

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 3 日現在

機関番号：33919

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2011～2015

課題番号：23225005

研究課題名(和文)有機スピン三角格子を基盤とする複合電子機能の開発研究

研究課題名(英文)Development of Electronic Multifunction Based on Organic Triangular Spin Lattice

研究代表者

齋藤 軍治 (Saito, Gunzi)

名城大学・農学部・教授

研究者番号：40132724

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 188,400,000円

研究成果の概要(和文)：50種類以上の新規ET陽イオンラジカル塩を開発し、特に3種類の  $-(ET)_2X$  塩(スピン液体、valence bond solid、常圧超伝導)の新規開発に成功した。また、三回対称性陽イオンを用いて、スピン三角格子を形成する新規C60陰イオンラジカル塩の系統的な開発を推進した。  
開発したラジカル塩について常圧ならびに加圧下での諸物性測定を行い、スピン液体の低エネルギー励起の理解や、外場印加(温度、圧力、磁場など)による新奇電子相の実現に成功した。また、光学測定によるスピンフラストレーションの実験的評価法の開発や、電界効果を用いたキャリア注入によるスピン液体の絶縁体-金属転移の誘起に成功した。

研究成果の概要(英文)：More than 50 kinds of new ET cation radical salts including three  $-(ET)_2X$  salts (spin liquid, valence bond solid, and ambient-pressure superconductor) were prepared. New C60 anion radical salts with triangular spin lattice were systematically prepared by combining with three-fold symmetric cations.

Understanding of the low energy excitation in the spin liquid phase was greatly advanced on the basis of various physical measurements, and the exotic electronic phases including superconductivity were realized by external fields such as temperature, pressure, and magnetic field. In addition, the insulator-metal transition induced by field-effect carrier injection was achieved for the spin liquid. An experimental way of assessing the spin frustration was developed using the optical measurements.

研究分野：有機物性化学

キーワード：量子スピン液体、スピンフラストレーション、超伝導、量子相転移、電荷移動錯体、BEDT-TTF、フラレン、キャリア注入

### 1. 研究開始当初の背景

幾何学的なフラストレーション(図1a)によって低温まで磁気秩序を起こさないスピン液体状態の実現は、物質科学者の長年の夢であった。研究代表者らは、10K級超伝導体  $-(\text{ET})_2\text{X}$ (ET: 図1b)と同じ型ET配列(図1c)をもつ  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  においてスピン液体状態を初めて確認した。以降、有機物・無機物双方において複数のスピン液体候補物質が報告されたが、スピン液体相が超伝導相と隣接するのは当該物質のみである。

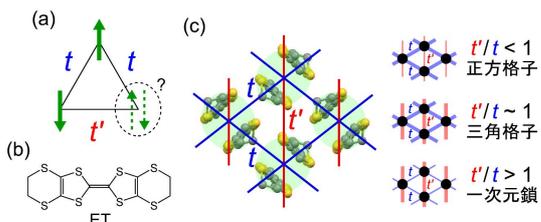


図1 (a) スピン三角格子、(b) ET 分子、(c) 型ET配列(水色楕円:  $(\text{ET})_2^{2+}$ )。  $(\text{ET})_2^{2+}$ 間移動積分の異方性  $t'/t$  によってスピン幾何構造が異なる。 $t'/t \sim 1$  のとき、最もフラストレーションが大きくなる。

### 2. 研究の目的

新規スピン三角格子有機物質を計画的に開発し、スピン液体相を探索するとともに超伝導を含む周辺電子相の電子状態を解明する。圧力印加による異方性パラメータの制御、電界や光によるキャリア注入を行い、新規スピン液体相の創生ならびに超伝導やスイッチング現象などの複合電子機能の探求を目的とする。

### 3. 研究の方法

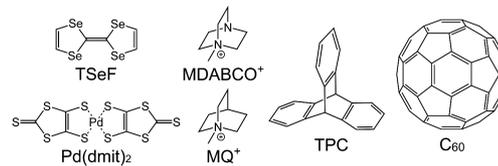
化学者3名と物理学者4名から構成される研究グループを組織し、新規物質開発・電子物性評価・デバイス構築を推進する。具体的には、ETや $\text{C}_{60}$ (図2)ラジカルイオンから成るスピン三角格子物質を合成し、NMRや電導度測定等によりスピン液体相や超伝導相の探索を行う。また、電界や光などの外的刺激によるスピン液体相へのキャリア注入や、絶縁体-金属転移や超伝導相の探索・制御を行う。

