

ベイズ最適化を用いためっき条件の効率的探索

稲葉 竜一 渡邊 真美 森 優太郎
漆原 誠 山口 健志

Effective Search for Electroplating Conditions Using Bayesian Optimization

Ryuichi INABA Mami WATANABE Yutaro MORI
Makoto URUSHIHARA Kenji YAMAGUCHI

Abstract

Electroplating requires precise control of multiple parameters to ensure product quality, but traditional trial-and-error approaches are inefficient. This study applies Bayesian optimization to identify optimal copper plating conditions that minimize surface roughness. Using Gaussian process regression and the Expected Improvement acquisition function, we iteratively selected promising conditions and confirmed their effectiveness through experiments. The integration of expert knowledge further improved search efficiency. Feature importance analysis revealed temperature as the most influential factor. These results highlight the value of combining data-driven and expert-driven methods for process optimization.

キーワード：電気めっき，表面粗さ，データ駆動型探索，ベイズ最適化

1. はじめに

電気めっきは三菱マテリアル（株）（以下、当社と呼称する）にとって様々な場面で不可欠な要素技術である。めっき銅材料の販売の他、めっき液の販売や銅加工品に対するめっき処理などを行う事で製品への付加価値を付与している^{1,2)}。

めっきに求められる特性は千差万別であり、外観、防食性、硬度、耐摩耗性、導電性、熱特性など、多岐にわたる。これらの特性は、最終製品の性能や信頼性に直結するため、精密な制御が不可欠である^{3,4)}。

電気めっきの品質に影響する因子は非常に多く、電流密度や温度、液の組成、添加剤、電解液の攪拌、電極の配置などにより出来上がるめっきの特性は大きく異なる³⁾。その最適な組み合わせを探索しようとした場合、いわゆる「組み合わせ爆発」が生じ膨大な試行回数を必要とする。

これまで当社では数多くの実験と評価を通じて様々なめっき製品を実現してきた。しかし製品数の増加や各分野における製品性能の要求の難易度が高くなる中でこれらの条件探索の効率化が求められている。

近年 MI に代表されるデータ駆動型アプローチは幅広い分野で応用されている。中でも数理最適化の一つであるベイズ最適化はその柔軟性から様々な実験パラメータの最適化に活用されているが、めっきに対して実施され

た例は多くない⁵⁻⁷⁾。こうしたデータ駆動型アプローチを従来の知識駆動型と組み合わせることで、より効率的な探索が期待される。

そこで本研究では電気めっきの条件探索に対するベイズ最適化の効果検証を行った。スタンダードな硫酸銅水溶液における銅めっきに対して、表面粗さの低減を目的としてめっき条件の探索を試みた。

既知データによる予測とめっき実験を繰り返すことでのベイズ最適化を実施した。実験条件と表面粗さの組み合わせのデータセットを元にガウス過程回帰を行い、そこから予測される最適条件について実験を行い、これを繰り返すことにより最も表面粗さの低い条件を探した。ベイズ最適化におけるガウス過程回帰と獲得関数の算出には Python ライブライ PHYSBO⁸⁾ を用いた。

2. 実験方法

2.1 サンプル作成手順

図 1 に示す角型電解槽に硫酸銅水溶液と添加剤として CU-BRITE RF (JCU) と塩化物イオンを一定濃度添加して電解液を調整した。作用極として 70 mm × 70 mm にマスキングした銅板と、対極としてコーティングされた Ti 網電極を電解液に浸漬し、空気攪拌を行いながら 8.1 C/cm² になるように通電し、一条件につき一つずつ銅めっきサンプルを得た。

これら共通条件の下で、① CuSO₄ 濃度② H₂SO₄ 濃度③

電解液温度④電流密度⑤バブリング強度⑥電極間距離の6変数を変量し試験を行い、これらを説明変数として最適化対象とした。表1に示すようにこれら6変数はそれぞれ3~6パターンの数字をあらかじめ用意し、全4320パターンの中から最適な条件を探索を行った。

このうち35パターンについては人為的に選択して予備実験を行い、この結果を次節に示す目的変数の選定およびベイズ最適化の事前分布として利用した。

得られためっきサンプルの表面粗さは白色干渉計(Ametec社)を用いて測定した。各サンプル毎に0.3mm間隔の格子状の22点×22点=484点について視野角790um×790umで測定を行い、それぞれの視野角内の高さ分布Z(x,y)が得られ、測定器内の統計処理により各種粗さパラメータが得られた。粗さパラメータの例として算術平均粗さSaと最大高さSzの計算式を示す。

$$S_a = \frac{1}{A} \int \int_A |Z(x,y)| dx dy$$

$$S_z = \min(Z(x,y))$$

一般的にめっき品質として粗さを評価する際には各種パラメータの上下限に含まれているかどうかを判断するが、本検討では一サンプルにつき一つの代表値を算出することで最適化のための目的変数とすることとした。代表値の算出方法及び選定方法を次節に示す。

