有機超伝導体研究の現状

山 地 邦 彦

電子技術総合研究所 つくば市梅園 1-1-4

(1992年5月1日受理)

Recent Progress in the Study of Organic Superconductors

Kunihiko YAMAJI

Electrotechnical Laboratory, 1-1-4 Umezono, Tsukuba 305

(Received May 1, 1992)

Synopsis:

Here reviewed are the recent progress and the present status of the organic superconductors. Aspects on synthesis, physical properties, electronic structure and mechanism of superconductivity are covered as for these several years. First we follow the development in the synthesis leading to the organic superconductor with $T_c=13$ K. Basic molecules constituting organic superconductors have been extensively explored with the result that all successful ones are derivatives or an isolobal analogue of TTF. The investigation of the electronic structure by means of magneto-transport experiments has been fruitful. It has been established that the tight-binding band based on the highest occupied molecular orbital in the Hueckel approximation provides appropriate descriptions for the organic superconductors. The controversy over the nature of superconductivity in organics, *i.e.*, s-type or d-type, is still hot. Concerning the mechanism of superconductivity the theory on the basis of the mediation by the intramolecular vibrations has recently received hopeful supports from isotope-effect experiments replacing the constituting atoms by their isotopes and from a point-contact tunneling experiment.

有機超伝導体の合成、物性、電子構造、超伝導機構などの面での最近の進展と研究の焦点を筆者の見方でご紹介する。ET超伝導体などの従来の有機超伝導体のここ数年の話題を中心にし、 C_{60} については除外するので、実験の話は比較的簡単に電子構造と超伝導機構に関わる話題に重点をおく。

1. 有機超伝導体合成の展開

1.1 有機超伝導体の発見

1980年にJeromeらにより $(TMTSF)_2PF_6$ が7 kbar程度の圧力下で $T_c=1.4$ Kの超伝導性を示すことが報告された²⁾。 PF_6 の代わりに ClO_4 , AsF_6 , SbF_6 , TaF_6 , ReO_4 , FSO_3 を含むものも超伝導になることがわかっている。 ClO_4 を含むものだけは常圧でも $T_c=1.4$ Kの

超伝導体であるが、他は圧力下でだけ超伝導を示す。 $(TMTSF)_2X$ の型の合成金属は最初の合成者にちなんでBechgaard塩と呼ばれている。これらの中で FSO_3 の塩が体積分率数%の反磁性で、 $T_c=3$ Kの超伝導を示すほかは、Bechgaard塩の T_c の最大値は1.4 Kである。 $TMTSF$ はFig. 1の右上に示され、平面的な分子構造をもつ。構成原子のvan der Waals半径で決まる剛体的な大きさをもつので、トランプのカードよりも煉瓦に例えたほうが適切なものである。 $(TMTSF)_2X$ の結晶中ではFig. 2の写真のように、煉瓦状の $TMTSF$ 分子が積み重なったコラムがあり、コラムが横に緊密に並んで煉瓦壁状のシートをなしている。さらにシートが重なって結晶をなすが、シートとシートの間の隙間に電子受容体Xが収容されている。受容体Xは2個の $TMTSF$ 当たり1個の電子を引き抜いて閉殻を

Fig. 1 Structures of TTF and the molecules constituting organic superconductors.

Fig. 2 Model of the (TMTSF)₂ClO₄ crystal. The TMTSF molecules are the bulky planar objects stacked into columns. The ClO₄ molecules are the tetrahedral objects attached at the end of TMTSF. Only two of them are shown.

なし、電気的にも磁気的にも不活性である。電子が抜けてできた TMTSF のシートの中のホールが電流担体であり、超伝導を担っている。ホールは TMTSF 分子中の面に垂直な方向に波動関数が広がった π 軌道である、最高被占分子軌道(Highest Occupied Molecular Orbital, HOMO)に入る。したがって伝導性はコラム方向が最もよく、それに垂直な面内方向がその次で、

面に垂直な方向では悪い。バンド構造も擬一次元的であり、フェルミ面はコラム方向に垂直な、弱く波打った平面である。このため 2 枚のフェルミ面がネストするため、PF₆ 塩を含めて多くの Bechgaard 塩において 12K 以下でスピン密度波(SDW)が形成され、絶縁体化する。圧力をかけるとフェルミ面のネスティングが悪化し、スピン密度波が消滅して超伝導が出現すると理解されている³⁾。

