

磁性超伝導体 κ -BETS₂FeBr₄の超伝導転移温度の面内異方性

κ -BETS₂FeBr₄は伝導性を示すBETS層と局在スピンを有するFeX₄-層が交互に積層した構造を持つ磁性伝導体です。 κ -BETS₂FeBr₄は低温において、d電子系が反強磁性転移を示し、さらに低温領域で π 電子が超伝導転移を示します($T_N \sim 2.47$ K $T_c \sim 1.1$ K)。これまで我々は κ -BETS₂FeBr₄の示す反強磁性秩序と共存した超伝導状態について熱的観点から研究を行い、 κ -BETS₂FeBr₄の超伝導転移を検出し、面内磁場に対する特異な磁場依存性を見出しました(2013 年度阪大化学熱学レポート研究紹介 12)。本年度はこの面内磁場下での超伝導状態について詳細な検証を行ったので報告します。

Fig. 1に結晶軸の c 軸方向に磁場を印加した場合の結果を示します。磁気熱容量、格子熱容量の差し引きは前年度と同様の方法で行いました。図中▼印で示した熱異常が超伝導転移に対応します。超伝導転移温度は、およそ2 Tまではほとんど0 Tでの超伝導転移温度から変化せず、2 Tを超えたあたりから急激に減少する振る舞いが見られました。この超伝導転移は測定温度範囲内で2.6 Tまで観測されました。Fig. 1(b)の2 T以上の結果において、低温に向かって熱容量が増大するような傾向が見られますが、これは隣接するd電子系の磁気熱容量の差し引きの誤差によるものであると考えており、本稿で議論している超伝導とは関係ないものと考えています。この c 軸方向磁場印加下での振る舞いについて考察します。超伝導は一般的に磁場によって不安定化されますが、その要因には主に伝導面を磁束が貫くことによるorbital effectとクーパー対のsinglet状態の不安定化によるPauli effectの二種類が考えられます。本研究では伝導面に平行に磁場を印加していることから、orbital effectによる対破壊効果は抑えられていると考えられます。そのため、超伝導状態の不安定化は主にPauli effectによるものであると考えられます。一般にPauli effectによって決定される超伝導の臨界磁場は $H_p = 1.84T_c$ (T_c は0 Tでの超伝導転移温度)と表されます。本研究での測定結果である $T_c = 1.5$ Kを代入すると $H_p = 2.76$ Tとなり、おおよそ超伝導転移温度が抑制される磁場の大きさに一致することが分かります。以上のことから c 軸方向磁場印加による超伝導状態の不安定化はPauli効果による影響が強いと推察されます。

次にこの超伝導転移温度の面内異方性について検証を行いました。その結果をまとめた相図をFig. 2に示しました。測定は1 T, 2 Tの磁場強度で行っています。1 Tの磁場では、超伝導転移温度が面内磁場に対してほぼ等方的であるのが確認できます。しかし、2 Tの磁場では c 軸方向に印加した場合では転移温度がほぼ減少しないのに対し、数度でも c 軸方向から印加方向を a 軸方向に傾けると超伝導転移温度が抑制されることが分かりました。この超伝導状態の異方

的振る舞いについて隣接する d 電子系の磁気状態と比較して議論するために、超伝導転移温度と d 電子系の反強磁性転移温度の磁場依存性をプロットした相図を Fig. 3 に示します。これまでに、抵抗測定や磁化率測定などにより超伝導転移温度の磁場による変化が検証されてきました。それらの結果では、1 T 以下の弱磁場領域から超伝導転移温度に異方性が現れる結果が得られていましたが、今回、熱測定によって超伝導転移温度を正確に評価したところ、d 電子系の異方性が小さい低磁場領域では超伝導転移温度もほとんど異方性を示さず、d 電子系の異方性が顕著に現れる 2 T 以上で、それに対応して超伝導転移温度も異方性が顕著になっていることが分かりました。この結果は、超伝導の安定性は d 電子の磁気状態の影響を強く受けていることを示していると考えられます。これまで、 κ 型の BETS 塩は π -d 相互作用が弱い系であり、超伝導と反強磁性の共存相では π -d 相互作用の影響は小さいと考えられてきましたが、今回の結果は磁場誘起超伝導相だけでなく反強磁性との共存相においても π -d 相互作用の影響が顕著に現れることを示した結果であるといえます。

(福岡脩平, 中澤康浩)

発表

福岡脩平, 山下智史, 中澤康浩, 山本 貴, 藤原秀紀, 日本物理学会第 69 回年次大会 (平塚), 27pBC-8 (2014).

S. Fukuoka, S. Yamashita, H. Akutsu, Y. Nakazawa, and H. Fujiwara, the International Symposium on Structural Thermodynamics in Memory of Prof. Syuzo Seki (ISST-2014) (Toyonaka), P-13 (2014).

