



Title	強磁性超伝導体U <sub>Ge</sub> <sub>2</sub> ：強磁性と共存する新奇な超伝導状態
Author(s)	原田, 淳之
Citation	大阪大学低温センターだより. 2007, 139, p. 15-19
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/8450">https://hdl.handle.net/11094/8450</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

# 強磁性超伝導体 $\text{UGe}_2$

## ～強磁性と共存する新奇な超伝導状態～

基礎工学研究科

原田 淳之（内線6438）

### 1. はじめに

超伝導体の上で悠然と磁石が浮いている様子を皆さんはどこかで見たことないでしょうか？超伝導のデモンストレーションとして有名な‘浮き磁石’です。これは超伝導の基本的性質の1つであるマイスナー効果（超伝導体の内部から磁束密度を排除する性質）によるもので、超伝導体から磁石をはね退けようとした結果起こります。実際、超伝導体に加える磁場を大きくすると超伝導状態は抑圧され、最終的に超伝導状態は完全に消失します。そのため超伝導と磁性は相容れない関係にあると一般的に考えられてきました。しかし最近の研究より必ずしもそうではないことがわかりました。2001年、これまでの常識を覆すかのように、 $\text{UGe}_2$ というウラン化合物において強磁性状態で超伝導が生じることが初めて発見され世界中に大きな衝撃を与えた<sup>[1]</sup>。

$\text{UGe}_2$ が属する重い電子系化合物（強い電子相関が存在する系）の超伝導はこれまでに希土類Ce系化合物で反強磁性相に隣接し多くが発見されており、それは加圧により反強磁性秩序が弱まり消失する圧力近傍で出現します（圧力を加えることで原子同士を互いに近づけ電子が原子間を動きやすくすることで、本来局在的なCe-f電子が遍歴し磁気不安定となった状況で超伝導が観測されています、図1参照）。 $\text{UGe}_2$ においても加圧することで強磁性秩序が弱まり高圧下 $P=1.0 \sim 1.5 \text{ GPa}$ で超伝導が出現します（超伝導転移温度 $T_{\text{sc}}$ の最高温度は $T_{\text{sc}}=0.8 \text{ K}$  @  $P=1.2 \text{ GPa}$ 、図2参照）<sup>[1, 2, 3, 4, 5]</sup>。しかしこの物質の超伝導が大変特徴的なのは、超伝導が常磁性状態では現れないのに対し、強磁性状態でのみ出現することです<sup>[4, 6]</sup>。この事実から強磁性と超伝導の密接な関係が自然と考えられると思う。つまりこの超

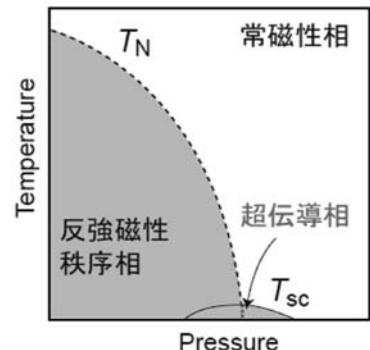


図1. 重い電子系超伝導体（Ce化合物）の概略的な圧力-温度相図

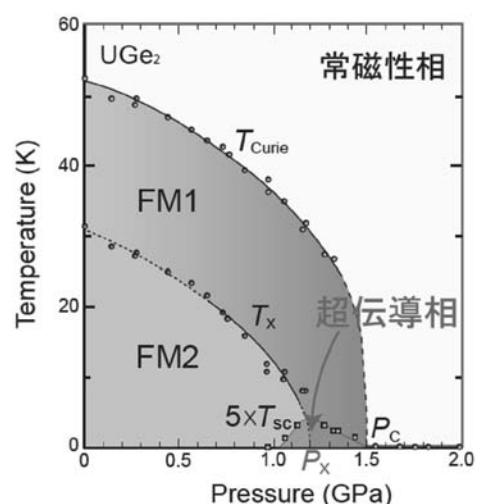


図2.  $\text{UGe}_2$ の圧力-温度相図  
(Ref. [5] より転用)

