

令和 5 年 6 月 6 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H01833

研究課題名(和文) 強相関パイ電子-分子格子ダイナミクスが誘起する分極性量子液体相

研究課題名(英文) Dipolar quantum liquid phase induced by dynamics of strongly correlated pi-electrons and combined molecular lattice

研究代表者

佐々木 孝彦 (Sasaki, Takahiko)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：20241565

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、BEDT-TTF分子系分子性有機導体が特徴的に有する階層的な分子内振動分子格子振動(フォノン)ダイナミクスと強相関パイ電子系電荷/スピン自由度の結合が生み出す新しい量子液体状態、すなわち、フォノンがアシスト・増強する分極自由度を伴ったダイポール液体や量子スピン液体の開拓と解明を目的とした。量子スピン液体物質および反強磁性モット絶縁体について熱中性子炉(ILL, フランス)における非弾性中性子散乱実験を海外研究協力者と共同して実験実施した結果、それぞれの物質において、フォノン線幅の異常からパイ電子の電荷・スピンドイナミクスと結合したフォノンダイナミクスの重要性を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の実施により明らかになった強相関系分子性有機導体におけるパイ電子電荷・スピンドイナミクスと結合したフォノン異常についての成果は、量子スピン液体や電荷ガラス状態などの量子的なパイ電子の振る舞いにおける階層的な分子格子構造の重要性を明確に示したものである。また、将来、高分子系・生体系などのさらなる複雑な分子格子系を有する有機物質の電子物性・信号伝達機構の解明や有機デバイス開発研究などにおいても、格子系ダイナミクスを取り込んだ有機フォノンサイエンスの礎としての意義を有する成果である。

研究成果の概要(英文)：In this study, we aim to explore novel quantum liquid states, i.e., electron dielectric and dipole liquids, charge glasses, and spin liquids with phonon-assisted and phonon-enhanced polarization degrees of freedom, produced by the coupling of the hierarchical intramolecular vibration-lattice vibration (phonon) dynamics characteristic of BEDT-TTF molecular conductors with the strongly correlated pi-electron charge and spin degrees of freedom. The quantum spin liquid material k -(BEDT-TTF) $2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ and the antiferromagnetic Mott insulator k -BEDT-TTF) $2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Cl}$ have been investigated at ILL thermal neutron reactor in Grenoble, France. We have succeeded in measuring specific phonons coupled with pi-electron's charge and spin dynamics in collaboration with overseas collaborators in France and Germany. The phonon linewidth anomaly in each experiment reveals the importance of phonon dynamics.

研究分野：低温電子物性学

キーワード：分子性有機導体 量子スピン液体 ダイマーダイポール

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系分子性導体、特に分子ダイマー構造を有する BEDT-TTF 系電荷移動錯体においては、分子構造・結晶構造が有する柔軟な格子自由度と強相関パイ電子系の電荷・スピン自由度が複合交差して結合することで、超伝導を含む多彩な電子基底状態が、外部圧力、結晶構造などの制御・物質パラメータに対して出現する。このような物質群において 2000 年代初頭に、分子性ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ において幾何学的フラストレーションに起因する量子スピン液体状態の観測が報告された。以降、多様な理論提案との対比やスピン液体状態を検証する実験研究が活発に行われてきた。また、近年ではパイ電子の電荷間クーロン相互作用によるフラストレーションを起源とする電荷ガラス状態の実現とガラス化現象の一般化など、量子性を起源とした非自明・非秩序状態や非平衡状態の研究が注目されてきた。特に、電荷自由度による分極(ダイポール)形成とスピン液体状態出現の関連性から新たな電子誘電体を創出する可能性など、豊かな磁気誘電交差物性が期待されていた。

一方、柔らかい分子構造や分子結晶構造による特徴的な格子自由度の存在とパイ電子電荷・スピン自由度との結合が特異な誘電・磁気応答に関与していることが示唆されていた。実際、分子内プロトン量子トンネル運動によるスピン/電荷の量子液体化や電荷揺らぎによるフォノンのモーショナルナローイングの観測などから、分子系格子自由度と電荷/スピン量子物性の強い絡み合いが実験的に指摘されてきた。しかし、フォノン研究に重要な非弾性中性子散乱分光実験は、有機物質における単結晶試料準備・水素を多く含有する場合の実験の難しさなどから、1990 年代後半に行われた本研究代表者らによる報告の 1 例のみにとどまっていた。

