

論文審査の結果の要旨

氏名 細井 將史

本博士論文は強い幾何学的フラストレーションを内包する希土類パイロクロア型磁性体において、スピン軌道相互作用と結晶場の協奏効果から引き起こされる量子相を理論的に取り扱っている。主要な結果は、双極子・八極子基底で整理した低エネルギー有効擬スピンハミルトニアンを以てスピン液体を含む基底状態の相図の全貌を明らかにした点、および、非クラマース型の系での磁場誘起 1 次元量子相の実現を提案したことであり、実験で測定可能な物理量に、これらの量子状態の特徴がどのように現れるかを詳細に検証している。本論文は、英文で全 5 章からなる。

第 1 章では、量子スピン液体 (QSL) とスピン軌道結合系の多極子自由度に関する概念や関連する実験研究が紹介されている。次の二点が次章以降への準備と位置付けられる。まずパイロクロアスピンアイスの低エネルギー有効ハミルトニアンが量子電磁気型になることが示された。またパイロクロア格子の対称性の下で許される f 電子軌道の状態が、多極子自由度を用いて記述・分類された。この分類のもと、(i) 非クラマース縮退の Γ_3 軌道では双極子と四極子、(ii) クラマース縮退のある Γ_6 では双極子のみ、(iii) $\Gamma_4 \oplus \Gamma_5$ では双極子と八極子が現れると理解される。

第 2 章では、上述の三つの場合について、相互作用パラメータ空間に現れる相を、先行研究紹介の形で整理している。(i) ではゲージ平均場理論によって U(1) QSL、強四極子秩序、反強四極子秩序が報告され、そのうち U(1) QSL は $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ で実現するとされる。(ii) の Γ_6 では、U(1) QSL、強磁性、反強磁性秩序に加えて、クーロン強磁性秩序相が出現する。(iii) の $\Gamma_4 \oplus \Gamma_5$ は、ゲージ平均場理論で U(1) QSL、all-in all-out (AIAO) 双極子秩序、反強八極子秩序を含む最も多彩な相図が報告されている。 $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ で実現するとされる U(1) QSL には、双極子と八極子によるものの 2 種類が期待されてきた。その詳細は本論文の第 3 章の計算で明らかになる。

第 3 章では、(iii) の $\Gamma_4 \oplus \Gamma_5$ のハミルトニアンを、基底変換を用いながら古典レベルで既約化して解析的に扱い、双極子と八極子の表現空間におい

て、それぞれ完全に同型の AIAO 相、古典スピニアイス相が現れることを示した。更に、厳密対角化の手法を基に量子効果を加えた場合に、各々の空間で、古典スピニアイスが QSL 相に置き換わることを示し、その相境界を同定した。ここで、QSL 相が、0 フラックスおよび π フラックスで特徴づけられる二つの相に分かれることが明示されている。これらの相を実験的に同定する手掛かりとして、四つの QSL 相、二つの AIAO 相、それぞれのスピン相関関数を計算し、中性子実験結果と比較して $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ において双極子 AIAO 相が、 $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ では π フラックス八極子 QSL 相が実現すると結論づけている。各相の動的構造因子の計算も行われた。双極子と八極子の違いは励起ギャップの有無に現れるが、フラックス自由度は定性的な違いをもたらさない。フラックス自由度を明らかにする手段として、磁歪測定が提案された。

第 4 章では非クラマース縮退系の磁場誘起量子相を議論する。 Γ_3 を基底とする $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ の NMR スピン格子緩和時間 T_1 の温度依存性の実験結果は印加磁場方向で大きく異なる。[100] と [111] 磁場では低温に向けて減少し、励起ギャップの存在を示す。一方、[110] 磁場では、5K 以下で増大を示す。パイロクロア格子は [110] 方向と [1-10] 方向の二種類の一次元鎖からなる。[110] 磁場印加により、二種類の一次元鎖は偏極した強磁性鎖と横磁場下イジング鎖に分離する。横磁場下一次元鎖は典型的な量子相転移系としてよく知られている。擬スピンと格子の結合を頭に考えると、結合が実効的横磁場として働くことが示される。実効的な横磁場を取り入れた T_1 の計算は量子臨界挙動として、低温で増大する [110] 磁場印加の実験結果を再現する。

第 5 章では本論文の結果が簡潔にまとめられている。

以上のように、本論文はパイロクロア格子上の相互作用する擬スピンの織りなす量子相を探索し、フラックス自由度と多極子自由度で特徴づけられる 4 つの新奇量子スピン液体 (QSL) 相の存在を初めて系統的に示した。これらを実験的に同定する方法を提唱し、既知物質との関連が議論された。また、隠れた磁場誘起量子相転移を見出した。本研究は、Yon-Baek Kim 教授らとの共同研究であるが、アイデアと計算解析両面で、論文提出者の寄与が十分であると判断した。

したがって、審査委員全員が博士（理学）の学位を授与できると認める。