

審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 片岡 亨太

本論文は 4 章からなり、第 1 章の緒言に引き続いて第 2 章は本論文が注目するパイロクロア酸化物 $\text{Hg}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ に関する研究の背景と実験手法、結果と考察について記述する。第 3 章ではキタエフスピン液体の一般的な説明、注目する物質系である Os_xCl_3 と $\text{Ru}_{1-x}\text{Os}_x\text{Cl}_3$ に関する研究の背景、実験手法と結果および考察が述べられる。第 4 章では研究のまとめと今後の展望について述べている。

第 1 章では、まず磁気フラストレーションの概念についての説明があり、様々なフラストレート磁性体の中で 5d 遷移金属を含む物質におけるスピン軌道相互作用の重要性が述べられる。さらに、本論文で注目する 3 種類の物質 $\text{Hg}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ 、 Os_xCl_3 、 RuCl_3 に関する興味とこれらを研究する科学的意義が説明されている。

第 2 章はパイロクロア酸化物 $\text{Hg}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ に関する研究を記述する。本物質の類縁化合物であるパイロクロア酸化物 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ が金属絶縁体転移を示し、それが All-in/All-out 型の磁気秩序を伴うこと、さらにその起源が時間反転対称性の破れと半金属バンド構造に起因する磁気リフシツ転移であると説明されている。また、異なる電子数を持つパイロクロア酸化物 $\text{Ln}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ においても同様の金属絶縁体転移が観測される。これらに対して、過去の研究から、 $\text{Hg}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ は $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ と同じ結晶構造、電子数を持つにもかかわらず、その基底状態が絶縁体でないとされてきた。しかしながら、過去の報告には不明な点が多く、その物性が十分明らかにされているとは言い難い。本研究では合成条件を吟味して良質な多結晶、単結晶試料を作製し、磁化、電気抵抗、ホール抵抗、比熱測定を通してその物性を詳細に調べた。結果として、88K に明瞭な相転移の存在を明らかにした。そこでは $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ と同じく All-in/All-out 型の磁気秩序が生じていると予想される。しかし、転移温度以下で電気抵抗は絶縁体的に振る舞わず、より金属的な伝導に変化した。また、試料依存性が大きく、欠陥の多い試料ほど転移温度が下がる傾向が見られた。中性子回折実験では磁気ピークは観測されなかったが、 μSR 実験から磁気秩序の存在が明らかになった。中性子回折実験で観測されなかったのは磁気モーメントが小さいためと考えられる。以上の結果から $\text{Hg}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ は 88K において $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ と同じく All-in/All-out 型の磁気秩序をもつが、5d 電子は局在せず、遍歴磁性体となると結論される。その原因として、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ と比べて電子とホールバンドの重なりが大きいと、磁気秩序によるバンドシフトによってギャップが開かず、磁気リフシツ転移は起こらないため遍歴磁性金属状態が最低温まで維持されると考えられる。 $\text{Hg}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ は強相関 5d 電子の遍歴と局在の狭間に位置する物質であることが分かった。本研究結果は All-in/All-out 型の磁気秩序を有する金属状態の存

在を初めて明らかにしたものであり、高く評価される。

第 3 章では、まずキタエフスピン液体候補物質として Os_xCl_3 に注目した。本物質はこれまでその存在は知られていたが、組成、構造、物性は明らかでなかった。 Os 金属を塩素雰囲気で加熱することによって得た試料は $x = 0.81$ の組成を持ち、 Os 原子のハニカム格子のナノドメインからなることが分かった。 70mK までの磁化測定から、長距離磁気秩序の形成は見られないが、 150mK に何らかの短距離秩序が起こっていると予想される。本系ではキタエフスピン液体が実現している可能性もあるが、構造の乱雑さの影響も大きく、よりクリーンな物質系での実験が望まれる。一方、キタエフスピン液体のもっとも有力な候補である RuCl_3 に Os 置換を施した系では、中間の組成領域で新たなダイマー相の出現が見出された。その起源として、 Ru-Os ダイマーの安定化が指摘される。様々な磁気相互作用とスピン格子相互作用の拮抗が多彩な基底状態を生み出していると考えられる。

第 4 章では総括と今後の展望が述べられている。

なお、本論文の第 2 章は平井大悟郎氏、浜根大輔氏、門野良典氏、幸田章弘氏、本田孝志氏、廣井善二氏との、第 3 章は浜根大輔氏、石井梨恵子氏、榊原俊郎氏、橘高俊一郎氏、金道浩一氏、石川孟氏、松尾晶氏、Peter Lemmens 氏、Kwang-Yong Choi 氏、Dirk Wulferding 氏、廣井善二氏との共同研究成果であるが、論文提出者が主体となって合成・物性実験を行い、結果の分析および検証を行ったものであり、その寄与が十分であると判断する。また、剽窃防止ソフトウェアにより、盗作等の不適切な箇所を含んでいないことが確かめられた。

以上のフラストレート磁性体に関する研究は、高度な試料作製と精密な物性測定の組み合わせにより学位論文申請者が中心となって行ったものであり、極めてオリジナリティーの高い研究である。 $\text{Hg}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ ではその基底状態が All-in/All-out 型の遍歴磁気秩序であることを見出し、塩化オスミウムがキタエフスピン液体候補となることを示したことで、フラストレート磁性分野で高く評価され、国内外に与えたインパクトは大きい。論文申請者は、本論文の成果の一部を 1 つの論文にまとめて発表している。

よって本論文は博士（科学）の学位請求論文として合格と認められる。

以上 1991 字