

有機伝導体 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ の低温磁化特性

東北大学大学院理学研究科物理学専攻

佐藤 亮

【はじめに】 有機伝導体 λ -(BEDT-TSF) $_2$ FeCl $_4$ は、対アニオンに局在 3d スピンを持ち、低温まで磁性と電気伝導性が共存する初めての分子磁性金属である。結晶構造は三斜晶系 ($P\bar{1}$) の構造で c 軸を長軸とした針状結晶である。BEDT-TSF がドナー、FeCl $_4$ がアクセプターとなって電荷移動錯体を作り、 ac 面を伝導面とした準二次元 π 電子系を構成する。BEDT-TSF には 2 分子当たり 1 個のホールが生成し、伝導性を担う。電気抵抗は約 100K 以下で金属的な振舞を示し、 $T_M=8.3K$ で反強磁性秩序を伴って絶縁体に転移する。Fe $^{3+}$ イオンを非磁性の Ga $^{3+}$ イオンに置換した系では低温で超伝導になることから、 λ -(BEDT-TSF) $_2$ FeCl $_4$ の金属-絶縁体転移には π 電子と 3d 電子の相関が関与しているのではないかと考えられている。さらにこの物質は 18T 以上の高磁場中で超伝導が誘起され、Jaccarino - Peter 効果によって説明されている。Fe $^{3+}$ イオンを部分的に Ga $^{3+}$ イオンに置換した混晶系 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ は $0.35 < x < 0.5$ の範囲で、磁場や温度の変化によって金属、超伝導、絶縁体の間を転移するとされているが、混晶系の磁気相図はまだ確立されていない。

【目的】 混晶系 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ の低温での相転移の微視的機構を解明するのに必要な基礎的な物性はまだ十分明らかにされていない。特に磁化特性の詳細は明らかにされていない。本研究では混晶系 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ 系 ($x=0.40, 0.45$) の低温の磁化特性を詳しく測り、この物質の基底状態と相転移の微視的な機構に関する新たな知見を得ることを目的とする。

【実験方法】 本研究では、 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ の低温高磁場での磁化特性の測定するために、 ^3He クライオスタットと ^3He 温度で動作するファラデー法による磁化測定セルを製作した (図 1)。また、低磁場域では SQUID 磁化測定装置で詳細に磁化を測定した。単結晶試料は理学研究科の低次元量子物理研究室 (豊田直樹教授) から提供していただいた。

【結果と考察】 図 2 に 0.5K での λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.45$) の磁化の結果を示す。磁場は容易軸である c 軸の向きにかけられている。6kOe 近傍の磁化の折れ曲がりにはスピンフロップによるものである (H_{SF})。10 kOe 付近からは磁化の増大が緩やかになり、飽和していく。50kOe 付近から磁化に

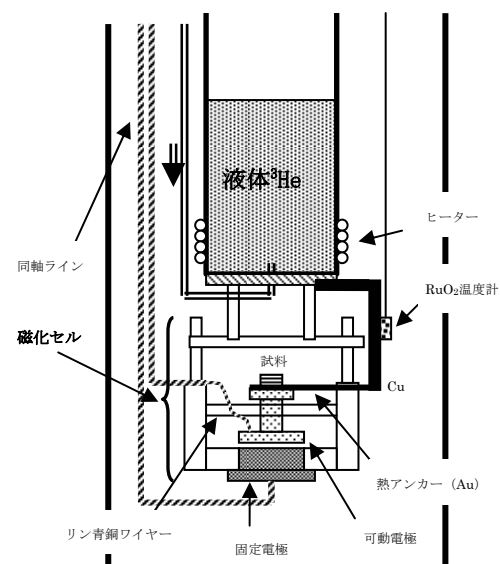
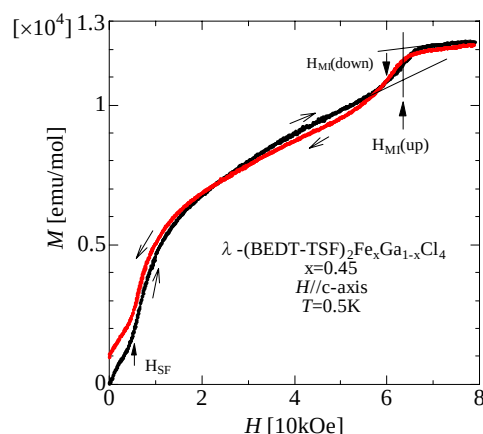


図 1 断熱真空容器内部

図 2 0.5K での λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.45$) の磁化の磁場変化。

折れ曲がりが見え、50kOe～60kOeの磁場範囲で磁化が急激に増大して肩を持つ。この肩は反強磁性絶縁体 - 常磁性超伝導転移点 H_{MI} に対応すると考えられる。 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.40$) でも同様の磁化の肩が確認できた。