このように、強相関分子性物質のパイ電子電荷・スピンドイナミクスが分子系の格子自由度と結合・交差した電子状態について、先端的な物性測定手法を駆使した新奇な物理現象探索・評価、機構解明を進めることが急務となっていた。

2. 研究の目的

現実の固体物質中では、電子系における電荷とスピンの量子性や相互作用に加えて格子系との結合やその寄与を考慮することが重要である。特に分子性物質の場合は、階層的な格子・フォノン構造との結合による低エネルギー電子-格子(フォノン)ダイナミクスの解明が重要であるが、これまで、実験、理論両面とも未到達な課題であった。

本研究における最大の目的は、分子性物質が示す電子物性の背後にある階層的フォノンの重要性を解き明かすことである。その結果として、分子振動やフォノンと階層的に結合したスピン/電荷系のゆらぎの増強により創出される量子液体状態の解明、そしてフォノン結合や分極性を起源とする量子液体創出への新ルート提案することが目標である。このような有機物質系におけるフォノン研究は、自然界の未解決問題の一つである物質状態としてのガラスとその形成に対して、固体結晶内パイ電子版の液体・ガラス研究として挑戦するものでもある。

この目標達成のために、分子性ダイマーモット系有機物質を対象とした実験研究計画において、以下の各項目を具体的な目的として設定した。

(1) 国際共同研究により海外熱中性子炉を利用した非弾性中性子散乱分光実験を実施し、分子格子フォノンの観測・解析をもとにしたパイ電子電荷・スピンと格子フォノンの結合による複合的パイ電子ダイナミクスの解明。

(2) エックス線照射による選択的な分子欠陥の人為導入によるランダムポテンシャルの形成・評価とモット絶縁体・電荷秩序絶縁体状態の融解によるパイ電子系非秩序電子相の創製

(3) 量子スピン液体、電荷液体・ガラス、電荷ダイポール液体などのパイ電子系量子的非秩序状態・クラスター状態に起因する局所的な分子構造・電荷ダイナミクスにより発生する伝導ノイズ-低周波数誘電応答の観測

これらの目的を達成するために、それぞれの項目に対応した実験実施また理論解析・モデル提案について研究分担者、研究協力者他、国内外の研究者との共同研究により研究実施する。

3. 研究の方法

(1) 分子性導体単結晶育成と物質パラメータ制御・基本物性評価および周辺新物質探索

本研究で必要となる良質単結晶試料作製のために、電解酸化合成法による結晶育成条件の最適化、合成試薬の精製度向上などを研究協力者(米山(山梨大))と行う。良質単結晶育成ノウハウのこれまでの研究蓄積から、必要とされる高品質で十分なサイズの単結晶作製が可能である。特に非弾性中性子散乱実験で必要とされる、大型の単結晶また分子中の水素を重水素化した重水素化単結晶の育成を重点的に行う。あわせて、結晶育成中に生成される副次的多型結晶について、物性評価を行い新たな周辺物質探索をおこなう。

