

擬一次元有機導体(TMTTF)₂Br における磁場誘起スピン密度波転移

Field-induced spin-density wave transitions in quasi-one-dimensional organic conductor (TMTTF)₂Br

北大・理 松永 悟明、佐藤 健人、野村 一成、河本充司

北大・工 市村 晃一

東北大・金研 佐々木 孝彦

N. Matsunaga¹, T. Satoh¹, K. Nomura¹, A. Kawamoto¹, K. Ichimura², T. Sasaki³

¹ Faculty of Science, Hokkaido University, Japan

² Faculty of Engineering, Hokkaido University, Japan

³IMR, Tohoku University, Japan

1. はじめに

擬一次元有機導体(TMTTF)₂Br は常圧ではおよそ 100K で抵抗が極小を示し、14K で反強磁性相に転移する。0.5GPa 以上の圧力を加えると比較的低温まで金属状態を保つ。0.5GPa ではおよそ 20K で金属相から不整合スピン密度波(SDW)相に転移するが、さらに圧力を加えることにより SDW 転移温度は低下し、2.2GPa 以上の圧力を加えることにより SDW 相は抑制され超伝導相が安定化することが知られている[1]。SDW 転移は擬一次元的フェルミ面のネスティングの度合いにより決まり、二次元性が強いと SDW 転移は強く抑制される。二次元性が強くゼロ磁場では SDW 転移が完全に抑制されている(TMTSF)₂X に対して c* 軸方向に磁場を加えると、磁場による一次元性の復活により量子化されたホール係数を持つ半金属状態の SDW 相が現れ、磁場が増えるにしたがって異なる半金属相を逐次相転移し、最終的にはホール係数がゼロとなる絶縁相が安定化することが知られている。この逐次転移を示す SDW 状態を、磁場誘起 SDW(FISDW) 相と呼ぶ。これまで、(TMTTF)₂Br の超伝導相に強磁場をかけたとき磁気抵抗には急激な増加が見られないことから、(TMTTF)₂Br には FISDW 相は存在しないと考えられてきた[2]。しかし、高い静水圧性が保ちながら加圧することにより、FISDW 相への転移であると考えられる抵抗率の急上昇が観測された。

2. 目的

本研究の目的は擬一次元有機導体(TMTTF)₂Br の FISDW 転移を確認し、その電子状態とメカニズムを明らかにすることである。そのために、磁気抵抗およびホール抵抗の測定を低温－高磁場で行い、

その相図の詳細をあきらかにし、(TMTSF)₂X の FISDW 相と比較し、FISDW の発現のメカニズムを明らかにする。特に、これまでの SDW 転移温度の磁場依存性の実験より(TMTTF)₂Br と(TMTSF)₂X では電子系の二次元性と電子相関の強さ違うのではないかと考えられてきた[発表論文 3]。FISDW 相についても同じようパラメータを使い解釈できるのかどうかを検討する。

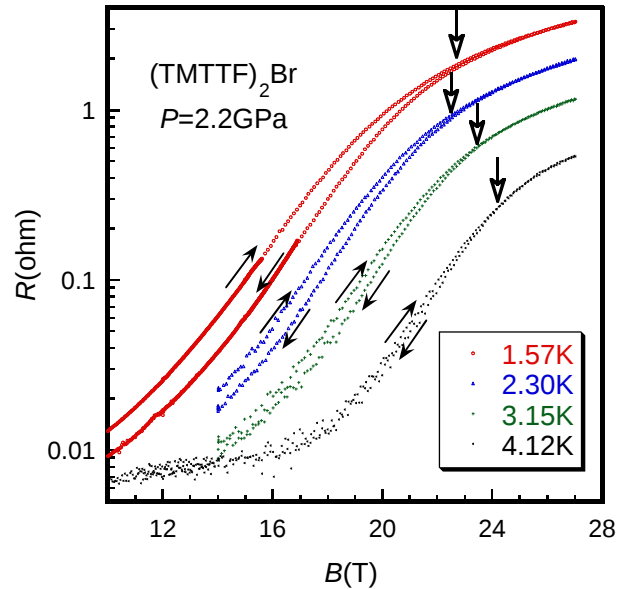


Fig. 1 Magnetoresistance of (TMTTF)₂Br in the FISDW phase with the field parallel to the c* direction.

