

自己評価報告書

平成 23 年 4 月 27 日現在

機関番号：12601

研究種目：新学術領域研究

研究期間：2008～2012

課題番号：20110002

研究課題名（和文）分子配列自由度を利用した新規電子相の開拓

研究課題名（英文）Exploration of novel electronic phases using molecular-arrangement degrees of freedom

研究代表者

鹿野 田一司 (KANODA KAZUSHI)

東京大学大学院・工学系研究科・教授

研究者番号：20194946

研究分野：物性物理学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強相関電子系、磁性、低温物性、半導体物性、分子性固体

1. 研究計画の概要

本新学術領域研究は、物性科学を担う様々な物質群の中で分子性物質が持つ特徴である分子の自由度を利用することで物質科学の新しい展開を図るものであるが、本計画研究では、分子の配列自由度に着目する。非球形である分子は対称性が悪いために、多様な配列パターンで凝集する。さらに、凝集が分子間の弱いファンデアワールス相互作用によるために、格子は圧力によって容易に圧縮・変形し得る。この特徴が構造の多様性を生み、物性の包括的な研究を可能にする。本計画研究では、分子配列が物性を支配する重要なパラメータであるとの認識のもと、分子配列自由度を化学圧力及び物理圧力を駆使して制御することにより、スピン秩序、電荷秩序、ゼロギャップ伝導、電荷移動誘電性に関わる新しい電子相の開拓を目指す。

2. 研究の進捗状況

(1)モット転移の臨界性の解明

モット転移は強相関系の物理の根幹を成す金属-絶縁体転移であるが、その臨界現象が如何なるものかは 21 世紀初頭まで実験的に未解決の問題であった。本研究では、擬 2 次元伝導体 κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl のモット転移臨界終点近傍で電気伝導度と核磁気共鳴緩和率の精密測定を行うことでこの問題に挑んだ結果、電荷自由度とスピン自由度の双方で非従来型の臨界性が明らかになった。

(2)スピン液体に隣接する超伝導の発現機構

長年にわたってその存否が問題となっていたスピン液体が三角格子モット絶縁体 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ に見出されたが、本研究でその温度-圧力相図を正確に決定した結果、スピン

液体がモット転移に隣接して起こること、および、金属相側で発現する超伝導が熱励起にギャップの無いものであることが示された。

(3)有機伝導物質におけるディラック電子系

バルクなディラック電子系である有機物質 α -(ET)₂I₃ において、コーン型の分散が k 空間で大きく傾斜し、単位胞内の非等価な分子軌道が k -空間でそれぞれ固有の異方性を持つことがバンド計算で示され、分子選択核磁気共鳴実験によって実証された。また、コーンの傾斜に起因して動的誘電関数や光学伝導率に特異な構造が現れ、強磁場下で長距離クーロン相互作用の対称性が破れる新たな相転移が起こることが理論的に示された。

(4)多軌道自由度による新電子相の発現

π 伝導電子と電気双極子が相互作用する複合系(TMTSF)₂FSO₃ の電子状態に分極性四面体分子の幾何学的秩序と双極子の秩序に伴うと考えられる異常が見出された。また、分子内で軌道の縮退性が強い TTM-TTP 分子の第一原理計算とそれに基づく有効モデルの平均場近似による計算の結果、分子内電荷秩序が起こり得ることを示し、実験で観測されている分子内で反転対称性が破れた絶縁体を説明することに成功した。

3. 現在までの達成度

①当初の計画以上に進展している。

(理由)

下記の課題において計画を上回る進展があった。

(1)擬 2 次元有機伝導物質におけるモット転移の臨界性が非従来型であることは、電子輸送特性の実験で明らかになっていたが、それをスピン自由度からも実証できたことは驚

きであった。スピン自由度でモット臨界性を見た初めての研究例となった。

(2)炭素一層のグラフェンを舞台とするディラック電子がバルクな有機伝導体にも存在することを微視的な実験で検証するとの当初の研究計画は順調に進み、グラフェンには無い k 空間で大きく傾いたコーン分散と単位胞内のスピン密度の不均化という理論的な予言を分子選択核磁気共鳴によって実証するところまで到達した。また、当該物質と同じ結晶の対称性を持つSe系類似物質が「化学的圧力を印可された状態」でディラック電子系となっていることを示唆する実験結果や、コーンの傾斜効果により動的密度応答が異方的になることは予想できたがそこにカस्प構造が出現するとの理論結果を得たことは予想外であった。

