

Title	Multi-frequency and high magnetic field electron spin resonance in the quantum spin system Ni(C ₅ H ₁₄ N ₂) ₂ N ₃ (PF ₆) and the diluted magnetic semiconductor GaN : Fe.
Author(s)	柏木, 隆成
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48797
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。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏名	かしわぎ たか なり 柏 木 隆 成
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	第 2 1 7 5 1 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 20 年 3 月 25 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
学 位 論 文 名	Multi-frequency and high magnetic field electron spin resonance in the quantum spin system $\text{Ni}(\text{C}_5\text{H}_{14}\text{N}_2)_2\text{N}_3(\text{PF}_6)$ and the diluted magnetic semiconductor $\text{GaN}:\text{Fe}$. (強磁場・多周波電子スピン共鳴法を用いた量子スピン系 $\text{Ni}(\text{C}_5\text{H}_{14}\text{N}_2)_2\text{N}_3(\text{PF}_6)$ 、及び希薄磁性半導体 $\text{GaN}:\text{Fe}$ に関する研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 萩原 政幸 (副査) 教 授 大貫 惇睦 教 授 野末 泰夫 教 授 田島 節子 准教授 杉山 清寛

論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、(1)擬一次元反強磁性体、及び(2)遷移金属イオンをドーブした半導体薄膜といった二つの異なる物質に関して強磁場・多周波電子スピン共鳴 (ESR) 法を用いてその電子物性を詳細に調べた。

(1)量子スピン数 (S) が小さくある特定方向のみの相互作用が強い (一次元または二次元) 反強磁性体は、量子スピン系物質と呼ばれここ数十年間にわたり盛んに研究が行われている。そして近年では、スピングャップ物質と呼ばれる基底状態と第一励起状態の間にエネルギーギャップを有する物質の磁場誘起相での物性に特に興味を持たれている。スピングャップ系物質の基底状態は一重項状態であり第一励起状態は三重項状態である。ここに磁場を作用させると三重項の一つのエネルギーブランチが磁場と共に下がり、ある磁場 H_c で基底状態の一重項状態と交わる。この点が量子臨界点に対応し、この H_c 以上を磁場誘起相と呼んでいる。

本研究では、スピングャップ物質の一つである NDMAP (化学式: $\text{Ni}(\text{C}_5\text{H}_{14}\text{N}_2)_2\text{N}_3\text{PF}_6$) と呼ばれる $S=1$ 擬一次元ハイゼンベルグ反強磁性体について、まだ知見が多くない磁場誘起相における物性を調べるために、磁気励起の角度依存性及び周波数依存性を詳細に調べた。その結果 H_c 近傍の角度依存性では、場の理論を用いた計算により比較的良く説明できることが分かった。一方 H_c に比べ十分高い磁場領域では古典的な反強磁性共鳴 (AFMR) モードにより磁気励起の振舞を良く説明できることが分かった。これは磁気励起の様子が量子的なゆらぎを大きく受けている状態から、磁場によって量子ゆらぎが抑えられることで古典スピンの近い状態へ移っていくことを反映した結果であると考えている。

(2)遷移金属イオンをドーブした III-V 族半導体の研究は、室温強磁性体や次世代デバイスへの利用といった観点から近年盛んに研究が行われている。例えば、窒化ガリウム (GaN) に Mn をドーブした半導体では室温を上まわる強磁性転移温度を示すことが理論・実験の両面から示されている。また、 GaN は GaAs に変わる次世代の高周波・高出力デバイス素子として近年研究が盛んに進められている。本研究では、今後開発が進むであろう GaN デバイスを製作する上で欠かせない高結晶性を有する高抵抗 GaN 基板に関して研究を行った。

高結晶性の GaN 基板は鉄をドーピングすることで高抵抗化されており、このドーピングした鉄の電子状態に関して ESR 法を用いて詳細に調べた。具体的には、X-band (10 GHz 帯) 及び Q-band (35 GHz 帯) の二つの周波数帯の ESR 装置を用いて ESR 信号の角度依存性及び温度依存性を測定した。そして得られた結果について異方性を考慮したスピンハミルトニアンを用いて解析を行い、鉄の電子状態を反映する幾つかのパラメーターを詳細に決定した。その結果ドーピングした鉄は Ga サイトを 3 価 (Fe^{3+} , $S=5/2$) の状態で置換していることが明確に確かめられた。またこれまで報告されていた同様な物質の g 値に比べ本研究で得られた g 値は自由電子の g 値に近い値になっており、これは本研究で調べた基板の結晶性の良質性を反映した結果であると考えられる。

