

ベクトル型超伝導マグネットを用いた磁場回転装置の開発

～ 異方的超伝導体における超伝導ギャップ構造の可視化に向けて ～

Development of the Field-Orientation Control System with a Vector Magnet

～ Toward the Visualization of the Superconducting Gap Structure in Unconventional Superconductors ～

出口和彦¹, 前野悦輝^{1,2}

¹京都大学大学院理学研究科物理第一専攻, ²京都大学国際融合創造センター

K. Deguchi¹ and Y. Maeno^{1,2}

¹Graduate School of Science, Kyoto University,

²International Innovation Center, Kyoto University

1. 開発の動機

BCS 理論が提唱された 1957 年以降, 超伝導状態におけるクーパー対の波動関数は電子の合成スピンと軌道角運動量が共にゼロの s 波状態が考えられていた. この場合, 波動関数は等方的である. しかし, 1980 年代以降の銅酸化物高温超伝導体 (軌道角運動量が 1 の d 波状態) に代表されるように非等方的な波動関数をもつ超伝導体が強相関電子系とよばれる物質群において次々に発見された. これらの物質群では, BCS 理論で説明されるような従来型の超伝導とは異なる引力起源が存在すると考えられる. さらに, 合成スピンはゼロ (スピン・シングレット) ではなく合成スピンが 1 (スピン・トリプレット) の超伝導体も発見されており, その新しい物性に注目が集まっている. これら異方的超伝導は強相関電子系で実現しているという点で共通しており, 電子間引力の起源, クーパー対を形成するために電子間に働く引力の正体を知ることが研究課題となっている.

超伝導状態ではフェルミ面上にエネルギーギャップ (= 超伝導ギャップ) が存在し, このギャップのために超伝導体は転移温度 T_c 以下で安定に超伝導状態を保つことができる. この超伝導ギャップが波動関数の振幅に相当するので, ギャップの大きさの結晶軸に対する方向依存性を調べることで波動関数の形を知ることができる. 先に述べたような異方的超伝導体の波動関数を超伝導ギャップ構造を通じて調べることができるならば, そこから引力ポテンシャルが決まるので, 超伝導の起源に実験から迫ることができると考えられる.

ではどのようにして, 波動関数を決定することができるのだろうか. クーパー対は磁場によって破壊され, 準粒子になる. 第二種超伝導体では, 磁場は渦糸として超伝導体内に侵入し, 渦糸周りに超伝導電流が流れる. この超伝導電流による準粒子エネルギースペクトルのドップラーシフトにより, 異方的超伝導体では絶対零度でさえ準粒子が励起される. 比熱は準粒子状態密度に比例するので比熱

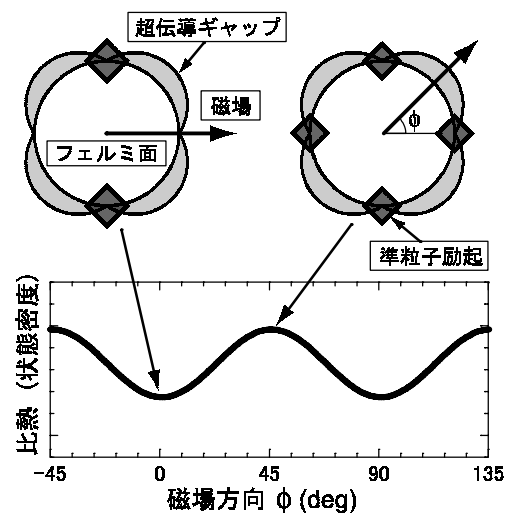


図1 超伝導ギャップ構造と比熱の磁場方向依存性の関係の原理図. 低温で比熱は準粒子状態密度に比例する.

