

重い電子系超伝導体の磁化過程

北海道大学大学院理学研究科 天谷 健一

重い電子系超伝導体の磁気的な性質の特徴は、 T_c が低いわりには H_{c2} が大きいこと、つまり“極端な第II種超伝導体”であることである。常磁性磁化率が大きいことを考えあわせると、常磁性によって超伝導が抑制されることが期待される。一方、最近 H_{c2} 直下でヒステリシス磁化がピークをとる現象が話題となっている。ここでは、ヒステリシスとピン止め力の関係、および常磁性効果についてまとめたあと、重い電子系超伝導体の磁化測定から得られた結果をいくつか示す。

1 第II種超伝導体の磁気特性

第II種超伝導体に磁場 H を印加すると、 $H > H_{c1}$ （下部臨界磁場）で大きさ ϕ_0 （ $= hc/2e = 2.07 \times 10^{-7} \text{ Gcm}^2$ ）を持つ磁束量子線（渦糸）が侵入した混合状態になる。オーダーパラメーターの絶対値は磁束量子線の中心ではゼロであり、そこからコヒーレンス長 ξ 程度の距離でバルクの値に回復する。半径 ξ 程度の常伝導の芯（核(core)）のまわりを超伝導電流が渦状に流れていると考えてよく、局所磁束密度 $\vec{h}$ の空間変化のスケールは磁場侵入長 λ で与えられる。

また、磁束線1, 2が $\vec{r}_1, \vec{r}_2$ に存在する場合、磁束線1が磁束線2に及ぼす力 $\vec{f}_{21}$ は単位長さあたり

$$\vec{f}_{21} = \frac{1}{c} \vec{j}_1(\vec{r}_2) \times \vec{\phi}_0 \quad (1)$$

となる。 $\vec{j}_1$ は磁束線1によって $\vec{r}_2$ に生じる局所超伝導電流密度である。平行磁束間に働く力は斥力であり、磁束線2が磁束線1の超伝導電流から受けるLorentz力とみなすことができる。また、他の全ての磁束線からの超伝導電流の和がゼロであるときに限り、その磁束線はその位置で静的熱平衡状態にある。

理想的な第II種超伝導体の熱平衡磁化 M_{eq} の大まかな振舞いは、LondonモデルおよびGinzburg-Landau (G-L) 理論を用いて以下のように説明できる [1]。

$$(i) H_{c1} \ll H \ll H_{c2}$$

London方程式 $\vec{h}(\vec{r}) + \lambda^2 \text{rot rot } \vec{h}(\vec{r}) = \vec{\phi}_0 \sum \delta_2(\vec{r} - \vec{r}_i)$ から熱平衡磁化は

$$M_{eq} \approx \frac{\phi_0}{16\pi^2\lambda^2} \log(H/H_{c2}) \quad (2a)$$

で与えられ、実験データとよく一致する。

(ii) H_{c2} 直下

G-L理論から

$$M_{eq} = \frac{H - H_{c2}}{4\pi(2\kappa^2 - 1)\beta_A} \quad (2b)$$

と求められる。ここで β_A は磁束線の配列によって決まる定数である（三角格子の場合 $\beta_A = 1.16$ ）。 κ はGinzburg-Landau (G-L) パラメーターと呼ばれ、

$$\kappa = \lambda/\xi = H_{c2}/\sqrt{2}H_c \quad (3)$$

という関係を満たす。G-L理論の範囲内では κ は定数であるが、より詳細な理論によれば、温度降下とともに κ が増大すること、また、 H_{c2} から得られる κ (式(3)) と磁化から得られる κ (式(2b)) は T_c 直下では同じ値をとるが十分低温では異なる値をとることが示されている。このため前者を κ_1 、後者を κ_2 と呼んでいる。 κ_1 、 κ_2 の温度依存性は常伝導状態の電子の平均自由行程 l の大きさによって異なる。 $l \ll \xi$ (汚い極限(dirty limit)) の場合、 κ_1 、 κ_2 はよく似た温度依存性を持ち、ともに 0 K での値が T_c での値の 1.2 倍になる (図1(a))。これに対し $l \gg \xi$ (きれいな極限(clean limit)) では、 κ_1 は $\kappa_1(0)/\kappa_1(T_c)$ が 1.25 になる以外は汚い極限の場合と類似しているが、 κ_2 は十分低温では $[\log(T_c/T)]^{1/2}$ に従って対数的に発散する (図 1(b)) [2]。

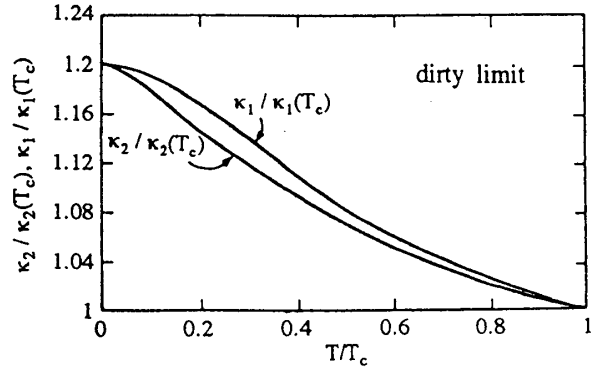


図1(a) dirty limitにおける κ の温度依存性 [2]

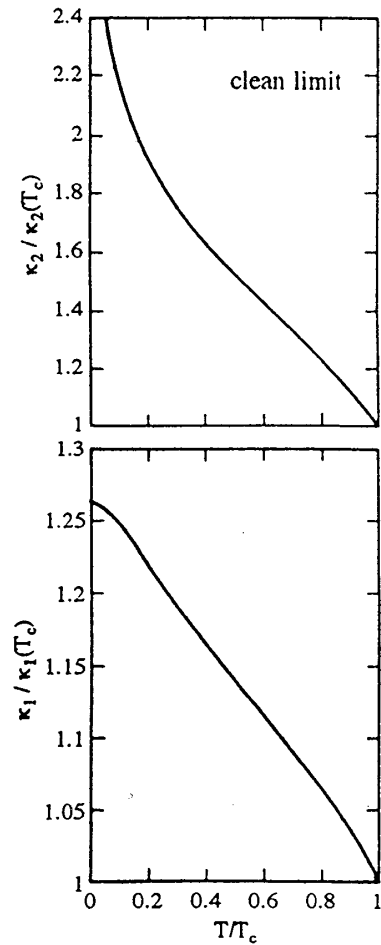


図1(b) clean limitにおける κ の温度依存性 [2]

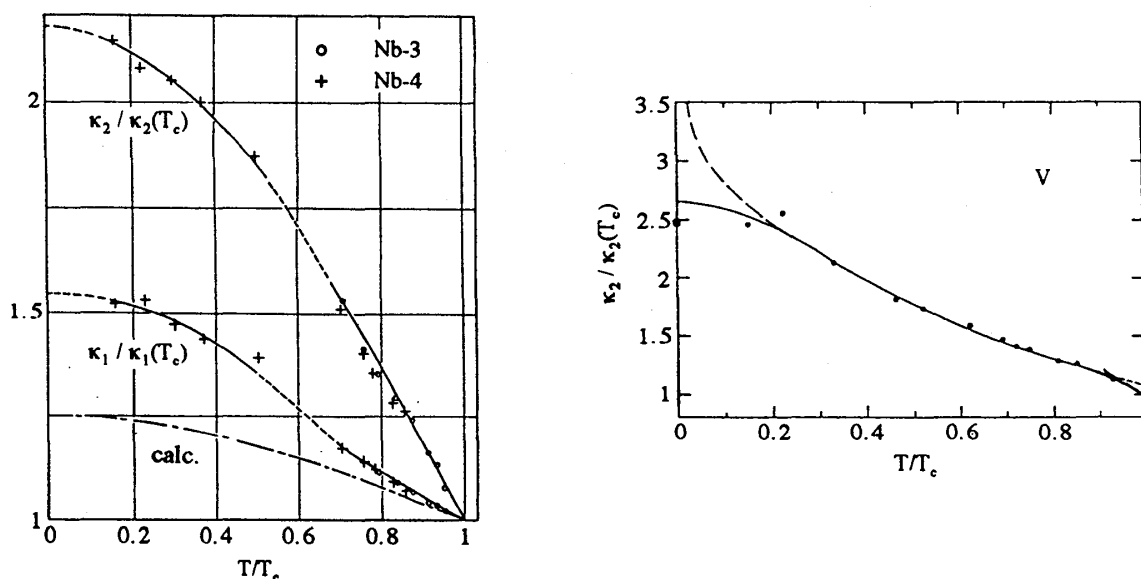
図2 Nb, V における κ_2 の温度依存性 [3]

図2に示すように、NbやVなどのきれいな第II種超伝導体で κ_1 , κ_2 が温度降下とともに増大することが報告されている [3].

現実の超伝導体の磁化曲線は上で示したものと異なり、ヒステリシスを伴う。次節でこの原因について磁束線に働く力および磁束線の空間分布の点からまとめる。

2 磁束のピン止めに伴う磁化のヒステリシス

2.1 磁束系に働く力

混合状態では斥力相互作用のために磁束線は規則的な格子配列をとり、釣り合いの位置にある。このとき、外部から電流密度 J_{ex} の電流を流すと磁束線にはそれに伴って Lorentz力が働く。磁束線の数密度は B/ϕ_0 であるので、単位体積の磁束線に働く Lorentz力 $\vec{F}_L$ は式(1)から

$$\vec{F}_L = \left(\frac{B}{\phi_0} \right) \frac{1}{c} \vec{J}_{ex} \times \vec{\phi}_0 = \frac{1}{c} \vec{J}_{ex} \times \vec{B} \quad (4)$$

と表される。理想的な超伝導体の場合、この Lorentz力によって磁束線の定常的な流れ (flux flow) が起きるため、超伝導体内に電圧が発生し、完全導電性は失われる。しかし、現実の系では磁束線の移動を妨げる機構 (ピン止め) が存在し、磁束系に働く Lorentz力が「ピン止め」によって生じる力 (ピン止め力) を越えるまで磁束線は移動しないので、

混合状態においても“事実上の”完全導電性を示す[1]．この2つの力のバランスで超伝導体内の磁束線の密度分布が決まり，その結果磁化曲線は磁場の履歴に大きく依存することになる．磁束線をピン止めする実体（ピン止め中心，pinning center）は，空孔，析出物，格子欠陥，転位，結晶粒界，表面など結晶中の不均質部分である．

2.2 臨界状態モデル

超伝導体の巨視的な磁気特性を見るために，微視的な磁束密度 $\vec{h}$ や超伝導電流密度 $\vec{j}$ のかわりに，磁場侵入長よりは大きい超伝導体の大きさよりはるかに小さい領域での平均値 $\vec{B} = \langle \vec{h} \rangle$ ， $\vec{J} = \langle \vec{j} \rangle$ を導入する．例えば磁束線が図3(a)のように分布しているときには， B ， J の空間分布はそれぞれ図3(b)，(c)のようになる．また，これらの物理量の間にはMaxwell方程式

$$\text{rot } \vec{B} = \frac{4\pi}{c} \vec{J} = \frac{4\pi}{c} (\vec{J}_0 + \vec{J}_{\text{eq}}),$$

あるいは $\text{rot } \vec{H} = \frac{4\pi}{c} \vec{J}_0$ (5)

が成り立つ．ここで $\vec{J}_0$ は非平衡な磁束分布によって生じる超伝導電流の寄与であり， $\vec{J}_{\text{eq}}$ は超伝導体の本質的な反磁性応答（熱平衡磁化）による超伝導電流の寄与である．

$\vec{J}_{\text{eq}}$ は磁束に働く正味のLorentz力には寄与せず，磁束線に働く正味の力は非平衡超伝導電流成分によって決まる．単位体積中の磁束線に働く正味のLorentz力が単位体積あたりのピン止め力 $\vec{F}_p$ と釣り合っているので，

$$\frac{1}{c} \vec{J}_0 \times \vec{B} = \vec{F}_p \quad (6)$$

と表される．超伝導体中の磁束が侵入している部分では，あらゆるところでピン止め力が

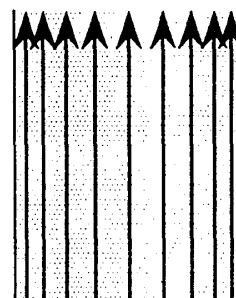


図3(a) 侵入磁束線

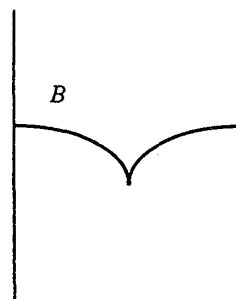


図3(b) 超伝導体内の磁束密度分布

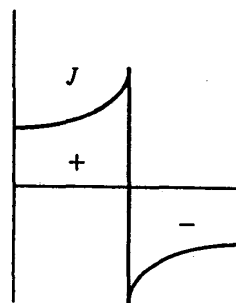


図3(c) 超伝導遮蔽電流

その最大値 $F_p^{\max}$ をとっていると考えるのが自然である．このような状態を臨界状態といい、 $F_p^{\max}$ に対応する電流密度を臨界電流密度 $J_c (= cF_p^{\max} / B)$ と呼ぶ．式(5)，(6)から明らかなように、 J_c は外部から超伝導体に流すことのできる無損失輸送電流密度の最大値である． J_c が B に依らず一定とする最も簡単なモデル（臨界状態モデル）を Bean モデルと呼ぶ[4]．この他にも $J_c \propto 1/(|B| + B_0)$ と仮定する Kim-Anderson モデルなどがある（ $B_0 (> 0)$ は磁束密度の次元を持つ定数）[5]．

次に Bean モデルを用いて超伝導体内の磁束分布を考える．簡単のために超伝導体の形状は厚さ D の平板とし、その表面に平行に外部磁場 $\vec{H}_{ex}$ が加わっているものとする．また、 $\vec{J}_{eq}$ の寄与も無視する（ $J_0 \gg J_{eq}$ の場合を考える）．式(5)，(6)から

$$\frac{\partial B}{\partial x} = \pm \frac{4\pi}{c} J_c \quad (7)$$

が得られる．超伝導体表面では $B = H_{ex}$ であるので、超伝導体内の磁束分布は図4のようになる．この磁化過程は次のように説明できる．超伝導体に磁場を印加するとその磁場変化により超伝導電流が誘起される．その値は臨界電流密度 J_c で制限されており、磁束は式(7)の条件を満たすまで超伝導体内に侵入する．超伝導電流は試料内部を貫く磁束の変化を最小に保つように流れる（Lentzの法則）ので、増磁過程では超伝導体内部を遮蔽するように、一方、減磁過程では一度侵入した磁束を超伝導体内部に閉じ込めるように超伝導電流が誘起される．

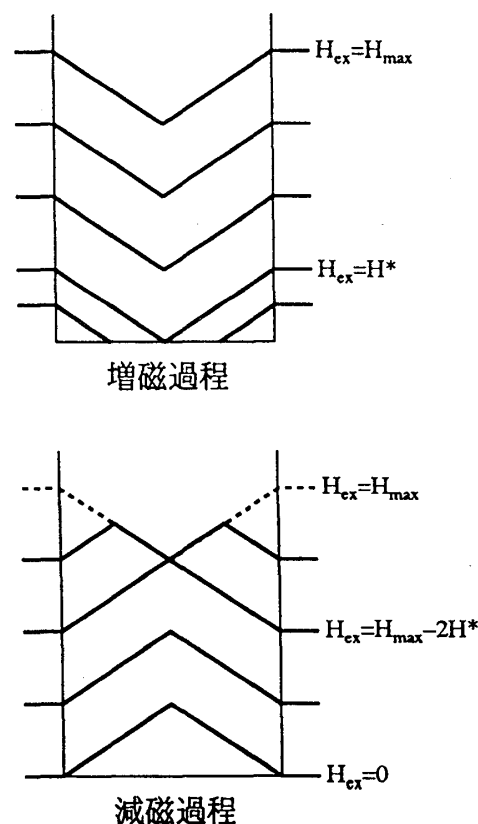


図4 Beanモデル

単位体積あたりの磁化 M は $4\pi M = (1/D) \int B dx - H_{ex}$ から求められる．最大印加磁場の大きさを $H_{\max}$ とし、磁束が超伝導体試料中央まで侵入するときの外部磁場を $H^* (= (2\pi/c) J_c D)$ とすると各過程での磁化は図5のように示される．図に示されるように、 $-H_{\max} + 2H^* \leq H_{ex} \leq H_{\max} - 2H^*$ での減磁過程と再増磁過程の間のヒステリシス磁化 ΔM は

$$\Delta M = \frac{1}{2c} J_c D \quad (8)$$

となり，臨界電流密度 J_c および超伝導体試料の寸法 D の両方に比例する．磁化のマイナーループも同様な計算から求められ，磁場の履歴に大きく依存する．このとき図中の増磁過程 a から減磁過程 b の状態に移るのに要する磁場 δH_{ex} は $\delta H_{ex} = 2H^* = 8\pi\Delta M$ で表され，ヒステリシス磁化に大きく依存する．

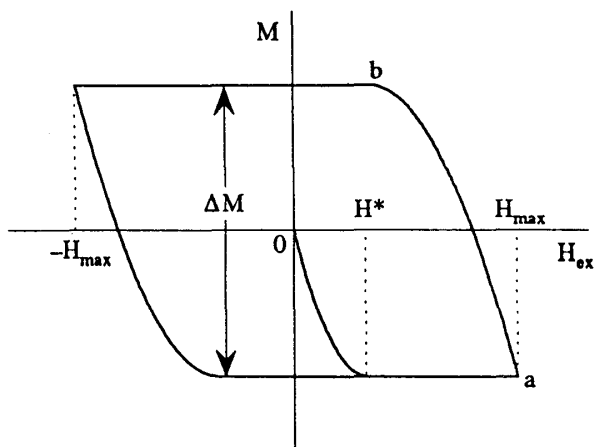


図5 Beanモデルから得られる磁化曲線

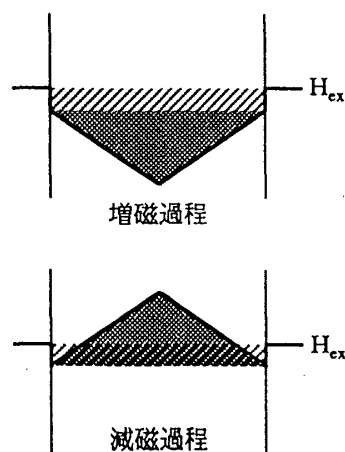


図6 熱平衡磁化の寄与

このように臨界状態モデルを用いれば超伝導体の磁化がヒステリシスを持つことを示すことができる．より現実に近い J_c の磁場依存性を仮定した臨界状態モデルを用いれば，(J_c の磁場依存性が物理的に意味があるかどうかは別にして) 測定から得られる磁化を定量的に再現できる．この場合でも式 (8) はかなりよい近似的で成り立つ．

$\vec{j}_{eq}$ の寄与が無視できない (J_c が小さい) 場合，大雑把には図6に示すように，超伝導体表面で $B = B_{eq}(H_{ex})$ ($< H_{ex}$)，超伝導体内部では式 (7) にしたがって磁束が空間的に分布すると考えればよい．このとき熱平衡磁化 M_{eq} の絶対値は図中の斜線部の面積に相当し，磁束のピン止めに起因する磁化の絶対値は暗部の面積に相当する．再増磁過程の磁化を M_{up} ，減磁過程の磁化を M_{down} とすると，熱平衡磁化 M_{eq} は図から明らかなように次式で表される．

$$M_{eq} = \frac{1}{2} (M_{up} + M_{down}). \quad (9)$$

式(8)を用いれば，実際に測定から得られる磁化曲線から臨界電流密度を求めることが

できる．また，熱平衡磁化も式(9)を用いて近似的に求めることができるが，この近似が意味を持つのはヒステリシス磁化の大きさが熱平衡磁化と同程度あるいはそれ以下の場合だけである．また，上でも記したように混合状態の磁化は磁場の履歴に大きく依存するため，精密磁化測定の際には印加磁場の時間的なふらつき $\delta H(t)$ を $\delta H(t) \ll 8\pi\Delta M$ にまで抑えなければならない．例えば，ヒステリシス磁化の大きさが 1 [Gauss] 程度の超伝導試料の磁化測定を行う場合，ふらつき $\delta H(t)$ は $\ll 25$ [Oe] に抑えなければならない．引抜き法で磁化測定す

