

■ 中性子散乱で探る重い 電子系超伝導体の磁性と超伝導の相関

量子凝縮相研究グループ ■ 目 時 直 人 ■

Neutron Scattering Study on Heavy Fermion Superconductors

Naoto METOKI

Research Group for quantum condensed matter systems

An interplay between magnetism and superconductivity in heavy fermion superconductors has been studied by means of neutron scattering. We found evidence for the coupling between magnetic and superconducting orderparameters in UPt₃, UNi₂Al₃ and UPd₂Al₃. A magnetic excitation gap is observed in the superconducting UPd₂Al₃. This is the first observation of the superconducting gap in a heavy fermion superconductor.

1. はじめに

希土類やアクチノイド元素は価電子として f 電子を持つ。 f 電子は原子位置に束縛される性格が強い。そのため、もし結晶中で f 電子が原子に束縛されれば、電気伝導に寄与しない。ところが結晶中を自由に動き回ることができる伝導電子と、 f 電子が共存する物質では、混成効果によって f 電子は結晶中を動き始める。そして重い電子状態と呼ばれる状態が実現する。この状態では伝導電子の有効質量が自由電子の千倍にも達する。重い電子系超伝導体は、 f 電子と伝導電子の混成効果によって生じた重い電子（準粒子）が磁気秩序と超伝導を担う化合物である¹⁾。

重い電子系超伝導は従来の BCS 超伝導体といくつかの点で異なった性質を示す^{1,2)}。第1の特徴は反強磁性秩序と超伝導の共存である。本来、磁気秩序と超伝導は相性が悪く、共存することはまれである。ところが不思議なことに重い電子系超伝導体では反強磁性秩序と超伝導どちらも同じ重い電子（準粒子）によって担われている。そのため重い電子系超伝導体における磁気秩序と超伝導の間には強い相関があることが期待

される。第2点目に f 電子間の強いクーロン斥力のため、重い電子系超伝導体では超伝導電子対の波動関数の重なりが小さい非 BCS 超伝導が実現しやすいことである。非 BCS 超伝導では超伝導ギャップが異方的で、点や線上でギャップが消失しており、ギャップの大きさが方向によらない BCS 超伝導とは異なる。第3点目にこの非 BCS 超伝導の起源としてスピンの揺らぎが有力視されていることである。このメカニズムは従来の BCS 超伝導体における格子振動を媒介にした電子対形成とは全く異なる。本研究では重い電子系超伝導体における磁性と超伝導の相関、異方的ギャップ、さらに超伝導発生機構を明らかにする目的で重い電子系超伝導体 (UPt₃, UNi₂Al₃, UPd₂Al₃) の中性子散乱実験を行った。ここでは UPd₂Al₃ に関する研究を中心に紹介する。

2. 中性子実験

実験は原研3号炉 (JRR-3M) ガイドホールに設置された冷中性子三軸型分光器 LTAS および熱中性子三軸型分光器 TAS-2 を用いて行った。分光器の上

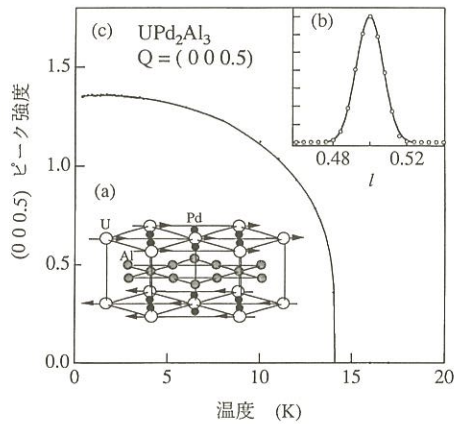


図1 (a)UPd₂Al₃の結晶構造および磁気構造
(b)(000.5)反強磁性ピークの散乱プロファイル
(c)(000.5)反強磁性ピークのピーク強度の温度依存性

に³He 冷凍機をのせて試料温度を0.4Kまで冷却して測定した。試料は先端基礎研究センターウラン化合物超伝導研究グループによって育成された高品質大型単結晶4本を用いた。用いた試料の超伝導転移温度は1.9Kである³⁾。

3. UPd₂Al₃の磁気秩序と超伝導転移

UPd₂Al₃は図1(a)に示す通り六方対称性を持ち、U原子とPd原子が整列した層と、Al原子の層が交互に積層した構造をしている。温度が14K以下になるとUの5f電子による磁気モーメントが交互に反対向きにそろって、いわゆる反強磁性秩序を示す。図1(a)の矢印はU原子の磁気モーメントの向きを示している。この秩序に伴ってc軸方向に結晶格子の周期の2倍に相当する位置に反強磁性ピークが観察される。例えば図1(b)は(000.5)反強磁性ピークの散乱プロファイルである。このピーク強度の温度変化を図1(c)に示す。ピーク強度は反強磁性転移温度(ネール温度) $T_N=14\text{K}$ 以下でゼロから連続的に増加し、温度の低下とともに磁気モーメントが増大することを示している。

この磁気秩序が超伝導転移によってどのような影響を受けるのか明らかにするために、超伝導転移温度近傍のピーク強度の温度変化を精密に測定した(図2)。磁場がかかっていない場合($H=0$)、ピーク強度は図中矢印で示された超伝導転移温度 $T_c=1.9\text{K}$ で明らかに折れ曲がりを示す。磁場を1テスラかけると、ピーク強度はこの磁場中における超伝導転移温度

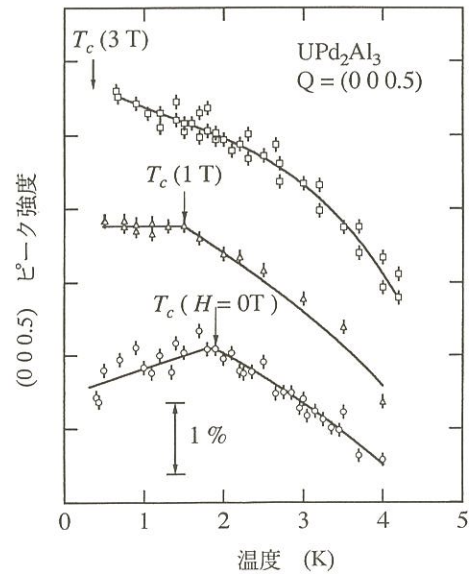


図2 UPd₂Al₃の(000.5)反強磁性ピーク強度の温度依存性

$T_c=1.5\text{K}$ で折れ曲がりを示す。3テスラの場合、ピーク強度は単調に温度変化する結果が得られた。これは3テスラの磁場中では、今回実験を行った温度範囲で試料が超伝導転移を示さないことと対応している。以上の結果から、超伝導転移に伴ってUPd₂Al₃の磁気モーメントがわずかに(約1%)減少することが明らかになった。同様の現象はUPd₂Al₃以外の重い電子系超伝導体UPt₃およびUNi₂Al₃においても観察され、これが重い電子系超伝導化合物特有な現象であることが明らかになった。

4. UPd₂Al₃の磁気励起と超伝導ギャップ

図3は中性子非弾性散乱によって測定された磁気励起スペクトルの温度変化である。この測定で散乱ベクトルは反強磁性ピークが観察される(000.5)に固定した。超伝導転移温度 $T_c=1.9\text{K}$ よりも高温側では、励起エネルギー $\Delta E=0$ を中心とする準弾性散乱(点線)と、 $\Delta E=1.5\text{meV}$ 付近にピークを持つ非弾性散乱(破線)の2種類の励起が観察される。前者は試料温度を4.2Kから2Kに下げると強度が減少するため、なんらかの熱的な揺らぎと考えられる。一方後者はスピン波励起と考えられる。超伝導転移温度以下では、この準弾性散乱のピーク位置が高エネルギー側にシフトし、非弾性散乱に変化する。これは超伝導転移に伴って磁気励起スペクトルにギャップが生じたことを意味する。非弾性散乱ピークの位置、すなわちエネルギー

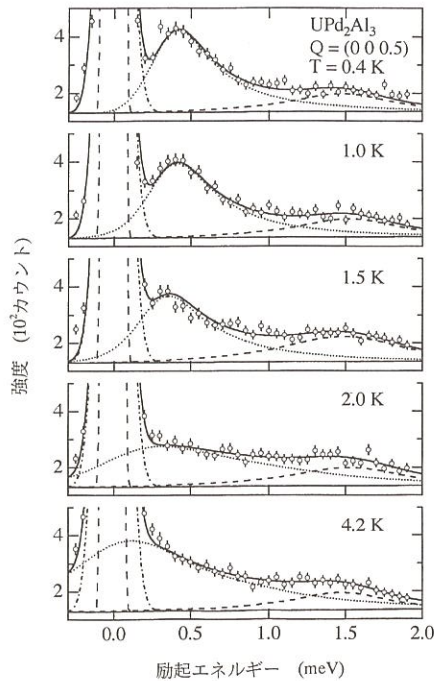


図3 UPd₂Al₃の $\vec{Q}=(0\ 0\ 0.5)$ における中性子非弾性散乱スペクトルの温度変化。低エネルギー励起(点線)は、超伝導転移点以下で超伝導ギャップに相当する有限の励起エネルギーを持つ。 $\Delta E=1.5$ meV 付近のピーク(破線)はスピン波励起である。 $\Delta E=0$ meV 付近の鋭いピークは、ブラッグピーク(破線)および非干渉性散乱(一点鎖線)である。

