

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：32689

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24310082

研究課題名(和文) 立体構造半導体/酸化膜界面のハイスループットモデリング技術の開発

研究課題名(英文) Development of high-throughput modeling method for three-dimensional semiconductor-oxide interface

研究代表者

渡邊 孝信 (Takanobu, Watanabe)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：00367153

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,700,000円

研究成果の概要(和文)：急速に進む立体構造デバイスの研究開発を基礎から支えるため、ナノスケールの半導体結晶、およびそれを覆う酸化絶縁膜の原子論的界面構造モデルを、ハイスループットで自動生成する技術を開発し、現実的な立体構造モデルを用いた様々な輸送シミュレーションを可能にした。開発した手法を熱伝導シミュレーションに応用し、ナノスケールのシリコン結晶が示す特異な熱的特性の起源の解明に成功した。

研究成果の概要(英文)：An automated and high-throughput atomistic model generator has been developed, targeting three-dimensional oxide/semiconductor interface structures. This work is aiming to build a foundation of the researches and developments of the rapidly emerging three-dimensional electronic devices. It can provide realistic atomistic models for various electric and thermal transport simulations. As an example, the thermal conductivity of a silicon nanowire has been studied, and the origin of the peculiar thermal property has been clarified.

研究分野：電子材料工学

キーワード：表面・界面ナノ科学 シリコン 絶縁膜 分子動力学法

### 1. 研究開始当初の背景

研究を開始した 2012 年 4 月は、米インテル社が初めて立体型トランジスタ技術を採用した新型プロセッサ「Ivy Bridge」の出荷を正式発表した時期に当たる。この発表を受け、ナノワイヤ型など極微細立体構造デバイスの実用化に向けた研究開発が一挙に熱を帯びた。一方、ナノスケールの界面制御技術やデバイス物理などの基礎研究は、生産技術の開発スピードに追従できておらず、特に原子論的電子輸送シミュレーションのための構造モデリング技術が強く求められていた。

デバイス界面の原子論的モデリングでも基本的で重要な系はシリコン(Si)と二酸化シリコン(SiO<sub>2</sub>)の界面(SiO<sub>2</sub>/Si 界面)である。しかし SiO<sub>2</sub>/Si 界面の形成プロセスは現在においても謎が多く、依然として最先端の基礎研究課題である。とりわけ複数の結晶方位が共存するナノスケールの立体構造界面の構造は複雑を極め不明な点が多かった。

### 2. 研究の目的

急速に進む立体構造デバイスの研究開発を基礎から支えるため、ナノスケールの半導体結晶、およびそれを覆う酸化絶縁膜の原子論的界面構造モデル(図 1 参照)を、ハイスループットで自動生成するアルゴリズムを開発し、現実的な立体構造モデルを用いた様々な輸送シミュレーションを可能にする。

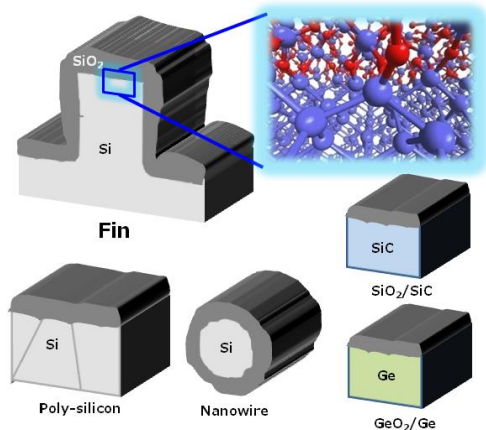


図1 本研究で開発する半導体・絶縁膜界面ハイスループットモデリングのターゲット

### 3. 研究の方法

本研究課題で取り組んだ研究は、下記の 5 項目からなる。

#### (1) 酸化膜構造のハイスループットモデリングプログラムの開発

研究代表者が開発した Si, O 混在系用分子動力学シミュレーション技術をベースに、様々な形状の半導体の酸化膜構造を自動かつ高速で生成するプログラムを開発する。またグラフィック用プロセッサを用いた汎用並列計算技術を導入し、分子動力学計算自体の高速化させることで、計算のハイスループ