### 4. 研究成果

電解酸化法を用いて、主にETの陽イオンラジカル塩の開発を行った。現在までに50種類以上の新規ET塩を得ており、特に、フラストレーション・超伝導・電子型強誘電性の研究舞台を提供している  $-(\text{ET})_2\text{X}$  系物質3種類( $\text{X} = \text{B}(\text{CN})_4, \text{Ag}_2(\text{CN})_3, \text{Ag}(\text{CN})[\text{N}(\text{CN})_2]$ ) の新規開発に成功した。また、 $\text{Ag}(\text{I})$ や $\text{Zn}(\text{II})$ 錯陰イオンを含むET陽イオンラジカル塩や、三回対称性陽イオンを含む $\text{C}_{60}$ 陰イオンラジカル塩の系統的な開発も推進し、ラジカルイオン-対イオン層間のkey-keyhole関係や、構造物性相関について多くの知見を得た。

開発したラジカル塩について、電気抵抗、静帯磁率、磁気トルク、ESR、NMR、比熱、諸分光測定を行い、常圧ならびに加圧下における電子物性を評価した。また、光学スペクトルによる  $t'/t$  の実験的評価法の開発や、電界効果を用いたキャリア注入による絶縁体-金属転移の誘起にも成功した。以下に、本研究課題において達成した主な成果を7項目に分けて概説する。

図2 本報告書に登場する主な分子



(1) 正三角スピン格子系  $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$ : この塩は既知スピン液体候補物質  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  と同形で、正三角スピン格子 ( $t'/t = 0.97$ ) を有する。 $\text{Ag}(\text{I})$ イオンのT字型平面三配位構造に起因して、陰イオン層は長方形空隙を有し、各  $(\text{ET})_2^{2+}$  はフレーム上に位置する(図3)。

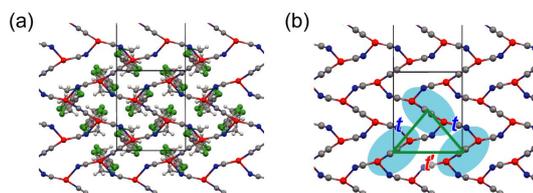


図3  $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  における(a) key-keyhole 関係ならびに(b)  $(\text{ET})_2^{2+}$ (水色楕円)が形成するスピン三角格子(緑色太線)。

NMR測定から、この塩における微視的なスピン状態について調べた。極低温域( $> 0.1\text{K}$ )まで磁気秩序が存在しないことを突き止め、スピン液体状態の根拠となる結果を得た。その低エネルギー励起はギャップレスであり、スピン液体に特徴的な分数化された準粒子が担っていることを明らかにした。特に、スピン格子緩和率の磁場依存性から、低磁場極限において極めて遅いスピン揺らぎが存在することを見出した。さらに、静水圧および一軸圧を用いて、三角格子上の反強磁性相互作用( $J$ )の大きさおよび異方性を制御することに成功した(図4)。これまで未解明であったスピン液体の静的および動的帯磁率の詳細な圧力依存性が明らかになり、低エネルギー励起の性質を理解する上で重要な知見を得た。また、高圧下で隣接する超伝導相に向けた、特異な低エネルギー励起の成長を観測し、スピン液体と超伝導の密接な相関を示唆する結果を得た。

高圧下での電導度測定を行い、約1GPaでMott転移を、さらに低温の5K以下で超伝導転移を見出した。この塩におけるMott転移の臨界圧( $P_c$ )は、 $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ の $P_c$ よりも高く、より強相関領域に位置するMott絶縁体であることが分かった。これは、 $\text{Cu}(\text{I})$ を $\text{Ag}(\text{I})$ に置換したことによる格子の拡張に起因する。スピン液体相に隣接して超伝導が隣接する物質は  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  しか知られておらず、 $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  は2例目である。

