



Title	Formation of Transition Metal Oxide Artificial Lattices by Laser Molecular Beam Epitaxy and Their Electrical and Magnetic Properties
Author(s)	田中, 秀和
Citation	大阪大学, 1998, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/41260
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏 名 田 中 秀 和

博士の専攻分野の名称 博 士 (理 学)

学 位 記 番 号 第 1 4 1 1 5 号

学 位 授 与 年 月 日 平 成 10 年 9 月 14 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 Transition Metal Oxide Artificial Lattices by Laser Molecular Beam Epitaxy and Their Electrical and Magnetic Properties.
(レーザ MBE 法による遷移金属酸化物人工格子の創成と電気・磁気物性制御)

論 文 審 査 委 員 (主査)
教 授 川 合 知 二
(副査)
教 授 那 須 三 郎 教 授 冷 水 佐 壽

論 文 内 容 の 要 旨

強相関電子系である $3d$ 遷移金属酸化物は格子・電荷・スピンの複雑に絡み合い、広範な磁気・電気物性を示す。これに対して人工格子法は、格子歪み及び二次元的な原子配列を人工的に導入する事が可能である。本論文の目的はペロブスカイト型 $3d$ 遷移金属酸化物において、レーザ分子線エピタキシー (MBE) 法を用い、結晶構造及びスピン配列を人為的に構築し、その物性 (誘電性・電気伝導性・強磁性) との関係性を明らかにする事である。

(0) 金属酸化物薄膜の結晶成長において、金属元素の価数を決定する結晶生成温度-酸素雰囲気条件が重要な因子であることを実験及び熱力学的考察より明らかにした。

(1) 高誘電体 $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ ($x=0\sim 1.0$) を格子定数の異なる SrTiO_3 単結晶基板上に作製し、格子歪みが1.0%と正方晶性が最大に誘起された薄膜結晶 ($x=0.7$) において誘電率が最大値 (660) を示す事を見出した。また $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{TiO}_3$ 系において分子動力学法による構造計算を行い、格子不安定 (空隙率の増加) が Ti イオンの変位を誘起する誘電特性増加の因子であることを実験・計算の両面から示した。

(2) 強磁性体 $(\text{La}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5})\text{CoO}_3$ /誘電体 (SrTiO_3) 歪み人工格子を作製し、積層厚さの低下に伴う格子歪みの増加により、物性が金属的電気伝導から絶縁体へ、強磁性からスピングラス相へ転移する事を見出した。格子ミスマッチ (2.6%) のため Co-O 結合長は積層面方向に増加し電子の有効トランスファーが減少し、二重交換強磁性相互作用が抑制される。格子系の制御によりスピン系の制御が可能であることを示した。また圧電体 $(\text{Ba}_{0.85}, \text{Sr}_{0.15})\text{TiO}_3$ との積層構造において圧電層の電界制御を通して Co 層の格子系を動的に変化させ電気抵抗 (スピン相関) を制御出来ることを示した。

(3) 強磁性体 $\text{La}_{1-x}\text{MnO}_3$ /磁性体 LaMO_3 ($M=\text{Cr}, \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}$) 酸化物人工格子を創成し、各層の厚さが3ユニットセル以下において、強磁性転移温度が変化する事を見出した。分子場理論を用い、隣接層の磁性及び界面交換相互作用により強磁性層のスピン構造が系統的に制御出来る事を説明した。典型例として、 $(\text{La}, \text{Sr})\text{MnO}_3$ (強磁性体)/ LaFeO_3 (反強磁性体) 人工格子において強磁性スピン配列が反強磁性配列と競合し抑制される事、この競合のため磁気抵抗効果がバルク材料 (18%) より増加 (35%) する事を見出した。

以上総括し、人工格子法を用い強相関電子系を特徴づける物理パラメータ(格子振動, 電子移動積分, 交換相互作用)を任意選択的に制御し電気・磁気特性を制御出来ることを, (1)~(3)を通じて明らかにした。

論文審査の結果の要旨

本論文は、ペロブスカイト構造を有する 3d 遷移金属酸化物に対して、レーザ分子線エピタキシー (MBE) 法を用いた人工格子形成による誘電性・電気伝導性・磁気特性制御に関する成果をまとめたものである。遷移金属酸化物を規定する Hamiltonian を通じ、人為的に構築した結晶とスピン構造、電気・磁気物性の関連を明らかにしている。

第 3 章において、金属酸化物薄膜の結晶成長では、金属元素の価数を決定する結晶生成温度-酸素雰囲気条件が重要な因子であることを実験及び熱力学的考察より明らかにし、薄膜・人工格子結晶作製の為の基本的な考え方を確立している。

第 4 章において基板との格子歪みにより正方晶性が最大に誘起された誘電体 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ 薄膜結晶が誘電率の最大値を示す事を見出した。また格子不安定が Ti イオンの変位を誘起し誘電率増加の因子となる事を分子動力学法による構造計算により説明を与え、格子変形と誘電特性の関連を明らかにしている。

第 5 章では、強磁性体 $(\text{La}, \text{Sr})\text{CoO}_3$ /誘電体 (SrTiO_3) 歪み人工格子において、格子歪みの増加により、電気・磁気特性が金属的伝導から絶縁体へ、強磁性からスピングラス相へ転移する事を見出し、Co-O 結合長の増加が電子移動積分の減少を通じて二重交換強磁性相互作用を抑制する事を説明し、格子系の制御によりスピン系の制御が可能であることを示している。この知見に基づき圧電体との積層構造において圧電層の電界歪み制御を通し強磁性層の電気抵抗 (スピン相関) を制御出来る新型デバイスを作製した。

第 6 章において強磁性体 $(\text{La}_{1-x}\text{MnO}_3)$ /磁性体 $(\text{LaMO}_3 \text{ (M=Ni, Co, Fe, Cr)})$ -酸化物人工格子の創成と新規物性についてまとめている。厚さが 3 ユニットセル以下において、強磁性転移温度が変化する事を見出し、隣接磁性層のスピン構造が界面交換相互作用を通じて強磁性層のスピン構造を系統的に変化させることを分子場理論を用いて説明している。更にこの知見を用い、 $(\text{La}, \text{Sr})\text{MnO}_3$ (強磁性体)/ LaFeO_3 (反強磁性体) 人工格子において、強磁性スピン配列と反強磁性スピン配列との競合を人為的に導入し、磁気抵抗効果をバルク材料 (18%) より増加 (35%) させる事に成功しており、新しいスピン制御法を提案し実現している。

以上のように本論文では、人工格子法を用い強相関電子系を特徴づける物理パラメータ(格子変形, 電子移動積分, 交換相互作用)を選択的に制御・構築し、電気・磁気特性を制御出来ることを明らかにし、新機能物質創成へと発展させている。強相関系物質の理解および材料設計に重大な貢献をするものであり、博士 (理学) の学位論文として価値あるものと認める。