

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009 年度～2010 年度

課題番号：21740247

研究課題名(和文) 多層ディラック電子系の熱物性に関する研究

研究課題名(英文) Thermodynamic study of multilayer Dirac electron system

研究代表者

鴻池 貴子 (KONOIKE TAKAKO)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：70447316

研究成果の概要(和文)：本研究では圧力下でグラフェンと同様の線形分散を持つディラック電子系が実現している有機導体 α -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ の圧力下比熱測定を行い、ディラック電子の示す特異な比熱の振る舞いを明らかにした。低温での温度依存性はおよそ $\propto T^2$ となり、磁場依存性は磁場とともに増加した後減少に転じ、その後飽和することが分かった。これらの振る舞いは線形分散に加えディラック電子系特有のゼロモード(ランダウ指数 $N=0$ のランダウ準位)とそのスピン分離を仮定するとうまく解釈でき、報告されている磁気抵抗の結果とも非常に良く対応している。

研究成果の概要(英文)：We have measured the specific heat of the organic conductor α -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ under pressure where the massless Dirac fermion system with linear energy dispersion is realized. In low temperature, the specific heat shows almost $\propto T^2$ dependence, and shows the peak and saturation in magnetic field. These behaviors are well understood by assuming the linear dispersion and $N=0$ Landau level characteristic of the Dirac fermion system. The results are also quite consistent with the reported magnetoresistance.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2010 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：分子性固体・有機導体、ディラック電子系、圧力、比熱測定

1. 研究開始当初の背景

2004年にA.K.Geimらがグラファイトから単一原子層のグラフェンを剥離することに成功して以来、世界中でグラフェンに関する精力的研究が続いている。これはグラフェンの非常に高い移動度や熱伝導度等を利用したエレクトロニクス分野への応用の期待に加え、グラフェンにおける電子系が“質量ゼロのディラック電子”として記述され、凝縮系物理学の分野に新たな舞台を提供したためである。この性質はグラフェンのバンド構造が特異な線形分散(ディラックコーン)をもつこ

とに起因しており、理論・実験ともに通常の2次元系とは異なる新奇な結果が報告されている。熱物性に関してもその特異な状態密度を反映した振る舞いが期待されるが、グラフェンは単一原子層で形成されているため実験的研究は非常に困難であり、特に比熱に関しては現在までに実験の報告は存在しない。

一方、近年名古屋大学のグループによって擬2次元的な層状物質である有機伝導体 α -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ においても圧力下で異方的なディラックコーンの存在が指摘され、現在も実験、理論の両方面から検証が進んでいる。

重要なことは、この系ではバルク結晶の状態
でディラック電子系が実現しており、グラ
フェンでは非常に測定困難な比熱測定を比較
的容易に行うことが可能な点である。

2. 研究の目的

α -(BEDT-TTF)₂I₃ は約 15kbar 以上の静水圧
を加えることによってはじめて Dirac 電子系
を実現することが出来る。圧力下の比熱測定
では、圧力媒体を通じて熱リークが生じるた
め、特に大きな結晶を得るのが難しい有機伝
導体の分野ではほとんど報告例がない。

そこで本研究では圧力下での有機導体単
結晶の比熱測定技術を確立するとともに、
 α -(BEDT-TTF)₂I₃ の圧力下比熱測定によって
ディラック電子系の示す新奇な熱物性を実
験的に解明することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 電解法を用いて α -(BEDT-TTF)₂I₃ の単結
晶を作製する。

(2) 本研究室において加圧システム系を立ち
上げる。

(3) 圧力下での比熱測定技術を確立する。
測定には文献 (O. Kubota and Y. Nakazawa,
Review of Scientific Instruments, 79, 05390
(2008).) を参照し感度の高い ac 法を採用す
る (図 1)。この際ヒーターの入力電流には
通常の sine 波ではなく方形波を用いること
でロックインアンプの 1F モードを使用し、高
感度測定を実現する。

