

電荷秩序系分子性導体 θ -(BEDT-TTF)₂RbZn(SCN)₄ の電場応答

(東大物性研) ○大塚悠希, 高橋一志, 森初果

1. 背景

近年、分子性導体の分野では長距離クーロン相互作用を起源とする「電荷秩序」を舞台とする物理現象が注目を集めている。分子性結晶の電荷秩序は、温度低下と共に短距離から長距離秩序に成長し、時には大きな電子-格子相互作用により格子変形を伴う。このような多様な状態における電場や磁場、光等による特異な外場応答が、実験・理論の両面から盛んに議論されている。特に電場応答では、スイッチング効果が期待される巨大非線形伝導や、自己交流発振を示す「有機サイリスタ」効果[1]、また電場誘起の準安定状態など非常に興味深い現象が報告されており、有機エレクトロニクスの新しい展開としても期待されている。

本研究において、電場印加による新しい電子相を開拓することを目指して有機導体 θ -(BEDT-TTF)₂RbZn(SCN)₄[2]を用いて非線形伝導を調べた。本物質は Fig.1 (a), (b)のような結晶構造に二次元層状構造を持ち、伝導層では分子が異方的三角格子配列をしているため電荷のフラストレーションを有する。そのため、電子相は冷却速度に依存性を持ち、徐冷(-1 K/min)では $T_{co} \sim 190$ K以下で格子変形を伴うストライプ型の2倍周期長距離電荷秩序を形成し絶縁化するが、急冷(-10 K/min)では2倍周期と3倍周期の短距離電荷秩序が拮抗し、低温まで相転移せず不均一な電荷が凍結、つまり電荷がガラス状態となる。[3]そこで本研究では徐冷時における電場応答を調べたところ、競合する電荷秩序状態に起因する電場誘起の準安定状態及び異方的非線形伝導を見出したので報告する。

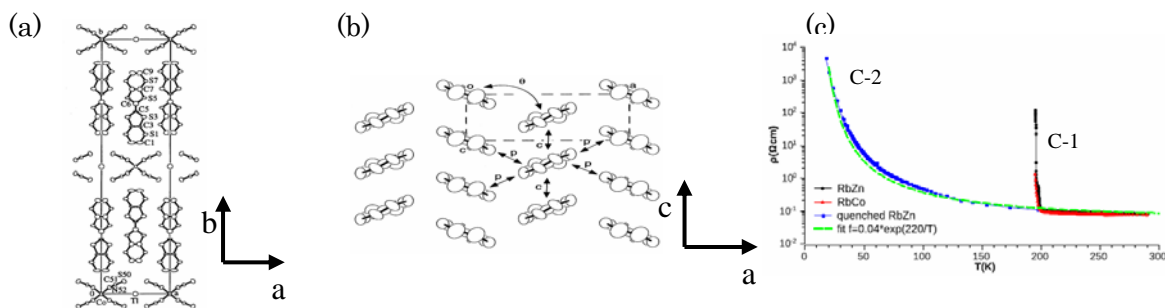


Fig.1 (a)(b) θ -(BEDT-TTF)₂RbZn(SCN)₄の結晶構造[2] (c) 抵抗率の温度依存性 [c-1; 徐冷状態 (-1K/min), c-2; 急冷状態 (> -10 K/min)]

2. 実験

有機導体 θ -(BEDT-TTF)₂RbZn(SCN)₄を-1K/minで160 Kまで冷却した。190 K以下の絶縁体領域において電圧制御による2端子法を用いて、5 msの電圧パルスを印加して $V-I$ 特性を観測した。また、サンプル電圧の時間依存性を追うために、サンプルの両端にオシロスコープを接続し測定した。

電場誘起準安定状態における緩和過程は、サンプルに10 μ A以下の電流を印加することによって抵抗を測定し、低抵抗の準安定相から絶縁高抵抗安定相に緩和していく様子を観測した。

c 軸及び a 軸方向の抵抗の温度依存性については電流制御測定によって 1 K/min で徐冷しながら抵抗値を測定した。

3. 結果・考察

T_{co} 以下である $190\sim 160\text{ K}$ の絶縁体領域において電場を印加したところ Fig.2 (a) のように、 $320\sim 820\text{ V/cm}$ のしきい値で負性抵抗を伴った巨大な非線形伝導を確認した。電場降下後はすぐに高抵抗に戻らず、各温度で低抵抗のままほぼ線形な $V-I$ 特性、つまり電場誘起準安定状態を示した。さらに2回目の電場印加では 80 V/cm の低いしきい値で負性抵抗を示す。その後、低抵抗状態から高抵抗に緩和していく様子を Fig.2 (b) に示した。160 K の電場誘起準安定状態は、一日半かけてゆっくり緩和することが分かった。この時の緩和は単一の定数による緩和現象として表すことはできず、2倍周期と3倍周期の電荷秩序が競合しながら緩和していることが推測される。

また、 ac 伝導面内で徐冷しながら電気抵抗の温度依存性を測定したところ、 a 軸方向のみにおいて T_{co} 付近での一次転移が抑制され、急冷時に見られるような電気伝導特性が観察された。これは $100\ \mu\text{m}$ 小さい結晶の c 軸両端を伝導性のペーストで包んで測定を行ったことから、結晶の構造転移を抑制する一軸圧的な効果が働いたためと考えられる。

4. まとめと今後の展望

電荷秩序系分子性導体 $\theta\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{RbZn(SCN)}_4$ を用いて徐冷時における高抵抗相の電場応答測定を行ったところ、巨大非線形伝導及び電場誘起準安定状態を観測した。また、この準安定状態の緩和過程を調べたところ、元の抵抗に戻るまで 160 K で一日半かかり、単一定数で最適化できなかった。これは緩和過程において2種類の電荷秩序状態が拮抗しているためであると考えられる。

今後は、準安定も含めた電場印加前後の電子状態を検討するために、 $T_{co}\sim 190\text{ K}$ 以下において電場を印加しながら電荷秩序による X 線超格子反射の変化を観察する予定である。また、電荷秩序形成時における磁場に対する応答を調べるために磁気抵抗測定を行う予定である。

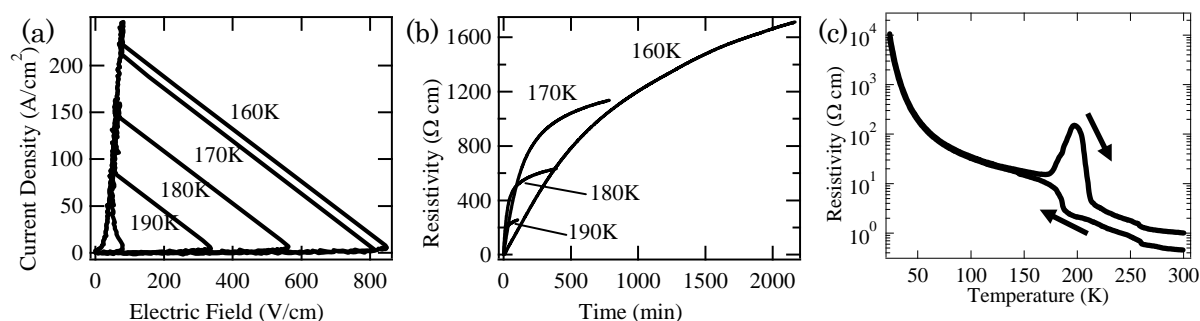


Fig.2 (a) 電圧制御2端子測定における $V-I$ 特性 (b) 電場誘起準安定状態からの緩和過程 (c) a 軸方向の電気抵抗の温度依存性

- [1] F.Sawano et al., nature **437**, 552 (2005).
- [2] H. Mori et al., Phys. Rev. B **57**, 12023 (1998).
- [3] M. Abdel-Jawad et al., Phys. Rev. B **80**, 085104 (2009).