

平成21年 6月 5日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2006～2008

課題番号：18740221

研究課題名 (和文) 有機導体及び遷移金属酸化物における電子格子複合現象の理論的研究

研究課題名 (英文) Theoretical study on electron-lattice coupled phenomena in organic conductors and transition metal oxides

研究代表者

妹尾 仁嗣 (SEO HITOSHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究職

研究者番号：30415054

研究成果の概要：

本研究では、有機導体および遷移金属酸化物で発見された新規な相転移現象に対する理論的解明を行った。これらの物質系の性質を決定つけるのは、従来より認識されていた価電子帯の電子の間の強いクーロン力と、本研究で明らかにした原子核の自由度との結合—電子格子相互作用—との絡み合いであり、本研究によって電子の持つ電荷やスピンの自由度とともに格子自由度が秩序化する現象のメカニズムを明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,400,000	0	1,400,000
2007年度	1,100,000	0	1,100,000
2008年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	240,000	3,540,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：有機導体・分子性固体、遷移金属酸化物、物性理論、強相関電子系

## 1. 研究開始当初の背景

有機導体や遷移金属酸化物などの強相関電子系と呼ばれる物質系では、電子の運動エネルギーに比較して強い電子間のクーロン相互作用、すなわち電子相関の効果が本質的に重要である。その結果多様な電荷秩序やスピン秩序など興味ある電子相関由来の相転移

現象が実験的に発見され、その理解は多くの理論研究の貢献により進んできていた。しかし現実の物質系における相転移を理解する上で、強い電子相関に加え電子格子相互作用が絡み合った現象が数多く発見されつつあり、その理論的研究はほとんどなかった。

このような研究は、様々な境界領域への基

礎付けとしての意義も高い。例えば応用の観点から、相転移自身が様々な様相を持つこれらの物質は外場によって巨大応答を生み出すため将来のデバイス応用が期待されている。実際様々な有機導体においてレーザー光照射によって絶縁体から金属へと高速に変化する光誘起相転移現象（光スイッチング）が見付かっており、そこではやはり上記の電子相関と電子格子相互作用の重要性が実験的に示されている。このような巨大応答の理論的研究は黎明期にあり、今後本研究が重要な足がかりとなろう。また有機導体に対する研究は分子が集合体を作るときにどのような物性を示すかを明らかにするという観点から、将来生体物質の電子状態研究へとつながっている。

## 2. 研究の目的

低次元有機導体における電子相関に加えて電子格子相互作用が絡み合った現象の理論的解明を目指す。また、そこでの概念をさらに遷移金属酸化物に適用する。上記の強相関電子系の理論的研究は従来「周期的に並んだ原子および分子は動かずにポテンシャルを形成する」という近似が取られ、そのポテンシャル下での電子の振舞いを議論されてきた。しかし現実の物質では場合によってその近似は破綻し、興味ある電子相関由来の相転移現象が定量的のみならず定性的にも変更を受け、それに起因する新現象も多々実験的に観測されている。そこで重要な次のステップとして、電子間相互作用に加え、格子構造の変化と電子状態との結合すなわち電子格子相互作用を「まじめに」結晶構造を加味し取り込む問題設定及び理論研究が必須である。

有機導体と遷移金属酸化物における相転移現象の理論的解明を目指す本研究は、異なる

物質群を横断的に研究するという著しい特色を持ち、それぞれの分野の発展のために重要かつ稀有な研究であると言える。本研究課題が掲げる電子相関と電子格子相互作用の絡んだ問題は理論的扱いが難しいため断片的な研究しかなされてこなかったが、本研究のように「まじめに」両者を扱うという新しい視点・手法を適用した研究は理論的に新しいパラダイムを開くばかりでなく、実際の物質との比較そして物性の予測まで行える段階へと近づくので実験研究にも非常に大きなインパクトが予想される。

## 3. 研究の方法

擬1次元有機導体に対しては平均場近似計算、厳密対角化法、転送行列法、量子モンテカルロ法などの数値的なシミュレーションと、ボゾン化法、繰り込み群法など場の理論を用いた解析的な手法を組み合わせることで統一的理解を目指した。遷移金属酸化物においては第一原理計算による電子バンド構造に対して数値フィッティングによる有効モデルを構築した上で、平均場近似や厳密対角化法による数値計算を行った。

これらの研究は実験に直接関わっているため、古希う内外の多くの実験研究者と密接に連携していった。また同様の興味を持つ他の理論研究者、その中でも主に若手研究者との協力を通じて成果を広く、効果的に上げていった。実際、数値的アプローチに関しては求幸年氏(東大工)、加藤岳生氏(東大物性研)、また解析的アプローチに関しては吉岡英生氏(奈良女大理)、土射津昌久氏(名大理)、というそれぞれトップレベルの若手理論研究者との交流を行い、共同研究によって成果を出した。

