

Ru 置換 Cr₂O₃ 薄膜における絶縁体金属転移と Ru³⁺状態Insulator-to-metal transition and Ru³⁺ state in Ru-substituted Cr₂O₃ thin films東北大金研¹, KEK 物構研², 東北大多元研³, 北大電子研⁴, 東北大 CSRN⁵○藤原 宏平¹, 北村 未歩², 志賀 大亮^{2,3}, 丹羽 尉博², 堀場 弘司², 野島 勉¹,太田 裕道⁴, 組頭 広志^{2,3}, 塚崎 敦^{1,5}IMR, Tohoku Univ.¹, IMSS, KEK², IMRAM, Tohoku Univ.³,RIES, Hokkaido Univ.⁴, CSRN, Tohoku Univ.⁵○K. Fujiwara¹, M. Kitamura², D. Shiga^{2,3}, Y. Niwa², K. Horiba², T. Nojima¹,H. Ohta⁴, H. Kumigashira^{2,3}, and A. Tsukazaki^{1,5}

E-mail: kfujiwara@imr.tohoku.ac.jp

コランダム型 A₂O₃ (A: 金属イオン) は、金属酸化物の安定な結晶構造の一つであり、絶縁体金属転移を示す Ti₂O₃ や V₂O₃、電気磁気効果を示す Cr₂O₃ など、遷移金属酸化物の物性解明の舞台として重要な役割を果たしてきた。最近では、その関連構造であるイルメナイト型および LiNbO₃ 型 BCO₃ (B および C: 金属イオン) におけるマルチフェロイック現象や強誘電性の発現が注目を集めている[1]。これら結晶系に格子整合し、かつ、導電性を示す酸化物があれば、積層キャパシタ構造を用いた強誘電特性評価やヘテロ界面に基づくデバイスの開発など、素子研究への展開が可能となる。しかしながら、導電性を示すコランダム型、イルメナイト型および LiNbO₃ 型酸化物は僅かしか知られていない。本研究では、多くの導電性 Ru 酸化物において、Ru 4d 軌道由来の伝導帯が高い電気伝導性を担うことに着目し、反強磁性絶縁体 Cr₂O₃ への Ru 置換効果を調べた[2]。

Cr₂O₃-RuO₂ 混相ターゲットを用いたパルスレーザー堆積法により、Al₂O₃(0001)基板上に (Cr_{1-x}Ru_x)₂O₃ 薄膜を作製した。組成分析、X 線回折および透過型電子顕微鏡観察から、Ru 組成 $x \sim 0.53$ まで、不純物の析出を抑制しつつコランダム相を生成できることを見出した。図 1 に、電気抵抗率および磁気特性から構築した電子相図を示す。 $x \sim 0.40$ 以上で、反強磁性秩序が消失すると同時に金属相が出現する。放射光 X 線光電子分光および X 線吸収分光を用いて、フェルミ準位上の状態密度が Ru 4d 軌道由来であることを同定し、Ru 置換による電気伝導性誘起を実証した。さらに、X線吸収微細構造解析により、酸化物中では稀な Ru³⁺状態の存在を明らかにした。反応速度論の影響する真空成膜プロセスとコランダム構造における電荷中性条件が Ru³⁺の安定化に寄与しているものと考えられる。

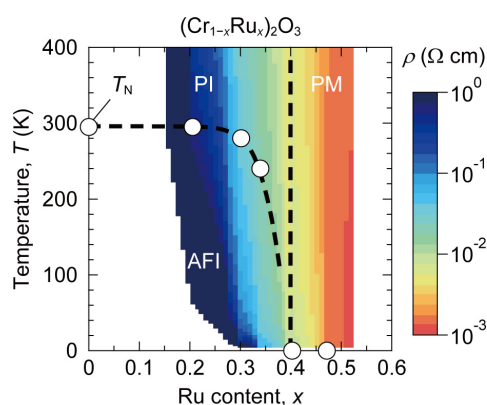


Fig. 1 Electronic phase diagram of (Cr_{1-x}Ru_x)₂O₃ thin films. T_N: Néel temperature. PI: paramagnetic insulator, AFI: antiferromagnetic insulator, PM: paramagnetic metal.

[1] 稲熊ら, 高圧力の科学と技術, **24**, 212 (2014), [2] K. Fujiwara *et al.*, *Chem. Mater.* **32**, 5272 (2020).