

# 共晶系 Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>-Ru の 3-Kelvin 相における 界面超伝導の磁場誘起カイラル転移

兼安 洋乃

兵庫県立大学 大学院物質理学研究科

## 1. はじめに

Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>-Ru(SRO-Ru) は、超伝導体である Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>(SRO) (図 1 右図) に、 $\mu m$  サイズの Ru 結晶 ( $T_c=0.5K$ ) が析出した共晶系超伝導体 (図 1) である [1,2]。SRO-Ru は電気抵抗において  $T_{onset}=3K$  付近より不均一な超伝導転移を示すことなどから、Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> のバルク超伝導 ( $T_c=1.5K$ ) とは異なった Ru 結晶界面付近に局在した界面超伝導が生じている可能性が実験から報告されている [1,3,4]。この 3-Kelvin (3K) 相と呼ばれる界面超伝導について、Ru 金属結晶界面近くに non-chiral 界面状態が生じ、温度を下げると chiral 界面状態になる機構が、ゼロ磁場で SRO のバルク状態を chiral 状態と仮定した場合の理論研究から説明されている [5]。

本研究では、この界面超伝導相において、RuO<sub>2</sub> 面に対する垂直磁場により引き起こされる non-chiral 界面状態からの chiral 状態の安定化と、それに伴う常磁性超伝導電流の生成のメカニズムを説明する。又、これら垂直磁場中での振る舞いは、面内磁場では起こらないことを示す。この磁場方向による chiral 転移の違いは、実験での 3K 相でのトンネル微分コンダクタンスにおけるゼロバイアス異常の磁場-温度依存性と定性的に整合することから、3K 相が低温で漸近する SRO バルク超伝導状態が chiral 状態である可能性を述べる。

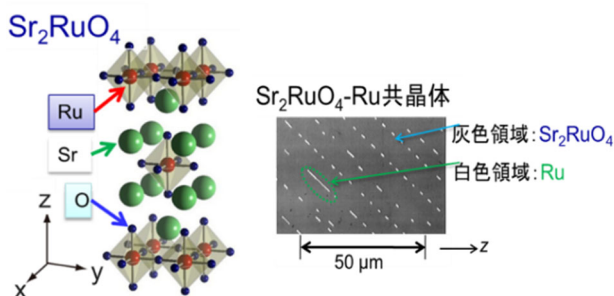


図 1: (右図) Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> の結晶構造 [2] と、(左図) Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>-Ru 共晶体の光学顕微鏡写真 [1]

## 2. Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>-Ru の 3-Kelvin 相

### 2.1 Ru 結晶近くに局在した界面超伝導

SRO のバルク超伝導では、Kerr 効果や  $\mu SR$  による内部磁場の測定により [6,7]、 $T_c$  以下で自発磁化が生じることが報告されている。このことから、SRO の超伝導状態について、時間反転対称性が破れた chiral 状態を仮定する。この chiral バルク状態に界面超伝導が低温で漸近的につながると考えて、さらに Ru 金属界面付近で高くなる超伝導転移の距離依存性を設定する。この 3K 相モデルにおいては、 $T_{onset}=3K$  近くで non-chiral 界面状態が生じ、そこからさらに温度が低くなると chiral 界面状態に変化する [5]。

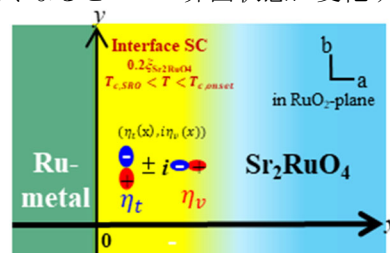


図 2: Ru 金属結晶付近に局在した界面超伝導の秩序変数

この温度低下による chiral 転移を考えるのに、chiral  $p$  波 ( $p_x + ip_y$ ):  $\mathbf{d} = \hat{z}(\eta_x k_x + i\eta_y k_y)$  及び chiral  $d$  波 ( $d_{xz} + id_{yz}$ ):  $\varphi = \eta_z k_z \eta_x k_x + i\eta_z k_z \eta_y k_y = \eta_z k_z (\eta_x k_x + i\eta_y k_y)$  の状態を対象とする。xy 面内の  $\eta_x k_x + i\eta_y k_y$  は chiral 状態に特徴的で、z 軸方向の chiral 軸をもつ chiral 状態を表している。3次元 chiral  $d$  波の  $k_z$  依存性は、chiral 安定性に対して定量的に寄与するが、定性的には二次元 chiral  $p$  波と同じ議論となる。ここでは、二次元 chiral  $p$  波状態について以下に述べていく。