3. 結果

Fig. 1 は(TMTTF)₂Br で 2.2GPa の圧力下におけるさまざまな温度における c* 軸方向に磁場を加えた場合の磁気抵抗である。Fig. 1 では低磁場で抵抗がほぼ磁場に依存しない金属相からヒステリシスを伴う抵抗の増加が見られる FISDW 相に転移していることがわかる。さら

に、22 T から 24 T 付近で Fig. 1 の矢印で示すところで磁気抵抗のヒステリシスが消失している。

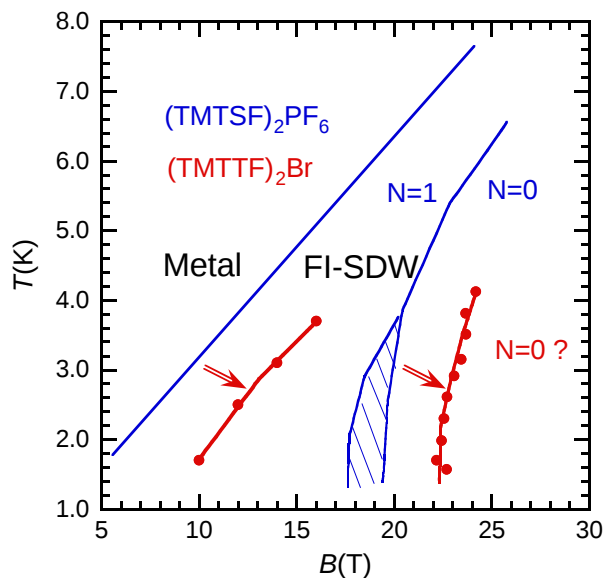


Fig. 2 The FSDW phase diagrams in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ and $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$.

Fig. 2 は $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の FSDW 相図[主要論文 2] に Fig. 1 より求めた $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ の FSDW 相の転移温度と磁気抵抗のヒステリシスが消失する温度を加えたものである。この相図より磁気抵抗のヒステリシスが消える高磁場相は $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ と同様に $N=0$ の相であると考えられる。この磁場温度相図によると、金属相と FSDW 相の境界が $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ は $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ よりも、高磁場側へシフトしていることがわかる。

これまで TMTSF 塩と TMTTF 塩は実際の圧力と原子の置換による化学圧力を同一視して圧力に対する統一相図で記述されると考えられてきた[3]が、以前の SDW 転移温度の磁場依存性の実験結果より詳細に比較してみると高圧下の TMTTF 塩は同じ SDW 転移温度をもつ TMTSF 塩と比較してより電子相関が弱くまた系の一次元性が強い状態であり、SDW 転移の抑制のされ方が異なる状態であるとされてきた[主要論文 3]。今回測定した $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ の FSDW 相が $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の FSDW 相よりも、高磁場側へシフトしていることは上記の解釈が正しいものであることを示している。

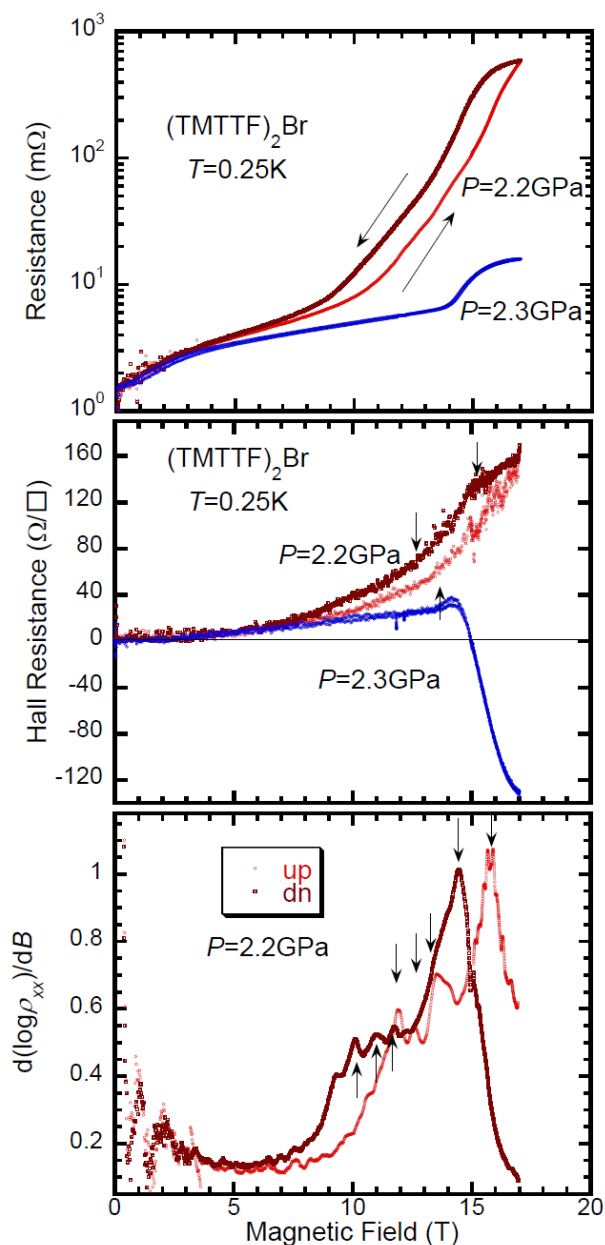


Fig. 1 (Top) Magnetoresistance of $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ in the FSDW phase with the field parallel to the c^* direction. (Center) Hall resistance of $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$. (Bottom) Logarithmic derivatives of the magnetoresistance.

より明確な FSDW 相内の逐次相転移を観測するため、磁気抵抗・Hall 効果測定を ^3He 温度($T=0.25\text{K}$)まで行った。異なる 2 つの試料で測定したところほぼ同じ振舞いが観測された。各圧力で磁気抵抗は磁場の増加によって急激に増加し、大きなヒステリシスが現れる。磁気抵抗の増加は単調ではなく、Fig. 3 の下図のように、矢印で示すいくつかの磁場領域に

において微分磁気抵抗にピーク構造が現れる。また、ほんのわずかに加圧することで磁気抵抗の増加は急激に抑制される。これらの磁気抵抗の振舞いは FISDW 相内の逐次転移によるものだと考えられる。

FISDW 相における Hall 抵抗が、Fig. 3 の中図である。2.2GPa では、FISDW 相内で正の Hall 抵抗を観測し、磁気抵抗に異常がある磁場に対応して Hall 係数にもキック構造がある。一方、わずかに加圧した 2.3GPa における FISDW 相内では、広い磁場範囲にわたって負の Hall 抵抗が観測された。(TMTSF)₂PF₆ で観測されるような明確な Hall プラトーは見られず、大きさは量子 Hall 抵抗の値に比べ二桁近く小さい。

これまでに報告されている他の物質の FISDW と比較すると、(TMTSF)₂PF₆ では通常の SDW が抑制された臨界圧力ぎりぎりでは negative 相が現れる[4]。(TMTSF)₂PF₆ の negative 相は加圧によって消失するが、(TMTTF)₂Br では正の Hall プラトーは測定磁場範囲では観測されず、(TMTSF)₂PF₆ に比べて広い磁場範囲で負の Hall 抵抗が現れる。(TMTSF)₂ClO₄[5]や(TMTSF)₂ReO₄[6]では広い磁場範囲で負の Hall 抵抗が観測されているが、これらの塩は低温でアニオンの配向秩序が起きるため事情は少し異なっている。ClO₄⁻のような tetrahedral なアニオンは、結晶中で安定な等価な 2 つの向きがあり、徐冷するとアニオンが *b* 軸方向に交互に規則正しく並ぶ。そのため 2 倍周期の超格子ポテンシャルができ、二対の擬一次元 Fermi 面が再構成されることになる。TMTSF 塩以外では、(DMET)₂X[7]や(DMET-TSeF)₂X[8]などにおいて、FI-SDW の様な磁気抵抗-Hall 効果の振舞いが報告されている。これらの物質でも、小さな負の Hall 抵抗が観測されている。

