

平成22年 3月 31日現在

研究種目：若手研究（A）  
研究期間：2007～2010  
課題番号：19686005  
研究課題名（和文） Deal-Grove理論に代わる新しいシリコン熱酸化速度理論の構築とその応用  
研究課題名（英文） Development and application of new kinetic theory for thermal oxidation of silicon replacing the Deal-Grove model  
研究代表者  
渡邊 孝信（WATANABE TAKANOBU）  
早稲田大学・理工学術院・准教授  
研究者番号：00367153

研究分野：電子材料工学、計算科学  
科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 薄膜・表面界面物性  
キーワード：表面・界面、電気・電子材料、ナノ構造形成・制御、分子動力学法、並列計算

### 1. 研究計画の概要

40年来の定説となっていた Deal-Grove 理論に代わる、シリコン熱酸化の新しい運動理論を構築する。研究代表者が見出した乾燥酸素雰囲気中のシリコン熱酸化モデルを拡張し、様々な実験条件下の酸化プロセスに適用できるようにする。また、分子動力学法による熱酸化プロセスシミュレータを開発し、初期増速酸化現象やパターン依存酸化現象など、ナノスケールシリコン構造体の複雑な酸化プロセスを正確に予測する技術を開発する。実際に加工されている寸法に近いシリコンナノ構造体の酸化シミュレーションを実現するため、シリコン・酸素混在系用の並列分子動力学計算プログラムを開発する。

### 2. 研究の進捗状況

#### (1) 新熱酸化理論の拡張

研究代表者が提案した乾燥酸素雰囲気中の酸化（ドライ酸化）の速度方程式を、水蒸気雰囲気中の酸化（ウェット酸化）も記述できるように拡張し、両酸化プロセスを統一的に記述できる一般酸化速度方程式を定式化した。またこの理論の枠組みで、長年の謎であったドライ酸化に見られる非線形な酸素分圧依存性の起源を説明することに成功した。

#### (2) 分子動力学法による酸化プロセスシミュレータの開発

研究代表者が有する Si<sub>3</sub>O<sub>2</sub> 混在系用の分子動力学シミュレーション技術を用いて、シリコン酸化膜中の酸素分子の安定サイトの分布状況を詳細に明らかにした。SiO<sub>2</sub>/Si 界面近傍約 1nm の領域で、酸素分子のポテンシャルエネルギーが上昇する様子が確認され、研究代表者の新理論の予測と一致する結果が

得られた。

さらにこのシミュレーション技術を応用してシリコンナノ細線のモデリングを実施し、酸化皮膜によって誘起されるシリコン細線内部の歪分布を詳細に明らかにした。ナノワイヤトランジスタの電気特性評価実験およびラマン分光測定とも比較を行い、本シミュレーション手法が酸化膜によって誘起されるシリコン格子歪の予測に有効であることを確認した。

(3) 並列分子動力学計算プログラムの開発  
研究代表者が有する Si<sub>3</sub>O<sub>2</sub> 混在系用の分子動力学シミュレーションプログラムを MPI で並列化した。大規模並列計算の結果を効率良く可視化する専用のグラフィック・ユーザ・インターフェースも合わせて完成させた。

#### (4) GeO<sub>2</sub>/Ge 界面のシミュレーション

研究代表者が有する Si<sub>3</sub>O<sub>2</sub> 混在系用の原子間相互作用モデルを Ge<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 混在系に拡張し、数万原子規模の GeO<sub>2</sub>/Ge 界面モデルの作製に成功した。GeO<sub>2</sub> 膜は SiO<sub>2</sub> 膜に比べてストレスが小さく、SiO<sub>2</sub>/Si 界面を凌駕する優れた界面を実現できることを示した。

### 3. 現在までの達成度

おおむね順調に進展している。

理由：当初の計画である(1)新理論の拡張（水蒸気酸化、高圧酸化）、(2)ナノスケールシリコン構造体の酸化プロセスシミュレーション技術、(3)並列計算プログラムの開発、のいずれの項目も概ね達成された。GeO<sub>2</sub>/Ge 界面への適用など、当初の計画を超えて進んだ項目もある。ただし、酸化プロセスシミュレータについては、ストレスに応じて酸化速度が変調される様子を現実的な計算時間内で再

