

(TMTTF)₂Brの圧力下磁気状態の解明 (河本グループ : 居初)

擬一次元系有機導体(TMTTF)₂Brは、常圧では低温で整合スピン密度波状態へ磁気相転移するが、圧力下では秩序ベクトルが変化し非整合スピン密度波状態を取る。さらに非整合スピン密度波状態では秩序相内で磁気構造が変化し、サブフェイズと呼ばれる状態へと変化することが知られている。今年度の研究ではまず常圧において、これまで測定がほとんど行われてこなかった4 K以下の温度領域まで¹³C NMR測定を行った。その結果、常圧の整合スピン密度波状態においても秩序相内で磁気構造の変化が起こっていることを明らかにした。現在は圧力下NMR測定により、整合・非整合スピン密度波秩序、及びサブフェイズの競合状態の解明に取り組んでいる。

κ-(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃の不純物置換による¹³C-NMR (河本グループ : 斎藤)

三角格子による幾何学的なフラストレーション効果によるスピン液体の可能性が示唆されているκ-(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃に関してBEDT-TTF分子とよく似た分子構造を持つBEDT-STF分子 (S原子が二つSe原子に置き換わった分子) を置換してその効果を調べた。BEDT-STF分子は分子の一部が軌道半径の大きいSeに置き換えられていることより三角格子による幾何学的なフラストレーション効果を局所的に壊すことが可能である。しかし、乱れによる効果以外に磁性には変化を見出すことがなかった。近年、不純物置換していない純粋な塩でもアニオン相からの乱れが指摘されていることより、この物質の乱れと磁性の関係について重要な知見を得ることができた。

BEDT-STF分子を用いたBEDT-TTF超伝導体における不純物効果の研究 (河本グループ : 小林)

ほとんどの有機超伝導体は電解法により単結晶を育成するため、結晶中に不純物が混入し難く、系統的に不純物を導入することが出来なかった。これまでの不純物効果の研究は結晶にX線照射をすることで格子欠陥を導入していたが、X線照射では試料全体にわたって均一に格子欠陥を導入することは出来ない上に、欠陥がどの位置に導入されるかは自明でないため、不純物効果の完全な理解は難しかった。そこで、本研究室ではBEDT-TTF分子とよく似た分子構造を持つBEDT-STF分子 (S原子が二つSe原子に置き換わった) がわずかにBEDT-TTF塩に混入することを利用して、BEDT-STF分子を系統的に導入することで不純物効果の研究を行っている。これまでにBEDT-STF分子を10 %程度導入したκ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Brについて超伝導転移温度以下の低温領域まで¹³C NMR測定を行い、不純物散乱効果により超伝導転移温度が抑制されていることを明らかにした。また、¹³C NMR測定では¹³C置換したBEDT-STF分子を¹³C置換していないBEDT-TTF塩に導入することで不純物として導入されたBEDT-STFサイトからの¹³C NMR信号を選択的に観測することが出来る。これにより、不純物サイトでの電子状態を直接観測し、超伝導対破壊機構の解明を試みた。これまでに行った10 %程度の濃度の試料では超伝導コヒーレンス長の中に複数の不純物サイトが存在するため、単一不純物の散乱効果は見えていない。低濃度試料における単一不純物の散乱効果の観測は今後の課題である。

β'' -(BEDT-TTF)₄[(H₃O)Fe(C₂O₄)₃]·C₆H₅Brにおける局在鉄スピンと伝導電子の相関効果の研究 (河本グループ : 二見)

