

擬一次元有機導体(TMTSF)₂ReO₄における 小周期振動とシュタルク量子干渉効果 Rapid oscillations and Stark quantum interference in quasi-one-dimensional organic conductor (TMTSF)₂ReO₄

北大・理 松永 悟明、駒田智也、野村 一成

東北大・金研 佐々木 孝彦

N. Matsunaga^A, T. Komada^B, K. Nomura^A, T. Sasaki^C,

^ADepartment of Physics, Hokkaido University, Japan

^BDepartment of Condensed Matter Physics, Hokkaido University, Japan

^CIMR, Tohoku University, Japan

1. はじめに

TMTSF 分子は平板状をしており、その面に垂直な方向に広がった電子軌道(π 軌道)が存在しているため、TMTSF 分子が積層している a 軸方向は電子軌道の重なりが大きく、通常、高い電気伝導率を示す。2:1 塩である(TMTSF)₂X では、2 つの TMTSF 分子から 1 個の電子がアニオン X に引き抜かれるので、TMTSF 分子 1 個当たりの平均価数は+0.5 価となり、1/4-filled の hole バンドができる。しかし実際には、 a 軸方向に積層している TMTSF 分子は二量体を組んでいるため、1 つの二量体あたり+1 価となり (TMTSF)₂X のバンド構造は通常 1/2-filled となる[1]。

アニオンが正四面体構造をもつ非対称アニオン X=ReO₄ の場合、ReO₄⁻アニオンは結晶中では二つの安定な配向をもち、低温で配向秩序転移をおこす。この温度を anion ordering(AO)温度(T_{AO})と呼ぶ。常圧の(TMTSF)₂ReO₄ では波数(1/2,1/2,1/2)の周期で $T_{AO} = 180\text{K}$ において秩序化し、電子系は絶縁化する。アニオンの秩序化は、 a 軸方向に新たに 2 倍周期の構造ができることを意味しており、系は四量化していると考えられる。常圧の(TMTSF)₂ReO₄ では AO による周期ポテンシャルが大きいため、1 つの四量体あたり+2 価となり(TMTSF)₂X のバンドは満たされ絶縁化していると考えられる。

一方、0.8GPa 以上の圧力下においては波数(1/2,1/2,1/2)の周期ではなく、波数(0,1/2,1/2)の周期で ReO₄⁻アニオンが一度秩序化する[2,3]。この圧力下では低温まで金属状態を保ち[4]、ClO₄⁻アニオンの場合と同様に c^* 軸方向に磁場をかけると量子化さ

れたホール抵抗を伴うスピン密度波(SDW)相に逐次相転移をする[5,6]ことから、図 1 に示されるようにフェルミ面は二対の擬一次元的であると考えられる。ここで、磁場の印加により生じる SDW を磁場誘起 SDW (FISDW) と呼ぶ。

これまでに、(TMTSF)₂ReO₄ の金属相および FISDW 相内の磁気抵抗にシュブニコフ・ド・ハース効果と似た小周期振動と呼ばれる振動が観測され振動数が圧力に依存することを報告してきた。

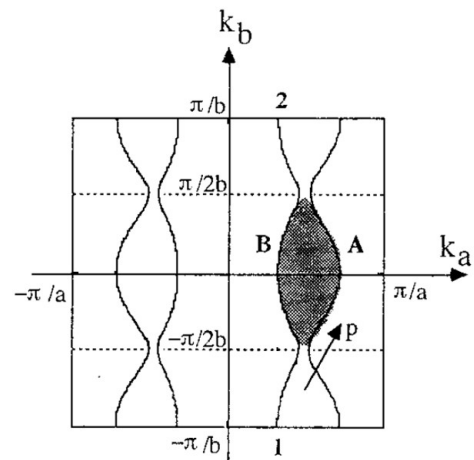


Fig.1 Schematic of the Fermi surfaces of (TMTSF)₂ReO₄, resulting from a dimerization of the system along the b axis. From [7]

2. 目的

本研究の目的は、非対称アニオンの秩序化をとともなう擬一次元有機導体の高磁場下において観測される小周期振動の圧力及び温度依存性を明らかにし、その起源を議論することである。この目的のた

めに、 $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ に対して磁気抵抗の測定を様々な圧力下で行った。

3. 結果

図2に0.93 GPaの圧力下における17 Tまでの磁気抵抗の磁場依存性を示す。磁場は c^* 軸方向にかけた。6.0 Kでは磁気抵抗はあまり磁場依存性がないが、それ以下の温度ではFISDW転移にともなう磁気抵抗の上昇が磁気抵抗のヒステリシスをともなって観測された。金属相、FISDW相の両者において明確な小周期振動が現れている。小周期振動は磁場の逆数に対して周期的に振動しており、その振動数はおよそ320 Tであり温度依存性はほとんど無かった。この結果は、以前の報告例とほぼ一致している。

[6]

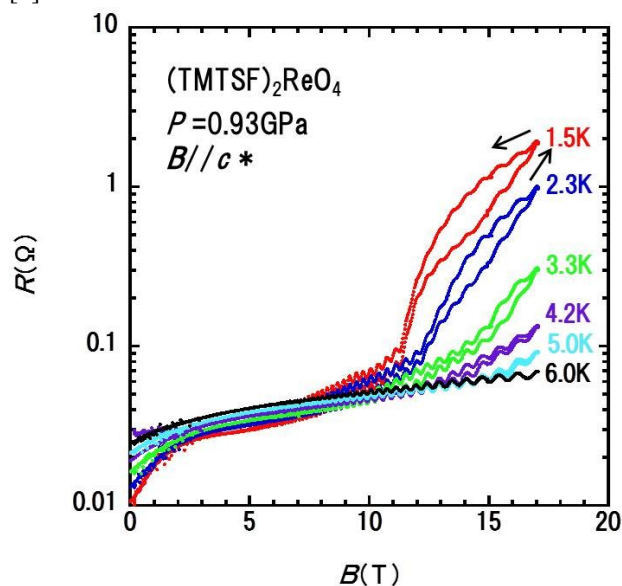


Fig.2 Magnetoresistance of $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 0.93 GPa with the field parallel to the c^* direction at 1.5, 2.3, 3.3, 4.2, 5.0 and 6.0 K.

図3に様々な圧力における17 Tまでの磁気抵抗の磁場依存性を示す。1.2 GPaの圧力下においてFISDW転移にともなう磁気抵抗の上昇が観測され、圧力が増すにつれて、FISDW転移磁場は増大した。このことは圧力が増すにつれて系の二元性が増大しFISDW相への転移が起こりにくくなっていることを反映している。

振動数の圧力依存性を図3にプロットした。図に示したように1.0 GPaまでの圧力下では小周期振動

の振動数はほぼ320 Tであった。一方、1.2 GPa以上では小周期振動の振動数が連続的に増大し1.6 GPaでおよそ360 Tまで増大した。

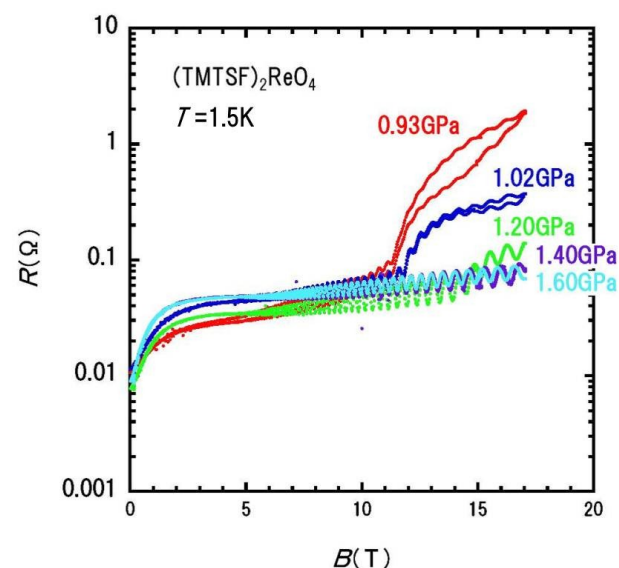


Fig.3 Magnetoresistance of $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 1.5 K with the field parallel to the c^* direction at 0.93, 1.02, 1.2, 1.4 and 1.6 GPa.

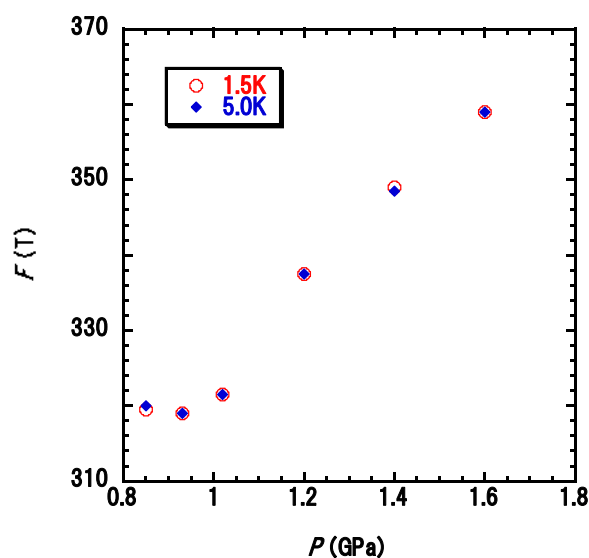


Fig.4 Pressure dependence of the rapid oscillation frequency in $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 1.5 and 5.0 K in the field parallel to the c^* direction.

金属領域における少周期振動の振幅の圧力依存性を図5にプロットした。図に示したように低温になればなるほど、また高磁場になればなるほど少周期振動の振幅の振幅が増大した。さらに圧力が増大

するに連れて少周期振動の振幅は 1.2GPa までは著しく増大し、それ以上の圧力では振幅がゆっくりと減少した。

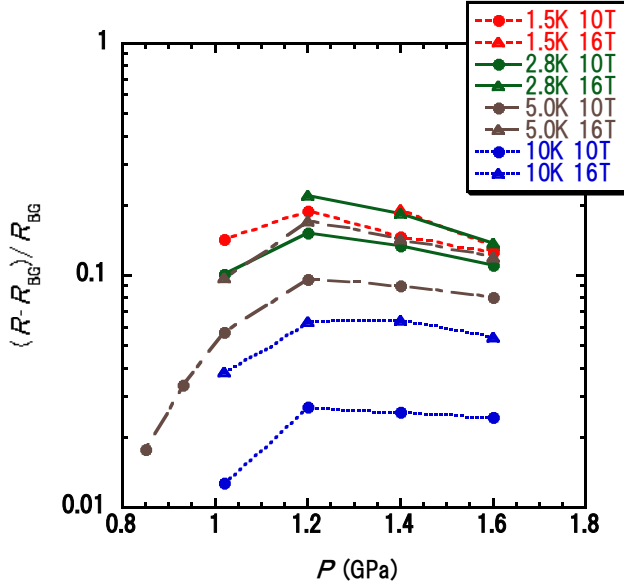


Fig.5 Pressure dependence of the rapid oscillation amplitude in $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 1.5, 2.8, 5.0 and 10 K in the field parallel to the c^* direction.

金属領域における小周期振動は一見シュブニコフ・ド・ハース振動とよく似ているが、図1に示した様にフェルミ面に閉じた軌道がなく、他の効果について考えなければならない。図1の様なフェルミ面を電子が移動する際に、磁場が弱ければ電子はフェルミ面に沿って移動する。一方磁場が大きくなれば軌道が近い領域でマグネチックブレークダウンが生じて隣の軌道にある確率でトンネルする。この場合、ある位置でトンネルし1周期進んだ後再びトンネルして元の軌道に戻った電子と、元の軌道を移動していた電子とが干渉し合うことで抵抗の振動が生じる。このような振動を Stark quantum interference (QI) effect という[7,8]。トンネルする確率 p はアニオン秩序化が作るエネルギーギャップ E_g を用いて、

$$p = \exp\left(-\frac{\Delta}{H}\right), \Delta \cong \frac{m^* c}{\hbar \varepsilon} \frac{E_g^2}{E_F}$$

と表せる。緩和時間 τ を考慮することで、振幅は次のようになる。

$$I_{osc} = 2p(1-p)\exp\left(-\frac{\pi}{\omega_{c\tau}}\right)$$

図6に 1.02GPa、5K における小周期振動の振幅を Stark QI effect でフィッティングした結果を示す。振幅の磁場依存性を大変良く説明できた。アニオン秩序化が作るエネルギーギャップ E_g は 0.016eV と見積もられた。同じエネルギーギャップを用いて緩和時間 τ をパラメータとして小周期振動の振幅の温度依存性も説明できた。又、圧力が増すと E_g は増大した。以上のことより、 $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ の小周期振動の起源は Stark QI effect で大変よく説明できるとがわかった。

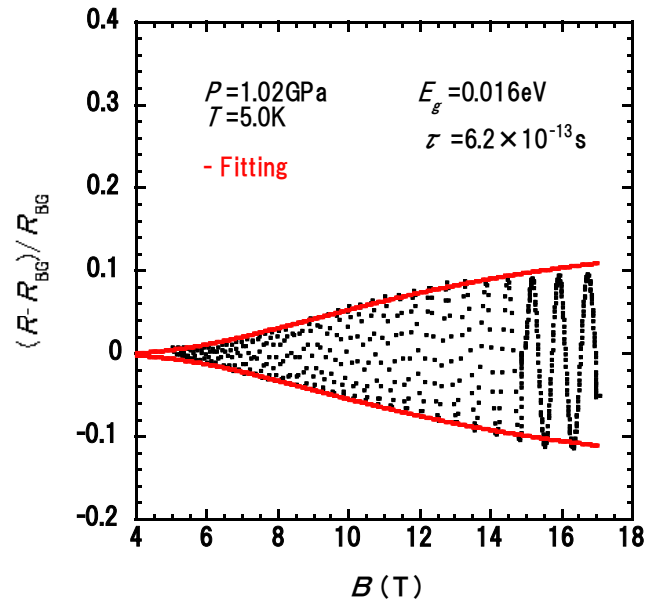


Fig.6 Magnetic field dependence of the rapid oscillation amplitude in $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 5.0 K and 1.02 GPa in the field parallel to the c^* direction.

4. まとめ

本研究により $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ で起こる少周期振動の振動数の圧力依存性や振幅の圧力及び温度依存性を明らかにすることができた。その結果、 $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ の小周期振動の起源は Stark QI effect で大変よく説明できるとがわかった。今後、FISDW における少周期振動と比較し、両相の小周期振動の関係を明らかにしていきたい。

主な発表論文

(CAMBLIDGE UNIV. PRESS) (2009)

1. N. Matsunaga, K. Yamashita, H. Kotani, K. Nomura, T. Sasaki, T. Hanajiri, J. Yamada, S. Nakatsuji, H. Anzai, Physical Review B Vol. **64**, 052405 (2001)
2. K. Yamashita, N. Matsunaga, K. Nomura, T. Sasaki, T. Hanajiri, J. Yamada, S. Nakatsuji, H. Anzai, Synthetic Metals **133-134** P. 63-64 (2003)
3. A. Ishikawa, N. Matsunaga, K. Nomura, T. Sasaki, T. Nakamura, T. Takahashi, G. Saito Physical Review B **67**, 212404-1-4 (2003)
4. N. Matsunaga, K. Hino, T. Ohta, K. Yamashita, K. Nomura, T. Sasaki, A. Ayari, P. Monceau, M. Watanabe, J. Yamada and S. Nakatsuji J. Phys. IV France **131**, 269-272 (2005)
5. Noriaki Matsunaga, Katutosi Hino, Takamichi Ohta, Katsumi Yamashita, Kazushige Nomura, Takahiko Sasaki, Maki Watanabe, Jun-ichi Yamada, and Shin'ichi Nakatsuji JOURNAL OF LOW TEMPERATURE PHYSICS **142** (3-4): 473-476 (2006)

参考文献

- [1] T. Ishiguro, K. Yamaji, and G. Saito Organic Superconductors II (Springer- Verlag, Berlin, 1998).
- [2] S. Tomic and D. Jérôme J. Phys.: Condens. Matter **1** 4451 (1989)
- [3] C. Colin, P. Auban-Senzier, C. R. Pasquier and K. Bechgaard Europhys. Lett. **75** 301 (2006)
- [4] S. Tomic, D. Jérôme and K. Bechgaard J. Phys. C: Solid State Phys. **17** L11 (1984)
- [5] H. Schwenk, S. S. P. Parkin, R. Schumaker, R. L. Greene and D. Schweitzer Phys. Rev. Lett. **56**, 667 (1986)
- [6] W. Kang, J. R. Cooper, and D. Jérôme Phys. Rev. **B43**, 11467 (1991)
- [7] S. Uji, T. Terashima, H. Aoki, J. S. Brooks, M. Tokumoto, S. Takasaki, J. Yamada, and H. Anzai Phys. Rev. **B53** 14399 (1996)
- [8] D. Shoenberg, Magnetic oscillations in metal