1.2 ET 超伝導体と $T_c=13\text{K}$ の達成

加圧しないでも低温で金属性が保たれ、超伝導が現れる物質が探索された。TMTSF は Fig. 1 の TTF の化学的な誘導体であるが、各種の TTF の誘導体の錯塩が合成され、研究されたが、なかでも斉藤軍治氏が手がけた BEDT-TTF (ET と略される) の塩として多くの超伝導体が発見された。(ET)₂X の型の最初の超伝導体としては X=ReO₄ のものが 1983 年に発見された⁴⁾。4 kbar 以上の圧力を要し、 $T_c=2\text{K}$ であった。次にヨウ素を電子受容体としていろいろになる多形が発見され、なかでも β -(ET)₂I₃ がその後の展開の基礎となった⁵⁾。この物質は常圧下では $T_c=1.4\text{K}$ であるが、約 1 kbar の圧力下で T_c が 7.4K に飛躍的に上昇する^{6,7)}。また 1 kbar ほど加圧して降温した後圧力を除くと常圧でも $T_c=8.1\text{K}$ の超伝導性を示す⁸⁾。結晶中で I₃ 分子は一価の陰イオンである。ET 分子も TMTSF と同様に煉瓦状の分子で β -(ET)₂I₃ 結晶は (TMTSF)₂X 結晶と基本的に同じ構造をしている。ただ ET 分子面がコラム軸と垂直ではなくかなり傾斜している点が異なるだけである。この結晶形を β 型という。 $T_c=1.4\text{K}$ の相では ET 分子のコラム方向に約 6 分子間隔の非整合な格子変調が起きており、 $T_c\sim 8\text{K}$ の高い T_c の相では格子変調がない。この相を β_H 相と呼ぶ。

I₃ を置換して IBr₂, AuI₂ のような棒状の電子受容体にすると、常圧でそれぞれ $T_c=2.8, 5.0\text{K}$ の超伝導体となる。これらの棒状分子は結晶中では ET 分子のコラムに平行に線状に配列し、ET コラムが低温で熱膨張を失って収縮する傾向に抗している。コラム中の平均の ET 分子間隔が、あるいは ET 分子当たりの有効体積が、大きいほど T_c が高いという相関関係が見出された⁹⁾。この関係は、1 kbar の圧力増加で T_c が 2K ほど下がるという強い T_c の圧力依存性と軌を一にしている。この経験則を踏まえてより長い電子受容体と ET 分子との組合せの錯体が合成されて研究された。その努力の中で 1988 年に常圧で $T_c=10.4\text{K}$ の超

Fig. 3 Crystal structure of a conducting plane in κ -(ET) $_2$ Cu(NCS) $_2$ packed with ET's viewed along the molecular long axis of ET.¹⁰⁾

伝導体である κ -(ET) $_2$ Cu(NCS) $_2$ が発見された¹⁰⁾。この物質中では Fig. 3 のように ET 分子は対をなし、約 90° だけ向きの異なる ET 分子対が交互に配列してチェス盤模様の伝導シートを構成している。分子の長軸はシートにはほぼ垂直である。この構造を κ 型という。Cu(NCS) $_2$ は Cu と隣の Cu(NCS) $_2$ の S とが結合してポリマーをなし、伝導面をなす ET シートの間にあり、ET 分子当たりの有効体積は確かに増大している。電子受容体が Cu(NCS) $_2$ に似たものが探索された結果、一昨年 0.3 kbar 以上の圧力で T_c =12.8 K という有機超伝導体では最高の T_c を示す κ -(ET) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]-Cl や常圧で T_c =11.6 K の κ -(ET) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Br が発見された¹¹⁾。

1.3 超伝導を担う有機分子の探索

低温まで金属性を保ち、超伝導を示す合成金属をつくるために各種の主要構成分子が探索されたが、現在までに発見されたものはすべて TTF に関係した分子である。DMET 分子は TMTSF 分子の半分と ET 分子の半分とが合体した非対称な分子である (Fig. 1 参照) が、 β と κ の両方の結晶形の超伝導体をつくる¹²⁾。 T_c が最大なのは κ -(DMET) $_2$ AuBr $_2$ で、常圧下で T_c =1.9 K である。(MDT-TTF) $_2$ AuI $_2$ も非対称な TTF 誘導体である MDT-TTF により構成された κ 型の超伝導体で常圧で T_c =4.5 K である¹³⁾。

