

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2012

課題番号：23740257

研究課題名（和文） 多バンド系におけるディラック電子の熱輸送に関する研究

研究課題名（英文） Thermal transport of Dirac fermions in multiband 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、圧力下においてディラック電子系と通常の電子系の両方をあわせ持つ分子性導体 $\theta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ を対象として熱起電力の測定を行い、多バンド系でのディラック電子に焦点をあてた研究を行う。本研究には、まだ十分に確立していない圧力下熱輸送測定技術の開発を行うという意義もある。多バンド効果を理解するためには、まずディラック電子系のみを有する $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ の振る舞いを理解しておく必要がある。初年度の研究により、まず低周波 ac 法による常圧・圧力下での熱起電力測定系を立ち上げ、圧力下での $\alpha$ 型試料の熱起電力測定に成功した。とくに磁場下の測定では、ゼーベック効果を上回る強度のネルンスト効果が現れ、通常の金属とはまったく異なる振る舞いが観測された。このネルンスト信号は低温・磁場下で 1mV/K を超える非常に巨大な強度を示す。過去のデータと照らし合わせると巨大なシグナルは量子極限領域で観測されていることが分かり、これらはディラック電子系特有のランダウ準位の形成、とくにディラック点に形成される  $N=0$  のランダウレベル（ゼロモード）に関連していると考えられる。このように $\alpha$ 型試料において予想をはるかに上回る興味深いデータが得られたため、当初の目標であった $\theta$ 型に関する測定を保留し、最終年度も $\alpha$ 型試料に対する測定を継続して、この現象の解明を進めた。その結果、本物質で観測されたネルンスト効果は電子とホールが共存するゼロモードの本質的な特異性を反映していることが明らかとなった。巨大なシグナル強度の原因としては、本物質におけるクリーンな電子系によるシャープなランダウ準位幅とスピン分離によるギャップの存在が深く関わっていることが示唆される。

研究成果の概要（英文）：

The purpose of this work is to clarify the thermal transport of Dirac fermions in multiband system. The target material is the organic conductor  $\theta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ , which has both Dirac-cone band and usual parabolic band under pressure. To begin with, we study the thermal transport of  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  in which only Dirac-cone band exists.

We have measured the thermopower and Nernst effect of  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  under pressure. Because we obtained surprisingly interesting results in this system, we concentrated our research on this material. In the quantum limit region, the extremely large Nernst effect (>1mV/K) rather than the Seebeck effect was observed. This unusual behavior results from the intrinsic nature of the zero-mode ( $N=0$ ) Landau level characteristic of the Dirac fermion system. The possible origin of the giant Nernst signal compared with that of graphene is the sharp width of the Landau level and the Zeeman gap in high-purity  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  crystal.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	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、熱起電力測定

### 1. 研究開始当初の背景

2004年にA.K.Geimらが単一原子層のグラフェンの剥離に成功して以来、現在もお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もつ非常に高い電子移動度や熱伝導度を利用したデバイス応用への期待に加え、驚くべきことにその電子系が“質量ゼロのディラック電子”として記述され、凝縮系物理学に新たな舞台を提供したためである[1]。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、半整数量子ホール効果を初めとして理論、実験ともに新研究結果が続々と報告されている[2]。

2006年には分子性導体 $\alpha$ -(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[3]、現在も実験、理論の両方面からさまざまな検証が進んでいる[4]。この系はバルク結晶の状態ではディラック電子系が実現していることから注目され、単一原子層のグラフェンでは測定困難な現象もこの物質を用いることで実験的に検証できる可能性があり、今後もさらなる成果が期待される。

また、近年高い超伝導転移温度を持つことで話題になった鉄系超伝導体の母物質においても、SDW状態ではディラックコーンが実現していることが指摘され[5]、最近角度分解光電子分光によって実験的にもその存在が確認され大きな注目を集めている[6]。この系は上記2物質におけるディラック電子系とは異なり、多バンドで記述されるのが特徴的で、線形分散をもつディラック電子系と通常の分散をもつ電子系が混在している点で非常に興味深い(図1)。ディラック電子と通常の電子系では散乱確率が異なることから、この系では輸送係数が異常な温度依存性を示すことが指摘されている[7]。また、多バンドの効果は強磁性や非従来型超伝導状態の安定化のほか、高い超伝導転移温度の実現に寄与しているとの研究結果もあり、多くのバ

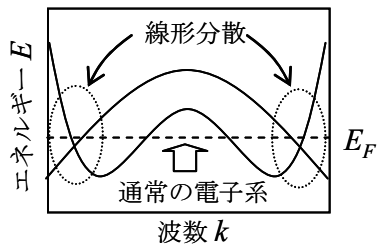


図1. 多バンドディラック電子系.

