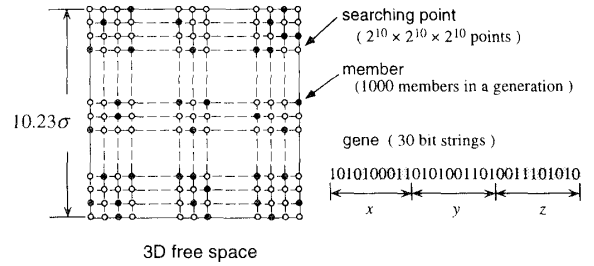


Fig. 1 Calculation model

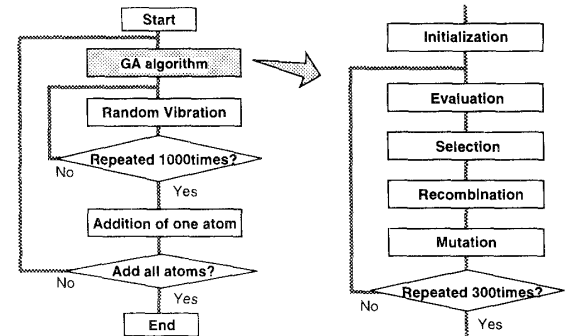


Fig. 2 Schematic of the algorithm

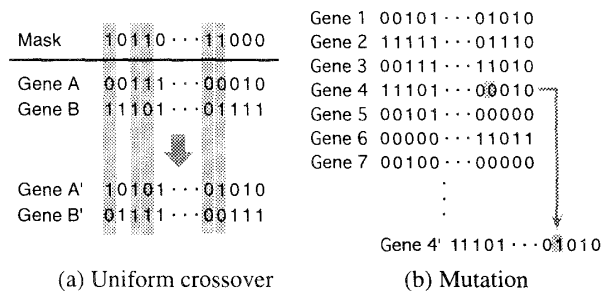


Fig. 3 Methods of generating new genes

$$\phi(r(g_i)) = \sum_{j=1}^{N-1} 4\varepsilon \left\{ \left(\frac{|r(g_i) - r_j|}{\sigma} \right)^{-12} - \left(\frac{|r(g_i) - r_j|}{\sigma} \right)^{-6} \right\} \dots (2)$$

式(1)の右辺は括弧内の二つの値のうち大きい値を採用する意味である. 式(2)中の r_j は空間中に存在する $N-1$ 個の原子の位置ベクトルである.

c. 自然淘汰及び増殖 遺伝子はその価値に比例した確率 P_{sel} に従い, 重複を許して次世代の遺伝子として選択される. この操作では価値の低い遺伝子も次世代に残すため, 局所的な準安定解に捉われずに大局的な最小解を得ることを目的としている.

$$P_{sel}(g_i) = \frac{f(g_i)}{\sum f(g_i)} \dots \dots \dots (3)$$

d. 遺伝子交差 淘汰しか行わないと新しい遺伝子は生成されず, 第一世代において高い価値をもつ遺伝子のみが残ることになってしまう. 新しい遺伝子を作るため同一

世代の二つの遺伝子を選択し、組み合わせ、新しい二つの遺伝子を作り出す交差と呼ばれる操作を行う。交差手法としてはさまざまなものが提案されている^{(8)~(11)}が、一様交差(図3(a))を用いた⁽¹⁰⁾。この手法では現世代から交差を行い二つの遺伝子を確率 P_{comb} で選び、さらに遺伝子と同じ長さのランダムなビット列からなるマスクを作る。次に遺伝子とマスクを並べ、マスクが1となっているところのみ遺伝子文字の入れ替えを行う。この手法は究極的な多点交差であり、どのような問題に対しても平均的によい結果を得ることができると言われている⁽¹⁰⁾。

e. 突然変異 新しい遺伝子を作るため遺伝子の交差に続いて突然変異と呼ばれる操作を行う。この操作では全く新しい遺伝子が生じるため、局所的な最小値にとらわれることなく大局的な最小値を求めることが可能となる。

