

審査の結果の要旨

論文提出者 竹端 寛治

本論文は、“遠赤外分光法を用いた強磁場下におけるスピニバイエルス物質 CuGeO_3 の研究”と題し、スピニバイエルス物質 CuGeO_3 の二量体化相(D 相)から不整合相(IC 相)にかけての強磁場下における遠赤外分光測定や磁歪測定を中心とした物性測定に関する研究をまとめたものである。

表題中の CuGeO_3 において 1993 年に無機物質では初めてスピニバイエルス転移が発見された。この物質は従来の有機物スピニバイエルス物質とは異なり、比較的容易に数センチメートル程度の良質の単結晶試料が生成されることや、Ge サイトを Si 原子、Cu サイトを Zn, Mn, Mg 等の不純物原子で置換することが出来ることなどから、擬一次元 $S=1/2$ 反強磁性量子スピン系に対する興味を一新する良いモデル物質として精力的に研究が行われ、特に中性子散乱実験による詳細なスピン励起の解明や不純物置換効果が与える影響など重要な知見が得られた。また、それまでのスピニバイエルス物質では十分な研究が行われていなかった IC 相に関して、この物質の発見により強磁場下における中性子散乱実験などの様々な研究が行われ、解明が飛躍的に進んだ。しかしながら、この物質はスピニバイエルス転移発見当初から精力的に探索が行われたのにも関わらずスピニバイエルス転移を引き起こしているスピン-フォノン結合モードの解明が十分ではなかった。本研究はこれらの背景を受け、この物質におけるスピンとフォノン間の相互作用のメカニズムの解明のためスピン-フォノン結合モードの発見を目的とし詳細な遠赤外分光測定を行った。同時に新たな折返しフォノンモードや磁氣的励起の発見を目指した。また、それらのモードの D 相から IC 相にかけての挙動を調べるため強磁場下における遠赤外測定を行った。更に、スピニバイエルス転移に伴い導入される自発歪みの D 相から IC 相にかけての変化を調べるため強磁場下における磁歪測定も行った。

論文は 5 章から成る。

第一章は“序論”であり、これまでのに関する研究経緯、および本研究の目的が述べられている。

第二章は“実験方法”と題し、本研究で行った強磁場下における遠赤外分光測定や磁歪測定に関する詳細が述べられている。

第三章は“強磁場遠赤外分光測定の結果と考察”と題し、この物質の D 相から IC 相にかけての強磁場下における遠赤外分光測定に関する実験結果、およびその考察が述べられている。まず、本研究により 98 cm^{-1} に折返しフォノンモードが発見され、このモードの特異な振る舞いを解析した結果、このモードはスピンフォノン結合モードであることが明らかにされた。このモードの特異な振る舞いとは、即ち、IC 相において特異な分裂を示し、分裂幅は IC 相における不整合性の大きさに比例したことであり、このモードにおいて初めて発見された。スピンフォノン結合モードはスピニバイエルス転移と密接に関連する重要なモードであり、この物質においてはスピニバイエルス転移発見以来精力的に研究されたが、この物質の特殊性のためソフト化を示すスピンフォノン結合モード(ソフトモード)が見出されないことによって詳細は分かっていなかった。本研究において初めて発見された現象である折返しフォノンモードの IC 相の分裂の観測によりこの物質のスピンフォノン結合モードが同定された点は興味深く、この物質のスピニバイエルス転移を含む磁氣的特性解明にとって重要な発見である。

また、この 98 cm^{-1} のモードは H_c 近傍で分裂したピークが現れるとともにソフト化が観測された。このソフト化は *discommensurate* 描像が成り立つ狭い磁場領域領域で観測され、IC 相の不整合性と関連が示された。このようなソフト化の観測は本研究が初めてである。この現象は、IC 相への相転移とともにフォノンモードの局在化が起こりスピンソリトン間隔の減少とともに局在領域の減少することにより引き起こされるとするモデルで定量的に説明された。このソフト化は新しい物理現象であり、注目される。

