

氏名	で ぐち かず ひこ 出口 和 彦
学位の種類	博 士 (理 学)
学位記番号	理 博 第 2735 号
学位授与の日付	平成 16 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	理学研究科物理学・宇宙物理学専攻
学位論文題目	Full Determination of the Superconducting Gap Structure of the Spin-Triplet Superconductor $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ (スピン三重項超伝導体 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ の超伝導ギャップ構造の完全決定)
論文調査委員	(主 査) 教授 前野悦輝 教授 水崎隆雄 助教授 石田憲二

### 論 文 内 容 の 要 旨

本申請論文は、スピン三重項超伝導が実現していることが確実となった層状ルテニウム酸化物について、磁場中での角度分解比熱測定から、超伝導エネルギーギャップの構造をその伝導バンドごとに決定することに成功し、またそれとともに、スピン三重項に特徴的な超伝導多相現象が上部臨界磁場の抑制現象と深く関わっていることを明らかにした成果をまとめたものである。以下に申請論文内容の要旨を章毎にまとめる。

#### (第 1 章) 序章

層状ルテニウム酸化物  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  は 1.5 ケルビン以下で超伝導になり、10 年前の超伝導発見当初は、銅酸化物高温超伝導体と同じ結晶構造をもつことで注目された。その後の集中的な研究により、二次元的な強いフェルミ面を反映した常伝導状態と、スピン三重項  $p$  波超伝導が実現している超伝導状態の基本的物性が明らかになった。その後、その超伝導状態の詳細に渡る決定・メカニズム解明を目指した研究が進められている。その中でも超伝導の秩序変数である超伝導ギャップの構造を完全に決定することは、超伝導状態を解明する上で特に大きな意味を持っている。しかし、この超伝導体について、多バンド電子状態を考慮した超伝導ギャップ構造の決定と、スピン三重項  $p$  波超伝導の内部自由度から期待される多相超伝導現象の確定は、その超伝導メカニズム解明に向けて重要な未解決問題であった。本研究は、この問題の決着のために、超伝導状態における準粒子状態密度の磁場方向依存性を調べることにより、全バンドにわたる超伝導ギャップ構造を決定し、超伝導に寄与している主バンドの特定することを第一の目的とする。また、精確に磁場方向を制御して比熱の温度・磁場依存性から、多相超伝導現象の存在を熱力学的に確定することを第二の目的とする。序章では、関連する研究を概観し、スピン三重項超伝導の解明の鍵となる問題の明確化を行い、超伝導ギャップ構造・超伝導多重相図を決定することの重要性について説明した。

#### (第 2 章) 実験方法

まず、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の純良単結晶試料の作成について、浮遊帯域法の詳細を記述した。次に、本研究のために開発したベクトル型超伝導マグネットと希釈冷凍機を組み合わせた、自作の高精度比熱測定装置の概要を記述した。物理量の異方性を利用して結晶軸の特定の方向に超高精度 ( $0.05^\circ$  以内) で 5 テスラまでの磁場を印加して、50 ミリケルビンの極低温までの比熱測定を行う方法について詳しく述べた。

#### (第 3 章) $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ の超伝導ギャップ構造

本論文に関わる研究成果の主要部分を記述した章である。極低温で超伝導状態の比熱の磁場方向依存性を測定して、磁場による準粒子励起の異方性、つまり状態密度の異方性を観測することにより超伝導状態におけるエネルギーギャップの構造、クーパー対の波動関数の対称性の決定をめざした。その結果、全バンドにおける  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の異方的な超伝導ギャップ構造の観測、波数空間での超伝導ギャップ構造の決定に成功した。低温でのみ 4 回対称性をもつ面内磁場方向依存性が観測され、超伝導を主に担うフェルミ面では、 $\text{RuO}_2$  面内の  $[100]$  方向で超伝導ギャップが顕著に小さくなっていることがわかった。

これは  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の超伝導ギャップ構造の方向依存性まで決定した最初の実験である。また磁場方向を面内から傾けた場合の測定結果に基づき、他の部分のフェルミ面でのギャップ構造についても、その可能性を絞り込むことが出来た。

