

スピン三重項超伝導体 UPt_3 のNMRによる研究

阪大基礎工 藤秀樹*, 北岡良雄, 石田憲二, 朝山邦輔
 阪大理 木村憲彰**, 大貫惇睦†
 原研先端研† 芳賀芳範, 山本悦嗣
 富山県立大工 前沢邦彦

UPt_3 は、超伝導多重相を持つことが知られており、理論的にも実験的にも精力的に研究されている。ここでは、単結晶 UPt_3 の常伝導状態及び超伝導状態での磁性と超伝導について ^{195}Pt 核NMRの実験より得られた最近の結果について述べたい。

Pt核のNMRの実験は(2:2:5 mm)及び(1:1:4 mm)の大きさの試料を用いて行った。約2 kOeの磁場を印加した際のNMRスペクトル線幅は約6 Oe程度で、これまでに重い電子系化合物で報告されている中でもっとも狭く、微視的な観点からも試料は非常に良質である。

T_c 以上の高温での a , c -軸方向に磁場をかけた場合のナイトシフト測定において、これまでに中性子散乱実験で報告されている $T_N = 5\text{ K}$ での反強磁性転移に伴ったようなナイトシフト及びスペクトル線幅の異常は見られなかった。この磁気秩序は静的な長距離秩序ではなく動的に揺らいでいると考えられる (U(Pt-Pd)_3 では静的長距離秩序が小堀等によって観測されている[1]。研究会報告書参照)。

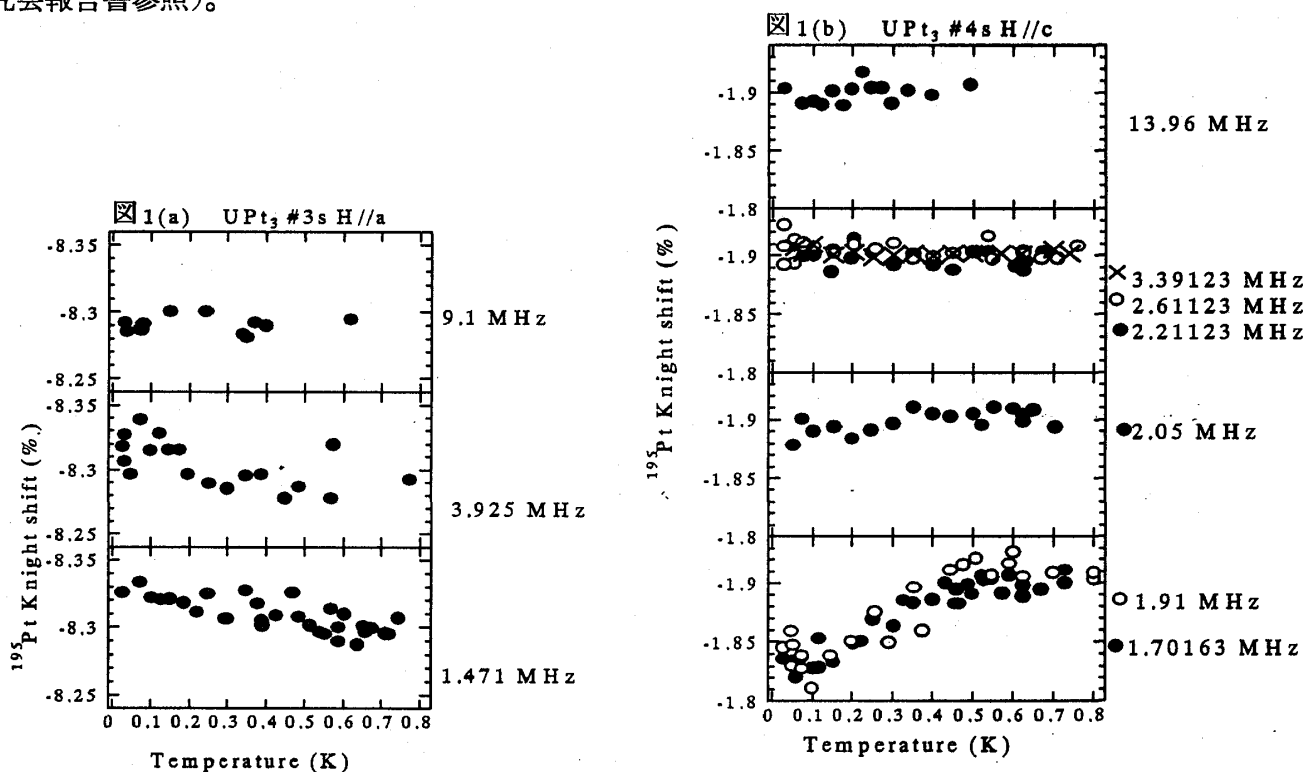


図 1: (a) a 軸、(b) c 軸に磁場を印加した際のナイトシフト (磁場依存性)

