

| | |
|--------------|--|
| Title | 強相関遷移金属酸化物におけるナノ領域の物性探索 |
| Author(s) | 柳澤, 吉彦 |
| Citation | 大阪大学, 2007, 博士論文 |
| Version Type | |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/47649 |
| 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、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について <a>〉 をご参照ください。 |

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

| | |
|------------|--|
| 氏名 | 柳 澤 吉 彦 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博士(理学) |
| 学位記番号 | 第 20870 号 |
| 学位授与年月日 | 平成 19 年 3 月 23 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 | 強相関遷移金属酸化物におけるナノ領域の物性探索 |
| 論文審査委員 | (主査) 教授 川合 知二 (副査) 教授 海崎 純男 教授 山口 兆 |

論文内容の要旨

近年、遷移金属酸化物の諸物性は強い物理的相互作用により空間的な不均一性を示す、即ち強磁性と反強磁性または金属と絶縁体が低温で電子相ドメインとして同一結晶相に共存しうることが報告されている。特にペロブスカイト Mn 酸化物 ($AMnO_3$ 、A=アルカリ土類、または希土類金属イオン) においてこのような強相関遷移金属酸化物のナノ物性は顕著に見られ、その物性解明に対するアプローチとしては、これまでプローブ顕微鏡 (SPM) による観察または単結晶等によるバルク物性の評価が主に行われてきた。しかしながらこれらの方法では電子相分離の存在、および単一電子相ドメインの物性を明らかにすることは出来なかった。そこで本研究では、試料をナノ加工することによって直接的な電気物性を測定し、電子相分離現象の存在、及び単一電子相の物性解明を行うことを目的とした。

1. AFM リソグラフィー法によるペロブスカイト Mn 酸化物の極限ナノ加工

これまで、酸化物材料に対しトップダウンの手法でナノ加工を施すことに成功した例はほとんどない。本研究では、酸化物のナノ加工を行う上で重要となる因子を見出すことによって、ナノ構造体を作製するための技術を確立した。ナノ加工の手法としては原子間力顕微鏡 (AFM) リソグラフィー法を用いた。従来の AFM リソグラフィー法では AFM チップに負バイアス電圧を印加することによって試料を陽極酸化する方法が採られてきたが、Mn 酸化物に対しては加工時のサイズ制御が非常に困難であることが分かっている。本研究では正バイアス電圧を印加しリソグラフィーを行うことによって、30 nm 程度のサイズでナノ構造体のサイズが制御可能であることを見出した。これらの実験の結果、AFM チップのバイアス方向が Mn 酸化物のナノ加工を行う上で重要な因子であることが分かり、数 10 nm 程度の酸化物ナノ構造体の作製技術を確立した。

2. ペロブスカイト Mn 酸化物ナノチャネル構造体の電気物性評価

(La, Pr, Ca)MnO₃(LPCMO) に対してナノチャネル構造体の物性評価を行った。その結果、バルクとナノチャネルの間で電気物性に大きな差異があることが分かった。特にナノチャネルの R-T 特性においてバルク薄膜が絶縁体—金属転移を示す一方、ナノチャネルは 10 K まで完全に絶縁体的な振る舞いを示した。以上の研究によって LPCMO 薄膜をナノ構造体とする事によって大きな物性の変化が見られることを見出した。また、チャネル幅による物性の変化を調べた結果、チャネル幅を狭くするにつれて MR 曲線における金属転移の急峻性が大きくなることが分かった。この 500 nm チャネルに対す磁気抵抗効果 (MR) の急峻性 (ΔMR_{max}) は 3.5×10^4 T と、10 μ m チャネルの 300 倍

にも及ぶ急峻性を示し、その結果として階段状磁気抵抗効果が現れた。以上の研究によって、LPCMO チャンネルがナノスケールにまで微細化されたとき、チャンネルの電気物性は磁場により急峻な金属相転移を示すということを見出した。この現象は強相関電子系酸化物ナノ構造体における新規ナノ物性の初めての例といえる。

3. ランダムレジスタネットワークシステムを用いたシミュレーション

前章で見出した新規な階段状磁気抵抗現象の発現機構の起源を考察するために、ランダムレジスタネットワークを用いたシミュレーションを行った。その結果、系の幅を小さくする事によって磁場による抵抗の低下が非常に急峻になることが分かった。また系が1次元になった場合、磁場による抵抗の変化は完全に階段状となることが分かった。この結果はナノチャンネルの電気物性測定における階段状磁気抵抗効果を再現するものである。以上の結果によって、2相共存モデルに基づくシミュレーションにより LPCMO ナノチャンネルの物性を上手く説明することが出来、電子相分離現象が LPCMO ナノチャンネル中に存在し、ナノチャンネルが示す階段状磁気抵抗効果は単一ドメインの相転移に起因するという事が明らかになった。

論文審査の結果の要旨

固体材料をナノスケールにまで加工することによる物性探索は、現代のナノサイエンスにおいて最も重要視されている分野の1つである。金属・半導体においてこの手法は歴史的に大きな発見をもたらしてきた一方、機能性材料の一大物質群を成す酸化物材料に対しては殆ど未開拓といえる状態にある。

本研究において、AFM リソグラフィ法を用い機能性酸化物材料の極限微細加工を試みた結果、これまでのトップダウンによるアプローチでは実現し得なかった 30 nm スケールのナノ加工が可能であることを初めて示した。また、同様の手法を用い種々の酸化物材料に対してもナノ加工が可能であることも見出した。

その上で、LPCMO 薄膜のナノチャンネルの電気物性はバルク物性と比較し大きな物性変化を伴うことを明らかにした。特に磁気抵抗効果において急峻な金属転移を示し、500 nm チャンネルの急峻性、 ΔMR_{\max} 、はバルク薄膜（幅：10 μm ）と比較し 300 倍にも及び、“階段状磁気抵抗効果”を示すことを初めて見出した。さらに、ランダムレジスタネットワークモデルを用いたシミュレーションによってこの“階段状磁気抵抗効果”は電子相分離現象におけるナノサイズの単一電子相の相転移に起因するによるものであることを証明した。

以上の結果は、強相関酸化物材料におけるナノ領域の物性を新たに開拓したものである。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。