

論文審査の結果の要旨

氏名 圓谷 志郎

本論文は7章からなる。第1章は序論であり、本論文の主題である「炭素系室温強磁性体の物質設計および評価」についての研究の意義が述べられている。また、第2章では本論文で着目した炭素系物質について、グラファイト系・フラレン系の物質を中心にその背景となるこれまで行われてきた様々な磁気的特性に関する研究について述べている。

第3章では、本研究で用いられた実験手法の原理について述べており、各手法によって得られる情報などについて、その基になる理論とともに述べている。また、第3章では、本研究で実際に測定などをを行う際の詳細な実験手順・条件や、用いた装置の特徴などについても述べている。

第4章では、表面磁気光学効果(SMOKE)測定装置の製作について述べており、SMOKEの原理や本研究で採用した測定手法である光学遅延変調法の原理および詳細な測定方法・条件について述べている。本研究において製作したSMOKE測定装置は薄膜成長チェンバーおよび電子分光測定チェンバーと接続されており、全ての測定を超高真空中で行うことが可能となった。従って、高感度化測定に加えて磁性不純物の影響をほぼ排除した評価・分析が可能となった。

第5章では、グラファイト構造におけるエッジ(端)由来の電子状態「エッジ状態」と磁性との相関について述べている。本研究ではPt(111)基板上にベンゼンガスを前駆体として化学気相成長法(CVD法)によりグラファイトグレインを作製した。ベンゼンガスの曝露量および基板温度を調整することによって、グレインの粒径を制御する方法を確立した。また、紫外光電子分光(UPS)、偏光依存性C原子K-edge吸終端近傍X線吸収微細構造(NEXAFS)およびSMOKE測定を組み合わせることによって、ナノメータスケールのグラファイトグレイン(ナノグラファイト)においてのみエッジ状態および磁気的挙動が発現することが明らかになった。このように、エッジ状態と磁性との相関を実験的に初めて明らかにすることに成功した。

第6章では、水素化 C_{60} (ハイドロフラレン)単結晶薄膜の作製およびその詳細な結晶構造・電子状態・磁性を反射高速電子線回折(RHEED)、エネルギー損失吸終端微細構造(ELNES)、UPS、SMOKEによって調べた結果について述べている。Cu(111)基板上に C_{60} 単結晶薄膜をエピタキシャル成長させた後、原子状水素を曝露することによってハイドロフラレン単結晶薄膜を作製した。測定した占有・非占有軌道の電子状態と分子軌道計算

との結果から、 $T\text{-C}_{60}\text{H}_{36}$ の形成が明らかになった。さらに詳細なRHEED解析により、作製した薄膜は $T\text{-C}_{60}\text{H}_{36}$ バルク結晶では報告されていない準安定構造であることが明らかになった。また、SMOKE測定から、作製した薄膜のほぼ5割において強磁的な挙動が室温以上においても得られた。本研究ではこれまで必要とされてきた高圧・高温等による試料作製方法を用いることなく強磁的な挙動を観察することに成功した。また、詳細な電子状態の観測により結晶構造のみならず分子構造についての知見を得ることが出来た。

第7章では、 C_{60} 単結晶薄膜に酸素雰囲気中で光照射したときの構造・電子状態の変化および磁気状態について調べた結果について述べている。本研究ではレーザ光照射直後においてのみ現れる特異な強磁的挙動が観察された。X線光電子分光(XPS), UPS, RHEEDの測定から、酸素雰囲気中の光照射によって、 C_{60} 単結晶薄膜は基本的な結晶構造を留めたまま C_{60} ケージの破壊および C_{60} 分子の重合などによるsp³の混在状態を生じることを示唆する結果が得られ、これらのフラレンケージの破壊・重合の磁性への寄与を明らかにすることが出来た。

以上述べたように、本論文では、表面科学的手法・薄膜作製技術により制御された炭素系磁性薄膜を作製しその構造・電子状態・磁性を探索することにより、炭素系物質の磁性の起源を明らかにした。これらの結果は、炭素系物質が固有の磁気状態を有している事を示唆するものであり、炭素磁性という新たな学術分野の創成に寄与し得る。

なお、本論文のうち第4-7章は、斎木幸一朗氏、木口学氏、吉川元起氏、池田進氏、中井郁代氏、近藤寛氏、太田俊明氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、解析、考察を行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。したがって、博士(科学)の学位を受けるのに十分な資格を有すると認める。