

分子研研究会

新規な誘電体最前線—電子と強誘電性—

講演要旨集

平成 21 年 10 月 30 日(金)～31 日(土)

共催

CREST「先端超短パルス光源を用いた光誘起相転移現象の解明」

分子科学研究所

分子研研究会
“新規な誘電体最前線—電子と強誘電性—”

平成 21 年 10 月 30 日(金)~31 日 (土)

講演プログラム

— 10 月 30 日 (金) —

12:50~13:00 池田 (岡山大) はじめに

Session I 酸化物①

座長 石原 (東北大)

- I-1 13:00~13:20 池田 (岡山大) 三角格子鉄複電荷酸化物 RFe_2O_4 の
極的な電荷秩序について
- I-2 13:20~13:40 野田 (東北大) 電子分極と原子変位
—いくつかのケーススタディー—
- I-3 13:40~13:55 神戸 (岡山大) TBA
- I-4 13:55~14:15 吉井 (原研) 電子強誘電体 RFe_2O_4 (R : 希土類) と
その置換系の合成・構造・物性
- I-5 14:15~14:45 有馬 (東北大) マルチフェロイクにおける電気磁気結合

14:45~15:00 <休憩>

Session II 有機物①

座長 佐々木 (東北大)

- II-1 15:00~15:20 妹尾 (理研) 分子性導体で見られる二量体化と

電荷秩序の共存による誘電性

II-2 15:20~15:40 山本 (分子研) SHG 顕微鏡観測による α -(BEDT-TTF)₂I₃
および α' -(BEDT-TTF)₂IBr₂ の強誘電相転移

II-3 15:40~16:00 高橋 (物性研) 分子性導体の電荷秩序転移近傍における
磁気抵抗効果

16:00~16:15 <休憩>

Session III 有機物②

座長 妹尾 (理研)

III-1 16:15~16:35 岩井 (東北大) TBA

III-2 16:35~16:55 高橋 (奈良先端) α 型、 κ 型 ET 塩における光励起状態

III-3 16:55~17:15 岸田 (名大) 有機強誘電体 TTF-CA の電場変調分光

17:30~ 懇親会 (於 和食処 水月)

—— 10 月 31 日 (土) ——

Session IV 酸化物②

座長 池田 (岡山大)

IV-1 9:00~9:30 木村 (大阪大) 希土類金属バナジウム酸化物における
Jahn-Teller 転移に伴う誘電異常

IV-2 9:30~10:00 藤村 (大阪府大) YbFe₂O₄ エピタキシャル薄膜の作成とその物性

IV-3 10:00~10:20 森 (大阪府大) 三角格子系誘電体 LuFeMO₄(M=Co,Cu)の

局所構造解析

10:20~10:35 <休憩>

Session V **有機③**

座長 山本 (分子研)

- V-1 10:35~11:05 寺崎 (早大) 量子電気双極子
dimer Mott 絶縁体を示す誘電異常
- V-2 11:05~11:25 佐々木 (東北大) スピン液体系 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ 研究の
現状と問題点 -電荷自由度の観点から-
- V-3 11:25~11:45 堀田 (京産大) 強相関量子誘電体
- V-4 11:45~12:30 <軽食>

Session VI **酸化物③**

座長 森 (大阪府大)

- VI-1 12:30~12:50 加倉井 (原研) 偏極中性子を活用した複雑磁気構造の研究
- VI-2 12:50~13:10 久保田 (高工研) LuFe_2O_4 の電場効果観測
- VI-3 13:10~13:30 水牧 (JASRI) YbFe_2O_4 の電荷ドーピングと電荷三倍格子の安定性
- VI-4 13:30~13:50 石井 (原研) 共鳴非弾性X線散乱による電荷ダイナミクスの観測
- VI-5 13:50~14:10 石原 (東北大) 電子強誘電体と電荷揺らぎ電荷フラストレーション
- 14:10~14:20 石原 (東北大) おわりに

提案代表者 池田 直 岡山大学理学部物理学科
提案者 石原純夫 東北大学理学部物理学科
提案者 薬師 久弥 分子科学研究所
提案・所内対応 山本 薫 分子科学研究所
Email: yamamoto@ims.ac.jp
Mobile: 090-6599-3277

Session I 酸化物①

電子分極と原子変位 –いくつかのケーススタディー–

東北大学多元研

野田幸男

強誘電体は電気分極が秩序化した状態であり、かつ、実用的な観点から分極反転が可能なものとされている。ロッシェル塩での強誘電体発見以降、多数の強誘電体物質が合成されたり発見されたりしている。電気分極の起源は、最初は極性分子の秩序無秩序転移として理解され(イオン化した分子)、その後ソフトモードによるイオン化した原子の変位として理解され(変位分極間の相互作用)、大きな成果が得られた。これらに共通している概念は、電子は直接には表に顔を出さずに、つねに原子変位として理解されてきたことである。一方、電荷秩序相転移や電子軌道に由来するヤーンテラー相転移などが色々と見つかり、電子を直接起源とする強誘電体の存在が議論されたこともある。しかしながら、長い間このような物質は見つかっていなかった。その理由は何かをこの講演では考えていく。

逆に、最近のはやりとして、強誘電体が電子起源であるという報告や考えが多く出ている。しかしながら、実験的にこれを証明するのは大変難しい。その理由は、物性発現としての相転移では必ず(1)格子、(2)電荷、(3)電子軌道、(4)スピンの関与するものであり、原子変位が存在せずに強誘電体になることはほとんど考えられないからである。理想論で言うと、原子変位が全く観測されなく大きな電気分極を持つ強誘電体の実験的に見つければよい。

現在かなり信憑性のある電子起源の強誘電体あるいは反強誘電体をケーススタディとして取り上げ、どの程度確かなのかを議論していく。例としてあげるのは、(1)酸化物で電荷秩序に伴う強誘電性、(2)有機物の強誘電体で水素結合に電子分極がある例、(3)低次元有機導体で電荷秩序が起こる場合、(4)マルチフェロイック物質と言われる磁気モーメントが引き起こす強誘電体である。これら多くの場合、電気分極の値が桁違いに小さく、明確な原子変位が見つかってない。

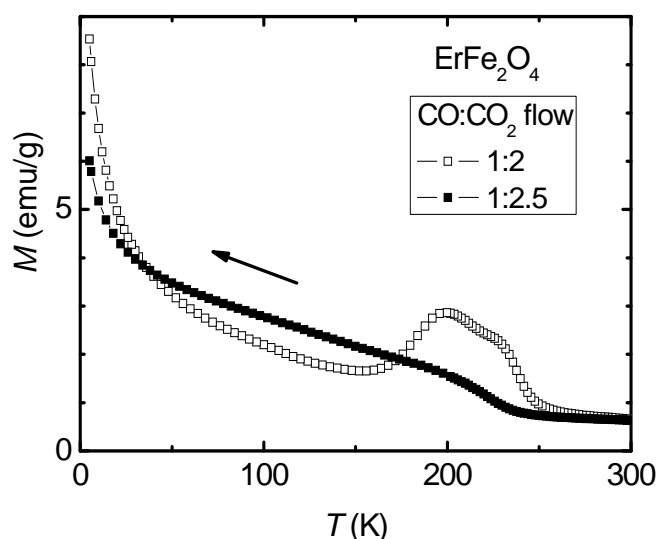
電子強誘電体 RFe_2O_4 (R: 希土類) とその置換系の合成・構造・物性