## 4. 研究成果

(1) 擬 1 次元分子性導体の有限温度物性と相図の数値的研究を行った。その結果、TMTTF<sub>2</sub>X や DCNQI<sub>2</sub>X などの擬 1 次元系における電子相関および電子格子相互作用が絡んだ相転移現象を、有限温度における数値計算によって再現することにより重要なパラメータを同定し、臨界温度領域での熱力学的物理量の振舞を計算することによって相転移の性質を明らかにした。また、低温領域で有効となる数値的手法であるモンテカルロシミュレーションを用いた計算も行うことにより、実際の物質での観測される物理量の温度依存性や実験相図との 1 対 1 の対応が付けられる段階まで到達した。また、これらの数値的手法と相補的に用いている、ボゾン化法および繰り込み群の手法による解析的アプローチによって電荷秩序転移やダイマーモット絶縁体の有限温度物性の物理的解釈を与えることに成功した。このように強相関効果が重要な有限温度の物性を実験系と直接比較できる理論的研究は、これらの物質系では初めての例となり、分野の発展に大きくインパクトを与えた。

(2) 擬 1 次元電子状態を持つ遷移金属酸化物  $\beta$ -A<sub>1/3</sub>V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> に対して、第一原理計算を元に有効モデルを構築しその解析を行った。その結果この系が結合ラダー系であるという以前の他グループの提案を支持する結果を得た。またさらに、このモデルに対して電子相関効果を平均場近似で取り入れた結果、特異な電荷・スピン秩序状態が安定化することがわかり、A=Na の系の実験結果を説明した。これらの系の理論的研究はこれまでほとんどなく、このように定量的に信頼できるレベルの研究は実験研究者に大いに役立ったのみならず、今後の理論研究の指針ともなるであろう。

(3) 単一成分分子性金属 M(tmdt)<sub>2</sub> (M=Ni, Au) の電子状態を理解するため、第一原理計算および分子軌道計算を元に、有効モデルを構築しその解析を行った。このモデルは分子内の“仮想”分子軌道、すなわち両 tmdt 配位子中の TTF 骨格上の軌道と、金属原子および周りの S 原子の反結合軌道、を基底とした 3 バンドハバードモデルである。これら 2 種の軌道は、Ni 系では金属化自体に、Au 系では磁性発現において、重要な寄与を果たすことがわかり、この新物質系が「多バンド  $\pi$ -d 系」であることを示した。本研究成果は、平成 20 年度より始った科研費新学術領域研究「分子自由度が拓く新物質科学」の一つのテーマとなって今後の分野の発展の方向性を提唱する結果となった。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

① H. Seo and Y. Motome : Spiral charge frustration in molecular conductor DI-DCNQI<sub>2</sub>Ag, Physical Review Letters, 査読有, 102 巻 (2009), art. no. 196403 (4pages).

② Y. Otsuka, H. Seo, Y. Motome, and T. Kato : Finite-Temperature Phase Diagram of Quasi-One-Dimensional Molecular Conductors: Quantum Monte Carlo Study, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 77 巻 (2008), art. no. 113705 (4 pages).

③ H. Seo, S. Ishibashi, Y. Okano, H. Kobayashi, A. Kobayashi, H. Fukuyama, and K. Terakura : Single-Component Molecular

Metals as Multi-Band  $\pi$ -d Systems, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 77 巻 (2008), art. no. 023714 (4 pages).

④ H. Seo, Y. Motome, and T. Kato : Finite Temperature Phase Transitions in Quasi-One-Dimensional Molecular Conductors, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 76 巻 (2007), art. no. 013707 (4 pages).

⑤ H. Seo, K. Tsutsui, M. Ogata, and J. Merino : Charge Fluctuations in Geometrically Frustrated Charge Ordered System, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 75 巻 (2006), art. no. 114707 (8 pages).

[学会発表] (計 13 件)

① H. Seo and Y. Motome (invited talk): Charge frustration and novel electron lattice phase transition in molecular conductor  $\text{DCNQI}_2\text{Ag}$ , 5th International Workshop on Electronic Crystals (ECRYS-2008), 2008 年 8 月 26 日, Cargese France.

② H. Seo, H. Yoshioka, and Y. Otsuka (invited talk): Incommensurate Mott insulator in molecular conductors with nonintegral stoichiometry, International Symposium on Molecular Conductors 2008 (ISMC2008), 2008 年 7 月 24 日, IMS Okazaki Japan.

③ H. Seo, S. Ishibashi, Y. Okano, H. Kobayashi, A. Kobayashi, H. Fukuyama, and K. Terakura (contributed talk): Theoretical Study of Single-Component Molecular Metals, 7th International Symposium on Organic Metals, Superconductors, and Ferromagnets

(ISCOM2007), 2007 年 9 月 29 日, Peniscola Spain.

④ 妹尾仁嗣 : 分子性導体における拡張ハバードモデルによる理論研究およびその展望(若手奨励賞受賞記念講演), 日本物理学会第 62 回年次大会, 2007 年 9 月 21 日, 北海道大学.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

妹尾 仁嗣 (SEO HITOSHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究職

研究者番号 : 30415054

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし