

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 5 月 26 日現在

機関番号：17201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04240

研究課題名(和文) 格子欠陥による熱特性局所揺らぎの評価・制御手法の開発

研究課題名(英文) Development of evaluation and control method for local fluctuation of thermal characteristics near lattice defects

研究代表者

武富 紳也 (Taketomi, Shinya)

佐賀大学・理工学部・准教授

研究者番号：20608096

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：自由電子が寄与する金属材料の熱特性に関する局所特性評価手法は存在しない。また、微細化が進む半導体配線では、格子欠陥に起因した局所的な電気/熱抵抗が顕在化する。これら電気特性と熱特性には強い相関がある。本研究では等価回路網モデルを用いた評価手法を開発した。原子間距離に比例した局所電気抵抗を考慮することで、電気抵抗変動の力学応答と結晶方位依存性を評価した。未だ精度に問題が残るものの、簡便に局所電気特性を評価する手法としての可能性が示された。局所特性に影響する格子欠陥を制御するため、電気/熱ストレス下での電気抵抗測定、応力解析、模擬実験を行い、空隙による力学的異方性アニール手法について検討を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

金属材料中に不可避免的に含まれる格子欠陥は、材料の熱/電気特性に局所的なゆらぎを生み出している。また、金属の熱特性と電気特性には、自由電子の寄与という共通項があるため、お互いに強い相関を示す。本研究では、金属の原子構造のスケールから簡易的に金属の熱/電気特性を評価可能な手法を構築するため、等価回路網モデルの基盤を構築した。本手法の高精度化によって熱界面材料の開発や、半導体の高品質化に貢献が期待される。また、半導体配線中の格子欠陥を選択的に除去可能性を有する、力学的異方性アニールについても検討を行った。本手法は半導体の高品質化に寄与することが期待される。

研究成果の概要(英文)：It is difficult to characterize the local thermal properties of metal. In addition, local electric/thermal resistance due to lattice defects become a huge problem in fine semiconductor building. There is a strong correlation between those electrical and thermal properties. In this study, we have developed an evaluation method using an equivalent circuit network model. By considering the local electrical resistance proportional to the interatomic distance, the mechanical response and crystal orientation dependence of the electrical resistance were evaluated. Although there remains a problem with accuracy, the possibility as a simple method for evaluating local electrical characteristics has been shown. In order to control the lattice defects that affect the local characteristics, we conducted electrical resistance measurement under electrical/thermal stress, stress analysis, and simulated experiments, and investigated the mechanical anisotropic annealing method in the presence of gaps.

研究分野：材料力学

キーワード：格子欠陥 熱特性 電気特性 等価回路網

1. 研究開始当初の背景

高熱伝導率を有する材料は熱界面材料としての応用が期待され、世界中で研究開発が行われている。特に近年では理論計算科学の進歩に伴ってナノスケールの現象に着目した研究も活発になっている。例えば材料を構成する原子の格子振動によるフォノンを評価することで、熱輸送の素過程や微視メカニズムの詳細が理解され始めているが、例えば金属の熱伝導では自由電子の寄与が支配的であるため、フォノンのみならず自由電子の影響を評価する必要がある。また一方、我々の日常を支える半導体デバイスで現在主流となっている銅配線成膜プロセスでは、メッキにて配線材料を作製後にアニール熱処理（材料の高温保持による組織安定化）が施されるが、メッキ直後の材料内部では通常は高エネルギープロセスに起因して欠陥密度が非常に高くなっており、材料内部に蓄えられた内部エネルギーを駆動力とした熱活性化過程によってアニール後に欠陥密度が減少する。しかしながら、昨今開発されている配線幅が 20nm を切るような極端な微細化に際しては、従前のアニール技術では残存してしまう幾何学的な格子不整合を生じる欠陥（粒界・転位・空孔など）に起因した電気抵抗増加の問題が顕在化する。材料中には不可避免的に一定量の欠陥が存在するため、高品質な半導体デバイス作製には配線材料選択のみならず、微視組織制御による格子欠陥のデザインが今後ますます重要になってくる。以上のような金属中で生じる熱/電気抵抗は、ともに自由電子の影響が大きく、Wiedemann-Franz 則に示される通りこれらの物性値には非常に強い相関がある。しかしながら格子欠陥近傍の局所的な特性変動は、実験による測定や解析的導出が困難であるため系統的評価はなされておらず、局所特性に関する知見が不足している。

