

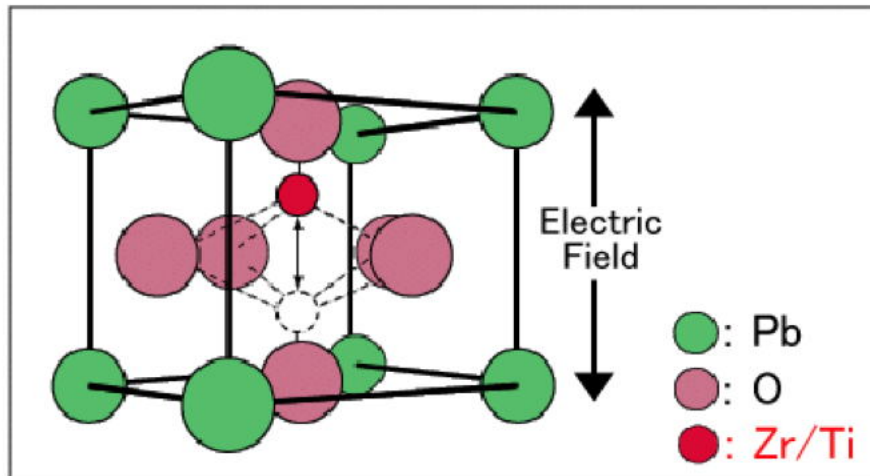
# 新奇誘電体 $RFe_2O_4$ におけるスロー 揺らぎと次世代光源への期待

池田直

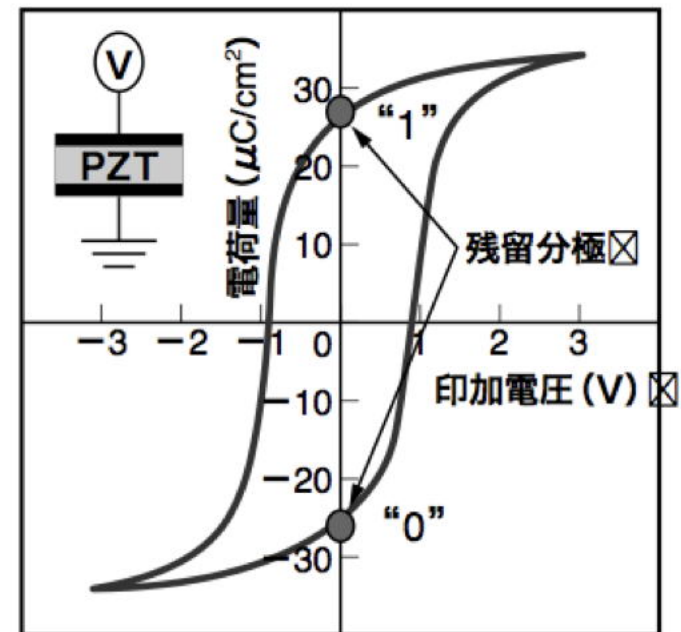
岡山大学 自然科学研究科

# 誘電体

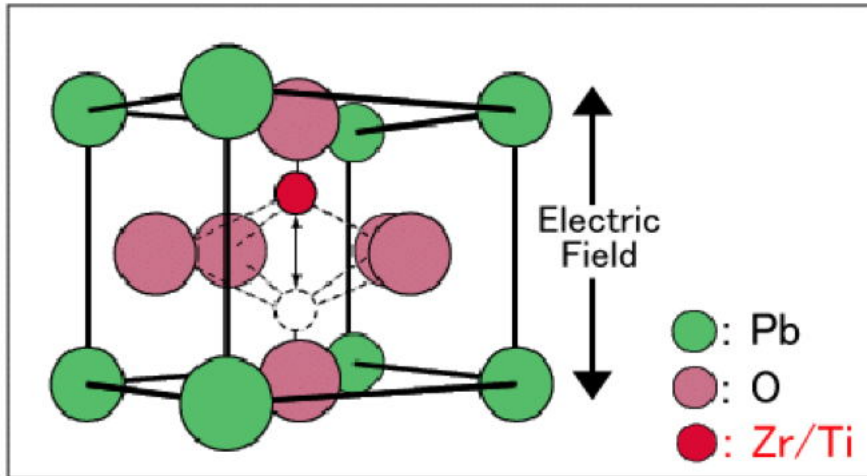
電荷を貯める材料



陰イオンと陽イオンの協力的な変位が発生

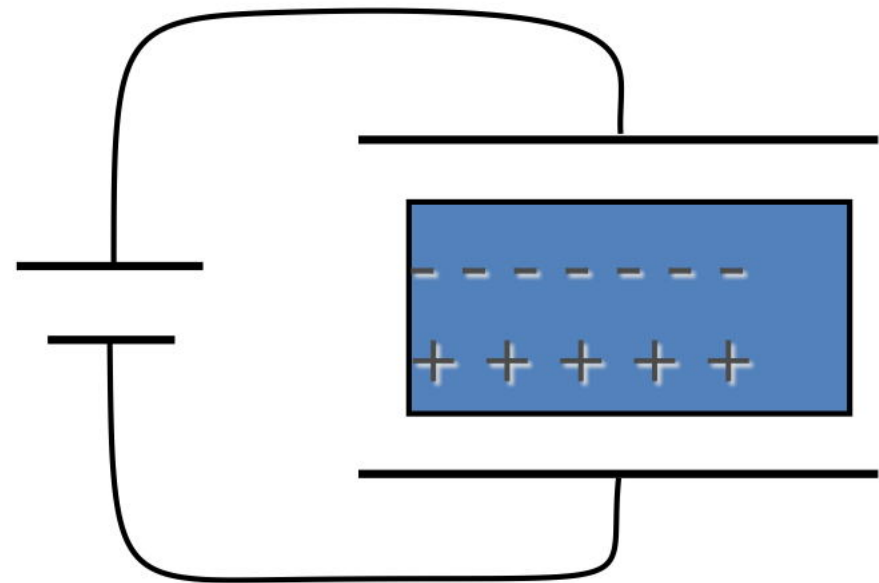


# 誘電体

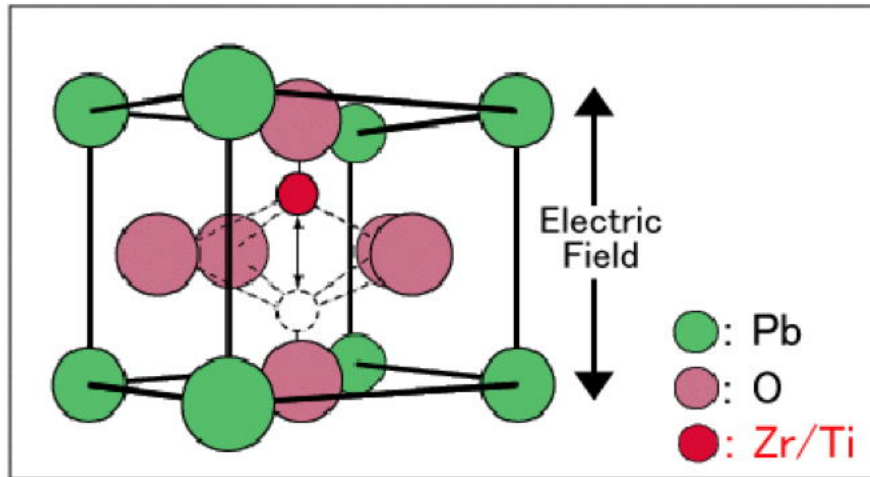


陰イオンと陽イオンの協力的な変位が発生

電荷を貯める材料  
電気力線を弱める (絶縁)

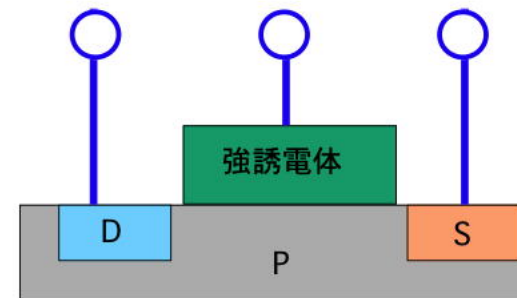


# 誘電体



陰イオンと陽イオンの  
協力的な変位が発生

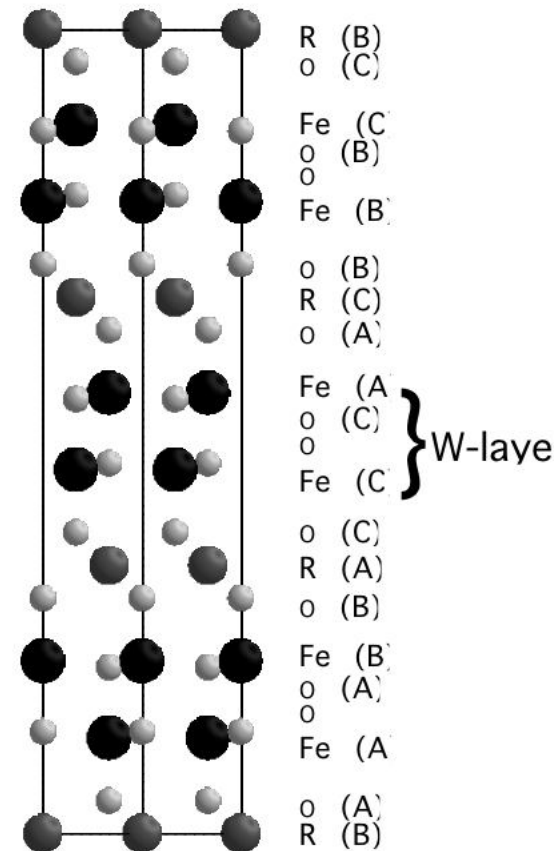
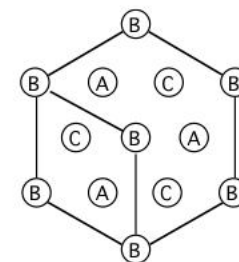
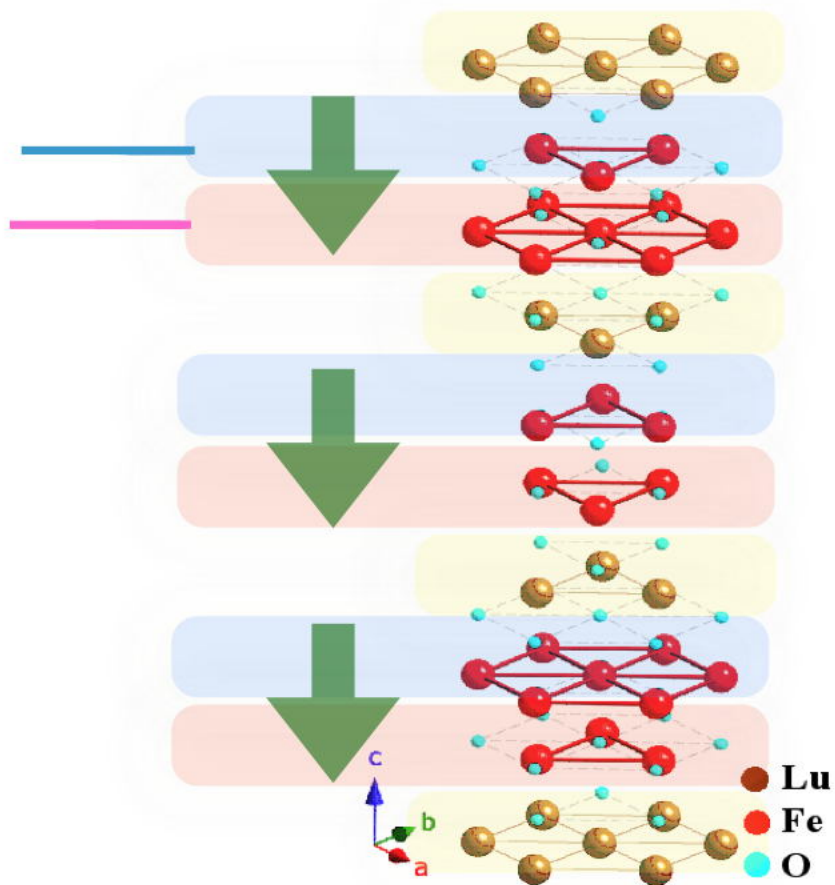
電荷を貯める材料  
電気力線を弱める (絶縁)  
メモリ材料への応用