日本原子力研究開発機構

吉井賢資

希土類-鉄酸化物 RFe_2O_4 (R: Y, Ho-Lu) は、構成イオンが各々三角格子を組み、それが積層した結晶構造を持つ (空間群 $R-3m$) [1]。我々の研究から、この系は、 $2+$ と $3+$ の鉄イオンが $330K$ 以下で電荷秩序配列することで強誘電性を発現する、新規なタイプの強誘電体であることが分かった[2]。 RFe_2O_4 は、 $250K$ 以下で鉄スピンのフェリ磁性を示すマルチフェロイック系でもあり[2]、基礎・応用両面から興味深い。この系の物性は、希土類イオンの種類や合成条件によって変化することが知られているが、その詳細についての報告例は比較的少ない。また、 RFe_2O_4 は、構造を同じに保ったまま、鉄イオンを他の陽イオン (Cu^{2+} など) に置換できることが知られているが[3]、その物性、特に誘電性については殆ど報告されていない[4]。

本発表では、 RFe_2O_4 およびその置換系について、合成・結晶構造・物性 (磁性と誘電性) などについての研究の現状を報告する。一例として、 $ErFe_2O_4$ の磁化を図に示す。合成雰囲気 (CO/CO_2 比) により磁性が変化しているのが分かる。現在さまざまな手法により試料の性質を分析しているところである。



- [1] N. Kimizuka *et al*, Solid State Commun. **15**, 1321 (1974).
- [2] N. Ikeda *et al*, Nature **436**, 1136 (2005).
- [3] N. Kimizuka and E. Takayama, J.Solid State Chem. **40**, 109 (1981).
- [4] 報告例として、K. Yoshii *et al*, Phys. Rev. B. **76**, 024423 (2007)等.

MnWO₄ および CuB₂O₄ における電気磁気結合

東北大学多元物質科学研究所、理研 SPring-8

有馬孝尚

らせん磁性に起因する磁性強誘電体の代表例として MnWO₄ を、別の機構に起因する磁性強誘電体の代表例として CuB₂O₄ をそれぞれ紹介する。

らせん磁性に起因する磁性強誘電体 MnWO₄ [1, 2] の場合は、磁場によってスピンらせん面を変化させることができ、その結果、電気分極フロップ現象が観測される [2]。また、磁場の方位によって、らせん磁性のドメイン壁の種類を選択することも可能であり、その結果、磁場誘起電気分極フロップ現象において、フロップする向きを +90 度か -90 度かを制御することが可能となる [3, 4]。その他、MnWO₄ は低温で共線形反強磁性相にさらに転移して自発分極を失うが、その相でも直前のスピンの方向を記憶していると考えられる種々の現象が見つかっている [5]。

一方、CuB₂O₄ は D_{2d} という特殊な点群がもととなって、様々な面白い性質が見出されている [6-9]。D_{2d} 対称性は、空間反転が破れているにもかかわらず、極性もキラリティも持たない。ここに磁場秩序が生じると、磁化の方位によって極性やキラリティが出現すると期待される [7]。キラリティが出た状態で電場を印加すると、極性がある状態に遷移しようとし、その結果として、磁化が回転することになる [9]。

[1] H. Sagayama, K. Taniguchi, N. Abe, T. Arima, M. Soda, M. Matsuura, K. Hirota, *Phys. Rev. B* **77**, 220407R (2008).

[2] K. Taniguchi, N. Abe, T. Takenobu, Y. Iwasa, T. Arima, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 097203 (2006).

[3] K. Taniguchi, N. Abe, H. Umetsu, H. Aruga Katori, T. Arima, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 207205 (2008).

[4] K. Taniguchi, N. Abe, S. Ohtani, T. Arima, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 147201 (2009).

[5] K. Taniguchi, N. Abe, H. Sagayama, S. Ohtani, T. Takenobu, Y. Iwasa, T. Arima, *Phys. Rev. B* **77**, 064408 (2008).

[6] M. Saito, K. Taniguchi, T. Arima, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 013705 (2008).

[7] M. Saito, K. Ishikawa, K. Taniguchi, T. Arima, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 117402 (2008).

[8] M. Saito, K. Ishikawa, K. Taniguchi, T. Arima, *Appl. Phys. Express* **1**, 121302 (2008).

[9] M. Saito, K. Ishikawa, S. Konno, K. Taniguchi, T. Arima, *Nature Materials* **8**, 634 (2009).

Session II 有機物①

分子性導体で見られる二量体化と電荷秩序の共存による誘電性

理化学研究所 基幹研究所 古崎物性理論研究室
妹尾仁嗣

1/4-filled band を持つ分子性導体における典型的な強相関絶縁体状態である「2 量体化によるダイマーモット絶縁体」と「電荷秩序」の両者が共存する場合、「誘電性」が発生する。この共存状態は、理論的には、最も簡単には 1 次元の拡張ハバードモデルに 2 量体化を導入することによって実現し[1]、このモデルは量子効果の影響も含めて詳細に調べられている[2]。一方実験的には、このモデルに対応する、2 量体化を有する 1 次元鎖を持つ TMTTF₂X において電荷秩序は観測されており[3]、強誘電性の発現を示唆する誘電率の Curie-Weiss 的発散が電荷秩序転移温度において見られている[4]。

本講演では、この「誘電性電荷秩序」状態を含め多様な電荷・スピン・格子自由度が絡んだ多彩な相転移現象を見せる擬 1 次元 1/4-filled 系に対する最近の我々の解析的[5] および数値的[6]な計算結果をまず紹介する。そこでは、有限温度における物理量の温度依存性や相転移温度の振る舞いまで含めて、計算結果を実際の物質における実験結果と対応させることができる段階まで到達しつつある。また、DI-DCNQI₂Ag において観測された反強誘電的パターンの特異な電荷格子秩序状態[7]が、これらの結果をもとにさらに鎖間の「電荷フラストレーション」効果を考慮することによって再現できるという最近の計算結果[8]も合わせて紹介したい。

[1] H. Seo and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 1249.

[2] for a review, H. Seo *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 051009.

[3] D. S. Chow *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 1698.

[4] P. Monceau *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 4080.

[5] H. Yoshioka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 063706; *ibid.* **76** (2007) 103701; in preparation.

[6] H. Seo *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 013707; Y. Otsuka *et al.*, *ibid.* **77** (2008) 113705; Physica B **404** (2009) 479.

[7] T. Kakiuchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 066402.

[8] H. Seo and Y. Motome, Phys. Rev. Lett. **102** (2009) 196403.

SHG 顕微鏡観測による α -(BEDT-TTF)₂I₃ および α' -(BEDT-TTF)₂IBr₃ の強誘電相転移

分子科学研究所

山本 薫

分子性結晶にはヘリングボーン配列と称されるハの字型のスタック骨格をもつ物質が多く存在する。二次元電荷移動錯体では、このような物質は θ あるいは α 型塩と呼ばれており、ハの字を形成する分子の二面角が広い物質で電荷秩序の発生が確認されている。後者の α 型塩は分子配列に弱い二量化構造を含んでおり、電荷秩序によって分子が 1 分子おきに不均化する、分子変位を要することなく電気双極子を発生する。我々は、下記の 2 つの α 型 BEDT-TTF 塩において、このような双極子が巨視領域で強誘電的に配列することを光学 SHG 測定によって明らかにした。本講演では、これらの塩における強誘電分極の特徴を、種々の SHG 観測の結果をもとに議論する。

(1) α -(BEDT-TTF)₂I₃ この塩は室温で金属的に振る舞い、135 K において電荷秩序により金属-絶縁体転移する。圧力を印加すると電荷秩序は抑制され、グラフェンに類似したゼロギャップ伝導¹⁾や超伝導²⁾を示すなど、電荷移動錯体の中でも際だって多彩な電子相変化を示す物質である。単位胞 [三斜晶系 $P\bar{1}$] には、対称心上に位置した 2 の独立分子および反転対称で関係づけられている 1 組の等価分子の、4 つの BEDT-TTF 分子が存在している。金属絶縁体転移に伴う SHG の活性化は、電荷秩序によってこの等価分子が位相をそろえて不均化し、巨視的な自発分極が発現したことを示す³⁾。SHG 干渉法により 180 度ドメインの観測を試みた結果、一片が数 100 μ m を超える大きなドメインが成長していることが明らかになった⁴⁾。