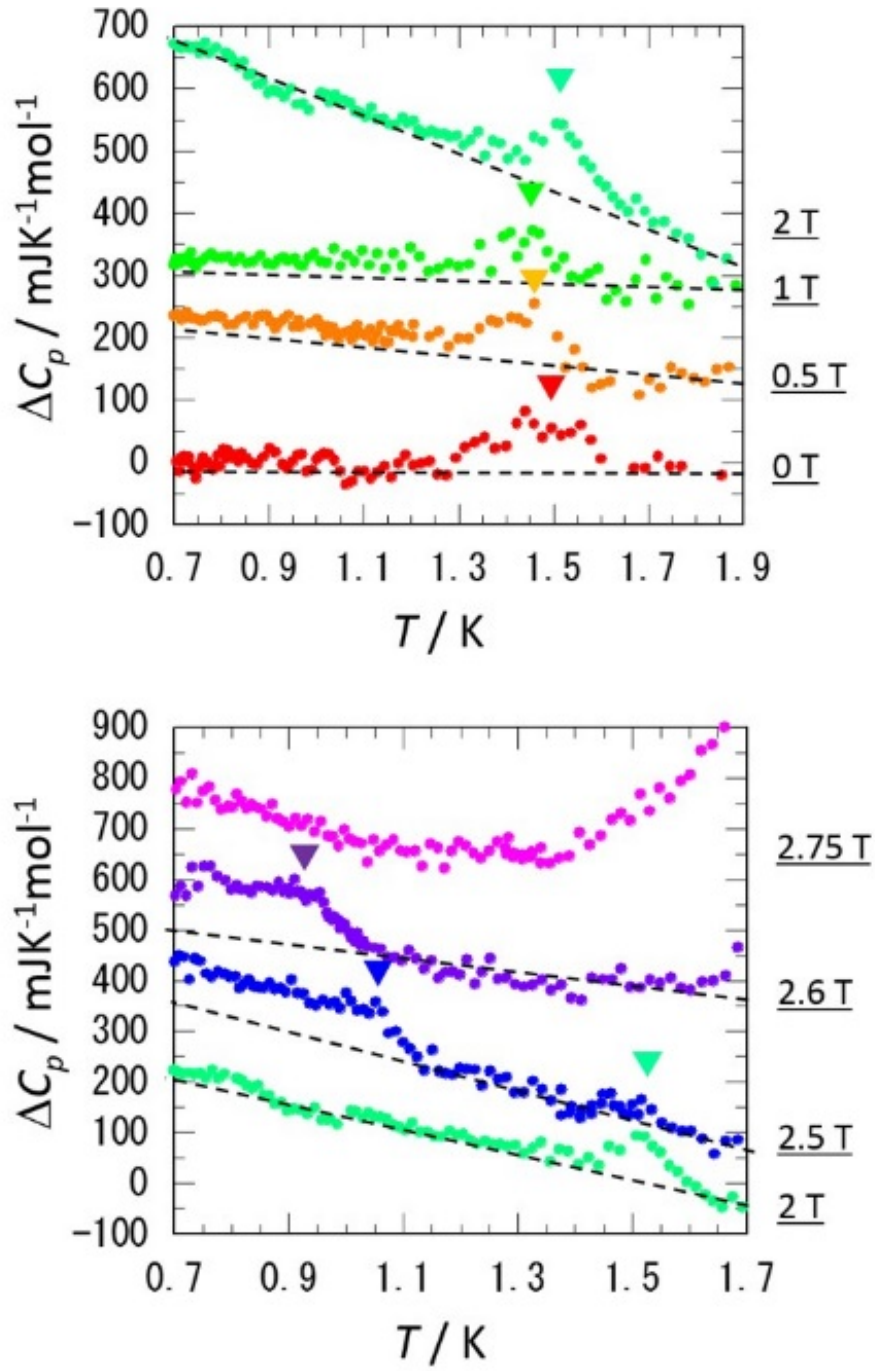


Fig. 1. ΔC_p vs T curves of κ -BETS₂FeBr₄ salt under magnetic field (a) at 0 T, 0.5 T, 1 T and 2 T and (b) at 2 T, 2.5 T, 2.6 T and 2.75 T. Triangle tips indicate the superconductive transition temperatures.

