



Title	Quantum Mechanical Induction of Magnetization : Photoinduced Magnetic Phase Transition and Impurity-induced Quantum Spin Properties
Author(s)	西野, 正理
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/41889
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏名	にし の まさ みち 西 野 正 理
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 1 5 1 6 7 号
学位授与年月日	平成12年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 理学研究科化学専攻
学位論文名	Quantum Mechanical Induction of Magnetization : Photoinduced Magnetic Phase Transition and Impurity-induced Quantum Spin Properties (量子効果による磁化誘起の機構：光誘起磁気相転移及び不純物により 誘起された量子スピン系の性質に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 山口 兆 (副査) 教授 笠井 俊夫 教授 宮下 精二

論 文 内 容 の 要 旨

近年、外場（光・磁場・電気化学ポテンシャル・熱）により電子状態を制御できる可能性を示す物質群が相次いで報告され、その学問的及び応用上の重要性から注目を集めている。プルシアンブルー錯体はその一つであり、特に光誘起磁気相転移のメカニズムは興味をもたれている。このような現象を理論的に解明するため、分子レベルでの電子状態やスピン間相互作用を第一原理計算から求める理論化学によるアプローチを行い、また、スピン間相互作用による分子集合体の協力現象によってマクロに現れる相転移現象を説明する統計力学的磁性体モデルによるアプローチも行った。前者のアプローチでは、このd-p共役系に対して、理論計算から見積もった有効交換積分値（ J 値）や相転移温度（ T ）を実験値と比べ、モデルや手法の妥当性を示し、大きな J 値（絶対値）やhigh T_c をしめす物質の特徴を捉えて理論的に説明することに成功した。一方後者のアプローチでは、一次相転移を示す典型的な磁性体モデルを採用し、準安定磁性秩序状態のダイナミクスの研究により、光誘起磁気相転移の一つのスイッチング機構を提案した。カー効果に見られるように、光照射中は系のパラメータが実効的に繰り込まれるという仮定の下で様々なパラメータについて磁化のダイナミクスを観察し、適切にパラメータを選ぶことにより実際の可逆的な磁化のスイッチングを示すことができた。更に、光励起による核生成や消滅の過程において、high spin 状態間の緩和速度とhigh spin と low spin 状態間の緩和速度の違いを考慮した機構を導入し、可逆的な磁化のスイッチングに相当する状態の変化を光の照射によって動的に実現した。

スピンの状態の制御に関しては、低次元磁性体での不純物に起因する物性発現や、ナノスケール磁性体のダイナミクスは大きなトピックスである。本研究では低次元性が本質的となる系に注目した。低次元系物質は常に物性理論に新しい話題を提供してきており、一次元有機金属共役系は種々の量子効果が期待される。また、近年の微細加工技術や合成技術の発展によりその解析が可能となってきたメソスコピック系の新しい現象には興味を持たれている。遷移金属を金属間結合により一次元に延ばして有機金属共役系を構成していったとき、結合には σ 、 π 、 δ 結合があり、電子相関の寄与の程度も異なるので多様な結合様式の可能性が考えられる。まず、これらの物質の化学結合や共役についての理解を深めるために、上記のd-p共役系に加えてd-d共役系に対する理論化学的研究を行った。まず、実在系の化合物のモデルを理論計算することにより、 σ 型のd-d共役による結合が形成される条件を解明した。これにより、測定により示された化合物の相違による結合距離の変化を説明することができる。また、仮想的な系の取り扱いにより σ 、 π 、 π_{\perp} 、 δ 共役と共役による結合の条件を考察した。更に、第一遷移金属と第二遷移金属の結

合不安定性の相違も解明した。

このような物質群において特異な物性を発現させる要因の一つに相互作用の不均一性がある。ここでは格子の空間構造を反映した強い量子ゆらぎの効果による現象を詳しく調べた。一次元の反強磁性鎖では、強い量子ゆらぎのために絶対ゼロ度においても均一系においては磁化が出現しない。しかし、これらの系に何らかの不均一性を導入すると、磁気構造が誘起される。ここでは、特に $S=1/2$ の様々な一次元格子での磁気秩序における量子効果を、量子モンテカルロ法、厳密対角化法などを用いて、基底状態の性質に加えて温度依存性を明らかにした。まず、これまで明らかにされていなかった open 均一系について、低温での磁気構造の有限サイズ効果（偶奇性による相違）を明らかにした。次に、ボンドによる不純物効果を扱った。均一系にボンドによる不純物を入れた場合には、温度領域によってその不純物ボンドを境にして異なるバルクの性質が現れるが、それは不純物ボンドの強弱にも依存することを明らかにした。そしてこれらの不純物ボンド間には引力的相互作用が働くことも見いだした。また、ボンド交替系では、不純物ボンド（交替欠陥）により局所的に磁気構造が誘起され、その局所構造は一つのスピンのように見なすことができ、それが独立に振る舞うという描像があてはまることが分かった。この場合も不純物ボンド間には引力的な相互作用が働くことも明らかにした。更に、この局所的な磁気構造のダイナミクスについて考察した。均一磁場下では局所磁気構造と一つの自由スピンのダイナミクスに相違はない。しかし、各サイトに独立にかかるノイズを含む磁場を掃引したときは、それぞれの遷移確率は異なり磁化の応答に差のあることが明らかになった。これらの研究に必要な新しい量子モンテカルロ法のアルゴリズムの開発もあわせて行った。

論文審査の結果の要旨

西野正理君は、外場による電子・スピン状態の制御で注目されている光誘起磁気相転移現象に関して、実験で報告されているプルシアンブルー系列の有効交換積分値や磁気転移温度を分子レベルの第一原理計算から見積もり、手法やクラスターモデルの妥当性を示した。更に、統計力学的磁性体モデルを構築し、準安定性を詳しく調べて、磁化のスイッチングダイナミクスの研究を行った。そして、その成果からスイッチング現象の妥当なメカニズムの提案を行った。また、低次元磁性体における不純物に起因する磁化発現において、特に有限サイズ効果と温度依存性を明らかにした。更に、不純物誘起磁気構造のダイナミクスにおいては、マイクロ・ナノスケールの磁性体の制御につながる詳細な研究を行った。

以上のように同君の研究は、スピン状態の制御に関する基礎研究に貢献し、博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。