さらに、この塩における温度-圧力相図を詳細に調べた(図5)。スピン液体相における大きなスピンエントロピーに起因して、Mott 転移の臨界温度は圧力とともに増加 ( $dT/dP_c > 0$ ) する。また、反強磁性秩序相に隣接する 10 K 級  $-(\text{ET})_2\text{X}$  超伝導体と比べると、超伝導転移温度 ( $T_c$ ) が低い。これら 2 つの特徴は  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  塩と共通しており、ET 系ダイマー-Mott スピン液体のユニバーサルな性質だと考えられる。

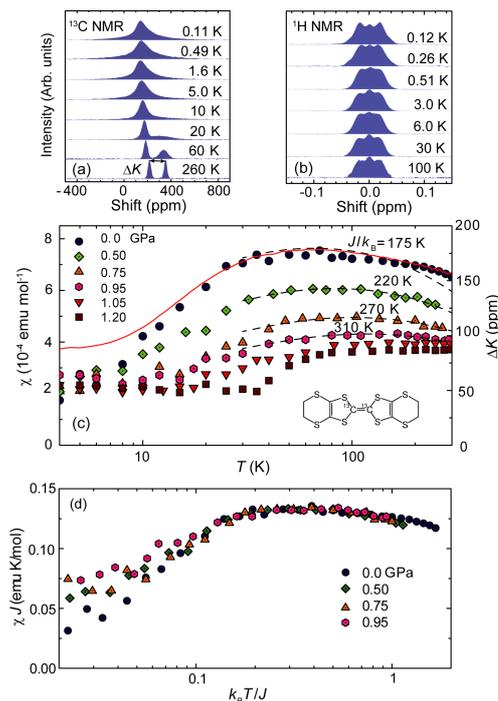


図4  $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  における NMR 特性。(a)  $^{13}\text{C}$  NMR スペクトル、(b)  $^1\text{H}$  NMR スペクトル、(c) 常圧下静帯磁率測定から算出した帯磁率 ( $\chi$ ; 赤色実線) ならびに静水圧下  $^{13}\text{C}$  NMR 測定から算出した Knight シフト ( $\Delta K$ ) の温度依存性。(d) 各圧力下での  $J-k_B T/J$  プロット ( $J$ : 反強磁性相互作用)。

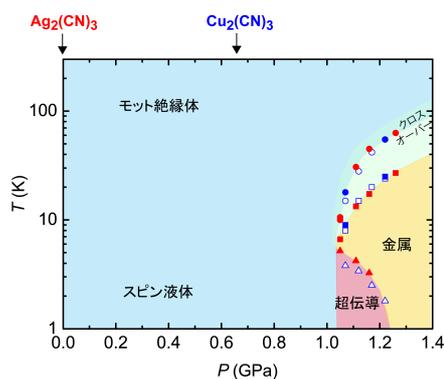


図5  $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  と  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  の温度-圧力相図。圧力は室温で印加した静水圧力の値で、 $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  の場合には 0.67 GPa のオフセットをとっている。丸印は  $dR/dT$  ( $R$ : 電気抵抗) が極大を示す点であり、Mott 転移点を示す。四角印は Fermi 液体的な抵抗の温度依存性  $R = R_0 + AT^2$  が観測される温度域の上限を示す。

$-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  の低エネルギー励起および低温電子状態について詳しく調べるため

に、比熱および磁気トルク測定を行った。絶縁体であるにもかかわらず、温度に比例する比熱 ( $\propto T$ ) が低温で観測された。値は  $9.9 \text{ mJ K}^{-2} \text{ mol}^{-1}$  と見積もられ、NMR 測定と同様にギャップレスの低エネルギー励起があることが示唆された。また、強磁場下での磁気トルク測定を行い、45 T の強磁場まで磁化は単調に増加し飽和しないことも明らかにした。

この塩に関して種々の光学スペクトルの測定を行った。電荷励起および磁気励起は  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  と類似しており、特に磁気励起においてフラストレーションを支持する結果を得た。さらに、分子振動モードのスペクトルは、 $-(\text{ET})_2\text{X}$  系以外の ET 塩と比べると顕著にスペクトル幅が広く、ET 価数が動的なゆらぎを伴っている可能性が示唆された。

