

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 賀川史敬

本論文は擬2次元有機伝導体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl (BEDT-TTFは分子名 BisEtyleneDiThioTetraThiaFulvaleneの略)が示すモット転移の臨界性を電気伝導度の測定及び核磁気共鳴(NMR)実験により調べた結果を報告している。全7章で構成されている。

第1章では、導入として、フィリング制御型モット転移とバンド幅制御型モット転移の研究の現状が述べられている。前者は、高温超伝導体をはじめとする遷移金属酸化物等で広く研究されているが、後者の研究例は少なく、特に2次元系においては、転移の臨界性は全く分っていないこと、加えて、有機伝導体はバンド幅制御型モット転移の研究に格好のモデル物質であることが、有機物質の特徴を挙げて解説されている。本研究の目的は、有機伝導体を加圧することで起こるバンド幅制御型モット転移を電気伝導度測定とNMR実験により観測し、その臨界性を明らかにすることであると述べられている。

第2章では、試料作成法とNMR及び電気抵抗測定の実験装置について述べられている。低温で精密な圧力制御を行うために圧力媒体としてヘリウムを用いる加圧装置と圧力セル、BEDT-TTF分子の<sup>13</sup>C核NMR実験と吸収線の特徴、さらに電気抵抗測定法が述べられている。

第3章は、モット転移をNMRで観測するに当たり、まず、常圧下絶縁体、すなわち局在スピン状態におけるNMR実験の結果とその解析にあてられている。そこでは、通常の常磁性状態で期待されるNMR吸収線のシフトと磁化率との線形関係がこの系で成り立っていないことが明確に示され、それが、Dzyaloshinsky-Moriya相互作用によって説明できると主張されている。すなわち、NMRシフトがこの系では必ずしもスピン磁化率のみを反映しているのではなく、反強磁性短距離秩序に伴う交替磁化成分も超微細結合テンソルの非対角成分を通して寄与することが述べられている。

第4章では、加圧で起こるモット転移をNMRシフトとNMR緩和率の測定により調べた結果が述べられている。低温では、圧力変化で起こるモット転移が、シフト、緩和率が共に不連続に飛ぶ1次転移であること、この飛びが温度上昇とともに徐々に減少し臨界温度付近で消失すること、さらに高温ではクロスオーバーとして連続変化を示すことが明らかにされた。これは、バンド幅制御型モット転移を初めてNMRで観測したものである。しかしながら、臨界点付近における電荷密度の長波長揺らぎが、NMR緩和率の増大を生むはずであるとの当初の期待に反して、それを示す兆候は観測されなかった。これは、臨界点付近における電荷密度の揺らぎとNMR観測にあずかるスピン自由度との結合が極めて小さいことを示す事実として理解されると述べられている。

第5章では、加圧で起こるモット転移の臨界現象を電気伝導度の測定により観測した結果が述べられている。低温で1次転移に伴う伝導度の明確な飛びが観測され、この飛びは1次転移線に沿って昇温と共に徐々に減少し臨界温度で消失する(臨界現象1)。電気伝導度の圧力微分がクロスオーバー線に沿って降温とともに増大し臨界点に向かって発散的になる(臨界現象2)。臨界温度において電気伝導度の圧力依存性が臨界圧力に向かって発散的な勾配を示す(臨界現象3)。これらは、擬2次元系モット転移の臨界現象を初めて捕らえたものである。さらに、それぞれを特徴づける3つの臨界指数の決

定に成功し、その値は平均場理論やIsing, XY, Heisenbergモデル等のスピン系の臨界指数とは大きく異なることが明らかにされた。この事実が最近の理論研究と比較され、モット転移の量子性を示している可能性が議論されている。

第6章は、臨界現象の解析の際に問題になる、パラメータの混合についての議論にあてられている。一般に臨界現象は、温度と外部パラメータ(本研究では圧力)の2次元平面で、2つの軸に沿っての臨界振る舞いを議論するが、本実験のように一次転移境界線とクロスオーバー線が、この平面で斜めに走っている場合、臨界現象解析の真の軸は温度と圧力の一次結合軸となる。この章では、臨界指数  $\delta$  を求める際に実際に行った圧力軸に沿っての解析が、真の軸での値と同じものを与えることを解析的及び実験的に示し、本研究で得られた臨界指数がこの問題に依存しないことを明らかにした。

第7章は本論文のまとめである。

以上を要すると、本研究は、擬2次元有機伝導体 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Clの圧力誘起モット転移を、精密に制御された圧力環境下における核磁気共鳴実験と電気伝導測定によって調べ、モット転移の一次転移性とその臨界点における臨界現象の観測、さらにその異常性を明らかにした。これは、擬2次元強相関電子系の基本問題であるモット転移そのものの性質を初めて明らかにしたもので、強相関エレクトロニクスという観点から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。