

論文の内容の要旨

論文題目「Growth of Vanadium Dioxide Films on Conductive Layers by Inductively Coupled Plasma-Assisted Sputtering Method and Their Out-of-Plane Resistance Switching Characteristics」

(誘導結合プラズマ支援スパッタ法による導電層上への二酸化バナジウム薄膜の成長と面直方向抵抗スイッチングに関する研究)

学位申請者 MD. SURUZ MIAN

キーワード：二酸化バナジウム，誘導結合プラズマ支援スパッタ法，絶縁体－金属転移，積層型構造，自励発振現象

遷移金属酸化物は多彩な電子機能を発揮することから，電子材料や光学材料への応用に期待が集まっている．遷移金属酸化物の一つである二酸化バナジウム(Vanadium dioxide: VO₂)の単結晶は 68℃という比較的低い温度で絶縁体－金属転移(Insulator-Metal Transition: IMT)を生じ，抵抗率が 5 桁程度急峻に変化する特性を有することから，その電子素子への応用を目指した研究が盛んに実施されている．VO₂の絶縁体－金属転移は，低温時の単斜相構造から高温時の正方晶構造への構造相転移に付随して生じる．VO₂の工学的応用を促進するためには薄膜化が有効であるため，様々な薄膜堆積方法を用いて結晶性 VO₂ 薄膜を作製する試みが成されてきた．また，VO₂ 薄膜の IMT は電圧印加時の電流によるジュール熱によっても誘起でき，電子素子への応用のために電圧印加による IMT 制御が重要な技術として位置づけられている．これまでに，VO₂ 薄膜上に一对の電極を設置して電極間に電圧印加するプレーナー構造が研究され，数 V の電圧印加によって高抵抗状態から低抵抗状態への変化，即ち抵抗スイッチングを誘起できることが報告されてきた．しかし，プレーナー構造では抵抗スイッチングを誘起する電圧を低くすることが困難であり，素子面積が大きく消費電力も大きくなるという問題があった．そこで，導電層上へ VO₂ を堆積して上下電極間で抵抗スイッチングさせる積層構造を持つ素子の実現が求められていた．

本研究ではまず金属チタニウム(Ti)を下地導電層として，その上に VO₂ 薄膜を堆積した積層構造を作製し，電気特性評価を行った．その結果，2 桁以上の抵抗変化を示す IMT 及び 1 V 以下の低電圧での抵抗スイッチングを実現した．導電層として用いる金属上への VO₂ 成膜では金属の拡散を抑制するために低温での薄膜成長が求められる．本研究では誘導結合プラズマ支援スパッタ法(Inductively Coupled Plasma-Assisted Sputtering :ICP

支援スパッタ法)を用いることで約 250°Cの低温における VO₂ 結晶薄膜成長を実現した。次に、導電性を有すると共に酸素に対する拡散防止層として機能する窒化チタン(TiN)層を下部電極として導入することによって、230 ~ 400°Cの広い温度範囲において VO₂ 結晶薄膜成長を実現した。TiN 層上に作製した素子は積層方向へ 2 桁以上に及ぶ抵抗変化を示し、約 0.6 V の低電圧且つ低消費電力で抵抗スイッチングを示した。更に、この素子を用いて抵抗スイッチングに基づく MHz オーダーの自励発振を達成した。

本論文は 5 章で構成されており、各章の内容と成果は以下の通りである。

第 1 章は序論であり、本研究の対象とした VO₂ の結晶構造及び構造相転移にともなう絶縁体-金属転移現象について説明するとともに、電圧印加による抵抗スイッチングに関する研究の現状と問題点を述べ、本研究の目的を明らかにした。本研究で作製する積層構造について説明し、その応用上の利点と達成目標を示した。

第 2 章では、本研究で用いた ICP 支援スパッタ法および成膜条件、膜質評価方法について記述した後に、IMT を示す VO₂ 結晶薄膜を Ti 上へ堆積することに成功した結果について述べた。ICP 支援スパッタ法は通常のスパッタ成膜装置の気相プラズマ生成空間にコイルを挿入して付加的な高周波プラズマ生成を行う方式である。本成膜法によって 250°C という低温で VO₂ 結晶薄膜を成長させることができ、2.6 桁の面直方向の抵抗変化を得た。次に、ICP 支援用コイルのない従来型スパッタ法による VO₂ 堆積結果との比較を行い、ICP 支援スパッタ法が低温での結晶薄膜成長に優れることを示した。更に、両成膜法に対してプラズマ診断を行い、ICP 支援スパッタ法における高エネルギーイオン入射と活性な原子状酸素ラジカル生成が低温における VO₂ 結晶薄膜成長に寄与していることを明らかにした。また、Ti 上への VO₂ 成長では 400°C 程度になると界面における酸素の拡散及び Ti 層の酸化が進行する課題を示した。

第 3 章では、拡散防止性能を有する TiN 導電層を下地層として ICP 支援スパッタ法を用いて VO₂ 成膜を行い、230 ~ 400°C の温度範囲で IMT を示す VO₂ 結晶薄膜の成長を実現できることを示した。400°C で堆積した薄膜では、VO₂ 薄膜と下地 TiN 層との間に急峻な界面が維持されているため、2.3 桁に及ぶ抵抗変化が生じた。また、TiN 上に 250°C で VO₂ 薄膜を堆積した積層構造を用いて、抵抗スイッチングのしきい値電圧として 0.55 V を達成した。このような低い電圧における抵抗スイッチングの達成は、VO₂ の集積化メモリ-素子用セレクタースイッチへの応用などに大きく貢献する成果である。

第 4 章では、導電層上に VO₂ 薄膜を堆積した積層型素子および、直流電圧源と直列抵抗から成る回路を構成して、VO₂ の抵抗スイッチングに基づく自励発振現象を調べた結果について述べた。電源電圧と直列抵抗の値を適切に選ぶことで発振が得られ、その発振周波数が VO₂ 膜厚及び電極面積に依存することを示した。これらの諸量を最適化することでこれまでに報告例のない MHz オーダーの高い発振周波数を達成した。これは、積層構造の

抵抗スイッチングが低電圧且つ高速で生じることに起因しており，本研究で目指した積層型素子の長が發揮された成果である．

第5章は結論であり，本研究の成果をまとめるとともに，研究を更に發展させるための課題を示した．

以上のように本論文は，低温での結晶成長に利点を有する ICP 支援スパッタ法を適用して，導電層上へ2桁以上の抵抗変化を伴う IMT を示す VO₂ 結晶薄膜を堆積することに成功するとともに，面直方向への低電圧における電圧印加抵抗スイッチングを実現した成果をまとめたものである．本論文で示した成果は，VO₂ 薄膜の電子素子応用への進展に貢献するものである．