(2) α' -(BEDT-TTF)₂IBr₂ この塩は、上記のヨウ素塩よりも局在性が強く、室温から半導体的な伝導度特性を示し、約 200 K でより高抵抗の絶縁相に転移する。SHG の温度依存性を測定したところ、電気抵抗で確認された転移点よりも約 40 K 低温から信号の発生が確認された。SHG の信号強度は、ヨウ素錯の場合、通常連続転移でみられる指数関数的な温度依存性を示したが、この物質では、温度減少の一次に比例して増大する異常な傾向がみられた。この結晶の単位胞には結晶学的に独立な 2 組の等価分子対が存在しており、異常な SHG の温度依存性は、電荷秩序によりこれらの分子対が非等価な双極子を形成し、それぞれを副格子とするフェリ強誘電的な秩序が形成したと考えると説明できる。講演では、SHG のマッピング観測で観測した不均一な分極発生についても議論したい⁵⁾。

1) S. Katayama, A. Kobayashi, and Y. Suzumura, JPSJ 2006; 2) N. Tajima et al., JPSJ 2006; 3) K. Yamamoto et al., JPSJ 2008, 山本薫, 固体物理, 2009; 4) K. Yamamoto, A.A. Kowalska, K. Yakushi, submitted; 5) K. Yamamoto et al., Physica B, accepted.

分子性導体の電荷秩序転移近傍における磁気抵抗効果

東京大学物性研究所

高橋 一志

強相関分子性導体の電荷秩序状態における電場、磁場、圧力などの外場応答としてサイリスタ効果や電場誘起準安定状態、巨大磁気抵抗、圧力誘起超伝導といった興味深い現象が報告され、近年分子性導体の電荷秩序状態への関心が高まっている。有機伝導体 β -(*meso*-DMeET)₂PF₆ は、100 K 以下でこの物質に特徴的なチェッカーボード型電荷秩序状態を形成することにより金属絶縁体転移し (図 1) [1, 2]、圧力下での超伝導転移[3, 4]、電圧・電流パルス下での非線形伝導や電場誘起準安定状態の存在[5]がこれまでに報告されている。磁場効果としては圧力下超伝導転移直上の温度領域でも正の大きな磁気抵抗が観測され、超伝導と電荷秩序状態との近接の可能性についても報告してきた[4]。この β -(*meso*-DMeET)₂PF₆ の常圧下での磁場応答について検討したところ、電荷秩序が短距離秩序から長距離秩序へ成長する直前の温度で (74 K) に 9 T で 60% を超す大きな正の磁気抵抗が観測された。磁気抵抗の温度依存性を検討したところ、大きな正の磁気抵抗は冷却過程では観測されるものの昇温過程では観測されないことが明らかとなった (図 2)。本講演では磁気抵抗の角度依存性、超格子・磁化の温度依存性の測定を通してこの磁気抵抗のメカニズムを提案する。また、他の電荷秩序転移を示す分子性導体に対する磁気抵抗効果について検討するため、 β -ET₂PF₆ や α -ET₂I₃ に対して電荷秩序転移近傍での磁気抵抗を測定したところ、これらの物質では負の磁気抵抗が観測されたので合わせて報告する。

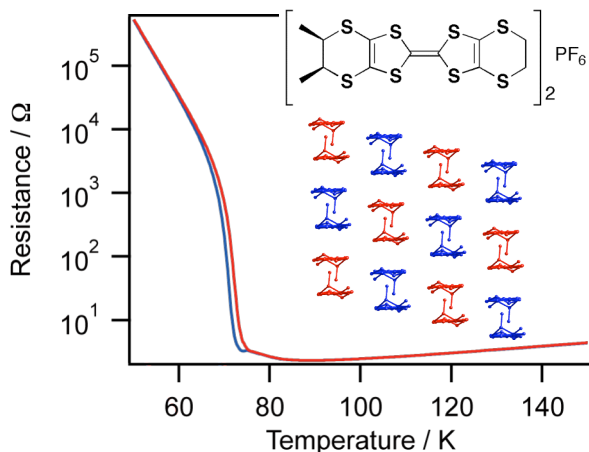


図 1 β -(*meso*-DMeET)₂PF₆ の分子構造、チェッカーボード型電荷秩序状態 (赤 : Rich、青 : Poor) のドナー層構造、常圧下抵抗温度依存性

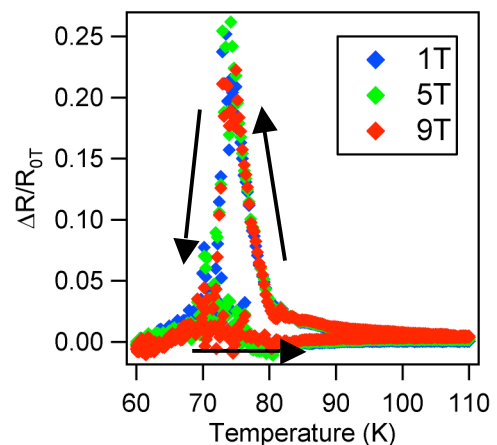


図 2 β -(*meso*-DMeET)₂PF₆ の磁気抵抗温度依存性

- [1] S. Kimura et al., *J. Am. Chem. Soc.* **2006**, 128, 1456. [2] M. Tanaka et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **2008**, 77, 024714.
[3] S. Kimura et al., *Chem. Commun.* **2004**, 2454. [4] N. Morinaka et al., *Phys. Rev. B* **2009**, 80, 092508.
[5] S. Niizeki et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **2008**, 77, 073710.

Session III 有機物②

電子強誘電体における光誘起相転移

東北大理、CREST 岩井伸一郎

強相関電子系における光誘起相転移の最も簡単なシナリオは、クーロン反発によって局在化した電荷の秩序を光励起によって融解することである。しかし、そのような光誘起絶縁体－金属転移において、強誘電性がどのように関係しているのかに関しては、実はまだ良くわかっていない。ここでは、電子強誘電体である電荷秩序絶縁体 α -(BEDT-TTF)₂I₃ を題材に、中赤外ポンププローブ分光や広帯域 THz ポンププローブ分光の結果[1-5]から、光誘起絶縁体－金属転移における電子強誘電性の役割について考えたい。

[1] Iwai et al. PRL98, 097402(2007)

[2] Iwai et al. PRB77, 125131(2008).

[3] Yamamoto, et al. JPSJ77, 074709 (2008).

[4] Kawakami, et al. PRL103,066403(2009)

[5] Nakaya et al. PRB submitted.

α 型、 κ 型 ET 塩における光励起状態

奈良先端大学 物質創成科学研究科

高橋 聡

α 型 ET 塩における電荷秩序状態、および、 κ 型 ET 塩におけるダイマーモット状態において、興味深い光誘起相転移が観測されている。これらの光誘起相転移の初期過程を理解するために、光誘起相転移の核となる、光励起状態の性質を調べた。2次元非等方三角格子上的 16 サイト拡張ハバードモデルを用いた。遷移積分は α 型、 κ 型いずれにおいても拡張ヒュッケル法により求められた値を用いた。クーロン相互作用は、 α 型においては電荷分布を再現するように決め、 κ 型においては様々な値での計算を行った。数値厳密対角化法で求めた基底状態をパルス光で励起した場合の時間依存シュレディンガー方程式を数値的に厳密に解くことにより、光励起状態を求めた。パルスの持続時間を十分に大きくとれば、パルス光の中心周波数 ω_{pump} をピークエネルギーに等しくとることにより、パルス消滅後の光励起状態はこのピークに対応するエネルギー固有状態となる。エネルギー準位が密に分布している場合は、エネルギー固有値が ω_{pump} 付近のエネルギー固有状態の重ね合わせが得られる。

