論文の要約

報告番号	第 1194 号	氏 名	飯塚亮介
学位論文題目	イッテルビウム絶縁体 Y b M S $_2$ (M = K , A g)における低次元磁性		

論文の要約

※「目的・問題提起・考察・まとめ」のように論文の構成に沿ったかたちでまとめられた もので、 論文の中身が分かるもの

イッテルビウム化合物の中には、 Yb^{3+} イオンがJ=7/2という大きな磁気モーメントを持つにも関わらず、結晶場効果によって低温では基底状態となるクラマース二重項が有効的に量子スピン $S_{\rm eff}=1/2$ として振る舞い、量子スピン系が発現する例が少数ではあるが存在する。量子スピン系とはS=1/2の状態が実現する物質において、量子ゆらぎの効果が顕著に現れるものの総称であり、特に、低次元性や幾何学的な磁気フラストレーションを有する格子系では、磁気秩序が抑制され、対称性の破れを伴わない特異な基底状態とその性質を反映した励起状態が一揃いとなって出現することがある。量子スピン系としての振る舞いが報告されたYb化合物は少数キャリアー系あるいは絶縁体に限られており、RKKY相互作用による磁気秩序が抑制されることで、上記の結晶場効果による $S_{\rm eff}=1/2$ 状態と合わせて量子スピン系発現に適した舞台が成立している。本論文では、Yb絶縁体を量子スピン系のフロンティアとして注目し、 $YbMS_2$ (M=K, Ag)の結晶合成に取り組み、新規量子スピン系の探索を目指した。

本研究では、KClフラックスを用いた結晶合成法により $YbKS_2$ 単結晶試料の育成に成功した。また、固相反応法を用いて $YbAgS_2$ の多結晶試料の合成に成功した。これらの試料に対して、SQUID磁束計を用いた磁化測定、熱緩和法による比熱測定を行った。 $YbAgS_2$ に対しては、さらに電子スピン共鳴測定とJ-PARC施設における中性子回折実験、ミュオンスピン回転測定を行った。

YbKS₂は、これまでに量子スピン液体候補物質として報告されているYbMgGaO₄が抱える結晶学的な問題点を克服し得る理想的な二次元三角格子を有する物質である。単結晶を用いた磁化測定と比熱測定により0.4 Kまで磁気秩序が存在しないことを示した。低温の帯磁率の解析から磁気相互作用の大きさは二次元三角格子の面内と面間でそれぞれ $J_{ab}=4.0$ 3 K, $J_c=1.7$ Kと見積もられた。これらの値よりも十分低温まで磁気秩序を生じないことから、YbKS₂は有力な量子スピン候補物質だといえる。さらに比熱において低温にブロードなダブルピーク構造を観測した。以上の結果は、二次元三角格子の幾何学的な磁気フラストレーションに起因する、磁気秩序とは本質的に異なる基底状態が実現していることを示すものである。

YbAgS $_2$ はYb 3 +イオンの一次元ジグザグ鎖による低次元磁性が期待できるYb絶縁体である。磁化測定と比熱測定から $T_N=6.6$ KというYb化合物としてはかなり高い反強磁性転移温度を有する物質であることを明らかにした。中性子回折実験では磁気転移温度以下で非常に弱い磁気回折ピークが1つだけ観測され、これは磁気モーメント自体が非常に小さく、かつ長周期の磁気構造の実現を示唆するものである。さらに、帯磁率の温度依存性において T_N 直上の温度領域でブロードな異常を観測した。この振る舞いに対して、一次元反強磁性鎖模型で説明可能なことを示した。以上の結果は、低温においてジグザグ鎖構造を反映した一次元量子スピン系が実現していることを支持するものである。

本研究の遂行により、有望な量子スピン系の舞台でありながら報告例の少ないYb絶縁体に関して、新たにYbKS2、YbAgS2という二つの量子スピン系を見出すことに成功し、研究の版図を広げた。本研究は、今後の量子スピン系の研究に資するものであり、Yb絶縁体を念頭においた量子スピン系の物質探索の指針となることが期待できる。