突然変異の操作は遺伝子内の文字を突然変異確率 P_{mut} に従ってランダムに選び出し0と1を変更することで行う(図3(b))。

f. 計算終了判断 一般にGAでは価値の具体的な最小値がわかっていない場合は計算終了の評価が難しい。このため本解析では平均価値が収束するだけ十分長い世代交代数を設定し、その世代数で計算終了とした。

3. 解析および結果

3.1 クラスタ 本解析の有用性を確認するため、自由空間中に存在する希ガスクラスタの安定構造を調べた。自由空間はクラスタより大きい必要があるため、遺伝子の長さを30ビット、格子の刻み幅を0.01とすることで空間の一辺を 10.23σ とした。計算は探索空間(LJポテンシャルパラメータ σ で長さを無次元化)の中心(5.12, 5.12, 5.12)に原子を一つ配置し、順次原子を安定位置に配置していくことにより行った。図4に13原子からなるクラスタの構造解析時における平均価値の世代変化を示す。横軸は世代交代数、縦軸は平均価値である。50世代ほど交代を繰り返すと平均価値が収束しているのが分かるが、準安定状態に拘束された場合のことを考え、計算終了条件を300世代交代と長く設定した。

図4にはパラメータにいくつかの値を選択した場合の平均価値の変化を示す。収束する値が大きいくほどエネルギーが低い構造を求めたことに相当するため、交差確率 P_{comb} 及び突然変異確率 P_{mut} の最適値を決定できる。交差確率 P_{comb} に関しては、大きさを変化(0.2~0.7)させても収束値に大きな影響をおよぼすことはなく、 $P_{comb}=0.2$ とした。一方、 P_{mut} を小さくすると収束する値が大きくなっていく傾向が見られ、しかし全く突然変異を行わないと局所的な解に遺伝子が捉われてしまう恐れがあるため、収束

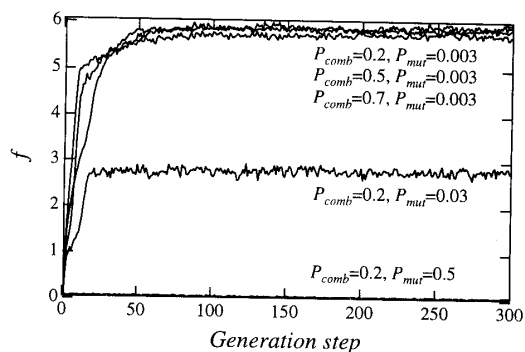


Fig. 4 Effect of genetic algorithm parameters

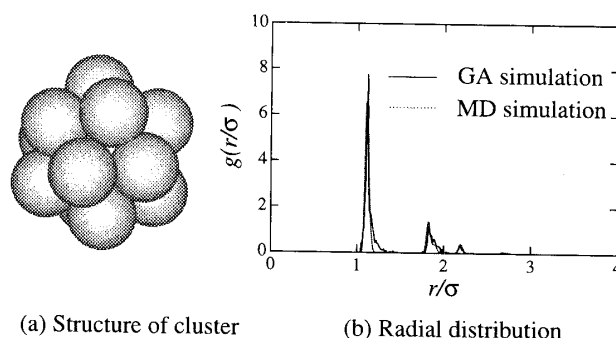


Fig. 5 Stable structure of rare gas cluster(n=13)

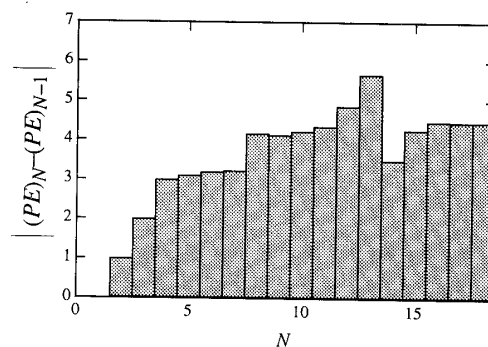


Fig. 6 Difference of total potential energy

値が大きいくとみなせる程度で大きく P_{mut} を設定した。以上の考察より、本解析ではパラメータを $P_{comb}=0.2$ 、 $P_{mut}=0.003$ とし、以後、どの計算においても同一の値を用いた。