α 型 ET 塩における電荷秩序状態からの光吸収スペクトルは、低エネルギー領域においては、多数の孤立ピークからなっており、これらのピークは電荷秩序をもつ絶縁状態への励起によるものであることがわかった。それに対して、高エネルギー領域の光吸収スペクトルは極めてブロードな構造を持ち、この構造に寄与する高エネルギー励起状態は金属的性質を示すことがわかった。このことから、光励起により直接金属ドメインが形成される可能性があることが明らかになった。

κ 型 ET 塩における基底状態は、現実的なクーロンパラメーターの範囲では、反強磁性状態が常磁性状態のいずれかであり、様々なクーロンパラメーターを変えることによりこれらの状態間で相転移が起きる。反強磁性状態もしくは相境界付近の常磁性状態は、ダイマー分子の分極を c 軸方向にそろえるサイトエネルギーの摂動に対して巨大な反応を示し、電荷密度やスピン相関関数が大きく変化すること、この摂動を加えることにより、基底状態が反強磁性状態となるクーロンパラメーター領域が広がること、などがわかった。この結果から、このダイマー分子の分極の電荷揺らぎは反強磁性磁気秩序と強い相関を持ち、反強磁性状態の物理に重要な役割を果たしていることがわかる。反強磁性状態の光吸収スペクトルは、低エネルギー領域には、少数の巨大な孤立ピークがあり、これらのピークは単純なハバード励起、もしくはダイマー励起とみなすことはできず、これらが強く混成したものであることがわかった。それに対して、高エネルギー領域の光吸収スペクトルは極めてブロードな構造を持ち、高エネルギー励起状態においては反強磁性磁気秩序が破壊されていることがわかった。

有機強誘電体 TTF-CA の電場変調分光

名大院工、JST-CREST 岸田 英夫

有機強誘電体 TTF-CA における誘電ドメイン構造と誘電的性質を光学的に明らかにすることを目的に、電場変調分光法による研究を行った。TTF-CA においては、ドナー分子 TTF (tetrathiafulvalene, 図 1(a))とアクセプターCA(chloranil)分子が交互に積層した一次元カラムを形成する(図 1(a)(b))。81K 以下の低温相では TTF と CA 間の電荷移動量 p が 0.5 を超え、イオン性相 (I 相) と呼ばれる電子状態をとる。この I 相では、スピンパイエルズ機構により TTF と CA 分子が二量体を形成する(図 1 (c))。DA 鎖は分極の向きが 180 度異なる IA ドメイン又は IB ドメインを形成し、その境界にはドメイン壁(DW)が存在する。構造解析から、結晶中では 3 次的に二量体が in-phase 配置で(すなわち強誘電的に)配列していることが明らかになっている。IA と IB はエネルギー的に等しいため、IA と IB を光学的に区別することは難しい。しかし外部電場を印加すると、内部電場に違いが生じる。すなわち、印加電場によって電荷移動量を変化させると、IA,IB のドメインの光学スペクトルに違いが生じる。この違いを観測することによりドメイン構造の情報が得られる。電場印加による反射率(3.5eV)の変化をマッピング測定した(図 2, 77K) [1]。100 μm スケールの IA,IB ドメインが形成していることがわかった。さらに強い電場を印加すると、ドメイン壁の移動に由来する信号が得られた。また、赤外振動モードの電場変調分光により、外部電場は電荷移動量だけではなく、二量体化度も変調していることを明らかにした。

[1] H. Kishida, H. Takamatsu, K. Fujinuma and H. Okamoto, to appear in *Phys. Rev. B*.

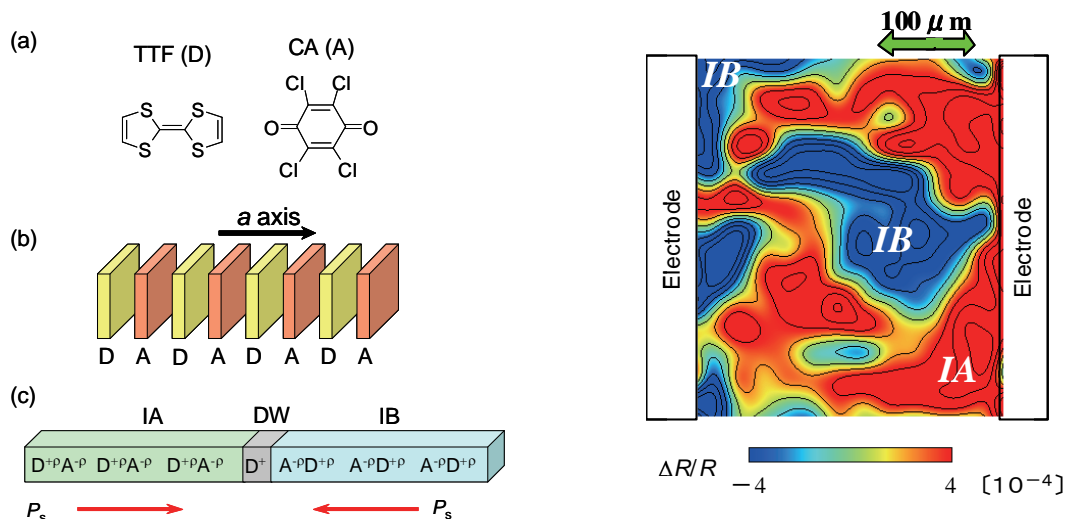


図 1 (a) TTF と CA 分子 (b) 交互積層型 DA 錯体 (c) DA 鎖における IA,IB ドメインとドメイン壁

図 2 TTF-CA における誘電ドメインの電場変調分光法による観察。(印加電場強度 =2kV/cm)

Session IV 酸化物②

希土類金属バナジウム酸化物における Jahn-Teller 転移に伴う誘電異常

大阪大学大学院基礎工学研究科

木村 剛、岸本一誠、石倉太志、中村浩之、若林裕助

化学式 RVO_4 (R は 3 価の希土類金属イオン) で表される物質は図に示すような結晶構造を持ち、rare-earth zircon と総称される。同物質においては希土類イオンの $4f$ 電子状態が結晶場を介して格子と相互作用を持つ。その結果、 RVO_4 のいくつかは結晶が歪むことで $4f$ 電子状態の基底多重項の縮退が解け、低対称な構造が実現する (すなわち Jahn-Teller 効果) [1]。この転移は希土類イオンの f 電子状態と格子変位との相互作用に起因しており、正方晶から斜方晶への構造変化及び f 電子軌道の整列を伴う。この Jahn-Teller 転移の磁場効果については過去にいくつかの研究が行われ、磁場によって f 電子の持つ磁気モーメント J を揃えることにより軌道整列させることができるため、磁場による転移の制御が可能となっている [2,3]。本研究では、Jahn-Teller 効果を示す rare-earth zircon の典型例として、ゼロ磁場では $T_D=14K$ で Jahn-Teller 転移を生じる $DyVO_4$ に着目した。磁場中での X 線回折測定や誘電率測定を行い、 $DyVO_4$ における Jahn-Teller 転移に起因する構造物性・誘電特性の温度および磁場に対する変化の詳細を調べ、それらの結果をもとに同物質における構造・誘電特性と f 電子状態との関連性について議論する。

[1] G. A. Gehring and K. A. Gehring, Rep. Prog. Phys. 38, 1 (1975).

[2] J. H. Page *et al.*, J. Phys. C: Solid State Phys. 17, 51 (1984).

[3] C. Detlefs *et al.*, Phys. Rev. Lett. 100, 056405 (2008).

