

平成 21 年 6 月 2 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19740202

研究課題名 (和文) 不整合格子系有機超伝導体における反強磁性絶縁相と超伝導相の研究

研究課題名 (英文) Investigations on the antiferromagnetic insulating and superconducting phases of incommensurate organic superconductors

研究代表者

川本 正 (KAWAMOTO TADASHI)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：60323789

研究成果の概要：

不整合格子系有機超伝導体のなかで、常圧では金属-絶縁体転移を示す物質(MDT-TS) $(\text{AuI}_2)_{0.441}$ の反強磁性絶縁相が 50 K という高いネール温度、6.9 T という高いフロップ磁場を有することを実験的に明らかにした。また、超伝導相は 1.0 - 1.8 GPa の広い圧力領域で存在し、1.27 GPa で転移温度は最高の 4.9 K を示すことを実験的に明らかにした。これらの結果から、当初の目的である温度-磁場-圧力相図を得ることができた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,300,000	0	2,300,000
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	300,000	3,600,000

研究分野：材料物性

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：有機伝導体、不整合格子、反強磁性、超伝導、バンド充填率

1. 研究開始当初の背景

超伝導を示す有機伝導体は有機ドナー分子と無機アニオンが簡単な整数比(ほとんど 2:1)で表される物質である。しかし、methylenedithio-tetraselenafulvalene (MDT-TSF) 分子を用いた伝導体は組成が整数ではないにも関わらず、超伝導を示すことを明らかにしてきた。さらに、MDT-TSF 分子の一部の Se 原子を S 原子に置換した 5H-2-(1,3-diselenol-2-ylidene)-1,3,4,6-tetrathiapentalene (MDT-TS) を用いた伝導

体(MDT-TS) $(\text{AuI}_2)_{0.441}$ は、MDT-TSF 塩と同型構造であるにも関わらず、金属-絶縁体転移を示す。この物質の絶縁相が反強磁性であることが、磁化率の異方性から推測されたが、スピフロップ転移が観測されていないことから決め手に欠けていた。また、圧力下で超伝導を示すことを明らかにしていたが、超伝導転移温度が圧力の増加につれて上昇し続けていく圧力領域までしか測定が出来ていなかった。不整合格子構造によりバンド充填率が従来の有機超伝導体とは異なるため、強相関電子系の一角を占める有機伝導体のな

かでも、本物質の物性解明は重要である。

2. 研究の目的

絶縁相の磁氣的性質を実験的に明らかにすることで、超伝導相の発現機構解明への第一歩とする。また、超伝導相がどの程度の圧力領域まで存在しているのかを実験的に明らかにする。これらの結果から、温度—磁場—圧力相図を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

SQUID による磁化率測定からは、5 T 以下ではスピントロップが起きていないことから、AFM で用いられているマイクロカンチレバーと超伝導マグネットを用いた磁気トルク測定を行った。研究室のマグネット(9 T)でも磁場が十分でなかったため、物質・材料研究機構の強磁場施設のマグネット(15 T)で最終的なデータを得た。高圧測定は二重シリンダーの圧力セルを用いて、従来の上限である 1.2 GPa から 1.8 GPa までの抵抗測定を行った。

4. 研究成果

図 1 に分子構造と結晶構造を示す。SQUID による磁化率測定は a 軸方向と b 軸方向でなされ、磁化容易軸が b 軸方向の反強磁性秩序が 50 K 以下で生じていることが示唆されていた。従って磁気トルク測定を b 軸から少し傾けた磁場下で行うことで、スピントロップが観測されなければならない。図 2 に示すように磁気トルクは b 軸からわずかに傾けた磁場において明瞭なピークを示す。これは磁化率測定の結果と一致する。

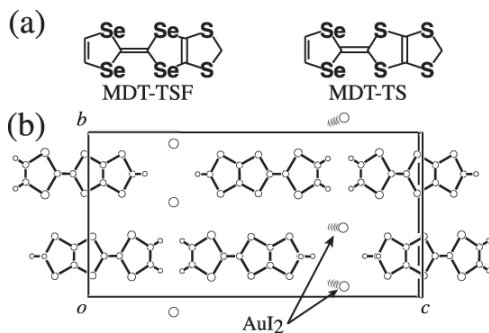


図 1: (a) MDT-TSF 分子と MDT-TS 分子, (b) (MDT-TS)_{0.441} 結晶構造

磁気トルク測定から、スピントロップは 6.9 T という高い磁場で起こることを明らかにした(図 2)。また、14.5 T でも強制強磁性への相転移が発現しないことを明らかにした。反強磁性転移温度は磁化率に異方性が現れる温度と同じ $T_N = 50$ K であり、長距離秩序を

有する反強磁性絶縁相が基底状態であることが確定した。反強磁性の異方性エネルギーは 1.4×10^{-1} J/mol と見積もられた。

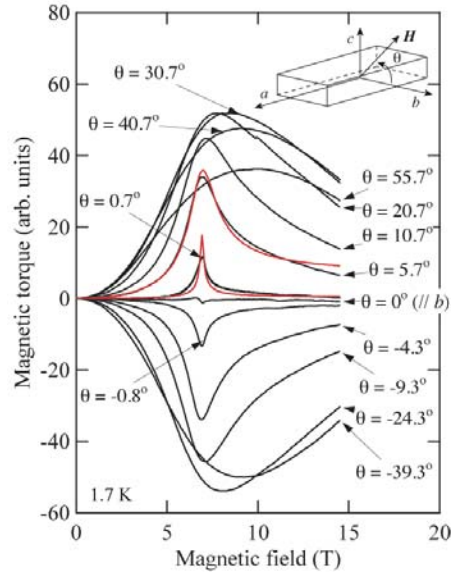


図 2: 磁気トルクの磁場依存性

1.2 GPa 以下までの電気抵抗測定からは T_c が圧力の増加に連れて上昇する傾向が観測されていた。この結果はより高圧下ではさらなる T_c 上昇の可能性を示している。二重シリンダーの圧力セルを用いて 1.8 GPa まで測定を行ったところ、1.27 GPa 下で最高 $T_c = 4.9$ K を示し、それ以上の圧力では T_c は低下することを明らかにした(図 3)。超伝導相は 1.5 K 以上にて 1.0 - 1.8 GPa の比較的広い圧力範囲で存在する。

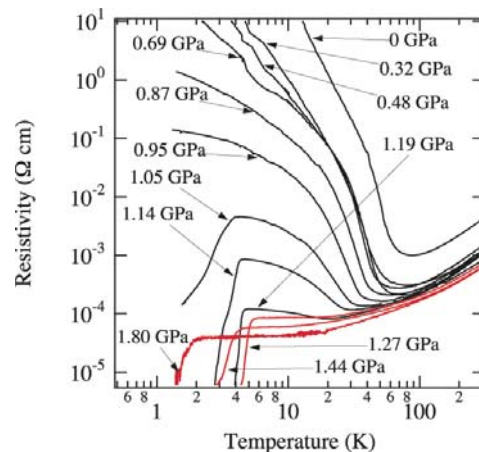


図 3: 圧力下における抵抗の温度依存性

他の有機超伝導体と比べると、ネール点は 2 倍以上高く、フロップ磁場は 6 倍以上大きく、異方性エネルギーは 25 倍以上も大きい。高いネール温度、大きなフロップ磁場、大きな異方性エネルギーは最高の超伝導転移温度

($T_c = 14$ K)を有する β' -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$ を遥かに凌ぐ。他の有機超伝導体において、ネール点が高い物質ほど超伝導転移温度が高い傾向がみられるが、(MDT-TS) (AuI $_2$) $_{0.441}$ の超伝導転移は最高でも4.9 Kであり、決して高くない。

T_c だけがBEDT-TTF塩より低い原因として、アニオンの不整合格子ポテンシャルが超伝導発現を抑制している可能性が考えられるが、はっきりとした結論を得るには至っていない。これらの結果から当初の目的である(MDT-TS) (AuI $_2$) $_{0.441}$ の温度—磁場—圧力相図を得ることができた(図4)。

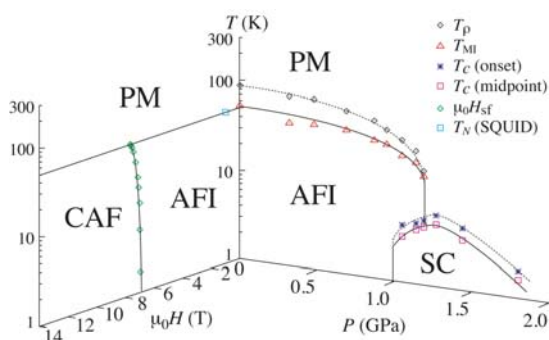


図4: (MDT-TS) (AuI $_2$) $_{0.441}$ の相図

相図はバンド充填率が通常の3/4からずれた場合でも、反強磁性絶縁体に隣接して超伝導相が存在することを明示している。このことは、有機超伝導体においても反強磁性絶縁相が極めて重要であることを示している。

本研究成果は有機超伝導体の分野だけではなく、広く超伝導物質の研究分野において重要である。本成果により、国際会議で口頭発表を行い、総説の執筆依頼があり、さらに日本物理学会若手奨励賞を受賞した。今後の展望として、不整合格子ポテンシャルに起因する新しい電子物性の発見が期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

① T. Mori, T. Ozawa, Y. Bando, T. Kawamoto, S. Niizeki, H. Mori, and I. Terasaki, “Nonlinear dynamics of conduction electrons in organic conductors”, Phys. Rev. B **79**, 115108-1 – 115108-8 (2009) 査読あり.

② T. Kawamoto, Y. Bando, T. Mori, T. Konoike, Y. Takahide, T. Terashima, S. Uji, K. Takimiya, and T. Otsubo, “Antiferromagnetic ordering of the incommensurate organic superconductor (MDT-TS) (AuI $_2$) $_{0.441}$ with a high spin-flop field”, Phys. Rev. B **77**, 224506-1 – 224506-5 (2008) 査読あり.

③ Y. Bando, M. Ashizawa, T. Kawamoto, and T. Mori, “Flat resistivity in θ -phase charge-transfer salts of selenium-containing TMET-TTP derivatives”, Bull. Chem. Soc. Jpn. **81**, 947 – 955 (2008) 査読あり.

④ S. Niizeki, F. Yoshikane, K. Kohno, K. Takahashi, H. Mori, Y. Bando, T. Kawamoto, and T. Mori, “Dielectric response and electric-field-induced metastable state in an organic conductor β -(*meso*-DMBEDT-TTF) $_2$ PF $_6$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 073710-1 – 073710-4 (2008) 査読あり.

⑤ T. Mori, Y. Bando, T. Kawamoto, I. Terasaki, K. Takimiya, and T. Otsubo, “Giant nonlinear conductivity and spontaneous current oscillation in an incommensurate organic superconductor”, Phys. Rev. Lett. **100**, 037001-1 – 037001-4 (2008) 査読あり.

⑥ Y. Bando, T. Kawamoto, T. Mori, K. Takimiya, and T. Otsubo, “Isotropic uniaxial strain effect on the incommensurate organic superconductor: (MDT-TS) (AuI $_2$) $_{0.441}$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 014706-1 – 014706-5 (2008) 査読あり.

⑦ T. Mori and T. Kawamoto, “Organic conductors – from fundamentals to nonlinear conductivity”, Annu. Rep. Prog. Chem., Sect. C: Phys. Chem., **103**, 134 – 172 (2007) 査読あり.

⑧ T. Mori, T. Kawamoto, I. Terasaki, T. Kakiuchi, and H. Sawa, “Nonlinear conductivity with an extremely small threshold electric field in the organic

conductor (TSM-TTP) (I_3)_{5/3}”, Phys. Rev. B **75**, 235103-1 - 235103-5 (2007) 査読あり.

⑨ T. Kawamoto, T. Mori, T. Kakiuchi, H. Sawa, T. Shirahata, M. Kibune, H. Yoshino, and T. Imakubo, “Domain formation in the structural phase transition of the organic superconductor κ_L -(DMEDO-TSeF)₂[Au(CN)₄](THF)”, Phys. Rev. B **76**, 134517-1 - 134517-6 (2007) 査読あり.

[学会発表] (計 6 件)

① 川本正 「不整合格子系有機超伝導体の構造と電子物性」(日本物理学会若手奨励賞受賞記念講演)日本物理学会第 64 回年次大会、2009 年 3 月 30 日、立教大.

② 川本正、森健彦、山口尚秀、宇治進也、David Graf、James S. Brooks、白旗崇、木船愛、吉野浩子、今久保達郎 「ドメイン構造を有する有機超伝導体 κ_L -(DMEDO-TSeF)₂[Au(CN)₄](THF) のフェルミ面」日本物理学会秋季大会、2008年9月23日、岩手大.

③ 川本正、森健彦、David Graf、James S Brooks、宇治進也、白旗崇、木船愛、吉野浩子、今久保達郎 “Anomalous magnetoresistance and interlayer coherency of the highly 2D organic superconductor κ_H -(DMEDO-TSeF)₂[Au(CN)₄](THF)” 25th International conference on Low Temperature Physics (LT25)、2008 年 8 月 11 日、Amsterdam (オランダ).

④ 川本正 “High magnetic field properties of the layered organic superconductor κ_H -(DMEDO-TSeF)₂[Au(CN)₄](THF) with thick anion layers” International Symposium on Molecular Conductors (ISMC 2008)、2008 年 7 月 25 日、岡崎コンファレンスセンター.

⑤ 川本正、森健彦、David Graf、James S Brooks、宇治進也、白旗崇、木船愛、吉野浩子、今久保達郎 「2 次元系有機超伝導体 κ_H -(DMEDO-TSeF)₂[Au(CN)₄](THF) の強磁場角度依存性磁気抵抗」日本物理学会第 63 回年次大会、2008 年 3 月 23 日、近畿大.

⑥ 川本正、森健彦、山口尚秀、寺嶋太一、宇治進也、白旗崇、木船愛、吉野浩子、今久保達郎 “Interlayer coherency and anomalous magnetoresistance of the highly 2D organic superconductor κ_H -(DMEDO-TSeF)₂[Au(CN)₄](THF)” The Seventh International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Ferromagnets, ISCOM’ 2007、2007 年 9 月 25-28 日、Peniscola (スペイン).

[その他]

本研究成果を合わせたこれまでの研究成果により、2009 年 3 月に日本物理学会若手奨励賞を受賞し、受賞講演を行った。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川本 正 (KAWAMOTO TADASHI)
東京工業大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：60323789

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし