

学 位 論 文 題 名

Sliding of spin-density-wave in $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ におけるスピン密度波のスライディング)

学位論文内容の要旨

擬一次元有機導体 $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ は、アニオン ClO_4^- の配向秩序転移温度 T_{AO} が約 24K で起こる。 T_{AO} における試料の冷却速度を速くすることにより、アニオンの配向秩序が抑制され、電子バンドの一次元性が増加することが知られている。冷却速度が最速のとき、スピン密度波(SDW)相が約 6K で出現し、二次元性が増加するにつれ SDW 転移温度 T_{SDW} は減少する。SDW 相ではスライディングと呼ばれる SDW の集団励起である並進モードの存在が知られている。一方、 $^1\text{H-NMR}$ のスピン格子緩和率 T_1^{-1} において $T^*(\sim 0.3T_{\text{SDW}})$ で異常が観測され、比熱の実験においても同じ温度で異常が観測されており、SDW 相を二分する相転移の存在が示唆されている。この相転移により SDW のスライディングのメカニズムが変化することが期待される。本研究の目的は $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ におけるアニオンの配向秩序を制御することにより変化する電子バンドの一次元性と SDW のスライディングのメカニズムとの関係を調べるとともに、低温側の相転移との関わりについて明らかにすることである。四端子法を用いたパルス測定により電気伝導度の測定を広範囲にわたっておこなった。

SDW 相での電気伝導度の電場依存性は特徴的電場(しきい電場 E_T)を境に増大する。この振る舞いは SDW のスライディングにより説明される。 E_T 以下の電場では不純物によって SDW がピン止めされているが、 E_T 以上の電場ではこのピン止めがはずれ SDW のスライディングが起こる。このとき、SDW が電荷を運ぶ担い手となることから電気伝導度が増大すると理解される。実験によって得られた E_T の温度変化は SDW 転移温度 T_{SDW} が 5K 以上の場合は高温に向けて比較的大きく増大する振る舞いを示し、 T_{SDW} が 5K 未満では比較的緩やかな温度変化になった。この実験結果に対し二次元性を表すパラメータ ϵ_0 と T_{SDW} との関係を考慮し、さらに荷電不純物による二次の効果のピン止めを考慮した E_T の温度変化の理論値との比較をおこなった。 T_{SDW} が高い場合、 E_T の温度変化は”弱いピン止め”と呼ばれる不純物濃度が高く”ピン止めポテンシャル”の低い場合のピン止め機構により説明される。一方、 T_{SDW} が低い場合は、その温度変化は”強いピン止め”と呼ばれる不純物濃度が低く”ピン止めポテンシャル”の高い場合から期待されるものに一致した。つまり、 T_{SDW} の低下とともに弱いピン止めと呼ばれるピン止め機構から、反対の強いピン止めと呼ばれる機構へのクロスオーバーが起きていると考えられる。さらに、 T_{SDW} の低下とともに有効不純物濃度が減少しているといえる。このことは $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ における不純物ピン止めを与えるものとして、最初から試料中に含まれている不純物とアニオンの配向秩序の二つを考えることにより説明される。つまり、 T_{SDW} が高いほどアニオンの配向が無秩序になることから、アニオンの配向秩序自体を不純物ポテンシャルと考えることにより、 T_{SDW} の低下とともに不純物濃度は減少すると見なすことができる。よって $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ に関しては、アニオンの配向秩序が抑制され T_{SDW} が低下した結果、SDW のピン止め機構が弱いピン止めから反対の強いピ

ン止めへのクロスオーバーが起こることがわかった。

一方、 E_T の温度変化では SDW を分けるような低温側の相転移温度 T^* 近傍での異常は見られなかった。ここで、SDW のスライディングによる過剰電気伝導度の大きさ σ'_{exc} を $\{\sigma(2E_T) - \sigma(0)\} / \sigma(0)$ と定義する。 σ'_{exc} の温度依存性は、 T^* 近傍を境に急激に減少した。このことは低温側の新たな相転移とともに SDW のスライディングによって運ばれる電荷が減少することを意味する。このとき、 E_T のおよそ 15 倍程度の高電場まで加えると急激な電気伝導度の増大が見られた。この高電場の電気伝導特性は T^* 以下でのみ観測され、温度依存しない $j = j_0 \exp(-E_0/E)$ で表されることがわかった。実験で得られた E_0 の大きさから SDW ギャップを越えるような絶縁破壊が起きているのではなく、小さなギャップであることが見積もれる。したがって、この低温の高電場における電気伝導特性は量子効果による新しい電気伝導特性であることが期待される。また、低電場側で E_T が観測されていることから、電場を加えることにより従来型の SDW のスライディングから新しい電気伝導特性へのクロスオーバーが起きていると考えられる。我々はこの新しい電気伝導特性は量子効果による SDW のスライディングによるものと考えている。

これらの現象をもとに T^* で起きている相転移を説明する一つのモデルとして、不整合 SDW からディスコメンシュレーションをともなった SDW への転移が起きていると考えた。不整合 SDW は格子定数と密度波の波長との比が簡単な整数比にならない場合で反対に整合 SDW はこの比が簡単になる場合をさす。ディスコメンシュレーションは本来不整合の SDW がある範囲毎に整合になるように波長を変え、そのかわりに全体のつじつまを合わせるため等間隔にできる位相のキンク部分を指す。ここで SDW の位相のキンク部分がある程度の領域をもつならば、このキンク部分は不整合 SDW に近い状態であり、キンク部分が不整合 SDW と同様に不純物によりピン止めされると考えられる。この結果、 E_T の値は不整合 SDW の E_T と大差ないことが期待されることから、 T^* において E_T の温度変化に異常が見られなかったと考えられる。さらに、密度波全体が一度に動くときと比べキンク部分のみが動く場合にはキンク部分のみが σ'_{exc} に関与することから、 T^* 近傍で σ'_{exc} が小さくなったと考えられる。高電場における電気伝導度の増大は、キンク部分だけでなく整合的な部分もあわせて全体が一度に動いていると考えられる。整合的な部分は格子との相互作用により密度波が止められているのでキンクが不純物ピン止めをはずして動くよりも大きなエネルギーで SDW がロックされている。このときの整合性ロッキングによるエネルギーギャップは SDW ギャップと比べかなり小さいことから、高電場において SDW がこの整合性ロッキングによるエネルギーギャップをトンネルするような量子効果を含む集団励起が起きていることが期待される。この様に不整合 SDW からディスコメンシュレーションをともなった SDW への相転移が起きていると考えることにより一連の低温での現象がうまく説明できることがわかった。

本研究により、 $(TMTSF)_2ClO_4$ ではアニオンの配向秩序が抑制され T_{SDW} が低下した結果、SDW のピン止め機構が弱いピン止めから反対の強いピン止めへのクロスオーバーが起こること、又、SDW 相を分ける相転移は不整合 SDW からディスコメンシュレーションをともなった SDW への相転移が起きている可能性を明らかにした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 野 村 一 成

副 査 教 授 三 本 木 孝

副 査 教 授 伊 土 政 幸

学 位 論 文 題 名

Sliding of spin-density-wave in (TMTSF)₂ClO₄

((TMTSF)₂ClO₄ におけるスピン密度波のスライディング)

有機導体(TMTSF)₂ClO₄においては、試料を急冷することによりアニオンの配向秩序が抑制され、電子バンドの一次元性が増大することにより低温でスピン密度波 (SDW) 相が安定化される。この SDW 相では電場を加えることによりスライディングと呼ばれる SDW の集団運動が励起され、しきい電場をともなった非線形電気伝導度として観測される。一方、NMR 等の実験から低温で($T^* \sim 0.3T_{SDW}$)で SDW 相を二分する相転移の存在が示唆されている。この結果、これらの相における SDW のスライディングのメカニズムを明らかにすることは、物性物理学において極めて意義深いものとなっている。著者は試料の冷却速度により(TMTSF)₂ClO₄ における電子バンドの二次元性を制御し、SDW のスライディングのダイナミクスと T^* における相転移との関わりについて研究を行った。

一次元性の最も大きい場合において、温度の上昇とともに比較的急激に増大するしきい電場を観測した。さらに、しきい電場の温度依存は二次元性が増大すると緩やかになる結果を得た。著者は、この振る舞いを平均場理論による SDW の荷電不純物による二次のピン止め効果で解析し、一次元性が大きい場合には「弱いピン止め」機構が支配的であり、二次元性の増大とともに「強いピン止め」機構に変化していることを明らかにした。(TMTSF)₂ClO₄ においてはアニオンの配向秩序の乱れが有効不純物となることに着目し、二次元性の増大が有効不純物濃度の減少をもたらし、「弱いピン止め」から「強いピン止め」へのクロスオーバーが起きることを議論した。

T^* における相転移に関しては、しきい電場の温度依存は T^* を境に連続的であるが、過剰電気伝導度の大きさ $\sigma'_{exc} [= \{\sigma(2E_T) - \sigma(0)\} / \sigma(0)]$ は T^* 以下で急激な減少を示すことを見いだした。また、 T^* 以下の温度の高電場でのみ温度依存しない $j = j_0 \exp(-E_0/E)$ で表される新しい電気伝導特性を観測した。さらに、 T^* 以下の SDW 相では通常のしきい電場が観測された後さらに高電場で新しい電気伝導特性が現れることを確認し、電場によって従来型の SDW のスライディングから新しい電気伝導特性へのクロスオーバーが起きていることを明らかにした。著者はこの温度に依存しない新しい電気伝導特性は量子力学的トンネル効果による SDW のスライディングによるものであることを議論した。さらにこれらの振る舞いから T^* における相転移を説明するモデルとして、不整合 SDW からディスコメンシュレーション

ョンをともなった SDW への転移を提案した。

以上のように著者の研究は、 $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ における SDW のスライディングのダイナミクスを実験的に調べ、その具体的な機構を明らかにしたものであり、擬一次元導体の SDW 相における SDW のダイナミクスの理解に大きな貢献をなすものである。

よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。