超伝導状態でナイトシフトは、少なくとも5 kOe以上の磁場では T_c 以下で磁場を印加する方向及び超伝導相によらず十分な精度で変化しない(図1)。我々の用いた試料はクリーンリミットであり、奇パリティ超伝導であると結論される[2]。また、秩序変数(擬スピン対 d -ベクトル)は結晶軸にピン止めされることなく磁場に追従して自由に動けると考えられ、クーパー対のスピン軌道相互作用は秩序変数を格子系に凍結するほど強くないことを示唆している。

一方、低磁場においては異方的なスピン帯磁率の減少が見られた。c 軸方向に磁場を印加した際、約 2.5 kOe 以下でスピン帯磁率の減少が見られ、秩序変数は対スピン軌道相互作用によって格子系に凍結されたと考えられる (図 1 (b))。一方、basal plane 内に磁場を印加した際は図 2(a) に示すように特異な振る舞いを示す。a 軸方向に磁場を印加すると全くスピン帯磁率は減少しないが、b 軸方向に磁場を印加すると 4.7kOe 以下 (B 相に入ると) でスピン帯磁率は減少する (図 2 (b))。つまり、basal plane に磁場をかけた際、d-ベクトルは b 軸方向に凍結されていることになる。この方向は、中性子散乱で報告されている反強磁性秩序 (この場合、反強磁性の揺らぎ) の伝搬方向と一致している。磁場依存性を見ると、5.3kOe で一旦シフトの減少が見られなくなる。これは c 相に入ったため、秩序変数は磁場に追従して自由に動けるようになるためであると予想される。しかし、さらに高磁場 (11kOe) の実験では、再びナイトシフトの減少が見られた。秩序変数の格子系への再凍結が起こったと考えることもできるが、シフトの温度変化の様子が異なる。つまり、低磁場 B 相では、下に凸の曲率をもちシフトの減少は飽和するが、11 kOe ではそれとは対照的で上に凸の曲率を持ったまま低温まで減少し続ける。この振る舞いについて現時点で解釈をつけるのは時期尚早であるが、これは新たな相を検出した可能性があり [3]、今後の実験を待つ必要がある。

理論的に、町田、大見 [4] によりこの反強磁性揺らぎを現象論的に取り込んで超伝導多重相図を理解する試みがなされている。彼らはスピン部分に縮退を持ったような非ユニタリー超伝導状態が実現していることを予想しており、現時点で彼らのモデルは我々の実験結果をうまく説明している (詳細は本研究報告参照)。