2. 研究の目的

本研究では、斬新な方法論によって各種格子欠陥により誘起される熱特性の局所変動を予測可能な解析手法の開発に取り組む。本手法を用いて高熱伝導率化のために優先的に低減させるべき欠陥構造の特定や最適な欠陥デザインを探索し、格子欠陥による特性変動を予測し、より先進的な熱伝導評価システムを構築し学術体系化を目指す。さらに、欠陥デザインを実現するために力学的効果を付与した熱処理条件の探索を行い、格子欠陥の選択的デザインプロセスを開発する。これらの研究を通じて、欠陥ごとの熱特性理解による学術体系の深化、格子欠陥デザインによる半導体配線や熱界面材料への応用展開を目的とする。

3. 研究の方法

金属の熱特性評価には直接的な実験として例えば熱伝導率の計測がおこなわれる。一方で理論計算的には自由電子の影響を評価することになり、最終的には電気特性から換算することとなる。本研究では強い相関を有する熱特性と電気特性をほぼ同一であるとした仮定からスタートし、電気特性から熱特性を評価する。

(1) 銅単結晶材の結晶方位 - 電気抵抗測定と等価回路網モデルの妥当性評価

まず銅単結晶材の結晶方位を X 線ラウエ法によって特定し電気抵抗の結晶方向依存性を確認する。次に、原子間を仮想的な抵抗とみなした等価回路網モデルを考え (Fig.1: FCC 単位格子と第 2 隣接原子までの等価回路網モデル)、仮想的原子間抵抗値が原子間距離によってのみ変化すると考える。この等価回路網モデルの回路方程式を解くことで系全体の合成抵抗を求める。得られた数値解析結果と実験結果の比較検討から解析モデルの妥当性評価と精緻化に努める。

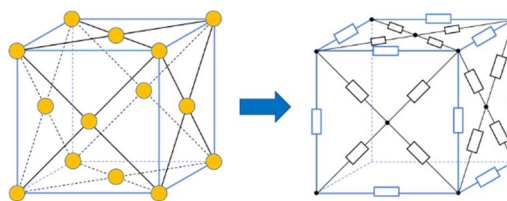


Fig.1 Equivalent circuitry model

(2) 力学的異方性アニールによる欠陥制御

実際の半導体配線プロセスと同様の金属埋込微小構造体をメッキにて製作し、熱的、電氣的ストレスによる電気抵抗値の変動ならびに欠陥挙動を確認する。これを踏まえて、配線周囲の適切な箇所に空隙を導入することでアニール処理の熱エネルギーのみでなく、線膨張係数差に起因する力学場の重畳効果によって選択的に格子欠陥量を低減させる力学的異方性アニール条件を探索する。このとき、まずは有限要素法を用いた応力解析を実施することで、空隙の有無による力学的な効果を定量化するとともに、実機にて同様の試験を実施し、その効果を検討する。

4. 研究成果

(1) 銅単結晶材の結晶方位 - 電気抵抗測定と等価回路網モデルの妥当性評価

供試材には純度 99.99% 以上で表面法線方向が(100)の Cu 単結晶材(MTI corporation 製, 10 × 10 × 1mm), および市販の Cu 多結晶材を用いる。事前に X 線背面ラウエ法を用いて Cu 単結晶の面内結晶方位を調べる。電気抵抗測定には, 四探針法を用いる。探針間距離が 1.6mm の微小プローブ(Hioki 製)を用い, ナノボルトメーター(Keithley 2182A/6221)を用いて定電流にて測定を行った。平均値フィルターを用いて 15 回の測定の平均値を 500 回測定し, さらに平均をとることで抵抗値と標準偏差を算出する。結晶方位依存性を調べるため, 試験片の下に回転ステージと秤をおき四探針プローブにかかる荷重を一定にし, 測定角度を変えて測定を行った。試験片の寸法, プローブの押しつけ荷重, 負荷電流の影響について予備検討を行い, 10 × 10mm の単結晶銅と多結晶銅に対し, 荷重 90g, 50mA の条件下で実験を行うこととした。得られた実験結果を Fig.2 に示す。単結晶では[100]方向が 0° となるよう配置した。多結晶材では角度によらずほぼ一定の抵抗値となり, 単結晶材でも微小な変動がみられるものの, ほぼ一定の値となった。

