

[(CaFeO_x)_n/(LaFeO₃)_n]_m 人工超格子の磁気特性 Magnetic Properties of [(CaFeO_x)_n/(LaFeO₃)_n]_m Superlattices

○小山智之¹, 大橋祥平², 松山裕貴², 赤澤孝徳¹, 王春², 張琦²,
渡部雄太³, 宋華平⁴, 永田知子⁵, 山本寛⁵, 岩田展幸⁵

*Tomoyuki Koyama¹, Shohei Ohashi², Hirotaka Matuyama², Takanori Akazawa¹, Chun Wang², Zhang Qi²,
Yuta Watabe³, Song Huaping⁴, Tomoko Nagata⁵, Hiroshi Yamamoto⁵, Nobuyuki Iwata⁵

Abstract: [(CaFeO_x(CFO))_n / (LaFeO₃(LFO))_n]_m, where $m = 14$ for $n = 3, 5, 7$, and $(n, m) = (1, 98), (3, 33), (5, 20)$, superlattices are deposited by pulsed laser deposition (PLD) method. The M - H hysteresis loop is observed in the [(CFO)_n/(LFO)_n]_m ($m = 14$ for $n = 3, 5, 7$) superlattices. The number of n was decreased, coercive field as well as exchange bias field decreased. Considering the antiferromagnetic ordering both of CFO and LFO, the n dependence of ferromagnetic property reveal the presence of ferromagnetic interaction at the CFO / LFO interface.

1. 背景・目的

本研究の最終目的は、[(CaFeO_x(CFO))_n/(LaFeO₃(LFO))_n]_m 人工超格子を作製し、室温で超交換相互作用に基づいた強磁性(FM)を発現させることである^[1]。CFO と LFO は双方共に反強磁性体であるが、LFO から CFO へ電子移動することで、CFO / LFO 界面で強磁性的特性を示すと考えている^[2-3]。

本研究の目的は、パルスレーザ堆積(Pulsed Laser Deposition : PLD)法で作製した[(CFO)_n/(LFO)_n]_m ($m = 14$ for $n = 3, 5, 7$ and $(n, m) = (1, 98), (3, 33), (5, 20)$) 人工超格子の、界面に垂直方向の磁気測定を行い、 (n, m) の組み合わせでどのように磁気特性が依存するのかを明らかにすることである。

2. 実験方法

2.1 基板処理条件

成膜に使用した基板は SrTiO₃(STO)(001)である。STO(001)をアセトン 5min、アセトン 15min、エタノール 5min で超音波洗浄を行った。洗浄した STO(001)を純水に 30min 浸漬させ、BHF(関東化学株式会社、BHF110、pH5.0)に 20sec 浸漬し表面エッチングを行った。その後、STO(001)を 900°C4h でアニール処理を行い、結晶性を向上させた。

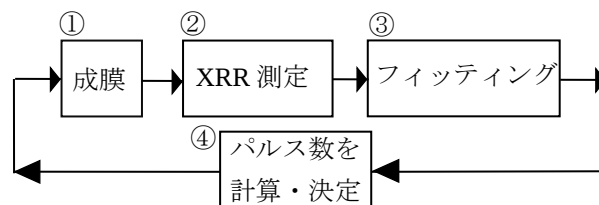
2.2 成膜条件

成膜条件を Table1 に示す。

Table 1 成膜条件

成膜雰囲気	O ₂
ヒータ温度[°C]	670
レーザ周波数[Hz]	4
レーザエネルギー密度[J/cm ²]	2.7
成膜時の内圧[Pa]	20

人工超格子作製には PLD 法を用いた。人工超格子成膜前に STO 基板と同様の材料を、膜厚制御のために 7 層成膜した。PLD 装置内を 20Pa の O₂ 雰囲気下にした後、ヒータ温度を 670°C に設定した。KrF エキシマレーザのエネルギー密度を 2.7J/cm²、周波数を 4Hz とした。CFO / LFO 人工超格子作製の際、反射型高速電子線回折(Reflection High Energy Electron Diffraction : RHEED)パターンでは層数制御が困難なため、新たな層数決定法を用いた。層数決定法の概要図を Figure 1 に示す。



次の人工超格子にフィードバック

Figure 1 パルス数決定法：新たな人工超格子作製手法である。1 枚成膜し、X 線反射(X-ray Reflection : XRR)測定とそのフィッティングから、膜厚とパルス数を計算する。計算結果を、次の人工超格子にフィードバックすることで、人工超格子の膜厚制御を行っている。

2.3 評価方法

SQUID-VSM(Quantum Design、MPMS3)を用いて、試料温度 10K の[(CFO)_n/(LFO)_n]_m ($m = 14$ for $n = 3, 5, 7$ and $(n, m) = (1, 98), (3, 33), (5, 20)$) 人工超格子の磁気モーメントを、外部磁界 7T から -7T までの範囲で測定した。

3. 実験結果

Figure 2 に試料温度 10K の M - H カーブを示す。界面に対して垂直に外部磁界を印加し、磁気モーメントを測定した結果である。Figure 2 の(a)は $n = 7, m = 14$ の [7 units / 7 units]14 cycles : [7/7]14、(b)は [5/5]14、(c)は [3/3]14 の M - H カーブである。各図の右下に低磁場中のヒステリシスループを示す。また飽和磁気モーメント M_s を、Figure 2(a) ~ (c) の最大磁気モーメントからそれぞれ算出した。

