

強四極子秩序相内で出現する新規な超伝導

酒井 明人 (東京大学大学院理学系研究科 akito@phys.s.u-tokyo.ac.jp)

中辻 知 (東京大学大学院理学系研究科 satoru@phys.s.u-tokyo.ac.jp)

20世紀初頭の超伝導の発見以来、その発現機構の解明は物性物理学における中心的課題の一つとして多くの研究がなされてきた。最も基本的なモデルはBCS (Bardeen-Cooper-Schrieffer) 理論として知られ、多くの超伝導体の特性をよく説明する。一方で、重い電子系超伝導体、銅酸化物高温超伝導体、鉄系超伝導体など、BCS理論では説明できない超伝導体が次々と発見され、「非従来型超伝導体」として注目を集めている。こうした非従来型超伝導の形成には、電子が持つスピンや軌道(電気四極子、以下単に四極子)の量子ゆらぎが重要であるという見解が近年有力視されている。しかし、既存の多くの系ではスピンと軌道が同時に存在するため、それらの役割を実験的に切り分けて検証することは極めて困難であった。

では、スピンを持たず、四極子のみが存在するような系は実現可能だろうか? $3d$ 電子系(遷移金属)の立方晶 E_g 状態では、結晶場効果で軌道角運動量が消失することが知られている。これと類似して、スピン軌道結合の強い $4f$ 電子系(希土類)では、(スピンと軌道が一体となった)全角運動量が消失し、高次多極子自由度のみが残ることがある。非クラマース(non-Kramers)イオンであるプラセオジウム(Pr^{3+} , $4f^2$)が立方対称の結晶場におかれた際に実現する非磁性二重項(Γ_3)は、四極子およびさらに高次の磁気八極子モーメントのみを自由度として持つため、多極子の研究に適している。さらに興味深いことに、非磁性 Γ_3 二重項は四極子近藤効果の舞台となり、伝導電子が局在四極子を過剰遮蔽することでフェルミ液体論が破綻した異常金属状態が現れる。

$\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($\text{Tr} = \text{Ti}, \text{V}$) は非磁性 Γ_3 二重項を結晶場基底状態に持ち、伝導電子と f 電子間の混成(c - f 混成)が強い「四極子近藤格子系」として知られる。中でも、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ は $T_Q \sim 2.0 \text{ K}$ で強四極子秩序を示し、 $T_c \sim 0.2 \text{ K}$ で超伝導を示す。また約 8 GPa の圧力を加えると、 T_c は 1 K 程度まで上昇する。純粋な四極子転移の中で生じる T_c としては常圧においても最も高いものであり、四極子と超伝導の関係を探るうえで最適な系となっている。

そこで本研究では、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ および La 希釈系の超伝導特性を詳細に調べることで、超伝導と多極子秩序との関係を明らかにすることを試みた。極低温での比熱や磁化測定により、純粋な四極子秩序と共存する超伝導の熱力学的性質を初めて明らかにした。比熱および臨界磁場の温度依存性は、BCS理論で期待される等方的 s 波の場合とは大きく異なり、単一の d 波超伝導、または複数ギャップ構造でよく再現できる。また、わずかな La 置換によってギャップ構造が変化し、それと同時に四極子秩序の性質も大きく変化することが明らかになった。これらの結果は、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ における非従来型超伝導が、強四極子秩序と密接に関係していることを強く示唆している。

反強磁性体における拡張多極子や波数空間の多極子など、多極子の概念は近年急速な広がりを見せており、物性物理の新たなパラダイムとして注目されている。本研究は、多極子と非従来型超伝導の関係を実験的に明示した重要な一歩であるとともに、多極子自由度がもたらす新奇な量子現象への展開が期待される。

用語解説

BCS理論:

1957年に提唱された超伝導の理論。格子振動が電子間引力を生み、電子がペア(クーパー対)を作ることで超伝導になることを説明した。波動関数は球対称(s 波)かつスピン一重項、クーパー対の重心運動量は無視するなど単純化されたモデルだが、多くの超伝導体の性質をよく説明する。

角運動量の消失:

結晶場準位における角運動量演算子の対角要素がゼロになることを指す。

非クラマース系:

電子数が奇数個(スピンが半整数)の系はクラマース系と呼ばれ、時間反転対称性に守られた二重縮退を持つ(クラマースの定理)。一方、電子数が偶数個(スピンが整数)の系はその限りではなく、非クラマース系と呼ばれる。

四極子近藤効果:

伝導電子が局在四極子を遮蔽する現象。過剰遮蔽により、異常金属状態(非フェルミ液体)が生じることが知られている。

$\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$:

以下の立方晶構造($Fd\bar{3}m$)を持つ。 Pr が16のAlで作られるカゴで囲まれている。 Pr サイトは立方晶点群 T_d の対称性を持ち、ダイヤモンド格子を形成する。