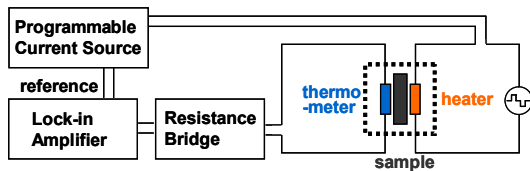


図 1. ac 法による比熱測定のプロックダイア
グラム。

(4) (1) で作製した α -(BEDT-TTF)₂I₃ 単結
晶の圧力下比熱測定を行う。

(5) 測定した比熱の温度依存性、磁場依存
性を解析し、ディラック電子系の比熱の振る
舞いについて議論を行う。

4. 研究成果

(1) 電解法により約 1 ヶ月間の結晶成長を
経て α -(BEDT-TTF)₂I₃ の単結晶作製に成功し
た。原料には BEDT-TTF 分子と再結晶により
精製した支持電解質 Tetrabutylammonium
triiodide を用い、溶媒には tetrahydrofuran もし
くはベンゾニトリルを使用した。

(2) 本研究室の超伝導磁石、クライオスタ
ットにセット可能なクランプ型圧力セルを
作製した (図 2)。セルの材質は CuBe または
MP35N を用い、ディラック電子系の実現に十
分な 16.5kbar の圧力を印加した。また、これ
と油圧ポンプを用いた加圧システムを立ち
上げた。

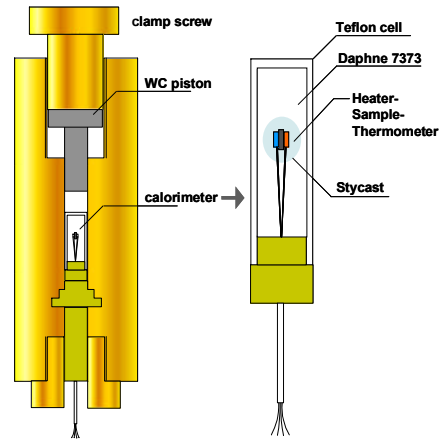


図 2. クランプ型圧力セルとカロリメーター。

(3) インジウムを参照試料として超伝導転
移での比熱異常の圧力依存性を測定し、圧力
下においても非常にシャープな転移を観測
することができた。これにより圧力下での比
熱測定技術を確立した。

(4) 上記を用いて α -(BEDT-TTF)₂I₃ の比熱測
定を行った。本測定法をチェックするため、
まず試料を圧力セルにセットした後、加圧す
る前に測定を行った。 α -(BEDT-TTF)₂I₃ は常圧
では 135K で電荷秩序 (CO) を起し絶縁化す
るが、圧力媒体が存在する状態でも CO によ
る明確な比熱異常を観測することに成功し、
またこの転移が加圧とともに低温側にシフ
トする様子も確認できた (図 3)。

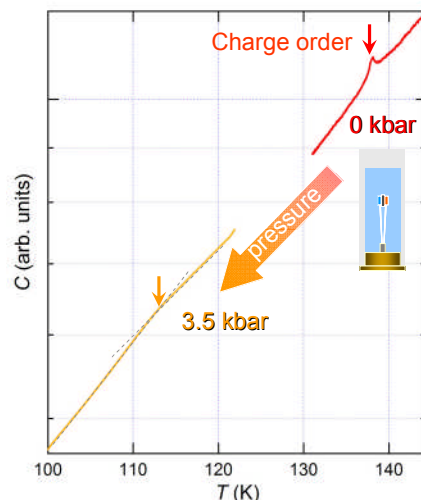


図 3. α -(BEDT-TTF)₂I₃ の常圧、3.5kbar での
比熱の温度依存性。

圧力下の比熱測定では、与えた熱が試料だけでなく圧力媒体の一部にも伝わるため、測定結果には一般に大きなバックグラウンド (BG) が含まれる。感度の高い交流法を用いた場合でも BG の大きさはヒーター・試料・温度計の接触具合や試料・圧力媒体の熱伝導率等によって変化するため、一般的な標準試料を用いても同一の BG にはならず、試料のみの寄与を抽出することは難しい。そこで今回は単結晶試料を割って同じ環境下で交流測定を繰り返すことによってほぼ同一の BG を実現し、2つの測定結果を差し引くことで α -(BEDT-TTF)₂I₃ の圧力下比熱を得た。

(5) 図4はディラック電子系が実現する高圧下 15kbar の測定結果で、低温での比熱の温度依存性が $\propto T^{1.8}$ となることを示している。これは線形分散を仮定した場合に期待される比熱の温度依存性 ($\propto T^2$) と良く一致している。また、グラフェンでは電子相関の影響により低温での比熱が対数的に抑制されるという理論的予測があるが、今回の測定範囲内ではそのような傾向は観測されていない (図4挿入図)。

