

Title	Control of the magnetic plproperties in the perovskite-type oxide artificial superlattices
Author(s)	Ueda, Kenji
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.11501/3169124">https://doi.org/10.11501/3169124</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

氏名	植田研二
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 15163 号
学位授与年月日	平成12年 3月 24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 理学研究科化学専攻
学位論文名	ペロブスカイト型酸化物人工超格子による磁気特性制御の研究
論文審査委員	(主査) 教授 川合 知二  (副査) 教授 徂徠 道夫 教授 山口 兆

### 論文内容の要旨

本研究は主としてレーザーアブレーション法を用いて、2種のペロブスカイト型酸化物を原子(分子)層単位で交互積層することにより新規磁性体を創製する事を目標とした。以下にその具体的な内容に関して記述する。

#### 1、 $\text{LaCrO}_3$ - $\text{LaFeO}_3$ 磁性体人工格子の創製

本研究で私は  $\text{LaCrO}_3$ 、 $\text{LaFeO}_3$  を組み合わせて人工格子化し、新たな磁性体を作製した。その際に、金森、Goodenough らの超交換相互作用機構指針として用い、組み合わせる物質の選定を行った。この理論によると、 $d^3$ - $d^5$  の電子状態を持つ金属(M)二量体間( $\angle M_1-X-M_2=180^\circ$   $M_1=\text{Fe}^{3+}$ 、 $M_2=\text{Cr}^3$  etc.)の超交換相互作用は強磁性的と予測されている。この理論から、ペロブスカイト構造を持つ遷移金属酸化物( $\text{ABO}_3$ )のBサイトに  $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Cr}^{3+}$  が交互に入った物質を作製できれば強磁性体となると予測される。しかし、現在までに行われた焼結法による実験においては、 $\text{Fe}^{3+}-\text{O}-\text{Cr}^{3+}$  の秩序構造が得られず、全て反強磁性体となった。

本研究において、レーザーアブレーション法を用い、 $\text{LaCrO}_3$ 、 $\text{LaFeO}_3$  を1分子層単位で  $\text{SrTiO}_3$  (111) 面上に交互積層させた人工格子において初めて強磁性(フェリ磁性)を示す新物質を合成することに成功した。また、人工格子の積層周期のコントロールと基板面((111)、(100)面)の選択により磁気秩序の制御が可能であるため、2種類の基板に様々な積層周期の人工格子を作成し、磁気構造の制御も試みた。

その結果、基板(111)面上に1分子層単位でFe、Cr層を交互積層した  $\text{LaCrO}_3/\text{LaFeO}_3$  人工格子(1/1層)の磁化は  $\text{LaCr}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{O}_3$  固溶体薄膜とは全く異なる挙動を示し、375Kで強磁性転移と思われる急激な立ち上がりが見られた。一方、基板(100)面上に形成した  $\text{LaCrO}_3/\text{LaFeO}_3$  人工格子(1/1、3/3、5/5)の磁化の温度変化は何れも反強磁性的な挙動を示し、ニール点( $T_N$ )がそれぞれ250、400、 $>400\text{K}$ に現れた。転移温度( $T_N$ )は積層周期(1/1~5/5)の増加と共に上昇した。この様に人工格子により、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Cr}^{3+}$  を原子層単位で配列させることで磁気特性が制御可能であることが明らかとなった。

#### 2、 $\text{LaMnO}_3$ - $\text{LaFeO}_3$ 磁性体人工格子の創製

上記の手法を  $\text{LaMnO}_3$ - $\text{LaFeO}_3$  系に適用し、新たな磁性体創製を試みた。この系では  $\text{LaCrO}_3$ - $\text{LaFeO}_3$  系とは異なり  $\text{LaMnO}_3$  の薄膜が強磁性、 $\text{LaFeO}_3$  が反強磁性を示すため、(100)、(110)基板上に人工格子化することによりMn-Fe層界面にスピンフラストレーション効果を導入することができ、Cr-Fe系とは異なる物質設計が可能となる。(111)基板上に  $\text{LaMnO}_3$ - $\text{LaFeO}_3$  を1層ずつ交互積層した(1/1)人工格子では磁化が230Kで急激に立

ち上がる強磁性的（又はフェリ磁性的）な挙動が見られた。一方で、(100)、(110) 基板上に作成した人工格子（積層周期：2 / 2）ではスピンプラストレーション効果に由来すると思われるスピングラスの状態が出現した。

本研究結果から、従来の人工格子法に基板面選択による積層方向の制御という新たな手法を取り入れることによりペロブスカイト型酸化物における材料設計の幅を広げられるということが明らかとなった。

#### 論文審査の結果の要旨

植田君の論文は、ペロブスカイト型酸化物人工格子を用いた新規物質の合成手法に関するものである。2種類のペロブスカイト型酸化物（ $\text{LaCrO}_3$  と  $\text{LaFeO}_3$  及び  $\text{LaMnO}_3$  と  $\text{LaFeO}_3$ ）を異なる面方位の基板上にエピタキシャル成長させることを考案し、積層方向を制御し人工格子化し、磁性イオン（Fe、Cr、Mn）が3次元、2次元、1次元配列した物質を作成することにより磁気特性を制御することに成功した。同時に、長年議論の対象とされていた  $\text{Fe}^{3+}$  と  $\text{Cr}^{3+}$  間の超交換相互作用が強磁性的であることを実験的に初めて証明した。これらの結果は無機化合物研究、特に磁性体研究の発展に寄与するところが極めて大きい。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値のあるものと認める。