本来超伝導は磁性不純物に対して脆く、結晶中に局在スピンが導入されるとすぐに超伝導状態はすぐに破壊されてしまう。しかし、一部の超伝導体では伝導電子が感じる局在スピンからの交換磁場が外部磁場をちょうど打ち消すことにより磁場中でのみ超伝導が発現する磁場誘起超伝導状態が現れることがある。我々が注目している β'' -(BEDT-TTF)₄[(H₃O)Fe(C₂O₄)₃]·C₆H₅Brでは、結晶中に局在鉄スピンが存在していること、また鉄イオンをGaイオンに置き換えた塩では非常に高い上部臨界磁場が報告されていることから、非常に高い磁場中では超伝導が誘起される可能性がある。そこで、¹³C NMR測定によりまず鉄スピンと伝導電子との間の交換相互作用の強さを見積もった。その結果、鉄スピンは外部磁場と反平行の交換磁場を作っていることが明らかになり、磁場誘起超伝導が発現する可能性が強まった。しかし、鉄スピンのダイナミクスが低温まで生き残っていると、クーパー対を散乱してしまい、超伝導状態は破壊される。そこで、鉄スピンのダイナミクスを観測するため、東北大金研の強磁場共同利用施設において19 Tまでの強磁場中でNMR測定を行い、低温・強磁場中では鉄スピンのダイナミクスが十分に抑制されていることを明らかにした。これらの結果から磁場誘起超伝導発現の可能性が示唆されるため、今後はパルス強磁場を用いて交換磁場に相当する磁場中で超伝導状態を探索する予定である。

一軸圧力下NMR測定による α -(BEDT-TTF)₂MHg(SCN)₄の研究 (河本グループ : 大沼)

これまでの分子サイトごとのNMR測定により、 α -(BEDT-TTF)₂MHg(SCN)₄では3つある結晶学的に非等価なBEDT-TTF分子サイトのうちの1サイト上での局所状態密度が超伝導の発現と強く関わっていることを明らかにしてきた(研究発表3-2)。さらに α -(BEDT-TTF)₂MHg(SCN)₄は一軸性圧力を印加することで電荷密度波状態を抑制し、超伝導を誘起することが出来るため一軸圧力下でサイト依存NMR測定を行い、局所状態密度と超伝導発現機構の関係の解明を目指している。今年度はまず、一軸圧力下NMR測定を行うための装置をセットアップし、圧力印加前のNMR測定を行った。その結果、試料を圧力セルに入れたことによりわずかに加圧され、局所状態密度に変化が見られた。今後は圧力を印加し、局所状態密度の圧力変化を解明する予定である。

β -(BEDT-TTF)₂I₃ (河本グループ : 熊谷)

β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂は、約 8 GPaの加圧によりT_c = 14 K の高い超伝導転移温度をしめす物質として興味を待たれている。その超伝導メカニズムは、 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂の一次元的なFermi面が加圧により β -(BEDT-TTF)₂I₃型の閉じたFermiとなり、一次元的なFermi面によるSDW揺らぎを介した超伝導の可能性が理論的に指摘されている。しかし8 GPaでの超高压での物性実験は NMRを含めて困難が伴う。そこで、超伝導近傍でのSDW揺らぎの可能性を調べるため理論から示唆される超伝導状態のモデルである β -(BEDT-TTF)₂I₃を用いてその磁性を¹³C-NMR 実験を開始した。最初に β -(BEDT-TTF)₂I₃のデータ解析の基礎となる超微細結合定数を角度回転実験から決定して、付加的な超格子構造によりT_cが低くなった常圧の β -(BEDT-TTF)₂I₃に関して、NMRシフトとスピン格子緩和時間を測定して超格子構造状態では、Fermi液体状態が実現されていることを明らかにした。今後、本丸

である超格子構造のない0.1 GPa程度の加圧で実現されるHigh T_c相に関して調べていく予定である。

BEDT-TTF系有機超伝導体における電荷秩序状態と超伝導の研究（河本グループ：井原）

これまでに電荷秩序状態と超伝導状態が隣接して現れる有機超伝導体のうち、 α 型、 β' 型の分子配置を持つBEDT-TTF塩についてそれぞれ研究を行ってきた（研究発表3-1, 3-2）。これらの塩に加えて、電荷秩序近傍で超伝導が現れるもう一つのBEDT-TTF塩である θ 型塩で報告されている結果を比較し、BEDT-TTF超伝導体における電荷秩序と超伝導の関係の共通点・相違点を指摘した（研究発表3-5、学術講演4-2-1）。