M(dmit) $_2$ 分子は TTF 分子の中心部の炭素二重結合部分を isolobal な、つまり結合手の伸び方が同じ、

Ni で置き換えてできた分子である。TTF[M(dmit) $_2$] $_2$ は M=Ni, Pd について圧力下でそれぞれ最高 1.6 K, 6.5 K の超伝導性を示す¹⁴⁾。また (CH) $_4$ N[M(dmit) $_2$] $_2$ は 7 kbar 以上の圧力で T_c =5.0 K を示すと報告された¹⁵⁾。ただ TTF を含まない後者については追試が成功していないので、M(dmit) $_2$ でできたコラム上で超伝導が引き起こされているかどうかはさらにテストする必要がある。なお (PT) $_2$ I $_3$ が 35 kbar の圧力で T_c =30 K の超伝導体になったとする予備的な報告が国際会議のポスターとしてあったようであるが¹⁶⁾、書き物としては出版されていない (PT とは ET 分子の外周部のエチレン基がプロピレン基に置換された分子、Fig. 1 参照)。

ET 分子中の外周部の硫黄を酸素で置き換えた BE-DO-TTF (略して BO, Fig. 1 参照) の錯体で、常圧で T_c =1.06 K の β_m -(BO) $_3$ Cu $_2$ (NCS) $_3$ ¹⁷⁾ と 2.5 K の (BO) $_2$ -ReO $_4$ (H $_2$ O)¹⁸⁾ がある。前者には分子当たりホールが 1/3 個ある。ついでに挙げると、(ET) $_3$ Cl $_2$ 2H $_2$ O は ET 分子当たりホールが 2/3 個ある超伝導体である¹⁹⁾。16 kbar 以上の圧力で最高の T_c =2 K である。

極低温まで金属性が保たれる有機の伝導体は DCN-QI 導体²⁰⁾ や TTT 錯体等ほかにもいろいろ報告されているが、超伝導になるものはない。細かく数えると有機超伝導体は 40 種以上ある。それらの名前と特性については文献 1) を見られたい。

2. 電子構造をめぐって

2.1 (TMTSF) $_2$ X 塩

酸化物高温超伝導体と違って有機超伝導体にバンド理論を適用することが疑問視されたことはない。TM-TSF の最高被占軌道を基底とした強束縛 (tight-binding) バンドにホールが TMTSF 分子当たり 0.5 個入るが、このときの擬一次元的フェルミ面のネスティングとその劣化の結果としてスピン密度波の形成、圧力による消滅、磁場による誘起などがよく理解できた³⁾。

2.2 (ET) $_2$ X 塩

最近 (ET) $_2$ X 超伝導体の磁気輸送現象の研究が盛んに行われ、拡張 Hueckel 法で計算した最高被占分子軌道を基底とする Mori らの強束縛バンドの有効性が確立された²¹⁾。 κ -(ET) $_2$ Cu(NCS) $_2$ の超伝導性が発見されて間もなくこの物質で Shubnikov-de Haas (SdH) 振動が見出され (Fig. 4)、この振動周期が強束縛バンドで計算した Fig. 5 の閉じたフェルミ面の面積と精密に対応することがわかった²²⁾。

Fig. 4 Magnetoresistance of κ -(ET)₂Cu(NCS)₂.²²⁾ On the low-magnetic-field side superconductivity is seen and the SdH oscillations are seen on the high-field side

Fig. 5 Band structure and Fermi surface of κ -(ET)₂Cu(NCS)₂.²²⁾

β -(ET)₂IBr₂²³⁾ や圧力処理して $T_c=8\text{K}$ を示す β H-(ET)₂I₃²⁴⁾ でも SdH 振動が見出され、その振動周期がやはり強束縛バンドの与える閉じたフェルミ面の面積 (伝導面方向の Brillouin 域の面積の 50%) によく対応した。さらに IBr₂ 塩の場合、SdH 振動をならした磁気抵抗の平均値は伝導面への垂線と磁場との間の角度の関数として Fig. 6 のように振動することがわかった²³⁾。この新しい磁気振動現象は θ -(ET)₂I₃ でも独立に発見された²⁵⁾。この現象は、フェルミ面が伝導面内方向では閉じ、伝導面に垂直な方向では弱くウォーブしたものであることに起因する幾何学的な効果であることが解明された。半古典論によると、磁場をかけたとき、フェルミ面上の電子は磁場方向に垂直な面とフェルミ面との切口にそって周回する。この周回軌道の面積が量子化されるが、擬二次元的フェルミ面の場合、磁場が特定の角度のとき上記の切口が切口の位置

Fig. 6 Oscillatory magnetoresistance depending on the angle ϕ between the magnetic field direction and the normal to the conducting plane.²³⁾ Curves 1 and 2 are for the measuring current along and perpendicular to the plane, respectively.

に依存せずほぼ一定になるため²⁶⁾、伝導面に垂直な方向の電子の群速度がゼロになり、磁気抵抗が極大化することがわかった²⁷⁾。磁気抵抗がピークになる角度の分布を解析して β -(ET)₂IBr₂ についてフェルミ面が Fig. 7 のように構成された²⁸⁾。これはバンド・パラメータを熱起電力のデータでフィットした Mori らの強束縛バンドとよく一致している²¹⁾。

2.3 その他

(DMET)₂X と (MDT-TTF)₂X についての強束縛バンドが計算されているが、基底となる DMET および MDT-TTF の最高被占軌道は基本的に TTF のものと同型である。TTF のものは b_{1u} 対称性の π 軌道であり、Fig. 8 のように中心部の炭素と硫黄の p_z 軌道の係数が特に大きく、炭素間は結合的、炭素硫黄間は反結合的な符号関係になっている²⁹⁾。この特徴は TMTSF と ET を含めてすべての TTF 類縁体の最高被占軌道に共通のようである。なお $D[M(\text{dmit})_2]_2$ (D は電子供与体、 M は Ni または Pd) の $M(\text{dmit})_2$ は電子受容体で、これらの物質のフェルミ準位は $M(\text{dmit})_2$ の最

Fig. 7 Fermi surface of β -(ET) $_2$ I $_2$ Br $_2$ experimentally constructed by analyzing the data of oscillatory magnetoresistance depending on ϕ .²³⁾

Fig. 8 Highest occupied molecular orbital (HOMO) of TTF.²⁹⁾ The number in the circle is the coefficient for the atomic p_z orbitals of the HOMO. Dashed curves show nodal surfaces.

低空軌道と最高被占軌道からなる2種の強束縛バンドにかかっている³⁰⁾。

(TMTTF) $_2$ X 塩のバンドはその硫黄がセレンに置

換されている (TMTSF) $_2$ X 塩と比べてわずかに一次元性が強いにすぎないが、100~200K 以下で抵抗が増大し、Mott-Hubbard 絶縁体化することが知られている³¹⁾。なお、有機超伝体のバンド幅は広い TMTSF 塩で 1 eV, 狭い ET 塩で 0.4 eV であり、オンサイト・クーロン・エネルギー U が 0.4~1.0 eV と考えられている。

3. s 波か d 波か

有機超伝体の新奇性として d 波の超伝導である可能性が興味を呼んでいる。超伝導の性格は超伝導機構にも直接関係した重要な問題である。最初に d 波の可能性が示唆されたのは (TMTSF) $_2$ ClO $_4$ の NMR 緩和率 T_1^{-1} の実験結果からであった³²⁾。重い電子超伝導体で見られていたように緩和率が T_c 直下から低温側において非常に急速に減少することがわかった。通常の s 波超伝導体では T_c 直下で coherence peak と呼ばれる、BCS 理論に特有であるピークを見せた後に減少する。d 波だとピークが s 波の場合に見られる2倍から数%オーダーの小さいものになり、上記の実験結果が理解しやすいとされている³³⁾。

d 波の可能性は (ET) $_2$ Cu(NCS) $_2$ についても磁場侵入長 $\lambda(T)$ の低温における温度依存性から主張されている。ただし $\lambda(T)$ の温度依存性の測定結果は収束していない。交流帯磁率からの結果は $\lambda(T) - \lambda(0) \propto T^2$ と報告されているが³⁴⁾、植村らの μ SR からの結果は同じ量が T に比例する³⁵⁾。これらの結果にまったく反して μ SR の $\lambda(T)$ が低温で BCS 的で温度依存性ももっと弱いとするグループもある³⁶⁾。また共鳴マイクロ波キャビティ法で計った $\lambda(T)$ が BCS 的で二流体モデルの $\lambda(T) - \lambda(0) \propto T^4$ でフィットできると報告されている³⁷⁾。NMR 緩和率については T_c 近傍では温度依存性の異常が出ないとのことである³⁸⁾。

