

論文審査の結果の要旨

氏名 宮原 慎

隣接するスピン間に反強磁性相互作用を有する磁性体では、低温で、隣接スピンが交互に反平行に並んだ、ネール状態と呼ばれる秩序状態が出現する。スピンを矢印で表せるような微小磁石と見なす、磁性体に対する古典的な描像から直ちに導かれるものだが、隣接する二つのスピンだけを取り出すと、スピン演算子の量子性から、合成スピンがゼロのスピン一重項状態をとる。通常の三次元反強磁性体では、他の隣接スピンからの相互作用効果が強いため一重項が壊され、古典的なネール状態が安定となる。一方、低次元非磁性スピンギャップ系と分類される磁性体では隣接スピンからの影響が弱く、各スピン対は一重項を保ったまま、系全体としては一重項で敷き詰められた状態が出現する。このような系ではスピンの量子性を直接反映して、古典的描像からは予想もつかない新奇な磁性現象が見られ、銅酸化物高温超伝導の解明とも関連して、近年多くの研究が集中している。

本提出論文の対象である $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ (以下 SCBO と略記) は、三次元反強磁性体でありながら最隣接磁性原子 Cu がダイマーを構成し、それらが互いに直交しているという特徴的な空間的配置からダイマーに生じた一重項間の相互作用が相殺し、基底状態として量子的なスピンギャップ状態が出現している。本論文提出者宮原慎は、実験結果に対する洞察からこの特徴を見出し、「直交ダイマー・ハイゼンベルグ模型」に基づく理論を構築して SCBO 固有の磁性現象の解明を行った。

本論文は6章からなり、序章に続く第2章では、まず、SCBO に対する磁化率、比熱、各種スペクトロスコーピーによる励起状態解析、磁化曲線などの実験結果がまとめられている。第3章で直交ダイマー・ハイゼンベルグ模型が提起されている。そのハミルトニアンは、ダイマーを構成するスピン間の反強磁性相互作用 (大きさ J) と隣接直交ダイマーに属するスピン間の反強磁性相互作用 (J') からなる。空間二次元の場合、この模型は Shastry-Sutherland 模型と呼ばれ、その基底状態は $J \gg J'$ の極限で非磁性スピンギャップ状態、 $J \ll J'$ の極限ではネール状態となることが知られていたが、本論文では、数値的厳密対角化法により、二つの状態間の量子相転移が $J'/J = 0.69(1)$ で起こることを検証している。さらに三次元物質としての SCBO は面間のダイマー間相互作用も相殺し、スピンギャップ状態を直接反映する低温での磁性については二次元系に対する解析結果がほぼそのまま当てはまることが論じられている。

第4章はスピンギャップ基底状態からの励起状態の解析に当てられている。特に、一重項からの励起状態である三重項状態の局在性が強いこと (J' 項を摂動としたときその6次の過程から初めてホッピングが生じる)、ただし、励起された二つの三重項が束縛状態に

ある場合は J' の 2 次摂動で協調的なホッピングが生じることが導かれている。それらの結果を用いて磁化率や比熱の熱力学量および励起スペクトルを算出し、 J と J' 、さらにスピニングギャップより高温側の熱力学量を決めるために必要な面間の相互作用 J'' を合わせた三つのパラメータを適切に定めることにより、SCBO の基底状態は量子相転移点からわずかにスピニングギャップ相側に入った状態にあること、また、その多くの実験結果が定量的にもよく説明できることが示されている。

SBCO の磁化過程が第 5 章のテーマである。磁場は一重項を壊し三重項を生成させるが、本論文では、上述の三重項の局在性と局在した三重項間の強い斥力相互作用から磁化曲線に平坦部 (プラトー) が出現するとの提起がされている。その詳細を数値的厳密対角化法で解析するとともに、その磁化曲線の振る舞いが、三重項の集まりを異方的相互作用のある剛体球ボゾン系と見なすことで説明できること、すなわち、飽和磁化の $1/8$, $1/4$, $1/3$, $1/2$ 等の値に現れる磁化プラトーは、ボゾン (三重項) のそれぞれある周期的空間配置に対応していることが論じられている。最終章は研究成果のまとめに当てられている。

以上に述べた本論文の研究成果は、 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の特異な磁性が直交ダイマー系に固有な量子揺らぎに起因することを数値的手法も併用して理論的に検証したものである。本研究で得られた多くの新たな知見が当該分野の研究進展に果たした貢献は十分なものがああり、学位論文として高く評価される。

なお、本論文第 3, 5 章は上田和夫との、また、第 4 章は上田和夫・戸塚圭介との共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、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 (理学) の学位を授与できると認める。