98 cm⁻¹のモードを含めた折返しフォノンモードと超格子反射ピークの D 相から IC 相にかけての強度変化に共通性があることを見いだした。この強度変化は格子変調と関連づけ定量的に説明された。

続いて、不純物置換された試料におけるこの特異な 98 cm⁻¹のモードの挙動が調べられている。その結果、不純物置換試料においても 98 cm⁻¹のモードの強磁場相における分裂が観測されるが、強磁場領域における分裂ピークの磁場依存性が理論曲線でよく記述できるのに対し、H_c 近傍で理論曲線からのずれが観測された。この振る舞いは、不純物サイトとスピンソリトン間に相互作用が存在することで説明される。また、実験結果は、この相互作用が高温強磁場相においてよりも低温強磁場においてより強いことを示している。この結論は、未だによく分からない不純物置換試料における強磁場相の解明にとって重要な、不純物が存在している場合におけるスピンソリトンの振る舞いに関する知見が得られた点で興味深い。

最後に、63 cm⁻¹ に新しい吸収線を発見し、解析の結果、一重項状態から連続帯状態への磁氣的励起によるものと同定した。この磁氣励起は中性子線非弾性散乱実験により観測されているが、光学的に観測されたのは本研究が初めてである。

第四章は“強磁場磁歪測定の結果と考察”と題し、この物質の D 相から IC 相にかけての強磁場下における磁歪測定に関する実験結果、およびその考察が述べられている。本研究は 28 T までの強磁場下における各結晶軸方向の磁歪測定を行い、その結果から、スピンバイエルズ転移に伴い結晶に導入される自発歪みの D 相から IC 相にかけての磁場による変化を算出した。自発歪みはスピンバイエルズ転移の特徴の一つである格子変調と密接に関連するため、自発歪みの評価は間接的に格子変調の変化を観測していることになり非常に重要である。本研究の結果、自発歪みは D 相内では著しい磁場変化を示さないが、D 相から IC 相への相転移により急激に減少し、IC 相においては引き続き緩やかに減少し続けることが判明した。IC 相における振る舞いは、H_c 直上のスピンソリトンが孤立している状態から磁場の増大とともにスピンソリトン間の重なりが無視できない状態への移行における格子変調の変化を示しており、興味深い。

第五章は“結論”であり、本論文で得られた結論を簡潔にまとめている。

以上のように本論文では、無機物質で最初のスピンバイエルズ物質として注目を集め数多くの研究が精力的になされているスピンバイエルズ物質 CuGeO₃ について、D 相から IC 相にかけての強磁場下における遠赤外分光測定や磁歪測定に関する詳細な研究を行った。その中でも、この物質の折返しフォノンモードの IC 相での分裂という新しい物理現象を発見し、その解析の結果、この物質においてスピンバイエルズ転移が発見されて以来精力的な研究にもかかわらず見出されていなかったスピン-フォノン結合により引き起こされていることと同定したという点は何より評価に値する。この結果はスピンバイエルズ転移を引き起こしている一次元スピン系と三次元フォノン系の結合のメカニズムの解明に直接的に結びつく発見であり、スピンバイエルズ物質のなかでも特異な CuGeO₃ の物性について解明が進むものと期待される。また、このスピン-フォノン結合モードの H_c 近傍で観測されるソフト化も新たな物理現象の発見であり、その現象をフォノンモードの局在化とその局在領域の変化によるものとして定量的に説明している点も独自の議論を展開しており評価される。これらの成果以外にも不純物置換試料における不純物サイトとスピンソリトン間の相互作用の存在を示す結果や光学測定で初めて観測された連続帯状態への磁氣励起など有用な知見が得られている。以上のように、本研究はスピンバイエルズ物質 CuGeO₃ についてスピン-フォノン結合モードの発見など、その物性の解明に少なからぬ寄与をしており評価される。また、本研究により得られた成果は、測定技術の開発およびその精密化によっている点も認められる。従って、本研究の成果は低次元量子スピン系における物性の解明に寄与するばかりでなく物理工学全般への貢献が大きい。

以上の理由から、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。