

4H-SiC(0001)表面の CO₂ 雰囲気中熱酸化機構に関する考察

Insight into thermal oxidation mechanism of 4H-SiC(0001) surface in CO₂ ambient

関学大工 (B)出口 竜大, °細井 卓治

Kwansei Gakuin Univ. Ryuta Deguchi, °Takuji Hosoi

E-mail: hosoi.takuji@kwansei.ac.jp

【はじめに】SiCの熱酸化はDeal-Groveモデルで説明でき、一般的な大気圧 O₂ 熱酸化の界面反応律速過程の活性化エネルギーは4H-SiC(0001)面で2.9 eVと報告されている[1]。一方で、超高温大気圧 CO₂ 雰囲気中熱酸化でも界面反応律速が観測されており、その活性化エネルギーは7.5 eVと非常に高いこともわかっている[2]。この活性化エネルギーから考えると、1300°C付近ではほぼ酸化が進行しないことになるが、前回我々は1250~1350°Cの範囲で大気圧 CO₂ 熱酸化を行い熱酸化が進行することを確認した[3]。今回、CO₂ 熱酸化機構について考察したので報告する。

【実験および結果】図1に大気圧 CO₂ 熱酸化を行って得た酸化速度(線形領域)のアレニウスプロットを示す。上述したように1500°C以上では、活性化エネルギーは7.5 eVと非常に高く、SiO₂/SiC界面でSiO₂から酸素原子がSiC側に移動することで、SiCが酸化されると同時にSiO₂中に形成される酸素空孔をCO₂が補償することにより酸化膜が成長すると考えられる[4, 5]。一方で、1250~1350°Cの範囲の活性化エネルギーは2.9 eVとなり、大気圧 O₂ 熱酸化と一致した。1300°Cでの酸化速度0.03 nm/minは、Ar希釈1% O₂ 熱酸化(0.05 nm/min [6])に近いことから、CO₂分子から解離したO₂分子が酸化種となっている可能性がある。しかし、1600 K(1327°C)での熱平衡状態下におけるCO₂の熱解離を計算[7]したところ、O₂濃度は0.04%となったことから、解離したO₂分子のみによって酸化が進行しているとは考えられない。CO₂酸化機構をより詳細に調べるため、0.1 atmの減圧 CO₂ 雰囲気での熱酸化も行った。図2(a)のMOSキャパシタのC-V特性に示すように、60分間の酸化で酸化膜厚2.1 nmが形成された。さらに、図2(b)に示すように酸化膜厚が時間に対して線形に増加することがわかり、その酸化速度は0.01 nm/minとなった。CO₂が主要な酸化種であり、その供給のみで酸化反応が決定される場合は、大気圧酸化より1桁近く酸化速度が遅くなると考えられることから、単純にCO₂による酸化とも言い難く、複雑な反応が示唆される。減圧下でも大気圧下と同じオーダーの速度で酸化が進行したこと、30 nmのSiO₂層形成後に1300°C、30分間のCO₂熱処理を施しても全く増膜がなかったこと[2]を考えると、CO₂熱酸化には副生成物の脱離が強く関与していると考えられる。

【謝辞】本研究は文部科学省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業(JPJ009777)の助成を受けて行われました。

[1] T. Hosoi *et al.*, Appl. Phys. Lett., **109**, 182114 (2016). [2] T. Hosoi *et al.*, Appl. Phys. Express, **14**, 101001 (2021). [3] 出口他, 第83回応用物理学学会秋季学術講演会 21a-M206-1 (2022). [4] K. Chokawa *et al.*, J. Appl. Phys. **124**, 135701 (2018). [5] M. Q. Brisebourg *et al.*, J. Eur. Ceram. Soc. **38**, 4309 (2018). [6] T. Hosoi *et al.*, Appl. Phys. Express, **11**, 091301 (2018). [7] Y. A. Cengel and M. A. Boles, Thermodynamics: An Engineering Approach (8th ed.), Chapter 16, (McGraw-Hill Education, 2014).

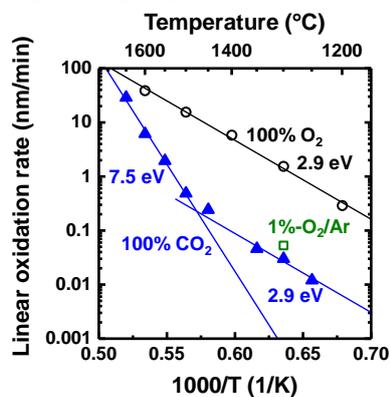


Fig. 1 Arrhenius plot of SiO₂ linear growth rate of CO₂ oxidation

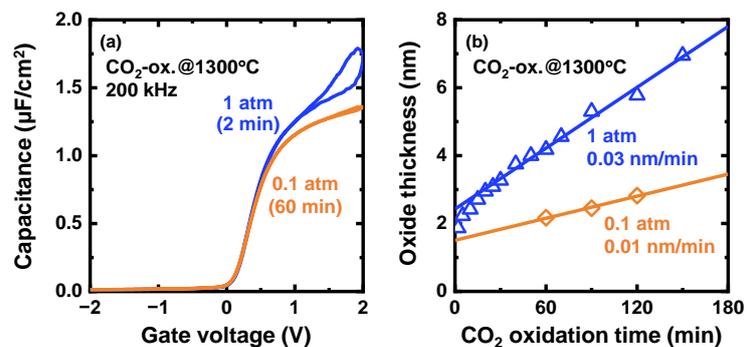


Fig. 2 (a) Bidirectional C-V curves measured at 200 kHz and (b) evolution of oxide thickness for CO₂ oxidation at 1 and 0.1 atm.