

論文審査の結果の要旨

氏名 竹谷 純一

竹谷純一氏提出の本論文には、無機化合物としては初めてスピン・パイエルス転移が発見された CuGeO_3 およびこの物質の Cu を少量の Mg で置換した系について、熱伝導率の詳細な測定結果、およびそれに基づいてこの物質の様々な相（一様常磁性相、スピン・パイエルス相、磁場誘起不整合相、不純物誘起反強磁性相）におけるスピン励起の輸送現象を考察した結果が述べられている。擬 1 次元量子スピン系 CuGeO_3 は、良質な大型単結晶育成や制御された元素置換が可能であるという特徴によって、近年集中的な研究の対象となっており、スピン・パイエルス状態の微視的理解に貢献したのみならず、不純物によって反強磁性長距離秩序が誘起されるという新しい現象の発見を導いた。量子スピン系のこれまでの研究においては、比熱や磁化などの静的性質や、中性子散乱や磁気共鳴などの動的相関関数の測定が主として行なわれ、熱伝導率のような輸送係数の測定はほとんど例がなかった。竹谷氏の本研究は、低次元量子スピン系において熱伝導率の測定が低エネルギー励起の動的な振舞を理解する上で有用であることを示したもので、この点がまず高く評価される。

本論文は 7 章よりなる。第 1 章では擬 1 次元スピン系における熱伝導率測定の意義と本研究の動機が述べられ、第 2 章では CuGeO_3 のこれまで知られている性質がまとめられ、第 3 章では熱伝導率の測定法と解析法の概要が述べられている。

続く 3 章は本論文の主要な部分である。まず第 4 章では意図的な不純物を含まない CuGeO_3 のスピン鎖方向の熱伝導率を、1.5K から 40K までの温度範囲、16 テスラまでの磁場範囲で測定した結果が示されている。ゼロ磁場ではスピン・パイエルス転移温度 (T_{SP}) 以下で熱伝導率の急激な減少が観測され、一様常磁性相においてスピン励起の熱伝導への寄与が大きいことが示唆された。スピン 1 重項状態が実現している T_{SP} より充分低温において熱伝導率のピークが観測されたが、これはフォノンがスピン励起によって散乱される確率が低温で小さくなるためと解釈される。このことは磁場中でスピン励起密度が増すと、ピークが弱められることによって裏付けられる。更に磁場を上げて不整合相に入ると熱伝導率は不連続に減少する。これは不整合相のソリトン構造に伴うドメイン壁によってフォノンが散乱されたためと解釈される。このように、純粋な CuGeO_3 における熱伝導率の結果はいずれも自然な定性的解釈が可能である。

第 5 章では Cu を最大 4% まで非磁性の Mg で置換した試料についての測定結果が述べられている。この結果はスピン・パイエルス物質の不純物効果について新たな知見を加えると共に、上記の純粋な CuGeO_3 に対する理解をより定量的に裏付けるのに役だった。 Mg 置換は陽イオンの価数を変えずにスピン欠損を導入する、即ちスピン鎖を切り離す効果があるが、極めて微量の置換によって反強磁性の長距離秩序が発生することが発見され近年多くの研究が行われている。本研究ではまず、 T_{SP} より高温の熱伝導率および T_{SP} 以下のピークが、 Mg 置換によって最初大きく減少し、次いで 3% を超えると置換量にほとんど依存しなくなることが見出された。置換量の大き

い試料の熱伝導はフォノンによると考えられるので、これを差し引くことにより、純粋な CuGeO_3 のスピン励起による熱伝導率を評価することが可能になった。その結果、第 4 章で述べた一様常磁性相での熱伝導率に対するスピン励起の大きな寄与が実証され、更に平均自由行程が格子間隔の 500 倍にも及ぶことが見出された。このスピン励起による熱伝導率は約 15K 以下で減少し、この現象は磁場や置換量にあまり依存しない。この温度は純粋な CuGeO_3 のゼロ磁場における T_{SP} に一致するが、この結果は Mg 置換や磁場によって T_{SP} が減少しても、局所的なスピン擬ギャップが一定温度以下で生じていることを示唆している。更に、Mg 置換によって生じた低温反強磁性相において純粋な CuGeO_3 より大きな熱伝導率が観測され、スピン波による寄与と考えられた。試料の形状依存性を調べることにより、スピン波の平均自由行程が試料の境界で決まっていることを確認し、更に比熱の結果を援用して、スピン波の速度を評価することが出来た。その結果スピン波の分散幅はスピン・パイエルスギャップよりはるかに小さく、理論の予測とコンシステントであることが分かった。

第 6 章では、 CuGeO_3 に対する参照物質としてスピン・パイエルス転移を示さない単純なスピン 1/2 のハイゼンベルグ鎖である $\text{BaCu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ を選び、スピン鎖方向とそれに垂直な方向の熱伝導率を測ることによって、フォノンとスピン励起の寄与を分離した。スピン励起による熱伝導率は CuGeO_3 と同程度の大きな値を示し、格子間隔の数百倍に及ぶ平均自由行程をもったコヒーレントなスピン輸送現象が擬 1 次元スピン系のギャップがない状態における普遍的な性質であることが示唆された。第 7 章には全体の要約が述べられている。

本研究は、熱伝導率の測定が量子スピン系における素励起の動的振舞の理解に有用であることを実証し、巧みな実験条件の設定と注意深い解析により、熱伝導率と比熱というバルクな測定結果からスピン・パイエルス系の様々な相におけるスピン励起の輸送特性を明らかにしたもので、中性子散乱などによるスピン・ダイナミクスの測定と相補的な意味で重要な成果であるといえる。本論文の成果について審議した結果、審査員全員一致で本研究が博士（理学）の学位論文として合格であると判定した。なお本研究は内野倉國光、益田隆嗣、安藤陽一、塚田一郎、田中功、A. Kapitulnik, S. G. Doettinger, R. S. Feigelson, D. L. Sisson 諸氏との共同研究の部分を含むが、上に述べられた成果の主要部分について論文提出者が主たる寄与をなしたものであることが認められた。