2.2 目的変数の選定

各サンプルにつき得られる484点ずつの粗さパラメータから算出する代表値としてSaおよびSzの中央値を候

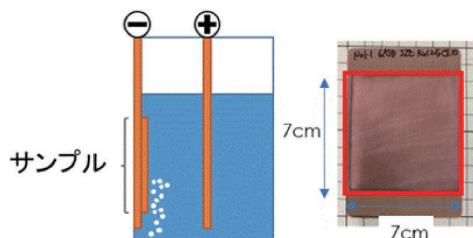


図1 実験装置の模式図とめっきサンプルの表面写真

Structure of plating cell and picture of sample

表1 説明変数として使用した実験条件一覧

List of explanatory variables

説明変数	単位	最小値	最大値	パターン
硫酸銅濃度	g/L	20	180	4
硫酸濃度	g/L	140	220	4
平均電流密度	A/dm ²	2	6	3
浴温度	℃	18	32	6
バブリング流速	L/min	0	15	5
電極間距離	cm	5	10	3

補とした。またその分布が最適化性能に影響することから、それぞれの対数値も候補として、median(Sa), median(Sz), median(log(Sa)), median(log(Sz))の四種類の代表値の中から目的変数を一つ選定することとした。

選定方法として、予備試験35パターンの実験結果を用いて仮想的なベイズ最適化を行った。まず35条件のうちランダムな5条件を既知として、説明変数とそれぞれの目的変数候補に対してガウス過程回帰を行い、残り30条件の中から最適と予測された条件を選択した。選択した条件が最適値でない場合には、それを加えた6条件のデータセットを元に次の最適条件を予測し、これを30条件の中で逐次実施し、最適値到達までの試行回数を比較することとした。なおこの仮想試験は乱数の影響を大きく受けたため、6つの乱数シードに対して実施しその平均到達回数を比較した。また、比較のためにランダムによる探索も行った。

2.3 ベイズ最適化による最適条件の探索

めっき実験とガウス過程回帰による予測を繰り返すことで、一度に5条件を予測するベイズ最適化を合計三回実施した。N回目の中では、まず既知の条件(35+(N-1)×5パターン)に対してガウス過程回帰を行い、未実施の全パターンのうち獲得関数EI(Expected Improvement)の最も低いパターンを次に実施すべき条件とした。また一度に5条件を候補として選出するために、この決定した条件のEIを既知の目的変数として追加し再度ガウ

Initial 35 conditions & Experiment

CuSO ₄ · H ₂ O	H ₂ SO ₄	Current Density	Temperature	Flow Rate	Distance	median(log(Sa)) log(μm)
g/L	g/L	A/dm ²	°C	L/min	cm	
100	180	6	30	12.5	10	-2.36
100	180	6	25	12.5	10	-1.68
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
60	200	6	25	5	7.5	-2.49

Next Cycle
with 40
conditions

↓ Gaussian Process

Selected 5 conditions

CuSO ₄ · H ₂ O	H ₂ SO ₄	Current Density	Temperature	Flow Rate	Distance	median(log(Sa)) log(μm)
g/L	g/L	A/dm ²	°C	L/min	cm	
20	220	4	30	12.5	5	
180	140	6	28	15	10	
20	200	4	30	15	5	
180	140	6	31	12.5	10	
180	140	6	25	15	10	

Measurement

Experiment

median(log(Sa)) log(μm)
-2.78
-3.00
-2.85
-2.85
-3.34

図2 実験とベイズ最適化の模式図

Flow chart of Bayesian optimization and experiments

表2 予備実験データセット内でベイズ最適化を実施した際の目的変数毎の最良値到達までの平均探索数
Average cycles to approach to the best score with each objectives

Sa	Random		Sa	Sz
	log(Sa)	Sz		
15.3	12.3	12.5	13.5	26.0
				26.0

ス過程回帰を行い、同様に次に実施すべき条件をもう一つ選択した。これを繰り返すことで、1回のサイクルにおける次の5条件を選択した。決定した5条件に対してサンプルを作成し粗さ評価を行い、得られた目的変数を既知として次のサイクルを実施した。このサイクルの模式図を図2に示す。

また対象条件として、ランダムに決定した条件も比較として各サイクル5条件ずつ実施した。なおこのランダム条件で得られた結果は先述のガウス過程回帰には用いず独立して実施した。

