

マルチフェロイック $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 薄膜における磁気転移温度の向上

Improvement in magnetic transition temperature of multiferroic $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ films

¹東大院理, ²東理大理, ³東工大 ○毛 司辰¹, 片山 司¹, 近松 彰¹,

芝田 悟朗^{1,2}, 藤森 淳¹, 安井 伸太郎³, 伊藤 満³, 長谷川 哲也¹

¹Univ. of Tokyo, ²Tokyo Univ. of Sci., ³Tokyo Tech.,

°S. Mo¹, T. Katayama¹, A. Chikamatsu¹, G. Shibata^{1,2}, A. Fujimori¹, S. Yasui³, M. Itoh³, T. Hasegawa¹

E-mail: mo@chem.s.u-tokyo.ac.jp

【背景と目的】マルチフェロイック材料である $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ (FMO: Fig. 1a) は大きな電気磁気効果を示すため近年盛んに研究されている[1,2]。しかし、その磁気転移温度(T_C)は 60 K と低温であり、更なる材料探索が望まれていた。前回我々は FMO を薄膜にすることで T_C が 230 K まで上昇することを報告した。本研究では、薄膜化による T_C 上昇のメカニズム解明のため、走査型透過電子顕微鏡 (STEM)、X 線磁気円二色性 (XMCD)、第一原理計算を行ったので報告する。

【実験手法】FMO 薄膜はパルスレーザー堆積(PLD)法を用い、 $\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ 及び $\text{SrTiO}_3(111)$ (STO) 単結晶基板上に作製した。得られた膜の結晶構造は X 線回折法 (XRD) 及び STEM により評価した。磁気特性は SQUID 磁束計及び XMCD により測定した。また第一原理計算を用い、FMO の磁気構造を検証した。

【結果と考察】XRD より、得られた膜が c 軸配向 FMO 膜であることを確認した。図 1b に FMO 膜の HAADF-STEM 像を示す。Mo 層—八面体(O_h) Fe 層間距離は Mo 層—四面体(T_d) Fe 層間距離より長いので、この図の範囲では $-c$ 軸成長した FMO 構造を持つことが分かる。また他の範囲でも $-c$ 軸成長のみが観測され、STO 基板上では下向きに分極が向きやすいことが示唆された。興味深いことに O_h Fe サイトの強度は T_d Fe サイトの強度より強く、Mo が O_h Fe サイトに一部置換されていることが明らかになった。これは、PLD が非平衡プロセスであるためと考えられる。FMO の T_C は Fe 同士間の磁気相互作用により決まる。従って、 T_C の大きい FMO 膜では、Mo の O_h Fe サイトへの置換のみでなく、Fe の O_h Mo サイトへの置換も同様に起きていると予測される。また FMO 膜の飽和磁化は $2.0 \mu_B/\text{f.u.}$ であり、構造中のカチオン比が変化しないとすると、0.25 個/f.u. の Fe イオンが Mo サイトに置換していると予測される。この Mo サイトへの Fe の置換が c 軸方向の磁気交換相互作用を強め、 T_C を上昇させたと考えられる。本講演では、Fe と Mo の入れ替えによる構造の安定性や磁気交換相互作用の変化について、第一原理計算の結果を基に議論する。

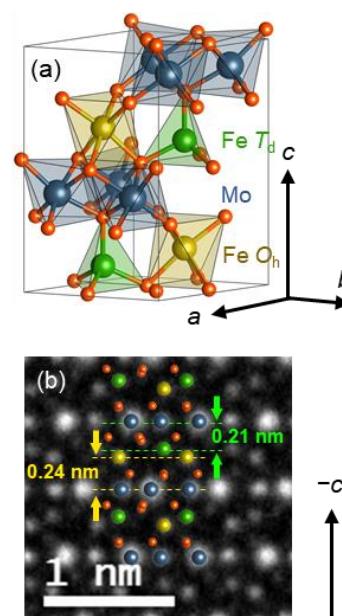


Fig. 1. (a) Crystal structure of bulk FMO and (b) HAADF-STEM image of the FMO thin film.

【参考文献】 [1] Y. Wang *et al.*, Sci. Rep. **5**, 12268 (2015). [2] T. Ideue *et al.*, Nat. Mater. **16**, 797 (2017).