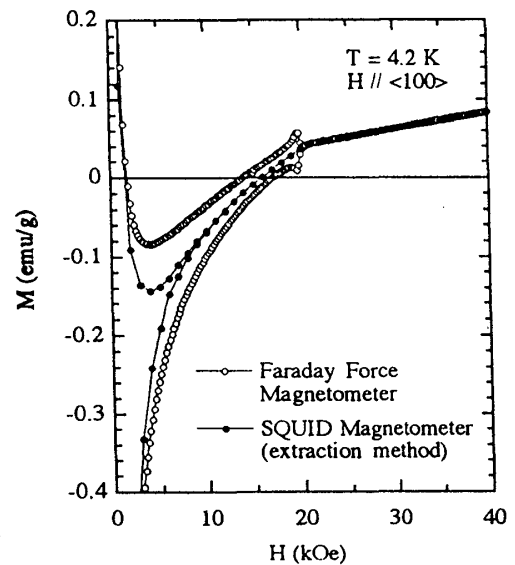


図7 CeRu₂の磁化曲線

る場合，超伝導試料が空間的に完全に一様ではない磁場中を移動するため，試料が感じている磁場は時間変化することになる．このような測定から得られる見掛け上の磁化はマイナーループ上の磁化の平均値であり，正しい磁化の値を示さない．また，その磁化から得られる見掛け上のヒステリシス磁化は真のヒステリシス磁化よりも小さくなる．場合によっては，見掛け上ヒステリシスの無い（可逆的な）磁化曲線が得られることもある（図7）．したがって，磁化測定の際には超伝導試料の移動範囲を磁場が空間的に一様な領域に限定させなければならない．交流磁化測定の場合，得られる磁化率は変調磁場の振幅 h_{ac} に大きく依存するので，そのことを考慮して磁化率の解析をしなければならない．

3 スピン常磁性の影響

3.1 常磁性限界

第II種超伝導体の中には H_{c2} が非常に大きなものもあり，この場合スピン常磁性（Pauli常磁性）が超伝導に与える影響が無視できなくなる．一般的に，超伝導状態ではCooper対形成のためにスピン磁化率が超伝導状態での値 χ_n^s よりも小さくなる．特に 0 K では，一重項（偶パリティ）超伝導体のスピン磁化率 χ_s^s はゼロに等しくなる．超伝導体をスピン分極させるためには磁場を加えてCooper対を壊さなければならないが，常伝導状態は超伝導状態よりもスピン分極しやすいので，強磁場下でスピン分極した常伝導状態が超伝導状態よりも低い自由エネルギーを持つことが可能となる．

定量的には、スピン分極エネルギーが超伝導凝縮エネルギーに等しくなるとすぐに超伝導状態からスピン分極した常伝導状態に転移する。すなわち、

$$\frac{1}{2}(\chi_n^s - \chi_s^s)H_p^2(T) = \frac{1}{8\pi}H_c^2(T) \quad (10)$$

という条件が満たされたときに常伝導状態に転移する。この磁場 $H_p(T)$ は超伝導状態が存在する上限の磁場を表しており、そのため常磁性限界（あるいは Clogston-Chandrasekhar 限界, Pauli 限界）と呼ばれ、 $H_{c2}(T)$ と比較することにより常磁性が超伝導に与える影響を見積もる目安となる [6]。0 K における限界磁場は

$$H_p(0) = \frac{H_c(0)}{\sqrt{2\pi N(0)g\mu_B}}, \text{ あるいは } H_p(0) = \frac{\sqrt{2}\Delta_0}{g\mu_B} = \frac{\sqrt{2}(\pi/e^*)k_B T_c}{g\mu_B} \quad (11)$$

と表される。 $g=2$ の場合、上式は $H_p(0) = 1.857 \times 10^4 T_c$ [Oe]（係数の値が 1.84×10^4 となっている場合もある）と表される。このようにスピン常磁性（Van Vleck 常磁性ではない）によって超伝導が抑制される現象を常磁性効果という。

3.2 スピン常磁性が存在するときの上部臨界磁場

常伝導状態のスピン常磁性が上部臨界磁場に及ぼす影響を Gibbs 自由エネルギーの点から定性的に考える [7]。簡単のために $T=0$ ，一重項（偶パリティ）超伝導体とし、スピン軌道散乱を無視する。 $H=0$ での常伝導状態の自由エネルギー密度 $g_n(0)$ をゼロとおくと、 g_n は放物線 $g_n(H) = -(1/2)\chi_n^s H^2$ を描きながら磁場とともに減少する（Van Vleck 常磁性による寄与は超伝導状態、常伝導状態で違いはないので省略する）。図8に示すように、 $H=0$ では超伝導状態は常伝導状態よりも $H_c^2/8\pi$ だけエネルギー的に安定であり、 g_n が $H=0$ での値より $H_c^2/8\pi$ だけ減少したときの磁場が常磁性限界 H_p である。スピン分極以外に磁場と超伝導の間の相互作用が存在しなければ（磁束の排除に伴うエネルギーの上昇がないならば）、 $H=H_p$ で常伝導状態へ1次転移するであろう。

常伝導状態でのスピン常磁性が無い第II種超伝導体の場合、 $H \leq H_{c1}$ で第I種超伝導体の場合と同様に自由エネルギー g_s は H^2 に比例して増加するが、磁束の侵入のために $H_{c1} \leq H$ ではより緩やかな増加となり、 H_{c2} で滑らかにゼロになる（曲線 DEC）。常伝導状態で有限のスピン常磁性が存在する第II種超伝導体の場合、超伝導状態で全くスピン分極しなければ、図の放物線 ALJ と放物線 DEC が交わるときの磁場で常伝導状態へ1次転移するであ

