

# f 電子系超伝導体

ウラン化合物超電導研究グループ ■大 貫 惇 睦■

## f Electron Superconductors

Yoshichika ÖNUKI

Research Group for Superconductivity in Uranium Compounds

Single crystals of uranium superconductors have been grown by the Czochralski pulling method in a tetra-arc furnace or by the zone melting method in high vacuum of  $10^{-10}$  Torr, later annealed by the electrotransport method in high vacuum of  $10^{-11}$  Torr. The residual resistivity ratio of  $UPt_3$  is, for example, over 500, indicating high quality of the crystal grown. From the NMR results, it is demonstrated that  $UPt_3$  is an odd-parity superconductor with an equal spin pairing. Progress of the study on the other superconductors such as  $U_6Fe$ ,  $UPd_2Al_3$  and  $CeRu_2$  have been discussed.

### 1. はじめに

希土類やウラン化合物は、比較的局在性の強い f 電子と幅の広いバンドを形成する伝導電子が絡み合って織りなす強相関電子系である。その f 電子系は、従来の BCS 理論では全く説明のつかない新しいタイプの超伝導現象を示す。本研究グループはウラン化合物の純良単結晶を育成して、超伝導の対状態を決定することを目的としている。単結晶育成の主な手法は、(1)テトラ・アーク引き上げ法と、(2)超高真空下でのゾーン・メルティングである。ウラン化合物はルツボとの反応が活性であるので、ルツボはすべて水冷タイプである。育成された単結晶のインゴットは  $10^{-10}$  Torr の真空下でのゾーン・メルティング炉又は、(3)  $10^{-11}$  Torr の真空下でのエレクトロ・トランスポート精製炉により脱ガスとアニーリングを行う。純良単結晶には、この 3 種類を巧みに組み合わせることが重要である<sup>1)</sup>。

本グループは現在 3 年目を迎えて、グループリーダーの筆者（客員研究員、大阪大学）と山本悦嗣、芳賀

芳範の若い専任職員及び樋口雅彦専門研究員が主たるメンバーである。上記の 3 種類の炉が昨年 8 月にすべて整備され、本格的な研究がスタートした。以下に最近の研究成果を記す。

### 2. f 電子系超伝導

#### 2.1 $UPt_3$ の超伝導対状態の決定

$UPt_3$  の研究は、筆者と木村憲彰（大阪大学、大学院生）が中心となり、前沢邦彦・富山県立大学教授のエレクトロ・トランスポートによる精製の協力を得ながら、数年前からスタートし、最近その成果の一部が公表されるに至った。現在では、芳賀・山本がエレクトロ・トランスポートの精製を担当している。最近育成した  $UPt_3$  単結晶を図 1 に示す。

$UPt_3$  の超伝導ほど興味深いものはない。図 2 (a) に示すごとく、超伝導が 0.54 K と 0.47 K の 2 段階で起こり、磁場と温度の超伝導相図で A, B, C の 3 つの相が存在することである。NMR の研究（大阪大学、北岡良雄グループ）では、試料の劣化が避けられ

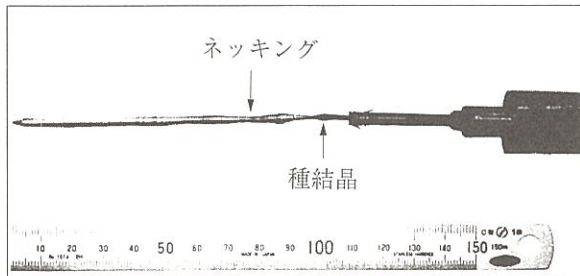


図1 テトラアーク溶解炉で引き上げたUPt<sub>3</sub>の単結晶インゴット

ない粉末試料ではなく、単結晶を用いて行われたことが特徴的である。図2 (a) に示すごとく、A, B, C 3つの相に関して、<sup>195</sup>Ptのナイトシフト (<sup>195</sup>K) の温度変化が28 mKの低温まで測定された。図2 (b), 2 (c) に示すごとく、数%の範囲内で温度変化がない。磁場方向を六方晶の基底面に加えたときも同じ結果であった。ナイトシフトはスピン帯磁率に関係するので、この実験結果の意味することは、超伝導状態は odd parity (スピン3重項) で平行スピンの対状態を持つことである<sup>2)</sup>。