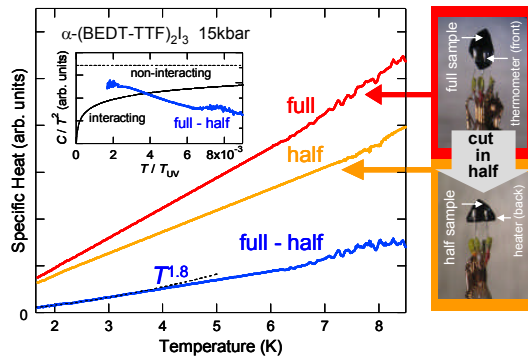


図4. α -(BEDT-TTF)₂I₃ の圧力下 15kbar での比熱の温度依存性。

高圧下での比熱の磁場依存性は、はじめ磁場とともに増加した後減少に転じ、その後飽和する様子が観測された (図5)。比熱はフェルミエネルギー E_F での状態密度(DOS)を反映するが、この振る舞いは以下のように解釈することができる。ディラック電子系では磁場を印加すると通常の2次元系とまったく異なるランダウ準位(LL)が形成され、特にランダウ指数 $N=0$ の LL (ゼロモード) が磁場強度によらず常に E_F に現れる。 α -(BEDT-TTF)₂I₃ では 0.2T 以上の垂直磁場下で E_F にゼロモードのみが存在する量子極限に達することが報告されている。ゼロモードの DOS は LL の縮重度を反映し、磁場に比例して増大する。一方、それぞれの LL はゼーマン効果によって磁場とともに上向きスピン、下向きスピンによる寄与が分離する (スピン分離)。これ

によりスピン分離の幅がゼロモードの幅よりも広がる高磁場では E_F での DOS が減少し、さらに2つの重なりがなくなる高磁場領域ではゼロに向かうことが予想される (図5挿入図)。今回観測された比熱はこのようなゼロモードの DOS を反映していると考えられ、すでに報告されている磁気抵抗の振る舞いとも非常によく対応している。また、スピン分離した後の磁場依存性はゼロモードの形状を直接反映していると考えられるが、今回のデータはゼロモードの幅の磁場依存性 ($\propto B^{1/2}$) を考慮するとガウシアンで非常に良く再現できている (図5破線)。

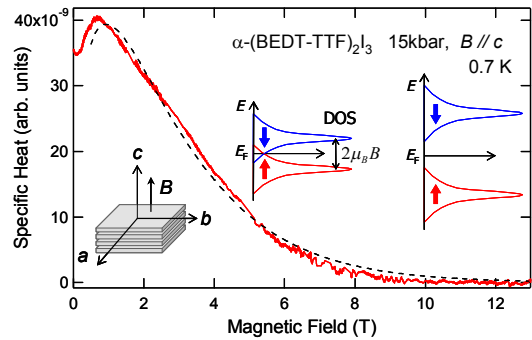


図5. α -(BEDT-TTF)₂I₃ の圧力下 15kbar での比熱の磁場依存性。

5. 主な発表論文等

(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2件)

① Takako Konoike, Kazuhito Uchida, and Toshihito Osada, Specific heat study of massless Dirac fermion system α -(BEDT-TTF)₂I₃ under pressure, Physica status solidi C, 査読有, Vol.9, 2012, pp.1177-1179.

② Takako Konoike, Kazuhito Uchida, and Toshihito Osada, Specific Heat of the Multilayered Massless Dirac Fermion System, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, Vol.81, 2012, 043601 (全4ページ). <http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/81/043601/>

[学会発表] (計4件)

① Takako Konoike, Specific Heat Study of Massless Dirac Fermion System α -(BEDT-TTF)₂I₃ under Pressure, The 9th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Ferromagnets (ISCOM2011), 2011/09/26, Collegium Europaeum Gnesnense (Gnieszno, Poland).

② 鴻池貴子, α -(BEDT-TTF)₂I₃ の圧力・磁場下比熱測定 II, 日本物理学会, 2011/09/21, 富山大学.

③ 鴻池貴子, α -(BEDT-TTF)₂I₃ の圧力下比熱測定, 日本物理学会, 2010/09/26, 大阪府立大学.

④ Takako Konoike, Thermodynamic Study of α -(BEDT-TTF)₂I₃ Under Pressure, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals (ICSM2010), 2010/07/08, 京都国際会館.

[その他]

ホームページ等

<http://osada.issp.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鴻池 貴子 (KONOIKE TAKAKO)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：70447316