
单原胞层强磁性钴氧化物超薄膜的实现

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/12197.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

大面积且适宜与硅基半导体材料兼容的强磁性超薄量子功能材料对开发下一代纳米甚至亚纳米尺寸、高性能自旋电子器件具有重要意义。近年来，学界陆续发现了以 Fe_3GeTe_2 和 CrI_3 等为代表的兼具铁磁性和垂直磁各向异性的范德瓦尔斯二维材料，掀起了低维磁性材料研究的热潮。过渡金属氧化物具有耐酸、耐腐蚀、热稳定性优异、空气稳定性好、可与硅半导体工艺相结合等优势；该材料具有多自由度强关联耦合的特性，使其对多种物理场敏感。因此，过渡金属氧化物是发展下一代高灵敏、低功耗、多功能电子器件的理想材料之一。但目前大多数磁性氧化物薄膜面临的挑战之一是当其厚度小于“磁性死层”的临界厚度（约4至5个原胞层）时，薄膜样品的铁磁转变温度减小，饱和磁化强度也减弱，甚至磁性完全消失，这从根本上限制了过渡金属氧化物超薄层在微纳磁性功能器件中的应用。

钙钛矿型钴氧化物（ LaCoO_3 ）具有丰富的自旋态转化现象。虽然本征块材不具有长程有序的自旋排列，但是受到衬底施加的张应力作用下的 LaCoO_3 薄膜表现出反常的铁磁绝缘特性。前期，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心特聘研究员郭尔佳利用单晶衬底的表面台阶具有的面内二重旋转对称性，实现了 LaCoO_3 薄膜准一维铁弹结构和磁各向异性的精准调控；在国际上首次利用自主设计的搭载静水高压原位装置的极化中子反射谱，研究了可逆晶格畸变导致的磁性变化。物理所硕士研究生李思思在其指导下，研究了不同薄膜厚度、不同外延应力作用下 LaCoO_3 薄膜轨道序及自旋态对宏观磁性的非线性调控效应。这些研究证实了人工设计的微结构可以高效调控钴离子的自旋态，从而实现铁磁序与铁弹序共存和耦合，为实现具有铁磁性的 LaCoO_3 超薄膜提供了实验依据。

近期，李思思和物理所博士研究生林珊在郭尔佳的指导下，与物理所研究员金奎娟、谷林、朱涛合作，利用 SrCuO_2 无限层铜氧化物随厚度减小发生的结构相变诱导钴氧八面体键长和键角的改变，实现了单原胞层厚度（约0.4纳米）、强磁性（ $\sim 0.5 \mu_B/\text{Co}$ ）和高居里温度（ $\sim 75 \text{ K}$ ）的 LaCoO_3 超薄膜，解决了单原胞层磁性氧化物不易在功能器件中应用的难题。

研究人员利用脉冲激光沉积技术，实现了单原胞层尺度的薄膜生长，精准控制薄膜生长的层数、重复周期、原胞层截止面和堆叠方式（图1），按照功能需求对氧化物异质结、超晶格进行人工设计及剪裁，实现“乐高式”的原子层排列，为材料研究和强关联电子体系物理机理探索奠定了基础

