

氏名	まち だ よう 町 田 洋
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学位記番号	理 博 第 3116 号
学位授与の日付	平 成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	理 学 研 究 科 物 理 学 ・ 宇 宙 物 理 学 専 攻
学位論文題目	Magnetism and Transport Phenomena in the Geometrically Frustrated Kondo Lattice $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ (幾何学的にフラストレートした近藤格子系 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ における磁性と輸送現象)
論文調査委員	(主 査) 教 授 前 野 悦 輝 教 授 山 本 潤 助 教 授 芝 内 孝 禎

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、パイロクロア型構造の酸化物  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  における、 $\text{Pr}^{3+}$  イオンのフラストレートした局在スピンの  $\text{Ir}$  の遍歴電子とが織りなす、酸化物では珍しい近藤格子の形成と大きなホール係数について、その実験事実とスピン・カイラリティー機構による解釈をまとめたものである。

「第1章：序論」では、まず長距磁気秩序を抑制して新奇な電子状態を実現するための手段としての幾何学的にフラストレートした磁性体の研究の重要性について述べ、その例として、パイロクロア酸化物で知られている古典スピン液体状態やスピンアイス状態について解説している。次にパイロクロア酸化物強磁性体の異常ホール効果をスピン・カイラリティー機構で説明しようとする研究の背景についても述べている。そして、 $\text{Ir}$  を含むパイロクロア酸化物、特に  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  に対してのこれまでの京都大学の研究室での成果を概観している。

「第2章：実験」では、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  のフラックス法を用いた単結晶試料育成方法の詳細の記述、ルイジアナ州立大学との共同研究による単結晶 X 線回折の構造解析結果、自作比熱測定装置の詳細と性能、東大物性研究所との共同研究によるフェラデー法低温磁化測定装置の詳細、そして市販装置を利用したホール係数測定の詳細を解説している。

「第3章： $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  における結晶場効果」では、 $\text{Pr}^{3+}$  イオン ( $J=4$ ) の結晶電場下での基底状態のエネルギー準位が主に  $M_J=\pm 4$  のダブルレットであることを示した、ジョンズ・ホプキンス大学との共同研究の中性子非弾性散乱実験の結果について述べている。

「第4章：スピン液体的振る舞い」では、ホール効果以外の  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  の主な電子物性について記述している。まず、電気抵抗率と磁化率の温度依存性が、 $\text{Pr}^{3+}$  スピンの局在モーメントと  $\text{Ir}$  伝導電子との近藤効果として理解できることを論じている。高温での  $\text{Pr}$  スピン間 RKKY 相互作用を反映するワイス温度の絶対値 20K よりずっと小さな 0.12K において、ようやくスピン凍結を示唆する磁気異常が現れることは、パイロクロア格子に備わった幾何学的フラストレーションの効果であるといえる。20K 以下では  $\text{Ir}$  の伝導電子による近藤効果が顕著になり、 $\text{Pr}$  の磁気モーメントは20%程度遮蔽を受け、それと同時に  $\text{Pr}$  イオン間の反強磁性相互作用のエネルギーが顕著に減少する。異方的磁化過程の測定結果より、 $\text{Pr}$  スピンは 1.7K 以下の低温では僅かに強磁性的に相互作用しており、少なくとも弱磁場中では、 $\text{Pr}$  の各正四面体の2つのスピンの外向き、他の2つが内向きのスピンアイス状態が実現していると考えられる。

「第5章： $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  における異常ホール効果」では低磁場でのホール係数が、1.7K を境に低温では急速に増大することを示した。1.7K 以下では電気抵抗率はほとんど温度変化しないため、この振る舞いは従来から知られた磁性体でみられるスピン・軌道散乱機構での異常ホール効果では説明が困難である。また磁場異方性を測定すると、磁場増加と共に磁化は増大を続けるのに対して、 $H//111$  の場合のみ、ホール係数が減少に転じるという顕著な振る舞いを見出した。そしてこれらの結果が、スピン・カイラリティー機構によって、定性的、半定量的に説明可能であるというモデルを小野田氏らとの共同研究で提唱している。このモデルは、 $\text{Pr}$  イオンと  $\text{Ir}$  伝導電子との交換相互作用に基づく、 $\text{Ir}$  の格子点におけるスピン配置を

