

一軸加圧熱処理による非晶質 VO_x 薄膜の相選択的固相結晶化と配向制御

Phase selective solid-phase crystallization and control of orientation in vanadium oxide thin films via post-annealing under uniaxial compression

(東工大総理工¹, 神奈川県産技セ²)

○野沢 靖久¹, 嶋田 航大¹, 難波 諒太郎¹, 譚 ゴオン¹, 金子 智^{2,1}, 松田 晃史¹, 吉本 護¹
(Tokyo Tech.¹, Kanagawa Ind. Tech. Center²)

○Y. Nozawa¹, K. Shimada¹, R. Namba¹, G. Tan¹, S. Kaneko^{2,1}, A. Matsuda¹, M. Yoshimoto¹

E-mail: yoshimoto.m.aa@m.titech.ac.jp

【はじめに】酸化バナジウム (VO_x) は、金属-絶縁体相転移 (MIT; Metal Insulator Transition) や層状構造を利用して、ボロメータ型の赤外線センサーやイオン電池の正極材料としての応用が期待されている。しかし、VO_x は二酸化バナジウム (VO₂) や三酸化バナジウム (V₂O₃) など複数の酸化状態が存在し、それぞれの MIT 温度が大きく異なることや、MIT 挙動は薄膜の結晶配向性に大きく依存することから、VO_x 薄膜の価数および結晶配向性の制御はデバイス応用に向けて重要である。これまでに、ポストアニール時の酸化・還元雰囲気による相制御や、レーザー照射による結晶性および相制御が試みられてきた。[1, 2] 一方で、熱処理による固相結晶化において一軸圧力を印加することで、結晶核形成や結晶成長などに影響を与える可能性がある。本研究では、非晶質薄膜の固相結晶化における結晶相および配向性の制御を目的として、非晶質 VO_x 膜に対する一軸加圧下の固相結晶化が結晶核形成・成長やバナジウムイオンの化学状態にどのような影響を与えるか調査した。

【実験・結果】KrF エキシマレーザー (波長 248 nm、パルス幅 20 ns) と V₂O₅ (99.9%) 焼結体ターゲットを用いたパルスレーザー堆積法により、非晶質 VO_x 薄膜をサファイア α-Al₂O₃ (0001) 基板上に成膜した。成膜条件は酸素圧を 13 Pa、レーザー強度を 2.0 J/cm²、また基板温度は室温とした。成膜直後の反射高速電子線回折 (RHEED) 観察により halo 像を示すことから、非晶質 VO_x が得られたことがわかった。得られた非晶質 VO_x 薄膜の固相結晶化のために、熱ナノインプリント装置 (SCIVAX X-300) 内で、一軸加圧下の熱処理を行った。ここで、サセプター、およびステージからの不純物拡散バリアとしてグラッシーカーボンを用いて試料を挟み込む形でセットした。熱処理条件は、印加圧力 0–30 MPa、~30 hPa の真空中 (酸素分圧、~10⁻² Pa)、500°C、1 h とした。Fig. 1(a) の RHEED パターンから、0 Pa (無加圧) では無配向な多結晶膜が得られたことがわかった。一方で、1 MPa から 30 MPa で得られた試料に対して、スポットあるいはストリークの回折パターンが面内回転で変化する異方性が確認され、エピタキシャル VO_x 薄膜となったことがわかった。(Fig. 1(b) および 1(c)) さらに、X 線回折 2θ/ω 測定 (Fig. 2) から、得られた結晶相は 1 MPa では VO₂、10–30 MPa では V₂O₃ であることがわかり、一軸加圧によって還元された可能性が示唆された。講演では、詳細な構造解析、膜中バナジウムの価数および温度抵抗測定の結果なども報告する。

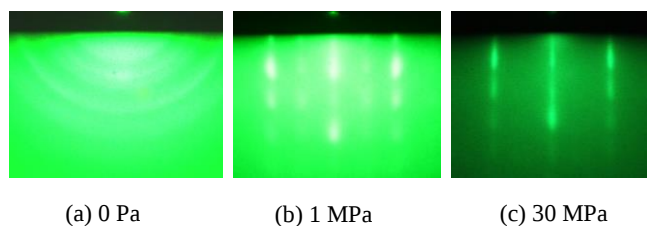


Fig. 1 RHEED patterns of VO_x thin films post-annealed at 500°C for 1 h under uniaxial compression of 0–30 MPa.

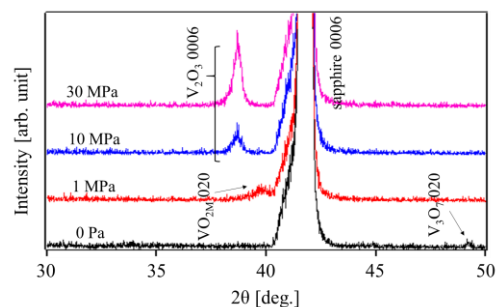


Fig. 2 XRD (2θ/ω) patterns of VO_x thin films post-annealed at 500°C for 1 h under uniaxial compression of 0–30 MPa.

[1] Y. D. Ji *et al.*: Appl. Phys. Lett., **101** (2012) 071902. [2] I. S. Nuprienok and A. N. Shibko.: Inorg. Mater., **38** (2002) 571.