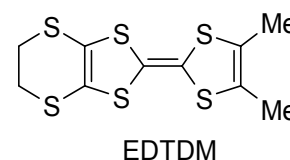


分子磁性電導体(EDTDM)<sub>2</sub>FeBr<sub>4</sub> の磁気輸送物性

(東工大院・理工) 岡部 一毅, ○宮崎 章, 榎 敏明

分子磁性電導体(EDTDM)<sub>2</sub>FeBr<sub>4</sub>は結晶中で  $a+b$ 、 $a-b$  方向への有機ドナー分子の一次元鎖を基本とする double-column 構造を特徴に持つ擬一次元電導層と、 $ab$  面内で擬正方格子を組む磁性層との交互積層構造をとっている。電導層と磁性層の間



には近接した分子間  $S \cdots Br$  接触が存在し、本物質における磁氣的相互作用ネットワークの存在を示唆している。この物質は  $T_{MI} = 11$  K において  $\pi$  電子系が SDW 転移を、 $T_N = 3$  K において  $d$  電子系が反強磁性転移を示す。温度  $T_N$  以下の磁化過程曲線では、スピントロップ転移以上の磁場で磁化容易軸と困難軸の磁化の値が一致しない、困難軸において  $\mu_0 H = 4.5$  T 付近で磁化の立ち上がりが観測されるなど通常の反強磁性体では説明できない挙動が見出されていることから、本物質の磁気秩序に対して  $\pi$ - $d$  相互作用が本質的な役割を果たしていることが示唆される。

この物質の電導度は 250K 以上で金属的、250K 以下で半導体的な電導度挙動を示す。また非磁性アニオンである  $GaBr_4^-$  を対イオンとしてもつ同型物質(EDTDM)<sub>2</sub>GaBr<sub>4</sub> では、Pauli 常磁性に由来する正の静磁化率は温度低下とともになだらかに減少し、20K 以下で急激に減少する。さらに EPR 線幅は室温から温度低下とともに減少していくが 15K 以下で増加傾向に転じ、11K 以下で線幅が発散する。類似物質(DMET)<sub>2</sub>FeBr<sub>4</sub> と比較すると、(EDTDM)<sub>2</sub>FeBr<sub>4</sub> における伝導  $\pi$  電子系は非常に一次元性の強い系であり、高温側ではその強い一次元性に基づく鎖内における SDW 状態の揺らぎの影響を受けて、電気抵抗率の見かけ上半導体的な挙動および Pauli 常磁性の温度低下に伴う減少が引き起こされているものと考えられる。

本物質の  $\pi$  電子系は加圧により徐々に次元性が高まり、 $p_C = 9.2$  kbar において低温まで金属状態が安定化するが、この転移圧力近傍において、FeBr<sub>4</sub> 塩の伝導挙動に  $T_N$  付近で電導挙動に異常が観測された (Fig. 1)。GaBr<sub>4</sub> 塩ではこのような現象は見られないことから、この現象は FeBr<sub>4</sub><sup>-</sup> の反強磁性転移に由来するものである。またこの圧力領域で GaBr<sub>4</sub> 塩では小さな正の

