

基板バイアス印加スパッタ法を用いた VO₂ 薄膜の再結晶化に関する研究
On recrystallization phenomenon of VO₂ films on Al₂O₃ (001) with
rf substrate biasing in reactive sputtering

¹東海大院工, ²クアラルンプール大工 [○]松岡 耕平¹, ヌルー ハニス アズハン², 沖村 邦雄¹

¹Graduate School of Engineering, Tokai University,

²Electrical Engineering Section, Universiti Kuala Lumpur International College,

[○]Kohei Matsuoka¹, Nurul Hanis Azhan² and Kunio Okimura¹

Email: kohei.matsuoka1468@gmail.com

二酸化バナジウム(VO₂)は 68℃付近で絶縁体-金属相転移(Insulator-Metal Transition: IMT)を生じ、それに伴って抵抗値が 4~5 桁にわたって変化し、且つ赤外光の透過率が大きく低下する。電圧印加によっても IMT が引き起こされるため、光学スイッチング素子への応用が期待されている。結晶性の良い VO₂ 薄膜では急峻な IMT 特性が得られるため、VO₂ 薄膜の結晶性制御が重要である。我々は金属バナジウム(99.9%)をターゲットとする反応性スパッタ法において、基板ステージ(50×50 mm²の V プレート)に 13.56 MHz の高周波(rf)バイアスを印加して Al₂O₃ (001)上に VO₂ 薄膜を成膜した。その結果、特定の基板バイアス電力印加で通常の結晶成長とは異なる(011)配向をもつ数十 μm サイズの大きな結晶粒が通常の(020)配向をもつ数百 nm サイズの結晶粒と共存して成長することを示した。¹⁾ これは、再結晶化現象によるものと考えられる。再結晶化現象が発現した領域(再結晶化領域)はマイクロラマンマッピングの結果、nm サイズの結晶粒領域に比べて結晶性が明確に向上しており、膜ストレスの緩和も生じていることが分った。非常に結晶性の良い再結晶化領域の VO₂ 薄膜は光ファイバーの消費電力を抑えるための超小型光スイッチング素子へ応用が期待できる。²⁾ 本研究では、VO₂ 薄膜の再結晶化現象の制御を目的とし、再結晶化のメカニズムを検討した。

基板温度 400℃, Ar-O₂ ガス圧 0.5 Pa, O₂ 流量 2.5 sccm, Ar 流量 38 sccm, ターゲットの電力 200 W, 成膜時間 40 min, 基板バイアス電力を 0~10 W(負の自己バイアス電圧: 0~-120 V)に変化させて Al₂O₃ (001)上に VO₂ 薄膜を成膜した。酸素流量は VO₂ 薄膜が定比近くで成長する流量よりも多く流している。その結果バイアス電力 5W においてのみ再結晶化現象が発現した。

Fig. 1 に基板バイアス電力 5 W の再結晶化領域に対する反射電子を用いた SEM 像を示す。再結晶化領域では黒い点(黄色の四角内)が一列にならんでいることが分る。黒い点は転位(dislocation)であり、転位がマイグレーションすることで巨大な結晶粒界を形成する。³⁾ 一列の転位が見受けられたことは再結晶化現象が発現した証拠の一つである。Fig. 2 (a) に基板バイアス電力 5 W のサンプルに対する二次電子を用いた SEM 像を示す。コントラストが異なる領域(三角の領域)が再結晶化領域である。この SEM 像に対応する領域について EPMA(Electron Probe Micro Analyzer)による酸素及びバナジウムの濃度マッピングを行った。Fig. 2 (b) は酸素濃度のマッピングであり、Fig. 2 (c) はバナジウムの濃度マッピングである。再結晶化領域と nm サイズの結晶粒領域の膜厚はほぼ一定であり、共に膜厚 150 nm 程度である。酸素濃度は再結晶化領域では低く nm サイズの結晶粒領域では高いことが分る。また、(c)より再結晶化領域ではバナジウムの濃度が高くなっており、再結晶化領域で V と O の組成比が変わっている様相が分る。また、マイクロラマンマッピングにおいて再結晶化領域では結晶性が向上し、膜ストレスの緩和も生じたことから、再結晶化領域では定比に近い VO₂ が成長したことが考えられる。nm サイズの結晶粒領域では酸素濃度が高いことから、低融点である過酸化相結晶粒が再結晶化の核となっていることが考えられる。発表ではこれらの結果をもとに再結晶化メカニズムの検討を行う。

[1] N. H. Azhan, K. Su, K. Okimura, M. Zaghrioui and J. Sakai, J. Appl. Phys., **177** (2015) 245314.

[2] L. D. S. Diana, F. C. Juan *et al.*, J. Opt. **19** (2015) 035401.

[3] S. S. Gorelik, *Recrystallization in METALS and ALLOYS*, (English translation, Mir Publishers, 1981) p 87.

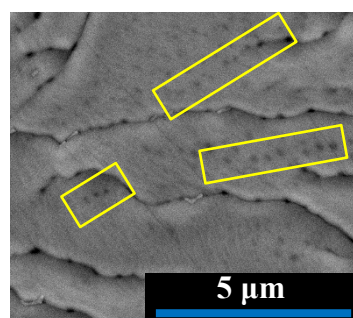


Fig. 1 バイアス電力 5 W で作製した Al₂O₃ 上 VO₂ 薄膜の SEM 像(反射電子像).

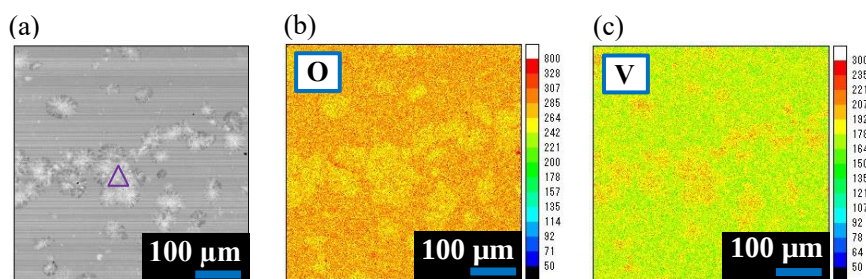


Fig. 2 バイアス電力 5 W で作製した Al₂O₃ 上 VO₂ 薄膜の(a) SEM 像, (b) EPMA による酸素濃度マッピング, (c) バナジウム濃度マッピング.