

**電子系を舞台とした量子ガラス科学の創成と物性科学への展開**

Creation of a new discipline, quantum glass, for electronic Systems and its development to material science

課題番号：18H05225

鹿野田 一司 (KANODA, KAZUSHI)

東京大学・大学院工学系研究科・教授



研究の概要（4行以内）

電子系の科学とガラスの科学を繋ぐ新しい学術領域“量子性のあるガラスの科学”の創成を目指し、量子性ガラスの探索、電子レオロジーの確立、電子系ガラスの制御を研究項目に据える。これまでに、電子ガラスが持つ古典/量子の階層的時空間構造の解明、電子グリフィス相の発見、平衡/非平衡相変換を利用した新たな相制御法と新奇な電子系ガラス物質の開発を行った。

研究分野：物性物理学

キーワード：分子性固体、強相関電子系、液体とガラス、ソフトマター

1. 研究開始当初の背景

強く相互作用する電子系は、物質という様々な環境下でそれぞれに特徴的な空間構造とエネルギー構造を持って組織化する。しかし近年、原子・分子より遥かに長いスケールで不均一に自己組織化し、相互作用に特徴的な時間（ナノ～フェムト秒）に比べて何桁も遅い時間スケールで揺動する電子現象が見出されている。これらの現象は、ソフトマターに見られるガラス状態や過冷却液体状態に特徴的なものであり、電子系がソフトマターに成り得るか、ガラス化という古典的な現象の中に電子の量子性がどのように発現するのかといった学術的に深い問題を提起している。さらに、電子は電荷とスピンの自由度を持ち、格子という設計/制御が可能な舞台を持つことから、電子系においてガラス状態やソフトマターが実現されれば、新たな学術領域が拓かれることが期待される。

2. 研究の目的

この状況を踏まえ、我々は、電子系の科学とガラスの科学を繋ぐ新しい学術領域“量子性のあるガラスの科学”の創成を目指す。特に電子系が従来のソフトマターと本質的に違う点（量子性を有する、電荷とスピンの自由度を有する、舞台が結晶格子である）に注目し、(i)量子性ガラスの探索、(ii)電子レオロジーの確立、(iii)電子系ガラスの制御を研究項目に設定して、ハードな固体の中に非平衡・非線形・量子性を有するソフトな電子のガラスの世界を築き、電子系が得意とする相制御を通じて物性科学への展開を図る。

3. 研究の方法

本研究は実験物理、物質開発、理論物理の3つのグループの連携で推進される。実験物理グループは、電子輸送特性、NMR、走査型顕微分光等の測定によって、電子ガラス候補物質の電子的揺らぎの時空間構造を明らかにすると共に、外場に対する応答を分子スケールで調べ、レオロジーへの展開と非平衡相を利用した新奇な相制御を目指す。物質合成グループは、分子内の原子置換や化学修飾により、格子の幾何学的フラストレーションと電子相関を制御し、電子系ガラスの舞台を設計合成する。また、プロトンの運動自由度や分子の回転自由度が電子と結合した新奇な電子系ガラス、ソフトマターの創出に挑む。理論グループは、主に電子系のガラス状態をガラス転移物理の観点からモデル化し、数値解析と理論解析により電子系ガラスに発現する遅いダイナミクスの起源を解明すると共に、電子レオロジーの現象論を構築する。

4. これまでの成果

(i) 量子性ガラスの探索

遍歴電子ガラスと量子融解：2等辺三角格子系 $\theta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Xにおいて、フラストレーションが強くなる程電子ガラス相における電子の遍歴性（量子性）が強くなり、遂には電子ガラスが量子融解すること、また、電子ガラス相が2次元伝導層に強く閉じ込められた電子流体となっていることを明らかにした。電荷分布密度：ラマン分光スペクトルの解析により、電子ガラスのサイト電荷密度が金属（ $\rho=0.5$ ）と電子結晶（ $\rho=0.2, 0.8$ ）の間の連続的な分布関数を持つことが明らかとなり、

ガラスの波動性が検証された。

**電子ガラス能と揺らぎの減速**：一連の  $\theta$ -(ET)<sub>2</sub>X に対し kHz 帯の電荷揺らぎを NMR で調べた結果、温度降下による揺らぎの減速のし方が電荷秩序転移とガラス化を分けることが明らかになった。

**電子グリフィス相**：1 次のモット転移が乱れによって抑制され、電荷の量子臨界揺らぎが低エネルギー化すること、さらに、Mott 境界において電子の運動が通常の固体中に比べて  $10^6 \sim 10^8$  倍も遅くなる「電子グリフィス相」が現れることを明らかにした。

**バレンスボンドガラス**：バレンスボンドを内包する新奇なスピン状態を 2 例見出した。反強磁性磁気秩序が乱れにより崩壊しスピンガラスを経てスピン液体へと変わる過程でバレンスボンドと孤立スピンの生成されること、また、電子ガラスがランダムなバレンスボンド系であることを明らかにした。

### (ii) 電子レオロジーの確立

外場に対する電子系の応答を微視的に調べるために、強電流パルス印加時の電子状態の時間変化を <sup>13</sup>C NMR で追跡する装置系を立ち上げ、強電流パルス下で電子ガラス系  $\theta$ -(ET)<sub>2</sub>CsZn の NMR 測定を行ったところ、NMR 線幅が振動する予想外の現象が観測された。電流と電圧の振動を伴わないことから、強い電子流の下で電子的不均一構造に前例のない粘弾性特性が発現している可能性がある。

### (iii) 電子系ガラスの制御

**相制御**：メゾスケールで相分離しガラス的な挙動を示す巨大磁気抵抗物質 Nd<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>MnO<sub>3</sub> に電流パルスを印加することにより、反強磁性絶縁相（熱力学安定相）と強磁性金属相（準定常非平衡状態）との間で可逆かつ不揮発な相制御を達成した。これは相変換の時間スケールに着目した新規な相制御法である。

**物質制御**：プロトンと電子の運動が結合する分子性物質  $\kappa$ -X<sub>3</sub> (Cat-EDT-TTF)<sub>2</sub> の水素体 (X = H) と重水素体 (X = D) を開発し、電場に対する非線形応答を調べた結果、プロトンの秩序-無秩序転移と電子相転移が結合する重水素体においてのみヒステリシスを伴うガラス的な挙動が観測され、ラマン分光により、この挙動が電場誘起のプロトン電子結合準安定相の生成に起因することが示唆された。

**(vi) 電子ガラスのモデル化**：電子ガラスの最も素朴なモデルとして、三角格子上のクーロン粒子系に注目し、ガラス物理の立場からエネルギー地形と動力学的数値解析を行った。その結果、特徴的な温度を境に、系がエネルギー地形の深い谷にトラップされはじめ、同時に動力学が遅化することがわかった。これは、過冷却液体のガラス化と同様の挙動であり、電子系と古典系のガラスに見られる遅い動力学が普遍的な起源をもっていることを示唆している。

## 5. 今後の計画

**(i) 量子性ガラスの探索** 電子の遍歴性（量子性）と動的不均一性との関連を電子ガラス物質の加圧下（バンド幅制御）NMR 実験で、電子グリフィス相における遅い揺らぎと量子揺らぎとの関連を極低温 NMR 実験で明らかにする。また、電子ガラスと電子結晶の界面の電子状態をラマン分光で明らかにする。

**(ii) 電子レオロジーの確立** 強い電流の下で電子ガラスが見せる不均一構造の特異な振動現象と、乱れのあるモット転移近傍における電流誘起非線形領域の電荷揺らぎの消長を、電流、温度可変のパルス電場下 NMR 測定と輸送特性の測定で明らかにする。

### (iii) 電子系ガラスの制御

巨大磁気抵抗物質における反強磁性絶縁相（安定相）と強磁性金属相（非平衡準安定相）との不揮発相変換機構を、走査型プローブ顕微鏡による実空間実時間観測で解明する。また、プロトン-電子結合系  $\kappa$ -H<sub>3</sub> (Cat-EDT-ST)<sub>2</sub> を物理的及び化学的圧力の下で調べ、ダイマーモット相、電荷秩序相、超伝導相と電子ガラスの相互の関係を明らかにする

**(vi) 電子ガラスのモデル化**：電子ガラスモデルの遅い動力学と電荷秩序形成過程の解析を行う。また、Soft Glassy Rheology モデル (SGM) に基づき、電子ガラスの非線形応答を解析し、非線形性の起源を明らかにする。

6. これまでの発表論文等（受賞等も含む）

● T. Sato, K. Kitai, K. Miyagawa, M. Tamura, A. Ueda, H. Mori, K. Kanoda, “Strange metal from a frustration-driven charge order instability”, *Nature Mat.* **18**, 229-233 (2019).

● R. Takehara, K. Sunami, K. Miyagawa, T. Miyamoto, H. Okamoto, S. Horiuchi, R. Kato, and \*K. Kanoda, “Topological charge transport by mobile dielectric-ferroelectric domain walls”, *Sci. Adv.* **5**, eaax8720-1-7 (2019).

● R. Yamamoto, T. Furukawa, K. Miyagawa, T. Sasaki, K. Kanoda, T. Itou, “Electronic Griffiths Phase in Disordered Mott-Transition Systems”, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 046404-1-6 (2020).

● M. Urai, K. Miyagawa, T. Sasaki, H. Taniguchi, K. Kanoda, “Quantum disordering of an antiferromagnetic order by quenched randomness in an organic Mott insulator”, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 117204-1-6 (2020).

● 鹿野田一司、文部科学大臣表彰 科学技術賞、2019年3月

● 賀川史敬、第40回本多記念研究奨励賞、2019年2月

7. ホームページ等: [http://park2014.itc.u-tokyo.ac.jp/kanoda\\_lab/](http://park2014.itc.u-tokyo.ac.jp/kanoda_lab/)