



Title	Exploration for multiferroics in hexaferrites
Author(s)	Hiraoka, Yuji
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/24951
rights	Copyright (2011) American Institute of Physics. This article may be downloaded for personal use only. Any other use requires prior permission of the author and the American Institute of Physics. The following article appeared in (Journal of Applied Physics, 110 (3) , 033920, 2011and may be found at http://dx.doi.org/10.1063/1.3622332
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏 名	平 岡 裕 治
博士の専攻分野の名称	博 士 (工学)
学 位 記 番 号	第 2 6 0 9 0 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 25 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科物質創成専攻
学 位 論 文 名	Exploration for multiferroics in hexaferrites (六方晶フェライトにおけるマルチフェロイクスの探究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 木村 剛 (副査) 教 授 鈴木 義茂 教 授 関山 明

論 文 内 容 の 要 旨

マルチフェロイクスとは強誘電性と[反]強磁性を同時に示すような物質を指す。2003年にTbMnO₃においてらせん磁気構造に由来するマルチフェロイクスが初めて発見され、このような物質においては巨大な電気磁気効果(電場で磁化[または、磁場で電気分極]を誘起)が観測されている。この種のマルチフェロイクスは新世代のデバイスへの応用が期待されているが、動作温度が40K以下の極めて低温であることなどの問題があり実用には至っていない。しかし、鉄の酸化物の一種である六方晶フェライト系ではより高温までこの種のマルチフェロイクスが存在することが報告されており、多結晶体だがZ型Sr₃Co₂Fe₂₄O₄₁では室温以上でもマルチフェロイックな性質が観測された。私はY型六方晶フェライト(Ba, Sr)₂Ni₂Fe₁₂O₂₂において新たにマルチフェロイクスを発見し、その起源を中性子線回折などを用いて明らかにした。また、酸素アニールや、結晶育成の方法を変えるなどして、その性能の改善に成功した。また、この種のマルチフェロイクスではらせん磁気構造のカイラリティー、つまり、右巻きらせんか左巻きらせんかが電気分極の方向を決める為、重要な秩序変数となっている。らせんカイラリティーの空間分布、つまりスピнкаイラルドメインを観察することは大きな関心事であった。共鳴円偏光X線回折法により、マルチフェロイックなY型六方晶フェライトBa_{0.5}Sr_{1.5}Zn₂Fe₁₂O₂₂ [ZnY(1.5)]とBa_{0.5}Sr_{1.5}Ni₂Fe₁₂O₂₂ [NiY(1.5)]のプロパー型らせん磁気構造において詳細なスピнкаイラルドメイン構造を観測することに成功した。スピнкаイラルドメインはネール点以下では温度に対して安定であること[ZnY(1.5)]、NiY(1.5)のコリニアー磁気構造かららせん磁気構造への転移点付近で2つの磁気構造の共存を観測することに成功した。

磁性と強誘電性が共存する物質は近年マルチフェロイクスと呼ばれ、このうち特に「らせん磁気秩序」起因のマルチフェロイクスは強誘電特性に対する大きな磁場効果が観測されることから、新規なデバイスへの応用が期待されている。しかしながら、これまで見つかったらせん磁気秩序起因のマルチフェロイクスの多くは動作温度の低さや効果の小ささなどの問題があり、同研究分野は基礎研究の域を脱していない。そこで本論文では、鉄酸化物の一種である六方晶フェライト系に着目し、同系における新たな高温動作マルチフェロイクスの探索を目的とした。その結果、Y型六方晶フェライト ($\text{Ba, Sr})_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ が従来にない高温で電気磁気効果を示すことを発見し、その起源を中性子線回折測定などにより明らかにし、また酸素アニールや結晶育成の方法を変えるなどして、その電気磁気特性の向上に成功した。この種のマルチフェロイクスにおいて、強誘電分極の向きはらせん磁気構造のカイラリティ（右巻きまたは左巻きらせん）で決定されるが、円偏光共鳴X線回折の手法を用いることにより、Y型六方晶フェライトにおける同カイラリティの空間分布、すなわちスピンカイラルドメイン構造を観測することに成功した。本論文の内容を要約すると以下の通りである。

- (1) 第1章では、序章として、マルチフェロイクス、電気磁気効果、六方晶フェライト、円偏光共鳴X線回折をおよびその磁性体研究への適用についてのこれまでの研究の沿革を整理したうえで、本研究の目的を述べている。
- (2) 第2章では、研究手法の説明を行い、六方晶フェライトの単結晶育成およびその物性測定に関する手順および原理を述べている。測定手法として、巨視的測定手法（磁化測定・誘電率測定）と微視的測定手法（中性子線回折・円偏光共鳴X線回折測定）といった多角的な物性測定を行っている。
- (3) 第3章では、結晶育成が困難なZ型六方晶フェライトの単結晶育成の詳細について報告している。
- (4) 第4章では、Y型六方晶フェライトの単結晶育成の詳細および第2章に挙げた巨視的および微視的測定の結果の詳細を示し、同物質における従来にない高温での電気磁気効果発現の発見およびその起源がらせん磁気秩序に起因するものであることを報告している。
- (5) 第5章では、らせん磁気秩序起因の電気磁気効果を示すY型六方晶フェライト単結晶に対する円偏光共鳴X線回折の測定の結果を示し、右巻きらせんと左巻きらせんのドメイン構造観測の成功について報告している。
- (6) 第6章では、本研究論文が総括されている。

以上のように、本論文研究では、複数種の六方晶フェライトの単結晶作成、その高温での電気磁気効果発現の発見、その起源の解明につながるらせん磁気秩序構造を明らかにし、さらに円偏光共鳴X線回折というユニークな手法でのらせんドメインの観測、といった様々な巨視的および微視的な物性の詳細を調べ、それらを総合的に議論することにより、同物質系が高温動作のマルチフェロイクスとなることを実証した。これらの結果は、今後の同研究分野のさらなる展開につながるものと認められる。よって本論文は博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。