

Title	赤外・ラマン散乱分光法を用いた複合層状化合物の研究
Author(s)	木曾田, 賢治
Citation	
Issue Date	
Text Version	ETD
URL	https://doi.org/10.11501/3132544
DOI	10.11501/3132544
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏 名	木 曾 田 賢 治
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 3 3 5 5 号
学 位 授 与 年 月 日	平 成 9 年 7 月 7 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学 位 論 文 名	赤外・ラマン散乱分光法を用いた複合層状化合物の研究
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 中 島 信 一 (副査) 教 授 岩 崎 裕 教 授 萩 行 正 憲

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、複合層状化合物 (MX) TX₂ (M : Sn, Pb, 希土類元素 ; T : 遷移金属 ; X : S, Se) と呼ばれる新しい層状物質の構造の安定性と物性を、MX 層から TX₂ 層への電荷移動を中心とした観点から分光学的測定によって理解することを目的とした研究をまとめたもので、7つの章から構成される。

第 1 章は序章で、複合層状化合物の構造や物性、本論文の構成や意義について述べている。

第 2 章では、複合層状化合物の物性を理解するために本化合物を構成する 2 種類の母体結晶 TX₂ 及び MX のこれまでの報告結果をまとめている。

第 3 章では、本研究に用いた複合層状化合物の作製方法、試料の評価方法とその結果、及び実験方法と実験結果の解析手法について述べている。試料の評価結果から、作製した試料が、組成・構造ともに設計したとおりであることを確認している。

第 4 章では、複合層状化合物の赤外反射スペクトルを測定している。その結果を Drude-Lorentz モデルを用いて解析し、電荷移動量を評価している。更に 2 価と 3 価の陽イオンを含む混晶を作製し、複合層状化合物における電荷移動量の制御を試みている。赤外反射スペクトルの解析から 3 価の陽イオンの割合の増加に伴い電荷移動量が単調に増加することを確かめ、2 価と 3 価の陽イオンの混晶の組成を変えることにより電荷移動量を制御できることを実証している。また電荷移動によって MX 層と TX₂ 層との間の層間相互作用が強くなっていることを明確にしている。

第 5 章は、種々の複合層状化合物のラマン散乱の結果から、電荷移動が複合層状化合物の層間相互作用や原子間力に及ぼす影響を考察している。電荷移動量が多い場合電気伝導等の測定では見出されなかった積層面内における異方性を TX₂ 層の偏光ラマンスペクトルの測定から観測している。また電荷移動量が多くなると層間相互作用が強くなり、MX 層と TX₂ 層の対称性が低下して異方性が現れると結論している。

第 6 章では、ラマン散乱スペクトルの温度変化の測定結果から電荷密度波相転移が抑制される原因を考察している。

第 7 章は結論であり、本研究で得られた成果を総括している。

論文審査の結果の要旨

層状化合物の中で複合層状化合物は新しい材料として注目されており、その物性を明らかにすることが望まれている。本研究では、複合層状化合物を対象として複合層状化合物の構造安定性、原子間結合力、層間結合力について、異なる層の間の電荷移動の観点から分光学的手法を用いて調べている。その主な成果を要約すると次の通りである。

(1) ホール効果等の電氣的測定に代わって、赤外反射スペクトルの測定と解析を行い複合層状化合物のキャリア密度を系統的に評価している。一様な厚さを持った大面積の試料が得難い複合層状化合物に対して、キャリア密度の評価の方法として赤外反射スペクトルを用いることが有効であることを明らかにしている。

(2) 2価と3価の陽イオンを含む複合層状化合物の混晶を作製し、赤外反射スペクトルの解析から、この物質群のキャリア密度、言い換えれば電荷移動量を異原子価イオンの組成を変えることによって制御できることを明らかにしている。

(3) 電荷移動量と積層方向の格子定数に1対1の対応があることを初めて明らかにし、2つの層の間の層間相互作用が電荷移動量の増加と共に増大することを実証している。電荷移動量のある程度連続的に変えた試料を用いて電荷移動量と層間相互作用の関連性を確かめている。

(4) 電氣的な測定からは見出されていなかった積層面内の異方性をラマン散乱の測定から見出している。面内の異方性は、電荷移動量と強い正の相関があり、電荷移動量に応じて2つの層の対称性が斜方晶的な対称性に低下したことを確かめている。

(5) 電荷移動量の多いステージ2の複合層状化合物において新たなフォノンバンドを見出している。このフォノンバンドの出現は、電荷移動によって誘起された内部電場及び原子再配列が結晶の対称性を低下させることに起因すると結論している。

(6) ラマン散乱の温度変化を測定することで、複合層状化合物における電荷密度波相転移の抑制原因を考察している。電荷移動量の多い複合層状化合物では、電気伝導層のフェルミ面の位置が電荷移動により状態密度の少ない位置に移動することでネスティング条件が変更を受けるために電荷密度波相転移が抑制されることを提案している。

以上のように、本論文は、複合層状化合物の物性に関して有用な知見を与えており、応用物理学、特に光物性工学に寄与するところが大きい。よって、本論文は、博士論文として価値あるものと認める。