

f 電子系における磁性と超伝導の相関

名古屋大学大学院理学研究科 佐藤 憲昭

1 はじめに

ビッグバンにより宇宙が誕生して140億年近くが経過する。この間に宇宙の温度は下がりが続き、いくつかの相転移を経て現在に至っている。私たちにとって無くてはならない太陽も無限の寿命を持つわけではなく、いずれその一生を終える日が訪れる。中性子星は、そのような恒星の進化過程の最終段階にあるコンパクト天体の一種である。中性子星の内部では、グリッジと呼ばれる回転周期のスピンアップの観測を通し、中性子の超流動状態が実現していると予想されている。¹ 最近では、観測では未だ確かめられたわけではないが、素粒子を構成するクォークからできたクォーク星というものまで議論の対象となっている。もし仮にクォーク星が実在するとしたら、その内部ではクォークの「カラー超伝導」が生じているかもしれない。私たちは、「重い電子系」の研究により、互いに逆向きのスピンからなるクーパー対だけでなく、平行スピン対をもったクーパー対の存在を知っている。² 電子がスピンを持つと同様に、クォークはカラーという量子数（内部自由度）をもつ。これが丁度電子のスピンを果たし、それらの多様な組み合わせによって多様な超伝導状態が実現していると考えられている。このように、中性子星やクォーク星の研究において、液体ヘリウムや重い電子系などの研究で明らかとなってきた新しい物理概念が利用されている。このことは、林檎が木から落下する現象と、月が地球の周りを周回することが本質的に同じであることを見抜いたニュートンの発見に似た側面があるようにも思われる。

本講義では、重い電子系超伝導の中でも特異な存在であるウラン系磁性超伝導体に焦点を絞りたい。反強磁性秩序状態の中で超伝導が現れる UPd_2Al_3 に対し我々が提唱している新しい超伝導発現機構や、磁石（強磁性体）でありながら超伝導を示す UGe_2 についての最近の実験データについて紹介したい。

¹このような斬新なアイデアを提唱したのは、物性理論研究者の P.W. Anderson 等であることは注目に値する。

²通常の BCS 型超伝導体においては、よく知られたように、逆向きのスピンをもった二つの電子が対を形成している。一方、重い電子系超伝導体 UPt_3 においては、同じ向きのスピンをもった電子対が形成されていると考えられている。

2 UPd₂Al₃

UPd₂Al₃ は典型的ウラン系磁性超伝導体であり、多くの実験研究が為されてきた結果、現在最もよく理解されている重い電子系超伝導体であると認識されている。本講義では、その概要を紹介する。³

UPd₂Al₃ の結晶構造と磁場・温度相図を図1に示す。結晶構造は六方晶であり、ウラン原子とパラジウム原子からなる面と、アルミニウムから成る面とが互い違いに積層している。中性子散乱実験を行うことにより、磁気モーメントはウラン原子の上のみ存在し、パラジウムやアルミニウムの上には存在しないことが確かめられている。温度が $T_N = 14.5$ K 以下に冷却されると、ウラン原子上の磁気モーメントは反強磁性秩序を形成する。図1(a)に示したように、c面内の磁気モーメントは強磁性的に配列し、それがc軸の方向に互い違いに積み重なっている。電子比熱係数は、反強磁性相内で $\gamma \sim 150$ mJ/K²mole 程度に大きい。⁴ これより、重い電子状態が実現していると考えられている。

