

(論文内容の要旨)

本論文は、 $S = 1$ の二次元三角格子反強磁性体の NiGa_2S_4 という物質について磁化率、比熱などの多角的な実験を通してその磁性を調べたものである。最近、物性物理学においては、低温での新しい状態を実現させるための手段として、幾何学的フラストレーションと低次元性が注目を集めている。幾何学的フラストレーションとは、結晶格子が原因となるスピン間相互作用の競合により、スピンが最低エネルギー状態を取れない状態を言う。これら二つを同時に満たす最も構造的に簡単なものは二次元三角格子である。その構造的簡単さから様々な理論的研究が存在するものの、現実の物質では高い二次元性を有し、正確な三角格子を形成する物質が稀有であったため、その磁気状態の確認にはこれまで至っていなかった。 NiGa_2S_4 は層状物質であり、 $S = 1$ のスピンを持つ Ni 原子が正確な三角格子を形成している。層の間はファンデルワールス力で隔てられているため、高い二次元性を保持していると考えられ、実際、中性子回折実験などから二次元性が比較的高いことが証明されている。

南部氏の研究は、二次元三角格子反強磁性体の典型物質となり得る NiGa_2S_4 を対象としており、それにより次のようなことが明らかとなった。i) この物質ではスピンの凍結が種々の共鳴実験から観測されているが、試料の仕込み量依存性、圧力効果、不純物効果の実験を通して、このスピン凍結が二次元の機構で引き起こされていることが分かった。ii) 非線形磁化率、交流磁化率の測定から、スピン凍結は従来の磁気転移やスピングラスのそれとは異なった新奇なものであることを明らかにした。iii) また、 Ni サイトにおける不純物効果からは不純物スピンの依存した低温の比熱の振る舞いを突き止めた。これにより、低温での状態はスピンのサイズに依存する可能性も考えられ、量子効果の存在の可能性についても言及されている。これらの結果、スピンの特性揺らぎ時間の異常の様子がこれまでよく知られた磁性体のそれとは異なるため、 NiGa_2S_4 で実現している磁気状態が新奇なものであると結論付けている。

本論文の「第一章: 序論」では、幾何学的フラストレーションと低次元性が引き起こす新しい磁気状態とこれまでの二次元三角格子反強磁性体についての研究が概論されている。「第二章: 理論候補のまとめ」では、 NiGa_2S_4 の新奇な磁気状態を説明できる可能性がある理論候補についてまとめている。「第三章: 実験」では、 NiGa_2S_4 を対象として行った実験方法の詳細について、共同研究も含めて記述されている。「第四章: $S = 1$ 二次元三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 」は本論文の骨格をなす章であり、この物質の基本的性質の紹介の後、i) 構造的特性の解明、ii) 異常温度で特徴付けられる三つの温度領域に渡って、その異常な振る舞いとこれまでよく知られた磁性体との比較、iii) NiGa_2S_4 に対する圧力効果の実験結果についての議論がなされている。また、「第五章: $\text{Ni}_{1-x}\text{A}_x\text{Ga}_2\text{S}_4$ ($A = \text{Mn, Fe, Co, Zn}$) における不純物効果」では、標題試料に対する評価の結果について紹介したのち、その磁気比熱の振る舞いが不純物スピンの質的に依存することが系統的に記述されている。「第六章: 結論と将来的な可能性」では、様々な実験から明らかになった NiGa_2S_4 の磁気状態がスピンの特性揺らぎ時間の観点からこれまでの磁性体と異なっていることを指摘し、将来的に有用と考えられる実験についても列挙してある。

南部氏は学位論文の研究を通し、二次元三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 では、低次元性と幾何学的フラストレーションを起因とする新奇な磁気状態が低温で実現していることを示した。

(論文審査の結果の要旨)

新奇な物理状態出現の可能性を求めて、幾何学的にフラストレートした磁性体が盛んに研究されるようになり、現代の物性物理学の重要研究課題のひとつとなっている。しかしながらその典型とされる三角格子反強磁性体として、これまで現実の物質で、理論的に提唱されている新奇な状態の検証にも耐えうる系はほとんど報告されていなかった。その理由は現実物質で十分にスピン間相互作用の二次元性が高く、また同時に正確な三角格子を形成する物質が希であることによる。南部氏は磁性イオンのニッケルを含む NiGa_2S_4 について、純良単結晶を用いてその低温物性の解明を進め、この物質が二次元三角格子反強磁性体のモデル物質として極めて望ましい特性を持つことを示し、さらに低温で新奇な磁気状態が出現することを見出した。本論文は、これまで明らかになった実験事実とその解釈をまとめたものである。

論文ではまず純良試料の合成および不純物の種類と濃度を制御した試料の合成、それらの単結晶育成、試料分析について、詳細にわたって明快に記述している。幾何学的にフラストレートした系の本質的な物性を観測するには、試料の純良性が特に重要である。このため、硫黄の含有量を系統的に細かく調整した数多くの結晶を育成して、最も純良性の高い結晶を得るための条件を把握した上で研究を進めている。その結果、スピン凍結が不純物によって誘起されたものではなく、幾何学的フラストレーションの特質であると結論付ける実験事実の獲得に成功している。南部氏は試料合成における注意深さや単結晶育成における高い技術など、この分野の研究者に必要な資質を遺憾無く発揮している。

従来の振る舞いを越えた新しい磁気状態の解釈にとって、ひとつの物理量に頼る一面的解釈ではなく、様々な物理量の振る舞いを踏まえた上での多角的な分析が特に重要となる。南部氏は静磁化測定、交流磁化測定、比熱測定を行い、低温で3つの特徴的な温度領域が存在することを明らかにした。それとともに、大型実験施設での実験にも自ら参加したミュオン・スピン緩和や中性子回折の実験から、凍結スピンの単距離相関の二次元性、長距離秩序が低温でも存在しないことに加え、純粹結晶に対して比熱の温度依存性に呼応するゼロ励起ギャップを示す分散関係も明らかにした。さらに核磁気共鳴や電子スピン共鳴の共同研究の実験事実も踏まえた総合的な視点からの解釈を行なっている。

それらからわかったことは、系の二次元性とフラストレーションを反映したスピン凍結現象が起こるものの、凍結温度以下でも低周波でのスピンの揺らぎが継続しており、さらに十分低温でのみ静的な磁気状態に入る。そしてその低温では励起エネルギーにギャップを伴わない状態が実現していることなどであり、この二次元三角格子磁性体で新奇な磁気状態が実現している主張は説得力がある。さらに不純物のスピンの種類によって、定性的に異なる磁気状態が現れることから、基底状態の量子性を指摘している。南部氏の寄与によって NiGa_2S_4 に対する研究が大いに進展したと高く評価できる。

以上により、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、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。