

論文審査の結果の要旨

氏名 河野 洋平

磁場中の量子スピン系は、相互作用するボース粒子系あるいはフェルミ粒子系とみなすことが可能であり、例えばボース粒子系のボース・アインシュタイン凝縮（BEC）と等価な現象が、磁場に垂直な面内における反強磁性秩序として観測される。ここでスピン系の磁化が粒子数に対応するが、磁化は磁場によって精密に制御できるため、磁場誘起量子相転移に伴う臨界現象の研究に特に適している。また 1 次元的な相互作用が強い系における臨界現象が、3 次元系と比べてどのような特徴を示すか、興味をもたれるところである。河野洋平氏による本論文は、3 種類の擬 1 次元量子スピン系物質について極低温における磁化および比熱の精密な測定結果をもとに、これらの物質が示す磁場誘起量子相転移における臨界現象を考察したもので、全 6 章より成る。

第 1 章の序論では、磁場中のハイゼンベルグ・スピン鎖やスピン梯子系をフェルミ粒子系やボース粒子系として記述する理論的基礎と、スピン系の磁場誘起量子相転移の臨界現象に関するこれまでの代表的な研究結果をまとめている。第 2 章の実験方法では、本研究で用いた主要な実験手法であるキャパシタンスーファラデー法による磁化測定技術と比熱測定法の詳細が、論文提出者による装置改良も含めて記述されている。

続く第 3～5 章が本論文の主要な部分である。まず第 3 章では擬 1 次元性スピン $1/2$ ・ハイゼンベルグ鎖物質 $\text{Cu}(\text{C}_4\text{H}_4\text{N}_2)(\text{NO}_3)_2$ （本論文では CuPzN と略記）について、磁化曲線の温度依存性を 39 ミリケルビンまでの極低温領域で測定し、ベーテ仮説に基づく 1 次元モデルの厳密解との良い一致を見出した。このことは鎖間相互作用がこのような極低温下でも無視できるほど小さいことを意味し、実際にこの物質が非常に良い 1 次元性を有していることを示した。また、約 14 テスラの飽和磁場近傍における磁化曲線の特異性が、1 次元自由フェルミ粒子系に期待される量子臨界スケーリング則に高い精度で従うことを見出し、1 次元系の理論が現実の物質の理解に有用であることを実証した。

第 4 章と第 5 章では、スピン $1/2$ ・ハイゼンベルグ鎖が 2 本結合したスピン梯子構造を持つ 2 つの分子性結晶物質を対象としている。いずれの物質においてもスピンは有機分子の分子軌道上の対電子に付随しており（ラジカル）、梯子の縦方向に強磁性的結合を有している。また遷移金属化合物の局在スピンと比べて異方性が著しく小さいため、 $U(1)$ 対称性が良く保たれ、BEC の研究に適している。多くのスピン梯子系物質はゼロ磁場で 1 重項基底状態を示し、励起状態との間にエネルギーギャップが存在する。従って一般的に磁場中では、ギャップが消失する臨界磁場と磁化が飽和する飽和磁場の 2 か所における量子臨界現象と、中間磁場における低温での 3 次元的な反強磁性秩序が期待される。しかし、現実の物質では梯子内の付加的な相互作用や梯子間の相互作用によって、この一般的な振る舞いと異なる多様な現象が観測される可能性がある。

第4章で対象とした $C_{20}N_4H_{15}BrF$ (本論文では 3-Br-4-F-V と略記) は、梯子の横方向に強い反強磁性結合を有し、ゼロ磁場で励起ギャップが存在する。また $H_{c1} \sim 5$ テスラにおいてギャップが消失し $H_{c2} \sim 9$ テスラで磁化が飽和することが、先行研究から知られている。本研究では、 H_{c1} と H_{c2} の中間磁場において 3 次元反強磁性秩序が発生する転移温度 T_N を、磁化率、あるいは磁化率と温度の積の温度微分係数のピーク、または比熱の温度依存性のピークから決定した。磁化率および比熱のデータから決定された T_N の値は異なっており、それぞれの測定に異なる試料を用いたことが原因であると考えられる。しかしいずれの場合も、磁場が H_{c1} および H_{c2} に近づくと T_N はゼロに収束し、臨界磁場付近で T_N の磁場依存性を表す臨界指数は、試料や T_N を決定する解析方法に依らずに、誤差範囲内で 3 次元 B E C の普遍性クラスに対する理論値である $2/3$ に一致した。これは縦方向に強磁性的結合を持つスピン梯子系に対しては初めての結果であり、また飽和磁場における臨界指数を決定した数少ない例の 1 つである。なお本研究では、絶対零度における臨界磁場及び臨界指数の決定に際して、有限の温度領域におけるフィッティングを異なる温度領域で繰り返し、低温で一定値に近づくことを確認することによって系統的誤差を避ける工夫がなされている。

第5章で対象とした $C_{20}N_4H_{16}I$ (本論文では 3-I-V と略記) は、縦方向の強磁性相互作用が支配的で、分子軌道計算からは梯子内および梯子間にフラストレートした複雑な付加的相互作用が存在する可能性が指摘されている。またこの物質はゼロ磁場において低温で磁気秩序を示し、臨界現象は飽和磁場に限られる。本研究では、同一の試料に対して第4章と同様な実験と解析を行って、3 次元反強磁性の転移温度 T_N を決定した。更に飽和磁場近傍における T_N の磁場依存性から臨界指数を評価したところ、0.5 K 付近の比較的広い温度領域で 3 次元 B E C ではなく 2 次元 B E C の普遍性クラスで期待される 1 に近い値が得られた。より低温領域では T_N の決定方法によって振る舞いが異なり、低温で何らかのクロスオーバーがあるかどうかは現時点では確定していない。3 次元 B E C と異なる臨界指数が観測された理由については、別の擬 1 次元スピン系モデルに対して同様な振る舞いを予測した理論研究があるが、結論は今後の研究に委ねられている。

第6章は全体のまとめと今後の展望が述べられている。

以上のように、本論文は擬 1 次元スピン系の磁場誘起量子相転移現象に対して、極低温における磁化および比熱の精密な測定と注意深い解析によって、特に臨界指数に関して新しい知見をもたらしたものであり、審査委員一同、学位論文として相応しいと判断する。なお、本論文の第 3 – 5 章の一部は、榊原俊郎、細越裕子、山口博則、Christopher Landee、Christopher Aoyama、Yasumasa Takano、Mark M. Turnbull、堀田知佐の諸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および解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断した。従って博士 (理学) の学位を授与できると認める。