博士論文（要約）

Si及びSiCの酸化のダイナミクスを再現する電荷移動型原子間ポテンシャルの開発と酸化メカニズムの解明

高本 聡

論 文 の 内 容 の 要 約

論文題目　　Si及びSiCの酸化のダイナミクスを再現する
電荷移動型原子間ポテンシャルの開発と酸化メカニズムの解明

氏　　名　　高本 聡

半導体プロセスにおいて，熱酸化による高品質な酸化膜の作成はデバイス製造における重要な要素となっている．Siが主要な半導体デバイス材料である理由として，熱酸化によって非常に高品質なSi/SiO_2界面が作成可能であることがあげられる．近年ではSi半導体の製造プロセスはナノメートルオーダーに迫りつつあり，界面での応力蓄積のメカニズムなどに対する原子スケールでの酸化プロセスの解明が重要となってきている．

また，次世代パワーデバイスとして注目されているSiCは，Siと同様に熱酸化によりSiO_2酸化膜が作成できるという特徴がある．しかし，作成されるSiC/SiO_2界面は界面準位密度が高く，界面の質の向上が実用化に向けて解決すべき問題点となっている．SiCでは界面および酸化膜の形成になんらかの形でCが影響していると考えられている．しかしながら，界面のネットワーク構造やCクラスタの状態など，原子論的な現象の解明には至っていない．また，SiCの酸化には強い面方位依存性があり，Si面とC面では酸化速度および作成される界面の質が異なるなど，Siの熱酸化の理論では説明できない興味深い現象が発生している．

SiCの熱酸化ではSiC/SiO_2界面近傍で形成されるとされるCクラスタの挙動が注目されているが，同様にSiC表面のCクラスタが注目されている現象として，SiC表面のSi熱脱離によるグラフェン成長がある．これは，真空中あるいは不活性ガス雰囲気でSiCを加熱することでSiを脱離させ，表面に積極的にCクラスタを形成することでグラフェンを作成するという手法である．良質なグラフェン作成を目的として様々な実験がなされており，ファセット面がグラフェン形成に関わっていることがわかってきているが，グラフェンの核生成や成長モードについて，原子論的な面からはいまだ不明な点が多い．

これらの現象解明のために，第一原理計算によるアプローチが数多くとられている．しかしながら，これらの現象は温度が高いためボンドの組み換えが頻繁に発生し長い時間スケールによる構造変化を伴うこと，また酸化膜の形成やSiの脱離など大規模な構造変化を伴い，応力の蓄積や原子の拡散などの大きな空間スケールの現象を扱う必要があ

る．第一原理計算は素過程の解明や安定構造の探索など静的な現象解明に留まっており，このような大規模な系を扱うために古典分子動力学法によるアプローチが望まれてきた．

そこで本研究では，電荷移動型ポテンシャルの作成を通して，これら酸化プロセスの原子論的な解明を行った．本研究では，電荷の移動による共有結合性-イオン結合性の変化に加え，様々な配位数における結合性の変化などを表現可能なポテンシャル関数形を提案した．また，活発なボンドの組み換えなどを表現するためLong-range型のロバストなポテンシャルを作成した．このためにMDによりサンプルした幅広い位相空間の構造を教師データとしてフィッティングを行った．

本論文は3つの研究を含む．

1つ目はSi-O系原子間ポテンシャルの開発とSiの酸化シミュレーションである．開発したSi-O系原子間ポテンシャルは，SiO_2アモルファス構造やSi/SiO_2界面構造を再現し，O_2分子の拡散や解離の活性化エネルギーを再現していることを確認した．得られた原子間ポテンシャルを使って，Si表面の真空層にO_2を挿入することによるSiの熱酸化プロセスを再現した．酸化膜の応力や界面遷移層の性質を調べ，実験結果と傾向の一致した界面構造が得られていることを確認した．また，界面での原子間距離や角度，界面近傍のSi原子の振る舞いに注目し，応力が蓄積される様子と応力解放のプロセスを再現した．

2つ目はSi-C系原子間ポテンシャルの開発とSiCの熱脱離によるグラフェン成長シミュレーションである．Cクラスタの挙動を再現するため，Tersoffポテンシャルのボンドオーダーを拡張し，環構造や直鎖構造など様々な結合の安定構造やエネルギー差を表現可能なポテンシャル関数形を提案した．得られた原子間ポテンシャルを使って，微傾斜SiC表面からのSi脱離によるグラフェン成長シミュレーションを行った．ステップからのSiの脱離によるグラフェンの核生成から2層目の生成までを再現し，実験から提案されていた成長モードを再現した．

3つ目はSi-O-C系原子間ポテンシャルの開発とSiCの酸化シミュレーションである．第一原理計算によるSiC/SiO_2界面構造のMDを教師データに組み込み，それらの構造における力などを再現する原子間ポテンシャルを作成した．ここでは，O_2分子の挿入によるSiCの酸化を再現し，Si面とC面の比較を行った．O_2分子の供給による酸化膜の成長を再現し，Siが優先的に酸化されることによるCクラスタの生成，Cを多く含む酸化膜の形成などを再現した．また酸化における面方位依存性について界面のSiのボンドのつながり方の違いを中心に考察を行い，Siのボンドの違いが酸化の速度および界面の構造に影響を与えていることを明らかにした．