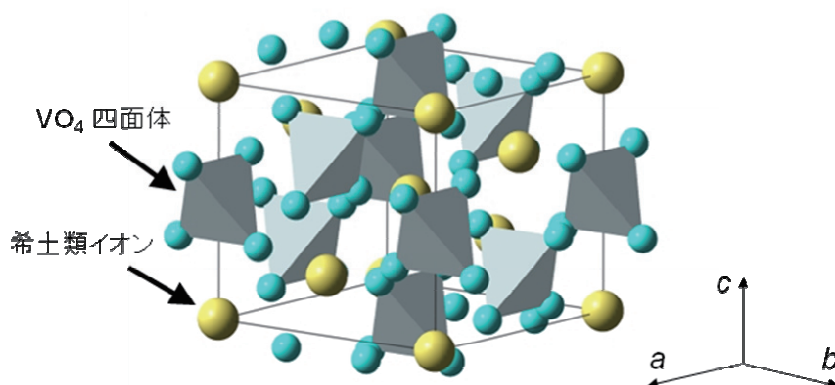


図: RVO_4 の結晶構造

YbFe₂O₄ エピタキシャル薄膜の作成とその物性

大阪府立大学 工学研究科 電子物理工学専攻
藤村 紀文、吉村 武、廣瀬 浩次、湯川 博喜

【はじめに】 RFe₂O₄(R=Ho,Er,Tm,Yb,Lu,Y)は、三角格子を構成する Fe²⁺と Fe³⁺がフラストレーションを緩和して電荷整列構造を形成することで自発分極を発現する新規な強誘電体として注目されている。我々はレーザーアブレーション(PLD)法を用いて YbFe₂O₄ 薄膜の作製に取り組み、世界に先がけて、単結晶基板直上および電極膜上に YbFe₂O₄ エピタキシャル薄膜を作成することに成功した。本講演では、YbFe₂O₄ 薄膜の相形成、組成制御およびエピタキシャル成長について述べるとともにその輸送特性に関して議論する。

【実験方法】 YbFe₂O₄ 薄膜の作製には、PLD 法を用いた。ターゲットには Yb : Fe=1 : 2 となるように Yb₂O₃ と Fe₂O₃ を混合し焼結したセラミックスを用い、基板には YSZ(111)を用いた。平衡状態図によれば、RFe₂O₄ 相は還元雰囲気 1200°C 程度の温度域でのみ安定な高温相であることから、850°C、900°C の基板温度で製膜を行った。また、発生するプルーム中に存在する活性種を発光分光分析(OES)を用いて観察した。作製した薄膜の XRD_{2θ-ω}測定と広域逆格子マッピング測定を用いて生成相の同定、成長方位およびその結晶性の評価を行った。また、80-300K におけるキャリア輸送特性の評価も行った。

【実験結果】 成長温度 850°C では主に FeO、Fe₂O₃、900°C では Yb₂O₃ の異相が存在するものの、どちらの温度においても YbFe₂O₄ 相の生成が確認できた。また、レーザーパワーやファースティングレンズの位置を変化させることによって膜の組成を変化できることがわかった。これらを考慮しながら単層エピタキシャル膜の作成を試みた。

基板温度 900°C において YSZ 及び c-sapphire 上で YbFe₂O₄ の単相が得られた(Fig.1)。0006 回折ピーク位置から算出される c 軸長は YSZ、及び Sapphire 上でそれぞれ 25.11、25.20 Å となっており、Kimizuka ら²が報告している c=25.109 Å とほぼ一致している。その結晶構造をさらに詳細に解析するために c-sapphire 上に作製した薄膜に対して広域逆格子マッピング測定を行った(Fig.2)。回折点は YbFe₂O₄ の に 帰 属 さ れ る こ と を 確 認 し た 。 ま た 入 射 方 位 に よ っ て 異 なる 回 折 像 が 得 ら れ 、 sapphire 基 板 と YbFe₂O₄ 薄 膜 の エ ピ タ キ シ ャ ル 成 長 方 位 関 係 は [0001]sapphire//[0001] YbFe₂O₄、[10-10]sapphire//[11-20] YbFe₂O₄ であることがわかった。単層が得られない場合の、異相としては YbFeO₃、Yb₂O₃、FeO_x 等が確認された。

基板温度 900°C において YSZ 及び c-sapphire 上で YbFe₂O₄ の単相が得られた(Fig.1)。0006 回折ピーク位置から算出される c 軸長は YSZ、及び Sapphire 上でそれぞれ 25.11、25.20 Å となっており、Kimizuka ら²が報告している c=25.109 Å とほぼ一致している。その結晶構造をさらに詳細に解析するために c-sapphire 上に作製した薄膜に対して広域逆格子マッピング測定を行った(Fig.2)。回折点は YbFe₂O₄ の に 帰 属 さ れ る こ と を 確 認 し た 。 ま た 入 射 方 位 に よ っ て 異 なる 回 折 像 が 得 ら れ 、 sapphire 基 板 と YbFe₂O₄ 薄 膜 の エ ピ タ キ シ ャ ル 成 長 方 位 関 係 は [0001]sapphire//[0001] YbFe₂O₄、[10-10]sapphire//[11-20] YbFe₂O₄ であることがわかった。単層が得られない場合の、異相としては YbFeO₃、Yb₂O₃、FeO_x 等が確認された。

薄膜成長中に酸素を導入せずに作成した膜の導電率の温度依存性(lnρ-T プロット)は測定温度範囲ではほぼ直線であり、その活性化エネルギーは 230meV であった。また、微分プロットより 230K 近傍に変曲点があることが示唆された。

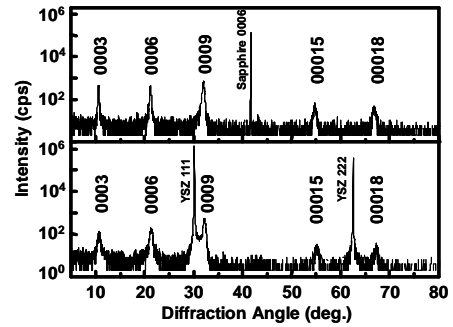


Fig.1 XRD patterns of YbFe₂O₄ thin films

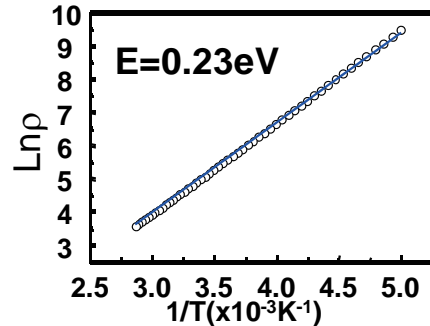


Fig.3 ρ-T property of YbFe₂O₄ thin film deposited

三角格子系誘電体 LuFeMO_4 (M=Cu, Co) の 磁気・誘電特性と局所構造

森茂生

大阪府立大学 大学院工学研究科

LuFe_2O_4 は Fe^{3+} と Fe^{2+} の規則配列で特徴づけられる電荷秩序構造が形成されると同時に電気双極子が発現し、強誘電性が生じることで注目を集めている物質である。本研究では、 LuFe_2O_4 における Fe^{2+} を Cu^{2+} および Co^{2+} で置換した LuFeMO_4 (M=Cu, Co) を作製し、磁気・誘電特性、微細構造および局所構造について調べた。さらに、酸素欠損を抑制するために、酸素雰囲気中でアニール処理を行い、 LuFeCuO_4 における酸素欠損と誘電特性との相関についても調べた。

図 1 に酸素 300 気圧、873K で 12 時間アニール処理を行った LuFeCuO_4 における誘電率の温度依存性を示す。図 1 に示すように、室温から試料温度を上昇させると、誘電率の実数部分 (ϵ') は増加し、450K~550K 近傍でピークを示すとともに、周波数依存性を示すことが見出された。次に、 LuFeCuO_4 における微細構造を明らかにするために、超格子反射を用いて暗視野像の観察を行った。図 2 に示すように、明るい斑点状のコントラストが 10~20nm の大きさで分布しているのが見られる。このことから、 Fe^{3+} と Cu^{2+} の短距離秩序が 10~20nm のナノサイズドメインを形成していることがわかる。酸素アニール処理による誘電特性の変化および微細構造の変化についても報告する。

