

しきい電場近傍におけるスピン密度波の電場応答

長澤光晴¹、三本木孝^{2*}、安西弘行³

東京電機大学 工学部 基礎教育系列

北海道大学 理学部 物理学科

姫路工業大学 理学部 物質工学科

*現在：北海道情報大学

1. 序論

擬1次元有機導体 $(\text{TMTSF})_2\text{AsF}_6$ (TMTSF: tetramethyl-tetraselenafulvalene) は常圧下約 10 Kで金属-絶縁体転移を起こす。これはフェルミ面のネスティングによるもので、低温での電子状態はスピン密度波 (Spin-Density-Wave: SDW) である。

不純物や格子欠陥などによってピン止めされている密度波 (Density Wave: DW) はしきい値以上の電場 ($E > E_T$) でピン止めがはずれ、並進運動を行うことができる。DW は電流を担うことができるため、 $E > E_T$ では非線形伝導が観測される (図1)。DW のピン止め摩擦と並進運動は摩擦と密接な関係にある。しきい電場は最大静止摩擦力に対応し、非線形伝導度は動摩擦力と電場との関係によって決まる。非線形伝導領域では、密度波の周期的空間変調を反映して、応答電圧に挟帯域雑音 (Narrow Band Noise: NBN) や過渡的振動が観測される[1]。

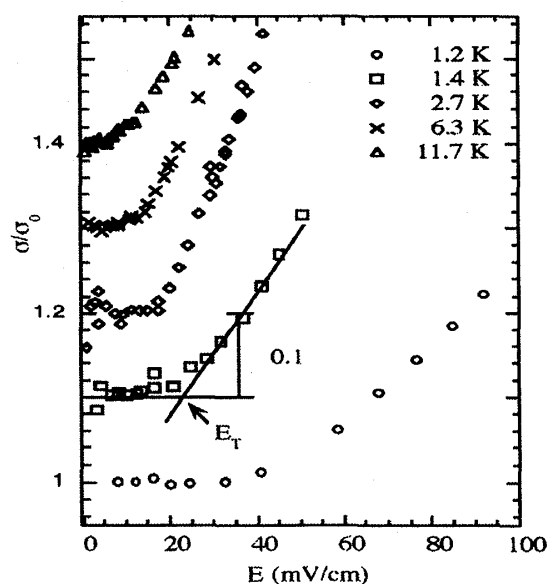


図1. $(\text{TMTSF})_2\text{AsF}_6$ のSDW相における規格化された電気伝導度 vs. 温度

(TMTSF)₂AsF₆ の低温低電場領域では、矩形波電流を流しているにもかかわらず、誘電的な応答電圧が観測される[2]。この現象は低温ほど顕著である。3 K付近では他の測定においても様々な異常が観測されている。逐次相転移が起こっている可能性も示唆されるが、まだ明確に理解はされていない。

今回はこの誘電的な応答電圧の測定を通して、SDW のしきい電場近傍での電場応答について議論する。

2. 実験方法

測定に使用した試料は電気化学的方法で合成した。本研究では、a 軸方向の電気伝導度測定を4端子法で行った。具体的には試料に矩形波電流を流し、応答電圧測定をオシロスコープで行った。矩形波電流の幅は1 μsec~100msec、繰り返し周波数は約1Hzとした。電極の接触抵抗を小さくするために試料表面に金蒸着を行い、そこへ10 μmの金線を銀ペースト、または金ペーストで固定した。この際、試料内の電流密度が一様になるように試料の両端にも金蒸着を行った。

冷却の際、結晶に微細なクラックができやすく、そのため抵抗ジャンプが観測される。抵抗ジャンプが観測された試料では非線形伝導に影響があることが指摘されている。これを避けるために試料をクランプタイプの圧力ボンベに入れ加圧した。低温ではほぼ常圧となるように調節した。

3. 実験結果及び議論

図2に低温低電場領域での矩形波電流に対する応答電圧波形を示す。同一温度では、 $E < E_T$ での応答電圧波形を十分時間が経過した後の電圧で規格化することができる。 $E > E_T$ では電場の増加とともに電流に対する応答は速くなり、 $E > 2E_T$ では誘電的な振る舞いは観測されない。系をオーミックな抵抗体と誘電体を並列に接続した等価回路として考え、十分時間が経過した後に試料に蓄えられている電荷密度(q_0)を見積もった。図3より、 $E < E_T$ では電場の増加に従って q_0 は増加、 $E > E_T$ では減少し、 $E > 2E_T$ でほぼ0になることが分かる。これより、誘電的応答はピン止めされたSDWが平衡位置から変位することによって生じるものと理解される。全てのSDWが寄与している場合、 q_0 とSDWの変位量 δr との間には、

$$q_0 = en_{\text{SDW}} \delta r$$

の関係がある。ここで、 n_{SDW} はSDWの凝縮密度である。 $E = E_T$ での δr は温度によらず、約0.3 Åと見積もられる。

SDW の周期的空間変調を表す量としてピン止め波長 (λ_{PIN}) がある。過渡的電圧振動や狭帯域雑音の周波数を F 、その時 SDW が担う電流密度を J_{SDW} とすると、剛体モデルから λ_{PIN} は

$$\lambda_{\text{PIN}} = J_{\text{SDW}} / F e n_{\text{SDW}}$$

となる。同一試料のピン止め波長 λ_{PIN} は約 $2\text{\AA}$ であった。しきい電場における変位量は $\lambda_{\text{PIN}}/2$ となるはずであるから、約 2 倍の違いが残る。しかし、 $E \sim 2E_T$ まで誘電的振る舞いが残る、一部の SDW はピン止めされている、と考えれば結果をある程度説明することが出来る。また、ピン止めされている一部の DW は本来のしきい電場以下の電場でも熱的、量子力学的に

