

学 位 論 文 題 名

Spin-density-wave transition in organic conductors
under pressure and magnetic field

(有機導体における圧力および磁場下のスピン密度波転移)

学位論文内容の要旨

有機導体(TMTSF)₂X および(TMTTF)₂X (X=PF₆, AsF₆, ClO₄, Br, etc.)はその擬一次元的な伝導に起因してスピンパイエルス、スピン密度波(SDW)、超伝導等の様々な物性を示す物質である。その基底状態は物質の違いおよび圧力によって変化し、これらは圧力をパラメタとした統一的な相図が提唱されている。本研究において扱った(TMTTF)₂Br は常圧では反強磁性相を基底状態に持つが、圧力を印可すると約 0.5GPa 以上で基底状態が不整合 SDW 状態へと変わることが知られている。反強磁性相より高温側では系は幅の広い抵抗の極小を 100K 前後で示すが、抵抗の極小を示す温度は圧力と共に低下し最後には消滅する。この抵抗の極小と反強磁性転移の間の領域では系は電荷局在状態にあると考えられている。このように擬一次元有機導体において圧力によって多様な相が現れる理由については電子相関が本質的に重要であると思われ、その電子状態に大きな興味が持たれている。

本研究では擬一次元有機導体(TMTTF)₂Br について静水圧下での電気抵抗測定から SDW 転移の詳細を調べた。また、高圧側の不整合 SDW 相において磁場を加え、SDW 転移温度の磁場依存性を調べた。抵抗測定は通常の実験室で行われ、もっとも伝導の大きい a 軸方向の直流抵抗を測定した。

図 1 に各圧力における抵抗測定の結果を示す。常圧において(TMTTF)₂Br は 14K で反強磁性相へと転移することが NMR 測定から示されている。これに対して抵抗は 18K でキック構造を示し、14K では転移を示すような抵抗の変化が存在しなかった。一方磁化率測定の結果では 19K 付近から磁化率の等方的な減少が始まっている(図 2)。b'軸方向の磁化率においては反強磁性転移温度の 14K 以下でスピントロップが生じており、また a 軸方向の磁化率が上昇に転じるのも 14K 以下である。抵抗のキック構造と磁化率の減少はほぼ同じ温度で起こっており、ここで反強磁性転移とは異なる何らかの相転移が存在することが示唆される。

圧力を印可すると常圧で見られたキック構造は抵抗の温度微分における緩やかなピーク構造に変化する。ピークの温度は圧力とともに上昇し、0.3GPa において 23K を示し最大となる。このピークの温度は常圧から 0.3GPa までの測定を行った各圧力において NMR 測定によって報告されている反強磁性転移温度と比べて 4~8K 大きい値を示す(図 3)。この

ことから 0.3GPa までの圧力領域におけるピークの温度は常圧で示唆された反強磁性相より高温側の相転移によるものであると推察される。

この新たな相転移を説明するモデルの一つとして、電荷分布の変調が考えられる。NMR 測定から反強磁性相においては電子スピンの a 軸方向に ($\uparrow, 0, \downarrow, 0$) の順に並んだ秩序状態が示唆されている。これを電荷から見ると単純には電荷密度の高いサイトと低いサイトが交互に並んだ状態にあると考えられる。14K で抵抗に変化がないことから反強磁性転移温度の上下で電荷の状態は変化していないと推察され、反強磁性転移より高温で電荷のみが先にこのような秩序状態に転移したものがこの新たな相転移である可能性がある。

0.3GPa 以上の圧力下においてはピーク構造を示す温度は減少を始める。0.5GPa においてピーク温度は 19.5K まで低下するが、圧力の増加に対するピーク温度の低下の割合は 0.5GPa を境に緩やかになる。NMR 測定から 0.3GPa 以上の圧力において反強磁性相で不整合 SDW の成分が観測されることが報告されており、このことから 0.3~0.5GPa の圧力領域は反強磁性状態と不整合 SDW 状態のクロスオーバー領域であると思われる。0.5GPa 以上の圧力下では抵抗の微分のピークは不整合 SDW 相への転移に対応している。SDW 転移温度は圧力の増加と共に低下し、2.1GPa で 12.5K を示した。このような SDW 転移温度の圧力依存性はフェルミ面のネスティングに基づく平均場理論の描像と良く一致している。

