

分子性導体の異方的延伸下における抵抗測定

(理研) 山本貴・山本浩史・加藤礼三

(理研・先端技術開発支援センター) 山澤健二・高橋一郎

【序】圧力実験は物性研究の基本的な手段として多用されている。しかし、加圧では相転移を誘発できない物質群も存在し、このような物質に対して相転移を誘発するには、負圧は有効な手段であると期待できる。ところが、分子性導体等の脆弱な物質に負圧を印加する研究はほとんど存在しない。我々は、脆弱物質の負圧・低温条件における様々な物性測定手法の開発を目指している。その第一段階として、分子性導体に負圧を与えた状態で、電気抵抗測定を低温まで行う機構を開発した。本討論会では、負圧印加の仕組みを紹介し、幾つかの分子性導体に適用した結果を述べ、測定結果を分子間距離の増大の立場から議論する。

【手法】延伸するために、脆弱な物質を直接掴むと、試料が粉砕してしまう。これを回避するには、接着剤中に試料を封入する手法があり、一軸圧縮実験ではこの手法が採用されている。しかし、引っ張り実験を行うには、圧縮とは異なる、新たな機構を模索する必要性があった。まず、樹脂製のダンベル棒に試料と歪み計を封入する。図 1 に示した樹脂製のねじの回転により、ダンベル型試料棒を延伸させる。この機構の利点は、①サイズが小さくクライオスタットに挿入できる。②試料のみならず樹脂棒までも、直接掴まないため、延伸垂直方向に余分な力が印加されない。③力のかかる部位が総樹脂製なので、各 부품の熱収縮率の差による破断の心配が無い。④磁場印加が可能である。



図 1: ダンベル型試料棒を装着した樹脂製引張り治具

【負圧の評価】引っ張り試験機を直接クライオスタットに入れることはできない。従って、歪み計の抵抗値から負圧を評価することになる。まず、歪み計を封入した試料棒を引っ張り試験機に装着し、室温における応力・歪み・歪み計の抵抗の関係を求める。歪み計の抵抗値の温度依存性は、延伸前と延伸後では単純に平行移動している。更に、使用した樹脂の

熱収縮率は既知である。従って、低温における試料棒の歪みの程度まで補正可能である。

【分子性導体への適用】ここでは、 $(d_8\text{-Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Cu}$ と $\beta''\text{-(ET)(TCNQ)}$ に対して負圧実験を行った結果について触れる。前者は擬三次元的伝導体であり、DCNQI 分子が一次的に積層する。Cu イオンを中心に DCNQI 分子の-CN 基が四面体配位を示す。常圧下・約 80K で金属-絶縁体転移が観測される。転移温度以下では、四面体構造の歪みのため $\text{Cu}^{2+} \cdot \text{Cu}^+ \cdot \text{Cu}^+$ の部分電荷状態が生じる。主たる伝導を担う DCNQI 鎖のほうも電荷の再配列を起こすため絶縁化が起こる。図2に積層軸に延伸した試料の電気抵抗の温度依存性を示す。常圧で見られた抵抗の急激な上昇は見られない。この現象は、DCNQI 分子間の距離が伸びたため、四面体構造の歪みを部分的に抑制していると考えれば説明できる。 $\beta''\text{-(ET)(TCNQ)}$ の常圧下における抵抗率の温度依存性は、概ね金属的挙動である。2種の有機分子は互いに独立な二次元シートを構成し、各々のシートは交互に積層している。室温では ET 分子は電荷不均化状態であり、約 150K 以下では均一電荷量を取り、低温まで金属的挙動を示す。ET 分子の重なり積分が最大値を示す方向に延伸して電気抵抗を測定した結果を図3に示す。絶縁体的な温度依存性を示す領域が観測された。この現象は、延伸方向に対応する ET 分子間の重なり積分が減少し、これに垂直方向の再近接クーロン斥力が相対的に増大したため、と解釈できる。他の物質に対しても測定を計画しており、結果が得られ次第発表する予定である。

図 2: $(d_8\text{-Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Cu}$ の電気抵抗の温度依存性

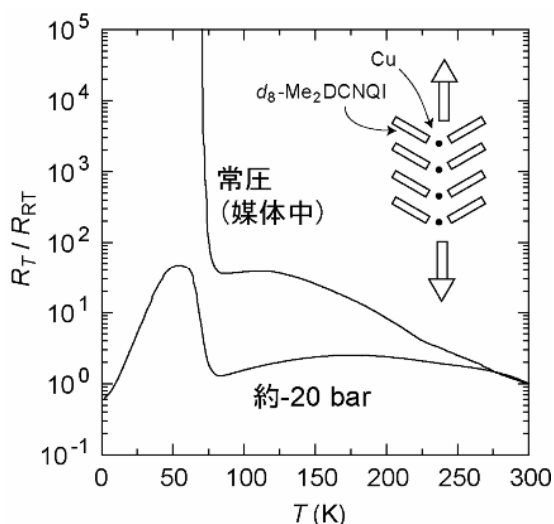


図 3: $\beta''\text{-(ET)(TCNQ)}$ の電気抵抗の温度依存性

