

(名大院工\*, 兵庫県立大\*\*, 名城大総研\*\*\*, 京大低物セ\*\*\*\*)

○伊東裕\*, 丹羽政文\*, 鈴木丈夫\*, 大成誠一郎\*, 田仲由喜夫\*, 山田順一\*\*, 齋藤軍治\*\*\*, 矢持秀起\*\*\*\*

【序】近年、 $\kappa$ 型分子配列をもつ有機導体の超伝導転移が、分子の2量体化で1/2 フィールドとなった異方的三角格子に基づいて理解されつつあり、超伝導の発現と分子配列との関係が注目されている。一軸性圧縮は分子間の移動積分を選択的に変えられるため、この系に対する有力な研究手法である。一方、 $\kappa$ 型に比べて2量体化の弱い $\beta$ 型分子配列(図1)にも高い超伝導転移温度  $T_c$  を示すものがあり、分子の2量体化が高い  $T_c$  を得るために必要な条件であるかが注目される。我々は、BEDT-TTF 塩に次ぐ高い  $T_c$  をもつ $\beta$ -(BDA-TTP) $_2$ X の示す超伝導について、一軸性圧縮

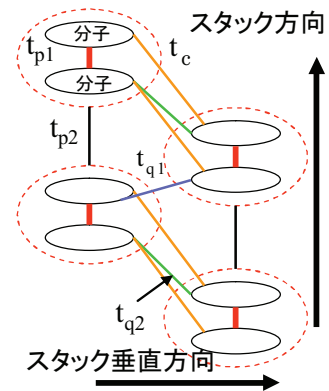


図1  $\beta$ 型分子配列

下の研究を進めてきた。その結果、 $X=SbF_6$  では、図2(a)のようにスタック( $//a+c$ )方向の圧縮により  $T_c$  が約 3kbar まで上昇した後下降に転ずるが、スタック垂直( $\perp a+c$ )方向の圧縮では  $T_c$  が単調に減少する。この振る舞いは2量体化三角格子ハバードモデルにおける、反強磁性揺らぎとスピンプラストレーションの interplay によって説明できることを示した[1]。一方、2量体の程度の弱い  $X=AsF_6$  では、スタック方向の圧縮により 2kbar に  $T_c$  の極小を示すなど、上記モデルだけでは説明できない特徴を示した。本研究では、 $\beta$ -(BDA-TTP) $_2$ X に加え、2量体の程度の大きい $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  についても一軸性圧縮下の電気抵抗測定を行い、さらに理論計算結果との対応から、2量体化の程度の違いと  $T_c$  の振る舞いとの関係を三角格子ハバードモデルに基づいて考察した。

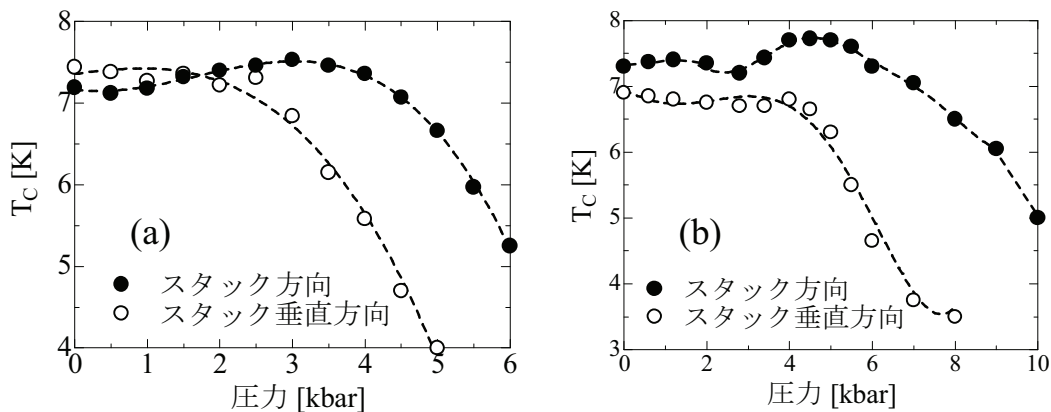


図2  $\beta$ -(BDA-TTP) $_2$ SbF $_6$  (a),  $\beta$ -(BDA-TTP) $_2$ AsF $_6$  (b)の一軸性圧縮下の  $T_c$

表 1 3つの塩の2量体の程度の違いを示す移動積分比

	$\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$	$\beta$ -(BDA-TTP) $_2$ SbF $_6$	$\beta$ -(BDA-TTP) $_2$ AsF $_6$
移動積分比( $t_{p1}/t_{p2}$ )	2.98	2.33	2.00

【実験】結晶試料は電解法により育成した。結晶方位の特定は ESR を用いて行った。一軸性圧縮の印加は、エポキシ固化法により行った。 $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  では、常圧の超伝導転移は  $T_c = 1.5\text{K}$  であり、1kbar 程度の圧力により超格子が抑制されて  $T_c = 8\text{K}$  の高  $T_c$  相が現れることが知られている。エポキシ樹脂固化により等方的圧力が与えられた結果、エポキシ固化状態で 8K の高  $T_c$  相が安定して得られた。エポキシ固化状態からさらに圧力を加えて、高  $T_c$  相の  $T_c$  の圧力依存性の測定を行った。

【結果と考察】 $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  に対する一軸性圧縮による  $T_c$  の変化を図 3 に示す。分子のスタック方向( $//a+b$ )への圧縮では 3.5kbar 付近までは緩やかに  $T_c$  が上昇して以降緩やかに減少した。スタック垂直方向( $\perp a+b$ )への圧縮では 3kbar 付近から  $T_c$  が急激に上昇して以降急激に減少した。スタック垂直方向への圧縮効果は加圧と共に  $T_c$  が減少する BDA-TTP 塩の場合とは大きく異なっている。

一軸性圧縮下の  $T_c$  を三角格子ハバードモデルに従って理論的に取り扱うために、圧縮下の平均的な分子の変位を仮定して拡張ヒュッケル法により圧縮による移動積分の変化を計算した。これらの移動積分を用いて FLEX 近似によりエリアシュベルグ方程式から一軸性圧縮下の  $T_c$  の圧力依存性を求めた。各塩の2量体化の程度の違いを考察するため、upper バンドのみの 1/2 フィルド2量体化モデルと、2量体を仮定しない2バンドの 1/4 フィルドモデルにおいて計算した。BDA-TTP 塩では、 $X=\text{SbF}_6$  については両モデルとも低圧領域での実験結果を再現する。一方、 $X=\text{AsF}_6$  については、2量体化を仮定しないモデルのほうが実験結果との一致がよい[2]。これは  $X=\text{AsF}_6$  において、2量体化の程度が弱く2量体近似がよくないことを反映した結果と思われる。また、 $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  については、2量体モデルにより、スタック方向、スタック垂直方向の2方向とも、低圧領域で  $T_c$  が上昇する計算結果となった。これは低圧領域での実験の傾向と一致しているが、スタック垂直方向における  $T_c$  の急激な変化は説明できていない。

講演では、実験結果と理論計算との対応について、より詳細に検討する。

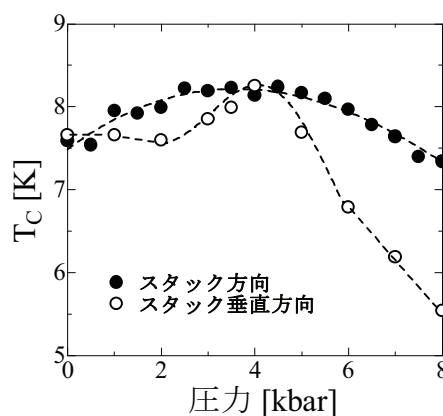


図 3  $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  の一軸性圧縮下の  $T_c$

[1] H. Ito et al., Phys. Rev. B 78, 172506 (2008)

[2] T. Suzuki et al., Physica C (2009), in press.