

第一原理分子動力学法によるシリコン(100)表面における初期酸化過程の解析

東大院工^A, IPCMS^B, 阪大基礎工^C

○小泉健一^A, Mauro Boero^B, 重田育照^C, 押山淳^A

Microscopic Mechanisms of Initial Oxidation of Si (100): Reaction Pathways and Free-Energy Barriers

The University of Tokyo^A, IPCMS CNRS-University of Strasbourg^B, Osaka University^C

Kenichi Koizumi^A, Mauro Boero^B, Yasuteru Shigeta^C, Atsushi Oshiyama^A

1. はじめに

シリコン表面の酸化過程は、MOSFETのゲート絶縁膜生成のプロセスに直結することから、古くより多数の第一原理計算による解析が報告されて来ている。表面における化学反応過程のプロセスを追求することは、表面科学の大きな問題の一つであり、第一原理分子動力学シミュレーションが強力な手段となる。酸素分子の結合エネルギーは5eVとかなり強い結合であるため、これをシミュレートするためには、化学結合をいったん切って、さらに組み替える手段が必要であると考え、自由エネルギー曲面を強制的に埋め立てて化学反応を促進させるMetadynamics (MTD)と拘束によって、仮定された反応経路に従って強制的に化学反応を引き起こさせるBlue Moon ensemble(BME)を組み込んだ第一原理分子動力学法 (Car-Parrinello法)によってシリコン(100)面における初期酸化過程を解析した。どちらの手法も化学反応に必要な自由エネルギーバリアを算出できる

2. シリコン酸化過程の第一原理分子動力学計算

Kato等によって報告されているシリコン(100)表面でのバックボンドへの酸化過程をMTDにより調べた[2]。その結果Kato等のメカニズムとは異なり、シリコンダイマー上をキャップする構造が現れた。この結果が妥当であることはBMEによる補助的な計算によっても裏付けられた。この過程は、幾分かのエネルギーバリアを超える過程である。一方、2005年にケンブリッジのグループによって自発的な酸化過程が見いだされた[3]。我々はダイマーがキャップされた状態においても上述の自発的なメカニズムが起こりうることを見いだした。さらに、このようなキャップされた状態においては、酸素分子にシリコン表面からの電子移動がおこるためダイマー間の結合が切れることがわかり、この切れたダイマーを構成している原子は比較的自由に動くため、吸着した酸素は、となりのダイマー列にまで直接酸化反応を起こすことができることを見いだした。

【参考文献】

- [1] H. Watanabe *et al.* Appl. Phys. Lett. **85**, 449, (2004)
- [2] K. Kato *et al.* Phys. Rev. B **62**, 15978, (2000)
- [3] L. C. Ciacchi and M. C. Payne, Phys. Rev. Lett. **95**, 196101, (2005)

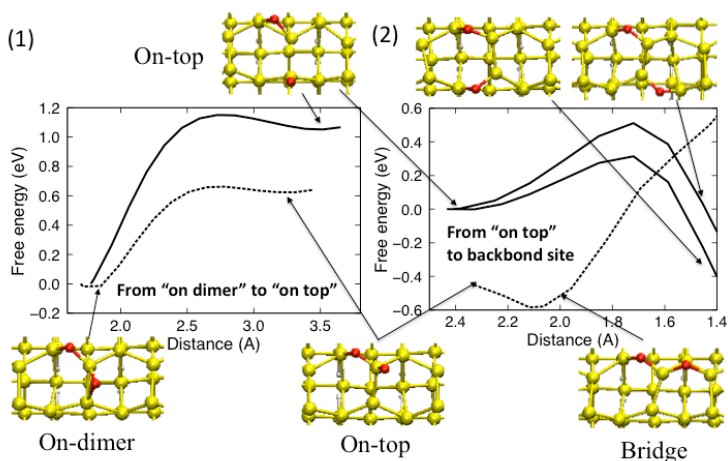


図: Blue Moon ensemble による on-dimer site から backbond への酸化過程 (1) on-dimer site から on-top site への反応過程。 (2) on-top site から backbond あるいは bridge site への反応過程。