

論文審査の結果の要旨

氏名 白 椽大

本論文は6章からなり、第1章は幾何学的フラストレーション系の発展、モデル物質および、Yb化合物についてまとめられている。第2章では中性子散乱法に関する説明を行い、第3章では研究目的を述べている。第4章では結晶場励起の観測について、第5章では低エネルギー磁気励起の観測と基底状態の考察について、第6章ではまとめと展望についてそれぞれ述べられている。

本論文では、ブリーディングパイロクロア格子に着目し、その候補物質である $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ が取り上げられた。当該格子は、大小異なる四面体が交互に連なるパイロクロア格子である。一方の四面体の大きさを変数とすることにより、四面体クラスターを出発点とした摂動系としてパイロクロア格子を表現することが出来る。 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ において、J-PARCのHRC分光器と、オーストラリア原子核科学技術機構のPELICAN分光器を用いて、中性子非弾性散乱実験が行われ、当該物質の詳細な磁気モデルの決定と、基底状態の考察がなされた。さらに、共同研究者により測定された極低温比熱・磁化に対して解析と考察が行われた。

HRC分光器では幅広いエネルギー領域における磁気励起測定が行われ、 Yb^{3+} イオンの4つのKramers二重項準位を反映した3本の結晶場励起が観測された。中性子スペクトルの解析は、 $J=7/2$ の合成角運動量により構成される C_{3v} の対称性を有する結晶場Hamiltonianを用いて行われた。遺伝的アルゴリズムを用いた非線形最小二乗法によるフィッティングにより最適な結晶場パラメータが得られ、中性子スペクトルは再現された。さらに、フィッティングにより決定された結晶場ハミルトニアンにより、独立に測定された磁化率も再現された。結晶場基底状態は二重項状態であり第一励起エネルギーは38.2meVであることから、30K以下の低温では Yb^{3+} イオンが擬スピン1/2で近似されることが明らかにされた。さらに、基底状態の波動関数から、擬スピンは容易面型の異方性を有することが明らかにされた。

PELICAN分光器では、低エネルギー磁気励起の観測が行われた。2 meV以下の領域に、非分散な磁気励起が4本観測された。これらのピーク幅は、実験分解能程度であったことから、 Yb^{3+} 四面体間の相互作用はほぼ無視することが可能であり、擬スピン1/2四面体で磁気励起が記述されることが示唆された。さらに、複数の温度での測定を行ったところ、中性子スペクトルに温度依存性が観測された。これらは、単純なハイゼンベルグモデルでは説明できないものであった。そこで、得られたスペクトルを、異方性項を含むスピン $S=1/2$ 四面体ハミルトニアンにより解析を行った。その結果、相互作用テンソルの非対角項に、対角成分と同程度の反対称成分を持たせることにより、スペクトルが定量的に再現された。等方

的なハミルトニアンでは、基底状態、第一励起状態および第二励起状態はそれぞれ2重縮退、9重縮退、5重縮退の状態とされていたが、種々の異方性の効果によって第一励起状態は4本の状態、第二励起状態は2本の状態に分裂する。基底状態は等方的な場合と同様に二重縮退であるが、 $S=0$ ではなく磁性を有している。先行研究で報告された磁性や比熱は、本研究で決定されたスピンハミルトニアンで再現された。さらに磁化曲線の解析から g 因子は容易面的であることが示され、結晶場基底状態が容易面的であるとするHRC分光器による中性子実験と一致していることが確認された。

PELICAN分光器により得られた1.5Kのスペクトルは、実験分解能の範囲内で、二重縮退した基底状態を有するスピンハミルトニアンで説明された。しかし絶対0度では熱力学第三法則により基底状態の縮退は許されない。したがって、高分解能なプローブによる極低温実験を行えば、縮退解放過程が観測されるはずである。共同研究者により測定された最新の極低温比熱結果によると、50mKでブロードな極大が観測され、0.5K以下で自由度2のエントロピーの開放が観測された。その起源について、四面体間相互作用によるダイマー秩序化、スピнкаイラリティ相の出現、スピン・ヤーンテラー歪みによる不均一存在、動的スピン・ヤーンテラー歪み、などの可能性が議論された。縮退解放機構を明確にするために、高分解能中性子実験による四面体間相互作用の観測、超音波によるヤーンテラー歪みの検出、強いDM相互作用を考慮したブリージングパイロクロアスピン系の理論的研究の必要性、などの将来展望が示された。

本論文の研究成果は、フラストレーション磁性体の中性子スペクトルの精密測定と詳細な解析を含むと同時に、そこで得られた知見をもとに基底状態の縮退開放過程の考察を含むものであり、学術的な意義は深い。本論文は、左右田稔氏、世良正一氏、木村健太氏、伊藤晋一氏、横尾哲也氏、Dehong Yu氏、益田隆嗣氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、解析、考察を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。したがって、博士(科学)の学位を授与できると認める。

以上 2000 字