

論文内容の要旨

論文題目 ブリージングパイロクロア格子系 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の中性子散乱研究

(Neutron Scattering Study on the Breathing-Pyrochlore Lattice $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$)

氏名 白椽大

スピんに幾何学的なフラストレーションが存在し、古典的に自明な基底状態を描くことが困難な系を一般に幾何学的スピンプラストレーション系と呼ぶ。このような系においては幾何学的配置によって基底状態が多重に縮退している。これは熱力学第三法則の要請と反しているため、スピンプラストレーション系においては、本来摂動的な効果であるスピン・軌道相互作用やスピン自由度と他の自由度の共奏効果、また量子ゆらぎ等が状態の縮退開放に対して支配的な役割を演じ、真の基底状態が決定される。P.W. Anderson によって $S = 1/2$ の三角格子上で提案された Resonating Valence Bond (RVB) 状態は、スピンプラストレーションと量子ゆらぎの効果によって発現すると期待されるスピン液体状態である。微視的実験による RVB 状態の直接観測には今日においても至っておらず、RVB 状態およびその他のスピン液体状態の全容の解明は磁性物理学において未だ残された課題である。

$S = 1/2$ の正四面体系は単純な四体系でありながら、ハイゼンベルグ型の磁気相互作用を仮定した場合には基底状態に 2 重縮退が残る。少数有限系であり可解系ではあるが、実際の物質でこのようなスピン系が実現した場合には、その "縮退が残る" という性質によりスピンプラストレーション系のプロトタイプとみなせ、基底状態の縮退開放機構は自明ではない。そこでスピニャンテラー効果による縮退開放が予想され、その観測が求められてきた。

また四面体系はスピン液体状態やスピニアイス状態、Valence Bond Glass 状態等多彩な磁性を見せるパイロクロアスピン系の基礎ユニットである。大小二種の正四面体が頂点共有した構造を持つブリージングパイロクロアスピン系は正四面体系とパイロクロア格子系の間中間的な状態だとみなせる。 $S = 1/2$ ブリージングパイロクロアスピン系の基底状態は理論研究による候補の提案がいくつかなされているが、実験による研究例はないためより精力的な研究が待たれてきた。

本研究では Yb^{3+} の擬スピン $S = 1/2$ 正四面体ユニットを持つブリージングパイロクロア格子系 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ に着目した。結晶構造の歪みは報告されておらず、 Yb_4 は正四面体構造をしていると期待される。また、 $T > 1.5$ K における磁化率・比熱測定の結果はハイゼンベルグスピン $S = 1/2$ の正四面体クラスタが磁性を担うことを示唆し、微視的な手法によるスピン状態の探索が望まれてきた。

本論文では、当該物質の磁性を明らかにするために実施した中性子非弾性散乱実験と磁化測定実験、比熱測定実験の結果を中心題材として議論する。入射エネルギー $E_i = 154.4$ meV の中性子非弾性散乱実験によって三本の非分散な結晶場励起が観測された。第一励起状態の固有エネルギーは 38.2 meV 程度であり、十分低温においては擬スピン $S = 1/2$ で記述される。また、結晶場基底状態は容易面型の異方的な固有状態を有することがわかった。結晶場異方性によって、スピン $S = 1/2$ 間の磁気相互作用は異方性を持つため、それはハイゼンベルグハミルトニアンで記述されないことが示唆された。

詳細な磁気相互作用と磁気的な基底状態を得るために $E_i = 2.1$ meV の中性子非弾性散乱実験を実施した。最低温 $T = 1.5$ K において非分散な磁気励起が観測され、スピン $S = 1/2$ の正四面体クラ

スタが磁性を担うことがわかった。また磁気相互作用は異方的であったが、 $T = 1.5$ K における中性子非弾性散乱実験の分解能の範囲では基底状態の二重縮退が保たれており、当該物質はスピンプラステーション系のもっとも単純な系のひとつであることがわかった。

中性子散乱実験によって決定された $S = 1/2$ の正四面体クラスタのハミルトニアンを用いて、 $T > 1.5$ K における磁化や比熱の測定値が再現された。磁化曲線から決定されたゼーマン項は結晶場基底状態の異方性を反映した容易面型の異方性を有していた。しかし $1 \text{ K} \geq T \geq 0.024 \text{ K}$ の領域における比熱はブロードなピークを有し、 $S = 1/2$ の正四面体クラスタのハミルトニアンでは説明が出来なかった。その温度領域のエントロピー変化は $R \log 2$ であることが確かめられ、正四面体クラスタの基底二重縮退状態の縮退開放過程が観測されたことを意味した。クラスタ間相互作用は中性子非弾性散乱プロファイルによって無視できることが示唆されたため、比熱の異常の原因であるとは考え難い。この原因は四面体のスピニャンテラー効果がだろう。

四面体はスピニャンテラー効果によってどのような変形をするだろうか？まず、比熱のブロードなピークは単純な二準位系モデルを用いても理解が困難である。また結晶構造相転移は観測されていない。そのため全ての四面体が同等に歪むことで縮退が開放されているのではない。そこで動的なスピニャンテラー効果による四面体の格子振動、または静的ヤンテラー効果によるランダムネスを持った四面体の歪みが縮退開放過程の候補となる。

静的ヤンテラー効果によるシナリオを本研究の結果は否定しない。しかし有限温度の少数系に限った場合においては、歪みの異なる状態は互いに量子ゆらぎによって移り替わることが期待される。そのため双方のシナリオは非常に似通っており、共に格子歪みにゆらぎが存在することとなる。また、双方が同時に起こるといふ考えもまた自然だろう。縮退開放はスピニャンテラー効果による格子のゆらぎが原因であると言える。そこでは格子のゆらぎと共鳴した次々と一重項対が組み替わる磁気状態が誘起され得るだろう。当該物質の有限温度における縮退開放はその RVB 状態と類似した一重項の共鳴状態の生成によるものだと考えられる。