

論文審査の結果の要旨

氏名 畑林 邦忠

Ti⁴⁺をBサイトとするペロブスカイト型酸化物 A²⁺Ti⁴⁺O₃ は数々の興味深い誘電物性を示すことが知られているが、中でも、大きな磁気モーメントを有する Eu²⁺をAサイトとする EuTiO₃ (ETO) は、外部磁場により誘電率が增大する磁気誘電効果を示し、磁性と誘電性との間に強い結合が存在する点で特異的である。本研究では、ETO エピタキシャル薄膜の磁性-誘電性結合に関して取り扱っている。

本論文は以下の6章より構成されている。

第1章は序論であり、本論文の背景および目的が述べられている。本論文で取り扱う EuTiO₃ (ETO) の諸物性を、典型的2価Eu化合物であるEuOおよび4価Ti化合物であるSrTiO₃との対比を通じて概観している。また、ETOの磁性、誘電性、およびそれらの間の結合(磁気誘電効果)が格子定数に対し多彩な応答を示すという、近年の第一原理計算による理論予測に触れている。格子定数を変調させるにはエピタキシャル薄膜が適しているが、従来のETO薄膜の研究は、主にバルク同様の磁気特性が得られるかどうかの主眼が置かれており、格子定数依存性や、特に誘電性に関する研究は、高品質エピタキシャル薄膜試料の作製の困難さゆえ、ほとんど報告例がないことを指摘している。

第2章は実験手法の説明である。薄膜作製方法であるパルスレーザー蒸着法、および薄膜結晶構造解析手法である反射高速電子線回折(RHEED)、X線回折(XRD)、原子間力顕微鏡(AFM)について、各測定手法の原理とそこから得られる情報について解説している。さらに、超伝導磁束量子干渉計(SQUID)による磁気物性測定法、およびLCRメータを用いた低温・磁場下における誘電物性測定法について詳説している。

第3章はSrTiO₃(001)単結晶基板上に作製したETO(001)薄膜のエピタキシャル成長に関して述べている。薄膜成長を支配するパラメータとして、基板温度(T_s)、酸素分圧(P_{O_2})、レーザー発振周波数(f)の3つに着目し、ETOの結晶成長相図を作製することで、ETOが比較的還元雰囲気でのみ成長することを明らかにしている。そして薄膜成長機構は T_s に依存し、高 T_s ではlayer-by-layer成長からstep-flow成長へと切り替わることを述べている。また、薄膜面内の格子定数($a = b$)は基板と完全にコヒーレントに成長している一方、レーザーフルーエンスを調整することで、面直方向の格子定数(c)を $1 \leq c/a \leq 1.021$ (c/a

は格子歪みの程度を表す) の範囲で系統的に変調させうることを示している。本研究で得られた ETO 薄膜は全て原子レベルの平坦性を有し、高品質であることを確認している。

第4章は第3章で得られた ETO エピタキシャル薄膜の磁性について述べている。 $1 \leq c/a \leq 1.021$ の範囲ではすべてネール温度 4.2-5.4K の反強磁性であるものの、 c/a が増大するにつれて反強磁性秩序が壊れて強磁性的秩序をとりやすくなることを示している。これは第一原理計算で予測された傾向と一致することを指摘している。さらに c/a が1からずれることで反強磁性スピン対が c 軸方向に向きやすくなることを新たに見出している。

第5章は ETO エピタキシャル薄膜の誘電性と磁気誘電効果について述べている。本研究以前の ETO 薄膜試料では報告されていない低温での誘電率の飽和(量子常誘電性)、および磁場印加による誘電率の増加(磁気誘電カップリング)の観測に初めて成功している。さらに、磁気誘電効果は c/a の増大とともに弱くなり、磁場印加方向に対して異方的な挙動を示すことを新たに見出している。この磁場印加方向に対する依存性は、従来の磁気誘電効果のメカニズムでは説明できないことから、スピン-フォノン結合定数が c/a 依存項とスピン対の方向依存項の積であらわされるような新しいモデルを提唱した。

第6章は結論と総括である。

以上のように、本研究は EuTiO_3 の磁性および誘電性が格子定数により変調できることを実験的に明らかにしており、磁気誘電効果に関しても、格子定数依存性を検証するとともに、これまで考えられていなかったスピン対の方向依存性を見出し、新たなモデルを提案するに至っている。これらの研究は理学の発展に大きく寄与する成果であり、博士(理学)に値する。なお本論文は複数の研究者との共同研究であるが、論文提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与は十分であると判断する。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。