3. 実験結果

3.1 目的変数の選定

各条件484サンプルの粗さパラメータの算術処理としてmedian(Sa), median(Sz), median(log(Sa)), median(log(Sz))の中から今回使用する目的変数を選定した。既知35条件の中で仮想的にベイズ最適化を行い得られたそれぞれの平均到達回数を表2に示す。

この結果から、どの目的変数もランダムよりも優位であることが示された。その中でもlog(Sa)は最良値への平均到達探索数が12.3回と最も少なかったため目的変数として適していると判断し、以降の探索の目的変数として用いた。

3.2 ベイズ最適化による条件探索

決定した目的変数と6つの説明変数によるガウス過程回帰を用いたベイズ最適化により最適条件を探査した。予備試験35条件と、ベイズ最適化による5条件×3サイクルの試験結果を図3に示す。各条件に対してガウス過程回帰で得られた分散から算出した $\pm 1\sigma$ を帶で示している。実サンプルから得られた実測のmedian(Sa)は点で示しており、比較のためのランダム条件の試験結果は緑点で示している。

この結果から、ベイズ最適化により選定された条件はランダムと比較して最良値に近い条件の探索が行われており、特に40回目の試験ではほぼ最良値に到達するようなめつきを得る事が出来た。

4. 知識駆動型探索との組み合わせ

ベイズ最適化のみでは惜しくも最良条件への到達を行う事はできなかった。本章では従来の知識駆動型の探索

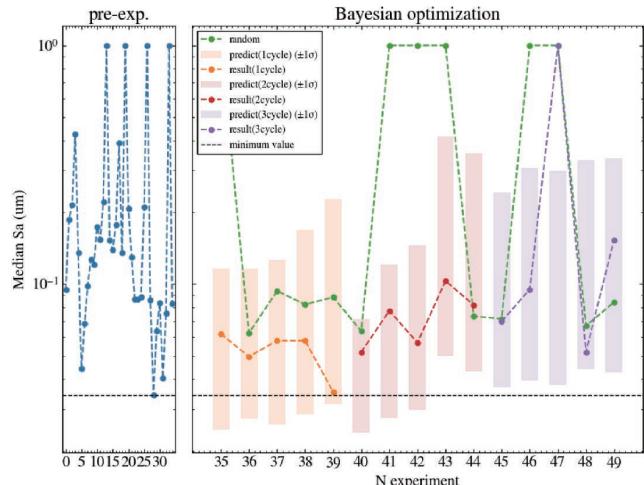


図3 ベイズ最適化における予測分散と実測値の推移
Plot of predicted variance and measured values in Bayesian optimization

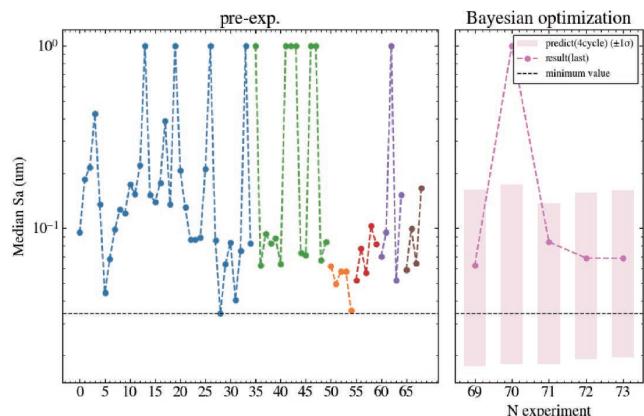


図4 知見によるデータ追加後のベイズ最適化推移
Plot of Bayesian optimization progress after adding expert knowledge

との組み合わせとして、知見に基づくデータを用いたベイズ最適化、およびデータセットに基づく知見の取得について紹介する。

4.1 知見に基づくデータの追加

技術者の知見に基づくデータを追加したベイズ最適化を試みた。これまでのデータを元に良好な結果が得られると予測される条件および試してみたい条件を実験し、これまでのランダムの結果を含む合計69点を用意した。これを用いて新たにベイズ最適化により5条件を選択しめつき実験を実施した結果を図4に示す。

予測結果として低い分布が得られ最良値更新の可能性が示唆された事から、知見に基づくデータを追加することで最良値到達への可能性が高まることが確認された。今回は最良値の更新は行われなかったが、回数を重ねることで探索が効率的に進行するものと考えられる。

