

Study on Superconducting Symmetry of Uranium Heavy-Electron Compound UBe_{13}
by Very-Low Temperature Precise Magnetization and Specific-Heat Measurements(極低温精密磁化および比熱測定による重い電子系ウラン化合物
 UBe_{13} の超伝導対称性に関する研究)

学位論文内容の要旨

近年、物性物理学の強相関電子系分野における重要な研究課題のひとつは重い電子系化合物において起こる非 BCS 型超伝導の起源を明らかにすることである。そのためには、その超伝導対称性を明らかにすることが非常に重要である。特にウラン元素を含む重い電子系化合物にはエキゾチックな超伝導特性を示すものが多く、その起源と超伝導対称性に興味を持たれる。本研究では重い電子系化合物 UBe_{13} に関する超伝導対称性とその正常相に関する性質について調べた。 UBe_{13} は、1983 年に発見され、その超伝導相（超伝導転移点 $T_c \sim 0.8$ K）における性質はこれまでにおける理論では理解できない特異なものであり、その超伝導対称性の起源の解明のために多くの研究がなされてきた。しかし、約 30 年経った現在においても、その超伝導ギャップ構造はおろか、そのクーパー対が奇パリティ状態なのかについても、解明されてはいない。 UBe_{13} における超伝導対称性の解明が難しい理由としては、その超伝導状態において多くのエキゾチックな諸性質が絡み合うがゆえにその理解が難しいこと、純良な単結晶の作成が難しいこと、などがある。

そこで、本研究では、 UBe_{13} の超伝導対称性を明らかにするため、近年、原子力機構 (JAEA) の芳賀芳範氏によって作成された純良単結晶を用い、これまでには行われてない測定手段であるキャパシタンスファラデー法による精密極低温直流磁化測定 ($0.1 \text{ K} < T$) により研究を行った。また、その相補的アプローチとしてゼロ磁場及び磁場中における比熱測定を行った。特に、非 BCS 超伝導体の対称性を解明するうえで重要なのは、上部臨界磁場 H_{c2} の異方性、常磁性効果の異方性、および超伝導ギャップのノードにおける準粒子励起に関する情報、さらには磁化などを初めとするマクロな熱力学量の振る舞いである。

まず、上部臨界磁場の異方性に関しては、精密磁化測定および磁場中比熱測定の結果からおよそ $T_c/2 < T < T_c$ の温度範囲においては精度内で等方的にみえるが、 $T_c/2$ 付近より低温

では異方性が顕著になることが明らかになった。また、常磁性効果に関しても、およそ $T/2 < T < T_c$ においては等方的に効いており、 $T/2$ 付近より低温では異方的な常磁性効果が効いていることが明らかになった。特に、 $T/2$ 以下の低温での結晶の $\langle 001 \rangle$ 方向に関しては、約 $T/2$ からそれ以下で常磁性効果が弱まるのに対し、結晶の $\langle 110 \rangle$ 方向に関しては、常磁性効果がさらに強まることが明らかになった。この $T/2$ 以下の低温での常磁性効果の異方性に対する一つの解釈として、 UBe_{13} におけるクーパー対においてスピン軌道相互作用がはたらいており、しかもそのクーパー対は平行スピン対（奇パリティ超伝導体）である可能性があげられる。しかしながら、 $\langle 001 \rangle$ 方向の常磁性効果について約 $T/2$ 以下と約 $T/2$ 以上での振る舞いは、単一の既約表現を考えるのみでは自然に説明できない。一方で、2 つ独立な既約表現に属する、2 種類の超伝導対称性が実現していると仮定した場合のほうが、これらの常磁性効果及び上部臨界磁場等の諸性質をより矛盾なく説明することが可能である。また、同じ試料の T_c 以下の比熱の温度依存性を調べたところ、超伝導ギャップにポイントノードが存在することと矛盾しない結果を得た。立方晶系において、スピン軌道相互作用のある場合の奇パリティ秩序変数には、その超伝導ギャップにラインノードを有するものではなく、ポイントノードを有するものが多い。したがって、この比熱測定の結果は直流磁化測定から得た、 UBe_{13} が奇パリティ超伝導であるという結果と矛盾しない。さらに、本研究で初めて直流磁化測定から超伝導相内に異常 $B^*(T)$ が観測された。この異常が超伝導秩序変数の変化に関する情報を捉えているのかは本研究からは明らかではないが、磁化を熱力学的に考察した結果、その異常が相転移だと仮定した場合には少なくともそれが 2 次相転移ではないということを明らかにした。今後、この異常 $B^*(T)$ が超伝導秩序変数に関する現象なのか、それとも超伝導秩序変数とは関連していない現象なのかを別の測定手法等から明らかにしていく必要がある。

