

HMTSF-TCNQ での磁場誘起電荷密度波の可能性

Possible Field-Induced-CDW in HMTSF-TCNQ

大阪市立大学・理 村田恵三, 増田耕育, 久世哲嗣, 横川敬一, 吉野治一
 梨花女子大学 W.Kang
 東北大金研 佐々木孝彦
 NHFML, Florida 州立大 J.S. Brooks
 理研 加藤礼三
 K. Murata¹, K. Masuda¹, T. Kuse¹, K. Yokogawa¹,
 H. Yoshino¹, W.Kang², T. Sasaki³, J.S. Brooks⁴, R. Kato⁵
¹ Graduate School of Science, Osaka City University
² Ewha Womans University
³ Institute for Materials Research, Tohoku University
⁴ Nat. High Mag. Field Lab. Florida St. University,
⁵ RIKEN

1. これまでの経緯

本 2010 年度の報告は、2009 年度の報告「HMTSF-TCNQ の圧力下、強磁場磁気抵抗、(Magnetoresistance of HMTSF-TCNQ under Pressure in High Magnetic Field)」に続く研究である。

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(Fig. 1)。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 tetrasetena fulvalene- tetracyano quinodimethane, TTF は tetrathia fulvalene である。

1970 年度の報告によれば、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、1.5GPa 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]。

第 1 回目の強磁場実験では、著者らはこの絶縁相が抑圧された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開始した。1.5 GPa、14 T 以上で磁気抵抗に折れ曲がり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]。

第 2 回目の強磁場実験は、2009 年 5 月に Tallahassee で行った。31T までの強磁場、0.5K 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。この実験の為に、外径 25mm φ のピストンシリンダー圧力容器にそれぞれの向きに複数の試料をセットしたものを準備した。

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。

第 3 回目の強磁場実験は、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

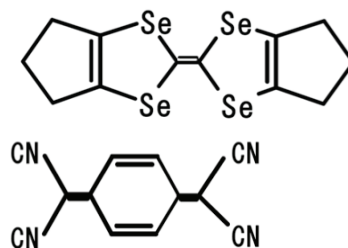


Fig. 1 Molecular structure of HMTSF (above) and TCNQ (below).

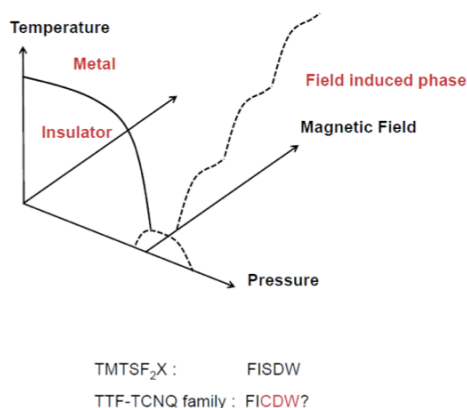


Fig. 2 Schematic view of magnetic-field-induced CDW or SDW.

(次ページへ続く)

行った。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、理研の加藤礼三氏の新しい試料で実験を行った。ここまでの成果は本報告の2009年度の報告に記述するとともに、その後、J. Phys.Soc. Jpn.に投稿、掲載された[6]。

しかし、ここまでの成果は、25mm ϕ の標準サイズのピストンシリンダー型の高圧容器に試料を入れて実験を行ったもので、圧力下の試料を磁場中で回転できず、磁場に垂直な2つの角度での磁気抵抗のデータの関連が分からなかった。

2. 今回の実験報告

第4回目の強磁場実験は、2010年11月に東北大金研で行った。磁場中で回転できるミニチュア高圧セルを準備し、強磁場下で回転を試みた。hybird magnet を用いた磁場域は上限27Tesla, 温度は ^4He 温度域であった。

第5回目の実験は、2011年2月にTallahasseeで行った。水冷銅磁石を用いた磁場域は31Tesla, 温度域は0.4 Kまでの ^3He 温度域から25 K付近までであった。試料は第4回のもの他に新たに新しい試料を加えた。磁場中で回転できるミニチュア高圧セルを用いた。

第4回、第5回の実験の成果は現在、論文投稿の準備中である。

Figure 3は第4回の実験結果の一部である。このように試料の二つの試料からは再現性のある実験結果を得た。激しい磁場誘起の相転移が見られ、更にそれが1次の相転移であるということである。この相転移の発生する磁場は角度に敏感であること。また、少なくとも磁場が垂直な場合、全角度でなにかしらの相転移が観測された。特異な点をプロットしたのがFig. 4である。これらの特異点が軌道起源かどうか確かめるために幾つかの点の集合に対し、 \cos プロットを試みた結果、Fig. 5のようになり、一群のものについては \cos プロットは有用であることが判明した。ただ、その他の点の集合については成功していない。

4. 議論と結論

今回の進展は、磁場中でミニ高圧セルを回転できるようにしたため、今まで、1次元に垂直な軸で概ね90度の二つの方向で、それぞれ磁気抵抗が測定されていたが、その関連が今回初めて明らかになった。

少なくとも一つの特異点のグループは $\cos H$ プロットが意味を持つようであることから軌道起源、特に2次元と関連した現象であろう。

FICDWを主張した実験を遡るとY. Iyeがグラフィットの2次元面に垂直に強磁場を印加し27 Teslaで時期抵抗にキックが現れる実験をしており、6角形のブリルアンゾーンの6つの角に位置する電子、および正孔のランダウ準位の最下位だけが強磁場中で残り、そのc軸分散が1次元状態を示し、それがネステイングを起すというシナリオで説明されている[7-9]。

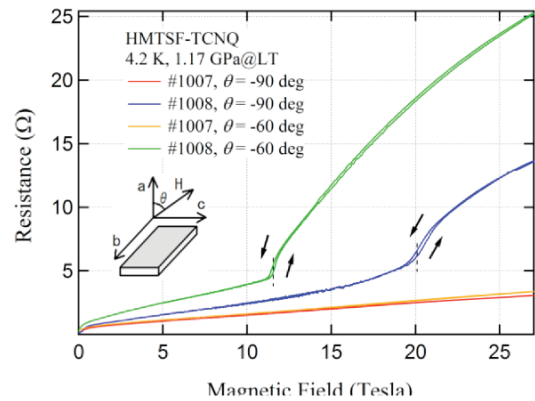


Fig. 3 Magnetoresistance of HMTSF-TCNQ under a pressure of 1.17 GPa, which was calibrated against superconducting Tc.

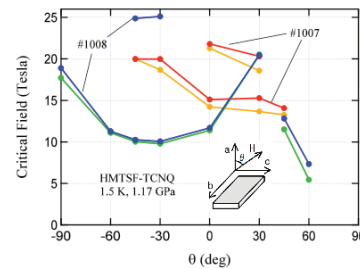


Fig. 4 Specific field seen in the magnetoresistance which appeared in Fig. 3 for example.

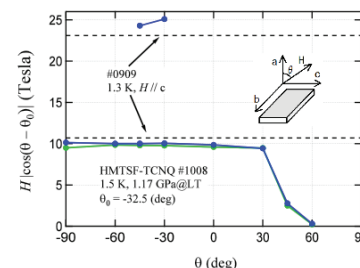


Fig. 5 $\cos H$ -plot of Fig. 4. One group of points in Fig. 4 are successful with this analysis.

また、M. Kartsovnik らは、 α -(BEDT-TTF)₂KHg(SCN)₄ で FICDW を主張している[10]。Lebed によるその説明は、1 次元方向への分散の直線近似、それから出てくる第 2 の方向への不完全 nesting、それへの最適 nesting vector の推移など TMTSF₂X 塩での FISDW に似た機構で説明している[11]。ただこの系はもともと 2 次元と 1 次元のフェルミ面がある複雑な系である。

HMTSF-TCNQ は、 α -(BEDT-TTF)₂KHg(SCN)₄ にくらべて単純な 1 次元系だと思われる。Weger の計算によれば、常圧では 30 K 以下の低温になると CDW 転移をする。この際、不完全 nesting を起し、チューブ状の正孔フェルミ面と 3 次元ポケット状の電子フェルミ面ができる[12]。しかし、我々の実験の常圧の磁気抵抗には振動現象や異常が認められず、不完全 nesting があるかどうか分からない。むしろ、加藤礼三による新試料では、電気抵抗の温度依存性、 $R(T)$ に明瞭で典型的な発散が見られることから、ポケットの存在はいまのところ疑わしい。

およそ 1 GPa で CDW による $R(T)$ が概ね抑制され、強磁場で磁気抵抗の異常が現れる、また 2 GPa でこの異常が抑制されることは、FICDW の可能性を益々強くするものである。しかし、1 次元軸に垂直な全方向で異常がみられることは、TMTSF₂X 系の FISDW での議論のもととなったフェルミ面構造とは相当に異なるものと考えている。

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. Jérôme, 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 **B405** (2010) 5111-5112.
- [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, **215** (2010) 012064/1-5.
- [6] K. Murata, K. Yokogawa, K. Kobayashi, K. Masuda, T. Sasaki, Y. Seno, N. R. Tamilselvan, H. Yoshino, J.S. Brooks, D. Jerome, K. Bechgaard, M. Uruichi, K. Yakushi, Y. Nogami, R. Kato, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, (2010) p.103702.
- [7] [6] Y. Iye, P.M. Tedrow, G. Timp, M. Shayegan, M.S. Dresselhaus, G. Dresselhaus, A. Furukawa and S. Tanuma, Phys. Rev. **B25** (1982) 7009.
- [8] Y. Iye, L.E. McNeil, and G. Dresselhaus, Phys. Rev. **B30** (1984) 7009.
- [9] D. Yoshioka and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn., **50** (1981) 725.
- [10] D. Andres, M. V. Kartsovnik, P. D. Grigoriev, W. Biblercher and H. Muller, Phys. Rev. **B68** (2003) 201101(R)
- [11] A. G. Lebed, Phys. Rev. Lett. **103** (2009) 046401.
- [12] M. Weger, Solid State Commun. **19** (1976) 1149.