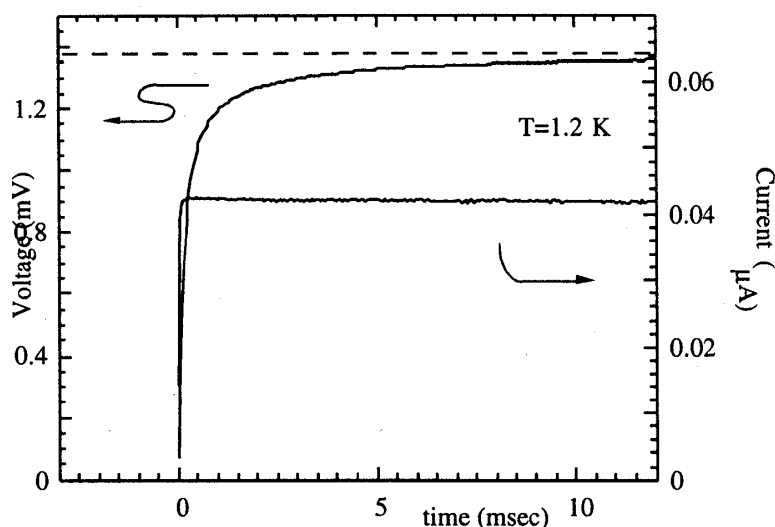


図 2. 低温、低電場における典型的な電流電圧波形。
点線は十分時間が経った後での電圧を表す。

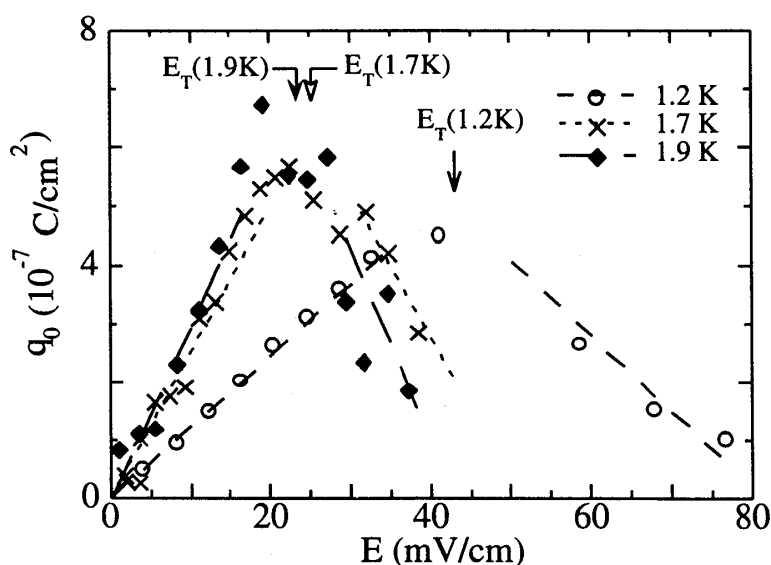


図 3. 電荷密度 (q_0) vs. 電場。試料の断面積は $0.285 \times 0.091 \text{ mm}^2$ 、
電圧端子間は 1.12 mm 。

ピン止めポテンシャルを乗り越えることが出来ると考えられている（クリープ現象）。実際、電荷密度波の系では 1 K 以下の低温低電場で量子力学的効果によるクリープと考えられる結果が報告されている [3]。したがって、 $E_T < E < 2E_T$ ではクリープ現象が起きている可能性もある。

次に、試料に蓄えられる電荷密度の時間依存性について議論する。図 4 より、電荷密度は引き延ばされた指数関数 ($q(t) \sim \exp(-\tau_1/t)^\beta$) に従って蓄えられることが分かった。これはガラス転移に類似した現象である。

