

パイロクロア型 $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ エピタキシャル薄膜への p 型ドーピング p-type impurity doping to pyrochlore $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ epitaxial thin films

東大院理¹, UTTAC², 福本通孝¹, 廣瀬靖¹, 杉澤悠紀², 関場大一郎², 長谷川哲也¹

Univ. of Tokyo¹, UTTAC², M. Fukumoto¹, Y. Hirose¹, Y. Sugisawa², D. Sekiba², and T. Hasegawa¹

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

【背景】パイロクロア型 $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ は正孔ドーブにより p 型透明導電性を示すワイドギャップ半導体である[1]。また、正孔のヘビードープによるフラットバンド強磁性の発現が第一原理計算から予想されている[2]。導電性や強磁性の発現に大きく関わる価電子帯上端は主に Sn^{2+} の 5s 軌道から成るため、そのネットワークを保ちつつ正孔をドーブするには、Ta または O サイトへアクセプタ不純物を置換する必要がある。しかし、これまでの実験報告では、正孔源は Sn^{2+} 欠損や Sn^{2+} の酸化により生じた Sn^{4+} の Ta⁵⁺ サイトへの置換に限られている。そこで本研究では、パルスレーザー堆積(PLD)法を用いて化学量論組成のパイロクロア $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ エピタキシャル薄膜を合成し、Ta サイトへの Hf と Ti、O サイトへの N ドーピングを試みた。

【実験】 $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ 薄膜は PLD 法により YSZ (001), (111) 基板上に作製した。Sn の揮発を考慮し、ターゲットのカチオン比は $\text{Sn}/\text{Ta}=5/2$ とした。基板温度(T_s)をパラメータとし、 1×10^{-4} Torr の O_2 雰囲気下で製膜した。N ドーピングは、プラズマソースにより活性化した窒素を雰囲気中に導入して行った。薄膜の結晶構造は 2 次元検出器を用いた X 線回折(2D-XRD)、薄膜中の Sn/Ta 比はラザフォード後方散乱法により評価した。

【結果と考察】異なる T_s で作製した薄膜の組成を評価したところ、450 °C 付近で $\text{Sn}/\text{Ta} \sim 1$ の薄膜を得た(図 1)。また、2D-XRD パターンから、 $T_s < 450$ °C では多結晶薄膜、 $T_s \geq 450$ °C では単相エピタキシャル薄膜であることがわかった。後者の薄膜では、パイロクロア構造に特徴的な 111 ピークが検出されており、 $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ のエピタキシャル成長を確認した(図 2)。次に $T_s = 450$ °C に固定し、 $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ への不純物ドーピングを行った。Ta に対して Hf、Ti を 6% ドープした薄膜は、 $\text{Sn}/(\text{Ta}+M) \sim 1$ ($M=\text{Hf}, \text{Ti}$) にも関わらず絶縁体であった。これはドーピングに伴って酸素欠損が導入され、生じた電子が正孔を補償したためだと考えられる。N ドープを試みたところ、 Sn/Ta 比の大幅な減少がみられ、薄膜は絶縁性を示した。これは、N ラジカルによって Sn の再蒸発が促進されたためと考えられる。

【謝辞】本研究は科研費 16H06438, 16H06441, 19K22227 の助成を受けて実施された。

[1] N. Kikuchi et al., Phys. Rev. Mater. 1, 021601R (2017).

[2] I. Hase et al., Phys. Rev. Lett. 120, 196401 (2018).

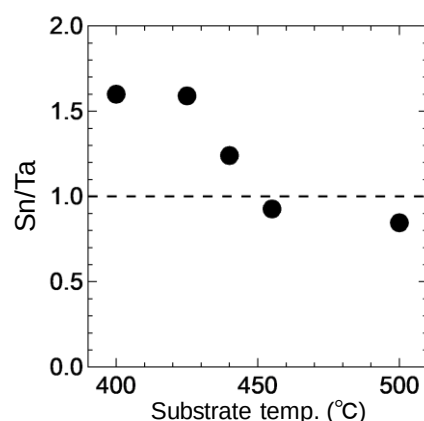


Fig. 1 Sn/Ta ratio as a function of T_s .

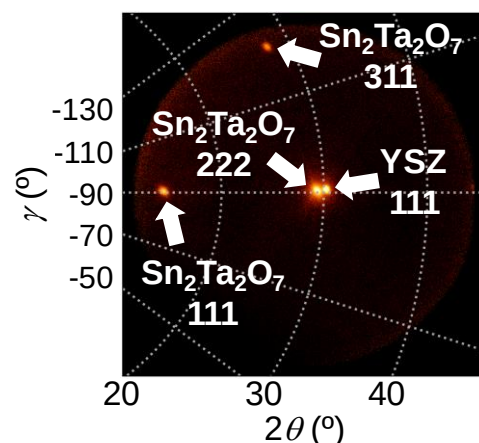


Fig. 2 2D-XRD images of a $\text{Sn}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ epitaxial thin film.