これらの値を用いて計算した13個の希ガス原子からなるクラスタの構造を図5(a)、動径分布を図5(b)に示す。13量体ではエネルギーの近接した988種類の異性体が存在する⁽¹⁴⁾にもかかわらず、図5(a)に見られるように求められたクラスタ構造では中心に原子が1個存在し周りに12個の原子が存在する正二十面体の殻構造を求めることができた。さらに動径分布によりMDと比較を行った。動径分布は一般に時間平均により求めるがGAでは時間の概念がないため10回の計算結果で平均をとって求めた。MDではAr換算でおよそ1Kという低温に設定し計算を行ったところ、図5(b)中の実線がGA、点線がMDから求めた動径

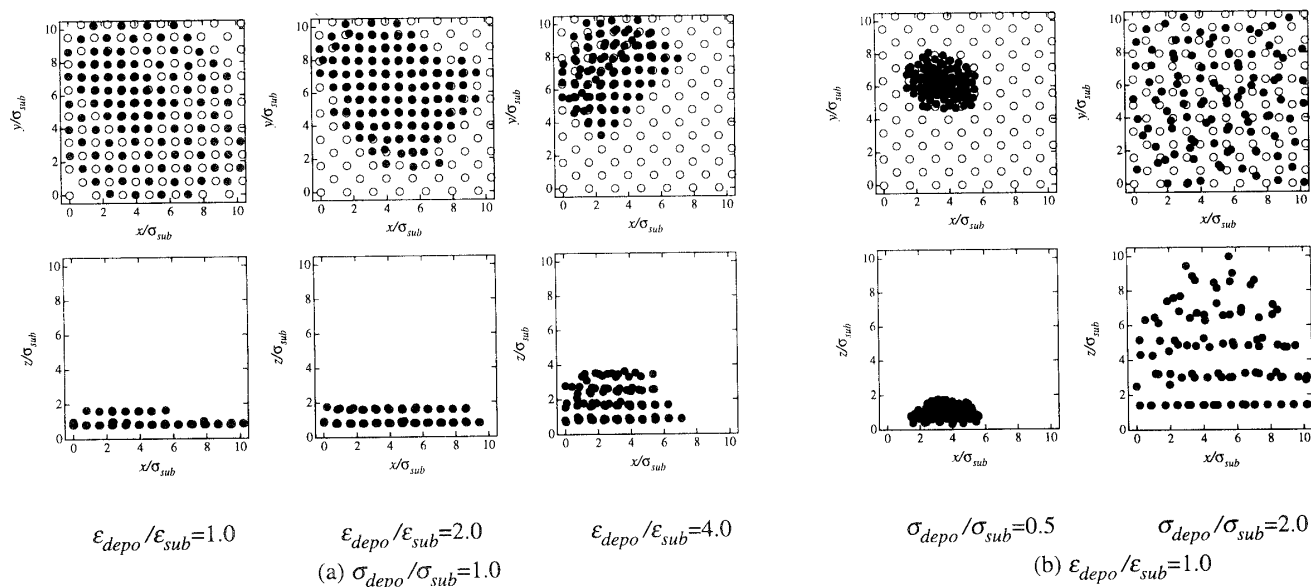
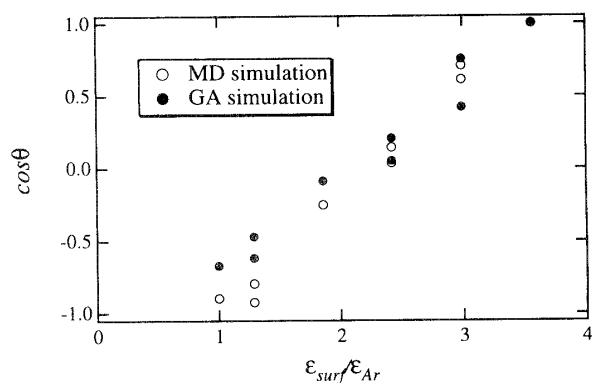
Fig. 7 Stable structure of deposited atom ($\epsilon_T/\epsilon=0$)

Table 1. Parameters of LJ potential

| (a) Structure | | (b) Contact angle | |
|----------------------------------|------------------------------|--------------------------------|----------------------------|
| $\epsilon_{depo}/\epsilon_{sub}$ | $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}$ | $\epsilon_{int}/\epsilon_{Ar}$ | σ_{int}/σ_{Ar} |
| 1.0 | 1.0 | 0.185 | 0.907 |
| 2.0 | 1.0 | 0.240 | 0.907 |
| 4.0 | 1.0 | 0.344 | 0.757 |
| 1.0 | 0.5 | 0.344 | 0.907 |
| 1.0 | 1.25 | 0.344 | 1.036 |
| 1.0 | 1.5 | 0.344 | 1.151 |
| 1.0 | 2.0 | 0.449 | 0.907 |
| | | 0.554 | 0.907 |
| | | 0.659 | 0.907 |

Fig. 8 Contact angle correlated with ϵ_{surf}

分布であり、双方がよく一致していることがわかる。次にクラスタサイズの変化に伴う全ポテンシャルエネルギー変化を図6に示す。横軸はクラスタに含まれる原子の数、縦軸は原子の数を増やした際のポテンシャルエネルギー差を表したものである。図6より13個目の原子を入れた際にクラスタの全ポテンシャルエネルギーが大きく下がることから他のサイズのクラスタより安定であり、13がマジックナンバーであることがわかる。これは実験で求められるArクラスタのマジックナンバー⁽¹⁴⁾と一致している。

本手法による希ガスクラスタの解析において、その計算時間はMDの1/30と高速であり、求められた安定構造はMDと比べほぼ同じ精度であった。

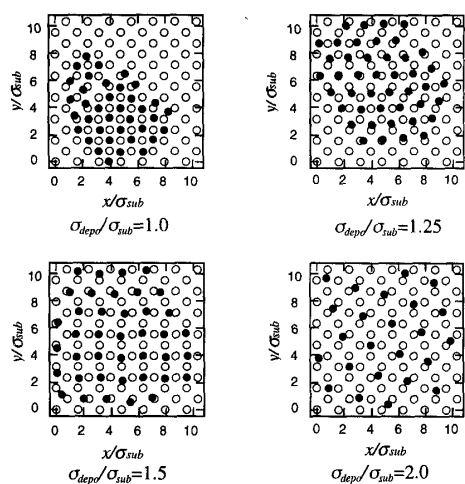
3.2 薄膜構造 本解析の有用性が確かめられたので、次に薄膜構造の解析を行った。薄膜が作成される基板表面は面心立方格子の(001)面であり平面方向の大きさは無限、厚さは10原子層、基板原子と薄膜原子の相互作用のパラメータは式(4)による ϵ_{int} 、 σ_{int} を用い、カットオフを

$5\sigma_{int}$ として計算した。

$$\epsilon_{int} = \sqrt{\epsilon_{depo} \cdot \epsilon_{sub}}, \quad \sigma_{int} = (\sigma_{depo} + \sigma_{sub})/2 \dots \dots (4)$$

基板と薄膜原子の組み合わせとして、表1(a)に示すポテンシャルの深さ ϵ_{depo} と見かけの原子半径 σ_{depo} を用いて薄膜安定構造の変化を調べた。

図7(a)に $\epsilon_{depo}/\epsilon_{sub}$ を変化させた三通りの、図7(b)に $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}$ を変化させた二通りの解析結果を示す。図7は基板上的薄膜原子を基板の鉛直方向と水平方向から見たものでパラメータの違いから薄膜原子の安定構造の変化を明確に確認できる。 $z=0$ は基板表面を表し、図中の白丸が基板原子、黒丸が薄膜原子を表す。 $\epsilon_{depo}/\epsilon_{sub}$ が小さい場合すなわち基板の影響が強く薄膜原子間の相互作用が弱い場合、薄膜の安定構造は膜状となる。一方、 $\epsilon_{depo}/\epsilon_{sub}$ が大きい場合には、薄膜の安定構造は島状になることが求められた。また $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}$ の大きさによっても薄膜の安定構造は膜状($\sigma_{depo}/\sigma_{sub} > 1$)と島状($\sigma_{depo}/\sigma_{sub} < 1$)と違いが現れた。

