

ドライおよびウェット酸化種が共存する 4H-SiC/SiO₂ 界面での反応機構の理論検討 Reaction mechanisms at 4H-SiC/SiO₂ interface by the coexistence of dry and wet oxidants

三重大院工¹, 島根大院自然科学², 慶応大理工³, 名大未来研⁴

清水紀志¹, 秋山亨¹, 伊藤智徳¹, 影島博之², 植松真司³, 白石賢二⁴

Mie Univ.¹, Shimane Univ.², Keio Univ.³, Nagoya Univ.⁴

°Tsunashi Shimizu¹, Toru Akiyama¹, Tomonori Ito¹,

Hirofumi Kageshima², Masashi Uematsu³, Kenji Shiraishi⁴

E-mail: 419M609@m.mie-u.ac.jp

[はじめに] 4H-SiC/SiO₂ 界面における酸化速度は酸化雰囲気依存して変化し、ドライ酸化とウェット酸化では大きく異なることが知られている。また SiC では Si と異なり、ドライおよびウェット酸化種が共存する条件下において新たな酸化機構が出現し、界面反応律速過程における酸化速度が向上することが近年明らかにされている[1,2]。しかしながら、酸化種の共存下において出現すると考えられる酸化機構に対する理論的な検討はなされていないのが現状である。これまでに我々は、共存した酸化種の挙動を解明するため、ドライ酸化種(O₂ 分子)およびウェット酸化種(H₂O 分子および OH 基)が 4H-SiC/SiO₂ 界面上に共存している場合での反応経路探索を行い、ドライおよびウェット酸化との相違点について議論してきた[3,4]。本研究では、第一原理計算によって得られた結果に基づき界面反応レートを見積ることで、酸化速度のウェット酸化条件依存性を検討する。

[結果および考察] 第一原理計算に基づいた NEB 法により、O₂ 分子およびウェット酸化種(H₂O 分子または OH 基)が共存する界面における反応経路およびエネルギー障壁(E_b)を導出し、それぞれの酸化過程(単体のドライおよびウェット酸化[5,6]も含む)の反応確率の和として界面反応レートを算出する。Fig. 1 は、界面反応過程における E_b を用いて計算した Si 面における界面反応レートを r_{wet} の関数として表したものである。ここで r_{wet} は、全酸化種中におけるウェット酸化種の存在比率である。ドライおよびウェット酸化種が共存する Si 面 4H-SiC/SiO₂ 界面において、O₂ 分子および 2 個の OH 基による反応 ($2\text{Si-O-H} + \text{Si}_4\text{-C} + \text{Si-O-Si} + \text{O}_2 \rightarrow \text{Si-O-H} + \text{Si-H} + 2\text{Si}_3\text{-O} + \text{CO}_2$ [Fig. 1 の構造変化]) における E_b が最も低く、その値は 1.63 eV である。これは、Si 面におけるドライおよびウェット酸化での値(それぞれ 3.2 および 2.2 eV)[5,6]と比較して低い値をとり、実験値(1.3 eV)[2]と同程度の値をもつことが分かる。Fig. 1 より界面反応レートは r_{wet} に対して単調には増加せず、Si の熱酸化過程[1]とは異なっている。特に、 r_{wet} が高い領域において界面反応レートは大きく変化し、 $r_{\text{wet}}=0.65$ で最大値となる。これは、Si 面において O₂ 分子および 2 個の OH 基による反応が最も起こりやすいことに起因しており、2 個の OH 基が O₂ 分子と共存するためには多くの H₂O 分子が OH 基の供給源として必要になるためである。この結果は、実験において分圧の比が H₂O:O₂ = 6:4 の条件下で最も酸化速度が上昇していることと良い一致を示している。講演では、C 面における結果および面方位依存性についても議論する。

[参考文献] [1] M. Okamoto *et al.*, Mater. Sci. Forum **778**, 975 (2014). [2] K. Kita *et al.*, Microelectronic Eng. **178**, 186 (2017). [3] T. Shimizu *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SMMD01 (2020). [4] T. Shimizu *et al.*, ECS Trans. **98**, 37 (2020). [5] T. Akiyama *et al.*, Surf. Sci. **641**, 135 (2015). [6] T. Akiyama *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 04FR08 (2018).

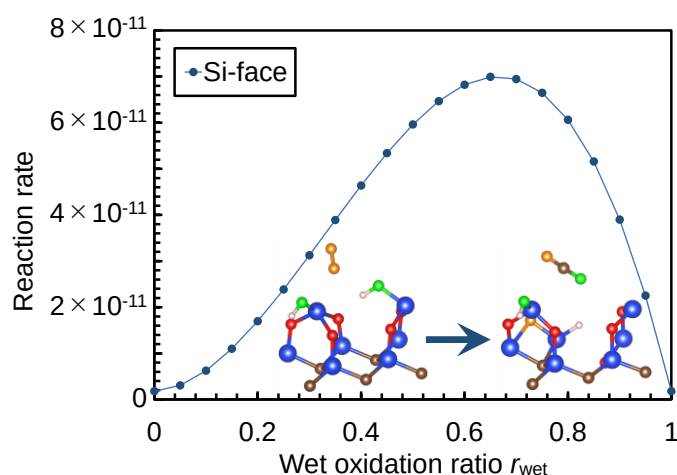


Fig.1 Calculated reaction rate at Si-face 4H-SiC/SiO₂ interface as a function of wet oxidation ratio r_{wet} . The geometries of the initial and final states for the reaction of O₂ molecule with two OH groups are shown in the figure. Blue, brown, red and pink circles represent Si, C, O and H atoms, respectively. Orange and green circles denote O atoms of O₂ molecule and OH groups.