。该研究

中，研究人员通过

二阶非线性光学探测方法，证实了当

无限层铜氧化物 SrCuO_2

在厚度减小为5原胞层时，会发生 CuO_2

铜氧面从水平（Planar型）变为竖直（Chain型）的原子构型变化；同时伴随着面外晶格常数从 3.43 \AA 增加到 3.9

\AA ，晶格拉伸超过10%。利用该 SrCuO_2

插层随厚度变化带来的晶格改变，研究

人员探索了 LaCoO_3

超薄膜的结构及磁性的变化规律、物理机

制。当 SrCuO_2 厚度小于5原胞层（Chain型）时， LaCoO_3

超薄膜表现出典型的铁磁性；当 SrCuO_2

厚度大于5原胞层（Planar型）时， LaCoO_3

超薄膜的铁磁性消失（图2）。为明确 $[(\text{LaCoO}_3)_m/(\text{SrCuO}_2)_n]_{15}$

超晶格磁性的起源，研究人员相继开展了磁圆二色谱（XMCD）和极化中子反射谱（PNR）测量，测量结果均表明超晶格的磁性仅由 LaCoO_3

超薄层贡献（图3）。探寻 LaCoO_3

超薄膜铁磁性的物理起源成为关键。研究人员利用扫描透射电镜的环场明相模式，精确观测了在不同周期超晶格中不同原子的位置，明确了钴氧八面体的键长和键角的变化规律（图4）。在 SrCuO_2 结构相变前后，钴-氧-钴键角从 168° 增加到 180° ，钴-氧键长增加约1.1%。这些氧八面体参数的微小变化将导致晶格场能

、交换作用能差异增加，改变电子在 t_{2g} 和 e_g

能级中的分布，从而导致钴离子从低到高自旋态转化，促进长程有序的电子自旋排列。为了最大化微结构对钴自旋态的影响，研究

人员制备出单原胞层 LaCoO_3 和单原胞层 SrCuO_2

结构的超晶

格（图5），并发现，与

其他单原胞层磁性氧化物相比，单原胞层 LaCoO_3

的饱和磁化强度及居里温度有所提高；该材料表现出类似磁性二维材料的强磁各向异性，为光泵浦和电流驱动的超薄自旋轨道转矩器件提供了备选材料。

相关研究成果以Strong Ferromagnetism Achieved via Breathing Lattices in Atomically Thin

Cobaltites为题，发表在Advanced Materials上，同时被选为亮点文章（frontispiece article）。李思思

、林珊与物理所副研究员张庆华为论文的共同第一作者。金奎娟、郭尔佳为论文的共同通讯作者

。研究工作得到科技部重点研发计划、国家自然科学基金委、北京市科技新星计划、北京市自然科学基金、中科院战略性先导科技专项（B类）等的资助，研究工作利用的国内大科学装置包括

中国散裂中子源多功能中子反射线站、北京正负电子对撞机X射线吸收谱4B9B线站等。该工作还

得到了武汉理工大学教授桑夏晗和美国亚利桑那州立大学博士Manuel Roldan在高分辨透射电镜

测量方面、中科院高能物理研究所研究员王嘉鸥在X射线吸收谱测量方面、朱涛和美国国家标准

局中子散射研究部博士Ryan Need和Brian Kirby在极化中子反射测量方面的支持。

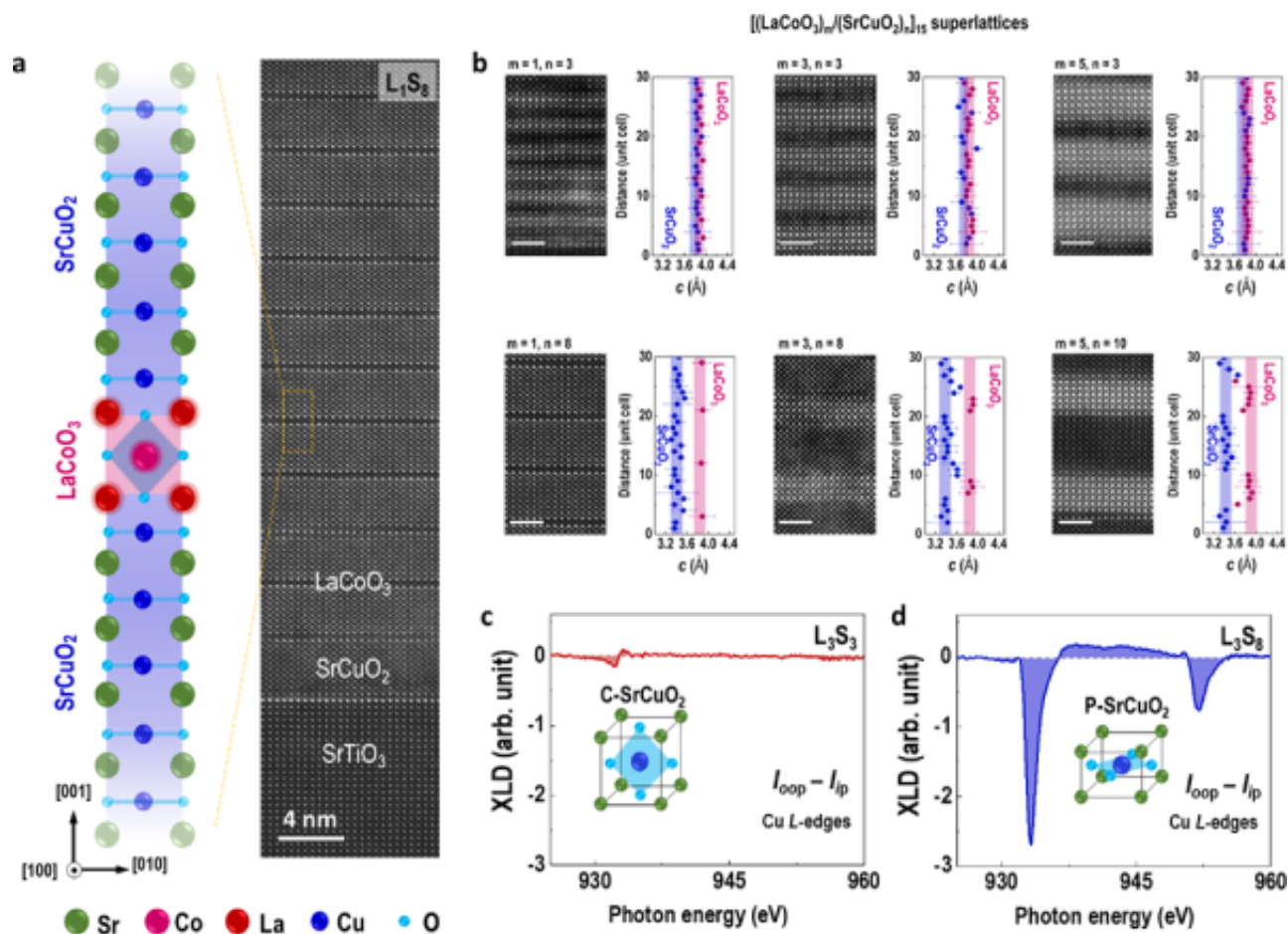


图1. $[(\text{LaCoO}_3)_m/(\text{SrCuO}_2)_n]_{15}(\text{L}_m\text{S}_n)$ 超晶格的结构和电子态表征。(a) 含有单原胞层 LaCoO_3 的 L_1S_8 超晶格高分辨透射电镜图。(b) L_mS_n 系列超晶格的原
子尺度高分辨透射电镜图和沿薄膜生长方向的面外晶格常数。 L_3S_3 和 L_3S_8 超晶格的 Cu L 吸收边的 X 射线线性偏振谱 [(c) 和 (d)]