FeRAM

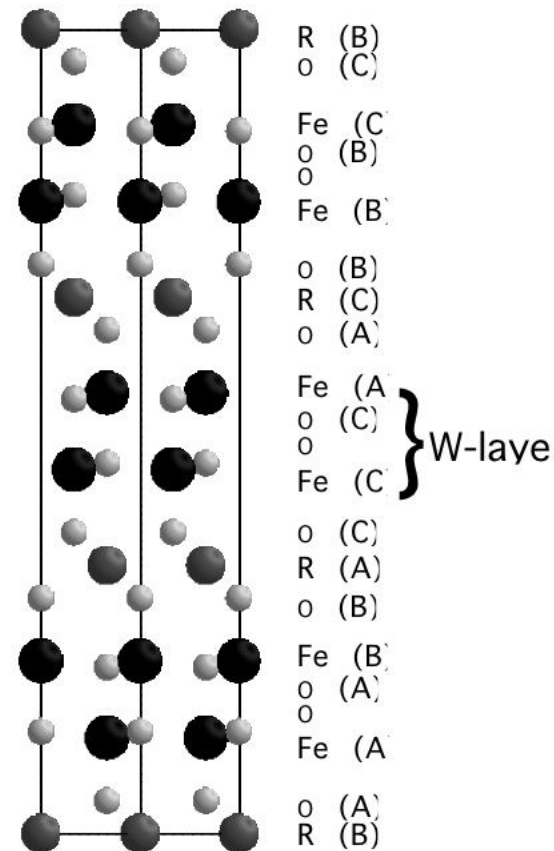
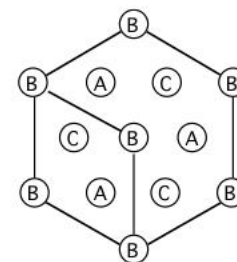
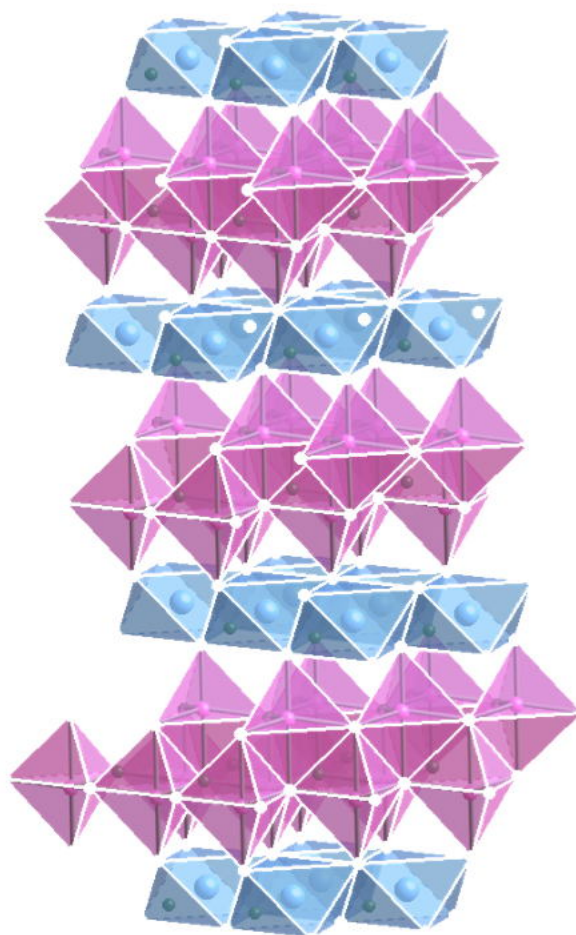
# RFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の結晶構造

- 三角格子の積層



# RFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の結晶構造

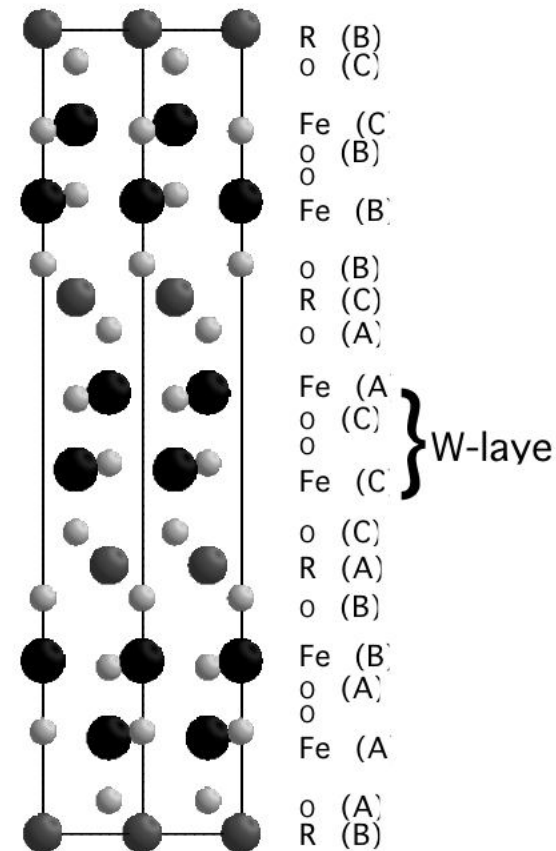
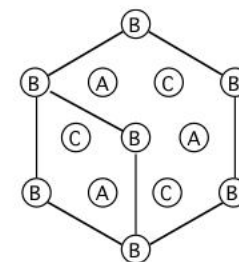
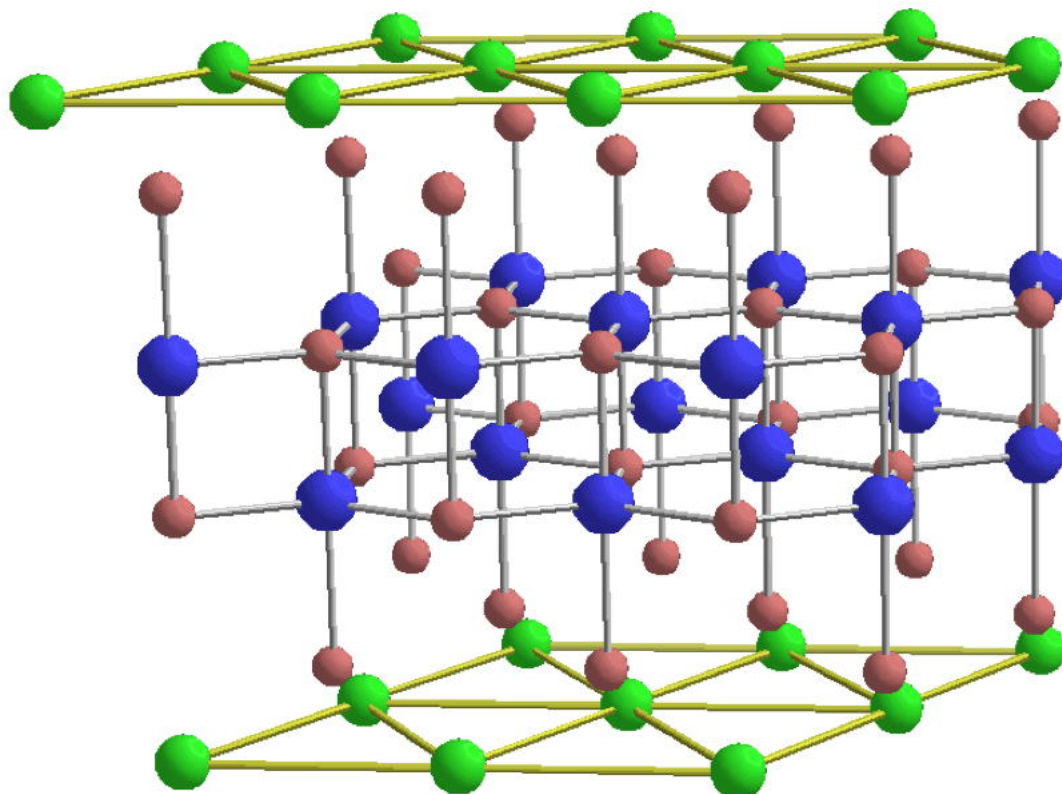
- 三角格子の積層





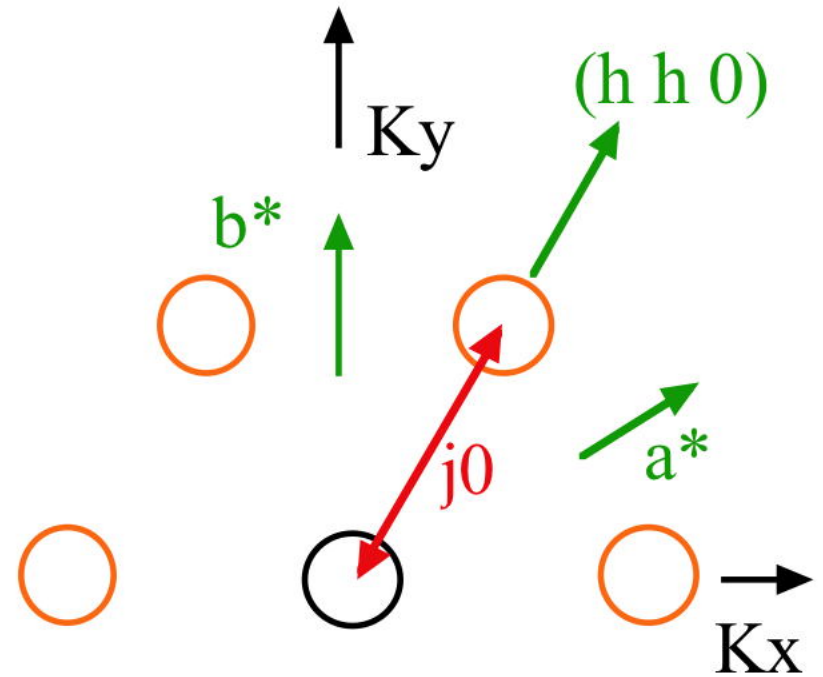
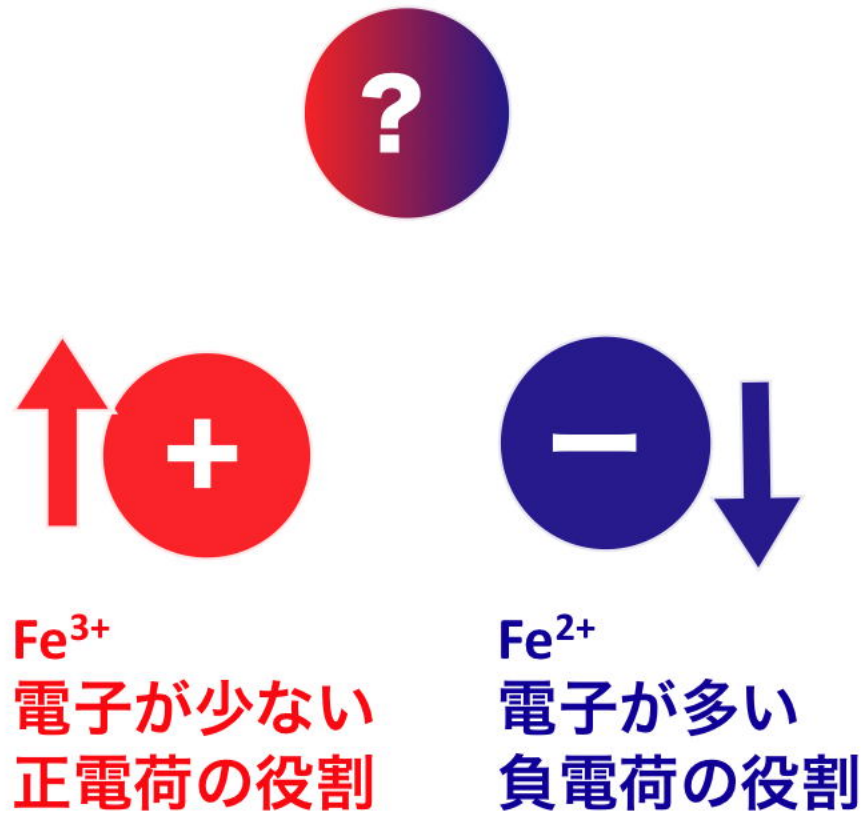
# RFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の結晶構造

- Fe: W-layer 酸素5配位、三方両錐
- RareEarth 歪んだ八面体





- 三角格子
- 電荷フラストレーション

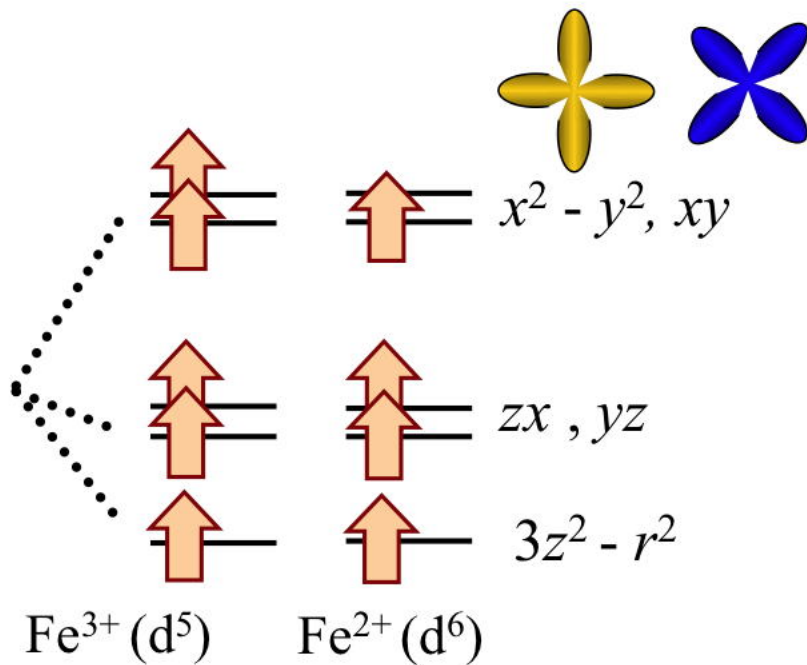
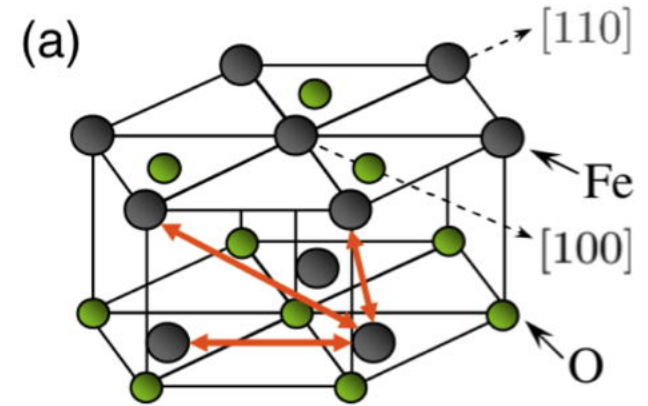


$$J_0(K) = \sum_i j_0 e^{2\pi i K \cdot r_i}$$

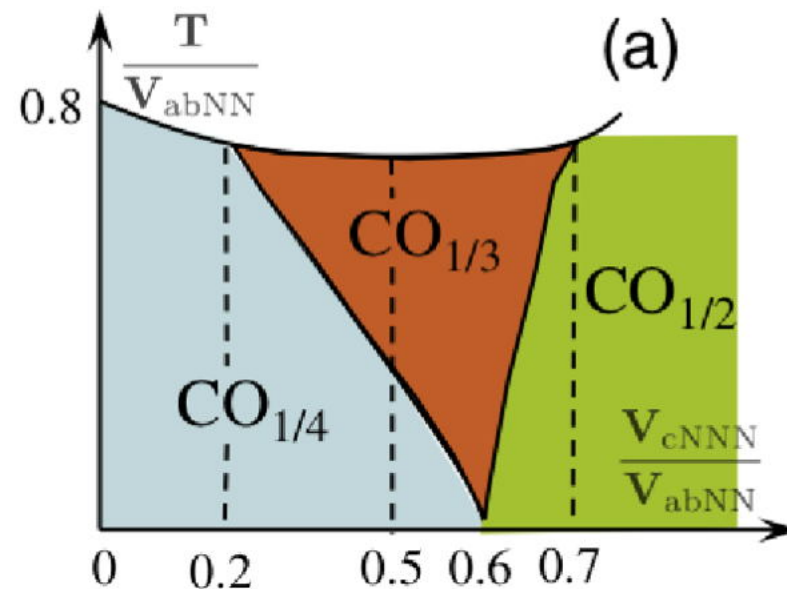


# 軌道、スピンプラストレーションと 遅い揺らぎ

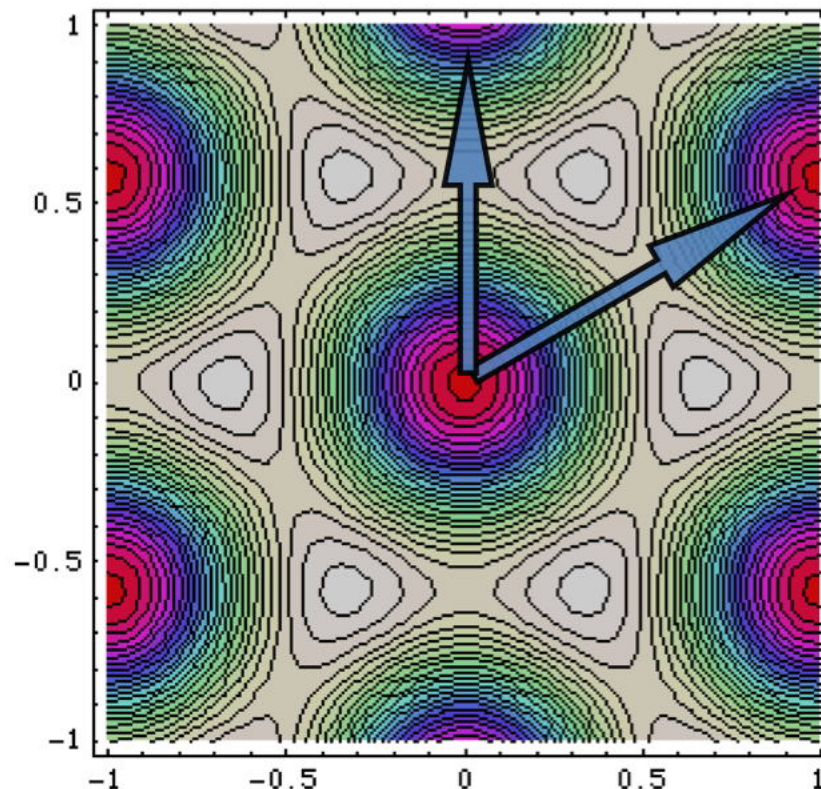
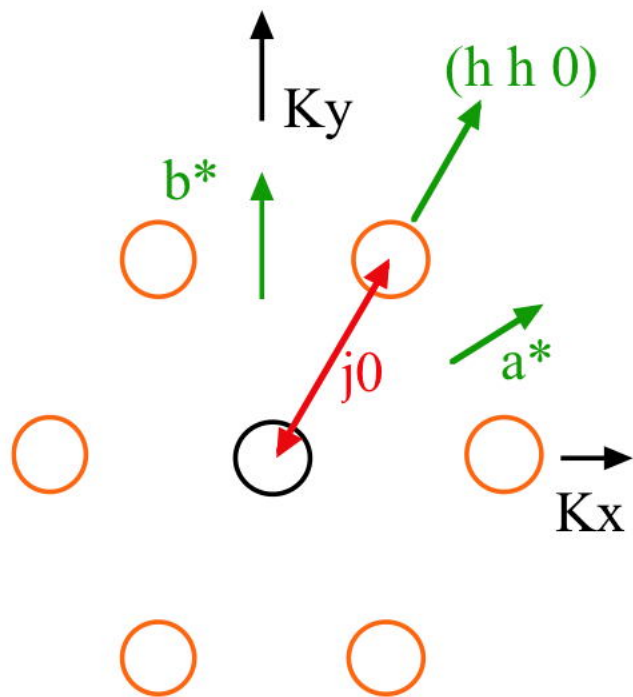
- 1 電荷間相互作用の二成分の競合が出現相を複雑にする
- 2 軌道の揺らぎが大きい



Nagano, Naka, Nasu, Ishihara  
 Phys. Rev. Lett. 99(2007)217202.



Antiferromagnetic interaction of Ising spin  
(Iron Charges) on triangular plane (N. N. interaction)