(3)分子内多軌道効果の研究に関して、(TTM-TTP)I₃塩の分子内電荷秩序において分子を左右2つに分割できることに加えて隣接分子間の軌道交換相互作用が本質的な役割を果たすことを見いだしたことは予想外の結果であり、電子物性探索に新しい観点を与えると期待される。

4. 今後の研究の推進方策

引き続き、東京大学と学習院大学の実験グループと名古屋大学の理論グループが互いに緊密な協働体制で下記の課題に取り組む。

(1)モット転移とフラストレーション

三角格子構造を持つドーパされたモット絶縁体の加圧研究を行い、強相関電子系でこれまで個別に議論されてきたスピン液体、相分離、非フェルミ液体、超伝導、および量子相転移について統一描象を探る。

(2)有機伝導物質におけるディラック電子系

有機伝導物質におけるディラック電子系の新たな制御法として、 α -(ET)₂I₃およびその類似塩を「一軸圧縮」し結晶構造/バンド構造を制御し、局所電子状態を調べ、予言されている巨大軌道反磁性を探索する。さらに、ディラックコーンの対による擬スピンXY強磁性の性質を理論と実験で探るとともに、強磁場下でのランダウ量子化に伴う新規な電子相・相転移を理論と実験の双方から探る。

(3)多軌道自由度による新電子相の探索

これまで行ってきた π 伝導電子-電気双極子結合系や分子内多軌道結合系に加え、単一分子種伝導体[M(tmtd)₂]における π -d相互作用による新規電子相の探索にも注力する。

(4)新規誘電物性の開拓

中性-イオン性転移系物質において、誘電性を伴う新しい伝導機構や磁性を探索する。

5. 代表的な研究成果

(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 32 件)

- ① K.Kanoda and R.Kato, "Mott Physics in Organic Conductors with Triangular Lattices", *Ann.Rev.Condens Mat_Phys_2_(2011)_167-188*.
- ② F.L.Pratt, P.J.Baker, S.J.Blundell, T.Lancaster, S.Ohira-Kawamura, C.Baines, Y.Shimizu, K.Kanoda, I. Watanabe and G. Saito, "Uncovering the magnetic and non-magnetic phases of a quantum spin liquid", *Nature* 471 (2011) 612-616
- ③ Y.Takano, K.Hiraki, Y.Takada, T.Takahashi, H.M.Yamamoto, "Local spin susceptibility characteristic of the Zero-Gap State of α -(BEDT-TTF)₂I₃ under pressure", *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 104704 (7pages).
- ④ F.Kagawa, K.Miyagawa, K.Kanoda, "Magnetic Mott criticality in a kappa-type organic salt probed by NMR", *Nature Physics*, **5** (2009) 880-884.
- ⑤ A.Kobayashi, Y.Suzumura, H.Fukuyama, and M.O.Goerbig, "Tilted-Cone-induced easy-plane pseudo-spin ferromagnet and Kosterlitz-Thouless transition in massless Dirac fermions", *J. Phys. Soc. Jpn.*, **78** (2009) 114711(7 pages). [JPSJ Papers of Editors' Choice]

[学会発表] (計 121 件)

- ① K. Kanoda, "Electron correlation and spin frustration in quasi-triangular lattice organics", International Conference on Conducting Materials: Sousse, Nov. 3-7, 2010 (Plenary)
- ② K. Kanoda, "Mott physics revealed by triangular-lattice organics", International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals (ICSM2010), Kyoto, July 4-9, 2010 (Keynote)
- ③ K. Kanoda, "Spin liquid in triangular-lattice organic Mott insulator --when pressurized and doped--", International Conference on Magnetism (ICM2009), Karlsruhe, Germany, July 26-31, 2009, (Invited)
- ④ A. Kobayashi, Y. Suzumura, H. Fukuyama, and M. O. Goerbig, "Electron Correlation Effects on Massless Dirac Fermions under Strong Magnetic Field in Organic Conductor α -(BEDT-TTF)₂I₃", The 8th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Ferromagnets (ISCOM2009), Niseko, Japan, Sep. 12-17, 2009 (Invited)
- ⑤ K. Hiraki, M. Kitahara, T. Takahashi, H. Mayaffre, M. Horvatic, C. Berthier, T. Yamaguchi, S. Uji, H. Tanaka, B. Zhou, A. Kobayashi and H. Kobayashi, "Se NMR studies on l-type BETS based superconductors", The 8th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Ferromagnets (ISCOM2009), Niseko, Japan, Sep. 12-17, 2009.