

# 擬一次元有機導体の磁場誘起スピン密度波相におけるアニオンの秩序化

## Anion ordering in the field-induced spin-density-wave of quasi-one dimensional organic conductors

北大・理 松永 悟明、秋田 知範、野村 一成

東北大・金研 佐々木 孝彦

兵庫県立大・理 渡部 真紀、山田 順一、中辻 慎一

N. Matsunaga<sup>A</sup>, T. Akita<sup>A</sup>, K. Nomura<sup>A</sup>, T. Sasaki<sup>B</sup>,

M. Watanabe<sup>C</sup>, J. Yamada<sup>C</sup>, and S. Nakatsuji<sup>C</sup>

<sup>A</sup>Department of Physics, Hokkaido University, Japan

<sup>B</sup>IMR, Tohoku University, Japan

<sup>C</sup>Department of Material Science, University of Hyogo, Japan

### 1. はじめに

有機導体(TMTSF)<sub>2</sub>ClO<sub>4</sub>は、一方向にのみ高い電気伝導度を示す電荷移動錯体である。正四面体構造をもつ ClO<sub>4</sub><sup>-</sup>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[1]。この温度を anion ordering(AO)温度( $T_{AO}$ )と呼ぶ。TMTSF分子のメチル基の水素が重水素に置換された(TMTSF)<sub>2</sub>ClO<sub>4</sub>では  $T_{AO}=27\text{K}$  である[2]。 $T_{AO}$  付近を徐冷すると低温で超伝導相が現れるが、 $c^*$ 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  $\rho_{xy} = h/(2Ne^2)$  ( $N = \dots, 5, 3, 1, 0$ ) を伴うスピン密度波(SDW)相に逐次相転移をする。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。徐冷相では ClO<sub>4</sub><sup>-</sup>アニオンは秩序化し結晶中に新たな周期ポテンシャルをつくる。伝導電子はこの周期ポテンシャルを感じ、フェルミ面は2つに分割される。冷却速度が増大すると秩序化した領域は徐々に小さくなり、その境界は非対称分子のポテンシャルの周期性がなくなるため乱れとして働く。さらに、FISDW 相の冷却速度依存性は、冷却速度を上げることによりアニオンによりできるフェルミ面のギャップの大きさが徐々に小さくなっていると仮定して説明できる[3,4]。

これまで徐冷相では 9T 付近から 30T 付近まで量子数が  $N=1$  の単一相であると考えられてきた[2]が、最近の実験結果より、17T より高磁場側のホール抵抗が冷却速度によらずほぼ一定である相と冷却速

度の増大ともなってホール抵抗が大きく減少しホール抵抗が量子化されない低磁場側の相に分かれていることがわかってきた[4,5]。このように(TMTSF)<sub>2</sub>ClO<sub>4</sub>の FISDW 相図は  $T_{AO}$  を通過する冷却速度に大きく依存する。17T 以下でのホール抵抗の減少を 0.5K において詳細に調べた結果、徐冷相においては、8T 付近で  $N=3$  のホールプラトーを持ち、8.5T 以上で  $N=1$  の相になることがわかった。冷却速度を上げていくと、徐冷に近い冷却速度では  $N=3$  と 17T における  $N=1$  のプラトーでのホール抵抗はほとんど変わらなかったが、9~14T でのホール抵抗冷却は速度が増えるにしたがって連続的に減少していった。これまで徐冷相は約 8T から高磁場で  $N=0$  に転移するまで  $N=1$  の単一の相であると考えられていた。しかし  $N=1$  の相が実は二つの相に分かれており、高磁場側の相はホール抵抗が冷却速度に依存せず一定のホールプラトーをもつ  $N=1$  の相であり、低磁場側の相は冷却速度を上げるとホール抵抗が連続的に減少していく non-quantized 相であることがわかった。その転移磁場は冷却速度を上げると低磁場側へシフトしていく。

### 2. 目的

本研究の目的は、(TMTSF)<sub>2</sub>ClO<sub>4</sub>の基底状態の冷却速度依存性の起源を明らかにすることである。この目的のために、重水素化された (TMTSF)<sub>2</sub>ClO<sub>4</sub> に対してカンチレバー式キャパシタンストルクメータによる磁気トルクの測定を行った。