エティーンに富んだ物性の原因になることから、この効果がディラック電子系の示す物性にどのような影響をもたらすのか、非常に興味深い。

一方、分子性導体 $\theta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ においても圧力下で線形分散をもつディラック電子系と通常の分散をもつ電子系が混在していることが磁気抵抗測定から最近指摘された[8]。このように多バンド系として記述される点では上記の鉄系物質と類似しているが、この系ではフェルミエネルギー $E_F$ がちょうどディラック点に位置しており、また分子性導体は一般にバンド構造が単純で理論的考察にも適し、量子振動の観測も容易な良質な結晶を簡便に得られることから、ディラック電子系における多バンドの効果を研究する舞台としてはより理想的であると言える。また、類縁物質としてディラック電子系のみをもつ $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ が存在するため、これらの比較から多バンドの効果をよりの確に示すことが可能である。

従って本研究では $\theta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ をターゲットとして特にその熱輸送現象を測定し、電気抵抗や $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ の結果との比較からディラック電子系における多バンドの効果の解明を目指す。また、本研究は分子性導体の分野ではまだ十分に確立していない圧力下での高感度熱輸送測定技術開発への挑戦という意味でも大きな意義がある。

### 2. 研究の目的

#### (1) 圧力下熱輸送現象測定技術の確立.

$\theta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ では5kbar以上の加圧によってディラック電子系が実現することが分かっている。そのため、本研究にはこの程度の圧力に耐える圧力セルが必要であり、これを自作する。また圧力下での熱輸送現象の測定(熱起電力、ネルンスト効果等)は、圧力媒体を介した熱フローの存在により状況が複雑なことから、分子性導体の分野では測定法が十分に確立していない。本研究では以下、「研究の方法」の欄で示す方法によってこれらの困難を克服し、分子性導体の高感度圧力下熱輸送測定法の確立を目指す。

#### (2) 多バンド系におけるディラック電子の熱輸送現象の解明.

$\theta$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ 単結晶を作製した後、(1)で確立した圧力下熱輸送測定法を用いて本

物質の熱起電力の測定を行う。ディラック電子系ではそのもっとも有名な性質として後方散乱が消失するため、通常の電子系とは散乱確率に違いが出る。このことから輸送係数の温度依存性に異常が出るということが予測されるため[7]、特にゼーベック係数の温度依存性の振る舞いを調べ、電気抵抗測定で得られた輸送係数の結果と比較し考察を行う。また、 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の結果との比較から、多バンドの効果についてより明確な考察を行う。

また、グラフェンでは磁場下のディラック電子系で形成される $n=0$ の特異なランダウ準位（ゼロモード）を反映して異常な熱起電力とネルンスト効果\*が報告されており、その物理的意味は未だ解明されていない[5]。そこで、本研究においても磁場下でこれらの測定を行い、ゼロモードがどのように寄与するのか、さらに多バンドの効果がどのように現れているかについて考察する。

### References

- [1] K. S. Novoselov *et al.*, Science **306**, 666 (2004)., K. S. Novoselov *et al.*, Nature **438**, 197 (2005).
- [2] A. H. Castro Neto *et al.*, Rev. Mod. Phys. **81**,109 (2009).
- [3] S. Katayama *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 54705 (2006).
- [4] N. Tajima *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 51010 (2006), T. Osada *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 84711 (2008).
- [5] Y. Ran *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 014505 (2009).
- [6] P. Richard, K. Nakayama *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 137001 (2010).
- [7] T. Morinari *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 37203 (2010).
- [8] 田嶋ら, 日本物理学会 2010 年秋季大会 (25aRB-1). K. Mirayawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 63703 (2010).

