ー軸加圧下熱処理による非晶質酸化モリブデン薄膜の固相結晶化 Solid-phase crystallization of amorphous molybdenum oxide thin films via post-annealing under uniaxial compression

^O難波 諒太郎¹, 野沢 靖久¹, 譚 ゴオン¹, 土嶺信男², 金子 智^{3,1}, 松田 晃史¹, 吉本 護¹ (1.東工大, 2.(株)豊島製作所、3.神奈川県産技セ)

[°]R. Namba¹, Y. Nozawa¹, G. Tan¹, N. Tsuchimine², S. Kaneko^{3,1}, A. Matsuda¹, M. Yoshimoto¹ (1.Tokyo Tech., 2.TOSHIMA Manu. Co., Ltd., 3.Kanagawa Ind. Tech. Center) E-mail: yoshimoto.m.aa@m.titech.ac.jp

【はじめに】遷移金属酸化物である酸化モリブデン(MoO_x)は、Mo⁶⁺から Mo²⁺の広い酸化状態に応 じて、構造と物性が変化する。金属導電性を有する MoO₂ は、エネルギー貯蔵、変換素子への応 用が期待されている[1,2]。一方で、層状構造を有する MoO₃ は、エレクトロクロミック材料やガ スセンサー、イオン電池の正極材料としての応用が期待されている[2,3]。デバイス応用では、MoO_x 薄膜の結晶相および結晶性、それらに起因する物性制御が重要となる。従来の研究では、気相法 で作製した非晶質または結晶質の MoO_x 薄膜のポストアニールによる結晶相、結晶性制御が報告 されている[4,5]。一方、我々はこれまでに非晶質 VO_x 薄膜の固相結晶化において一軸加圧熱処理 をすることで相選択的に結晶化させた結果を報告してきた[6]。これらを踏まえて、非晶質 MoO_x 薄膜において一軸加圧熱処理による固相結晶化をすることで、結晶相制御や、表界面での結晶核 生成の起点・頻度、結晶成長速度などを制御し、結晶の成長様式に影響を与える可能性があると 考えた。本研究では、非晶質 MoO_x 薄膜に対する一軸加圧下の固相結晶化が結晶相や結晶核形成・ 成長に与える影響を評価した。

【実験・結果】まず、非晶質 MoO_x薄膜を KrF エキシマレーザー(波長 248 nm、パルス幅 20 ns) と MoO₃(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、 α -Al₂O₃(0001)基 板上に成膜した。成膜条件は酸素圧を 10 Pa、レーザー強度を~0.5 J/cm²、また基板温度は室温と した。成膜直後の RHEED 観察像はハロ、X 線回折法 20/ ω 測定結果からピークが見られなかった ため非晶質 MoO_xが得られた。次に、非晶質 MoO_x前駆体薄膜を固相結晶化するため、熱ナノイ ンプリント装置を用いて一軸圧力を印加しながら熱処理を行った。ここで、サセプターおよび不 純物拡散バリアとしてグラッシーカーボンと白金により試料を挟んだ(Fig. 1)。 熱処理条件は、印 加圧力 0、1、10 MPa、~30 hPa の真空中(酸素分圧、~10⁻² Pa)で 400°C、1 h とした。X 線回折法 20/ ω 測定結果 (Fig. 2) から、0、1、10 MPa のいずれの印加圧力においても得られた結晶相は MoO_{2+x} であった。一方で、一軸加圧によって[200]配向へ変化することが明らかとなった。また、それぞ れの結晶化薄膜について ρ -T 測定を行った結果、10 MPa では温度に対して金属的挙動がみられた 一方、0、1 MPa では半導体的挙動を示し、どれも室温で抵抗率~10⁻³ Ωcm が得られた。講演では、 一軸加圧下の固相結晶化が光学特性に与える影響についても報告する。





Fig. 1 Schematic of uniaxial compression equipment and sample setting.

Kale W. Harrison *et al.*, J. Mater. Electron, **26** (2015) 9717
 Nijole Dukstiene *et al.*, Cent. Eur. J. Chem., **10** (2012) 1106
 Zahid Hussain, J. Mater. Res., **16** (2001) 2695

400°C for 1 h under uniaxial compression of 0, 1, 10 MPa.

[4] V. Bhosle *et al.*, J. Appl. Phys., **97** (2005) 083539
[5] Myeong Sook Oh *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. A, 30 (2012) 031501

[6] 野沢靖久 他, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 4p-PA10-2(2015)