ット化を図る。

(2) 酸化膜高速自動モデラーの応用計算  
酸化膜構造のハイスループットモデリングプログラムの検証を目的とし、Si ナノ構造体の熱的特性の計算に取り組む。

(3) 3次元没入型可視化システムの開発  
複雑な界面形状を直観的に把握し、プログラムのテストおよび様々な系への応用を効率的に進めるため、立体視を可能にするデバイスを用いた没入型可視化システムを構築する。

(4) 酸化膜モデリングアルゴリズムの実験検証

酸化膜高速自動モデラーの性能評価を目的として、Si ナノ構造体の製作とその断面構造観察、ラマン分光測定に取り組み、酸化プロセスの形状依存性のリファレンスデータを集積する。

(5) IV族系化合物半導体(SiC, SiGe)への適用

Si-C-O 混在系用ポテンシャル、Si-Ge-O 混在系用ポテンシャルを開発し、SiO<sub>2</sub>/Si 界面、GeO<sub>2</sub>/Ge 界面から、SiO<sub>2</sub>/SiC 界面および SiO<sub>2</sub>/SiGe 界面へと、シミュレーションの適用範囲の拡大を図る。

### 4. 研究成果

#### (1) 酸化膜構造のハイスループットモデリングプログラムの開発

酸化種の拡散過程を厳密に再現することなく、単純なアルゴリズムで酸化サイト高速判定法のプログラムを開発し、図 2 に示すように、ほぼ任意の構造に対してコンフォーマルな酸化膜構造を自動生成する技術を確認した。

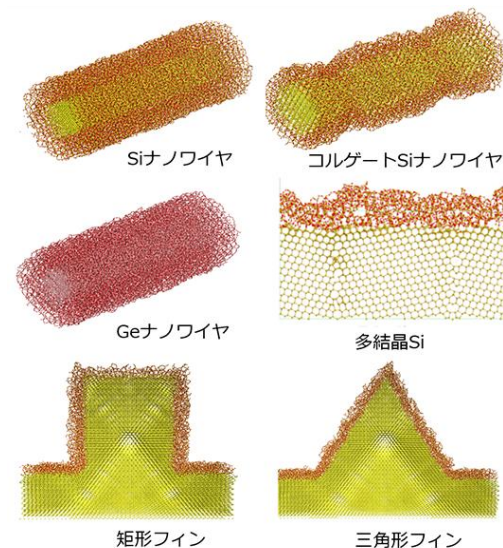


図2 酸化被膜つき立体型半導体結晶モデル

開発した酸化膜高速自動モデラーは次項(2)で述べる成果のほか、すでに他機関の研究でも活かされている。例えば、球状 Si 結晶モデル(図 3)を研究協力者の阪大・森伸也グループに提供し、第一原理計算を用い

た Si ナノドットのインパクトイオン化率の解析に使われた。

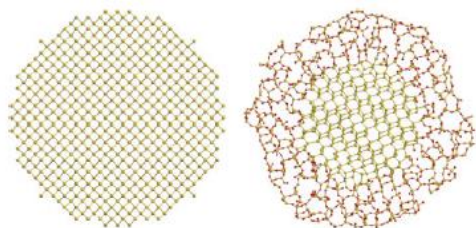


図3 酸化被膜つき Si ナノドットモデル  
(研究成果[雑誌論文]⑥より)

さらに、グラフィック用プロセッサ (GPU) を用いた汎用並列計算を試験的に導入し、GPU 1 チップで分子動力学計算を 10 倍以上高速化できることを実証した。この技術を電子の動力学計算に応用し、最先端のナノワイヤトランジスタ特性の統計ばらつきの評価を可能にし、集積化限界の予測に活かされた (研究成果[雑誌論文]①、[学会発表]②)。

### (2) 酸化膜高速自動モデラーの応用計算

開発したモデラーの応用計算として、酸化膜被覆型 Si ナノワイヤの熱伝導率の計算を行った。図 4 の挿入図に示すように、酸化被膜付 Si ナノワイヤ構造の両端を高温および低温に維持しながら分子動力学計算を実施した。高温熱源から低温熱源にむかって熱流が生じるため、高温領域の温度は低下し、低温領域の温度は上昇する。これを元に戻すように高温熱源と低温熱源に含まれる原子の運動量を定期的に交換して、定常的な温度勾配を維持する。この温度勾配と交換した運動量から熱流を計算し、Si ナノワイヤの熱伝導率を求めた。