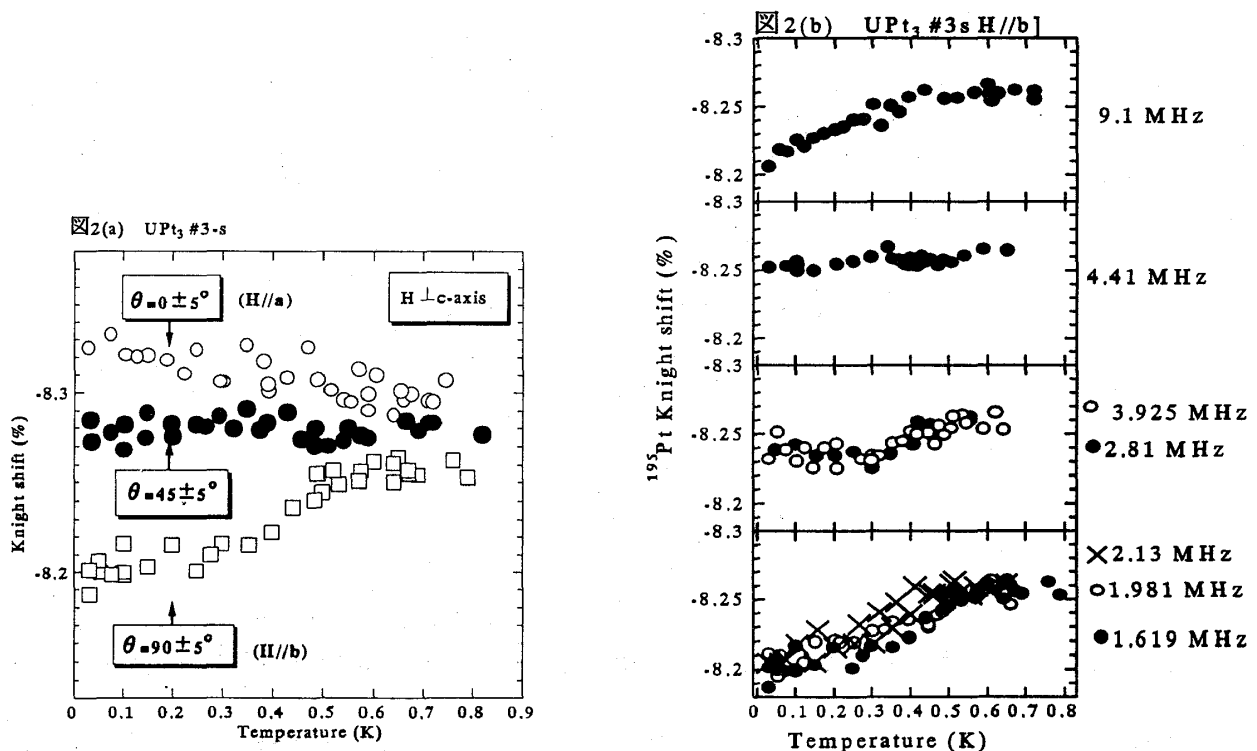


図 2: (a) 面内に磁場 (～1.8 kOe) を印加した際のナイトシフト。(b) b 軸に磁場を印加した際のナイトシフト (磁場依存性)。

一連の実験において特筆すべき点は、ナイトシフトの減少量が極めて小さいことである。ナイ

トシフトのスピンの部分は、次のような方法でおおざっぱにa軸方向で約-10%、c軸方向で-4%程度あると見積もることができる。

(1) 高温でのナイトシフトのCW的温度依存性[2]:

$$K_{obs}(T) = K_s(T) + K_{vv} = \frac{C}{T + \theta} + K_{vv}$$

$$\Rightarrow K_{cw}^a \sim -10.25\%, K_{cw}^c \sim -2.61\%$$

(2) 電子比熱係数[2]:

$$\chi_s(0) = \frac{\gamma g_J^2 \mu_N^2 J(J+1)}{\pi^2 k_B^2} \times R; \quad \gamma = 420 \text{ mJ/moleK}^2, \quad g_J \sqrt{J(J+1)} \sim 1.73, \quad m_a^* \sim 2.6 m_c^*$$

$$\Rightarrow K_\gamma^a \sim -11.12\%, K_\gamma^c \sim -3.55\%$$

(3) スピン格子緩和時間; $(1/T_1 T)_\parallel = 1810, (1/T_1 T)_\perp = 1050 (1/\text{secK})$:

$$\left(\frac{1}{T_1 T} \right)_\parallel = \pi k_B h \left(\frac{\gamma_n}{\mu_B} \right)^2 K_\perp^2; \quad \left(\frac{1}{T_1 T} \right)_\perp = \frac{1}{2} \pi k_B h \left(\frac{\gamma_n}{\mu_B} \right)^2 \{ K_\perp^2 + K_\parallel^2 \}$$

$$\Rightarrow K_{T_1}^a \sim -10.22\%, K_{T_1}^c \sim -4.89\%$$

上記の値を用いると、d波超伝導なら図3に示すように大きなシフトの減少が予想される。しかしながら、実際に観測された減少量は図に示すようにその百分の一程度である。

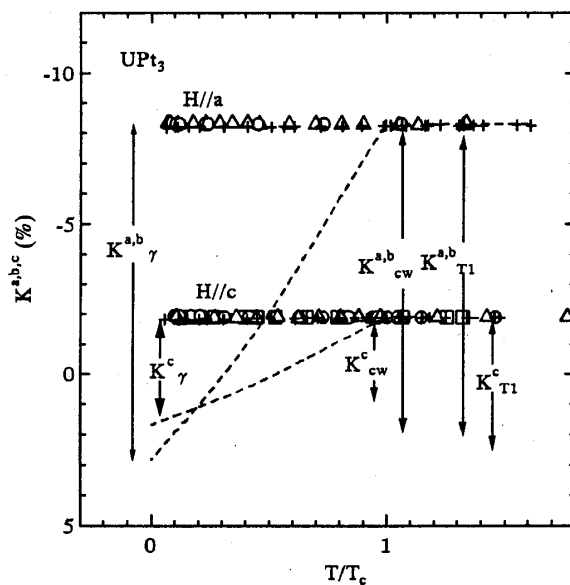


図 3: ナイトシフトをフルスケールでプロットした。実線はd波超伝導で期待される振る舞い。 $K_{CW}, K_\gamma, K_{T_1}$ はそれぞれ高温CW則、電子比熱係数、スピン格子緩和時間より評価した。

