

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：12401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K14401

研究課題名（和文）有機導体における電荷異常物性の研究 核四重極共鳴によるアプローチ

研究課題名（英文）Study on charge anomaly in Organic conductor using nuclear quadrupole resonance

研究代表者

小林 拓矢（KOBAYASHI, Takuya）

埼玉大学・研究機構・助教

研究者番号：50827186

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：有機導体は、低次元性と電子相関に由来した、電荷とスピンの性質が複雑に絡み合った多様な物性を示す。有機導体の物性を調べる方法として、これまで核スピン $I=1/2$ の炭素・水素核を利用した核磁気共鳴（NMR）法が用いられてきたが、この場合核スピンは磁場のみと相互作用する。本研究では、磁場に加え電場勾配と相互作用を持つ $I > 1/2$ の核種に着目し、有機導体における核四重極共鳴法を開拓した。その結果、伝導層における電荷秩序パターンの検証や特異な電荷ゆらぎの観測に加え、核スピンの絶縁層に位置することを利用した伝導層間の相互作用の大きさの評価など、これまでのNMR法では得られない有機導体の物性を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

有機導体は、現代の科学技術で応用されているような金属や半導体とは異なるメカニズムで金属-絶縁体転移を示したり、超伝導や量子スピン液体など今後さらなる応用が期待される量子物性を示すことから物性物理分野において注目されている。本研究は、有機導体の示す物性のメカニズムを解明するとともに、これまでの有機導体の研究では用いらなかった核四重極共鳴という手法を開拓するものである。この手法により、これまで実験的に明らかにされてこなかった有機導体の電子物性のメカニズムや、本研究を通して見つけた新規物性を解明することができた。

研究成果の概要（英文）：Organic conductors exhibit a variety of physical properties due to their low dimensionality and electronic correlations, where charge and spin properties are entangled. Nuclear magnetic resonance (NMR) techniques using carbon and hydrogen nuclei with nuclear spins  $I=1/2$  have been used to study the physical properties of organic conductors, but in this case, the nuclear spins interact only with a magnetic field. In this study, I focused on the nuclei with  $I > 1/2$ , which interact with an electric field gradient in addition to the magnetic field, and pioneered the nuclear quadrupole resonance method in organic conductors. As the results, I have verified the charge ordering pattern in the conducting layers, observed anomalous charge fluctuations, and evaluated the magnitude of the interaction between the conducting layers by using the nuclear spins located in the insulating layers, the information of which cannot be obtained by conventional NMR measurements in organic conductors.

研究分野：物性物理

キーワード：有機伝導体 核四重極共鳴 電荷秩序 強相関電子系 反強磁性 超伝導 核磁気共鳴

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

有機導体は、二次元的なバンド構造や電子相関、三角格子性が相まって様々な興味深い物性を示す。特に近年では電荷秩序を示す周辺物質において電荷ガラス、ディラック電子といった新奇物性が観測され、また研究代表者らの最近の研究により、量子スピン液体候補物質においても電荷が特異な振る舞いを示すことを明らかにした [1]。これらの物性においては、電荷が主役、もしくは電荷とスピンの絡み合った特異な振る舞いを示しており、そのメカニズムを解明するためには電荷敏感なプローブが求められる。

電子物性のメカニズムに迫る手法の一つとして、低エネルギーの磁気励起を観測できる核磁気共鳴(NMR)法は、有機導体におけるエキゾチック物性の解明に大きく貢献してきたが、従来有機導体の研究で用いられてきた<sup>13</sup>C-, <sup>1</sup>H-NMR法はスピンの性質のみを観測するプローブであり、電荷の情報は間接的にしか得られないという問題点があった。そこで核四重極共鳴(NQR)法を着想した。核スピン  $I$  が  $1/2$  よりも大きい時に四重極モーメント  $Q$  が有限となるため、 $Q$  と核位置での電場勾配が相互作用することで、ゼロ磁場においても共鳴が観測される手法である。NQR法が電場勾配の変化を検出できることに着目し、この手法が有機導体において電荷の性質を直接検出できる新たな手法になることを立案した。

NQR法をBEDT-TTF [ビス(エチレンジチオ)テトラチアフルバレン]系有機導体に初めて適用することで、電荷揺らぎを含めた電荷の性質を解明することを目指していく。ただしNQR可能な核種の多くは絶縁層に存在しており、層間距離が長い有機導体においては、どのように電子状態が観測されるかは自明ではなく、また例もない。まず代表的な電荷秩序物質でNQR測定により何が観測されるかを明らかにする。さらに、対象とする核スピンの伝導層ではなく絶縁層に位置しているという点を逆に利用した物性研究も展開していく。

