

# スピン反転による磁場誘起超伝導状態の部分的破壊の観測

## Partial Destruction of the Field-induced Superconductivity by Spin Reversal

理研 大島勇吾, 崔亨波, 加藤礼三  
 東北大・金研 野尻浩之  
 NHMFL FSU 徳本貴久, J. S. Brooks  
 物材機構 宇治進也  
 日大文理 小林昭子, 小林速男

Y. Oshima<sup>1</sup>, H. Nojiri<sup>2</sup>, T. Tokumoto<sup>3</sup>, J.S. Brooks<sup>3</sup>, S. Uji<sup>4</sup>, H-B. Cui<sup>1</sup>, R. Kato<sup>1</sup>, A. Kobayashi<sup>5</sup>, and H. Kobayashi<sup>5</sup>  
<sup>1</sup>RIKEN

<sup>2</sup> Institute for Materials Research, Tohoku University

<sup>3</sup> National High Magnetic Field Laboratory, Florida State University

<sup>4</sup> National Institute of Material Science (NIMS)

<sup>5</sup> Nihon University, College for Humanities and Sciences

### 1. はじめに

過去 10 数年、分子性導体に遷移金属などの局在 3d スピンを導入することにより、伝導を担う  $\pi$  電子と磁性を担う d 電子の相互作用を利用して、新規物性を発現させようとする試みが行われてきた。 $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>FeCl<sub>4</sub> は、そういった  $\pi$ -d 相互作用を持つ物質の代表的な物質であり、磁場を伝導面方向に印加すると 17 T で超伝導状態になる興味深い物性を示す[1]。一般的に磁場は超伝導状態を破壊するが、この系の磁場誘起超伝導状態は d 電子が作る内部磁場  $J_{\pi-d} \langle S_d \rangle$  を外部磁場  $B_{\text{ext}}$  が補償する事により成立すると考えられている (Jaccarino-Peter 補償効果/図 1) [2]。我々はこの d 電子がつくる内部磁場と外部磁場の絶妙なバランスを動的な外場で乱す事により、磁場誘起超伝導状態が制御できるのではないかと考え、現在研究を進めている。

通常、電子スピン共鳴(ESR)は系のミクロな電子状態を調べるために用いられるが、高周波電磁場で ESR 励起を起こす時、磁気量子数が変化する。この時、d 電子のスピン状態の変化 (スピン反転) に伴って、内部磁場の大きさと方向が変化し、外部磁場との補償効果が崩れる。つまり、磁場誘起超伝導状態が破壊されると考えられる。

我々はこれまで ESR を用いて  $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>FeCl<sub>4</sub> とその混晶系の電子状態を系統的に調べてきたが、超伝導相と考えられている温度領域で常磁性共鳴 (EPR) が観測されており[3]、まるで超伝導が ESR により破壊されてように見える。しかしながら、超伝導状態が ESR で破壊されている直接的な証拠はこれまで無く、このため、我々は ESR 測定と輸送測定が同時に行える実験装置を開発した。今回我々は、ESR 励起が起きたときの伝導度の変化 (超伝導状態の破壊) を初めて観測したので、これを報告する。

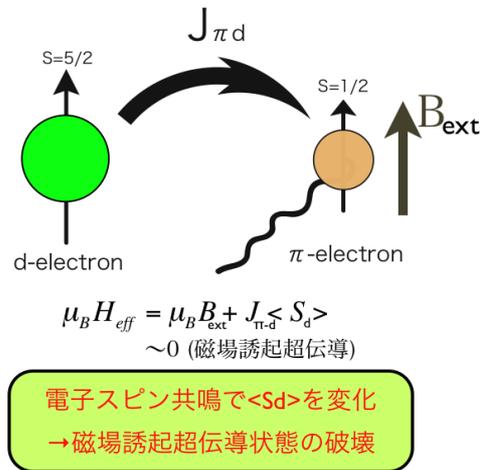


図 1 磁場誘起超伝導機構の概略図

### 2. 実験方法

図 2 に我々が新たに開発したミリ波 ESR 装置を示す。Gunn 発振器から照射されたミリ波はライトパイプを介して、ファブリ・ペロー共振器、光検出器 (InSb) へと導かれる。共振器内には石英製の試料ステージが配置されており、ピエゾローテータを用いて試料が磁場中心で回転できるように機構になっている。これにより高角度分解能をもった ESR 測定が行える。また端子付けを行う事により試料の輸送測定も同時に可能で、磁場誘起超伝導状態になっているのを確認しながら、ESR 測定が行える仕様となっている。上述の通り、 $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>FeCl<sub>4</sub> は 17 T で磁場誘起超伝導状態になる。しかしながら、我々の装置では最大 270 GHz ( $g=2$  で 9.8T) までしか測定できないため、今回、約 8 T で超伝導状態になる混晶系  $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>Fe<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Cl<sub>4</sub> ( $x=0.6$ ) を用いて実験を行った。

