

擬一次元有機導体(TMTSF)₂ReO₄における 磁場誘起スピン密度波転移と小周期振動

Field-induced spin-density wave transitions and rapid oscillations in quasi-one-dimensional organic conductor (TMTSF)₂ReO₄

北大・理 松永 悟明、駒田智也、宮澤雅臣、野村 一成

東北大・金研 佐々木 孝彦

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

^ADepartment of Physics, Hokkaido University, Japan

^BDepartment of Condensed Matter Physics, Hokkaido University, Japan

^CDepartment of Quantum and Condensed Matter Physics, Hokkaido University, Japan

^DIMR, 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ので、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し[2]、さらに低温で部分的に波数(1/2,1/2,1/2)の周期でアニオンが秩序化

する[3]。この圧力下では低温で超伝導相が現れる[4]が、 c^* 軸方向に磁場をかけると電子系の一次元性が増加し、擬一次的フェルミ面のネスティングを反映し、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]。このような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、非対称アニオンの秩序化をともなう擬一次元有機導体の電子状態は T_{AO} 付近の冷却速度に大きく依存するが、FISDW 相内における磁気抵抗のシュブニコフ・ド・ハース効果と似た小周期振動と呼ばれる振動の振動数はほとんど変化しないことを報告してきた。

2. 目的

本研究の目的は、非対称アニオンの秩序化をともなう擬一次元有機導体の基底状態の起源を明らかにすること、及び、高磁場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、(TMTSF)₂ReO₄ 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 1 に 0.85 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 320T 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]

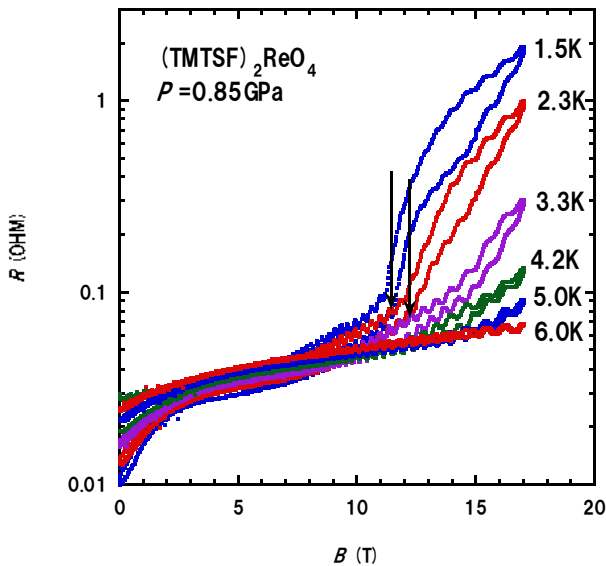


Fig.1 Magnetoresistance of $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 0.85 GPa with the field parallel to the c^* direction at 1.5, 2.3, 3.3, 4.2, 5.0 and 6.0 K.

図2は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であり、0.85 GPaと同様に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、金属相、FISDW相の両者においてやはり明確な小周期振動が現れている

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0.85 GPaでは320 T弱の周期を持つ小周期振動の振動数は圧力が增大するにつれてゆっくりと増加し、1.02 GPaでは320 T強まで連続的に増大した。一方、1.2 GPaでは小周期振動の振動数が340Tまで大きく増大した。1.2 GPaでは、低温で部分的に波数(1/2,1/2,1/2)のアニオンの秩序化が抑制されていると考えられ、この部分的なアニオンの秩序化の抑制が小周期振動の振動数の急激な増大の起源であると考えられる。

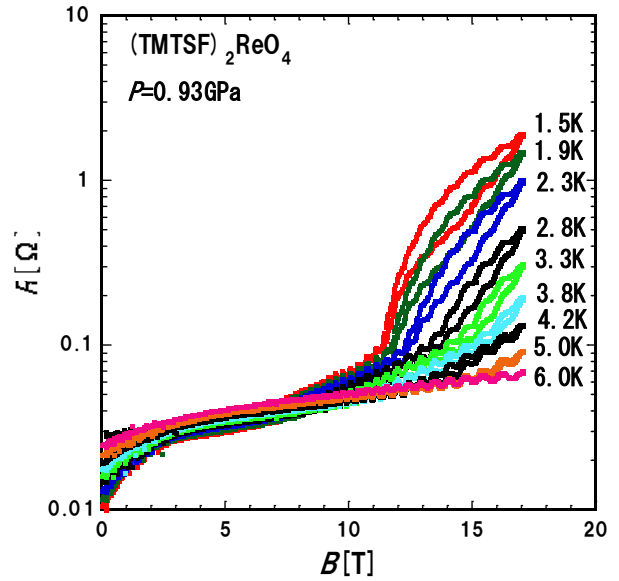


Fig.2 Magnetoresistance of $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 0.93 GPa with the field parallel to the c^* direction at 1.5, 1.9, 2.3, 2.8, 3.3, 3.8, 4.2, 5.0 and 6.0 K.

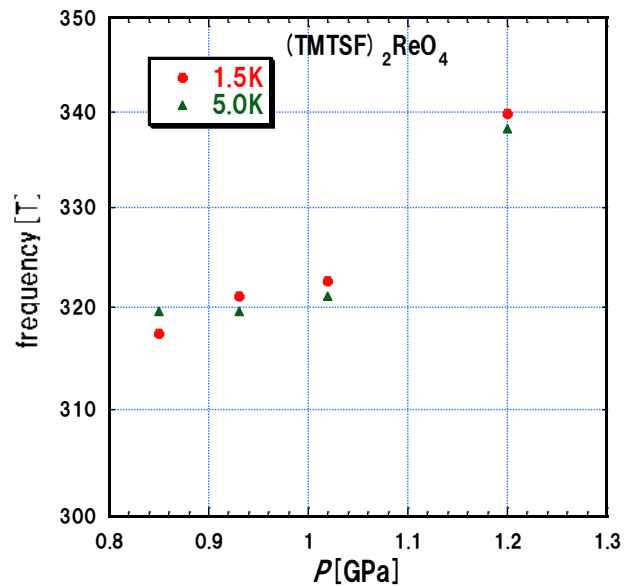


Fig.3 Pressure dependence of the rapid oscillation frequency in $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 1.5 and 5.0 K in the field parallel to the c^* direction.

図4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。どの圧力においても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。

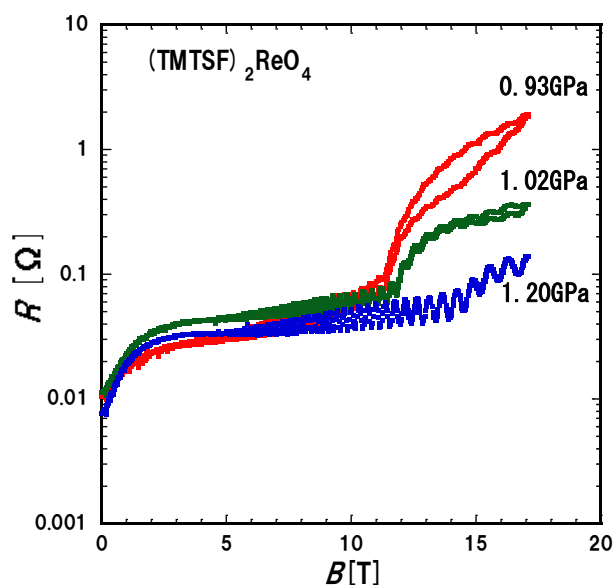


Fig.4 Magnetoresistance of $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 1.5 K with the field parallel to the c^* direction at 0.93, 1.02 and 1.2 GPa.

様々な温度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。図に示したように金属領域では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著しく増大した。このことは圧力が増大するにつれて、低温で部分的に波数 $(1/2, 1/2, 1/2)$ のアニオンの秩序化されている部分が減少しているためであると考えられる。一方、FISDW 相では少周期振動の振幅は金属相から外挿した値よりは小さくなっている。

低圧側の 0.8 GPa においても磁気抵抗の測定を行ったが低温でおこる波数 $(1/2, 1/2, 1/2)$ のアニオンの秩序化により系は絶縁体となり FISDW 転移及び少周期振動は観測されなかった。

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、低温でおこる波数 $(1/2, 1/2, 1/2)$ のアニオンの秩序化が少周

期振動の振動数や振幅の圧力依存性に大きな影響を及ぼすことを明らかにすることができた。ただし、現時点では少周期振動の起源に関してはよくわかっていない。今後、より高圧側の少周期振動の振動数や振幅の圧力依存性を調べていき、少周期振動の起源を明らかにしていきたい。

本研究の結果の一部を京都で行われた国際会議 ICSM2010 において発表した。

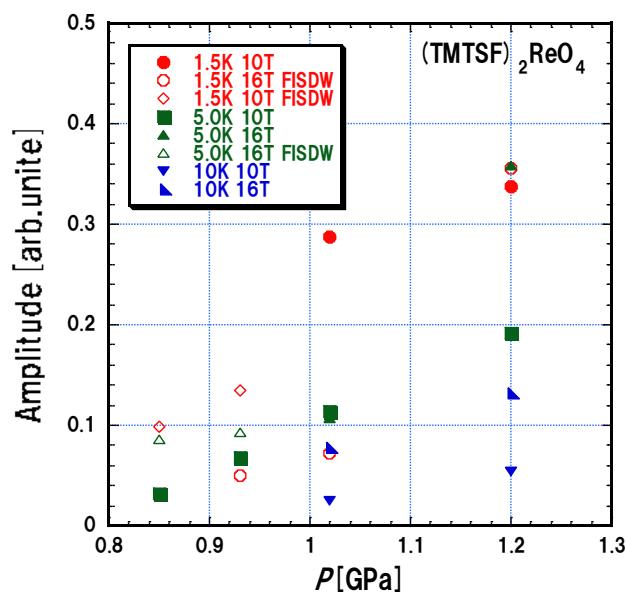


Fig.5 Pressure dependence of the rapid oscillation amplitude in $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ at 1.5, 5.0 and 10 K in the field parallel to the c^* direction.

主な発表論文

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)