

SrWO_{3-x}N_x 薄膜の作製とその電子輸送特性

Fabrication and transport properties of SrWO_{3-x}N_x thin films

東大院理¹ ○丸山敬裕¹, 近松彰¹, 廣瀬靖¹, 片山司¹, 長谷川哲也¹

Univ. of Tokyo¹ ○T. Maruyama¹, A. Chikamatsu¹, Y. Hirose¹, T. Katayama¹, T. Hasegawa¹

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

【序論】遷移金属酸化物の酸素の一部を窒素に置換した酸窒化物は、多彩な電子輸送特性を示す。例えば、200 cm²/V⁻¹s⁻¹ もの高い電子移動度を持つアモルファス ZnO_xN_y[1]や、-99%を超える巨大な負の磁気抵抗を示す EuNbO₂N [2]などが報告されている。酸窒化物の多くは化学量論組成において半導体的な性質を示すものがほとんどであるが、金属伝導を示す数少ない例として SrWO₂N が報告されている[3]。しかしながら、SrWO₂N はこれまで粉末焼結体しか合成例がなく、電子輸送特性の詳細な解明には、粒界散乱の影響の小さい単結晶での測定が望まれる。そこで本研究では、SrWO_{3-x}N_x 単結晶薄膜を作製し、その電子輸送特性について調べた。

【実験手法】SrWO_{3-x}N_x 単結晶薄膜は窒素プラズマ支援パルスレーザー堆積法により SrTiO₃(001) (STO)基板および(LaAlO₃)_{0.3}-(SrAl_{0.5}Ta_{0.5}O₃)_{0.7} (001) (LSAT)基板上に作製した。投入電力は 400 W に固定し、レーザー繰り返し周波数は 5 Hz と 1 Hz とした。薄膜の結晶構造、化学組成は X 線回折法(XRD)、エネルギー分散型 X 線分光(EDS)を用いてそれぞれ評価した。電子輸送特性は LSAT 基板上の薄膜を用いて 4 端子法およびホール効果測定により測定した。

【結果と考察】図 1 に STO 基板上に作製した薄膜の XRD パターンを示す。どちらの薄膜も薄膜由来のピークのみが明瞭に観測されており、不純物のない薄膜が得られたことが示唆された。また、二次元検出器を用いた測定により、薄膜がエピタキシャル成長していることを確認した。これらの薄膜の EDS スペクトル (図 2) には窒素の K α ピークが現れ、薄膜中の窒素の存在が確認できた。Sr / W = 1, (O + N) / Sr = 3 と仮定し、窒素と酸素それぞれの K α ピークの面積比をもとに組成を計算したところ、5 Hz で作製した薄膜は SrWO_{2.3}N_{0.7} であり、1 Hz で作製した薄膜は SrWO_{1.9}N_{1.1} であった。図 3 は LSAT 基板上に作製した薄膜の抵抗率の温度依存性である。室温での抵抗率は、粉末焼結体での値 (1 Ω cm) に比べて大きく減少した。これは、単結晶化により粒界散乱の影響が大幅に抑制されたためだと考えられる。また、SrWO_{1.9}N_{1.1} 薄膜の室温でのキャリア濃度を測定したところ 1.7 $\times 10^{22}$ cm⁻³ であった。この結果に基づき W あたりの電子数を計算すると 1.3 個となり、化学組成から計算した W あたりの電子数である 0.9 個に近い値であった。そのため、SrWO_{3-x}N_x の電気伝導は W⁵⁺由来の伝導電子が担っていると考えられる。

【謝辞】本研究は科研費 15H02024, 16H06438, 16H06441, 19H02594, 19K22227 の助成を受けて実施された。【参考文献】 [1] T. Yamazaki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **109**, 262101 (2016). [2] A. Belén Jorge *et al.*, J. Am. Chem. Soc **130**, 12572 (2008). [3] I. Fawcett *et al.*, Mater. Res. Bull. **32**, 1565 (1997).

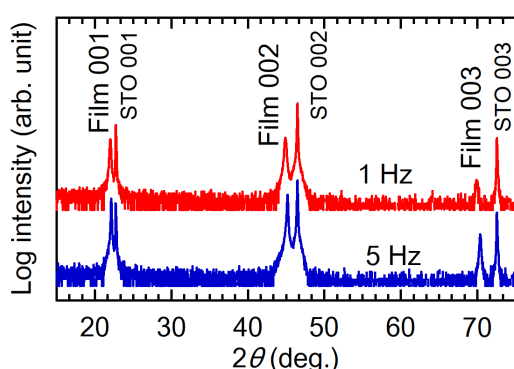


Fig. 1: XRD patterns of the SrWO_{3-x}N_x thin films fabricated at repetititon rates of 5 Hz and 1 Hz on STO substrates.

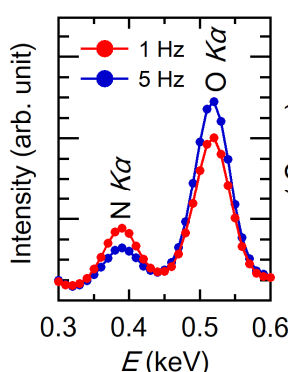


Fig. 2: EDS spectra of the SrWO_{3-x}N_x films on STO substrates.

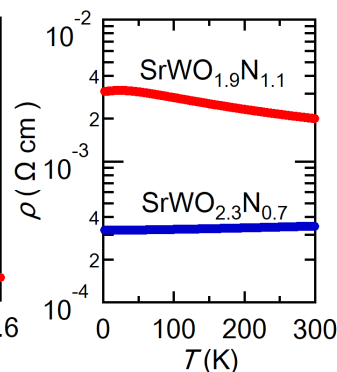


Fig. 3: ρ - T curves of the SrWO_{3-x}N_x films on LSAT substrates.