

$\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Iの圧力下電気抵抗

愛大院理・理工

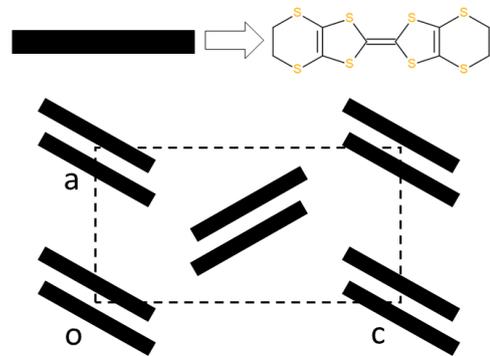
○嵐 育未, 山本 貴, 内藤俊雄, 小西健介

**Electrical resistivity of  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]I under hydrostatic pressure**○Ikumi Arashi, Takashi Yamamoto, Toshio Naito, Kensuke Konishi  
*Department of Chemistry, Ehime University, Japan*

**【Abstract】** Hidden ordered state due to electron-phonon and inter-site Coulomb interaction has been attracted attention in the field of High- $T_c$  and molecule-based superconductors. One of the standard methodologies studying a hidden ordered state is to observe pressure dependences of transport, optical and magnetic properties in the insulator phase in the vicinity of the superconducting phase by using a liquid pressure-medium. Nevertheless, there is no report on hidden ordered state of  $\kappa$ -ET salt by using of standard methodology above mentioned. Our experimental study on  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]I reveals that the insulator phase in the vicinity of the superconducting phase survives at 2 kbar, which is significantly larger than that of  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]Cl (300 bar). This result indicates that  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]I is advantageous to studying a hidden ordered state of  $\kappa$ -ET salt.

**【序】** 超伝導体には単体金属・銅酸化物・分子結晶などが存在する。単体金属や金属間化合物は格子揺らぎによる BCS 機構が広く受け入れられている。一方、銅酸化物の温度-キャリア密度相図では、超伝導相と反強磁性相が隣接するので、磁気ゆらぎ機構が検討されてきた。一部の分子結晶でも、超伝導相と反強磁性相が温度-圧力相図上で隣接するので、磁気ゆらぎ機構が検討されてきた(例： $\kappa$ -ET 塩・ $\beta'$ -Pd(dmit)<sub>2</sub> 塩)。ところが  $\beta''$ -ET 塩では、電荷整列と電子-格子相互作用が両立した絶縁体相が超伝導体相に隣接する<sup>[1]</sup>。同様の絶縁体相を示唆する実験結果は、最近の銅酸化物超伝導体の実験でも報告されている<sup>[2]</sup>。そこで、 $\kappa$ -ET 塩および  $\beta'$ -Pd(dmit)<sub>2</sub> 塩でも、超伝導に隣接する絶縁体相における電荷整列と電子-格子相互作用を探索する必要性が出てきた。 $\beta'$ -Pd(dmit)<sub>2</sub> 塩では既に報告済みなので<sup>[3]</sup>、 $\kappa$ -ET 塩の探索に着手した。

**【手法】**  $\kappa$ -ET 塩は、Fig.1 で示すように二次元系分子性導体に属し、対アニオンの異なる幾つかの物質が存在する。 $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu(NCS)<sub>2</sub>・ $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]Br は常圧で金属-超伝導転移を示すので<sup>[4]</sup>、絶縁体相の探索ができない。 $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]Cl は反強磁性絶縁体-超伝導転移を示すが、非常に狭い圧力領域(1 bar <  $P$  < 300 bar)<sup>[4]</sup>での探索を強いられる。ところで、



**Fig. 1.** Schematic views of two dimensional conducting layer

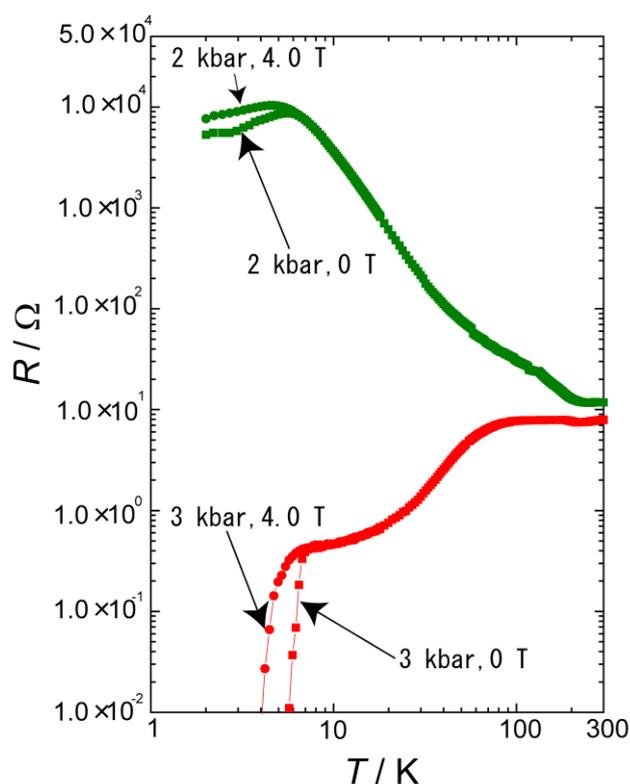
過去の文献<sup>[5]</sup>と異なる方法で作製した  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]I 単結晶では、超伝導の領域と半導体の領域が同一結晶内に混在し、各領域の割合が結晶毎に異なることを以前報告した<sup>[6]</sup>。そこで、我々は  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]I の圧力に対する応答が、 $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]Cl に比べて鈍いと期待し、半導体相から超伝導相に移行する境界領域の研究に最適であると考えた。

そこで、静水圧や一軸圧を印加して物性測定を行う計画を立てた。まずは静水圧実験を行い、過去の報告では検討されていない半導体-超伝導転移の圧力依存性の検討に着手した。

過去の報告と同じ仕込みで得た単結晶を用いた<sup>[6]</sup>。端子付けした結晶をテフロンセルに入れた後、圧力媒体である Daphne7373 で封入し、Cu-Be 製の圧力セルに装着した。圧力値は室温でのプレス機の値を利用した。低温磁場中の電気抵抗測定にはカンタムデザイン社製の PPMS を使い、冷却速度は 300-18 K では 1 K/min、18-2 K では 0.5 K/min である。磁場は 18-2 K の間で印加した。

**【結果・考察】** Fig.2 は静水圧下での電気抵抗の温度依存性である。3 kbar では金属-超伝導転移を示し、その挙動は  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]Br および加圧下での  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>[CuN(CN)<sub>2</sub>]Cl と似ている。しかし、2 kbar では、半導体的挙動を示した後、部分的に超伝導を示す。この挙動は、常圧の挙動に近い。室温から超伝導転移直上までの抵抗上昇値は 3 桁程度であり、常圧における上昇値である 2 桁-4 桁程度の範囲内に収まっている。

液体媒体と Cu-Be 製圧力セルという、最も汎用性の高い圧力印加法の範囲内で、抵抗挙動の大きな変化が観測された。従って、 $\kappa$ -ET 塩でも圧力下での各種物性測定により、超伝導に寄与する分子間相互作用の探索が可能であることが判明した。



**Fig. 2.** Temperature dependence of electrical resistance under hydrostatic pressures.

### 【参考文献】

- [1] T. Yamamoto, *et al.*, *Phys. Rev. B*, 77 (2008) 205120
- [2] da Silve Neto, *et al.*, *Science*, 347 (2015) 282, S. Johnston, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 108 (2012) 166404 など
- [3] T. Yamamoto, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 83 (2014) 053703, T. Yamamoto, *et al.*, *Sci. Rep.*, 7 (2017) 12930
- [4] T. Mori., *et al.*, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 83 (1999) 179
- [5] U. Geiser, *et al.*, *Physica C*, 174 (1991) 475, A. J. Shultz, *et al.*, *J. Solid State Chem.*, 94 (1991) 352
- [6] 中村ら, 第 10 回分子科学討論会, 1P050, (2016), 中村ら, 第 9 回分子科学討論会, 4P054, (2015)