

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14400

研究課題名（和文）有機超伝導体における熱輸送測定を用いたFFLO秩序変数の空間変調ベクトル観測

研究課題名（英文）The FFLO modulation vector observation using transport measurements in organic superconductors.

研究代表者

杉浦 栞理 (SUGIURA, Shiori)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：20869052

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) 超伝導は、BCS超伝導とは全く異なる「エキゾチック超伝導」として、超伝導クーパ対の有限な重心運動量 q によってもたらされる特異な超伝導状態に興味を持たれてきた。本研究ではFFLO研究に残された課題である「 q ベクトル観測」を目的とした熱・輸送特性測定を層状有機超伝導体において行った。詳細な電気抵抗測定からは、 q による r の振動を間接的に示す特徴的な抵抗振動を観測し、その磁場方位依存性を明らかにした。この結果から、一部の層状有機超伝導体では複数の q を持つマルチ q ベクトル状態が実現する可能性を実験から示唆した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

エキゾチック超伝導の外場に対する安定性の理解は超伝導の実用に向けて欠かせない。中でも磁場に対して強固なFFLO超伝導研究では、FFLO状態が限定的な環境下において発現する為、表面測定を用いた強磁場超伝導の秩序変数の直接観測が難しく、FFLO状態を決定付ける q ベクトルの観測という重要課題が残されてきた。本研究では、 q ベクトルによってもたらされるノード構造を超伝導渦糸ダイナミクスから間接的に観測する事に成功した。有機超伝導体における q ベクトルの面内異方性にまで言及した実験結果は本研究が初めてであり、この結果によって強磁場超伝導状態の安定性に関する理論的・実験的研究が更に前進する事が期待できる。

研究成果の概要（英文）：Anisotropic superconductors have attracted a lot of interest. When superconductivity is in the clean limit and the orbital effect is strongly quenched, a novel superconducting phase, Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) phase is theoretically predicted, which can be stabilized above the Pauli limit. In this study, we focused on the stability of the FFLO phase in the organic superconductors. Characteristic corrugations in the field dependence of the interlayer resistance in the superconducting phase were observed at any in-plane field directions. The features were ascribed to the commensurability (CM) effect between the Josephson vortex lattice and the periodic nodal structure of the superconducting gap in the FFLO phase. The CM effect was observed in a similar field region for various in-plane field directions, in spite of the anisotropic nature of the Fermi surface. The results clearly showed that the FFLO phase stability is insensitive to the in-plane field directions.

研究分野：低温強磁場物性

キーワード：超伝導 有機伝導体 強磁場 低温 FFLO超伝導

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

超伝導電子対(クーパー対)がゼロではない有限な重心運動量 q を持つ Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) 超伝導は、BCS 理論 ($q = 0$) の枠組みでは説明できない秩序変数 (r) の空間変調を示す「エキゾチック超伝導」という新たな枠組みの超伝導としてその磁場中相転移や (r) の直接観測に興味を持たれている。数ある超伝導体の中でも有機超伝導体は FFLO 状態の厳しい発現条件をよく満たすことから、相転移磁場 (H_{FFLO}) や相内部の構造を明らかにしようとする研究が盛んにおこなわれてきた。特に有機超伝導体 $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$ ($T_c = 10 \text{ K}$, $H_{\text{FFLO}} = 23 \text{ T}$) や $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{SF}_5\text{CH}_2\text{CF}_2\text{SO}_3$ ($T_c = 5 \text{ K}$, $H_{\text{FFLO}} = 9 \text{ T}$) を用いた研究では、FFLO 超伝導相の存在を強く示唆する高周波応答の異常ピーク、NMR シフトの減少、磁気トルクと磁気熱量効果での反磁性の急激な減少と一次相転移を示す熱異常が臨界磁場以下で実験的に観測されている。さらに FFLO 相内部の構造においても FFLO 状態での q ベクトルの大きさを反映していると考えられる磁場方位に敏感な抵抗振動が報告され、その結果から FFLO 相内での (r) の振動周期の磁場依存性などが示されてきた。FFLO 相の観測に関しては、 CeCoIn_5 、 Sr_2RuO_4 、 FeSe などの無機化合物超伝導体でもいくつかの実験的示唆があるが、FFLO 相内における (r) の磁場依存性にまで言及できているのは有機超伝導体を用いた研究のみであり、より詳細な物質依存性も含めた相転移磁場や相内部構造の解明に向けた研究が進展しつつある。

2. 研究の目的

本研究では、未だ明らかとなっていない有機超伝導体の FFLO 超伝導状態における q ベクトルを観測し、その異方性について知見を得る事を目的とした。具体的には下記を目指した。

- (1) 極低温・強磁場下で用いる二軸回転機構に対応する小型真空断熱セルを作成し、それを用いて FFLO 超伝導相におけるボルテックスネルンスト信号を観測する
- (2) 強磁場超伝導相における抵抗測定によって FFLO 超伝導を特徴付ける q ベクトルを観測し、その面内磁場方位依存性からノーダルライン構造を明らかにする

3. 研究の方法

(1) ボルテックスネルンスト効果はボルテックスの運動に対して敏感な物理量である。高温超伝導体やアモルファス超伝導体において、特に超伝導ゆらぎの検出に有効な実験手法として研究が進んできた。FFLO 状態では、 q ベクトルによって生じたノーダルラインに直交した方向へ熱勾配が生じたときにボルテックスネルンスト効果が大きくなることが予想される。しかし、ボルテックスネルンスト効果の観測には超伝導面に垂直な成分を持つ超伝導渦糸量子であるパンケーキボルテックスが必要であり、面平行磁場中で発現する FFLO 超伝導近傍でこれに挑戦した例は未だ無かった。そこで、本研究ではまずボルテックスネルンスト効果によって FFLO 超伝導を観測できるかを確認した。

(2) FFLO 超伝導相内では、(r) によるノーダルラインの間隔と、外部磁場によって超伝導層間に作られるジョセフソンボルテックスの格子間隔との整合・不整合によって相対的なピニング力が変化する事により、面間電気抵抗に振動 (FFLO 相における整合効果) が現れる事が知られている。本研究ではこれまでに取り組まれてきた面間方向への磁場方位制御だけでなく面内方向の磁場方位も制御した上で交流 4 端子法による電気抵抗を行った。本研究では ^3He 冷凍機を用いた低温環境下へ二軸回転機構を導入する事によって、 $\sim 0.5 \text{ K}$ の温度域で角度 ~ 0.1 度の精

度で再現性よく磁場方位を制御することが可能となった。

4．研究成果

(1) 強磁場・極低温装置の試料空間に合わせたこれまでにない小型の真空断熱セル（直径～10 mm）を作成し、磁場中・低温超伝導相内での実験を有機超伝導体 $(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$ を用いて行った。セル内への熱リークを最小に抑える為、セル内の配線には熱伝導度の小さい極細線材を利用する、線の長さを確保する為に配線は微小コイル状にするといった工夫を凝らした。このセルを用いて、超伝導面に対して垂直な磁場中において実験を行った。その結果、超伝導渦糸ダイナミクスに起因する起電力変化を観測する事ができた。

次に同じセル、および試料を用いてより強磁場・極低温での実験へと対応させる事を試みた。実験の結果、磁場を正確に面内に印加した FFL0 超伝導相では観測される信号が本研究計画において想定した実験精度の範囲よりも小さく（または同程度で）、有意な結果を得ることができなかった。その原因としてはポルテックスネルンスト効果に必要なパンケーキポルテックスの密度が FFL0 状態を発現する面平行磁場中では極めて小さいことが挙げられる。しかしながら、本研究で実験的観測に必要な信号強度の目安が得られたため、FFL0 超伝導発現条件下で有意な信号を検出するためのシステムの構築における今後の課題と指針が明らかとなった。

(2) 有機超伝導体の中でも極めて二次元性が高い事が知られる $(\text{BEDT-TTF})_2\text{SF}_5\text{CH}_2\text{CF}_2\text{SO}_3$ における電気抵抗測定を、 ^3He 冷凍機中の二軸回転機構を用いて行った。実験の結果、FFL0 相転移における抵抗異常と FFL0 相内における整合効果を明確に観測した。詳細な面内磁場方位異方性測定から、 $(\text{BEDT-TTF})_2\text{SF}_5\text{CH}_2\text{CF}_2\text{SO}_3$ においては整合効果の異方性が小さいことが明らかになった。これは整合効果の発現に重要なノーダルラインの構造が複雑で、有限抵抗をもたらす超伝導渦糸に対する相対的なピンング力の異方性が小さいことを示している結果と考えられる。これらの結果から、FFL0 超伝導相内において複数の q ベクトルが存在する（マルチ q ベクトル状態）の可能性を実験から示唆した。このような有機超伝導体における FFL0 状態での q ベクトルの面内異方性に関する実験的なアプローチは本研究が初めてであり、本研究で得られた結果は FFL0 超伝導における今後の理論的・実験的研究に対して重要な知見を与える事ができた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sugiura Shiori, Terashima Taichi, Uji Shinya, Schlueter John A.	4. 巻 90
2. 論文標題 Deformed Waveshape of Quantum Oscillation in Magnetocaloric Effect for Layered Organic Superconductor	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 074601 ~ 074601
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.90.074601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Sugiura Shiori, Akutsu Hiroki, Nakazawa Yasuhiro, Terashima Taichi, Yasuzuka Syuma, Schlueter John A., Uji Shinya	4. 巻 11
2. 論文標題 Fermi Surface Structure and Isotropic Stability of Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov Phase in Layered Organic Superconductor -(BEDT-TTF)2SF5CH2CF2S03	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 1525 ~ 1525
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/cryst11121525	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 杉浦菜理, 佐々木孝彦, 寺嶋太一, 宇治進也, 坏広樹, 中澤康浩, 安塚周磨, J. A. Schlueter,
2. 発表標題 "型層状有機超伝導体における渦糸ダイナミクスと FFL0超伝導の異方性
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉浦菜理, 森定恭平, 寺嶋太一, Toby Blundell, Lee Martin, 坏広樹, 中澤康浩, 宇治進也, 佐々木孝彦
2. 発表標題 層状有機超伝導体 "-(ET)2[(H2O)(NH4)2Cr(C2O4)3] · 18-crown-6 におけるFFL0超伝導
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shiori Sugiura
2. 発表標題 Anisotropy of Josephson vortex dynamics in FFLO phase for layered organic superconductors
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
英国	Nottingham Trent University			
米国	Argonne National Laboratory	National Science Foundation		