図3は磁化から推察される λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.40, 0.45$) の低温のスピンの状態の模式図である。3d電子間の距離は大きいと直接の相互作用は無視できると考えられている。従って、 π 電子を媒介にして3d電子のスピンの間に反強磁性相互作用が働くと考えられる。6kOe近傍でスピフロップが起き、 π 電子と3d電子は反強磁性的な強結合状態をたもったままキャントする。50kOe～60kOeで π 電子と3d電子の反強磁性的な強結合状態が壊れて π 電子は遍歴し、3d電子は常磁性状態になる。

図4に磁化測定により得られた λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.45$) $H // c$ -axisの低温での温度-磁場相図を示す。本研究で得られた磁化の結果は図中に大形の記号を用いて示されている。図4には

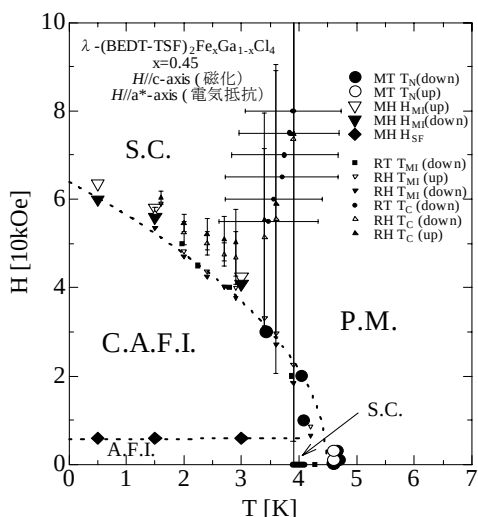


図4 磁化測定によって得られた、 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.45$) $H // c$ -axis の温度-磁場相図。P.M.はPara-magnetism Metal、A.F.I.はAnti Ferro-magnetism Insulator、C.A.F.I.はCanted Anti Ferro-magnetism Insulator、の略。 $H // a^*$ -axisでの電気抵抗のデータも合わせて載せてある[1]。

註釈

[1] 桑原隆比古ら（東北大学理学研究科物理学専攻低次元量子物理研究室）によって行われた電気抵抗の測定。

[2] λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ は準二次元系で ac 面内で磁場の方向をまわしても磁気相図はほとんど変化しない。 c 軸と a^* 軸は両方とも ac 伝導面内にある。

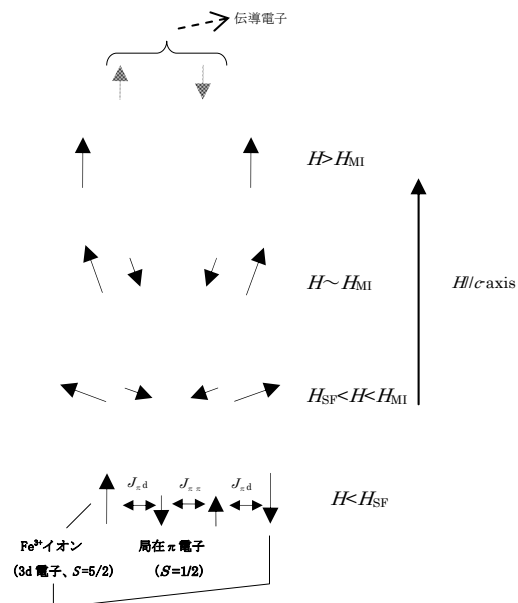


図3 π 電子と3d電子のスピンの状態の模式図。

桑原らによって電気抵抗の測定から得られた相図 ($H // a^*$ -axis) [1]を小型の記号で合わせて載せてある。本研究で得られた磁化の結果と、電気抵抗による結果は、良く一致している[2]。低磁場の4.2K近傍にも超伝導相があり、SQUIDによる磁化測定で確認した。超伝導相と反強磁性絶縁体相の相境界は、温度の上げ下げ、磁場の上げ下げで転移点が変わり、一次転移的である。

【まとめ】 本研究では準二次元 π 電子系 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.40, 0.45$) の低温の磁化特性を調べ、その温度-磁場相図を明らかにした。これらの物質の磁化過程は、 π 電子が絶縁転移点で局在化して ($S=1/2$)、Fe $^{3+}$ イオンの3d電子 ($S_{3d}=5/2$) と反強磁性的な結合を起こし、反強磁性秩序相を形成するという描象を指示するものである。また、ここでは触れなかったが、 λ -(BEDT-TSF) $_2$ Fe $_x$ Ga $_{1-x}$ Cl $_4$ ($x=0.40$) の超伝導相では層状構造を反映した異方的な反磁性が観測された。