多様な結晶構造を有する SiO_2 膜への H_2O 分子透過

Penetration of H_2O molecule into SiO_2 films with a variety of crystal structures

三菱電機(株) ○奥 友希 戸塚正裕 佐々木肇

Mitsubishi Electric Corp., ○T. Oku, M. Totsuka, H. Sasaki

E-mail: Oku.Tomoki@ap.MitsubishiElectric.co.jp

はじめに：これまでに保護膜の耐湿性劣化機構を解明するために，SiN_x膜やSiO_x膜へのH_2O分子透過を解析してきた．その中で SiN_x膜に比べてSiO_x膜の方が耐湿性劣化しやすいのはH_2O分子の透過経路である膜中の格子間サイトのサイズがSiO_x膜の方が大きいためであることを計算で示した[1]．この計算には高温型クリストバライト構造のSiO_2を用いたが，SiO_2には多様な結晶構造の存在が知られている．本報告では，他のSiO_2結晶構造へのH_2O分子の透過障壁を計算し，耐湿性を格子間サイトのサイズとの関係で議論した．

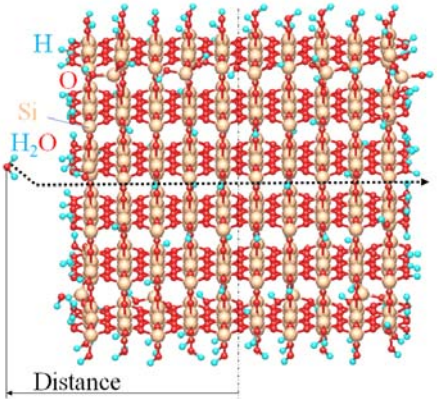

Fig. 1 Penetration of H_2O molecule into SiO_x cluster with cristobalite structure.

計算：Fig.1 に示す様に H_2O 分子をクラスター表面から離れた位置から近づけ，透過し終えるまでの生成熱を半経験的分子軌道計算法で自己無撞着に計算し透過障壁(⊿E)を求めた．①高温型クリストバライト O^7_h(Fd3m)，②高温型トリディマイト D^4_{6h}(P63/mmc)，③高温型石英 D^5_6(P6422)の3種類の SiO_2 結晶構造を約1500 個の原子でクラスター形成した．H_2O 分子の透過方位は①の[110]方位，②の[0001]方位，③の[1000]方位(Fig. 2(a))と格子間サイトのサイズが最も大きい方位を選んだ．さらに，③の[0001]方位(Fig. 2(b))も検討した．

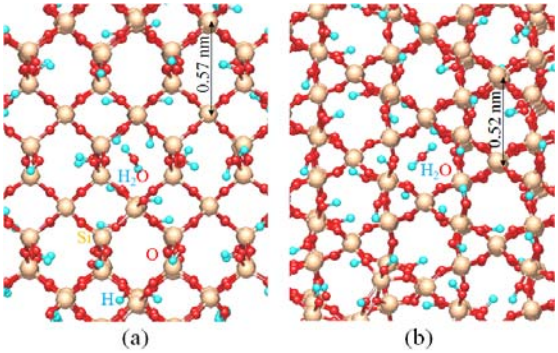

Fig. 2 H_2O molecule and quartz surface for (a) (1000) plane and (b) (0001) plane.

結果：透過中の H_2O 分子の位置と⊿E を Fig. 3 に示す．①，②，③[1000]は透過中に⊿E の極大と極小を周期的に繰り返すこと，③[0001]には極大・極小がほとんど無く③[1000]より⊿E が大きいことが分かった．透過障壁⊿E の最大値は③[0001]>②>①>③[1000]の順である．極大と極小の差は格子間の拡散障壁なので，拡散障壁は②>①>③[1000]>③[0001]の順である．Fig.2 に示す様に格子間サイトのサイズは③[1000]>③[0001]なので，拡散障壁より透過障壁が格子間サイトのサイズに関連している．これらの結果は，結晶構造・面方位の最適化で SiO_2 結晶の耐湿性向上が図れることを示唆している．

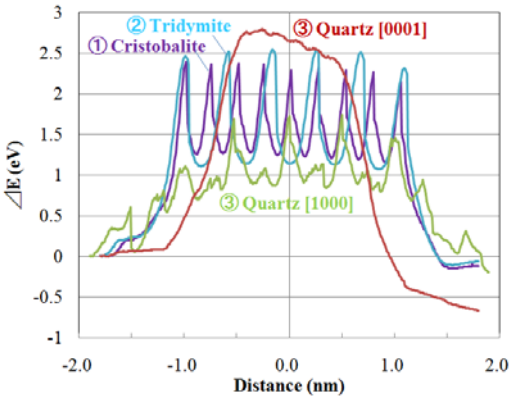

Fig. 3 Penetration barrier for SiO_2 films with a variety of crystal structure.

[1]T. Oku, Junction Technology (IWJT), 2015 15th International Workshop on, DOI: 10.1109/IWJT.2015.7467100

© 2018年 応用物理学会