

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 高橋 圭

強相関電子を有する酸化物材料のスピネレクトロニクスへの応用の可能性が盛んに議論されている。本論文では、代表的な強磁性金属であるペロブスカイト型マンガン酸化物とルテニウム酸化物を対象として、 SrRuO_3 薄膜の基礎的物性、 $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 強磁性接合のトンネル磁気抵抗、 $\text{CaMnO}_3/\text{CaRuO}_3$ 人工格子の物性を明らかにすることを目的としている。

本論文は、4部で構成されており、第1部（1～6章）では本研究の背景としてペロブスカイト型ルテニウム酸化物の物性、異常ホール効果、磁気光学効果、強磁性トンネル接合、酸化物超格子及び界面物性、 $\text{CaMn}_{1-x}\text{Ru}_x\text{O}_3$ の物性、を概観し述べている。

第2部（7～11章）では実験方法について、薄膜及び超格子の合成、結晶構造解析、磁化測定、輸送測定、磁気光学測定、それぞれの方法を詳しく述べている。特に本研究の特色の一つである酸化物超格子の合成方法を、各層厚を原子レベルで制御する RHEED（反射高速電子線回折）の鏡面反射強度の振動を利用した方法を中心に、詳しく述べている。また、超格子の結晶構造解析方法について、本研究で用いた1次元ステップモデルの計算方法を述べており、本研究で作製した超格子の構造を解析する準備としている。

第3部では実験結果と考察を第12～14章の3章にわたり述べている。第12章では SrRuO_3 薄膜の物性について議論している。 SrTiO_3 (STO) (001)基板上に成長した SrRuO_3 薄膜の結晶構造についてX線回折で評価し、薄膜面内の格子定数がSTO基板の格子定数に一致して歪んだコヒーレント薄膜である事が明らかにされている。磁化特性から、7T以上の結晶磁気異方性を観察し、その起源がコヒーレント薄膜の結晶歪みによる結晶場の変化に伴うスピント軌道相互作用であると結論されている。異常ホール効果の温度依存性から、従来の理論では説明出来ない低温での大きな異常ホール効果を確認している。また、 $\text{MgO}(001)$ 基板上の歪みの無い SrRuO_3 薄膜の異常ホール効果の温度依存性との比較から、この系の異常ホール効果が格子歪みの大きな影響を受けることが明らかにされている。異常ホール効果の有限周波数版とも言える磁気光学効果については、広いエネルギー範囲と温度において、光学伝導度の非対角項スペクトルの特徴について議論している。

第13章では $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 強磁性トンネル接合について、トンネル磁気抵抗を詳しく測定した結果を述べ、 SrRuO_3 のスピント偏極率について議論している。電流電圧特性から、トンネル特性を示す接合の形成を確認し、トンネル磁気抵抗測定では、

SrRuO_3 と $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ の磁化方向が平行であるときの方が高い接合抵抗が出現することを再現性良く観測した。この正のトンネル磁気抵抗から、 SrRuO_3 のスピン偏極率はバンド計算等の予想と合致して、負であると結論している。これは、酸化物同士の強磁性トンネル接合で正の磁気抵抗を観察した初めての例である。

第 14 章では反強磁性絶縁体の CaMnO_3 と常磁性金属の CaRuO_3 との人工格子の物性を界面に注目して議論している。磁化測定、磁気輸送測定の結果から、 $\text{CaMnO}_3/\text{CaRuO}_3$ 界面は $T_c=95$ K の強磁性になることを明らかにしている。この強磁性は、界面で Mn に Ru から電子がドープされることによって CaMnO_3 層 2 unit cell 程度が弱強磁性になったためと解釈している。そして、負の磁気抵抗は、弱強磁性になった界面近くの CaMnO_3 を流れる電子のスピン散乱が、磁場によって抑制されたためと結論している。 $\text{CaMnO}_3/\text{CaRuO}_3$ 超格子の界面強磁性の発現は、他の酸化物同士の組み合わせの超格子への応用も考えられる、興味深い結果である。

第 4 部では、本研究で得られた成果をまとめて、総合的に議論し、今後の酸化物薄膜の電子機能研究に対する本研究成果の意義を述べている。

以上を要するに、本論文では SrRuO_3 薄膜の物性について異常ホール効果や磁気光学効果の異常な振る舞いについて詳細な測定結果を得た。 $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 強磁性トンネル接合において、正の磁気抵抗を見出し、 SrRuO_3 のスピン偏極率が負であることを示した。また $\text{CaMnO}_3/\text{CaRuO}_3$ 人工格子の合成に成功し、界面での電荷移動による界面強磁性を発見した。強相関電子系の磁気伝導特性の理解、界面における物性に関する重要な知見を得たという観点から、物性工学の進展に寄与するところが大きい。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。