

## 1. 研究の背景

超伝導は、固体中の電子が引き起こす現象の中でも、最も量子効果が現れたものです。超伝導の実現には、2個の電子を結びつける引力が必要で、鉛など単体金属の超伝導体では結晶格子の振動がその役割を果たします。超伝導現象の基本的なメカニズムや超伝導特性は 1957 年に Bardeen, Cooper, Schrieffer らの「BCS」理論によって説明され、この理論で基本特性が説明される超伝導物質を「従来型」と呼びます[2]。一方、電子間のクーロン斥力が強い金属（強相関電子系）では、この機構による超伝導は実現しにくいにもかかわらず、1979 年には Steglich らにより  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  が[3]、1986 年には銅酸化物高温超伝導体が発見されました。その後も超伝導体の発見は相次ぎ、特にセリウム・ウラン化合物超伝導体では電子の有効質量が自由電子の 100 倍から 1000 倍程度重くなっている「重い電子」による超伝導が実現しています。強相関電子系物質の超伝導特性は、従来型超伝導体と著しく異なるため、「非従来型」と呼ばれます。ここで取り上げるウラン化合物  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  はそのような物質の一つで、1985 年に発見されました[4]。超伝導状態(転移温度  $T_{\text{sc}} = 1.4 \text{ K}$ )における比熱等の温度依存は BCS 理論で説明できず、超伝導は「非従来型」であることが明らかにされています[5]。一方  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  には、超伝導相より高い温度 17.5 K で別の二次相転移があります。この相転移の起源は、発見以来 4 半世紀以上にわたって研究が盛んに行われてきましたがよくわかっておらず、「隠れた秩序」と呼ばれています。最近の研究で電子系の対称性が破れることはわかりましたが[6]、その詳細は依然として不明であり、重い電子を結びつける引力の起源について手がかりがない状態です。

## 2. 研究の経緯

私たちは  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の超伝導を担う電子がどのような環境におかれているのか調べるために、電子が受ける散乱、つまり電気抵抗率  $\rho$  を測定しました。普通の金属では、準粒子(電子)散乱は温度の 2 乗の寄与( $\rho \propto T^2$ )を電気抵抗に与えます。ただし、低温で不純物や格子欠陥等による電子散乱がもたらす残留抵抗が大きければ、そのほかの寄与を分離することが極めて困難となります。電気抵抗から正確な情報を引き出すためには、残留抵抗の小さい超高純度の単結晶試料を作製することが不可欠となります。私たちの研究グループでは、長年にわたって固相電解法によるウラン金属の精製と単結晶育成手法及び超高真空下での熱処理を組み合わせることにより、世界でも最高純度をもつ  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の単結晶育成に成功しました[7]。高品質のサンプルを用いた精密な測定の結果、 $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の電気抵抗  $\rho$  は通常金属と異なる異常な成分が存在し、電気抵抗は  $\rho \approx \alpha_1 T + \alpha_2 T^2$  一式(1)と表されることがわかりました。第二項は通常金属で見られる電子-電子散乱によるものですが、第 1 項は「異常」散乱と呼ぶべき寄与で、これが異常な電気抵抗の成分を表しています。

さらに私たちは超伝導転移温度と、異常な電気抵抗の成分の相関を調べるため、圧力を加えてこれらを意図的に変化させました。図 1 は  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の温度 - 圧力相図です[1,8]。横軸が圧力(GPa)、縦軸は温度(K)です。圧力の単位ですが、1 GPa はほぼ 1 万気圧に相当します。常圧(0 GPa)において、 $\text{URu}_2\text{Si}_2$  は  $T_0 = 17.5 \text{ K}$  で隠れた秩序が現れ、 $T_{\text{sc}} = 1.4 \text{ K}$  で超伝導状態へと転移します。高压下では 0.8 GPa に一次相転移線  $T_1(P)$  が存在し、基底状態は「隠れた秩序」から反強磁性状態へと相転移します。超伝導転移温度  $T_{\text{sc}}$  は加圧と共に減少し、超伝導は反強磁性状態では存在しません。

