

ハフニウムが吸着した Si (111) 基板の局所/全域で進行する酸化反応機構 ～Hf の蒸着量に依存した表面界面酸化状態の違い～

Oxidation mechanism proceeding at local/entire area of hafnium absorbed Si(111)

愛媛大・院理工¹, 日本原子力研究開発機構² °垣内拓大¹, 津田泰孝², 吉越章隆²

Grad. Sch. Sci. Eng., Ehime Univ.¹, Japan Atomic Energy Agency²

°Takuhiko Kakiuchi¹, Yasutaka Tsuda², Akitaka Yoshigoe²

E-mail: kakiuchi.takuhiko.mc@ehime-u.ac.jp

二酸化ハフニウム (HfO_2) は、シリコン (Si) 半導体デバイスの高誘電率ゲート絶縁膜材料として高い注目を集めている。 HfO_2/Si の構造制御には、ハフニウム (Hf) と Si が作る種々の化合物の理解から出発して、酸素分子 (O_2) の並進運動エネルギー (E_t) や表面温度等に依存した生成物の違いから反応素過程を解明することが必要不可欠である。本研究では、異なる量の Hf が吸着した Si(111) [Hf-Si(111)]上に特定の E_t を持った O_2 を照射しながら放射光光電子分光法を行うことで表面界面の化学状態変化を観測し、Hf-Si(111)の酸化反応機構を考察した。

実験は、大型放射光施設 SPring-8 の BL23SU 表面反応分析ステーションにて行った。超高真空中 (5×10^{-8} Pa) で清浄な Si(111)-7×7 表面を作製した後、約 0.5、2.0 原子層 (ML) の Hf を堆積させた。試料は、超高純度の O_2 分子曝露 ($E_t \approx 0.03$ eV)、および超音速分子線発生装置を用いて $E_t \approx 0.39$, 2.2 eV まで加速した O_2 ビーム照射によって酸化した。試料の化学状態変化は、Hf 4f, Si 2p, O 1s 内殻光電子スペクトル (CLS) 測定より追跡した。

図は、(a) 0.5 および(b) 2.0 ML Hf-Si(111)の酸化が飽和した後に得られた Hf 4f_{5/2, 7/2}CLS と Voigt 関数でフィットした結果である。酸化に由来するピークは、(a) 0.5 ML の方が (b) 2.0 ML のそれより低束縛エネルギー (BE) 側に現れた。これは主に Hf^{3+} 状態のシリケートまでしか進行しないためである。この理由は、(a) 0.5 ML の低被服率では Hf が Si(111)-7×7 の rest-atom や adatom 上に吸着して特異な局所構造 (hexagonal structure) を形成し、その周辺でのみ酸化が進行したことによる。一方、2.0 ML では、 Hf^{4+} 状態のシリケートまで生成しており、酸化反応が表面の金属 Hf 層全域で速やかに進行したためと考えられる。

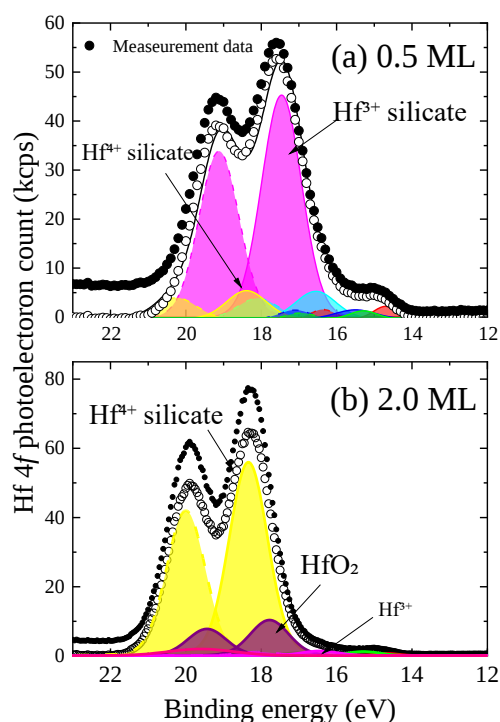


Fig. Hf 4f_{5/2, 7/2} photoelectron spectra obtained from Hf-Si(111) with the Hf thicknesses of (a) 0.5 and 2.0 MLs. These spectra were fitted by using Voigt function after subtracting the background.