

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Bond Randomness Effect in Frustrated Quantum Antiferromagnets
著者(和文)	渡邊正理
Author(English)	Masari Watanabe
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11693号, 授与年月日:2022年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:田中 秀数,平山 博之,笹本 智弘,髭本 亘,西田 祐介
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11693号, Conferred date:2022/3/26, 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

(博士課程)

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	渡邊 正理	
		氏名	職名	氏名	職名
論文審査 審査員	主査	田中秀数	教授	西田祐介	准教授
	審査員	平山博之	教授		
		笹本智弘	教授		
		髭本 亘	教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

幾何学的フラストレーションの強い量子反強磁性体の典型例であるスピン 1/2 の三角格子 Heisenberg 反強磁性体では、基底状態が秩序状態になることが理論的コンセンサスになっており、実験的にもモデル物質による研究で矛盾のないことが示されている。一方、磁気秩序を伴わず並進対称性が破れないスピン液体的基底状態を示す物質の報告も多くあり、スピン液体的基底状態の起源が問題になっている。これらの物質では、電荷の不均一やイオン配置の無秩序があり、これによって交換相互作用にランダムネスが生ずることが知られている。最近、この交換相互作用のランダムネスによって外見上スピン液体のような基底状態が生ずることが理論的に示され、その状態が様々な結合エネルギーを持つ singlet 状態が凍結した random singlet (RS) 或いは valence bond glass (VBG) 状態であることが示されている。フラストレーションの強い量子反強磁性体の別の模型として正方格子上で最近接交換相互作用 J_1 と次近接交換相互作用 J_2 が競合するスピン 1/2 正方格子 J_1 - J_2 Heisenberg 反強磁性体がある。この $S=1/2$ 正方格子 J_1 - J_2 Heisenberg 反強磁性体における交換相互作用のランダムネスの効果に関しては、モデル物質が少ないこともあり、研究は進んでいない。本論文はこの $S=1/2$ 正方格子 random bond J_1 - J_2 Heisenberg 反強磁性体の開拓とそれが示す量子力学的無秩序状態に関する実験的研究をまとめたものである。

本論文は「Bond Randomness Effect in Frustrated Quantum Antiferromagnets」と題し、以下の 5 章からなる。

第 1 章「Introduction」では、まずスピン系のフラストレーションの概念を述べた後、スピンが 1/2 で量子効果が顕著な場合（フラストレート量子スピン系）に基底状態として期待されるスピン液体状態の概念を述べている。次にスピン液体的磁性が報告されている κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₂ や YbMgGaO₄ などの $S=1/2$ の三角格子反強磁性体及び籠目格子反強磁性体 ZnCu₃(OH)₆Cl₂ の実験結果をまとめ、これらの物質では電荷の不均一やイオン配置の無秩序が存在し、これによって交換相互作用にランダムネスが生ずることを述べている。続いて、交換相互作用にランダムネスのあるフラストレート量子スピン系に対する厳密対角化及び J - Q 模型を用いた量子モンテカルロ法による理論を紹介し、上記の物質で観測された低温の熱力学特性が再現されること及び基底状態が singlet の凍結した RS 或いは VBG になることなど、理論研究の主な結論をまとめている。次に真のスピン液体とランダムネスによる RS 或いは VBG を区別するには、ランダムネスのあるフラストレート量子スピン系の特性を詳しく研究する必要がある、そのために本研究では $S=1/2$ 正方格子 random bond J_1 - J_2 Heisenberg 反強磁性体の研究を行ったとの研究の動機と目的が述べられている。

第 2 章「Experimental Detail」では、実験試料の合成法と本研究で用いた磁化測定、比熱測定、X 線・中性子回折、 μ SR 実験などの原理と実験条件を説明している。

第 3 章「Effect of Weak Bond Randomness in Spin-1/2 J_1 - J_2 Quasi-Square-Lattice Heisenberg

