

## 論文審査の結果の要旨

氏名 松原信一

松原信一氏提出の本論文では、三種類の量子スピン系物質の磁場誘起相転移現象を核磁気共鳴法(NMR)によって解明することを試みている。三種類すべての物質は基底状態と励起状態の間にスピギャップを有し、どのギャップも反強磁性ダイマーを起源とする。

本論文は16章からなる。第1章は序論である。第2章から第14章まではスピギャップを持つ三種類の物質についての研究成果について述べられている。その内、第2章から第5章までがスピン1の反強磁性ダイマー物質として考えられている  $F_2PNNNO$  の研究について書かれている。第5章から第10章までは二次元直交ダイマー系物質の  $SrCu_2(BO_2)_3$  についての研究がまとめられ、第11章から第14章はスピン1の反強磁性ボンド交替鎖 NTEPNP に関する研究に割かれている。第15章は全体の結論がまとめられ、第16章が謝辞となっている。

まず本論文の最初の物質である  $F_2PNNNO$  は有機磁性体であり、不対電子に由来する  $1/2$  スピンが磁性の起源である。まず分子内の二個の不対電子が強磁性的に強く結合して  $S=1$  を合成し、この  $S=1$  が反強磁性的に結合してダイマーを形成している。本物質の特徴はここで形成されたダイマーが三次元的なネットワークを持つ点である。本研究では  $^{19}F$ -NMR のスペクトルを観測することにより磁場によってギャップが消失し、磁化が出現すると同時に反強磁性秩序状態が発現することを明らかにしている。さらに、反強磁性秩序相において交替磁化が磁場と垂直な方向に向いていることを確認し、この相転移がマグノンの BEC (ボーズ凝縮) と見なせることを明らかにしている。また、スペクトルのシフト  $K$  および核磁気緩和率  $1/T_1$  の温度依存性を測定して、BEC の量子臨界点における臨界指数の変化を調べている。その結果、0.3K 以上の温度領域ではシフトおよび核磁気緩和率ともにべきが2であったが、0.3K 以下の低温でシフトが1へと変化するクロスオーバーが観測されている。核磁気緩和率の振る舞いは三次元の BEC で期待されるものであるが、シフトのべきはその値および変化ともに理論的な予想とは異なるものであり、またクロスオーバーの原因についても今後解決されるべき問題である。以上のように本研究は、磁場誘起相転移現象における BEC を明らかにするばかりでなく、量子臨界点における臨界指数のクロスオーバーという問題を提議しており本研究分野の進展に貢献する研究であると考えられる。

次に、二次元直交ダイマー系物質の  $SrCu_2(BO_2)_3$  についての研究であるが、この物質では Cu イオンが持つ  $S=1/2$  が反強磁性的に結合してダイマーを形成している。このダイマーが互いに直交する結晶構造のためフラストレーションが生じ、強磁場下でいくつ

かの磁化プラトーが実現している。現在観測されている磁化プラトーは飽和磁化の  $1/8$ 、 $1/4$ 、 $1/3$  であり、 $1/8$  のプラトー領域においてはマグノンの結晶化が起きていることが分かっている。本研究では、 $1/8$  プラトーより高磁場側の非プラトー領域でこのマグノンの結晶化がどのようになるかを明らかにするために  $^{11}\text{B}$ -NMR を行っている。その結果、高磁場側においても  $1/8$  プラトーとほぼ同じスペクトル幅が観測され、マグノン結晶が消失しない事が明らかとなった。この発見は磁化プラトーの起源の解明に役立ち、重要な成果であると考えられる。筆者はいくつかのモデルケースを考えて非プラトー領域のスペクトルの再現を試みているがこれには成功していない。また、強磁場下のスペクトルの温度変化から新たな相境界を発見している。これは、非プラトー領域が変化に富んだ物性を持つ事を示す結果であり、今後の展開が望まれる成果である。

最後に述べられているのは  $S=1$  の一次元反強磁性ボンド交替鎖物質 NTENP についての研究である。 $S=1$  の一次元反強磁性鎖はスピン間の交換相互作用の大きさに交替がある場合、その交替比の大きさによって基底状態がハルデン相からダイマー相へと変化する。NTENP は交替比が小さいためダイマー物質であり、これまでに比熱測定などにより磁場誘起磁気秩序が観測されている。本研究では  $^{15}\text{N}$ -NMR 測定を行い、スピニングギャップが残る低磁場領域において不均一な交替磁化が誘起されていることを発見している。筆者は、構造のランダムネスによる DM 相互作用に交替磁化発生の原因を求めて議論を行いある程度の説明に成功している。しかしながら、DM 相互作用の存在は磁場誘起磁気秩序を抑制する働きがあるため、この発見はむしろ新たな問題提議としての意義が重要である。

以上のように、本研究は強磁場下の NMR を行い、三次元の反強磁性ダイマー物質  $\text{F}_2\text{PNNNO}$  の磁場誘起反強磁性秩序状態を明らかにするとともに臨界指数のクロスオーバー現象を発見し、また二次元直交ダイマー物質  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_3$  のプラトー領域を越えた磁場領域でのマグノンの結晶化が消失していない事を明らかにし、一次元反強磁性ダイマー物質 NTENP ではスピニングギャップが残る磁場領域で交替磁化が存在することを示すことに成功した。これらの業績は、量子スピン物質の研究の進展に大きく貢献したと考えられる。本論文の成果について議論した結果、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断した。なお本研究は、指導教官である滝川仁氏その他、樹神克明、細越裕子、井上克也、上田寛、陰山洋、Maldane Horvatic、Claude Berthier、萩原政幸の諸氏との共同研究の部分があるが、論文の主要な成果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。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。