(2) 一次元的に歪んだ異方的スピン三角格子系  $-(\text{ET})_2\text{B}(\text{CN})_4$  (雑誌論文):  $\text{B}(\text{CN})_4$  陰イオン含有イオン液体を用いた電解合成により得た。静帯磁率測定を行ったところ、異方的スピン三角格子由来の磁気挙動を示した後に、約 5 K 以下で非磁性状態への相転移を示した。静帯磁率測定から算出した  $t'/t$  は、第一原理バンド計算結果 ( $t'/t = 1.44$ ) と合致する。この相転移に伴い、二次相転移に特徴的な比熱の異常が現れることを見出した。また、強磁場下での磁気トルクならびに NMR 測定を行い、反強磁性秩序相への量子相転移を見出した。この磁気秩序相では、フラストレーションによって非整合な磁気構造が形成されていることを突き止めた。

小型キュービックアンピセルを用いてこの塩の高圧下電導度測定を行い、約 3 GPa で Mott 転移を観測した。さらに、Mott 転移近傍の狭い圧力範囲において超伝導転移を示唆する抵抗の減少を見出した。

(3) 一次元的に歪んだ異方的スピン三角格子系  $-(\text{ET})_2\text{CF}_3\text{SO}_3$ : この塩は 1995 年にフランスの研究グループによって開発された ( $t'/t = 1.79$ ) が、結晶育成の困難さにも起因して、詳細な物性研究は行われていなかった。本研究課題では、詳細な物性研究例が皆無であった  $t'/t > 1$  領域に位置するモデル物質としてこの塩に着目し、結晶育成法を確立するとともに、諸物性測定を行った。

NMR 測定から、この塩は 2.5 K で反強磁性秩序転移することを明らかにした。常圧下では陰イオンの秩序-無秩序転移に起因して 230 K ならびに 190 K で構造相転移を示す Mott 絶縁体であるが、静水圧印加によりこれらの相転移が抑制され、1.1 GPa で Mott 転移を起こし、 $T_c = 4.8 \text{ K}$  の超伝導状態を示すことを見出した。また、一軸圧下での電導度測定を行い、 $t'/t$  が 1 に近づきスピンフラストレーションが強まる場合には超伝導相が出現するが、 $t'/t$  が大きくなり一次元性が強まる場合には出現しないことが分かった。さらに、 $t'/t < 1$  領域に位置する  $-(\text{ET})_2\text{X}$  塩に

についても一軸圧下での電導度測定を行い、 $T_c$ の圧力依存性とスピンフラストレーションの関係を、反強磁性スピン揺らぎに基づく超伝導モデルによって解析した。これら一連の研究は、超伝導転移とスピンフラストレーションの関係を明らかにするだけでなく、ダイマー-Mott系における超伝導相図を解明する上で重要な知見である(雑誌論文)。

(4) その他の主な陽イオンラジカル塩：新規常圧超伝導体  $-(\text{ET})_2\text{Ag}(\text{CN})[\text{N}(\text{CN})_2]$  ( $t'/t = 0.63$ )を開発した。 $T_c$ 値(6.6 K)はAg(I)含有ポリマー陰イオンから成るET塩としては最高の値である。室温からFermi液体的な電導挙動を示し、 $-(\text{ET})_2\text{X}$ 塩としては稀有な電子相関の弱い電子系であることを明らかにした(雑誌論文)。

$\text{ET}^{+\bullet}$ が有機物では稀有なダイヤモンド格子構造を形成するMott絶縁体 $(\text{ET})\text{Ag}_4(\text{CN})_5$ において、特徴的な反強磁性秩序( $T_N = 101$  K)スピン構造をNMR測定によって決定した。

Cu(I)やAg(I)と同様に $d^{10}$ 電子配置を有するZn(II)を含む陰イオンを用いて、14種類の新規ET塩の開発に成功した。平面三配位Cu(I)やAg(I)とは異なりZn(II)は四面体配位様式を有し、陰イオン層は凹凸な表面を形成する。そのため、立体的影響を受けた隣接ET層は非常にユニークな分子配列を有する。ET分子を用いた新奇電子相開拓の新たな物質群として非常に有望であると考えられる。

