

氏 名	大 道 英 二
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学位記番号	理 博 第 2149 号
学位授与の日付	平 成 12 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	理 学 研 究 科 物 理 学 ・ 宇 宙 物 理 学 専 攻
学位論文題目	Oriented Magnetic Field Effects in Quasi Two-Dimensional Superconductors (方向制御した磁場による準2次元超伝導体の研究)

論文調査委員 (主査) 教授 石黒武彦 教授 山田耕作 助教授 前野悦輝

### 論 文 内 容 の 要 旨

伝導電子にかけられた磁場は、その軌道運動に影響を及ぼしあるいはスピン分極を起こすことにより、電子の状態を変化させる。こうした磁場の効果は、磁場が低次元的な電子系にかけられたときには、磁場がかけられた方向に応じて軌道効果、スピン分極効果の現れ方を変化させる。この特性に着目すると方向制御された磁場によって、低次元的な金属・超伝導系の特性を低次元性との絡みでよりの確に明らかにすることが可能になる。本研究は2次元的な構造を有する酸化物超伝導体  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  ならびに分子性超伝導体  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ ,  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_4\text{Hg}_{2.89}\text{Br}_8$ ,  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$  について、電子輸送現象に対する、方向制御した磁場の効果を調べることによって、その電子物性を明らかにしたものである。取り上げた物質はいずれも良質の単結晶が得られ、極低温下において超伝導から常伝導域までを実現可能な静磁場によりカバーすることができるものであり、本研究の対象として適したものになっている。

本論文で取り上げた物質のうち、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  は最近、三重項超伝導対から成る準2次元超伝導体であることが明らかにされ、その物性解明のために、電子構造の的確な理解が求められているものである。本研究ではそのフェルミ面の形状についての知見を角度依存磁気抵抗効果の観測とその解析により得、磁気量子振動効果実験と角度分解光電子分光実験をもとに出されたフェルミ面の形状についての対立点を解消させ、磁気量子振動効果に基づいて得られた結果が妥当であることを示している。

申請者は、この角度依存磁気抵抗振動効果の実験を行う間に山地方位と呼ばれ、系が純2次元になる磁場方向において、電気抵抗にみられる量子振動 (Shubnikov-de Haas 振動) で、フェルミ面のもたらす基本周期に加えて、それらの和ならびに差の周期をもつ振動が著しく現れることを見出した。本論文では量子振動の磁場方位依存性、温度依存性の測定結果を基に、和と差の周期振動は、電子の全体量が一定に保たれるという条件を満たすよう異なるフェルミ面の間で量子準位の変化に応じて電子の移動があるために生じる、化学ポテンシャル振動によるものであり、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  はこれを典型的に示す電子構造を持つものであることを示している。また、磁場が2次元面に高い精度で平行にかけられたときは、抵抗値が鋭く変化することを見出し、筒状構造を持つフェルミ面の膨れがかわるものであることを示し、この現象をもとに  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  のフェルミ面の特徴を明らかにしている。

また、三重項超伝導体とされる  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  に期待される面平行磁場下でのリエントラント超伝導を探索することを主たる目的として、米国国立高磁場研究所において、世界で最高強度とされる 33 T マグネットによる実験を行っている。結果はまだこの磁場でもリエントラント超伝導の実現には十分な高さにはないことを明らかにするものであったが、同時に面平行にかけた超高磁場下での磁気抵抗測定から、準2次元金属特有の筒状構造フェルミ面の膨らみにかかわると考えられる、新しい磁場依存性を見出している。

分子性超伝導体  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  については、電気抵抗にみられる量子振動の角度依存性に、通常の2次元的

な電子構造ではみられない成分があることを見出している。その角度依存性の解明から、電子構造に3次元的な振る舞いをする小さなフェルミ面が形成されている部分があることを結論し、圧力により量子振動の周波数が大きいことを考慮し、その特徴と起源について考察している。即ち、この物質では非伝導層とされる部分からの電子構造への寄与が無視できず、面間方向の距離に面間方向の電子輸送が大きく依存していることを結論している。

更に、2次元性の顕著な超伝導体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub> がBCS超伝導体を示すパウリ常磁性による上限値を越えることを示唆するデータに着目し、特に超伝導面に平行にかけたときの特性を見極める研究に取り組んでいる。その結果、0.5 K、24 Tに至る極低温強磁場下での測定を進め、上部臨界磁場の増大傾向は温度低下と共に急速に抑制されて0 Kに近づくにつれて飽和し、上部臨界磁場値が著しく高くなる異常性は抑制されることを明らかにし、その原因として、アニオン層にみられる構造の格子との非整合性に基づく不規則性による電子散乱効果が関与していることを指摘している。

## 論文審査の結果の要旨

準2次元超伝導体は今日の凝縮系物理学、特に固体内の電子物性の研究に新機軸をもたらす分野として活発な研究の対象とされている。このような低次元的な構造を持つ物質に及ぼす磁場の効果は、かける磁場の方位を選択することによって大きく変化させることができる。この性質を利用すると電子のかかわる特性を的確に捉えることが可能となる。本研究はこうした特徴に着目して、準2次元的な構造をもつ酸化物超伝導体 Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> ならびに分子性超伝導体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> Cu<sub>2</sub> (CN)<sub>3</sub>、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>4</sub> Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub> について電子構造、超伝導状態を明らかにする研究を進め、重要な知見を得ることに成功している。その内容は常伝導状態における電子構造と2次元面に平行に磁場をかけたときの超伝導状態に関するものになっている。

まず、注目に値する成果として、方向制御された磁場下の Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> において、電気抵抗の量子振動 (Shubnikov-de Haas 振動) がみせる化学ポテンシャル振動現象を、最も典型的な姿でとらえることに成功したことが挙げられる。これは磁場で量子準位が変化したとき、全電子数一定の条件を満たすよう電子が複数のフェルミ面上を移動することに依って生じるもので、2次元的な電子構造に特有なものである。申請者はこれが磁気干渉効果によるものではないことを、関与する電子に関する有効質量の検討などにより明らかにし、これにかかわる電子構造の特徴を明らかにしている。

また、高磁場極低温下で試料を回転させることによって見出した角度依存抵抗振動は、酸化物超伝導体あるいはその関連金属で初めて観測されたものである。本論文ではそれに基づいて運動量空間におけるフェルミ面の形状を明らかにすることによって、異なる結果を与えるため問題とされていた量子振動と光電子分光により導かれたフェルミ面の対立を決着させている。

更に、2次元面に平行に磁場をかけたときの磁気抵抗の鋭いピークとその面内角度依存構造を明らかにすることによって、筒状をしたフェルミ面の局部膨らみ構造を明らかにし、面間の電子輸送にかかわる電子構造についての知見を得ると共に、米国国立高磁場研究所における研究により、超高磁場下における準2次元導体の2次元面に平行に磁場をかけたときに現れる新しいタイプの磁場依存性を見出している。

分子性導体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> Cu<sub>2</sub> (CN)<sub>3</sub> においては、電気抵抗における量子振動の磁場方位依存性に、2次元電子系では説明づけられないものがあることを見出し、圧力をかけるなどによってその特性を調べ、解析から3次元的な局所的な電子構造が含まれることを示し、その原因について考察している。その結果、非伝導層と考えられる部分における電子移動が電子状態を考える上で無視できないものとなっていることを明らかにしている。

一方、分子性の準2次元超伝導体のうち、異常に高い上部臨界磁場を持つ兆候があると報告されて来た  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>4</sub> Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub> について、面に平行に磁場をかけ、軌道磁性効果が効かないようにした条件のもとでの0 Kに近い極低温下の上部臨界磁場の上限値を見極める研究を進めた。その結果、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>4</sub> Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub> における臨界磁場の上限値は極低温では大きくは伸びず飽和することを明らかにしている。また、Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> において三重項超伝導体特有のリエントラント超伝導が見出されるか否かを明らかにする実験に取りくんだ。その結果、測定を果たすことによって、リエントラント性の有無については、現在実現可能な磁場よりは、より高い磁場域で明らかにすべきものであると結論している。

以上、申請論文は2次元超伝導体に対する方向制御した磁場の効果に関して、その特徴を巧みに活かした研究を展開することにより、低次元電子系を研究する手段としての磁場の有効性を明らかにすると共に、その研究結果から酸化物超伝導体

Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>, BEDT-TTF 塩分子性超伝導体の電子構造と超伝導性についての重要な知見をもたらしたものであり、低次元超伝導体の研究に重要な貢献をしたものと考えられる。よって本論文は理学博士の学位論文として価値あるものと認める。

なお、主論文および参考論文に報告されている研究業績を中心とし、これに関連した分野について平成12年1月17日に申請者に口頭試問した結果、十分な学識を有することを確認し合格と認めた。