

電荷秩序系分子性物質  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の常圧下磁気抵抗東大物性研<sup>1</sup>、分子研<sup>2</sup>、東邦大理<sup>3</sup>高橋 一志<sup>1</sup>、中村俊幸<sup>1</sup>、○森 初果<sup>1</sup>、山本 薫<sup>2</sup>、薬師久弥<sup>2</sup>、西尾 豊<sup>3</sup>、梶田晃示<sup>3</sup>

【序】 近年、分子性導体の分野では、長距離電子間クーロン相互作用が重要な役割を果たす「電荷秩序」の研究が理論[1]、実験[2]共、精力的に行われている。このクーロン相互作用は、分子軌道間の重なり（バンド幅）と拮抗し、温度低下とともに、遍歴性が高い状態から、短距離電荷秩序、局在性の強い長距離秩序状態に成長して絶縁化し、時には格子変形を伴って金属―絶縁体転移を引き起こす。

我々は、この電荷秩序系分子性物質に、圧力、電場、磁場を外場として印加することにより、分子の自由度を反映した特異な電子相の創出を目指して、研究を進めている。ここでは、図1のように、ストライプ型電荷秩序の成長で135 Kで金属―絶縁化する $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> [3]の磁場応答について報告する。

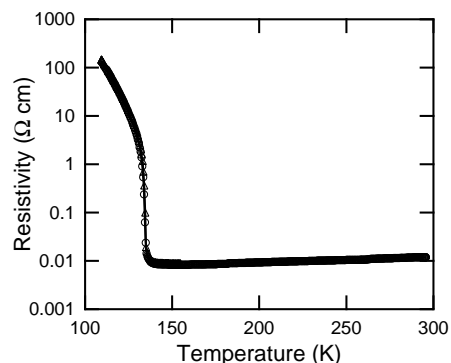


図1  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の電気抵抗の温度依存性。

【実験】  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の単結晶を、ベンズニトリルを溶媒として、2  $\mu$ A の定電流を印加した電解法により育成した。電気抵抗率の温度変化および角度依存性は、4端子法で、カーボンペーストを電極として用い、PPMS (Quantum Design) で、100 - 300 K, 0 - 9 T, 0 - 180° の範囲で測定した。

【結果と考察】 図2(a)に、 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の常圧下、相転移以上140 K、9 Tにおける磁気抵抗 [Magnetoresistance =  $[\rho(H) - \rho(0)] / \rho(0)$ ] の角度依存性を示す。面内b軸方向に電流を印加し、磁場をc軸からb軸方向にかけたところ、コサイン型の角度依存性が得られ、電流と磁場が垂直 ( $\theta = 0^\circ$ ) でローレンツ力が効くときは最大、平行 ( $\theta = 90^\circ$ ) で効かないときは最小となった。それぞれの角度において磁気抵抗の磁場依存性を調べた結果が図2(b)である。両角度ともほぼ変わらず、136 Kで磁気抵抗は最大-57%となった。角度に依存しないため、軌道による効果ではなく、ゼーマン効果により電荷ギャップが開くのが抑えられた結果と考えている。最近、堀田らにより、1次元1/4充填バンドをもつ強相関係の磁場効果が報告され、磁場をかけると、はじめゼーマン効果が効いて電荷ギャップが減少し、磁場が大きくなるにつれてスピンの分極することによりギャップが再び増大することが計算され、前者は実験と一致している。[4]

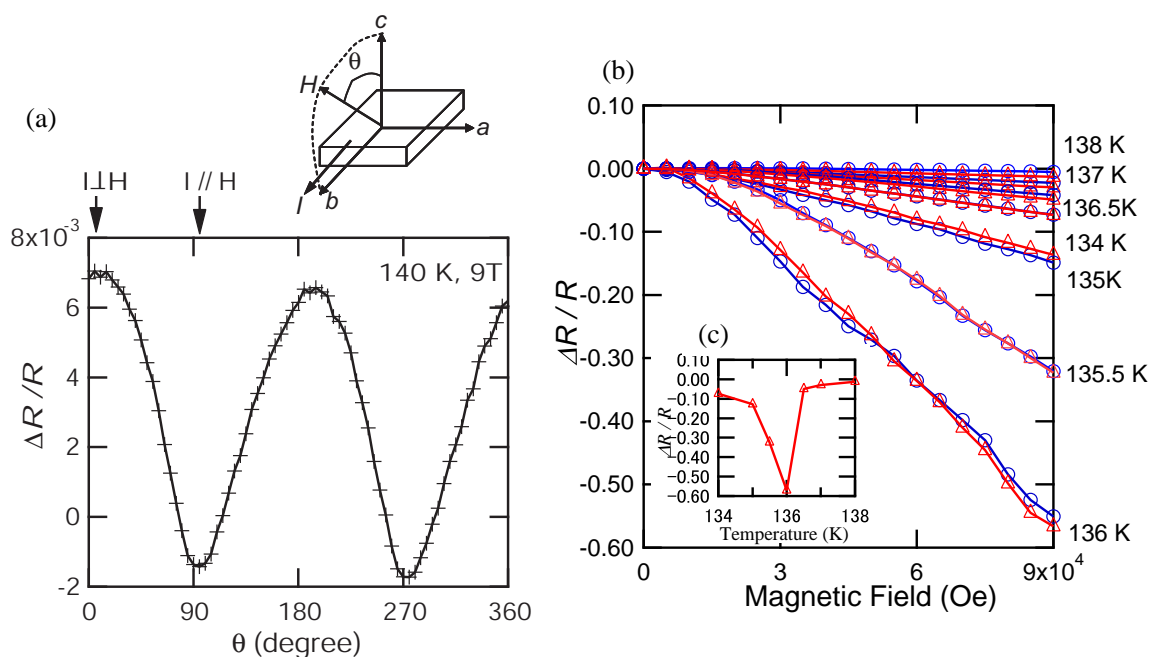


図 2 (a)  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  の 140 K, 9 T における磁気抵抗の角度依存性、(b) 各温度での磁気抵抗の磁場依存性と (c) 温度依存性。

表題物質  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  以外の電荷秩序物質についても、常圧下の磁気抵抗を調べたところ、 $\alpha'$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $Br_2$  では電荷秩序温度 ( $T_{co} = 206$  K) 付近で 9 T 下-4%、 $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ PF $_6$  では  $T_{co} = 293$  K) 付近で 9 T 下-6%の磁気抵抗が観測された。また、弱相関物質である TTF-TCNQ でも  $T_{CDW} = 53$  K 付近で 5 T 下-1.4%の負の磁気抵抗が報告されている。[5] これらと比較しても、表題物質の磁気抵抗は大きく、大きな状態密度との相関が考えられる。

**【まとめ】** 電荷秩序系分子性物質  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  において、常圧下電荷秩序相転移付近で 9 T 下-57%の比較的大きな負の磁気抵抗が観測された。これは、磁場によるゼーマン効果で電荷ギャップの開きが抑えられたためと考えられる。今後、常圧室温付近で、さらに大きな磁気抵抗を探索する予定である。

#### 【文献】

- [1] H. Seo, J. Phys. Soc. Jpn., 69, 805(2000); Seo *et al.*, Chem. Rev., 104, 5005(2004).
- [2] K. Hiraki, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 80, 4737(1998).
- [3] K. Bender, *et al.*, Mol. Cryst. Liq Cryst., 108, 359(1984); N. Tajima, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., 69, 543(2000); Y. Takano, *et al.*, J. Phys. Chem. Solids, 62, 393, (2001); R. Wojciechowski, *et al.* Synth. Met. 135, 587, (2003); T. Kakiuchi, *et al.* J. Phys. Soc. Jpn., 76, 113702, (2007).
- [4] C. Hotta, Phys. Rev. B, 81, 245104(2010).
- [5] T. Tiedje *et al.*, Can. J. Phys., 53, 17(1975).