この物質のもっとも興味ある点は、 $T_c \simeq 2$ K で反強磁性秩序を保ちながら 超伝導に転

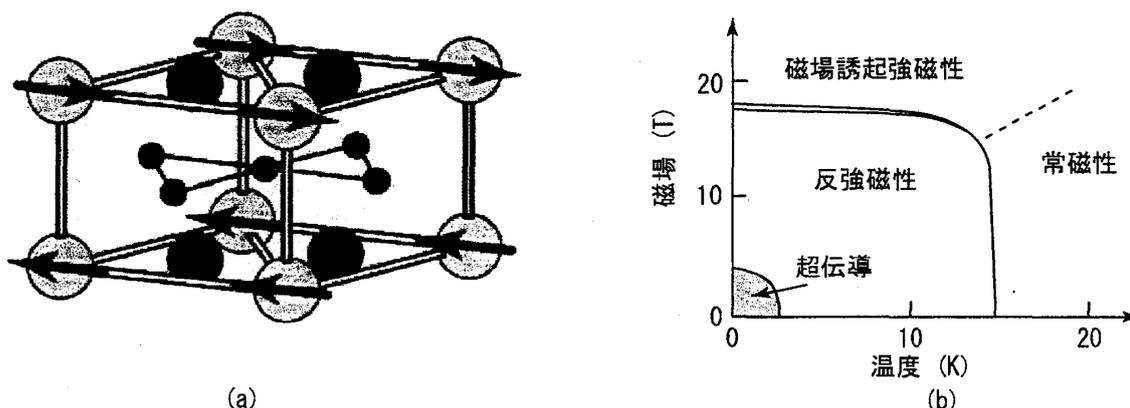


図1: UPd₂Al₃ の結晶構造および磁気構造 (a) と磁場・温度相図 (b)。結晶構造は六方晶であり、ネール温度以下で生じる反強磁性秩序状態は、強磁性的な配列がc軸の方向に積層した構造となっている。反強磁性相内の低温領域で磁場を強くしていくと、18 T付近でいわゆる「メタマグ」が生じる。これは磁化の飛びを伴う1次相転移であり、図(b)中の2重線の部分で観測される。常磁性状態でもメタマグの名残が見られ、その異常の起こる磁場・温度が破線で示されている。また、約2 K以下で、反強磁性秩序を保ちながら、超伝導に転移する。

³ここでは文献を一つ示すことはしない。次の文献の中の引用論文を参照されたい：N.K. Sato *et al.*, Nature **410** (2001) 340.

⁴通常金属に比べれば数十倍大きな値ではあるが、典型的重い電子系セリウム化合物に比べれば1桁小さい。この相違はウラン系の物理を考える上で重要であるが、ここでは議論しない。

移することである。このとき、 T_c での比熱の異常（飛び）は通常のBCS超伝導と同じくらい大きいことから、重い電子が超伝導状態に転移したと考えられる。さらに温度を下げ、超伝導状態での比熱の温度依存を精密に測定すると、「温度のべき乗則」が観測される。⁵通常のBCS超伝導であれば超伝導ギャップを反映した指数関数的振る舞いが観測されるはずであるから、このべき乗則の観測は超伝導がギャップレスであることを示す。また、NMRや μSR などの実験により、ナイトシフトが T_c 以下で減少することが見出された。これは、クーパー対がスピン・シングレット（反対向きのスピンでクーパー対が形成されている）であることを示す。以上を整理すると、 UPd_2Al_3 のギャップレス超伝導は重い電子のスピン・シングレット・クーパー対によって担われている。

一方、磁気的性質を色々調べると、実験によっては $5f$ 電子が遍歴的に見えたり、別の実験では局在的に見えたりする。（遍歴・局在に関しては、もう一つの講義「重い電子系の物理」を参照されたい。）超伝導は遍歴的性質の顕著な現われであり、磁気秩序は局在的性質を反映したものと考えられる。この矛盾する性質を理解するため我々が提案したアイデアが、「遍歴・局在2重性（デュアリティー）」である。⁶即ち、3個の $5f$ 電子は2成分に分けられ、2個の $5f$ 電子からなる局在成分が磁気秩序を担い、⁷残りの1個が遍歴し超伝導電流を運ぶとするものである。

このモデルは、磁性と超伝導の相関を考える際に生まれたものである。そのきっかけと

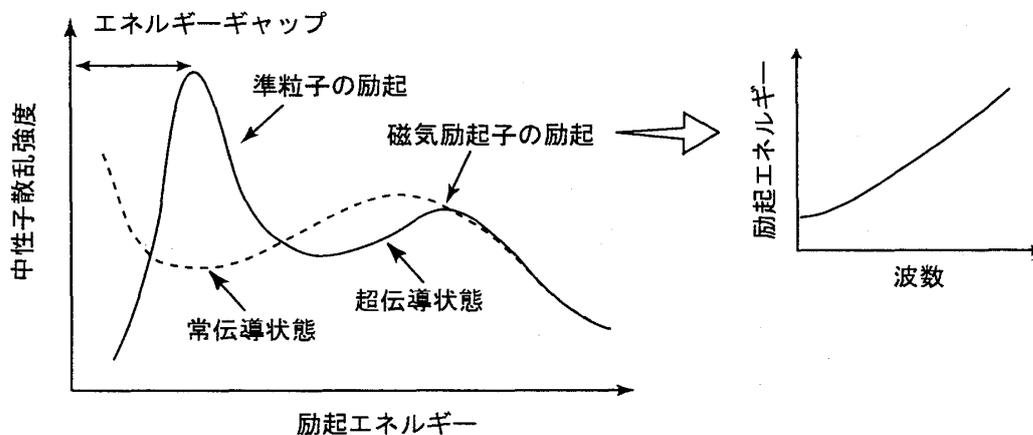


図 2: UPd_2Al_3 の中性子非弾性散乱スペクトルの模式図。超伝導の出現と同時に、エネルギーギャップが低エネルギー領域に現れる。高エネルギー側に見えるブロードなピークは磁気励起子の励起によるものであり、結晶を伝播する波であることを反映し、dispersion（右図のような波数依存）を示す。

