

層状有機超伝導体における FFLO 相



宇治進也

物質・材料研究機構
UJI.Shinya@nims.go.jp



杉浦栞理

東北大学金属材料研究所
shiori.sugiura.c5@tohoku.ac.jp

超伝導は固体物理分野ではもっとも盛んに研究が行われているトピックスの一つである。特に 1980 年代の銅酸化物高温超伝導体の発見以来、基礎研究分野では新奇のメカニズムによる超伝導発現に関する研究が精力的に行われてきた。一般に超伝導は磁場中で不安定になるが、その主要原因にゼーマン効果がある。通常の超伝導体では、超伝導を担う電子は上向きスピンと下向きスピンの電子が結合したスピン重項（クーパー対）を形成している。したがって、強磁場中では磁場と電子スピンとの間に働くゼーマン効果でクーパー対は壊されて常伝導へと転移する。この時の臨界磁場は**パウリ極限**と呼ばれる。

ゼーマン効果は超伝導の安定性に強い制限を与えるが、理論的にはパウリ極限を超える臨界磁場を持つ超伝導状態が存在し得ることが、1960 年代に Fulde, Ferrell, Larkin, Ovchinnikov によって予言されていた。この状態は**FFLO 超伝導相**と呼ばれる。十分低温で磁場を上げていくと、通常の超伝導相がパウリ極限程度の磁場で壊れた後に FFLO 相が出現し、さらに高磁場で常伝導状態へ転移することが期待される。この FFLO 相の存在を確かめるため、さまざまな超伝導体で多くの実験が行われてきたが、近年ようやく有機超伝導体、Ru 酸化物超伝導体、Fe 系超伝導体、Ce 系超伝導体などで FFLO 相を示唆する有力な実験結果が得られるようになった。

FFLO 相を検証するには、まずは臨界磁場以下で FFLO 相転移を明確に観測し相図を決定しなければならない。ただし、磁場を上げていくと超伝導試料に侵入した磁束が規則的に配列し動けない“固体状態”か

ら、配列が崩れて磁束が動き回れる“液体状態”への“融解転移”が起こる点に注意しなければならない。しかしこれまでの比熱測定や磁化測定などでは、FFLO 相転移とこの**磁束の融解転移**を区別して観測することができておらず、FFLO 相転移だと主張する実験結果の解釈に疑問が持たれていた。この疑問に答えを与えるには、断熱空間に置かれた試料が磁場掃引により温度が変化する現象“磁気熱量効果”の測定が有力である。この測定手法は、磁気エントロピー変化に極めて敏感であるため、FFLO 相転移や磁束の融解転移などを精度よく観測できるからである。

有機物 β'' -(BEDT-TTF)₂SF₃CH₂CF₂SO₃ は、超伝導層を形成するビス（エチレンジチオ）テトラチアフルバレン（BEDT-TTF）有機分子層と大きな SF₃CH₂CF₂SO₃ 分子で構成される絶縁層が交互に積み重なった層状構造を持つ超伝導体である。磁場が超伝導層に平行な時、低温で磁気熱量効果が 10 T 程度の磁場でヒステリシスを伴うピークを示す。これが低磁場の超伝導相から高磁場の FFLO 相への一次相転移である。磁場を超伝導層に平行な方向から垂直方向に数度傾けると、FFLO 相転移が消失し、別の一次相転移が観測されるようになる。これが磁束の融解転移である。詳細な実験から、磁場方位に極めて敏感な FFLO 相と磁束相の相図が決定された。このように、磁気熱量効果実験によって初めて FFLO 相転移と磁束の融解転移を明確に区別して観測できたことで、これまでのさまざまな実験結果に明確な解釈が得られ、有機超伝導体での FFLO 相の存在が確定したといえるだろう。

用語解説

パウリ極限：

磁場を上げていくと、ゼーマン効果によるパウリ常磁性のエネルギー利得が、超伝導状態でのエネルギー利得と等しくなる磁場で超伝導は不安定となり常伝導状態に転移する。この時の臨界磁場をパウリ極限と言う。

FFLO 超伝導相：

通常の超伝導相では、クーパー対の重心運動量はゼロ ($q=0$) であるが、FFLO 超伝導相では、有限な重心の運動量 q を持つ。そのため、超伝導秩序変数が波数 q で実空間で振動し、周期的にゼロとなる。この振動により FFLO 超伝導相はパウリ極限を超える磁場でも安定化できる。

磁束融解転移：

超伝導状態に侵入する磁束は量子化された値を持ち、1本、2本、... と数えることができる。磁束間には斥力が働くので、十分低温では磁束はある距離を保った周期的な配列（固体状態）をとる。磁場が大きくなり臨界磁場に近づくと、超伝導状態が不安定になるために磁束配列は崩れそれぞれの磁束が動き回れる状態（液体状態）へと転移する。これを磁束融解転移と言う。