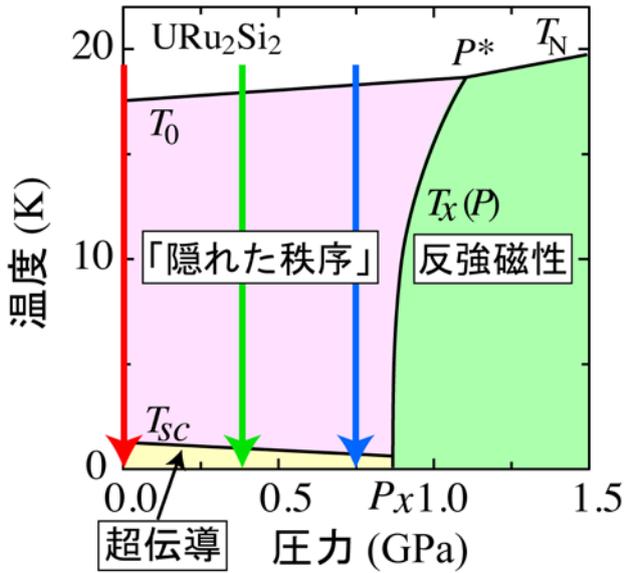


図1 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の温度-圧力相図。矢印は、一定圧力で温度を変化させながら電気抵抗を測定したことを示す。図2を参照のこと。

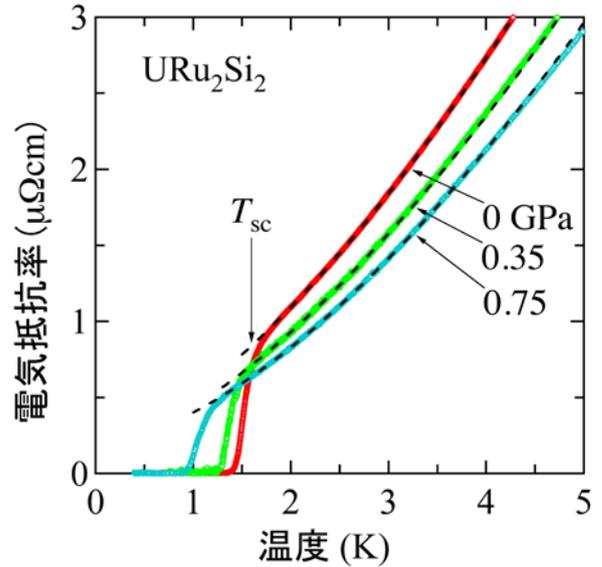


図2 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の圧力下電気抵抗。

### 3. 実験結果

図2に常圧(0 GPa)と0.35, 0.75 GPaの圧力下における電気抵抗率 $\rho$ の温度依存を示します。電気抵抗の温度依存を式(1)で解析し、各圧力で温度一次と二次の項の係数 $\alpha_1$ と $\alpha_2$ を決定しました。「隠れた秩序」では電気抵抗の一次の項の係数 $\alpha_1$ が大きく、 $\rho$ の異常な温度依存を表しています。

さらにデータを詳細に調べたところ、興味深いことがわかりました。圧力を加えると超伝導転移温度 $T_{sc}$ は変化し、同時に、係数の比( $\alpha_1/\alpha_2$ )が徐々に変わります。 $\alpha_1/\alpha_2$ と $T_{sc}$ の関係を図3に表示しました。これからわかるように、 $T_{sc}$ と $\alpha_1/\alpha_2$ の間に線形関係( $\alpha_1/\alpha_2 \propto T_{sc}$ )が成り立つことが明らかになりました。 $\alpha_2$ はほとんど圧力に依存しませんので、電気抵抗の一次の項の係数 $\alpha_1$ と超伝導転移温度 $T_{sc}$ がほぼ比例関係にあることを意味します。前述の通り、温度の一次の項は電気抵抗の「異常な」部分を示しており、この実験結果は、「隠れた秩序」からの異常な電子散乱が超伝導を引き起こすことを意味します。

最近、銅酸化物超伝導体や有機物超伝導体、鉄ヒ素系超伝導物質でも、式(1)を用いた電気抵抗の系統的解析が行われ、電気抵抗の一次の項の係数 $\alpha_1$ と超伝導転移温度 $T_{sc}$ の間にほぼ比例関係が成立することが明らかにされています[9]。本研究の結果、強相関 $f$ 電子系化合物でも初めてこの関係式が成り立つ例があることが明らかにされました。結晶構造や、構成元素、電子系の次元性などが異なる物質にも関わらず、この単純な関係式が成立することは驚きです。強相関超伝導物質のもつある種の「普遍性」なのかもしれません。

