

# エックス線照射したモット系有機導体におけるホール効果測定

## Hall effect measurements in the organic Mott insulators irradiated by X-rays

東北大・金研 佐野康一郎, 米山直樹, 佐々木孝彦, 小林典男  
K. Sano, N. Yoneyama, T. Sasaki and N. Kobayashi  
Institute for Materials Research, Tohoku University

### 1. はじめに

バンド幅制御による金属-モット絶縁体転移が生じる有機導体 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Xは、BEDT-TTF分子が強い2量体(ダイマー)構造を有するため実効的な1/2充填バンドを形成する準二次元的な強相関電子系のひとつである。 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Xに限らず電荷移動錯体において分子置換によるキャリアドーピングは結晶性がよいほど難しくなる。これは結晶がドナー、アクセプター分子間の電荷移動によるイオン性結晶のため、異なる価数の分子を部分的に導入することが難しいためである。その代わりに結晶の柔軟性から静水圧を印加したり[1]、アニオン分子を置換することによりバンド幅を変えることで[2]、金属-モット絶縁体転移を起こさせることが出来る。

有機モット絶縁体 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>にエックス線を照射すると電気抵抗が顕著に減少することが報告されている[3]。ま

た、赤外光学反射実験において遠赤外光領域でドローデ的な反射率の増加と中赤外領域でのバンド間遷移の抑制が観測され、伝導キャリアの生成が示唆されている[4]。これはエックス線を照射することで結晶内に部分的に分子欠陥が生じ、局所的なドナー、アクセプター分子間の電荷移動のバランスを崩れ、1/2充填バンドを形成しているBEDT-TTFドナー層に実効的にキャリアがドーピングされた結果であると考えている。しかし、現在のところエックス線照射による分子欠陥の生成やキャリア誘起に関する詳細は分かっていない。特に照射によるキャリア数の変化量についての定量的測定が重要となっている。

### 2. 研究目的

本研究では、2量化したBEDT-TTF分子が三角格子を組むことにより、低温でスピン液体状態が示唆されている $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>のホール効果測定をエックス線照射をほどこした試料に対して行うことで、エックス線照射によるキャリア数の変化に関する知見を得ることを目的としている。

### 3. 実験方法

電気化学的酸化還元法によって育成した $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>単結晶のホール効果を直流4端子法により室温において測定した。ホール係数およびキャリア数は、単結晶試料の伝導面に垂直な方向に±10Tの磁場を連続的に印加し、その正負の磁場に対する出力電圧を差し引くことで対角成分をキャンセルすることで磁場に対して線形なホール抵抗率を得て導出した。磁場の印加には、強磁場超伝導材料研究センターに設置されている10Tヘリウムフリー超伝導マグネットを使用した。試料の温度は、白金抵抗温度計により測

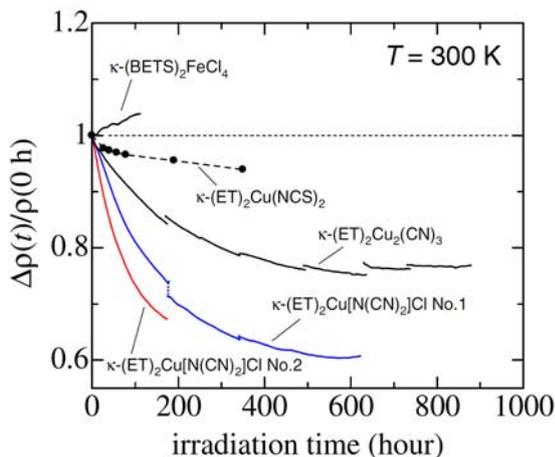


図1 300Kにおける $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Xの面内抵抗のエックス線照射時間依存性。各抵抗値は未照射の抵抗値で規格化している。エックス線照射はタングステン管球(40kV, 20mA)による白色光である。

定し、試料ホルダーのヒーターをPID制御することにより安定させた。測定中の温度の安定度は $\pm 25\text{mK}$ 以内である。単結晶試料への엑스線照射はタングステン管球(40kV、20mA)を用いて弱い白色엑스線を照射することにより行った。照射量は照射時間を変えることによって変化させた。엑스線照射中は、電気抵抗率の変化を記録し、数十時間の엑스線照射を行うごとにホール効果を測定し、これを複数回繰り返した。各試料の照射時間は、この繰り返し照射を行った合計時間である。

#### 4. 実験結果と考察

図2に303Kにおける엑스線照射時間に対する抵抗値の変化を示す。測定された抵抗値はホール効果測定用の4端子配列によって得られたホール抵抗であるので、正しい面内抵抗率を示していない。そのため未照射の抵抗値で規格化している。照射時間によって抵抗値が顕著に減少しているのが分かる。これは報告されている抵抗値の엑스線照射依存の結果を再現したことになる。350時間엑스線を照射すると抵抗値が15%減少していることが分かることから、単純に $\rho = m/ne^2\tau$ の関係より、抵抗値の減少量に対応する15%程度のキャリア数の増加が期待される。

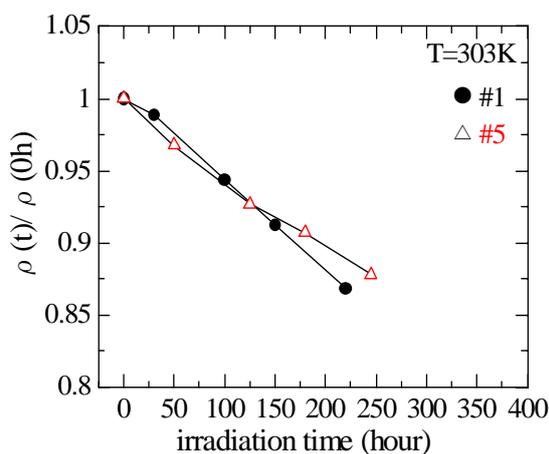


図2 303Kにおける抵抗値の엑스線照射時間依存性。抵抗値は未照射の抵抗値で規格化している。タングステン管球(40kV、20mA)。

図3にホール係数及びキャリア数の엑스線照射依存性を示した。キャリアはホールキャリアであり、キャリア数は $1\sim 3 \times 10^{20}/\text{cm}^3$ の範囲であることが分かった。組成式から求められる1/2充填のホールキャリアのキャリア数 $1 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 程度とほぼ一致している。엑스線照射に対してのキャリア数の変化を見ると、抵抗値の照射時間に対しての変化から期待されるキャリア数の有意な変化は観測されなかった。

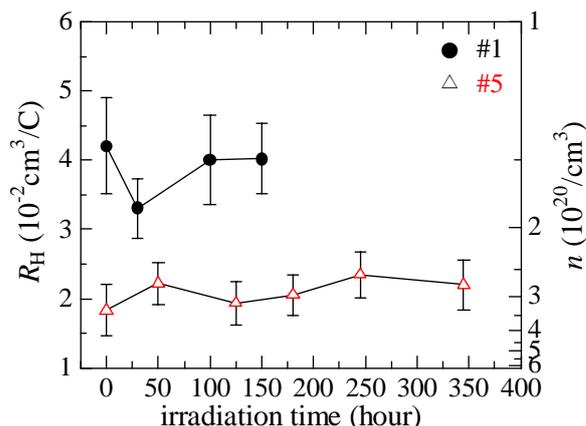


図3 303Kにおけるホール係数及びキャリア数の엑스線照射時間依存性。

#### 5. まとめ

엑스線照射時間に対する $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>のホール係数及びキャリア数の測定を行った。今回の測定では測定誤差の大きさを考慮すると有意なキャリア数の変化は観測されなかった。期待される10%程度のキャリア数の有無について結論を出すためには測定精度を上げる実験を行う必要がある。

#### 参考文献

- [1] F. Kagawa, T. Itou, K. Miyagawa, and K. Kanoda, Phys. Rev. B. **69** 064511(2004)
- [2] T. Sasaki, N. Yoneyama and N. Kobayashi. Phys. Rev. B. **77** 054505(2008)
- [3] T. Sasaki, H. Oizumi, N. Yoneyama, N. Kobayashi, N. Toyota, J. Phys. Soc. Jpn. **76** 123701(2007)
- [4] T. Sasaki, N. Yoneyama, Y. Nakamura, N. Kobayashi, Y. Ikemoto, T. Moriwaki, and H. Kimura, Phys. Rev. Lett. **101** 206403(2008)