

28aXJ-6 1/4-filled 電子系絶縁相における電荷輸送 : ESR study

都立大院物理

溝口憲治、平岡 牧

Charge transport in the insulating phase of 1/4-filled electronic systems :

TMU

Kenji Mizoguchi and Maki Hiraoka

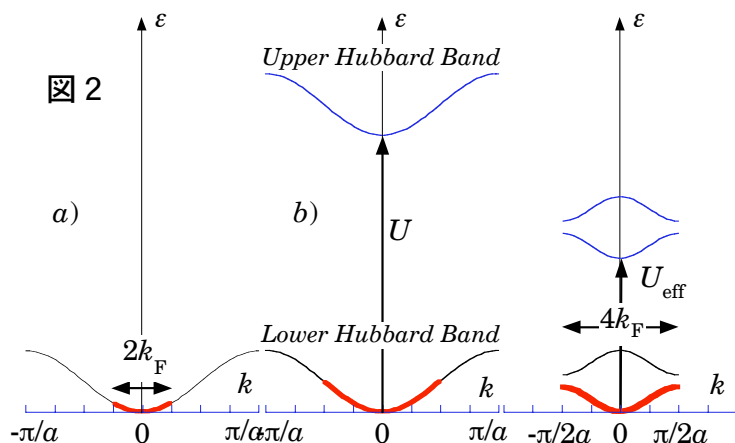
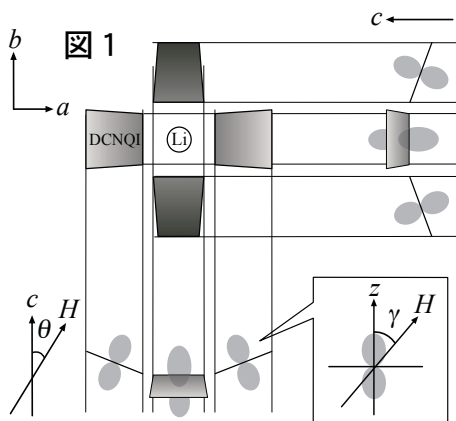
ESR study

電子バンドに1/4だけ電子をつめると、通常は金属になる。ところが、1次元の電子相関の強い系では、ギャップ E_g の開いた絶縁相にもなり得る。そのような電子状態を持つ系の例として、(DMe-DCNQI)₂A, (A=Li,Ag) を考えよう。この系は、DCNQI分子当り0.5個の電子を持ち、図1に示す様なc軸方向にスタック構造を持つ1/4-filled 1次元 π 電子系を成す。ここで「電子相関が強い」とは、同一サイトに2つ目の電子が入る際に、クーロン反発エネルギー U だけ余分に必要になるが、その U の大きさがバンド幅 W と比較して大きい場合を指す。大きな U のために、単純に1電子バンドの底からスピンの自由度に対応して2個ずつ詰まることは無く、1個だけ占有された状態が波数 $\pm 2k_F$ まで占有される(図2:概念図)。更に、1次元フェルミ面は良く知られたパイエルス不安定性を持つため、DCNQI分子が2量体を形成し、 $E(\pm 2k_F)$ に電荷密度波($4k_F$ -CDW)ギャップが開いた絶縁相と関わるX線の $4k_F$ 超格子揺らぎが観測されている。

この $4k_F$ -CDW相では E_g の下バンドは満ちているが、スピンの自由度が残っているため低温で磁氣的相転移を起す。この系の場合は、高い1次元性のため3次元的な反強磁性は起こらず、3次元フォノンの助けを借り T_{SP} 以下でDCNQI分子が4量体化してシングレット対を形成し、スピン・パイエルス型の絶縁相が実現する。本講演では、 T_{SP} の上下の2つの絶縁相における電荷輸送機構についてESRで調べた結果を報告する。

