

■ “115”系化合物の超伝導

多体電子系理論研究グループ ■堀田 貴嗣■

Superconductivity in "115" Compounds

Takashi HOTTA

Research Group for Many-body Theory of Electron Systems

We take a survey of recent results from our group on theoretical studies of superconductivity in f-electron compounds with the HoCoGa₅-type tetragonal crystal structure. First band-structure calculation results for CeTIn₅ and PuCoGa₅ are reviewed. After introducing a microscopic model for f-electron systems based on the j-j coupling scheme, we show a result obtained by analyzing the model. Finally we briefly discuss difference and similarity among "115" compounds.

1. はじめに

最近、f-電子系化合物において新しい超伝導体の発見が相次いでいる。希土類金属化合物では、CeTIn₅ (T = Ir, Rh, Co) という一連の物質群で超伝導が発見された [1]。なかでも、CeCoIn₅ は常圧下で T_c = 2.3K という高い超伝導転移温度を示し、これは、それまでに発見された重い電子系超伝導体としては最高の値であった。それに対し、CeIrIn₅ は 0.4K という低い T_c をもつ超伝導体である。一方、CeRhIn₅ は常圧ではネール温度 3.8K の反強磁性体であるが、圧力下で T_c = 2.1K の超伝導体となるなど、同じ結晶構造でありながら、遷移金属イオンの違いで基底状態が顕著に変化するという特徴がある。

希土類金属化合物の超伝導としては、充填スクッテルダイト構造をもつ PrOs₄Sb₁₂ も注目を集めている [2]。1.85K という高い T_c もさることながら、ポイントノードのギャップ構造や四重極子揺らぎを媒介とした超伝導対の可能性が議論されるなど、そのエキゾチックな超伝導に興味が集まっている。アクチノイド化

合物については、UGe₂ や URhGe において、強磁性と共存する超伝導が発見されており [3]、おそらくはスピン三重項であろうそのクーパー対形成機構について様々な議論がなされている。そして、プルトニウム化合物 PuCoGa₅ において T_c = 18.5K という驚くべき高温の超伝導が発見された [4]。類似の PuRhGa₅ においても T_c = 8.7K の超伝導が報告されており [5]、f-電子系超伝導体としては異常とも言える高い T_c の起源に興味が集まっている。

このような f-電子系の超伝導に対する最近の実験の急速な進展に対し、その超伝導機構の微視的観点からの議論は急務であるが、妥当な微視的模型が見当たらないという問題に直面する。そこで我々のグループでは、次のような戦略で研究を進めている。115系化合物を典型物質に選び、まずバンド計算によって電子状態やフェルミ面を明らかにする。そして、その知識に立脚して微視的模型を構築し、得られた模型を数値的・解析的手法によってさまざまな角度から詳しく調べ、超伝導発現機構を微視的な観点から明らかにする。本稿では、このような戦略に基づく最近の研究成果を簡

単に紹介したい。

2. 相対論的バンド計算結果

図1に $CeTlIn_5$ の結晶構造を示す。 $CeIn_3$ および $TlIn_2$ が交互に積層した構造をしており、2次元性が強いことが予想される。実際、図2に示されているように、 $CeIrIn_5$ と $PuCoGa_5$ はいずれも、体積の大きな2次元的フェルミ面をもっている [6]。

ここで特徴的なことは、f-電子数が異なっているにもかかわらず、これら2つの物質のフェルミ面、とりわけ、体積の大きな2次元的フェルミ面が非常によく似た構造を示すことである。この点を理解するために、

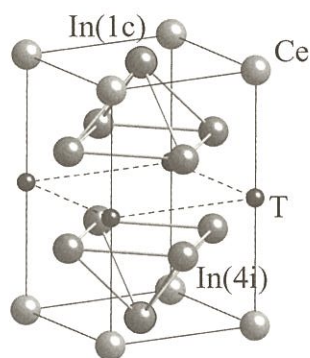


図1 $CeTlIn_5$ の結晶構造。

f-電子状態を j-j 結合描像で考えてみよう [7]。図3に示したように、スピン軌道相互作用によって f-電子の 14 重縮退は解け、 $j = 7/2$ に対する 8 重項と $j = 5/2$ に対する 6 重項に分かれる。相対論的バンド計算によると、この多重項の分裂は 0.4eV から 1eV の大きさであるので、f-電子が 7 個未満の場合に低エネルギー励起を考えるには、 $j = 5/2$ の 6 重項だけを考えれば十分である。実験結果やバンド計算結果から、115 系化合物における希土類イオンやアクチノイドイオンはおおむね 3 価であると考えられるので、 $Ce115$ の場合は Ce^{3+} に f-電子が 1 個、 $Pu115$ の場合は Pu^{3+} に f-電子が 5 個となる。さらにクラマース 2 重項を擬スピンによって区別すれば、図3に示したような電子配置となる。