また研究目的(2)として物質パラメータ制御の一つとしてエックス線照射によるディスオーダー導入を行う。

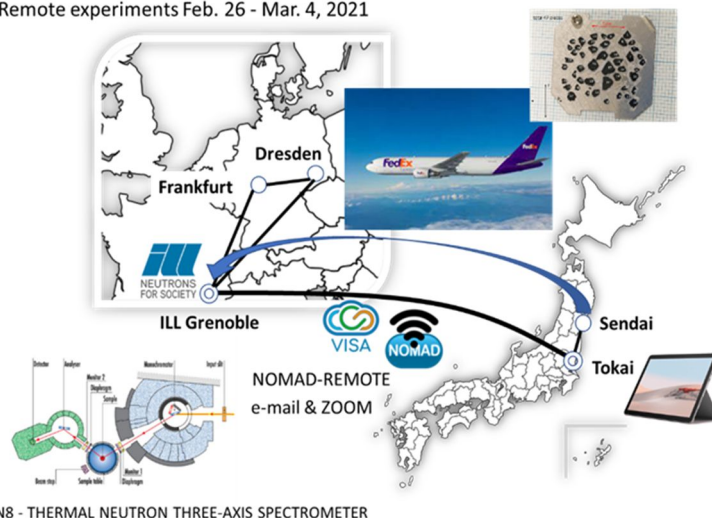
(2) 非弾性中性子散乱分光実験によるフォノンとスピン/電荷結合関連の観測

電荷/スピン自由度と結合した格子系ダイナミクスの観測のために非弾性中性子散乱分光実験

を欧州熱中性子実験施設 (ILL(仏), FRM-II(独)等)において行う。具体的には,反強磁性ダイマーマット絶縁体物質である κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl の磁気転移点近傍での分極異常やスピン液体物質である κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ のリラクサー的誘電異常と特定フォノン異常の観測・相関解明を目指す。中性子散乱実験は,研究分担者(松浦)と海外協力者(ドイツ,フランス)の共同により実施し,研究代表者,協力者が参加する。

本研究期間中において,新型コロナウイルスの拡大のため,当初に計画していた海外研究炉(ドイツ,フランス)に代表者,分担者が直接に出張しての実験実施が不可能になった。このため,研究炉サイトの海外研究協力者の協力を仰ぎ,日本で複数の単結晶試料の方位を出して試料ホルダーへのセッティングを行い,ホルダーを国際宅急便で送付し,現地と日本をオンラインオペレーションで結び,日本から分光器操作を行う遠隔実験を行った(図1)。オンラインミーティングを併用して現地協力者との連携をとりながらの実験実施となった。

Remote experiments Feb. 26 - Mar. 4, 2021



IN8 - THERMAL NEUTRON THREE-AXIS SPECTROMETER

図1 海外熱中性子炉による完全オンラインリモート実験。方位を揃えてセッティングした試料ホルダーを国際宅急便で送付し,現地協力研究者に実験準備を依頼し,日本からリモートで装置稼働・運転操作を行った[3]。

(3) 分子性有機結晶に対するエックス線照射分子欠陥導入と評価

分子欠陥,構造乱れの研究における重要なポイントは,導入した欠陥や乱れを正しく評価するために,導入以外の欠陥,乱れを極力少なくした良質試料を準備することである。研究代表者はこれまでの結晶育成実績から欠陥,乱れが十分に少ない結晶を作製する試料精製・電解合成技術を有している。本研究では,代表者により開発されたエックス線照射による選択的分子欠陥の導入方法により精度の高い連続した乱れ(照射量)制御を行う。照射装置に可動マスクとその位置制御機構を設けて,単結晶試料中に連続した照射量の傾斜分布を照射時間コントロールにより導入する。

エックス線照射により選択的に分子欠陥が特定部位にできる場合には,対応する分子振動が変化することが期待される。これまでの研究から,照射前後で特定の振動(-CN結合部)が影響を受けていることが分かっている。この分子欠陥部位,分子振動の特定・同定を実験室系での赤外分光により行う。試料が微小で,かつ平板状結晶の薄い側面での分光が必要となるため,一部の実験は高輝度放射光施設 SPring-8 の BL43IR 赤外物性ビームラインを使用する。

(4) 伝導ノイズ・低周波数誘電率測定による電荷ガラス・クラスター状態での動的性質の観測

電荷ガラス・ダイポール状態では,誘電特性にガラス的な低速度の長時間応答があらわれることが期待される。この時の電荷ゆらぎに関する低周波数誘電スペクトル測定により誘電率データを取得する。同時に赤外分光による分子振動,フォノン情報との相関からガラス・クラスターの動的状態とフォノンの連動性を明らかにする。このような分子-格子振動を伴うダイナミクスは特徴的な電子ノイズを発生する。J. Mueller 教授(フランクフルト大)とノイズ測定装置,解析方法開発に関して協力し,電荷ガラス・クラスターのフォノン増強-動的不均一状態を明らかにする。

(5) 実験結果の統合,とりまとめと物理モデル化のための理論検討

研究分担者(中)が中心となり代表者,分担者と共に実験結果の統合的な解析を行う。フォノンと電荷ダイナミクスそれぞれの情報を相図上にマップし臨界性やゆらぎ,量子液体出現とフォノン異常の相関性を明らかにし,理論モデルの構築を行う。

