

四重ペロブスカイト $\text{LaCu}_3\text{Mn}_{4-x}\text{Fe}_x\text{O}_{12}$ 薄膜の作製と磁気特性

Fabrication and magnetic property of $\text{LaCu}_3\text{Mn}_{4-x}\text{Fe}_x\text{O}_{12}$ thin film

東工大フロンティア材料研 ○山本 一理, 清水 啓佑, 重松 圭, 東 正樹

MSL, Tokyo Tech. Kazumasa Yamamoto, Keisuke Shimizu, Kei Shigematsu, and Masaki Azuma

E-mail: yamamoto.k.bl@m.titech.ac.jp

[研究背景] 四重ペロブスカイト酸化物 $\text{LaCu}_3\text{M}_4\text{O}_{12}$ ($M=\text{Fe}, \text{Mn}$) は、室温フェリ磁性、磁気抵抗効果、電荷移動[1-2]など興味深い物性を示す。しかしながら、四重ペロブスカイト酸化物は非常に稠密な構造であるために高压合成を必要とするものが大半であり、薄膜合成において試料作製に成功した例はわずかしかなない。我々は、ミスマッチの小さい YAlO_3 (YAO) 基板上において、常圧で合成可能な四重ペロブスカイト $\text{CaMn}_7\text{O}_{12}$ および 2 GPa 以上の高压条件でのみ合成可能な $\text{LnCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ ($\text{Ln}=\text{Ce}, \text{Nd}, \text{Gd}, \text{Ho}$) の高品質な薄膜が作製可能であることを見出した[3]。本研究では、次なる目標として四重ペロブスカイト酸化物の B サイト元素置換に着目し、その足がかりとして B サイトに Fe を含んだ $\text{LaCu}_3\text{Fe}_x\text{Mn}_{4-x}\text{O}_{12}$ (LCFMO) 薄膜を YAlO_3 (YAO) 基板上に作製し、その結晶構造および磁気特性を評価した。

[実験方法] パルスレーザー堆積法を用いて、 YAlO_3 (110) 基板上に LCFMO ($x = 0-4.0$) 薄膜を作製した。成膜温度は 730°C に固定した。チャンパー内に約 10% O_3/O_2 混合ガスを導入し、分圧は 40 Pa に固定した。結晶構造評価は X 線回折 (XRD) (リガク; SmartLab) を用いた。磁気特性評価には SQUID 磁束計 (MPMS; Quantum Design) を用いた。

[実験結果] LCFMO ($x = 0-4.0$) 薄膜の合成を行ったところ、X 線回折からは $x=1.5$ までは四重ペロブスカイト構造由来のピークが確認できた一方で、 $x=2.0$ 以上の試料についてはピークが観測されず結晶性の薄膜が確認できなかった。LCFMO ($x = 0-2.0$) 薄膜の X 線回折の結果を図 1 に示す。 $x=1.5$ 以下の試料について、YAO 基板の高角側に LCFMO 由来のピークが確認され、その他の不純物のピークは観察されなかった。

図 2 に薄膜の磁化の温度依存性を示す。 $\text{LaCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ (LCMO) 薄膜はネール温度が $\sim 320\text{ K}$ 、飽和磁化 $\sim 10\ \mu_B/\text{f.u.}$ を示した。LCMO は、A' サイトの Cu-Cu 間、B サイトの Mn-Mn 間ではそれぞれ強磁性相互作用が働き、Cu-Mn 間では反強磁性相互作用が働くことから室温フェリ磁性を示すことが知られている。本研究の LCMO 薄膜は、バルク試料よりもネール温度が減少し、磁化の増加が確認された。ここに Fe 置換を行ってゆくと、置換量 x の増大に伴いネール温度の減少が見て取れた。また $x = 1.0$ の試料を除くと Fe 置換量の増加に伴い、磁化の大きさが減少していることがわかる。これは Fe 置換量の増加により B サイト間の Fe-Mn の反強磁性相互作用が支配的になったことが考えられる。

[参考文献]

- [1] J. A. Alonso *et al.*, Appl. Phys. Lett. **83**, 2623 (2003). [2] Y. Shimakawa *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **49**, 11960 (2016).
[3] 清水ほか、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 7p-C23-12,13

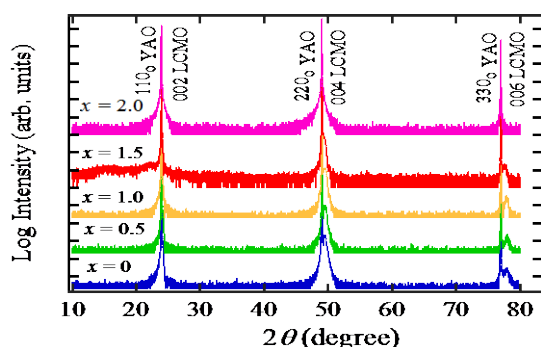


Figure 1. XRD 2θ - θ patterns of LCFMO ($x=0-1.5$) thin films on YAO(110).

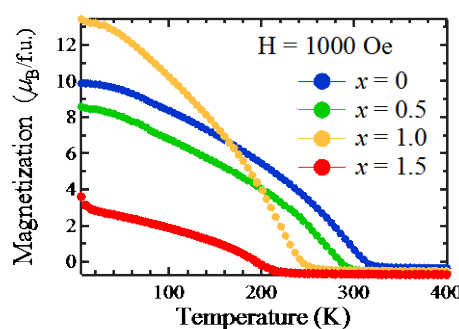


Figure 2. Temperature dependence of magnetization of LCFMO thin films, external magnetic field of 1000 Oe was applied along $[-110]$.