考察し、それに伴う仮想磁場がホール効果を生むというものである。

「第6章：結論」では、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ で新たに見出された、近藤格子系の形成と、スピン・カイラリティー機構に基づく異常ホール効果に対する以上の結果を簡潔にまとめている。

### 論文審査の結果の要旨

結晶構造の幾何学的特性によって、フラストレートしたスピン構造を持つ磁性体の研究は、最近大きな進展を遂げつつあり、磁性研究の新しい潮流を生み出している。これらの磁性体では、等価なエネルギーを持つスピン配列が巨視的な縮重度を持つため、スピン間の近接相互作用エネルギーの大きさに比べて十分低温まで秩序状態の形成がしばしば抑制される。その結果、従来安定化し得なかった状態・現象が出現することも期待される。その代表的な例のひとつが $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ などの絶縁体でみられる「スピンアイス」の現象である。従来の絶縁体スピンアイスではスピン間の強磁性的相互作用は双極子相互作用が主に担っている。これに対して、同じ結晶構造の $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は金属導電性を持ち、なおかつ低温磁場中比熱がスピンアイスに類似の振る舞いをすることから興味深い物質として有力視されていたものの、単結晶化が困難であることから詳しい研究は進んでいなかった。町田氏がKFをフラックスに使うことで単結晶育成に成功したことは、本研究におけるいくつかの大きな成果につながる重要なステップであったといえよう。

町田氏はまず、中辻氏らとの密着した共同研究で、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ ではIrに由来する伝導電子を媒介としたRKKY相互作用がPrスピン間相互作用を支配し、酸化物では珍しい近藤効果を示すことを明らかにした。また、幾何学的フラストレーションによってPrスピンの反強磁性磁気秩序が抑制された結果、低温では反強磁性相互作用が次第に弱まり、強磁性的に転じる可能性を磁化測定結果から指摘した。これまでに研究が進んでいるスピンアイス物質は絶縁体で、強磁性的双極子相互作用が支配的であるのに対して、この系でのスピン液体的振る舞いは「金属スピンアイス状態」とも呼べるものである。

町田氏の博士論文の研究成果の中心は、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ において、低温で従来の異常ホール効果の磁化・電気抵抗依存性からは大きく逸脱した新奇な異常ホール効果を発見し、それに対してスピン・カイラリティー機構での解釈を進めたことである。従来、ホール効果に対しては、伝導電子の示す正常項に加えて、磁性体ではスピン・軌道相互作用によって伝導電子の軌道が強く影響を受けて生じる異常項が広く知られている。これらに対して、最近スピン・カイラリティー機構による新奇な異常ホール効果が提唱されている。電子スピンの結晶中の異なる格子位置において、非平面配置の交換相互作用を強く受けることで、そのスピン変調に等価な仮想磁場の元での運動から大きな異常ホール効果を生み出すというものである。その実現性については現在、活発な論争が続いている。町田氏は長距離磁気秩序の発生していない $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ において、強磁性体と比肩する大きなホール効果を見出し、また印加磁場の方向によっては、磁化が増大する一方で、異常ホール効果が減少する振る舞いを観測し、これらをスピン・カイラリティー機構で見事に説明することに成功している。今後、スピン・カイラリティー機構による異常ホール効果の典型例として、本研究結果が広く認知される可能性も期待できる。

また、「金属スピンアイス状態」が実現しているならば、残留エントロピーの存在に関して、従来のスピンアイスとは異なる特質を持つのかどうかを比熱から明らかにすること、スピン・カイラリティー機構で期待される強磁場でのホール効果の符号反転を検証することなど、今後の研究展開にも指針を示した研究成果であると評価できる。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として大いに価値のあるものと認める。また、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。