一般的に、強相関電子系ではf電子のオンサイトのクーロン斥力に起因する反強磁性スピン揺らぎが優勢であるので、基本的には even parity (スピン1重項) 超伝導状態が予想される。事実、反強磁性スピン揺らぎを持つ高温超伝導体ではd波超伝導が確立しつつある。ところが、UPt<sub>3</sub>での我々の主張はそれとは対照的にp波超伝導ということである。これを支持する低温磁化(北海道大学、榊原俊郎グループ)も現在その成果をPhys. Rev. Lett. に投稿中である<sup>3)</sup>。その他、本研究グループで育成された単結晶は全国7つの研究グループで研究中であり、昨年秋の物理学会(大阪府立大学)では6件、本年春の物理学会(金沢大学)では7件発表された。また、UPt<sub>3</sub>のノーマル状態の研究として、ドハース・ファンアルフェン効果による5f電子の遍歴性を示すフェルミ面の諸性質が公表された<sup>4)</sup>。

## 2.2 U<sub>6</sub>Fe と UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub> の単結晶育成と超伝導

U<sub>6</sub>Fe (超伝導転移温度 T<sub>c</sub>=3.9 K) と UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub> (T<sub>c</sub>=2.0 K と反強磁性温度 T<sub>N</sub>=15 K) の超伝導の諸性質も研究している。U<sub>6</sub>Fe はウラン化合物の中で最も高い超伝導転移温度を持つ。状態図の上からも単結晶の育成が困難で、米国エイムス研究所でも試みたが成

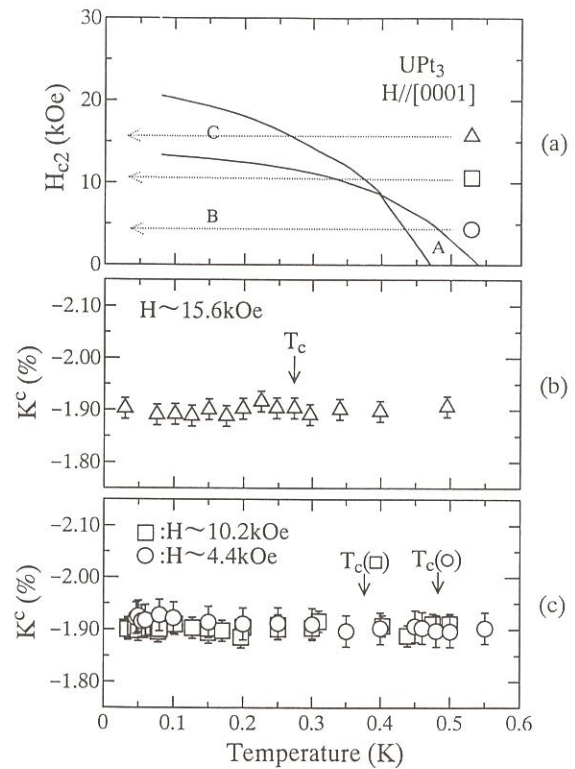


図2 UPt<sub>3</sub>のH//[0001], c軸での超伝導相図 (a) とナイトシフトの温度依性 (b), (c)

功しなかった。山本が中心になって単結晶育成を試み、上記の(1), (2)の両方で成功した。図3は超伝導上部臨界磁場 H<sub>c2</sub> の角度依存性を示す。正方晶の結晶構造を反映した異方性を見出し、有効質量モデルで説明づけた<sup>5)</sup>。

5f電子系が反強磁性を示し、かつ低温で超伝導にも関与する UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub> の物性も魅力がある。芳賀が中心になって研究を行っている。単結晶の T<sub>c</sub> が 2 K になることは難しいとされていたが、この半年で条件を変えて単結晶を育成し、ようやく 2 K に到達した。5f電子の遍歴・局在性に関する問題、Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) 超伝導状態の可能性、及び超伝導の対状態に関して、研究が進んでいる。FFLO 状態とは超伝導の秩序状態変数が実空間でノードを持つような状態であり、H<sub>c2</sub> 付近で磁束線の集団的なピンギング機構が働くことになる。現在、磁束線の運動を種々の実験手段で研究している。



