

κ - (ET)₂Cu[N(CN)₂]I の複雑な超伝導挙動

(愛媛大院・理工) ○中村祐介, 山本貴, 内藤俊雄, 小西健介

Properties of the superconducting transition of

κ - (ET)₂Cu[N(CN)₂]I

(Ehime Univ.) ○Yusuke Nakamura, Takashi Yamamoto, Toshio Naito,
Kensuke Konishi

【序論】

κ -型 ET 塩は有機超伝導体やスピン液体としてよく研究されてきた分子性結晶である。 κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]X (X=Cl,Br) はそれぞれ反強磁性絶縁体、常圧超伝導体として知られている。一方、X=I の伝導挙動に関しては長らく統一の見解がないままである^{[1],[2]}。

ところで、X=Cl の物質は反強磁性絶縁体である κ -型だけでなく、常圧超伝導体である κ' -型、常圧金属である κ'' -型が多形として存在し、互いの格子定数が極めて近い^{[3],[4]}。また、X=Cl の κ -型に極めて弱い 0.3 kbar の圧力を印加すると超伝導体になる^{[5],[6]}。一方、X=Br は単結晶を急冷すると、分光学的応答の異なる 2 種類の区画が現れる^[7]。したがって、X=I の伝導性も多形や相分離の観点から見直す必要性がある。

2015 年度分子科学討論会では、X=I の電気抵抗測定で、結晶ごとの電気抵抗の挙動が違ったものの、どの結晶でも共通して磁場応答が確認されたことを報告した。また、磁化率測定でも、完全反磁性が観測されたことを報告した。

今回、転移温度以下の抵抗の挙動（極値や変曲点など）の検討と、転移の次数や各相の安定性を調べるために冷却速度依存性の検討を行った。また、常圧でノイズレベルまで抵抗が減少した結晶を見つけたので報告する。

【実験】

2015 年度分子科学討論会で報告した結晶作製法で作製した結晶を用いて、カンタムデザイン社製の PPMS で電気抵抗測定を行った。冷却速度は 300–18 K では 1.5 K/min、18–2 K では 1.0 K/min であった。また、磁場は 18–2 K の間で最大 9 T まで印加した。次に、冷却速度依存性を検討するため、上述とは違う冷却速度で測定を行った。

【結果】

まず、単結晶(a)~(c)の電気抵抗の測定結果を Fig.1 に示す。縦軸は抵抗率 $\rho / \Omega \cdot \text{cm}$ 、横軸は温度（温度の逆数）である。単結晶(c)はグリース中で弱い圧力 (~0.2 kbar) を印加した抵抗率である。ゼロ磁場における低温領域に注目すると、単結晶(a)~(c)は 8 K 付近から抵抗減少が始まるだけでなく、6 K 付近からも抵抗減少が観測されている。