Fig. 9 First over layer pattern ($\epsilon_{depo}/\epsilon_{sub}=1.0$)

丸山らはMDを用いて白金基板表面上のAr原子クラスタのシミュレーションを行っている⁽⁵⁾。本GAによる結果と丸山らの結果の比較として、ここでは丸山らの用いたパラメータ(表1(b))のもとで接触角を計算した。計算結果を図8に示すが双方の結果は同様の傾向を示している。図8の横軸に基板-薄膜原子間の相互作用を補正したパラメータ $\epsilon_{surf}/\epsilon_{Ar}$ 、縦軸に接触角 θ の余弦をとったが、これらの求め方は丸山らの方法に従った。

次に $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}$ が膜の安定構造に及ぼす影響を調べた。図9は薄膜の第一層目だけを基板の鉛直方向から表示したものである。図中黒丸が薄膜原子、白丸が基板原子である。薄膜原子と基板原子の半径が同じ場合すなわち $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}=1.0$ の場合は薄膜原子は基板原子と同じ構造となるが、 $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}=1.25$ の計算では、すべての薄膜原子が基板原子のすきまに入りきれないため、基板とは異なる正三角形の構造を持つ薄膜が得られた。さらに薄膜原子の半径を大きくした $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}=1.5$ の計算では基板原子の間隔の $\sqrt{2}$ 倍の距離間隔で基板の安定位置に薄膜原子が入り込む正方形の構造が求められた。1.5と $\sqrt{2}$ が近い値であることから、原子同士のひずみを小さくするため他の条件ではみられないような構造が形成されたと考えられる。そのため薄膜原子の半径を大きくした $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}=2.0$ の計算では再び $\sigma_{depo}/\sigma_{sub}=1.25$ と同様、正三角形が基本となる構造が求められた。このような基板原子と薄膜原子間の不整合と薄膜構造の関係はLJポテンシャルを用いた分子動力学法による計算結果⁽⁶⁾と定性的に一致している。以上のように本解析のような静的な解析によっても薄膜の安定形状、構造が求まることを示した。

4. 温度を考慮した解析

系の安定構造をポテンシャルエネルギーを用いて静的に

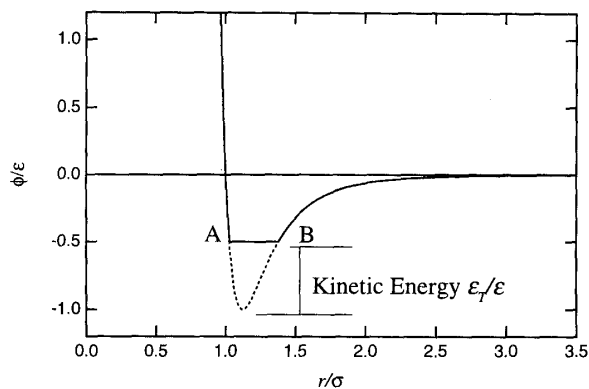
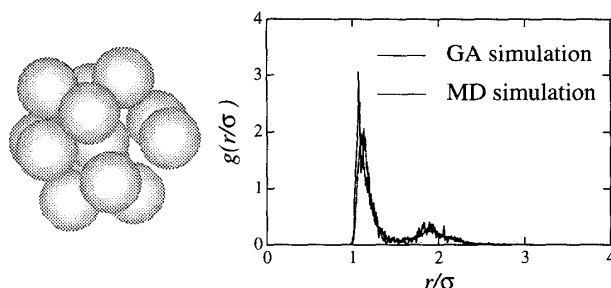


