

準安定 ($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x$)Se 薄膜の 2 次元-3 次元構造転移と巨大電子物性変調

2D-3D structural phase transition and giant electronic property modulation

of non-equilibrium ($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x$)Se thin films

東工大フロ研¹, 物材機構², 阪大産研³, 東工大元素セ⁴ ○高橋 雄大¹, 片瀬 貴義¹,
ホ シンイ¹, 只野 央将², 井手 啓介¹, 吉田 秀人³, 河智 史朗⁴, 山浦 淳一⁴, 笹瀬 雅人⁴,
平松 秀典^{1,4}, 細野 秀雄⁴, 神谷 利夫^{1,4}

MSL Tokyo Tech¹, NIMS², ISIR Osaka Univ.³, MCES Tokyo Tech⁴ ○Yudai Takahashi¹, Takayoshi
Katase¹, Xinyi He¹, Terumasa Tadano², Keisuke Ide¹, Hideto Yoshida³, Shiro Kawachi⁴, Junichi
Yamaura⁴, Masato Sasase⁴, Hidenori Hiramatsu^{1,4}, Hideo Hosono⁴, Toshio Kamiya^{1,4}

E-mail: y-takahashi@mces.titech.ac.jp

[はじめに] Sn^{2+} , Pb^{2+} , Bi^{3+} に代表される ns^2 の電子配置を持つイオンは、イオン結合・共有結合・孤立電子対などの化学結合状態の競合によって、3次元から0次元までの多様な結晶構造を取る。例えば、 SnSe (バンドギャップ $E_g = 1.1$ eV) は、 Sn^{2+} の孤立電子対によって歪んだ2次元(2D)層状構造を取るが、 PbSe ($E_g = 0.3$ eV) では、 Pb^{2+} が孤立電子対を作らず、3次元(3D)岩塩型構造が安定である。このような結合状態と構造の次元性を外場で制御できれば、大きな電子構造変化による巨大な光電子物性変調が期待できる。両構造を固溶体化すれば、相境界付近で両構造のエネルギーが拮抗して構造転移を示すと期待できるが、熱平衡状態では PbSe と SnSe の固溶域は小さく、直接の相境界を共有しない問題があった[1]。本研究では、高温での岩塩型($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x$)Se 準安定相を室温で安定化させる非平衡薄膜成長法により、($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x$)Se 薄膜の固溶限を大きく広げること成功した。相境界付近で温度による構造転移と電気特性の変化を調べたので報告する。

[実験方法] ($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x$)Se 薄膜は、高温固相反応と急冷処理を組み合わせた非平衡成長法により、 $\text{MgO}(001)$ 基板上に作製した。まずパルスレーザー堆積法により、エピタキシャル PbSe 層と多結晶 SnSe 層を積層させた2層膜を作製した。その後、 Ar 雰囲気下でシリカガラス中に封管し、 600°C , 30分熱処理して固相反応させ、室温に急冷することで、高温相の岩塩型($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x$)Se 固溶体膜を作製した。

[結果] ($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x$)Se 薄膜の X 線回折測定から、 $x = 0 \sim 0.5$ の範囲で岩塩型構造のエピタキシャル薄膜が得られた。最大 Pb 濃度の($\text{Pb}_{0.5}\text{Sn}_{0.5}$)Se 薄膜の電気抵抗率は、150K 付近で電気抵抗率が約3桁増加し、ヒステリシスを伴って可逆的に変化した(図)。(Pb_{0.5}Sn_{0.5})Se 固溶体薄膜の X 線回折の温度変化から、温度で岩塩型構造から層状構造へ可逆的に変化する事が分かった。以上のことから、(Pb_{0.5}Sn_{0.5})Se 薄膜の可逆的な2D-3D 構造転移によって、巨大な電気特性変調を実現した。詳細な電気特性と電子構造解析は当日発表する。

参考文献 [1] A.A. Volykhov et al., Inorg. Mater. 44, 345 (2008).

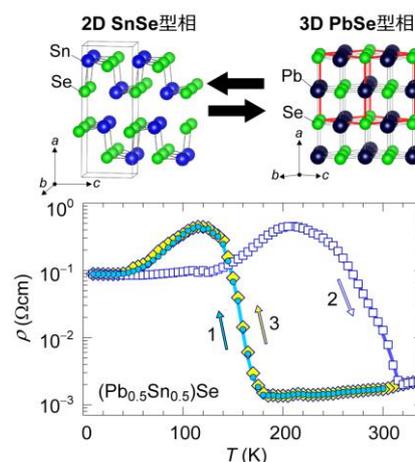


Figure: Resistivity vs. temperature for ($\text{Pb}_{0.5}\text{Sn}_{0.5}$)Se solid solution film. Upper figures show the crystal structures of 2D layered SnSe (left) and 3D cubic PbSe (right).