4. 研究成果

(1) 分子性導体単結晶育成と物質パラメータ制御・基本物性評価および周辺新物質探索

本研究で必要となる BEDT-TTF 系分子性有機物質の単結晶育成を電解酸化合成法により継続的に行った。特に,非弾性中性子散乱実験で必要となる大型単結晶,および中性子実験をおこなう上で悪影響を及ぼす水素を重水素に全置換した重水素化単結晶の育成に成功した。これらの単結晶育成と並行して周辺の新物質探索を行った結果, κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl 単結晶育成時に,その副生成物として得られた針状単結晶について物性評価を行った[1]。その結果,この針状

結晶は、BEDT-TTF系分子性有機物質としては極めてまれなドナー・アクセプター分子の構成比が1:1のモノマーモット絶縁体(BEDT-TTF)Cu[N(CN)₂]₂であることがわかった。この物質は3次元ダイヤモンド格子上のBEDT-TTF分子が強い異方性を有して1次元ジグザク配列を形成している。このダイヤモンド格子構造を反映して、ディラック的な線形分散を有するフェルミ線を有していることが強結合近似および第一原理計算のよるバンド構造計算により明らかになった。さらに、低温での静磁化測定、ESR測定の結果から25K以下で非磁性状態となっていることがわかった。1次元ジグザク配列構造から、BEDT-TTF分子上のスピが一重項状態となるスピン-パイエルズ転移していることを予測した [1]。今後、精密な結晶構造解析を行うことで、パイエルズ転移的な結晶構造の変化の有無についての実験検証を進める計画を進めている。

**(2) 中性子散乱実験による電荷・スピンドイナミクスと結合した分子フォノンモードの観測
反強磁性ダイマーモット絶縁体κ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl の電子誘電性と結合した格子励起の発見 [2]**

本研究では、世界で最も高い中性子フラックスを誇るフランスラウエ・ランジュバン研究所のIN8分光器とドイツ研究用原子炉FRM2のPUMA分光器を用いて、電子強誘電性を示す候補の一つである分子性有機物質κ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Clの格子励起を精密に測定した(図2)。その結果、2.6 meV付近に観測される格子励起の減衰因子(格子励起シグナルのエネルギー幅)が60K以下で顕著に増大し、格子励起の寿命(エネルギー幅に反比例)が極めて短い異常な状態(過減衰状態)にあることを発見した。このことは格子と結合した揺らぎがこの温度以下で発達することを明らかに示している。50-60K以下で物質中を動き回っていたパイ電子がBEDT-TTF 2分子からなる二量体内に閉じ込められているが、このユニット内でパイ電子には、どちらかの分子に偏るといふ運動の自由度は残ることから、パイ電子の局在化とともに生じる減衰因子の増加は、格子励起とパイ電子の動きとが密接に関係しあっていることを強く示唆しているものである。さらに、異常に減衰した格子励起がパイ電子のスピや電気分極が秩序化する27K以下で通常の状態に戻ることは、格子励起はパイ電子のスピとも結合していることを示している。このように、格子励起の異常という現象を通じて、パイ電子由来の微視的な電気分極の揺らぎが生じていることを解明することに成功した。また、通常の強誘電体では、過減衰した格子励起のシグナル強度が相転移温度に向けて発散するが、本物質では発散を示さないことがわかった。更に、通常の強誘電体で見られる転移温度以下での格子の対称性の低下が、本物質では見られないことも大強度陽子加速器施設物質・生命科学実験施設の単結晶中性子回折装置「千手」での実験から明らかにした。これらの振る舞いも、分子性有機物質κ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Clが示す誘電性がパイ電子由来であることを示している。(プレスリリース 2019年8月8日)