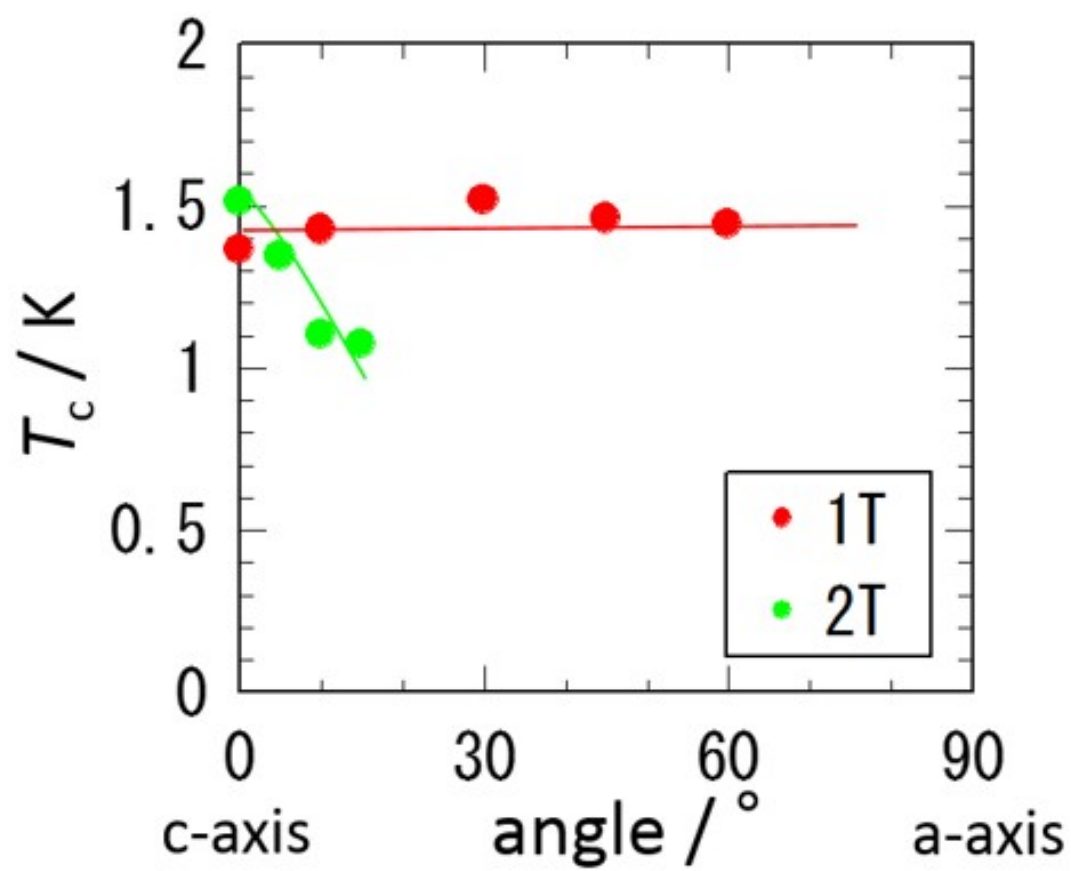


Fig. 2. Angular dependences of the superconductive transition temperature at 1 T and 2 T.

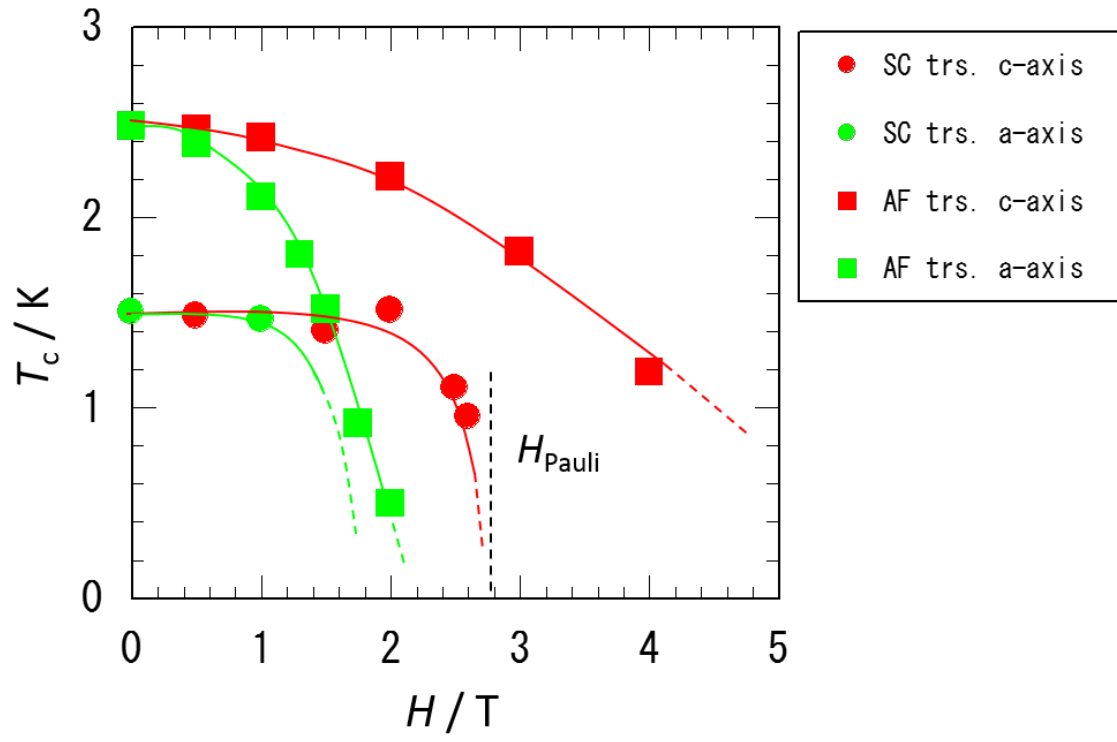


Fig. 3. H - T phase diagram of κ -BETS₂FeBr₄ determined by heat capacity measurements.