

Title	Magnetism of alkali metal clusters in pressure- doped zeolites
Author(s)	Nguyen, HoangNam
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48754
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

[33]

氏 名 博士の専攻分野の名称 士(理 学) 位 記 2 1 7 4 8 묶 平成 20 年 3 月 25 日 学位授与年 月 日 学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当 理学研究科物理学専攻 Magnetism of alkali metal clusters in pressure-doped zeolites 位 文 名 (圧入法によるゼオライト中のアルカリ金属クラスターの磁性) 文 審 查 委 (主査) 授 野末 泰夫 (副査) 教 授 大貫 惇睦 田島 節子 授 萩原 政幸 教 授 杉山 准教授 清寛

論 文 内 容 の 要 旨

Magnetic orderings were observed in alkali-metal clusters stabilized in the nanoporous crystals of aluminosilicate zeolites, although bulk alkali-metals are nonmagnetic. Zeolite is crystalline and has regularly arrayed nanospaces with the well-defined size and alkali-metal clusters are formed in those nanospaces by adsorbing guest alkali metal atoms into zeolite. Mutual interaction between arrayed clusters can lead to macroscopic phenomena, such as magnetic ordering. Magnetic properties of alkali-metal clusters in zeolites were found to vary with changing the loading density of guest alkali metal, namely the average number of guest alkali metal atoms per cluster. The loading density of guest alkali metal, n, can be widely controlled by gas phase adsorption of alkali metals. However, n has the maximum limit at ambient pressure. In this study, we have developed the novel technique of pressure-doping in order to increase n more than the maximum value at ambient pressure. Magnetic properties of various alkali metal clusters in pressure-doped zeolites were investigated.

At doping pressure of 700-1000 MPa, new ferromagnetic phase was observed in K clusters in pressure-doped zeolite Low Silica X (LSX) with the FAU-type structure. Curie temperature and Weiss temperature have the maximum value of 13 K and 9.3 K at 910 MPa, respectively. The positive value of $T_{\rm W}$ clearly indicates the existence of ferromagnetic interaction, probably between supercase clusters. This is very different from other ferromagnetisms found in alkali-metal clusters in zeolites, where the antiferromagnetic interaction plays an important role in the magnetic ordering. Furthermore, an itinerant electron ferromagnetism is anticipated for this ferromagnetism because the metallic state was confirmed at ambient pressure. The estimated loading density n of guest K under pressure reaches around 1 and 2 atoms per supercage at the doping pressures of 700 and 1000 MPa, respectively. The possible electronic models of the new ferromagnetic phase are discussed.

The pressure-doping technique was also applied to K and Rb clusters in zeolite A and Na-K clusters in zeolite LSX. The magnetic properties of those alkali-metal clusters are reported in this thesis.

論文審査の結果の要旨

ゼオライト中のアルカリ金属クラスターはs電子系でありながら、細孔内に形成されるクラスターの平均s電子数に依存した様々な強相関電子物性が表れる。この系では、他に類を見ない電子ドーピング数の大幅な制御を行うことができるため、種々の物性のダイナミックな変化が観測される。もし、このs電子数の上限を更に増やすことができれば、新たな物性が観測されると期待される。

Nguyen Hoang Nam 氏は、電子ドーピング数を増大させる方法として期待されるアルカリ金属の圧入法を推進し、様々な試行錯誤の末、その方法を確立した。この方法を、単純立方構造で細孔が配列したゼオライト A のカリウムクラスターに適用した。この系ではs 電子数が細孔当たり2 個を超えると突然強磁性が観測され、最大7.2 個の常圧での飽和吸蔵で強磁性は消失し、常磁性が観測される。カリウム金属の圧入の結果、常磁性の磁気モーメントは消失した。これは、圧入が進んだ結果、8 個のs 電子を含むことにより全てのカリウムクラスターの1p 準位が閉殻構造を形成したものと解釈した。また、細孔がダイヤモンド構造で配列したゼオライト LSX 中のカリウムクラスターでは、金属カリウムを常圧で飽和吸蔵させるとフェリ磁性と考えられる自発磁化が観測される。この系にカリウム金属を圧入したところ、その自発磁化を伴う磁性は消失し、さらに700-1000 MPa の範囲では、新たな強磁性が突然現れることを発見した。しかも、そのワイス温度はキュリー温度に近く正の値を示すことから、ほぼ純粋な強磁性であると考えられる。この系は遍歴電子系であると考えられ、s 電子系での遍歴電子強磁性が見いだされたことになる。これらの結果と考察をまとめて論文 Magnetism of alkali metal clusters in pressure-doped zeolites (圧入法によるゼオライト中のアルカリ金属クラスターの磁性)を提出した。

以上の研究によってゼオライト中のアルカリ金属クラスターの圧入法による新しい研究領域が開拓され、また、その成果は物性研究の発展に大きな意義をもつ。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として十分価値あるものと認める。