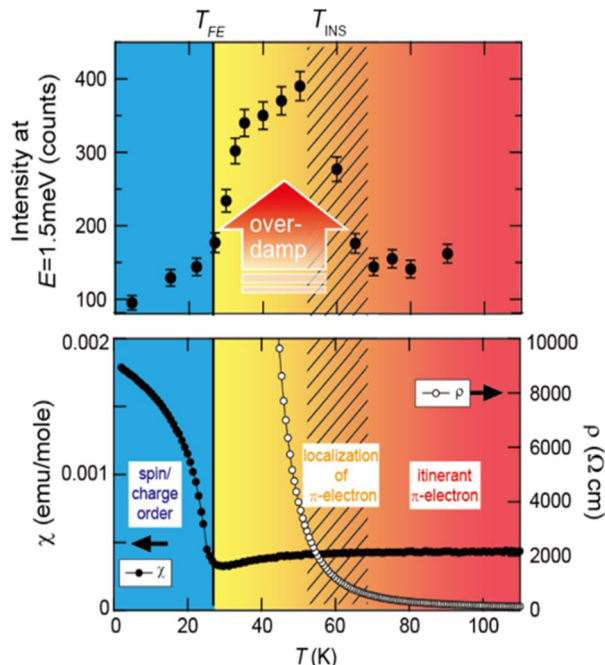


図2 (上) 中性子非弾性散乱で測定した格子励起の減衰因子の温度依存性 (下) 電気抵抗率と磁化率の温度依存性 [2]。

量子スピン液体候補物質κ-(BEDT-TTF)₂Cu(CN)₃ のパイ電子のゆらぎと絡み合った分子格子振動の特異な温度依存性の観測 [3]

本実験では、合計47個(総重量約27mg)の重水素化κ-(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃単結晶を育成し、結晶の軸を10度以内に揃えた試料セットを準備した。更に、世界で最も強い中性子線束を誇るフランスラウエ・ランジュバン研究所のIN8分光器を用いることで、世界で初めてκ-(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃から明瞭な中性子非弾性散乱による格子振動のシグナルを得ることに成功した。

実験では、BEDT-TTF分子二量体のbreathing(息継ぎ)モードと考えられる4.7 meVの光学モードが6K以上で強い過減衰状態にあり、6K以下では急激に線幅が装置分解程度まで狭くなり、常

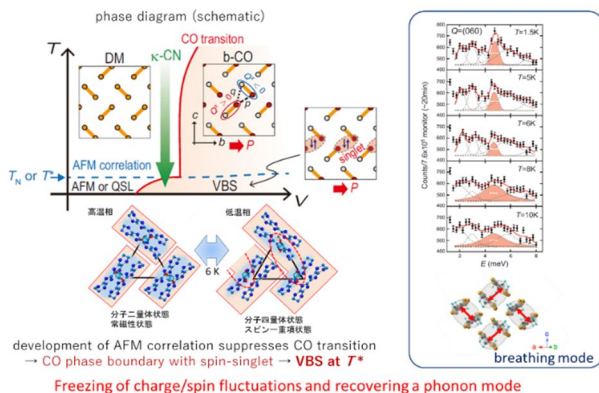


図3 (左)理論モデルによる状態図 (右)breathing modeの6Kにおける線幅の変化 [3]

減衰状態に変化する振る舞いを観測した。(図3右)この BEDT-TTF 分子二量体の breathing モードは、反強磁性ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl と κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ で共通して、パイ電子の状態変化と密接に関係しており、パイ電子と breathing モードの結合はダイマーモット分子性有機導体に共通する性質であることを明らかにした。また、この温度変化を二量体内の電荷の偏りを考慮した理論モデルと比較することにより、6 K 以下ではこれまで議論されてきた量子スピン液体状態ではなく、BEDT-TTF 分子が四量体を組むスピン重項状態が 6 K 以下で形成されることが示唆された。(図3左) (プレスリリース 2022 年 12 月 28 日)

(3) 分子ダイマーモット反強磁性絶縁体へのディスオーダー導入による非秩序電子相の創出 [4,5,6]

反強磁性ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl に対して、実験室系エックス線源 (タングステン管球) による白色エックス線を照射することにより、アニオン層-CN 基に選択的な分子欠陥を導入することで、パイ電子系に対するランダムディスオーダーの導入に成功した。この結果、長距離反強磁性状態が消失し、非磁性絶縁体状態に転換することができた。この比磁性状態は、量子スピン液体的な性質を有することから、異方性三角格子系におけるランダムネス誘起による量子的スピン液体の生成に成功したものである。また、この非磁性状態においては特異な長時間磁気緩和が観測され電子系グリフィス相となっていることを提案した。

(4) 三角格子フラストレーションによる電荷ガラス・クラスターが誘起するゆらぎ伝導ノイズ [7,8,9]

