

## $\beta''$ -(DODHT)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub>の圧力下磁化率

(筑波大院数物\* , 東大院総合文化\*\*) 西川浩之\* , 志賀拓也\* , 大塩寛紀\*  
比嘉百夏\*\* , 近藤隆祐\*\* , 鹿児島誠一\*\*

【序】従来のTTFドナーに比べ縮小した電子系を持ち、さらに分子構造が非平面的なドナーDODHTは、その分子の特徴のため電子相関が強い系を与えやすいドナーである。事実DODHTから圧力下において超伝導を示すラジカル塩、 $\beta''$ -(DODHT)<sub>2</sub>X [X = PF<sub>6</sub>, AsF<sub>6</sub>, BF<sub>4</sub>·H<sub>2</sub>O]、をすでに見出している[1]。これら3種の超伝導体はすべて、常圧では約250 Kに絶縁体転移を示す。図1にPF<sub>6</sub>塩の種々の圧力下における電気抵抗の温度依存性を示す。加圧に伴い絶縁体転移温度は低温側へとシフトし、10 kbar付近で転移は明瞭ではなくなる。さらに加圧すると、11 kbar以上で金属となり、13.2 kbarで超伝導転移を示す。他の塩も概ね同様の振る舞いを示す。これら塩のドナー配列はすべて $\beta''$ 型であり、バンド計算の結果1/4-filledのバンド構造を有し、フェルミ面は擬一次元と二次元のフェルミ面からなる(図2)。常圧における磁化率は、転移温度以下で、一次元の交互ハイゼンベルグモデルに従う温度依存性を示した。また、X線回折実験から転移温度以下で、*a*-軸方向に倍周期に対応する超格子反射が観測された。これら実験結果と、バンド構造が1/4-filledであることから、常圧における絶縁相が電荷秩序状態であることを明らかにした[2]。常圧の絶縁相と超伝導相の間の絶縁体の状態を明らかにすることは、電荷秩序系の超伝導体における超伝導発現の機構を解明する上でも重要である。そこで本研究では、圧力下における絶縁相を明らかにすることを目的とし、圧力下における磁化率の測定を行なったので報告する。

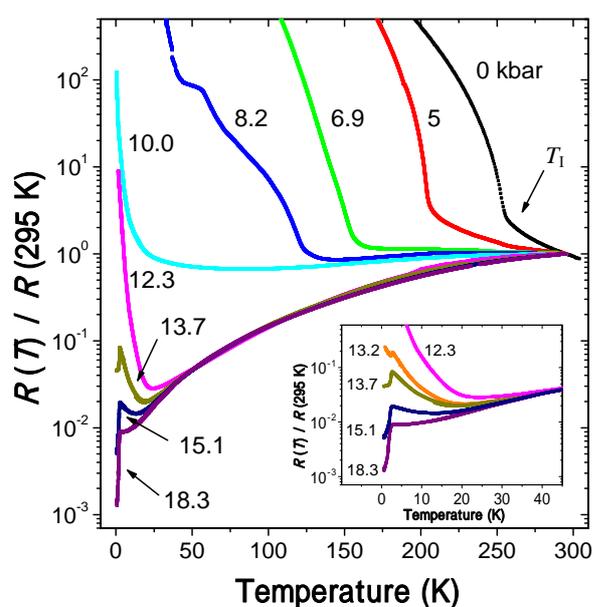


図1 種々の圧力下における $\beta''$ -(DODHT)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub>の電気抵抗の温度依存性

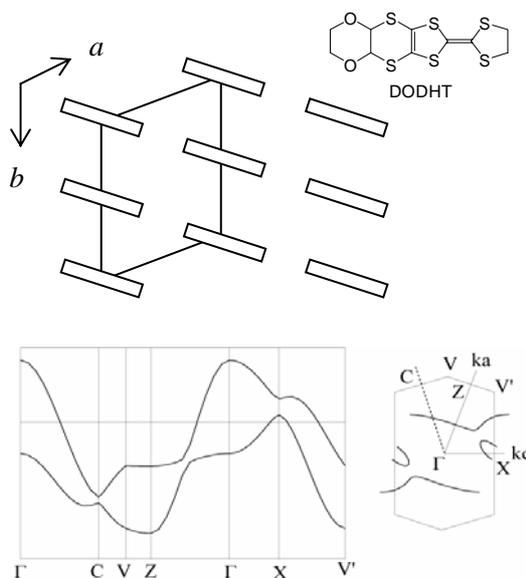


図2  $\beta''$ -(DODHT)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub>のドナー配列、バンド構造およびフェルミ面

