

論文審査結果の要旨

氏名 ベルマ ビレンドラ クマール

本論文は7章から構成されている。第1章はイントロダクションであり、**spintronics** 材料として期待されている **multiferroic** 物質と希薄磁性半導体について、その研究背景が丁寧に説明されている。第2章では、本論文で用いられているX線吸収分光 (XAS) およびX線磁気円二色性 (XMCD) の原理について解説し、XMCDから元素選択的にスピンおよび軌道モーメントを求める **sum rule**、XASのクラスターモデル解析について説明している。第3章では、XASとXMCDを行った放射光施設のビームライン光学系と測定系を詳細に説明している。本論文の中心となる第4、5、6章では、それぞれ **BaTiO₃/NiFe₂O₄** の **multiferroic** 多層膜、希薄磁性半導体 **Cd_{1-x-y}Mn_xCr_yTe**、**multiferroic** 物質である **MnWO₄** について、XASとXMCDの測定結果と解析、そして電子状態に関する議論を展開している。

第4章の **BaTiO₃/NiFe₂O₄** 多層膜は、**BaTiO₃** の強誘電性と **NiFe₂O₄** のフェリ磁性が強く結合し、巨大な **multiferroic** 効果を示すことが知られている。**NiFe₂O₄** は逆スピネル構造を持ち、四面体サイトに **Fe**、八面体サイトに **Ni** と **Fe** があると予想される。まずはXMCD測定によって、多層膜試料においてもフェリ磁性相において八面体サイトの **Ni** スピンが八面体サイトの **Fe** スピンと **antiparallel**、四面体サイトの **Fe** スピンと **parallel** になっていることを実験的に証明した。次に、**NiFe₂O₄** 層を薄くして積層数を増やすとフェリ磁性相での **Ni** スピンの磁化が **Fe** スピンに比べて急激に減少することから、**BaTiO₃** と **NiFe₂O₄** の界面において **Ni** サイトの欠陥が原因となって磁化が減少していると結論した。一方、**NiFe₂O₄** 層を薄くして積層数を増やすことによって **NiFe₂O₄** の磁化と **BaTiO₃** の分極との結合が強くなることが知られており、界面での **Ni** に関係する欠陥が磁化を減少させる一方で **Fe-TiO₂** の結合が形成され **BaTiO₃** の分極による格子変形と **NiFe₂O₄** のスピン秩序との相互作用のもたらす、というモデルを提案した。

第5章の希薄磁性半導体 **Cd_{1-x-y}Mn_xCr_yTe** は、スピングラス的な **Cd_{1-x}Mn_xTe** に少量の **Cr** を導入することによって強磁性が誘起されることが知られている。**x=0.2** で **y=0, 0.01, 0.04** の3種の試料のXMCDを測定し、**Cr** 濃度が **y=0.04** の試料のみで強磁性となり、**Mn** と **Cr** のスピンの **parallel** になっていることを示した。さらに、磁化に寄与する **Mn** と **Cr** は両者ともに

$\text{Cd}_{0.76}\text{Mn}_{0.2}\text{Cr}_{0.04}\text{Te}$ あたり 0.004 個程度であることが判明した。Cr イオン 1 個あたり Mn イオン 1 個のスピンの強磁性的に揃うことを示しており、Mn と Cr の二重交換相互作用が重要であることが結論された。

第 6 章の MnWO_4 は、反転対称性を破る spiral spin 相において強誘電性が誘起される代表的な multiferroic 物質の一つである。まず、Mn 2p XAS 測定によって Mn^{2+} で八面体配位に近い結晶場を受けていることが解明された。さらに、XMCD を sum rule によって解析し、Mn のスピンモーメントと軌道モーメントが Mn イオンあたり 0.07 ± 0.01 および 0.004 ± 0.001 と見積もられた。八面体配位の Mn^{2+} では軌道角運動量は凍結されている筈であり、スピンモーメントの 5.7% もの軌道モーメントが観測されたことは MnWO_4 の電子状態の特異性を示している。Mn 2p XAS 形状を歪んだ MnO_6 八面体のクラスターモデル計算で解析することによって、 MnO_6 八面体の変形と W 5d 軌道との混成が重要な役割を果たしていると推論している。Mn サイトの大きな軌道モーメントの発見は MnWO_4 での multiferroic 効果の微視的機構の解明に貴重なヒントを与えるものである。

第 7 章で全体を総括している。近年、複数の磁性イオンを含む遷移金属化合物による spintronics 材料が増加している。本論文では、元素選択的にスピンおよび軌道モーメントの情報が得られる XMCD の特徴を活かして、 $\text{BaTiO}_3/\text{NiFe}_2\text{O}_4$ 多層膜における Ni と Fe、 $\text{Cd}_{1-x-y}\text{Mn}_x\text{Cr}_y\text{Te}$ における Mn と Cr、 MnWO_4 における Mn と W のスピンおよび軌道状態の相互作用を解明し、キャリアや電気分極とスピンとの相互作用の微視的な起源について独創性の高い研究が展開されている。

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研究を行い、その寄与は十分である。従って、博士（理学）の学位を授与できると認める。