図 2 のように、RuO<sub>2</sub> 面内に二次元的な chiral  $p$  波状態 [8,9,10] を仮定した場合の、y 方向に無限で平らな Ru 金属界面をもつ系について考える [5]。界面超伝導の領域は、Ru 金属界面近傍でのみ存在している。  $\eta_v$  および  $\eta_t$  は、それぞれ界面に対して垂直およ

び接線方向の成分に対応しており、この秩序変数 ( $\eta_t, i\eta_v$ ) を図 2 に示している。

3K 相の onset である 3K 付近から Ru 金属界面に平行な接線成分  $\eta_t$  のみの一成分状態として non-chiral 界面状態が出始め、そこから温度が下がると垂直成分  $\eta_v$  が生じて時間反転対称性が破れ、 $\eta_t \pm i\eta_v$  の二成分が結合した chiral 界面状態となる。この  $\eta_v$  の温度変化による生成は、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4/\text{Ru}$  での準粒子トンネルスペクトロスコピーにおいて測定された、微分コンダクタンスのゼロバイアスピーク（ゼロバイアス異常）が現れるゼロ磁場での温度  $T^*=2.3\text{K}$ [4]に対応していると考えられる（図 3）[11]。なぜならば、対ポテンシャルによる電子の散乱条件としてゼロバイアスピークは、秩序変数の Ru 金属面に対する垂直成分に符号反転がある場合に現れるからである。

## 2.2 ゼロバイアス異常の磁場依存性

前節のゼロ磁場での温度低下による chiral 転移に対して、次は磁場中での chiral 安定性を述べる。図 3 は、実験でのゼロバイアス異常  $H^*$  と臨界磁場  $H_{c2}$  の磁場・温度依存性を示している[11]。温度の低下により chiral 転移する温度  $T^*$  は、磁場中でゼロバイアス異常が現れる磁場  $H^*$  に連続的につながっており、 $H^*$  は磁場中での chiral 転移に対応すると考える。この  $H^*$  は磁場方向により、異なる磁場依存性を示す。図 3 で、 $\text{RuO}_2$  面に対して垂直な向き  $H//c$  と平行な向き  $H//ab$  に加えた場合に、 $H//ab$  では  $H^*$  が  $H_{c2}$  と離れているのに対して、 $H//c$  では磁場が強くなるにつれ  $H^*$  が  $H_{c2}$  近づき、低温側でほぼ一致している。

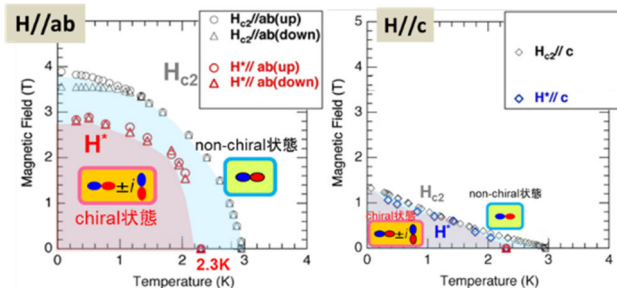


図 3：臨界磁場  $H_{c2}$  とゼロバイアス異常  $H^*$  [11]。ゼロ磁場では、 $H_{c2}$  は 3K 相の onset にあり、chiral 転移は  $T^*=2.3\text{K}$  で起こると考えられる。 $H//c$  においては、 $H^*$  は、 $H_{c2}$  に近づくが、 $H//ab$  では近づかず分離したままである。non-chiral 状態は  $\eta_t$  だけの一成分状態に相当しており、chiral 状態は  $i\eta_v$  と  $\eta_t$  が結合した縮退した二成分状態である。

この  $H^*$  の磁場  $H//c$  依存性は、ゼロ磁場の  $T_{\text{onset}}=3\text{K}$  で超伝導 onset として生じた  $\eta_t$  の一成分状態で表される non-chiral 状態が、 $H//c$  を印加することで  $\eta_v$  が誘起されて、縮退した二成分状態  $\eta_t \pm i\eta_v$  の chiral 状態に変わることに対応していると考えられる。一方、 $\text{RuO}_2$  面に平行な  $H//ab$  では、このような chiral 転移はおきず、磁場の印加において  $H^*$  は  $H_{c2}$  に近づかないで常に分離している。

本研究では、この仮説の、界面超伝導相における磁場誘起 chiral 転移を、3K 相モデルに対する Ginzburg-Landau (GL) 理論により調べ、その機構を磁場による自由エネルギーのエネルギー利得に基づいて説明する。秩序変数の磁場依存性から、磁場による秩序変数の磁場変化により non-chiral 界面状態からの磁場誘起 chiral 転移を示し、これに伴い生じる常磁性的な超伝導電流を示す。これらが、界面超伝導状態と磁場効果が合わさることでもたらされる、chiral 状態の特徴の一つであることを説明する。

## 3. 3-Kelvin 相モデルと Ginzburg-Landau 理論

図 2 の 3K 相モデルに対して、 $H//z$  と  $H//y$ （其々  $H//c$  と  $H//ab$  に対応）での自由エネルギー磁場寄与項の効果を調べて、 $H//z$  により 2 成分秩序変数の chiral 状態安定化のためエネルギーが低下することを、 $p$  波状態に対する Ginzburg - Landau 方程式[12]の計算から示す。3K 相モデルの一つ目の特徴は、Ru 金属界面付近で高い  $T_c$  を持つことである。これは式  $T_c(x)=T_{c,\text{SRO}}+T_{\text{top}}/(\cosh(x/w))$  による  $T_c$  の距離依存性により表される[5]。  $w$  は Ru と金属の界面付近で臨界温度が局所的に高い領域の幅を示す。もう一つの 3K 相の特徴として、Ru 金属と SRO 超伝導接合面での秩序変数の境界条件があげられる[13]。Ru 金属界面の効果によって  $\eta_v$  が抑制されるため、ゼロ磁場では境界において秩序変数の接線成分  $\eta_t$  の傾きはなく、垂直成分  $\eta_v$  のみ正の傾きを持つ。このような境界条件は、SRO 超伝導の垂直成分  $\eta_v$  が Ru 金属に侵入する長さ  $l$  に依存した境界面エネルギー  $F_{\text{int}} = (1/l)|\eta_v(R_{\text{Ru}})|^2$  により与えられ[14]、ゼロ磁場での境界における垂直成分の傾きは  $(1/l)\eta_v(R_{\text{Ru}})$ 、接線成

分の傾きはゼロに近い（「近い」と書いたのは、これらに更にゼロ磁場での自発磁化による小さな寄与の項が加わっているためである。） [13]。この境界面エネルギーと GL 自由エネルギーとの変分がゼロとなる条件から、境界条件の式が得られる。

この境界条件と共に  $p$  波超伝導に対する GL 方程式を Newton-Euler 法を用いて数値的に解き、自己無撞着に秩序変数  $\eta_v(x), \eta_t(x)$  とベクトルポテンシャル  $\mathbf{A}(x)$  を得た。数値計算は、大阪大学サイバーメディアセンターのスーパーコンピュータ SX-ACE を使用して約 7000 ノード時間の計算を行った。

#### 4. 垂直磁場 $H//z$ による磁場誘起 chiral 転移

計算の結果として、図 4,5 に、温度を固定して垂直・面内磁場をゼロから強くした時の、秩序変数の  $x$  依存性における最大値の磁場・温度依存性を示す。

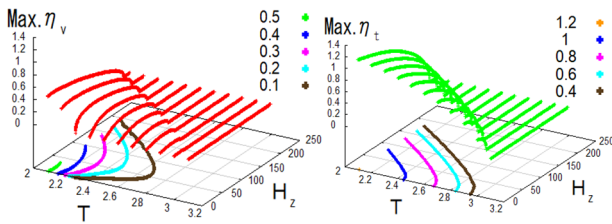


図 4 :  $H//z$  での  $\eta(x)$  の最大値;  $\text{Max.}\eta$  の温度・磁場依存性

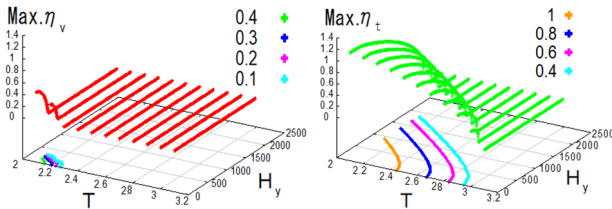


図 5 :  $H//y$  での  $\eta(x)$  の最大値;  $\text{Max.}\eta$  の磁場・温度依存性

図 4 では、3K 近くの non-chiral 界面超伝導状態からの垂直磁場  $H//z$  による磁場誘起 chiral 転移が  $\text{Max.}\eta_v$  の磁場依存性において見られる。温度 2.3K ~ 3K において  $H=0$  でほぼゼロであった  $\eta_v$  が、磁場  $H//z$  の印加により誘起され、磁場の強くなると増加する。これは磁場  $H//z$  による  $\eta_v$  の誘起による、 $\eta_t$  の一成分状態から  $\eta_t \pm i\eta_v$  の二成分状態への変化、つまり non-chiral から chiral 状態への転移に相当している。さらに磁場が強くなると、 $\eta_v$  は  $\eta_t$  と共に減少してゼロになる。これは磁場による対破壊による超伝導状態の消滅に対応している。一方、磁場  $H//y$  では図 5 に示すように、 $\eta_v$  は磁場中で増加することなく  $\eta_t$

と共に常に減少し、磁場による chiral 状態の安定化は見られない。

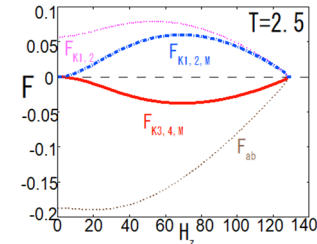


図 6 :  $H//z$  での自由エネルギーの磁場依存性

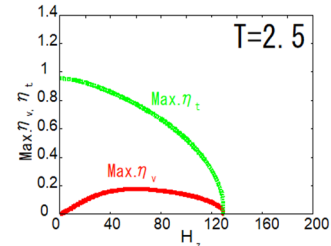


図 7 :  $H//z$  での最大値;  $\text{Max.}\eta$  の磁場依存性

これらの磁場方向による chiral 状態安定化の違いは、自由エネルギーの磁場依存項の違いから説明される。係数  $K_j$  を含むエネルギー項  $F_{Kj}$ 、更に vector potential  $\mathbf{A}$  を含む  $F_{Kj,M}$  に着目する。 $H//z$  では、磁場依存項は  $K_{3,4}$  を含む  $F_{K_{3,4},M} = 2(\gamma A_y)K_{3,4}\{(\partial_x \eta_t)\eta_v - (\partial_x \eta_v)\eta_t\}$  を含んでいるが、この項は  $H//y$  では現れない。この  $F_{K_{3,4},M}$  は、 $i\eta_v$  と  $\eta_t$  が結合した二成分状態で表される chiral 界面状態のために、 $H//z$  の磁場増加に伴い自由エネルギーを下げる寄与をする。この機構について、以下  $H//z$  磁場中の  $T=2.5\text{K}$  の場合を挙げて説明する (図 6)。 $H//z$  での自由エネルギーの磁場依存項  $F_{K_{1,2}} + F_{K_{1,2},M} + F_{K_{3,4},M}$  の内、 $F_{K_{3,4},M}$  は磁場の増加とともにゼロから負に絶対値を大きくする。これは磁場  $H//z$  による  $\eta_v$  誘起に伴う chiral 転移 (図 7) を導く自由エネルギー利得に対応している。この chiral 状態の安定化を導く  $F_{K_{3,4},M}$  の磁場依存性は、他の  $F_{K_{1,2}}$  と  $F_{K_{1,2},M}$  が磁場中で常に正の値をとり、磁場による対破壊に対応した自由エネルギー増加とは異なる (図 6)。ゼロ磁場からの磁場印加で chiral 状態の安定化を導いた後、さらに磁場を強くすると絶対値は小さくなり、超伝導の消失と共に磁場依存項のエネルギーはゼロとなる (図 6)。

このような図 4,5 での、 $F_{K_{3,4},M}$  からもたらされる磁場方向による秩序変数の磁場依存性の違いは、2.3 節での仮説のように、 $\text{Max.}\eta_v$  が消失する磁場がゼロ

バイアス異常が現れる磁場  $H^*$  に応じ、 $\text{Max.}\eta_t$  が消失する磁場が臨界磁場  $H_{c2}$  に応じていると考え、実験での  $H^*$  の磁場方向による磁場依存性の違いと定性的に整合性をもつ。

次に、図 8 に超伝導電流密度の距離依存性を示す。 $F_{K_{3,4,M}}$  から導かれる電流  $j_{y,K_{34,M}}$  は、chiral 界面状態のためのエネルギー利得 (図 6) に伴い生じる常磁性的な chiral 電流  $j_{y,K_{34,M}}$  に対応している。この常磁性電流は、non-chiral 界面状態では生じない (図 8)。ここで  $H \parallel z$  中の超伝導電流は、Ru 金属界面に平行な  $y$  軸の沿って流れており、全超伝導電流密度  $j_{y,K,M}$  は反磁性電流  $j_{y,K_{12,M}}$  と常磁性的な chiral 電流  $j_{y,K_{34,M}}$  の和として得られる。この常磁性 chiral 電流は、現時点では実験で検出されていない。

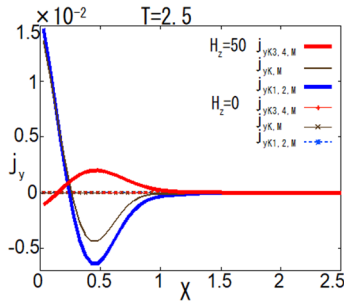


図 8:  $H \parallel z$  での超伝導電流密度の距離依存性

## 5. まとめ

ここで chiral p 波 ( $p_x + ip_y$ ) について示された磁場誘起 chiral 転移のメカニズムは、同様に  $\eta_x k_x + i\eta_y k_y$  を含む chiral d 波 ( $d_{xz} + id_{yz}$ ) :  $\varphi = \eta_z k_z (\eta_x k_x + i\eta_y k_y)$  においても定性的に同じ傾向をもつため、磁場中における界面超伝導での chiral 超伝導の性質といえる。この性質より導かれた chiral 安定化の磁場方向による違いは、実験での 3K 相の  $H^*$  の磁場依存性の磁場方向による違いと定性的に一致している。この理論と実験の結果の一致は、3K 相が低温で chiral バルク超伝導になるとした仮定から導かれていることから、SRO のバルク超伝導の候補として chiral 状態を挙げる事が出来る考える。

本研究は、Manfred Sigrist 氏、榎田裕也氏、野村拓司氏、長谷川泰正氏、坂井徹氏らとの共同研究であり、大阪大学 CMC 公募型利用制度と、JSPS-EPSRC による Core to Core Programme “Oxide Superspin

(OSS)”により助成された成果です。一部は榎田裕也氏の修士論文 [15] と論文 [16] に含まれます。

## 参考文献

- (1) Y. Maeno, T. Ando, Y. Mori, E. Ohmichi, S. Ikeda, S. Nishizaki, and S. Nakatsuji, Phys. Rev. Lett. **81**, 3765 (1998).
- (2) Y. Maeno, H. Hashimoto, K. Yoshida, S. Nishizaki, T. Fujita, J.G. Bednorz, and F. Lichtenberg, Nature **372**, 532 (1994).
- (3) H. Yaguchi, M. Wada, T. Akima, Y. Maeno and T. Ishiguro, Phys. Rev. B, **67**, 214519 (2003).
- (4) J. Hooper, Z.Q. Mao, K. D. Nelson, Y. Liu, M. Wada, and Y. Maeno, Phys. Rev. B **70**, 014510 (2004).
- (5) M. Sigrist, and H. Monien, J. Phys. Soc. Jpn. **70**, 2409 (2001).
- (6) G. M. Luke, Y. Fudamoto, K. M. Kojima, M.I. Larkin, J. Merrin, B. Nachumi, Y. J. Uemura, Y. Maeno, Z. Q. Mao, Y. Mori, H. Nakamura, and M. Sigrist, Nature **394**, 558 (1998).
- (7) J. Xia, Y. Maeno, P. T. Beyersdorf, M. M. Fejer, and A. Kapitulnik, Phys. Rev. Lett. **97**, 167002 (2006).
- (8) M. Sigrist and K. Ueda, Rev. Mod. Phys. **63**, 239 (1991).
- (9) Y. Maeno, M. Rice, and M. Sigrist, Phys. Today **54**, 42 (2001).
- (10) A. P. Mackenzie and Y. Maeno, Rev. Mod. Phys. **75**, 657 (2003).
- (11) M. Kawamura, H. Yaguchi, N. Kikugawa, Y. Maeno, and H. Takayanagi, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 531 (2005).
- (12) M. Sigrist, AIP Conference Proceedings **789**, 165-243 (2005).
- (13) H. Kaneyasu, N. Hayashi, B. Gut, K. Makoshi, M. Sigrist, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 104705 (2010).
- (14) P. -G. de Gennes, "Superconductivity of Metals and Alloys" (W.A. Benjamin, Inc., New York), (1966).
- (15) 榎田裕也, 平成 30 年度修士論文, 兵庫県立大学物質理学研究科, (2019).
- (16) H. Kaneyasu, Y. Enokida, T. Nomura, Y. Hasegawa, T. Sakai, and M. Sigrist, in submission.