【実験】圧力下の磁化率測定は、 $\beta''$  ( $\text{DODHT})_2\text{PF}_6$ について、BeCu製のクランプセル（協和製作所）を用いて2 ~ 15 kbarの範囲で行った。圧力媒体にはダフニー7373を用いた。磁化率はSQUID（MPMS）により印加磁場3 Tで測定した。また、13 kbar以上の圧力下における超伝導転移を確認するため、印加磁場10 Oeで超伝導に伴う反磁性の測定を行った。

【結果と考察】図3に13 kbarおよび13.2 kbarにおける磁化率の温度変化を示す。13 kbarの圧力では、7 K以下で磁化率の温度変化はほとんど認められなかったが、13.2 kbarに加圧すると、超伝導転移に伴う反磁性が観測された。電気抵抗の温度依存性において、13.2 kbarにおいて超伝導転移によると考えられるピークが2.8 Kに観測されている（図1）。このピーク構造は、磁場の印加で抑えられることから、超伝導転移に起因していることが示されている。転移後抵抗値が温度低下に伴い増加していることから、超伝導状態と常伝導状態が共存しているものと考えられる。今回、13.2 kbarの圧力下で反磁性が観測されたことから、この電気抵抗の温度依存性に見られる抵抗の一時的な落ち込みが、超伝導によるものであることが明らかとなった。磁化率の温度変化から見積もられる転移温度は2.5 Kで、電気抵抗の温度依存性においてピークが見られる温度2.8 Kよりも若干小さいもののほぼ一致している。

常圧における磁化率の温度依存性は、絶縁体転移温度である255 Kに小さなとびが見られた後、温度低下に伴い徐々に増大し、200 K付近にブロードな極大を示す。その後緩やかに減少し、約40 Kで非磁性となる。圧力下においても、絶縁体転移に対応する明確な異常は見られなかったものの、200 K付近におけるブロードな極大が4 kbarまで観測された。5 ~ 7 kbarの範囲では、極大は見られないが、磁化率は温度の低下にとともに緩やかに減少した。圧力下においても、7 kbarまでは、一次元交互ハイゼンベルグモデルで再現できるような磁化率の温度変化が観測された。これに対し、8 kbar以上の圧力では、磁化率は室温から徐々に減少するものの、その温度変化は直線的であり、明らかに異なった磁化率の挙動を示した。現時点では、圧力セルによるバックグラウンドの補正を行っていないため、定量的な議論ができていない。圧力セルによるバックグラウンドの見積もり、およびデータの解析は、現在検討中である。

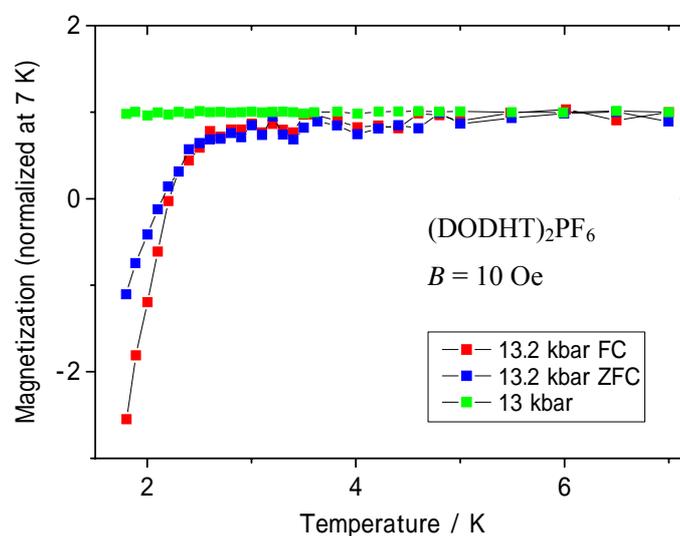


図3 .  $\beta''$  ( $\text{DODHT})_2\text{PF}_6$ の13 kbar付近における磁化率の温度依存性

#### 【参考文献】

- [1] H. Nishikawa et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **2002**, 124, 730.  
 [2] H. Nishikawa et al., *Phys. Rev. B*, in press.