

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名

大池広志

本論文は、バンド充填が1/2からずれた擬2次元三角格子有機伝導体 $\kappa$ -(ET)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub>における電子相関の強さと格子の幾何学的フラストレーションを静水圧と一軸圧により制御し、その電子状態を電気抵抗測定で明らかにしようとした研究の結果を報告している。電子相関の強さの変化に対して量子相転移が存在することと、幾何学的フラストレーションが電気伝導性に決定的な影響を与えることが見出されている。

第1章では、まず、強相関電子系において電子相関が引き起こす現象とその背景にある物理学、いわゆるモット物理学が紹介され、特に本研究に関連するテーマである金属-絶縁体転移（モット転移）と三角格子に起因するフラストレート磁性についての諸問題が解説されている。さらに、モット転移とフラストレート磁性の研究にとって、擬2次元有機伝導体が格好のモデル物質であることが述べられ、バンド充填が1/2の物質のこれまでの研究が概観されている。次いで、申請者が本研究で扱う有機伝導体 $\kappa$ -(ET)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub>の構造と基礎物性が紹介され、特に、この物質が三角格子構造を有し、モット絶縁体に11%のホールがドーピングされた系と見なせることが述べられている。これを踏まえて、本研究の目的が述べられている。すなわち、本研究は、 $\kappa$ -(ET)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub>の電子状態を静水圧下と一軸圧下で調べることにより、ドーピングされたモット絶縁体の電子状態を電子相関とスピンフラストレーションをパラメーターとした相図として理解することを目的としている。

第2章では、電気抵抗測定と試料の加圧に関する実験方法が述べられている。電気抵抗は、交流磁化率測定から求める非接触方式と、通常の4端子法を併用して測定された。前者は、金属の表皮効果を利用して電気抵抗を求める方法で、その原理、MHz帯域での交流磁化率の測定系の実際、さらに、得られた交流磁化率から電気抵抗の導出に至る過程が述べられている。この方法は、超伝導転移後には超伝導反磁性磁化率を与えることから、常伝導状態においては電気抵抗を、超伝導状態では反磁性磁化率を同一試料に対して同時に知ることができるという利点が述べられている。試料の加圧は、オイルを圧力媒体とし、静水圧と一軸圧を組み合わせた方式が取られている。オイルとしてDaphne7474を選ぶことで、常温において液体状態を保つ3.7GPaまで静水圧を印加することができる。一方、オイルDemnum s-20は、常温では1.1GPaで固化することから、これを圧力媒体として加圧することにより、1.1GPaまでは静水圧、それ以上は一軸加圧となること、さらに、加圧する温度を変えることにより、静水圧から一軸圧へ変わる圧力を制御できることが述べられている。この方法、すなわち、均一な圧縮と異方的な圧縮の組み合わせにより、電子相関の強さと格子の幾何学的フラストレーションの度合いの2つのパラメータを制御することが可能になることが説かれている。

第3章では、3.0GPaまでの静水圧下における $\kappa$ -(ET)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub>の電気抵抗の測定結果が述べられている。測定は非接触法で行われ、常伝導状態の電気抵抗と超伝導状態の反磁性磁化率が同時に測定された。まず、超伝導に関しては、転移温度が常圧の3Kから圧力と共に上昇し0.45GPa付近で最大値の7Kとなった後下降に転じ1.5-1.7GPa付近で2K以下になるいわゆる超伝導ドームの形成が示されている。0.3GPa以下では超伝導反磁性が完全でないことから低圧での超伝導は不均一で、転移温度が極大を迎える圧力以上で均一なものになることが示されている。常伝導状態において

は電気抵抗の温度依存性が調べられ、0.5GPa付近を境に上に凸の温度依存性から凹の依存性に変化していることが示された。より詳細な解析により、0.5GPa以上で低温で温度の2乗に従うフェルミ液体性が現れること、高温で温度に比例する振る舞いにクロスオーバーすること、クロスオーバー温度域は0.5GPaから高圧に向かって高くなるという特徴が見出され、超伝導、不均一性、フェルミ液体性を特徴づける温度-圧力相図が提案されている。この相図は、0.5GPa付近を基点として高温側に扇状に非フェルミ液体領域が広がっていることを示唆している。さらに、共同研究者によって測定されたホール係数を解析することにより、0.45GPa付近でキャリア数が急増することが示唆された。以上の結果は0.5GPa付近に量子相転移が存在することを示していると主張され、その背後にある物理が、電子による分子2量体サイトの2重占有の臨界性にあることが議論されている。さらに、この臨界点はバンド充填が1/2の場合にモット転移点に対応することを考慮して、バンド充填1/2の $\kappa$ -ET系のモット転移、本物質の量子相転移、さらに銅酸化物超伝導体で議論されている量子相転移が、電子相関とドーピング量をパラメーターとした統一的な相図により包括的に理解できると主張されている。

第4章では、静水圧と一軸圧を組み合わせることにより電子相関と三角格子性を変化させたときの電子状態を4端子電気抵抗測定によって調べた結果が報告されている。 $\kappa$ -(ET)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub>は、2種類の移動積分( $t$ と $t'$ )を持つ2等辺三角格子で近似できるが、これをHubbardモデルに落とすと、電子相関の強さは $U/W$  ( $U$ : オンサイトクーロン斥力エネルギー、 $W$ : バンド幅)で、スピンプラストレーションの度合いは $t'/t$ で特徴づけられる。実際の静水圧/一軸圧におけるこの2つのパラメーターの変化は、オイル媒体の歪の計測とユニットセル内での分子配置に関するいくつかの仮定に基づいて計算され、静水圧では $U/W$ のみが大きく変化するが、一軸圧では、 $U/W$ に加え $t'/t$ も加圧軸から期待される方向に変化していることが確認された。電気抵抗測定は、いくつかの静水圧/一軸圧の組み合わせで行われたが、最も劇的な変化が一軸加圧の軸方向依存性に現れることが見出されている。 $t'/t$ が1より減少、すなわちより正方格子に近づくほど温度依存性が絶縁体的であるのに対し、 $t'/t$ が1より増加、すなわち $t'$ 鎖の1次元性が強くなるほど金属的なものになることが示された。格子の幾何学的プラストレーションが電気伝導に大きな影響を及ぼすと結論されている。

第5章は本論文をまとめている。

以上のように、申請者は、ドーピングされた三角格子モット絶縁体のモデル物質である $\kappa$ -(ET)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub>の電子状態を静水圧下と一軸圧下における電気抵抗測定によって調べ、電子相関の変化に対して量子相転移が存在すること、格子の幾何学的プラストレーションの変化に対して金属から絶縁体的な振る舞いへと電子状態が大きく変化することを示し、モット物理学の一端を明らかにした。これは、強相関電子系における金属絶縁体相転移の研究に一石を投じるものであり、物性物理学および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。