

| | |
|--------------|--|
| Title | Formation of Perovskite Type Oxide Artificial Lattices by Laser Molecular Beam Epitaxy and Their Electrical Properties |
| Author(s) | 田畑, 仁 |
| Citation | 大阪大学, 1995, 博士論文 |
| Version Type | VoR |
| URL | https://doi.org/10.11501/3081541 |
| rights | |
| Note | |

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

| | |
|---------------|---|
| 氏 名 | 田 畑 仁 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博 士 (理 学) |
| 学 位 記 番 号 | 第 1 1 9 4 0 号 |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平成 7 年 3 月 23 日 |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第 4 条第 2 項該当 |
| 学 位 論 文 名 | Formation of Perovskite Type Oxide Artificial Lattices by Laser Molecular Beam Epitaxy and Their Electrical Properties (レーザーMBE法によるペロブスカイト型酸化物人工格子の作製と電気的特性に関する研究) |
| 論 文 審 査 委 員 | (主査) 教 授 川 合 知 二 (副査) 教 授 海 崎 純 男 教 授 金 丸 文 一 |

論 文 内 容 の 要 旨

ペロブスカイト型構造を有する 3 d 遷移金属酸化物は、その電気的特性において絶縁体から金属に至るまで広範囲な性質を示しその結晶構造との関係も大変興味深い。また人工格子は、原子スケールでの元素の置換や格子歪の人工的な導入が可能であるため、構造変化に物性が敏感に対応している物質の結晶構造と物性との関係について系統的な研究が期待できる。本研究の目的は、3 d 遷移金属酸化物における結晶構造を人工的に構築し、電気特性との関係を明らかにすることにある。

対象とした物質は Ti 酸化物 (誘電体) と Cu 酸化物 (酸化物超伝導体) である。これらの結晶構造を、結晶成長時の電荷中性条件を考慮して原子層・分子層の単位で人工的に形成した。人工格子の形成には高い光子エネルギー (6.4eV) を利用したレーザーアブレーション法を用いた。

金属酸化物薄膜のエピタキシャル結晶成長においては構成金属の価数を決定する酸素圧力と温度や、さらには格子整合が重要な要因となることが明らかになった。

酸化物超伝導体の結晶構造の特徴は 2 次元の CuO_2 平面を有することであり、この CuO_2 層に適当なキャリアを注入することにより超伝導が発現する。

先ずサブユニットセル単位の人工格子制御により、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_8$ 超伝導体における Ca サイト (CuO_2 平面間に存在) の選択的要素置換を行った。このときの結晶の c 軸長は Ca サイトを置換するイオン半径に比例して変化し、さらに超伝導転移温度 (T_c) は CuO_2 平面間距離が長いほど高い値を示した。これにより、 CuO_2 平面の 2 次元性が T_c に重要な役割を果している事が明らかになった。

次に $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ (超伝導体) / $\text{La}_{1.65}\text{Sr}_{0.35}\text{CuO}_4$ (常伝導体) 人工格子をユニットセル単位で結晶成長させた。積層周期の減少に伴い超伝導転移温度が低下するという金属系超伝導体と同様な近接効果がみられた。この変化と de Gennes や Cooper の関係式より見積もったコヒーレンス長 (ξ) は 50 \AA であった。これは従来の磁場中測定により Ginzburg-Landau の関係式で求められていた酸化物超伝導体の ξ と比較して約 1 桁大きい。類縁の電気伝導性金属酸化物との積層構造における長距離近接効果を示すものと思われる。

ところで BaTiO_3 に代表される誘電体は、構成元素のわずかな変位により (強) 誘電性が発現する。そこで格子定数の異なった 2 つの誘電体による BaTiO_3 / SrTiO_3 人工格子を作製することにより、結晶構造と誘電特性との相関を調べた。これにより格子定数の差に起因する結晶化学的な格子歪を積層界面に導入できることが明らかになった。格

子歪から見積もられる結晶化学的な圧力は0.5–1.0GPa と非常に大きな値であることがわかった。興味深いことに、比誘電率は格子歪の増加に対応して増大しており、格子歪により誘起された正方晶性と誘電特性との関係を明らかにした。

論文審査の結果の要旨

本研究者は、レーザーMBE法を用いて超伝導人工格子及び誘電体人工格子を合成し、その特異な電気的特性を明らかにした。超伝導人工格子においては異元素を原子層単位で結晶格子中へ導入する方法を開発し、又、超伝導層／非超伝導層の積層により超伝導物性の重要な因子の一つであるコヒーレンス長の新しい評価法に道を拓いた。誘電体人工格子においては格子歪みを人工的に導入することにより、自然界にない大きな誘電率を持つ物質を創出した。これらの結果は、超伝導物質、誘電体物質研究のみならず、広く無機化合物研究分野の発展に寄与するところが大きい。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として、十分価値あるものと認める。