以上、本研究では純良単結晶 UBe_{13} の超伝導混合相における熱平衡磁化および比熱測定により、 H_c2 の異方性および常磁性効果の有無と異方性の関係を初めて明らかにした。さらに、直流磁化測定から初めて超伝導相内に異常 $B^*(T)$ を観測し、その異常における熱力学的考察を行った。また、実験結果に基づきこの物質の超伝導がポイントノードギャップをもつ奇パリティの対称性をもち、また複数の奇パリティ超伝導対称性が絡んでいる可能性と矛盾しないことを提案した。ただし、これを確証するにはフェルミ面の異方性による効果を考慮した検討が必要であり、将来のバンド計算やフェルミ面の観測結果等と照らし合わせる研究が今後期待される。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 網 塚 浩
副 査 教 授 大 川 房 義
副 査 准教授 北 孝 文
副 査 教 授 天 谷 健 一
(信州大学大学院教育学研究科)

学 位 論 文 題 名

Study on Superconducting Symmetry of Uranium Heavy-Electron Compound UBe_{13}
by Very-Low Temperature Precise Magnetization and Specific-Heat Measurements

(極低温精密磁化および比熱測定による重い電子系ウラン化合物
 UBe_{13} の超伝導対称性に関する研究)

超伝導ギャップが異方的となる非従来型超伝導の発現機構の解明は現代物性物理学の最重要課題の一つに挙げられる。希土類やアクチノイド元素を含む金属間化合物には、低温で強い電子相関により電子の有効質量が著しく増大する重い電子状態が発現し、その重い電子が磁性と非従来型超伝導の共存・競合を示す物質が数多く見出されており、現在、諸系について超伝導ギャップの対称性を同定し、電子間引力機構を解明するための精力的な研究が行われている。本学位論文の研究対象である UBe_{13} は 1983 年に発見された重い電子系超伝導体であり、80~90 年代に多くの実験的研究が成されたが、観測される物性に試料依存性が見られる、また超伝導転移温度 T_c が 0.8 K と低く実験手法が限られることなどから、超伝導状態の基本的性質を十分精密に議論できる状況には無かった。特に、超伝導ギャップのノードが点状か線状か、磁場中混合相で比熱に見られる弱い異常 (B^* 異常と呼ばれる) は本質的か、またその起源は何か、さらに上部臨界磁場 H_{c2} の異方性の有無は、といった問題がこれまでに行われた研究で論争となっていた。本学位論文において著者は、日本原子力研究所、芳賀芳範主任研究員より提供を受けた UBe_{13} 単結晶に対し温度領域 0.1 K ~ 2 K、磁場領域 0 ~ 8 T における静的磁化測定及び 0.4 K ~ 2 K、0 ~ 12 T における比熱測定を行った。その結果、先ず超伝導転移に伴う比熱の飛びが大きく磁化ヒステリシスが非常に小さいことから、本研究に用いた単結晶が非常に純良なるものであることを確認した。そして第 1 に、本物質について超伝導混合相での熱平衡磁化の見積もりを初めて行い、上記 B^* 異常が、磁化曲線に折れを引き起こす何らかの磁氣的異常であることを明らかにした。第 2 に [100] 方向と [110] 方向の磁場に対する H_{c2} が T_c 直下ではほぼ一致するが、およそ $0.7T_c$ より低温で僅かに異なる異方性を示すことを明らかにした。以上 2 点の実験事実はこの系の超伝導特性を議論する上で信頼性の高い新たな知見を与えるものであり、本学位論文で最も評価される部分である。著者はまた実験結果を詳細に解析し、磁化と比熱双方から求めた Maki パラメータ κ_2 の温度変化から、この系の超伝導に対する対破壊効果に常磁性効果による寄与が存在すること、また、 B^* 異常に対応する磁化の挙動から混合状態の低温弱磁場領域における正常相で微弱な強磁性が発生している可能性があることを初めて提案した。さらに H_{c2} の異方性について、偶パリティ超伝導で Fermi 面に異方性がある可能性、および奇パリティで対称性の異なる 2 種類の秩序変数が共存するマルチバンド超伝導の可能性について議論を行い、新たな問題提起を行った。

これらを要するに、著者は強相関電子系における最重要課題の 1 つに位置づけられる非従来型超伝導について、その秩序変数の対称性及びクーパー対凝縮機構を議論するための非常に有益な知見を得たものであり、物性物理学の学術分野に対して貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (理学) の学位を授与される資格があるものと認める。