

自己評価報告書

平成 23年 4 月 11日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008～2011

課題番号：20340085

研究課題名(和文) 照射分子欠陥を導入した強相関系有機導体におけるキャリア数制御とモット臨界性

研究課題名(英文) Control of carrier number and Mott criticality in strongly correlated organic conductors with molecular defects by irradiation

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

研究分野：低温物性実験

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：有機導体, 強相関電子系, 物性実験, 低温物性

1. 研究計画の概要

本研究の目的は、強相関物質のひとつである κ 型BEDT-TTF系有機モット絶縁体に対して、これまで困難であったモット転移のキャリア数制御を、エックス線照射による分子欠陥生成によって行うことである。バンド幅制御型モット絶縁体に対してキャリア数制御手法を確立することにより、多変数(バンド幅, キャリア数, 不均一)空間でのモット転移の臨界性と秩序相(超伝導, 反強磁性)の競合変化を明らかにすることができる。実験可能な変数を新たに導入することで、有機系モット絶縁体を舞台にした新超伝導体の創製を含むモット系物性開拓への新展開を図る。さらに有機物質で発現する多彩な強相関電子状態の不純物効果, たとえば, 電子相分離形成の実空間変調, 3角格子フラストレーション系でのスピン液体の凍結, 電荷秩序の融解などの未開拓な現象を発見, 操作することを目指す。

2. 研究の進捗状況

(1) エックス線照射による分子欠陥の生成制御と評価

新たな実験手法として, エックス線照射による分子欠陥の導入と制御方法の確立, および欠陥の評価を行なった。本研究費により照射欠陥生成専用の小型エックス線照射装置を導入し, 複数の試料に効率よく照射実験を行えるようになった。生成した分子欠陥の評価を行なうために, 照射量を制御した試料に対する ESR, 静磁化, 赤外分子振動測定を行い, 分子欠陥は主としてアニオン分子層内に 0.05%程度を上限とした量が導入されていることが明らかになった。この結果は伝導電子が存在する BEDT-TTF 分子層への直接的な分子欠陥乱れは生じず, アニオン分子層の分

子欠陥がポテンシャル乱れとして伝導電子に働く理想的な乱れ導入になっていることを明らかにした。

(2) 強相関電子状態に対する乱れの効果

強相関金属 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br に対して照射による分子欠陥, 乱れを導入した結果, 超伝導の抑制とともに, 乱れ誘起の電子局在が現れることを発見した。この絶縁体状態はアンダーソンの局在によるものであり, モット絶縁体とは異なることを遠赤外-赤外反射分光測定により明らかにした。また, この局在絶縁体状態に圧力を印加し, バンド幅を拡げ電子相間を弱めると再び金属状態が復活することを明らかにした。モット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl への乱れ導入がモット絶縁性を弱めることを考慮すると, 乱れによる電子局在は電子相間により増強されることを示すことができた。このような結果を踏まえてバンド幅とキャリア数に加えて乱れの程度をパラメータに加えた電子相図を提案した。

(3) 分子ダイマー構造が有する新たな電荷自由度

本研究の過程で, κ 型 BEDT-TTF 系有機モット絶縁体の分子ダイマー構造には, 本質的な電荷自由度が存在し, 電子誘電性が発現する可能性を提案した。

3. 現在までの達成度

② おおむね順調に進展している。

(理由)

本研究提案における最も重要な到達目標は, 強相関電子系における乱れの役割を電子相図として示すことである。このことに対して, 定性的ではあるが, モット転移に対して強相関側, 弱相関側の両方の領域で乱れが直

流電気伝導度に対して与える影響を再現性良く明らかにし、これを相図として示したことは評価できると考える。このような成果は有機物質系の多様な自由度と本研究により確立できた分子欠陥生成、評価手法によってはじめて得られたものである。

4. 今後の研究の推進方策

本研究をより完成させたものにするために、以下の2つの項目を重点的に推進する。

(1) 乱れの定量評価

乱れをパラメータに加えた電子相図の構築には、乱れの定量評価が必要である。このために金属側試料の乱れによる残留抵抗率の変化を測定する古典的な方法に加えて、磁気量子振動効果測定からより直接的に電子の寿命を実験的に得る方法を確立する。このことによりより定量化された乱れの比較を他の物質系や理論研究と比較できるようになる。

(2) 光学スペクトル測定に基づく低エネルギー状態の乱れによる変化の解明

本研究では、分子欠陥の導入による電子状態の変化を直流電気伝導度の変化から研究してきた。より詳細な電子状態変化に踏み込んだ研究を行うためには低エネルギー領域の状態スペクトルを得る必要がある。このために、今後、直流電気伝導度測定に加えて遠赤外-赤外領域での光学伝導度測定を行い、分子欠陥導入によるスペクトルウエイトの分布の変化を詳細に研究する必要がある。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計14件)

(1) Anomalous dielectric response in the dimer Mott insulator κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃.

M. Abdel-Jawad, I. Terasaki, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi, Y. Uesu and C. Hotta. Phys. Rev. B **82**, 125119-1-5 (2010). 査読有

(2) Magnetic Properties of X-ray Irradiated Organic Mott Insulator κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl.

N. Yoneyama, K. Furukawa, T. Nakamura, T. Sasaki, and N. Kobayashi.

J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 063706-1-4 (2010). 査読有

(3) Electron Localization near the Mott Transition in the Organic Superconductor κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br.

K. Sano, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi.

Phys. Rev. Lett. **104**, 217003-1-4 (2010). 査読有

(4) Thermal-transport measurements in a quantum spin-liquid state of the frustrated triangular magnet κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃.

M. Yamashita, N. Nakata, Y. Kasahara, T. Sasaki,

N. Yoneyama, N. Kobayashi, S. Fujimoto, T. Shibauchi and Y. Matsuda.

Nature Physics **5**, 44-47 (2009). 査読有

(5) Optical probe of carrier doping by x-ray irradiation in the organic dimer Mott insulator κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl.

T. Sasaki, N. Yoneyama, Y. Nakamura, N. Kobayashi, Y. Ikemoto, T. Moriwaki and H. Kimura.

Phys. Rev. Lett. **101**, 206403-1-4 (2008). 査読有

[学会発表] (計17件)

(1) 佐々木孝彦, 「分子性ダイマーモット絶縁体に現れる誘電異常」, 日本物理学会 2010年秋季大会 招待講演 シンポジウム「やわらかい電荷秩序の得意な誘電性・伝導性と外場制御」 2010年9月23日 (大阪府立大学).

(2) T. Sasaki, "Enhancement of localization effect near Mott transition in κ -(BEDT-TTF)₂X" (selected oral contribution).

International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2010, 2010.7.4-9, Kyoto International Conference Center.

(3) T. Sasaki, "Disorder effects on the Mott transition in organic conductors." (invited lecture) International Symposium on "Novel states in correlated condensed matter- from model systems to real materials- ", 2010.3.2-4, "Harnack-Haus, Berlin, Germany.

(4) T. Sasaki, "Metal-Insulator Transition induced by Disorders in Organic Superconductor κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br." (selected oral contribution)

The 8th International symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Ferromagnets (ISCOM 2009), 2009.9.12-17, Niseko, Hokkaido, Japan.

[図書] (計2件)

(1) T. Sasaki, Transworld Research Network Inc., Molecular Electronic and Related Materials -Control and Probe with Light- (Ed. T. Naito) , 2010, pp 99-116.

(2) 佐々木孝彦, (株) 講談社, 金属材料の最前線 ブルーボックス (B1643) (東北大学金属材料研究所編著), 2009, 316-345 ページ.

[その他]

ホームページ

<http://cond-phys.imr.tohoku.ac.jp/>