

(続紙 1)

京都大学	博 士 (理 学)	氏名	堀 文哉
論文題目	Magnetic Structures and Quasiparticle Excitations in Ytterbium Zigzag-Chain Semiconductors (イッテルビウムジグザグ鎖半導体の磁気構造と準粒子励起)		
(論文内容の要旨) 現在、物性物理学において格子の幾何学的条件とスピン間の磁氣的相関の競合により低温まで磁気秩序を示さない磁性体(フラストレーション磁性体)が興味を集めている。本博士論文では、磁性元素イッテルビウム(Yb)がフラストレーション格子である一次元ジグザグ鎖を形成した磁性半導体YbCuS₂が示す低温の磁気状態を微視的測定である核四重極共鳴(NQR)、核磁気共鳴(NMR)より調べたものである。YbCuS₂では、Ybが形成するジグザグ鎖において最近接のYb間と次近接間の磁気相互作用の競合で、フラストレーションが内在していると考えられ、新奇な磁気状態が低温の磁化や比熱測定から指摘されていたが、その詳細は不明のままであった。堀氏はYbCuS₂対しCu核のNQR測定を75mKまで行い、0.9Kで一次転移を伴った反強磁性秩序を示すことや低温の磁気秩序状態において核スピン-格子緩和率(1/T₁)にGaplessな励起を見出し、電気的中性フェルミオンによる励起の可能性を指摘した。 さらに、YbCuS₂が示す反強磁性状態の性質や低温で見られる異常な励起の起源を調べるため、YbやSeサイトの置換効果、1.6GPaまでの静水圧効果も調べた。その結果、YbやSeサイトの置換により反強磁性秩序温度は低下するのに対し静水圧では上昇すること、それに伴い低温で見られたGaplessの励起は置換に対しては増強し静水圧では減少することを見出し、反強磁性秩序とは逆の振舞いをするを明らかにした。理論的には理想的な一次元鎖物質は磁気秩序を起こさないことから、YbCuS₂で見られた磁気秩序は鎖間の相互作用によるものと考えられる。したがって、新奇なGaplessの励起は一次元鎖内に由来する励起であることを明らかにした。またYbCuS₂は一次元ジグザグ鎖が示す量子スピン状態を研究する格好の舞台となっていることも指摘した。 本論文の第一章では、研究対象であるフラストレーション磁性体とS=1/2のハイゼンベルグスピンのジグザグ鎖が示す基底状態の理論研究の概説、研究対象物質のYbCuS₂とその姉妹物質YbAgSe₂の基礎物性とその置換効果についての説明、さらに最近のYbCuS₂の実験結果を受け、東大の斎藤氏と堀田教授が提案した異方的な相互作用を導入したジグザグ鎖スピンモデルの概説も行なっている。第二章では、今回の主な実験手法であるNMRとNQRの実験原理、その測定から得られる物理量やスペクトルの形状についての概説を行なっている。第三章では、今回の測定に用いた試料の育成方法、NMR/NQR測定装置や圧力装置について説明がなされている。第四章から七章で、YbCuS₂の実験結果を報告し、第四章ではCu-NQRの結果だけでなく、共同実験者が測定した比熱の実験結果やその解析も行ない、NQRから見られたGaplessな励起が比熱測定からも示唆されることを指摘した。第五章では、静水圧下におけるCu-NQRスペクトルや1/T₁の変化を示し、加圧による磁気秩序温度やGapless励起の変化を示した。興味深い結果として、常圧下の格子不整合な磁気構造から1.6GPaの圧力下では格子整合な磁気構造に変化していることも見出した。第六章では、置換効果の結果を報告し、Se置換ではCu-NQR共鳴線の圧力下の振舞いから、Se置換が負の圧力効果を与えていることを示した。第七章では、磁場下の振舞いを報告し、磁場印加に伴い磁気秩序以上の磁気励起が大きく変化し低温に向かって磁気励起が増大することを見出した。第八章では姉妹物質であるYbAgSe₂の磁気状態をSe核のNMR測定から調べ、2KでYbCuS₂と同様に反強磁性を示すものの、YbCuS₂で見られた低温のGaplessな励起は見られな			