磁場を印加すると、どの結晶でも抵抗率が上昇しており、単結晶(a)~(c)に見られる 6 K 付

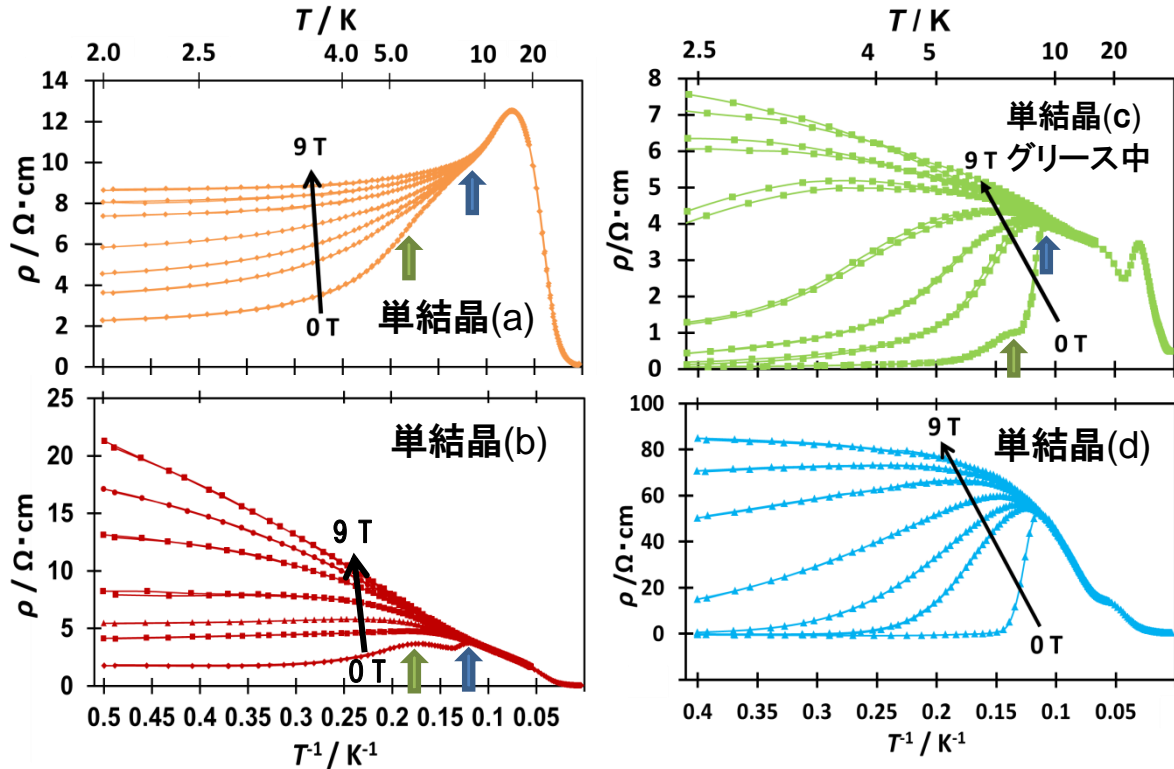


Fig.1: 磁場中での抵抗率の温度依存性(横軸は上下共に揃えてある)

近の抵抗挙動の変化は消えているように見える。これらのことから、 $T_{SC1}^{\text{onset}} = 8 \text{ K}$ と $T_{SC2}^{\text{onset}} = 6 \text{ K}$ で超伝導転移が 2 回生じている可能性がある。

また、単結晶(d)の電気抵抗の測定結果も Fig.1 に示してある。常圧で抵抗がノイズレベルまで減少している結晶が発見された。超伝導転移温度 $T_{SC1}^{\text{onset}} = 8 \text{ K}$ であり、以前報告した磁化率での転移温度とほぼ同じである。

ここで、ノイズレベルまで抵抗が減少している単結晶(c)と(d)に注目する。単結晶(c)では $T_{SC1}^{\text{onset}} = 8 \text{ K}$ の変化が主となっており、単結晶(d)では $T_{SC1}^{\text{onset}} = 8 \text{ K}$ の変化のみが観測される。しかも、 $T_{SC1}^{\text{onset}} = 8 \text{ K}$ の変化は絶縁体-超伝導転移であり、 $\kappa\text{-(ET)}_2\text{Cu(NCS)}_2$ のような金属-超伝導転移とは異なる機構であることが示唆される。

次に、冷却速度依存性を調べるため、 $18\text{--}2 \text{ K}$ で最大 15 K/min 、または $30\text{--}2 \text{ K}$ で最大 20 K/min の急冷を行い、昇温 (1 K/min) での電気抵抗をそれぞれ測定した。しかしながら、どちらの測定でも急冷による抵抗率の変化は見受けられなかった。つまり、「 $T_{SC1}^{\text{onset}} = 8 \text{ K}$ での超伝導転移に寄与する常伝導相」と「 $T_{SC2}^{\text{onset}} = 6 \text{ K}$ での超伝導転移に寄与する常伝導相」の相分離はより高い温度で起こっている可能性がある。

【参考文献】

- [1] U. Geiser, *et al.*, *Physica C*, Vol.174, 475 (1991).
- [2] M. A. Tanatar, *et al.*, *Phys. Rev. B*, Vol.62, No.23, 561 (2000).
- [3] V. N. Zverev, *et al.*, *Phys. Rev. B*, Vol.74, 104504 (2006).
- [4] N. D. Kushch, *et al.*, *J. Solid State Chem.*, Vol.182, 617 (2009).
- [5] J. M. Williams, *et al.*, *Inorg. Chem.*, Vol.29, 3272 (1990).
- [6] H. Kobayashi, *et al.*, *Chem. Lett.*, Vol.20, 1997 (1991).
- [7] N. Yoneyama, *et al.*, *Phys. Rev. B*, Vol.72, 214519 (2005).