

六方晶希土類鉄酸化物薄膜における磁気特性 Magnetic properties of hexagonal rare-earth ferrite thin films

横田紘子¹, 實川隼輔², 小堀優², 高寺香寺²

¹千葉大学大学院 理学研究院 物理学研究部門

〒305-0801 つくば市大穂 1-1

²千葉大学大学院 融合理工学府, 〒263-8522 千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33

Hiroko YOKOTA^{1,*}, Shunsuke JITSUKAWA², Yu KOBORI², Koji TAKATERA²

¹Chiba University, Faculty of Science, Department of Physics,

1-33 Yayoi-cho, Inage, Chiba city, Chiba 263-8522, Japan

²Chiba University, 1-33 Yayoi-cho, Inage, Chiba city, Chiba 263-8522, Japan

1 はじめに

2 つ以上の強制的秩序を併せ持つ物質群はマルチフェロイクスとして知られており、そのうち、強誘電性と(反)強磁性を兼ね備える物質群はクロス相関により、電場によってスピンを、磁場によって電気双極子を制御することが可能となることが期待されることから盛んに研究がなされている。一方で、マルチフェロイクス特性を示す物質は数が非常に限られており、その多くが極低温においてのみ特性を有する。数の少なさの原因としては、強誘電体が d 電子がゼロ状態を好むのに対し、磁気秩序は d 電子が不対電子を持つことにより誘起されるという、相反する状態を取ろうとするため (d^0 問題)だと考えられている。本研究では、この d^0 問題によらないマルチフェロイクス物質として注目されている六方晶希土類鉄酸化物(h -REFeO₃)に着目をし、研究を行った。

希土類鉄酸化物はバルクの状態では直方晶が安定相として存在するが、ナノ粒子や薄膜化することにより、準安定相である六方晶系を実現することができる^[1]。六方晶系においては酸素多面体の傾きによりイオン変位が生じることで自発分極が生まれることから、 d 電子に依らず強誘電性を誘起することができる。一方で、磁気的なことに関してはあまり明確な結論が得られていないのが現状である。特に希土類と鉄 2 つの磁性イオンを有することから、その理解はより複雑になる。本研究では、元素選択的に磁気的な性質を観察することが可能な軟 X 線円二色性測定(XMCD)を行うことにより、 h -REFeO₃ 薄膜の磁気特性を明らかにすることを目的に実験を行った。

2 実験

h -REFeO₃ 薄膜はパルスレーザー堆積法を用いて作成した。レーザーとして波長 266nm の Nd:YAG レーザー 4 倍波を用いた。基板としてイットリア安定化ジルコニウム YSZ(111)面およびサファイヤ(0001)面を用いた。基板温度 850°C, 酸素分圧 300mTorr, レー

ザー強度 35mJ の条件の下成膜を行った。得られた薄膜は X 線回折装置を用いて評価を行い、 c 軸配向の単相膜であることを確認した。

磁気特性に関しては、まず、SQUID を用いた評価を行った。その後、PF BL-16A 可変偏光軟 X 線分光ステーションにおいて XMCD 実験を行った。超伝導マグネットにより 5T 外部磁場印加のもと全電子収量法において測定を行った。捕獲電流を測定するため、Pt 薄膜を 5nm 上部電極として蒸着した試料を用いた。

3 結果および考察

図 1 に 35K において測定を行った面直入射の場合の Er M 端 左右円偏光 XAS スペクトルを示す。また磁気モーメントの角度分布を調べるために行った斜入射の場合の左右円偏光 XAS スペクトルを図 2 に示す。いずれの場合にも左右円偏光で XAS 形状に明瞭な違いが存在していることが見て取れる。また、左右円偏光 XAS スペクトルを足し合わせた無偏光 XAS の各吸収端のスプリット幅は内殻準位のスピン軌道分裂の効果を反映している。今回の実験ではスプリット幅はおよそ 41eV であったが、この値は Er³⁺

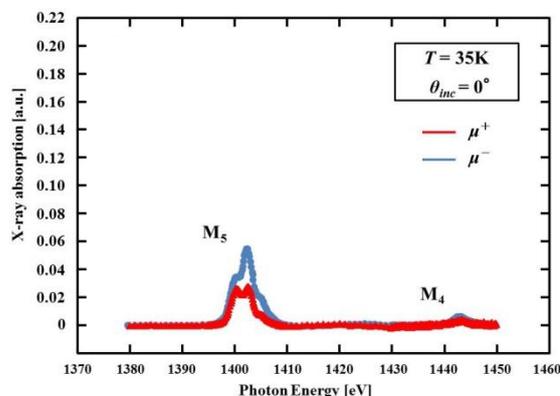


図 1: 左右円偏光 XAS スペクトル: Er M 端 (面直入射, 35K)

