

Title	Microscopic theory of initial oxidation on Si (100) surfaces
Author(s)	宮本, 良之
Citation	大阪大学, 1991, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3054417
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏名・(本籍)	みやもと よしゆき 宮 本 良 之
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	第 9 5 3 0 号
学位授与の要件	平成 3 年 2 月 26 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
学位論文題目	Microscopic theory of initial oxidation on Si (100) surfaces (結晶表面の酸化初期過程)
論文審査委員	(主査) 教 授 吉 森 昭 夫 (副査) 教 授 望 月 和 子 教 授 菅 滋 正 助 教 授 張 紀 久 夫

論 文 内 容 の 要 旨

本研究は、Si 酸化の機構を微視的に明らかにするために、理論によるアプローチを試みたものである。経験的なパラメータを必要としない電子状態の計算手法を用いて、全エネルギーと各原子に働く力を計算し、酸素の安定な吸着位置と酸化に伴う Si 原子位置の変位を調べた。本研究は、Si 酸化の物理に対する基本的な知見を提供するのみならず、Si を用いた電子デバイス技術の基礎となるものである。

第一章では、本研究を開始した動機及び従来行なわれてきた研究の問題点についてまとめている。また、Si (100) 表面の原子配列がダイマーを作ることも簡単に紹介している。

第二章では、本研究を行う際の計算手法について紹介している。擬ポテンシャルと gauss 型基底関数列を用いた、局所密度汎関数法による全エネルギー計算及び各原子に働く力の計算の表式を示してある。更に、本研究の際の数値計算の条件も示されている。

第三章では、本研究で得られた酸化の過程を以下の三つの段階に分けて報告している。まず第一には、酸素分子は Si (100) 表面の殆どのサイトで解離する。酸素分子を、Si (100) 表面のダイマーの真上、隣合うダイマーの間、ダイマーが作る列と列の間へと近づけていくと、いずれの場合にも解離して分子のままでは表面上に居られない。解離のメカニズムは、Si ダイマーにある表面ダングリングボンドから酸素分子の反結合性 π 軌道への電子の移動として理解することができる。続いて第二には、分子の解離した場所に依存して、酸素原子は Si (100) 表面上の Si ダイマーの真上、横、そして中の三つの箇所へ吸着する。初めの二つは準安定な構造で、Si (100) 表面のダイマー構造は保存されている。最後の吸着位置は最も安定な構造で、ダイマー構造の名残は消えている。各々の位置での酸化の際の生成熱を見ると、酸化は発熱反応である。最も安定な吸着位置での、酸素原子の振動エネルギー及び電子の状態密度

は、比較の対象となる実験データとつじつまが合う。Si 原子と酸素原子の成す結合は半分イオン性を示している。最後に第三には、表面上を一原子層の酸素原子で覆って全てのダングリングボンドを塞いだ後も、更に酸素分子が浸透し表面第一層目と二層目の Si 原子の間に解離した酸素が吸着する。吸着した後に出現した構造は、ある部分では酸化珪素 (SiO_2) の多形の中で最も安定な α -クォーツの局所構造に似ているし、その他の部分では高圧相のスティショパイトの局所構造にも似ている。このことは、この段階で高い圧力が系に働いていることを示唆している。酸化の際の生成熱を見ると、驚くことにこの段階でも、酸化は発熱反応であることが解った。

第四章では、計算によって得られた結果から Si (100) 表面及びその他の表面についての酸化の過程を議論している。初めに、Si (100) 表面以外の面での酸素分子吸着の可能性を議論している。次に、酸化の動的過程について議論している。我々は、まだ酸化が進んでない領域への酸素分子の拡散が、酸化を進める過程を担っていると考えている。最後に、本研究ではまだ考慮されていないことだが、酸素原子と Si 原子の酸化膜界面に於ける最も適した化学組成と、酸化に伴い発生した圧力が及ぼす系の構造への影響を理論的に調べるには何を成すべきかを述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文はシリコン (100) 表面の初期酸化過程即ち酸素吸着過程について、経験的なパラメーターを必要としない、いわゆる第一原理に基づく全エネルギー計算、及びそれに基づいて得られる各原子に働く力の計算を吸着過程の詳細にわたって行い、その結果を詳しく解析したものである。計算は現在全電子基底状態の固有エネルギーに対して実行可能でもっとも信頼できるとされている局所密度汎関数法を用いて行っている。計算の信頼度をバルクシリコン、シリコン (100) 清浄表面、孤立酸素分子などの基底状態で確かめた後、酸素吸着の初期過程について詳しい計算を行い、酸素分子はシリコン (100) 表面では表面のどのサイトでも解離する事、解離の機構はシリコン表面のダングリングボンド状態にある電子が酸素分子の反結合軌道に入るためであること、もっとも安定な吸着位置とその他に二種類の準安定な吸着位置が存在することを見いだした。また吸着が発熱反応であること、もっとも安定な吸着位置での諸パラメーターは実験結果と矛盾がないことを見いだしている。さらに飽和吸着の後もシリコン第二層への酸素の解離吸着が起こること、このことにより形成される新しい界面構造の可能性を指摘している。以上シリコン (100) 表面における酸素の吸着過程について重要な知見を与えるもので、学位論文として価値あるものと認める。