### 3. 研究の方法

<平成 23 年度>

#### (1) 圧力下高感度熱輸送測定技術の確立。

##### ①圧力セルとホルダーの作製

$\theta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>は 5kbar 以上の圧力下で相転移を起こしディラック電子系と通常の電子系が混在した状態が形成されると考えられている[1]。また、 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>は 15kbar 以上の圧力下でディラック電子系が形成される。そのため本研究には 15kbar 程度を発生可能な圧力セルが必要であり、今回はクランプ型圧力セルを自作する。限られた磁場空間での試料回転も可能にするために圧力セル

はなるべく小型に設計することが望ましく、圧力セルの材質には一般的に良く使われる CuBe よりもさらに強度の高い MP35N を使用する。

#### ②圧力下高感度熱輸送測定技術の確立

圧力下での熱輸送測定における困難な点として、

- ・リード線や温度計（熱電対）の圧力依存性。
- ・圧力媒体を介した熱フローの存在。

が上げられる。

本研究では前者を解決するために事前にこれらの圧力校正を十分に行い、これによる測定誤差を排除する。

また、後者による影響をキャンセルするため低周波の ac 法を採用する。さらにヒーターへの入力波形を様々に変化させて最適条件を見つけることで参考文献[2,3]の改良を目指し、試料の熱起電力と温度差は Preamplifier で増幅した後ロックインアンプで検出する。

<平成 24 年度>

#### (2)ディラック電子系の輸送特性の解明。

##### ① $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> 単結晶の作製。

電解法により $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の単結晶を作製する。本研究室ではすでに数種類の分子性導体単結晶成長の実績があるため必要な器具もほぼ揃っており、それほど困難は予想されない。

##### ② 多バンドディラック電子系の熱輸送現象の測定。

上記の作製した $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>単結晶を用いて(1)で確立した圧力下熱測定を行う。

ディラック電子系ではそのもっとも有名な性質として後方散乱が消失するため、通常の電子系とは散乱確率に違いが出る。このことから輸送係数の温度依存性に異常が出るということが予測されるため[4]、特に熱起電力（ゼーベック係数）の温度依存性の測定から熱輸送係数の振る舞いを調べ、電気抵抗測定で得られた輸送係数（ホール係数）の振る舞いと比較し考察を行う。また  $\theta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の実験結果と比較することにより、多バンドの効果についてより明確な考察を行う。

ディラック電子系の示す特異な性質として磁場下において形成される $n=0$ のランダウ準位（ゼロモード）の存在が上げられる。このゼロモードを反映してグラフェンではすでに異常な熱起電力とネルンスト効果が報告されており、その物理的意味は未だ解明されていない[5]。そのため、本研究でも磁場下での熱起電力、ネルンスト効果の測定を行い、ゼロモードがどのように寄与するのか、さらに多バンドの効果がどのように現れているかについて考察する。

## References

- [1] 田嶋ら, 日本物理学会 2010 年秋季大会 (25aRB-1). K. Mirayawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 63703 (2010)., N. Tajima *et al.*, J. Phys. IV **114**, 263 (2004).
- [2] E. S. Choi *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **72**, 2392 (2001).
- [3] M. Hedo *et al.*, J. Phys. **215**, 12186 (2010).
- [4] T. Morinari *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 37203 (2010).
- [5] J. G. Checkelsky *et al.*, Phys. Rev. B **80**, 81413(R) (2009).

## 4. 研究成果

高圧下 15kbar での $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ における熱起電力の温度依存性の結果を図 1 に示す。高温領域では縮退した金属に期待されるように温度に対して線形な振る舞いがみられた。50K 付近にはブロードなピーク構造が現れる。このようなピーク構造は BEDT-TTF 系のいくつかの物質についても報告されており、フォノンドラッグによる寄与であると考えられている。実際今回のデータもフォノンドラッグの特徴的な温度依存性(高温: $\propto T^1$ , 低温: $\propto T^3$ )の寄与を仮定するとうまく説明することができる。

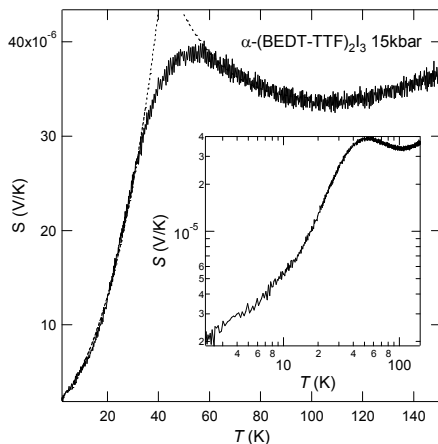


図 1. 高圧下の熱起電力の温度依存性。

また、2次元面に垂直な磁場下では驚くべきことにゼーベック効果を上回る巨大なネルンスト効果が観測されることが分かった(図 2)。過去のデータと比較すると、巨大なネルンスト効果は量子極限領域で観測されていることから(図 3)、この振る舞いはディラック電子系特有の  $N=0$  のランダウ準位(ゼロモード)に起因すると考えられる。実際、低温でのゼーベック効果の磁場・温度依存性はゼロモードの状態密度の振る舞いを仮定するとうまく解釈することができる。ゼロモード近傍でのゼーベック係数・ネルンスト効果の異常な振る舞いについてはグラフェンでも報