FI-SDW 相内の negative 相に関して、いくつかの理論的なモデルも提案されている。鎖間方向の transfer を高次の項まで取り入れた tight-binding 近似[9]や、umklapp 散乱の効果[10]、複数の FI-SDW オーダーパラメタが存在するモデル[11]などで negative 相が現れる振舞いを再現しているが、確立された理論は無い。また、(TMTSF)₂PF₆ では負の Hall 抵抗の大きさのみが磁場の角度に依存することから、FISDW 相内に CDW が共存している可能性が示唆されている[12]。

(TMTTF)₂Br の通常の SDW 相には(TMTSF)₂PF₆ よりも多く CDW が共存している可能性があることから、(TMTTF)₂Br の FI-SDW 相にも CDW が共存することで広い磁場範囲で負の Hall 抵抗が現れているのかもしれない。

4.まとめ

今回の実験において、(TMTTF)₂Br の FISDW 相内の磁気抵抗・Hall 抵抗を測定し、逐次転移に伴う考えられる磁気抵抗・Hall 抵抗の構造を始めて観測した。また、FI-SDW 相内の Hall 抵抗はわずかな圧力によって正から負へと符号が変化することがわかった。その大きさは量子 Hall 抵抗値よりも小さく、現時点では明確な Hall プラトーは観測されていない。さらに高磁場には、抵抗のヒステリシスが消失する相があり、これが *N*=0 相であると考えられる。この磁場温度相図によると、金属相と FISDW 相の境界が(TMTTF)₂Br は(TMTSF)₂PF₆ よりも、高磁場側へシフトしている。このことは、高圧下の TMTTF 塩は同じ SDW 転移温度をもつ TMTSF 塩と比較してより電子相関が弱くまた系の一次元性が強い状態であり、SDW 転移の抑制のされ方が異なる状態であると考えることにより説明が出来ることがわかった。

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. N. Matsunaga, K. Yamashita, T. Oota, K. Nomura, T. Sasaki, T. Hanajiri, J. Yamada, S. Nakatsuji Physica B 329-333P2 pp. 1154-1155 (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] L. Balicas, K. Behnia, W. Kang, E. Canadell, P. Auban-Senzier, D. Jerome, M. Ribault and J. M. Fabre: J. Phys. I France **4** (1994) 1539
- [3] D. Jerome: Science **252** (1991) 1509
- [4] H. Cho and W. Kang: Phys. Rev. B **59** (1999) 9814
- [5] U. M. Scheven, E. I. Chashechkina, E. Lee and P. M. Chaikin: Phys. Rev. B **52** (1995) 3484
- [6] W. Kang, J. R. Cooper and D. Jerome: Phys. Rev. B **43** (1991) 11467
- [7] H. Ito, Y. Yokochi, D. Suzuki, H. Tanaka, S. Kuroda, K. Enomoto, S. Uji, M. Umemiya, H. Miyasaka and K. Sugiura and M. Yamashita: Synth. Met. **156** (2006) 162
- [8] K. Oshima, H. Okuno, H. Fujimura, Y. Nogami, S. Aonuma and R. Kato: Synth. Met. **86** (1997) 1965
- [9] D. Zanchi and G. Montambaux: Phys. Rev. Lett. **77** (1996) 366
- [10] N. Dupuis and V. M. Yakovenko: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 3618
- [11] K. Machida, Y. Hasegawa, M. Kohmoto, V. M. Yakovenko, Y. Hori, and K. Kishigi: Phys. Rev. B **50** (1994) 921