0.5GPa 以上の圧力下において c^* 軸方向に磁場を加えると SDW 転移温度が磁場の増加と共に上昇する振る舞いが観測された (図 4)。この転移温度の上昇は磁場の二乗に比例する曲線でよく記述できた。このような振る舞いは TMTSF 塩においても見られ、擬一次元有機導体の SDW 転移に共通の性質であると考えられる。平均場理論ではこれは圧力の増大によりフェルミ面のネスティングが不完全になることによって抑制された SDW 転移が磁場を加えることにより一次元性を回復させるためであると説明され、この磁場の二乗の比例係数は系の二次元性に対応した量である。磁場の二乗の比例係数が圧力の増加と共に大きくなっていることから実験結果が平均場理論の結果で良く説明されることがわかる。

磁場の二乗の比例係数と SDW 転移温度の関係を $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ と比較すると (図 5)、 $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ は一次元性が大きく、2.1GPa において常圧の $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ とほぼ同じ状態であることが示唆された。 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ に比べてより一次元的であるにもかかわらず、磁場の二乗の比例係数の増加に対する SDW 転移温度の変化が大きいことから、 $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ においては系の二次元性だけが圧力変化するのではなく、ネスティングが完全な場合の SDW 転移温度 $T_{\text{SDW}0}$ が圧力の増加に伴って減少していることが示唆された (図 6)。この $T_{\text{SDW}0}$ の低下の主たる原因としては coupling constant $N(0)I$ が圧力と共に減少していることが考えられる。

