

トポタクティックフッ素ドーブによる $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_{4-x}\text{F}_y$ 薄膜の作製Fabrication of $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_{4-x}\text{F}_y$ thin films by topotactic fluorination

東大院理¹, 産総研², 東理大³, KEK⁴, 東北大多元研⁵ ○丸山敬裕¹, 近松彰¹, 片山司¹,
倉持建汰^{2,3}, 荻野拓², 北村未歩⁴, 堀場弘司⁴, 組頭広志^{4,5}, 長谷川哲也¹

Univ. of Tokyo¹, AIST², Tokyo Univ. of Science³, KEK⁴, Tohoku Univ.⁵

○T. Maruyama¹, A. Chikamatsu¹, T. Katayama¹, K. Kuramochi^{2,3}, H. Ogino²,
M. Kitamura⁴, K. Horiba⁴, H. Kumigashira^{4,5} and T. Hasegawa¹

E-mail: tmaruyama@chem.s.u-tokyo.ac.jp

【序論】 $5d$ 系遷移金属酸化物である Ir 酸化物は、大きなスピン軌道相互作用(SOI)が物性と密接に関わっており、 $3d,4d$ 系とは異なる機構によって物性が発現することが知られている。例えば、層状ペロブスカイト Sr_2IrO_4 は SOI と結晶場の協奏により $J_{\text{eff}}=1/2$ モット絶縁体となる[1]。これまで我々は、 Sr_2IrO_4 エピタキシャル薄膜にトポタクティックなフッ素ドーブを試み、新たな酸フッ化物である $\text{Sr}_2\text{IrO}_{4-x}\text{F}_y$ 薄膜の合成に成功した[2]。このとき、抵抗率がフッ化前後で大きく変化しないことを見出した。今回我々は、 Sr_2IrO_4 に La をドーブしてあらかじめ抵抗率を下げた薄膜をフッ化させ、フッ素ドーブに伴う電子輸送特性の変化を調べた。

【実験手法】 $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_4$ エピタキシャル薄膜は、ターゲットに仕込み組成 $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_4$ の多結晶粉末体を用い、パルスレーザー堆積法により SrTiO_3 (001) 基板の上に堆積させた。その後、得られた前駆体薄膜を Ar ガス中で 250°C 、3 時間ポリフッ化ビニリデン (PVDF) と反応させた。薄膜の結晶構造は X 線回折 (XRD) で、膜中のフッ素の有無はエネルギー分散型 X 線分析 (EDS) で確認した。電子輸送特性は物理特性測定装置 (PPMS) において前駆体は四端子、フッ化後の薄膜は二端子で測定した。

【結果と考察】 図 1 に前駆体薄膜と PVDF とを反応させ得られた薄膜の面直方向の XRD パターンを示す。前駆体由来のピークが消えている一方で、新たな 004 ピークが現れた。このとき、面直方向の格子定数は 25.7 \AA から 38.0 \AA へと伸長していた。また、EDS 測定から、膜中の酸素が減少しフッ素が導入されていることを確認した。これらの結果は、PVDF との反応により酸素の一部が脱離したのと同時に、フッ化物イオンが $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_4$ の 2 つの SrO 層の間に挿入されたことを示唆している。

図 2 は Sr_2IrO_4 , $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_4$ 薄膜のフッ化前後の抵抗率の温度依存性である。La をドーブした場合は、ノンドーブの場合と異なり、フッ化により室温における抵抗率の値が $9.1 \times 10^{-3} \text{ \Omega cm}$ から 4.8 \Omega cm と大幅に上昇した。これは La ドープによりフェルミ準位近傍の電子状態がノンドーブの場合と異なることを示唆している。講演では、光電子分光で測定した $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_4$ 薄膜の価電子帯スペクトルを示し、La ドープに伴う電子状態変化を詳しく議論する。

【謝辞】 本研究は JSPS 科研費新学術領域(16H06439, 16H06441)の助成を受けて実施された。

【参考文献】

[1] B. J. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 076402 (2008).

[2] 丸山敬裕他 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会 18a-223-1.

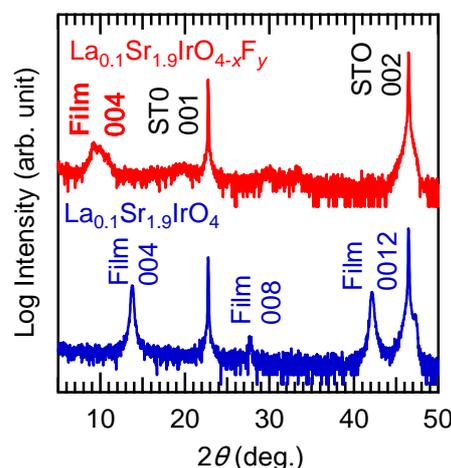


Fig. 1. XRD patterns of the $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_4$ and $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_{4-x}\text{F}_y$ thin films

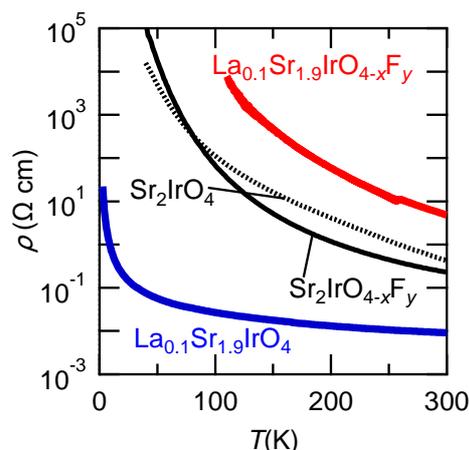


Fig. 2. Temperature dependence of resistivity of the Sr_2IrO_4 , $\text{Sr}_2\text{IrO}_{4-x}\text{F}_y$, $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_4$ and $\text{La}_{0.1}\text{Sr}_{1.9}\text{IrO}_{4-x}\text{F}_y$ thin films