



Title	Uge <sub>2</sub> の強磁性と超伝導
Author(s)	立岩, 尚之
Citation	大阪大学低温センターだより. 2002, 118, p. 14-19
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/5987">https://hdl.handle.net/11094/5987</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

# UGe<sub>2</sub>の強磁性と超伝導

基礎工学研究科 立 岩 尚 之 (内線6446)

E-mail: tateiwa @djebel.mp.es.osaka-u.ac.jp

## 1. はじめに

強磁性と超伝導は相反し、強磁性は超伝導を抑制するので共存は難しいと考えられてきた。しかし最近 UGe<sub>2</sub> というウラン金属間化合物の高圧相で強磁性と超伝導の共存が発見され関心が寄せられている<sup>1,2)</sup>。強磁性と相性のよい超伝導はいかなるものなのだろうか？これまでの知られた超伝導とどのように違うのであろうか？UGe<sub>2</sub>の超伝導は数多くの点で興味が持たれている。

UGe<sub>2</sub>は10年ほど前から日本で主に研究されてきた。斜方晶 *Cmmm* の結晶構造を形成し、キュリー温度（強磁性温度） $T_c=52$  K、飽和磁気モーメント  $1.4 \mu_B/U$  の強磁性物質である<sup>3)</sup>。磁化には強い異方性が表れており、ドハース・ファンアルフェン効果などの実験からウラン5f電子は結晶中でバンドを形成し基本的に遍歴的な電子状態にあると考えられている。圧力効果の実験は日本の毛利グループ・巨海グループにより行われ、キュリー温度が圧力に対して単調に減少し約1.6 GPa 以上で消滅することが明らかにされ、さらにキュリー温度以下の  $T \sim T'$  でもう一つの相転移が存在することが見いだされていた<sup>4,5)</sup>。昨年、イギリス・ケンブリッジ大学の Prof. Lonzarich のグループとフランス・グルノーブルの Prof. Flouquet のグループは1.0 K 以下の極低温領域で高圧下電気抵抗・交流磁化率測定を行い1.0~1.6 GPa では強磁性相と超伝導状態が共存することを明らかにした。

強磁性（成分）と超伝導の共存はこれまで幾つかの物質で報告されている。1970年代に磁性と超伝導の共存・競合という観点から盛んに研究が行われた“シュビレル化合物”と呼ばれる物質群の一つの ErRh<sub>4</sub>B<sub>4</sub>や、高温超伝導物体 Ru 酸化物 (RuSr<sub>2</sub>GdCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub>)でも強磁性成分と超伝導の共存が報告されている<sup>6,7)</sup>。これらの物質では磁性と超伝導はそれぞれ別の元素の電子が担い両者の相関は基本的に弱いと考えられているのに対して UGe<sub>2</sub>では同じウラン5f電子が強磁性秩序と超伝導状態を担う点が大きな特徴であり興味深い。相性の悪いはずの強磁性と超伝導の起源がなぜ同一電子の振る舞いにあるのか？本稿では私達の UGe<sub>2</sub>についての研究結果を中心に報告したい。

## 2. UGe<sub>2</sub>の実験結果

図1は我々の実験結果をもとに作成した UGe<sub>2</sub>の圧力相図である<sup>8)</sup>。圧力を加えると強磁性転移温度  $T_c$ 、強磁性相に存在するもう一つの相転移  $T'$  は単調に減少してゆく。超伝導相は図中灰色で示した部分、1.0~1.5 GPa の圧力領域で観測された。超伝導転移温度  $T_{sc}$  では図2に示すように電気抵抗の急激な減少とゼロ抵抗が観測された。 $T_{sc}$  は  $T'$  の消える臨界圧力  $P_c^*=1.20$  GPa 近傍で一番大きな値（～

