

β -(*meso*-DMBEDT-TTF)₂PF₆における非線形伝導

(東大物性研¹、JST-CREST²、東工大理工³)

○新関彰一¹、吉兼英美子¹、河野謙太郎¹、高橋一志^{1,2}、森初果^{1,2}、
坂東祥匡³、川本正³、森健彦³

【序】有機伝導体 β -(*meso*-DMBEDT-TTF)₂PF₆ は室温で金属的な電気伝導性を示すが、90 K で電気抵抗が最小を示し、それ以下の温度で絶縁化する。この物質について 70 K 以下において X 線の超格子反射が観測され、ラマンスペクトル等の実験でも電荷秩序の形成を示唆する結果が得られている。さらに 11.5 K で X 線回折を行った結果、特徴的なチェッカーボード型電荷秩序が形成されていることが明らかとなり、これが絶縁化の要因と考えられている(図 1)[1,2]。

一方、低温で絶縁化する強相関電子系における非線形伝導現象が注目を集めており、物質の励起状態を探索する手段として、さらには単一物質における新たなデバイス開発の候補として盛んな研究が行われている[3]。特に、電荷秩序を融解するタイプの非線形伝導は誘電応答との関連性が指摘されており[4]、平行した研究が進められている。

【実験】非線形伝導測定では、 β -(*meso*-DMBEDT-TTF)₂PF₆ を通常の液体ヘリウムクライオスタットを用いて冷却し、2 ms から 20 ms のパルス電流・パルス電圧を用いて I - V 特性測定を行った。測定には電流制御の 4 端子法と電

圧制御の 2 端子法の 2 通りを用いた。さらに、電圧パルスを印加した後のサンプル電圧の変化をオシロスコープで読み取る実験も行った。一方誘電率測定では、同じように試料を冷却し、1 kHz から 10 MHz の周波数領域で温度依存性を測定し、電荷秩序の形成を確認するとともに、非線形伝導の起こる温度領域と対応させて比較を行った。

【結果】4 端子法による I - V 特性測定の結果、90 K 以下で非線形伝導を示し、70 K 以下で $dE/dJ < 0$ の負性抵抗が観測された(図 2)。2 端子測定では、しきい電圧において抵抗が 3 桁近い減少を示した。負性抵抗が出現する 70 K 近傍では、負性抵抗よりも高電流域で再び正の抵抗が回復し、2 段にわたる特異な負性抵抗を示した。負性抵抗を現象論的によく説明する関数[5,6]を用いてフィッティングすると、図 2 のように実験値がフィッティング関数から上に逸れていくことから、電流によって低抵抗に遷移した後も何らかの絶縁要因が残っていることが示唆される。電荷秩序物質における非線形伝導現象は電流による電荷秩序の融解が原因とみられている。本測定から、 β -(*meso*-DMBEDT-TTF)₂PF₆ のチェッカーボード型電荷秩序の融解後に新たな電荷秩序が形成され、それがさらに

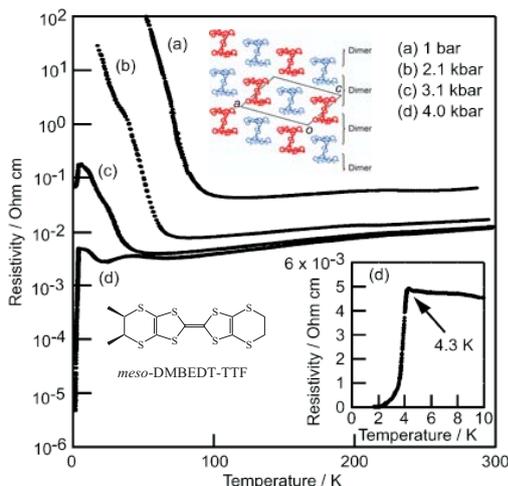


図 1 分子構造と電荷秩序の形状

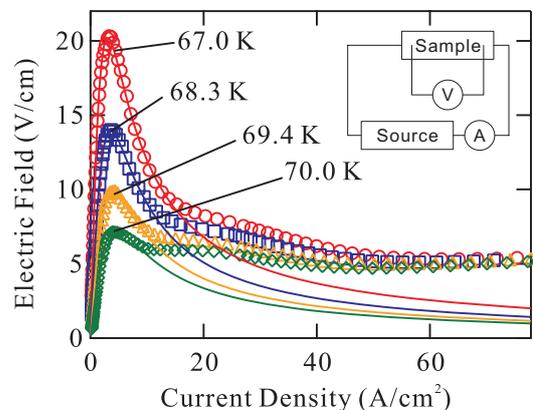


図 2 電流 4 端子法で観測された負性抵抗

融解することで 2 つ目の負性抵抗を与えていると考えられる。

電圧印加後のサンプルの電圧の時間変化を示すと図 3 のようになり、印加からある程度の時間を経て低抵抗に変化していくことが分かる。これまで観測されてきた非線形伝導物質では、時間経過につれて高抵抗から低抵抗に向かって、プラトーを持つことなく一挙に変化していくというものであった[7]。しかし、 β -(meso-DMBEDT-TTF)₂PF₆ では 2 段階にわたる抵抗変化が観測され、電圧をかけることで異なる絶縁相を融かし分けている可能性がある。上で見られた特異な I - V 特性は、時間分解された絶縁相の寄与を別々に見ているものと考えられる。