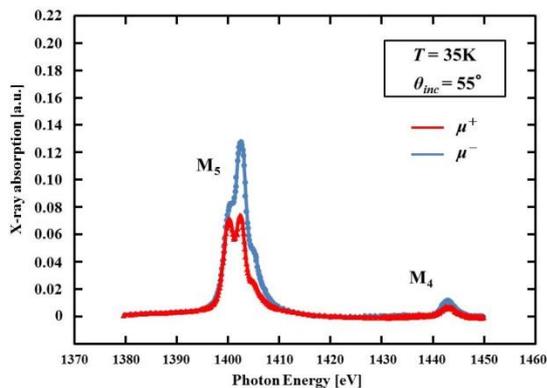


図 2: 左右円偏光 XAS スペクトル: Er M 端 (斜入射, 35K)

の理論計算の結果と良い一致を示している^[2]。メインピークの強度比は 12:1 であるが、この値も理論計算と良い一致をしている。左右円偏光 XAS スペクトルの差分をとることにより XMCD スペクトルが得られる。図 3 には斜入射の場合の XMCD スペクトルを示す。明瞭な XMCD スペクトルが得られていることがわかる。また、面直入射に対しても同様な解析を行ったところ、強度に違いはあるものの形状の似た XMCD スペクトルが得られた。

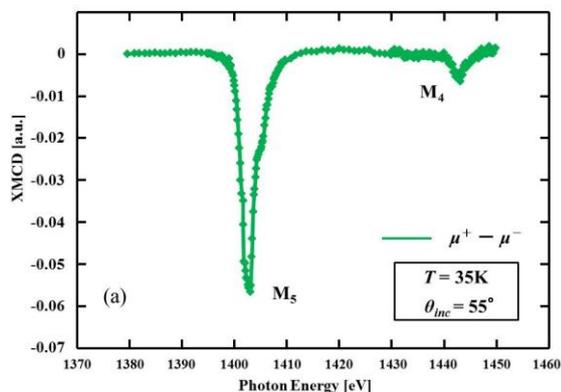


図 3: XMCD スペクトル: Er M 端 (斜入射, 35K)

いずれの場合にもスペクトルは負として得られたが、これは Er^{3+} イオンが $4f$ 軌道に 11 個の電子をもつことに対応した結果であるといえる。

XMCD スペクトルの積分強度を用いて軌道角運動量に関する総和則による解析を行った。その結果、軌道角運動量の磁場方向の期待値は斜入射の場合 1.32, 面直入射の場合 1.76 と得られた。一方で、 $4f$ 軌道は外殻の軌道に遮蔽されている可能性があり、得られた角度依存性がどの程度定量的な意味を持ち合わせているのかは議論が必要である。今後はより多くの角度において実験を行うことでスピン総和則からも議論を行っていくことが望まれる。

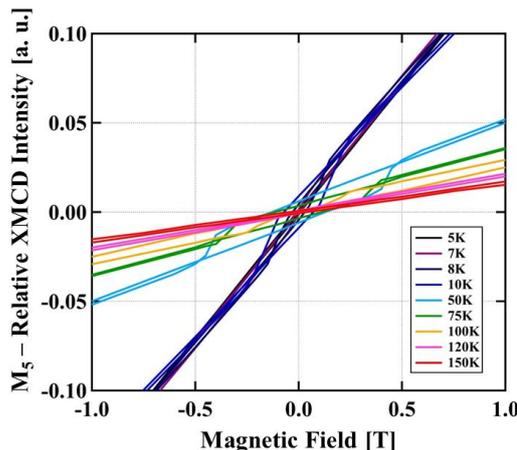


図 4: Er M 端 XMCD 強度の磁場依存性

図 4 には異なる温度で測定した M 端の XMCD 強度の磁場依存性を示す。120 K 以下において、常磁性的な線形成分の他に履歴が存在していることがわかる。温度をさらに下げ 10K 以下になるとほとんど履歴が見られなくなる様子を観察することができた。この結果は、SQUID 測定で得られた履歴測定とよい一致を示している。一方で、100K 近傍という比較的高い温度において希土類イオンによる磁性が寄与し始めることは珍しく、鉄イオンとの相互作用などが原因として考えられる。

4 まとめ

本研究では六方晶希土類鉄酸化物薄膜の磁気特性評価を XMCD 測定を用いて行った。その結果、希土類イオンの M 端において左右円偏光 XAS スペクトルに明瞭な違いが現れる様子を観察することに成功した。異なる温度において XMCD 強度の磁場依存性測定を行った結果、120K 以下において履歴を示すことがわかった。今後は鉄イオンとの相関関係を明らかにすることを目的に実験を行っていく予定である。

謝辞

本研究を行うにあたって、雨宮健太先生にご協力いただきました。ここに感謝致します。

参考文献

- [1] X. Xu, W. Wang, *Modern Physics Letters B* **28**, 1430008, (2014).
- [2] J. B. Goedkoop, B. T. Thole, G. van der Laan, G. A. Sawatzky, F. M. F. de Groot, and J. C. Fuggle, *Phys. Rev. B* **37**, 2086 (1988).

* hiroko.9bq@chiba-u.jp