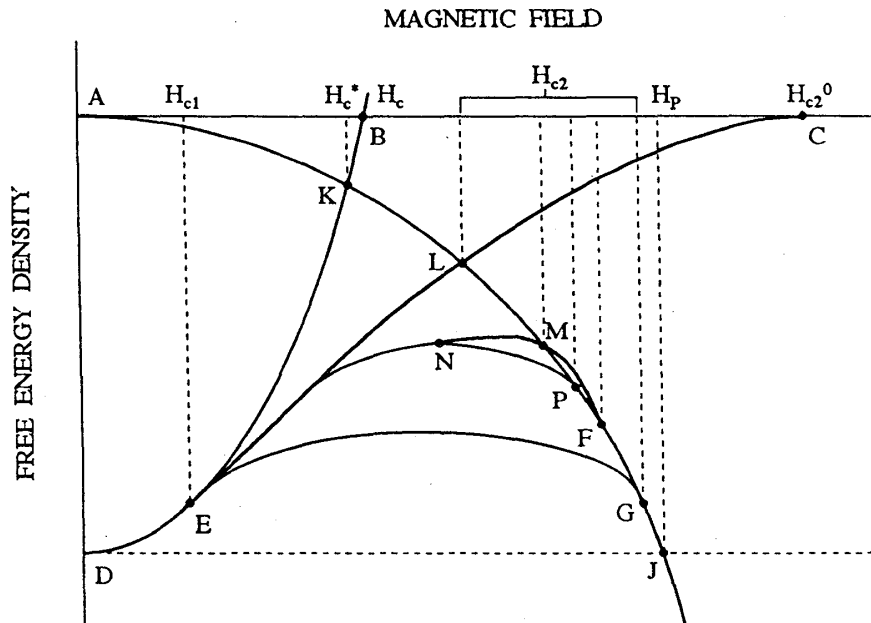


図8 スピン常磁性の寄与がある場合の自由エネルギー [7]

ろう．実際には磁束線の核内部の準粒子が分極するはずであるから，このようなことは起こらない．スピン常磁性が小さい場合には， g_s は曲線 DEG に沿って変化し，放物線 AGJ と滑らかにつながり，常伝導状態へ 2 次転移する．スピン常磁性が大きい場合，きれいな (clean) 超伝導体と汚い (dirty) 超伝導体の場合で異なる振舞いを示すことが理論的に導かれている．汚い超伝導体の場合， g_s は曲線 DEMF に沿って変化し，放物線 AMFJ と 2 点 M, F で交わる．常伝導状態への転移の次数は 1 次となり，点 F に対応する磁場は過冷却磁場の最大値に相当する．一方きれいな超伝導体の場合， g_s は曲線 DENP に沿って変化するが，点 N に対応する磁場で $(\vec{k} \uparrow, -\vec{k} + \vec{Q} \downarrow)$ という対 ($\vec{Q} \neq 0$) を組む新しい超伝導状態 (Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) 状態) に 1 次転移し，点 P に対応する磁場で FFLO 状態から常伝導状態へ 2 次転移することが導かれている (この転移は $T \leq 0.55T_c$ の温度領域で起こる) [8]．この FFLO 状態は，スピン分極のために Fermi 面の大きさがスピンの向きによって異なるので，重心の運動量 $\vec{Q} (\neq 0)$ を持つほうが Cooper 対をつくりやすいために起こると考えられている．しかし，FFLO 状態に転移する可能性が議論されている超伝導物質は存在するが，転移することが確認されている物質は現在のところない．最近 FFLO 状態から常伝導状態への転移は 1 次であるという理論も M. Tachiki らによって提案されている [9]．

3.3 スピン常磁性が存在するときの磁化曲線

図9に常磁性の寄与があるときの熱平衡磁化曲線を示す。常伝導状態の磁化は Pauli項, Van Vleck項からなる。超伝導状態の磁化は超伝導電流による反磁性の寄与とスピン分極によって決まり, 後者は磁束構造を特徴づける準粒子の空間・温度・磁場に関する平均値に依存する。まず $T=0$ における次の2つの極端な場合について考える。

(i) Cooper対のスピンが揃うことによって超伝導が影響を受けないのならば (p 波超伝導体, 不純物によるスピン軌道散乱が非常に大きい場合など), 超伝導状態においてもスピン磁化の大きさは常伝導状態と変わらない。このような場合, 磁化曲線は図9の細線 a で与えられる。式 (2b) を一般化して

$$\kappa_2 = \sqrt{\frac{1}{8\pi\beta_A \left(\left. \frac{dM_{eq}}{dH} \right|_{H_{c2}} - \chi_n \right) + \frac{1}{2}}} \approx \sqrt{\frac{1}{8\pi\beta_A \left(\left. \frac{dM_{eq}}{dH} \right|_{H_{c2}} - \chi_n \right)}} \quad (12)$$

と定義するならば κ_2 は絶対値・温度依存性ともにスピン常磁性のない場合と同じになる。

(ii) Cooper対のスピンも磁束の核中の準粒子のスピンも分極しないならば, 超伝導状態における磁化にはスピン常磁性の寄与はない。このとき, 磁化曲線は図の細線 b のようになり, H_{c2}^0 よりも非常に小さい磁場 (図8の点Lに相当する磁場) で常磁性状態に1次転移する。このとき κ_2 はゼロとなる。

実際の一重項 (偶パリティ) 超伝導体の場合, (i) と (ii) の中間の振舞いをする。図の実線で示してあるように, 弱磁場領域では, 常磁性の影響はほとんど受けないが, 磁場の増加とともに磁化の大きさは常伝導磁化の値 ($= \chi_n H$) に近づき, H_{c2}^0 よりも小さい磁場で常伝導状態に2次転移する (このときの自由エネルギーは図8の曲線DEGJのように変化する)。常伝導磁化と超伝導状態の磁化によって囲まれる部分の面積は常磁性効果の有無に関わらず $H_c^2/8\pi$ であるから, H_{c2} が減少した分磁化曲線が中間磁場領域で膨れ, H_{c2} での超伝導磁化の傾き $\left. \frac{dM_{eq}}{dH} \right|_{H_{c2}} - \chi_n$ が大きくなる。したがって, κ_2 はスピン常磁性のない

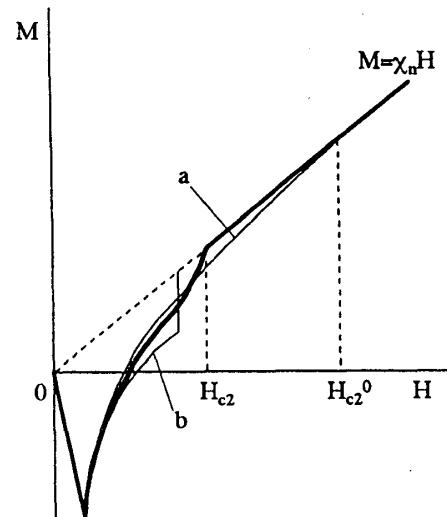


図9 スピン常磁性の寄与がある場合の磁化曲線

場合の値よりも小さくなり、その温度依存性も κ_1 と同様温度降下とともに減少する。

詳細な計算によれば（汚い極限の場合）スピン軌道散乱が無視できるならば、常磁性のために κ_2 は温度降下とともに減少し、その減少率は κ_1 よりも大きくなる。また、 $\alpha > 1$ の場合 κ_2 は低温領域でゼロとなり、転移の次数は1次となる（図10） [10]。

