



Title	Molecular Dynamics simulations of surface atomic processes in ion-beam and plasma etching
Author(s)	Mauchamp, Aini Nicolas
Citation	大阪大学, 2022, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/89620
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

Abstract of Thesis

Name (MAUCHAMP NICOLAS AINI)	
Title	Molecular Dynamics simulations of surface atomic processes in ion-beam and plasma etching (イオンビームおよびプラズマエッチングにおける表面原子過程の分子動力学シミュレーション)
Abstract of Thesis Over the last century, thanks to the constant improvement of manufacturing techniques, the typical sizes of semiconductor devices steadily decreased to reach atomic scales. At such small scales, further size reducing becomes very challenging and expensive. As traditional planar structures were reaching their scaling limits, device structures shifted from planar structures to three-dimensional (3D) structures such as FinFET, while layers of semiconductor devices are vertically stacked in skyscraper-like structures to increase device density as in 3D NANDs memories. In parallel, the development of new devices, such as MRAMs memories, requires the use of new materials which require the use of new processing techniques. Plasma etching processes, which are widely used in semiconductor device manufacturing, consists in removing atoms from the material surface by bombarding it with incident particles, typically ions and radicals. The numerous theoretical and experimental studies on sputtering contributed to a better understanding of the sputtering mechanisms. However, none of these studies give a comprehensive understanding of the etching mechanisms and of its dependency on physical quantities such as the incident energy or the atomic mass. In this thesis, the physical etching of a material surface is studied using molecular dynamics (MD) simulations, to obtain a better understanding of the sputtering mechanisms dependency on physical parameters. Physical sputtering was first studied for a LJ solid, i.e., for a material made of atoms interacting through a simple two-body potential function, the Lennard-Jones (LJ) potential function. When the incident particles are of the same species as the material atoms, i.e., for self-sputtering, all interactions were represented by the same LJ potential function. It was found that the physical sputtering yield only depends on the normalized incident energy, defined as the ratio of the incident energy to the bonding strength of the LJ potential functions, and on the incident angle. It was also found that the potential function at low interatomic distances plays an important role in the evaluation of the physical sputtering yield, especially at high incident energies. When incident particles and the material atoms are of different species, i.e., for sputtering, interactions were represented by two distinct LJ potential functions. The physical sputtering then depends on two additional parameters, the ratio of the masses and the relative interaction range. For actual materials, these two parameters were found to be strongly correlated and to vary within a narrow range, which explains why similar physical sputtering yields are observed for incident species of different masses. The self-sputtering of a nickel (Ni) material was then studied for several potential models obtained by modifying the repulsive part of existing Embedded Atom Method (EAM) potential function for bulk Ni. It was found that, although each potential model is accurately reproducing Ni mechanical properties, the obtained self-sputtering yields were quite different, especially at high incident energies. Lastly, trench etching of silicon (Si) surface covered by silicon dioxide (SiO₂) hard masks was studied for chlorine (Cl) ion beam etching (IBE) and chlorine-based reactive ion etching (RIE). The study of the etching properties of Si and SiO₂ surfaces by IBE and RIE showed that, although sputtering yield of Si is larger than one of SiO₂, both materials present similar etching rate due to the lower Si density in SiO₂ than in Si. Trench etching of Si surfaces by IBE and RIE was then studied. For IBE, the etched trench presents a tapered profile, indicating that etching takes place faster at the center of the trench than near the sidewalls. For RIE, the trench presents a wider and flatter profile, indicating a better pattern transfer compared to IBE.	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (MAUCHAMP NICOLAS AINI)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教授	浜口 智志
	副 査	教授	佐野 智一
	副 査	教授	田中 学

論文審査の結果の要旨

本研究は、分子動力学シミュレーションを用いて、高エネルギー入射イオンにおける物質のスパッタリング現象を解析したものである。スパッタリングとは、高い運動エネルギーを持つイオンや中性原子が物質に衝突することにより、物質表面近傍の原子が、表面から脱離する現象をさす。スパッタリング現象における、スパッタリング・イールドとは、イオンまたは原子等の入射一回につき、脱離する表面原子の平均数を意味する。入射するイオンまたは原子と、物質を構成する原子が同じ種類の原子の場合、スパッタリングは、セルフスパッタリングと呼ばれる。この場合、実験では、入射イオン種が（中性化して）反射されたのか、表面原子種が脱離したのかの区別がつかないため、計測されたスパッタリング・イールドが1未満であれば、入射原子が表面に堆積し、照射対象物質の質量は増加する。高エネルギーのイオンあるいは原子が物質に侵入する際、物質表面近傍の原子と衝突することにより、物質を構成する原子にエネルギーと運動量を与える。スパッタリング現象は、これら物質側の原子が更に衝突を繰り返す（衝突カスケードをおこす）ことによって、一部の表面近傍の原子が表面から飛び出すことによって生ずる。この現象は極めて非線形性が高く、スパッタリング・イールドを、入射イオン種・表面物質原子種、イオン入射エネルギー等の関数として、数式により解析的に表現するのは極めて難しい。一方、古典分子動力学（MD）シミュレーションを用いて数値的にスパッタリング現象を解析することは可能である。特に、古典分子動力学シミュレーションで用いる原子間ポテンシャルを、実際の原子の原子間相互作用を近似するように正しく表すことにより、実験で計測されたイールド値を、数値シミュレーションを用いて再現できることは、これまでの研究からも知られていた。

一方、各種物質の、各種入射イオンに対するスパッタリング・イールドを正しく評価することは、学術的興味ばかりでなく、実用的な価値も極めて高い。例えば、現在の最先端半導体デバイスは、大きさが数ナノメートルの微細構造を持つ素子から構成されており、その製造工程で、極めて精密な超微細加工を行う必要があるが、この超微細加工に用いられるのが、反応性プラズマによるスパッタリングを活用したエッチング技術である。

こうした背景のもと、本研究では、原子間相互作用とスパッタリング現象の関係を明らかにすることを目的に、各種の原子間ポテンシャルモデルを用いてMDシミュレーションを実行し、スパッタリングイールドをイオン入射エネルギーおよび入射角の関数として評価している。特にスパッタリング現象においては、入射イオンによる表面の荒れや、異種イオンの入射の場合に形成される表面混合層の性質とスパッタリングイールドが密接に関係しているため、多数のイオン入射後に、システムが「定常状態」になるまで、シミュレーションを行うことが極めて重要である。本研究は、まず、固体を表現するのに最も広く用いられているレナード・ジョーンズ型の原子間相互作用モデル（LJ ポテンシャル）を用いて、固体のスパッタリング現象を解析している。多くの単原子物質の物性が、LJ ポテンシャルを用いることにより近似的に表現されることが知られているが、LJ ポテンシャルを用いた MD シミュレーションで得られたスバッ

タリング・イールドと、実験的に得られたスパッタリング・イールドを比較することにより、本研究は、スパッタリングのスケーリング則を明らかにしている。特に、これまで実験的に知られていた、スパッタリングイールドが、入射イオンの質量に弱くしか依存しない理由を、本研究により、世界で初めて明らかにしたことは、極めて意義深い。

また、原子間の多体相互作用を取り入れた、より精密な原子間ポテンシャルモデルである、原子挿入法 (EAM) を用いたニッケル (Ni) のスパッタリング・イールドの評価においては、原子間結合力の精度ばかりでなく、1000 V 以上等の高エネルギーイオン入射時において、原子間反発ポテンシャルの精密なモデル化が必要不可欠であることを明らかにしている。更に、より現実的な系として、反応性イオンエッチング (RIE) の数値シミュレーションを、Stillinger-Weber 型のポテンシャル関数を用いた MD シミュレーションにより解析している。具体的には、塩素イオンビームおよび塩素プラズマによる、シリコン酸化膜をマスクにしたナノメートル・スケールのシリコン・レンチのエッチング現象を、原子レベルで解析している。この結果、原子スケールのマスクの変形により、トレンチ形状の精度の確保が難しいことを明らかにしている。こうした結果は、実験観測とも定性的に良く合致している。このように、本研究の成果は、ナノメートルスケールの構造体の微細加工プロセスには、原子層エッチング (ALE) のような、より精密なエッチングプロセスの開発が重要であること示唆している。

以上のように、本論文の研究において、申請者は、原子間相互作用関数とスパッタリング率の関係を明らかにすることにより、高エネルギーイオン照射におけるスパッタリング現象の本質を学術的に解明すると同時に、実用的な半導体エッチングプロセスの今後の研究開発に関する重要な指針を示している。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。