

NMR Studies of Spatially-Modulated Superconductivity in Strongly-Correlated Electron Systems

(NMRによる強相関電子系の空間変調された超伝導状態の研究)

学位論文内容の要旨

高温超伝導体や重い電子系超伝導体などの強相関電子系においては通常のBCS超伝導体とは全く異なる性質を持つことが知られている。本研究ではこれらの超伝導体において超伝導秩序変数が空間変調する非一様な超伝導が実現していることに注目し、空間分解NMR法により高温超伝導体の渦糸コアの準粒子電子状態、特に超伝導秩序変数が抑制された渦糸コアでの反強磁性相関効果を明らかにした。さらに、重い電子系 CeCoIn_5 において高磁場低温で現れる新しい超伝導相が超伝導秩序変数の空間変調を伴ういわゆる FFLO 相であることを検証した。

強相関電子系である高温超伝導体では反強磁性Mott絶縁体にキャリアをドーピングすることにより高温超伝導が発現するので、その発現機構に反強磁性相関が重要な働きをしていると考えられる。高温超伝導体は第II種超伝導体であり H_{c1} 以上の磁場中で渦糸状態をとる。渦糸コア内では超伝導秩序変数が抑制されており、空間的に非一様な超伝導状態が実現している。従来の超伝導体では渦糸コア内では単純な金属電子状態が実現するのに対して、高温超伝導体の常伝導相では異常金属相が現れることから、高温超伝導体の渦糸コアでは通常の金属準粒子状態とは異なる電子状態が実現していると考えられている。超伝導秩序変数が消失あるいは抑制される渦糸コアでは強相関電子の性質が強く反映されるので、高温超伝導体の渦糸コアの電子状態を知ることは高温超伝導の発現機構を理解するためにも重要であり、これまでも渦糸コアに関する様々な研究がおこなわれてきた。

特に、近年の理論的研究からは高温超伝導体の渦糸コアで反強磁性秩序状態が実現する可能性が指摘されている。また、実験的にも中性子散乱測定から LSCO の超伝導状態で反強磁性相関を持つ磁気モーメントの増大が観測されている。この磁気モーメントは超伝導状態で現れるので、理論で指摘されている反強磁性渦糸コアによるものである可能性がある。しかしながら中性子散乱実験では空間分解能が十分ではなく、磁気モーメントが渦糸コアに起因するものかどうかは分かっていない。

本研究では、新たな NMR 手法である空間分解 NMR 法により渦糸コア部分の磁気状態を詳細に調べた。最適ドーピングに近い $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ ($T_c=85\text{K}$) において ^{205}Tl 核の NMR 測定をおこない、 $T=20\text{K}$ 以下で渦糸状態の磁場分布では説明できない渦糸コア部分でのスペクト

ラムの広がりを観測した。また、渦糸コア部分の核スピン-格子緩和率 $1/T_1$ は 20K にピークを持つ。 $1/T_1$ の温度変化は反強磁性揺らぎの周波数が温度とともに低下し低温で静的な磁気モーメントが現れるスピン凍結モデルで定性的に説明できる。これらの結果は高温超伝導体の強い反強磁性相関のために超伝導秩序変数が抑制される渦糸コア内に反強磁性モーメントが誘起されることを実験的に示したものであり、高温超伝導の発現機構を理解する上で重要な知見である。

超伝導に対する磁場効果としては、渦糸状態における超伝導秩序関数の空間構造をもたらす軌道電流による効果に加えて、スピンによる常磁性効果がある。常磁性効果の大きな系では高磁場かつ低温領域で FFLO 状態と呼ばれる超伝導秩序変数が空間的に振動する状態が安定して実現される可能性が 1960 年代の理論的研究から予測され、これまで多くの超伝導体においてこの FFLO 状態が実験的に探求されてきた。しかしながら今日まで確定的な実験証拠は得られていなかった。

最近見つかった重い電子系超伝導体 CeCoIn_5 は常磁性効果が強く clean-limit にある系である。比熱や磁化の測定から強磁場領域 ($H > 10\text{T}$) で一次の超伝導転移が明らかになったことから、強磁場領域で FFLO 状態が実現する可能性が指摘された。実際に CeCoIn_5 の高磁場領域では、 H_{c2} での常伝導-超伝導転移に加え低温で新たな超伝導状態への相転移に伴う比熱の異常が観測された。この超伝導相は高磁場低温領域で現れることから FFLO 相ではないかと考えられている。しかし、この新しい相での超伝導秩序関数などの微視的な電子状態はほとんど明らかにされていない。

本研究では NMR を用いて微視的に CeCoIn_5 の新しい超伝導相の電子状態を調べた。NMR のナイトシフトは局所的な準粒子状態密度を反映する量であり、NMR スペクトラムを測定することで超伝導秩序変数の変化を微視的に調べることが可能である。 CeCoIn_5 の Co, In サイトで NMR スペクトラムの測定を行った結果、超伝導相への転移温度直下近傍でスペクトラムの顕著な変化を観測した。さらに FLO 状態に対するモデルに基づいて NMR スペクトラムのシミュレーションを行うと実験で得られたスペクトラムをほぼ再現できた。このことより超伝導秩序変数が周期的に変化し超伝導の消失するノード面と超伝導領域とはナイトシフトの異なることが示され、FFLO 状態では温度低下とともに超伝導秩序変数の変調周期が短くなることが明らかになった。本研究の結果は FFLO 状態に伴う超伝導秩序変数の空間変調を直接的に検出したものであり、理論的に予測されて以来長い間実験的証拠が見つかっていなかった FFLO 状態が重い電子系超伝導体の CeCoIn_5 で実現することを微視的に明らかにしたものである。

このように本研究では、NMR 測定により高温超伝導体の反強磁性渦糸コア状態と重い電子系超伝導体 CeCoIn_5 における FFLO 状態を微視的観点から初めて検証し、強相関電子系における超伝導秩序変数の空間変調にともなう電子状態を明らかにした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 熊 谷 健 一
副 査 教 授 大 川 房 義
副 査 教 授 網 塚 浩
副 査 助 教 授 河 本 充 司

学 位 論 文 題 名

NMR Studies of Spatially-Modulated Superconductivity in Strongly-Correlated Electron Systems

(NMR による強相関電子系の空間変調された超伝導状態の研究)

酸化物超伝導体や重い電子系超伝導体などの強相関電子系においては通常の BCS 超伝導とは全く異なる性質を示す。本研究では、超伝導秩序関数が空間変調する非一様な超伝導状態に着目し、空間分解 NMR 法により高温超伝導体の準粒子状態、特に超伝導秩序変数が抑制された渦糸コアでの反強磁性相関効果を明らかにするとともに、重い電子系 CeCoIn_5 における新奇な超伝導相が超伝導秩序変数の空間変調を伴う FFLO 相であることを微視的な観点から明らかにした。

高温超伝導体では反強磁性 Mott 絶縁体にキャリアをドーピングすることにより高温超伝導が発現するので、その発現機構には反強磁性相関が重要な働きをする。このため、従来の BCS 超伝導体では渦糸コア内では単純な金属の電子状態が実現するのに対して、高温超伝導体の渦糸コアでは異常な準粒子状態であると考えられている。特に、最近の理論的研究において超伝導秩序変数が消失あるいは抑制される渦糸コアでは強相関電子効果が顕になり反強磁性渦糸コアの可能性が指摘されている。

本研究では、超伝導磁束状態における磁場の空間分布 (Redfield pattern) を利用することで渦糸コアの電子状態を分離する空間分解 NMR 法により、最適ドーピングに近い $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ ($T_c = 85\text{K}$) の ^{205}Tl -NMR 測定をおこなった。渦糸コアに近づくにつれて核スピン-格子緩和率 $1/T_1$ が増大し、渦糸コア部分では超伝導領域のそれよりも ~ 100 倍もの増大が観測された。また、 $T=20\text{K}$ 以下では渦糸状態の磁場分布では説明できない渦糸コア領域での NMR スペクトラムの広がりを観測した。このことからコア部分で大きな磁気相互作用による局所内部磁場の発達を結論した。また、渦糸コア領域の $1/T_1$ は 20K にピークを持って低温で減少することを観測し、反強磁性揺らぎが温度とともに凍結し低温で静的な磁気モーメントが現れることを示した。

これらの結果は高温超伝導体の超伝導秩序変数が抑制される渦糸コア内に反強磁性モーメントが誘起されることを実験的に示したものであり、高温超伝導の発現機構を理解するうえで重要な知見である。

超伝導に対する強磁場の効果として常磁性効果が重要になる。常磁性効果の大きな系で FFLO 状態と呼ばれる超伝導秩序変数が空間的に周期振動する状態が安定して実現する可能性が 1960 年代に理論的研究から予測されていた。これまで多くの超伝導体において探求されてきたが、今日まで FFLO 状態の確定的な実験的証拠は得られていなかった。

最近発見された重い電子系超伝導体、CeCoIn₅ ($T_c=2.3\text{K}$)は常磁性効果が強い系である。比熱や磁化の測定から強磁場領域で超伝導転移が 1 次相転移であることが明らかになり、また CeCoIn₅ の高磁場領域での比熱測定から低温で新たな超伝導状態への相転移が観測されたことから、FFLO 相の可能性が指摘されていた。本研究では、強磁場 NMR を用いて微視的観点から CeCoIn₅ の新しい超伝導相での電子状態を調べた。¹⁰⁵In および ⁶⁹Co-NMR 測定から新しい超伝導相への転移温度近傍 ($T=0.3\text{K}$) でスペクトラムの顕著な変化が観測された。FFLO 状態では超伝導秩序変数が周期的に変化し超伝導の消失するノード面が現れ、ノード面と超伝導領域とは準粒子状態密度が異なるので特徴的に大きく変化するナイトシフトが期待される。FFLO 状態の超伝導秩序変数の空間変調モデルに基づいて観測された NMR スペクトラムのシミュレーションによる解析をおこなった。実験で得られたスペクトラムをほぼ再現でき、この NMR スペクトラムの解析より超伝導秩序変数の変調周期の温度変化を求めることができた。FFLO 状態での空間変調の波数は温度低下とともに急速に短くなることが示された。これらの結果から超伝導秩序変数の空間変調を伴う FFLO 状態の出現を結論した。1960 年代に理論的に予測されて以来長い間実験的証拠が見つからなかった FFLO 状態が、重い電子系超伝導体 CeCoIn₅ で実現することを微視的に初めて明らかにしたものである。

以上を要するに、空間分解 NMR 測定によって強相関超伝導体における秩序変数の空間変調にともなう新規な超伝導状態、すなわち高温超伝導体の反強磁性渦糸コア状態、および重い電子系超伝導体 CeCoIn₅ における FFLO 状態を初めて実験的に明らかにすることにより強相関電子系に関する物理学の格段の進展に寄与した本研究は極めて高く評価される。よって審査員一同は、本論文の申請者が北海道大学博士(理学)の学位を受けるに十分な資格があるものと認める。