

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17690

研究課題名(和文)モット転移近傍におけるフラレン超伝導体の電気輸送特性

研究課題名(英文)Electrical transport properties of fulleride superconductors in the vicinity of Mott transition

研究代表者

平郡 諭 (Heguri, Satoshi)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教

研究者番号：70611648

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：フラレン超伝導体の電気抵抗測定は極めて困難で、これまでその物性については主に磁化測定を用いて議論されてきた。本研究課題では独自の測定系を開発することで面心立方格子 $Rb_xCs_{3-x}C_{60}$ ($0.35 < x < 3$)の圧力下電気輸送特性の測定に成功した。モット絶縁体状態から金属状態を経て超伝導になる電子状態の変化を詳細に観測し、これまでに報告されている電子相図を更新した。さらにオンサイトクーロン斥力を実験的に見積ることに成功した。

研究成果の概要(英文)：Electrical transport measurements have been very difficult in C60 superconductors and discussion has been made on a basis of experiments on magnetic probes. Temperature evolution of electrical resistivity of fcc fulleride superconductors $Rb_xCs_{3-x}C_{60}$ ($0.35 < x < 3$) is shown to be successfully measured under various pressure. Temperature dependence of electrical resistivity ranging from the Mott insulating state to a superconducting state via metallic phase was clearly observed. The profile of Mott insulator to metal boundary as a function of C603- volume was renewed and the different features of between the Jahn-Teller metal and the normal metal is not detected in the electrical transport measurements. In addition, on-site coulomb repulsion energy (U) is commented experimentally. We successfully demonstrated that the electronic states of fcc A_3C_{60} system can be tuned systematically by the volume per C603- using the electrical transport measurements.

研究分野：分子性固体

キーワード：フラレン超伝導体 超伝導 磁性 モット転移 電子相関 電気輸送特性 極端条件下物性

1. 研究開始当初の背景

フラレン超伝導体では格子定数の増加に伴い超伝導転移温度 T_C が上昇することが知られており、BCS 超伝導であることの証拠として考えられてきた。面心立方格子 (fcc) の C_{60}^{3-} 状態において格子歪みを伴わず理想的に格子を拡張していくと T_C はピークを持ったドーム型の相図を示す。さらに最も格子定数が拡張された常圧下では超伝導が消失しモット絶縁体となることが報告され、フラレン超伝導体が従来の BCS 超伝導体であるという認識を再考させる結果である。

2. 研究の目的

良く知られたフラレン超伝導体であるが、驚くべきことにバルクな試料を用いた電気輸送特性の報告例はない。超伝導に関しては K_3C_{60} 、及び Rb_3C_{60} 薄膜での結果のみである。近年開発された $C_{53}C_{60}$ においても磁化測定を用いた実験手法が主であり、電気輸送特性は未だ測定されていない。

電気抵抗は物性を明らかにするために最も基礎的な要素であり、不可欠である。本研究課題ではモット転移近傍に出現するフラレン超伝導の特性と電子相関効果を電気抵抗測定から初めて明らかにする。

3. 研究の方法

フラレン化合物において電気抵抗測定が行われていない理由として考えられることは、1) 化合物が極めて嫌気性であること、2) 化合物単結晶が得られないこと、の 2 点が主に挙げられる。今までの失敗例として考えられることは、測定中試料が分解する、あるいは試料と電極の接合が弱くオーミック接合が低温まで維持できない、ことと推測される。そこで測定中試料の分解を妨げ、低温まで試料のオーミック接合を確保できる、新構造の電気抵抗測定用圧力セルを独自に設計し開発した。

4. 研究成果

$Rb_xCs_{3-x}C_{60}$ について、電気抵抗率の温度依存性の測定を行った。 $Rb_{0.35}Cs_{2.65}C_{60}$ の常圧下の電気抵抗率は、室温から温度が下がると絶縁体に典型的な熱活性型の振る舞いを示し、 $T \sim 80$ K において、緩やかなピークが観測され、降温すると急激に電気抵抗率が減少する様子が観測された。また、圧力を印加しながら格子体積を連続的に変化させたときの電気抵抗率の温度依存性では、ピークが格子定数の圧縮と共に系統的に高温側へシフトした。これにより圧力を用いてモット絶縁体から金属へと連続的に制御可能であることを電気輸送特性の観点から明らかにした。興味深いことに、電気抵抗率の温度依存性から見た金属-絶縁体境界と、強磁場下における磁化率の温度依存性から見た金属-絶縁体境界は大きく異なることがわかった。さらに格子定数一定のもとで、熱活性領域のアレニウス解析から活性化エネルギーを求め、理論計算によるバンド幅を用いることで、オンサイトクーロン反発力を実験的に初めて見積ることに成功した。

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 6 件)

[1] Q. T. N. Phan, S. Oikawa, S. Heguri, Y. Matsuda, K. Tanigaki, Crossover from localized to itinerant states in hydrocarbon Mott insulators, *Dalton Transactions*, accepted (2017). 査読有り

[2] Q. T. N. Phan, S. Heguri, H. Tamura, T. Nakano, Y. Nozue, K. Tanigaki, Two different ground states in a K-intercalated polyacenes, *Phys. Rev. B* **93**, 075130 (2016). 査読有り

[3] S. Heguri, N. Kawade, T. Fujisawa, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, K. Tanigaki, M. Mototada, Superconductivity in the graphite intercalation compound BaC_6 , *Phys. Rev. Lett.*

114, 247201 (2015). 査読有り

[4] S. Heguri, M. Kobayashi, K. Tanigaki, Questioning the existence of superconducting potassium doped phases for aromatic hydrocarbons, *Phys. Rev. B* **92**, 014502 (2015). 査読有り

[5] T. Urata, Y. Tanabe, K. K. Huynh, S. Heguri, H. Oguro, K. Watanabe, and K. Tanigaki, Emergence of high-mobility minority holes in the electrical transport of the $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ iron pnictides, *Phys. Rev. B* **91** 174508 (2015). 査読有り

[6] J. Xu, J. Wu, H. Shao, S. Heguri, Y. Tanabe, Y. Liu, G. Q. Liu, J. Jiang, H. Jiang, K. Tanigaki, Structure and thermoelectric properties of the n-type clathrate $\text{Ba}_8\text{Cu}_{5.1}\text{Ge}_{40.2}\text{Sn}_{0.7}$, *J. Mater. Chem. A* **3**, 19100 (2015). 査読有り

〔学会発表〕(計 29 件)

[1] 平郡 諭, Phan Thi Nhu Quynh, 及川新平, 松田祐貴, 谷垣勝己, “電子ドーブされた芳香族化合物のバンド幅制御” 日本物理学会第 72 回年次大会, 18aC21-03, 大阪大学, 2017 年 3 月 18 日

[2] S. Heguri, Q. T. N. Phan, H. Tamura, T. Nakano, Y. Nozue, K. Tanigaki, “Two Different Ground States in K-Doped Polycenes” American Physical Society March Meeting, K26.00014, New Orleans, 2017.03.15.

[3] S. Heguri, Q. T. N. Phan, S. Oikawa, Y. Matsuda, K. Tanigaki, “Crossover from localized to itinerant states in hydrocarbon Mott insulators” The AIMR International Symposium 2017, Sendai, P01, 2017.02.13.

[4] 平郡 諭, 下谷秀和, Phan T. N. Quynh, 松田祐貴, 櫻井英博, 谷垣 勝己, “ C_{60} 分子の特異な磁化率” 第 43 回炭素材料学会年会, 1B04, 千葉大学, 2016 年 12 月 7 日

[5] 平郡 諭, P. T. N. Quynh, 田村宏之, 中

野岳仁, 野末泰夫, 谷垣 勝己, “電子ドーブされた直鎖状炭化水素における異なる 2 つの基底状態” 第 43 回炭素材料学会年会, 3B02, 千葉大学, 2016 年 12 月 9 日

[6] 平郡 諭, 下谷秀和, Phan T. N. Quynh, 松田祐貴, 櫻井英博, 谷垣 勝己, “ C_{60} 分子の特異な磁化率” 日本物理学会 2016 年秋季大会, 13aAP-7, 金沢大学, 2016 年 9 月 13 日

[7] 平郡 諭 (招待講演), “ π 電子系分子固体の構造と電子状態” 日本物理学会 2016 年秋季大会, 14pAM-1, 金沢大学, 2016 年 9 月 14 日

[8] S. Heguri, Q. T. N. Phan, H. Tamura, T. Nakano, Y. Nozue, K. Tanigaki, “Two Different Ground States in K-Doped Polycenes” The 15th International Conference on Molecule-Based Magnets, 5P078, Sendai, 2016.09.05.

[9] S. Heguri, Q. T. N. Phan, H. Tamura, T. Nakano, Y. Nozue, K. Tanigaki, “Two Different Ground States in K-Doped Polycenes” Gordon Research Seminar on Conductivity and Magnetism in Molecular Materials, Mount Holyoke College, MA, August 14, 2016.

[10] S. Heguri (invited), “Two Different Ground States in K-Doped Polycenes” Gordon Research Conference on Conductivity and Magnetism in Molecular Materials, Late Breaking Topics on Superconductivity, Mount Holyoke College, MA, August 18, 2016.

[11] 平郡 諭, 松田祐貴, 谷垣勝己, “Mott 転移近傍におけるフラレン超伝導体の電気輸送特性” 物性研短期研究会「電子系物性科学の最前線」, P38, 東京大学物性研究所, 2016 年 8 月 9 日

[12] 平郡 諭, “Advanced クロモノ科学” 第 2 回東北大学附置研究所若手アンサンブル

ワークショップ, P01, 東北大学金属材料研究所, 2016年7月12日

[13] S. Heguri (poster award), N. Kawade, T. Fujisawa, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, K. Tanigaki, M. Mototada, "Superconductivity in the graphite intercalation compound BaC_6 " International Workshop on Superconductivity and Related Functional Materials 2016, P10, WPI-AIMR, 2016.03.17.

[14] 平郡 諭, P. T. N. Quynh, 田村宏之, 中野岳仁, 野末泰夫, 谷垣 勝己, "電子ドーブされた直鎖状炭化水素の基底状態" 日本物理学会第71回年次大会, 19pBG-10, 東北学院大学, 2016年3月19日

[15] S. Heguri, Q. T. N. Phan, H. Tamura, T. Nakano, Y. Nozue, K. Tanigaki, "Ground states in electron doped polycenes" The AIMR International Symposium 2016, Sendai, 2017.02.23.

[16] 平郡 諭, P. T. N. Quynh, 田村宏之, 中野岳仁, 野末泰夫, 谷垣 勝己, "電子ドーブされた直鎖状炭化水素の基底状態" 第8回東北大学研究会金属錯体の固体物性最前線, 東北大学, 2016年2月21日

[17] S. Heguri, M. Kobayashi, K. Tanigaki, "Questioning of superconductivity in aromatic hydrocarbons" PacifiChem 2015, MTL2070, Hawaii, 2015.12.18.

[18] 平郡 諭, 小林本忠, 谷垣勝己, "芳香族超伝導の検証" 第42回炭素材料学会年会, 3C21, 関西大学, 2015年12月4日

[19] 平郡 諭, 河出直哉, 藤沢拓実, 山口明, 住山昭彦, 谷垣 勝己, 小林本忠, "黒鉛層間化合物 BaC_6 の超伝導" 第42回炭素材料学会年会, 3C21, 関西大学, 2015年12月4日

[20] 平郡 諭, 小林本忠, 谷垣勝己, "縮合多環系炭化水素化合物の反応過程と基底状態" 日本物理学会 2015年秋季大会, 18pAF-12, 関西大学, 2015年9月18日

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織
(1) 研究代表者
平郡 諭 (Satoshi Heguri)
東北大学原子分子材料科学高等研究機構
助教
研究者番号：70611648

(2) 研究分担者 ()

研究者番号：

(3) 連携研究者 ()

研究者番号：