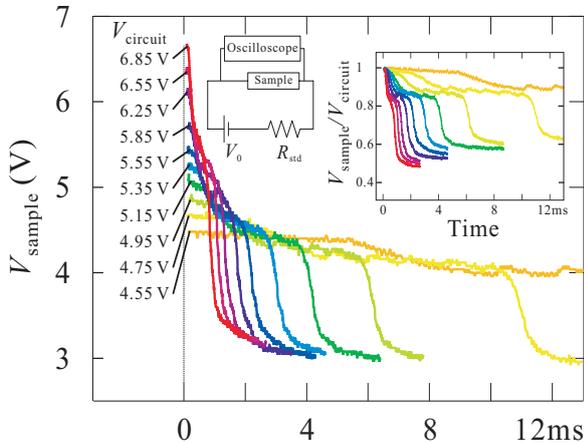


図 3 パルス印加後のサンプル電圧の時間変化 (挿入図は V_{circuit} で規格化したもの)

誘電率測定の結果、室温から 65 K までの高温領域では金属的な負の誘電率を持ち、それ以下の温度で正の値に転じた。また、符号が変わった所で誘電率がピークをもち、さらに低温で小さな値に収束して行った。誘電率の符号が変わ

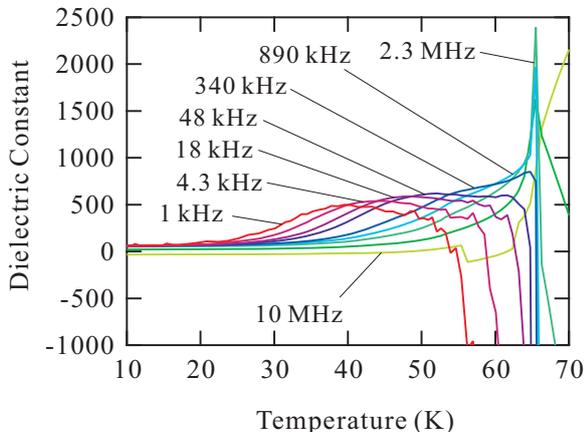


図 4 誘電率の温度依存性

る温度と、ピークを持つ温度は共に周波数依存性を持ち、周波数が高くなるほどピークは鋭く、高温側にシフトしていくことがわかった (図 4)。

各温度での誘電率の周波数依存性は図 5 のようになり、30 K 以下の温度では周波数に対して緩和型の分散を持ち、40~60 K 付近では周波数に対してピークを持つような誘電分散を示した。電荷秩序の形成温度であるこの温度領域では、負の誘電率をもつ金属的なドメインと、正の誘電率を持って緩和型の誘電分散を示す絶縁的な領域が共存し、そのためにこのような誘電分散を与えられられる。

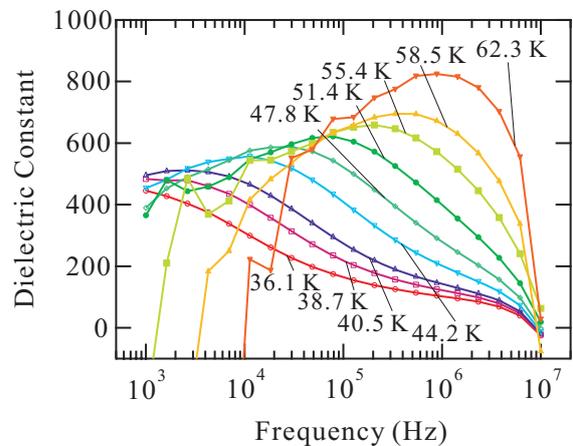


図 5 誘電率の周波数依存性

【参考文献】

- [1] S. Kimura, T. Maejima, H. Suzuki, R. Chiba, H. Mori, T. Kawamoto, T. Mori, H. Moriyama, Y. Nishio, K. Kajita: *Chem. Commun.* (2004) 2454.
- [2] S. Kimura, H. Suzuki, T. Maejima, H. Mori, J. Yamaura, T. Kakiuchi, H. Sawa, H. Moriyama: *J. Am. Chem. Soc.* **128** (2006) 1456.
- [3] F. Sawano, I. Terasaki, H. Mori, T. Mori, M. Watanabe, N. Ikeda, Y. Nogami & Y. Noda: *Nature* **437** (2005) 522.
- [4] K. Inagaki, I. Terasaki, H. Mori, T. Mori: *J. Phys. Soc. Jpn.* **73** (2004) 3364.
- [5] N. Toyota, Y. Abe, H. Matsui, E. Negishi, Y. Ishizaki, H. Tsuchiya, and H. Uozaki: *Phys. Rev. B* **66** (2002) 033201.
- [6] Y. Tokura, H. Okamoto, T. Koda, T. Mitani, G. Saito: *Phys. Rev. B* **38** (1988) 2215.
- [7] Y. Iwasa, T. Koda, Y. Tokura, S. Koshihara, N. Iwasawa, G. Saito: *Appl. Phys. Lett.* **55** (1989) 2111.