

論文審査の結果の要旨

氏名 山本 貴

本論文は、代表的な低次元物質である分子性伝導体における、金属絶縁体転移機構を、化学的手法によるキャリア注入効果を調べることにより、研究した結果を、述べている。本論文は 8 章よりなる。

第 1 章は序論であり、分子性伝導体の歴史、および分子性伝導体においてこれまでよく研究されてきた代表的な金属絶縁体転移機構が、最初に述べてある。続いて、本論文の主題である、未解決の問題であった、一次元物質でしばしば観測される室温付近での"抵抗極小"の問題について紹介している。さらに、この"抵抗極小"の問題を解決するにあたって、キャリア濃度を変えることができる一次元電子系であるという点で、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ が優れたモデル物質系であることが述べられている。

第 2 章では、第 3 章以下で詳述される、各種物性測定に用いた $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ 試料の具体的な作成方法、およびその組成決定方法に関して、述べている。単結晶作成法としては還元剤添加による促成法、および拡散法を用いている。組成決定法としては、X 線構造解析による方法、合成時の組成から推定する方法、分光測定による方法を用いている。

第 3 章では、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ の電気抵抗測定の結果について述べている。実験結果に基づいた相図を提案しており、 x の大きさによって、領域 A (低 Cu 濃度)、領域 B (中 Cu 濃度)、領域 C (高 Cu 濃度) の 3 つの領域に分類できると述べている。

第 4 章では、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ の室温での反射スペクトル測定の結果について述べている。室温の反射スペクトルの解析結果から、領域 A、B では中赤外領域の光伝導度スペクトルに一次元導体に特有の強い電子遷移が出現し、領域 A から B に移ると、この電子遷移は低エネルギー側にシフトすると述べている。また領域 C では、低波数側に Drude 型の分散が現れ、3 次元金属に変化していると述べている。

第 5 章では、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ の磁化率の温度依存性について述べている。得られた結果は、第 3 章で述べた電気抵抗温度依存性から得た相図と関連付けて解釈されている。磁化率はキュリー成分とそれ以外の部分に分離でき、後者に関して、領域 A では低温でほぼゼロになるのに対して、領域 B および C では、低温で、常磁性成分が観測されると述べている。電気抵抗の温度依存性では半導体的挙動を示す領域 B で、低温で温度によらない常磁性成分が観測されることから、領域 B の低温での絶縁体的挙動は Anderson 局在によると解釈している。

第 6 章では $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ のラマンスペクトルの測定結果について述べている。環外 C=N 伸縮振動を主成分とする分子内振動の波数が、電荷量の変化に鋭

敏であること、領域 A および B においてはこのモードが分裂することを明らかにしており、その結果に基づいて振動モードの分裂が電荷分離に基づくと解釈している。またラマンスペクトル測定を含む一連の結果から、一次元伝導体においてはスピン分極および電荷分離を伴ったドメインが生じており、電気伝導はドメイン壁の運動によるというモデルを提案している。さらに $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ のキャリア注入による物性変化を議論している。

第7章では $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ の熱起電力の測定結果について述べている。一次元電子系における温度によらない熱起電力に関する、既存のモデルに関して述べた後で、実験結果について議論している。低温で領域 B の熱起電力はゼロに向かっており、このことから領域 B の低温での半導体的挙動は Anderson 局在によるものであると結論している。この結論は磁化率の解釈と一致している。領域 A、B の熱起電力は、 x の値によらずに、室温付近でほぼ一定値 ($\sim 60 \mu\text{V/K}$) であることを見出しており、この実験事実に基づいてドメイン壁の運動を考慮したモデルで解釈を行っている。この解釈に基づけば、室温付近の電流は $S=1/2$ を持つドメイン壁により運ばれていると解釈される。

第8章は結果とまとめに関する章であり、主に領域 A の室温付近の電流はドメイン壁により運ばれており、室温付近の”抵抗極小”は熱エネルギーの減少によりドメイン壁の運動が凍結されたことによるものであると述べている。

以上のように、本論文は強相関係物質としての、分子性伝導体の伝導機構に関して、これまで理解できなかった点を、実験的に解明した点で大きな貢献をしたものとして高く評価できる。

なお、本論文は加藤礼三氏、賣市幹大氏、薬師久弥氏、青沼秀児氏、山浦淳一氏、花咲徳亮氏、田島裕之氏らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、解析、考察を行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。