

－ 準二次元ルテニウム酸化物のスピント重項超伝導 －

前野悦輝(京都大学・国際融合創造センター, 大学院・理学研究科 教授)

1. Sr_2RuO_4 の超伝導

超伝導は低温で伝導電子が 1~100 ナノメートル程度の広がりをもったクーパー対と呼ばれる対をつくり、一種のボーズ・アインシュタイン凝縮を起こす量子凝縮現象である。電子は古典的描像では自転に相当する固有角運動量（スピン）をもっているが、これまで知られてきた超伝導体はスピンの互いに逆向き電子対からなる、合成スピンのゼロの「スピン一重項」が担っている。この点では銅酸化物の高温超伝導体も例外ではない。これに対して、スピンの同じ方向で合成スピン 1 の「スピン三重項」のクーパー対も原理的には可能である。それではスピン三重項の超伝導は実現するのであろうか？ またそれはどのような性質を示すのであろうか？

本研究グループが超伝導を発見したルテニウムの酸化物 Sr_2RuO_4 は、図 1 のとおり銅酸化物の高温超伝導体と同一の層状結晶構造で、1.5 ケルビン以下で超伝導になる。CREST の研究プロジェクトを通じて極めて純良な単結晶の育成に成功し、その超伝導が画期的なスピント重項であることを遂に実験的に証明することができた。そしてさらに、その超伝導状態の詳細に渡っての解明や、スピント重項特有の新しい超伝導現象の開拓を目指して研究を進めてきた。

スピント重項状態を証明する種々の実験に加えて、 Sr_2RuO_4 の超伝導状態の詳細に関わる大きなパズル解きが研究の中心テーマのひとつとなった。図 2 で表現しているように、電子対の平行スピンは RuO_2 のつくる準二次元面内にあり、お互いの軌道角運動量 1 を単位として公転運動していると考えられる。この状態なら超伝導のエネルギーギャップ（以下ギャップと呼ぶ）はどの方向にも開いているはずである。ところがこの予想に反して我々の比熱のデータは、電子構造を表すフェルミ面（図 3）上のどこ

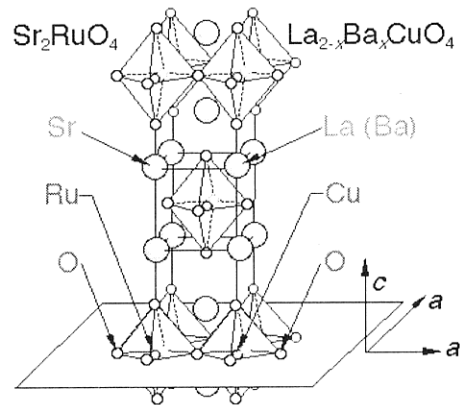


図 1. 準 2 次元電子構造をもつルテニウム酸化物と銅酸化物の超伝導体に共通の結晶構造

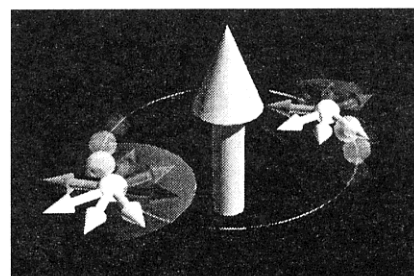


図 2. スピント重項超伝導の電子対のスピン（小さな矢印）と軌道角運動量（大きな矢印）の模式図。

かでギャップが線状にゼロになっていることを示唆していた。このためノードの位置に関する情報が得られるような様々な実験を行った。そして磁場中熱伝導率の結果や超音波吸収の結果から、ノードが縦方向ではなく円環状にある可能性が濃厚になった。最近、円環状ノード形成の物理機構を説明する理論も発表され、このパズルは完全に解ける見通しを得ている。

スピン三重項超伝導特有の現象として、複数の超伝導相の存在があげられる。準二次元面に精確に平行に磁場を印加すると超伝導相の中にもうひとつの超伝導転移が現れる。これは三重項クーパ対の軌道角運動量の量子状態が異なる状態の出現によると解釈できる。さらにクーパ対の軌道強磁性による時間反転対象性の破れに基づく現象、例えばゼロ磁場下でのホール効果の存在などについても研究を進めた。

これらの研究成果によって、「スピン三重項超伝導」は単なる可能性としてだけではなく、現実物質の画期的な超伝導状態として今や確実に認知されるようになったと自負している。

2. 幾何学的にフラストレートしたスピン状態をもつ物質

低次元酸化物導体の物質開発を進めるなかで、幾何学的にフラストレートしたスピン系をもつ新物質系の開発に成功した。遷移金属イリジウムを含む一連のパイロクロア酸化物で、この結晶構造に特有の幾何学的フラストレーションに基づく大きな低温比熱と、金属伝導を兼ね備えた物質も得られた。

また低温で大きな残留エントロピーをもつスピンアイスと呼ばれる性質をもつパイロクロア酸化物について、単結晶の特性結晶軸方向に磁場をかけての比熱と磁化の測定に初めて成功した。最近、パイロクロア酸化物では初めての超伝導物質も発見されたが、その単結晶育成も行っている。幾何学的フラストレーションを利用すれば、低温まで大きなエントロピーが保たれる。今後の研究ではそれを元素置換やキャリアドーピングで制御することにより、従来得られなかった熱的・電磁的性質を引き出せる期待が持てる。

PHYSICS TODAY

FEBRUARY 2021

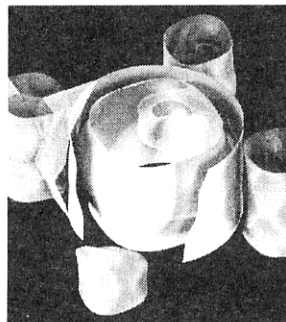


図3. 超伝導体 Sr_2RuO_4 の電子構造 (フェルミ面) .

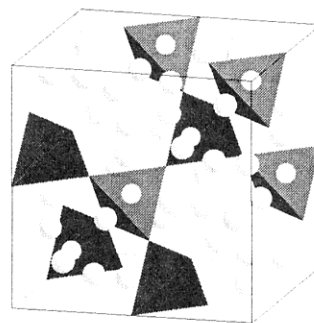


図4. パイロクロア構造の酸化物 $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$. 正四面体の頂点には遷移金属元素 B が配置している.