⁵比熱 C に対し、その温度依存は $C = T^n$ と書かれる。このとき、 n は 2 と 3 の間の数である。

⁶デュアリティーというよりは、「遍歴・局在の 2 成分の存在」といった方が適切かもしれない。

⁷偶数個であることが重要である。これにより、磁化率の温度依存が説明される。

なったのは、図2に示した中性子非弾性散乱実験である。超伝導転移温度以下の極低温で中性子散乱実験を行ったところ、予想もしていなかったスペクトルを発見した。特に興味深かった点は、超伝導の発現とともに、低エネルギー励起にギャップ構造が現れたことである。⁸ この励起スペクトルの意味するところを試行錯誤で探った結果見出されたモデルが、次に説明する「磁気励起子」を媒介とした超伝導発現機構である。

磁気励起子とは、スピン波と同様、スピンの集団励起である。今考えているデュアリティーモデルでは、 $5f$ 局在成分の励起状態とみなされる。通常のスピン波であれば、常磁性状態で（少なくとも磁気転移温度より十分高温において）発現することはないが、磁気励起子は常磁性状態でも伝播することができる。また、スピン波と異なり、磁気励起子は（結晶場）シングレット基底状態の系に現れることも特徴である。⁹ 磁気励起子はボソンであるから、BCS 超伝導体のフォノンと同じような役割を果たすことが期待される。即ち、磁気励起子をキャッチボールすることにより二つの電子間に引力が働くと考えられる。さらに、トンネル効果実験から得られたスペクトルは、Eliashberg 方程式の枠組み内で、上記の中性子散乱スペクトルと整合する。これは、磁気励起子が超伝導引力相互作用に本質的に関わっていることを示す。

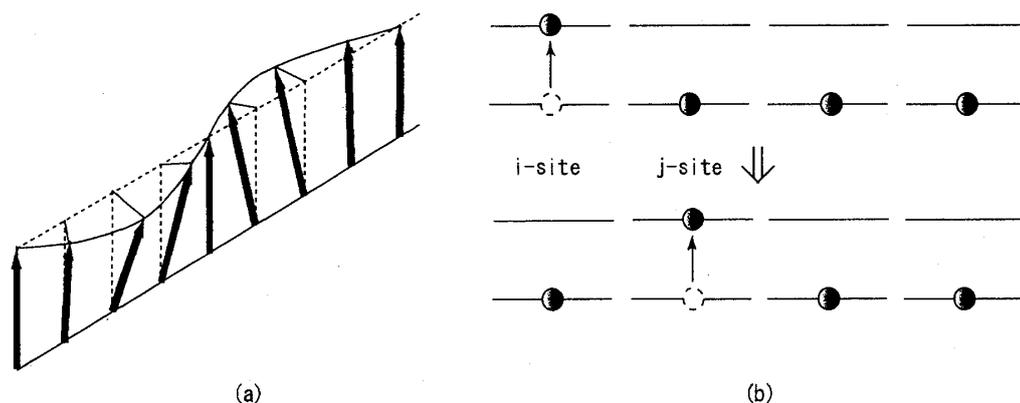


図 3: 磁気励起子媒介超伝導。(a) 磁気励起子の直感的イメージを与えるための図。ここでは強磁性をイメージして描かれているが、実際は反強磁性である。磁気励起子は、スピン波と同様、スピンの集団励起である。(b) 結晶場分裂した2準位系。 i サイトが励起状態から基底状態に落ち込むと、そのエネルギーは隣接する j サイトに伝えられ、それを励起する。これが、結晶全体に波として伝播するのが磁気励起子である。

⁸通常、中性子散乱実験では、準粒子成分が観測にかかることはない。この意味で、超伝導ギャップ（に対応する構造）の観測は極めて例外的である。

⁹結晶場基底状態がシングレットである物質が低温で反強磁性になるためには、何らかの仕掛けが必要である。結晶場励起エネルギーと交換相互作用の大小関係が問題であり、後者が前者より大きければ低温で磁気秩序状態が発現する。逆の場合は常磁性のままである。

以上が磁気励起子媒介超伝導のシナリオである。現在までのところ、このモデルに反する実験結果は無い様である。今後の更なる研究によって上記モデルが検証されていくことを期待する。