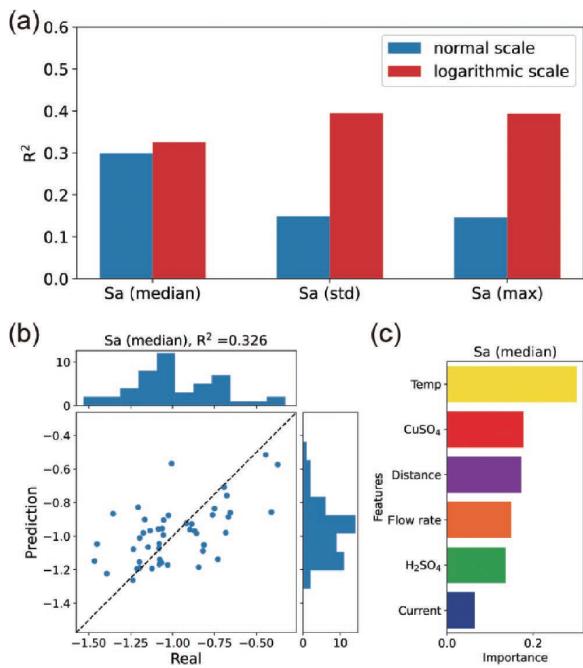


図5 ランダムフォレストによる LOO 解析結果⁹⁾
LOO analysis results using Random Forest

4.2 説明変数の寄与度の比較

今回得られたデータセットを元にパラメータの理解のために説明変数の寄与度を算出した⁹⁾。データセットを元にランダムフォレストによる LOO (LeaveOneOut) 解析を行い各説明変数の寄与度を解析した。なおこの時のトレーニングデータ内の回帰性能を示す R^2 は 0.8703 であった。解析により得られた結果を図5(c)に示す。

この結果、今回の説明変数による Sa の予測においては温度の寄与度が最も高く、次いで硫酸銅、電極間距離、バブリング流速、硫酸濃度の順で寄与していることが分かった。

こうしたデータ由来の知見は従来の知識駆動型の探索へフィードバックする事で、指針のヒントに繋がり検討全体の効率化が期待される。

5. おわりに

電解銅めっきの平滑なめっきを得るためにベイズ最適化を用いた探索が行われた。複数の候補の中から選択した粗さを示す目的変数に対してベイズ最適化を行う事で、主観的な判断を排除した探索を行い、最良値に近い条件を得ることができた。また経験則的な実測データを追加することで更に効率的な探索を行う事ができる可能性も

示唆された。更にこれらデータセットを元に説明変数の寄与度を算出することで、知識駆動型探索の効率化に貢献できることが示唆された。

今後このようなデータ駆動型の探索手法は様々な場面で、従来の知識駆動型の探索と組みわせることで研究を加速することが期待される。

謝 辞

本研究は、NIMS-三菱マテリアル情報統合型材料開発センターにおける2020年度から2022年度までの共同研究の一環で行われました。国立研究開発法人物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究センター 電子材料分野 電気化学スマートラボチームの松田翔一チームリーダーと、国立研究開発法人物質・材料研究機構 マテリアル基盤研究センター 材料設計分野 データ駆動型アルゴリズムチームの田村亮チームリーダーのご指導、ご助力をいただきました。心より感謝申し上げます。

文 献

- 三菱マテリアル銅加工事業, “耐熱・高耐熱三層めっき” <https://www.mitsubishi-copper.com/jp/products/plating/layer/>
- 三菱マテリアル電子材料事業, “低 α 線めっき液” https://www.mmc.co.jp/adv/ja/products/low_alpha/plating.html
- 電気鍍金研究会, “現代めっき教本”, 日刊工業新聞社 (2011) p. 26
- 関東学院大学 材料・表面工学研究所, “めっき大全”, 日刊工業新聞社 (2017) p. 13
- T. Rainforth, A. Foster, D. R. Ivanova and F. B. Smith, *Statistical Science*, **39**(1), 100–114 (2024).
- R. Shimizu, S. Kobayashi, Y. Watanabe, Y. Ando, T. Hitosugi, *APL Materials*, **8**, 111110 (2020).
- W. Xi, Y. Lee, S. Yu, Z. Chen, J. Shiomi, S. Kim and R. Hu, *Nature Communications*, **14**, 4694 (2023).
- Y. Motoyama, R. Tamura, K. Yoshimi, K. Terayama, T. Ueno and K. Tsuda, *Computer Physics Communications*, **278**, 108405 (2022).
- R. Tamura, R. Inaba, M. Watanabe, Y. Mori, M. Urushihara, K. Yamaguchi and S. Matsuda, *Science and Technology of Advanced Materials: Methods.*, **4**(1), 2416889 (2024).



稻葉 竜一 Ryuichi INABA
開発 TMO 解析領域
専任研究員



渡邊 真美 Mami WATANABE
ものづくり・生産技術企画室
室長補佐



森 優太郎 Yutaro MORI
開発 TMO プロセス領域
研究員



漆原 誠 Makoto URUSHIHARA
開発 PMO-A2
プロジェクトリーダー



山口 健志 Kenji YAMAGUCHI
開発 TMO 解析領域
主席研究員 博士（理学）