

学位（博士）論文の要約

東京理科大学 基礎工学研究科 材料工学専攻

廣戸 孝信

物質の磁性は、固体物理学における主要な研究分野の一角をなすばかりでなく、磁性体は現代社会を支える重要な基幹材料の一つとなっている。本博士論文は、新たな磁性体として局在スピンを正 20 面体の頂点に配したスピン正 20 面体からなる固体に着目し、その磁性に関する研究を纏めたものである。

正 20 面体クラスター固体は単位胞に百個以上の原子を有する複雑構造固体であり、低温における無拡散型規則-不規則相転移を初めとした特異な物性を示すことから基礎学術的な観点からも近年盛んに研究されている。とりわけ Tsai 型クラスターは、希土類正 20 面体（以下、正 20 面体スピנקラスター）を内包することを特徴としており、その磁気秩序について高い関心が寄せられてきた。しかしながら、既往の研究では正 20 面体スピנקラスター固体においてはスピングラス的な振舞いのみが観測されており、磁気秩序の報告は皆無であった。一方で、スピングラスの発現には、乱れとフラストレーションの双方の寄与が必要であることから、正 20 面体スピנקラスター固体中の乱れやフラストレーションを解消することにより、磁気秩序が発現するものと予想される。以上の経緯から、本研究では正 20 面体スピנקラスター固体において、第一に、磁気秩序の存在とその多様性を明らかにし、第二に、その磁気構造を決定することを目的として研究を行った。

本論文は 7 章から構成され、第 1 章では、正 20 面体スピנקラスター固体を定義し、本研究の目的を述べた。第 2 章では、まず、正 20 面体クラスター固体である準結晶と近似結晶の概念および定義を説明し、次いで、正 20 面体クラスター固体に関する既往の磁性研究を総括した。これまで磁気秩序の報告は皆無であり、従って、正 20 面体スピנקラスターの磁気構造の決定の例が無いことを述べ、本研究の着想に至った経緯を説明した。

第 3 章から第 6 章が本論文の主要な研究成果を構成しており、第 3 章には正 20 面体スピנקラスター固体において乱れを解消した場合の磁性、第 4 章ではフラストレーションを解消した場合の磁性について述べた。第 5 章と第 6 章には、磁気構造決定を目的とした正 20 面体スピנקラスター固体のバルク磁性と中性子磁気散乱実験の結果を述べられ、第 7 章に本博士論文の総括を記した。

第 3 章では、 Cd_6R ($\text{R}=\text{Ce}, \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}, \text{Gd}, \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Ho}$) 正 20 面体スピנקラスター固体の磁性について述べた。磁化、比熱、放射光共鳴 X 線磁気散乱実験を通じて反強磁性転移を観測し、初めて磁気秩序の存在を明らかにした。また、低温でスピングラスとなる同型構造の Ag-In-Tb 固体の結晶構造との詳細な比較により、反強磁性磁気秩序の形成理由を考察し、その結果、反強磁性秩序の起源は、化学的な乱れの解消、もしくは、クラスター芯の 4 面体配向の乱れの解消、のいずれかもしくは両方に由来するものとして解釈される。加えて、これらの物質群において逐次相転移および多段のメタ磁性転移も観測し、多数のスピン配列がエネルギー的に拮抗している様相も明らかにした。

第4章では、Au-SM-Gd (SM = Si, Ge, Sn)固体の磁性について述べ、初めて強磁性転移の存在を明らかにした。局在スピンの間に働く RKKY 相互作用がスピン間距離に応じて強磁性的もしくは反強磁性的に相互に移り変わることをもとに、これらの強磁性転移が、従来の正 20 面体スピנקラスター固体に比べてクラスターサイズが小さい事実により理解できることを述べた。また、強磁性転移のみならず、Au-Ge-Gd 固体では、リエントラントスピングラスの存在も突き止め、単結晶構造解析の結果をもとに、それが正 20 面体スピנקラスターの中心にある乱れによって引き起こされたものと解釈した。

第5章と第6章は正 20 面体スピנקラスター固体における磁気構造の決定を目的として行われた研究である。磁気構造の決定には、中性子散乱実験が最も有効な手法であるが、第3章と第4章で扱った物質は、強い中性子吸収体(Cd と Gd)を含むことから、中性子散乱実験には不向きである。第5章では、まず、第4章で述べた Au-Si-Gd 固体の Gd を他の希土類元素で置換した Au-Si-R (R =Tb, Dy, Ho)固体の磁性について述べた。いずれの固体も強磁性的な振舞いを示すが、Au-Si-Gd 固体と比べて磁化過程は大きく異なっており、55 T の強磁場下においても磁気飽和しないことを明らかとした。このことに関して、Au-Si-R (R =Tb, Dy, Ho)固体では、希土類スピンの局所的な磁気異方性を反映して傾角強磁性状態をとっていることをその原因として挙げた。

第6章では、第5章のバルク磁化測定より予想した傾角強磁性構造の存在を実証するため、Au-Si-Tb 単結晶を用いた中性子磁気散乱実験および磁気構造解析の結果について述べた。磁気構造解析の結果、個々の磁気モーメントは、ほぼ<100>方向を向き、スピン正 20 面体クラスター全体としては<111>方向に磁化した傾角強磁性構造をとっていることを明らかとし、初めて正 20 面体スピנקラスターの磁気構造を決定した。

以上述べたように、本博士論文では、正 20 面体スピנקラスター固体において初めて磁気秩序を見出すとともにその多様性を明らかとした。また、正 20 面体スピנקラスター固体において、その磁気構造を初めて解明した。