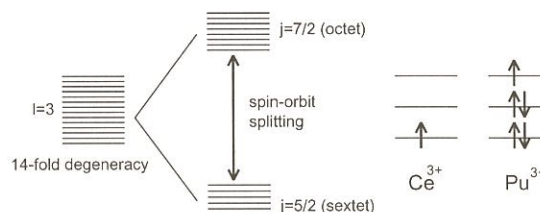


図3 (左) スピン軌道相互作用による f-電子状態の分裂。(右) Ce^{3+} および Pu^{3+} イオンの電子配置。

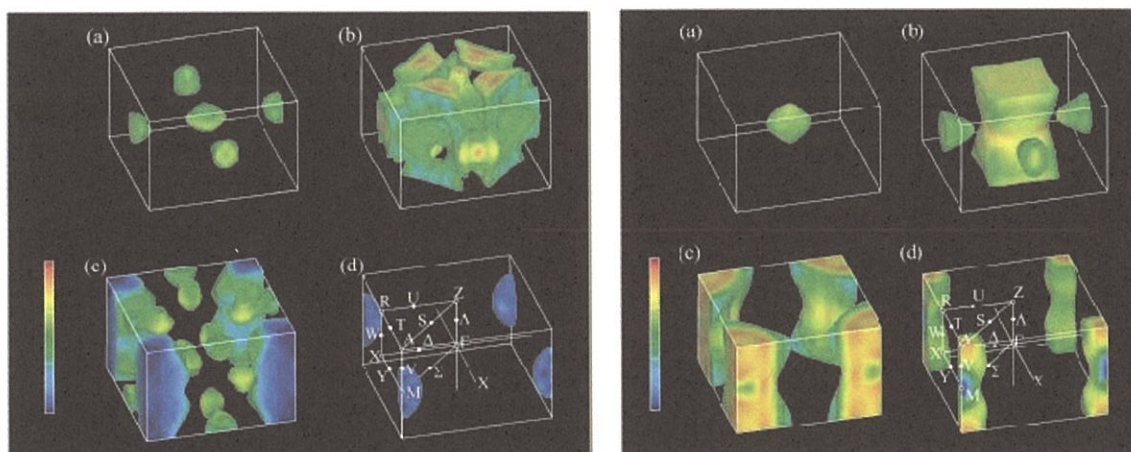


図2 相対論的バンド計算によって得られた $CeIrIn_5$ (左図) および $PuCoGa_5$ (右図) のフェルミ面 [6]。色が赤くなるほど 4f あるいは 5f 軌道成分の混ざりが大きくなっている。

Ce³⁺イオンとPu³⁺イオンは電子・正孔対称性によって結びついており、これによって、Ce115とPu115のフェルミ面の類似性を定性的に理解することができる。

3. モデルと計算結果

次に、バンド計算結果に基づいて微視的ハミルトニアンを構築する。その際、j-j結合描像を用いるが、1電子状態が明確に定義され、多体効果を取り入れる際の曖昧さが少ない、という利点がある。j = 5/2のf電子に対して強束縛近似を適用すると、ハミルトニアンは

$$H = H_{\text{kin}} + H_{\text{CEF}} + H_{\text{el-el}}$$

という形になる(詳細については[7]を参照されたい)。ここで、 H_{kin} はf電子の有効跳び移り積分で表される遍歴項、 H_{CEF} は結晶場項、 $H_{\text{el-el}}$ はクーロン相互作用項である。

図3のように、クラマース2重項を擬スピンによって区別すれば、Hは3軌道ハバードモデルと見なせるが、計算を簡単にするために2つの軌道を残すことを考える。いろいろな可能性があるが、スピン・軌道自由度を含むf電子系のプロトタイプモデルとして、立方対称結晶場下での固有状態 Γ_8 (4重項)を残した場合を考える。揺らぎ交換近似法を用いて、最近、瀧本によって計算された Γ_8 ハバードモデルの相図を図4に示す[8]。Uは軌道内クーロン相互作用、U'は軌道間クーロン相互作用、 ϵ は正方対称結晶場の影響による Γ_8 の2つの軌道のエネルギー差を表す。 ϵ を大きくしていくと、常磁性相から反強磁性相への相境界付近の低温領域でd-波超伝導相が出現している。これは、軌道自由度の制御によってスピン揺らぎ媒介のd-波超伝導が出現するというシナリオ[9]を支持している。

Ce115に対しては、さまざまな実験結果から、銅酸化物高温超伝導体と同じく反強磁性スピン揺らぎによるd-波超伝導である可能性が高いと考えられており、ここで紹介した揺らぎ交換近似法による計算結果と矛盾しない。また、この計算では、 ϵ が大きくなると T_c が上昇するという傾向が得られているが、これはCeIrIn₅($T_c = 0.4\text{K}$)とCeCoIn₅($T_c = 2.1\text{K}$)については合致している。しかし、CeRhIn₅の反強磁性相の理解は ϵ に関する議論だけでは難しく、3次元性や正

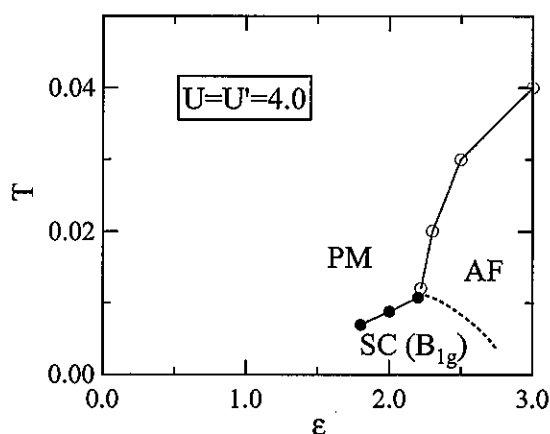


図4 揺らぎ交換近似法によって得られた Γ_8 モデルの相図[8]。PM、AF、SC(B_{1g})はそれぞれ、常磁性相、反強磁性相、d-波超伝導相を表す。なお、エネルギーの単位はf電子の有効跳び移り積分tであるが、tは概ね100Kのオーダーと考えられる。

方対称結晶場、RKKY相互作用の影響を適切に取り扱う必要があると考えられる。

4. 今後の展望

Ce115については銅酸化物と同様の電子的機構による超伝導の可能性が高いが、その場合、超伝導転移温度は電子系のエネルギー、つまりバンド幅でスケールされる。4f電子に比べて5f電子は遍歴性が強く、4fと3dの間であるといわれており、バンド幅も大きくなる。そうすると、Ce115に比べてPu115の超伝導転移温度が高くなることは、電子・正孔対称性に基づけば定性的には理解できそうである。しかし、同じ115系アクチノイド化合物であるU115やNp115は超伝導にすらならない。これはどのように考えればよいのだろうか。

パウリ常磁性体であるUCoGa₅は、バンド計算ではポケット状の小さなフェルミ面をもつ半金属として理解される。一方、NpCoGa₅やUNiGa₅、UFeGa₅に対しては、バンド計算では2次元の大きなフェルミ面が1枚だけ現れるが、実際には反強磁性体である。これらは、j-j結合描像における電子配置ではハーフフィリングかそれに近い状況であり、伝導電子との混成やクーロン相互作用によって、絶縁体あるいは反強磁性体になりやすいと推測される。いずれにせよ、fやf'の電子配置に対して、更なる理論の展開が必要であろう。

ところで、バンド計算結果と実験結果を比べてみると、2次元のフェルミ面が複数枚ある場合にのみ超伝導が現われているように見える。これは単なる偶然

だろうか。軌道自由度に起因した複数フェルミ面構造が超伝導発現に本質的に効いているかどうか、重要な問題であると思われる。また、ウラン化合物 UGe_2 や $URhGe$ のトリプレット超伝導をどのように捉えるか、という問題も残されている。これらの問題に対し、ここに述べた j - j 結合に基づく微視的模型が新しい切り口を与えることを期待している。

本研究は、瀧本哲也氏（多体電子系理論研究グループ）、眞榮平孝裕氏（理化学研究所）、上田和夫氏（東京大学物性研究所）との共同研究である。また、日本学術振興会科学研究費補助金・若手研究（B）の援助を受けている。

参考文献

- [1] H. Hegger et al., *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4986 (2000);
C. Petrovic et al., *Europhys. Lett.* **53**, 354 (2001);
C. Petrovic et al., *J. Phys. Condens. Matter* **13**,
L337 (2001).
- [2] M. B. Maple et al., *J. Phys. Soc. Jpn. Suppl.* **71**, 23
(2002).
- [3] S. S. Saxena et al., *Nature (London)* **406**, 587
(2000); D. Aoki et al., *Nature (London)* **413**, 613
(2001).
- [4] J. L. Sarrao et al., *Nature (London)* **420**, 297
(2002); J. L. Sarrao et al., *J. Phys. Condens. Matter*
15, S2275 (2003) 日本語による紹介としては、安
岡弘志：固体物理 **38**, 13 (2003)；堀田貴嗣：日
本物理学会誌 **58** (No. 4), 230 (2003).
- [5] F. Wastin et al., *J. Phys. Condens. Matter* **15**,
S2279 (2003)
- [6] T. Maehira et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **72**, 854 (2003);
T. Maehira et al., *Phys. Rev. Lett.* **90**, 207007
(2003).
- [7] T. Hotta and K. Ueda, *Phys. Rev. B* **67**, 104518
(2003).
- [8] T. Takimoto et al., *J. Phys. Condens. Matter* **15**,
S2987 (2003)
- [9] T. Takimoto et al., *J. Phys. Condens. Matter* **14**,
L369 (2002).

