

電界効果を利用したフッ化反応による酸フッ化物単結晶薄膜の合成

Synthesis of single-crystal oxyfluoride thin films by field-effect-induced fluorination

京大工¹ ○(D)難波 杜人¹, (P)Haobo Li¹, 高津 浩¹, 陰山 洋¹

Kyoto Univ.¹, ○Morito Namba¹, Haobo Li¹, Hiroshi Takatsu¹, Hiroshi Kageyama¹

E-mail: kage@scl.kyoto-u.ac.jp

強相関電子系酸化物は、銅酸化物の高温超伝導やマンガン酸化物の巨大磁気抵抗に代表される興味深い物性の宝庫である。一般的に、これらの物性制御は異種カチオンをドーピングすることによって行われてきた。その一方で例えば鉄系超伝導体 ($\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$,^[1] $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ^[2]) のように、酸素サイトに異種アニオンであるヒドライドイオン (H^-) やフッ化物イオン (F^-) をドーピングする試みも近年盛んに行われてきている。しかし、アニオンドーピングによる物性探索はカチオンに比べて圧倒的に少ない。

ペロブスカイト酸化物 SrCoO_3 は酸化物としては非常に珍しく、室温近傍まで強磁性金属状態を示す^[3]。この物質に対するカチオンドーピングは興味深く、強磁性状態を抑制してらせん磁性状態との相競合を引き起こす^[4]。こうした研究に対応して、 SrCoO_3 の酸素サイトをフッ化物イオンで置換した物質を合成することは意義深い。しかしながら、 F_2 ガス反応や XeF_2 を用いた水熱法により合成された $\text{SrCoO}_{2.5}\text{F}_{0.5}$ 多結晶では焼結体の形成が困難なことや不純物の影響から電気的性質が明らかになっていない^[5,6]。また $\text{SrCoO}_{2.5}$ 単結晶薄膜に対するポリフッ化ビニリデン (PVDF) を用いた低温反応では、多量の欠損が生じアニオン組成が制御できない^[7]。

これらの課題を解決しアニオン組成の制御された酸フッ化物単結晶薄膜を得る手法として、本研究ではイオン液体を用いた電界効果に着目した。フッ化テトラメチルアンモニウム (TMAF) をイオン液体 (1-methyl-1-propylpyrrolidinium bis(trifluorosulfonyl)imide, MPPTFSI) に溶解させゲート絶縁体として用い、パルスレーザー堆積法によって作成した $\text{SrCoO}_{2.5}$ 薄膜に対して負のゲート電圧を印加した。X線測定 (Fig 1) や価数測定から、酸化的にフッ化物イオンを挿入した $\text{SrCoO}_{2.5}\text{F}_{0.5}$ の単結晶薄膜を得ることに成功したと考えられる。発表では得られた酸フッ化物薄膜の構造、電気的・磁気的物性について報告する。

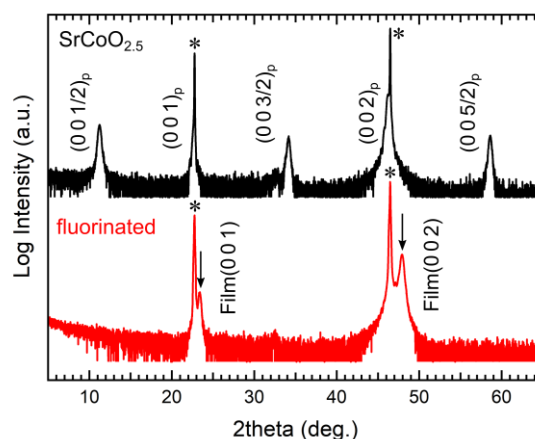


Figure 1. X-ray diffraction patterns of precursor $\text{SrCoO}_{2.5}$ (top, black) and fluorinated (bottom, red) thin films on $\text{SrTiO}_3(100)$ substrates.

[1] S. Iimura et al. *Nat. Commun.* **3**, 943 (2012).

[2] Y. Kamihara et al. *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).

[3] T. Takeda and H. Watanabe, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **33**, 973 (1972).

[4] H. Sakai et al. *Phys. Rev. Mater.* **2**, 104412 (2018).

[5] E. Sullivan et al. *Mater. Res. Bull.* **47**, 2541 (2012).

[6] C. K. Blakely et al. *J. Solid State Chem.* **289**, 121490 (2020).

[7] T. Katayama et al. *J. Sol-Gel Sci. Technol.* **73**, 527 (2015).