

電気四極子の自由度による異常な金属状態:新しいタイプの近藤効果の可能性

希土類やアクチノイド類を含む金属間化合物は、電子間に働く強い斥力（電子相関）が重要な典型として知られる。特にこれまでの精力的な研究を通じて、重い電子状態、近藤絶縁体、異方的超伝導、量子臨界現象など多岐にわたる興味深い量子現象が次々と見出されてきた。これらの現象を理解する上で基礎となるのが「近藤効果」である。これは比較的局在性の強い f 電子の磁気双極子モーメントが伝導電子と (cf) 混成することによって遮蔽され、遍歴的な性質を持つ現象のことをいう。この近藤効果により電子の数百倍もの有効質量をもつ「重い電子」となり、時にはそれがペアを作り非従来型の超伝導を生み出す。このように「磁気双極子モーメント」を伝導電子が遮蔽するという近藤効果は、様々な新奇な現象を生み出す起源として固体物理の基礎的・普遍的現象の一つとして広く知られている。

一方、結晶場中の f 電子は、結晶構造の対称性により低温で磁気双極子を持たず（非磁性）、より高次の多極子自由度のみを持つ場合がある。ではそのような系で「多極子モーメント」の伝導電子による遮蔽は起こるのだろうか？それに対するひとつの回答として、1987年に Cox は結晶場基底状態が非磁性で四極子モーメントを持つ場合（具体的には立方晶 f^2 の Γ_3 状態）に、電気四極子の自由度を使うことで非磁性の近藤効果が起こりうることを理論的に指摘した。従来の近藤効果では、絶対零度近傍で通常の金属と同じように、電子はフェルミ液体として振る舞い、抵抗は温度の 2 乗で変化し、比熱、感受率は一定値になる。しかし、Cox の理論ではそれとは全く異なり、抵抗は温度の $1/2$ 乗に従い、比熱・感受率は発散し、基底状態は大きな残留エントロピーを伴うなどの異常な金属が現れる可能性が示されている。この予言を確認するために、立方晶 U, Pr 化合物において数々の実験が行われてきた。しかし、これまでに研究されてきた化合物においては、この新しい近藤効果に不可欠な四極子自由度の縮退が、結晶の乱れのために解かれている可能性が否定できず、決定的な結果は得られていない。

最近、東京大学の酒井明人、中辻知を中心とする研究グループは、立方晶 Pr 化合物において、四極子自由度を使った極めて強い混成効果を示す新たな例 $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($\text{Tr}=\text{Ti}, \text{V}$) を発見した。この系は Pr 原子を 16 個の Al 原子が籠状に囲む結晶構造をしており、強い cf 混成が期待される（図 1 左上）。低温での詳細な物性測定により、この系の結晶場基底状態が非磁性で四極子自由度を持つ (Γ_3 二重項) こと、また、四極子転移 ($T_0=2.0 \text{ K (Ti)}, 0.6 \text{ K (V)}$) を示すことを見出した。また電気抵抗率の $4f$ 電子の寄与 ρ_{4f} を見ると高温で温度の降下とともに $-\log T$ に比例して増大する様子が観測された（図 1）。これは励起状態の磁気双極子を使った通常の近藤効果であると考えられる。一般に Pr 化合物は Ce や Yb 系に比べ局在性が強いので、近藤効果を示す例は非常に珍しく、特に非磁性 Γ_3 二重項を結晶場基底状態に持つ系で近藤効果が観測されたのは今回が初めてである。

さらに興味深いことに、 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ は低温約 20K 以下で抵抗が温度の $1/2$ 乗のべき乗則に従うなどの異常な金属状態を示すことがわかった（図 1）。明確な四極子秩序を示す純良な $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ 単結晶試料では、転移点以上で近藤効果に不可欠な四極子自由度の縮退が保障され、乱れによるこの縮退の破れはない。まさにこの四極子自由度が支配的な温度領域で現れるこの異常な金属状態は、その多くの物性が Cox の理論予想と一致していることなどから、四極子近藤効果をその起源とする可能性が高いと考えられる。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 *Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)* の 2011 年 6 月号に掲載された。

このような高濃度系の四極子近藤現象に関する研究は、実験・理論ともに未開拓であり、今後の

発展が期待される。

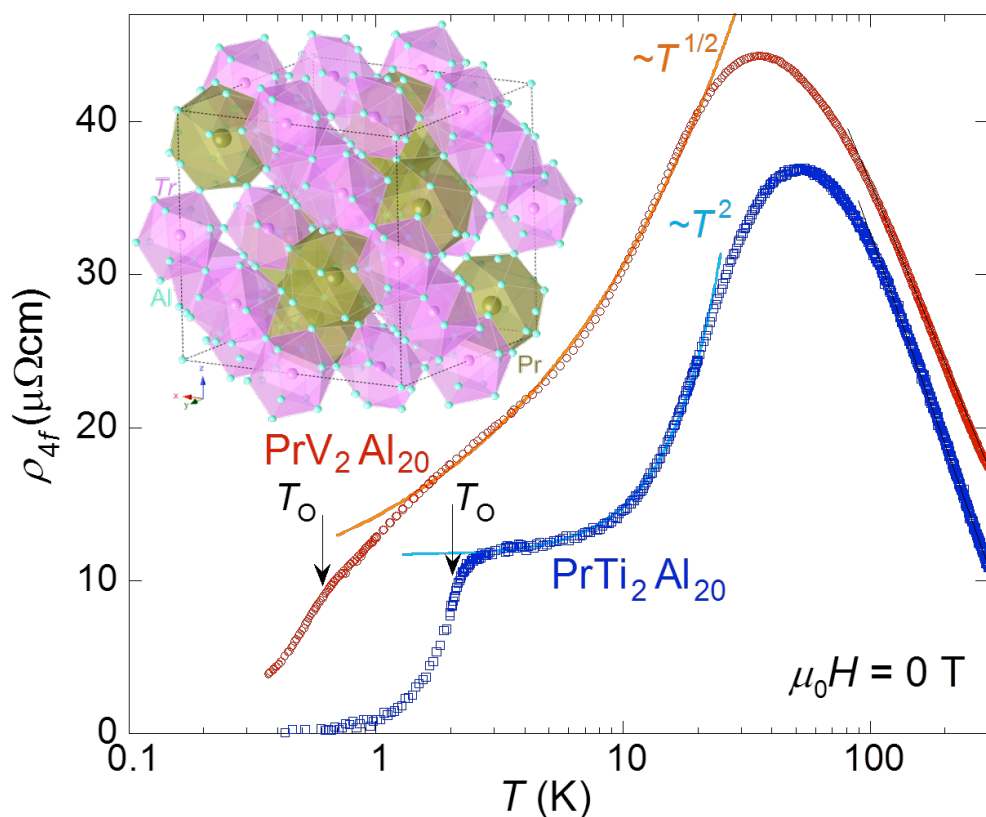


図 1. $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($Tr = \text{Ti}, \text{V}$)の結晶構造(左上)と電気抵抗率の $4f$ 電子の寄与 ρ_{4f} の温度依存性。高温では磁気双極子による近藤効果で、温度の降下とともに $-\ln T$ に比例する増大が見られる。低温の振る舞いは $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ では温度の 2 乗に比例するのに対し、 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ では温度の 1/2 乗に比例する。

加えて、この新しい $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ 系において Ti から V へ元素置換することにより、四極子転移温度を低温に抑えることで、四極子自由度による異常金属状態を安定化できるということも見出した。これは四極子秩序の量子臨界点の存在を示唆するという意味で大変興味深い。このようなチューニングはこれまで前例がなく、今後、四極子近藤系の研究対象が量子臨界現象に広がる契機となるものと期待される。

論文掲載誌 J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) No.6, p. 063701

電子版 <http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/80/063701> (5月25日公開済)

<情報提供：中辻 知（東京大学物性研究所）>