伝導の実現には、強磁性秩序がなくてはならないということである。もう一つ重要なことは強磁性転移温度  $T_{\text{Curie}}$  以下にまた別の磁気異常温度  $T_x$  が存在し<sup>[7,8]</sup>、 $T_x$  が消失する圧力近傍 ( $P=P_x$ ) で超伝導転移温度が最も強められていることである<sup>[4,8,9]</sup> (図 2 参照)。 $T_x$  では磁化の急激な増大が見られ、ここでは磁化が小さい強磁性相を FM1、大きい強磁性相を FM2 と呼ぶ。UGe<sub>2</sub>はこれまで電気抵抗、帯磁率、比熱などの巨視的な性質を調べる実験手段により研究が進められてきたが微視的なレベルで、 $T_x$  とは何か？強磁性と超伝導は一様に共存しているのかどうか？また強磁性相に存在する超伝導状態についてよく分かっていなかった。そこで我々は、微視的観点から異なる強磁性相 (FM1、FM2) の電子状態を分離し測定できる核四重極共鳴 (NQR) 測定を高圧下で行ってきたので、その実験内容を紹介したい。

## 2.2 つの強磁性相FM1、FM2

斜方晶Cmmmの結晶構造 (右の図 3 参照、ウラン (赤) と 3 サイトのGe (黄、緑、青) が存在) を持つ強磁性体 UGe<sub>2</sub> は超伝導転移温度が最も高くなる  $P \sim 1.2$  GPaにおいてなお強磁性転移温度  $T_c=30$  K、 $T_{\text{sc}}$  以下でも磁気モーメント  $1 \mu_B/U$  が  $a$  軸方向に向いた長距離秩序が形成されている<sup>[2]</sup>。NQRスペクトルを見てみると、常磁性状態の (a)  $P=1.9$  GPa、FM1の (b)  $P=1.41$  GPa (c)  $P=1.24$  GPa、FM2の (d)  $P=1.2$  GPa (e)  $P=1.17$  GPaと内部磁場  $H_{\text{int}}$  の有無/大小によりそれぞれの磁性相で固有のスペクトルを持つ ((a) は  $T=4.2$  K、(b)-(e) は  $T=1.4$  Kで測定)。スペクトル解析の結果、興味深いことに 2 つの強磁性相の境界である  $P=P_x$  で  $H_{\text{int}}=0.9$  T (FM1@ $P=1.24$  GPa)、 $H_{\text{int}}=1.8$  T (FM2@ $P=1.2$  GPa) と僅かな圧力間で内部磁場が劇的に増大しており、 $T_x$  では磁気モーメントが一次転移的に増大していることが分かった (図 8 (b) 参照)。このことは磁化測定<sup>[4,8]</sup>や中性子散乱<sup>[2]</sup>の結果と一致する。FM1、FM2両相と超伝導の関わり、一次転移する  $T_x$  と超伝導の関係を明らかにすべく、我々は FM1、FM2 を分離し、右図のような周波数 (矢印) で  $T_1$  測定を行い、それぞれの強磁性状態における電子状態を探った。

## 3. 強磁性超伝導

$T_{\text{sc}}$  が最も高くなる  $P=1.24$  GPa (FM1) での核磁気緩和率 ( $1/T_1$ ) の結果を見てみる。再度確認しておくがこの  $T_1$  測定は強磁性相 FM1 の電子状態を見たもので、注目すべきはこの強磁性相で超伝導転移が観測されたことである。この超伝導状態であるが、 $T_{\text{sc}} (=0.75$  K) 直下にコヒーレンスピーク (従来型超伝導体の特徴) がなく、 $T < T_{\text{sc}}$  で  $1/T_1 \propto T^3$

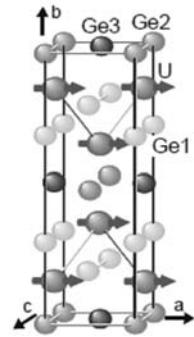


図 3. UGe<sub>2</sub>の結晶構造。青矢印は磁気モーメント

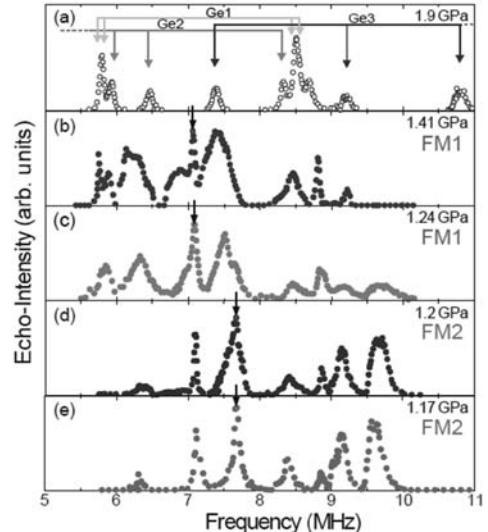


図 4. NQRスペクトル。(a) 常磁性状態、(b)-(c) FM1、(d)-(e) FM2

に近い温度依存性が見られることからラインノード (line node) 型の超伝導ギャップを持つ異方的超伝導が実現しているとわかる (図 5 参照)。また FM1のみならず FM2においても超伝導転移を観測しており、FM1と FM2両相での遍歴強磁性と異方的超伝導のミクロな共存が明らかとなった。ここでいうミクロな共存とは、強磁性と超伝導が住み分けて存在するのではなく試料内で一様に存在するということで、磁性を担う U-5f 電子が超伝導にも寄与していることが考えられる。