告されているが、これは電子とホール両方の寄与から形成されるゼロモードの本質的な特異性を表わすものと考えられる。また、今回観測されたシグナル強度はグラフェンのもものと比較しておよそ 2 桁程度も大きいですが、これはこの系のクリーンな電子系を反映したシャープなランダウ準位幅とゼーマンギャップに起因すると考えられる。

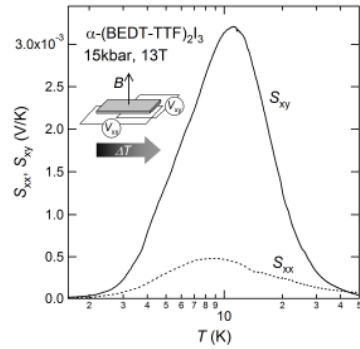


図 2. ネルンスト効果とゼーベック効果

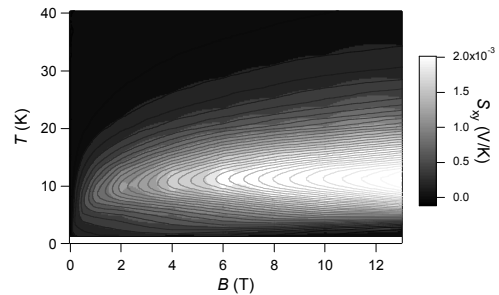


図 3. ネルンスト信号の密度プロット。

## 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 1 件)

- ① Takako Konoike, Mitsuyuki Sato, Kazuhito Uchida, Toshihito Osada, Anomalous Thermoelectric Transport and Giant Nernst Effect in Multilayered Massless Dirac Fermion System, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, 掲載決定。

〔学会発表〕(計 6 件)

- ① 鴻池貴子, 佐藤光幸, 内田和人, 長田俊人, 「圧力下 $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ のディラック電子系における熱起電力・ネルンスト効果」, 日本物理学会, 広島大学, 2013.03.26-29 (27aXN-5).
- ② 鴻池貴子, 「有機導体を用いたディラック電子系の熱物性測定」, 日本物理学会, JPSJ フレンドシップミーティング, 広島大学. 2013.03.27.
- ③ 鴻池貴子, 内田和人, 長田俊人,

「 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の圧力・磁場下熱電効果測定」, 日本物理学会, 横浜国立大学, 2012.09.18-21 (19pEB-8).

④ 鴻池貴子, 内田和人, 長田俊人, 「 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の圧力下熱測定」, 日本物理学会, 関西学院大学, 2012.03.24-27 (25aBK-4).

⑤ T. Konoike, K. Uchida, M. Sato, T. Osada, “Thermopower and Nernt effect of Massless Dirac Fermion System  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> Under Pressure”, International Symposium on Materials Science Openes by Molecular Degrees of Freedom (MDF2012), 2012.12.01-04 (Oral:O-38), Miyazaki, Japan.

⑥ T. Konoike, K. Uchida, T. Osada, “Thermodynamic Properties of Massless Dirac Fermion System  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> Under Pressure”, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2012 (ICSM2012), 2012.07.08-13 (Poster), Atlanta, USA.

[図書] (計 3 件)

① 鴻池貴子, 「角度依存シュタルク・サイクロトロン共鳴とその応用」, パリティ **28**, No.4, 42-45 (2013).

② 長田俊人, 熊谷篤, 内田和人, 鴻池貴子 「強磁場下電気伝導に現れるサイクロトロン共鳴」, 固体物理 **48**, No.2, 65-73 (2013).

③ 鴻池貴子, 内田和人, 長田俊人 「 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> におけるディラック電子系の比熱とその磁場効果」, 固体物理 **47**, No.7, 301-307 (2012).

[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