

## 様式 C-19

# 科学研究費補助金研究成果報告書

平成 21 年 5 月 27 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間： 2007-2008

課題番号： 19740200

研究課題名 (和文) 磁場誘起超伝導近傍の新奇電子相の解明

研究課題名 (英文) Unconventional electronic state near field induced superconductivity

研究代表者

藤山 茂樹 ( FUJIYAMA SHIGEKI )

独立行政法人理化学研究所・高木磁性研究室・専任研究員

研究者番号： 00342634

研究成果の概要：

近年、分子性導体は新たな強相関電子系研究の舞台として認識されている。特に、分子性導体において見いだされた磁場誘起超伝導は、伝導電子と局在スピンの間の反強磁性的交換相互作用の存在を強く示唆し、有機導体研究の新たな潮流となっている。本課題では、金属層と絶縁体層が交互積層した有機導体 (Me-3, 5-DIP)  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$  をとりあげ、局在的性格を持つ  $\pi$  電子と遍歴  $\pi$  電子の交換相互作用が極めて強いために、遍歴電子磁化率が低温で抑制されていることを発見した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,200,000	0	2,200,000
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	300,000	3,500,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学、物性 II

キーワード：有機導体、磁場誘起超伝導、磁性

## 1. 研究開始当初の背景

有機導体は、TMTSF や BEDT-TTF などのドナー分子と陰イオンによって構成され、ドナーからの電荷移動により、1/4 フィリングや 1/2 フィリングなどの電子系が実現する。近年の研究から、これら有機導体の中に、電子間に働くクーロン反発力や強い反強磁性揺らぎのために、電荷秩序絶縁体やモット絶縁体を基底状態に取るものが数多く見いだされ、強相関電子系の舞台の一つとして認識されるようになってきている。強相関電子系研究における有機導体の大きな利点として、分子の「やわらかさ」があげられる。このため、陰イオン置換による化学圧力や、外部からの物理的圧力印可により電子状態が劇的に変化し、これまでに温度-圧力をパラメーターとする統一的電子相図が完成され、研究の指針となっている。

近年、BEDT-TSF(以下 BETS) 分子を骨格として持つ二次元有機超伝導体  $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub> GaCl<sub>4</sub> の陰イオンサイトに磁性イオン (高スピン状態の Fe) を導入した  $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub> FeCl<sub>4</sub> に外部磁場を印可していくことにより、ゼロ磁場反強磁性絶縁体から、磁場印可による強制強磁性をともなう金属に転移し、さらに17T から 40T という強磁場領域において超伝導 ( $T_c = 0.8$  K) が発現することが見いだされた。[S. Uji et al. Nature 410, 908(2000)] 一般的に、磁場は超伝導の対破壊をもたらすため、こういった物質は過去にほとんど例がない。我々は最近 10T から

15T の磁場領域で磁場誘起超伝導が見いだされた  $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub> FeBr<sub>4</sub> をとりあげ、その超伝導発現機構を明らかにするために、常伝導相においてドナー分子である BETS 内にある Se 核 NMR を行った。周波数シフトの一定磁場下における温度依存性、および 1.5K における磁場依存性から、伝導  $\bullet$  電子系の帯磁率はアニオン中の Fe スピン ( $S = 5/2$ ) が磁場方向に作る磁化に依存せず、伝導電子の感じる局所磁場が Fe の局在 d スピンと  $\bullet$  電子の交換相互作用による交換磁場と外部磁場の和として記述できることを明らかにした。局所磁場は磁場誘起超伝導の発現する磁場 12.5T においてほぼゼロになり、d スピンと  $\bullet$  電子の交換相互作用を評価すると反強磁性的で  $J = -24$  kOe/ $\mu$ B となる。これは、Jaccarino らにより議論された、局在スピンの交換相互作用が伝導電子に与える反強磁性的交換磁場と外部磁場のバランスのとれた外部磁場で超伝導が発現する、という磁場誘起超伝導発現機構と矛盾しない結論であり、初めての実験的証左となっている。[S. Fujiyama et al. Phys. Rev. Lett. 96, 217001(2006)]

## 2. 研究の目的

上記磁場誘起超伝導体が伝導電子と局在スピンの波動関数の重なり積分が小さく、両者の相互作用を交換磁場という平均場的なもので見方で理解できるのに対し、いわば有機導体版近藤物理というものがないのか、という興味を持たれる。本課題では、局在スピンと遍歴電子の双方が  $\pi$  電子によって作られ

るという有機導体を取りあげ、両者の電子相関が物性にどのような影響を与えるのかを調べることを目的とする。

### 3. 研究の方法

とりあげた物質

(Me-3,5-DIP) [Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>は伝導電子が存在するNi(dmit)<sub>2</sub>位置に<sup>13</sup>Cを導入することができる。この核を用いた核磁気共鳴を行うことにより伝導電子位置の局所的静的・動的磁化率を議論した。

### 4. 研究成果

金属層と絶縁体層が交互積層した有機導体 (Me-3,5-DIP) [Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>は金属と絶縁層間に大きな遷移積分があると計算されている。私は、絶縁層の反強磁性相関が成長し始める温度以下で、金属層の静的および動的磁化率が抑制される、擬ギャップ的振る舞いを発見した。これは、この物質中の伝導電子とS=1/2局在スピンの電子相関に起因していると考えることができ、有機導体においてこの種の擬ギャップ現象が観測された初めての例である。これら一連の研究で、伝導電子と局在スピンの混成の強さによって、伝導電子スピンの低エネルギー励起の構造が大きく異なることを示した。

### 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2件)

1. S. Fujiyama, A. Shitade, K. Kanoda, Y. Kosaka, H.M. Yamamoto, and R. Kato, "Suppression of electronic susceptibility in

metal-Mott insulator alternating material, (Me-3,5-DIP) [Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>, Phys. Rev. B rapid comm. 77 060403(R) (2008) (査読有).

2. F. Iwase, K. Miyagawa, S. Fujiyama, K. Kanoda, S. Horiuchi, and Y. Tokura, "Neutral-Ionic phase transition in DMTF-QCl<sub>4</sub> investigated by <sup>35</sup>Cl NQR", J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 073701 (2007) (査読有).

[学会発表] (計13件)

1. Workshop on Inelastic Neutron and X-Ray Scattering in Strongly Correlated Electron Systems "Magnetic X-ray scattering of spin-orbital strongly coupled antiferromagnet, Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>", 藤山茂樹 2008.10 Sendai, invited
2. International Workshop on Quantum Critical Phenomena and Novel Phases in Superclean Materials, "Unconventional J=1/2 state in 5d transition metal oxide" 藤山茂樹 2009.1 Hawaii, USA, invited.
3. Hong-Kong Forum of Physics, "Spin excitation spectra of Hyper-Kagome Na<sub>4</sub>Ir<sub>3</sub>O<sub>8</sub>" 藤山茂樹 2008.12 Hong-Kong, invited.
4. 「異常量子物質の創成」研究会「三次元ハイパーカゴメNa<sub>4</sub>Ir<sub>3</sub>O<sub>8</sub>のNMR」藤山茂樹 2008.1 名古屋大学

5. 日本物理学会「ハイパーカゴメ $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ の NMR」藤山茂樹 2007.9 北海道大学
6. JST 研究会「Spin Dynamics of Hyper-Kagome Iridate」藤山茂樹 2008.3 湘南国際村
7. Emergent Phenomena of Correlated Materials"Quantum spin liquid state with strong LS coupling" 藤山茂樹 2009.3 Okinawa
8. American Physical Society March Meeting" LS separation of  $J=1/2$  Mott insulator observed by magnetic X-ray diffraction "藤山茂樹 2009.3 Pittsubrugh.
9. 日 本 物 理 学 会  
「(Me-3,5-DIP)  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$  の  $^{13}\text{C}$  NMR」藤山茂樹 2007.3 鹿児島市
10. 「新しい環境下における分子性導体の特異な機能の探索」 「モット絶縁体-金属交互積層系 (Me-3,5-DIP)  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$  の  $^{13}\text{C}$  NMR」藤山茂樹 2007.1 北海道大学
11. AIST international Workshop "Pseudogap behavior in  $\text{Ni}(\text{dmit})_2$  based organic conductor "藤山茂樹 2007.5 秋葉原
12. 「フラストレーションが創る新しい物性」研究会  
「ハイパーカゴメ  $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$  の磁気励起」藤山茂樹 2008.1 京都大学
13. 理化学研究所研究会  
"Spin dynamics in the hyperkagome system" 藤山茂樹 2007.12 理研

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

藤山 茂樹 (FUJIYAMA SHIGEKI)

独立行政法人理化学研究所・高木磁性研究室・専任研究員

研究者番号：00342634