

令和 5 年 6 月 2 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03869

研究課題名(和文) 強相関ディラック電子系のバンド間磁場効果に関する実験的研究

研究課題名(英文) Experimental study on interband effect of magnetic field in strongly correlated Dirac electron 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) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では圧力下で線形分散を持つ有機導体 $\alpha$ -(BEDT-TTF) $213$ を対象とし、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とバンド間ホール効果の検出、これらの関連性の解明を目的とした。我々は反磁性を観測したものの試料一部の構造変化が懸念され、起源の断定には至らなかった。一方、最近見つかった常圧下ディラック電子系の類縁物質 $\alpha$ -(BETS) $213$ の磁気トルク測定を行い、特異な温度変化を観測した。これは低温でのディラック電子の反磁性の寄与を反映している可能性がある。また本物質において $3.5$  K以下で磁気秩序が形成される初めての証拠を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では強相関有機ディラック電子系 $\alpha$ -(BETS) $213$ において特異な磁気トルクの振舞いが観測され、磁気秩序の形成を示す初めてのデータを得ることが出来た。強相関のディラック電子は低温で反強磁性秩序を示すことが理論的に示唆されており、本研究で磁気秩序が観測された事は学術的に意義深い。また相対論的ディラック電子の特異な振舞いは従来のデバイス中の電子とは著しく異なり、エレクトロニクス分野への応用においてその基礎物性の解明は社会的にも大きな意義を持つ。

研究成果の概要(英文)：In this work, we focus on the organic conductor  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $213$ , which has linear dispersion under pressure, to detect giant orbital diamagnetism and interband Hall effect due to the interband effect of magnetic field peculiar to Dirac fermions, and to clarify the relation between them. Although we observed diamagnetism, there were concerns about structural changes in some of the samples, and we were unable to determine the origin. On the other hand, we measured the magnetic torque of a recently discovered analog of the Dirac electron system under ambient pressure,  $\alpha$ -(BETS) $213$ , and observed a peculiar temperature dependence. This may reflect the diamagnetic contribution of the Dirac electrons at low temperatures. We have also obtained the first evidence of magnetic order formation below  $3.5$  K in this compound.

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

## 1. 研究開始当初の背景

グラフェン中の“質量ゼロのディラック電子”は従来の固体中の電子とは大きく異なり、既存材料を凌駕する優れた性質を示すが、その多くは線形分散に起因する。グラフェンに始まる固体ディラック電子の研究は、近年ではトポロジカル絶縁体やディラック半金属等の物理へと拡大しており、国内外において精力的な研究が行われている。また、グラフェンとほぼ同時期にディラック電子の存在が確認された圧力下での有機伝導体  $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{I}_3$  では、グラフェンとは異なり強相関電子系が形成されていることから多様な相図が得られ、圧力制御によって電荷秩序相・有限質量のディラック相・質量ゼロのディラック相を網羅的に研究できる唯一の物質である。この特性を生かしてグラフェンとは異なる独自の方向性を持つディラック電子の研究を行うことが可能である。

固体中ディラック電子が示す最も顕著な振舞いの1つは巨大反磁性である。この効果は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、この現象がディラック電子系の場合に顕著になる「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、その起源が解明された[1]。バンド間磁場効果とは、電子が単一のプロットバンドに閉じ込められることなく異なるバンド間を行き来する効果であり、ベクトルポテンシャルによって生じた仮想的な電子・正孔対が軌道運動することにより巨大な軌道反磁性が現れる。

バンド間磁場効果は他の物理量に対しても影響を与えうる。特に近年、磁場中輸送現象であるホール効果において顕著な影響が現れることが明らかとなった[2]。この効果は反磁性磁化率と多くの共通点が見られ、バンド間ホール伝導度は反磁性電流と大きな関連性をもつことが示唆されている。バンド間磁場効果による軌道反磁性やバンド間ホール効果は理論的には示されているものの、特に質量ゼロのディラック電子においては実験的な研究がほとんどなされておらず、これらがどのような特徴や関連性をもって実測されるかが問題となっている。

## 2. 研究の目的

本研究では圧力下でディラック電子系が形成される有機伝導体  $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{I}_3$  の圧力下磁化率やホール伝導度を測定し、これらのバンド間磁場効果による影響や関連性を広い圧力領域において実験的に調べることを目的とする。本物質はバルク結晶としてはじめてディラック電子の形成が確認された系であるため、微小な試料体積しか持たないグラフェンではシグナル強度不足によりほぼ測定が不可能な磁気的性質の研究が可能である。

## 3. 研究の方法

本有機伝導体は高圧下においてのみディラック電子系が形成されるため、測定はすべて圧力下で行う必要がある。

### (1) 反磁性相の詳細な温度-圧力相図。

圧力下の磁化率測定では高感度測定が可能な磁場変調法を用いる。我々は圧力下での磁化率測定技術をすでに確立し、本物質において反磁性が観測されることが分かった。しかしながら系統的な測定には至っておらず、解明できていない現象も多い。そこで本研究では詳細な圧力依存性を測定し、電荷秩序相、有限質量・ゼロ質量ディラック電子相に移り変わる際の反磁性磁化率の様子を観測し、バンド間磁場効果の各相での振舞いを調べる。

### (2) 各相でのホール伝導度測定。

圧力下での精密なホール効果測定技術を確立し、バンド間磁場効果による特異なバンド間ホール伝導度、特にホール係数の大きな温度依存性や符号反転の再現性とその詳細を調べる。また各相でのホール効果測定□磁化率の実験結果や理論との比較を行い、特にまだ調べられていないギャップの開いた状態でのバンド間磁場効果と軌道反磁性との関連性を検証する。

## 4. 研究成果

### (1) 高圧下 $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{I}_3$ の軌道反磁性。

我々は現在までに本物質において電荷秩序相・有限質量のディラック相・質量ゼロのディラック相のすべての相において反磁性を観測し、その反磁性は高圧の質量ゼロのディラック相よりも低圧ほど顕著にみられることが分かった。この結果は予想に反するものであったが、フェルミエネルギーがディラック点から僅かにシフトしている事で説明可能であると考えていた。本研究ではまず始めに反磁性磁化率のさらに詳細な圧力依存性を明らかにすることを予定していたが、その後の調査によって、本物質は70度以上で数10時間アニールすることにより超伝導を示す類縁物質  $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{I}_3$  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る可能性が出てきた。そこ

でアニール前後で偏光顕微鏡像を観察し、構造変化が実際に起こるかどうかの考察を行った。現時点では構造変化の可能性を否定することが出来ないため、今まで観測されてきた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ことが分かった。

(2) 常圧下有機ディラック電子系  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の磁気物性。

研究当初はバンド間磁場効果による軌道反磁性とホール効果の関係を調べる予定であったが、当該物質において軌道反磁性観測の確認が得られなかったことから、近年常圧下でディラック電子系が形成されていることが報告された  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> [3,4]の磁気トルク測定を行い、本物質の磁性を検証した。その結果、トルク曲線の振幅が大きく温度変化することが分かり、SQUIDを用いた静磁化率の測定結果[5]と定性的に一致する結果が得られた。また、本物質では50 Kで金属-絶縁体転移が起こるが、その起源は未だ解明されていない。今回の磁気トルク測定により50 Kでトルクカーブの振幅が急激に変化する事が分かり、この転移が磁性に関連するものである事が示唆される。さらに3.5 K以下で複雑なトルクカーブが観測されることが分かり(図1)、磁気秩序の形成を示す初めての実験的証拠を得た[6]。

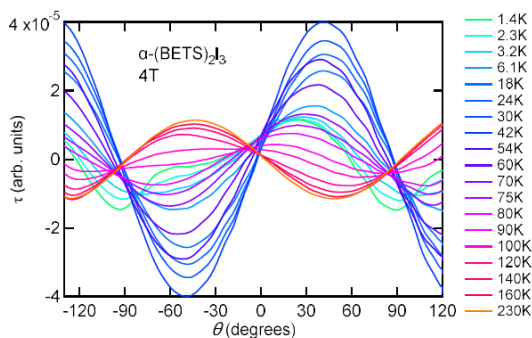


図1. 4 Tでのトルク曲線の温度依存性。

(3)  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の1軸ひずみによる物性制御。

$\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>では1軸圧力の印加によって静水圧下では見られない超伝導が観測されることや[7]、電荷秩序相からディラック電子相への相転移が1次転移として現われることが示唆されている[8]。そこで  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の1軸ひずみによる物性制御に着手した。測定には低温下で連続的な一軸性加圧および引張りひずみを加える事が可能なピエゾ駆動型装置(Razorbill社)を用いた。樹脂(スタイキャスト 1266)で自作した板に端子を付けた試料を埋め込むことで、0.3%程度の加圧・引張りひずみをスムーズに印加できるようになった。本手法を  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>に適用することにより電荷秩序相の制御に成功したが(図2)、ピストン型シリンダーをもちいたエポキシ法で観測された超伝導やディラック電子相の観測には至らなかった。本手法の利点は低温下で連続的に印加ひずみを変化させることで(試料を室温に戻す必要がない)相転移近傍を詳細に観測できることだが、ピエゾ素子の性能上印加可能なひずみの大きさがそれ程大きくないため、広範囲での1軸圧力下の電子状態の研究にはピストン型シリンダーを用いた手法との併用が必要である。

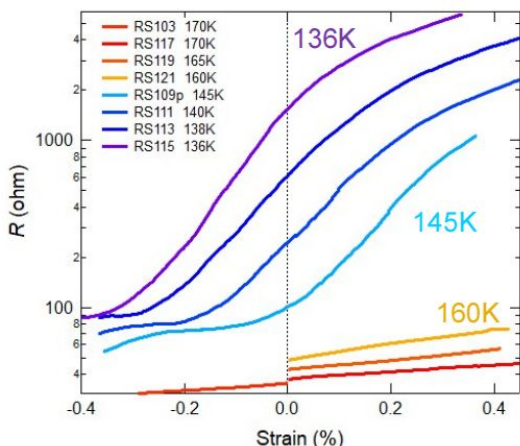


図2. 電荷秩序温度近傍の電気抵抗のひずみ依存性。

## References

- [1] H. Fukuyama, Prog. Theor. Phys. **45**, 704 (1971).
- [2] Y. Fuseya *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 012001 (2015).
- [3] S. Kitou *et al.*, Phys. Rev. B **103**, 035135 (2021).
- [4] T. Tsumuraya *et al.*, Eur. Phys. J. B **94**, 17 (2021).
- [5] S. Fujiyama, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **128**, 027201 (2022).
- [6] T. Konoike *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **91**, 043703 (2022).
- [7] N. Tajima *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 051010 (2006).
- [8] Y. Tanaka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 104706 (2016).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Konoike Takako, Terashima Taichi, Uji Shinya, Hattori Yuya, Kato Reizo	4. 巻 91
2. 論文標題 Magnetic Order in Organic Dirac Electron System $\alpha$ -(BETS)213	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 043703-1~4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.043703	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 KONOIKE Takako, UCHIDA Kazuhito, OSADA Toshihito	4. 巻 30
2. 論文標題 High Pressure Thermal Measurements in Organic Dirac Fermion System	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Review of High Pressure Science and Technology	6. 最初と最後の頁 274~280
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4131/jshpreview.30.274	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 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 鴻池貴子, 宇治進也, 服部裕也, 寺嶋太一, 山本薫
2. 発表標題 1軸引張・圧縮による $\alpha$ -(BEDT-TTF)213の電子状態の制御II
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鴻池貴子, 宇治進也, 服部裕也, 寺嶋太一, 山本薫, 加藤礼三
2. 発表標題 1軸引張・圧縮による $\alpha$ -(BEDT-TTF)213の電子状態の制御
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鴻池貴子, 宇治進也, 服部裕也, 寺嶋太一, 加藤礼三
2. 発表標題 有機ディラック電子系 $\alpha$ -(BEDT-TTF)2I3と $\alpha$ -(BETS)2I3の磁気トルク測定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022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 有機ディラック電子系の磁気物性
3. 学会等名 MANA International Symposium 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021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, 山本薫, 宇治進也
2. 発表標題 $\alpha$ -(BEDT-TTF)2I3の圧力下磁化率測定結果の解釈
3. 学会等名 日本物理学会2021年年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

SAMURAI NIMS Researchers Directory Service  
[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
---------	---------