測定により励起された準粒子を観測することができる。注目すべき点は、この準粒子励起は異方的であり、磁場と平行な方向には準粒子励起が起こらない。結果として図1のようにクーパー対の波動関数のノード方向（超伝導ギャップが小さくなる方向）に磁場を印加したとき、準粒子状態密度が最小になる。これを利用して超伝導ギャップが小さくなる方向を調べ、超伝導ギャップ構造を可視化できると考えられる。実験的にも、近年このような方法に基づく様々な異方的超伝導体の研究が系統的に行われ始めた[1]。

このような実験を行うには、温度による準粒子励起をなるべく抑えて、磁場による準粒子励起を支配的にする必要がある。つまり、超伝導転移温度が数ケルビンの超伝導体に対しては希釈冷凍機温度域(50 mK - 8 K)における実験が必要になってくる。以下、市販の希釈冷凍機と容易に組み合わせることができる「ベクトルマグネット」を用いた精密な磁場方向の制御・回転装置の開発について記述する。そして、スピン・トリプレット超伝導体 Sr_2RuO_4 で超伝導ギャップ構造を決定するために行った角度分解比熱測定の実験を紹介する。

2. 装置の開発

この実験を行うための実験装置は以下の条件を満たさなければならない。(1) 超伝導転移温度よりも十分低温に到達できること。(2) 結晶軸に対して高い精度で磁場方向を制御できること。(3) 高い分解能で比熱を測定できること。(1)は希釈冷凍機を使用することによって達成し、(3)の比熱の測定法については、小さい単結晶試料に対し比較的高い精度と確度で比熱を求められる熱緩和法を採用した。この方法は一定温度で比熱の磁場依存性や磁場方向依存性を調べるのに有効であった。熱緩和法を用いた低温比熱測定装置については西崎らによって詳しく解説されているのでそちらに譲る[2]。ここでは(2)について解説する。

磁場方向を制御するには大きく分けて二つの方法がある。一つは磁場を固定しておき、試料ステージをギアなどを使用して回転させる方法である。この方法の利点は、強磁場を印加できることである。欠点としては、試料空間が狭くなること、装置が複雑になること、角度制御においてバックラッシュ

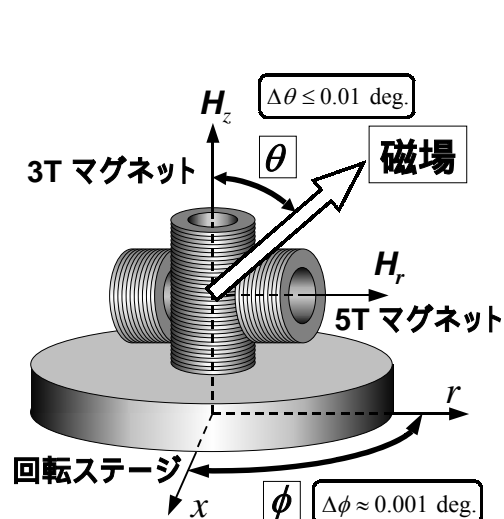


図2 ベクトルマグネットと回転ステージを用いた磁場方向制御の模式図。

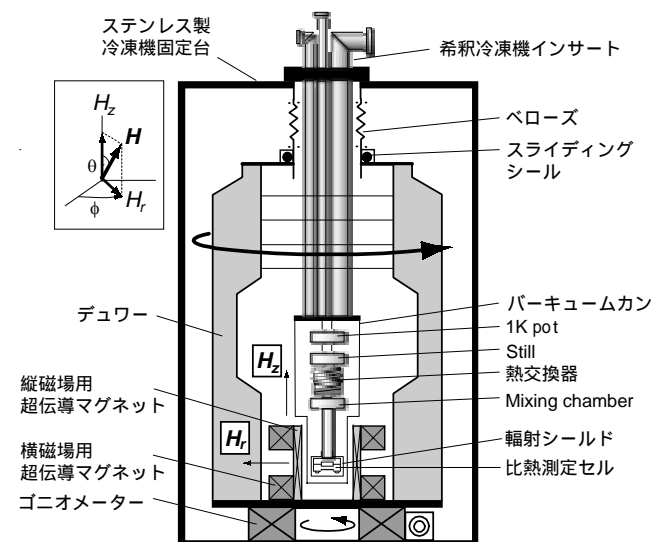


図3 ベクトルマグネット・回転ステージ・希釈冷凍機を組み合わせた低温比熱測定装置の全体像。

が問題になること、回転の摩擦による大きな発熱が挙げられる。もう一つの方法として、試料ステージを固定しておいて磁場の方向を変化させる方法がある。この方法の利点は、大きな試料空間が確保できること、角度制御においてバックラッシュがほとんどないこと、回転の摩擦による機械的な発熱が低温部で起こらないことである。さらに、希釈冷凍機以外の様々な冷凍機・インサートを用途に応じて交換して使用できるという利点がある。欠点としては、高磁場の印加が難しいことである。今回の実験では、熱測定用に真空の断熱空間が必要であり、高い精度で磁場方向を制御するためバックラッシュのない方法が適当であると考え、後者の方法を採用した。