TSeF(図2)から成る陽イオンラジカル塩 $(\text{TSeF}^{+\bullet})_3[(\text{Mo}_6\text{X}_{14})^{2-}(\text{X})^-]$  ( $\text{X} = \text{Cl}, \text{Br}$ )を開発した。TSeF $^{+\bullet}$ は有機物では稀有な3次元ネットワークを形成しており、歪んだ逆ペロブスカイト構造とみなすことができる。静帯磁率ならびにNMR測定により、3.0-5.5 Kで反強磁性秩序転移を示すことを見出し、スピンフラストレーションの効果について知見を得た。

(5) 正三角格子系 $\text{C}_{60}^-$ 陰イオンラジカル塩：1価のラジカル陰イオン $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ が形成する三角格子におけるスピン間相互作用を、同形錯体である $(\text{MDABCO}^+)(\text{C}_{60}^{\bullet-})(\text{TPC})$ と $(\text{MQ}^+)(\text{C}_{60}^{\bullet-})(\text{TPC})$ について詳細に比較検討した。いずれの錯体においても、三回対称性陽イオン(MDABCO $^+$ またはMQ $^+$ )ならびに中性ゲスト分子TPC(図2)が構築する超分子テンプレートによって、 $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ は三角格子状に最密配列した2種類( $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ の配向乱れの有無)の層構造を構築する。MDABCO錯体では、配向乱れがない $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ 層は二次元金属性を示すが、配向乱れを包含する $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ 層は200 K以上では反強磁性の相互作用を示し、200 K以下で $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ の配向秩序に伴う金属転移を示した。一方、MQ錯体(図6)においては、MDABCO錯体と比べて $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ 分子間距離が0.5-1%伸びており、配向乱れのない $\text{C}_{60}^{\bullet-}$ 層においても金属状態にはならずMott絶縁体であることが分かった(雑誌論文)。

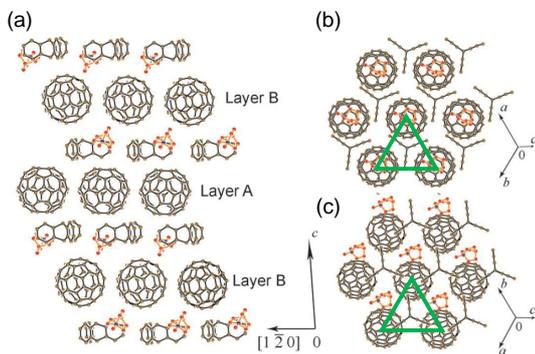


図6  $(\text{MQ}^+)(\text{C}_{60}^{\bullet-})(\text{TPC})$ における(a)層状構造、(b)Layer Aと $(\text{MQ}^+)(\text{TPC})$ 層の相対配置、(c)Layer Bと $(\text{MQ}^+)(\text{TPC})$ 層の相対配置。MQ $^+$ は赤色で示す。緑色太線は $S = 1/2$ スピン三角格子を表す(100 Kでの $t'/t$ は、各々0.99と1.61)。

(6)  $-(\text{ET})_2\text{X}$ 塩における分光特性： $-(\text{ET})_2\text{X}$ 系および $-(\text{Pd}(\text{dmit})_2)_2$ 系(図2)における磁気ラマン散乱の研究を行った。これらの物質群の広い波数領域にわたるラマン散乱スペクトルの偏光依存性ならびに温度依存性を測定し、理論的研究との比較から、磁気励起がラマン散乱過程により観測されることを明らかにした。特に $-(\text{ET})_2\text{X}$ 系では、スピンフラストレーションが強い領域において、磁気励起エネルギーの顕著な低下が観測された(図7;雑誌論文)。