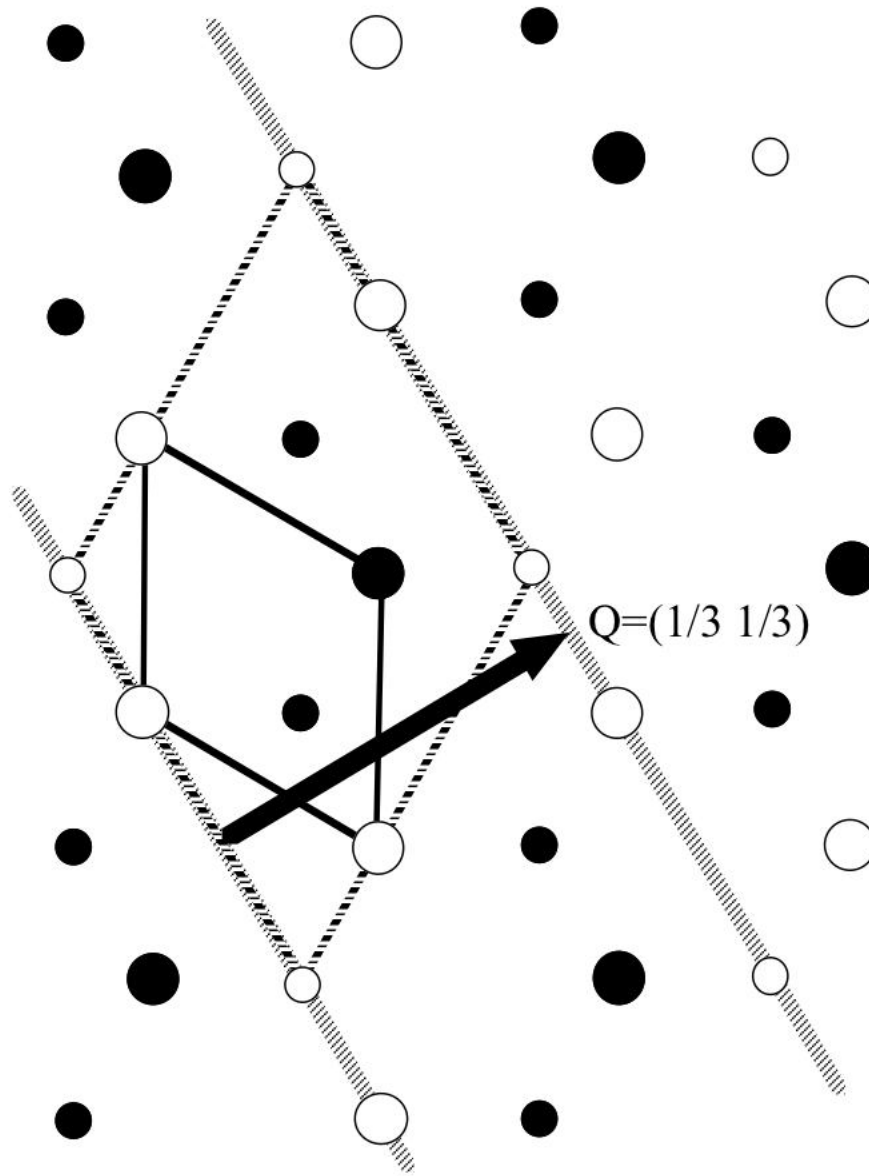


$$J_0(K) = \sum_i j_0 e^{2\pi i K \cdot r_i}$$

$h h 0$  方向に 3 倍周期の電荷の波

$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  structure

# 電荷秩序モデル



Fe<sup>2+</sup> Fe<sup>3+</sup>

Upper Layer ○ ●

Lower Layer ○ ●

•  $h h 0$  方向に 3 倍周期の電荷の波

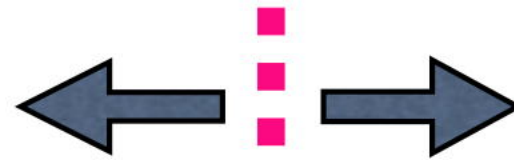
電気分極の存在



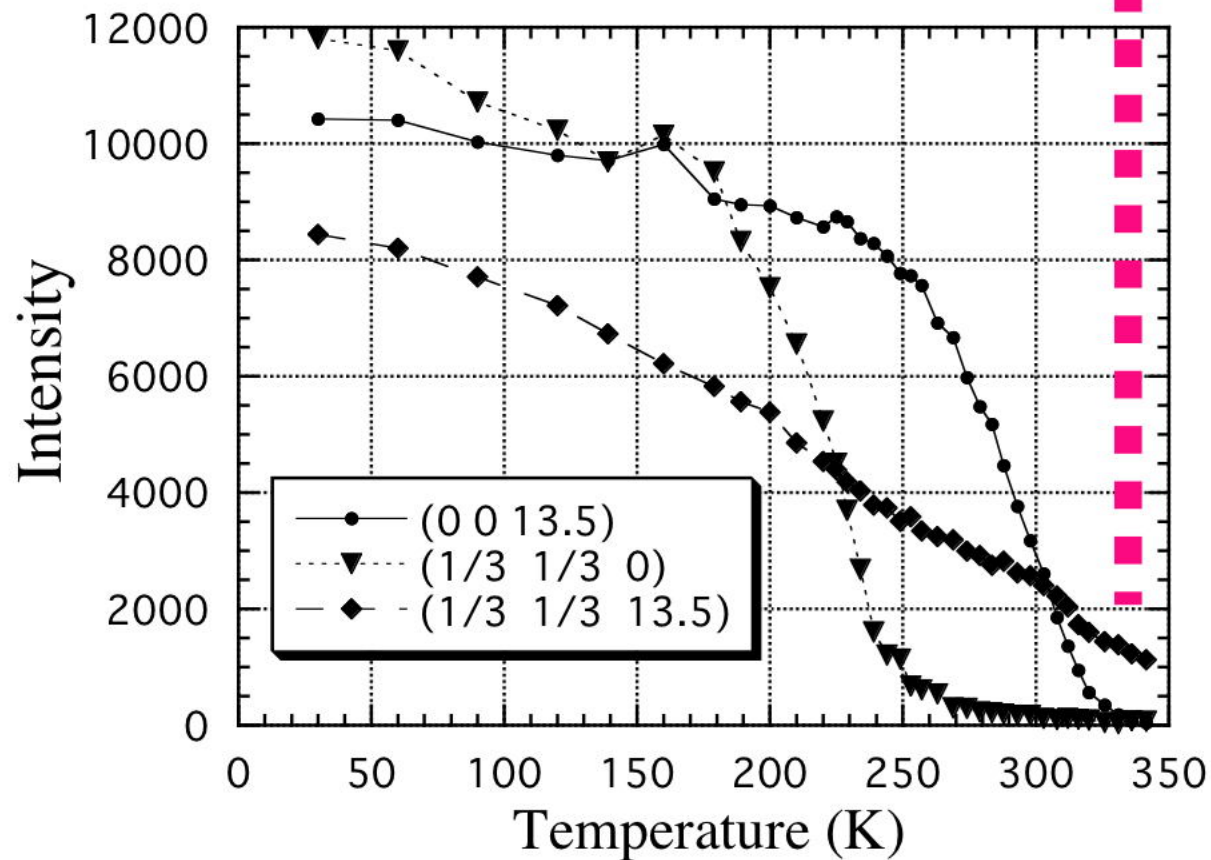


# corresponding super-structure

$(n/3\ m/3\ 0.5+l)$  3D order

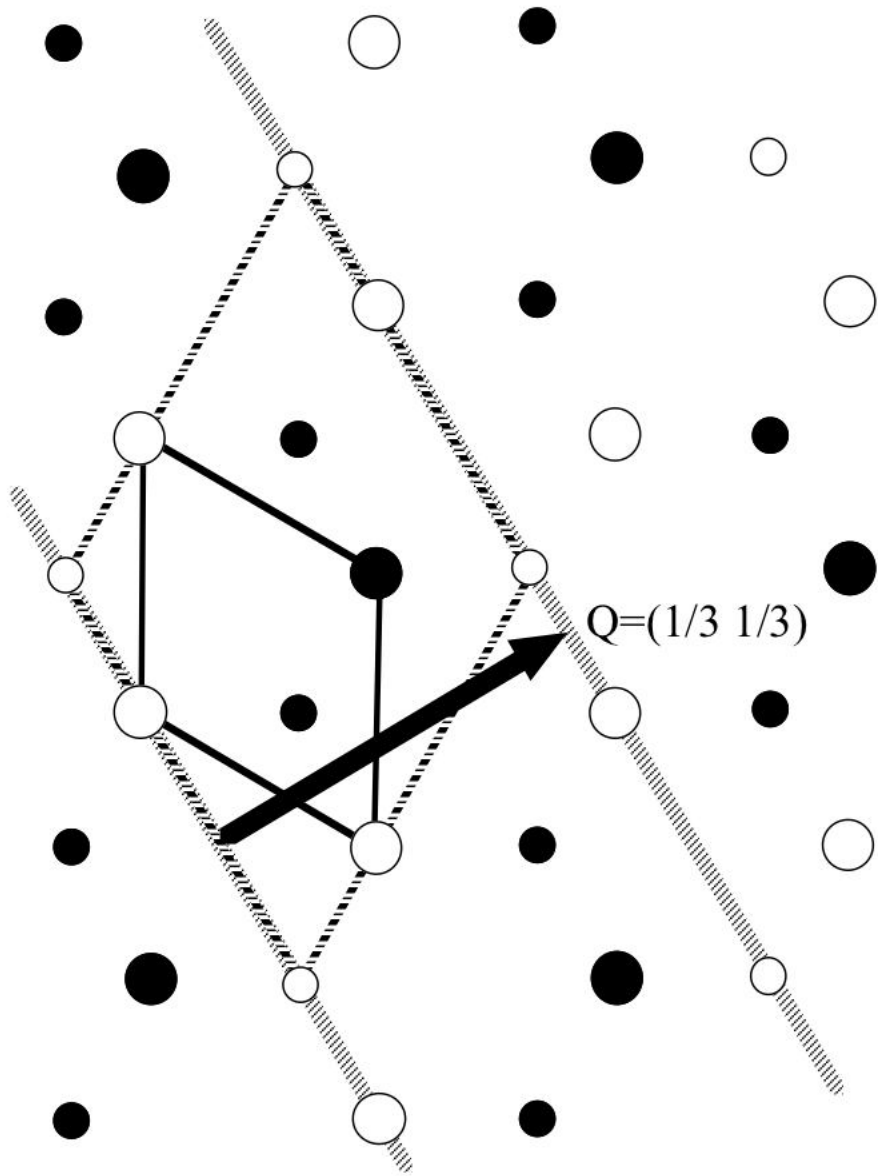


$(n/3\ m/3\ L)$   
2D order





# RXS 電荷秩序の直接検証



Fe<sup>2+</sup>    Fe<sup>3+</sup>

Upper Layer    ○    ●

Lower Layer    ○    ●

•  $h h 0$  方向に 3 倍周期の電荷の波

電気分極の存在

# Origin of the Superstructure

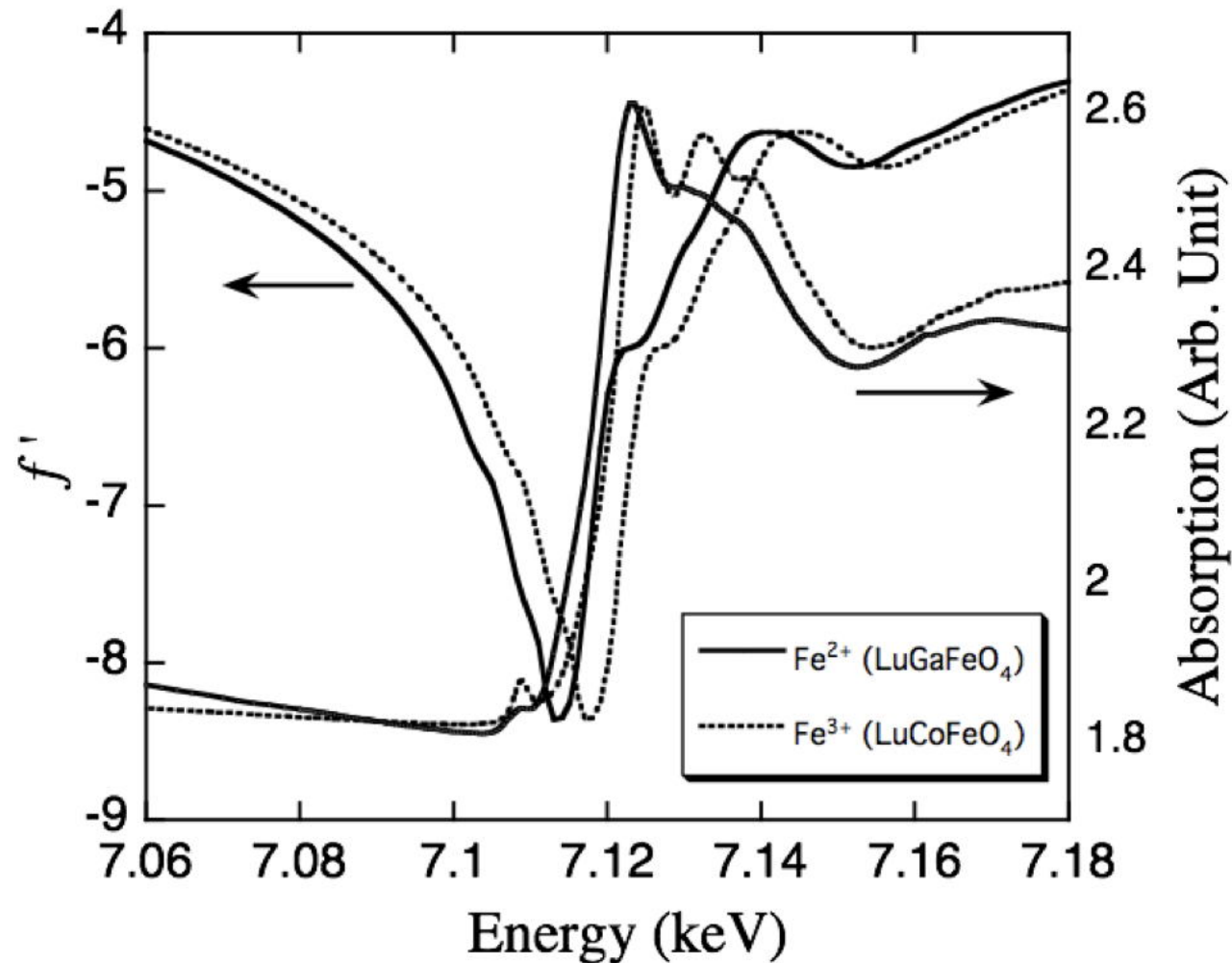
- Clarifying the long range ordering of
- $\text{Fe}^{2+}$  and  $\text{Fe}^{3+}$