いことを報告した。第9章では、これらの実験から考えられるYb化合物一次元ジグザグ鎖が示す磁性についての特徴をまとめ、今後さらにすべき測定について提案している。堀氏はこれらの内容を5編の公表論文(内2編は論文査読中)にまとめた。

(論文審査の結果の要旨)

1. 研究目的の評価

現在磁性研究では、フラストレーション磁性体が示す低温の磁気状態、特にスピンの低温まで磁気秩序を起こさないスピン液体状態の探索が大きな研究対象となっている。これまでは、*d* 電子磁性元素によるフラストレーション磁性体の研究が一般的であったが、最近では合成が困難である *f* 電子磁性元素によるフラストレーション磁性体へ研究が広がっている。*f* 電子磁性体の特徴として、*d* 電子磁性体と比較し、強いスピン軌道相互作用に起因した大きなスピン異方性を持つこと、磁気相互作用が小さいため、実験室系の磁場で磁気相の制御が可能という利点がある。今回の研究対象物質の YbCuS_2 は上記の特徴を持った新規 *f* 電子磁性体である。この物質は 2020 年より広島大学の鬼丸教授のグループが研究を始めた比較的新しい物質であり、堀氏の研究の前までは低温の磁気状態に未知な点が多く存在していた。このように、研究目的、研究対象物質の意義は十分認められる。

2. 研究結果・考察の評価

堀氏は微視的な測定である NQR 測定により低温磁気状態を調べた。その結果 0.9 K 以下で Yb の磁気秩序により Cu サイトに弱い内部磁場の分布が見られ、格子不整合な磁気構造をもつ反強磁性秩序を起こすことを明らかにした。また 0.9 K から 0.7 K 程度の温度幅で、反強磁性秩序の信号と常磁性の信号が共存することを示し、反強磁性転移が一次転移であることも示した。さらに 0.5 K 以下の磁気秩序状態で、電気伝導ではギャップ的な振舞いが見られているにも関わらず、磁気励起を捉える $1/T_1$ の測定からは金属が示す Gapless 励起に特徴的な温度依存性 ($1/T_1 \propto T$) を見出し、比例係数も銅の金属状態の値より一桁以上も大きなものであることを示した。この Gapless 励起の存在は低温比熱の電子比熱係数からも示され、電氣的に中性な粒子の存在とも理解される。これらは一次元スピン系物質において前例のない新奇な振舞いであり、研究の価値は十分認められる。

堀氏はこの反強磁性状態や Gapless 励起の特徴を調べるため、反強磁性状態の Cu-NQR スペクトルと $1/T_1$ に対する Yb や Se サイトの置換効果、1.6 GPa までの静水圧効果も調べた。その結果、置換により反強磁性秩序温度は低下するのに対し静水圧では上昇すること、それに伴い低温で見られた Gapless 励起は置換に対しては増大し静水圧では減少することを見出し、反強磁性秩序とは逆の振舞いをすることを明らかにした。圧力・置換効果から、 YbCuS_2 で見られた磁気秩序は鎖間の相互作用によるものと考えられ、新奇な Gapless の励起は一次元鎖内に由来する励起であることを明らかにした。置換や静水圧に対する応答から低温の磁気状態や磁気秩序と Gapless 励起の相関を調べたことは評価に値する。特に、Gapless 励起が一次元ジグザグ鎖内の励起であることが明らかになったことは、 YbCuS_2 は一次元ジグザグ鎖が示す量子スピン状態を研究する格好な舞台となっていることを示す結果であり特筆に値する。堀氏は今回の得られた実験結果を YbCuS_2 を念頭に最近提出された異方的な相互作用を導入したジグザグ鎖スピンモデルの理論結果とも比較し、実験結果を理論的に理解しようとする姿勢も評価できる。

以上のように、本学位論文は *f* 電子フラストレーション磁性体が示す磁気状態、特に一次元ジグザグ鎖が示す磁気秩序状態に新奇な Gapless 励起を見出したことは高く評価できる。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 7 年 1 月 24 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 年 月 日以降