六方晶フェライト Ba2Mg2Fe12O22の強誘電分極の磁場による操作

Magnetic Control of Ferroelectric Polarization in a hexaferrite Ba₂Mg₂Fe₁₂O₂₂

東北大学多元研 谷口耕治、阿部伸行、大谷晋太郎、梅津浩志、有馬孝尚 東北大学金研 竹延大志、岩佐義宏

K. Taniguchi^A, N. Abe^A, S. Ohtani^A, H. Umetsu^A, T. Arima^A, T. Takenobu^B, Y. Iwasa^B ^AInstitute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University ^BInstitute for Material Research, Tohoku University

1. はじめに

近年、RMnO₃ (R=Gd,Tb,Dy), RMn₂O₅ (R=Dy,Ho,Er など), Ni₃V₂O₈, MnWO₄ などの長周期磁気構造を有 する遷移金属酸化物系において巨大な電気磁気効果 が発見され注目されている[1-4]。しかし、無磁場下 での電気分極の向きを、磁場の一時的な印加によっ て制御できる系は、唯一 CoCr₂O₄ のみである[5]。

本研究では六方晶の鉄酸化物 $Ba_2Mg_2Fe_{12}O_{22}$ に注 目した。この物質の結晶構造を図 1(a)に示す。この 構造は Y 型六方晶フェライト構造と呼ばれ、木村ら がメタ磁性転移とともに電気分極が発現することを 発見した(Ba,Sr)₂ $Zn_2Fe_{12}O_{22}$ [6]と同じである。 Fe^{3+} の d電子は局在しており、電気伝導は半導体的である。 (Ba,Sr)₂ Zn_2 の系と比べて、 Ba_2Mg_2 系では低温でメタ 磁性転移を起こす磁場が極めて小さくヒステリシス がゼロ磁場にかかるように見えることから、ゼロ磁 場での強誘電分極が期待できる。そこで、この物質 の電気磁気効果を調べることにした。

2. 実験方法

Na₂O-Fe₂O₃ フラックスから育成させた単結晶試 料を(100)面に平行な板状に加工して、その両面に対 向電極を設けた。この試料を試料回転機構つきの温 度可変インサートに取り付けて、強磁場超伝導材料 研究センターの15T-SM 磁石の中で冷却した。両電 極をフェムトアンペアメータ(Keithley 社)に接続し ておき、電極と垂直方向の電気分極が変化するとき に流れる電流を記録する。それを時間について積分 することで電気分極を測定することができる。低温 での電気分極の値を磁場の強さと方向の関数として 測定した。なお、磁場方位は c 軸と垂直な面内で回 転させた。また、試料の磁化は SQUID 磁束計を用 いて測定した。

3. 結果と考察

作製した単結晶は室温ではフェリ磁性であるが、 図1(b)に示すように約200K以下で磁化が減少する。 これは、フェリ磁性かららせん磁性への転移[7]に対 応していると考えられる。このらせん磁性は Fe3+ のスピンが c 面内で回転し伝播ベクトルが c 軸に平 行なスクリュー型である。したがって、無磁場下で 冷却した状態では常誘電状態だと考えられる。この 状態から b 方向に磁場を印加すると、図 1(c)に示す ように、初めは磁化率の小さな状態である。しかし、 0.12 テスラ近傍で明瞭なメタ磁性転移を起こす。こ の状態から再び磁場を減少させても、元の磁化率の 小さな状態には戻ることはない。そのまま負の磁場 を印加すると、0および-0.12 テスラあたりで磁化の 不連続的な変化がそれぞれ見られる。その中間では 飽和磁化のおよそ半分程度の値の磁化プラトーが見 られる。スクリュー型のらせん磁性ではこのような プラトーは期待できないことから、別の磁気相への 転移と考えてよいだろう。なお、ヒステリシス曲線 のゼロ磁場あたりを拡大すると、残留磁化が確認で きる(挿入図)。

この磁化過程に対応して同じ温度で a*方向の電 気分極を測定した結果を図 1(d)に掲げる[8]。0.12 テ スラ付近のメタ磁性転移に伴って 100µC/m² 程度の 電気分極が出現している。また、中間磁場相に対応 する磁場領域では、電気分極が 20~30µC/m² 程度と なる。残留磁化に対応して、電気分極にも残留値が 観測された。

ここで、重要な点は、磁場の走査に伴って電気分 極の向きが反転している点である。また、残留電気 分極の符号が直前の磁場の向きによって制御されて いる様子も見られる。

さらに、磁場方位を変化させて同様の実験を行っ たところ、磁場の方位角0に対して電気分極が sin0 型の変化をすることもわかった。このことから、メ タ磁性相の磁気構造は c 軸方向に伝播ベクトルを有 しながら磁場方位を中心として円錐状にスピンが回 転する円錐型サイクロイドではないかと推測される。 ただし、この磁気構造を同定するためには、今後の 中性子散乱実験が必要である。

- [3] G. Lawes et al., Phys. Rev. Lett. 95, 087205 (2005).
- [4] K. Taniguchi et al., Phys. Rev. Lett. 97, 097203 (2006).
- [5] Y. Yamasaki et al., Phys. Rev. Lett. 96, 207204 (2006).
- [6] T. Kimura et al., Phys. Rev. Lett. 94, 137201 (2005).
- [7] N. Momozawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 70, 2724 (2001).
- [8] K. Taniguchi et al., Appl. Phys. Express 1, 031301 (2008).

参考文献

[1] T. Kimura et al., Nature **426**, 55 (2003).

[2] N. Hur et al., Nature **429**, 392 (2004).



図1 (a) Ba₂Mg₂Fe₁₂O₂₂の結晶構造。(b) 磁化の温度依存性。磁場は b 軸方向に 10mT の強さ。(c) 4.3 K における磁化曲線。磁場は b 軸に平行に印加している。(c) 磁場を b 軸方向に印加した場合の a*方向の電気分極の変化。