### 3. 結果

図 1 に冷却速度依存性 0.006K/sec における  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  の磁化を示す。磁場は  $c^*$  軸方向にかけた。0.45K では 6.8T、8.8T 付近で転移ともなう磁化のとびが観測された。これらのとびは、図 2 にまとめたホール抵抗の冷却速度依存性と比較して、それぞれ negative 相から N=3 の相への飛び、N=3 から non-quantized 相への飛びと対応づけられる。1.4K においては磁気トルクの飛びは 7.4T と 9.0T 付近で観測された。ホール抵抗の測定より N=5 の相や negative 相はこの温度ではなくなっていることが期待される。したがって、磁化のとびは金属相から N=3 の相への飛びと N=3 から non-quantized 相への飛びの 2 つであると結論づけられる。実験結果をよく見ると、15T 付近で磁化のヒステリシスが最大になっている。図 2 にまとめたホール抵抗の冷却速度依存性との比較より、このヒステリシスは non-quantized 相から N=1 の相への相転移によるものであると考えられる。磁化において観測されたヒステリシスも明確にホール抵抗のヒステリシスと対応している。9T 付近のヒステリシスは N=3 から non-quantized 相への飛びと対応づけられる。0.45K の場合と同様に、15T 付近で磁化のヒステリシスが最大になっている。このヒステリシスは non-quantized 相から N=1 の相への相転移によるものであると考えられ、温度上昇によりその磁場はほとんど動いていないことがわかる。

### 4. まとめ

本研究により冷却速度と磁場の相図の各相に対応する磁化の振る舞いを明らかにすることができた。今後、磁気トルクの詳細な冷却速度依存性を各温度で調べていき、磁場-温度の相図の冷却速度依存性を調べ、ホール抵抗が量子化されない相が現れる起源を明らかにしていきたい。

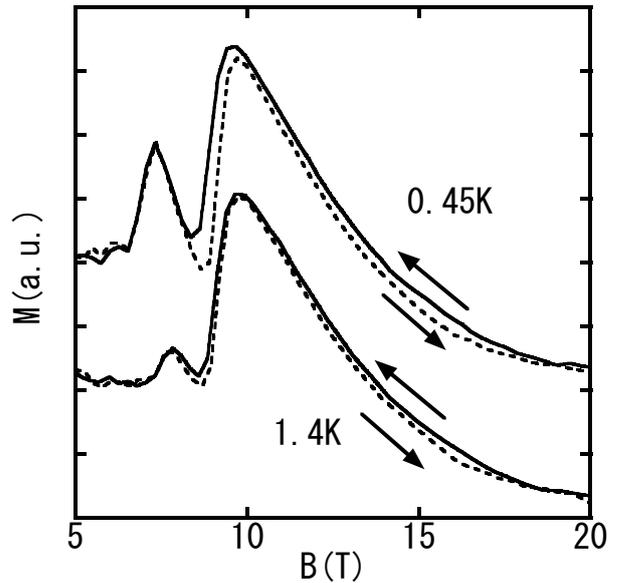


Fig.1 Magnetic torque in deuterated  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  for two temperature at 0.006 K/sec.

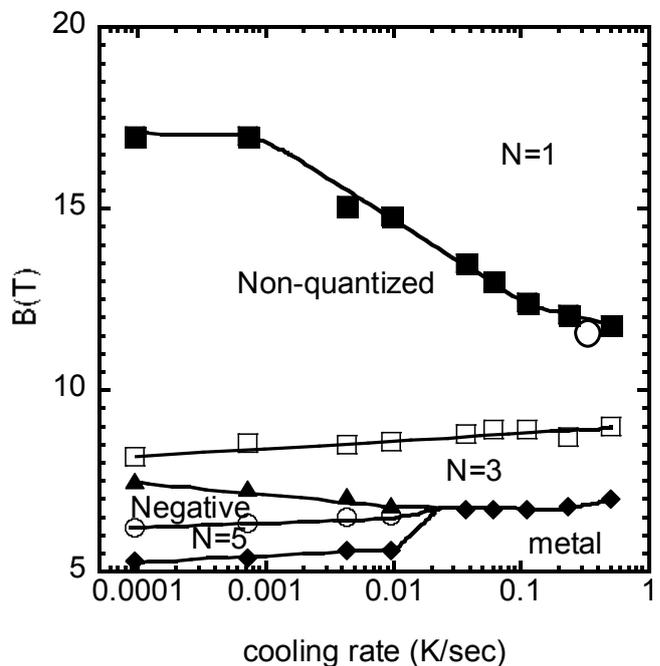


Fig.2 Cooling rate dependence of the FISDW phase diagram in deuterated  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  at 0.5K

## 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. K. McKernan, S. T. Hannahs, U. M. Scheven, G. M. Danner, and P. M. Chaikin, Phys. Rev. Lett. **75**, 1630 (1995)
- [3] N. Matsunaga, A. Briggs, A. Ishikawa, K. Nomura, S. Takasaki, J. Yamada, S. Nakatsuji, H. Anzai Physical Review B, Vol. **62**, P.8611-8614 (2000)
- [4] N. Matsunaga, A. Ayari, P. Monceau, A. Ishikawa, K. Nomura, M. Watanabe, J. Yamada, S. Nakatsuji Physical Review B Vol. **66**, 024425 (2002)
- [5] 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)