



Title	mSR Study on Superconducting Gap Symmetry in Organic Superconductor λ -(BETS)2GaCl4
Author(s)	Sari, Dita Puspita
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/69333
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

Abstract of Thesis

Name (Dita Puspita Sari)	
Title	μ SR Study on Superconducting Gap Symmetry in Organic Superconductor λ -(BETS) ₂ GaCl ₄ (有機超伝導体 λ -(BETS) ₂ GaCl ₄ の超伝導ギャップ対称性に関する μ SR 研究)
Abstract of Thesis The superconducting gap symmetry is important to understand the mechanism of the Cooper pairing in superconductors. Among superconductors, organic-molecular based superconductors (OM SCs) are uniquely important because they tend to have the low dimensionality in electronic states and its dimensionality is tunable by chemical substitutions and the external pressure. Clean samples with fixed stoichiometry can be synthesized in OM SCs, resulting in deducing electronic states to be in simple and ideal physics models. My target system studied in my Ph.D. research is one of OM SCs, λ-(BETS)₂GaCl₄ (BETS = bis(ethylene)dithio tetraselenafulvalene). This system is metallic and undergoes a superconducting state at $T_c \sim 5.5$ K at ambient pressure. One interesting issue of this system is that the superconducting state links to that of the isostructural relative λ-(BETS)₂FeCl₄ which shows the superconductivity under magnetic fields higher than about 17 T. However, the superconducting gap symmetry of λ-(BETS)₂GaCl₄ is not yet well agreed due to debated experimental and theoretical results and is still an open question to be carefully studied. In order to determine the superconducting gap symmetry and the magnetic penetration depth of λ-(BETS)₂GaCl₄, I have performed the zero-field (ZF) and transverse-field (TF) muon spin relaxation (μSR) experiments down to 0.3 K at the ISIS and RIKEN-RAL Muon Facilities. Randomly aligned crystals were used for my measurements. I determined superconducting parameters T_c, H_{c1} and H_{c2} to be 5.3(1) K, 11(1) Oe and 63(1) kOe, respectively. I found that the superconducting gap symmetry of λ-(BETS)₂GaCl₄ is the mixture of the s-wave and d-wave symmetries. The s-wave symmetry is the major component with more than 70 % weight. I carried out density functional theory (DFT) calculations with my collaborators to discuss the superconducting gap symmetry from the theoretical viewpoint, assuming that λ-(BETS)₂GaCl₄ is a spin-fluctuation mediated superconductor in the spin singlet channel. I concluded that theoretical calculation result well supported our experimental results and that a new type of superconducting pairing symmetry, $s+d$-wave symmetry, appeared in λ-(BETS)₂GaCl₄.	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (Dita Puspita Sari)		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教授 萩原 政幸
	副 査	教授 黒木 和彦
	副 査	教授 中澤 康浩
	副 査	招へい教授 渡邊 功雄
	副 査	助教 中野 岳仁

論文審査の結果の要旨

学位申請者は、ミュオンスピン緩和法 (μ SR 法) と密度汎関数計算法によって有機分子性超伝導体である λ -(BETS)₂GaCl₄ の超伝導ギャップと超伝導電子の波動関数の対称性を研究した。北海道大学・学習院大学の共同研究者と協力して λ -(BETS)₂GaCl₄ の単結晶試料の合成を行い、理研 RAL ミュオン施設および ISIS ミュオン施設において μ SR 測定を実施した。 λ -(BETS)₂GaCl₄ は 2 次元的結晶構造を持ち、単位胞中で 4 つの BEDT 分子が 2 つずつダイマー状態を形成し入型の 2 次元的積層状態をとる。この BETS 分子間の HOMO 軌道の重なりによって電子の移動が実現されている。超伝導転移点 T_c はゼロ磁場中で約 5.3 K 程度である。その一方で超伝導ギャップと超伝導波動関数の対称性はまだ明らかにされていない。近年、同じ結晶構造を持つ λ -(BETS)₂FeCl₄ において 30 T を超す強磁場中での超伝導の発現が確認され、その磁場中超伝導が Fe と Ga を置換することによって連続的にゼロ磁場中で発現する λ -(BETS)₂GaCl₄ の超伝導状態につながっていることから、特異な磁場中超伝導状態の解明につながる関連物質として λ -(BETS)₂GaCl₄ の研究が重視されている。

学位申請者は λ -(BETS)₂GaCl₄ の単結晶を用いて SQUID による低磁場中での磁化率の詳細な測定より、下部臨界磁場 H_{c1} が約 10 Oe 程度であることを明らかにした。さらには強磁場中における上部臨界磁場 H_{c2} を決定することにより超伝導相関長を約 7.2 nm と決定することに成功した。 μ SR 測定においては、ゼロ磁場中のミュオンスピン緩和率が T_c においてほとんど変化を示さないことを明らかにし、超伝導電子時間判定対称性が破れている可能性が極めて低いと結論付けた。横磁場 μ SR 測定から超伝導状態における Voltex の状態を測定し、極低温におけるミュオンスピン緩和率の詳細な測定から、磁場侵入長を約 662 nm と決定した。また、このミュオンスピン緩和率の温度変化測定より、超伝導対称性が単純な s 波型や d 波型ではないことを見出し、より複雑な対称性を持つことを指摘した。この対称性を明らかにするため、非等方的 s 波模型と、s+d 波模型を用いてミュオンスピン緩和率の温度変化を解析し、比熱測定などの過去に得られた研究結果を考慮することによって、s+d 波模型による解釈が最も理に適うものであると結論づけた。さらには、この s 波成分と d 波成分が約 3:7 程度であることも見出した。

学位申請者はこれら一連の実験結果のさらなる考察のため、密度汎関数を用いたフェルミ面近傍における電子密度状態の計算を実施した。その結果、超伝導ギャップ状態にはいくつかの運動量方向に対してギャップが消失するノードが存在することを見だし、超伝導の対称性が単純な一意的波動関数で記述されないという自らの実験結果の理論的サポートを得ることに成功した。この計算結果をもとに共同研究者との共同作業と議論を行った結果、スピン揺らぎを媒介としたスピン-重項模型に基づく超伝導ギャップの計算から、実験結果から得られた 3:7 という等方的・異方的ギャップ比率が理論的にも支持されることが分かった。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。