ギャップの温度依存性を図4(a)の白丸で示した。超伝導転移温度以下でギャップがゼロから連続的に増加し、0.4Kで0.35 meVになる。図4(a)で点線で示した曲線はBCS理論(弱結合)で予測される超伝導ギャップの温度依存性である。UPd₂Al₃の磁気励起ギャップはBCS超伝導体の超伝導ギャップと良く似た温度依存性を示している。最低温度におけるギャップのエネルギーは超伝導転移温度 T_c と比較すると約 $2k_B T_c$ (k_B はボルツマン定数)に相当し、BCS理論で期待される $3.5k_B T_c$ よりかなり小さいが、同じオーダーである。以上の結果から磁気励起スペクトルに観察されたギャップはUPd₂Al₃の超伝導ギャップであると結論した。重い電子系超伝導体におけるギャップは本研究によって初めて観察された。

非弾性散乱ピークの線幅(図4(a)黒丸)は超伝導転移点以下で減少し、この磁気揺らぎの寿命が超伝導転移に伴って増加したことを示している。BCS超伝導体では、超伝導電子対形成に寄与するフォノンの寿命が超伝導状態で増大することが報告されている。このことから類推すれば、超伝導転移に伴う磁気励起ピーク

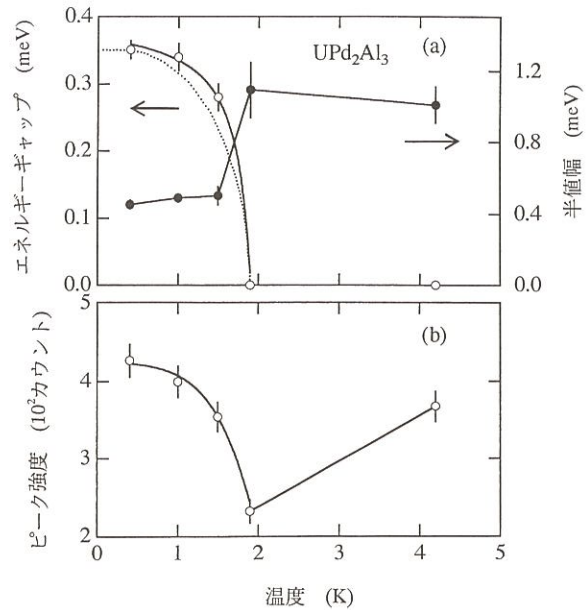


図4 UPd₂Al₃の $\vec{Q}=(0\ 0\ 0.5)$ における(a)エネルギーギャップ(白丸)及び半値幅(黒丸)、(b)ピーク強度の温度依存性。

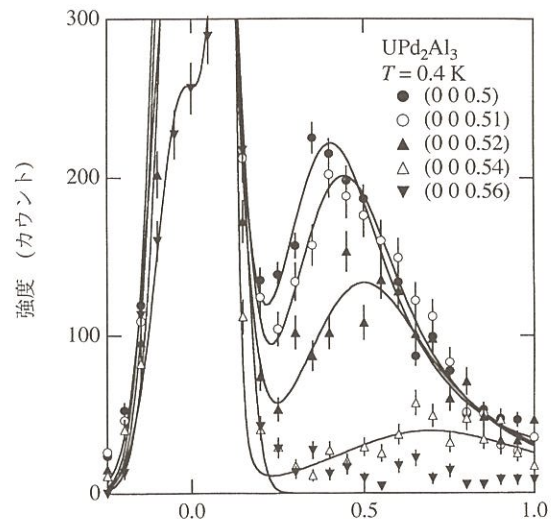


図5 UPd₂Al₃の中性子非弾性散乱スペクトルの c^* 方向における \vec{Q} 依存性(0.4K)。

ク線幅の減少は、UPd₂Al₃における超伝導の起源が磁気揺らぎであることを示す有力な証拠と考えられる。またこのピークの強度(図4(b))は超伝導転移点以下でBCS秩序変数(図4(a)点線)とよく似た温度依存性を示す。この振る舞いは、超伝導ギャップ以下

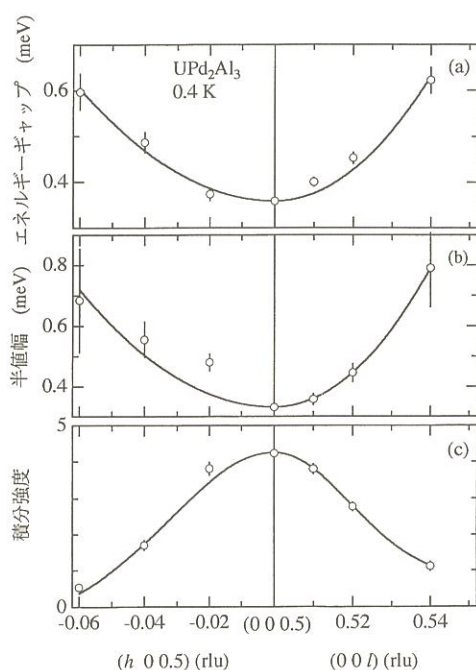


図6 UPd₂Al₃の(a)エネルギーギャップ、(b)半値幅、及び(c)積分強度の \vec{Q} 依存性。

の低エネルギー励起が消失し、ギャップの上に押し上げられたと考えれば理解できる。

図5は散乱ベクトル \vec{Q} を変化させたときの磁気励起スペクトルの変化である。 \vec{Q} が反強磁性ブラッグ点から離れるにしたがって非弾性散乱ピーク的位置が高エネルギー側に移動し、ギャップの大きさが変化していることがわかる(図6(a))。これはギャップが異方的であることを示していると考えられる。散乱強度の分布を、散乱ベクトル(横軸)と励起エネルギー(縦軸)の関数として示したのが表紙の絵である。表紙の絵で指紋のような模様は、超伝導ギャップによって生じた非弾性散乱ピークである。 \vec{Q} が反強磁性ブラッグ点から離れるにしたがって非弾性散乱ピークの線幅は広くなり(図6(b))、散乱強度は急激に減少する(図6(c))。

同じ磁気励起スペクトルを磁場中で測定したところ、磁場が増加するにしたがって0.4meV付近の非弾性散乱のピーク位置が連続的に低エネルギー側にシフトし、超伝導状態が壊れる第2臨界磁場 H_{c2} 以上の磁場で準弾性散乱に変化することがわかった。このこと

からこの非弾性散乱ピークが超伝導転移に起因するものであることが明らかになった。

5. まとめと今後の展望

以上述べてきたように超伝導転移に伴う磁気モーメントの減少や、磁気励起スペクトルにギャップが生じる結果は、重い電子系超伝導化合物の磁性と超伝導のあいだに強い相関が存在することを示している。今回得られたデータから、超伝導ギャップの形を再構成するためには、理論計算との比較が必要である。超伝導にともなって磁気励起にギャップが生ずることは、この超伝導が磁気的な起源を持つ強い証拠と考えられる。本稿では詳細を述べなかったが、1.5meV付近のスピンの波励起についても超伝導転移に伴って明瞭な変化が観察されている。磁気秩序と超伝導が共存する物質で、スピンの波励起が超伝導の影響を受ける現象はUPd₂Al₃に関する本研究において初めて発見された。この現象については今後詳しく研究を重ねる必要がある。

謝辞

この研究はウラン超伝導化合物研究グループの芳賀芳範、山本悦嗣、大貫惇陸、超低温中性子散乱研究グループの小池良浩、東北大理学部の佐藤憲昭、小松原武美による共同研究である。量子凝縮相研究グループの立木昌、東大物性研の上田和夫、武藤哲也、東京都立大の神木正史、ブルックヘブン米国立研究所の白根元、各氏には有益な議論及び助言をいただいたことに深く感謝する。

参考文献

- 1) 大貫惇陸, 上田和夫, 小松原武美: "重い電子系" 日本物理学会, 物理学論文選集IV, (1994) 1.
- 2) 上田和夫: "遍歴電子系の磁性と超伝導", 川畑有郷, 安岡弘志編集, 裳華房(1992) 31.
- 3) Y. Haga et al.: J. Phys. Soc. Jpn., 65(1996)3646.