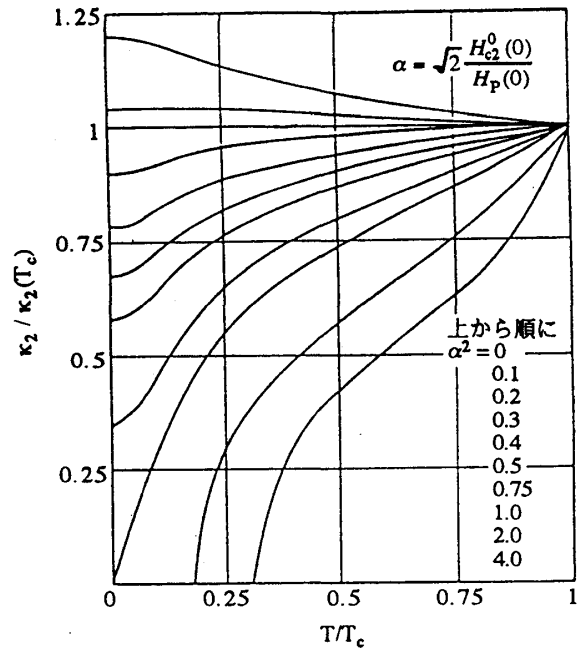


図10 スピン常磁性の寄与がある場合の κ_2 の温度依存性 [10]

4 重い電子系超伝導体の磁化過程

4.1 ピーク効果

U, Ce系超伝導体の中には, CeRu_2 , CeCo_2 , UPd_2Al_3 , UPt_3 などのように H_{c2} 直下でヒステリシス磁化のピーク構造が観測されるものがある（ピーク効果） [11]。この現象が見つかった当初は、ピークが現れる磁場よりも弱い磁場ではヒステリシスが全く無い（磁束がピン止めされていない）と報告されていたが、現在ではその磁場領域でも小さなヒステリシスがあることがわかっている。

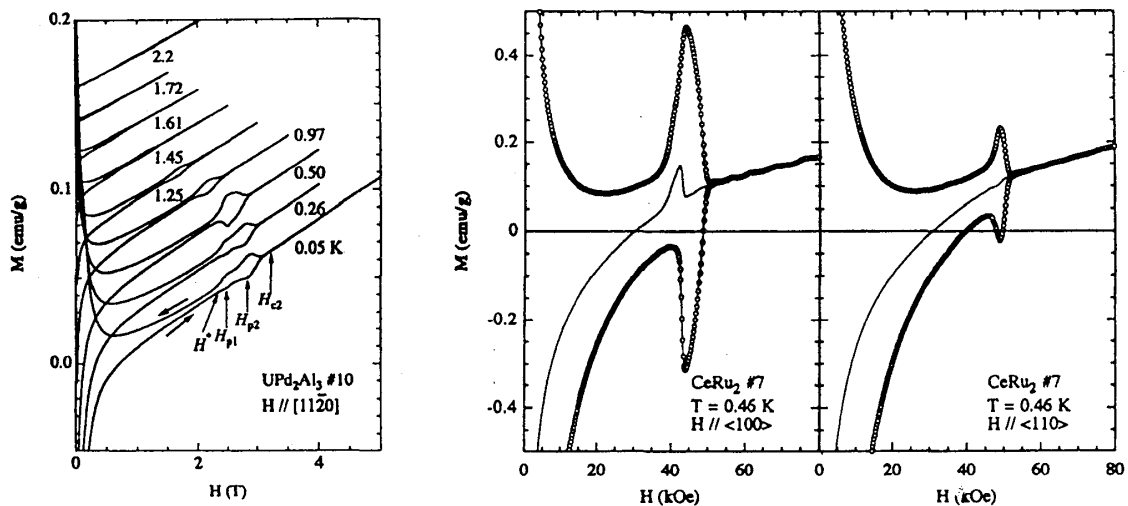


図11 UPd_2Al_3 , CeRu_2 の磁化曲線 [12]

図11, 12に UPd_2Al_3 (六方晶, $T_c \sim 2 \text{ K}$, $H_{c2} \sim 32-37 \text{ kOe}$), CeRu_2 (立方晶, $T_c \sim 6 \text{ K}$, $H_{c2} \sim 52 \text{ kOe}$), UPt_3 (六方晶, $T_c \sim 0.5 \text{ K}$, $H_{c2} \sim 20-25 \text{ kOe}$) 単結晶の磁化曲線を示す [12]. 室温と T_c 直上での電気抵抗の比 (残留抵抗比) RRRはそれぞれ66, 270, 500であり, 試料はきれいな超伝導体であるといえるが, H_{c2} 直下にヒステリシス磁化のピークが見られる. UPt_3 のピークは比較的単純な構造をしているが, UPd_2Al_3 の場合 $H//[11\bar{2}0]$ では低温で2つに分かれているピークが昇温とともに1つに減っている. 低磁場側のピークの位置は温度によって変わらない. 一方 CeRu_2 の場合, 結晶構造, H_{c2} ともに等方的であるにもかかわらずピークの構造は非常に異方的である. 特に $H//\langle 100 \rangle$ のときには増磁過程と減磁過程においてピークが現れはじめる磁場が異なっており, 他の2つに比べて特異な振舞いを示している.

一般に通常のバルク超伝導体の場合, ピーク効果は次のような機構によって生じると考えられている [13].

(i) 試料が超伝導性の悪い相を含む場合 (ブロードなピーク)

超伝導試料の一部が超伝導特性が悪く, 上部臨界磁場が小さくなっている場合を考える (この部分の上部臨界磁場を H_{c2}^* とおく). このとき, $H_{c2}^* < H$ では超伝導特性が悪い部分は常伝導状態になっているので, 母相との界面が $H_{c2}^* < H$ で新たなピン止め中心になる. その結果ピン止め (臨界電流密度 J_c) が増大するため H_{c2}^* 近傍でブロードなヒステリシス磁化のピークが生じる.

(ii) マッチング効果 (弱磁場でのピーク)

磁束線の間隔がピン止め中心の間隔に一致する磁場では効率的に磁束をピン止めすることができるため, J_c が極大になり, その結果ヒステリシス磁化のピークが生じる. このような現象が観測されるのはあまり強くないピン止め中心が規則的に配置している場合である. また, 比較的小さい磁場でピークが生じる. さらに, このピーク磁場は温度によって変わらない.

(iii) シンクロナイゼーション効果 (H_{c2} 近傍でのピーク)

磁束格子の剪断係数 $C_{66} (\propto (H_{c2} - H)^2)$ が磁場とともに小さくなっていくため, H_{c2} 近傍で磁束線がピン止め中心の構造に合わせるように再配置しながらより強いピン止めの状態へ移行する. その結果ヒステリシス磁化のピークが生じる.

UPt_3 および UPd_2Al_3 の高磁場側のピークは (iii) の機構で説明できると考えられる.

UPd₂Al₃の $H//[11\bar{2}0]$ における低磁場側のピークは、さらに何らかの付加的な機構が加わっているため生じると考えられる。

CeRu₂の場合、上のどのモデルを用いてもピークのみが異方的になることを説明することはできない。また、ピークの形状が増磁過程・減磁過程で非対称になっていることから、ピーク付近で何らかの1次転移が起きている可能性も考えられる（ただし、シンクロナイズ効果によって生じるピン止め力の大きさ自体磁場および温度の履歴に大きく依存するため、ピークの形状が増磁過程・減磁過程で非対称になっていることがすぐに1次転移に結びつくとは限らない）。最近CeRu₂の異方的構造不安定性と異常なピーク効果の関係を調べる試みも行われている。

4.2 UPt₃における異方的常磁性効果

UPt₃は異なる3つの超伝導相（A, B, C）を持つ代表的な非BCS的超伝導体である。また、 $H//c$ と $H\perp c$ における H_{c2} の比が低温領域と高温領域で逆転していることから、常磁性効果と関連づけてCooper対の対称性が議論されている。

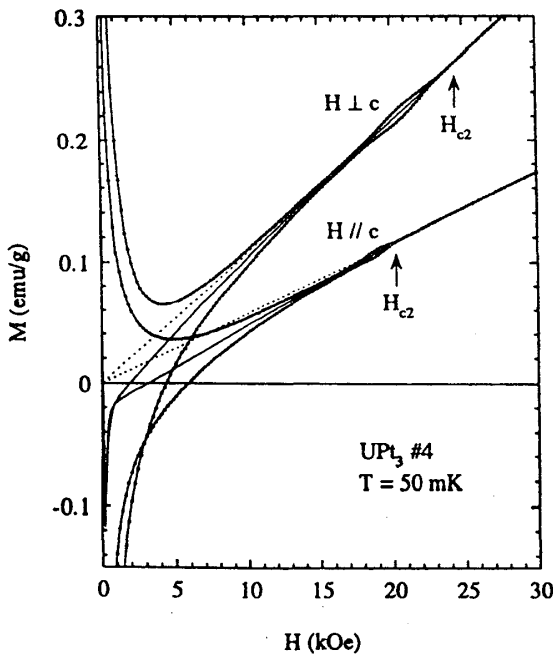


図12 UPt₃の磁化曲線 [12]

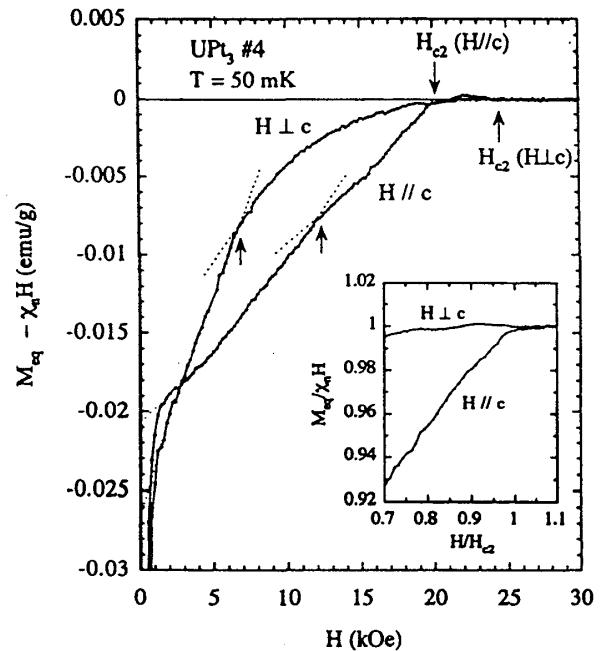


図13 UPt₃の磁化曲線の熱平衡磁化曲線 [12]

再び図12のUPt₃単結晶の磁化曲線に戻る。磁束のピン止めによるヒステリシスは磁場

の増大とともに急減する．図中の点線は超伝導状態における常磁性磁化 $\chi_n H$ の外挿値であり，細線は磁場上昇時と下降時の磁化の平均値で，ヒステリシスの小さい場合には熱平衡磁化 M_{eq} とほぼ等しい．図からわかるように，熱平衡磁化への常伝導磁化の寄与は磁場の方向に依らず大きい．また，前節でも述べたように上部臨界磁場直下でヒステリシス磁化のピークが現れた．

超伝導に起因する磁化の振舞いをよりはっきりさせるために，超伝導だけの寄与による熱平衡磁化 $M_{eq}^0 = M_{eq} - \chi_n H$ と磁場 H のプロットを図13に示す．10 kOe 近傍の矢印で示された M_{eq}^0 の”折れ”はB相からC相への2次相転移によるものである．挿入図は M_{eq} ， H をそれぞれ常磁性磁化 $\chi_n H$ および上部臨界磁場 H_{c2} で規格化したものである．図から明らかのように， H_{c2} 近傍での M_{eq}^0 の大きさおよび磁場依存性が印加磁場方向によって大きく異なる．スピン磁化の寄与の無い超伝導体の場合， H_{c2} が同程度であると M_{eq}^0 は印加磁場方向にほとんど依存しないが，UPt₃ の場合， $H//c$ での H_{c2} 直下の微分磁化 $\partial M_{eq||}^0 / \partial H$ は $H \perp c$ での $\partial M_{eq\perp}^0 / \partial H$ よりもはるかに大きく，また， $\partial^2 M_{eq\perp}^0 / \partial H^2 \approx 0$ （わずかに上に凸）なのに対し， $\partial^2 M_{eq||}^0 / \partial H^2 > 0$ （下に凸）というように異方的になっている．また，50 mK で観測されたような $M_{eq||}^0$ の異常は温度の上昇とともに小さくなる．このような異方的な磁化の振舞いは電子対の反磁性磁化あるいは有効質量の異方性から生じるものではなく，常磁性効果によるものであろう．すなわち，超伝導状態におけるスピン磁化が $H \perp c$ ではほとんど変化していない一方， $H//c$ で顕著に抑えられる（減少する）ことに起因する．その結果 $H//c$ での H_{c2} もスピン磁化がないときの値よりも小さくなり， H_{c2} 直下での $M_{eq||}^0$ の傾き ($\partial M_{eq||}^0 / \partial H$) は急になる．また，温度の上昇とともに異方性が小さくなることも通常の常磁性効果と合致する．このように $H//c$ では顕著な常磁性効果が見られるわけではあるが，図13の挿入図からわかるように，C相においてスピン磁化が抑えられている割合は非常に小さい． $H//c$ での超伝導状態におけるスピン磁化率の減少分 $\Delta\chi_{n||} / \chi_{n||}$ は大きめに見積もっても $|M_{eq||}^0| / \chi_{n||} H$ 程度と考えられるので，C相でのスピン磁化率の減少分はせいぜい数%であることがわかる [12]．

