

# 有機モット絶縁体の電界/歪み同時制御による超伝導相の探索

川相義高<sup>1</sup>, 関和弘<sup>2</sup>, 田島聖士<sup>3</sup>, 蒲江<sup>4</sup>,

竹延大志<sup>4</sup>, 柚木清司<sup>5</sup>, 山本浩史<sup>6</sup>, 加藤礼三<sup>1</sup>

理研・加藤分子物性<sup>1</sup>, SISSA<sup>2</sup>, 東邦大理<sup>3</sup>, 名大工<sup>4</sup>, 理研・柚木計算物理<sup>5</sup>, 分子研<sup>6</sup>

物質中の自由電子がサイト（原子や分子）と同じ数だけ存在し、かつ電子間のクーロン相互作用が強いとき、電子は互いに反発して動けなくなる。このような物質をモット絶縁体という。モット絶縁体と金属の間の相転移近傍に高温超伝導や有機超伝導が現れることから、この相転移（モット転移）はこれら超伝導の起源と深く関連していると考えられ、長年にわたって注目されてきた。

モット絶縁体を金属にするには、電子の運動エネルギーを増加させて電子間相互作用を相対的に弱める方法（バンド幅制御）と、各サイトに電子が一つという状況を崩す方法（バンドフィリング制御）が知られており、実験ではそれぞれ「圧力によるサイト間距離の制御」と「ドーピング」によって行われる[1]。つまり、モット転移と超伝導の関係を実験で詳細に調べるためには、あるモット絶縁体を伸び縮みさせたり、電子を出し入れしたりして、どのような場合にモット転移および超伝導が現れるか観察するのが理想的である。しかし現実にはその両方を十分に制御できる試料は存在せず、そのような実験は難しかった。無機モット絶縁体では圧力の効果が小さく、有機モット絶縁体では化学的に細かくドーピングを行うのが難しかったためである。

加藤 G では分子性導体に対する電界効果ドーピングの研究を行っており、最近、電気二重層トランジスタ（EDLT）の原理を用いて有機モット絶縁体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl（以降、 $\kappa$ -Cl）に 20% 程度のドーピングを行うことに成功した[2]。本研究ではこの手法に圧力制御を組み合わせ、有機モット絶縁体における圧力とドーピングの同時制御による超伝導相の探索を試みた（図 1）。圧力制御に基板曲げ歪み[3]を用いることにより、同一の EDLT 試料で基板の曲げ具合とゲート電圧を変えてその場制御を行うことができる[4]。

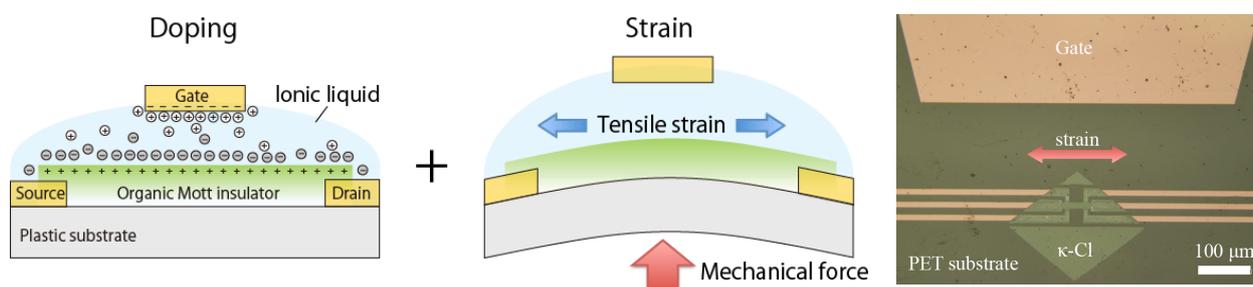


図 1. 試料を横から見た模式図と上から見た光学顕微鏡写真。同一試料において、ゲート電圧でドーピングを、ピエゾ素子による基板の曲げ具合で実効的な圧力を制御することができる。

図2に本研究で作製した $\kappa$ -ClのEDLTの電気抵抗率の温度依存性を示す。ドーピングを行わない時(図2a)、歪みを変えることによって試料は絶縁体から超伝導体に変化し、その中間状態では非単調な温度依存性を見せることがわかった。このふるまいは絶縁相が反強磁性秩序をもつことを示唆しており、 $\kappa$ -Clのバルク試料の静水圧下におけるふるまいと定性的に一致する[5]。つまり基板曲げ歪みによってモット転移点をまたいで広い範囲で実効的に圧力を制御できていることを示している。次に絶縁相で歪みを固定してゲート電圧を印加すると(図2b)、電界誘起超伝導が観測された。こちらもゲート電圧によって超伝導を誘起するのに十分なドーピングができていることを示している。したがって、歪みとゲート電圧を少しずつ変化させながら電気抵抗率を測定することで圧力-ドーピング相図におけるモット絶縁相と超伝導相の概形を知ることができる。

図3に電気抵抗率のカラープロットを示す。超伝導相はモット絶縁相を取り囲んでおり、顕著なドーピング非対称性が見られた。正孔ドーブ側では電気抵抗率はゲート電圧に対して単調に減少し、約10%以上のドーピングで超伝導相が現れる。それに対して電子ドーブ側では数%程度のわずかなドーピングで急激な超伝導転移を起こし、さらにドーブすると超伝導が消失し絶縁相が再び現れるという特異なふるまいが観測された。

関和弘博士、柚木清司博士との共同研究により $\kappa$ -Clを模した異方的三角格子ハバードモデルにおける反強磁性およびd波超伝導の秩序変数を変分クラスター近似を用いて計算したところ、電子ドーブ側で反強磁性が急激に抑制され超伝導が現れるというドーピング非対称性を定性的に再現することができた。このふるまいは上部ハバードバンドの下端と下部ハバードバンドの上端の状態密度の違いに起因していると考えられ、三角格子の特徴を反映していると考えられる。今後、電子ドーブ側の超伝導相の消失の原因と絶縁相の性質を調べるとともに、同手法を異なる磁性をもつ物質(量子スピン液体など)にも適用し、モット絶縁相近傍の超伝導と磁気秩序の関係を明らかにしたい。

#### 【参考文献】

- [1] M. Imada et al., Rev. Mod. Phys. **70**, 1039 (1998).
- [2] Y. Kawasugi et al., Nat. Commun. **7**, 12356 (2016).
- [3] M. Suda et al., Adv. Mater. **26**, 3490 (2014).
- [4] Y. Kawasugi et al., Sci. Adv. accepted.
- [5] F. Kagawa et al., Phys. Rev. B **69**, 064511 (2004).

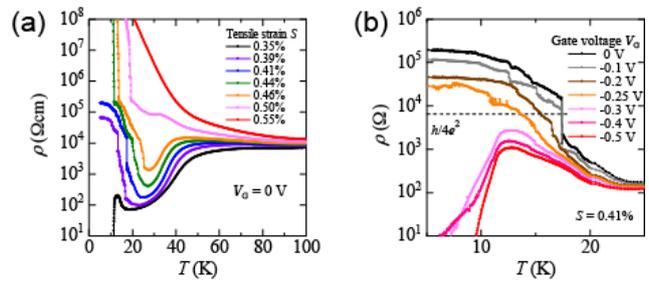


図2. (a)ゲート電圧を印加せず歪み制御を行ったとき、および (b)絶縁相で歪みを固定してゲート電圧を変化させたときの電気抵抗率の温度依存性。

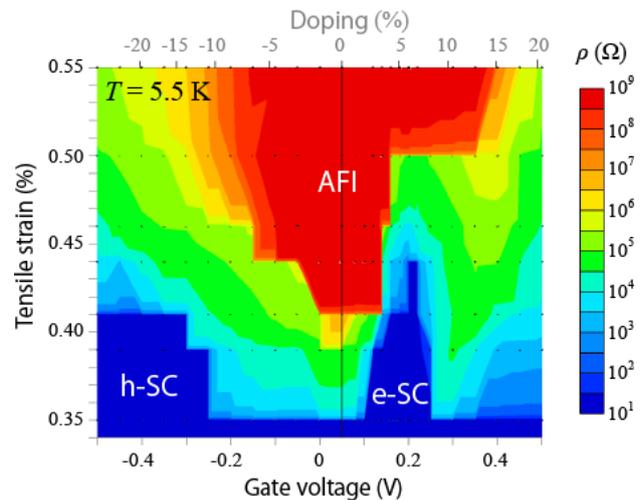


図3. 低温(5.5K)における電気抵抗率のゲート電圧および歪み依存性。青い領域が超伝導相を示している。AFI, h-SC, e-SCはそれぞれ反強磁性絶縁相、正孔ドーブ超伝導、電子ドーブ超伝導を示す。