

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：35403

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400383

研究課題名(和文) 磁束フロー抵抗からみた異方的超伝導体の波動関数

研究課題名(英文) Nodal structure of unconventional superconductors probed by flux-flow transport measurements

研究代表者

安塚 周磨 (Yasuzuka, Syuma)

広島工業大学・工学部・准教授

研究者番号：80382034

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：クーパー対の対称性(超伝導ギャップ構造)に関する研究は、極低温下での比熱や熱伝導率の磁場方位依存性を手段として調べられてきた。しかし、多くの非BCS超伝導体が圧力下の量子臨界点で出現するため、実験的解明は困難を極めていた。本研究では擬二次元d波有機超伝導体に対して、圧力下でも測定が容易な磁束フロー抵抗測定に注目し、磁束フロー抵抗測定が超伝導ギャップ構造を探るのに有効なプローブになり得るか、その可能性を実験面から検証した。実験の結果、二次元性が強い系では超伝導ギャップ構造を反映した磁場方位異方性を示すのに対し、三次元性が強い系ではフェルミ面の異方性を反映することが分かった。

研究成果の概要(英文)：The symmetry of the pairing state of Cooper pairs is of great interest. It has been extensively investigated by some experimental methods such as specific heat and thermal conductivity measurements for many unconventional superconductors. However, it is very difficult to perform these experiments under pressure despite the discoveries of many pressure-induced superconductors. Thus, the establishment of experimental method to determine the gap structure of the pressure-induced superconductivity is a primarily important issue. To test the experimental determination of the gap structure, we measured the flux-flow resistance (FFR) for some quasi-two-dimensional (Q2D) organic superconductors with d-wave gap structure in magnetic field rotating within the 2D conducting layer. We find the clear fourfold symmetry of the FFR related to the superconducting gap structure for highly 2D systems, whilst the twofold symmetry associated with the Fermi surface anisotropy for anisotropic 3D systems.

研究分野：物性物理学

キーワード：異方的超伝導 超伝導ギャップ 磁束フロー抵抗

1. 研究開始当初の背景

これまでに重い電子系、有機物、銅酸化物等の強相関電子系において、従来のBCS超伝導体とは異なるギャップ構造をもつ異方的超伝導体が圧力下の量子臨界点において数多く発見されてきた。異方的超伝導体の特徴は超伝導ギャップがゼロになる部分、つまり「ノード」が存在することである。ギャップ構造はクーパー対の起源と密接に関係しているため、その解明は超伝導の発現機構を知る上で重要な情報を与える。点状や線状のノードが存在するか否かについては比熱や核磁気緩和率の温度依存性が温度のべき乗則に従うかどうかでわかるが、運動量空間のどの方向にノードが存在するのかまでは分からない。近年、この問題に関して超伝導混合状態における比熱や熱伝導率の磁場方位依存性からノード構造を明らかにする研究が、主に国内の研究者によって精力的に行なわれ、比熱や熱伝導率が超伝導ギャップ構造を反映して印加磁場方向に対して振動するという実験結果が報告されている。しかし磁場角度分解比熱や熱伝導率測定実験は、圧力下で行なうことが非常に困難であることから、圧力下において超伝導ギャップ構造を決定するための実験手法の確立は、強相関電子系における重要な課題のひとつである。

2. 研究の目的

これまでに我々は、典型的なd波有機超伝導体 κ -(ET)₂Cu(NCS)₂ ($T_c = 10.4$ K)の磁束フロー抵抗の面内異方性を測定し、その結果d波対称性に由来すると考えられる磁束フロー抵抗の面内磁場方位依存性を見出してきた。本物質のように二次元性の強い異方的超伝導体では、磁場を伝導面と平行に印加するとジョセフソン磁束が形成されることが知られている。このとき磁束の周りに流れている超伝導電流により準粒子エネルギーにドップラー効果が生じるため、準粒子数はギャップ構造を反映して磁場方向に依存する。そのため磁束ダイナミクスのエネルギー散逸もギャップ構造を反映して磁場方向とともに変化すると考えられる。本研究では、これまで研究してきた κ -(ET)₂Cu(NCS)₂に加え、スピン揺らぎが重要な役割を担うと期待される λ -(BETS)₂GaCl₄や電荷ゆらぎによるクーパー対形成機構が提案されている β'' -(ET)₂SF₅CH₂CF₂SO₃などのd波有機超伝導体に対して磁束フロー抵抗測定を行ない、磁束フロー抵抗の磁場方位依存性とクーパー対形成機構の関係を実験面から明らかにすることが目的である。

3. 研究の方法

本研究では、純良な単結晶が必要不可欠である。 κ -(ET)₂Cu(NCS)₂単結晶試料は、兵庫県立大の山田教授のグループで、 λ -(BETS)₂GaCl₄単結晶試料は日本大学の小林教授のグループで、 β'' -(ET)₂SF₅CH₂CF₂SO₃単