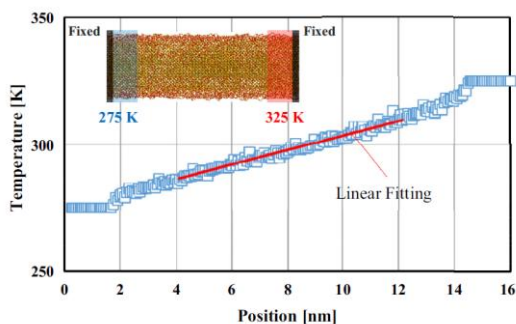


図4 非平衡分子動力学法による Si ナノワイヤ熱伝導シミュレーション (研究成果[雑誌論文]②より)

以上の方法で求めた熱伝導率の Si ナノワイヤ径依存性を図 5 に示す。酸化の進行とともに Si コアの断面積が減少し、熱伝導率の低い SiO<sub>2</sub> 膜領域の割合が増加するため、熱伝導率は低下していく。ただしその低下量は、単に Si 領域と SiO<sub>2</sub> 領域の断面積比で予想される低下量より大きく、酸化膜層の成長とともに熱伝導率が低下する別の要因があることを示している。Si ナノワイヤ径の減少と

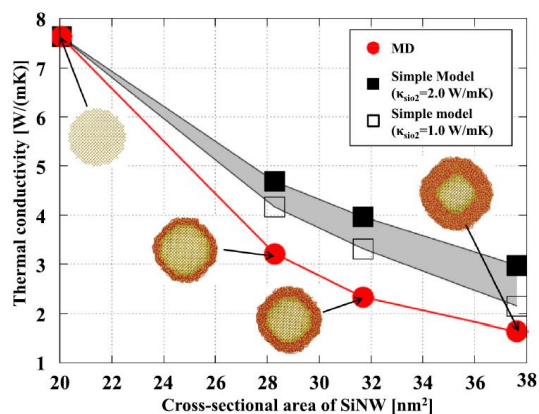


図5 熱伝導率の Si ナノワイヤ径依存性  
(研究成果[雑誌論文]②より)

もに熱伝導率が低下する現象は実験でも知られており、この実験事実が本シミュレーションでも再現できていると考えられる。

研究代表者らは、酸化膜との界面近傍の Si 結晶格子の乱れが熱伝導率低下の要因と考え、フォノン状態の変化と熱伝導率低下の関係性を分析した。図 6 に酸化膜被覆型 Si ナノワイヤのフォノン分散関係を示す。これは分子動力学計算で得られた全原子の軌跡データを時空間フーリエ変換することで得られる動的構造因子を濃淡図にしたものであり、明るい色の部分に Si 原子の振動状態が存在することを示している。振動数 4THz 以下の低エネルギー領域に、酸化膜のない Si ナノワイヤでは見られなかった状態が生じていることが判明した。この新しいフォノン状態は、図 6(c) に示すように主に界面付近に存在しており、酸化膜誘起の Si 格子乱れと関係していることがわかった。さらに、4THz 以下の低エネルギー領域のフォノン状態密度と熱伝導率に強い相関がみられた。このことから、酸化膜誘起の Si 格子乱れが、Si ナノ構造体の特異な熱的挙動の原因になっているという、従来にない新しい解釈を提案した。(研究成果[雑誌論文]②)

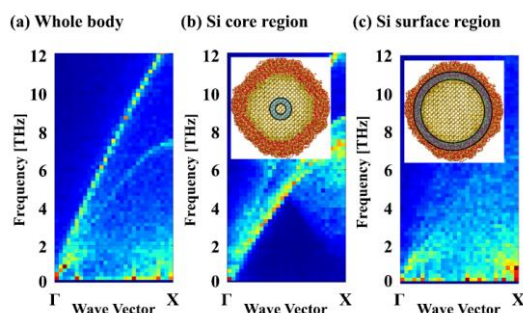


図6 酸化被膜付き Si ナノワイヤのフォノン分散  
(研究成果[雑誌論文]②より)

### (3) 3次元没入型可視化システムの開発

複雑な界面形状を直観的に把握できる、従来にない没入型可視化システムの開発に成功した。当初、ブームとなっていた 3D ディスプレイを用いた可視化を検討したが、拡張

現実 (Augmented Reality; AR) の技術を活用して現実の風景の中に立体的に原子模型を表示できる全く新しいシステムの開発に挑むことにした。最終的に、ヘッドマウントディスプレイにマーカーレス拡張現実アルゴリズムを組み込み、眼前の現実世界に原子構造の立体模型浮かんで見えるシステムを実現した (図 7)。合成する CG の再生速度は、表示する原子数、処理計算機の性能に左右されるが、複雑な界面形状を直観的に把握できる従来にない新しい分子可視化技術として将来性が期待できる。

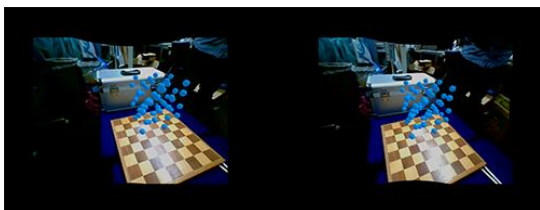


図 7 ヘッドマウントディスプレイにマーカーレス拡張現実アルゴリズムを組み込んだ没入型可視化システム

#### (4) 酸化膜モデリングアルゴリズムの実験検証

酸化膜高速自動モデラーが生成する界面構造モデルの妥当性を、直接実験で検証することを目的として、Si ナノ構造体の製作とその断面構造観察、ラマン分光測定に取り組んだ (図 8)。熱酸化後の熱履歴の違いでシリコン結晶中に残留する応力に著しい差が生じることが、顕微ラマン測定で判明した。シミュレーションで再現した酸化被膜付きシリコンナノワイヤにおいても、酸化誘起歪により光学フォノンのソフトニングが再現され、開発したシミュレーション技術で実験と比較可能なレベルのデータが得られることが判明した。

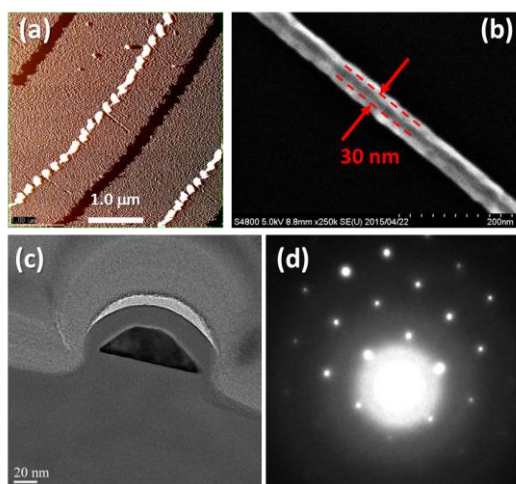


図 8 本研究で作製した Si ナノワイヤ。(a) 幅 1 μm の Si ワイヤの STM 像。(b) 本研究で作製したもっとも線幅が狭い Si ナノワイヤ構造。(c) 酸化膜被覆型 Si ナノワイヤの断面構造。(d) Si コアからの電子線回折像。

#### (5) IV 族系化合物半導体 (SiC、SiGe) へ

の適用

Si-C-O 混在系用ポテンシャルを開発し、図 9 に示すような SiC/SiO<sub>2</sub> 界面構造モデルの作成に成功した。計算量が少ない従来の配位数依存クラスタ展開ポテンシャルの枠組みと、研究代表者が開発したダイナミック・ボンドオーダー法の両方で実現された。SiC 表面の酸化過程の再現能力は今後評価していく必要があるが、本研究を通じて 3 元素混在系の相互作用モデルを実現するための多くのノウハウを獲得できた。Si-Ge 混在系のポテンシャル開発にも取組み、ラマンシフトとの比較から、両元素の配位状態の違いに応じて結合エネルギーを調整する必要があることも明らかにされた。