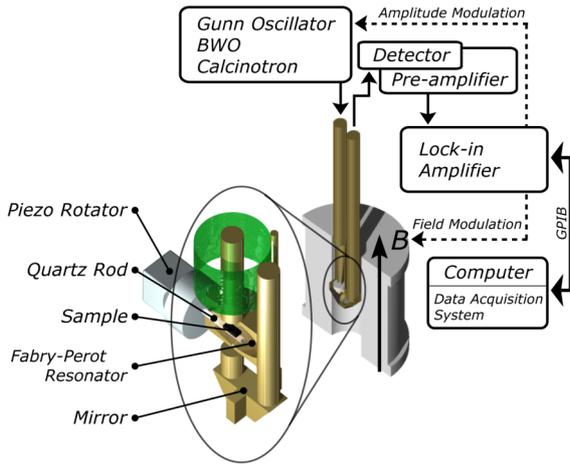


図2 新たに開発したミリ波 ESR 装置

### 3. 結果

図3は2 Kにおける $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>Fe<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Cl<sub>4</sub> (x=0.6)の磁気抵抗測定(ミリ波照射無し)の結果である。磁場を伝導面に平行に入れない場合、約6 Tで反強磁性的な絶縁体(AFI)から常磁性金属(PM)相に転移する。一方、この温度を保ったまま、磁場を伝導面内(ac\*面内)に印加すると、約8 Tで超伝導状態(FISC)に転移する。

図4はミリ波を照射した時の常磁性金属(PM)相と磁場誘起超伝導(FISC)相における磁気抵抗と ESR スペクトルである(同時測定)。使用したミリ波の周波数は270 GHzであるため、g=2に相当する(共鳴磁場9.6 T)、常磁性共鳴(EPR)がPM相で観測されている。この時、磁気抵抗には変化は現れない。

一方、磁場を伝導面に平行に印加した場合、FISC相であるにもかかわらず、いぜん EPR による光吸収が観測されている(共鳴磁場がPM相とFISC相で微妙に違うのは、試料が回転してg値が変化しているため)。これはこれまでの結果とコンシステントであり<sup>3</sup>、FISC状態が不均一でPM相と共存している事を示している。しかも、EPR吸収と同じ共鳴磁場の位置で、抵抗が上昇しているのが見て取れる。

図5に270 GHzのミリ波を照射した時の抵抗の温度変化を示す。最低温から1.9 Kまで抵抗に異常は現れないが、2.0~2.5 KまではEPRの吸収が起こる時に、抵抗にピーク形状の異常が見られる。つまり、PM相とFISC相の境界近傍でしか、このような抵抗の異常は見られない。

この振舞いを説明するために、我々は ESR 励起(スピン反転)により局所的に FISC 状態が壊れているモデルを提案している。ESR 励起により FISC

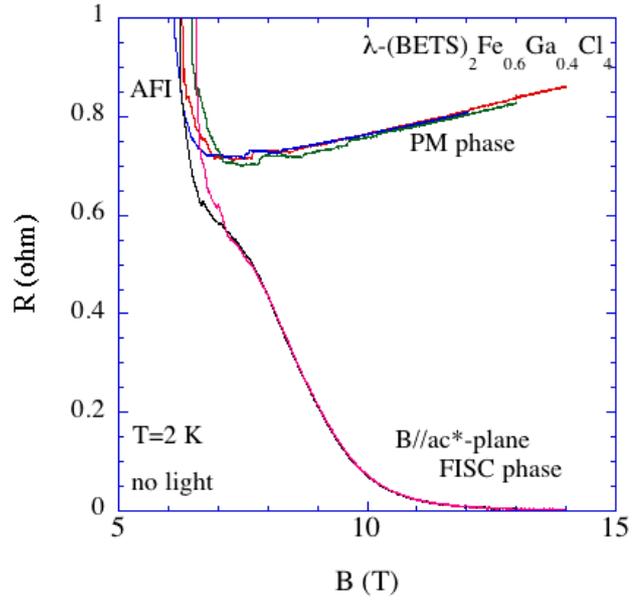


図3 2 Kにおける $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>Fe<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Cl<sub>4</sub> (x=0.6)の磁気抵抗。ミリ波照射無し。

