



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Charge Disproportionation State in Organic Conductors [an abstract of entire text]
Author(s)	上遠野, 一広
Description	この博士論文全文の閲覧方法については、以下のサイトをご参照ください。 https://www.lib.hokudai.ac.jp/dissertations/copy-guides/
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12057号
Issue Date	2015-12-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/60470
Type	doctoral thesis
File Information	Kazuhiro_Katono_summary.pdf



学位論文の要約

博士の専攻分野の名称: 博士(工学) 氏名: 上遠野 一広

学位論文題名

Charge Disproportionation State in Organic Conductors

(有機導体における電荷不均化状態の研究)

電子系において電子密度を低くし静電遮へいが効かなくなると、電子間に働くクーロン斥力のために電子が周期的に配列して局在化することがある。この局在状態は Wigner 結晶として知られている。Wigner 結晶は、極低温下での液体ヘリウム表面や、強磁場下での GaAs/AlGaAs 界面などで観測されている。いずれの場合でも電子は斥力相互作用を小さくするように三角格子を組んで配列することが実験的に報告されている。粒子間に斥力相互作用が働く場合に粒子がとる配列構造は、理論的な観点からも積極的に調べられており、ストライプ構造やバブル構造など三角格子構造以外にも様々な構造が予想されている。しかしながら、実験的に観測されているのは三角格子構造のみである。はたして、斥力相互作用が働く粒子は三角格子構造以外の配列構造を取りうるのだろうか。もし取りうるのであればその配列パターンを決める要因は何だろうか。本研究では、この問題に答えるべく、伝導電子間のクーロン斥力相互作用が強い強相関 2 次元電子系において電荷構造についての実験的研究を行った。強相関電子系である低次元有機導体に対して、走査トンネル顕微鏡 (STM) を用いて微視的な電荷構造を観察した。この結果、低次元有機導体の金属相において長距離クーロン斥力による電荷ストライプ構造の実空間観測に成功した。また、試料の組成に依存して 2 種類の電荷ストライプ構造を観測した。このことから、ストライプ構造の向きが結晶格子ではなく斥力相互作用の異方性に強く依存することを明らかにした。

長距離クーロン斥力により電子局在状態である Wigner 結晶が生じる。また、低次元有機導体は電子の局在化が起こりやすい物質群として知られている。有機導体では、特徴的な電子状態として電荷秩序状態と電荷不均化状態がある。本研究では、電荷秩序状態と Wigner 結晶の相違点を指摘し、電子相関についての知見を得るうえで電荷不均化状態を研究することが有意であることを提案した。そして、純粋な電子結晶としての Wigner 結晶の観点から電荷不均化状態に対し問題提起を行った。

本研究に用いた有機導体の単結晶試料は電解法によって作成された。得られた単結晶に対し、磁化率の温度依存を測定することにより電子物性を評価した。この結果、良質な単結晶試料であることが確かめられた。

本研究では、3 つの有機導体 α -(BEDT-TTF)₂I₃、 α -(BEDT-TTF)₂MHg(SCN)₄ (M=K, Rb) を研究対象とした。STM による室温における α -(BEDT-TTF)₂I₃ の電荷構造の観測結果から、電荷秩序転移よりも高温の金属相において電荷の多いサイトと少ないサイトに

分かれる電荷不均化が生じ、電荷がストライプ状に配列することが見出された。この配列は、ドナー分子の積層方向に対し垂直に電荷が配列する横ストライプ構造である。より広い範囲での STM 観察から、電荷配列が局所的に乱れた部分や配列が異なる電荷構造の存在がわかった。これらの結果は、観測された電荷配列は長距離秩序を伴わず、完全に安定化したものではないことを示唆する。

低温で起こる電荷秩序転移は結晶格子の構造相転移を伴うことが知られている。このことから、電荷秩序状態は、長距離クーロン相互作用に起因する電荷の不均化とあわせ、結晶格子の構造変化によって電荷のストライプ配列が安定化する現象であると理解されている。一方、本研究で観測された金属相における電荷ストライプ構造では結晶格子の構造変化の影響は一切受けておらず、電子間の長距離クーロン相互作用によってのみ形成されていると考えられる。このことは、長距離クーロン相互作用が静電遮へいされない系では一般的に電荷の不均化による電荷配列が生じ、その配列は必ずしも三角格子ではないことを示す。

本研究ではさらに、電荷の配列パターンの要因を明らかにするため、 α -(BEDT-TTF)₂I₃ と同様の強相関電子系でかつ同様の結晶構造を持つが、基底状態が電荷秩序状態ではない 2 物質、 α -(BEDT-TTF)₂MHg(SCN)₄ (M=K, Rb)において電荷構造観測を行った。その結果、金属相において α -(BEDT-TTF)₂KHg(SCN)₄ では横ストライプ型、 α -(BEDT-TTF)₂RbHg(SCN)₄ では縦ストライプ型の電荷ストライプ構造の存在が明らかになった。本研究で対象とした 3 物質において、その基底状態によらず金属相では長距離クーロン相互作用の効果で電荷ストライプが形成されていることが示された。結晶構造や電子構造が極めて似ている α -(BEDT-TTF)₂MHg(SCN)₄ (M=K, Rb)において配列パターンの異なる電荷ストライプが観測されたことは興味深い。 α -(BEDT-TTF)₂I₃ の結果とあわせると、電荷不均化状態における電荷ストライプの配列パターンは、結晶格子の影響は受けずクーロン相互作用の異方性によることが系統的に理解された。

以上、走査トンネル顕微鏡による有機導体の実空間観察により、金属相において電荷ストライプ構造が観測された。このストライプ構造は、電子間クーロン相互作用によって形成されることが明らかになった。また、配列パターンはクーロン相互作用の異方性が決定要因になっていることがわかった。本研究で得られた知見は、強相関電子系の理解に大きく寄与するものである。