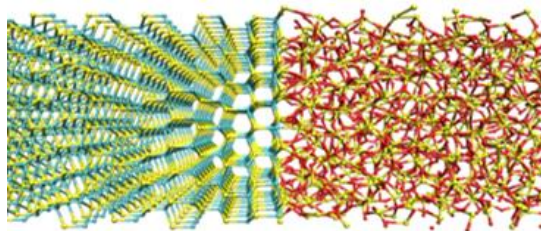


図 9 4H-SiC/SiO<sub>2</sub> 界面構造

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① A. Suzuki, T. Kamioka, Y. Kamakura, and T. Watanabe, "Particle-based Semiconductor Device Simulation Accelerated by GPU computing," Japan Society for Simulation Technology, Vol. 2, 211, (2015). 査読有 doi:10.15748/jasse.2.211
- ② T. Zushi, K. Ohmori, K. Yamada, and T. Watanabe, "Effect of a SiO<sub>2</sub> layer on the thermal transport properties of <100> Si nanowires: A molecular dynamics study," Physical Review B Vol. 91, 115308, (2015). 査読有 doi:10.1103/PhysRevB.91.115308.
- ③ R. Kuriyama, M. Hashiguchi, R. Takahashi, A. Ogura, S. Satoh, and T. Watanabe, "Molecular Dynamics Study on the Formation of Dipole Layer at High-k/SiO<sub>2</sub> Interfaces," Japanese Journal of Applied Physics Vol. 53, 08LB02, (2014) 査読有 .doi:10.7567/JJAP.53.08LB02
- ④ H. Yamashita, H. Kosugiyama, Y. Shikahama, S. Hashimoto, K. Takei, J. Sun, T. Matsukawa, M. Masahara, and T. Watanabe, "Impact of Thermal History of Si Nanowire Fabrication Process on Ni Silicidation Rate," Japanese Journal of Applied Physics Vol. 53, 085201, (2014). 査読有 doi:10.7567/JJAP.53.085201
- ⑤ T. Zushi, K. Shimura, M. Tomita, K. Ohmori, K. Yamada and T. Watanabe, "Phonon Dispersion in <100> Si

Nanowire Covered with SiO<sub>2</sub> Film Calculated by Molecular Dynamics Simulation,” ECS Journal of Solid State Science and Technology Vol. 3, pp. P149-P154, (2014). 査読有 doi: 10.1149/2.010405jss

- ⑥ N. Mori, M. Tomita, H. Minari, T. Watanabe, and N. Koshida, “Disorder-Induced Enhancement of Avalanche Multiplication in a Silicon Nanodot Array,” Japanese Journal of Applied Physics Vol. 52, 04CJ04, (2013). 査読有 doi:10.7567/JJAP.52.04CJ04

[学会発表] (計 67 件)