κ -(BEDT-TTF-d[3,3])₂Cu[N(CN)₂]BrのSTM分光（松永グループ）

2次元伝導を示す有機超伝導体 κ -(BEDT-TTF)₂Xの系において、これまでに示唆されているスピン揺らぎに基づく超伝導発現メカニズムを検証するため、部分重水素化した κ -(BEDT-TTF-d[3,3])₂Cu[N(CN)₂]BrにおいてSTMを用いた角度分解STS測定を行い超伝導ギャップを調べた。d[3,3]塩は、 κ -(BEDT-TTF)₂Xの系の有効圧力をパラメータとした相図において、反強磁性相に隣接し超伝導を示す物質では極めて電子相関が強いと考えられている。この超伝導の対称性を決定するには、伝導面に垂直な様々な側面に対する測定が必要であるが、As-grown結晶ではその方位が限られるため、集束イオンビーム装置

(FIB)を用いて試料を切断し、As-grown試料では得られない様々な角度側面に対して角度分解STSを行ってきた。FIB加工においても、面指数の低い角度で切断した場合、STM測定においてAs-grown側面と同様にET分子像を確認できることから、角度分解STS測定が有効であることが明らかになっている。この手法によりさらに多くの角度のデータを集積した結果、そのアンタインードに対応するU字型からノードに対応するV字型に系統的に変化する超伝導ギャップ構造の振る舞いが確かめられ、d[3,3]塩においても電子相関の相対的に弱い κ -(BEDT-TTF)₂Cu(NCS)₂や κ -(BEDT-TTF-d[0,0])₂Cu[N(CN)₂]Brと同様に主としてdx²-y²-波対称性が実現していることが明らかになった。一方、d[3,3]塩ではアンタインードが観測される側面において、ノードに相当する超伝導ギャップ構造が同程度の頻度で観測された。また、他の方位の側面でも2種類の方位に対応するギャップが観測されたことから、同一の結晶に、dx²-y²-波対称性とdxy-波対称性が混在している可能性が明らかになった。d[3,3]塩はモット境界近くに位置し、結晶内に超伝導領域と反強磁性絶縁体領域の混在が知られており、反強磁性領域の近傍で部分的に電子相関が強くなり、dxy-波超伝導が出現したものと理解される。この結果は、スピン揺らぎのメカニズムを支持するものであり、極めて興味深い。今後、低温におけるSTM観測を含めて、超伝導領域のドメイン構造とギャップ対称性の関係を明らかにする予定である。

λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄の圧力下超伝導（松永グループ）

κ -(BEDT-TTF)₂Xと同様に2次元フェルミ面を持つ有機超伝導体である λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄は、混晶 λ -(BEDT-STF)₂GaBr_xCl_{4-x}においてバンド幅制御により調べられた結果、超伝導相に隣り合う相は非磁性の絶縁体であることが明らかになっている。したがって、 κ -(BEDT-TTF)₂Xと異なる超伝導発現のメカニズムが期待され興味を持たれている。一方で、ドナーを変えた λ -(BEDT-TTF)₂GaCl₄の基底状態は反強磁性であり、これが λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄の低圧側（化学圧）に位置すると考えられることから、 κ -(BEDT-TTF)₂Xと似た相構造も考えられる。これを解明するためには、BEDT-TTF分子とBETS分子のハイブリッドであるBEDT-STF分子をドナーとする中間の化学圧を持つ λ -(BEDT-

STF)₂GaCl₄の圧力下で、 λ -(BETS)₂GaCl₄と同様の超伝導が観測されるかに興味を持たれていたが、これまで見つかっていない。そこで、2.1 GPaまでの圧力を加え、直流4端子測定で電気抵抗測定により詳細に調べた。この結果、1.22 GPaにおいて、電気抵抗は、室温から温度を下げると一度幅の広いピークを示した後低温で金属的になり、オンセットとして5.1 Kにおいて電気抵抗の急激な減少を示した。この抵抗の減少は、0.5 T程度の磁場を加えると、破壊されたことから超伝導であることを確認した。超伝導転移温度T_cはおよそ1.35 GPaで最大値5.95 Kを示し、その後圧力の増大とともに減少し、2.1 GPa以上で超伝導は消失する。この振る舞いは、 λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄に1.35 GPaの圧力を加えた状態は、 λ -(BETS)₂GaCl₄の常圧に対応すると考えることで統一的に理解できる。最大T_cが λ -(BETS)₂GaCl₄の9.5 Kに比べて少し低いのは、BEDT-STFが非対称の形状を持つドナーであることによる向きのランダムネスによるものと理解される。また、超伝導直上の温度域では、金属的な状態が実現していると考えられ、抵抗比として得られた $\rho_{300K}/\rho_{6K}=50$ は、この結晶が極めて良質であることを示しており、今回初めて超伝導が観測された理由であると考えられる。この結果、 λ -(BEDT-TTF)₂GaCl₄、 λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄、 λ -(BETS)₂GaCl₄は同一の相図で議論すべきことが明らかになり、混晶 λ -(BEDT-STF)₂GaBr_xCl_{4-x}の系も合わせて考えると、この系の超伝導相は κ -(BEDT-TTF)₂Xの系と異なり反強磁性相と隣接していない可能性が極めて高いことが明らかになった。今後、試料依存性を含めてさらに明らかにする予定である。

λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄の電子状態 (松永グループ)

λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄の圧力下で、超伝導が確認されたことから、ドナーを変えた一連の物質 λ -(BEDT-TTF)₂GaCl₄、 λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄、 λ -(BETS)₂GaCl₄は、同一の相図で議論すべきであることが明らかになった。最も低圧側に位置する λ -(BEDT-TTF)₂GaCl₄では反強磁性相を基底状態に持ち、圧力の増加とともに高圧側の λ -(BETS)₂GaCl₄では超伝導が出現することになる。この結果、この系が κ -(BEDT-TTF)₂Xと同様に、反強磁性相と超伝導相が隣接しているかどうかは、超伝導発現のメカニズムとも関係して、きわめて興味深く、 λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄の基底状態の解明は重要となっている。これを明らかにするため、 λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄において1H-NMRにより反強磁性状態の有無を調べた。NMR線形は、2Kの低温まで反強磁性に対応する線幅の広がりや分裂は観測されず、この物質が常磁性状態にあることが確認された。スピン格子緩和率T₁⁻¹の温度依存も測定したが、磁性状態に伴う振る舞いは観測されず、反強磁性状態は少なくとも2K以上には無いことが明らかになった。さらに低温でのT₁⁻¹の予備的測定では、反強磁性揺らぎの増大を示唆する振る舞いが観測され、極めて低温で反強磁性相が安定化する可能性は残っている。いずれにせよ、 λ -(BEDT-TTF)₂GaCl₄において観測される反強磁性相は、圧力の増加とともに λ -(BETS)₂GaCl₄の超伝導になる前に、 λ -(BEDT-STF)₂GaCl₄において強く抑制されていることを示唆している。この結果は、 λ -(BEDT-STF)₂GaBr_xCl_{4-x}の混晶の系でバンド幅制御を行った振る舞いと共通であり、超伝導相は反強磁性相に隣接しておらず、この系の超伝導が κ -(BEDT-TTF)₂Xの系で示唆されるスピン揺らぎメカニズムと異なるものである可能性を強く示唆している。一方、静磁化率の測定も行ったが、スピン磁化率の温度変化は、3角格子ハイゼンベルグ反強磁性体の理論曲線で非常に良くフィットされた。このことは、幾何学的フラストレーションが反強磁性秩序を抑制していることを示唆している。また、非対称ドナーによるランダムネスが、反強磁性を抑えている可能性も残されている。一方で、結晶構造からダイマーを基にした反強磁性相互作用の計算値においては、この系のフラストレーションが強くないことが議論されているが、電荷秩序等の理由で、実質的に3角格子が実現している可能性等も考えられる。これを含めて、この系の磁性状態を今後さらに明らかにする予定である。

磁場誘起スピン密度波相におけるアニオン秩序化と有効圧力 (松永グループ)

擬一次元有機導体 $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ ($\text{X} = \text{PF}_6, \text{ClO}_4, \text{ReO}_4$ etc.)はアニオンが正八面体構造をもつ対称アニオンである PF_6 塩の場合、約12 K で金属相からスピン密度波相 (SDW) 相へ転移し、加圧すると超伝導相が基底状態となる。この超伝導相に c^* 軸方向に磁場を加えるとホール抵抗が量子化 $\rho_{xy} = h/(2Ne^2)$ ($N = \dots, 3, 2, 1, 0$) された磁場誘起 SDW (FISDW) 相が現れる。アニオンが非対称アニオンの場合、アニオンは結晶中では二つの安定な配向をもち、anion ordering温度 (TAO) で配向秩序転移をおこす。非対称アニオンである ClO_4 塩の場合、 ClO_4^- アニオンは波数 $(0, 1/2, 0)$ の周期で秩序化する。TAO 付近を徐冷すると低温で超伝導相が現れ、 c^* 軸方向に磁場をかけると量子化されたホール抵抗 ($N = \dots, 5, -1, 3, 1, 0$) を伴う FISDW 相に逐次相転移をする。正の偶数の量子数をもつ FISDW相が抑制されるのはこれまでアニオンの秩序化が原因であると考えられてきた。アニオン秩序化とFISDW相の関係をさらに調べるために圧力下における ReO_4 塩の抵抗およびHall抵抗の測定を行った。非対称アニオンである ReO_4 塩の場合、 ReO_4^- アニオンは0.8GPa以上の圧力下においては波数 $(0, 1/2, 1/2)$ の周期で秩序化し、低温で超伝導相が現れる。この状態において c^* 軸方向に磁場をかけると FISDW 相に逐次相転移をする。ホール抵抗から求めた量子数は $N = \dots, -8, -6, -4, 4, -2, 2, 1, 0$ と変化し、 ClO_4 塩とは異なり正の偶数の量子数をもつFISDW相の抑制はなく、負の偶数相が多く現れることがわかった。 ReO_4 塩における負の偶数相の出現は比較的弱圧における PF_6 塩のFISDW相と似ており、 ClO_4 塩における偶数相の抑制がアニオンの秩序化に起因するものではないことがわかった。 ClO_4 塩は常圧においてFISDW相が現れるが、 PF_6 塩と ReO_4 塩においては1 GPa程度の静水圧下でFISDW相が現れる。このことは、 ReO_4 塩と ClO_4 塩の違いが静水圧による物理圧とアニオンの置換による化学圧の違いが原因であることを示唆している。実際、1 GPa程度の静水圧下の ReO_4 塩と常圧の ClO_4 塩でTMTSF分子間の移動積分が異なり、フェルミ面の形状が異なることが分かった。このフェルミ面の形状の違いが、最適なネスティングベクトルを大きく変化させ、 ClO_4 塩と ReO_4 塩におけるFISDW相の相構造の違いの原因であると考えられる。本研究における高磁場の抵抗測定は東北大金研の金研の佐々木孝彦氏との共同利用により進めている。

一次元有機導体 $(\text{TMTTF})_2\text{X}$ のスピン密度波相 における非線形電気伝導 (松永グループ)

擬一次元有機導体 $(\text{TMTTF})_2\text{X}$ は、常圧下では 100~200 K 付近で電荷局在となり、低温でスピンパイエルス (SP) 相や反強磁性 (AFI) 相となり、加圧することにより、AFI相、SP相、反強磁性 (AFII) 相、不整合スピン密度波 (SDW) 相、超伝導相と基底状態が移り変わることが知られている。不整合 SDW 相内での多相構造の電子状態を解明するために静水圧下の $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$, $(\text{TMTTF})_2\text{AsF}_6$ の不整合 SDW 相において、非線形電気伝導の測定をおこない、SDWのスライディングのダイナミクスを調べた。その結果、SDW 転移温度 TSDW 以下の温度での電流電圧特性において、電場の増加とともに明確なしきい電場 ET を伴った鋭い伝導度の増大が両塩で観測され、ピン止めをはずしたSDWのスライディングが確認された。ETは 0.3TSDW 近傍の温度でピーク構造を示し、これより低温では急激に減少した。これに対して微分余剰伝導度は、高温域から 0.3TSDW に向けて減少し、0.3TSDW 以下では急激に上昇した。これらの温度依存の振る舞いから、0.3TSDW でのサブフェーズ転移においてSDW スライディングのダイナミクスが大きく変ることが明らかになった。 $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ において、より高電場で非線形電気伝導を測定したところ、電流の増加に伴い電圧が減少する負性微分抵抗が観測され、さらに電流を増加させたところ、Zenerタイプの電流が観測された。さらに圧力を増加させたところ、0.3TSDW 近傍の温度でピーク構造には変化がなかったがETの絶対値は減少した。また、高電場における負性微分抵抗は低電場-低電流側へシフトし、Zenerタイプの電流がより低電場側で観測された。Zenerタイプ電流の圧力依存性はTMTSF塩の実験結果と一致しており、両塩に共通の性質であると考えられる。今後、TMTTF塩における非線形電気伝導をより高圧まで測定し、負性微分抵抗およびZenerタイプ電流の起源を解明する。

擬二次元有機導体 α' -(BEDT-TTF) $_2$ IBr $_2$ の誘電特性 (松永グループ)

擬二次元有機導体 α' -(BEDT-TTF) $_2$ IBr $_2$ は、常圧下では 204 K で時間的に電荷分布が変動する無秩序状態から電荷秩序状態へ相転移を起こすと考えられている。この電荷秩序転移の電子状態を解明するために、誘電特性の測定を行った。その結果、誘電率の実部は転移に伴い急速に減少し、転移温度以下で誘電率は一般化されたDebye緩和型の大きな周波数依存性を示すことがわかった。同じく擬二次元有機導体であり金属状態から電荷秩序状態へ相転移を起こす α -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ も一般化されたDebye緩和型の大きな周波数依存性を示す。両塩とも横ストライプ構造の電荷秩序であると考えられている。 α -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ では一次元の電荷密度波構造が一般化されたDebye緩和型の大きな周波数依存性の起源であると提案されているが、 α' -(BEDT-TTF) $_2$ IBr $_2$ では系を一次元の電荷密度波構造であるとはみなすことができない。横ストライプ構造の電荷秩序であることが共通点であり、これが一般化されたDebye緩和型の大きな周波数依存性の起源であると考えられる。今後、誘電率の異方性を測定し、誘電率の異方性と電荷秩序化のパターンとの関連を調べる予定である。

カイラル超伝導体におけるチャーン不変量 (松永グループ)

本研究の目的は、カイラル超伝導体におけるトポロジカル不変量を探索することである。Sr $_2$ RuO $_4$ はスピン三重項・カイラルp波超伝導が有力視されている。まず、劈開法によりSiO $_2$ /Si基板上に取り出したSr $_2$ RuO $_4$ 単結晶薄膜へ電子ビームリソグラフィにより電極を取り付け、電子輸送測定を行った。その結果、超伝導転移温度以下のゼロ磁場において量子ホール抵抗を観測した。この量子ホール抵抗が現れる起源は、(2+1)次元の場の量子論や超流動ヘリウム3薄膜の理論研究において予言されているトポロジカルなチャーン・サイモン項の誘起により量子ホール効果が起きたと考えられる。このカイラル超伝導体Sr $_2$ RuO $_4$ におけるゼロ磁場量子ホール効果が本質的な現象であることを確かめるために、膜厚の異なる試料を複数個準備し、測定を行った。興味深いことに2次元伝導面(RuO $_2$ 面)が10-30層の試料では基底状態で量子ホール抵抗($h/4e^2 \sim h/2e^2$)を示した。一方、伝導面が100層以上の肉厚試料ではホール抵抗値は数k Ω より十分小さかった。また、膜厚が数百ナノメートルの試料のT $_c$ は、これまでに報告されているバルクSr $_2$ RuO $_4$ と同じ1.5Kであったのに対して、薄膜試料(20nm)では約3K付近で超伝導転移が起きていることがわかった。近年の研究においてc軸方向への一軸性圧力やナノスケール結晶転位近傍では、純良なSr $_2$ RuO $_4$ においてT $_c$ が1.5Kから3Kへ上昇することが報告されており、このT $_c$ に関する未解決問題、特にカイラルp波超伝導のペアリング機構の解明にSr $_2$ RuO $_4$ 単結晶薄膜を対象とした研究が重要であることを示唆している。我々はT $_c = 3K$ 以下において異常な電圧を観測した。この自発電圧は試料の厚さと関係があり、薄くすると増加することが分かった。伝導面に垂直に磁場を印加したところ $\pm 1T$ から $\pm 5.8T$ の範囲内で自発電圧のスイッチング現象を観測した。もし電場Eと磁場Bのカップリングがあれば、自発電圧の発生の起源を説明できるかもしれない。そこで我々はこれらの実験結果の解釈として、(3+1)次元のチャーン・ポンティアージン(トポロジカル θ)項に由来する2次元表面伝導の寄与として量子ホール効果が現れ、また自発電圧とスイッチング現象は層間方向を考慮した3次元的な電気分極効果であると考えている。

Ca $_2$ RuO $_4$ におけるキャリアドーピング (松永グループ)

絶縁体、または半導体の母物質に対して電場誘起によるキャリアドーピングをすることで絶縁体から金属、さらに超伝導への転移が報告されている。ルテニウム酸化物 Ca_2RuO_4 は、モット絶縁体や強磁性金属、超伝導など多彩な基底状態が圧力、温度、組成、電場等の制御により現れる。特にCaをSrに置換した Sr_2RuO_4 はスピン三重項・カイラルp波超伝導を示すことから、 Ca_2RuO_4 の物性研究に興味を持たれている。我々は固相反応法により Ca_2RuO_4 を作成した。基板上にピックアップしたマイクロメートルサイズの試料に対して、電子ビームリソグラフィーにより電極を作成し、電子輸送測定を行った。バルク Ca_2RuO_4 はモット絶縁体であるが、我々の微小 Ca_2RuO_4 の電気抵抗は常圧で室温から1Kまで金属的な振る舞いを示した。 Ca_2RuO_4 は圧力や電場により絶縁体から金属への転移が起きる。微小試料は基板との熱収縮率の違いからひずみがかかり RuO_6 八面体の変形具合に対応して、電子状態が変化した可能性がある。現在、イオン液体によって形成した電気二重層トランジスタを用いたキャリアドーピングによる超伝導出現の可能性を調べている。

メソスケール有機超伝導体の新奇量子現象の探索 (松永グループ)

有機導体 $(\text{TMTSF})_2\text{X}$, $(\text{BEDT-TTF})_2\text{X}$ は異方的超伝導体として知られている。しかし、その超伝導の対称性や発現機構の解明には至っておらず、現在も盛んに研究が行われている。本研究ではナノ・マイクロスケールの有機超伝導体の物性測定を行い、異方的超伝導を特徴づける新奇量子現象を探索する。例えば、 κ - $(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ (κ -Br)は角度分解STM分光測定により超伝導の対称性が dx^2-y^2 であることが明らかになっている。しかし、一方で重水素置換により電子相関を強めた $d[3,3]$ 試料における最近の我々のSTM分光測定の結果は、 dx^2-y^2 波超伝導ドメインと dxy 波超伝導ドメインの共存を示唆している。またカイラルp波超伝導体 Sr_2RuO_4 のクーパー対の軌道運動に起因したカイラルシングルドメインサイズがおよそ $1\mu\text{m}$ 程度であることから、d波超伝導ドメインのサイズも同程度であるかもしれない。従って、微小有機超伝導体の物性研究は異方的超伝導を普遍的に理解する上で重要である。擬二次元有機超伝導体 κ -Brは、グラフェンのような伝導層と絶縁層間に劈開性は無く、バルクの単結晶からきれいな微小結晶片を取り出すことは困難であった。我々はバルク単結晶を粉碎した後に基板上に滴下した試料を観察したところ、膜厚数十nmの微小結晶を見つけた。フラットな二次元伝導面において κ -Brの結晶軸に関する特徴的な角度が見られた。現在、これらの微小試料に、電子ビームリソグラフィーにより電極を取りつけ、低温での電子輸送測定を行っている。二次元d波有機超伝導に関する新奇量子現象を明らかにする。