Ferroelectricity originated from the charge ordering  
or polar electron distribution. ( $\text{Fe}^{2.5+ \pm e/2}$ )

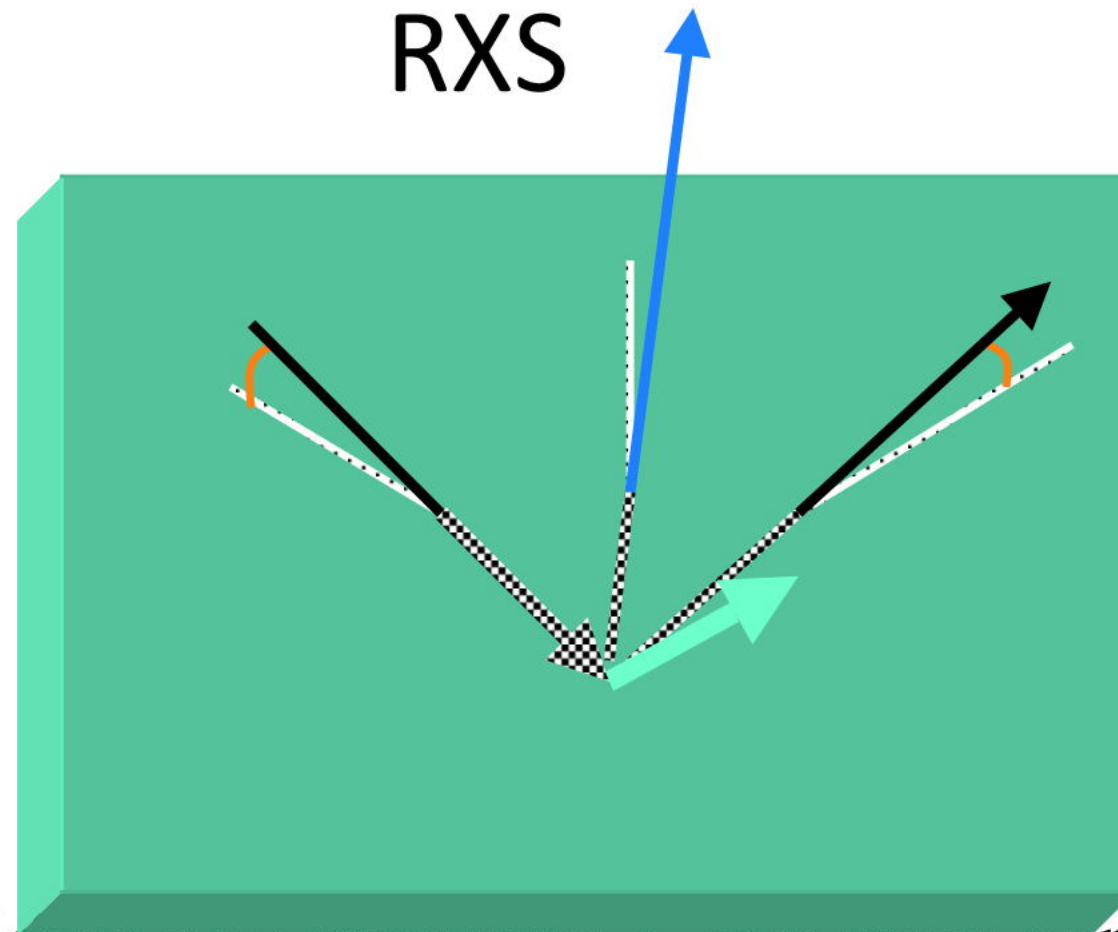
# RXS & XANES

- Resonant X-ray Scattering
- X-ray Absorption Near Edge Structure
- the structure factor of this superlattice point is contributed by the **positive** atomic scattering factor of  $\text{Fe}^{3+}$  and the **negative** factor of  $\text{Fe}^{2+}$ .

# XANES measurement



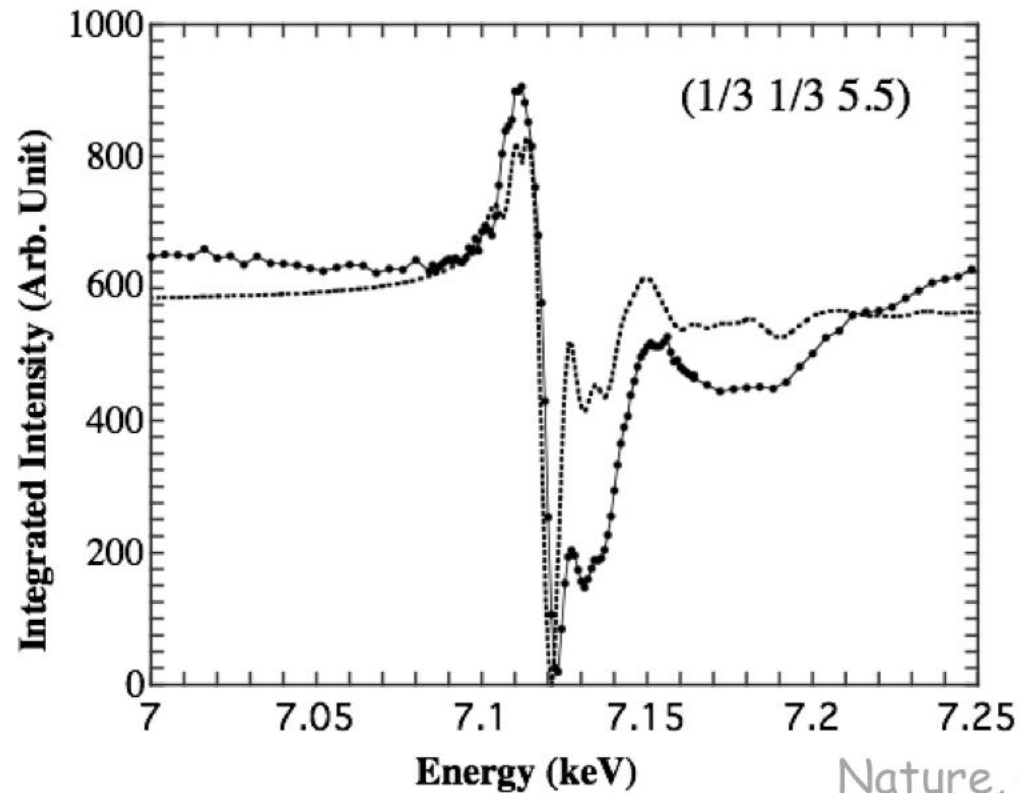
Excited 4p electron from 1s state in iron of LuFeCoO<sub>4</sub> (Fe<sup>3+</sup>) positioned in deeper potential energy caused from the higher trivalent valence state



- incident and scattered  $\lambda$ -ray were kept to form the same angle toward the sample surface
- in order to ensure the absorption correction.



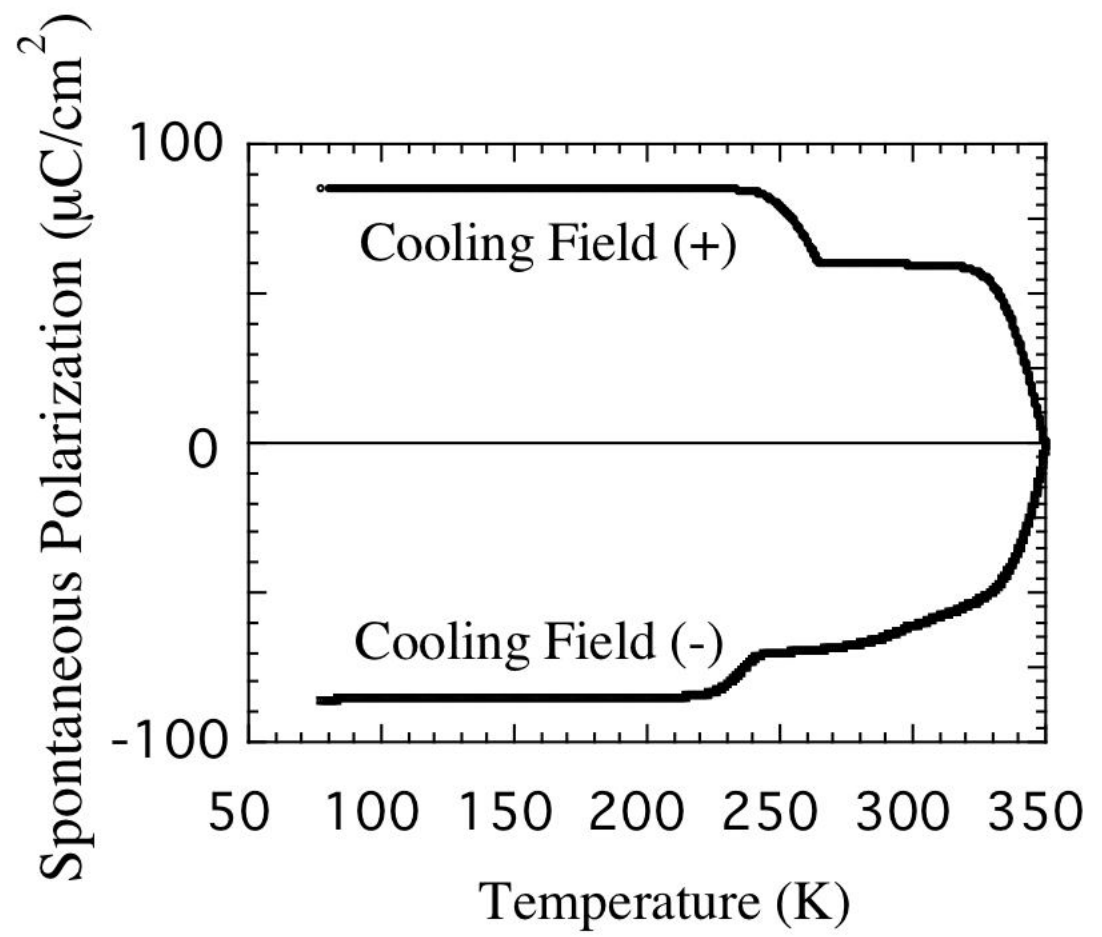
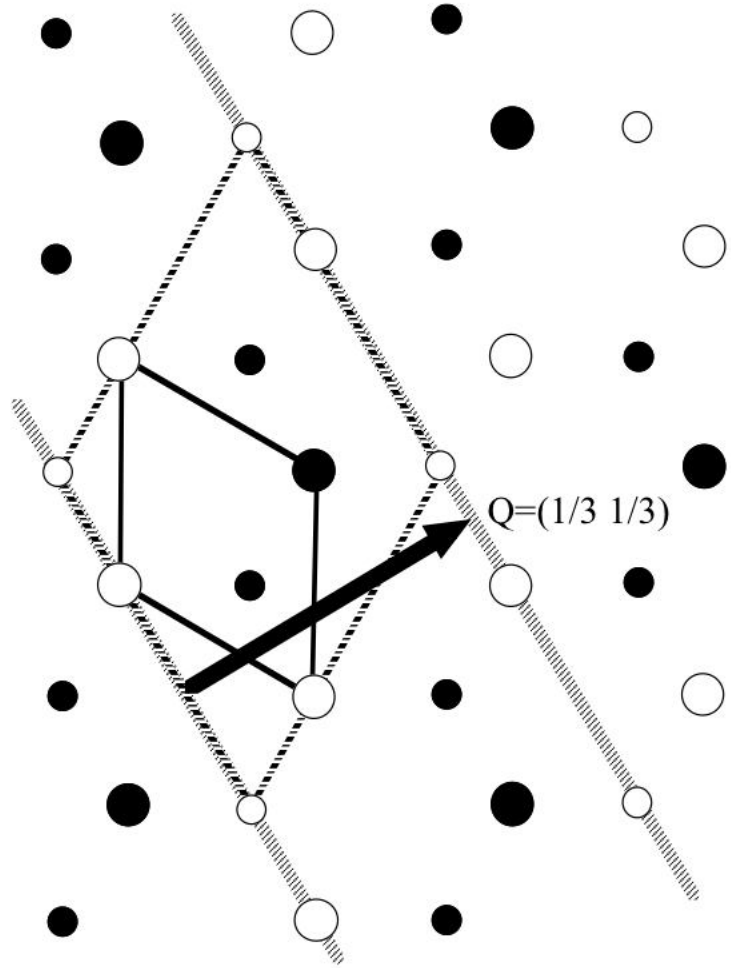
# RXS



Nature, 436 (2005) 1136-1138.