もう一点超伝導状態で注目すべきことがある。それは  $T = T_{sc}$  で再び  $1/T_1$  ～  $T$  の振る舞いを見せ始めることである。これは超伝導状態にギャップを開いていない有限な残留状態密度が存在することを意味する。またこれを強磁性状態のフェルミ面の状態密度でわった残留状態密度比が風変わりな圧力依存性を示しており、何か超伝導の本質的な一端を見せているのではないかと思わせる。(通常、不純物起源の残留状態密度比は圧力依存しない。)

UGe<sub>2</sub> の超伝導状態に存在する残留状態密度の起源について以下の三つが考えられる。サンプル内の不純物効果、超伝導が強磁性と共に存するため現れる自己誘起渦糸、強磁性磁化方向に平行なスピン対 (↑↓) を形成する強磁性超伝導状態で特徴的な、アップスピンバンドでのみ超伝導ギャップが形成されダウンスピンバンドはギャップレス状態 (図 7 参照)。まず試料依存を調べた結果、今回用いたより高品質な試料においても、以前の試料同様に超伝導状態で残留状態密度が存在することがわかったのでこの可能性は除外される。またコヒーレンス長  $\sim 130$   $\text{Å}^{[8]}$ 、磁気モーメント  $1 \mu_B/U^{[3]}$  から見積もられる自己誘起磁束の残留状態密度比は  $\sim 3\%$  (三角格子を仮定したときの磁束と超伝導の面積比より導出) で、実験で観測される残留状態密度比  $\sim 50\%$  (FM2)、 $\sim 30\%$  (FM1) を説明できずこの可能性も除外される。以上よりこの強磁性超伝導状態の可能性が高い。実際この強磁性超伝導状態を仮定した理論曲線を各圧力での  $1/T_1$  の温度依存にフィッティングしたところよく合う (図 6 参照)。また強磁性超伝導モデルを用い  $1/T_1$  の温度依存を解析したところ面白い結果が得られた。強磁性状態ではスピン分裂するが (図 7 参照)、ダウンスピンバンドのフェルミ面の状態密度  $N(E_F)$  に対し強磁性超伝導を担うアップスピンバンドのフェルミ面での状態密度  $N(E_F)$  が、FM1 FM2 の

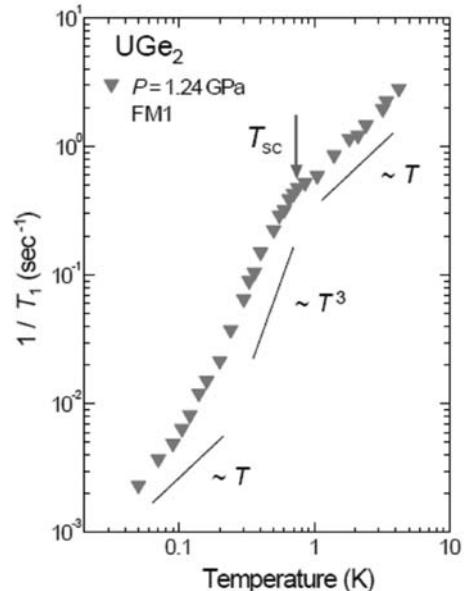


図 5.  $P=1.24$  GPaでの  $1/T_1$  の温度依存。  $T_{sc} = 0.75$  K (赤矢印)