伝導電子が混成するf-イオンの結晶場基底状態がシングレットである場合、状態密度は相関効果によって増強されるが、スピン帯磁率は繰り込まれた状態密度ではなくベアな状態密度にスケールすることを池田、三宅は本研究会で報告した[5]。これに関連して表に種々の重い電子超伝導体に関するスピン帯磁率の減少量をまとめてみた。彼らの理論に従えば、 UPd_2Al_3 や CeCu_2Si_2 はそれぞれf-イオンの結晶場基底状態は $5f^{10}r^3, 4f^1$ のクラマースダブレットであると考えられ、一方、 UPt_3

	γ (mJ/moleK ²)	$\chi(T_c)$	χ_γ (10 ⁻²)	χ_{T1} emu/mole)	$\delta\chi_{obs}$	Configuration
UPt ₃	420	0.9	0.73	0.67	0.006	
		0.48	0.28	0.38	0.007	5f ² (p/f-wave)
UPd ₂ Al ₃	150	1.27	0.20	0.22	0.20	
		0.56	0.20	0.17	0.13	5f ^{1or3} (d-wave)
UNi ₂ Al ₃	120	1.0	0.17	0.16	?	?
UBe ₁₃	720	1.2	0.99	1.21	(0)	5f ² ?(p/f?)
URu ₂ Si ₂	65	0.15	0.1	0.075	(0)	
		0.46	0.06	0.06	(0)	5f ² ?(p/f?)
CeCu ₂ Si ₂	730	1.2	1	0.87	0.4(SO)	4f ¹ (d-wave)

表 1: 重い電子系超伝導体のスピン帯磁率。 $\chi(T_c)$ は測定値、 χ_γ, χ_{T1} は計算値である。 $\delta\chi$ は実際に測定にかかった減少量を示す。表中の(0)は実際に測定精度内で減少は見られていないが、精度上確定していない可能性がある。また、(SO)はFerrel-Anderson機構により $\delta\chi$ の減少が抑えられている可能性があることを意味する。

は5f²から構成された非クラマース結晶場状態と考えると、観測されたスピン帯磁率の減少を定性的に説明することができる。UBe₁₃, URu₂Si₂は実験的にさらに精度を上げる必要があり困難な実験になるが、UNi₂Al₃はUPd₂Al₃と同程度の精度で測定できる可能性を秘めており、今後これらの単結晶試料を用いた精密測定は重い電子系超伝導の起源を考える上で重要な情報をもたらすと考えられる。

以上をまとめると、UPt₃は対スピン軌道結合が弱く、B相が複素秩序変数を持った非ユニタリー奇パリティ超伝導であると考えられる。さらに重要なことに、六方晶面内のB相では、秩序変数は磁場に追従せずb軸方向にピン止めされているが、c軸方向では2.5kOe以上では磁場に追従し、弱くピン止めされていることが明らかになった。このような異常な奇パリティ超伝導が出現するミクロな機構を明らかにすることが今後の重要な課題である。

日頃より、理論的な側面から議論いただいている、三宅和正、町田一成、大見哲巨諸氏に、また磁化率について議論していただいた榊原俊郎氏に感謝します。また、藤は池田浩章氏に理論的な側面から議論をしていただきました。感謝します。本研究は科研費重点領域研究の補助のもと行われ、著者のうち藤秀樹、木村憲彰は日本学術振興会より研究補助を受けました。ここに感謝の意を表します。

現在の所属: * 東京都立大学理学部、** 東北大学理学部

参考文献

- [1] Y. Kohori et al., JMMM90-91(1990)510.
- [2] H. Tou et al, PRL77(1996)1374; H. Tou et al., Czechoslovak JP46(1996)779; 藤 他, 固体物理31(1996)763
- [3] 町田、大見による私信
- [4] K. Machida et al, JPSJ65(1996)3456; Ohmi et al, JPSJ65(1996)4018
- [5] 池田, 博士論文 (大阪大学 1997)