- the structure factor of this superlattice point is contributed by the **positive** atomic scattering factor of  $\text{Fe}^{3+}$  and the **negative** factor of  $\text{Fe}^{2+}$ .
- Direct evidence of the long range ordering of  $\text{Fe}^{3+}$  and  $\text{Fe}^{2+}$  ions

- 超格子点の構造因子が $\text{Fe}^{2+}$ と $\text{Fe}^{3+}$ の原子散乱因子の差で構成されている。



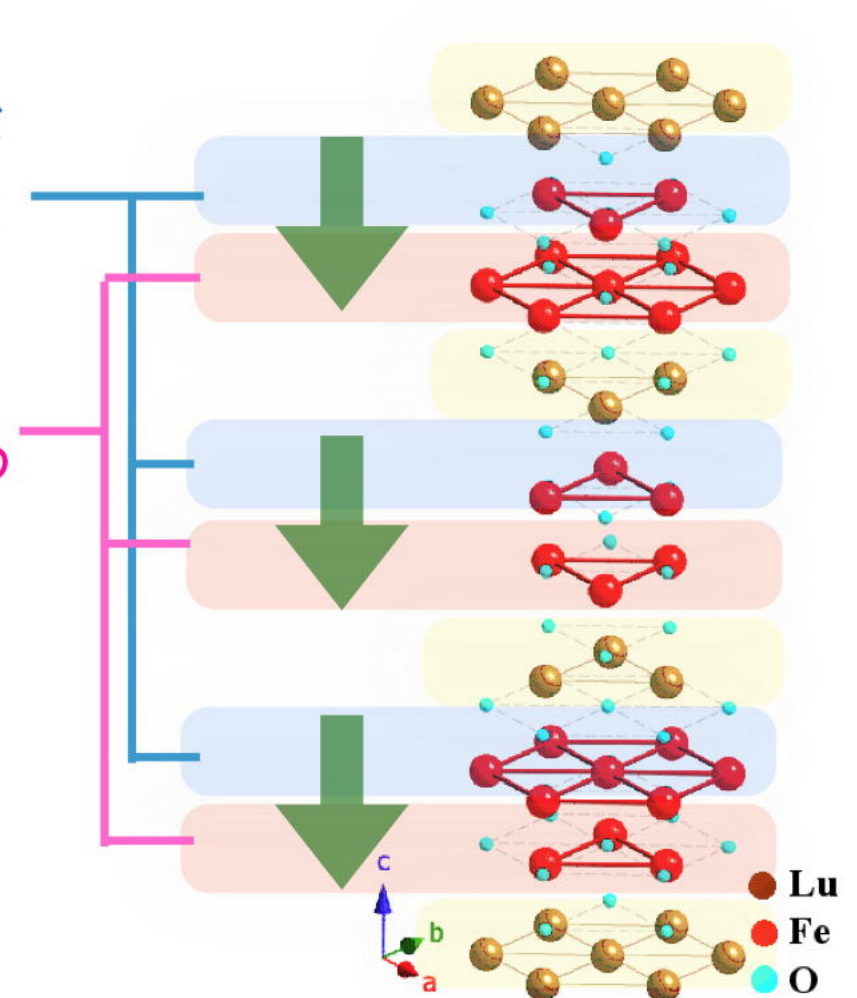
# 電子誘電性

- 陽イオンしか登場しない
- $\text{Fe}^{3+}$ と $\text{Fe}^{2+}$

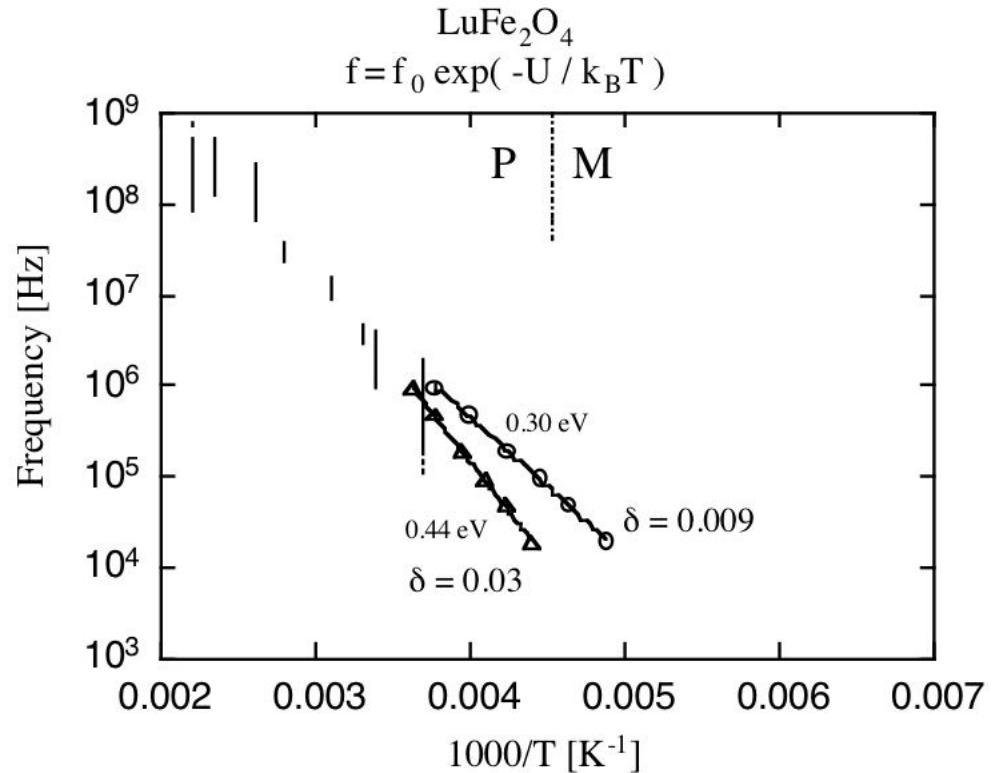
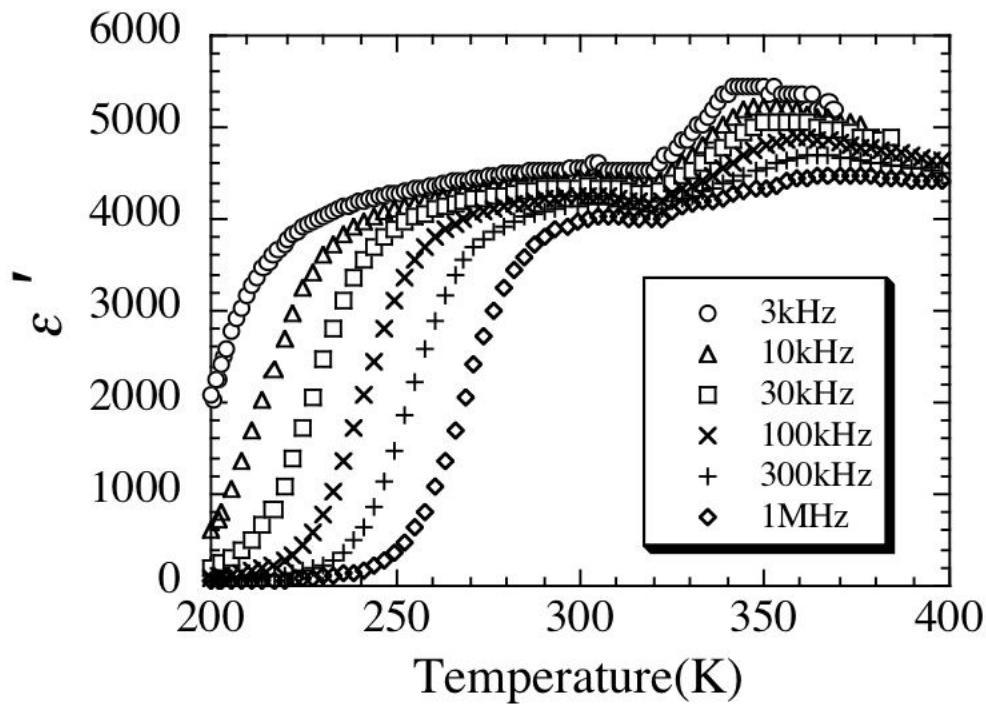
電子が過剰な領域が  
負電荷の役割を持つ

電子の欠損領域が  
正電荷の役割を持つ

電子の移動によって  
電気分極が反転する

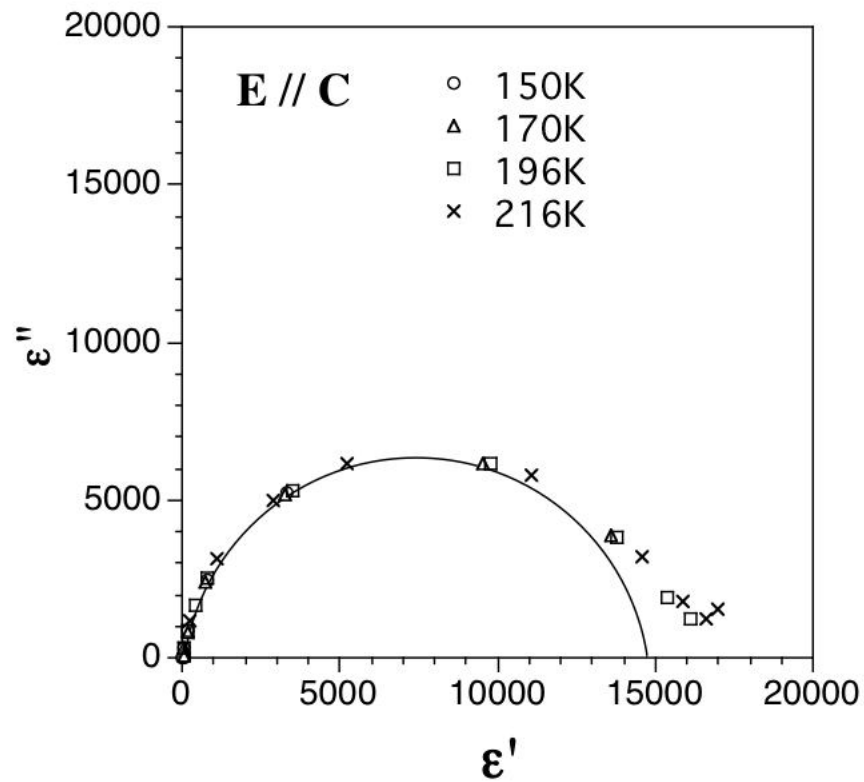
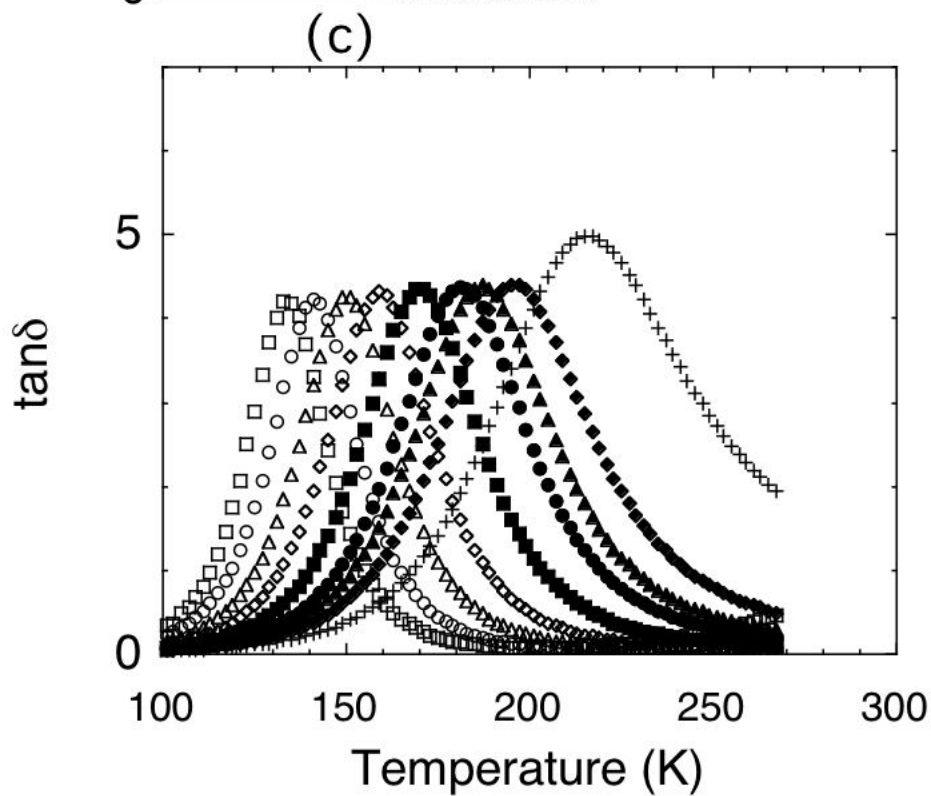
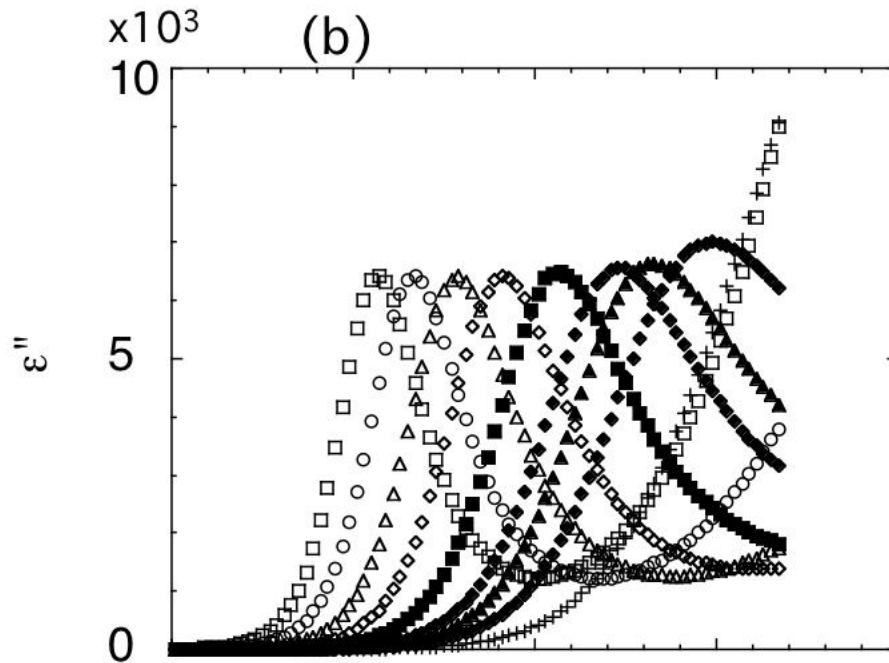
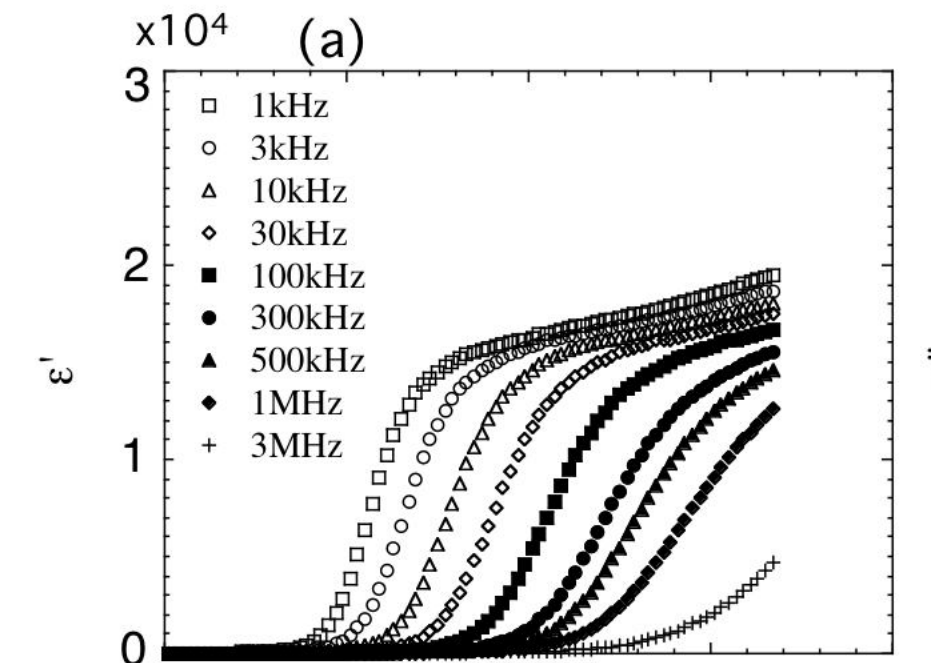


# 電子の極性配置による誘電体



鉄イオンの価数揺らぎ周波数と  
誘電分散の固有周波数が一致

電荷秩序（誘電）分域境界の揺らぎ



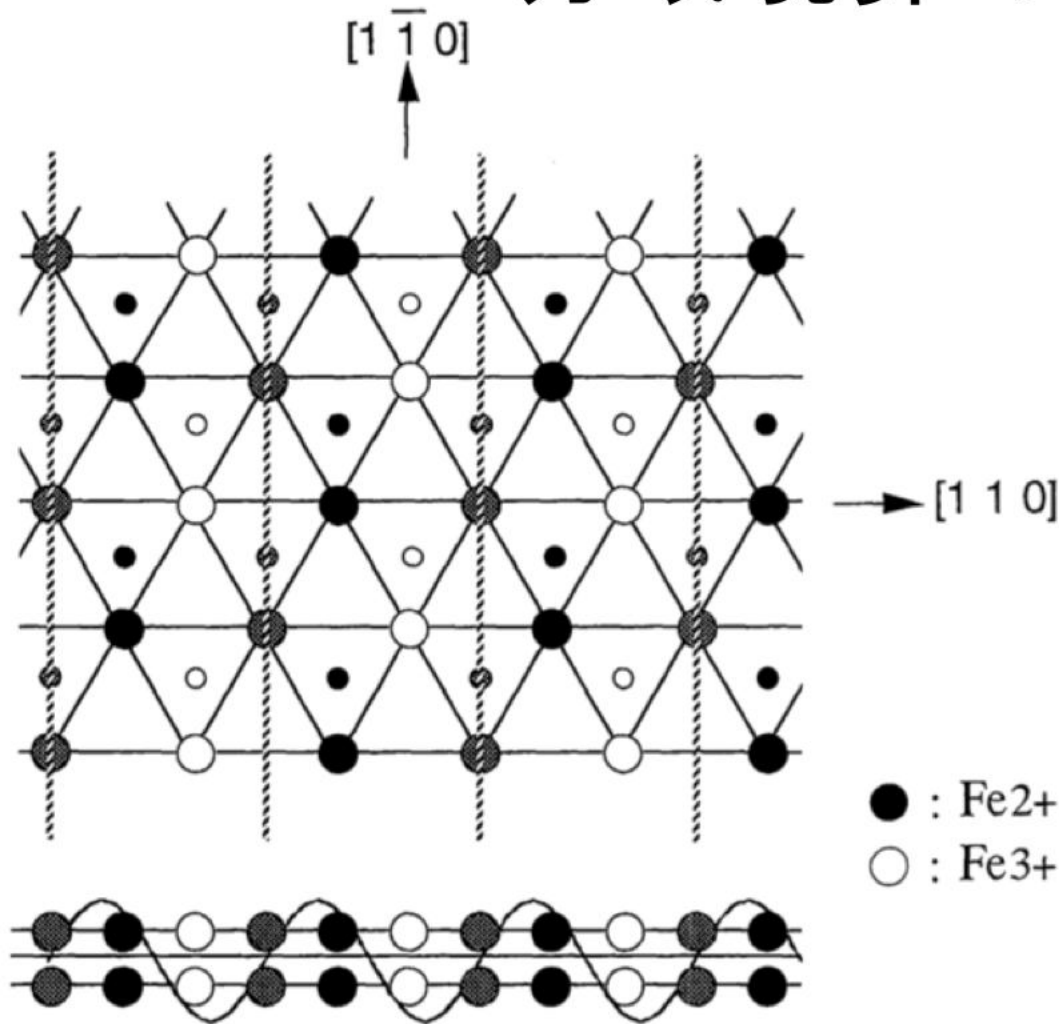
- 1kHz
- 3kHz
- △ 10kHz
- ◇ 30kHz
- 100kHz
- 300kHz
- ▲ 500kHz
- ◆ 1MHz
- + 3MHz