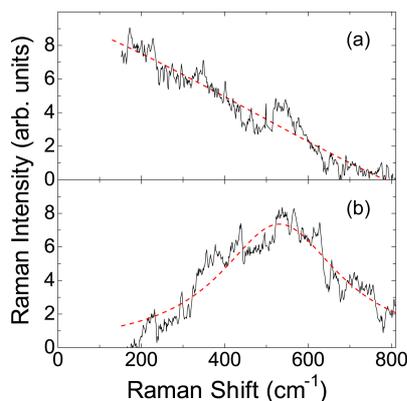


図7 (a)  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  ( $t'/t = 1.09$ )ならびに(b)  $-(\text{ET})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Cl}$  ( $t'/t = 0.72$ )における磁気ラマン構造(10 K)。赤色破線はguide to eye。

また、 $-(\text{ET})_2\text{X}$ 系における光学伝導度スペクトルの系統的な測定を行った。本研究課題において開発した物質群を対象に、偏光反射スペクトル測定とその偏光依存性の測定を行った。得られた反射スペクトルから光学伝導度スペクトルと有効電子数を計算した(有効電子数の偏光依存性から光学的異方性を定義した)。その結果、実験的に求められた光学的異方性は、構造パラメータおよび計算的手法により求められた $t'/t$ と明確な相関があることを見出した。その系統的な解析から、実験的にパラメータ決定が困難な低温領域においても、比較的簡便に $t'/t$ を決定できることを示した。このことは、スピン三角格子系の電子状態を特徴づける重要な

パラメータである  $t'/t$  の新しい評価法を開発したことを意味する。

(7) 電界効果による  $-(\text{ET})_2\text{X}$  塩へのキャリア注入： $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  について、最大 +4 V のゲート電圧下で 16 K 以下で金属的な電導挙動を見出し、ゲート電圧印加により絶縁体-金属転移を誘起できることを実証した (図 8)。さらに、 $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  について同様の測定を行ったところ、n 型の電流増幅は観測されたものの金属的挙動の発現には至らなかった。そこで、イオン液体をゲート絶縁体のみならず圧力媒体としても活用した静水圧下イオン液体トランジスタ法を開発し、0.75 GPa の圧力下で測定したところ、7.3 K で電場誘起絶縁体-金属転移の兆候を見出すことに成功した (図 8d)。 $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  は  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  に比べより強相関領域に位置する物質であるため、圧力印加によって初めて絶縁体-金属転移を実現できたと考えられる。本研究課題において開発した圧力印加と電界キャリア注入を併用したイオン液体トランジスタ法は、今後、有機結晶导体における輸送特性や超伝導特性を解明・制御する手法として期待できる。

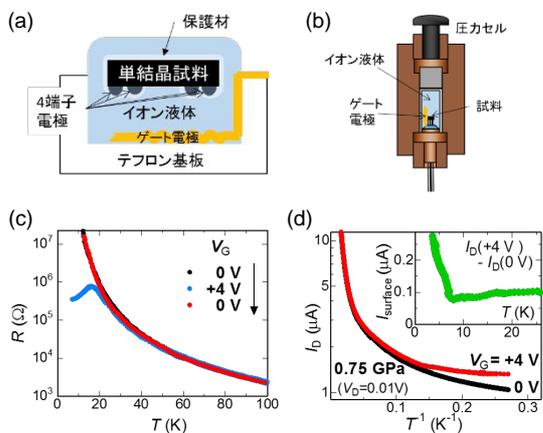


図 8 (a) 単結晶イオン液体トランジスタの構造、(b) 圧力セル内に導入した単結晶イオン液体トランジスタ、(c)  $-(\text{ET})_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$  の電気抵抗における、常圧 16 K 以下での電場誘起金属挙動 (矢印は測定順)、(d)  $-(\text{ET})_2\text{Ag}_2(\text{CN})_3$  のドレイン電流における、静水圧 (0.75 GPa) 7.3 K 以下での電場誘起金属挙動。

最後に、本研究課題において開発した  $-(\text{ET})_2\text{X}$  塩を含めた諸データから抽出した、遍歴電子相に隣接するスピン液体相発現に必要な条件を列挙する。小さなスピン量子数 ( $S=1/2$ )、Mott 絶縁体が出発点 ( $-(\text{ET})_2\text{X}$  系では室温で  $W < 0.57$  eV、 $U/W > 0.89$ 。W: バンド幅、U: オンサイト Coulomb 反発力)、小さな Mott ギャップ ( $\text{C}_{60}$  系以外では部分電荷移動状態が必要)、強いフラストレーションを有するスピン格子 ( $0.89 < t'/t < 1.7$ )、大きな反強磁性相互作用、二次元スピン系の場合、低温 ( $|J|/10^3$  K) までスピン間相互作用が二次元であること (雑誌論文)。