#### (第4章) $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ の磁場下における超伝導多相現象と上部臨界磁場の抑制

スピン三重項超伝導体  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の超伝導状態は、内部自由度による縮退が残っている状態であると考えられている。そして、この縮退は系の対称性を下げるような磁場を印加することにより解け、新たな超伝導相に相転移すると考えられる。低温磁場中比熱測定により、次のような成果が得られた。

- 1) 磁場中で複数の超伝導相が誘起される多相超伝導現象を比熱測定によって観測し、クーバー対の内部自由度に起因すると考えられる多相超伝導現象の存在を熱力学的に明らかにした。
- 2)  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  では磁場中で別の超伝導相が誘起される時、上部臨界磁場の抑制現象が同時に起こることを新たに見出した。これまでに他の超伝導体で観測された多相現象とは対称的に、磁場中で誘起される超伝導相は磁場方向に非常に敏感であることも明確になった。このことから、今までに観測された超伝導多相現象とは異なる新しいメカニズムの可能性を指摘した。

#### (第5章) 結論

本研究で得られた成果、すなわちの  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の超伝導ギャップ構造と多相超伝導現象についての成果をまとめた。全バンドにおける超伝導ギャップ構造を決定し、超伝導に寄与している主バンドの特定することに初めて成功すると共に、熱力学的に  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の多相超伝導現象を確定し、新しく上部臨界磁場の抑制という現象を見出すことに成功した。

#### (附属章) ベクトルマグネットを用いた低温比熱の磁場方向依存性測定

新しく開発した装置の詳細について述べた。縦・横磁場の2つのマグネットからなるベクトル型超伝導マグネットと、マグネットの入ったデュワーの回転台を用いることにより、試料に対して磁場を自由な方向に印加可能にして、これに25ミリケルビンまで冷却可能な希釈冷凍機、自作の高精度比熱測定装置を組み合わせることで今までにない超高精度磁場方向制御可能にする低温比熱測定装置新しく開発した。この装置を用いることにより物理量の異方性を利用して結晶軸の特定の方向に超高精度 (0.05° 以内) で磁場を印加して、50ミリケルビンの極低温までの比熱測定がはじめて可能になった。比熱の温度・磁場・磁場方向依存性の測定精度・確度について標準試料を用いた性能評価を行ったことについて記述した。

### 論文審査の結果の要旨

本論文はスピン三重項超伝導が実現していると考えられる層状ルテニウム酸化物について、精確に方位制御した磁場中での比熱測定から、超伝導エネルギーギャップの構造をその伝導バンドごとに決定することに成功した研究成果をまとめたものである。また、それとともにスピン三重項に特徴的な超伝導多相現象を観測し、それが上部臨界磁場の制御現象と深く関わっていることを明らかにした。この研究の遂行にあたって出口氏は、0.1ケルビン以下の温度まで角度分解比熱測定を可能にする、世界にこれまで例のない装置の開発にも成功した。

銅酸化物超伝導体と同じ層状ペロブスカイト構造をとるルテニウム酸化物  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  は転移温度  $T_c$  が1.50ケルビンの超伝導体である。これまでの研究から、二次元性の強いフェルミ面を持つスピン三重項  $p$  波超伝導体であることがほぼ明らかになってきた。従来の超伝導はすべて電子対のスピンが消失したスピン一重項の状態であり、この点では銅酸化物の高温超伝導も例外ではない。したがって、電子対のスピンが1となるスピン三重項超伝導状態の詳細を実験的に明らかにすることの学術的意義は極めて大きい。特に超伝導を特徴付ける秩序変数は超伝導エネルギーギャップとして観測可能であり、ギャップの異方性は電子対形成の引力相互作用の異方性を反映するため、超伝導メカニズムの根幹に関わる重要な物理量である。

その超伝導ギャップの構造に対して、基本的な実験事実を説明する最も単純なスピン三重項  $p$  波超伝導体の理論からは、空間の方向依存のない等方的ギャップが予想される。しかしながら低温におけるさまざまな物理量の測定からはギャップに線状にその大きさが顕著に抑制された部分が存在することが示されていた。そしてこれらの結果を説明するために、軌道依存型超伝導まで含めた様々な超伝導ギャップ構造をもつモデルが提案された。しかし、実験による全バンドにおける超伝導ギャップ構造の決定、超伝導に寄与している主バンドの特定は、超伝導メカニズム解明に向けた未解決問題であった。本研究ではこの問題の決着のために角度分解比熱測定という手法を用いて、超伝導状態における準粒子状態密度の磁場方向性を調べることにより、超伝導に寄与している主バンドを特定すると共に、全バンドにわたっての超伝導ギャップ構造を決定す

ることを成し遂げた。

本研究では、角度分解低温比熱測定装置の開発に成功している。これは縦・横磁場を独立に制御できる超伝導磁石をそのヘリウム容器ごと回転させて、任意の方向に磁場を精密にかけることを可能にした上で、希釈冷凍機に到着した精密比熱測定装置と組み合わせることで、 $0.01^\circ$ の精度で磁場方向を制御し、50ミリケルビンまでの低温と5ステラまでの磁場で比熱測定を行える装置である。このような装置は世界でも例がなく、その詳細を記述して公開したことで、今後、比熱による様々な異方的超伝導体のギャップ構造の特定はもちろんのこと、磁場中・低温での精密測定に広く応用されるものと期待される。

出口氏はこの装置を用いて京都大学で育成された $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ 純良単結晶について、比熱の温度・磁場・磁場方向依存性の詳細を系統的に測定することで、超伝導状態における準粒子状態密度の磁場方向依存性を調べ上げた。その結果、磁場を $\text{RuO}_2$ 面に精確に平行に印加した場合、低温・中間磁場領域での明確な $\text{RuO}_2$ 面内4回対称性が観測された。これから超伝導を主に担うフェルミ面では、面内の $[100]$ 方向で超伝導ギャップが顕著に小さくなっていることが確かに結論できる。また特徴的な磁場強度依存と、超伝導転移温度での比熱の不連続性の絶対値から、この超伝導を主に担うフェルミ面が3つあるバンドのうち、いわゆるガンマ面であることが結論できる。次に、磁場方向を面から傾けた場合、比熱の4回対称性の振幅が急速に減衰することは、ガンマ面での超伝導ギャップの異方性だけからは説明できず、低温・磁場領域で重要となるアルファ面、ベータ面のギャップ異方性が、ガンマ面とは逆位相を持つことではじめて説明可能となる。

出口氏は角度分解比熱測定という新しい手法を存分に活用し、綿密に練られた一連の系統的な測定を考案して実効することで決め手となる情報を引きだし、深い洞察力をもとに解析することで、これらの結論に達している。さらに、これまでに提出されている数大久の理論モデルを分類・分析し、本研究で実験的に明らかになった超伝導ギャップ構造と比較することにより、最も有力な理論モデルを特定している。

この主要な結果に加えて、上部臨界磁場近傍で超伝導転移が二段階で起こることも比熱から確実にした。このような超伝導多相現象はクーパ対の内部自由度に起因すると考えられることから、スピン三重項の超伝導性の有力な裏付け事実の数がさらに増したことになる。また、磁場中で第二の超伝導相が誘起されるとき、上部臨界磁場の抑制という現象が同時に起こることも明確にした。 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ の超伝導多相現象については既存の理論では十分に説明できていないが、出口氏の明らかにしたこれらの特性は、今後のこの分野の研究の指針となる基本的な実験事実である。

これらの結果は $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ のスピン三重項超伝導の解明において非常に重要な位置を占めるばかりでなく、電子間に強い相互作用がある物質でしばしば見られる非従来型の超伝導のメカニズムを理解する上で、重要な貢献をするものと認められる。

以上の審査によって、本論文は博士（理学）の学位論文として高い価値があることを確認した。また、主論文および公表論文に報告されている研究業績を中心として、それに関連した研究についての試問の結果、申請者が十分な学識を有することも確認し、合格と認めた。