

2P011 λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ (x=0.3~0.45) の電気抵抗の温度と磁場依存性に関する研究

(分子研&JST CREST¹・東大院理²) ○崔 亨波¹, 大坪才華¹, 小林速男¹, 小林昭子²

【序】有機πドナー分子 BETS[bis(ethylenedithio)tetraselenafulvalene] の形成する伝導体、 λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ は有機物質での初めての磁場誘起超伝導や無機伝導体にも例のない金属□超伝導□絶縁体転移等、特徴的な磁気伝導現象を示す分子性伝導体である。しかし、Fe, Ga の組成比と電気抵抗の関係や電気抵抗と磁場の関係等については未だ正確な実験データが少ない。特に金属□超伝導□絶縁体転移を示す Fe の組成比が 0.3□0.45 の間の結晶の伝導性に関しては不明な点が数多く残されている。今回、 λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ (x=0.3~0.45) 結晶を作成し、それらの電気抵抗の温度依存性と磁場依存性を再吟味した。

【結果と考察】

λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ の結晶は *c* 軸方向に成長する針状結晶である。結晶中では、BETS 分子が *a* 軸方向に 4 分子周期で積層し、*c* 軸方向には数多くの短い S と Se の分子間接触が存在し、BETS 分子は *ac* 面に平行に 2 次元伝導面を形成している。また、アニオンの Cl⁻ と BETS 分子の S, Se 間には数多くの近接距離が存在し、Fe³⁺ の 3d 軌道が Cl⁻ を介して BETS 分子の π 軌道と相互作用することができる。これまで、 λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ の磁場誘起超伝導および *T-H* 相図については、宇治等によってその全体像が描かれている。また、特に金属□超伝導□絶縁体転移を示す λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ (x□0.45) の結晶の低温、磁場下での電気抵抗測定については、私達のグループによっても数年以前に調べられた。今回、x□0.35 の組成を持つ結晶を中心に、 λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ の *T-x* 相図を詳しく調べると共に、磁気抵抗の振る舞いを調べた。図 1 に示したのは λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ (x=0.37) の電気抵抗の温度依存性である。電気抵抗は 80K 付近まで緩やかに上昇してから減少し、4.7K で金属—超伝導転移、2.2 K では伝導—絶縁化転移を起こす。

1.4K、磁場下で結晶を一軸回転し、超伝導が観測される方向を探ることによって伝導面(*ac* 面)を探し、決定した伝導面に平行と垂直の二つの方向を中心に、様々な温度での電気抵抗の磁場依存性(0-15T)を測定した。図 2 は磁場が伝導面に平行な時の電気抵抗の磁場依存性である。図 1 を見れば明らかのように、2K 以下では H=0 T

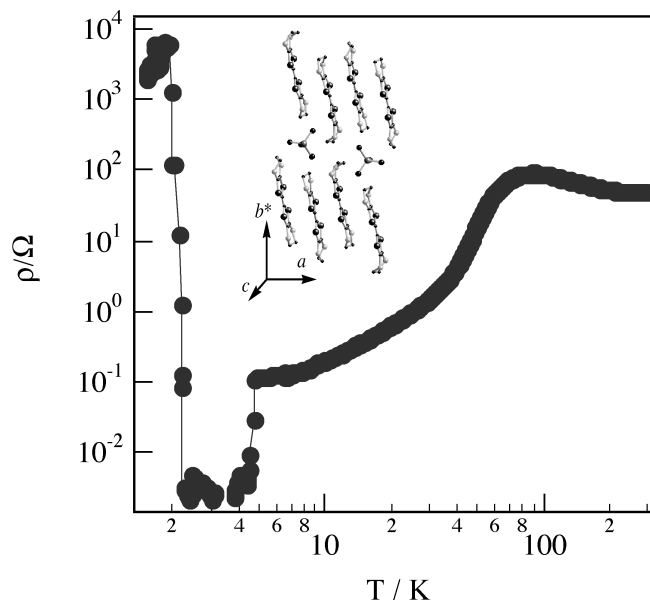


図 1. λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄ (x=0.37) の電気抵抗の温度依存性

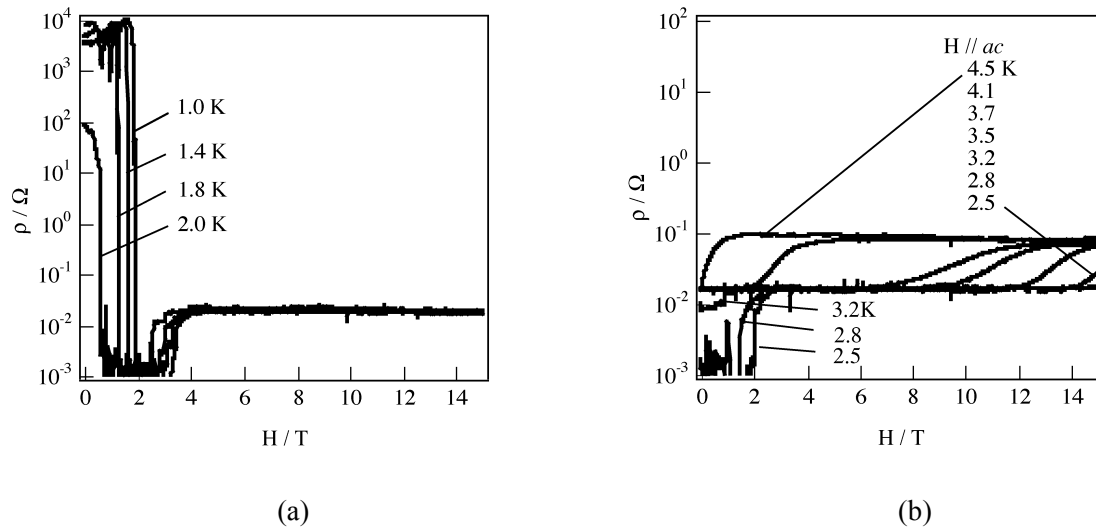


図2 λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄(x=0.37)の磁気抵抗 ($H//ac$), (a) $1 < T < 2$ K, (b) $2.5 < T < 4.5$ K

で結晶は反強磁性絶縁体状態(AFI)をとるが、 $1 < T < 2$ Kでは (図3 a) 外部磁場の増大によって絶縁相 \rightarrow 超伝導転移が起こる。しかし更に磁場が増大すると超伝導 (ここでは SC1 相と表す) は破れるが、この時奇妙なことに、電気抵抗は金属状態 (M状態) での抵抗値に達せず、それより1桁弱小さな一定値をとる (この状態を仮に SC2 と名付ける)。一方 (図3 b)、 $T=2.5$ Kでは SC1 \rightarrow SC2 転移が、また、 $T=2.8$ (および 3.2) K では、SC1 \rightarrow SC2 \rightarrow M 転移が、 $3.5 < T < 4.5$ K では、SC2 \rightarrow M 転移が出現する。この SC2 状態の抵抗は温度にも磁場にも全く依存しない。相図を (磁場が伝導面に垂直な場合の相図と共に図3 にまとめたが、金属状態よりも低い一定の抵抗をとるといふ (恐らく前例のない) 奇妙な状態は、結晶の組成 x が特定の時に現れる様に思われる。即ち、金属抵抗よりも低い一定の抵抗値をとる結晶は x の組成によって系統的に出現するように思われ、前例のない金属 \rightarrow 超伝導 \rightarrow 絶縁体転移を示す結晶にのみ現れる新たな状態ではないかと予想している。

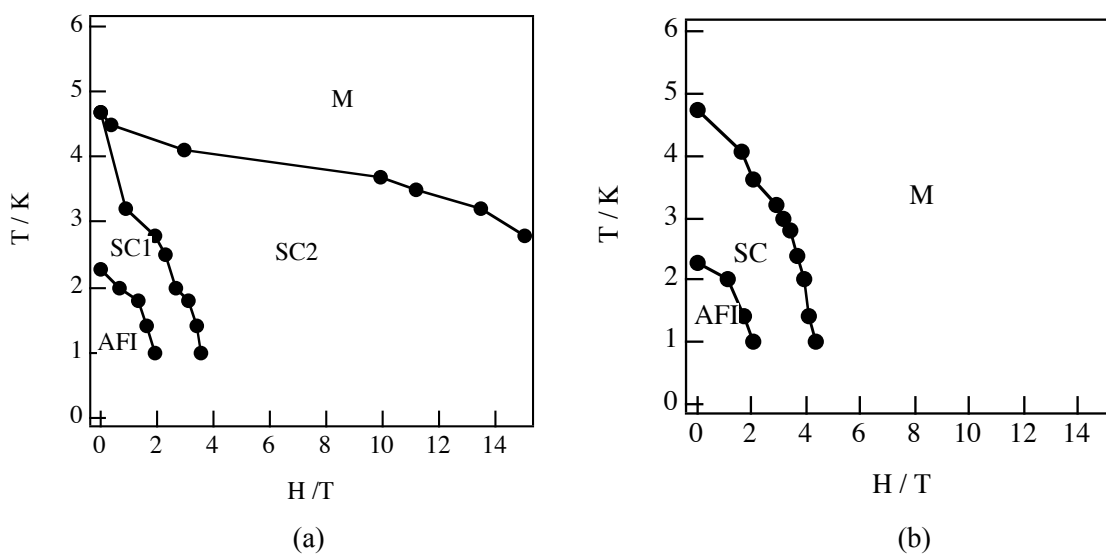


図3 λ -BETS₂Fe_xGa_{1-x}Cl₄(x=0.37)の T - H 相図、(a) $H//ac$ (b) $H \perp ac$