

TTF-TCNQのパイエルス絶縁相における負性微分抵抗

¹名大院理, ²名大物国セ

○殿内大輝¹, 松下未知雄¹, 阿波賀邦夫^{1,2}

Negative differential resistance in the Peierls insulating phases of TTF-TCNQ

○Daiki Tonouchi¹, Michio M. Matsushita¹, Kunio Awaga^{1,2}

¹ Department of Chemistry, Nagoya University, Japan

² Research Center for Materials Science, Nagoya University, Japan

【Abstract】

Negative differential resistance (NDR) was observed in the most famous organic conductor, TTF-TCNQ, in its low-temperature Peierls insulator phase below 53 K. The voltage-current (V - I) characteristics below this temperature, measured by a four-probe method, exhibited unique NDR behavior, in which the dV/dI vs. conductivity (σ) plots had the inflection points at the three σ values without depending on temperature. These σ values were found to coincide with the conductivities at the three transition temperatures (53, 49, and 38 K) for the formation of the charge-density-waves in TTF-TCNQ. This suggests that the electronic structure of the Peierls insulating phase of TTF-TCNQ is governed by the total carrier density, which is determined by not only thermal excitation but also carrier injection.

【序】

世界初の有機合成金属である TTF-TCNQ は、その一次元的電子構造に基づくパイエルス転移により、53K 以下で絶縁化することが知られている[1]。その低温 Peierls 絶縁相において、負性微分抵抗 (NDR) が観測されることを報告してきたが[2]、さらに詳細に検討した結果、様々な温度で測定した NDR を含む V - I 特性に見られる変曲点が特定の導電率に現れることを見出したので報告する[3]。

【実験】

室温 (約 290K) での TTF と TCNQ のアセトニトリル中における拡散法により TTF-TCNQ の単結晶を調製した。得られた単結晶に 4 本の金線 (直径 $25\mu\text{m}$) を b 軸に対応する結晶の長軸に沿って金ペーストで取り付け、導電率測定用試料とした。作製した試料をクライオスタット (Quantum Design 社製 PPMS) に導入し、2 K から 300 K の温度範囲で測定を行った。ADVANTEST 社製 R6245 ソースメーターを用い、4 端子法で電流印加/電圧測定 (V - I) および電圧印加/電流測定 (I - V) を直流モード及びパルスモードで行った。

【結果・考察】

導電率の温度依存性の測定の結果、これまでの報告[4, 5, 6]を再現し、53、49、及び 38K の 3 つの変曲点をはっきりと見られた。この試料について V - I 測定を行ったところ、パイエルス転移温度以下のすべての場合において NDR が観察された (図 1)。この際、直流測定で見られていたヒステリシスがパルス測定では見られなくなった。ヒ

ステリシス挙動は 38K におけるロッキング転移前後の導電率の温度依存性に関して報告されており [7, 8]、 V - I 測定による電流印加によって同様の相転移が引き起こされていることを示唆している。また、図 2 に示したように、異なる温度で測定された E - J プロットにおける変曲点が、原点を通る同じ直線上に現れることが分かった。これは、変曲点の導電率が同じであることを意味している。図 3 に示すように導電率 σ に対する微分抵抗 (dV/dI) のプロットには明らかな相関が見られ、測定温度にかかわらず変曲点は同じ導電率で現れており、さらに 3 つの転移温度、38, 49 および 53K の導電率と一致する。TTF-TCNQ の相転移は電子相関により生じていることから、熱励起だけでなく非線形伝導のような電流印加を通じたキャリア注入によるものも含め、試料中のキャリア密度によって電子状態が左右されることを示唆している。

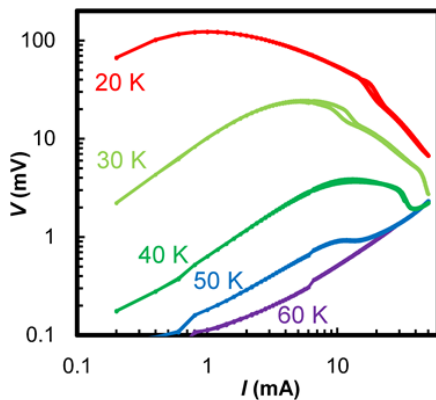


Fig. 1. V - I characteristics of TTF-TCNQ at various temperatures.

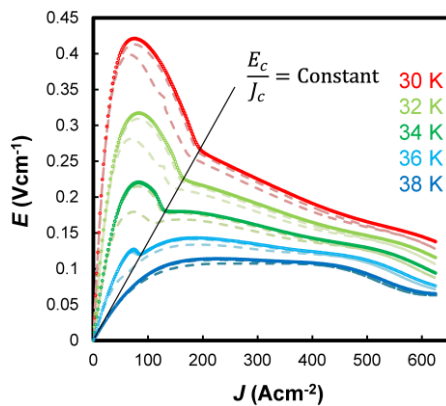


Fig. 2. E - J characteristics by pulse measurement (solid line, period: 1 sec; pulse width: 100 msec; integration time: 1 msec) and by continuous current sweep measurement (dashed line).

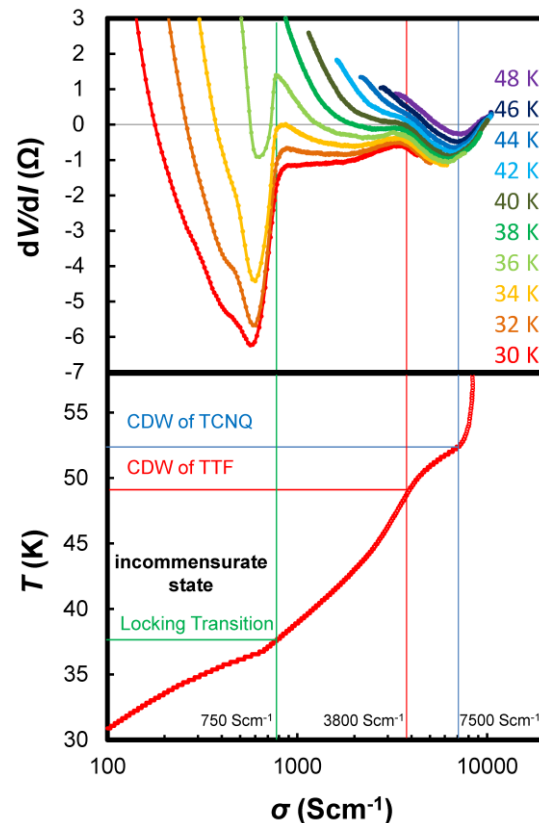


Fig. 3. Relationship between the dV/dI versus sample conductivity σ derived from the V - I characteristics accompanied by the temperature dependence of the conductivity.

【参考文献】

- [1] Y. Tomkiewicz, A. R. Taranko, and J. B. Torrance, *Phys. Rev. B*, **15**, 1017 (1977)
- [2] D. Tonouchi et al., 第8回分子科学討論会, 4P055 (2014).
- [3] D. Tonouchi, M. M. Matsushita and K. Awaga, *Phys. Rev. B*, **96**, 045116 (2017)
- [4] C. K. Chiang et al., *Phys. Rev. B*, **16**, 5163–72 (1977).
- [5] Y. Tomkiewicz et al., *Phys. Rev. B*, **15**, 3643–51(1977).
- [6] K. Saito et al., *J. Phys. Soc. Jpn.*, **68**, 1277–1285 (1999).
- [7] J. R. Cooper et al., *Solid State Commun.*, **25**, 949–954 (1975)
- [8] S. Kagoshima, T. Ishiguro and H. Anzai, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **41**, 2061–2071 (1976)