有機超伝体の T_c が微量の不純物や欠陥により急速に低下することが知られている。たとえば、放射線照射や (TMTSF) $_2$ X への TMTTF 混入、 β -(ET) $_2$ I $_3$ への IBr $_2$, I $_2$ Br などの混入である。低温の伝導度が約 6,000 S/cm 以上なければ超伝導が現れないという経験則が得られている³⁹⁾。この格子不整への敏感さが p 波だと理解できるとする向きもある⁴⁰⁾。

なお T_c における比熱の跳び、 $2\Delta_0/k_B T_c$ 、コヒーレンス長などはおおむね強結合超伝導体として理解できるようである。

4. 超伝導機構

4.1 Little のモデル

ポリエンのような電気伝導性の主鎖に側鎖として色素基をつけたシステムで、色素の励起子と伝導性骨格中の伝導電子との相互作用により高温超伝導を起こさせるというモデルを1964年にLittleが提案した⁴¹⁾。電子格子相互作用におけるフォノンの代わりに側鎖の色素の中の励起子が主鎖中の電子間の引力を媒介する。このとき超伝導転移温度 T_c は BCS の式で与えられるが、そのプリファクターをなす励起子のエネルギーが $10,000k_B$ のオーダーなので、伝導電子と励起子の相互作用を十分強くすることができるなら、 T_c を室温以上にすることが可能であるはずである。このアイデアが有機超伝導体研究に強い刺激となった。

しかし現在知られている有機超伝導体については、 $(ET)_2I_3$ において I_3^- イオンの中の励起子が隣合う ET 層内の電子の間で引力を媒介する可能性が指摘されているが⁴²⁾、励起子の存在を考える研究者は少数である。

4.2 分子内振動媒介説

すでに述べたように、現在知られている有機超伝導体は何らかの意味で TTF 分子と関連のある分子で構成されている。有機超伝導体の母体となる TMTSF, BEDT-TTF, DMET, MDT-TTF, BO 各分子はすべて TTF を化学的に修飾した TTF 誘導体である。もう一つの有機超伝導体を構成する分子である $M(dmit)_2$ ($M=Ni, Pd$) は、その中心にある金属原子 M が TTF 分子中の $C=C$ と *isolobal* 類似という意味で TTF 関連分子である。

TTF 誘導体からなる有機超伝導体の中で電流のキャリアであるホールは、各分子の最高被占軌道だけからできた強束縛バンドに入る。一方、分子の最高被占軌道のエネルギー単位は全対称的な分子内振動モードの規準座標の変化分に比例して上下し、有機超伝導体中ではこれから通常の超伝導体における変形ポテンシャル由来の電子格子相互作用に類似した、キャリアと全対称的な分子内振動との相互作用が生じる。特に TTF 誘導体においては最高被占軌道の波動関数の振幅が分子の中心部で特に大きいため、中心部の $C=C$ 伸縮モードと $C-S$ (または $C-Se$) 伸縮モードの結合定数が非常に大きく⁴³⁾、その結果この種の広義の電子格子相互作用が重要な働きをする可能性がある。この相互作用に媒介された電子間引力を BCS のモデルにならってモ

デル化し、さらに音響型フォノンの寄与と超伝導を抑制するオンサイト・クーロン・エネルギー U をも取り入れ、 T_c を連分数の形で与える表式が導かれている。この式により BEDT-TTF 超伝導体の T_c を評価すると、1~20K が妥当な物質パラメータに対して得られている⁴⁴⁾。この結果は上記の機構が電子間引力に大きな寄与をしている可能性を強く示唆している。このとき超伝導の型は s 波動的である。

最近 ET 超伝導体の場合にこの説を支持する重要なデータが現れ始めた。Jerome のグループは ET 分子の中心部の ^{12}C を ^{13}C に置換した場合、加圧降温した $\beta_H-(ET)_2I_3$ の T_c が 8.0K から 0.2K、したがって 2.5%、減少すると報告した⁴⁵⁾。これとは対照的に $\kappa-(ET)_2Cu[N(CN)_2]Br$ の場合 ET 分子の外周部の ^{13}C 置換によっては T_c が変化しないと報告された⁴⁶⁾。ET 分子の中心部の $C=C$ の伸縮運動が超伝導生成に重要であることが示されたわけである。

ET 分子の外周部のある水素を重水素化した場合 $\kappa-(ET)_2Cu(NCS)_2$ の T_c が 0.6K ほど上昇するという報告がある⁴⁷⁾。 $\kappa-(ET)_2Cu[N(CN)_2]Br$ の場合、重水素化により T_c が 0.9K⁴⁸⁾ あるいは 0.3K⁴⁶⁾ 低下することである。 $Cu(NCS)_2$ 塩の場合、重水素化による ET の分子内振動数の変化の結果として T_c が 0.6K 程度上昇することはないとする分子内振動媒介説に基づく検討結果もある⁴⁹⁾。

$\beta-(ET)_2I_3$ について点接触型のトンネル・スペクトルが Nowack らにより報告され、それには 20 meV 以下の格子振動しか現れず、分子内振動の寄与が見えないとされていた⁵⁰⁾。最近ハリコフ・キエフ・グループにより精密な測定を行い、伝導面に平行にトンネル電流を流した場合に、 $\alpha^2F(\omega)$ に比例するはずの d^2V/dI^2 に Fig. 9 のように明瞭な分子内振動の寄与をとらえた⁵¹⁾。この構造は M.J. Rice の機構による光吸収の分子内振動によるピークとよく対応し、分子内振動の電子格子相互作用への寄与が重要であることを証明した。Nowack らのデータはトンネル電流を伝導面に垂直に流すと見られる I_3 の寄与とすることである。

C_{60} 超伝導体においても分子内振動が電子間引力の主要部分を媒介している可能性が強い。

4.3 スピンゆらぎ媒介説

ほとんどすべての $(TMTSF)_2X$ といくつかの $(DM-ET)_2X$ において超伝導は圧力により SDW が消滅したときに現れ、さらに加圧するとともに T_c は減少していく。この事実からこの説が考えられている⁵²⁾。SDW

Fig. 9 Comparison between the point-contact tunneling spectrum and optical spectra.⁵¹⁾ Curve 1 is for the former showing d^2V/dI^2 vs. V . Curves 2 and 3 are optical spectra for reflection and absorption, respectively.

は電子間のクーロン斥力とフェルミ面のネスティングにより生じるものなので、有機超伝導体についてはこの機構は擬一次元的なバンドをもつものにだけ考えられている。

この機構の場合ギャップ・パラメータ $\Delta(k)$ はフェルミ面上の波数ベクトルの値により符号を変え、 d 波の対称性をもち、 d 波超伝導が起これと考えられている。 d 波超伝導を仮定すると、NMRの緩和率の T_1 直下における coherence peak が小さくなるので³³⁾、(TMTSF)₂ClO₄ で coherence peak が見えないという実験結果が説明しやすい。しかし Hubbard モデルに対する数値計算はこの種の超伝導に否定的な結論を出しており⁵³⁾、この機構の超伝導がありうるのかどうか明確ではない。バンド構造の次元性は超伝導を含めて物性には基本的な大きな影響を及ぼし、有機超伝導体が低次元系特有の物理を研究するための舞台となる。しかしバンドが擬一、二次元の有機超伝導体が両方と

もあり、特に (DMET)₂X 塩の場合には T_c の同程度の擬一および二次元的超伝導体が知られている¹²⁾。状況としては次元性は超伝導発現には直接には関係しないようである。

5. おわりに

筆者の関心の強い有機超伝導体の超伝導発現機構にかかわる事柄を中心にして最近の進展を紹介した。しかしまた有機超伝導体が新奇な物理現象の舞台としても面白い研究が盛んに行われている。(ET)₂X 塩では振幅の大きい SdH 効果や de Haas-van Alphen 効果が見られ、磁気振動現象の格好の試験場としてそれ自体として世界各地で研究されていること、(TMTSF)₂X では磁場誘起スピン密度波現象の標準理論が精密にテストされたり、スピン密度波の並進運動による非線形電気伝導度の研究が進展したりしていることを付記する。