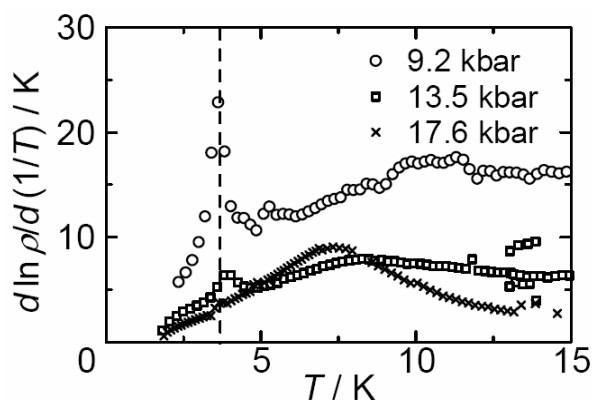


Fig. 1 (EDTDM)<sub>2</sub>FeBr<sub>4</sub> の電気抵抗率 Arrhenius プロットの勾配の温度変化

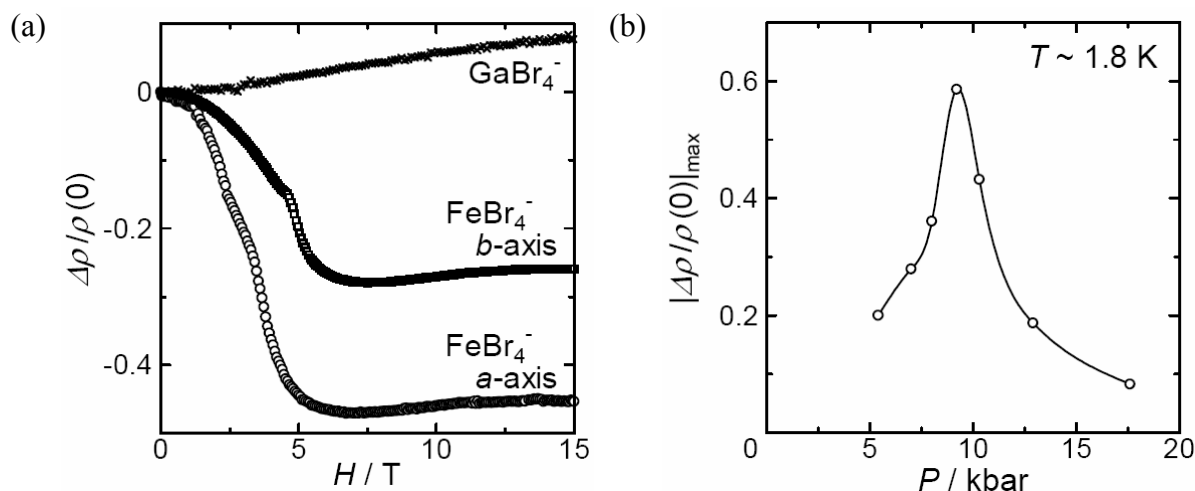


Fig. 2 (a)  $(\text{EDTDM})_2\text{MBr}_4$  ( $M = \text{Fe}, \text{Ga}$ )の磁気抵抗 (b)  $(\text{EDTDM})_2\text{FeBr}_4$ において観測された負の磁気抵抗の大きさの最大値の圧力依存性

磁気抵抗を示す一方、 $\text{FeBr}_4^-$  塩では大きな負の磁気抵抗を示すことが見出された(Fig. 2(a))。この磁気抵抗曲線に見られる異常点は磁化過程のそれと対応しており、伝導  $\pi$  電子系と局在  $d$  電子系とが相互作用していることを実験的に示している。また負磁気抵抗の大きさは圧力印加とともに増大し  $p_c$  付近でおよそ 60%もの大きな負磁気抵抗を示した後、更なる加圧で減少していくことが見出された(Fig. 2(b))。

このような磁気輸送現象測定により観測された挙動は以下のように説明することができる。伝導  $\pi$  電子系の形成する SDW の周期  $Q_\pi$  と局在  $d$  電子系の形成する反強磁性相の周期  $Q_d$  はともに  $Q \sim (a^* + b^*)/2$  で一致しているため、 $d$  電子スピンの作るポテンシャルは伝導  $\pi$  電子系の応答関数  $\chi(Q) = \sum (f_{k+Q} - f_k)/(E_{k+Q} - E_k)$  に対する有効磁場として働くことができ、結果として SDW 状態におけるギャップを増大させる働きをすることになり、これが  $T_N$  付近の電気抵抗率の立ち上がりとして観測される。この  $d$  電子系の反強磁性配列による誘起 SDW ギャップは磁場の印加により  $d$  電子スピンの磁場方向に揃っていくに従い減少していくことから、負の磁気抵抗が観測される。また、絶縁体状態においては、 $\chi(Q)$  はエネルギーギャップを挟んだエネルギー準位間でのみ応答関数に寄与を与えるため、圧力を加えてエネルギーギャップが減少するに従って負の磁気抵抗の大きさが増大するという実験結果を説明できる。一方一度金属状態が低温まで安定化されてしまうと、もはや応答関数を通したギャップの増大そのものが起こらなくなってしまうため、 $p_c$  以上の圧力では負の磁気抵抗の大きさは急速に減少する。このような考えに基づき、圧力効果をドナー鎖間の移動積分の増加で評価し、磁気測定で見積もられた交換相互作用の大きさを取り入れたモデルを用いることにより、本物質の負磁気抵抗の圧力依存性が半定量的に再現された。