

Title	マルチフェロイックBiFeO ₃ 薄膜におけるテラヘルツ電磁波放射機能
Author(s)	高橋, 宏平
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48488
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	高橋宏平
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 21203 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 工学研究科電気工学専攻
学位論文名	マルチフェロイック BiFeO ₃ 薄膜におけるテラヘルツ電磁波放射機能
論文審査委員	(主査) 教授 斗内 政吉 (副査) 教授 佐々木孝友 教授 伊藤 利道 教授 伊瀬 敏史 教授 熊谷 貞俊 教授 辻 毅一郎 教授 杉野 隆 教授 中塚 正大 教授 西村 博明

論文内容の要旨

本論文は、室温で反強磁性・強誘電性を示すマルチフェロイック BiFeO₃ に着目し、超高速光パルス励起によりマルチフェロイック特性の制御を試み、この系特有の新たな光テラヘルツ波機能の創製を目指した結果をまとめたものである。

第 1 章では、序論として、本研究の背景及び論文の概要について述べた。

第 2 章では、本研究の対象であるマルチフェロイクスについての予備知識、及び現在までに報告されている BiFeO₃ の基礎物性についてまとめた。

第 3 章では、パルスレーザー堆積法により (001)(LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂AlTaO₆)_{0.7} 基板上に BiFeO₃ 薄膜を作製した結果について説明した。作製した薄膜は (001) 配向しており、バルクと同様、自発磁化の小さい反強磁性的な磁気秩序を示した。また、BiFeO₃ 薄膜の反強磁性的な磁気特性を改善させる事を目的として、Fe 元素を一部 Mn 元素で置換した BiFe_{1-x}Mn_xO₃ ($x=0.05, 0.2, 0.3, 0.5$) 薄膜を作製した結果について述べた。Mn 置換量の増加と共に自発磁化は増大し、Mn 置換によって BiFeO₃ の反強磁性的な磁気特性は弱い強磁性へと変化する事がわかった。一方、BiFeO₃ 及び BiFe_{1-x}Mn_xO₃ 薄膜はすべての組成において大きな電気伝導度を有したため、一般的な強誘電体特性評価システムでは正確な分極反転特性を評価する事は出来なかった。

第 4 章では、BiFeO₃ 薄膜にフェムト秒レーザーパルスを照射する事で、この系特有の新規テラヘルツ電磁波放射機能を見出した結果について説明した。ゼロバイアス電界下においてメモリー効果を伴うテラヘルツ電磁波放射が観測される点、及びテラヘルツ電磁波放射強度のバイアス電界依存性が特異なヒステリシスカーブを示す点から、BiFeO₃ 薄膜の自発分極の形成する局所電界が光励起されたキャリアに作用する事でテラヘルツ電磁波が発生していると理解した。また、BiFeO₃ 薄膜から放射されるテラヘルツ電磁波が電気双極子モーメントの整列状態に強く依存する性質を利用して、BiFeO₃ 薄膜の分極反転特性を調べたところ、光照射下では BiFeO₃ 薄膜の自発分極の反転が促進されている事(光アシスト分極反転効果)を見出した。一方、Mn 置換に伴う電気磁気特性の変化が BiFeO₃ 薄膜のテラヘルツ電磁波放射特性に及ぼす影響を調べるため、BiFe_{1-x}Mn_xO₃ 薄膜からのテラヘルツ電磁波発生を試みた。絶縁性が著しく劣化した $x=0.5$ の組成の薄膜ではテラヘルツ電磁波の発生は観測されなかったものの、他の組成

の薄膜においては、 BiFeO_3 薄膜と同様のメカニズムに起因すると思われるテラヘルツ電磁波放射特性が観測され、 Mn 置換によって強誘電秩序は消失していない事を明らかにした。また、テラヘルツ電磁波放射が試料の電気伝導度、あるいは暗電流の大きさに依存しない点を説明し、自発分極の有無を判別するための新たな評価法として、テラヘルツ電磁波放射特性の測定が非常に有効である事を説明した。

第5章では、 BiFeO_3 薄膜から放射されるテラヘルツ電磁波が自発分極の形成する局所電界を直接的に反映する性質を利用して、非破壊非接触で一度に大面積の測定が可能である新たな強誘電ドメイン観察法を考案した結果について説明した。この手法を用いて BiFeO_3 薄膜の強誘電ドメイン構造を観察したところ、光アシスト分極反転効果が実際に強誘電ドメイン構造の構築に大きな影響を及ぼしている事を明らかにした。

第6章では、以上の研究の結論を要約した。

論文審査の結果の要旨

本論文は、室温で反強磁性強誘電性を示すマルチフェロイック BiFeO_3 に着目し、超高速光パルス励起によりこの系特有の新たなテラヘルツ電磁波放射機能を見出した結果についてまとめたものである。下記に主な研究成果を記す。

BiFeO_3 におけるテラヘルツ電磁波放射機能の創製に向けて、パルスレーザー堆積法により $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}$ 基板上に(00 \bar{l})配向した BiFeO_3 薄膜の作製に成功している。また BiFeO_3 の Fe 元素を一部 Mn 元素で置換する事によって、 BiFeO_3 の反強磁性的な磁気秩序を強磁性的に変化させる事にも成功している。

BiFeO_3 薄膜にフェムト秒レーザーパルスを照射する事で、この系特有の新規テラヘルツ電磁波放射機能を見出している。ゼロバイアス電界下においてメモリー効果を伴うテラヘルツ電磁波放射が観測される点、及びテラヘルツ電磁波放射強度のバイアス電界依存性が特異なヒステリシスカーブを示す点から、 BiFeO_3 薄膜の自発分極の形成する局所電界が光励起されたキャリアに作用する事でテラヘルツ電磁波が発生している事を明らかにしている。また種々のテラヘルツ電磁波放射特性を測定する事により、 BiFeO_3 において光励起によって自発分極の反転が促進されている効果（光アシスト分極反転効果）を見出している。さらに、慣習的な強誘電体特性評価システムでは、電気伝導度の大きな強誘電体の自発分極の有無は適切に判断出来ないが、本論文ではテラヘルツ電磁波放射が試料の電気伝導度の大きさに依存しない点に着目し、自発分極の有無を適切に判断するための新たな評価法として、テラヘルツ電磁波放射特性の測定が非常に有効である事を示している。

BiFeO_3 薄膜から放射されるテラヘルツ電磁波が自発分極の形成する局所電界を直接反映している性質を利用して、非破壊非接触で一度に大面積の測定が可能である新たな強誘電ドメイン観察法を考案している。実際このドメイン観察法のデモンストレーションを行い、 BiFeO_3 薄膜において、光アシスト分極反転効果が強誘電ドメイン構造の形成に大きな影響を及ぼしている事を明らかにしている。

以上のように、本論文は現在材料科学分野において、世界的にも最も注目されている物質群の一つであるマルチフェロイックスにおける新たな機能性や評価法の可能性を与えるもので、材料科学分野における進展に大きく貢献している。また次世代のマイクロ波フォトニクスの基盤を成すと考えられているテラヘルツ帯域における機能性を見出した事により、フォトニクス分野における進展にも大きく寄与していると思われる。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。