### 2. 研究の目的

有機導体を示すスピンと電荷の自由度が絡んだ電子物性のメカニズム解明や、擬二次元電子系における面間相互作用の評価を目的として、絶縁層に位置する核スピンを利用したNQR法の方法論を開拓する。絶縁層には  $I > 1/2$  の核スピンがあることが多く、それが周囲の電場勾配と相互作用するため、電荷の性質を敏感に検出できたり、同位体の違いを利用すれば電荷とスピンのどちらが物性に支配的であるかを明らかにできたりといった、有機導体の物性研究における新しいプローブになると期待される。

### 3. 研究の方法

電解法によって得られた有機導体の多結晶試料を用いてNMR/NQR測定を行った。ここで、NMRかNQRかは、核スピン間のエネルギー分裂が主に磁場によるものか電場勾配によるものかで区別する。観測核位置における電場勾配が大きい場合はゼロ磁場でNQR測定を行い、電場勾配が小さい場合は四重極相互作用を摂動とみなし、磁場印加によってNMR測定を行った。電場勾配の大きさは原子核の周りの原子配置によって大きく異なり、原子核が対称性の良い位置にいる場合は小さく、逆の場合は大きくなる。例えば、 $\lambda$ -(BEDSe-TTF)<sub>2</sub>GaCl<sub>4</sub>塩 [BEDSe-TTF: ビス(エチレンジセレン)テトラチアフルバレン]におけるGa核は正四面体に配置したClイオンの中心に位置するため、ほぼ磁気回転比の位置に共鳴線が観測された [2]。I<sub>3</sub>塩におけるI核は隣接したヨウ素によって電場勾配が大きく、ゼロ磁場でNQR測定を行った [3]。ただしNQR測定の場合、共鳴線が観測される周波数は、広い周波数帯域にわたって探索した。

### 4. 研究成果

#### (1) NQR法による電荷秩序転移の観測

##### 研究の背景と主な成果

$\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>は有機導体の中でも最も研究されている物質の一つである。この物質は常圧で電荷秩序転移( $T_{co} \sim 135$  K)を示し、圧力を印加するとディラック電子状態が実現することから注目されている。電荷秩序転移のメカニズムに関して、BEDT-TTF分子間のオフサイトクーロン相互作用やI<sub>3</sub>分子とBEDT-TTFの末端水素原子との間の水素結合などの重要性が議論されている。そこで、BEDT-TTF分子層の電荷パターンの変化や水素結合に由来した構造変化に敏感と考えられるNQR法に着目し、 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の<sup>127</sup>I-NQR測定を行った [3]。

図1に様々な温度におけるI<sub>3</sub>分子中の末端ヨウ素原子の<sup>127</sup>I-NQRスペクトルを示した。139 K以上では2本のピークが観測された。 $T_{co}$ 以上では、結晶学的に非等価なI<sub>3</sub>分子が2つあり、中央のヨウ素位置に反転中心があることから2つのサイトがあり、実験とコンシステントである。一方 $T_{co}$ 以下においては、それぞれのサイトが非等価になることで4本のピークが期待されるが、実際には3本のピークが観測された。観測されたスペクトルの強度比を考慮すると、低周波数側から1:2:1となっており、中央のピークに2サイトが重なっていると解釈される。

それぞれのピークがどのヨウ素サイトに対応するかは、共鳴周波数の温度依存性および第一原理計算から次のようにアサインすることができた: $T_{co}$ 以上での高周波側のピークはDアニオ

ンに由来し、低温で外側の二本に大きく分裂する( $D_H$  と  $D_L$ )。一方、 $T_{CO}$  以上での E アニオンに由来した低周波側のピークはほとんど変化・分裂しない(実際はわずかに分裂しており、 $E_H$  と  $E_L$  としている)。

D サイトのみが分裂し、E サイトが分裂しない原因を調べるために、点電荷モデルによって末端ヨウ素位置における電場勾配を BEDT-TTF 分子層における電荷分離比の関数として計算した。BEDT-TTF 分子層における電荷分離のみを考慮した場合、D、E サイト両方のみが分裂し実験結果を説明できないのに対し、それに加えて  $I_3$  分子の電荷も考慮すると、E サイトが分裂しない実験結果を説明できることを明らかにした。これは、BEDT-TTF 分子層の電荷秩序と  $I_3$  分子層の構造変化が密接に関与していることを示している。

### インパクト

代表的な電荷秩序を示す有機導体に NQR 法を適用し、第一原理計算と点電荷モデル計算を用いることで、実験結果と微視的な構造との対応、ドナー分子層の電荷秩序転移とアニオン層の構造変化との関係を明らかにすることができた。このような方法論は、他にも存在する電荷秩序転移の研究へ発展させることで、ドナー分子層とアニオン分子層間の相関やドナー分子層における電荷配置を決める新しいプローブになることが期待される。

### 今後の展望

電荷秩序転移を示す有機導体は数多くあり、本研究手法はそれらに適用可能であると考えられる。例えば現在、 $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ Hg(SCN) $_2$ Cl や  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ IBr $_2$  への適用を試みている。

## (2) $\lambda$ 型有機導体における面間相互作用の評価と磁気/電荷ゆらぎの選択的検出

### 研究の背景と主な成果

BEDT-TTF からなる有機導体や銅酸化物超伝導などは擬二次元的な結晶構造を有する。このような系において、面間相互作用の重要性が指摘されている。例えば、 $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ X における温度低下に伴う面間のホッピングや交換相互作用の発達、部分的アニオン置換に伴う面間相互作用の符号の違いなどが議論されている。しかしそれを実験的に調べる方法は限られていた。

本研究では、 $\lambda$  型有機導体において、絶縁層に位置する Ga 核スピンを利用した  $^{69,71}\text{Ga}$ -NMR 測定と、ドナー分子の電子状態をオンサイトで観測する  $^{13}\text{C}$ -NMR 測定を行い、ドナー分子置換した際の面間相互作用の大きさを評価することに成功した [2,4-6]。

それに加え、 $^{69}\text{Ga}$  と  $^{71}\text{Ga}$  の同位体の性質を利用することで、磁気緩和と四極子緩和のどちらが支配的であるかを明らかにした。具体的には、高温においてはエチレン基のダイナミクスによって誘起された Ga 核スピンの電場勾配揺らぎが観測され(核スピン-格子緩和率  $1/T_1 \propto Q^2$ )、低温においてはエチレン基の凍結に伴いアニオン層とドナー層間の相互作用が発達し、 $\pi$  電子系の磁気揺らぎが観測された( $1/T_1 \propto \gamma^2$  ( $\gamma$ : 磁気回転比))。図 2 に  $^{69}\text{Ga}$ -と  $^{71}\text{Ga}$ -NMR の  $1/T_1$  の比の温度依存性を示した。高温で  $Q^2$  に比例した  $1/T_1$  の比が 150 K 以下で  $\gamma^2$  に漸近していることがわかる。このように  $I > 1/2$  の核種を用いて、選択的に磁気揺らぎと電場勾配揺らぎを選択的に検出できることが明らかとなった。

### インパクト

同型の  $\lambda$  型  $\text{FeCl}_4$  塩においては、ドナー分子の

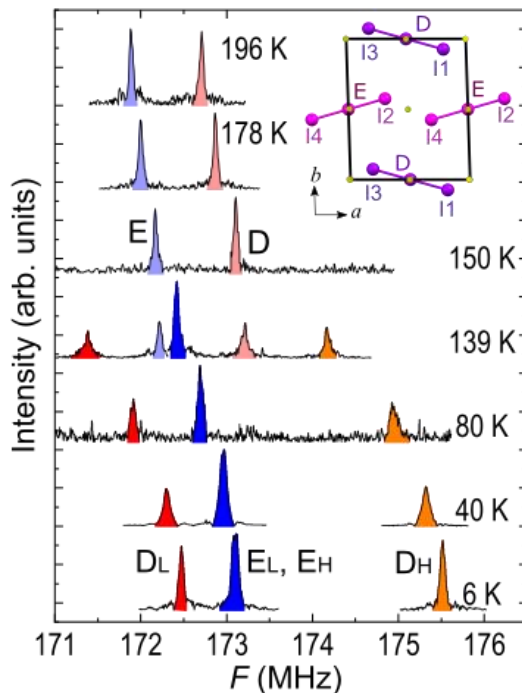


図 1.  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ における末端ヨウ素の  $^{127}\text{I}$ -NQR スペクトル [3]。インセットは  $I_3$  層の結晶構造を示し、結晶学的に独立な D と E の 2 種類の  $I_3$  分子が存在する。黄色い点は反転中心を表し、電荷秩序転移によって消失する。

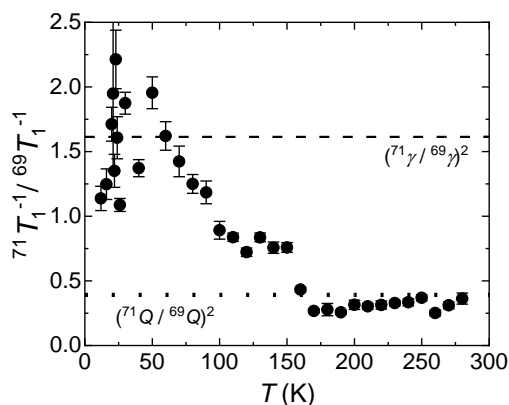


図 2.  $^{69,71}\text{Ga}$ -NMR 測定によって得られた  $1/T_1$  の同位体比( $^{71}T_1^{-1}/^{69}T_1^{-1}$ )の温度依存性 [2]。点線と破線はそれぞれ四極子モーメントと磁気回転比の同位体比であり、高温では四極子緩和、低温では磁気緩和によるものであることが分かる。

$\pi$  スピンと絶縁層の  $3d$  スピンと間の相互作用( $\pi$ - $d$  相互作用)によって、特異な磁気転移や磁場誘起超伝導など興味深い物性が生じる。これらの物性を議論する上で、 $\pi$ - $d$  相互作用の大きさが重要であるが、それを実験的に評価することは難しい。 $\lambda$  型  $\text{GaCl}_4$  における  $\text{Ga}$  核スピンと  $\pi$  スピンの間の相互作用は超微細相互作用であり、 $\lambda$  型  $\text{FeCl}_4$  における  $\pi$ - $d$  相互作用は交換相互作用によるものである。メカニズムは異なるものの、相互作用のパスは同じと考えられる。そのため  $\lambda$ - $D_2\text{GaCl}_4$  における層間相互作用の評価から、ドナー分子置換に対する  $\pi$ - $d$  相互作用の変化を議論することができる。

また、アニオン層にある核スピンでも  $\pi$  電子系の磁気揺らぎを検出することができ、また電荷とスピンの揺らぎのどちらが支配的であるかを解明できることが明らかとなった。低エネルギーに  $\pi$  電子系に由来した電荷ゆらぎが観測される可能性のある有機導体へ適用することで、その物性解明に大きく役立つ。

### 今後の展望

BEDT-TTF 系有機導体の多くは擬二次元構造を有しており、それに由来した興味深い物性が様々観測されている。本研究により面間相互作用を議論できる新しい手法であることを示すことができたため、他の物質への展開が期待される。また  $\pi$ - $d$  電子系は  $\lambda$  型塩の他にも知られており、それらの系の研究に適用可能である。

### (3) $\lambda$ -(BEDSe-TTF) $_2\text{GaCl}_4$ における圧力誘起反強磁性—量子スピン液体—反強磁性秩序と Ga-NMR 測定からみた磁気構造の変化

#### 研究の背景と主な成果

$\lambda$ - $D_2\text{GaCl}_4$  ( $D = \text{BEDT-TTF}, \text{BEDT-STF}, \text{BEDT-TSF}$ ) はドナー分子置換によって反強磁性から超伝導まで変化する系であり、化学置換による統一相図が議論されている。 $D = \text{BEDSe-TTF}$  塩については、結晶構造が報告されているものの、その基底状態は調べられていなかった。本研究により、 $D = \text{BEDSe-TTF}$  塩も統一相図で理解できることを構造解析と拡張ヒュッケル法による重なり積分の計算から議論し、22 K で反強磁性転移を示すことを  $^{13}\text{C-NMR}$  および  $\mu\text{SR}$  測定により明らかにした [4]。統一相図において反強磁性相がどのように超伝導相につながるのか、また低温まで磁気秩序しないことが知られている  $D = \text{BEDT-STF}$  塩との関係を調べるために、 $D = \text{BEDSe-TTF}$  塩に対して圧力下  $^{13}\text{C-NMR}$  測定を行ったところ、常圧での反強磁性が 1 GPa で 6 K 以下まで抑制され、さらに 2 GPa 以上の圧力で再び反強磁性相が発現することを発見した(図 3)。この振る舞いはこれまで知られている統一相図とは大きくことなるものであり、当初予想していた結果を大きく上回る興味深い結果が得られた。

