

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月29日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360158

研究課題名（和文） 量子論に基づく実践的配線寿命予測シミュレータの開発

研究課題名（英文） Development of Practical Simulator of Interconnect Lifetime Based on Quantum Theory

研究代表者

坪井 秀行（TSUBOI HIDEYUKI）

東北大学・未来科学技術共同研究センター・准教授

研究者番号：20375182

研究成果の概要（和文）：金属原子の移動・拡散が引き金になる配線材料のエレクトロマイグレーション(EM)は、半導体デバイス寿命に直接影響しており、半導体のさらなる微細化と高集積化において危急の解決課題である。本研究では、新規超高速化量子分子動力学法に基づき、電子 wind force により原子および空孔が移動する EM 現象を電子・原子レベルで直接解析する手法とともに、動的モンテカルロ法との融合による実践的配線寿命予測シミュレータの開発を行った。

研究成果の概要（英文）：The electromigration (EM) of the wiring material from which movement and diffusion of a metal atom become a trigger has influenced the semiconductor device life directly, and is a critical solution subject in the further miniaturization and high integration of a semiconductor. In this research, the practical wiring life prediction simulator by integration with the kinetic Monte Carlo method was developed based on the novel ultra-accelerated quantum chemical molecular dynamics method to analyze directly EM phenomenon which atoms and holes move by the electron wind force in an electron and an atomic level.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	4,900,000	1,470,000	6,370,000
2010年度	5,700,000	1,710,000	7,410,000
2011年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度			
年度			
総計	13,100,000	3,930,000	17,030,000

研究分野：電子材料設計工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子デバイス・電子機器

キーワード：エレクトロマイグレーション、超高速化量子分子動力学法、電子 wind force、配線寿命、実物モデル化

1. 研究開始当初の背景

EM 現象は高密度電子流(電子 wind force)により金属原子が力を受け、移動・拡散していく現象である。半導体配線の信頼性を向上させるため、EMを理論的に解析できるシミュレーション手法の開発が望まれていた。

弘前大学・笹川らのグループでは、EMによる金属配線材料の損傷を支配するパラメータにより原子流束を導出し、2次元有限要素解析に展開することで、M 損傷が生じない限界電流値「しきい電流密度」現象のシミュレーションに成功している(日刊工業新聞、

1995 年； Sasagawa and Fukushi, Proc. IPACK2007, 33237)。しかし、この手法で用いているパラメータは実験結果に合うようにフィッティングされたものであり、電子レベルでの知見、すなわち量子化学計算により電子相互作用をあらわに取り扱う理論的手法には立脚していない。

このように、その重要性にもかかわらず、EM 現象は未だ現象論的な解明がなされているのみで、電子・原子レベルで研究した例は皆無である。一方で、電子・原子レベルでダイナミクスを扱う方法として、第一原理分子動力学法がよく知られているが、計算コストが非常に高いため比較的小規模なモデルで量子ダイナミクス計算を実施することが多い。実際、量子分子動力学法で EM 現象を扱った例は皆無であった。

2. 研究の目的

申請者らがこれまで予備的に開発してきた、電子 wind force 効果による原子移動アルゴリズムをさらに精密化・定量化させ、配線材料の EM 現象における原子移動性を電子・原子レベルで解明すると同時に、動的モンテカルロ法による実スケール配線 EM シミュレータを定量化することで、量子論に基づく新規な配線寿命予測シミュレータの開発を目指す。

(1) 申請者らがこれまで予備的に開発してきた電子 wind force 効果による原子移動アルゴリズムをさらに精密化・定量化させることを第 1 の目的とする。これにより、様々な配線材料の EM 現象における原子移動性を電子・原子レベルで解明可能となる。

(2) 動的モンテカルロ法による実スケール配線 EM シミュレータを定量化し、量子論に基づく実践的配線寿命予測シミュレータを開発することを本研究の第 2 の目的とする。これにより、電子レベルから実際のデバイススケールまで一貫させた、いわゆるマルチスケールシミュレーション技術を実現する。

3. 研究の方法

(1) 電子 wind force 効果による原子移動アルゴリズムの精密化・定量化を行う。これまで半導体配線材料の EM 現象を電子・原子レベルで扱った唯一の研究例である、電子 wind force 効果を取り入れるアルゴリズムに基づく申請者らの予備的研究を拡張する。超高速化量子分子動力学シミュレータを用いて配線材料について電子密度の空間分布を算出し、これを独自の電気伝導シミュレータに展開して電子流分布を計算し、この電子流分布に従って原子に作用するクーロン力を調節する。電子 wind force 効果による原子移動

アルゴリズムの精密化・定量化の具体的方策として、下記 2 項目を検討した。

① 配線材料の大規模モデルの構築：独自開発の超高速化量子分子動力学シミュレータは、他の量子論手法では検討不可能な大規模系の電子状態ダイナミクス計算が可能である。信頼性あるシミュレーションを行うために、実験結果を可能な限り忠実に再現する大規模モデルを原子レベルで構築する。X 線回折および振動スペクトルなどの多角的な構造解析・分光分析の実験結果を参照し、これらを再現するために、構造解析・分光分析の各種手法のシミュレータの開発を行う。

② 超高速化量子分子動力学シミュレータによる大規模電子状態ダイナミクス計算：①で構造が精密に決定された配線材料大規模モデルに、超高速化量子分子動力学シミュレータを適用して、大規模電子状態ダイナミクス計算を実施し波動関数空間分布を高速に計算する。さらに、配線材料に印加する電界強度や温度を変化させてシミュレーションを行い、電界強度と温度それぞれの因子に対する電子密度空間分布を求める。これにより、電子密度空間分布の電界、温度による変化を定量化し、原子移動の駆動力となる電子 wind force を精密化する。

(2) 半導体配線材料大規模における EM 現象ダイナミクスの電子レベル解明を行う。(1)の結果を受け、配線材料の大規模モデルにおける EM 現象ダイナミクスを、超高速化量子分子動力学シミュレータで解明する。具体的には、(1)で定式化された電界強度および温度による電子流分布変化を、超高速化量子分子動力学シミュレータに組込む。原子が高密度電子流分布によって移動・拡散する現象のアルゴリズム化自体は、すでに予備開発済みであり、それを応用する。超高速化量子分子動力学シミュレータで得られる原子拡散・空孔拡散のダイナミクスから、原子の移動経路、エネルギー変化が解析できるので、これら知見から原子の移動確率をアレニウスの式によって算出する。

(3) 新規配線材料寿命予測シミュレータを開発する。(1)、(2)の結果を、予備開発済みの実スケール配線 EM シミュレータにおける原子移動確率に展開することで、配線材料が破断するまでの時間、すなわち配線材料寿命の定量的な予測を可能とする、量子論に基づく新規シミュレータを開発する。また、寿命が既知の配線材料について実験値と比較することで本シミュレータの適用可能性を検証し、量子論に立脚した新規な配線信頼性評価技術を確立する。

4. 研究成果

(1) 超高速化量子分子動力学シミュレータ

の利点である高速性を活かし、信頼性あるシミュレーションを行うには、配線材料について実験結果を可能な限り忠実に再現する大規模モデルを原子レベルで構築する必要がある。そのためのX線回折や振動スペクトルなどの構造解析・分光分析シミュレータを開発した。その結果、金属系材料や半導体材料などに対する構造解析・分光シミュレーションに基づき、各種材料の実験結果をほぼ再現することに成功した。

(2) (1)により構造を決定した大規模モデルを用い、波動関数空間分布を計算した。このとき印加する電界強度や温度を何通りか変化させたシミュレーションを行い、電界強度と温度それぞれの因子に対する電子密度の時間変化を定式化して、電子 wind force をより精密化した。超高速化量子分子動力学シミュレータで使用する電子状態計算コードと分子動力学コードの繋がりを、従来の手動型ではなく完全自動型にする必要性が生じたため、完全自動化超高速化量子分子動力学シミュレータを開発し、半導体表面や酸化物表面での電子状態ダイナミクスをより容易に計算できるようにした。

(3) 半導体配線材料の大規模モデルにおけるEM現象ダイナミクスを、超高速化量子分子動力学シミュレータにより電子レベルで解明するために、自動化超高速化量子分子動力学シミュレータの改良を進めて動作検証を深めるとともに、電界強度、温度による電子流分布変化を超高速化量子分子動力学シミュレータに組込むことに成功した。本シミュレータにより得られる原子拡散・空孔拡散のダイナミクスから、原子の移動経路・エネルギー変化が解析できる。これにより、原子の移動確率をアレニウスの式によって算出することが可能となった。寿命が既知の材料について、配線材料の大規模モデルにおけるEM現象ダイナミクスの解析を行い、適用可能性を検証した後、原子移動確率を以下の実スケールシミュレータに反映させた。

(4) 予備開発済みの実スケール配線EMシミュレータにおける原子移動確率に、電子・原子レベルで得られる情報を採用することで、定量的な配線材料寿命予測を可能とする量子論に基づく新規配線材料寿命予測シミュレータの開発に成功した。また、配線材料の実スケールモデリングなどを可能とするソフトウェア類の開発も進め、寿命が既知の配線材料について、実験値と比較してシミュレータの適用可能性を検証した。これまで経験的な因子が多かった半導体信頼性シミュレーション分野に、量子化学を導入することで新しい学術分野を開拓するものであり、本シミュレータの結果を既存のEDAツール用入力データとして活用する形で次世代半導体素子設計への貢献が期待されるなど、半導体産

業に与えるインパクトは大きい。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計12件)

- ① Farouq Ahmed, Ryo Nagumo, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Hiromitsu Takaba, Akira Miyamoto, CO Oxidation and NO Reduction on MgO(100) Supported Pd Cluster: A Quantum Chemical Molecular Dynamics Study, Journal of Physical Chemistry C (査読有), 115, 2011, 24123-24132, DOI: 10.1021/jp204348e
- ② Farouq Ahmed, Ryo Nagumo, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momiji Kubo, Akira Miyamoto, Comparison of Reactivity on Step and Terrace Sites of Pd (332) Surface for the Dissociative Adsorption of Hydrogen: A Quantum Chemical Molecular Dynamics Study, Applied Surface Science (査読有), 257, 2011, 10503-10513, DOI: 10.1016/j.apsusc.2011.07.028
- ③ Mari Onodera, Ryo Nagumo, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momiji Kubo, Akira Miyamoto, Multiscale Simulation of Dye-Sensitized Solar Cells Considering Schottky Barrier Effect at Photoelectrode, Japanese Journal of the Applied Physics (査読有), 50, 2011, 04DP06 (5 ページ), DOI: 10.1143/JJAP.50.04DP06
- ④ Sho Hirose, Itaru Yamashita, Ryo Nagumo, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momiji Kubo, Akira Miyamoto, Theoretical Study on Effect of SiC Crystal Structure on Carrier Transfer in Quantum Dot Solar Cells, Japanese Journal of the Applied Physics (査読有), 50, 2011, 04DP05 (5 ページ), DOI: 10.1143/JJAP.50.04DP05
- ⑤ Itaru Yamashita, Hiroaki Onuma, Ryo Nagumo, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momiji Kubo, Akira Miyamoto, Computational Study on Carrier Injection in