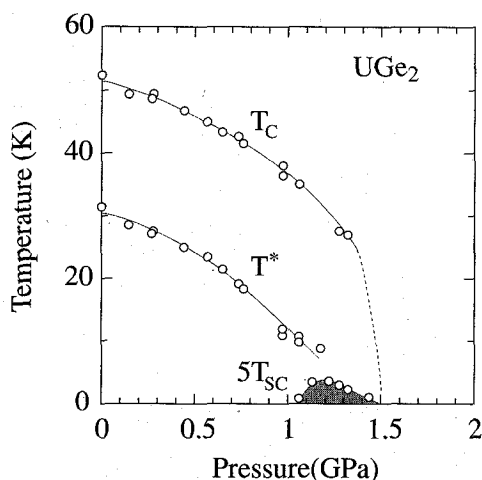


図1 UGe<sub>2</sub>の圧力相図

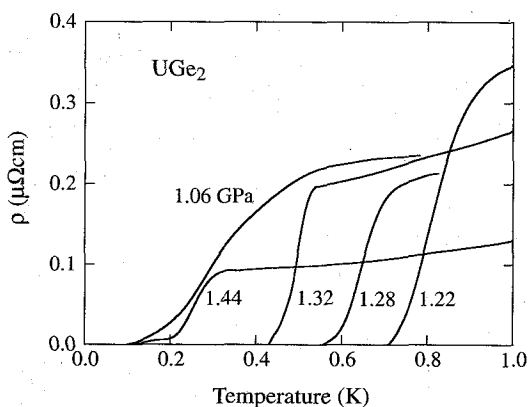


図2 UGe<sub>2</sub>の様々な圧力下での電気抵抗の温度依存性

0.8 K)を示す。この圧力でも強磁性転移温度  $T_c=30$  Kであり  $T_{sc}$  以下でもおよそ  $1 \mu_B/U$  の秩序モーメントの長距離秩序が形成されていることが中性子散乱実験で確認されている<sup>2)</sup>。つまり強磁性と超伝導は  $T_{sc}$  以下で共存している。また強磁性状態が消滅する臨界圧力  $P_c \sim 1.5$  GPa 以上では超伝導は見いだされなかった。これらのことから考えて、UGe<sub>2</sub>の超伝導は強磁性状態と相性のよいことがわかる。

圧力誘起超伝導は重い電子系セリウム化合物 CeIn<sub>3</sub>, CePd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>などでも報告され反強磁性と超伝導の相関に興味を持たれている。このような系の圧力相図の典型例を図3に示す。加圧と共に反強磁性転移温度  $T_N$  が減少し、 $T_N$  が消滅する臨界圧力  $P_c$  近傍で図中灰色で示す超伝導相 SC が現れる。また、 $P_c$  近傍では電子系が非フェルミ流体的応答を示すこともある。これに対して、UGe<sub>2</sub>では強磁性相がまだ安定に存在する幅広い圧力領域で超伝導が出現し強磁性相と共存する。また、電気抵抗の温度依存性は全ての圧力範囲内でフェルミ流体理論から期待される  $T^2$  則によく従い非フェルミ流体的振舞いは観測されていない<sup>9)</sup>。

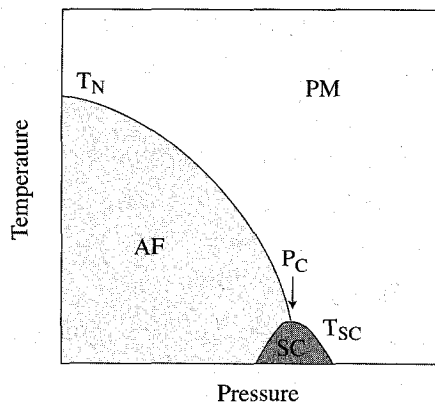


図3 セリウム系圧力誘起超伝導物質の圧力相図 (典型例)。PM: 常磁性相、AF: 反強磁性相、SC: 超伝導相

この超伝導は熱力学的な相転移なのであろうか？確認するために高圧下比熱測定を行った。結果を図4に示す。0.6 K近辺に比熱のピークの存在が確認され同時に測定した交流磁化率にも超伝導転移に伴う遮蔽効果が観測された。この実験の結果、この超伝導はバルクの相転移であることが実証された。しかし、ピークは小さく  $\Delta C/\gamma T_{sc}$  は0.25程度である。ここで  $\Delta C$  は転移温度における比熱の飛び、 $\gamma$  は電子比熱係数である。BCS 理論では  $\Delta C/\gamma T_{sc}$  は1.43程度であることが期待されるが私達の測定ではその20%程度であった。この原因についてはよくわからないが、ピークがブロードであることを考慮すると、不純物効果が見れていると考えられる。この点については後にまた議論する。

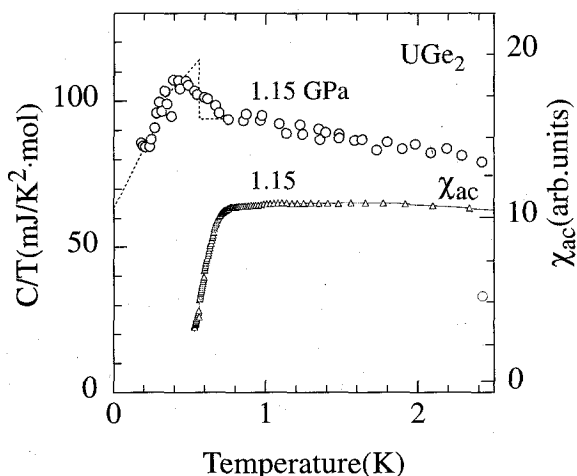


図4 UGe<sub>2</sub>の比熱と交流磁化率の温度依存性 (1.15 GPa)