電荷秩序系 α -(BEDT-TTF)₂MM'(SCN)₄ 電荷移動錯体における、電荷ガラス・クラスター状態を特徴づける低周波数伝導ノイズ測定に成功した。高温金属状態と低温電荷秩序絶縁体状態の境界温度域において、ガラス的な挙動を示す伝導状態が観測されている。この状態ではガラス化過程におけるドメイン・クラスター形成とその動的状態が予想されていたがこのダイナミクスを伝導ノイズとして検出することに成功した。

<引用文献>

- [1] Monomer Mott Insulator (BEDT-TTF)Cu[N(CN)₂]₂ as a Potential Nodal Line System, N. Yoneyama, M. K. Nuryadin, T. Tsumuraya, S. Iguchi, T. Takei, N. Kumada, M. Nagao, I. Tanaka, T. Sasaki, J. Phys. Soc. Jpn. **91**, 113704-1-4 (2022).
- [2] Phonon renormalization effects accompanying the 6 K anomaly in the quantum spin liquid candidate κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃, M. Matsuura, T. Sasaki, M. Naka, J. Mueller, O. Stockert, A. Piovano, N. Yoneyama and M. Lang, Phys. Rev. Res. **4**, L042047-1-6 (2022).
- [3] Lattice dynamics coupled to charge and spin degrees of freedom in the molecular dimer-Mott insulator κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl, M. Matsuura, T. Sasaki, S. Iguchi, E. Gati, J. Mueller, O. Stockert, A. Piovano, M. Bohm, J. T. Park, S. Biswas, S. M. Winter, R. Valenti, A. Nakao and M. Lang, Phys. Rev. Lett. **123**, 027601-1-6 (2019).
- [4] Quantum disordering of an antiferromagnetic order by quenched randomness in an organic Mott insulator, M. Urai, K. Miyagawa, T. Sasaki, H. Taniguchi and K. Kanoda, Phys. Rev. Lett. **124**, 117204-1-6 (2020).
- [5] Electronic Griffiths phase in disordered Mott-transition system, R. Yamamoto, T. Furukawa, K. Miyagawa, T. Sasaki, K. Kanoda and T. Itou, Phys. Rev. Lett. **124**, 046404-1-6 (2020).
- [6] Emergence of unconventional spin glass-like state in κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl by introducing weak randomness, R. Yamamoto, T. Furukawa, K. Miyagawa, T. Sasaki, K. Kanoda and T. Itou, Phys. Rev. B **104**, 155107-1-7 (2021).
- [7] Formation of nanoscale polarized clusters as precursors of electronic ferroelectricity probed by conductance noise spectroscopy, J. Mueller, S. Iguchi, H. Taniguchi and T. Sasaki, Phys. Rev. B **102**, 100103(R)-1-5 (2020).
- [8] Comparison of the charge-crystal and charge-glass state in geometrically frustrated organic conductors studied by fluctuation spectroscopy, T. Thomas, T. Thyzel, H. Sun, J. Mueller, K. Hashimoto, T. Sasaki, H. M. Yamamoto, Phys. Rev. B **105**, 205111-1-12 (2022).
- [9] Involvement of structural dynamics in the charge-glass formation in strongly frustrated molecular metals, T. Thomas, Y. Saito, Y. Agarmani, T. Thyzel, K. Hashimoto, T. Sasaki, M. Lang and J. Mueller, Phys. Rev. B **105**, L041114-1-6 (2022).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Thomas Tatjana, Saito Yohei, Agarmani Yassine, Thyzel Tim, Lonsky Martin, Hashimoto Kenichiro, Sasaki Takahiko, Lang Michael, Mueller Jens	4. 巻 105
2. 論文標題 Involvement of structural dynamics in charge-glass formation in strongly frustrated molecular metals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L041114-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.L041114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Uji Shinya, Terashima Taichi, Sugiura Shiori, Iguchi Satoshi, Sasaki Takahiko, Hashimoto Kenichiro, Shimozawa Masaaki, Yoneyama Naoki, Kato Reizo	4. 巻 90
2. 論文標題 Magnetic Torque due to Anisotropic Diamagnetism in Neutral BEDT-TTF Crystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 113708-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.113708	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yamamoto Riku, Furukawa Tetsuya, Miyagawa Kazuya, Sasaki Takahiko, Kanoda Kazushi, Itou Tetsuaki	4. 巻 104
2. 論文標題 Emergence of unconventional spin glass-like state in k -(ET) ₂ Cu[N(CN) ₂]Cl by introducing weak randomness	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155107-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.155107	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ang Artoni Kevin R., Marumi Riho, Sato-Tomita Ayana, Kimura Koji, Happo Naohisa, Akagi Kazuto, Sasaki Takahiko, Hayashi Kouichi	4. 巻 103
