

【 25 】

| | |
|---------|---|
| 氏名 | 網代芳民 あじろよし たみ |
| 学位の種類 | 理学博士 |
| 学位記番号 | 理博第192号 |
| 学位授与の日付 | 昭和45年7月23日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第5条第1項該当 |
| 研究科・専攻 | 理学研究科物理学第一専攻 |
| 学位論文題目 | Spin Axis Reorientation Transition in Canted Antiferromagnet ; Mn (HCOO)₂·2H₂O (弱い強磁性磁化を伴った反強磁性体—蟻酸マンガ 2 水化物にお けるスピ ン軸再配向転移の実験的研究) |
| 論文調査委員 | (主査) 教授 長谷田泰一郎 教授 松原武生 教授 高木秀夫 教授 端 恒夫 |

論 文 内 容 の 要 旨

2 次相転移の統計理論においては、一般に単純なモデルについての計算がなされる。その単純化とは①各格子点に Ising スピン (極限的に異方的なスピン) や Heisenberg スピン (極限的に等方的なスピン) をのせる。②結晶格子の単純化をはかる。例えば 1 次元鎖や 2 次元正方網をもつ格子をとり上げる等である。これらの理論的考察によって低次元磁性体の 特異な振舞いが明らかにされると共に相転移に際して ‘次元性’ や ‘異方性’ が果たす役割が明らかになりつつある。

特に最近の Mermin & Wagner や Stanley & Kaplan 等の理論的研究によれば 2 次元 Heisenberg スピン系が長距離秩序を起こすのか、又起こすならばどのような相転移であるかという重要な問題が実験家に問われている。

一方、現実の物質においては充分 2 次元 Heisenberg スピン系とみなしうる物質においても多少とも面に相互作用があり、又異方性が存在するが、これらの物質の転移の性格を明らかにする事によって実験的に、この問題に接近する事が可能である。

現実に 2 次元 Heisenberg スピン系とみなし得る物質は現在、極めて少数しか知られていないが、本論文でとり扱う蟻酸マンガ 2 水化物、蟻酸銅 4 水化物は充分に近似的意味のある物質だと考えられる。両者とも最近多方面から精力的に研究されているが、なお本質は未解決に残されている。これら未解決の問題を、核磁気共鳴、交流帯磁率等の実験手段を用いて主論文、参考論文、①、②、③において解明した。一連の多角的な実験を通じて互いに深く関連する極めて重要、且つ基礎的な磁氣的性質が明らかにされた。

本論文において弱い強磁性を伴う 2 次元反強磁性体、蟻酸マンガ 2 水化物の秩序—秩序相転移、秩序—無秩序相転移の性格を明らかにする目的で先ず磁氣的相境論を明らかにした。これはこの塩の 2 次元格子としての興味ある磁性の理解のために必要な基礎的資料を与えている。

実験的には静的な帯磁率測定では詳細に決定し得ない相境界を新しい方法として交流帯磁率法を静磁場

中で用いて精度高く決定し、この塩における磁場によって誘起される転移の機構と特質、温度変化や角度変化等の相図の全容を明らかにした。この転移の機構は異方性エネルギーによるものでスピン軸再配向転移と呼ばれるものであることが実証されると共に、その性格は、よく知られた反強磁性体におけるスピン・フロッピング転移と酷似していることが示された。

このスピン軸再配向転移について反強磁性転移温度以下の全温度領域にわたって、その臨界磁場値の温度変化が磁気的双極子相互作用による異方性と結晶場による異方性との二つの競合する異方性のせめあいから、また実験的に確立された楕円型相境界、双曲線型相境界等の角度変化が異方的な磁気エネルギーの考慮から、ほぼ完全に説明された。又臨界磁場値の定量的な議論から種々の磁気的相互作用の大きさの評価が行なわれた。

本研究において用いられた交流帯磁率法による実験手段は非対角磁化率を連続的に容易に測定することが可能で、移転の詳細な様子を知る上に極めて有効である事を他の物質に応用して実証している。