- Ca/Poly(9,9'-dioctylfluorene) Interface by Using Quantum Chemistry and Monte Carlo Methods, Japanese Journal of the Applied Physics(査読有), 50, 2011, 04DK02(5 ページ), DOI: 10.1143/JJAP.50.04DK02
- ⑥ Farouq Ahmed, Md. Khorshed Alam, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Akira Miyamoto, Modeling of Hydrogen Vacancy for Dissociative Adsorption of H₂ on Pd (111) Surface by A Quantum Chemical Molecular Dynamics, Catalysis Today(査読有), 164, 2011, 16-22, DOI: 10.1016/j.cattod.2010.10.009
- ⑦ Md. Khorshed Alam, Farouq Ahmed, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Akira Miyamoto, Surface Reduction Processes of Cerium Oxide Surfaces by H₂ Using Ultra Accelerated Quantum Chemical Molecular Dynamic Study, Catalysis Today(査読有), 164, 2011, 9-15, DOI: 10.1016/j.cattod.2010.10.011
- ⑧ Mari Onodera, Kei Ogiya, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Akira Miyamoto, Modeling of Dye-Sensitized Solar Cells Based on TiO₂ Electrode Structure Model, Japanese Journal of the Applied Physics(査読有), 49, 2010, 04DP10(5 ページ), DOI: 10.1143/JJAP.49.04DP10
- ⑨ Itaru Yamashita, Kazumi Serizawa, Hiroaki Onuma, Ai Suzuki, Ryuji Miura, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Mark C. Williams, Akira Miyamoto, Development of Computational Method for Analysis of Carrier Transfer in Light-Emitting Polymers, Japanese Journal of the Applied Physics(査読有), 49, 2010, 04DK13(5 ページ), DOI: 10.1143/JJAP.49.04DK13
- ⑩ Hideyuki Tsuboi, Arnabhram Chutia, Chen Lv, Zigang Zhu, Hiroaki Onuma, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Riadh Sahnoun, Michihisa Koyama, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Carlos A. Del Carpio, Ramesh C. Deka, Momoji Kubo, Akira Miyamoto, An Electrical Conductivity Prediction Simulator Based on TB-QCMD and KMC. System Development and Applications, Journal of Molecular Structure: THEOCHEM(査読有), 903, 2009, 11-22, DOI: 10.1016/j.theochem.2008.11.040
- ⑪ Hideyuki Tsuboi, Asami Kato, Hiromi Sato, Humie Hasekura, Saori Oda, Hiroshi Setogawa, Chie Abe, Arnabhram Chutia, Chen Lv, Zigang Zhu, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Riadh Sahnoun, Michihisa Koyama, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Carlos A. Del Carpio, Ramesh C. Deka, Momoji Kubo, Akira Miyamoto, Development of a Multi-Scale Electromigration Simulator Based on a Combination of Ultra Accelerated Quantum Chemical Molecular Dynamics and Kinetic Monte Carlo Methods. Application to Cu Interconnects Lifetime Simulation, Japanese Journal of the Applied Physics(査読有), 48, 2009, 04C020(6 ページ), DOI: 10.1143/JJAP.48.04C020
- ⑫ Hideyuki Tsuboi, Megumi Kabasawa, Seika Ouchi, Miki Sato, Riadh Sahnoun, Michihisa Koyama, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Carlos A. Del Carpio, Yasuo Kitou, Emi Makino, Norikazu Hosokawa, Jun Hasegawa, Shoichi Onda, Akira Miyamoto, Computational Evaluation of Electrical Conductivity on SiC and The Influence of Crystal Defects, Materials Science Forum(査読有), 600-603, 2009, 497-500, DOI: 10.4028/3-908453-11-9.497
- [学会発表] (計 8 件)
- ① 宮本明, 実験融合マルチレベルコンピュータ化学手法の開発とシリコン材料・デバイスへの応用、シリコン材料・デバイス研究会 (SDM)、平成 23 年 10 月 21 日、東北大学
- ② 坪井秀行, 自動化超高速化量子分子動力学法の開発とシリコン表面のドライ・ウェットおよびラジカル酸化反応シミュレーション、応用物理学会シリコンテクノロジー分科会第 128 回研究集会、平成 22 年 11 月 12 日、機械振興会館
- ③ 坪井秀行, 自動化超高速化量子分子動力学法の開発とシリコン酸化膜形成の反応解析への応用、シリコン材料・デバイス研究会 (SDM)、平成 22 年 10 月 22 日、東北大学
- ④ Hideyuki Tsuboi, Development of a Multi-Scale Time Dependent Dielectric Breakdown Simulator Based on TBQC and KMC Method: Application to the Evaluation of a Gate Oxide Film for CMOS Technology, 2010 International

Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2010), September 23, 2010, Tokyo University

- ⑤ 坪井秀行、量子化学およびKMC法によるシリカ膜中電子移動のマルチスケールシミュレーション、第106回触媒討論会、平成22年9月18日、山梨大学
- ⑥ 坪井秀行、マルチスケールシミュレーションによるゲート酸化膜の絶縁信頼性予測、第71回応用物理学会学術講演会、平成22年9月15日、長崎大学
- ⑦ 坪井秀行、Tight-Binding 量子化学計算およびキネティックモンテカルロ法を用いたマルチスケール酸化膜絶縁信頼性予測シミュレータの開発、日本コンピュータ化学会2010年春季年会、平成22年5月21日、東京工業大学
- ⑧ 坪井秀行、自動化超高速化量子MD法によるシリコン酸化膜生成シミュレーション、2009年秋季第70回応用物理学会学術講演会、平成21年9月10日、富山大学

[その他]

ホームページ等

<http://aki.niche.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

坪井 秀行 (TSUBOI HIDEYUKI)
東北大学・未来科学技術共同研究センター・准教授
研究者番号：20375182

(2) 研究分担者

宮本 明 (MIYAMOTO AKIRA)
東北大学・未来科学技術共同研究センター・教授
研究者番号：50093076
高羽 洋充 (TAKABA HIROMITSU)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：80302769
畠山 望 (HATAKEYAMA NOZOMU)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：50312666
鈴木 愛 (SUZUKI AI)
東北大学・未来科学技術共同研究センター・助教
研究者番号：40463781

(3) 連携研究者

()

研究者番号：