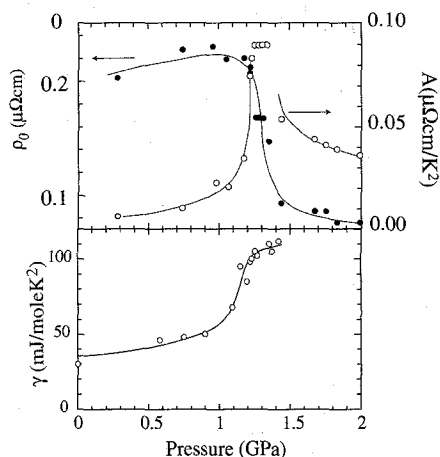


図5 UGe<sub>2</sub>の $\gamma$ ,  $A$  および  $\rho_0$  の圧力依存性

加圧に伴い電子状態はどのように変化し超伝導が現れるのであろうか？この点を考察するために、電子比熱係数 $\gamma$ や電気抵抗 $T$ 則の係数 $A$ 、残留抵抗 $\rho_0$ を圧力に対してプロットしたのが図5である。低圧側では電子比熱係数 $\gamma$ と $A$ はほぼ一定の値を示すが、超伝導が出現する圧力領域(> 1 GPa)で増大し、常圧の3倍程度の値を示すことがわかった。 $\gamma$ は電子系のフェルミエネルギーの状態密度・電子の有効質量に比例した量である。通常の金属では、 $\gamma$ は高々10 mJ/moleK<sup>2</sup>程度であるが、電子間の相互作用が強く多体効果が強く効く電子系(強相関電子系)ではこの $\gamma$ が100 mJ/moleK<sup>2</sup>以上の値を示す。電子の大きな有効質量に対応して“重い電子系”と呼ばれている。セリウムやウラン系化合物の中には数多くそのような例が報告されている。UGe<sub>2</sub>の場合、超伝導が現れる圧力領域ではこの“重い電子状態”が低温で形成されると考えられる。

さらに圧力相図を注意深くみると、 $T^*$ が消滅する臨界圧力近傍 $P_c^*$ で $\gamma$ と $A$ は急激に増大し、超伝導転移温度 $T_{sc}$ が最大値を示す。以上のことから $T^*$ が消滅する臨界点近傍の何らかのゆらぎが準粒子の増大と超伝導発現の原因となっていると推測される。

### 3. $T^*$ とは何か

前節までの議論から、 $T^*$ と呼ばれる特性温度に於ける相転移が超伝導出現と何らかの関係があることが分かった。この $T^*$ とはどのような相転移であろうか？ $T^*$ では電気抵抗などに微妙な異常が現れるが、常圧下の磁化などには明確な異常は存在しない。そのため当初、磁気的な相転移ではないのではないかと考えられた。この点を明らかにするために行った高圧下磁化測定の結果を図6に示す<sup>10)</sup>。低圧側では顕著な異常が現れないが、高圧側とくに超伝導が現れる1.0 GPa以上の圧力領域では $T^*$ で磁化は明確な異常を示し増大することが分かった。 $T^*$ の相転移のミクロな起源については現時点ではよく分かっていない。高圧下中性子散乱実験なども行われているが、磁気構造の変化などは観測されていない。

超伝導発見の第一報を発表したイギリスとフランスのグループは、 $T^*$ ではCDW/SDW(電荷密度波

/スピン密度波) 転移が起きているのではないかと示唆した<sup>1, 2)</sup>。これは長い(空間的)周期を持った格子・スピン密度の周期構造が形成されるものである。確かにバンド計算から得られたフェルミ面には Nesting 条件を満たすと期待されるものがある<sup>11)</sup>。渡辺・三宅らはこの立場に立ち  $\text{UGe}_2$  の超伝導について微視的理論を提唱した<sup>12)</sup>。この理論ではいったん CDW/SDW を仮定すると、 $\text{UGe}_2$  の超伝導の諸性質がよく説明され、本稿では触れないがフランスのグループで発見された上部臨界磁場の異常<sup>2)</sup>などもうまく説明することができる。CDW/SDW が存在する場合、X 線・中性子線回折実験で観測可能であるが、現時点では見つかっていない。今後の進展