#### 4. 成果の意義と波及効果

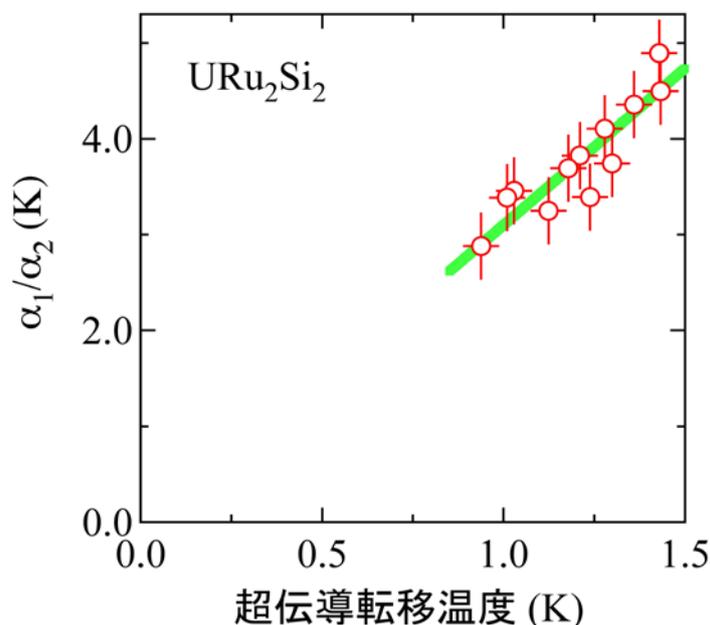


図3 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の高圧下電気抵抗率を解析して得られた  $\alpha_1/\alpha_2$  と超伝導転移温度  $T_c$  の関係。

本研究が明らかにしたのは、未だに起源のわからない「隠れた秩序」の異常な電子散乱と超伝導との密接な関係です。その相関を表す関係式は他の強相関電子系超伝導物質でも成立する普遍的なものであることが明らかとなりました。これら強相関電子系化合物では、銅酸化物超伝導体の「擬ギャップ相」を始めとして、起源のよくわからない「奇妙な」電子状態がいくつか報告されています。URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の「隠れた秩序」も、何らかの共通性があるのかもしれませんが。「隠れた秩序相」について、特に近年、ウラン 5f 電子波動関数の多極子自由度に起因した特異な理論モデルが多く提案されています。一方、「研究の背景」で述べたように、最近発見された結晶構造転移を伴わない電子系の対称性の低下は、銅酸化物超伝導体の「擬ギャップ相」でも報告され、液晶における棒状分子の集合状態に例えてネマチック電子状態(electronic nematicity)と呼ばれ、注目を集めています[10]。

核燃料物質でもあるウランを含む超伝導物質 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の研究を通して明らかにした、「奇妙な」電子状態と超伝導の強い相関は、強相関電子系の超伝導一般に共通するものであり、高温超伝導体の普遍的な物性理論構築に貢献し、より高い転移温度をもつ超伝導体開発に繋がるのが期待されます。

#### 参考文献

- [1] N. Tateiwa et al., Phys. Rev. B (2012), to be published.
- [2] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. Schrieffer, Phys. Rev. **108**, 175 (1985)
- [3] F. Steglich, et al., Phys. Rev. Lett. **43**, 1892 (1979).
- [4] T. T. M. Pasmstra et al., Phys. Rev. Lett. **55**, 2727 (1985).

- [5] Y. Kasahara et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 116402 (2007).
- [6] R. Okazaki et al., Science **329**, 824 (2010)
- [7] T. D. Matsuda et al., J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 362 (2008).
- [8] H. Amitsuka et al., J. Magn.Magn. Mater. **310**, 214 (2007)
- [9] L. Taillefer, Annual Review of Condensed Matter Physics **1**, 51 (2010).
- [10]M. J. Lawer et al., Nature **466**, 347 (2010)