

原子の非調和振動により強められる超伝導

単純金属や合金などに見られる従来型超伝導は、格子振動を媒介とした電子間引力に基づく BCS 理論によって良く説明される。通常の物質中の原子は、周りの原子とバネで強く繋がれているとみなされ、低温で調和振動子として近似される。それに対しカゴ状構造をもつ超伝導体では、その構造的特徴から、調和振動から大きく逸れた非調和な原子振動が存在し、その特殊な格子振動が超伝導状態に与える影響について精力的に研究がなされている。

カゴ状物質の一つである β 型パイロクロア酸化物 AOs_2O_6 ($A=K, Rb, Cs$) では、サイズの小さいアルカリイオンがオスミウム原子と酸素原子とからなる大きなカゴの中に存在し、アルカリイオンとカゴとのサイズのミスマッチにより非調和振動をしている (図 1)。この系の超伝導転移温度は、それぞれ $T_c = 9.6\text{ K}$ ($A=K$), 6.3 K (Rb), 3.3 K (Cs) である。この T_c の大小関係は電子の状態密度の大小関係と明らかに逆であり、むしろこの系に特徴的な結晶構造に由来した非調和性の大きさに関係しているように見える。また、非調和性の最も大きい KOs_2O_6 では、転移温度 T_c だけでなく上部臨界磁場 H_{c2} が $RbOs_2O_6$ ($H_{c2} \sim 5\text{ T}$) や $CsOs_2O_6$ ($H_{c2} \sim 1\text{ T}$) と比べて異常に高い値 ($H_{c2} \sim 33\text{ T}$) をもつことがわかっていて、このように、この系の超伝導では弱結合 BCS 理論では単純には説明できない現象が見られる。最近、いくつかの実験および理論研究により、このような特殊な超伝導状態が非調和振動により生じている可能性が指摘されたが、転移温度や上部臨界磁場などの基本的な超伝導特性における異常性が、非調和性の変化を通してどのようにもたらされるのかについてはあまり良く分かっていなかった。実際、3 つある AOs_2O_6 の超伝導圧力相図 (T_c - P 相図) には一見系統性がなく、非調和性との関係も含め、その統一的理解はなされていなかった。

東京工業大学大学院理工学研究科のメンバーを中心とする研究グループは、圧力による結晶構造の変化を通して非調和性を間接的に変化させるというアイデアのもと、 β 型パイロクロア酸化物に対する高圧下磁場中比熱測定を行い、超伝導に対する非調和振動の役割を突き止めた。まず、 KOs_2O_6 および $RbOs_2O_6$ の常圧における $T_c(P=0)$ が、 $CsOs_2O_6$ の圧力下での $T_c(P)$ に一致するよう印加圧力 P にオフセット P_0 を加えた圧力 $P_S (= P + P_0)$ を横軸にとることで、一見系統性の見られなかった AOs_2O_6 の T_c の圧力依存性がスケールされることを示した (図 2(a))。このことは、 AOs_2O_6 の電子状態が P_S によって統一的に理解できる可能性を示唆している。そこで、上部臨界磁場の傾き $dH_{c2}/dT|_{T=T_c}$ および McMillan 方程式から T_c を決める二つの因子「電子-格子相互作用 λ 」および「フォノン周波数 $\omega_{\log}$ 」をそれぞれ見積り、 T_c と同様に系統性の見られなかった λ および $\omega_{\log}$ もそれぞれ P_S に対して単一の曲線に乗ることが明らかとなった。さらにその結果から P_S の増加とともに λ が単調に増強する一方で、 $\omega_{\log}$ は減少傾向を示すことが判明した (図 2(b), (c))。一般的に、非調和性が増大するとフォノン周波数が減少することを考えると、 AOs_2O_6 では加圧 (P_S の増加) により非調和性が増大するといえる。つまり、 P_S は非調和性の大きさに密接に関係した量で、オフセット P_0 は 3 つある AOs_2O_6 の常圧における非調和性の大きさがそれぞれ異なることに対応していると考えることができる。以上のことから AOs_2O_6 の T_c は非調和性が大きいほど高くなるわけではなく、非調和性の増大に伴い T_c を上げる効果である λ の増加と T_c を下げる効果である $\omega_{\log}$ の減少との相反する二つの効果の競合により、ある値で極大値を取ると考えられる。このように AOs_2O_6 における超伝導相図が非調和性で統一的に理解できることを明らかにした。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 2013 年 11 月号に掲載された。