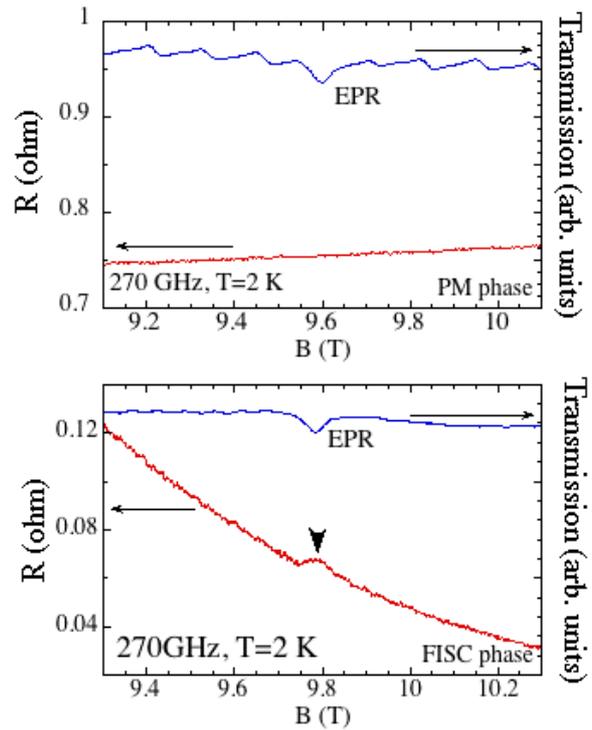


図4 PM相(上)とFISC相(下)における $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>Fe<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Cl<sub>4</sub> (x=0.6)のESRスペクトルと磁気抵抗。ミリ波照射あり。

状態が壊れる機構は上述の通りである。最低温から相境界近傍までの温度領域では、局所的に FISC 状態は壊れているが、系の中に FISC の伝導パスが4端子内で已然残っているため、抵抗は影響を受けないと考えられる。しかし、相境界近傍になると、測定四端子内の超伝導パスを断ち切るような FISC 状態の局所的破壊が起るため、抵抗に異常が現れると考えている。相境界近傍より高い温度領域では、抵抗に変化を及ぼす FISC 相は殆ど存在しないため、抵抗に異常は現れない。このようなモデルを考えると、図5の温度依存性の結果が説明できる。また、FISC 状態が破壊されても抵抗が急激に変化しないのは、EPR の非常に速い緩和過程によって、破壊された超伝導状態が復活しているためだと考えている。

#### 4. まとめ

今回、我々は ESR 励起による磁場誘起超伝導状態の破壊を初めて観測した。しかしながら、観測した抵抗の変化は僅かで破壊は局所的だと考えられる。これは照射したミリ波の強度が非常に弱いためだと考えられ、ミリ波の強度依存性からも示唆的な結果が得られている。今後、磁場誘起超伝導状態の「制御」という観点からも、光源を強化することにより、さらに研究を進展させていきたい。

#### 参考文献

- [1] S. Uji et al., Nature 410 (2001) 908.
- [2] V. Jaccarino and M. Peter, Phys. Rev. Lett. 9 (1962) 290.
- [3] Y. Oshima et al., Synth. Met. 153 (2005) 365.

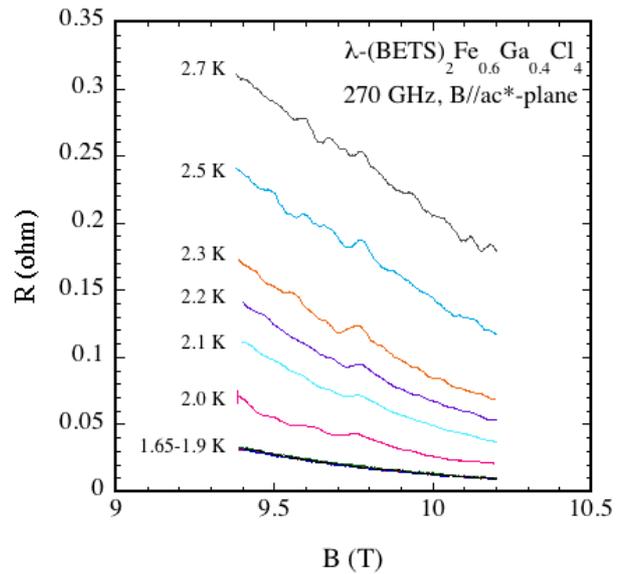


図5 ミリ波 (270 GHz) 照射時の磁気抵抗の温度変化