

## 強相関電子系分子性導体を用いた新奇相転移型デバイスの開発

分子研, 理研

○須田理行

### Development of Novel Phase Transition Devices utilizing Strongly-correlated Molecular Conductors

○Masayuki Suda

*Research Center of Integrative Molecular Systems, Institute for Molecular Science, Japan<sup>2</sup>  
RIKEN, Japan*

**【Abstract】** Stimulated by the discovery of high- $T_C$  superconductivity in 1986, band-filling-control of strongly-correlated electron systems have been a persistent challenge for past three decades in condensed matter science. Especially, recent efforts have been focused on electrostatic carrier doping of such materials utilizing field-effect transistor (FET) structures to find novel superconductivity. In this presentation, recent results on the development of novel superconducting (SC) organic FETs, such as strain-tunable SC FET and light-controllable SC FET are summarized. The techniques and knowledge described here will contribute to the advances in future superconducting electronics as well as the understanding of superconductivity in strongly-correlated electron systems.

**【序】** 超伝導体の母物質であるモット絶縁体に対するバンドフィリング制御(キャリアドーピング)は固体物性科学における重要なテーマである。本研究で用いている分子性導体:  $\kappa$  型 BEDT-TTF 塩はモット絶縁体の典型例である。高温超伝導体銅酸化物から類推すれば  $\kappa$  型 BEDT-TTF 塩においてもフィリング制御型超伝導が実現するであろうことは想像に難くない。しかしながら、分子性結晶では元素置換による連続的の化学ドーピングが困難であるため、 $\kappa$  型 BEDT-TTF 塩におけるフィリング制御に関する報告例はいくつかの稀有な例のみに留まっている。こうした観点から、我々のグループでは分子性結晶へのフィリング制御の手段として電界効果トランジスタ(FET)を利用した静電キャリアドーピングの可能性に着想し、実際に世界に先駆けて  $\kappa$  型 BEDT-TTF 塩におけるフィリング制御型超伝導転移の観測に成功している[1]。本講演では、 $\kappa$  型 BEDT-TTF 塩におけるフィリング制御型超伝導転移の観測に不可欠な結晶作製手法や基板上での歪み効果など解説するとともに、実際にフィリング制御型超伝導転移を実現した、「歪み制御型超伝導 FET」、「光駆動型超伝導 FET」を紹介する。

#### 【結果・考察】

##### ① 歪み制御型超伝導 FET [2]

本研究ではフレキシブル基板の湾曲を用いた歪み効果と FET 構造を利用した電界効果とを併用することで、バンド幅とバンドフィリングを同時かつ連続的に制御可能な歪み制御型 FET を構築した (Figure 1)。

初期状態において超伝導状態にある  $\kappa$ -Cl デバイスに一軸性引っ張り歪みを印可したところ、約 1%の歪みによって超伝導相から、超伝導相とモット絶縁相の相分離状態を経て、絶縁体へと歪み誘起相転移を示した。これは一軸性引っ張り歪みが結晶への実効的な負圧効果として働き、バンド幅制御型モット転移が誘起されたものと推察される。

続いて、歪み印加下においてゲート電圧を印加することでバンドフィリングの制御を行った。興味深いことに本デバイスでは相分離状態においても明瞭な電界効果が観測された。この領域における電界効果は超伝導フラクシオンの増加による影響を含むものと推察される。実際に、7 T の外部磁場印加下での電界効果測定では約 90 % もの電界効果が抑制された。このことは、電界効果により生成した電子相が超伝導相であることを強く示唆しており、 $\kappa$ -Cl 結晶中において電界誘起超伝導転移が実現されたものと考えられる。

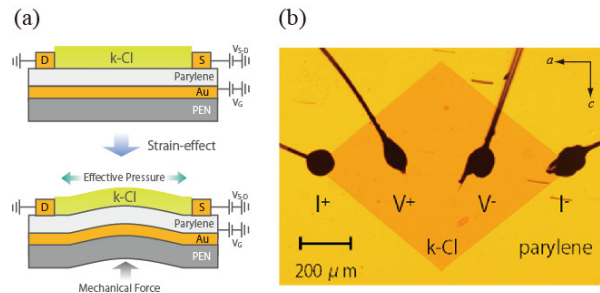
## ② 光駆動型超伝導 FET [3,4]

無機化合物においては多様な物質において電気二重層トランジスタ (EDLT) を用いた電界誘起超伝導が実現されているが、EDLT に用いられるイオン液体は一般に 200 K 付近にガラス転移点を持つため、極低温における連続的な電子系相転移は実現されていない。そこで本研究では、スピロピラン単分子膜における光誘起双極子変化を光駆動型分子性ナノキャパシタとして用いることに着想し、スピロピラン誘導体の単分子膜を  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[(N(CN)<sub>2</sub>)]Br ( $\kappa$ -Br) の単結晶トランジスタ界面に導入した光駆動型超伝導 FET を作製した (Figure 2)。

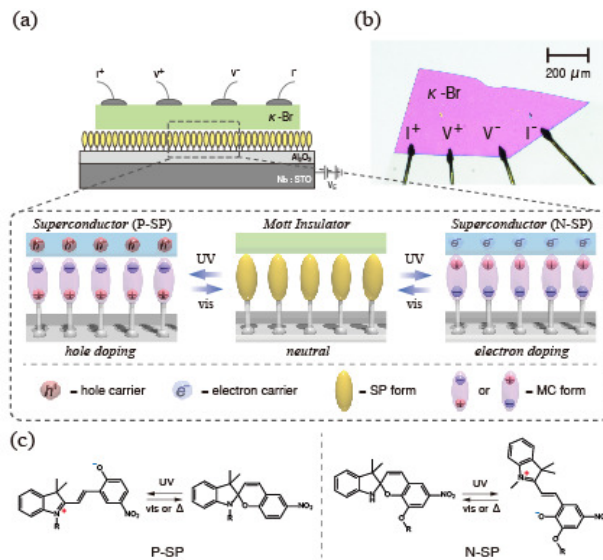
初期状態においてモット絶縁体状態にある  $\kappa$ -Br デバイスは、紫外光の照射により次第に金属的となり、最終的に転移温度 7.3 K で超伝導体へと転移した。また、光ゲートおよび外部電源によるボトムゲート電圧の同時スキャンにより得られた電子相図から、光照射に伴う  $\kappa$ -Br へのホールキャリア注入が相転移の起源であることが明らかとなった。更に、界面双極子を設計することにより光誘起電子ドーピングによる超伝導転移にも成功しており、光誘起キャリアの密度や極性を任意に制御することが可能になりつつある。

### 【参考文献】

- [1] Yamamoto, H. M. et al. *Nat. Commun.* **2013**, 4, 2379.
- [2] Suda, M. et al. *Adv. Mater.* **2014**, 26, 3490-3495.
- [3] Suda, M. ; Kato, R. ; Yamamoto, H. M. *Science* **2015**, 347, 743-746.
- [4] Suda, M. et al. *Adv. Mater. in press.* (DOI: 10.1002/adma.201606833)



**Fig. 1. (a) Schematic illustration for the device configuration without (upper) and with (lower) strain effects. (b) Optical microscope image of the  $\kappa$ -Cl single crystal laminated on the substrate; scale bar = 200  $\mu$ m.**



**Fig. 2. (a) Schematic cross section of the device. (b) Optical microscope image of the  $\kappa$ -Br single crystal laminated on the substrate. (c) Molecular structures and photochromic reactions of the spiropyran-derivatives P-SP and N-SP between SP and MC forms: R = (C<sub>15</sub>H<sub>30</sub>)COOH.**