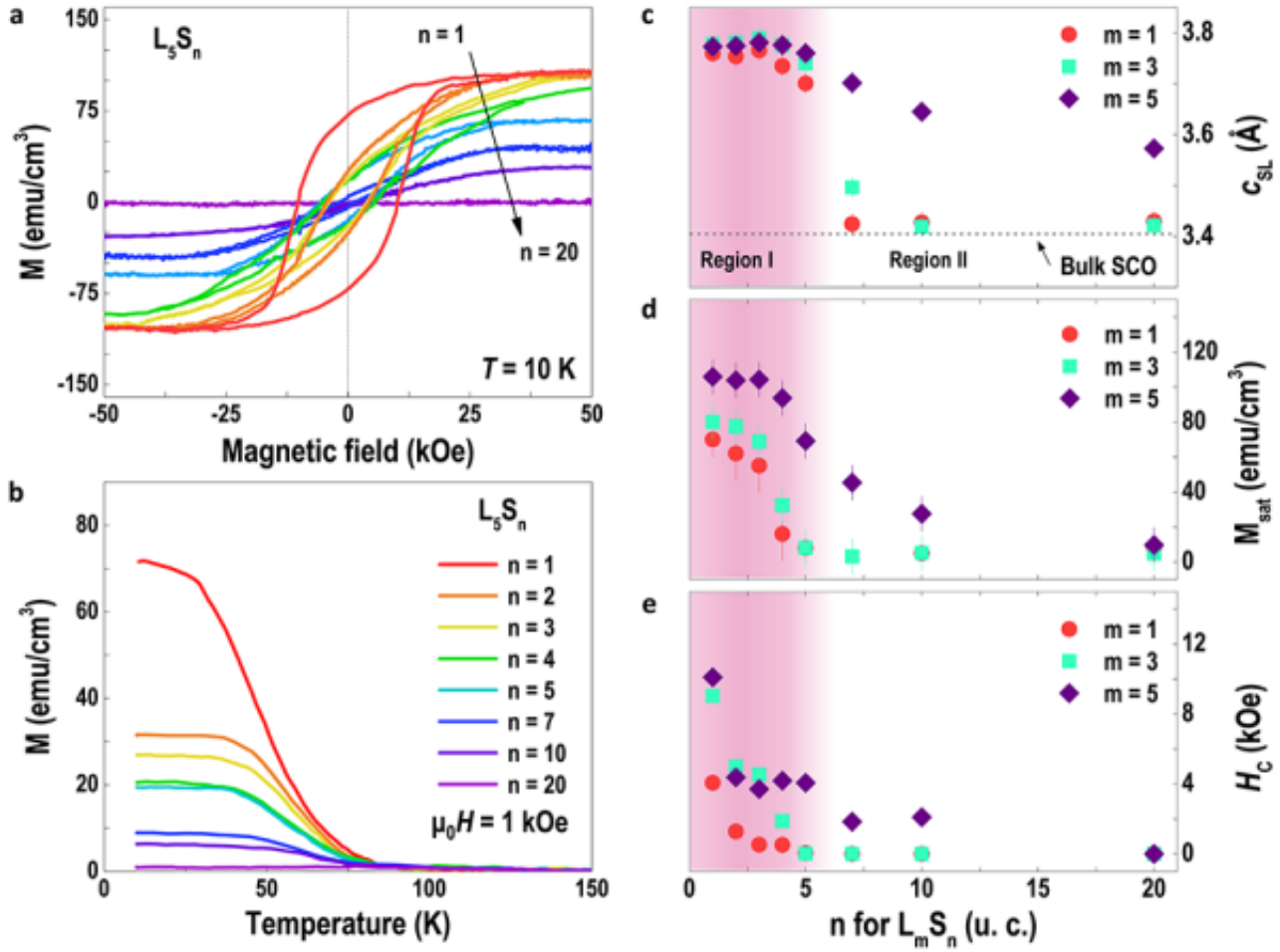


图2. $[LaCoO_3]_5/[SrCuO_2]_{1-15}$ 超晶格的磁性特征。当 $SrCuO_2$ 厚度从1到20原胞层变化时的，(a) 磁矩-场强和 (b) 磁矩-温度变化关系。(c) 面外晶格常数 (c_{SL})、(d) 饱和磁化强度 (M_{sat}) 和 (e) 矫顽场 (H_C) 随 $SrCuO_2$ 厚度的变化关系