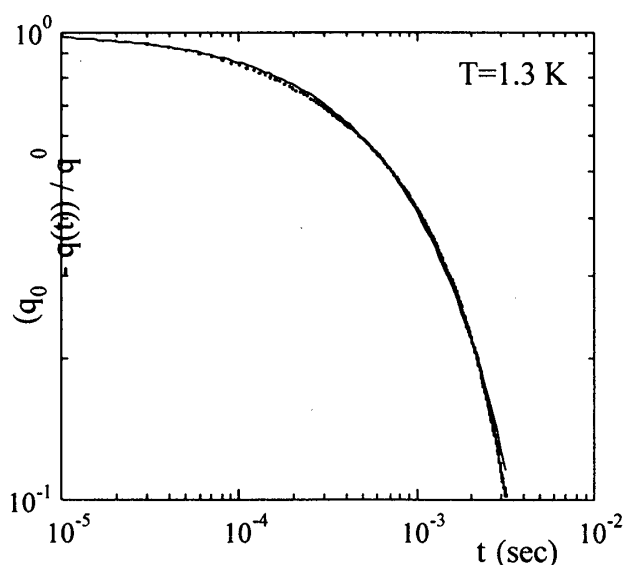
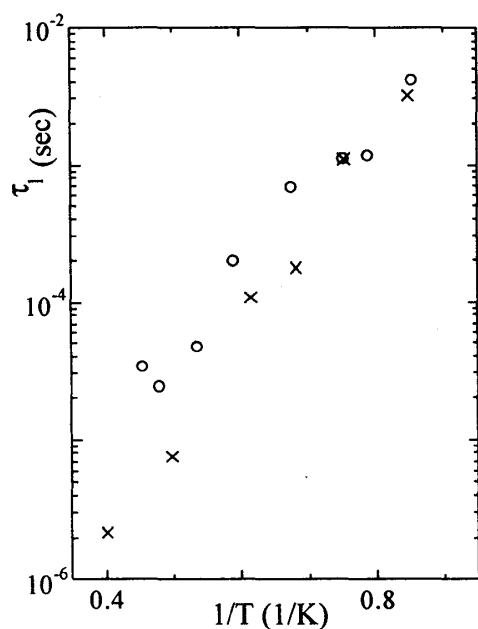
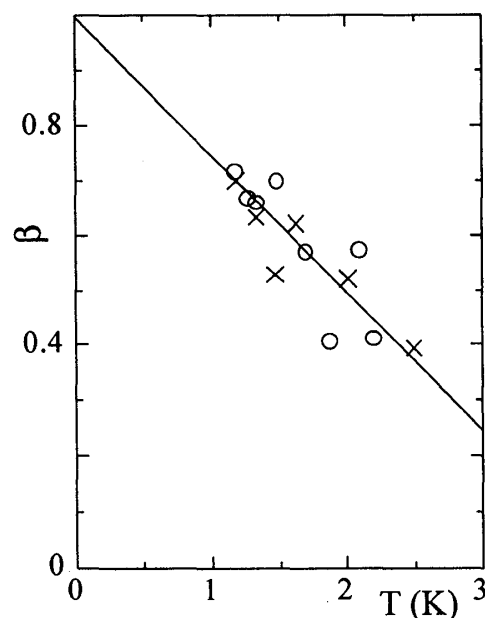


図 4. $E < E_T$ での $(q_0 - q(t)) / q_0$ vs. 時間。曲線は $\exp(-(t/\tau_1)^\beta)$ を表す。
特性緩和時間 τ_1 と指数 β はそれぞれ、 $\tau_1 = 3.2 \text{ msec}$ and $\beta = 0.7$ 。

図 5 から特性緩和時間 (τ_1) は熱活性化的に低温で長くなることがわかる。この熱活性化エネルギーは約 1.4 K であり、低温でのオーミックな電気伝導度の熱活性化エネルギー 1.7 K とほぼ同じである。電場はピン止めされている SDW をピン止めポテンシャル周辺で変形させるため、試料内部には静電的な局所的不均一が生じると考えられる。オーミックな電気伝導に寄与する normal carrier はこの不均一を解消する方向に作用すると思われる。したがって、 $(\text{TMTSF})_2\text{AsF}_6$ の低温で観測される誘電的な現象は、低温で normal carrier による遮蔽が不十分になり、SDW 鎖方向の相関が強くなる（堅くなる）ことに原因があると推測される。

図 6 から、指数 (β) も温度に依存し、 $T \rightarrow 0$ で β は 1 に近づくことがわかる。これは、電荷密度が引き延ばされた指数関数から通常の指数関数に近づくことを意味する。normal carrier による遮蔽が不十分になれば、SDW 鎖方向だけではなく、SDW 鎖間の相関も強くなると思

図5. 特性緩和時間 (τ_1) の温度依存性図6. 指数 (β) の温度依存性

われる。もしも、 β がSDW鎖ごとの τ_1 のばらつきを表す量であれば、 $T \rightarrow 0$ で β が1に近づくことは、 τ_1 のばらつきが無くなることを意味する。つまり、 $T \rightarrow 0$ でピン止めされたSDWが全体として一様になって電場に応答すると考えることができる。この場合、 $E_T < E < 2E_T$ で q_0 が有限であるのはクリープ現象が起こっている可能性が高い。これについては、今後も検証が必要である。

参考文献

- [1] M. Nagasawa, T. Sambongi, K. Nomura and H. Anzai Synthetic Metals, **71** (1995) 1717-1718
- [2] M. Nagasawa, J. Phys. France I, **6** (1996) 2135-2140
- [3] S. V. Zaitsev-Zotov, Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 605