論文審査の結果の要旨

60 テスラまでの超強磁場、10 GHz から 2 THz の周波数帯という大変広い周波数-磁場範囲で測定が可能な極限量子科学研究センターの強磁場多周波数電子スピン共鳴 (ESR) 装置を用いて(1)量子効果が顕著な擬一次元反強磁性体と(2)機能性材料としても注目を集める希薄磁性半導体の研究を行った。

(1)に関してはスピン量子数 1 の一次元ハイゼンベルグ型反強磁性体とみなせるニッケルの鎖状化合物 $\text{Ni}(\text{C}_5\text{H}_{14}\text{N}_2)_2\text{N}_3\text{PF}_6$ (略して NDMAP) の主に磁場誘起相の磁気励起に関して詳細な研究を行った。この磁性体は 1983 年のアメリカの Haldane による場の理論を用いた予想 (ハルデン予想) で主に 80 年代後半から 90 年代前半に精力的な研究が行われた。零磁場でシングレット基底状態と有限のエネルギーギャップの上にトリプレット励起状態をもつことがこれまでの研究で明らかになっていた。この状態に磁場を印加するとトリプレットがゼーマン分裂をしてある磁場 (臨界磁場 H_c) でそのエネルギーギャップが閉じ磁場誘起の新たな相に転移するが、これまでの磁気励起の研究は主に H_c 以下の磁場で行われていた。理由は磁場誘起相の研究を行える適当な化合物が 2000 年近くまで合成されていなかったことと磁場誘起相の理論研究が進んでいなかったことによる。NDMAP は H_c でエネルギーギャップが閉じ、 H_c 以上の磁場で低温で磁気秩序が観測されており磁場誘起相の研究に適している。そこで H_c 以上の磁場中での磁気励起の角度依存性の測定を開発した ESR クライオスタットで行い、現象論的場の理論により計算された励起モードとの比較を行った。 H_c 近傍では実験と理論の一致が大変良いことがわかったが、高磁場ではずれが大きくなった。そのためより高磁場までの測定を行ったところ、およそ 15 テスラを境に磁気励起が変わり、15 テスラ以上では常磁性共鳴モードに漸近するモードと磁場に対して周波数変化の少ない励起モードに移行するシグナルが観測された。この高磁場の共鳴モードを古典的な容易面型反強磁性共鳴モードで解析し良い一致をみた。このことから、この物質では H_c 近傍の量子揺らぎの大きな領域を反映した共鳴モードから磁場により揺らぎが抑えられて古典的反強磁性共鳴で説明できるモードに移り変わるという面白い結果が得られた。

(2)に関しては III-V 族半導体である窒化ガリウム GaN に鉄イオンをわずかにドーピングした試料の ESR 測定を行った。GaN は青色発光ダイオードや室温強磁性の発現などで現在最も関心を持たれている半導体の一つであるが、高周波高出力デバイスとしても興味をもたれている。この研究では高抵抗自立基板である GaN : Fe の鉄イオンの電子状態に関して知見を得るために X-band と Q-band の二つの周波数帯で角度変化と温度変化を詳細に行った。三価の鉄イオンがガリウムと置き換わったとしてローカルなサイトの対称性を考慮したスピンハミルトニアンを解いてエネルギー準位を求め、実験との比較を行うことにより g 値や異方性パラメーターを決定した。その結果、ESR 共鳴磁場の角度変化、温度変化をすべて大変良く説明できた。また、今回の測定で得られた g 値及びシグナル波形から本研究で用いた GaN : Fe 基板の品質を過去に報告された GaN : Fe 基板におけるそれらと比較考察し、本研究の試料が良質である根拠を得た。

よって、上記二つの研究により本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値あるものと認める。