

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名

伊藤 哲明

本論文は、電荷秩序を形成する擬1次元有機導体(DI-DCNQI)<sub>2</sub>Ag (DI-DCNQI は分子2,5-diiodo-*N,N'*-dicyanoquinonediimineの略称) に着目し、まずその電荷秩序形成の詳細を明らかにし、しかる後に2つの異なる方法「加圧」と「Cuドーピング」でこの電荷秩序を融解させ、そこに現れる電子状態とその融解の機構を電気抵抗測定とNMR実験により明らかにしたものである。

第1章では、まず有機伝導体の特徴並びにDCNQI系導体の基本物性がまとめられ、最後に本論文の目的が述べられている。電子が互いに強く相互作用する強相関電子系の電子状態は、物性物理における最重要課題の一つであるが、有機伝導体がこの強相関電子系の舞台となっていること、また他の無機化合物と比較してどのような特徴があるのかが解説されている。これを踏まえて、DCNQI系導体の基本物性が述べられ、その中で(DI-DCNQI)<sub>2</sub>Agが電荷秩序を形成すること、しかしながら電荷秩序形成より高温側で非金属的に振る舞うなどの未解決問題があることが述べられている。最後にこの電荷秩序に対して「加圧」と「Cuドーピング」に期待される効果が議論され、本研究のねらいが表明されている。

第2章では、単結晶試料の育成法および組成の同定結果が述べられている。

第3章では、常圧下における(DI-DCNQI)<sub>2</sub>Agの詳細な物性測定結果が報告されている。電気抵抗の振る舞いから、電荷秩序形成は2次転移であり、その転移温度は210Kであると結論付けられている。NMR測定から、この温度より低温で電荷の不均一比が成長し100K以下で0.75: 0.25程度に飽和することが示され、NMRスペクトルと磁化率の測定により、50K以下で反強磁性的な揺らぎが成長し6K近辺において反強磁性の長距離秩序が起こることも確認された。一方、電荷秩序転移温度より高温側でも、NMR線幅の観測から、電荷秩序の揺らぎが大きく成長していることを指摘し、これが電気抵抗の非金属的振る舞いの起源であると議論している。

第4章では、(DI-DCNQI)<sub>2</sub>Agの圧力下における実験結果が示され、その電子状態について議論がなされている。まず、電気抵抗測定により、電荷秩序転移温度が加圧に伴い減少していくことが明らかにされている。低圧側では、転移温度より高温でも強い電荷秩序の揺らぎ領域が存在するが、加圧とともに狭まり、ついには*P* - *T*相図上で(19 ± 1 kbar, 21.5 ± 1.0 K)を三重臨界点として、電気抵抗にヒステリシスを伴う1次転移へと移行することが明らかにされた。さらに、21.6kbar以上では絶縁体化は完全に抑制され低温まで安定な金属状態が実現するこ

とも示され、そこでは、電子相間が強く期待されるにもかかわらず、低温で電気抵抗が温度の3乗に従う特異な温度変化が見出された。この現象には特殊な電子-電子散乱機構が働いていると考えられ、その機構について1つの提案がなされている。また、加圧下でのNMR測定により、低温の絶縁体相が電荷秩序相であることと、加圧に伴い電荷の不均一化が弱まることが明らかとなった。高温の金属相においては、ナイト・シフト及び $(T_1T)^{-1}$ は低温に向かって増大するものの、 $(T_1T)^{-1}/K^2$ は一定値をとり、通常のフェルミ流体として理解できることが述べられている。金属相がFermi流体的であることから、電荷秩序が加圧により抑制される機構は、従来の擬1次元有機導体(TMTTF/TMTSF)<sub>2</sub>Xで議論されている“次元クロスオーバー”よりはむしろ“バンド幅増大”であると結論づけられている。

第5章は、Cuドーピングの結果とその考察に充てられている。CuドーピングはDCNQIの軌道を3次的に架橋するd軌道の導入の役割を果たし、このドーピング手法が通常のキャリアーやスピンの導入とは異なる新しいものであることが説明されている。このドーピングにより電荷秩序状態から-d混成金属状態へ移行する過程が電気抵抗測定により詳細に調べられた結果、電荷ギャップの急激な減少からアンダーソン局在状態を経て、最終的に-d混成フェルミ流体となることが明らかにされた。この振る舞いは電子相間と乱れとの競合によるものであり、特に電荷ギャップの急激な減少は、近年発展が著しい理論研究の予言に一致するものである。

第6章は本論文のまとめである。

以上を要すると、本研究は電荷秩序物質(DI-DCNQI)<sub>2</sub>Agの詳細を明らかにし、さらにその電荷秩序が融解する過程の物理を明らかにしたものである。これは強相関電子物性に対して無機化合物などでは踏み込めない新しい方向からの理解をもたらし、物性物理学および物理工学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。