



Title	Magnetism and Superconductivity in Ruthenate Oxides : 99,101Ru - & 170 -NMR Studies
Author(s)	椋田, 秀和
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/41478">https://hdl.handle.net/11094/41478</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	むく だ ひでかず 棕 田 秀 和
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	第 1 4 7 5 7 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 11 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学 位 論 文 名	Magnetism and Superconductivity in Ruthenate Oxides — $^{99,101}\text{Ru}$ - & $^{17}\text{O}$ -NMR Studies — (ルテニウム酸化物における磁性と超伝導 —ルテニウムおよび酸素原子核—核磁気共鳴法による研究—)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 北岡 良雄  (副査) 教 授 天谷 喜一      教 授 三宅 和正

### 論 文 内 容 の 要 旨

強磁性金属から反強磁性絶縁体までヴァラエティーに富んだ物性を示すことで知られる一連のルテニウム酸化物  $(\text{Sr}, \text{Ca})_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$  において、 $n = 1$  の系  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  で超伝導が発見された。銅酸化物高温超伝導体と同じ結晶構造で銅を含まない唯一の超伝導体であり、ここで起こっている異常な超伝導状態の性質、および、関連のルテニウム酸化物の磁気的性質に注目が集まった。博士過程において  $^{99,101}\text{Ru}$ - および  $^{17}\text{O}$ -NMR という実験手段を用いてルテニウム酸化物、特に、超伝導を示す  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ 、強磁性金属  $\text{SrRuO}_3$ 、常磁性金属  $\text{CaRuO}_3$ 、非磁性金属  $\text{RuO}_2$  における磁性と超伝導の研究を行い、以下のことを明らかにした。

$\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  では、常伝導状態から超伝導状態に移してもスピン帯磁率は変化しないことを  $^{17}\text{O}$  ナイトシフトの測定により明らかにした。この結果は  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  がスピン三重項超伝導体であることを意味し、スピン三重項状態としては  $d=z(k_x \pm ik_y)$  が実験結果と矛盾しない最も有力候補と考えられる。常伝導状態における  $^{17}\text{O}$  ナイトシフトの測定から  $\text{RuO}_2$  面内の酸素サイトには  $2p$  軌道の  $\pi$  結合でネットワークを構成し、特に  $d_{xy}$  と混成している面内の  $\pi$  軌道に、より多くのスピが存在していることがわかった。静的スピン帯磁率が等方的であるにもかかわらず、動的スピン帯磁率  $\chi(q, \omega)$  が面内と面間で著しく異なっていた。特に、面内は強い二次元性により  $q$  に依存しない 2 次元強磁性、面間は  $c$  軸方向の電気伝導が 3 次元金属の振る舞いになる温度以下で、反強磁性的相関の発達が観測された。

比較のために、共通した  $\text{RuO}_6$  八面体を磁性の舞台とする  $\text{SrRuO}_3$ 、 $\text{CaRuO}_3$  において  $\text{Ru}$ -NMR を行った。磁気的な基底状態が未だわかっていなかった  $\text{CaRuO}_3$  は、強磁性揺らぎを持ちながら磁気性秩序を示さない強磁性に近い金属であることが新たにわかった。3 次元的な強磁性揺らぎでスピン三重項の超流動状態を示す  $^3\text{He}$  や、その揺らぎを強く残す  $\text{CaRuO}_3$  と、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の電子状態と比較した結果、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の磁気的性質は単純な 3 次元的な強磁性揺らぎでないことがわかった。

以上、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の超伝導状態はスピン三重項のクーパー対で構成されたが、発見当初から理論的に予言されていたような単純な 3 次元の強磁性揺らぎでなく、2 次元性の極めて強い強磁性揺らぎを引力として超伝導は起こっていると考えられる。

## 論文審査の結果の要旨

強磁性金属から反強磁性絶縁体まで変化に富んだ物性を示すことで知られる一連のルテニウム酸化物  $(\text{Sr}, \text{Ca})_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$  において、 $n = 1$  の系  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  で超伝導が発見された。銅酸化物高温超伝導体と同じ結晶構造で銅を含まない唯一の超伝導体であり、異常な超伝導状態の性質、および関連のルテニウム酸化物の磁気的性質に注目が集まった。本研究では $^{99,101}\text{Ru}$ -および $^{17}\text{O}$ -NMRという実験手段を用いてルテニウム酸化物、特に、超伝導を示す  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ 、強磁性金属  $\text{SrRuO}_3$ 、常磁性金属  $\text{CaRuO}_3$ 、非磁性金属  $\text{RuO}_2$  における磁性と超伝導の系統的研究を行い、以下のことを明らかにした。

$\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  では、超伝導状態に転移してもスピン帯磁率が変化しないことを $^{17}\text{O}$ ナイトシフトの測定から明らかにした。この結果から  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  がスピン三重項超伝導体であることを結論し、その秩序変数は  $d = z (k_x \pm ik_y)$  が最も有力であることを示唆した。超伝導発現機構に関連するスピンの揺らぎの性質を調べ、静的スピン帯磁率が等方的であるにもかかわらず、動的スピン帯磁率  $\chi(q, \omega)$  が面内と面間で著しく異なることを示した。特に、面内は強い2次元性により波数に依存しない2次元強磁性、面間はc軸方向の電気伝導が3次元金属的に振る舞う温度下で、反強磁性的相関の発達を観測した。スピンの揺らぎの比較のために  $\text{SrRuO}_3$ 、 $\text{CaRuO}_3$  において Ru-NMR を行った。 $\text{CaRuO}_3$  は強磁性に近い金属であることを明らかにした。3次元的な強磁性スピン揺らぎでスピン三重項の超流動状態を示す $^3\text{He}$  や強磁性に近い  $\text{CaRuO}_3$  と  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の電子状態と比較した結果、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の磁気的性質は単純な3次元的な強磁性スピン揺らぎで説明できないことがわかった。 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  のスピン三重項超伝導は、理論的に予言されているような単純な3次元の強磁性スピン揺らぎに起因するのではなく、2次元性の極めて強い強磁性スピン揺らぎを引力として誘起されていることを示唆した。

本研究はルテニウム酸化物の磁気現象は強磁性スピン揺らぎが優勢であること、さらに超伝導が3重項伝導であることを明らかにし、磁性と超伝導研究のフロンティアを開拓したもので博士（理学）の学位論文として十分の価値があるものと認められる。