**E // C**

- 150K
- △ 170K
- 196K
- × 216K



# Fe<sup>2+</sup> <-> Fe<sup>3+</sup> 電子交換ゆらぎ 分域境界の応答



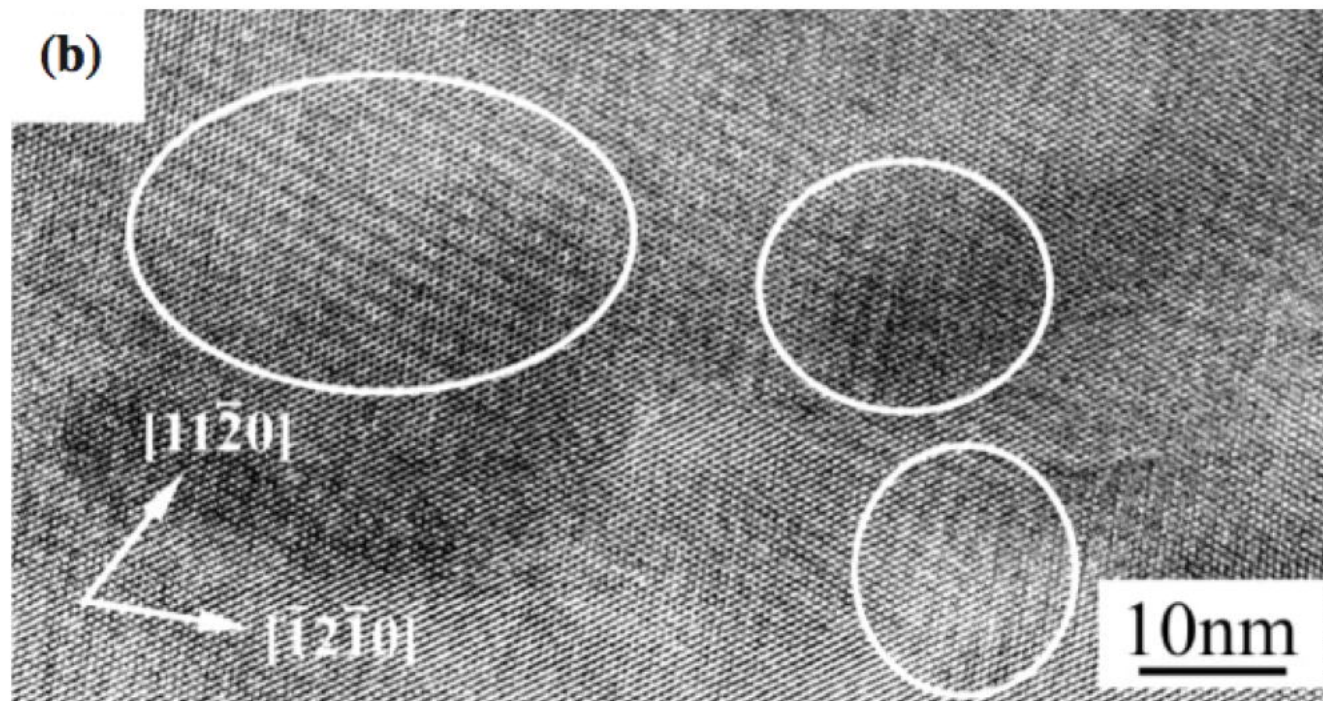
電荷秩序モデルとの整合性

電場がかかる事で分域壁が移動

ストライプ構造

電子／ホール交換と分極反転  
止まっている領域

# 電荷秩序誘電分域ドメイン



Y. Horibe et. al. , J. electron microscopy 54, i87(2005)

TEM、コヒーレントな電子線による像回復  
静的なドメイン像  
揺らぎの情報が無い

# 遅い揺らぎは何か？

極性電荷秩序と  
分域境界

スピン軌道競合  
揺らぎモデル

誘電分散  
数Hz-MHzの  
集団的電子？

3倍電荷秩序  
分極分域と  
ドメイン境界

3倍(分極)構  
造は認めうる  
もっと均一？

メスバウアー分光

均一、Fe<sup>3+</sup>の  
電荷揺らぎ

TEM写真

静的なドメイン

新しい観測手法

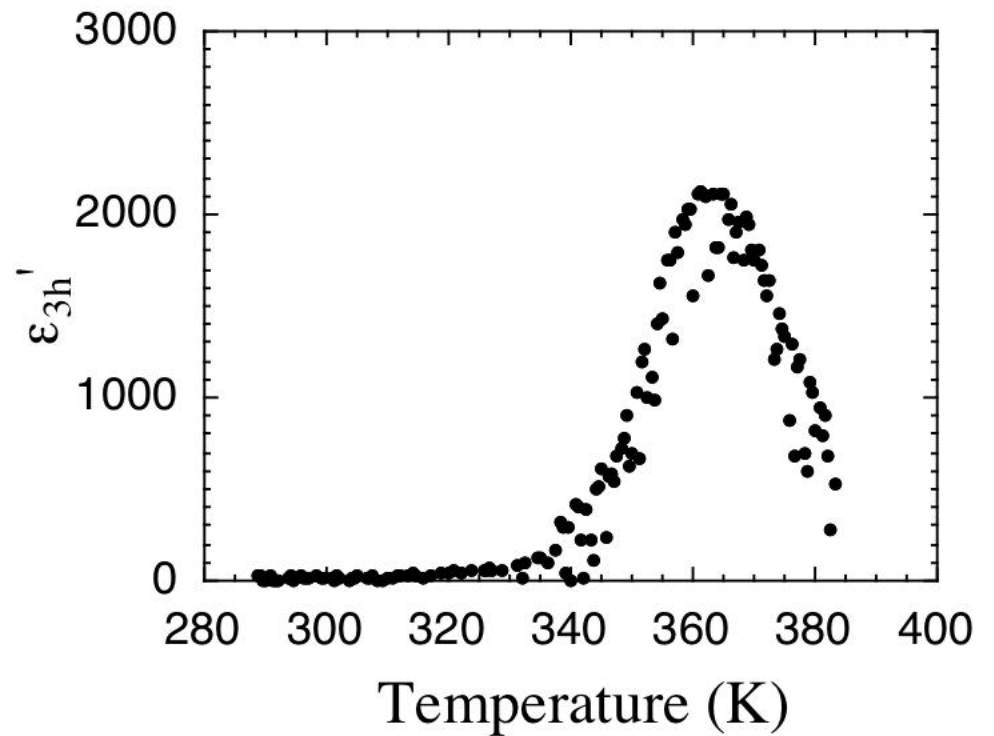
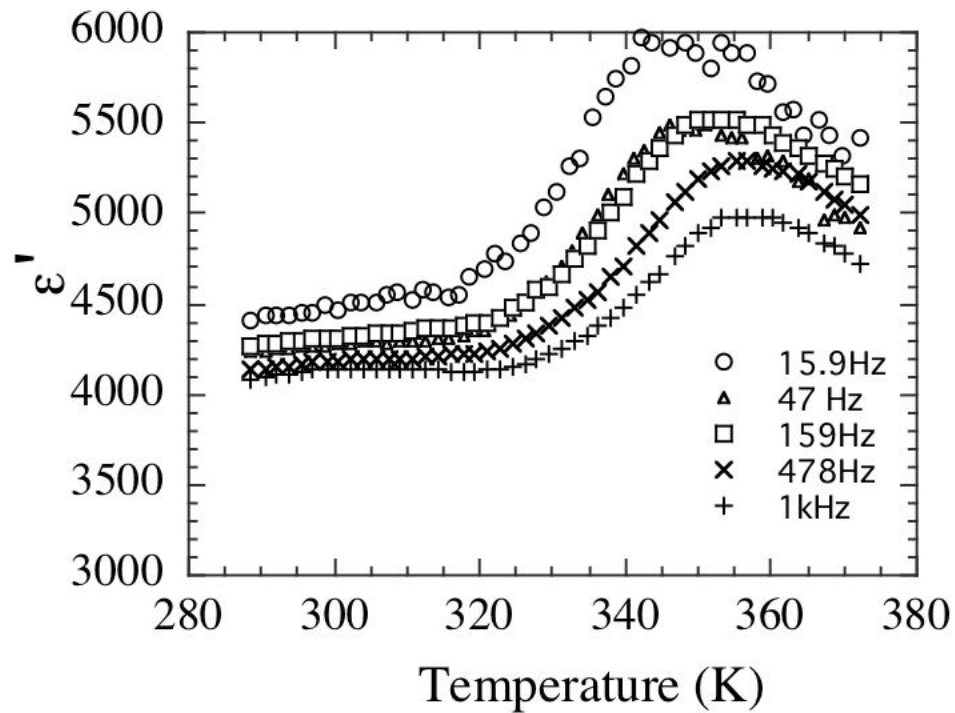
ドメインダイナミクスの情報

# 短距離電荷秩序（誘電分極）のガラス凍結 拮抗する不均一な相互作用

$\text{LuFe}_2\text{O}_4$  3-2次元電荷秩序相境界

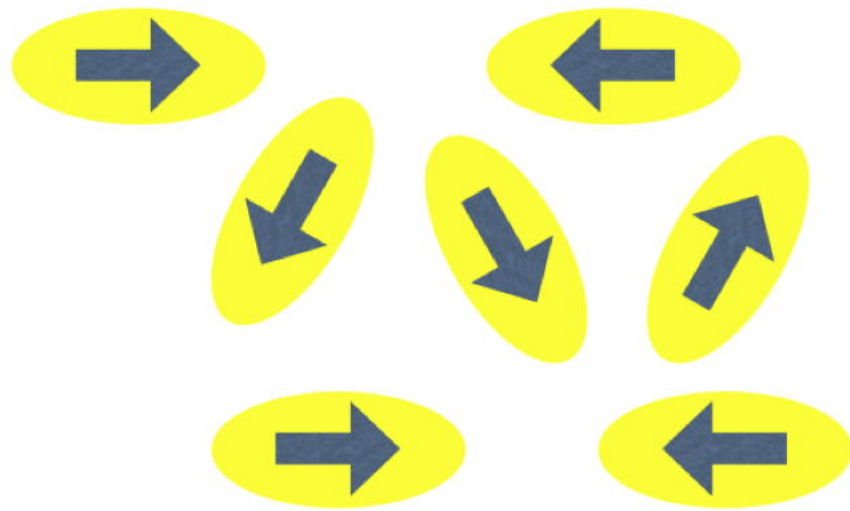
低周波数誘電率の分散

3次高調波誘電率（159Hz）



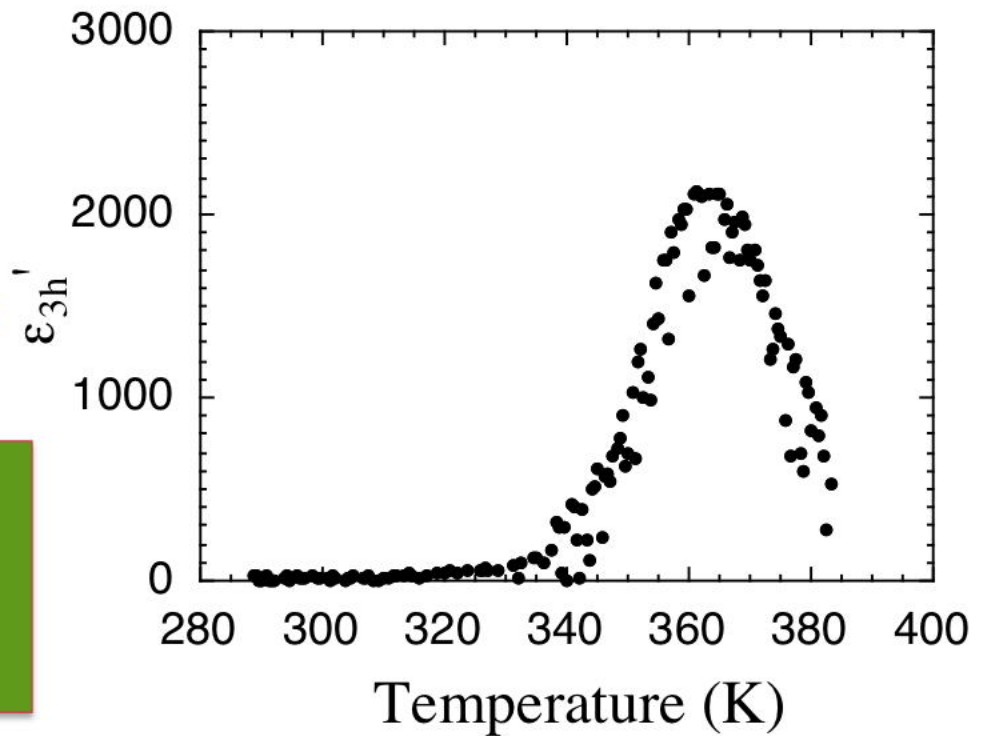


短距離電荷秩序（誘電分極）のガラス凍結  
拮抗する不均一な相互作用



極性な電荷秩序クラスター？  
電子交換による相互作用？  
室温？

3次高調波誘電率（159Hz）





# 新奇誘電体 $\text{RFe}_2\text{O}_4$ におけるスロー揺らぎ と次世代光源への期待

- 電子の極性な配列： 新奇な誘電体
- 磁性－誘電性の強い結合
- 電子集団どうしの相互作用？

“ドメイン” or “均一な揺らぎ”系

秩序長さについて、  
時間揺らぎとその分布  
空間揺らぎとその分布

コヒーレント光  
Ex. スペックル実験

2年有効のマシントイムと旅費支援