現することが難しく、計算の簡略化の点でさらなる改善を試みる必要がある。

#### 4. 今後の研究の推進方策

酸化プロセスシミュレータのアルゴリズム簡略化に引き続き取り組むとともに、大きな進展のあった  $\text{GeO}_2/\text{Ge}$  界面のシミュレーションにも力を入れ、 $\text{SiO}_2/\text{Si}$  系との共通点や相違点を詳細に明らかにしていく。

当初の研究計画に加えて、地球温暖化対策のための省エネルギーデバイス設計の一環として、本シミュレーション技術をナノスケールシリコン構造体中のフォノン・ダイナミクスの解析へ応用することも予定している。本研究で開発した酸化プロセスシミュレータを用いることで、酸化膜に閉じ込められたナノスケール Si 格子中特有の熱輸送が議論できることが判明しており、分子動力学計算で得られる原子座標の時系列データを時空間フーリエ変換することで、ナノ構造中のフォノン・ダイナミクスについても詳しい議論ができる可能性が見え始めている。

以上のように、最終年度は、新しい酸化理論を補強する研究から、それを応用したシミュレーションの研究に重点を置き、可能な限り実験との比較も進めながら、ナノスケール酸化膜/半導体界面の物理を明らかにしていきたい。

#### 5. 代表的な研究成果

〔雑誌論文〕(計7件) 全て査読有

T. Zushi, T. Watanabe, I. Ohdomari, Y. Kamakura, K. Taniguchi, "Simulation of the Heat Transport in a Silicon Nano-structure Covered with Oxide Films", Jpn. J. Appl. Phys., in press.

H. Ohta, T. Watanabe, and I. Ohdomari, "Potential energy landscape of an interstitial  $\text{O}_2$  molecule in a  $\text{SiO}_2$  film near the  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  interface", Physical Review B 78, 155326 1-7 (2008).

A. Seike, T. Tange, Y. Sugiura, I. Tsuchida, H. Ohta, T. Watanabe, D. Kosemura, A. Ogura and I. Ohdomari, "Strain-induced transconductance enhancement by pattern dependent oxidation in silicon nanowire field-effect transistors" Applied Physics Letters 91. 202117 1-3 (2007).

T. Watanabe, and I. Ohdomari: "A New Kinetic Equation for Thermal Oxidation of Silicon Replacing the Deal-Grove Equation" Journal of Electrochemical Society 154. G260-G267 (2007).

H. Ohta, T. Watanabe, and I. Ohdomari: "Strain Distribution around  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  Interface in Si Nanowires; A Molecular Dynamics Study" Japanese Journal of Applied Physics 46. 3277-3282 (2007).

他2件.

〔学会発表〕(計24件)

(招待講演)渡邊孝信, "Deal-Grove モデルに代わるシリコン熱酸化速度理論", 第29回表面科学学術講演会, タワーホール船堀, 東京, 2009年10月28日.

(依頼講演) 渡邊孝信, "分子動力学による  $\text{GeO}_2/\text{Ge}$  界面のモデリング ~  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  との違い ~", 応用物理学会シリコンテクノロジー分科会表面・界面・シリコン材料研究委員会第113回研究集会, 東京大学駒場リサーチキャンパス, 2009年6月19日.

(Keynote Lecture) T. Watanabe, "Atomistic Picture of Silicon Oxidation Process; Beyond the Deal-Grove Model", International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICCES 09), プークェット, タイ王国, 2009年4月10日.

(Invited) T. Watanabe, "A New Kinetic Equation for Thermal Oxidation of Silicon Replacing the Deal-Grove Equation" 211th Meeting of The Electrochemical Society. (20070500). アメリカ・シカゴ

T. Watanabe, "General Kinetic Theory for Thermal Oxidation of Silicon", The 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-9). (20071113). 東大生産研

他19件

〔その他〕

早稲田大学研究者データベース:

<https://www.wnp7.waseda.jp/Rdb/app/ip/ipi0201.html>

研究室ホームページ:

<http://www.watanabe.nano.waseda.ac.jp/>