3 UGe₂

UGe₂ は常圧でキュリー温度 $T_C = 53$ K の強磁性体である。これに外部から圧力を印加すると、図??に示したように、 T_C は徐々に減少し、ある圧力 ($P_C \sim 15$ kbar) でゼロになる。不思議なことに、強磁性相内には別の相転移あるいはクロスオーバーがある。この異常の現れる温度を T_X と呼ぶことにすると、 T_X も圧力の増大とともに単調に減少し、 $P_X \sim 11$ kbar 付近の圧力で消失する。この強磁性相内で起こる転移あるいはクロスオーバーの正体を探る研究が行われてきているが、未だ不明である。例えば、相転移だとすると、秩序変数は何かといった基本的な問題すら解決されていない。ただ、ほぼ間違いないだろうと思われることは、低温・低圧領域が完全分極状態（左図の状態密度のように上向きスピンバンドのみが占有された状態）であり、高温・高圧側が部分分極状態（両方のス

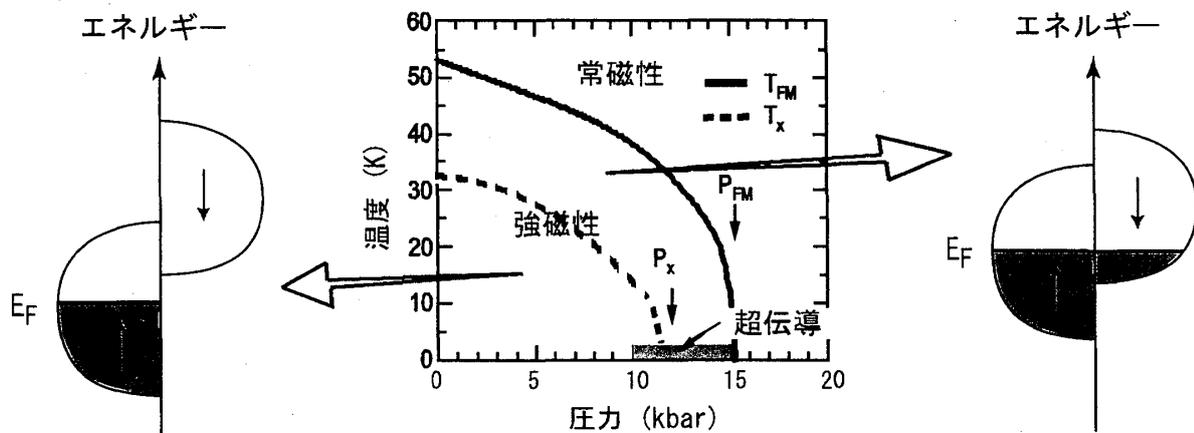


図 4: UGe₂ の圧力・温度相図 (中央)。キュリー温度は圧力の単調減少関数であり、 $P_C \sim 15$ kbar 付近で消失する。強磁性相の中に別の相転移あるいはクロスオーバーが存在する。これを特徴付ける温度 T_X もまた圧力の単調減少関数であり、 $P_X \sim 11$ kbar 付近でゼロになる。 P_X 以下の圧力領域は、左図に示したような「完全分極状態（上向きスピンバンドのみが占有された状態）」にあると考えられ、一方、 P_X 以上の圧力領域では、「部分分極状態（上向きスピンバンドと下向きスピンバンドの双方に電子が入っている状態）」である。二つの臨界圧力 P_C と P_X の間で超伝導が生じる。

ピンが存在する状態) であることである。¹⁰

驚くべきことに、二つの臨界圧力 P_X と P_C の間の圧力領域で超伝導が現れる。¹¹ これは、極めて異常であるといわざるをえない。強磁性体の内部では巨大な内部磁場 (分子磁場) が存在し、一方、超伝導は磁場によって破壊される。即ち、磁気秩序と超伝導は犬猿の仲であり、互いに排斥しようとするからである。この発見は、磁性と超伝導の相関について、私たちの理解が不十分であることを意味している。

超伝導の発現機構は何であろうか? UPd_2Al_3 と同じように、スピン波のような集団励起が関係しているのであろうか? 多くの研究にも関わらず、これは全く不明のままである。ただヒントとなりえるのは、常磁性状態では超伝導が存在しないこと、超伝導転移温度は、 P_X 近傍で最大を示し、 P_C に向かって単調に減少すると考えられていること、¹² などであろうか。この物質の研究は高圧下実験が必要という点で極めて難しいが、最近の我々の圧力下熱膨張の測定は、 P_X 近傍の物理について実に面白い情報を伝えてくれている。これらの結果については、講義で紹介する予定である。

¹⁰N. Aso *et al.*, Phys. Rev. B **73** (2006) 054512.

¹¹S.S. Saxena *et al.*, Nature **406** (2000) 587. 但し、この論文の相図には、 T_X の相線は描かれていない。

¹²但し、最近の我々の研究によれば、従来の相図とは異なり、 P_X と P_C の双方でピークを形成するように見える。S. Ban *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **310** (2007) e120.