

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 10 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2020

課題番号：17K05557

研究課題名（和文）多層ディラック電子系の磁気物性に関する実験的研究

研究課題名（英文）Experimental study of magnetic properties of multi-layered Dirac fermion system

研究代表者

鴻池 貴子（KONOIKE, Takako）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主任研究員

研究者番号：70447316

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、圧力下でグラフェンと同様の線形分散を持つことが知られているバルクの有機導体 $\alpha$ -(BEDT-TTF)213を対象として圧力下磁化率測定を行い、ディラック電子系特有のバンド間磁場効果による巨大軌道反磁性を実験的に明らかにすることを目的としている。本研究により対象物質において明瞭な反磁性を初めて観測することができたが、経時変化による構造転移の可能性が排除できず、反磁性の起源を断定するためには更なる研究が必要である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

2010年にノーベル賞を受賞したグラフェンは高いキャリア移動度等の優れた性質を持つが、これらの性質はグラフェンにおいて質量ゼロの相対論的ディラック電子系が形成されていることに起因する。ディラック電子を利用した次世代の超高速・低消費電力デバイス開拓には、基礎物性の解明が必須となるが、グラフェンは極微細な結晶で実験的研究が難しい。そこで本研究ではバルク結晶として初めてゼロギャップディラック電子系を実現した有機導体の実験的研究を行っている。従来の固体物理の枠組みを超えたディラック電子物性の研究は学術的意義が高いとともに、ディラック電子系材料の実用化に必要な不可欠であり社会への貢献にも繋がる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we measured the magnetic susceptibility under pressure of bulk organic conductor  $\alpha$ -(BEDT-TTF)213, which is known to have a linear dispersion similar to that of graphene under pressure. The purpose is to experimentally clarify the giant orbital diamagnetism due to the inter-band effect of magnetic field that is peculiar to the Dirac electron system. Although clear diamagnetism could be observed for the first time in the target material by this study, the possibility of structural transition due to aging cannot be ruled out, and further studies are needed to determine the origin of the observed diamagnetism.

研究分野：物性物理学

キーワード：有機伝導体 ディラック電子 軌道反磁性

## 1. 研究開始当初の背景

2004年にグラファイトから剥離することによって初めて作製された単一原子層のグラフェンは、既存材料を凌駕する高いキャリア移動度や電気・熱伝導度等の優れた性質を持つことから、次世代の超高速・低消費電力エレクトロニクス材料として大きな注目を浴びている。このような応用上の観点に加え、この系における電子は“質量ゼロのディラック電子”として記述され、従来の固体中の電子とは全く異なる様々な振舞いが報告され、基礎物性の観点からも近年大きな進展を遂げている。この性質は、エネルギーバンド構造において荷電子帯と伝導帯がディラック点で接する線形分散を持つことに起因し、グラフェンの他にもいくつかの有機導体やトポロジカル絶縁体の表面状態、狭ギャップ系のビスマスにも存在することが分かっている。

ディラック電子の磁気物性に関しては、ビスマスにおいて古くから巨大な反磁性が観測されることが知られていたが、フェルミエネルギーでの状態密度がゼロであることから、それまでの単一バンド近似では説明がつかず、長い間未解決の問題となっていた。その後数十年に渡る議論を経て、この現象が線形分散の場合に顕著となる「バンド間磁場効果」による巨大軌道反磁性であることが福山らにより指摘され、ようやくその起源が解明された。このバンド間磁場効果とは、ベクトルポテンシャルによって電子が異なるバンド間を行き来する効果であり、フェルミエネルギー $E_F$ よりずっと深いところにある電子も反磁性電流を担うことを示唆しており、 $E_F$ 近傍の電子が物性を支配すると考える従来の固体物理の枠組みを超えた、ディラック電子の深淵な特性を顕著に示すものである。

一方、グラフェンは単一原子層という極端に微小な試料形状をもつことから磁気物性測定において十分なシグナル強度が得られず、グラフェンの集合体を用いても、不純物や試料端等の影響によりディラック電子の示す本質的な磁性を実験的に観測することは非常に困難である。また、トポロジカル絶縁体の場合も、ディラック電子系は表面状態のみに存在することから、磁気物性測定にはバルク状態からの寄与が大きく占め、ディラック電子の示す磁性の検出は困難である。

## 2. 研究の目的

本研究ではバルク結晶として初めてゼロギャップの多層ディラック電子系を実現した有機導体  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  に着目し、グラフェンでは測定が困難なディラック電子特有の巨大な軌道反磁性や磁気物性を実験的に検出することを目的とする。

## 3. 研究の方法

現在、圧力下での有機導体の磁化率測定には、主に SQUID 磁束計による静磁化率が用いられているが、この手法は圧力を保持するための圧力セルや圧力媒体の影響を大きく受けてしまい、試料からのシグナルが大きなバックグラウンドに埋もれるという問題点がある。そのため本研究では圧力下での測定に有利な磁場変調法による交流磁化率測定を採用する。磁場変調による交流法の利点としては、測定周波数を早くすることで圧力媒体等からの寄与を小さくすることが出来ることやロックインアンプによる検出により高感度測定が可能であること、また小さな試料サイズでもシグナルの検出が可能であることなどが挙げられる。

試料のシグナル検出には、逆巻きの内・外コイルから構成した小型のピックアップコイルを使用し、巻き数 1 以下の極限までバランスをとるよう調整し、高感度の測定を実現する。試料の加圧には非磁性超硬度材料 MP35N を使用したクランプ型の圧力セルを用い、圧力媒体にはダフニオイル 7373 を使用する。試料は上記のピックアップコイル中にセットし、ダフニオイルで満たしたテフロンセル(内径 4mm)に封入して室温で加圧した後、クランプネジを閉めることによって内部の圧力を保持する。

研究対象の有機導体にディラック電子系が形成される高圧力を加え、磁場変調用補助コイル付き超伝導マグネット内蔵の希釈冷凍機を用いて、極低温・磁場下での交流磁化率測定を行う。これによりディラック電子系特有の磁気物性の解明、特にバンド間磁場効果による巨大軌道反磁性の実験的観測を目指す。

#### 4. 研究成果

まず初めに本測定手法によるデータを検証するため、すでに文献値のあるグラファイトの交流磁化率を測定し、明瞭な量子振動(ドハース・ファンアルフェン効果)が観測されることが分かった。これにより磁化率の高感度測定を確立出来ていることを確認した。

次に、今回の対象物質となる有機導体の常圧下での交流磁化率測定を行った。本物質は常圧では低温で電荷秩序状態にあり、磁化率は観測されないことが期待されたが、実際にはゼロ磁場付近での急峻な反磁性と、その後、正の磁化率が観測されることが分かった。考察の結果、前者は試料空間中で電極付けのために使用したはんだによる超伝導によるもので、後者は圧力セル内のピストン材料(タングステンカーバイト 名目上は非磁性タングステンカーバイト)中に僅かに存在する強磁性粒子の超常磁性によるものであることが分かった。そのため、電極付けにははんだの代わりに銀ペーストを使用し、ピストンの材質はタングステンカーバイトから非磁性のジルコニアに変更し、これらにより外因性のシグナルを徹底的に排除することができた。

その後、本研究の対象物質である有機導体  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  に圧力を印加し、磁化率測定を行った。その結果、圧力下の本物質において巨大な反磁性磁化率が観測されることが分かった。 $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  は加圧に伴って電荷秩序相-有限質量のディラック相-質量ゼロのディラック相へと変化するが、本研究ではディラック相のみではなくすべての相において反磁性が観測され、予想に反する結果が得られていた。当初、この結果はフェルミ準位がディラック点から僅かにシフトしていることにより説明出来ると考えていた。しかしながら、最近になって本物質は70 K以上で数10時間アニールすることにより、超伝導を示す  $\beta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  に構造が変化し得ることが分かった。アニール温度がそれ程高くないことから経年変化によって試料の一部で構造変化が引き起こされた可能性がある。現時点ではこの構造相転移の可能性を否定することが出来ないため、観測された反磁性の起源がディラック電子由来であるかどうかを断定するためには更なる研究が必要である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 鴻池貴子
2. 発表標題 有機ディラック電子系alpha-(BEDT-TTF)213の圧力下磁化率測定
3. 学会等名 日本物理学会2019年年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鴻池貴子
2. 発表標題 有機ディラック電子系alpha-(BEDT-TTF)213の圧力下磁化率と抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takako Konoike
2. 発表標題 Giant Diamagnetism observed in Organic Dirac Electron System
3. 学会等名 ISCOM2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鴻池 貴子, 寺嶋 太一, 杉浦 栞理, 廣瀬 陽代, 菊川 直樹, 宇治 進也
2. 発表標題 Magnetic susceptibility of Organic Dirac Fermion System
3. 学会等名 MANA International Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鴻池 貴子, 寺嶋 太一, 杉浦 菜理, 廣瀬 陽代, 菊川 直樹, 宇治 進也
2. 発表標題 有機ディラック電子系alpha-(BEDT-TTF)2I3の圧力下磁化率測定
3. 学会等名 日本物理学会2019年年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鴻池 貴子, 寺嶋 太一, 杉浦 菜理, 廣瀬 陽代, 宇治 進也
2. 発表標題 有機ディラック電子系alpha-(BEDT-TTF)2I3の圧力下磁化率
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鴻池貴子, 寺嶋太一, 菊川直樹, 杉浦菜理, 廣瀬陽代, 宇治進也
2. 発表標題 有機ディラック電子系の圧力下磁化率測定
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鴻池貴子, 寺嶋太一, 宇治進也
2. 発表標題 Magnetic Susceptibility in Organic Fermion System
3. 学会等名 ISCOM2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鴻池貴子, 寺嶋太一, 宇治進也
2. 発表標題 Magnetic Property of Organic Fermion System
3. 学会等名 MANA International Symposium 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

[https://samurai.nims.go.jp/profiles/konoike\\_takako?locale=ja](https://samurai.nims.go.jp/profiles/konoike_takako?locale=ja)

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
---------	---------