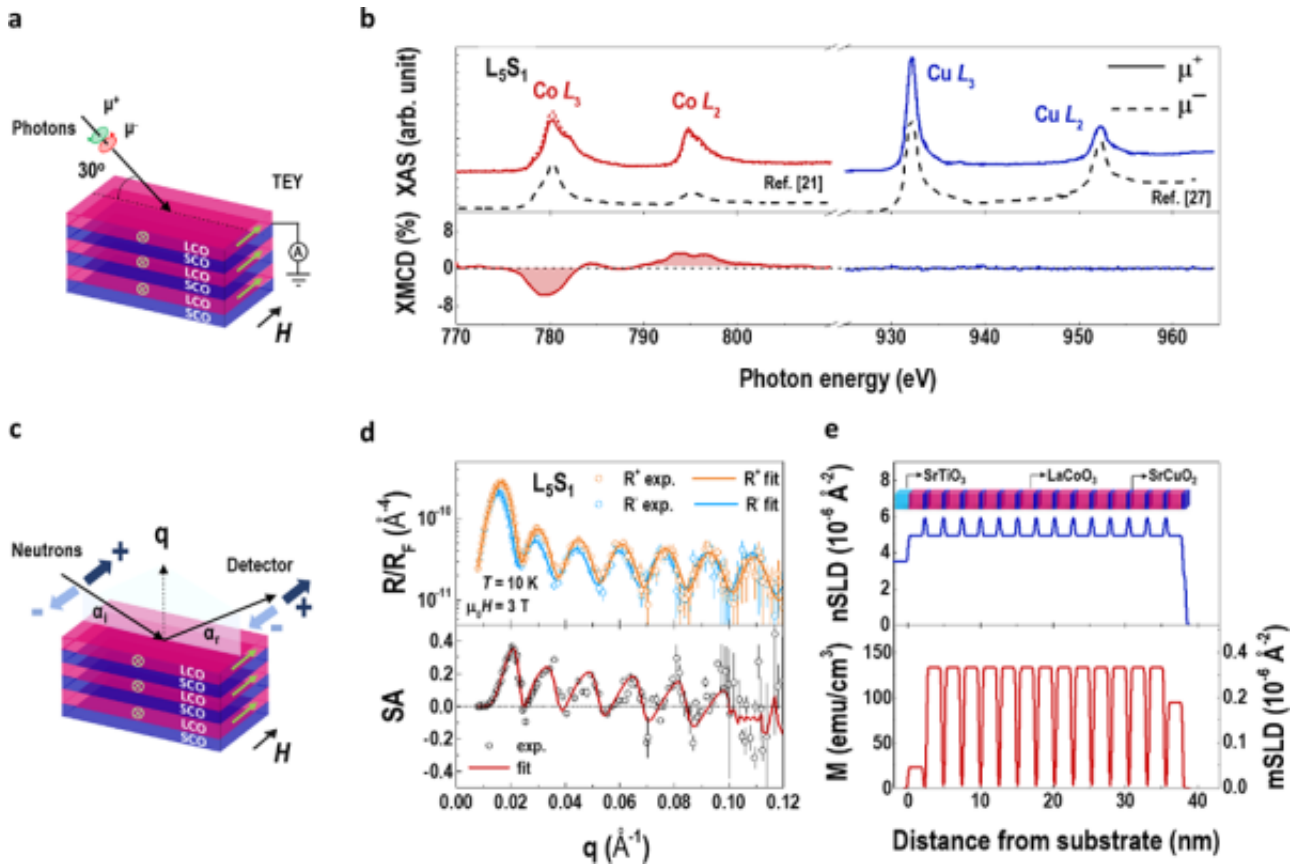


图3. $[(LaCoO_3)_5/(SrCuO_2)_1]_{15}$ 超晶格的磁圆二色谱 [(a) 示意图和 (b) CoL 吸收边和 CuL 吸收边的X射线吸收谱]和极化中子反射谱 [(c) 示意图、 (d) 菲涅尔系数归一化的反射谱和 (e) 密度和磁性随厚度的分布]

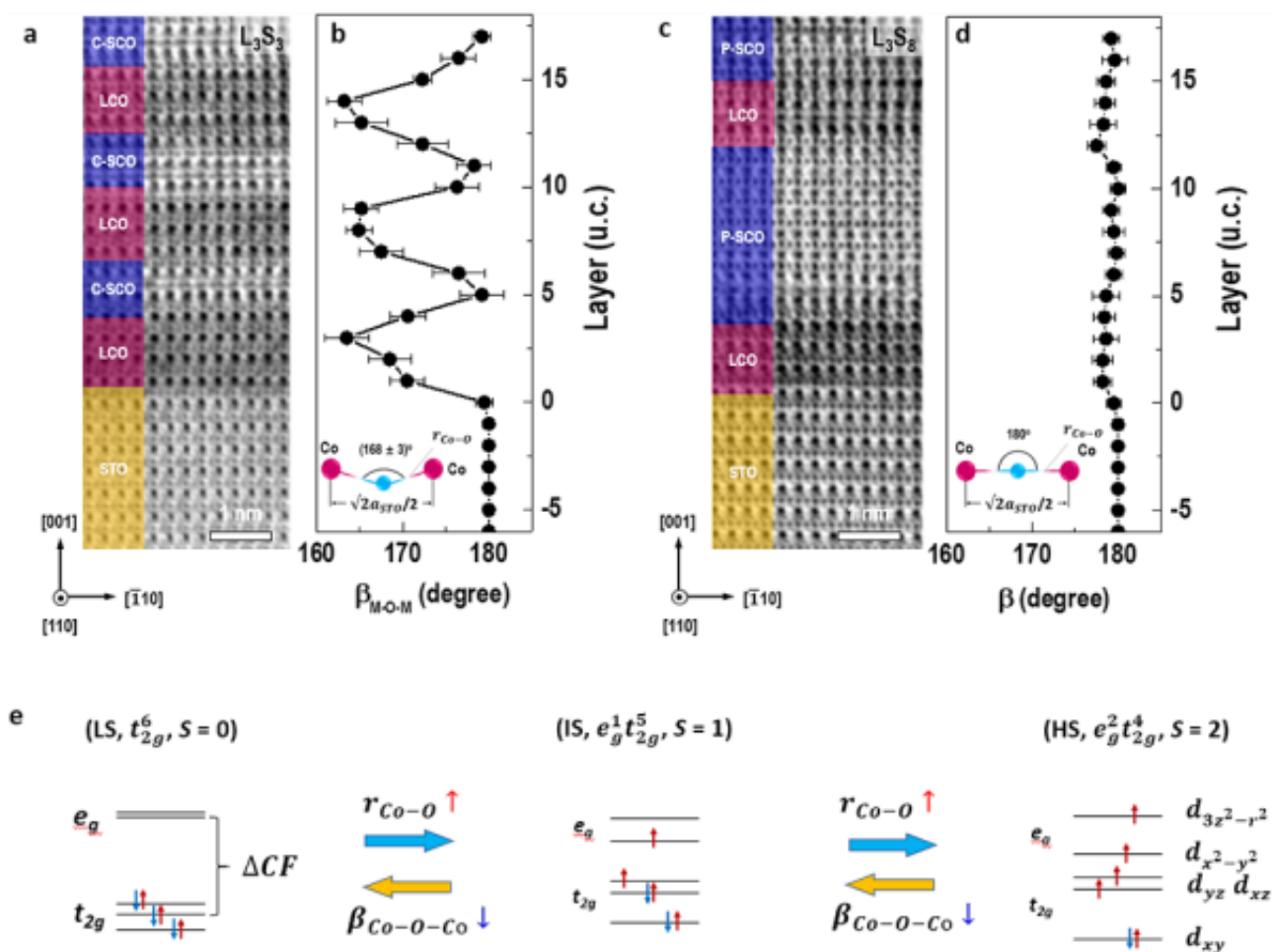


图4.环场明相模式下的高分辨扫描透射电镜图。(a) $[(LaCoO_3)_3/(SrCuO_2)_3]_{15}$ 和 (b) $[(LaCoO_3)_3/(SrCuO_2)_8]_{15}$ 超晶格的高分辨透射环场明相电镜图。(b)和 (d) 分别是M-O-M键角随原胞层厚度的变化, 其中M表示过渡金属离子(如Ti, Co, Cu)。(e) 钴离子低、中、高自旋态可逆转换示意图

