

超高压で合成される機能性酸化物の薄膜化に成功

東京工業大学 科学技術創成研究院 フロンティア材料研究所の重松圭助教、清水啓佑博士 研究員、Hena Das 特任准教授、東正樹教授らの研究グループは神奈川県立産業技術総合研究所 (KISTEC) と共同で、マンガン・銅・セリウム・酸素からなる超高压相の酸化物 ($\text{CeCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$) を高品質な薄膜として合成することに成功した。

実験による合成と第一原理計算による予測によって、 $\text{CeCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ 薄膜の結晶格子に与える歪みの影響を調べ、面内に圧縮歪みを印加することで垂直磁化膜になることを発見した。垂直磁化膜は高記録密度磁気メモリーやスピントロニクスに重要な特性であり、新たな電気・磁気機能材料の開発につながると期待される。

研究成果は 10 月 22 日に米国化学会誌「**Applied Electronic Materials**」のオンライン版に掲載された。

研究の背景

四重ペロブスカイト酸化物 $\text{AA}'_3\text{B}_4\text{O}_{12}$ (図 1) は、巨大常誘電性や電荷移動、負熱膨張特性や触媒機能、ハーフメタル特性といった興味深い物性が相次いで発見されている物質群である。四重ペロブスカイト酸化物は非常に密な構造をもつため、高压合成法による合成と相性が良く、近年、急速に研究が進んでいる。しかし、高压合成法はコストが高く、また一回の合成で得られる量が限られているため、上記の機能を実用化するためには、より簡便な合成方法で高品質な材料を得る必要がある。

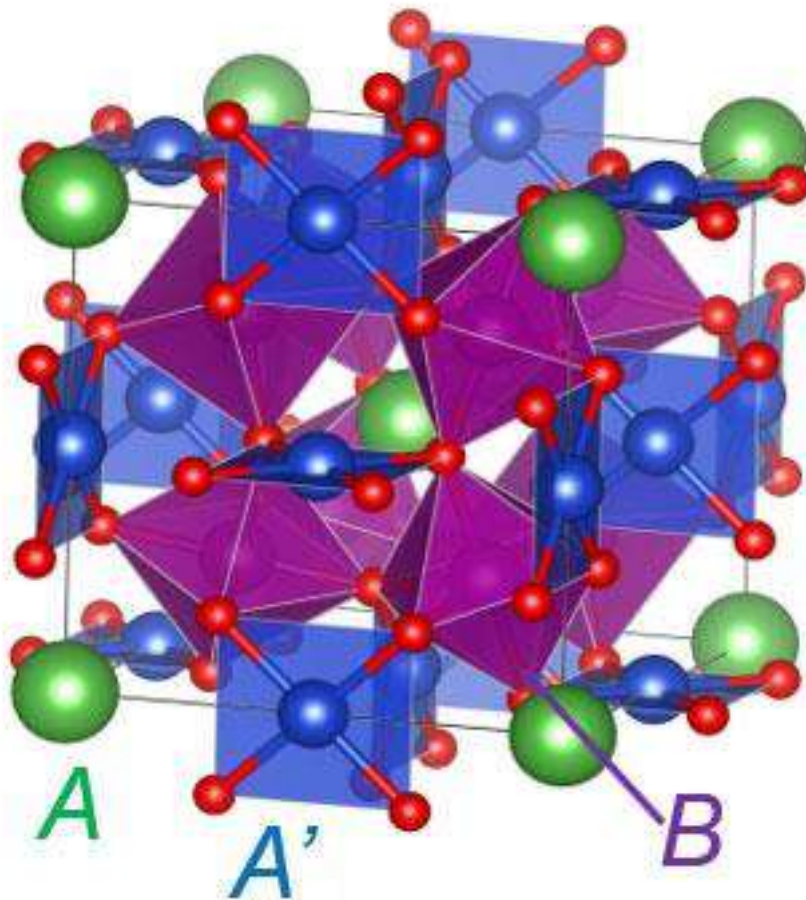


図 1. 四重ペロブスカイト酸化物 $AA_3B_4O_{12}$ の結晶構造

研究成果

研究グループは室温フェリ磁性体であるマンガン・銅・セリウム・酸素からなる四重ペロブスカイト型酸化物 ($CeCu_3Mn_4O_{12}$) を、パルスレーザー堆積法という手法を用い、薄膜形態にて作製した。基板の種類や結晶成長の温度などのパラメータを最適化した結果、ペロブスカイト酸化物 $YAlO_3$ (アルミン酸イットリウム) 基板上において高品質な薄膜が得られた。

また、得られた薄膜の磁気異方性を調べたところ、薄膜面内で最も引っ張られている方向に強い一軸の磁気異方性が発現していることを発見した。加えて、第一原理計算によって、歪みを受けた薄膜と同じ $CeCu_3Mn_4O_{12}$ 結晶を再現し、その磁気異方性エネルギーを計算したところ、結晶格子が伸びた方向に磁化容易軸が向いたときにエネルギー的に有利であり、実験と合致する結果が得られた。これらの結果から、 $CeCu_3Mn_4O_{12}$ 薄膜に圧縮歪みを印加すれば、薄膜に垂直な方向が最も結晶方向が引き伸ばされ、垂直磁化膜となることが予想された。