2. 論文標題 Elucidation of local structure deformation in k -(BEDT-TTF) ₂ Cu[N(CN) ₂]Br by x-ray fluorescence holography	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214106-1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.214106	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Iguchi Satoshi, Yamada Syuhei, Kobayashi Ryota, Morita Koutaro, Kudo Yuki, Kurosu Megumi, Yoneyama Naoki, Ikemoto Yuka, Moriwaki Taro, Sasaki Takahiko	4. 巻 90
2. 論文標題 Charge Ordering and pi-d Interaction in Electron Doped 3/4-Filling Molecular System a ⁿ -(BEDT-TTF) ₂ Rb ₂ Co(SCN) ₄ (x = 0.6)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 074701-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.074701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kawakami Y., Amano T., Ohashi H., Itoh H., Nakamura Y., Kishida H., Sasaki T., Kawaguchi G., Yamamoto H. M., Yamamoto K., Ishihara S., Yonemitsu K., Iwai S.	4. 巻 11
2. 論文標題 Petahertz non-linear current in a centrosymmetric organic superconductor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 4138-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-17776-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Urai Mizuki, Miyagawa Kazuya, Sasaki Takahiko, Taniguchi Hiromi, Kanoda Kazushi	4. 巻 124
2. 論文標題 Quantum Disordering of an Antiferromagnetic Order by Quenched Randomness in an Organic Mott Insulator	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 117204-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.117204	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto Riku, Furukawa Tetsuya, Miyagawa Kazuya, Sasaki Takahiko, Kanoda Kazushi, Itou Tetsuaki	4. 巻 124
2. 論文標題 Electronic Griffiths Phase in Disordered Mott-Transition Systems	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 046404-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.046404	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ang Artoni Kevin R., Sato-Tomita Ayana, Shibayama Naoya, Umena Yasufumi, Happo Naohisa, Marumi Riho, Kimura Koji, Matsushita Tomohiro, Akagi Kazuto, Sasaki Takahiko, Sasaki Yuji C., Hayashi Kouichi	4. 巻 59
2. 論文標題 X-ray fluorescence holography for soft matter	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 010505-1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab5d55	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Matsuura Masato, Sasaki Takahiko, Iguchi Satoshi, Gati Elena, Mueller Jens, Stockert Oliver, Piovano Andrea, Bohm Martin, Park Jitae T., Biswas Sananda, Winter Stephen M., Valenti Roser, Nakao Akiko, Lang Michael	4. 巻 123
2. 論文標題 Lattice Dynamics Coupled to Charge and Spin Degrees of Freedom in the Molecular Dimer-Mott Insulator -(BEDT-TTF)2Cu[N(CN)2]Cl	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 027601-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.027601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Matsuura Masato, Sasaki Takahiko, Naka Makoto, Mueller Jens, Stockert Oliver, Piovano Andrea, Yoneyama Naoki, Lang Michael	4. 巻 4
2. 論文標題 Phonon renormalization effects accompanying the 6K anomaly in the quantum spin liquid candidate -(BEDT-TTF)2Cu(CN)3	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 L042047-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.4.L042047	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Yoneyama Naoki, Nuryadin Muhammad Khalish, Tsumuraya Takao, Iguchi Satoshi, Takei Takahiro, Kumada Nobuhiro, Nagao Masanori, Tanaka Isao, Sasaki Takahiko	4. 巻 91
2. 論文標題 Monomer Mott Insulator (BEDT-TTF)Cu[N(CN)2]2 as a Potential Nodal Line System	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 113704-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.113704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hashimoto Kenichiro, Kobayashi Ryota, Ohkura Satoshi, Sasaki Satoru, Yoneyama Naoki, Suda Masayuki, Yamamoto Hiroshi M., Sasaki Takahiko	4. 巻 12
2. 論文標題 Optical Conductivity Spectra of Charge-Crystal and Charge-Glass States in a Series of -Type BEDT-TTF Compounds	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 831-831
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst12060831	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Thomas Tatjana, Thyzel Tim, Sun Hungwei, Müller Jens, Hashimoto Kenichiro, Sasaki Takahiko, Yamamoto Hiroshi M.	4. 巻 105
2. 論文標題 Comparison of the charge-crystal and charge-glass state in geometrically frustrated organic conductors studied by fluctuation spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205111-1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.205111	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Mueller Jens, Iguchi Satoshi, Taniguchi Hiromi, Sasaki Takahiko	4. 巻 102
2. 論文標題 Formation of nanoscale polarized clusters as precursors of electronic ferroelectricity probed by conductance noise spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 100103(R)-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.100103	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 佐々木孝彦
2. 発表標題 エックス線照射により分子欠陥を導入した強相関有機超伝導体の赤外分光測定
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takahiko Sasaki
2. 発表標題 Inelastic neutron scattering experiments of quantum spin liquid molecular material
3. 学会等名 QLC meeting 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takahiko Sasaki
2. 発表標題 Lattice dynamics coupled to charge and spin degrees of freedom in the molecular dimer-Mott insulator
3. 学会等名 International Conference on Quantum Liquid Crystals 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takahiko Sasaki
2. 発表標題 Charge and spin cluster/liquid crystal state and superconductivity induced by coupling between phonon and the charge/spin liquid state in strongly correlated pi-electrons system
3. 学会等名 QLC A01 Kickoff meeting
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐々木孝彦, 佐藤直道, 古川哲也, 杉浦菜理, 井口敏, 米山直樹, L. Kang, 赤木和人, 池本夕佳, 森脇太郎
2. 発表標題 傾斜エックス線照射した分子性有機導体 k-(BEDT-TTF)2Xの赤外分光
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐々木孝彦, 井口敏, 池本夕佳, 森脇太郎
2. 発表標題 放射光赤外顕微分光による強相関電子系分子性物質の電荷ダイナミクスの研究
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takahiko Sasaki
2. 発表標題 Nanoscale polarized clusters in a molecular dimer-Mott insulator as precursors of electronic ferroelectricity probed by conductance noise spectroscopy
3. 学会等名 QLC meeting 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐々木孝彦, 佐藤直道, 米山直樹
2. 発表標題 分子性有機導体 $k-(d8-BEDT-TTF)_2Cu[N(CN)_2]Br$ のエックス線照射効果
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松浦直人, 小林亮太, 黒子めぐみ, 井口敏, 佐々木孝彦, Elena Gati, Benedikt Hartmann, Jens Mueller, Oliver Stockert, Michael Lang, and A. Piovano
2. 発表標題 ダイマーモット系 $-(BEDT-TTF)_2Cu[N(CN)_2]X$ ($X=Cl, Br$)における格子ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会(2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐々木孝彦, 佐藤直道, 古川哲也, 杉浦菜理, 井口敏, 米山直樹, L. Kang, 赤木和人, 池本夕佳, 森脇太郎
2. 発表標題 傾斜エックス線照射した有機超伝導体 $-(BEDT-TTF)_2Cu[N(CN)_2]Br$ の赤外分光
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会(2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 赤木和人, Artoni Kevin R Ang, Lijing Kang, 林好一, 佐々木孝彦
2. 発表標題 $-(BEDT-TTF)_2Cu[N(CN)_2]Br$ のX線照射欠陥モデルと分子動力学
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会(2020年)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>東北大学金属材料研究所低温電子物性学研究部門HP http://cond-phys.imr.tohoku.ac.jp/index.html</p>

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
研究分担者	松浦 直人 (Matsuura Masato) (30376652)	一般財団法人総合科学研究機構(総合科学研究センター(総合科学研究室)及び中性子科学センター(研究開発・中性子科学センター・主任研究員) (82121)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究分担者	中 惇 (Naka Makoto) (60708527)	東京電機大学・理工学部・准教授 (32657)	

	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
研究協力者	米山 直樹 (Yoneyama Naoki)	山梨大学・大学院総合研究部・教授 (13501)	

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			
	ドイツ	Goethe-University, Frankfurt	Max Planck-Institute fur CP f S	Heinz Maier-Leibnitz Zentrum, TU-Munchen
フランス	Institut Laue-Langevion			