ルチル型 $\text{TiO}_2\text{-RuO}_2$ 膜におけるスピノーダル分解

Spinodal decomposition in rutile-type $\text{TiO}_2\text{-RuO}_2$ films

岡山大基礎研¹, 岡山大院自然科学²

○村岡 祐治¹, 河原 拓海², 脇田 高德¹, 横谷 尚睦¹, 竹元 嘉利²

Okayama Univ. RIIS.¹, Okayama Univ. Grad. Sch. Nat. Sci. Tech.²,

○Yuji Muraoka¹, Takumi Kawahara², Takanori Wakita¹, Takayoshi Yokoya¹, Yoshito Takemoto²

E-mail: ymuraoka@cc.okayama-u.ac.jp

スピノーダル分解は相分離の一種で、微小な濃度揺らぎにより連続的に濃度を変化させる特徴をもつ。等方的に起こることが多いスピノーダル分解だが、ルチル型酸化物系では異方的に生じうる。 $\text{TiO}_2\text{-SnO}_2$ や $\text{TiO}_2\text{-VO}_2$ 系では分解が[001]方向に起こり、その結果ナノスケールのラメラ構造が形成される。異方的分解はルチル型構造が正方晶であることに起因すると考えられている[1]。

ルチル型 $\text{TiO}_2\text{-RuO}_2$ 系でもスピノーダル分解が起きる。多結晶による実験では、この系の分解は異方的ではなく、等方的に発生している[2]。 $\text{TiO}_2\text{-RuO}_2$ 系においてもルチル型構造に由来する異方的な分解が発現するかどうかに興味をもたれる。

エピタキシャル成長膜を用いると、異方的なスピノーダル分解を誘起することができる。基板と膜の界面における格子の拘束により面内方向への濃度揺らぎが抑えられ、その結果、面直方向にのみ分解が生じるためである[3]。本研究では、 $\text{TiO}_2\text{-RuO}_2$ 系においてエピタキシャル成長膜のスピノーダル分解を試みた。格子歪の効果により[001]方向に異方的分解が発生するかどうかを調べた。

成膜はパルスレーザー堆積法により、サファイア(10-10)基板に行った基板温度は 650 °C、酸素分圧は 1 mTorr に設定した。膜厚は 100 nm である。得られた膜の金属組成は $\text{Ti}_{0.67}\text{Ru}_{0.33}$ で、スピノーダル分解が起こる領域の組成比である。膜のエピタキシャル成長は X 線 ϕ スキャンにより確認した。

X 線回折および逆格子測定より、作製した膜では Ti-rich と V-rich に由来する(002)ピークが観測された。成膜したときにすでに c 軸配向を保ったまま相分解が起きていることを示している。一方、透過電子顕微鏡観察からは相分解の様子が見られたが、 c 軸方向へのラメラ構造は観測されなかった。金属元素の濃度プロファイルから、面直と面内方向ともに Ti と Ru の濃度が周期的に変調し、その周期は両方向とも約 20 nm 程度であった。これらの結果は $\text{TiO}_2\text{-RuO}_2$ 系エピタキシャル膜においてスピノーダル分解の発生には成功したが、分解は異方的ではなく等方的であることを示している。講演では、 $\text{TiO}_2\text{-RuO}_2$ 系において異方的分解が起こりにくい原因を結晶構造の観点から考察する。

[1] K. T. Wu *et al.*, J. Chem. Phys. **58**, 2929 (1973).

[2] X. Wang *et al.*, J. Am. Ceram. Soc. **98**, 1915 (2015).

[3] G. Abadias *et al.*, Acta Mater. **46**, 6403 (1998).