図 9 に、本研究課題において開発した ET 塩を含めた  $U/t-t'/t$  プロットを示す。結晶

構造データを用いたバンド計算から算出したバンドパラメータと電子物性には明確な相関があることが分かった。ラジカルイオンの配列制御は、未踏領域に位置する物質の開発、すなわち新奇電子相ならびに新奇相転移現象の探索の根幹であり、本研究課題では化学的・物理的手法により多彩な分子配列ならびに電子状態の発現・制御に成功した。

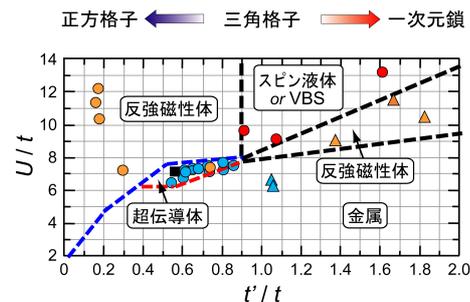


図 9 主な  $-(\text{ET})_2\text{X}$  塩における  $U/t-t'/t$  プロット。○: 金属 (金属 or 超伝導) △: 金属 (絶縁体; 圧力下で超伝導体) □: 金属 (絶縁体) ●:  $t'/t < 1$  Mott 絶縁体 (反強磁性体; 一部は圧力下で超伝導体) ▲:  $t'/t > 1$  Mott 絶縁体 (反強磁性体; 圧力下で超伝導体) ○: Mott 絶縁体 (スピン液体 or VBS; 圧力下で超伝導体)。括弧内は基底状態を表す。破線は、実験結果をもとに作成した相境界。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 103 件)

Y. Yoshida, H. Ito, M. Maesato, Y. Shimizu, H. Hayama, T. Hiramatsu, Y. Nakamura, H. Kishida, T. Koretsune, C. Hotta, G. Saito, Spin-Disordered Quantum Phases in a Quasi-One-Dimensional Triangular Lattice, Nat. Phys. 11, 679-683 (2015). 査読有  
DOI: 10.1038/NPHYS3359

Y. Yoshida, H. Hayama, M. Ishikawa, A. Otsuka, H. Yamochi, Y. Nakamura, H. Kishida, H. Ito, M. Maesato, G. Saito, Ambient-Pressure Organic Superconductor  $-(\text{ET})_2\text{Ag}(\text{CN})[\text{N}(\text{CN})_2]$  Formed with Polymeric Silver(I) Complex Anion, J. Phys. Soc. Jpn. 84, 123801/1-5 (2015). 査読有  
DOI: 10.7566/JPSJ.84.123801

G. Kawaguchi, M. Maesato, T. Komatsu, H. Kitagawa, T. Imakubo, A. Kiswandhi, D. Graf, J. S. Brooks, Unconventional Magnetic and Resistive Hysteresis in an Iodine-Bonded Molecular Conductor, Angew. Chem. Int. Ed. 54, 10169-10172 (2015). 査読有  
DOI: 10.1002/anie.201503824

T. Hiramatsu, Y. Yoshida, G. Saito, A. Otsuka, H. Yamochi, M. Maesato, Y. Shimizu, H. Ito, H. Kishida, Quantum Spin Liquid: Design of a Quantum Spin Liquid next to a Superconducting State based on a

Dimer-Type ET Mott Insulator, *J. Mater. Chem. C* 3, 1378-1388 (2015). 査読有  
DOI: 10.1039/C4TC01701C

D. V. Konarev, S. S. Khasanov, A. Otsuka, M. Maesato, M. Uruichi, K. Yakushi, A. F. Shevchun, H. Yamochi, G. Saito, R. N. Lyubovskaya, Metallic and Mott Insulating Spin-Frustrated Antiferromagnetic States in Ionic Fullerene Complexes with a Two-Dimensional Hexagonal  $C_{60}^{\bullet-}$  Packing Motif, *Chem. Eur. J.* 20, 7268-7277 (2014). 査読有  
DOI: 10.1002/chem.201304763

D. V. Konarev, S. S. Khasanov, A. Otsuka, H. Yamochi, G. Saito, R. N. Lyubovskaya, Strong Antiferromagnetic Coupling of Spins in the  $(MDABCO^+)(C_{60}^{\bullet-})$  Salt with 3D Close Packing of the  $C_{60}^{\bullet-}$  Radical Anions ( $MDABCO^+$ : *N*-Methyldiazabicyclooctanium Cation), *Chem. Asian. J.* 9, 1629-1635 (2014). 査読有  
DOI: 10.1002/asia.201402048

Y. Nakamura, N. Yoneyama, T. Sasaki, T. Tohyama, A. Nakamura, H. Kishida, Magnetic Raman Scattering Study of Spin Frustrated Systems,  $-(BEDT-TTF)_2X$ , *J. Phys. Soc. Jpn.* 83, 074708/1-5 (2014). 査読有  
DOI: 10.7566/JPSJ.83.074708

A. Ito, Y. Nakamura, A. Nakamura, H. Kishida, Measurement of the Nonlinear Conducting States of  $-(BEDT-TTF)_2I_3$  Using Electronic Raman Scattering, *Phys. Rev. Lett.* 111, 197801/1-5 (2013). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.111.197801

T. Suzuki, S. Onari, H. Ito, Y. Tanaka, Theory of the  $-\text{Type}$  Organic Superconductivity under Uniaxial Compression, *J. Phys. Soc. Jpn.* 80, 094704/1-8 (2011). 査読有  
DOI: 10.1143/JPSJ.80.094704

〔学会発表〕(計 179 件)

岸田英夫, 開殻電子系をみるレーザー分光技術, 新学術領域研究「造形科学: 電子と構造のダイナミズム制御による新機能創出」第2回公開シンポジウム, 大阪府大阪市中央公会堂, 2015年6月8-9日(特別講演).

Y. Shimizu, T. Hiramatsu, Y. Yoshida, A. Otsuka, M. Maesato, M. Yoshida, M. Takigawa, G. Saito, Spin Order and Disorder in Organic Diamond and Triangular Lattices, HFM 2014, 英国ケンブリッジ, 2014年7月7-11日(招待講演).

齋藤軍治, 金属相・超伝導相に隣接する量子スピン液体系 ET 錯体の開発, 日本物理学会第 69 回年次大会, 神奈川県平塚市東海大学湘南キャンパス, 2014年3月27-30日(招待講演).

G. Saito, Design of Triangular Spin Lattice and 2D Organic Metals of  $C_{60}$ , ISCOM 2011, ポーランドポズナン, 2011年9月25-30日(招待講演).

〔図書〕(計 7 件)

G. Saito, Y. Yoshida, *Frontiers of Organic Conductors and Superconductors, Topics of Current Chemistry: Unimolecular and Supramolecular Electronics*, Springer-Verlag, 312, pp.67-126 (2012).

〔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://saitolab.meijo-u.ac.jp/kibanS/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

齋藤 軍治 (SAITO, Gunzi)

名城大学・農学部・教授

研究者番号: 4 0 1 3 2 7 2 4

### (2) 研究分担者

吉田 幸大 (YOSHIDA, Yukihiro)

名城大学・農学部・助教

研究者番号: 1 0 3 7 8 8 7 0

伊東 裕 (ITO, Hiroshi)

名古屋大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 1 0 2 6 0 3 7 4

岸田 英夫 (KISHIDA, Hideo)

名古屋大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 4 0 3 1 1 6 3 3

清水 康弘 (SHIMIZU, Yasuhiro)

名古屋大学・大学院理学研究科・講師

研究者番号: 0 0 4 1 5 1 8 4

大塚 晃弘 (OTSUKA, Akihiro)

京都大学・低温物質科学研究センター・准教授

研究者番号: 9 0 2 3 3 1 7 1

前里 光彦 (MAESATO, Mitsuhiro)

京都大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号: 6 0 3 2 4 6 0 4