次に微視的立場から、この転移の性格を考察するために、相境界の各領域において陽子核の核磁気共鳴信号を検出し、各領域におけるスピン構造を決定している。

以上の実験結果から、主論文において弱い強磁性を伴った反強磁性体中で外部磁場下におけるスピン構造の誘起変化を明らかにしたのである。

参考論文①においては、臨界現象の研究を通じ、蟻酸マンガンの2水化物における相転移の性格を議論した。核磁気共鳴法を用いて臨界指数 (β) を決定し、参考論文②の結果をも考慮して、この塩の転移が2次元Ising スピン系の性格を有している事が明らかにされた。通常 Mn^{2+} イオンが Heisenberg スピンと考えられることから転移に際して“次元性”や“異方性”の果たす役割が強調された。

参考論文②においては、磁気的に2次元的性質をもつ弱強磁性体、蟻酸マンガンの2水化物の臨界現象を交流帯磁率の測定を通じ詳細に研究した。弱強磁性磁化を有することの特徴を極めて有効に発揮して臨界指数 (γ) を決定し、その帯磁率の発散の仕方が2次元磁性体特有のものである事を明らかにした。又Uniform 帯磁率の異常緩和現象を転移点近傍において観測する事に成功したが、この事は臨界現象の動的性格としての臨界揺動を反映する slowing down 現象を検証したと考えられる。あわせて以上の如き興味ある結果が現象論の立場から議論された。

参考論文③においては、蟻酸マンガンの2水化物においてなされた種々の実験的研究を通じて、2次元磁性体の問題、弱強磁性体の問題等の総合報告がなされた。

参考論文④においては、1次元 Ising スピン系とみなしうる塩化コバルト2水化物中の陽子核スピンのスピン格子緩和時間の温度依存性及び角度依存性をpulse 法核磁気共鳴法を用いて正確に測定し、電子スピン系の相関に対して1次元 Ising スピン系に特徴的な異常現象を明らかにした。

参考論文⑤においては、高磁場高周波域における新しい交流帯磁率法によって、常磁性体における電子スピンの緩和現象に関して新しい知見を得ると共に硝酸銅2.5水化物における特徴的なクラスター性を明らかにし、合わせてこの特徴を巧みに利用して断熱磁場冷却に成功をおさめた。

参考論文⑥においては、パルス法核磁気共鳴法を用いて鉄及びマンガンの窒化物、 Fe_4N 及び Mn_4N 中の Fe^{57} 、 Mn^{55} の信号を検出し、各格子間における電子スピンモーメントの定量的議論を行なった。

参考論文⑦においては、電子スピン共鳴と核磁気共鳴による二重共鳴の原理を被照射ポリエチレンに適用し、その物性を微視的に探ると共に、二重共鳴法の応用の可能性を指摘した。

論文審査の結果の要旨

本論文において申請者の問題意識は二次相転移一般論への実験的寄与を一次元格子又は二次元格子上におけるHeisenberg 又は Ising スピン系の相転移の様相を明らかにすることによって行なおうとするものであるが、先ず蟻酸マンガニ二水化物という二次元格子 Heisenberg スピン系として近似することが期待される物質について温度-外部磁場に関する相図を完全にすることから手をつけている。

交流帯磁率を外部磁場の中で測定する方法を巧みに利用して、スピン系中のスピン容易軸の再配向の相境論を極めて精度高く決定することに成功し、合わせて相境界線上におけるスピンドイナミクスについて知見を得る手段になり得ることを示した。スピン軸再配向転移の機構が磁気的双極子相互作用による異方性と、結晶場による異方性のせめ合いによって決定されることを実験結果の解析を通じて明らかに示している。

本論文の重要な寄与は、このスピン軸再配向転移の実験的研究を通じて、弱い強磁性磁化を伴う反強磁性体中に外部磁場の下で誘起される副格子磁化の発生、特に常磁性領域におけるその発生の機構を明確に把えた点にある。このことが明らかになった為に反強磁性体において転移点近傍における帯磁率の発散を弱強磁性を通じて観測する方法が見出された。参考論文②において、この方法を利用して蟻酸マンガニ二水化物の二次元性が結論されている。参考論文①～③は蟻酸マンガニ塩における二次相転移の二次元格子性に関するもので、又参考論文④は塩化コバルト 2 水化物中の一次元格子的スピン相関を塩中のプロトン核磁気共鳴のスピン核子緩和の中に見出したもの、参考論文⑤はスピクラスタール中のスピン・スピン相関の緩和の研究である。

よって本論文は理学博士の学位論文として価値あるものと認める。