

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	フッ化物籠目格子反強磁性体における新奇基底状態
Title(English)	Unusual Ground State Observed in a Fluoride Family of Kagome Lattice Antiferromagnets
著者(和文)	片山和哉
Author(English)	Kazuya Katayama
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10059号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:田中 秀数,吉野 淳二,江間 健司,笹本 智弘,髭本 亘
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10059号, Conferred date:2016/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲 第 号		学位申請者氏名		片山 和哉	
論文審査 審査員	主 査 審査員	氏 名 田中 秀数 吉野 淳二 江間 健司	職 名 教 授 教 授 准教授	審査員	氏 名 笹本 智弘 髭本 亘	職 名 准教授 教 授

論文審査の要旨 (2000 字程度)

その名が竹籠の編目に由来する籠目格子上に、反強磁性的交換相互作用で結合したスピンを配置した籠目格子反強磁性体は、強い幾何学的フラストレーションとスピン状態の自由度の多さを持つことが特徴である。これにスピンの大きさ S が小さい場合に顕著な量子効果が加わると、新奇な量子多体効果が期待されることから、 $S=1/2$ 籠目格子反強磁性体に対する活発な理論研究がなされ、valence-bond-solid (VBS)やスピン液体などの非古典的基底状態、あるいは磁場中での磁化の量子化など、巨視的量子磁気現象が現れることが理論的に予言されている。これに対して、 $S=1/2$ 籠目格子反強磁性体のモデルとなる物質が少ないことから、実験的研究は立ち遅れている。これまでは Volborthite や Herbersmithite などの天然鉱物を用いた実験がなされているが、核心に迫る研究は少ない。本論文は、異なる基底状態を持つ 2 つの $S=1/2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ と $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ の混晶系 $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ における基底状態と量子相転移、及び古典スピン模型で記述されることが予測される $S=2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Cs}_2\text{LiMn}_3\text{F}_{12}$ の基底状態と熱力学特性の実験研究をまとめたものである。

本論文は「Unusual Ground States Observed in a Fluoride Family of Kagome Lattice Antiferromagnets」と題し、以下の 5 章からなる。

第 1 章「Introduction」では、まず三角格子反強磁性体や籠目格子反強磁性体に現れる幾何学的フラストレーションの概念を述べている。続いて、交換相互作用が等方的な Heisenberg 模型で表される籠目格子反強磁性体では、格子に特徴的なスピン状態の自由度の多さにより、古典的な基底状態が無数に縮退すること、スピンが大きい場合には量子揺らぎによって $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造が安定化されること、そして $S=1/2$ の場合にはスピンの singlet 状態が周期的に配列した VBS や種々の singlet 状態の重ね合わせからなるスピン液体といった非古典的無秩序状態が基底状態になるなどの理論的背景を述べている。また、交換相互作用にランダムネスがある場合には、singlet 結合がランダムに配置した valence-bond-glass (VBG) が出現するという最近の理論を紹介している。続いて、これまでに行われた籠目格子反強磁性体の実験についてまとめ、本研究の対象物質である $S=1/2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ と $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ に関する従来の研究を詳しく述べ、基底状態が singlet 状態である $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ と秩序状態である $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ との混晶系 $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ では、Cs 濃度 x の連続的变化による基底状態の相転移（量子相転移）と VBG 状態の出現が期待されるという研究の動機を述べている。また、これまで殆ど研究がなされていない $S=2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Cs}_2\text{LiMn}_3\text{F}_{12}$ の結晶構造についてまとめを行っている。

第 2 章「Experiment Detail」では、まず信頼できるデータを得るために必要な純良大型単結晶育成方法と育成のための工夫が詳しく述べられている。続いて、磁化測定と緩和法による比熱測定の説明がなされ、更に磁気構造と磁気秩序の有無を調べるために行った中性子回折実験と muon spin relaxation/rotation (μSR) 実験の説明が述べられている。

第 3 章「Quantum Phase Transition in $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ 」では、 $S=1/2$ 籠目格子反強磁性体混晶系 $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ における磁化率の解析を厳密対角化で行い、 $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ での値の異なる 4 種類の最近接交換相互作用が x の増加に伴い、平均的には一様な値に近づくことを示している。続いて、低温磁化率の解析から、励起ギャップが x の増加に伴い減少し、臨界濃度 $x_c=0.53$ で消失すること、また、 $x_c < x$ では相転移温度 T_N が x の減少に伴い低下し、 x_c でゼロになることを示している。これらの結果より臨界濃度 $x_c=0.53$ で基底状態が無秩序状態から秩序状態へ量子相転移をすることを示している。更に $x_c=0.53$ の試料について μSR 実験を行い、温度 0.3 K まで磁気秩序がないことを確認している。そして $0 < x < x_c$ の無秩序状態では有限な磁化率が明確に残ること、及び最近の理論の結果を参照し、 $0 < x < x_c$ で観測された無秩序状態は交換相互作用のランダムネスによる VBG であることを結論している。

第 4 章「Magnetic Properties of $\text{Cs}_2\text{LiMn}_3\text{F}_{12}$ 」では、 $S=2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Cs}_2\text{LiMn}_3\text{F}_{12}$ について結晶軸を決定した単結晶を用いた磁化測定から交換相互作用を決定し、 $T_N=2$ K で磁気相転移が起こること示している。続いて、比熱測定から $T_N=2$ K で磁気相転移が起こること確認し、 T_N 以下の低温比熱が T^2 に比例することから、2 次元性が良いことを確認している。更に中性子回折実験により、磁気秩序相の磁気構造が典型的な秩序構造である $q=0$ 構造でも $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造でもない、伝搬ベクトルが $q=(1/3, 0, 0)$ で表される新しい磁気秩序であることを示している。

第 5 章「Conclusions and Outlook」では、上記の研究を総括して、 $S=1/2$ 籠目格子反強磁性体混晶系 $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ では $x_c=0.53$ で無秩序状態から秩序状態への量子相転移が起き、 $0 < x < x_c$ の無秩序状態は VBG であること、また $S=2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Cs}_2\text{LiMn}_3\text{F}_{12}$ の秩序構造は、伝搬ベクトルが $q=(1/3, 0, 0)$ で表されるこれまで見られなかった新しい構造であることを結論し、今後の課題と展望を述べている。

以上のように申請者は、自ら試料結晶を育成し、磁化測定、比熱測定、 μSR 実験、及び中性子回折実験とその解析から上記の重要な結果を得ている。本研究はランダムネスのある量子籠目反強磁性体の新局面を切り開くもので、フラストレーションと量子効果が顕著な磁気現象を理解する重要な指針を与える研究として高く評価される。これは申請者の研究能力の高さと学識の深さを表しており、本論文は博士（理学）の学位論文として十分な価値を有すると判断される。