1) $T < T_{SP}$: スピン・パイエルス (SP) 相のスピンソリトン型素励起

SP相ではスピンの自由度が失われており、磁化率は等方的で温度の指数関数で変化する。これはシングレット4量体が、スピンを持つ2量体の対に熱乖離してスピンソリトン対を形成することに対応する。スピンソリトンは、結晶のドメインのサイズが $4n$ (n は整数)から外れる場合にも(シングレット対の相手がいないために)出現し、低温で観測されるキュリー的な磁化率に対応する。実際に、ポリアセチレンの中性ソリトンの場合と同様にESRの周波数依存性から、キュリースピンが1次元的な拡散運動をしていることが示された。また、その時の拡散速度は格子の質量の2乗でスケールされることも分かった。



2) $T > T_{SP}$: $4k_F$ -CDW 相の分数荷電スピン・ソリトン-ホール・ソリトン型素励起

T_{SP} 以上では、各DCNQI分子の2量体が電子を1つずつ持つモット・ハバード型絶縁体状態にあると考えられ、電気伝導は期待できない。しかし、(DMe-DCNQI)₂Liの電気伝導度は室温で10-100S/cm程度で約270Kの熱励起型温度変化を示す。この点を理解するには通常の金属や半導体とは違う電荷担体が伝導を担っていると考えるを得ないが、最近、分子研のW-band (94GHz)とQ-band (34GHz) ESRによる線幅の異方性を調べることにより、この電荷担体に関する知見が得られた。

図1の構造から、外部磁場をc軸にかけるとDCNQI分子は全て等価になるが、c軸から傾けると磁場とDCNQI分子面のなす角が分子毎に非等価になる。ESRの共鳴磁場はスピン軌道相互作用に起因する異方的なg-因子で決まるため、電子が鎖間の分子間をホップすることは、異なる共鳴磁場 H_i の間を飛び移ることに相当する。鎖間の共鳴磁場の差 $\delta = H_1 - H_2$ と比較してホップ頻度 D_{\perp} が小さい場合は分子毎に異なる共鳴位置に信号が現れるが、大きい場合には線幅の運動による先鋭化が起こり、 D_{\perp} と共に狭くなる ($\Delta H \approx \delta^2 / D_{\perp}$)。また、共鳴周波数に比例する鎖間の共鳴磁場の差 δ はW-bandではQ-bandの3倍、 δ^2 に比例する先鋭化した線幅はなんとQ-bandの9倍にもなる (図3)。

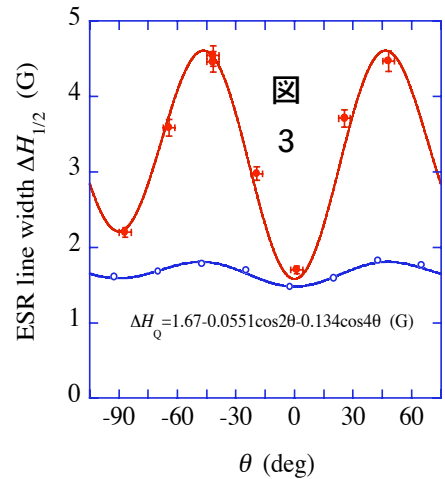


図4に、得られた鎖間のホッピング率 D_{\perp} を示すが、 T_{SP} 以上では250K程度の熱励起型の温度依存性、すなわち、ほぼ電気伝導度の依存性に漸近する。一見、ギャップの小さな半導体にも見えるが、バンドは半分しか埋まっていない点、その結果スピンの自由度が生きている点から本質的に異なる。図5は、電子相関が強いこの系で鎖間のホッピングが可能になるモデルを示す。DCNQI分子対は、 $4k_F$ -CDW gap 程度のエネルギーで熱乖離し、ギャップ内状態として、スピン1/2と分数電荷 $-e/2$ を持つスピンソリトンと、スピンレス、 $+e/2$ のホールソリトンの対に分離する。図5に示す様に、このホールソリトンの存在が、強い電子相関を避けた鎖間のホッピング、電気伝導の両方に重要な役割を果たすと考えられる。即ち、 D_{\perp} の温度依存性はホールソリトン数を反映する。電気伝導度は鎖内のソリトン運動が効くが、鎖間が律速になる可能性もある。また、熱伝導度のデータにも同様な振る舞いが期待される (物性研・鳥塚氏私信)。ここで得られた描像は、バンド幅の狭い1/4-filled系の電荷輸送に共通に適用できると考えられる。