$^{13}\text{C-NMR}$  スペクトルは常圧と 2.5 GPa は定性的に同じであり、単純な up-down のスピン構造を持つことを示す結果が得られた。この結果はそれぞれの圧力下においてオンサイトで観測した際の磁気状態は同じであることを示している。 $^{69,71}\text{Ga-NMR}$  測定も同様の圧力で行ったところ、常圧と 2.5 GPa では多結晶試料に対するスペクトルの線幅が 2 倍程度異なることが分かった。 $^{69,71}\text{Ga-NMR}$  の線幅は  $\pi$  スピン系からの双極子相互作用によって決まっているとすると、長周期の磁気構造が異なることを示す結果が得られた。このことから、1 GPa においては、異なる磁気構造のフラストレーションによって量子スピン液体状態が実現していることが示唆される [7]。これらの結果は現在投稿準備中である。

### インパクト

量子スピン液体状態が注目されている中で、一つの物質で反強磁性と量子スピン液体状態が見つかる例は非常に例が少なく、また提案するメカニズムによる量子スピン液体状態は非常に珍しくインパクトのある成果である。また、オンサイトの  $^{13}\text{C}$  サイトで観測した場合には磁気構造を区別できなかったが、絶縁層に位置する核種を用いたことで磁気構造を区別できたという点でも絶縁層に位置する核種を利用し NMR/NQR 法の有用性が示されたと考えられる。

### 今後の展望

上記の描像をさらに検証するために、圧力下における構造解析を行い、それに基づいて、スピン間の交換相互作用がどのようなネットワークを作っているかを議論していく。また、 $D = \text{BEDSe-TTF}$  と  $\text{BEDT-TSF}$  塩の混晶を作製し、常圧でも量子スピン液体状態が実現できないかを試みていく。

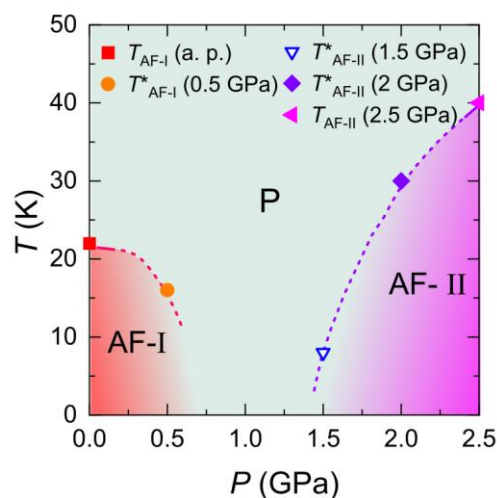


図 3.  $\lambda$ -(BEDSe-TTF) $_2\text{GaCl}_4$  の温度—圧力相図 [7].

#### (4)様々な有機導体における NQR 測定の展開

##### 研究の背景と主な成果

現在、他にも多くの有機導体に対する NQR 測定を行っている。例えば、古くから知られる  $\beta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> や電荷秩序・電荷ガラスを示す  $\theta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>RbZn(SCN)<sub>4</sub>, 超伝導や反強磁性秩序を示す  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]X (X = Cl, Br) に対して絶縁層に位置する核種を利用した NMR/NQR 測定を行っている。この手法を用いることで、これまでの実験手法では得られないような情報、例えば  $\beta$  型塩における格子系のダイナミクスに由来した四極子ゆらぎと超伝導との関係や、 $\theta$  型塩におけるこれまでに見つかっていない温度領域での電荷ゆらぎ、オフサイトであるからこそ検証可能な  $\kappa$  型塩の磁気構造などが明らかになってきている。

##### インパクト

有機超伝導体  $\beta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> においては、High- $T_c$  相と Low- $T_c$  相があることが議論されており、その違いとして、格子系の電子系に対する影響が議論されている。このような観点に対して、アニオン NMR/NQR は強力なプローブである。また  $\theta$  型塩におけるこれまで議論されていない温度領域での電荷ゆらぎの検出は、電荷ガラス状態のメカニズムの議論に有益であり、これまでの理解に再検討が必要になるような重要な成果が得られつつある。

##### 今後の展望

以上のように、 $I > 1/2$  の核スピンを利用した NMR/NQR 測定によって、これまでとは異なる観点からの情報を得ることに成功し、多くの成果が得られた。この手法をさらに様々な有機導体、上記で提案したものに加え、例えば  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Hg(SCN)<sub>2</sub>X (X = Cl, Br) など電荷とスピンの複雑に絡み合った系などに展開し、有機導体が示す新規物性を解明していきたい。

##### 参考文献

- [1] T. Kobayashi *et al.*, *Charge Disproportionation in the Spin-Liquid Candidate  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> at 6 K Revealed by <sup>63</sup>Cu NQR Measurements*, Phys. Rev. Res. **2**, 042023(R) (2020).
- [2] N. Yasumura, T. Kobayashi *et al.*, *Dynamics of Ethylene Groups and Hyperfine Interactions between Donor and Anion Molecules in  $\lambda$ -Type Organic Conductors Studied by <sup>69,71</sup>Ga-NMR spectroscopy*, Phys. Rev. B **106**, 245103 (2022).
- [3] T. Kobayashi *et al.*, *Absence of Hydrogen Bonding in Charge-Ordered Organic Conductor  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> Probed by <sup>127</sup>I-NQR*, arXiv:2208.05602 (2022).
- [4] A. Ito, T. Kobayashi *et al.*, *Antiferromagnetic Ordering of Organic Mott Insulator  $\lambda$ -(BEDSe-TTF)<sub>2</sub>GaCl<sub>4</sub>*, Phys. Rev. B **106**, 045114 (2022).
- [5] T. Kobayashi and A. Kawamoto, *Evidence of Antiferromagnetic Fluctuation in the Unconventional Superconductor  $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>GaCl<sub>4</sub> by <sup>13</sup>C NMR*, Phys. Rev. B **96**, 125115 (2017).
- [6] T. Kobayashi *et al.*, *Selective Observation of Spin and Charge Dynamics in an Organic Superconductor  $\lambda$ -(BETS)<sub>2</sub>GaCl<sub>4</sub> Using <sup>69,71</sup>Ga NMR Measurements*, Phys. Rev. B **102**, 235131 (2020).
- [7] N. Yasumura, and T. Kobayashi *et al.*, *Pressure-induced anomalous electronic phases of  $\lambda$ -(BEDSe-TTF)<sub>2</sub>GaCl<sub>4</sub> probed by <sup>69,71</sup>Ga NMR*, The 14th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2022) (2022).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Yasumura N., Kobayashi T., Taniguchi H., Fukuoka S., Kawamoto A.	4. 巻 106
2. 論文標題 Dynamics of ethylene groups and hyperfine interactions between donor and anion molecules in type organic conductors studied by 69,71Ga-NMR spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.245103	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ito A., Kobayashi T., Sari D. P., Watanabe I., Saito Y., Kawamoto A., Tsunakawa H., Satoh K., Taniguchi H.	4. 巻 106
2. 論文標題 Antiferromagnetic ordering of organic Mott insulator -(BEDSe-TTF)2GaCl4	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 45114
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.045114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Kobayashi T., Suzuta A., Kawamoto A.	4. 巻 105
2. 論文標題 Relationship between electronic inhomogeneity and bandwidth in the organic conductor -(BEDT-TTF)2Cu[N(CN)2]I studied by 13C NMR spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 195148
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.195148	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Saito Rikumaru, Iida Youhei, Kobayashi Takuya, Taniguchi Hiromi, Matsunaga Noriaki, Fukuoka Shuhei, Kawamoto Atsushi	4. 巻 105
2. 論文標題 Magnetic state in the quasi-two-dimensional organic conductor -(BEST)2FeCl4 and the path of -d interaction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.165115	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Iakutkina Olga, Uykur Ece, Kobayashi Takuya, Kawamoto Atsushi, Dressel Martin, Saito Yohei	4. 巻 104
2. 論文標題 Charge imbalance in $-(\text{BETS})_2\text{GaCl}_4$ and their interplay with superconductivity	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 045108-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.045108	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Imajo S., Kobayashi T., Kawamoto A., Kindo K., Nakazawa Y.	4. 巻 103
2. 論文標題 Thermodynamic evidence for the formation of a Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov phase in the organic superconductor $-(\text{BETS})_2\text{GaCl}_4$	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L220501-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.L220501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kohsuke Oinuma, Naoki Okano, Hitoshi Tsunakawa, Shinji Michimura, Takuya Kobayashi, Hiromi Taniguchi, Kazuhiko Satoh, Julia Angel, Isao Watanabe, Yasuyuki Ishii, Hiroyuki Okamoto, Tetsuaki Itou	4. 巻 102
2. 論文標題 Spin structure at zero magnetic field and field-induced spin reorientation transitions in a layered organic canted antiferromagnet bordering a superconducting phase	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 35102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.035102	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Kobayashi, H. Taniguchi, A. Ohnuma, A. Kawamoto	4. 巻 102
2. 論文標題 Unconventional superconductivity in $-(\text{BETS})_2\text{GaCl}_4$ probed by $^{13}\text{C}$ NMR	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 121106(R)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.121106	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Kobayashi, Q.-P. Ding, H. Taniguchi, K. Satoh, A. Kawamoto, Y. Furukawa	4. 巻 2
2. 論文標題 Charge disproportionation in the spin-liquid candidate $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ at 6 K revealed by 63Cu NQR measurements	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 042023(R)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.2.042023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Kobayashi, K. Tsuji, A. Ohnuma, A. Kawamoto	4. 巻 102
2. 論文標題 Selective observation of spin and charge dynamics in an organic superconductor $-(\text{BETS})_2\text{GaCl}_4$ using 69,71Ga NMR measurements	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235131
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.235131	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Lena Nadine Majer, Bjorn Miksch, Olga Iakutkina, Takuya Kobayashi, Atsushi Kawamoto, Martin Dressel	4. 巻 102
2. 論文標題 Interacting electron spins in $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{I}$ investigated by ESR spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214430
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.214430	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Sawada, A. Kawamoto, T. Kobayashi	4. 巻 103
2. 論文標題 Enhancement of electron correlations and spin density wave fluctuations of the organic superconductor $-(\text{BETS})_2\text{GaCl}_4$ under pressure proved by $^{13}\text{C}$ NMR	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 45112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.045112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -



〔学会発表〕 計25件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 佐藤慧一, 小林拓矢, 谷口弘三, 岡本博之, 水野薫
2. 発表標題 冷却法によるTTF-TCNQの大型単結晶育成と単色X線トポグラフによる結晶評価
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 築田春希, 小林拓矢, 今城周作, 綱川仁志, 安村乃絵瑠, 谷口弘三
2. 発表標題 磁気トルク法による有機反強磁性体 型ET塩の磁気構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 只野涼, 石川瑠偉, 小林拓矢, 谷口弘三, 石井康之, 渡邊功雄
2. 発表標題 ゼロ磁場 $\mu$ SRによる $-(d8-BEDT-TTF)_2Cu[N(CN)_2]Br$ の反強磁性相の冷却速度依存性の評価
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安村乃絵瑠, 小林拓矢, 谷口弘三, 福岡脩平, 河本充司
2. 発表標題 69,71Ga-NMR測定による $-(BEDSe-TTF)_2GaCl_4$ の特異な圧力誘起電子相の観測
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊藤篤史, 加藤優樹, 小林拓矢, 谷口弘三, 圓谷貴夫, 藤山茂樹
2. 発表標題 有機超伝導体 -(BEDT-TTF)2I3の127I-NQR法による研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林拓矢, 築田春希, 安村乃絵瑠, 谷口弘三, 今城周作, 松尾晶, 金道浩一
2. 発表標題 有機反強磁性体 -(BEDSe-TTF)2GaCl4の磁気トルク法による磁気構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小梁川響子, 小林拓矢, 櫻井健人, 谷口弘三
2. 発表標題 モット絶縁体 -(BEST)2GaCl4への化学置換によるキャリアドーピング
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤優樹, 小林拓矢, 谷口弘三, 藤山茂樹, 開康一
2. 発表標題 127I-NQR 法による分子性導体 -(BEDT-TTF)2I3の電荷秩序の観測
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 洪在賢, 小林拓矢, 道村真司, 谷口弘三
2. 発表標題 新規電荷移動錯体(BEDT-STF)2ICl2の合成と基礎物性
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋啓太, 小澤宏彬, 小林拓矢, 谷口弘三
2. 発表標題 -(d81-xh8x-ET)2Cu[N(CN)2]Brの超伝導相の交流磁化率による分析
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山崎大誠, 小林拓矢, 加藤優樹, 網川仁志, 佐藤一彦, 谷口弘三, 河本充司
2. 発表標題 63Cu-NQRによる 型ET塩のゼロ磁場磁気構造の微視的検証
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋啓太, 小澤宏彬, 小林拓矢, 谷口弘三
2. 発表標題 重水素化した -(ET)2Cu[N(CN)2]Br 塩における 相分離した超伝導相の交流磁化率による分析
3. 学会等名 2021年度物性研究所短期研究会 分子性固体研究の拡がり: 新物質と新現象
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 櫻井健人, 小林拓矢, 道村真司, 小坂昌史, 佐藤一彦, 谷口弘三
2. 発表標題 新規有機導体 $-(\text{BEST})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ の圧力下電気抵抗測定
3. 学会等名 2021年度物性研究所短期研究会 分子性固体研究の拡がり: 新物質と新現象
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤 優樹, 小林 拓矢, 谷口 弘三, 藤山 茂樹, 開 康一
2. 発表標題 1271-NQR 法を用いた有機導体 $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{I}_3$ の電荷秩序の観測
3. 学会等名 2021年度物性研究所短期研究会 分子性固体研究の拡がり: 新物質と新現象
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山崎大誠, 小林拓矢, 加藤優樹, 網川仁志, 佐藤一彦, 谷口弘三, 河本充司
2. 発表標題 有機反強磁性体 型BEDT-TTF塩のゼロ磁場磁気構造の $63\text{Cu-NQR}$ による研究
3. 学会等名 2021年度物性研究所短期研究会 分子性固体研究の拡がり: 新物質と新現象