本研究成果は、格子振動の非調和性が超伝導に与える役割を明らかにし、パイロクロア酸化物における特異な超伝導相図の統一的理解に成功したという学術的側面からの重要性だけでなく、転移温度の向上には非調和性の大きさを最適にすることが重要であることを明らかにし、より高い転移温度をもつ超伝導体の実現に向けた新たな開発指針を与えたことは、応用的側面からも意義がある。

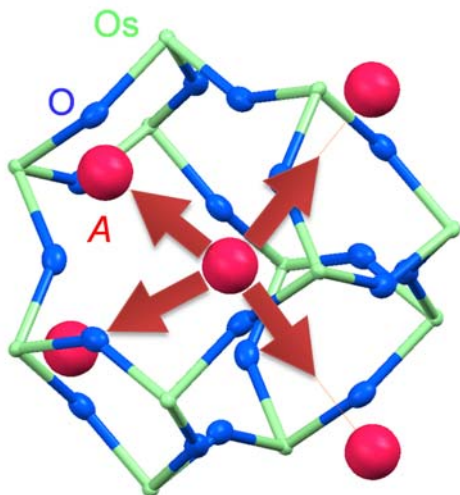


図 1. β 型パイロクロア酸化物 AOs_2O_6 のカゴ状構造. O 原子と Os 原子とが作る大きな原子カゴの中に、サイズの小さな A 原子が孤立した状態で内包されている. A 原子は、この特徴的な構造に由来する底が平らな非調和ポテンシャル中を大きな振幅を保ったまま振動する.

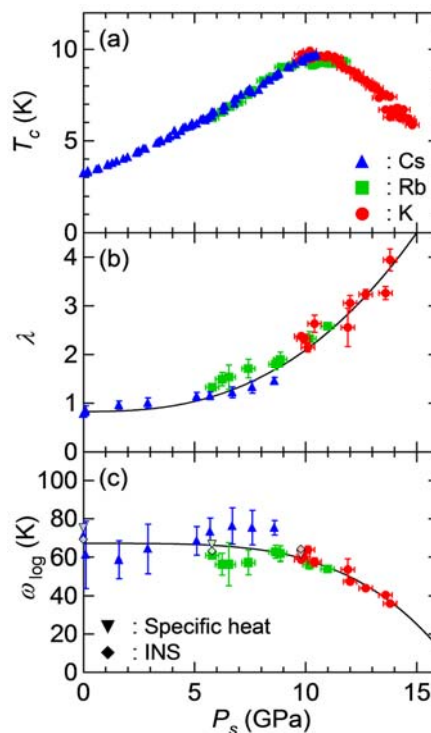


図 2. 非調和性に関するパラメータ P_s の変化に対する (a) 転移温度 T_c , (b) 電子-格子相互作用 λ , および (c) フォノン周波数 $\omega_{\log}$ の変化.

原論文

[Understanding of the Temperature-Pressure Phase Diagram of \$\beta\$ -Pyrochlore Oxides: A Role of Anharmonicity on Superconductivity](#)

[Takayuki Isono, Daisuke Iguchi, Takeshi Matsubara, Yo Machida, Bernard Salce, Jacques Flouquet, Hiroki Ogusu, Jun-ichi Yamaura, Zenji Hiroi, and Koichi Izawa: J. Phys. Soc. Jpn. **82** \(2013\) 114708](#)

問合せ先：井澤公一（東京工業大学大学院理工学研究科）

磯野貴之（現 物質・材料研究機構）

廣井善二（東京大学物性研究所）