参考文献

- 1) 石黒武彦：物理学論文選集 I (石黒武彦編，日本物理学会刊行，1992) の中の解説；応用物理 60 (1991) 972
- 2) D. Jerome: J. Phys. Lett. (Paris) 41 (1980) L 95
- 3) T. Ishiguro and K. Yamaji: *Organic Superconductors*, Springer, Heidelberg (1990) Chap. 4
- 4) S.S. Parkin, et al.: Phys. Rev. Lett. 50(1983) 270
- 5) E.B. Yagubskii, et al.: JETP Lett. 39 (1984) 12
- 6) V.N. Laukhin, et al.: JETP Lett. 41 (1985) 68
- 7) K. Murata, et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 54(1985) 1236
- 8) F. Creuzet, et al.: Europhys. Lett. 1 (1986) 461
- 9) J.M. Williams, et al.: Physica B136 (1986) 371
- 10) H. Urayama, et al.: Chem. Lett. (1988) 55
- 11) J. Williams, et al.: Inorg. Chem. 29 (1990) 3272; A.M. Kini, et al.: Inorg. Chem. 29 (1990) 2555
- 12) 菊地耕一ら：固体物理 23 (1988) 49; K. Kikuchi, et al.: Solid State Commun. 66 (1988) 405
- 13) G.C. Papavassiliou, et al.: Synth. Metals 27 (1988) B379
- 14) P. Cassoux, et al.: Springer Proc. Phys. 51

- (1990) 22 (Iye et al. ed., Springer)
- 15) K. Kajita, et al.: Solid State Commun. 65 (1992) 361
 - 16) Lyubovskii: Third Europ. Conf. Low-Dim. Conductors and Superconductors, Zagreb(1989)
 - 17) M.A. Beno, et al.: Inorg. Chem. 29 (1990) 1599
 - 18) S. Kahlich, et al.: Solid State Commun. 80 (1991) 191
 - 19) T. Mori, et al.: Solid State Commun. 64 (1987) 335
 - 20) 小林速男: パリティ 4-12 (1989) 62
 - 21) T. Mori, et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 57 (1988) 3674
 - 22) K. Oshima, et al.: Phys. Rev. 38 (1988) 938
 - 23) M.V. Kartsovnik, et al.: JETP Lett. 48(1988) 541
 - 24) W. Kang, et al.: Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 2559
 - 25) K. Kajita, et al.: Solid State Commun. 70 (1989) 1189; 梶田晃示: 固体物理 25 (1990) 547
 - 26) K. Yamaji: J. Phys. Soc. Jpn. 58 (1989) 1520
 - 27) R. Yagi, et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 59 (1990) 3069
 - 28) M.V. Kartsovnik, et al.: J. Phys. I France 2 (1991) 89
 - 29) A.J. Berlinsky, et al.: Solid State Commun. 15 (1974) 795
 - 30) E. Canadell, et al.: Solid State Commun. 75 (1990) 633
 - 31) P. Delhaes, et al.: Mol. Cryst. Liq. Cryst. 50 (1979) 43
 - 32) M. Takigawa, et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 56 (1987) 873
 - 33) Y. Hasegawa, et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 56 (1987) 877
 - 34) K. Kanoda, et al.: Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 1271
 - 35) L.P. Le, et al.: Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 1923
 - 36) D.R. Harshman, et al.: Phys. Rev. Lett. 64 (1990) 1293; private communication
 - 37) K. Holczer, et al.: Solid State Commun. 79 (1990) 499
 - 38) 高橋利宏: パリティ 6-6 (1991) 44
 - 39) M. Tokumoto, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. 26 (1987) 1977
 - 40) I.F. Schegolev, et al.: Physica C185 (1991) 360
 - 41) W.A. Little: Phys. Rev. 134 (1964) A 1416
 - 42) S. Nakajima: J. Phys. Soc. Jpn. 56 (1987) 871
 - 43) N.O. Lipari, et al.: Int. J. Quant. Chem. Symp. 11 (1977) 583
 - 44) K. Yamaji: Solid State Commun. 61 (1987) 413; T. Ishiguro and K. Yamaji: *Organic Superconductors*, Springer, Heidelberg (1990) 187
 - 45) P. Auban-Senzier, et al.: Synth. Metals (in press)
 - 46) H. Ito, et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 60 (1991) 3230
 - 47) K. Oshima, et al.: Synth. Metals 27 (1988) A 473
 - 48) M. Tokumoto, et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 60 (1991) 1426
 - 49) M. Tokumoto, et al.: Mol. Cryst. Liq. Cryst. 181 (1990) 295
 - 50) A. Nowack, et al.: Z. Phys. B68 (1987) 41
 - 51) G.V. Kamapchuk, et al.: to be published in Fyz. Niz. Temp.; Synth. Metals
 - 52) たとえば, D.J. Scalapino, et al.: Phys. Rev. B35 (1987) 6694
 - 53) D.J. Scalapino: *High Temp. Supercond.*, ed. Bedell et al., Addison-Wesley (1990) 314