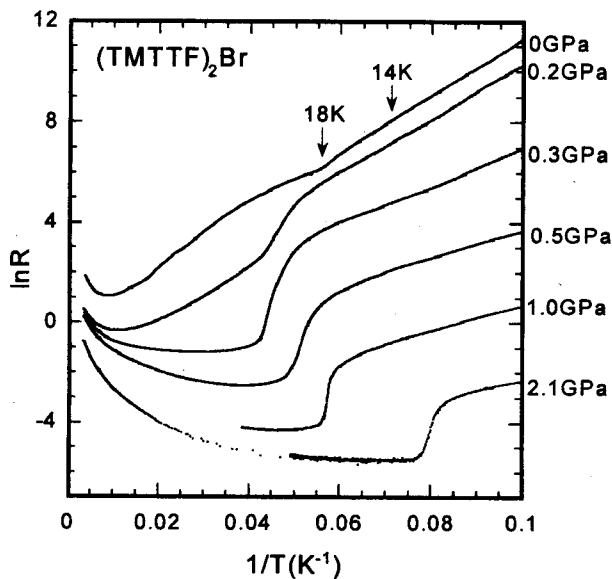


図1 各圧力における抵抗の温度依存

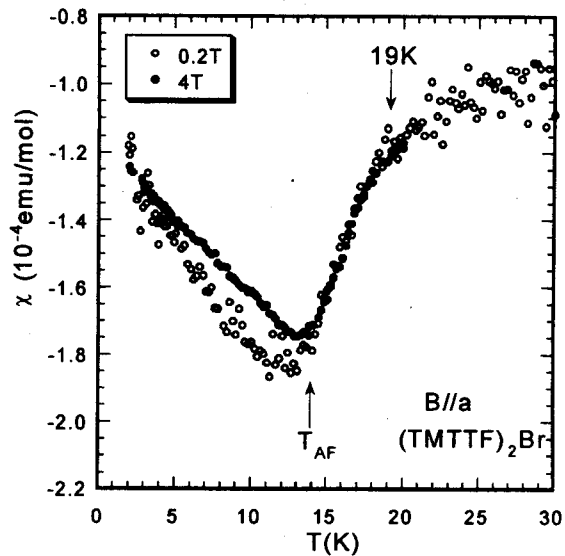


図2 常圧における静磁化率

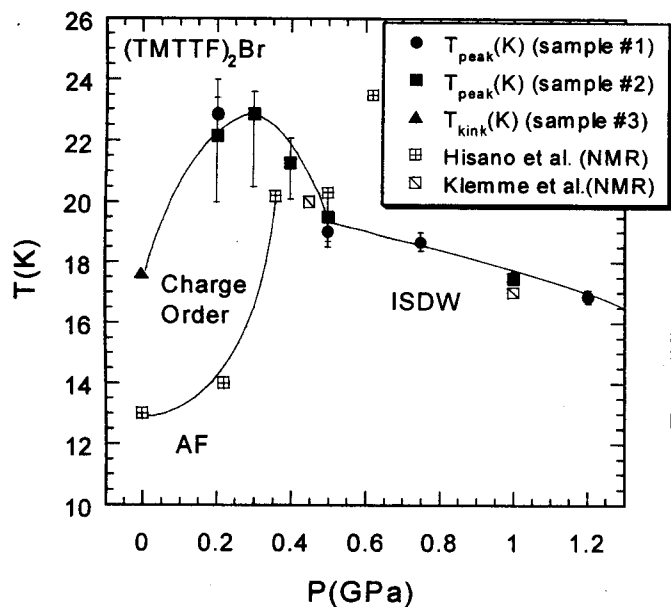


図3 (TMTTF)₂Br の圧力相図

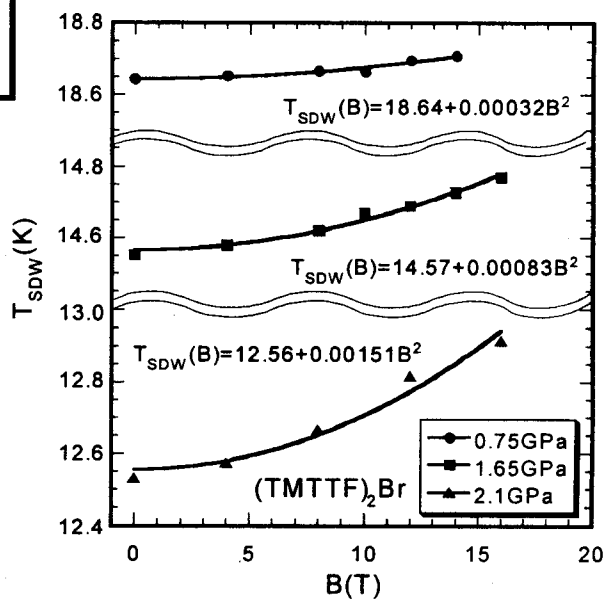


図4 SDW 転移温度の磁場依存

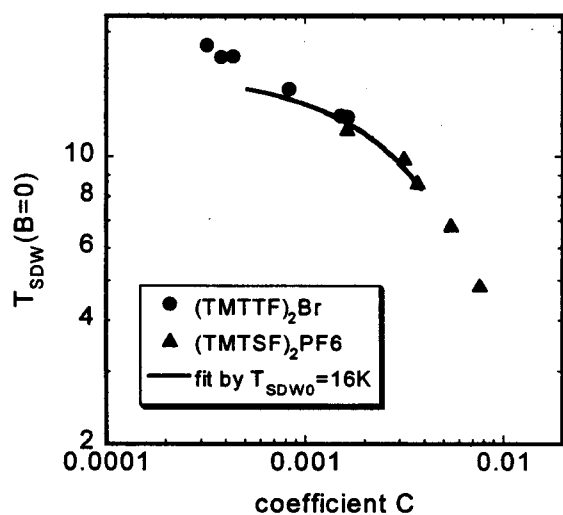


図5 $(TMTTF)_2Br$ 及び $(TMTSF)_2PF_6$ の
磁場の二乗の比例係数と SDW 転移温度
の関係

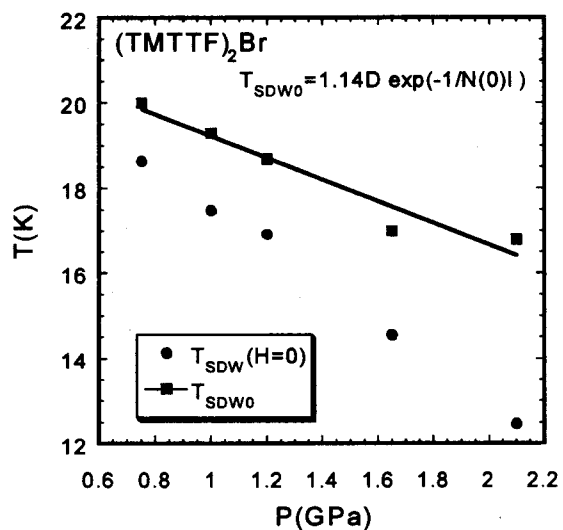


図6 T_{SDW0} の圧力依存性

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 野 村 一 成
副 査 教 授 伊 土 政 幸
副 査 助 教 授 北 孝 文
副 査 講 師 松 永 悟 明

学 位 論 文 題 名

Spin-density-wave transition in organic conductors under pressure and magnetic field

(有機導体における圧力および磁場下のスピン密度波転移)

有機導体(TMTSF)₂X および(TMTTF)₂X (X=PF₆, AsF₆, ClO₄, Br 等)はその擬一次元的な電子バンドに起因してスピンパイエルス、スピン密度波(SDW)、超伝導等の様々な凝縮状態を示す。その基底状態は構成分子の違いおよび圧力によって異なり、これらの振る舞いは圧力をパラメタとした統一的な相図で理解される。このことは圧力によって制御される電子相関が本質的に重要な役割を担うためであり、その電子状態に大きな興味を持たれている。著者はこの相図のほぼ中央に位置する (TMTTF)₂Br において圧力および磁場下での電気抵抗測定を行い、その電子状態および SDW 転移の圧力および磁場依存性を調べた。

低圧での抵抗測定において著者は抵抗の温度微分におけるピークで表される相転移を観測し、その転移温度が NMR 等から示唆される反強磁性転移より高温側にあることを明らかにした。また、静磁化率測定からこの抵抗が示す転移が磁化率の等方的な減少が始まる温度に対応していることを見出し、この転移が反強磁性転移とは異なる新たな相転移であることを明らかにした。反強磁性転移温度において抵抗に変化が無いことからこの新たな相と反強磁性相の間で電荷の状態に違いが無いことを示し、この新たな相がスピンより先に電荷のみが秩序化した状態であることを議論した。

一方、高圧側の不整合 SDW 相では磁場を伝導面に垂直な c* 軸方向に加え SDW 転移温度 T_{SDW} の磁場依存性を調べ、 T_{SDW} が磁場の二乗に比例して上昇する結果を得た。このことから、(TMTTF)₂Br の不整合 SDW 相が TMTSF 塩の場合と同様にフェルミ面のネスティングに起因して発生することを明らかにし、磁場の二乗の係数と T_{SDW} との関係を実験理論により解析し、ネスティングが完全な場合の SDW 転移温度 $T_{\text{SDW}0}$ を決定した。これらから、(TMTTF)₂Br の SDW 転移は圧力によって制御される系の二次元性のみで決まるのではなく、電子相関の変化が重要であることを明らかにした。

以上のように著者の研究は、擬一次元有機導体において反強磁性転移に隣接した新

たな相転移を見出すとともに SDW 状態を定量的に議論したものであり、電子相関によって生じる多様な物理現象の理解に対して大きな寄与をなすものである。

よって著者は、北海道大学（理学）の学位を授与される資格があるものと認める。