G-L理論にしたがって， H_{c2} 直下の M_{eq}^0 の傾きから求めた κ_2 の温度依存性を図14に示す． $H \perp c$ での $\kappa_{2\perp}$ は温度降下とともに発散的に増大し，100 mK 以下での $\kappa_{2\perp}$ の値は T_c 直下での値の2～3倍になる．このような $\kappa_{2\perp}$ の温度依存性は，スピン常磁性がないときのきれいな極限の第II種超伝導体の理論計算から得られた κ_2 およびNbやVの κ_2 の温度依存性と類似し

ている．一方 $H//c$ での $\kappa_{2\parallel}$ は温度降下とともにわずかに減少する．以上のことから スピン常磁性の寄与は c 軸に平行に磁場を印加したときのみわずかに存在し， $H\perp c$ では常磁性効果は無視できるほど小さいことがわかる．

このような異方的常磁性効果自体は他の超伝導体でも見られる現象である[14]．例えば ErRh_4B_4 では，Erイオン間の強磁性的磁気相関と超伝導とが競合するために，スピン容易軸方向($H//a$)では強い常磁性効果を示し，困難軸方向($H//c$)での常磁性効果は弱い． UPt_3 の場合に特異なことは，常磁性磁化率が最も大きい容易軸方向 ($H\perp c$) で全く常磁性効果がないのに対し，困難軸方向で顕著な常磁性効果がみられる点にある．通常の偶パリティ超伝導体では，スピン常磁性の寄与が存在する場合，印加磁場方向に依らず常磁性効果が観測され，一般に常磁性磁化率が大きい方向ほど常磁性効果が顕著になるはずであり， UPt_3 の場合と全く逆である．

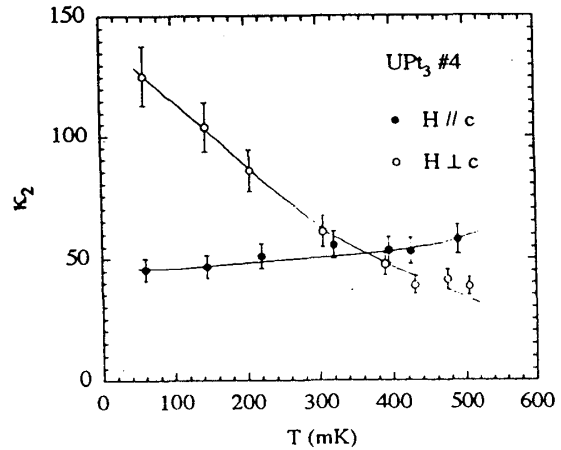


図14 UPt_3 の κ_2 の温度依存性 [12]

奇パリティ超伝導体での常磁性効果について考える．等方的な（スピン軌道結合が無視できる場合の）奇パリティ超伝導体では $\vec{d}$ ベクトルが磁場に垂直に向くので，印加磁場方向に依らず常磁性効果は存在しない．一方，異方的な（スピン軌道結合が無視できない場合の）奇パリティ超伝導体では， $\vec{d}$ ベクトル（ UPt_3 の場合 $H=0$ のとき $\vec{d}\parallel c$ ）に垂直に磁場を印加したときには常磁性効果は存在しないが， $\vec{d}$ ベクトル方向に磁場を印加すると，偶パリティ超伝導体と同じ様に常磁性の影響を受ける．以上の考察と実験結果から， UPt_3 では異方的な奇パリティ電子対が実現していると考えるのが自然である．このとき，超伝導状態でのスピン磁化がわずかに減少しないことから，(i) スピン軌道結合は非常に弱く，(ii) 常磁性磁化のスピン成分が非常に小さいであろう．

一方，偶パリティ電子対を仮定して UPt_3 の常磁性効果を説明する試みも存在する． $H\perp c$ では Van Vleck 磁化率は大きいがスピン磁化率は $H//c$ での値よりも小さいため， $H//c$ でより大きな常磁性効果が生じるという考え方である．しかし， $H\perp c$ で常磁性効果が全く見られないという磁化測定結果を説明するためには， $H\perp c$ での常磁性磁化は全て Van Vleck

項から成り，スピン磁化の寄与はないという仮定をしなければならない．このような仮定をするよりも異方的な奇パリティ電子対が実現していると考えるのが自然であろう．

M_{eq}^0 を H に関して積分して求めた 50 mK での熱力学的臨界磁場 $H_c(\equiv H_c(0))$ はほぼ 2.9×10^2 Oe であり，比熱測定から求めた $H_c(0)$ とほぼ等しい．この結果からも， M_{eq}^0 の評価が正しいことがわかる．

参考文献

- [1] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity* (McGraw-Hill, New York, 1975), Chap. 5.
- [2] C. Caroli *et al.*, Solid State Commun. **4**, 17 (1966) ; G. Eilenberger, Phys. Rev. **153**, 584 (1967).
- [3] T. McConville and B. Serin, Phys. Rev. **140**, A1169 (1965) ; R. Radebaugh and P. H. Keeson, Phys. Rev. **149**, 217 (1966).
- [4] C. P. Bean, Rev. Mod. Phys., **36**, 31 (1964).
- [5] Y. B. Kim *et al.*, Phys. Rev. **129**, 528 (1963) ; P. W. Anderson, Phys. Rev. Lett. **9**, 309 (1962).
- [6] A. M. Clogston, Phys. Rev. Lett. **9**, 266 (1962) ; B. S. Chandrasekhar, Appl. Phys. Lett. **1**, 7 (1962).
- [7] N. R. Werthamer *et al.*, Phys. Rev. **147**, 295 (1966).
- [8] P. Fulde and R. A. Ferrell, Phys. Rev. **135**, A550 (1964) ; A. I. Larkin and Y. N. Ovchinnikov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **47**, 1136 (1964).
- [9] M. Tachiki *et al.*, Z. Phys. B **100**, 369 (1996).
- [10] D. Saint-James *et al.*, *Type II Superconductivity* (Pergamon Press, Oxford, 1969), Chaps. 5, 6.
- [11] A. D. Huxley *et al.*, J. Phys. : Condens. Matter **5**, 7709 (1993) ; K. Gloos *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 501 (1993).
- [12] Y. Haga *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 3646 (1996) ; K. Tenya *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 3193 (1996).
- [13] A. M. Campbell and J. E. Evetts, Adv. Phys. **21**, 199 (1972).
- [14] G. W. Crabtree *et al.*, Phys. Rev. Lett. **49**, 1342 (1982) ; F. Behroozi *et al.*, Phys. Rev. B **27**, 6849 (1983).