結晶試料は、米国アルゴンヌ国立研究所のJ. A. Schlueter教授のグループで合成方法が確立している。本研究では、これらのグループから提供された試料を用いた。測定に関しては、強磁場・極低温が必要とされるため、物質・材料研究機構(NIMS)共同利用施設の17 T超伝導マグネットを利用した。上部臨界磁場および磁束フロー抵抗の面内異方性を調べるためには、伝導面に対して高い精度で磁場方向を制御することが必要不可欠である。高い精度で磁場方向を制御するために、本研究ではNIMS既設の二軸回転プローブを用いた。これにより極角 θ と方位角 ϕ をコントロールし、0.01°という高精度で伝導面と平行に磁場を印加し、伝導面内で磁場を回転させた。

4. 研究成果

(1) κ -(ET)₂Cu(NCS)₂

FIG. 1に様々な電流値での磁気抵抗の面内異方性を示す。10 μ Aではゼロ抵抗状態にあるが、電流が大きくなるにつれて、明瞭な振動構造が観測されるようになる。この磁気抵抗の四回対称性は、様々な温度での磁気抵抗の面内異方性でも確認された (FIG. 2)。

過去の磁化率測定から決定された $T = 0$ Kにおける面間方向のコヒーレンス長さは $\xi_{\perp} = 0.3$ nm程度であり、十分低温では磁束芯を持たないジョセフソン磁束が形成されていると考えられるが、 $H_{c2}(T)$ ライン付近では2D-3D次元クロスオーバーが起こり、磁場を伝導面に平行に印加した場合でも、磁束芯を持つアブリコソフ磁束が形成されているはずである。クロスオーバー温度を T^* として、 $\xi_{\perp}(T)$ が層間距離 $d = 1.5$ nmに等しくなるときに次元クロスオーバーが起こるとすると、 $T^*/T_c = 1 - [\xi_{\perp}/1.5]^2 \sim 0.91$ となる。 $H = 13$ Tでは $T_c = 7.9$ Kなので、 $T^* = 7.2$ Kと求められる。

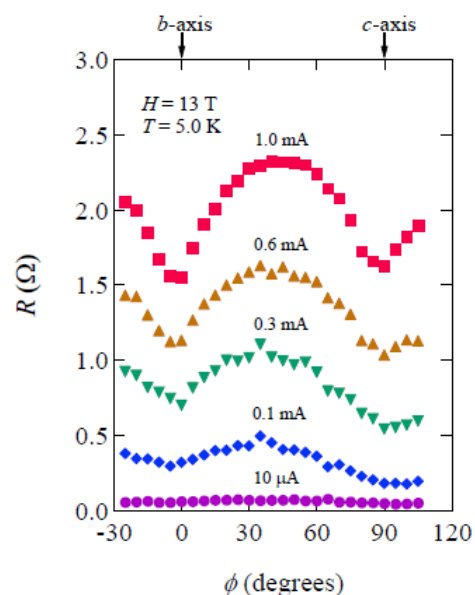


FIG. 1. ϕ -dependence (in-plane anisotropy) of the magnetoresistance of the vortex state in κ -(ET)₂Cu(NCS)₂ at various currents.

る. FIG. 2 で観測された振動構造は, オンセット付近まで観測されることから, $T < T^*$ ではジョセフソン磁束, $T > T^*$ ではアブリコソフ磁束によるフロー抵抗が重要な役割を担っているものと考えられる. 反ノード方向よりもノード方向に多くの準粒子が存在するから, 異方的超伝導体において, 渦糸ダイナミクスの異方的散逸が存在するか否かに興味を持たれる. また, 常伝導相($T > 10$ K)における振動構造の起源として, 単なるフェルミ面の異方性に由来するものなのか, 超伝導擬ギャップに由来するものなのか, 興味を持たれるところである.

最近, 林らにより d 波超伝導におけるアブリコソフ磁束のフロー抵抗の面内異方性が理論的に検討されており, ノード方向で磁束芯での散逸が顕著になりフロー抵抗が増大すると予測されている. この状況は $T > T^*$ に相当すると考えられる. κ -(ET)₂Cu(NCS)₂ に関する詳細は, S. Yasuzuka et al., J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 064716/1-6 にまとめられている.

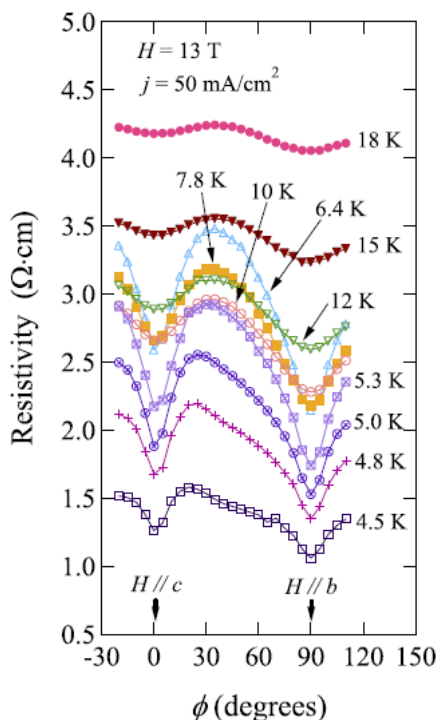


FIG. 2. In-plane anisotropy of the magnetoresistance of the vortex state in κ -(ET)₂Cu(NCS)₂ at various temperatures.

(2) λ -(BETS)₂GaCl₄

κ -(ET)₂Cu(NCS)₂ と類似のフェルミ面をもつ d 波有機超伝導体 λ -(BETS)₂GaCl₄ に興味を持って, この系の磁束フロー抵抗を測定した. $T = 4.2$ K, $H = 8.5$ T での磁束フロー抵抗の面内異方性を FIG. 3 に示す. 電流の増加とともに抵抗値が増大しており, 磁束ダイナミクスによる非線形伝導が顕著になる. 磁場が c^* 軸にほぼ平行なとき鋭いディップ構造が観測される. STM 分光によれば, a^* および c^* 方向にノードをもつことが報告されているが, 磁束

フロー抵抗の面内異方性は二回対称性のみを示すことが分かった. 四回対称性が観測された κ -(ET)₂Cu(NCS)₂ に比べて二次元性が弱いことから, 本物質の二回対称性の起源としてフェルミ面の異方性が重要な役割を果たしていると思われる. 詳細は, S. Yasuzuka et al., J. Phys. Soc. Jpn. **83** (2014) 013705/1-4. にまとめられている.

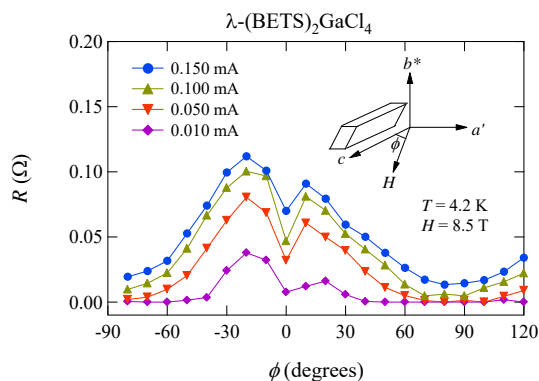


FIG. 3. ϕ -dependence (in-plane anisotropy) of the magnetoresistance of the vortex state in λ -(BETS)₂GaCl₄ at various currents.

(3) β'' -(ET)₂SF₅CH₂CF₂SO₃

FIG. 4 に β'' -(ET)₂SF₅CH₂CF₂SO₃ の磁束フロー抵抗の磁場方位依存性を示す. 10 μ A ではほぼゼロ抵抗を示すが, 電流の増加とともにフロー抵抗は明瞭な 4 回対称性を示し, 磁場の方向が b 軸および a 軸付近で鋭い dip 構造が現れる. 同様の振舞いは, 電流を固定し磁場を増大させたときにも観測された. フロー抵抗の大きさは磁束の速度に比例するので, b 軸および a 軸付近の鋭い dip 構造はこれらの方向に磁場を印加したときのみ何らかの強い散逸が生じていることを示唆する.

磁場と電流は常に直交しておりローレンツ力は一定であるから, 異方的な散逸を生じる原因として, ドブラー効果による準

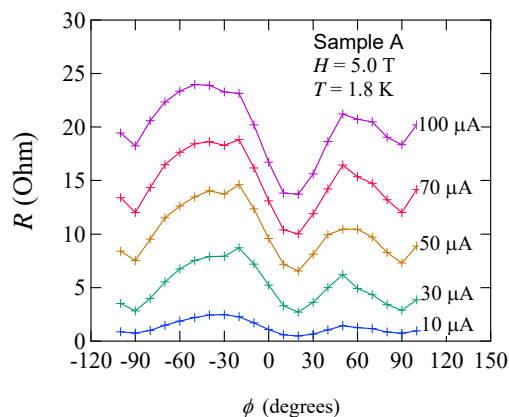


FIG. 4. In-plane anisotropy of the flux-flow resistivity for β'' -(ET)₂SF₅CH₂CF₂SO₃ at various currents for $H = 5$ T and $T = 1.8$ K.

粒子励起が重要な役割を担っていると考えている。ドップラー効果による準粒子励起はノード方向よりも反ノード方向に磁場を印加した方が多い。従って、反ノード方向に磁場を印加した時に散逸効果が顕著になると期待される。散逸が顕著になると磁束の運動が抑制されフロー抵抗は減少するので、反ノード方向に磁場を印加したときにフロー抵抗が小さくなると考えられる。実際、上部臨界磁場の面内異方性の測定から、反ノード方向は b 軸および a 軸方向にほぼ対応することが示唆され、電荷揺らぎによる d 波異方性を仮定することで、上記のモデルと矛盾なく説明できることが分かった。また、この系は非常に二次元性の強い系であることから、二次元性が強い系ほど磁束フロー抵抗の異方性はフェルミ面の異方性よりも超伝導ギャップ構造に支配されることが分かった。詳細は、S. Yasuzuka et al., J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 094709/1-7.にまとめられている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① Shubnikov-de Haas Effect and Angular-Dependent Magnetoresistance in Layered Organic Conductor β'' -(ET)(TCNQ)
S. Yasuzuka, S. Uji, T. Konoike, T. Terashima, D. Graf, E.S. Choi, J.S. Brooks, H.M. Yamamoto, and R. Kato
J. Phys. Soc. Jpn. **85** (2016), in press. (査読有)
- ② In-Plane Anisotropy of Upper Critical Field and Flux-Flow Resistivity in Layered Organic Superconductor β'' -(ET) $_2$ SF $_5$ CH $_2$ CF $_2$ SO $_3$
S. Yasuzuka, S. Uji, T. Terashima, K. Sugii, T. Isono, Y. Iida, and J. A. Schlueter
J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 094709/1-7. (査読有)
- ③ Hidden Spin Scattering Behavior in [Ni $_{1-x}$ Cu $_x$ (tmdt) $_2$] System with Unprecedentedly Strong π -d Interaction
S. Yasuzuka, Y. Idobata, B. Zhou, A. Kobayashi, K. Katoh, H. B. Cui, R. Kato, M. Tokumoto, and H. Kobayashi
J. Phys. Soc. Jpn. **83** (2014) 074701/1-5. (査読有)
- ④ In-Plane Anisotropy of Flux-Flow Resistivity in Layered Organic Superconductor λ -(BETS) $_2$ GaCl $_4$
S. Yasuzuka, S. Uji, T. Terashima, K. Sugii, B. Zhou, A. Kobayashi, and H. Kobayashi
J. Phys. Soc. Jpn. **83** (2014) 013705/1-4. (査読有)

⑤ Anisotropic Josephson-Vortex Dynamics in Layered Organic Superconductor with d-Wave Pairing Symmetry

S. Yasuzuka, K. Saito, S. Uji, M. Kimata, H. Satsukawa, T. Terashima, and J. Yamada
J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 064716/1-6. (査読有)

[学会発表] (計 4 件)

① In-plane anisotropy of the flux-flow resistivity in the layered organic superconductor β'' -(ET) $_2$ SF $_5$ CH $_2$ CF $_2$ SO $_3$
S. Yasuzuka, S. Uji, T. Terashima, S. Tsuchiya, K. Sugii, B. Zhou, H. Kobayashi, A. Kobayashi
The International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors, and Magnets, 2015 (ISCOM2015)
Sept 6-11, Bad Gogging, Germany

② In-plane anisotropy of the flux-flow resistivity in the d-wave organic superconductor λ -(BETS) $_2$ GaCl $_4$
S. Yasuzuka, S. Uji, T. Terashima, S. Tsuchiya, K. Sugii, B. Zhou, H. Kobayashi, A. Kobayashi
The International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors, and Magnets, 2013 (ISCOM2013)
July 14-19, Montreal, Canada.

③ 層状有機超伝導体 β'' -(ET) $_2$ SF $_5$ CH $_2$ CF $_2$ SO $_3$ の上部臨界磁場の面内異方性
安塚周磨, 宇治進也, 寺嶋太一, 杉井かおり, 飯田頼嗣, 磯野貴之, John A. Schlueter
日本物理学会 中部大学 春日井キャンパス (愛知県春日井市)
平成 26(2014)年 9 月 7 日

④ [Ni $_{1-x}$ Cu $_x$ (tmdt) $_2$]の磁気輸送特性と π -d 相互作用
安塚周磨, 井戸端裕樹, 周彪, 小林昭子, 加藤健一, 崔亨波, 加藤礼三, 徳本圓, 小林速男
日本物理学会 中部大学 春日井キャンパス (愛知県春日井市)
平成 26(2014)年 9 月 10 日

[その他]

ホームページ等
S. Yasuzuka's Home page
<http://syumayasuzuka.wix.com/yasuzuka>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

安塚 周磨 (YASUZUKA, Syuma)

広島工業大学・工学部・准教授

研究者番号：80382034

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし