

氏 名	きた がわ けん た ろ う 北 川 健 太 郎
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 3109 号
学位授与の日付	平 成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	理 学 研 究 科 物 理 学 ・ 宇 宙 物 理 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	Itinerant Metamagnetism and Metamagnetic Quantum Criticality in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ Revealed by ^{17}O -NMR (^{17}O -NMR を用いて明らかにした $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ におけるメタ磁性現象とメタ磁性量子臨界性)
論文調査委員	(主 査) 教 授 石 田 憲 二 教 授 前 野 悦 輝 教 授 山 本 潤

論 文 内 容 の 要 旨

層状ペロブスカイト構造を持つルテニウム酸化物 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ は、遍歴メタ磁性に起因する 1 次相転移の量子臨界点を持つ。本論文は、この量子臨界点近傍の電子状態と磁気ゆらぎを微視的な実験である核磁気共鳴 (NMR) を用いて研究したものである。その結果、量子臨界点近傍の磁気ゆらぎは、磁気ゆらぎの特性温度がほぼ 0K と考えられる量子相転移の特徴を持つことを始めて実験的に示された。また通常メタ磁性は強磁性ゆらぎが重要であると考えられているが、この物質のメタ磁性では、反強磁性的磁気ゆらぎが重要であることを明らかにした。さらに関連物質の $\text{Sr}_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$ ($n=1, \infty$) 系における ^{17}O -NMR の実験結果を解析し、それぞれにおいて酸素 $2p$ 軌道におけるホール濃度、局所スピン磁化率を見積もり、Ru- $4d$ と O- $2p$ の混成の強さが物質の磁性や伝導と関連していることを示した。論文の詳しい構成は以下の通りである。

本論文の「第一章：序章」では量子相転移の概説、層状ペロブスカイト物質 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の基礎物性、この物質が示すメタ磁性転移や磁場の方向を変えることによって起こるメタ磁性量子臨界点について紹介し、本研究の動機と意味づけ、実験に用いた NMR 実験の原理を概説している。

「第二章：実験」では、NMR 実験の装置の概説、試料の作成、酸素を NMR 可能な ^{17}O に置換する方法の説明を行っている。また本実験で注意した点、特に低温 NMR 実験で問題となる希釈冷凍機温度域での RF-field によるうず電流の効果、試料の反磁性効果について記述している。

「第三章：実験結果と Discussion」では、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ における ^{17}O -NMR 信号のサイト同定、各サイトでの電場勾配と超微細相互作用定数から各酸素サイトのホール密度とスピン磁化率を求めた。その結果、 RuO_2 面内の酸素サイトにほとんどのホールが存在し頂点の酸素サイトには面内サイトの 1 割程度しか存在しないこと、面内の酸素のうち $4d_{xy}$ と $4d_{yx}$ に混成する酸素の軌道にほぼ同じだけホールが存在することを示した。また $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の酸素の結果を、関連物質の三次元遍歴強磁性物質 SrRuO_3 や、二次元超伝導体 Sr_2RuO_4 と比較し、面内の酸素のホール密度が多いほど面内の電気伝導がよく磁性が現れないこと、 RuO_2 面に傾きや回転が存在せず綺麗な RuO_2 面になることを指摘した。さらに、核スピン—格子緩和率 ($1/T_1$) の温度、磁場依存性を低温、高磁場まで測定し、量子臨界磁場においては動的帯磁率に比例する $1/T_1T$ は低温に向かって発散的に増大すること、低温においては量子臨界磁場だけで $1/T_1T$ が増大していることを示した。動的帯磁率に係る $1/T_1T$ の逆数を温度に対しプロットし、予想される磁気転移温度が絶対零度であることを示し、動的帯磁率の振る舞いから見ても量子臨界ゆらぎであることを示した。

「第四章：結論」では、行った実験をまとめてある。また一次相転移における量子臨界点における磁気励起の振る舞いと有限温度における臨界点での振る舞いを比較し、有限温度の臨界点の場合には臨界ゆらぎは観測されず、量子臨界点の磁気励起は質的に有限温度の臨界点の振る舞いとは異なることを実験から示した。

論文審査の結果の要旨

現在量子臨界点近傍での物理性質について興味が集まっている。量子臨界点とは、絶対零度で起こる相転移であり、通常二次の相転移点が圧力 (p) や chemical-pressure に対応する置換量 (X) を変化させることにより低温に抑制された転移点のことである。この量子臨界点近傍では電子相関が低温に向かって発散的に増大する非フェルミ液体的な振る舞いが観測され、強相関電子系の舞台となっている。また近年この量子臨界点近傍でしばしば異方的超伝導が発見され、非フェルミ液体的振る舞いと異方的超伝導の関係について興味が集まり現在盛んに研究がなされている。

今まで調べられてきた量子臨界点は、上述のような二次の相転移に関係した量子臨界点であったが、本論文では一次相転移に関係する量子臨界点であり、そこでの磁気励起を微視的な実験手法である核磁気共鳴 (NMR) を用いて調べたものである。現在までに一次相転移に関係する量子臨界点の磁気励起はほとんど調べられておらず、今回の研究が私の知る範囲ではじめてと考えられる。一次相転移の場合、有限温度に一次相転移の臨界点を持つ。この有限温度の臨界点を、物理パラメーターを変化させることによって絶対零度に落とすことが出来れば、一次相転移に関係した量子臨界点が生まれる。01年に Grigera *et al.* は $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ が示すメタ磁性一次相転移の臨界点が、磁場の角度を変えることで有限の温度から絶対零度に抑制されることを示し、上述の一次相転移に関係する量子臨界点が存在することを示した。本論文ではこの $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ が示す量子臨界点の磁気励起をミクロな実験から調べている。

本研究の主な成果は、この一次相転移の量子臨界点の磁気ゆらぎを ^{17}O -NMR 実験から調べ、 $1/T_1T$ の振る舞いから磁気励起の特性温度がほぼ 0K と考えられる量子相転移の特徴を持つことを始めて実験的に示した。また通常メタ磁性は強磁性ゆらぎが重要と考えられていたが、この物質のメタ磁性では、反強磁性的磁気ゆらぎが重要であることも明らかにした。これはメタ磁性や量子臨界点の起源を考える上で非常に重要な情報である。

もう一つの重要な成果は、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の ^{17}O -NMR 信号のサイト同定、各サイトでの電場勾配と超微細相互作用定数を解析することにより、各酸素サイトのホール密度とスピン帯磁率を求めたことである。その結果、 RuO_2 面内の酸素サイトにほとんどのホールが存在し頂点の酸素サイトには面内サイトの 1 割程度しか存在しないこと、面内の酸素のうち $4d_{xy}$ と $4d_{yz}$ に混成する酸素の軌道にほぼ同じだけホールが存在することなどを示した。また $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の酸素について得られた結果を、関連物質の三次元遍歴強磁性物質 SrRuO_3 や、二次元超伝導体 Sr_2RuO_4 と比較し、面内の酸素のホール密度が多いほど面内の電気伝導がよく磁性が現れないこと、 RuO_2 面に傾きや回転が存在せず綺麗な RuO_2 面になることを指摘した。 $\text{Sr}_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$ ($n=1, 2, \infty$) は Ruddlesden-Popper 系とよばれ、強磁性から超伝導まで幅広い物性を示す。この物性の理解する上で、各酸素サイトの軌道に依存したホール濃度を求めたのは重要な成果である。

これらの研究を通じて北川氏は、自ら純良単結晶を育成し、実験に必要な NMR 装置の細部まで設計・製作し、低温実験解析の全てを行った。

このような理由から、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。