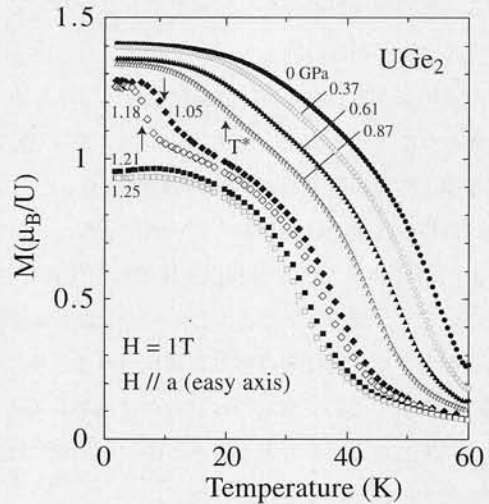


図6  $\text{UGe}_2$  の様々な圧力下での磁化の温度依存性

#### 4. $p$ 波超伝導と強磁性状態

強磁性状態で現れる超伝導はいかなるものなのだろうか？1957年に超伝導発現機構を理論的に解明した BCS 理論では、超伝導転移温度でフェルミ粒子である2つの電子が電子とイオンの相互作用を通してボーズ粒子的な統計的性質をもつ超伝導対(クーパーペア)を形成し、それらが凝縮状態へと転移すると解釈された。この場合超伝導対はスピン一重項状態(2つの電子のスピンが反平行:  $S=0$ )であり、その空間的広がりには  $s$  波の対称性を持つものが考えられていた。図7(a)に  $s$  波型クーパー対の波動関数を示す。Nb や Pb など古くから知られた超伝導物質のクーパー対はスピン一重項  $s$  波型である。

しかし、超伝導対の引力の起源を電子格子相互作用だけでなく、一般的に電子間の相互作用に求めるならば、超伝導対も  $p$  波や  $d$  波などの対称性を持つこともある。特に電子間の強い相関(クーロン相互作用)が働くような系では、図7(b), (c)に示す通り、お互いに避けあう位置で安定状態にあり、スピン三重項(超伝導対のスピン  $S=1$ )で

ある  $p$  波やスピン一重項  $d$  波が有利である。銅酸化物超伝導物質では  $d$  波型クーパー対が形成されると一般的に考えられている。

強磁性と超伝導が共存する  $\text{UGe}_2$  の場合はどのような対称性をもつクーパー対が安定なのであろうか？電子間に働く強磁性的相関は  $s$  波対称性を持つクーパー対にたいして破壊的な役割を果たすことが知られて

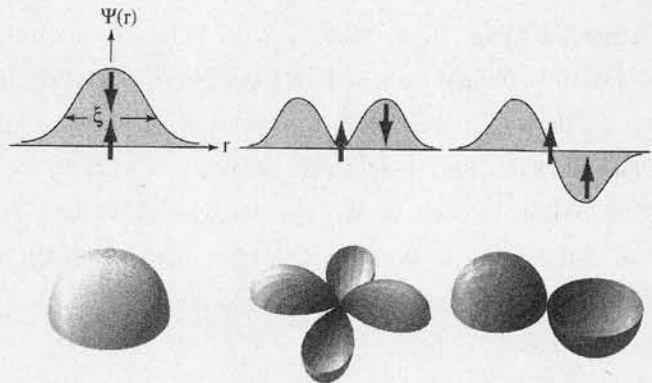


図7  $s$ 、 $d$ 、 $p$  波型のクーパー対

いる。強磁性物質の場合、伝導電子バンドがスピン分裂し、上向きのスピンを持つ電子と下向きのスピンを持つ電子の数は同じではなくなる。同じ向きのスピンを持つ2電子が $p$ 波型クーパー対を形成するのが自然だと思われる。 $p$ 波型超伝導体は理論的には1960年代から予測されていたが、実験的に確認されたのはごく最近のことである。UPt<sub>3</sub>, Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>などの物質で $p$ 波型超伝導体の実現していることが阪大基礎工の北岡研究室のNMR実験から明らかとなった<sup>13,14)</sup>。UGe<sub>2</sub>でも同様の実験が行われクーパー対の対称性の決定が行われることが期待される。