今回採用した磁場方向制御方法の模式図を図2に示す。磁場の極角 θ は縦3 Tのソレノイド超伝導マグネットと横5 Tのスプリットペア超伝導マグネットを組み合わせた「ベクトルマグネット」(製造業者: Cryomagnetics, Inc., Oak Ridge, Tennessee USA, 型番: VSC-3050)により制御する。縦磁場と横磁場をベクトル的に重ね合わせることで、最大3Tまでの磁場ならば 0.01° の精度で極角 $\theta = \arctan(H_z/H_r)$ を自由に制御できる。また、磁場の均一度は直径1cmの球内で0.1%である。縦磁場と横磁場で最大磁場が異なるのはマグネットの構造に起因している。図3にあるように本装置の場合はスプリットペア超伝導マグネットの内側に小型のソレノイド超伝導マグネットを組み込んであるため、 H_z 方向の磁場の最大値が抑えられるのは避けられない。また、二つのマグネットを組み合わせているため、全体の磁場の最大値という点では単体のマグネットに劣る。その問題については、使用目的により高磁場が印加できるソレノイド超伝導マグネットで試料ローテータを用いる方法と使い分けることにより克服している。角度 θ を固定して磁場を一定の掃引速度 dH/dt 掃引するとき、縦磁場を $dH_z/dt = (dH/dt)\cos\theta$ 、横磁場を $dH_r/dt = (dH/dt)\sin\theta$ で掃引することにより可能になるが、我々の実験では精確に磁場方向を保つために、測定時は磁場を一定に保つか永久電流モードを使用している。希釈冷凍機と試料ステージは固定されており、固定された冷凍機に対し、ベクトルマグネットをデューゴと回転させることにより方位角 ϕ を制御する。デューゴを回転させるための回転ステージは中性子回折実験用のゴニオメーター(製造業者: HUBER Diffractionstechnik GmbH, Rimsting Germany, 型番: One-circle Goniometer 420)を使用しており、 0.001° の精度で方位角 ϕ を自由に制御できる。ゴニオメーターの回転速度は $0.005 \sim 30 \text{ deg/sec}$ で調整することができるが、実験を行うときは低速回転で使用している。希釈冷凍機の固定台は国内業者(仁木工芸)に特別注文して製作した。この装置の全体像は図3のようになっており、このような磁場方向を制御する装置で、試料でなく磁場方向を二軸回転可能にする装置はこれまでに我々の知る限り報告がなかった[3]。この新装置によって市販の希釈冷凍機を改造することなく簡単に組み合わせることができるようになり、また希釈冷凍機以外の様々な冷凍機・インサートも使用できるようになった。

実際の実験では、初めに試料のラウエ写真を撮って結晶軸を決めておき、注意深く試料をセッティングすることにより結晶軸方向を荒く決めておく。その後、物理量の磁場方向に関する異方性等を利用して試料の結晶軸の方向を決定する。今回は準2次元超伝導体の上部臨界磁場の強い異方性を用いて、最終的に 0.01° という精度で結晶軸に磁場を印加できるようにできた。注意点として、この方法では試料そのものの物理量の異方性に大きく依存するため、物理量の異方性が小さい場合には試料の近くに配置したホール素子によって磁場方位の基準点を決めることになる。こうして決められた試料系の結晶軸に対する極角 θ' と方位角 ϕ' はオイラー角を用いて実験室系の極角 θ と方位角 ϕ に結び付けられる。各制御装置をGPIBインターフェイスを用いることによりコンピューターですべて制御可能にし、LabVIEWを使用してこれらを制御するソフトウェアを開発して、温度と磁場の大きさを加えた (T, H, θ, ϕ) をパラメーターとしてコンピューターで全自動化した比熱測定を行っている。また、BCS理

論が良く当てはまる典型的な弱結合 s 波超伝導体のアルミニウムに対して(T, H, θ, ϕ)をパラメータとした比熱測定を行うことにより, 装置の測定精度・確度の性能評価も行った[3].

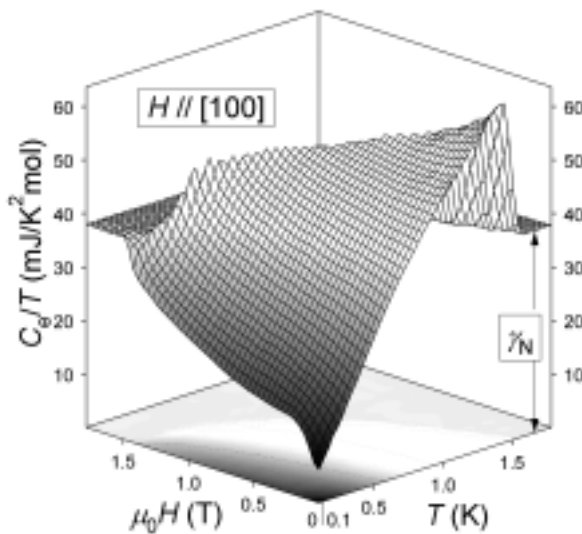


図4 Sr₂RuO₄ の超伝導状態における比熱の磁場-温度依存性.

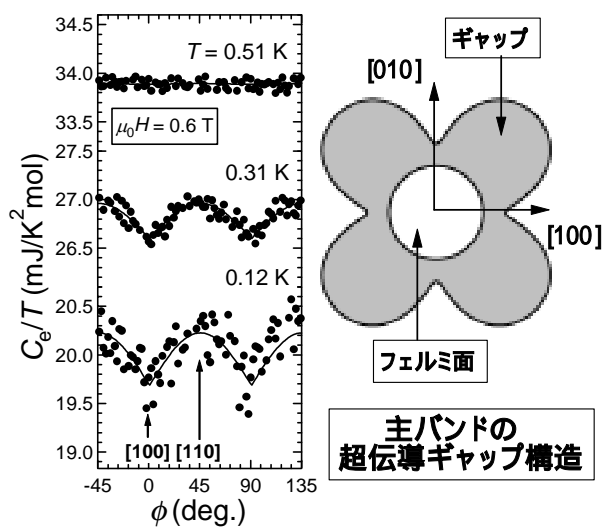


図5 Sr₂RuO₄ の超伝導状態における比熱の磁場方向依存性と決定されたギャップ構造.

3. 実験結果

銅酸化物高温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 Sr₂RuO₄ の超伝導転移温度 T_c は 1.5 K である[4]. 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・トリプレット p 波超伝導体であることがほぼ明らかになった[5]. 従来の超伝導はすべて電子対のスピンの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, 電子対のスピンの消失したスピン・トリプレット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. 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著しく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様々なモデルが提案されたが, 議論は決着せずだった. そこで, 我々のグループは, Sr₂RuO₄ のクーパ対の波動関数を上記の方法で決定するために, 希釈冷凍機温度域(50 mK - 8 K)において, 磁場方向が回転可能なベクトルマグネットを用いた比熱測定装置を用いた実験を行った.

Sr₂RuO₄ の超伝導ギャップ構造を決定するために, はじめに磁場による準粒子励起の構造を調べることから始めた. 図4に RuO₂ 面内の[100]方向に磁場を印加したときの比熱の温度・磁場依存性を示す. ゼロ磁場での C_e/T の温度依存性は T に比例し, フェルミ面上でギャップが線状に小さくなるような異方的超伝導が起こっていることを示唆している. 低温での C_e/T の磁場依存性は階段状の構造をもっている. Sr₂RuO₄ には3つのフェルミ面(α, β, γ)が存在し, フェルミ面によって開いている超伝導ギャップの大きさが異なるという軌道依存型超伝導が実現しており, 各バンドの状態密度を考慮した結果, 高磁場では γ 面のみが, 低磁場では α, β 面も含めた全フェルミ面が準粒子励起に寄与していると考えらうまくこの低温での C_e/T の磁場依存性を説明できる. 上部臨界磁場 H_{c2} まで主に超伝導が生