Fig. 10 Pseudo-potential curve



(a) Structure of cluster

(b) Radial distribution

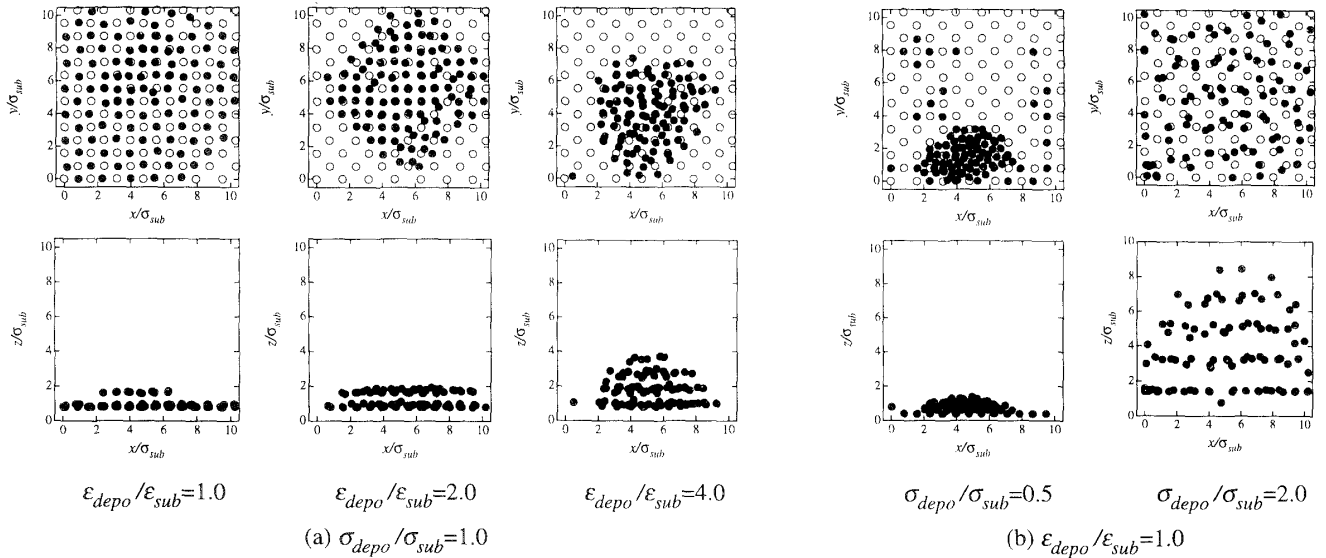
Fig. 11 Stable structure of rare gas cluster($n=13$, $\epsilon_T/\epsilon=0.1$)

解析した場合、系の温度として絶対零度を仮定したことになる。しかし、蒸着現象を含め多くの現象では温度が重要な因子となることから、本手法においても以下の手順で有限温度の影響を考慮した解析を行う。

まずエネルギー的に原子が存在しうる領域を求めることを考える。有限温度の系においては原子はその温度に対応する運動エネルギー ϵ_T を有することから、図10に示すABの区間に存在しうる。しかし、AB間のどこに存在するかはエネルギーからは決まらず確率的に求めることになる。このように考えると、 $-(\epsilon-\epsilon_T)$ より小さな分子間ポテンシャルの領域に価値を持たせることは不適切であり、本解析では図10に示すように底部をカットした擬似的分子間ポテンシャルを評価関数として用いる。固体のように周囲の多数の原子から相互作用を受ける場合、このような原子が存在しうる領域を求めることは非常に困難であるが、GAを用いることにより比較的簡単に求めることができる。

次にこの領域内で原子の存在確率に従って原子の位置を決定することを考える。この場合、原子は周囲の多数の原子から複雑な相互作用を受けることから、一つの極限として領域内で一様な存在確率を仮定する。

このような考えに基づき、温度モデルでの解析は擬似ポテンシャルエネルギー(図10)を評価関数としたGAにより安定構造を求め、自由に運動できる領域内に存在する原

Fig. 12 Stable structure of deposited atom ($\epsilon_T/\epsilon=0.1$)

