

HMTSF-TCNQ の圧力下、強磁場磁気抵抗 Magnetoresistance of HMTSF-TCNQ under Pressure in High Magnetic Field

大阪市立大学・理 村田恵三, 横川敬一, 小林賢介, 増田耕育, 瀬能夕貴, 森嶋健太, 吉野治一

東北大・金研 佐々木孝彦

パリ南大学・固体物理研

D. Jérôme

NHFML, Florida 州立大

J.S. Brooks

理研

加藤礼三

K. Murata¹, K. Yokogawa¹, K. Kobayashi¹, K. Masuda¹, Y. Seno¹, K. Morishima¹,

H. Yoshino¹, T. Sasaki², D. Jérôme³, J.S. Brooks⁴, R. Kato⁵

¹ Graduate School of Science, Osaka City University

² Institute for Materials Research, Tohoku University

³ Lab. Physique des Solides, Université Paris Sud

⁴ Nat. High Mag. Field Lab. Florida St. University,

⁵ RIKEN

1. はじめに

HMTSF-TCNQ は TTF-TCNQ 系での超伝導探索の展開の中で研究されてきたものであり、HMTSF 鎖で正孔伝導、TCNQ 鎖で電子伝導を示す擬 1 次元 2 鎖伝導体である。電気抵抗は温度低下とともに減少し、およそ 30 K で CDW(電荷密度波)に起因した金属絶縁体転移をする。ここに HMTSF-TCNQ は hexamethylene tetraselena fulvalene- tetracyano quinodimethane, TTF は tetrathia fulvalene である。

1970 年代の報告によれば、常圧では金属的伝導性を示し、50 K 付近に抵抗極小があり、抵抗は上昇するが、10 K 以下で飽和が始まり、1 K 付近では抵抗極小値より 10 倍の抵抗値に留まる。また、1.5 GPa 程度の圧力で MI 転移が見られ[1]、さらに、0.9、1.0 GPa では Shubnikov-de Haas 振動が見られたとされる[2]。

著者らはこの圧力付近での強磁場物性に興味を持ち、2008 年度の東北大の金研での実験を試み、1.5 GPa、14 T 以上で磁気抵抗に折れ曲がりや履歴現象を発見した。これはあたかも磁場誘起の SDW(スピン密度波)で観測された磁気抵抗の傾向に似ているものであった[3]。

仙台の実験が契機となり、Tallahassee にて 31 T までの強磁場、0.5 K までの低温まで測定域を拡張し、精査した。磁場の向きは 1 次元軸と垂直な二つの方向で測定した。その結果、1.5 GPa 付近の圧力下で磁気抵抗に i) ~14 T 以上で 2 方向の横磁気抵抗に履歴現象が現れる。ii) この履歴現象が磁場の掃引で決まるが、高磁場状態、低磁場状態とは言えない。iii) 時間的に磁場掃引を止めても状態変化はない。iv) 1 方向では周期運動のような抵抗のうねりが生ずる。v) また 0 GPa では消失することを示した[4,5]。以上の実験に用いた試料は 1970 年代に Bechgaard が作成したものである。

試料の経時変化が疑われる現象がいくつか見られたため、2009 年度、即ち 2009 年 11 月の東北大での実験では、理研の加藤礼三氏の新しい試料で実験を行った。これが本報告の本旨である。

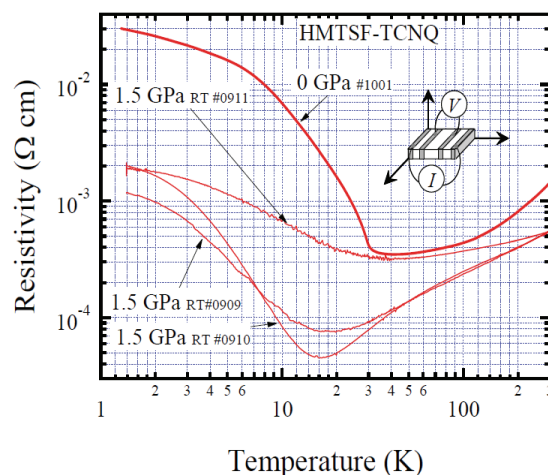


Fig. 1 Temperature dependence of resistivity of HMTSF-TCNQ grown by R. Kato in 2009. One sample is for $P = 0$, and other three samples are for $P = 1.5$ GPa in piston cylinder with Daphne7373.