Antiferromagnets: SrLaCuSbO₆ and SrLaCuNbO₆」では、二重ペロブスカイト構造の SrLaCuSbO₆ と SrLaCuNbO₆ が $S=1/2$ 正方格子 J_1 - J_2 Heisenberg 反強磁性体の候補物質になり、その電子軌道から Sb 系では最近接交換相互作用 J_1 が支配的になり、Nb 系では次近接交換相互作用 J_2 が支配的になることが期待されることを述べている。次に両物質の結晶構造を粉末 X 線・中性子回折実験と Rietveld 解析で精密に決定した結果が述べられている。また、磁化率測定と比熱測定で、両物質の磁気相転移温度を特定している。更に磁化率の解析に必要な g 値を電子スピン共鳴で決定している。続いて磁気秩序相での粉末中性子回折実験から、Sb 系では Néel 型磁気秩序が、Nb 系では columnar 型の磁気秩序が生じていることを示し、期待通りに Sb 系では J_1 が支配的であり、Nb 系では J_2 が支配的であることを実証している。また、秩序相での部分格子磁気モーメントの大きさが理論や類似物質で観測されている値と比べて 2/3 程度に小さくなっていることを指摘し、これが Sr²⁺ と La³⁺ の位置の無秩序によって生ずる交換相互作用の弱いランダムネスによるものであることを指摘している。次に上記の交換相互作用の条件下で、磁化率の高温展開の理論を実験で得られた両物質の磁化率の温度依存性にフィットし、両物質の交換相互作用を求めている。

第 4 章「Experimental Detail Effect of Strong Bond Randomness in Spin-1/2 J_1 - J_2 Square-Lattice Antiferromagnets: SrLaCuSb_{1-x}Nb_xO₆」では、まず $S=1/2$ 正方格子 random bond J_1 - J_2 Heisenberg 反強磁性体の理論についてのまとめと自身の研究を含めてこれまでに行われた類似物質系に関する実験研究をまとめている。次に最近接交換相互作用 J_1 が支配的な SrLaCuSbO₆ と次近接交換相互作用 J_2 が支配的な SrLaCuNbO₆ の混晶系 SrLaCuSb_{1-x}Nb_xO₆ ($x=0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$) について、試料が相分離せず固溶していることを X 線回折で確認している。続いて磁化率測定と比熱測定から、混晶系では磁気相転移が消失すること、母物質では見られない低温での Curie-Weiss 則的な磁化率の増大と、温度に比例する比熱が観測され、 $S=1/2$ 正方格子 random bond J_1 - J_2 Heisenberg 反強磁性体の理論と定性的に一致することを述べている。また、さらに温度を下げると理論とは異なり、比熱の急激な減少が起こることを述べている。次にモデルを立てて比熱の温度依存性を解析し、理論が予想する磁化率と比熱のスケーリング則が成立しないことを述べている。続いて $x=0.2$ の試料で行った μ SR 実験から 35 mK まで磁気秩序はないことを示している。また、 μ SR スペクトルの解析から、基底状態においてもスピンの揺らぎが残っていることを示し、混晶系の基底状態が少数の相互作用を殆ど受けないスピンを持つ RS 状態であることを結論している。これまでの理論とは異なり、本混晶系ではごく少量の Nb ドープによって磁気秩序が消失するが、これが本混晶系におけるランダムネスの入り方が理論モデルと異なるために生ずることを指摘している。

第 5 章「Summary and Outlook」では、上記の研究を総括し、今後の研究の方向について述べている。

以上のように申請者は、自ら狙いをつけた試料を作成し、磁化測定、比熱測定、電子スピン共鳴、X 線回折、中性子回折及び μ SR 実験とその解析から上記の重要な結果を得ている。本研究は交換相互作用にランダムネスのあるフラストレート量子磁性体の新局面を切り開くもので、ランダムネスが誘起する量子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。