

# アトミックレイヤープロセスにおける表面反応解明のための 第一原理計算の可能性と課題

## Abilities and Issues of First-Principles Calculations for Elucidation of Surface Reactions in Atomic Layer Processing

阪大ナノセンター ○山崎 隆浩

Osaka Univ.

E-mail: Yamasaki.takahiro@insd.osaka-u.ac.jp

半導体デバイスの加工技術として原子層エッチング (ALE) 法や原子層堆積 (ALD) 法などのアトミックレイヤープロセス (ALP) があるが、デバイス高集積化の進展に伴いこれらの技術は死活的に重要なものになってきた。NAND フラッシュメモリなどの最先端デバイスでは高集積化のために平面的デバイス構造を多数積層する 3次元化が進んでおり、積層構造を貫通する孔をあけ金属を埋め込む工程で ALP が必要とされている。絶縁膜や金属の表面状態制御、プリカーサーや還元剤あるいは酸化剤の選択、ガス流用や温度といったプロセスウィンドウの最適化のために、実験・観察だけでなく、シミュレーション技術も大きな役割を果たすと考えられる。3次元化したデバイス構造では、アスペクト比 (深さと直径の比) 100 の孔の底から排出される副生成物の振舞いまで理解する必要があるが、平面での in-situ 計測だけでは、とても予測できない。特に分子が表面へ飽和吸着する反応、還元剤あるいは酸化剤分子が吸着しているプリカーサー分子の余分な基を取り去る反応などは、第一原理計算で扱うのに適している。第一原理分子動力学法は、近年の計算機と計算手法の進展によりシミュレートできる系の規模と時間が大きくなってきた。密度汎関数理論に基づいた平面波基底の第一原理計算プログラム PHASE/0[1]では千原子規模の系であれば10ピコ秒程度の有限温度計算が可能である。絶縁膜あるいは金属表面の状態 (化学量論比の変動や表面修飾の程度) を複数用意し、これと各種のプリカーサーの吸着過程をシミュレートし活性化エネルギーを評価するといった用途に使える。しかし、より大規模な系のより長時間のシミュレーションを行ってプロセスウィンドウを最適化するという用途にはまだ力不足であろう。古典的分子動力学法は、大規模、長時間のシミュレーションが可能であるが、力場の開発に困難を伴うことが多い。このように第一原理計算と古典的手法にはそれぞれ長所短所があるが、相補的に使うことによって現実に起こっている ALP での表面現象を理解する助けになるであろう。本講演では、これまでわれわれが行ってきたいくつかのシミュレーション[2,3,4,5]を例にして、第一原理計算 (および古典分子動力学法) の可能性と課題について述べる。

[1] T. Ohno, T. Yamamoto, T. Kokubo, A. Azami, Y. Sakaguchi, T. Uda, T. Yamasaki, D. Fukuta and J. Koga, *Proceedings of the 2007 ACM/IEEE conference on Supercomputing (SC'07)*, 2007, No57.; <https://azuma.nims.go.jp/>

[2] T. Yamasaki, Y. Ono, J. Nara, and T. Ohno, *International Symposium on Epitaxial Graphene 2017*, O14.

[3] S. Takamoto, T. Yamasaki, J. Nara, T. Ohno, C. Kaneta, A. Hatano, and S. Izumi, *PRB***97** (2018) 125411.

[4] 山崎, 田島, 金子, 奈良, 清水, 加藤, 大野, 第64回応用物理学会春季学術講演会(2017) 17a-301-4.

[5] So. Takamoto, T. Yamasaki, T. Ohno, C. Kaneta, A. Hatano, and S. Izumi, *J. Appl. Phys.*, **123** (2018), 185303.