一般的にBCS型の $s$ 波超伝導体では超伝導転移温度などは非磁性不純物などの存在に強い影響を受けないことが知られている。しかし、 $p$ 波や $d$ 波型超伝導物質は微量の不純物に対して超伝導状態が大きな影響を受け超伝導は容易に破壊される。UGe<sub>2</sub>では図4に示したように超伝導転移温度における比熱の飛びが小さい。測定では試料の純度の目安となる残留抵抗比(RRR)が600の極めて純良な単結晶試料を使用したことを考慮するとUGe<sub>2</sub>の超伝導は微量の不純物に対して敏感であり、非BCS型の超伝導の特徴が現れていると考えられる。

## 5. おわりに

UGe<sub>2</sub>の超伝導について私達の実験結果を中心に紹介した。UGe<sub>2</sub>の超伝導について考える上で、 $T^*$ の存在が重要であることがわかった。今後、この相転移の微視的起源を明らかにしてゆくことが重要である。URhGe, ZrZn<sub>2</sub>などの物質でも強磁性と超伝導の共存が発見され<sup>15,16)</sup>、両者の共存はUGe<sub>2</sub>だけでなく広く一般的に見られる現象であると推測される。これらの超伝導を統一的に解釈する理論の構築等に期待がかかる。

本研究は極限科学研究センター小林達生助教授、基礎工学研究科天谷喜一教授、理学研究科大貫惇睦教授、摂待力生助教授、原研先端基礎研芳賀芳範研究員との共同研究である。

## 参考文献

- 1) S. S. Saxena, P. Agarwal, K. Ahilan, F. M. Grosch, R. K. W. Hasselwimmer, M. J. Steiner, E. Pugh, I. R. Walker, S. R. Julian, P. Monthoux, G. G. Lonzarich, A. Huxley, I. Sheikin, D. Braithwaite and J. Flouque: *Nature* **604** (2000) 587.
- 2) A. Huxley, I. Sheikin, E. Ressouche, N. Kernavanois, D. Braithwaite, R. Calemczuk and J. Flouque: *Phys. Rev. B* **63** (2001) 144519.
- 3) Y. Ōnuki, I. Ukon, S. W. Yun, I. Umehara, K. Sato, T. Fukuhara, H. Sato, S. Takayanagi, M. Shikama and A. Ochiai: *J. Phys. Soc. Jpn.* **61** (1992) 293.
- 4) G. Oomi, K. Nishimura, T. Kagayama, S. W. Yun and Y. Ōnuki: *Physica B* **186-188** (1993) 758.
- 5) H. Takahashi, N. Mori, Y. Ōnuki and S. W. Yun: *Physica B* **186-188** (1993) 722.
- 6) *Superconductivity in Ternary Compounds II*, edited by M. B. Maple and Ø. Fischer (Springer,

Berlin, 1982)

- 7) C. Bernhard, J. L. Tallon, Ch. Niedermayer, Th. Blasius, A. Golnik, E. Brucher, R. K. Kremer, D. R. Noakes, C. E. Stronach, E. J. Ansaldo: Phys. Rev. B **59** (1999) 14099
- 8) N. Tateiwa, T. C. Kobayashi, K. Hanazono, K. Amaya, Y. Haga, R. Settai and Y. Ōnuki: J. Phys.: Condense. Matter **13** (2001) L17
- 9) T. C. Kobayashi, K. Hanazono, N. Tateiwa, K. Amaya, Y. Haga, R. Settai and Y. Ōnuki: to be published in Proc. Int. Conf. High Press. Sci. and Technol. (AIRAPT-18), cond-mat/0107584
- 10) N. Tateiwa, K. Hanazono, T. C. Kobayashi, K. Amaya, Y. Haga, R. Settai and Y. Ōnuki: J. Phys. Soc. Jpn. **70** (2001) 2876.
- 11) H. Yamagami: to be published
- 12) S. Watanabe and K. Miyake: submitted to J. Phys. Soc. Jpn., cond-mat/0110492
- 13) K. Ishida, H. Mukuda, Y. Kitaoka, K. Asayama, Z. Q. Mao, Y. Mori, Y. Maeno: Nature **396**, (1998) 558
- 14) H. Tou, Y. Kitaoka, K. Asayama, N. Kimura, Y. Onuki, E. Yamamoto, and K. Maezawa: Phys. Rev. Lett. **77**, (1996) 1374
- 15) C. Pfleiderer, M. Uhlarz, S. M. Hayden, R. Vollmer, H. V. Lohneysen, N. R. Bernhoeft and G. G. Lonzarich: Nature **412** (2001) 58.
- 16) D. Aoki, A. Huxley, E. Ressouche, D. Braithwaite, J. Flouquet, J. P. Brison, E. Lhotel and C. Paulsen: Nature **413** (2001) 613.