子に対してはさらに領域内でランダムに再配置を行った。

このようにして求めた13量体クラスタ構造とMDによる計算結果との比較を図11に示す。温度($3kT/2=\epsilon_T=0.1\epsilon$)はAr換算でおよそ10Kとしたものであり、本解析により求められた安定構造は図11(a)に示すような二十面体構造である。このときの動径分布を図11(b)に示す。図11より本手法とMDとの結果が定量的にもよく一致していることがわかる。ここでのMDの計算には擬似ポテンシャルは用いておらず、温度は各分子からの運動エネルギーから求めて⁽¹⁵⁾いる。

この手法を用いてさらに有限温度の薄膜の安定構造の解析を行った(図12)。薄膜原子と基板原子のもつポテンシャル深さ($\epsilon_{depo}/\epsilon_{sub}$)、ならびに見かけの原子半径の大小($\sigma_{depo}/\sigma_{sub}$)により、さきほどの絶対零度による計算結果と同様の傾向が確認できた。一般に温度の上昇とともに、表面張力は減少する⁽¹⁶⁾ので蒸着薄膜の形状は広がると考えられる。本解析で扱ったマイクロ薄膜においても温度を考慮した場合は絶対零度の解析結果よりも形状が広がっており、表面張力というマクロな概念を使わずに薄膜安定構造の温度依存性の傾向を確認できた。

5. 結 言

本論文では遺伝的アルゴリズムを用いて多原子系の安定構造を静的に解析する手法を提案した。はじめにこの手法の有用性を確かめるため、希ガスクラスタの安定構造を調べたところ、実験で観測されるマジックナンバー13を求めることができ、さらに13量体のもつ安定構造は正二十面体の殻構造であることが求められた。さらに薄膜の安定形状および構造の解析を行ったところ、基板原子

及び薄膜原子のもつ分子間ポテンシャルのパラメータ ϵ, σ の組み合わせにより、薄膜の安定構造が島状、膜状となる違いが現れ、マイクロ薄膜の安定形状を表面張力といったマクロな概念を用いずに説明することができた。

次に運動エネルギーを考慮した擬似的なポテンシャルを用いることにより有限温度の系にもこの手法を適用し、クラスタおよび薄膜の安定構造の解析を行った。これにより求めた13量体希ガスクラスタの安定構造はMDによる結果と定量的に一致し、薄膜の安定構造も温度上昇とともに膜が広がる傾向が得られ、定性的な温度の影響をみる事ができた。このように遺伝的アルゴリズムを用いたシミュレーションによりMDと同様の傾向を短い計算時間で予測することができた。

文 献

- (1) 平尾 孝・吉田 哲久・早川 茂, 薄膜技術の新潮流(1997), 9, 工業調査会.
- (2) Mason, M.G., Physical Review B, **27**(1983), 748-762..
- (3) Stoeffler, D. et al, Surface Science, **251/252**(1991), 31-35..
- (4) 井上 泰宣・ほか2名 共訳, 薄膜物性入門(1994), 125, 内田老鶴圃.
- (5) 丸山 茂夫・ほか2名, 第33回伝熱シンポジウム講演論文集(1996)317-318.
- (6) Hara, K. et al, Physical Review B, **39**-13(1989), 9476-9485.
- (7) Kersulis, S. and Mitin, V., Semiconductor Science and Technology, **10**-5 (1995), 653-659.
- (8) Davis, L., Genetic Algorithms and Simulated Annealing (1987), 10, Morgan Kaufmann.
- (9) Goldberg, D.E., Genetic Algorithms in Search, Optimization, and Machine Learning (1989), 1, Addison-Wesley.
- (10) 安居院 猛・長尾 智晴, ジェネティックアルゴリズム(1993), 23, 昭晃堂.
- (11) 坂和 正敏・田中 雅博, 遺伝的アルゴリズム(1995), 30, 朝倉書店.
- (12) Cheng, M.Y., and Lin, C.S., Journal of Robotic Systems, **14**-5(1997), 365-373.
- (13) 大町 竜哉・ほか4名, 機論, **62**-599, C(1996), 2913-2919.
- (14) 梶本 興亜, クラスタの化学(1992), 203, 培風館.
- (15) 小竹 進, 分子熱流体(1990), 59, 丸善.
- (16) 小野 周, 表面張力(1980), 64, 共立出版.