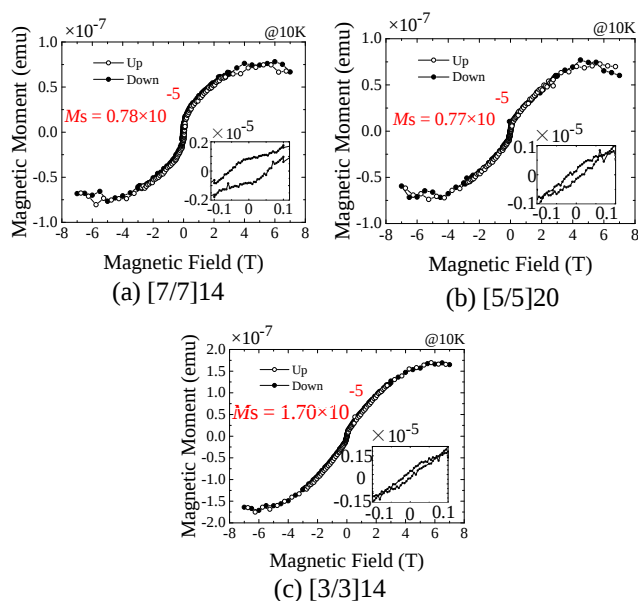


Figure 2 [(CFO) $_n$ (LFO) $_m$ ($m = 14$ for $n = 3, 5, 7$)人工超格子の磁気特性：界面に対して垂直に外部磁界を印加し、試料内部の磁気モーメントを測定した結果である。(a)は[7units / 7units]14cycles : [7/7]14、(b)は[5/5]14、(c)は[3/3]14の M - H カーブである。(a) ~ (c) の傾きから、各試料は強磁性的性質を持つことがわかった。

Figure 2 (a) ~ (c) の傾きから、全結果において強磁性的性質を示していることがわかった。(a) ~ (c) の保磁力 H_C はそれぞれ 55 mT、18 mT、9 mT であり、単位面積当たりの飽和磁気モーメント M_s はそれぞれ $0.312[\text{emu} / \text{m}^2]$ 、 $0.308[\text{emu} / \text{m}^2]$ 、 $0.68[\text{emu} / \text{m}^2]$ であった。界面で強磁性が発現していると仮定すると、unit 数 n が減少することで各界面の強磁性的相関が強くなったと考えている。また、(a) ~ (c) の交換バイアス磁場 H_{EB} はそれぞれ -1.5 mT、-1.05 mT、-0.415 mT であった。一般的に、強磁性/反強磁性界面が存在すると界面の磁氣的交換相互作用によって H_{EB} が発生する。この場合、unit 数 n が減少するとき、 H_{EB} は界面間の強磁性的結合が増加することで、その絶対値は減少すると予想できる。以上の結果から、unit 数 n が小さいほど H_C

及び H_{EB} が減少したため、界面で強磁性的結合が存在していると考えて良い。

各パラメータと磁性的相関の関係図を Figure 3 に示す。

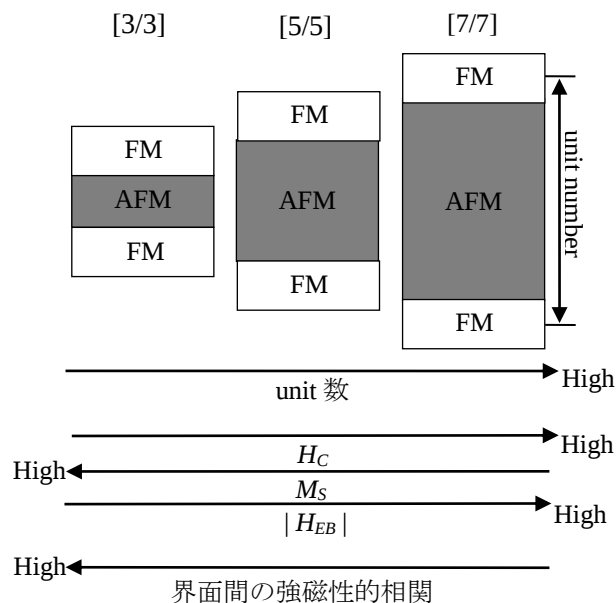


Figure 3 磁性的相関の unit 数依存性：膜厚と強磁性的相関の関係を示している。unit 数が減少するほど、保磁力 H_C は減少し、飽和磁気モーメント M_s が増加した。また、unit 数が増加すると交換バイアス磁場 H_{EB} の絶対値は増加した。ここから unit 数が減少すると H_C と $|H_{EB}|$ が減少するため、界面で強磁性的結合が存在していると考えられる。

当日は、膜厚を一定にした $[(n, m) = (1, 98), (3, 33), (5, 20)]$ 人工超格子の磁気特性を報告し、 (n, m) と磁気特性の関係性について明らかにする。

4. まとめ

PLD 法を用いて膜厚の異なる [(CFO) $_n$ (LFO) $_m$ ($m = 14$ for $n = 3, 5, 7$)人工超格子を作製し、試料温度 10K の人工超格子界面に対して面直方向の磁気モーメント測定を行った。全 M - H カーブの傾きから、強磁性的性質を示していることがわかった。unit 数 n が減少すると、 H_C および H_{EB} の値が減少し、 M_s が増加した。これら結果から、界面で強磁性的結合が存在していると考えている。

5. 参考文献

- [1] J. Kangmori, *Phys. Chem. Solids*, 10, 87-98 (1959)
- [2] W. C. Koehler and E. O. Wollan, *J. Phys. Chem. Solids*, 2, 100-106 (1957)
- [3] P. M. Woodward, D. E. Cox, E. Moshopoulou, A. W. Sleight, and S. Morimoto, *Phys. Rev. B*, 62, 844 (2000)