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 菅原佳哉, 天川智之, 小林拓矢, 谷口弘三, 佐藤一彦, 今城周作, 郷地順, 上床美也
2. 発表標題 パームキュービックアンピルセルを用いた $-(\text{BEST})_2\text{CuCl}_2$ の 超高压下電気抵抗測定による 10 K 級超伝導の発見
3. 学会等名 2021年度物性研究所短期研究会 分子性固体研究の拡がり: 新物質と新現象 2021年度物性研究所短期研究会 分子性固体研究の拡がり: 新物質と新現象
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 洪在賢, 小林拓矢, 谷口弘三
2. 発表標題 新規電荷移動錯体 $\text{[BEDT-STF]}_2\text{ICl}_2$ の構造と伝導性
3. 学会等名 2021年度物性研究所短期研究会 分子性固体研究の拡がり: 新物質と新現象
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林拓矢, 伊藤有咲, Dita Puspita Sari, 渡邊功雄, 齋藤洋平, 河本充司, 佐藤一彦, 谷口弘三
2. 発表標題 微視的測定手法による有機電荷移動錯体 $\text{-(BEST)}_2\text{GaCl}_4$ の反強磁性秩序の観測
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 河本充司, 福岡脩平, 小川巧真, 伊藤悠馬, 伊藤有咲, 小林拓矢, 谷口弘三
2. 発表標題 $\text{-(BEST)}_2\text{GaCl}_4$ 塩の $^{69,71}\text{Ga-NMR}$
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岡太耀, 河本充司, 澤田賢士, 石川貴子, 小林拓矢
2. 発表標題 $\text{-(BETS)}_2\text{GaBrxC14-x(x=0.9)}$ の $^{13}\text{C-NMR}$
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 生沼浩介, 綱川仁志, 鈴木航平, 道村真司, 小林拓矢, 谷口弘三, 佐藤一彦, 石井康之, 岡本博之, 伊藤哲明
2. 発表標題 混晶試料による 型ET塩の反強磁性相の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 菅原佳哉, 天川智之, 小林拓矢, 谷口弘三, 佐藤一彦, 郷地順, 上床美也
2. 発表標題 新規有機電荷移動錯体(BEST)2CuCl2における10 K級圧力誘起超伝導の発見
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 櫻井健人, 小林拓矢, 谷口弘三, 佐藤一彦, 道村真司, 小坂昌史
2. 発表標題 新規電荷移動錯体 -(BEST)2Cu2(CN)3の基礎物性と圧力下電気抵抗
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takuya Kobayashi, Yoshiya Sugawara, Tomoyuki Tenkawa, Hiromi Taniguchi, Shusaku Imajo, Jun Gochi, and Yoshiya Uwatoko
2. 発表標題 Pressure-induced superconductivity with transition temperature exceeding 10 K in new organic conductor -(BEST)2CuCl2
3. 学会等名 The 14th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Noeru Yasumura, Takuya Kobayashi, Hiromi Taniguchi, Shuhei Fukuoka, Atsushi Kawamoto
2. 発表標題 Pressure-induced anomalous electronic phases of $\text{-(BEDSe-TTF)}_2\text{GaCl}_4$ probed by 69,71Ga NMR
3. 学会等名 The 14th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

埼玉大学 理学部 物理学科 谷口研究室 <a href="http://www.phy.saitama-u.ac.jp/~taniguchi/index.html">http://www.phy.saitama-u.ac.jp/~taniguchi/index.html</a> 埼玉大学研究者総覧 <a href="http://s-read.saitama-u.ac.jp/researchers/pages/researcher/LCnWlyfhK">http://s-read.saitama-u.ac.jp/researchers/pages/researcher/LCnWlyfhK</a>
--

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------