多層固相エピタキシー法による La2O2Sb エピタキシャル薄膜の合成

La₂O₂Sb epitaxial thin films grown by multilayer solid-phase epitaxy 東北大理¹,東北大 WPI-AIMR²,東北大 CSIS³,東北大 CSRN⁴⁰山本 裕貴¹,河底 秀幸¹, 福村 知昭¹⁻⁴

Tohoku Univ.¹ ^OYuki Yamamoto¹, Hideyuki Kawasoko¹, Tomoteru Fukumura¹ E-mail: yuki.yamamoto.r3@dc.tohoku.ac.jp

Sb 正方格子と La₂O₂ 層からなる層状物質 La₂O₂Sb では、非閉殻電子配置の Sb²⁻(5p⁵)から金属状態が期待される。しかし、粉末多結晶では、歪んだ Sb 正方格子における Sb の二量体形成により絶縁体となる [1,2]。その一方で、第一原理計算では、Sb 正方格子の歪みの緩和による金属状態の実現が予想されている [3]。もし、La₂O₂Sb のエピタキシャル薄膜を作製すれば、基板からのエピタキシャル力による Sb 正方格子の歪みの抑制により、La₂O₂Sb を金属化することが期待できるが、異常原子価である Sb²⁻を含む化合物の薄膜形成は容易でない。Bi²⁻を含む Y₂O₂Bi のエピタキシャル薄膜作製を可能にした、前駆体に多層膜を用いる多層固相エピタキシー法[4]を用いることで、La₂O₂Sb エピタキシャル薄膜の合成に成功したので報告する。

マグネトロンスパッタ法により、La、La₂O₃、Sbの3つ のターゲットを用い、室温で MgO (001)単結晶基板上に前 駆体多層膜を製膜した。前駆体多層膜の積層構造は[La2O3 (0.08 nm) / La (5 nm) / La₂O₃ (0.08 nm) / Sb (3 nm)]₂₀ (薄膜 A、 仕込組成: La₂O_{0.5}Sb_{1.3})、[La₂O₃ (0.8 nm) / La (51 nm) / La₂O₃ (0.8 nm)/Sb(30 nm)]₂(薄膜 B、La₂O_{0.5}Sb_{1.3})、[La₂O₃(2.4 nm) /La (40 nm) / La₂O₃ (2.4 nm) / Sb (30 nm)]₂ (薄膜 C、 La₂O_{1.3}Sb_{1.1})とした。得られた前駆体多層膜を 2.0×10⁻² Torr のアルゴン雰囲気中850℃で加熱し、固相エピタキシャル 成長を行った。各薄膜の X 線回折パターンを Fig. 1 に示 す。多層膜全体の厚みと仕込組成を一定に保ち、多層膜各 層の厚みを増すことで La2O2Sb 相の結晶成長が促進した (薄膜 A、薄膜 B)。また、多層膜中の酸素比率を増加させ、 アンチモン比率を減少させると、不純物相の LaSb 相の生 成が大きく抑制された (薄膜 B、薄膜 C)。薄膜 B と薄膜 C において、2 次元 X 線回折像から La₂O₂Sb のエピタキシ ャル成長を確認した。当日は、前駆体多層膜の積層構造と La2O2Sbの結晶成長の関係について議論する。





[1] J. Nuss *et al.*, *J Alloys Comp.* **480**, 57 (2009). [2] P. L. Wang *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **134**, 1426 (2012).
[3] H. Kim *et al.*, *Phys. Rev. B* **93**, 125116 (2016). [4] R. Sei *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **7**, 24998 (2015).