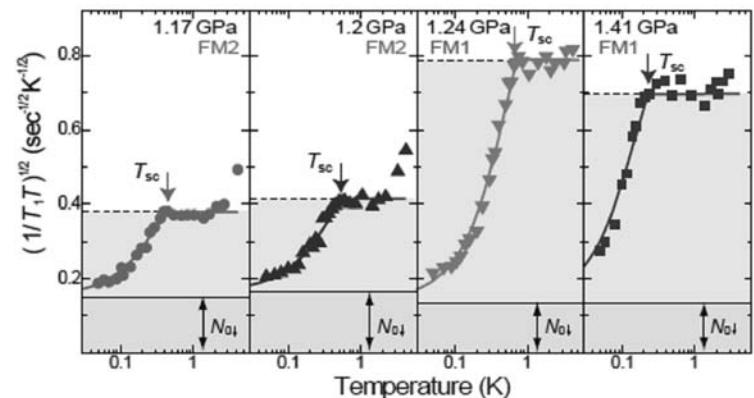


図 6.  $P=1.17, 1.2, 1.24, 1.41$  GPaでの  $(1/T_1 T)^{1/2} (D E_F)$  の温度依存。  $N_0$  は残留状態密度。

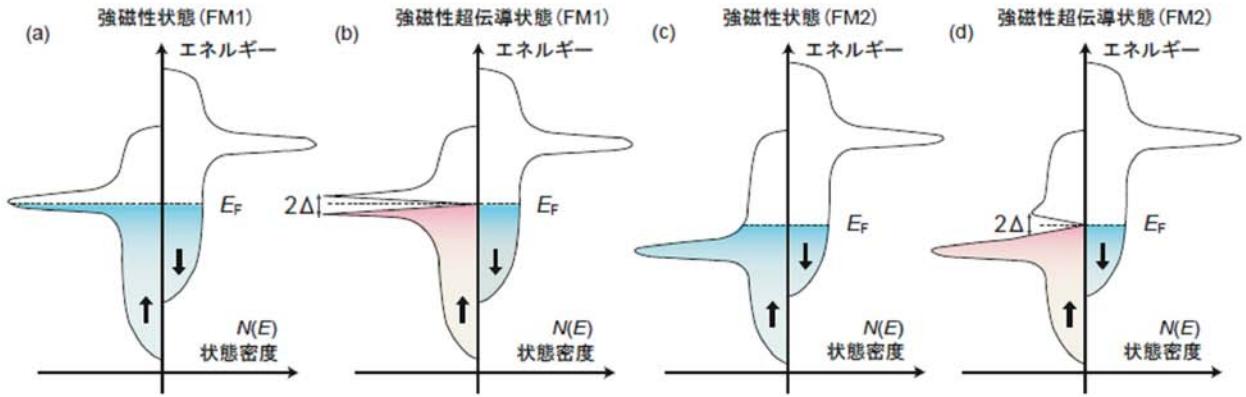


図 7 . エネルギーバンドの概略図。

(a) 強磁性状態 (FM1) (b) 強磁性超伝導状態 (FM1)  
(c) 強磁性状態 (FM2) (d) 強磁性超伝導状態 (FM2)

境界となる  $P=P_x$  ( $T_{sc}$  が最も高くなる) で劇的に変化する (図 8(c) 参照)。定性的には図 6 から直感的に分かると思う ( $N(E_F)$  による残留状態密度 (図 6 の青色の領域) と  $N(E_F)$  と関連する超伝導ギャップを開く領域 (図 6 の赤色の領域))。図 8 を見ても分かるように  $T_{sc}$ 、 $H_{int}$ 、 $N(E_F)$  が  $P=P_x$  で同時に顕著な振る舞いを見せており、これらの密接な関連が指摘される。また  $P=P_x$  では  $N(E_F)$  が急激に変化することにより磁化が増大するので、FM1では  $N(E_F)$  にシャープな状態密度が存在し、FM2へ転移後それがフェルミ面以下にもぐりこんだものと考えられる (図 7 参照)。この  $P=P_x$  近傍FM1の  $N(E_F)$  のシャープな状態密度の存在が磁気転移や強磁性超伝導の力ギを握ると考えられる。ただこのバンド描像だけでは UGe<sub>2</sub> の超伝導発現機構を理解するには不完全である。

強磁性状態であるにも関わらずそれに打ち勝ち超伝導状態が実現するのはなぜだろうか？超伝導は、二つの電子がペアを組みボーズ凝縮することで安定なエネルギー状態を作ることで実現するが、電子が超伝導対をつくるためには手助けが必要である。金属で多く見られる従来型超伝導では格子振動がこの役割を担うのに対し、高温超伝導や重い電子系 (Ce系化合物) では反強磁性揺らぎが担うと考えられている。この問い合わせる上で重要な報告として、Huxley氏らの常圧での中性子散乱測定より報告された  $T_x$  近傍に存在する縦方向 (磁気モーメント方向) の揺らぎ<sup>[10]</sup>、また諸実験の特徴的結果をよく説明する渡辺・三宅両氏の理論による異方的なCDW/SDW揺らぎ<sup>[11]</sup>が挙げられる (後者はFM2でCDWがSDWを伴って秩序化すると考えている)。 $T_x$  近傍に存在するこの異方的な磁気揺らぎは、我々が観測した  $N(E_F)$  の劇的な圧力変化と関連しないであろうか。この異方的な磁気揺らぎが、 $N(E_F)$  の劇的な圧力変化により発生したとえ磁気秩序状態であっても超伝導ペアを結

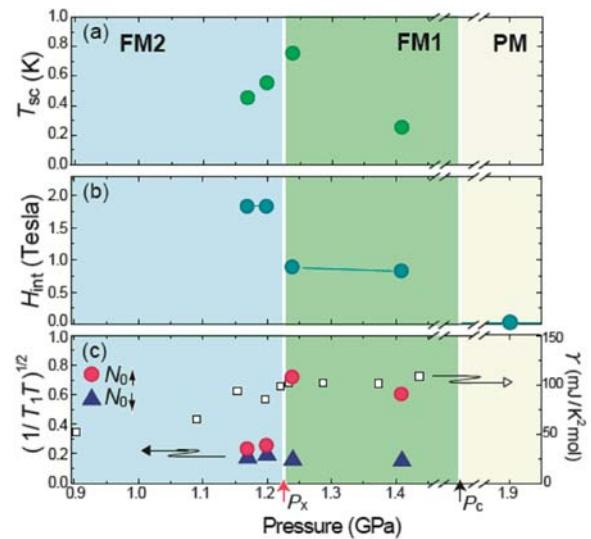


図 8 . (a) 超伝導転移温度、(b) 内部磁場、(c) 上向き、下向きスピンドバンドのフェルミ面の状態密度の圧力依存。白抜きは電子比熱係数<sup>[8]</sup>

びつける役目を果たしアップスピンバンドで平行なスピン対を形成する強磁性超伝導を導く、と我々は期待する。

#### 4.まとめ

UGe<sub>2</sub>の超伝導について我々の高圧下NQR測定の結果を中心に紹介した。試料内で超伝導と強磁性が一様に存在することを明らかにし、新奇な強磁性超伝導の実現を指摘した。今後この強磁性超伝導の発現機構を明らかにしていくことが重要である。また強磁性状態で超伝導が出現するもう一つの物質URhGe<sup>[12]</sup>の研究が進むことで、UGe<sub>2</sub>とあわせてより一層、強磁性超伝導の理解が深まるることを期待する。

当研究は、川崎慎司（岡大理） 棕田秀和、北岡良雄（以上、阪大基礎工） 芳賀芳範、山本悦二（以上、原研先端研） 大貫惇睦（阪大理/原研先端研） 伊藤公平（慶大理工） E.E.Haller（カリфорニア大） 播磨尚朝（神大理）の諸氏との共同研究である。最後に、当研究を行ううえで欠かすことのできない液体ヘリウムを長期にわたり安定し供給していただいた低温センターの竹内先生をはじめ職員の方々に、この場を借りて礼を述べたい。

#### 参考文献

- [ 1 ] S. S. Saxena *et al*, Nature 604, 587 ( 2000 )
- [ 2 ] A. Huxley *et al*, Phys. Rev. B 63, 144519 ( 2001 )
- [ 3 ] N. Tateiwa *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. 70, 2876 ( 2001 )
- [ 4 ] C. Pfleiderer *et al*, Phys. Rev. Lett. 89, 147005 ( 2002 )
- [ 5 ] Y. Haga *et al*., J. Phys.: Condens. Matter 14, L125 ( 2002 )
- [ 6 ] A. Harada *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. 74, 2675 ( 2005 )
- [ 7 ] G.Oomi *et al*., Physica B 186-188, 758 ( 1993 )
- [ 8 ] N. Tateiwa *et al*., J. Phys.: Condens. Matter 13, L17 ( 2001 )
- [ 9 ] H. Kotegawa *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. 74, 705 ( 2005 )
- [ 10 ] A. Huxley *et al*, Phys. Rev. Lett. 91, 207201 ( 2003 )
- [ 11 ] S. Watanabe *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. 71, 2489 ( 2002 )
- [ 12 ] D. Aoki *et al*, Nature 413, 613 ( 2001 )