

氏名	ひがし なか りゅう じ 東 中 隆 二
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学位記番号	理 博 第 2973 号
学位授与の日付	平成 18 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	Field Orientation Control of Geometrical Frustration in the Spin Ice Dy ₂ Ti ₂ O ₇ (スピニアイス物質 Dy ₂ Ti ₂ O ₇ の幾何学的フラストレーション状態の磁場による制御)
論文調査委員	(主査) 教授 前野悦輝 教授 小貫 明 助教授 石田 憲二

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、幾何学的にフラストレートした磁性体の代表例であるスピニアイス物質 Dy₂Ti₂O₇ について、その低温でのスピン・フラストレーション状態を方位制御した磁場によって制御することにより、新たなフラストレート状態や磁場誘起相転移などの新現象が起ることを見出した研究をまとめたものである。Dy₂Ti₂O₇ の結晶構造は、パイロクロア格子と呼ばれる連結した正四面体からなり、各正四面体の頂点には互いに強磁性的に相互作用するイジング異方性スピン Dy³⁺ が位置する。最近接相互作用エネルギーは約 1.1K で強磁性的であるため、全てのスピン対が最低エネルギー状態にはなれず、低温では 4 個のスピンのうち 2 個が外向き、2 個が内向きのいわゆる 2-in, 2-out のフラストレートしたスピン配置が安定となる。しかしこの配置は巨視的に縮退しており、その場合の数から得られるエントロピーは全スピンエントロピーの約 3 割も占め、氷 H₂O と統計力学的に同様、残留エントロピーを持つことが期待される。

本論文の「第 1 章：序章」では、幾何学的フラストレーションの物理学的定義、氷 H₂O とスピニアイスとの比較、そしてスピニアイス物質のこれまでの研究についての紹介を行った後、本研究の目的である磁場による幾何学的フラストレーションの制御について動機付けを行い、本論文の各章の内容の概観を行っている。

「第 2 章：実験」では、純良単結晶育成の方法と、比熱・磁化率・誘電率等を精確に方位制御した磁場中で低温まで測定する装置の詳細について記述している。

「第 3 章：カゴメアイス状態」では、新たに見出した磁場誘起の残留エントロピー状態を記述している。結晶の [111] 軸方向に磁場を印加した場合、ゼロ磁場下で生じる「パイロクロア・スピニアイス」とは異なる残留エントロピー状態が生じることを実験的に見出し、そのエントロピーを比熱測定から定量化した。さらに高磁場では、全てのスピンの印加磁場方向に成分を持つ秩序配列へと変化する。パイロクロア格子は [111] 方向にカゴメ格子面と三角格子面が交互に積層した構造とみなせるが、この新たな残留エントロピー状態は、三角格子面上のスピンが印加磁場方向に整列し、その一方でカゴメ格子上のスピンの磁気フラストレーションを持つ状態であるため「カゴメアイス」と呼ぶことができる。

「第 4 章：三角格子上スピンの磁場誘起相転移」では、パイロクロア格子に含まれる三角格子上のスピンに働く最近接相互作用を外部磁場によって打ち消した場合に生じる相転移を議論している。この相転移が起る磁場方位・強度・温度等の詳しい分析から、その機構を明らかにし、理論計算との比較から第三近接の交換相互作用の大きさを定量評価した。

「第 5 章：スピニアイス状態の磁気緩和」では、スピニアイスの残留エントロピー状態の本質に対する知見を深めるために行った、最近接相互作用エネルギーより十分低温でスピンの凍結しているのか緩和可能なかを判定する実験を記述している。安定な 2-in, 2-out スピン配置を有するような [100] 方向の磁場を印加し、次に消磁した後のスピン緩和の有無を、高感度の誘電率測定によって明らかにしたものである。実験結果は 0.45K の低温でもスピンの緩和していることを示している。論文では低温での振る舞いが、より高温での指数関数的振る舞いからずれて高い緩和率を示す理由を説明しうるモデルを提示している。

「第6章：結論」ではこれらの結果を総括し、磁場印加によってフラストレーションを制御することによって、スピニアイスの静的振る舞いについては主な現象の機構理解が得られたこと、一方、低温での動的性質については今後のさらに進んだ研究が必要であると結論付けている。

論文審査の結果の要旨

幾何学的にフラストレートした磁性体の研究は、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「スピニアイス」である。1999年にスピニアイス物質 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の多結晶の比熱測定から、低温まで大きなエントロピーが残ることが明らかになって以来注目が増し、世界的に活発な研究が繰り広げられている。水 H_2O における水素の配列と統計力学的には等価性を持つが、スピニアイスは磁場によってそのフラストレート状態の制御が可能であるという水には無い顕著な特徴を持つ。本論文は、これを活かして精確に方位制御した磁場中での測定を通して、いくつかの新しい現象を見出した研究成果をまとめたものである。

本研究の主な成果として、まず第一に結晶の[111]方向の磁場中で、スピニアイス状態とは異なる、「カゴメアイス状態」という新たな残留エントロピー状態の形成を発見したことが挙げられる。この成果は、3次元的なパイロクロア格子上的の幾何学フラストレーションであるスピニアイス状態に対して、カゴメ面内の2次元的なフラストレーション状態を作り出した点に意義がある。また磁場増加に伴って、カゴメ面のスピンの1/3について、最近接相互作用と印加磁場からのゼーマン相互作用が丁度打ち消す臨界磁場では、0.4K以下で一次相転移が起こるのに伴い、その転移線終端としての臨界点における発散的比熱ピークを観測し、さらにこれらを含む磁場・温度平面での状態相図を決定した。

もうひとつの主要な成果は、多結晶で報告されながらそのメカニズムが5年間未解明であった、0.3Kの低温での磁場誘起相転移について、その機構を遂に明らかにしたことである。パイロクロア構造はカゴメ格子面と三角格子面の[111]方向への積層構造と見ることができる。東中氏は単結晶試料を用いて、カゴメ格子面のスピンを面に平行な外部磁場で固定し、さらにそれに垂直な磁場を同時に印加することで、三角格子面上のスピんに働く最近接スピン間相互作用を打ち消し、その場合、次近接以上の双極子相互作用と交換相互作用によって低温で長距離秩序化することを明らかにした。カナダの理論家との交流も通じて、第3隣接交換相互作用エネルギーの値を評価することまで行っている。この成果の意義は、スピニアイスに対して、遠距離相互作用の存在が定性的にも重要な役割を担う現象をおそらく初めて示した点にある。

さらに発展的な内容として、低温磁気緩和の実験も行なって、今後のスピニアイスの動的振る舞いの理解の基礎となりうる重要な実験事実を得ている。

これらの研究を通じて東中氏は、自ら純良な単結晶の育成、低温装置の設計・製作、低温実験・解析を全てこなしている。そして世界的にも注目され研究競争も激しい分野で、いくつかの目立った成果を挙げたと評価できる。

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。