圧縮歪みを受けた $\text{CeCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ 薄膜を実現するためには、 $\text{CeCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ よりも結晶格子が小さい物質を下地にする必要があるが、適する基板が存在しない。そこで、薄膜と基板の間に、より面内の格子定数が小さく、ペロブスカイトと類似した構造をもつ YCaAlO_4 (アルミン酸イットリウム・カルシウム) をバッファ層として挿入する工夫を施すことで、薄膜に印加する歪みを引張りから圧縮に切り替えることに成功した。この薄膜で磁気特性を調べたところ、面内方向の一軸磁気異方性が消失すると同時に面直方向の磁気異方性が強くなり、垂直磁化膜が実現していることが確かめられた。

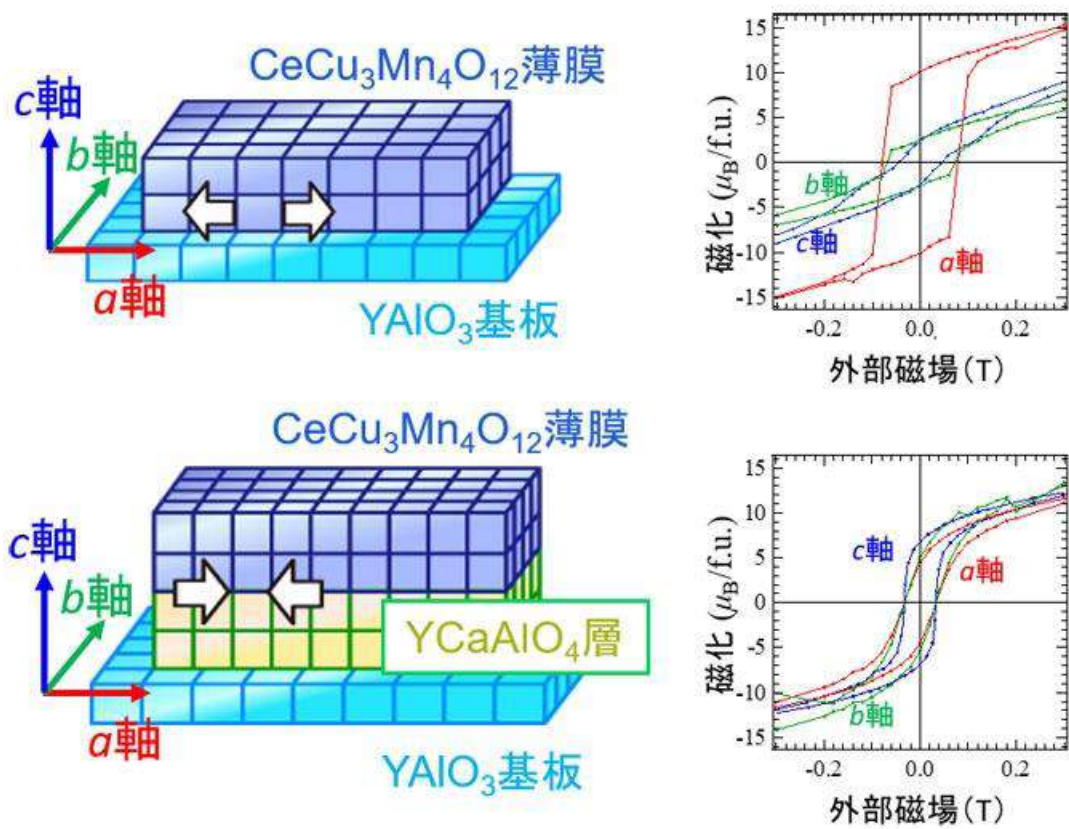


図 2. 四重ペロブスカイト酸化物 $\text{AA}'_3\text{B}_4\text{O}_{12}$ の結晶構造

異なる下地を用いて格子歪みを制御した $\text{CeCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ 薄膜の模式図(左)と磁化測定(右)。磁化測定は、図中で定義した a、b、c 軸に沿ってそれぞれ外部磁場を印加した結果である。このカーブが縦軸方向に長方形に近い形を示すほど磁化容易軸になる。 YAlO_3 基板上的 $\text{CeCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ 薄膜は、最も強く引っ張られた面内 a 軸方向が磁化容易軸であるが、 YCaAlO_4 層を挿入することで c 軸が磁化容易軸に変わる。

論文タイトル :Strain Manipulation of Magnetic Anisotropy in Room-Temperature

Ferrimagnetic Quadruple Perovskite CeCu₃Mn₄O₁₂

掲載誌 :Applied Electronic Materials

DOI :10.1021/acsaelm.9b00547 outer

日文新闻发布全文 <https://www.titech.ac.jp/news/2019/045704.html>

文：JST 客观日本编辑部翻译整理