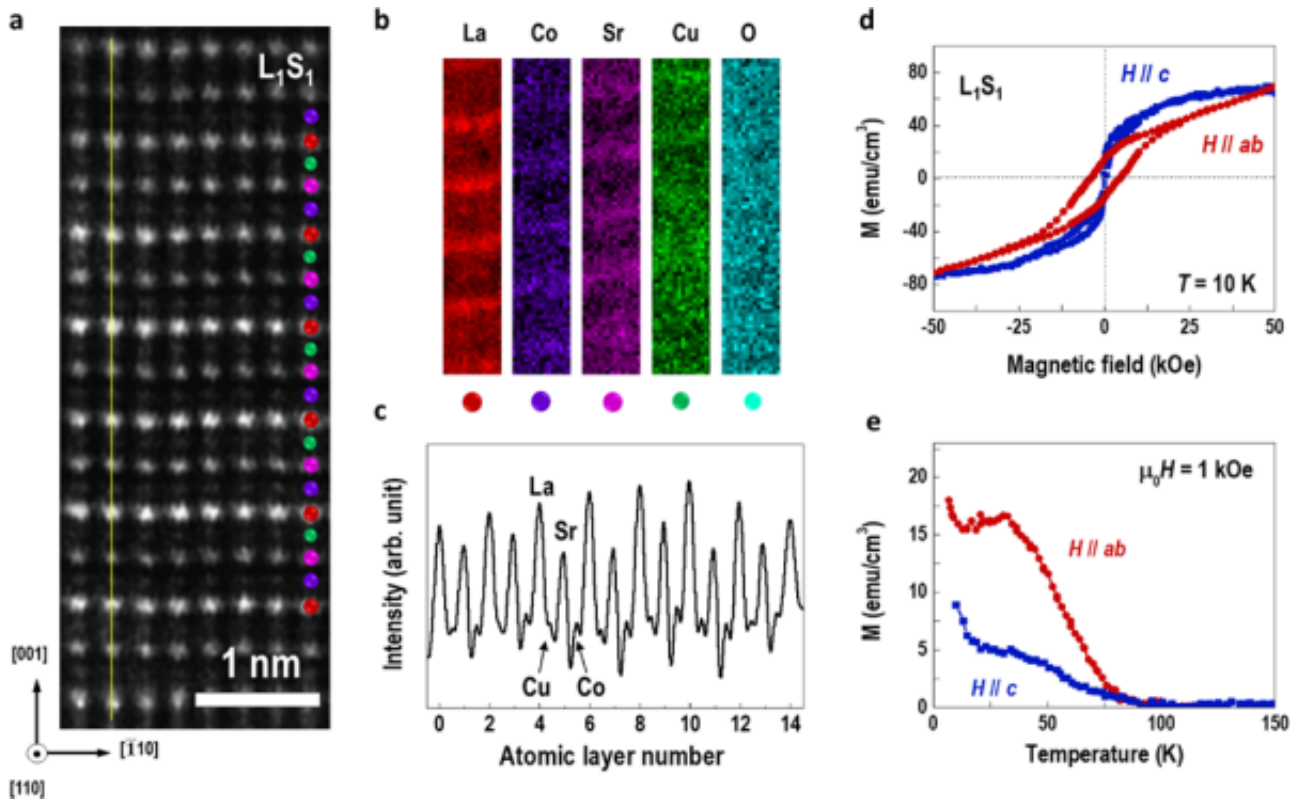


图5.单原子层 $[(\text{LaCoO}_3)_1/(\text{SrCuO}_2)_1]_{15}$ 超晶格的结构和磁性。(L₁S₁)超晶格的 (a) 高分辨透射电镜图、(b) 元素分辨的电子能量损失谱和 (c) 电镜强度分布图。L₁S₁超晶格的 (d) 磁矩-场强和 (e) 磁矩-温度变化关系

研究团队单位：物理研究所

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](http://www.iikx.com)转发