

令和元年5月30日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05430

研究課題名(和文) 強相関電子系における乱れによる電子フィリング変化と π -d電子間相互作用の解明研究課題名(英文) Elucidation of electron-band filling and π -d electron interaction due to randomness in strongly correlated π -electron systems

研究代表者

井口 敏 (Iguchi, Satoshi)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：50431789

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：近年我々のグループで発見した a'' -(BEDT-TTF) $_{2}Rb_{1.2}Co(SCN)_4$ はRbの組成ずれのためBEDT-TTF分子が0.4価(π 電子バンドのフィリング0.8)となる強相関電子系では珍しい系であり、フィリング制御型の金属-絶縁体転移の研究に適している。我々は、この系および類似の系で引き起こされる金属-絶縁体転移の起源やそのフィリングの効果、さらには π -d電子間相互作用等について調べた。その結果、絶縁体相は分子価数が0.4を平均とする電荷秩序であること、圧力下では室温でも金属から半導体へ相転移することなどを発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

多くの2:1塩および関連物質の中では比較的例の少ないフィリング制御型の金属-絶縁体転移について、その分子価数の変化とともにフィリングが3/4からずれていても電荷秩序相転移が生じることを見いだした。これによって、有機分子性導体における電子相関による金属-絶縁体転移の理解が一層深まったと考えられる。また、近年注目されているBEDT-TTF塩の薄膜系におけるキャリアドーピング効果などにも有益な情報となるだろう。

研究成果の概要(英文)： a'' -(BEDT-TTF) $_{2}RbCo(SCN)_4$ is a newly found strongly correlated π -electron system with the BEDT-TTF molecule of +0.4 valence or 0.8 π -electron band-filling due to the non stoichiometric Rb. This compound is suitable for the investigation for the filling-control type metal-insulator transition. We have investigated the metal-insulator transition and the π -d electron correlation of this system and other similar ones. We found that the insulator phase in the compound is a charge ordered state with 0.4 average valence of BEDT-TTF molecules, and phase transition by pressure from metal to semiconductor even at room temperature.

研究分野：物性物理

キーワード：フィリング制御 電荷秩序 金属-絶縁体転移 π -d電子間相互作用

1. 研究開始当初の背景

有機分子性導体は分子間の結合の強さや相互作用の大きさに起因する乱れやそれに伴う揺らぎが発生しやすい。本研究の開始当初、電子間相互作用や秩序相間の揺らぎ、分子やダイマー内の結合や電荷中心の揺らぎ、X線照射によるアニオン層の分子結合の乱れ導入など、有機分子系に特徴的な様々な乱れやそれに伴う揺らぎに関連した物性が注目されていた。それらの乱れの影響が物性にどのように影響するのか、本質的に働くのか、これらを理解することで電子相関の本質的な理解、高分子や生体系などさらに複雑な系への理解も繋がっていくものと考えられる。

2. 研究の目的

本研究では、強相関電子系の1つである有機分子性導体において、試料内に存在する乱れによって発生する特徴的な物性を明らかにすることを目的とした。特に注目したのは、 θ 型の BEDT-TTF 塩 θ -(BEDT-TTF) $2M^+ (SCN)^4$ ($M=Rb, Cs$; $M^+=Zn, Co$) や最近、我々のグループで発見した α'' -(BEDT-TTF) $2Rb1.2Co(SCN)^4$ (α'' -RbCo と略す) などである。この θ 型 2:1 塩は低温で金属から電荷秩序絶縁体へ転移することが知られており、その転移の様子が冷却速度や X 線照射の効果によって大きく変わることが知られている。これらの知見を生かして、 α'' -RbCo の物性を明らかにするとともに新たな物性現象等の開拓を行うことを目的とした。

また、 α'' -RbCo は磁性イオン Co^{2+} を持っており、 π -d 電子間相互作用が磁性、伝導性や誘電性に与える影響を調査する上でも興味深い系である。この系は、電子フィリング、d 電子相互作用、電気磁気相関効果が互いに関連し、有機分子性強相関電子系の統一的な理解への弱点を克服することが出来るとともに、新規物性現象を探索する場として非常に有望である。

3. 研究の方法

研究に用いたのは全て単結晶試料で、低温、磁場や圧力下において、抵抗率、磁化率、誘電率、磁気輸送特性、熱電効果、赤外分光などの測定を行った。圧力下での抵抗率の測定系や交流法によるホール効果や磁気抵抗効果の測定系は新たに立ち上げた。

4. 研究成果

本研究において重要な意味をもつ α'' -RbCo について述べる。この物質は同じ構造を持つ α'' -K $_{1.4}Co$ 、 α'' -CsCo と同様に、低温で金属-絶縁体転移を引き起こすが、その原因ははっきりしていなかった。 α'' -RbCo の面内方向の赤外分光測定によって、金属-絶縁体転移とともにスペクトルが大きく変化することが分かったが、それだけでは相転移の原因の詳細は分からない。そのため、試料の特定方向のスペクトルから BEDT-TTF 分子に特有の振動モードを検出することによって、転移点で BEDT-TTF 分子の価数が分離することが判明した。これによって、この系の絶縁体相が電荷秩序状態であることがはっきりした。

また、この電荷秩序転移によって分裂した BEDT-TTF 分子は 4 つの価数状態に分離し、その平均値が 0.4 であること、つまり、組成から期待される値に一致することが分かった。つまり、フィリングが単純な分数からずれていても電荷秩序を引き起こすということである。これは電荷(価数)の分離の仕方が連続的な量であることに起因する。そのため、いわゆる単純な非整合フィリングや電荷のフラストレーションという考えだけでは不十分だということになる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 8 件)

“Linear magnetic field dependence of the magnetodielectric effect in eutectic BaTiO₃-CoFe₂O₄ multiferroic material fabricated by containerless processing”
Fukushima J., Ara K., Nojima T., Iguchi S., Hayashi Y., Takizawa H,
Applied Physics Letters 112, 212903-212903 (2018). 査読有
10.1063/1.5025072

“Mesoscopic 2D Charge Transport in Commonplace PEDOT:PSS Films”,
Honma Yuta, Itoh Keisuke, Masunaga Hiroyasu, Fujiwara Akihiko, Nishizaki Terukazu, Iguchi Satoshi, Sasaki Takahiko,
Advanced Electronic Materials 4, 1700490-1700490, (2017). 査読有
10.1002/aelm.201700490

“ Electric-field-induced intradimer charge disproportionation in the dimer-Mott insulator β' -(BEDT-TTF)(2)ICl₂ ”,
Hattori, Yuma and Iguchi, Satoshi and Sasaki, Takahiko and Iwai, Shinichiro and Taniguchi, Hiromi and Kishida, Hideo,
Physical Review B 95, 085149-1-5 (2017). 査読有
10.1103/PhysRevB.95.085149

“ Dimer-Mott and charge-ordered insulating states in the quasi-one-dimensional organic conductors $\delta(P)'$ - and $\delta(C)'$ -(BPDT-TTF)(2)ICl₂ ”,
Kobayashi, R. and Hashimoto, K. and Yoneyama, N. and Yoshimi, K. and Motoyama, Y. and Iguchi, S. and Ikemoto, Y. and Moriwaki, T. and Taniguchi, H. and Sasaki, T.,
Physical Review B 96, 115112-1-8 (2017). 査読有
10.1103/PhysRevB.96.115112

“ Crystallization and vitrification of electrons in a glass-forming charge liquid ”,
Sasaki S., Hashimoto K., Kobayashi R., Itoh K., Iguchi S., Nishio Y., Ikemoto Y., Moriwaki T., Yoneyama N., Watanabe M., Ueda A., Mori H., Kobayashi K., Kumai R., Murakami Y., Müller J., Sasaki T.,
Science 357, 1381-1-6 (2017). 査読有
10.1126/science.aal3120

“ Quantum-disordered state of magnetic and electric dipoles in an organic Mott system ”,
Shimozawa M., Hashimoto K., Ueda A., Suzuki Y., Sugii K., Yamada S., Imai Y., Kobayashi R., Itoh K., Iguchi S., Naka M., Ishihara S., Mori H., Sasaki T., Yamashita M.,
Nature Communications 8, 1~6 (2017). 査読有
10.1038/s41467-017-01849-x

“ Magneto-thermopower in the Weak Ferromagnetic Oxide CaRu_{0.8}Sc_{0.2}O₃: An Experimental Test for the Kelvin Formula in a Magnetic Material ”,
Yamamoto, Takafumi D. and Taniguchi, Hiroki and Yasui, Yukio and Iguchi, Satoshi and Sasaki, Takahiko and Terasaki, Ichiro,
Journal of the Physical Society of Japan 86, 104707-1~4 (2017). 査読有
10.7566/JPSJ.86.104707

“ Emergence of charge degrees of freedom under high pressure in the organic dimer-Mott insulator β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ ”,
K. Hashimoto, R. Kobayashi, H. Okamura, H. Taniguchi, Y. Ikemoto, T. Moriwaki, S. Iguchi, M. Naka, S. Ishihara, and T. Sasaki,
Physical Review B 92, 085149-1-7 (2016). 査読有
10.1103/PhysRevB.92.085149

[学会発表](計 11件)

井口敏, 山田修平, M.K. Nuryadin, 小林亮太, 森田康太郎, 米山直樹, 池本夕佳, 森脇太郎, 佐々木孝彦
“ β' -(BEDT-TTF)₂Rb_{1.2}Co(SCN)₄ の磁場中赤外分光 ”
日本物理学会 第74回年次大会、2019年

Satoshi Iguchi, Syuhei Yamada, Naoki Yoneyama, Takahiko Sasaki
“ Elucidation and exploration of charge-spin complex properties in organic strongly correlated d electrons system ”
J-Physics Annual Meeting FY2018 (国際学会), 2018年

Satoshi Iguchi, Syuhei Yamada, Ryota Kobayashi, Naoki Yoneyama, and Takahiko Sasaki
“ Metal-Insulator Transition and Magnetocapacitance Effect in α' -(BEDT-TTF)₂RbCo(SCN)₄ ”
ICSM2018 (国際学会), 2018年

井口敏, 山田修平, 小林亮太, 米山直樹, 池本夕佳, 森脇太郎, 佐々木孝彦

“ a'' -(BEDT-TTF) $2RbCo(SCN)_4$ の赤外分光 ”
日本物理学会 2018 年秋季大会、2018 年

Satoshi IGUCHI, Syuhei YAMADA, Ryota KOBAYASHI, Naoki YONEYAMA, Takahiko SASAKI
“ Electrical Properties of a'' -(BEDT-TTF) $2RbCo(SCN)_4$ ”、
SMS2018 (国際学会)、2018 年

井口敏、小林亮太、米山直樹、佐々木孝彦
“ a'' -(BEDT-TTF) $2RbCo(SCN)_4$ における金属 絶縁体転移近傍の赤外分光 ”
日本物理学会、第 72 回年次大会、2017 年

井口敏
“ a'' -(BEDT-TTF) $2RbCo(SCN)_4$ の電子物性 ”
第 133 回 金研講演会、2017 年

Satoshi Iguchi
“ Electrical Properties of a'' -(BEDT-TTF) $2RbCo(SCN)_4$ ”
ISCOM2017 (国際学会)、2017 年

井口敏
“ 金属-絶縁体転移系 a'' -(BEDT-TTF) $2RbCo(SCN)_4$ の磁場応答 ”
金研ワークショップ「多自由度・多階層が協奏する物質材料システムの科学」、2017 年

Satoshi Iguchi, Megumi Kurosu, Naoki Yoneyama, Takahiko Sasaki,
“ Metal-Insulator Transition and Magneto-Transport in a'' -Type BEDT-TTF salts ”
The 15th International Conference on Molecule-Based Magnets 2016 (国際学会)、2016.

井口敏、黒子めぐみ、B. Hartmann, J. Mueller, 谷口弘三、佐々木孝彦
“ ダイマーモット絶縁体 b' -(BEDT-TTF) $2ICl_2$ の輸送ノイズ測定 ”
日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等
<http://cond-phys.imr.tohoku.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者
なし

(2) 研究協力者
研究協力者氏名：米山直樹
ローマ字氏名：Naoki Yoneyama

研究協力者氏名：伊藤弘毅
ローマ字氏名：Hirotake Itoh

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。