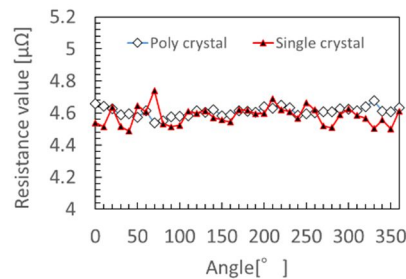


Fig.2 Resistance of poly and single crystals for different angle

Cu の特定の結晶方向に一樣電流 I が流れるモデルを考え, 第一隣接および第二隣接原子間だけの抵抗を考慮に入れた。電圧降下の測定値を V とすると, Kirchhoff の第一, 第二法則, オームの法則より連立方程式を立てることができる。本研究では数値解析ライブラリ LAPACK と DGELS を用いて最小二乗解を算出し, 原子間に流れる電流 X を求めるプログラムを作成した。電流の流れ込む入力原子と電流の流れ出す出力原子を 1 つずつ選択し, その入出力原子間の電流が流れる経路の長さを L [32] として二次元解析を行った。なお, [100]方向の実験との比較から, 原子間の仮想抵抗値は距離に係数 0.31 ρ/L を乗ずることで求め, 実験結果との比較を行った。また, 同様の手法で三次元モデルを用いた解析も行った。解析と実験によって得られた抵抗率を比較した結果を Fig.3 に示す。なお, 実験結果は Fig.2 を元に, 同一結晶方位ごとにまとめて平均化した。実験結果は, ほぼ一定の抵抗率になっている。一方で解析結果では二次元でも, 三次元でも特に 45° つまり[110]方向の抵抗が小さくなっている。次に, 前述の[001]方向解析モデルを用いて, 単軸のひずみを負荷した場合の抵抗率の変化率を求めた結果を Fig.4 に示す。2次元解析, 3次元解析ともに, ひずみゲージに応用されるようにひずみに対して線形応答が得られる。このことから, 現状では精度に問題を残すものの, 考慮する原子間抵抗の影響範囲の追加や, 解析領域の拡大の検討等によって, 本解析手法が簡易的に局所電気特性を推定する評価手法として利用できる可能性が示された。

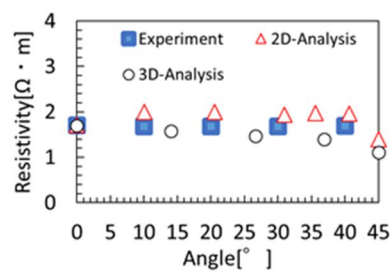


Fig.3 Comparison with experimental and analysis results

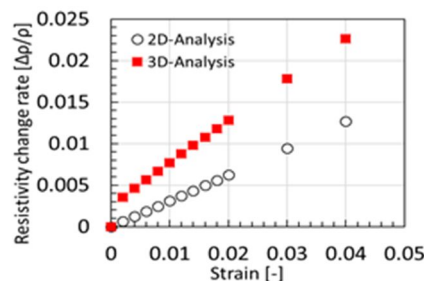


Fig.4 Relationship between strain and resistivity

(2)力学的異方性アニールによる欠陥制御

半導体表面に露出した配線金属に対して負荷電流 5.5A ~ 6A の範囲で試験体温度が 350°C で一定となるようにストレスを印加したところ, Fig.5 に示すように明瞭な抵抗値上昇を確認した。これにより, 対象の半導体配線試験体には, ストレス印加により駆動可能な初期欠陥が多量に潜在しており, そのマクロな挙動として電気抵抗値の変動を検出したと考えることができる。次に, 同様の試験条件を模擬して半導体埋込配線モデルを対象として有限要素法を用いた応力解析を実施したところ, 配線側壁に空隙を導入した場合, 内部応力が緩和し, 局所的にほぼ応力フリーの状態を実現できることが確認できた。その実証として, 実際の埋め込み配線の端部に空隙を導入し, 350°C にて高温保持試験を実施した結果, 配線内に空孔のみならず, 配線上部の保護膜の剥離が空隙近傍で生じた。これは導入した空隙が配線/保護層界面の初期き裂として作用したためであると考えられ, 空隙の導入設計指針として新たに考慮すべき要件を見出せた。

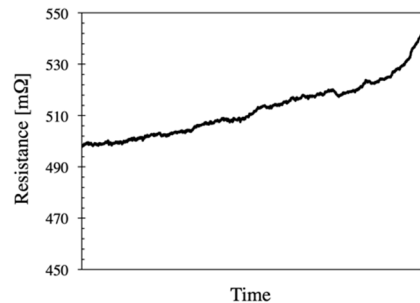


Fig.5 Resistance change of interconnect

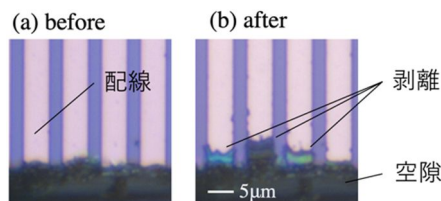


Fig.6 Thermal storage test result

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 山本裕樹, 武富紳也, 宍戸信之, 萩原世也
2. 発表標題 単結晶Cuの電気抵抗と合成抵抗による評価手法の妥当性の検討
3. 学会等名 日本材料学会 第6回マルチスケール材料力学シンポジウム
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	宍戸 信之 (Shishido Nobuyuki) (00570235)	近畿大学・理工学部・講師 (34419)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------