き残るのが γ 面であることから, Sr_2RuO_4 の超伝導を担っている主バンドは γ であると考えられる。さらに,各温度・磁場で比熱の面内磁場方向 ϕ 依存性を測定し,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た結果,図5に示したように主バンド(γ)における準粒子励起が主に比熱の ϕ 依存性に寄与している低温・高磁場の領域で比熱の4回対称性が観測された。この4回対称性は H_c2 の異方性,フェルミ速度の異方性ではなく超伝導ギャップ構造の異方性から来ていることが様々な考察から明らかになった。その結果, Sr_2RuO_4 の主バンド(γ)では図5のように[100]方向で顕著にギャップが小さくなっていることが分かった[6]。

実験結果から導かれた超伝導ギャップ構造・クーパー対の波動関数の対称性は,野村らによる摂動理論から導かれたスピン・トリプレットp波の超伝導ギャップ構造とよく合う[7]。このことは, Sr_2RuO_4 のスピン・トリプレット超伝導メカニズムはスピン揺らぎだけでは説明できず,スピン揺らぎも含む包括的なクーロン斥力効果が重要な役割を果たしていることを強く示唆している。 Sr_2RuO_4 の超伝導状態に関するこれらの研究は,強相関電子系で実現している異方的超伝導の起源,クーロン斥力の担う役割に対する統一描像構築に重要な寄与をすると考えられる。

4. まとめ

今回,低温で磁場を精密に制御して超伝導体の波動関数を可視化する装置の開発とスピン・トリプレット超伝導体 Sr_2RuO_4 のクーパー対の波動関数を決定する実験について報告させていただいた。装置自体は低温で磁場の方向を精密に制御できることが本質的な特徴なので,実験対象はなにも超伝導体の研究のみには限られない。また,測定する物理量も比熱に限らない。今後は,様々な超伝導体の研究のみにとどまらず,研究対象を物性物理全般に拡大し,超伝導以外の物理現象にも応用範囲を広げようと考えている。

謝辞

本研究は多くの人の協力によって成すことができました。石黒武彦教授,毛志強助教授,菊川直樹博士,矢口宏助手,石田憲二助教授によるご助力,ご助言のおかげで遂行することができたものです。ここに深く感謝いたします。また,野村拓司博士,池田浩章助手,山田耕作教授,町田一成教授,大見哲巨教授,Manfred Sigrist 教授には大変有意義な議論をしていただき,理解をすすめることができました。出口は,日本学術振興会特別研究員として研究奨励費による支援を受けました。本研究は,21世紀COE「物理学の多様性と普遍性の探求拠点」,文部科学省科学研究費,戦略的基礎研究推進事業による支援を受けて遂行されたものです。また,いつも寒剤の供給でお世話になっているLTMセンターに感謝します。

参考文献

- [1] 井澤公一,松田祐司, 固体物理 **37**, 235 (2002).
- [2] S. NishiZaki, Y. Maeno, and Z.Q. Mao, J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 572 (2000); 西崎修司, 京都大学極低温研究室月報 **75**, 27 (1999).
- [3] K. Deguchi, T. Ishiguro, and Y. Maeno, Rev. Sci. Instrum. **75**, 1188 (2004).
- [4] Y. Maeno, H. Hashimoto, K. Yoshida, S. Nishizaki, T. Fujita, J.G. Bednorz, and F. Lichtenberg, Nature (London) **372**, 532 (1994).
- [5] A.P. Mackenzie and Y. Maeno, Rev. Mod. Phys. **75**, 657 (2003); Y. Maeno, T.M. Rice and M. Sigrist,

- Physics Today **54**, 42 (2001); 前野悦輝, 出口和彦, 日本物理学会誌 **56**, 817 (2001).
- [6] K. Deguchi, Z.Q. Mao, H. Yaguchi, and Y. Maeno, Phys. Rev. Lett. **92**, 047002 (2004); K. Deguchi, Z.Q. Mao, and Y. Maeno, J. Phys. Soc. Jpn. **73**, 1313 (2004).
- [7] T. Nomura and K. Yamada, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 1993 (2002).