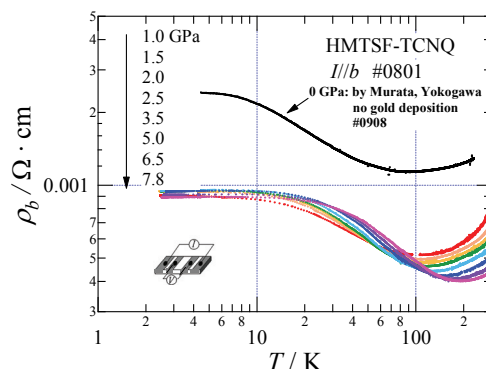


Fig. 2 Temperature dependence of resistivity of HMTSF-TCNQ grown by Bechgaard in 1970's. Colored data are for pressure up to 7.8 GPa with cubic anvil with Daphne7373.

2. 新しい試料での 1.5 GPa の性質

Fig. 1 と Fig. 2 はそれぞれ新しい試料と古い試料の抵抗率の常圧および圧力下の温度依存性の結果である。新試料では金属・非金属転移が明瞭に読み取れる。また、圧力下で抵抗が転移点が減少する。ひとつの試料(#0911)の 1.5 GPa の温度依存性は他の二つと異なるが、原因は不明である。

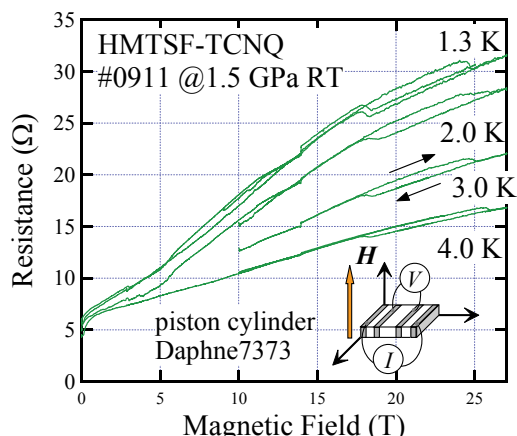


Fig. 3 Magnetoresistance of HMTSF-TCNQ of #0911 under pressure of 1.5 GPa (measured at 300 K) in piston cylinder. Hysteretic behavior for sweeping up and down the field was pronounced around 18 -25 T.

この#0911 試料の磁気抵抗に 18 -25 T の間で磁場掃引による履歴現象が見られた (Fig. 3)。例えば 1.3 K の磁場上昇掃引では、25 T まで抵抗が上昇したあと階段状に抵抗が減少し再び抵抗上昇に転じる。その後の磁場下降掃引では 25 T は連続的に通過し 18 T で階段状に抵抗が上昇し、その後は抵抗は連続的に減少する。この履歴ループにおいて上昇時 25 T に近い磁場で待つと数分の時間スケールで下の曲線に移る。下降時 18 T に近い磁場で待つと同じく数分の時間スケールで上の曲線に移る。これを繰り返すと、最初は待っていても遷移しないような 25 T からもっと離れた磁場でも遷移するようになる。即ち履歴を繰り返し、ループの端で待つことにより履歴ループは小さくなる。この履歴現象は自定数は異なるが、

#0909, #0910 の試料は Fig. 1 によれば、同じ温度依存性を示している。磁気抵抗測定では両者に印加した磁場の向きはどちらも横磁気抵抗配置であるが概ね垂直である。磁場下の結果を Fig. 4, Fig. 5 に示す。これらの結果をみると、Shubnikov de Haas 振動というよりも磁場下で磁場誘起の逐次相転移が 1 次転移として起こっていると結論できる。

また一見他と異なる性質を示しているように見える#0911 の示す 23 T 付近での転移は共通の現象が起きていると考えられる。

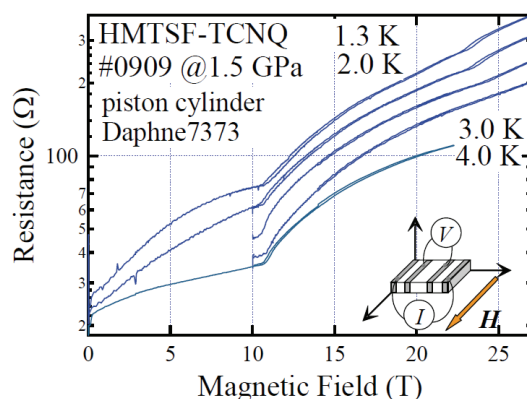
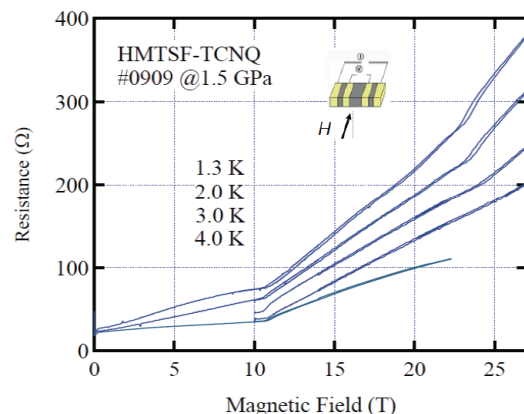


Fig. 4 Magnetoresistance of HMTSF-TCNQ of #0909 under pressure of 1.5 GPa (measured at 300 K) in piston cylinder. Successive transitions at 11 and 23 T are obvious. Hysteretic behavior are seen at both transitions. Two figures are of the same data but plotted in logarithmic and linear scales.

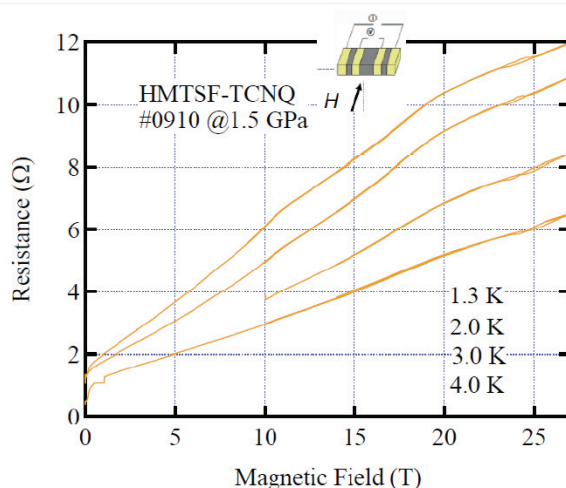


Fig. 5 Magnetoresistance of HMTSF-TCNQ of #0910 under pressure of 1.5 GPa (measured at 300 K) in piston cylinder. Successive transitions at 11, 18 and 23 T are obvious. Less but clear hysteretic behavior are seen.

3.2.0 GPa の性質

1.5 GPa の圧力下、磁場下の物性に集中してきたが 2.0 GPa の磁気抵抗の測定を行った結果、履歴現象も逐次転移的な現象も見えなかった (Fig. 6)。一方、常圧でもそれらの現象がみられていないことが我々の Tallahassee での実験で確認した。

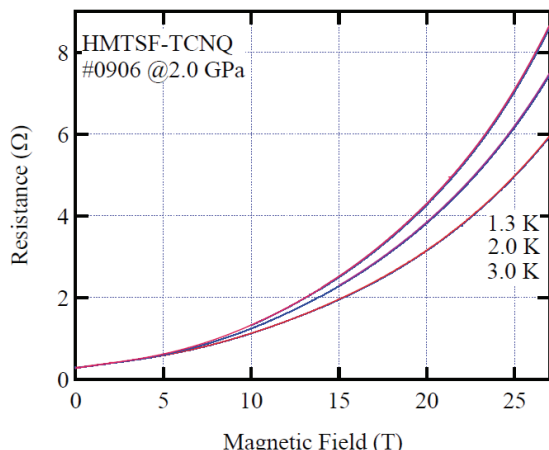


Fig. 6 Magnetoresistance of HMTSF-TCNQ of #0906 under pressure of 2 GPa (measured at 300 K) in piston cylinder. Field induced transitions disappeared at this pressure. No hysteresis are seen between sweep up and down the field.

4. 議論と結論

HMTSF-TCNQ のバンド計算が Weger がバンド計算を与えている[6]。現在のような有機伝導体のバンド計算技術が確立する以前の結果であることは考慮しておく必要はある。Weger によれば、常圧、室温では HMTSF の 1 次元正孔 hole シートと TNCQ の 1 次元電子シートがあり、低温で CDW のネスティングにより hole の 2 次元チューブと電子の 3 次元ポケットがあると結論している。それならば、これらの 2 次元チューブが SdH 振動、あるいは量子 Hall 効果を示し、3 次元のポケットも SdH 振動を示してもよさそうである。しかし、常圧の磁気抵抗では何も磁気抵抗に振動が現れていない (Tallahassee での我々の実験、但し古い試料)。

しかし、1.5 GPa では磁気抵抗に振動や履歴が見られたことは、むしろこの圧力で Weger の計算したような不完全ネスティングが起きているのではないかと考えられる。

そして更なる加圧、2 GPa ではこれらの現象が消えることはネスティングが更に不完全になったためと考えられるが、更なる加圧が必要である。ちなみに古い試料での測定では高圧をかけても低温での抵抗上昇は抑えられず、むしろ抵抗極小温度はわずかに上昇傾向にあった。しかし、新試料では、明らかに転移温度は 30 K ($P = 0$) から 10 K 付近に転移温度は減少した (Fig. 1)。

強磁場抵抗にくびれ構造や履歴をもつこと、またそれ

が特定の圧力域でのみ観測されること TMTSF₂X 塩で周知の磁場誘起 SDW (スピン密度波) を容易に想起させるものであり、HMTSF-TCNQ が超格子反射から CDW を引き起こしていることから、磁場誘起 CDW (FISDW) が起きている可能性を提案したい。

FISDW と比較してみるなら、以下のような推察ができる。低圧力ではネスティングが完全に近い。但し低圧でも抵抗が低温で大きく発散せず、むしろ飽和気味であることは、この考えを完全には支持しない。1.5 GPa の加圧では不完全になりすぎて破壊されたネスティングが、強磁場で 1 次元化され、再び、電子ないしは hole のポケットができ、それらが逐次相転移を起している。しかし 2 GPa ではネスティングの破壊が大きすぎ、ネスティングを回復するほどの 1 次元化が起きない。

逐次転移を想像して相境界をプロットしたのが Fig. 7 である。これをみると温度にそれほど敏感ではなさそうである。また、FISDW に比べて現象の起きている温度が高い。

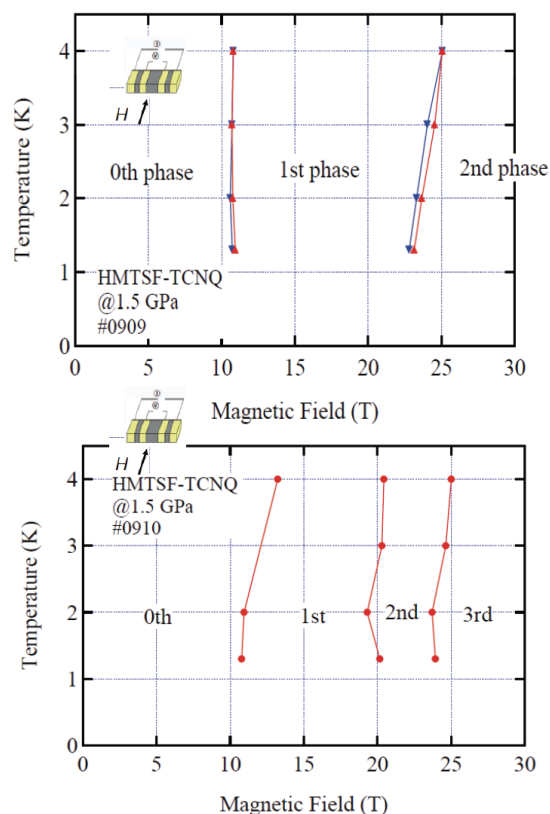


Fig. 7 Specific magnetic fields picked up from the data of Fig. 4 and 5, respectively.

FICDW を確かめることを始め、この物質の研究のためには、以下のことが必要だと考える。i) 温度圧力相図の確立。Miljiak 達は 0.9 GPa と 1.0 GPa で彼らの解釈での SdH のポケットサイズが大きく変わったことを報告している。ii) 新試料での高圧力下で、低温に向かった時の抵抗の上昇の傾向の見極め。抵抗上昇の原因がネス

ティングのみとしては説明できない。ii) 1.5 GPa でひとつの試料を用いて磁場方向を回転させて磁気抵抗を測定することである。強磁場下で回転でき、1.5 GPa 圧力を発生させる実験は大変難しいが、FISDW の圧力域で超伝導が見つかっていることを思い起こすとこの実験は是非実現したく、準備を進めている。

参考文献

- [1] J.R. Cooper, M. Weger, D. Jerome, D. Lefur, K. Bechgaard, A.N. Bloch, D.O. Cowan, Solid State Commun. 19 (1976) 749.
- [2] M. Miljak, A. Andrieux, R.H. Friend, G. Malfait, D. Jerome, K. Bechgaard, Solid State Commun. 26 (1978) 969.
- [3] hf_annual_report@imr.tohoku.ac.jp
- [4] K. Murata, K. Yokogawa, J.S. Brooks, A. Kismarhardja, E. Steven, M. Kano, Y. Seno, N.R. Tamilselvan, H. Yoshino, T. Sasaki, D. Jérôme, P. Senzier, K. Bechgaard, M. Uruichi, and K. Yakushi, Physica B (Available online 6 February 2010).
- [5] K. Murata, K. Yokogawa, J.S. Brooks, A. Kismarhardja, E. Steven, M. Kano, Y. Seno, N.R. Tamilselvan, H. Yoshino, T. Sasaki, D. Jérôme, P. Senzier, K. Bechgaard, M. Uruichi and K. Yakushi, J. Phys. Conference Series, to be published.
- [6] M. Weger, Solid State Commun. 19 (1976) 1149.