

第 23 回日本物理学会論文賞を受賞して

量子物質研究グループ 中辻研究室 助教 酒井 明人、教授 中辻 知

この度、幸いにも第 23 回日本物理学会論文賞を受賞いたしました。受賞対象となった論文は「Kondo Effects and Multipolar Order in the Cubic $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($\text{Tr} = \text{Ti}, \text{V}$)」です。以下では研究内容を簡単に紹介したいと思います。

強相関 f 電子系は非フェルミ液体や重い電子超伝導など多彩な現象を示すため多くの研究がなされてきました。これらの現象には伝導電子が局在 f 電子のスピンを遮蔽する近藤効果が重要な働きをしています。一方、局在電子が軌道(電気四極子)自由度を持つ場合、通常近藤効果とは異なり、過剰遮蔽により非フェルミ液体を引き起こす四極子近藤効果(2 チャンネル近藤効果)が起きることが理論的に期待されていました。しかし現実の物質で何が起きるかは理解が進んでいませんでした。このような四極子の研究をするためには立方晶 f^2 物質で実現する、スピンを持たない非磁性 Γ_3 結晶場基底状態が最適です。これまで Pr (プラセオジウム)化合物などでこの Γ_3 状態は見つかっていましたが、混成効果が強いとはっきりわかる物質はありませんでした。また最初に理論的に実現が予言された U (ウラン)化合物では、混成は強いものの結晶場状態が明確に定まらないという問題点がありました。

$\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($\text{Tr} = \text{Ti}, \text{V}$)は立方晶であり、 Pr を 16 個の Al が取り囲む籠状構造になっています。伝導電子を与える多くの Al が近くにいるということは、それだけ混成のチャンスが増えるため混成が強くなることを期待できます。またスピンを持たない Γ_3 状態が実現し得る立方晶物質でもあります。この物質群は結晶構造のみ知られておりましたが、詳細な物性はわかっておりませんでした。我々はフラスコ法により純良単結晶を合成し、様々な低温物性測定を行いました。その結果、 $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($\text{Tr} = \text{Ti}, \text{V}$)が非磁性 Γ_3 結晶場基底状態を持ち、かつ混成が強い初めての物質であることを明らかにしました。具体的には磁化率が低温で飽和傾向を示し(ヴァン・ヴレック常磁性)、エントロピーが $R \ln 2$ で飽和傾向を示すことから非磁性 Γ_3 二重項基底状態であること、電気抵抗率が $-\ln T$ で上昇する近藤効果を示すことから混成が強いことを示しました。さらに $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ が 2.0K で強四極子秩序を、 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ が 0.6 K で

反強四極子秩序を示すことを明らかにしました。以上の結果は後に中性子散乱、弾性定数、光電子分光、NMR など様々な実験によっても確認されています。

さらに興味深いことに $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ ではフェルミ液体的振る舞いが見えているのに対し、 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ では電気抵抗、比熱、磁化などで非フェルミ液体的な振る舞いが観測されました。この違いは Ti を V に変えたことによる化学的圧力・電子数の増加により、混成が強くなったことに起因すると考えられます。実際に結晶場比熱のピークは $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ のほうがよりブロードであり強い混成を示しています。また、後に行われた $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ の静水圧力下の測定では電気抵抗率が $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ の常圧のものと同様の振る舞いを示すことも確認されています。

この論文の発表の後、極低温での超伝導の発見、高圧下重い電子超伝導の発見など実験的進展に加え、四極子近藤格子系の理論計算など理論の発展もありました。また最近では混成による新たな秩序状態の可能性が指摘されるなど、興味が尽きません。そもそも、強相関電子系において多極子の自由度がどのように局在状態から遍歴状態に移り変わるのかは、理論的には全く不明なことが多いのが現状です。一方で、我々の系の実験研究を通じて、その局在・遍歴の転移の過程で、新しい金属状態や超電導状態、さらには、新規多極子秩序など、エキゾチックな量子状態の宝庫であることがわかってきています。我々の発見した系の量子物性の開拓が、多極子伝導系の理解の進展に少しでも寄与できるように、ますます研究に励んでいきたいと思っております。

