

課題番号 : 2017B-E14
利用課題名 (日本語) : リアルタイム光電子分光を用いた非平衡反応場における表面反応計測
Program Title (English) : Surface reaction investigation using real-time photoelectron spectroscopy in non-equilibrium reaction field
利用者名 (日本語) : 小川修一¹⁾, 多賀稜¹⁾, 堰端勇樹¹⁾, 吉田光²⁾, 吉越章隆²⁾
Username (English) : S. Ogawa¹⁾, R. Taga¹⁾, Y. Sekihata¹⁾, H. Yoshida²⁾, A. Yoshigoe²⁾
所属名 (日本語) : 1) 東北大学多元物質科学研究所, 2) 日本原子力研究開発機構
Affiliation (English) : 1) IMRAM, Tohoku University, 2) JAEA
キーワード : リアルタイム光電子分光、Si 熱酸化プロセス

1. 概要 (Summary)

温度や O₂ ガス圧力を急増させている最中の非平衡反応場での固体表面反応は、従来の平衡場での反応モデルから予測される膜厚よりも厚い酸化膜を形成することができるが、そのメカニズムについては未だ明らかになっていない。このような非平衡反応場における表面反応は形成される酸化膜と基板の間に生じる「酸化誘起歪み」が寄与しているのではないかとこの予測のもと、本研究ではシリコン (Si) 酸化過程において O₂ 圧力の非平衡反応場を創出し、そこにおける反応速度と歪みの大きさを時間分解光電子分光にて追跡した。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

本研究は SPring-8 の BL23SU に設置されている表面化学実験ステーションを用いて行った。化学洗浄した Si(001) ウェハを装置に導入後、真空中加熱により清浄 2×1 表面を得た。O₂ ガスを 4×10⁻⁶ Pa まで導入し Si(001) 表面を酸化させた。Si 表面が完全に酸化膜で覆われた後、O₂ 圧力を P₂ まで増加させた。酸化反応中は O 1s と Si 2p 光電子スペクトルを繰り返し連続で測定し、酸化反応中のスペクトルの時間変化を得た。これらのスペクトル変化から O₂ 圧力増加後の酸化速度 R₂ を求め、P₂ との相関を求めた。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

酸化開始直後の表面酸化では O 1s 光電子強度は急増し、Si 表面がすべて酸化膜で覆われた後は緩やかな界面酸化に転じた。O₂ 圧力を P₂ まで増加させると、酸化が促進された。P₂ 増加後の O 1s 強度の時間変化を指数関数でフィッティングし、圧力増加直後における初期速度 R₂ を求めた。その結果、R₂ は P₂ の 1/2 乗に比例することが明らかとなった。この結果は、従来の酸化反応モデルに基づくと、界面酸化は O₂ 分子の SiO₂ 拡散が界面酸化の反応律速であると結論される。しかし本実験に用いた酸化膜厚は 0.5 nm と極めて薄いこと、より厚い酸化膜領域でも SiO₂/Si 界面反応律速であることなどから、O₂ 拡散律速ではないと考えられる。今後は点欠陥発生が律速になる反応モデルを用いてこの実験結果の解釈を試みる。

4. その他・特記事項 (Others)

本研究は JSPS 科研費 JP16H05969 の助成を受けた。