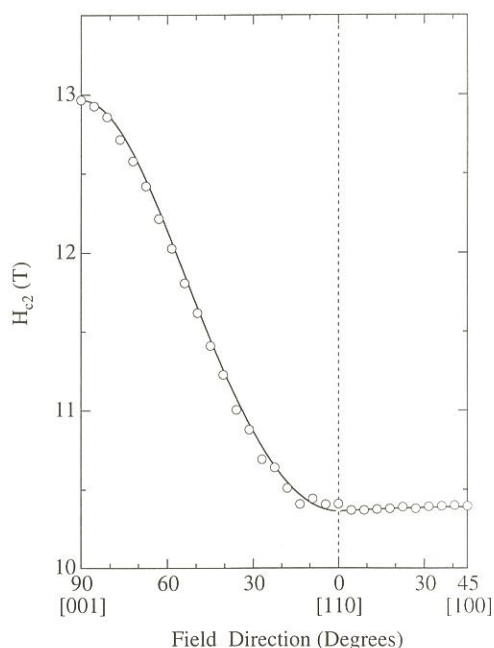


図3 U<sub>6</sub>Feの超伝導上部臨界磁場H<sub>c2</sub>の0.42 Kにおける角度依存性。実線は有効質量モデルの理論曲線を示す。

### 2.3 CeRu<sub>2</sub>の超伝導状態のドハース・ファンアルフェン振動

CeRu<sub>2</sub> (立方晶, T<sub>c</sub>=6.2 K) はセリウム化合物の中で最も高いT<sub>c</sub>を持つ超伝導体である。状態図から単結晶の育成が困難な物質であり、数年前から筆者と菅原仁(現東京都立大学助手)が単結晶育成に取り組み、成功した経緯がある。現在は辺土正人(大阪大学, 大学院生)が継続している。CeRu<sub>2</sub>の単結晶育成の最近の進展は、残留抵抗比30~60の試料が10<sup>-10</sup> Torr下でのエレクトロ・トランスポートのアニール(約900°C)により、残留抵抗比が約300にも向上したことである。このアニーリングは芳賀と山本が担当している。CeRu<sub>2</sub>の超伝導はUPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>と同様、FFLO状態の可能性に関する研究が中心であり、筆者は昨年(インド)の強相関電子系に関する国際会議(インド)で特別講演を行った<sup>6)</sup>。

一方、超伝導の混合状態においてドハース・ファンアルフェン振動が検出された。ドハース・ファンアルフェン振動のブランチはCeの4f電子を遍歴電子とする樋口のバンド理論と極めてよく一致している。混

合状態での電子状態に関して新しい展開を促す実験結果である<sup>7)</sup>。本グループで育成されたCeRu<sub>2</sub>の試料は国内5グループに、外国(ドイツ, インド)の2グループに提供され、共同研究が進展している。この春の物理学会では上記研究グループから4件発表された。

### 3. まとめ

上述のごとく、本年から来年にかけて本格的な研究成果が期待できる。特に物性測定の拠点にしているのは、筆者の所属する大阪大学であり、摺待力生・稲田佳彦助手と大学院生の協力の下に行われた。また、原研では中性子散乱グループとの共同研究の体制が整い、試料を提供するだけでなく積極的に実験にも参加した。更に、全国の大学の6つの研究グループが本グループの設備を使用して単結晶育成を行った。

### 参考文献

- 1) 大貫惇睦: 固体物理, 29 (1994) 29.
- 2) H. Tou, Y. Kitaoka, K. Asayama, N. Kimura, Y. Ōnuki, E. Yamamoto and K. Maezawa: submitted to Phys. Rev. Lett.
- 3) K. Tenya, M. Ikeda, T. Tayama, T. Sakakibara, E. Yamamoto, K. Maezawa, N. Kimura, R. Settai and Y. Ōnuki: submitted to Phys. Rev. Lett.
- 4) N. Kimura, R. Settai, H. Toshima, E. Yamamoto, K. Maezawa, H. Aoki and H. Harima: J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 3881.
- 5) E. Yamamoto, M. Hedo, Y. Inada, T. Ishida, Y. Haga and Y. Ōnuki: J. Phys. Soc. Jpn. 65 (1995) 1034.
- 6) Ōnuki, Y. et al.: Int. Conf. Highly Correlated Electron Systems (Goa, 1995), Physica B, in press.
- 7) M. Hedo, Y. Inada, T. Ishida, E. Yamamoto, Y. Haga, Y. Ōnuki, M. Higuchi and A. Hasegawa: J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 4335.