- ① (招待講演) 函師 知文, 大毛利 健治, 山田 啓作, 渡邊 孝信, “酸化被膜型 Si ナノワイヤにおける熱伝導率低下の起源に関する原子論的考察,” 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学湘南キャンパス, 2015 年 3 月 12 日.
- ② A. Suzuki, T. Kamioka, Y. Kamakura, K. Ohmori, K. Yamada, and T. Watanabe, “Source-induced RDF Overwhelms RTN in Nanowire Transistor: Statistical Analysis with Full Device EMC/MD Simulation,” IEEE International Electron Devices Meeting (IEDM 2014), Hilton San Francisco Union Square, San Francisco, USA, Dec. 14, 2014.
- ③ S. Hashimoto, H. Kosugiyama, K. Takei, J. Sun, R. Imai, H. Tokutake, M. Tomita, A. Ogura, T. Matsukawa M. Masahara and T. Watanabe, “Impact of post-oxidation annealing of Si nanowire on its Ni silicidation rate,” 27th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2014), Hilton Fukuoka Sea Hawk, Fukuoka, Japan, Nov. 6, 2014.
- ④ (招待講演) T. Watanabe, R. Kuriyama, M. Hashiguchi, R. Takahashi, K. Shimura, A. Ogura, and S. Satoh, “Molecular Dynamics Simulation of Dipole Layer Formation at High-k/SiO<sub>2</sub> Interface,” 226th Meeting of The Electrochemical Society, Moon Palace Resort, Cancun, Mexico Oct. 6, 2014.
- ⑤ 函師知文, 大毛利健治, 山田啓作, 渡邊孝信, “酸化被膜型 Si ナノワイヤにおける熱伝導率低下の起源に関する考察,” 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 札幌, 2014 年 9 月 19 日.
- ⑥ T. Zushi, K. Ohmori, K. Yamada, and T. Watanabe, “Thermal Transport Properties of Si Nanowire Covered with SiO<sub>2</sub> Layer: A Molecular Dynamics Study,” 2014 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2014), Epcal Tsukuba, Tsukuba, Japan, Sep. 10, 2014.
- ⑦ (依頼講演) 渡邊孝信, “分子動力学法による酸化膜被覆型 Si ナノワイヤのフォノン解析,” 電気学会 ナノエレクトロニクス集積化・応用技術調査専門委員会, 早稲田大学研究開発センター, 新宿, 2014 年 3 月 14 日.
- ⑧ (依頼講演) 渡邊孝信, “Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub> 界面の分子動力学シミュレーション,” CVD 反応分科会 第 21 回シンポジウム, 東京大学山上会館, 東京, 2013 年 11 月 19 日.
- ⑨ R. Kuriyama, M. Hashiguchi, R. Takahashi, A. Ogura, S. Satoh and T. Watanabe, “Molecular Dynamics Study on Dipole Layer Formation at Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub> Interface,” 2013 NIMS CONFERENCE, EPOCHAL TSUKUBA, Tsukuba, Japan, Jul. 2, 2013.
- ⑩ (招待講演) Takanobu Watanabe, “Recent Progress in Molecular Dynamics Simulation of Semiconductor Interfaces,” 2013 NIMS CONFERENCE, EPOCHAL TSUKUBA, Tsukuba, Japan, Jul. 3, 2013.
- ⑪ H. Imai, T. Kamioka, Y. Kamakura, K. Ohmori, K. Shiraishi, M. Niwa, K. Yamada and T. Watanabe, “Effect of Interface Roughness on Carrier Transport in Asymmetric Channel: An EMC/MD Simulation Study,” 16th International Workshop on Computational Electronics, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Japan, Jun. 5, 2013.
- ⑫ A. Suzuki, T. Kamioka, H. Imai, Y. Kamakura, and T. Watanabe, “Accelerated parallel computing of carrier transport simulation utilizing graphic processing units,” 16th International Workshop on Computational Electronics, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Japan, Jun. 5, 2013.
- ⑬ 函師 知文, 大毛利 健治, 山田 啓作, 渡邊 孝信, “立体構造シリコン中の熱輸送に関する分子動力学シミュレーション,” シリコン材料・デバイス研究会 (SDM), 機械振興会館, 東京, 2012 年 11 月 16 日.
- ⑭ (招待講演) T. Watanabe, T. Zushi, M. Tomita, “Molecular Dynamics Simulation of Thermal Properties of Nano-scale Silicon Structures Covered with Oxide Film,” The 3rd Advanced Materials Development and Integration of Novel Structured Metallic and Inorganic Materials (AMDI-3), Loisir Hotel Toyohashi, Toyohashi, Japan, Nov. 7, 2012.

- ⑮ T. Watanabe, T. Zushi, M. Tomita, R. Kuriyama, N. Aoki, T. Kamioka, “Phonon Dispersion in <100> Si Nanowire Covered with SiO<sub>2</sub> Film Calculated by Molecular Dynamics Simulation,” PRiME 2012, ECS 222nd Meeting, SiGe, Ge, and Related Compounds: Materials, Processing, and Devices 5, Hawaii Convention Center, Honolulu, USA, Oct. 10, 2012.
- ⑯ T. Zushi, T. Watanabe, K. Ohmori, K. Yamada, “Molecular Dynamics Simulation of Heat Transport in Silicon Fin Structures,” 2012 International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD2012), Sheraton Denver Downtown Hotel, Denver, USA, Sep. 5, 2012.
- ⑰ 凶師知文, 大毛利健治, 山田啓作, 渡邊孝信, “分子動力学法による立体構造シリコン中の熱輸送シミュレーション,” 第73回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学城北地区・松山大学文教キャンパス, 松山, 2012年9月14日.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.watanabe.nano.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

渡邊 孝信 (WATANABE, Takanobu)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：367153

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし