

二次元BEDT-TTF系有機超伝導物質における 電子熱容量の磁場方向依存性の検出

¹阪大院理, ²東大物性研

○福地宗太郎¹, 今城周作², 野本哲也¹, 山下智史¹, 坪広樹¹, 中澤康浩¹

Angular dependence of the electronic heat capacity against magnetic field in two dimensional superconductors

○Sotaro Fukuchi¹, Shusaku Imajo², Tetsuya Nomoto¹,
Satoshi Yamashita¹, Hiroki Akutsu¹, Yasuhiro Nakazawa¹

¹ Department of Chemistry, Osaka University, Japan

² Institute for Solid State Physics, Tokyo University, Japan

【Abstract】 The organic superconductors classified as κ -type and β -type have effective half-filled band structure owing to their dimerized structure. Superconductivity is realized by forming electron pairs with some attractive forces which also form energy gaps around the Fermi surface. The anisotropy of gap function has already been reported for κ and β -type materials. In this work, we detect the anisotropy of the superconducting gap function in details with angle resolved heat capacity measurements. By this method, we can observe the Doppler shift anisotropy of quasi particles excitations detectable by the electronic heat capacity under magnetic fields. We detected the four-fold oscillations of $C_p T^{-1}$ induced by in-plane magnetic field rotation in κ -(BEDT-TTF)₂Ag(CN)₂H₂O. That result indicates the gap structure of this compound has $d_{x^2-y^2}$ symmetry. We will show the results of heat capacity measurement about β -type salts.

【序】 BEDT-TTF 分子のような有機ドナー分子とアニオン分子が二次元面をつくり交互積層した構造をもつような電荷移動塩では極低温で超伝導を発現するものが多数報告されている。積層構造をもったこのような物質はさらに有機ドナーの配置によって α , β , κ などの種類に分けられる。我々は有機超伝導体の中で二量体構造を有し実効的な 1/2 充填バンド状態をもつ κ 型や β 型に注目している。 κ 型は超伝導相が反強磁性相に隣接しているため超伝導の発現機構が銅酸化物系高温超伝導体と関連付けられるため注目されている。一方、 β 型は **Fig.1** に示すように比較的弱い二量体構造をもち、超伝導相が電荷秩序相に隣接していると考えられるため、電荷揺らぎを媒介とした新しい超伝導機構をもつ可能性が期待されている。

超伝導状態はクーパー対と呼ばれる電子対を形成することで発現し、この電子対形成によってフェルミ面付近でギャップが生じる。 κ 型・ β 型超伝導体は電気抵抗測定による臨界磁場の決定などで異方性が報告されており、d 波的な超伝導ギャップ構造をもつことが期待される。角度分解熱容量測定では磁場方向を操作しながら熱容量を測定することで、二次元構造をもつ物質においては超伝導ギャップ構造の詳細な情報まで得ることができ、これを様々な塩で行うことでギャップ構造と電子状態の相関関係を統計的に理解することができる。

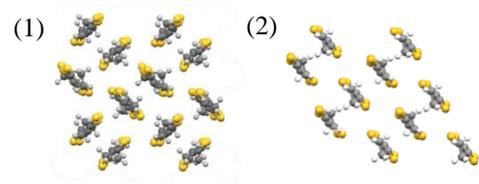


Fig.1 Donor molecule stacking
structure of κ -type (1) and β -type (2)

【実験方法】 本研究では微小単結晶熱容量測定装置を用いて約 0.6K ~ 数 K まで磁場の方向を操作しながら熱容量測定を行い、試料の伝導面に対して垂直な方向から水平な方向への回転及び伝導面に水平な方向での回転による熱容量変化を観測した。磁場操作は試料台を取り付けたプローブインサートを結晶中心に回転させることで行い、その角度は試料台に取り付けたホール抵抗の抵抗値を読み取ることで評価した。

水平回転では Fig.2 のように磁場を印加することで磁束の周囲に流れる渦電流によって電子が高エネルギー側に励起され、状態密度の分布がシフトする。特に Fig.3 のように d 波が持つような node 付近ではフェルミ面上の状態密度が大きく変化するため熱容量への影響が大きい。このドップラーシフトは渦電流の速度ベクトル v_s と準粒子の運動量ベクトル p の内積で決まるため超伝導ギャップの異方性が熱容量の振動として検出できる。[1]また垂直から水平への回転からは 3D Ginzburg-Landau model から超伝導の次元性を議論することができる。[2]

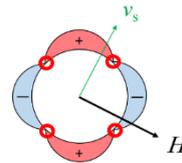


Fig.2 Structure of d-wave superconducting gap function.

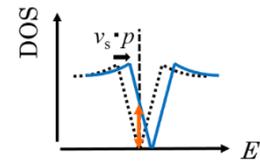


Fig.3 Doppler shift of the density of state of quasi particle.

【結果・考察】 Fig.4~6 に κ -(BEDT-TTF) $_2$ Ag(CN) $_2$ H $_2$ O の結晶で角度分解熱容量測定を行った結果を示す。Fig.4 に示した水平回転によって得られた熱容量のデータから 180° 周期の成分を差し引くことで Fig.5 のように 90° 周期の成分を得られた。この結果から、この物質の超伝導ギャップの構造が $d_{x^2-y^2}$ 的であることを発見した。また、理論的にはドップラーシフトによる異方性の検出は超伝導相の中でも低温低磁場領域で可能とされ、転移温度の 0.3-0.4 程度のところで熱容量の振幅が反転することが予測されている[3]が、この振幅の反転についても明確に観測することができた。しかしながら κ 型塩の中でもノードの方向が逆転し d_{xy} 的な対称性を示す物質も存在する (κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Br)。二量体性の強さと三角格子性も踏まえて議論する必要がある。

同様に二量体性をもつ、 β 型超伝導物質における角度分解熱容量測定の結果も示し、その超伝導ギャップ構造について加えて議論する

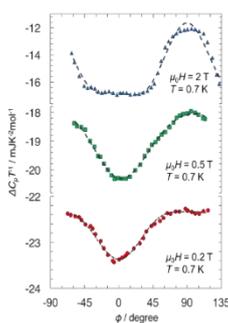


Fig.4 The magnetic field in-plane angle dependence of heat capacity.

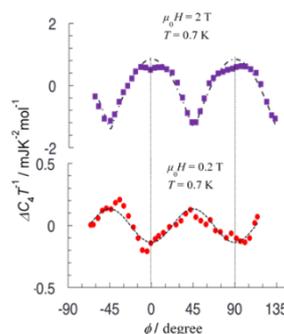


Fig.5 4-fold element of in-plane angle dependence of heat capacity.

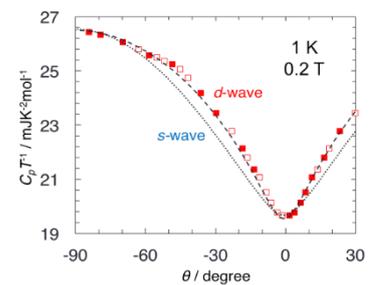


Fig.6 The magnetic field polar angle dependence of heat capacity.

【参考文献】

- [1] H. Aoki, et al, J. Phys. Condens. Matter **16**, L13 (2004).
- [2] G. E. Volovic, JETP Lett. **58**, 469 (1993).
- [3] T. Sakakibara, et al, Rep. Prog. Phys. **79**, 094002 (2016).