本研究は、松尾祥史、池田直 (岡山大学)、吉井賢資 (原研関西)、鈴木宗泰、野口祐二、宮山勝 (東京大学) 各氏との共同研究によるものである。

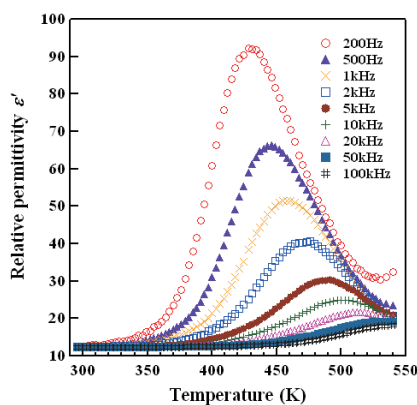


図 1. 誘電率の温度依存性

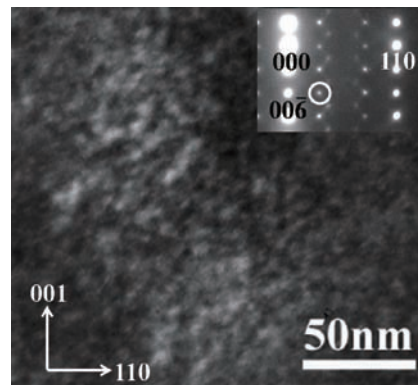


図 2. LuFeCuO_4 における微細構造

Session V 有機③

量子電気双極子 — dimer Mott 絶縁体が示す誘電異常

早稲田大学先進理工学部

寺崎一郎

電気伝導を示す分子性結晶である有機導体は、超伝導、電荷密度波、スピン密度波、Mott 絶縁体などの舞台として長く研究されてきた。特に、BEDT-TTF (ET)分子を基本要素とする有機導体は、我が国において精力的に研究されてきた。最近、我々は κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の誘電率を調べ、この系の誘電応答が特殊であることを見出したので、本研究会で報告したい。

κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ はスピン液体の舞台である。この物質は κ 型のパッキング、つまり2つのBEDT-TTF 分子が向かい合って2量体化したものが井桁状に配列した構造を持つ。電子の自由度としては、BEDT-TTF の形式価数は0.5なので、2量体あたり1個のホールが存在する。したがって、2量体を一つの原子とみなすと、この系は「原子」あたり1個のホールが存在することになり、Mott 絶縁体の条件を満たす。事実、この系は低温で Mott 絶縁体として振る舞い、絶縁体となると同時に $S=1/2$ の磁気的自由度を示す。そのため dimer Mott 絶縁体と呼ばれる。興味深いことに、この系では、2量体が三角格子の上に配列するために、スピン自由度にフラストレーションが生じ、大きな超交換相互作用 $J/k_B=250$ K にもかかわらず 1 K 以下まで磁気相転移を示さないスピン液体が形成される。

図1に κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の面間方向(a 軸方向)の誘電率を示す。およそ 60 K 以下で誘電率が低温に向かって増大しはじめ、顕著な周波数依存性を示すことがわかる。この振る舞いは、リラクサー誘電体の誘電分散とよく似ており、この系の中に分極がそろった領域が不均一に生じていることを強く示唆する。我々は、2量体上に局在したホールがサイト間のクーロン斥力によって互いに避け合う結果、2量体間で電荷分布の偏りが生じたために現れた電気双極子がこの誘電応答の起源であると考えた。もしこのシナリオが正しければ、純粹に電子的であり、かつ量子力学的な電気双極子が存在することを意味する。より詳しい実験結果の紹介とその詳しい解析は当日行う予定である。

本研究は Majed Abdel-Jawad, 上江洲由晃, 佐々木孝彦, 米山直樹, 小林典男, 堀田知佐各氏との共同研究である。

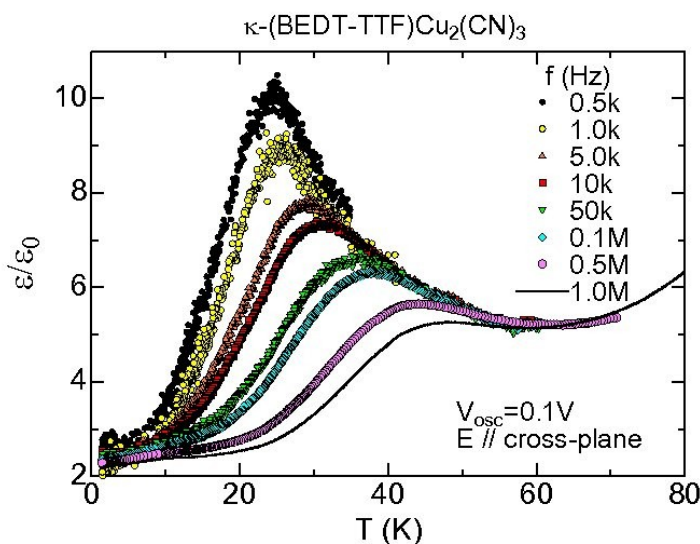


図1 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の誘電率

スピン液体系 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃研究の現状と問題点 -電荷自由度の観点から-

東北大学金属材料研究所

佐々木孝彦

κ 型と呼ばれる BEDT-TTF 分子配列をもつ分子性導体 κ -(BEDT-TTF)₂X は、BEDT-TTF 分子の強いダイマー構造のために分子ダイマーあたり+e の電荷を有するダイマーモット型の電子状態になっている。この分子ダイマーは2次元的な異方的三角格子を組み、異方性が大きい場合は低温で反強磁性モット絶縁体状態になる。このときに静水圧力の印加などによりバンド幅を広げると1次相転移(バンド幅制御型モット絶縁体-金属転移)を経て超伝導状態が現れる。最近、この三角格子の異方性が小さい物質、 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃、において極低温度($T = 30 \text{ mK} \ll J = 250 \text{ K}$)まで反強磁性長距離秩序があらわれないことが NMR 実験などにより示された。極低温度まで磁気秩序が現れない原因は分子ダイマー上の電荷が有する $S = 1/2$ スピンが等方的三角格子によるスピンプラストラーションにより長距離秩序化しないためにスピン液体状態が実現しているものと考えられている。このスピン液体状態の磁気励起に関して NMR, 比熱, 熱伝導度の実験, 種々の理論提案からギャップレス, 非常に小さいギャップありなどの議論が続いている。

一方で、反強磁性モット絶縁体である κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl では明瞭に見られるモット絶縁体化による電荷ギャップがスピン液体系では光学伝導度に表れないなど電荷も異常な振る舞いを示している。私たちはこのスピン液体物質を電荷自由度の観点から種々の実験手法により調査をおこなっている。その結果、モット絶縁体状態においても分子ダイマー構造と分子間クーロン相互作用により本質的(量子的)にダイマーに内在する電荷自由度に起因すると考えられる異常な誘電応答を見出した。(寺崎氏講演) リラクサー誘電体に類似した誘電率が大きな周波数分散を示す温度領域では、負の熱膨張係数やフォノン線幅の異常(岩井氏講演)など電荷の異常と結合した格子系の異常も見出されている。さらに低温の5-6 K で比熱, 熱伝導度, 熱膨張係数などに相転移を示唆する構造が現れるが、誘電率測定からはこの温度以下では反強誘電状態になっていることを示唆している。

本講演では、スピン液体系 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃における研究の歴史的経緯と現状そして問題点を紹介した後に、現在、私たちが取り組んでいる電荷自由度の観点からの研究の経緯と今後の方向性について紹介する。

本研究は、以下にあげる多くの方々との共同研究、議論によってはじめて可能となったものです。深く感謝いたします。(敬称略) 寺崎 G (早稲田), 堀田知佐 (京産大), 後藤 G (上智), 野上 G (岡山), 岩井 G (東北大), 岸田 G (名大), 松田 G (京大), M. Lang, R. Valenti (Frankfurt).

強相関量子誘電体

京都産業大学 理学部

堀田 知佐

電子誘電体の特徴の一つに、電子の誘電分極の正味の値が、その遍歴性によって点電荷に比べて数倍小さくなる可能性が挙げられる。これはいわゆる電子軌道の量子力学的“混ざり合い”の効果であり、格子とカップルしたイオン変位型の誘電体にはない量子力学的特徴がこの新しいクラスの誘電体電子に顔を出す可能性が期待される。今回、その量子力学的遍歴性の効果が最も強いと考えられる新しい「量子誘電体」実現の可能性について、理論的に考察する。

最近、有機結晶 $\kappa\text{-ET}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ において、約 60 K 以下の低温において誘電率が急激な増大を示す実験が報告された [1]。この物質は、ダイマー 1 つあたり電子が 1 個ずつ局在した、いわゆる“ダイマーモット絶縁体”として知られる $\kappa\text{-ET}$ 塩の一つである。ダイマーが 2 次元伝導面内で等方的三角格子に近い配列をとるために、ダイマー上の $S=1/2$ が交換相互作用 J の幾何学的フラストレーションの効果によって「スピン液体」が実現する可能性を求め、近年、実験・理論両面で研究が盛んに行われている [2]。この物質で最近、7 K あたりで何らかの相転移が示唆される実験結果が報告された [3]。我々は、今回の誘電率の異常と併せて、この系が絶縁化ののちも依然、何らかの形で電荷の自由度を内在している傍証と考えている。残留自由度としてダイマー内に閉じ込められた電荷の揺らぎが挙げられる。ダイマー内のサイト 1/2 にある分子軌道 ϕ_1/ϕ_2 に電子がいる状態をそれぞれ $1 \rightarrow 2 / 2 \rightarrow 1$ の方向に局所的な誘電分極が生じているとみなそう。ダイマーの反結合軌道を $(\phi_1 - \phi_2) / \sqrt{2}$ で表した場合、電荷が 1 つこの軌道上にいる状態は、この二つの間を電荷が量子力学的に t_A (ダイマー内の遷移積分) によって揺らいでいるとみなすことができる。この二つの状態を 2 成分スピノル $P = \pm 1/2$ であらわすことにより、量子多体系における定式化が可能になる。そこでマイクロなモデルから出発し、スピンと量子誘電ベクトルがカップルした有効モデルを構築する。講演ではこの有効モデルをもとに、電荷とスピンの相関によってどのような状態が実現するのか、フラストレーション以外の理由でスピン液体が安定化する可能性はないか、などについて議論する。

$$\Psi_{\text{bonding}}^{\text{anti}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\begin{array}{c} 1 \\ \phi_1 \end{array} - \begin{array}{c} 2 \\ \phi_2 \end{array} \right)$$

本研究は、佐々木孝彦氏、寺崎一郎氏らとの共同研究である。

[1] M. Abdel-Jawad, et.al, 寺崎一郎 本研究会講演.

[2] Y. Shimizu et al., Phys. Rev. Lett. 91, 107001 (2003). S. Yamashita et al., Nature Physics 4, 459 (2008); M. Yamashita et al., Nature Physics 5, 44 (2009). H. Morita, et.al.JPSJ71, 2109 (2002).

[3] R. S. Manna, et.al. arXiv:0909.0718v1

Session VI 酸化物③

偏極中性子を活用した複雑磁気構造の研究

日本原子力研究開発機構

加倉井和久

基本的に磁気構造は中性子磁気散乱強度解析により検証されることは周知の事であるが、その構造の複雑さに伴い、粉末試料回折実験、単結晶回折実験が使用される。しかしフラストレート系やマルチフェロイック系等の物質で観察される複雑な磁気構造の場合には、是等の非偏極中性子回折手法では十分に精度よく、あるいは全く検証出来ない構造パラメーターが存在する。この様な複雑な磁気構造の解明に偏極中性子解析が重要な役割を果たす事が期待出来る。

偏極中性子を活用する磁性研究の手法は原理的には中性子散乱の初期からその重要性が認識され、原理実験として検証されてきた。しかし当初技術的に十分な強度の偏極中性子ビームが得られなかったために、なかなか本格的利用にいたらなかった。近年、中性子源の増強と偏極デバイスの発展により、比較的強度の強い偏極中性子ビームががより一般的に使用されるようになってきたと言える。日本でも JRR-3 研究用原子炉の改造後に偏極中性子利用は精力的に推進され、近年一般の中性子磁性研究者にもより多く活用される様になって来たと思われる。

そこでこの講演では最近の JRR-3 定常中性子源における偏極中性子を活用した強磁性やマルチフェロイック物質等の磁性研究を例に、偏極中性子利用の現状を概観する。そして将来的に定常炉とパルス中性子源における偏極中性子相補利用に必要な偏極技術開発の現状も紹介したい。

LuFe204 の電流印加効果の観測

高エネ研、岡山大学^A、日本原子力開発機構^B

久保田正人、早川弘毅^A、大石大輔^A、赤浜祐士^A、吉井賢資^B、
神戸高志^A、池田直^A

LuFe204 は、三角格子面が積層した結晶構造を取る。ユニットセル内には、2枚の鉄イオン三角格子面を1組としたW-layerがc軸方向に3組積層している。三角格子面には、Fe²⁺とFe³⁺サイトが存在し、Fe²⁺サイトには、軌道の自由度が存在している。しかも、低温では鉄スピンの秩序化し、マルチフェロイック的な振る舞いを示すといった多彩な電子自由度が内在している。特徴的なのは、LuFe204の鉄イオンの平均価数がFe^{2.5+}であり、Fe²⁺とFe³⁺サイトが同数存在するために、電荷のフラストレーションが内在していることが挙げられる。Fe²⁺サイトとFe³⁺サイトは、隣接することがエネルギー的に安定であり、三角格子面内で[1 1 0]方向に、(結晶構造のユニットセルの)3倍周期の電荷秩序が出現する。その際、従来のイオン変位型強誘電体の発現機構と異なり、W-layer内にFe²⁺とFe³⁺の電荷秩序状態が電気分極を発現し、新規な電子強誘電体として振舞う。

今回、フラストレーションを伴う電荷秩序における空間相関を明らかにするために、KEK放射光科学施設PF-BL-4Cを用いて、室温での放射光X線回折実験を行なった。実験には、フローティングゾーン法で作製したLuFe204単結晶を用いた。

鉄元素のK吸収端近傍のエネルギーを用いて、3倍周期の電荷秩序に伴うサテライトピークのプロファイル測定を行った結果、積層方向には反強的な相関が存在し、3次元的な電荷秩序が発達していることが確認された。一方、電流印加に伴い積層方向の反強的な相関が抑制されることが明らかになった。また、面内方向でサテライトピークのインコメンシュラビリティーの変化が観測された。発表では、LuFe204の電流印加に伴う電荷秩序状態の変化の様子について、議論する。

YbFe₂O₄ への電荷ドーピングと電荷三倍格子の安定性

JASRI/SPring-8 岡山大理¹⁾

水牧仁一朗 黒田朋子¹⁾ 河村直己 花咲徳亮¹⁾ 神戸高志¹⁾ 池田直¹⁾

R(R=重希土類元素)Fe₂O₄はR-Oで構成された三角格子とFe-Oで作られた三角格子の層が交互に積層する層状酸化物である。Feイオンは混合原子価であり、平均価数が+2.5価である。Fe-Oで作られたレイヤーにおいてFe²⁺とFe³⁺はそれぞれ同数存在する。そのため、Fe²⁺とFe³⁺イオンに局在化した電荷の相互作用において、フラストレーションを起こす。そのフラストレーションを解放するために、二次元三角格子鉄酸化物RFe₂O₄のFe²⁺とFe³⁺は、約330Kにおいて3次的に規則配列を起こし、強誘電相へと転移する。そのとき、面内には $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ の超格子を、面間では3倍周期をもった超格子をくんだ電荷秩序を示す[1]。また、その極性的な秩序配列がその強誘電性のメカニズムとして知られている。我々は、この新規な電子誘電体RFe₂O₄の $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ の超格子配列をもった電荷秩序相の安定性を調べるために、YbFe₂O₄のYbサイトに、電子(Ce)ドーピングを行い、誘電特性および磁気特性の変化を追った。さらに、Ceの価数を評価するために、Ce-L₃吸収端においてX線吸収(XAS)測定を行った。

図1にCe-L₃吸収端におけるXASスペクトルのCe濃度依存性を示す。低濃度側でCe⁴⁺で、高濃度になるにつれてCe³⁺に近づいていることがわかる。これは、Ceを導入してもFe層に電子がドーピングされることはなく、Fe²⁺:Fe³⁺=1:1のバランスは保たれていることを示している。一方、誘電率、磁化率ともに、Ceがドーピングされるにつれて減少した。しかしながら、磁気転移点は、x=0.00からx=0.07まで、減少するものの、x=0.10では転移点が上昇する振舞が観測されている。このことはXASの結果とも考え合わせるとCeドーピングに対して、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ の電荷秩序パターンが極めて堅固であり、Feイオン間の磁氣的相互作用がCeドーピングに対してリエトラント的な振舞をしていると考えられる。

[1] N. Ikeda, et al., Nature 436 (2005) 1136.

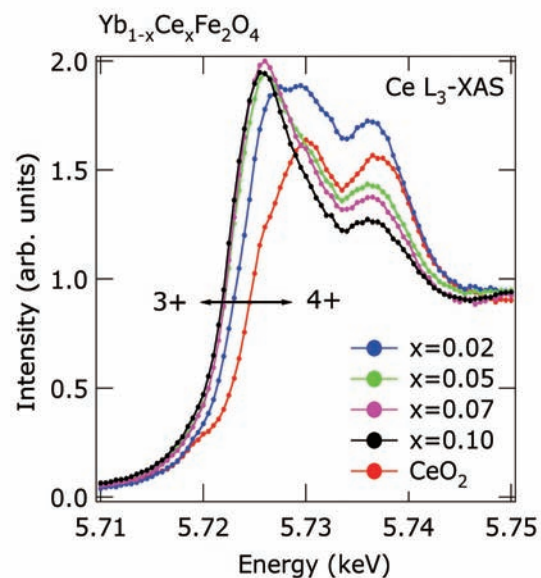


図1 Yb_{1-x}Ce_xFe₂O₄のCe-L₃吸収端におけるXASスペクトルのCe濃度依存性。

共鳴非弾性X線散乱による電荷ダイナミクスの観測

原子力機構放射光

石井賢司

放射光光源の発達により非弾性X線散乱による電子励起状態の研究が行われるようになってきている。光であるX線は電子の電荷により散乱されることから、物質の電荷ダイナミクスに関する情報が得られる。非弾性X線散乱は、原子の吸収端から離れたエネルギーのX線を用いる非共鳴非弾性散乱と、吸収端近傍のエネルギーを用いることで内殻準位との共鳴効果を利用した共鳴非弾性散乱とに大別される。非共鳴非弾性散乱では電荷の動的相関関数を直接観測することができるが、電子励起の強度は現在の放射光をもってしても不十分で、現時点では専ら格子振動の観測に用いられている。一方、共鳴非弾性散乱は、エネルギー分解能は非共鳴散乱には劣るものの、共鳴効果を利用して電子励起強度を増大させることができる。最近のいくつかの研究から、共鳴X線非弾性散乱の強度も、定性的にはあるが電荷の動的相関関数と一致していることがわかってきた[1, 2]。そうすると、磁気秩序物質において中性子非弾性散乱が果たしている役割を、電荷秩序物質においてX線非弾性散乱に期待することができる。つまり、電荷秩序相からの集団励起モードや秩序相近傍での電荷揺らぎを観測することでその背後にある相互作用の議論が可能となる。

我々は、その第一歩として電荷秩序に関連した励起の探索を行ったところ、いくつかの物質において、電荷秩序の周期に対応した波数で特徴的に現れる励起があることを発見した。講演ではその一部に加えて、発展的研究である電荷フラストレーション系に対する研究計画について紹介する。

参考文献

- [1] K. Ishii et al., Phys. Rev. Lett. **94**, 207003 (2005).
- [2] J. Kim et al., Phys. Rev. B **79**, 094525 (2009).

電子強誘電体と電荷揺らぎ、電荷フラストレーション

東北大学大学院理学研究科

石原純夫

電子の電荷秩序により誘電分極が生じたり、電子間相互作用が強誘電相転移に大きな役割を果たす物質群は電子強誘電体もしくは電荷秩序型強誘電体と呼ばれており、いくつかの遷移金属酸化物や低次元電荷移動型有機錯体においてその可能性が指摘されている。電子は原子核やプロトンより軽い為、通常の誘電体と比較して誘電揺らぎが分極相の安定や動的性質に重要な役割を果たすと考えられる。また電子は電荷に加えてスピンの自由度を持つため、マルチフェロイクスとしての可能性も期待できる。

このような観点から、本講演では特に層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 における特異な誘電性に焦点を当てた最近の我々のグループの研究結果を紹介する[1-3]。この系の誘電性を担う三角格子二重層における電子状態を、モンテカルロ法、変分モンテカルロ法、ランチョス法等で解析した結果、三角格子に起因した電荷とスピンのフラストレーション効果、並びに電子の熱ゆらぎ（有限温度効果）/量子揺らぎ（電子遷移）効果の両者が分極相の出現に大きな役割を果たしていることを明らかにした。講演ではこのような観点から行った、低次元有機錯体における特異な誘電性の考察についても触れる予定である。本研究は中惇、渡邊努、高島宏和、那須譲治、長野あやとの共同研究である。

- [1] A. Nagano, M. Naka, J. Nasu, and S. Ishihara, Phys. Rev. Lett. 99, 217202 (2007).
- [2] T. Watanabe, and S. Ishihara, Jour. Phys. Soc. Jpn. (2009) (to be published)
- [3] S. Ishihara, Jour. Phys. Soc. Jpn. (Special Topics)

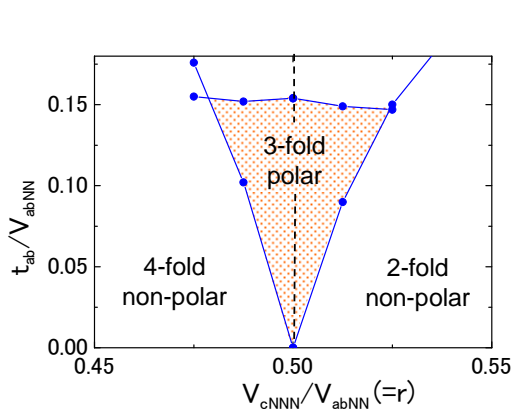


図1：変分モンテカルロ法による三角格子二重層における相図[2]。縦軸は電子トランスファー、横軸はクーロン相互作用の比。

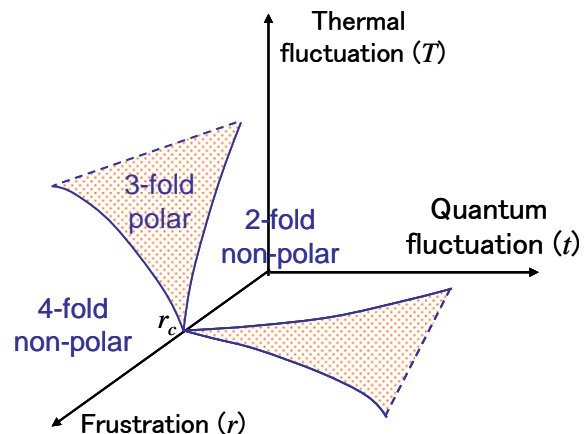


図2：三角格子二重層における相図の模式図[3]。