

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：12611

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03832

研究課題名(和文) 偏極中性子小角散乱によるSr₂RuO₄のスピンド磁率の精密測定と超伝導対称性決定研究課題名(英文) Determination of superconducting symmetry of Sr₂RuO₄ by polarized small-angle neutron scattering

研究代表者

古川 はづき (Furukawa, Hazuki)

お茶の水女子大学・基幹研究院・教授

研究者番号：70281649

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：Sr₂RuO₄の超伝導対称性を確定するために、偏極中性子小角散乱法を用いてスピンド磁率の温度依存性の測定、および、非偏極中性子小角散乱法による磁束格子散乱の磁気形状因子へのスピンド磁率の寄与の有無について検証実験を試みた。結果的に、用いた装置の測定精度内で磁気散乱が観測にからず、また、 Γ 点に関しては、目的とする成分の寄与の存在が確認されなかった。この結果については、Sr₂RuO₄の超伝導対称性がスピントリプレットであることと矛盾しない結果となっているが、確定的な結論を導くものではないため、今後、 Γ 点について、より精度の高い実験を実行するための方策を検討することになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ペロブスカイト型酸化物超伝導体Sr₂RuO₄の超伝導対称性については、スピントリプレットを示唆する実験結果も多数報告されていたが、170-NMRナイトシフトがT_c以下低温まで不変であるとしたNMRの実験結果を確固たる証拠として、長年に渡り「p波超伝導」が強く主張されてきた。しかし、近年になり、他のグループが170-NMRナイトシフトがT_c以下で減少することを報告、さらに、これが他のグループによっても追認されたことからこの議論が再燃していた。この混沌たる状況について、決定的な結論を与える研究を実行することについては大変意義がある。

研究成果の概要(英文)：In order to determine the superconducting symmetry of Sr₂RuO₄, we attempted to (1) measure the temperature dependence of the spin susceptibility using polarized small-angle neutron scattering and (2) verify the contribution of the spin-polarized core to the magnetic form factor in flux lattice scattering using unpolarized small-angle neutron scattering. As a result, for (1), the magnetic scattering was not observed within the instrumental accuracy of the measurement, and for (2), the presence of the targeted component contribution was not confirmed. The result of (2) is consistent with the assumption that the superconducting symmetry of Sr₂RuO₄ is spin triplet. However, it does not lead to a definite conclusion, and we therefore need to investigate ways to perform a more accurate experiment on (1) in the future.

研究分野：中性子散乱

キーワード：ペロブスカイト酸化物超伝導 超伝導対称性 中性子小角散乱 偏極解析 スピントリプレット スピンド磁率

1. 研究開始当初の背景

ペロブスカイト型酸化物超伝導体 Sr_2RuO_4 の超伝導対称性については、スピンシングレットを示唆する実験結果も多数報告されていたが、 ^{17}O -NMR ナイトシフトが T_c 以下低温まで不変であるとした NMR の実験結果を確固たる証拠として、長年に渡り「 p 波超伝導」が強く主張されてきた。しかし、近年になり、他のグループが ^{17}O -NMR ナイトシフトが T_c 以下で減少することを報告、さらに、これが他のグループによっても追認されたことからこの議論が再炎していた。

2. 研究の目的

本研究の目的は Sr_2RuO_4 の超伝導対称性を確定することである。そのためには、3 磁場方向 ($//[100]$, $[110]$, $[001]$) に対するスピン帯磁率の温度依存性の精密な測定を行うことが最適であると考えられた。そこで、本研究では、当初、前方散乱を観測する中性子小角散乱法に、磁気散乱の存在を選択的に抽出することを可能とさせる偏極解析法を適用した偏極中性子小角散乱の技法を用いて 3 磁場方向のスピン帯磁率の精密測定を行うことを計画した。しかし、実際には、研究の進捗状況から即時柔軟に判断して、研究計画の実験だけでなく、同じ Sr_2RuO_4 の超伝導対称性を決定するもう一つの方法として、非偏極中性子小角中性子散乱により、磁束格子散乱の磁気形状因子へのスピン偏極コアからの寄与の有無について検証する実験も行った。

3. 研究の方法

実験は、【試料作成と物性評価】【中性子実験】【解析・成果報告】の順で行った。

(1) 試料作成と物性評価では、初めに電気炉(マッフル炉)を用いて粉末試料を合成し、その後、赤外線集中加熱炉を用いたフローティングゾーン(FZ)法で大型単結晶試料を作成した。FZ法による Sr_2RuO_4 の単結晶作成は最終的に 30 回程度実施された。また、作成したそれぞれの単結晶試料について、ラウエ法により結晶軸の方向の決定を行い、磁化測定・中性子散乱実験用に方位出しした結晶を切り出した。その後、研究室で保有するカンタムデザイン社製 MPMS 装置を用いて磁化測定を行い、各試料の超伝導転移温度の評価を行なった。そして、中性子散乱実験に使用可能と判断された単結晶試料のみを用いて、中性子小角散乱実験用のモザイクを作成した。図1は、上記過程を経て準備された中性子散乱実験用試料の写真である(実際の冷凍機への取り付けを考慮して上下逆さまの写真になっている)。写真の上側に(hhl)の、また、下側に(h0l)の水平散乱面を持つ結晶が複数個ずつ軸を合わせて並べてある。1つ1つの試料は鉛直方向の高さがそれぞれ 20mm 以下になるよう調整してダイヤモンドカッターでカットされている。また、(001)面と(110)面あるいは(100)をカットすることで複数の結晶を 0.5° 以内の角度のずれで同時に軸立てできるようにした。また、それぞれの試料の合計の質量は 20g 程度であった。また、お互いのサンプルからの散乱が干渉しないように2つの試料の間にはカドミウムを巻いた。(バックグラウンドの低下を目的に、サンプルの上側、下側にもカドミウムを置いた。)

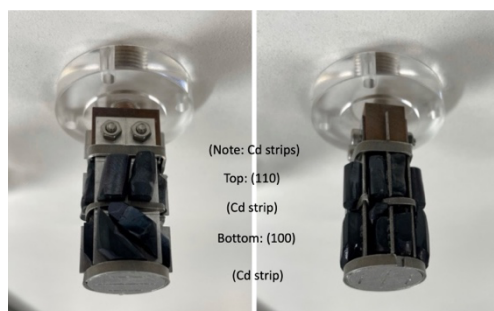


図1 中性子回折実験用試料

(2) 中性子実験は、フランスラウエランジュバン研究所(ILL)の原子炉 HFR のガイドホールに設置されている中性子小角散乱装置 D33 を利用した。具体的な測定法として以下の2つを行った。

i) Sr_2RuO_4 の磁化の揺らぎから生じる小さな q 領域のスピン帯磁率を、偏光入射ビームを用いて測定する(ただし、偏光解析は行わない)。

ii) Sr_2RuO_4 の磁束線コアに発生するスピン偏極成分からの磁束格子シグナルを測定する。前者の測定では、偏極中性子ビームに対し水平面内で 85° の方向に $[100]$ あるいは $[110]$ を向け、その方向に水平磁場を印加し伝導電子のスピン偏極を誘導、印加磁場にほぼ平行と垂直な

散乱ベクトル方向への散乱を2次元検出器によって観測し、磁気散乱成分の抽出を試みた。また、その方法で観測される磁気散乱を超伝導混合状態と常伝導状態で観測することで、スピン対称性の決定を行うことを試みた。また、後者の実験では、通常行われる磁束格子測定で磁束格子による散乱強度の磁場依存性を高精度で測定し、磁束線コアに発生するスピン偏極成分の存在の有無の検証を試みた。

4. 研究成果

(1) 3-i)に記した方法では、 Sr_2RuO_4 (常伝導状態および超伝導状態)の磁気的な揺らぎから生じるスピン帯磁率を、偏光入射ビームとフリップパーを使い、干渉項として観測すること挑戦した。初めに、この方法で磁気散乱が観測されることを確認する測定を行った。これは、中性子磁気散乱が、方向因子の存在により、磁場と散乱ベクトルの相対的な方向で変化することに起因する方法を用いている。つまり、この実験では、水平面内で、中性子ビームにはほぼ垂直方向に磁場を印加したため、2次元検出器上で鉛直方向には磁気散乱が観測されるが、水平方向にはほぼ観測されないという想定を用いた。また、鉛直方向に磁気散乱が観測された場合には、印加磁場と中性子のスピン偏極の相対的な方向をフリップパーで変えることにより強度変化が発生することが予測されていた。実験では、様々なQ領域について磁気散乱の観測状況を調べたが、結果的には、測定の精度範囲内で磁気散乱が観測されず、スピン帯磁率の温度依存性の測定ができなかった。

(2) 3-ii)に記した方法では、磁場を中性子ビームとほぼ平行な方向にかけて、磁束格子からの散乱強度の磁場依存性にパウリ常磁性効果による寄与が観測されるかどうかを検証した。その効果があれば、偶パリティ（スピンシングレット）の証拠となるとの考えがあったが、効果は観測されなかった。この結果は、スピントリプレットであることを否定しないものであるが、散乱実験では、シグナルとバックグラウンドの比の問題から効果があることを完全には否定できないため絶対的な結論とはできなかった。

なお本研究に関しては、コロナ流行の影響を大きく受け進捗が数年単位で遅れていることを追記しておく。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
英国	バーミンガム大学			
スウェーデン	ルンド大学			
フランス	ラウエランジュバン研究所			
英国	Birmingham University			
スウェーデン	Lund University			
フランス	Institut Laue Langevin			