

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 後藤 剛史

通常、分極は電場によって制御され、磁化は磁場によって制御される。誘電性と磁性を共に有する系では、分極を磁場で、磁化を電場で制御できる可能性があり、これは電気磁気効果と呼ばれる。この効果の巨大化は、固体中の磁気－電気現象の相互制御という固体物理学の基本問題としてだけでなく、磁化の電氣的制御を目指すスピントロニクスにおいても重要な課題である。本論文では、ペロブスカイト型マンガン酸化物 $R\text{MnO}_3$ (R は希土類元素)で観測される強誘電性が、Mn スピンの長周期秩序によって誘起されることを実証し、磁場による磁気構造変化を通じて、巨大電気磁気効果が発現することを観測した。本論文は6章と4つの附章からなる。

第1章では、研究背景として、電気磁気効果と本研究の舞台となるペロブスカイト型マンガン酸化物 $R\text{MnO}_3$ について説明している。

第2章では、実験に用いた試料の作製および加工の方法、磁化、誘電率、分極の測定方法、零磁場もしくは磁場下での放射光 X 線を用いた回折実験法、中性子回折実験と磁気構造解析の実験方法について述べている。

第3章から第5章にかけて、実験結果とそれに関する議論・考察が述べられている。

第3章では、 $R\text{MnO}_3$ における電気磁気効果の詳細を述べている。TbMnO₃, DyMnO₃ において、零磁場では c 軸方向に自発分極を持つが、a 軸または b 軸に磁場を印加すると c 軸の分極が消え、代わりに a 軸から分極が現れるという分極フロップ現象が見られた。特に、DyMnO₃ では相転移に伴う a 軸方向の誘電率の増加分が零磁場での誘電率に対して 500%もある巨大誘電応答を示すことを見出した。また、TbMnO₃ では c 軸に磁場を印加すると c 軸の分極の消失効果が観測された。この消失効果の原因は高磁場下で A 型反強磁性相に相転移によると同定された。その他、種々の $R\text{MnO}_3$ ($R=\text{Gd}, \text{Tb}_{1-x}\text{Gd}_x$) についても、相競合による巨大な電気磁気効果が出現することを明らかにした。

第4章では、中性子回折を用いての磁気構造解析結果、磁気変調と格子変調の関連、放射光 X 線回折による格子変調反射の観測結果を示し、考察している。整合周期 (3 倍周期) の磁気変調を持つ $\text{Tb}_{0.41}\text{Dy}_{0.59}\text{MnO}_3$ を準備し、この磁気構造解析から、共線－非共線スピン構造転移によって分極が発現していることを明らかにした。次に、放射光 X 線回折により Mn の磁気変調波数 q_{Mn} と格子変調波数 $q_{1\text{at}}$ の間に $q_{1\text{at}}=2q_{\text{Mn}}$ の関係があることを確立した。GdMnO₃, TbMnO₃, $\text{Tb}_{0.3}\text{Gd}_{0.7}\text{MnO}_3$ における a 軸方向に分極を持つ強誘電相 (P//a 相) で格子変調反射を測定したところ共通して $q_{1\text{at}}=1/2$ を示した。これらの P//a 相は磁場下での電気磁気相図で連続しており、同一の起源による強誘電相である可能性が高いことが示された。一方、DyMnO₃ における P//a 相では、P//c 相と格子変調波数が非整合のまま、ほとんど変化せずに、相転移することを観測した。このような揺らぎの大きい相転移が巨大誘電応答の原因となっていると指摘している。

第5章では第3章と第4章で述べた実験結果について、最新の理論をもとに総合的な議論を行っている。この系における分極は P//c または P//a であり、b 軸方向に変調を持つ長周期磁気秩序に

起因している。長周期磁気秩序に起因する分極発現機構は2つあり、一つは Inverse Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用 (Inverse-DM と略す) によるものである。これは、横スパイラル磁気構造が DM 相互作用を介して格子を歪ませ分極を生じさせるもので、変調波数によらないという特徴がある。もう一つは Inverse Goodenough-Kanamori 則 (Inverse-GK と略す) によるもので、反強軌道秩序を示す最近接サイト間では強磁性的相互作用が好まれることに起因するものである。これによって得られる分極は $P//a$ であり、変調波数も偶数倍周期の磁気構造のみに現れる。 $Tb_{0.41}Dy_{0.59}MnO_3$ における磁気構造解析によって明らかとなった共線-非共線転移に伴う $P//c$ の分極発現は Inverse-DM を支持する。また、現在知られている強誘電分極のうち、 $GdMnO_3$, $TbMnO_3$, $Tb_{0.3}Gd_{0.7}MnO_3$, $Eu_{0.7}Y_{0.3}MnO_3$ における $P//a$ は Inverse-GK の条件を満たしており、この可能性を考慮に入れる必要がある。第5章の後半では分極フロップの起源について推論を交えて、考察している。

第6章では、本研究で得られた成果をまとめている。

以上をまとめると、本論文ではペロブスカイト型マンガン酸化物 $RMnO_3$ における巨大電気磁気効果の詳細を示し、回折実験によってその機構を調べた。この系の分極は Mn スピンの長周期磁気秩序に起因しており、これの磁場変化が巨大電気磁気効果の原因となっていることを明らかにした。本論文の研究により、磁性強誘電体に対する理解が進展し、今後の磁性と誘電性の結合に関する科学と物性工学へ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。