

審査の結果の要旨

氏名 谷口 貴紀

本論文は、2 個の f 電子を持つ非クラマースイオン Pr^{3+} を含むカゴ状化合物 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ について、低温における多極子の秩序と揺らぎを解明するために、アルミニウムサイトの核磁気共鳴 (NMR) 実験および磁化測定を行った結果を報告したもので、全 5 章より成る。

第 1 章では、f 電子系における多極子のこれまでの研究の概要に続いて、非磁性の結晶場基底状態を持つ Pr 化合物で期待される現象およびその理論的基礎が説明された後、本研究の対象である $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ の先行研究について、以下のような事項がまとめられている。①本物質はダイヤモンド格子を形成する Pr イオンを 3 種類の Al サイトがカゴ状に取り囲む結晶構造を有し、結晶場中での f 電子系の基底状態は $\Gamma_3 - 2$ 重項である。② $\Gamma_3 - 2$ 重項は磁気双極子の行列要素を持たないが、 0_{20} ($3z^2 - r^2$) タイプおよび 0_{22} ($x^2 - y^2$) タイプの電気四極子や T_{xyz} タイプの磁気八極子の自由度を有する。③比熱や電気抵抗率の温度依存性から、2 K における相転移が示されている。磁化率には異常がないことから、この相転移は四極子秩序に伴うものであること、また弾性定数や中性子回折の測定からは、 0_{20} ($3z^2 - r^2$) タイプの強四極子転移であることが提案されている。

第 2 章では実験手法、特に NMR の原理および測定手法が説明されている。

続く 2 章が本論文の中心部分である。まず第 3 章では、様々な方向の磁場下における磁化測定および NMR スペクトルの実験結果に基づいて、低温での多極子秩序相の秩序変数が同定され、包括的な温度磁場相図とこれを説明するための理論モデルが提案されている。まず 3.1 節では、高温の無秩序相において磁場方向を 0.1 度の精度で制御しつつ NMR スペクトルを解析することによって、3 種類のアルミニウムサイトからの共鳴線が同定され、特に Pr-4f 電子の電荷・磁化密度の対称性を敏感に反映する Al (3) サイトにおける超微細結合定数テンソルおよび電場勾配テンソルが決定された。次いで 3.2 節では $\langle 111 \rangle$ 方向の磁場下で、Al (3) サイトの共鳴線が 2 K 以下の低温で 2 本に分裂することが報告され、局所対称性に基づく議論から 0_{20} ($3z^2 - r^2$)、およびこれと等価な $3x^2 - r^2$ 、 $3y^2 - r^2$ タイプの 3 ドメイン構造を持つ強四極子秩序が発生していることが結論された。3.3 節では $\langle 100 \rangle$ 方向の磁場印加に伴って、低温の NMR ナイトシフトの温度依存性が不連続に変化し、更に 2 テスラ付近の磁場では両者のスペクトルが共存することから、1 次の磁場誘起相転移が出現することが示された。局所対称性に基づく NMR スペクトルの定性的解析および磁化率の定量的解析から、高磁場では $\Gamma_3 - 2$ 重項が分裂し、低温で 0_{20} ($3z^2 - r^2$) 強四極子基底状態へクロスオーバーするのに対し、低磁場では 0_{22} ($x^2 - y^2$) 強四極子相への相転移が起こることが提案された。3.4 節では $\langle 110 \rangle$ 方向の磁場印加に伴い、

やはり 1～2 テスラの磁場によって 1 次の磁場誘起相転移が起こることが示された。この場合、低磁場相は $O_{20} (3z^2-r^2)$ タイプの単一ドメインの強四極子相への相転移であるが、高磁場では秩序パラメータの符号が逆転した状態へのクロスオーバーであることが提案された。更に 3.5 節では、これらの実験結果を説明するための理論的モデルが提案されている。先行研究に倣って、秩序パラメータを $O_{20} (3z^2-r^2)$ および $O_{22} (x^2-y^2)$ を基底とする 2 次元ベクトルで表現し、結晶場、磁場によるゼーマン相互作用、異なるサイト間の四極子相互作用から成るハミルトニアンについて、分子場近似を用いて安定な状態を求めた。実験結果を説明するためには、四極子間相互作用の磁場依存性が重要であることが判明し、これに関するある仮定のもとで、実験的に提案された相図を再現することに成功した。

第 4 章では、核磁気緩和率の測定結果に基づいて、四極子秩序にともなう磁気双極子や磁気八極子の揺らぎによる磁気緩和の機構についての考察が述べられている。最後の第 5 章は、本論文で得られた結果のまとめと今後の展望にあてられている。

以上述べたように、本論文は非磁性基底状態を持つ物質として注目されている $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ の四極子秩序相図の全貌、特に比較的低磁場における磁場誘起相転移の存在を明らかにするとともに、磁場に依存する四極子間相互作用という新しい概念を提唱しており、f 電子系の研究に重要な知見をもたらしたものである。なお、本論文の第 3 章、第 4 章は吉田誠、武田晃、瀧川仁、辻本真規、酒井明人、松本洋介、中辻知の諸氏との共同研究であるが、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（科学）の学位を授与できるものと認める。

以上 1 9 8 5 字