

# 論文審査の結果の要旨

氏名 鬼丸 孝博

本論文は5章からなる。第1章は、イントロダクションであり、*f*電子系における四極子自由度およびその秩序状態に関する解説がなされた後、本論文で取り上げる物質である PrPb<sub>3</sub> のこれまでの研究成果がまとめられている。多くの研究がなされてきた典型的な反強四極子(AFQ)秩序物質である CeB<sub>6</sub> や DyB<sub>2</sub>C<sub>2</sub> と異なり、PrPb<sub>3</sub> は基底状態でスピン自由度がなく、四極子自由度のみを持っている。このことから、これまでとは異なる AFQ 秩序状態が期待されるだけでなく、磁性に影響されない四極子間の相互作用などが明らかになる可能性がある。しかし、AFQ 転移温度が  $T_Q = 0.35\text{K}$  と低いことや、大型の純良単結晶が得られなかったことから研究が遅れていた。本論文では、大型の純良単結晶を用いた磁場中中性子回折実験により AFQ 秩序の空間構造を明らかにするとともに、詳細な磁化測定を組み合わせ、その秩序変数を決定することを目的としている。

第2章では PrPb<sub>3</sub> の単結晶試料合成について記述されている。PrPb<sub>3</sub> 単結晶はこれまでも育成されてきたが、結晶性がよく、しかも中性子回折を行なうに十分な体積をもったものは得られていなかった。本研究において、論文提出者は Mo ルツボを用いた高温でのブリッジマン法と新しい温度制御プロファイルを組み合わせることにより、10mm  $\phi$   $\times$  26mm という高品位の大型単結晶を育成することに成功し、中性子回折実験を可能とした。

第3章では磁化測定による磁場・温度相図に関して記述されている。磁化測定による磁場・温度相図はこれまでも報告されているが、磁場の温度が 9T までと限られていた。論文提出者は、希釈冷凍器とファラデー法を組み合わせ、測定磁場領域を 12.5T にまで拡張した。その結果、[110]方向に磁場をかけた場合、6T 以上の高い磁場領域にこれまで確認されていなかった新しい秩序相 ( $T_Q'$ ) が存在するという結果を得た。さらに、1 – 4T の低い有限の磁場領域では、[100], [110], [111]方向の全てに AFQ 秩序相内に、さらに一次相転移をともなう低温相が存在することを見いだした。これらの結果は、PrPb<sub>3</sub> の AFQ 秩序状態がこれまでの物質系より複雑で異方的であることを示唆している。

第4章では、第3章の実験結果を受けて行なわれた、低温での角度分解磁化

測定について記述されている。論文提出者はこの実験のために新たに  $^3\text{He}$  冷凍器内で使用出来る測定装置を製作した。それによって、 $T_Q$  の磁場方向依存性を調べ、[110]方向に鋭いカスプをもったミニマムが存在することを明らかにした。このような  $T_Q$  の振る舞いを調べる為に平均場によるモデル計算を行ない、その結果、各軸方向を主軸とするような  $O_2^0$  型の秩序変数を持ち、異方的な四極子相互作用を仮定したモデルでよく説明出来ることを明らかにした。さらに、高磁場中での測定結果から、[110]方向に磁場を印可したときに現れる新しい秩序相は  $O_2^2$  型の秩序変数をもっていること示した。

第5章では、磁場中中性子回折の実験結果について記述されている。AFQ 秩序状態に磁場を印可すると四極子の配列に応じて磁気モーメントが誘起されることを利用する。[001]方向に磁場を印可したとき、 $T_Q$  以下で  $\mathbf{q}_1 = (1/2 + \delta, 1/2, 0)$  と  $\mathbf{q}_2 = (1/2, 1/2 + \delta, 0)$  ( $\delta \sim 1/8$ ) に超格子反射が出現し、さらに  $T_1$  以下では  $\mathbf{q}_1' = (1/2 + 3\delta, 1/2, 0)$  と  $\mathbf{q}_2' = (1/2, 1/2 + 3\delta, 0)$  に弱い超格子反射が加わるとともに、 $\delta$  が  $1/8$  にロックインする様子が観測された。これらの実験結果は、 $T_Q$  以下でまず Sinusoidal に四極子モーメントが空間変調した長周期構造が出現し、さらに低温の  $T_1$  以下で格子の4倍周期の Anti-phase-domain 構造に転移することを示している。AFQ 秩序状態でこのような長周期の空間変調構造が発見されたのは、この系が初めてであり、極めて重要な実験結果である。論文提出者は、長周期に変調した構造を作り出すためには、PrPb<sub>3</sub>における四極子相互作用は伝導電子を媒介とするような RKKY 型の相互作用である可能性が高いことを指摘している。事実、Pr サイトを La で置換すると急速に  $T_Q$  が低下するが、比熱測定で見られている  $C/T$  vs  $T$  の低温における  $\log T$  的な立ち上がりとともにさらに低温での飽和 ( $C/T$  は  $10\text{J/mol K}^2 \text{ Pr}$  にも達する) は、四極子を媒介とした近藤効果のような現象を示唆しており、今後のより詳細な研究が期待される。

本論文の第4章と第5章は田山孝・榊原俊郎・河江達也・大貫惇睦・青木大・竹内徹也・針田亮・吉澤英樹・阿曾尚文・北井哲夫・鈴木博之らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって研究を遂行したもので、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(理学)の学位を授与できると認める。