

博士論文 (要約)

論文題目

Pseudo-gap and quantum criticality in the vicinity of Mott transition in the quasi-two-dimensional organic conductors,
 $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$

(擬二次元有機導体 $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ における

モット転移近傍での擬ギャップと量子臨界現象)

氏名 古川 哲也

1) 研究背景

モット転移は強く相互作用したハーフフィリング系で起こる金属絶縁体転移のひとつであり、転移近傍で起こる非自明な電子相（超伝導、擬ギャップ、量子スピン液体など）の解明と、モット転移自体の相転移として性質を理解することが、これまで精力的に行われてきた。そのなかでも擬二次元有機導体 κ -(ET)₂X (X = Cu[N(CN)₂]Cl, Cu[N(CN)₂]Br, Cu(NCS)₂, etc.)におけるモット転移の研究は近年とくに注目を集めている。 κ -(ET)₂XはアニオンXからなる非磁性絶縁層と、ET分子から成る伝導層が交互に積み重なった層状構造を持つ。伝導層はET 2量体当たり、ホールが1つドーピングされている形になっており、異方的三角格子を持つハーフフィリング系として見なせる（ダイマーモデル）。この κ -(ET)₂Xのもつ特長は、アニオンXの置換という化学的方法と、圧力媒体を用いた加圧という物理的方法によって、その電子相関 U/t （オンサイトクーロンエネルギーと移動積分の比）やフラストレーション t'/t （対角サイトと近接サイトの移動積分の比）を変えられることであり、例えばドーピング制御が容易な銅酸化物モット系とは相補的な系になっている。

κ -(ET)₂Xの概念的な温度圧力相図は図1のようになることがわかっている[1,2,3]。低圧側は電子相関が強いためモット絶縁体の実現し、低温において、フラストレーションが弱い場合は反強磁性磁気秩序が、強い場合はスピン液体状態が実現する。高圧側は電子相関が弱いため遍歴電子相が実現し、高温から温度が下がるにつれバッドメタルからフェルミ液体へと電子がコヒーレントになり、さらに低温では超伝導が見られる。絶縁体と金属の境界には一次転移のラインが走っており、臨界終点を $T_c=20\text{K}$ から 40K 程度に持つ（ T_c は物質によって異なる）。 T_c より高温では系は金属絶縁体のクロスオーバーの領域であるとされている。

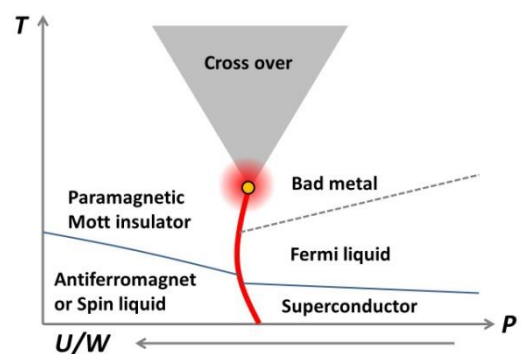


図1 κ -(ET)₂Xの概念的相図

本論文ではモット転移近傍の周辺相の解明という観点から、強相関金属相における擬ギャップ現象についての研究を述べる。また、モット転移の相転移としての性質を調べる

という観点から、前述の金属絶縁体クロスオーバー領域においてモット転移の量子臨界現象が起きているという可能性を示す。

[1]F. Kagawa, et al., Phys. Rev. B **69** 064511 (2004).

[2]S. Lefebvre, et al., Phys. Rev. Lett. **85** 5420 (2000).

[3]Y. Shimizu et al., Phys. Rev. Lett. **91**107001 (2003).

2) κ -(ET)₂Xにおける擬ギャップ現象

擬ギャップの研究は、それがモット転移近傍の金属相を特徴付けるカギとなる物理だという認識から長年にわたり注目を集め、銅酸化物高温超伝導体（ドーピング制御のモット転移系）において精力的に研究がなされてきた。実験から見たその大きな特徴のひとつは超伝導転移温度よりも十分大きな温度から、スピン励起が抑えられるという点にある。この現象に類似した実験事実が κ -(ET)₂Xにおいても報告されており[4]、本研究ではこの現象を「 κ -(ET)₂Xにおける擬ギャップ」と呼び、ハーフフィリング系のモット転移近傍の強相関金属相の理解のためにその性質の理解を目指した。

κ -(ET)₂Xの金属相はモット転移近傍にあることからこの擬ギャップが、電子相関に深く関連していることが予想される。しかし、電子相関によってこの擬ギャップがどう変化するかはこれまで系統的に測られてこなかった。そこで本研究では常圧でモット転移直上に位置する κ -(d8-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br (d8は重水素置換を意味する)の加圧下における¹³C-NMRを伝導面平行に磁場を8T印加して行い、

κ -(ET)₂Xにおける擬ギャップの電子相関による変化を系統的に調べた。NMR緩和率を温度で割った $1/T_1T$ (動的磁化率の虚部 $\chi''(q, \omega_{\text{NMR}})$ に対応)の温度依存性を各圧力(4,20,50,100MPa)で見ると(図2)、(コヒーレントな)金属相において、低圧では超伝導転移温度の2倍程度の温度から $1/T_1T$ がコリンハ則(コヒーレントな金属相で期待される $1/T_1T$ =一定のふるまいからずれて減少するのに対し(擬ギャップ現象)、高圧ではコリンハ則に従うふるまいが見られた。この実験結果から、 κ -(ET)₂Xにおける擬ギャップはモット転移の近傍で顕著に見られるということがわかった。

次にモット転移に伴い、どのようなゆらぎが κ -(ET)₂Xにおける擬ギャップを引き起こすの

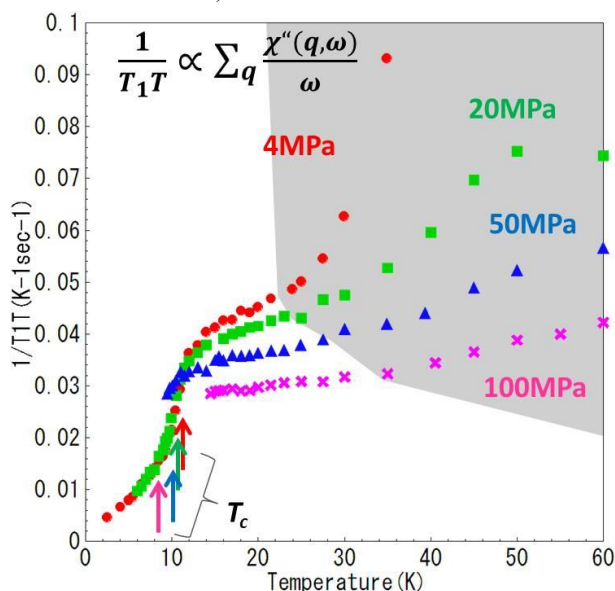


図2 各圧力における $1/T_1T$ の温度依存性

(灰色はバッドメタルもしくは金属絶縁体クロスオーバーの領域)

次にモット転移に伴い、どのようなゆらぎが κ -(ET)₂Xにおける擬ギャップを引き起こすの

かという問題を考える上で、 $1/T_1T$ がモット転移近傍になるほど増大していることに注目した。増大の理由としては状態密度の増大と、反強磁性ゆらぎの増大の2つの要因が主に考えられる。どちらが主な要因かを知るために、ナイトシフト K_s (スピン磁化率 $\chi'(q=0, \omega=0)$ に対応)と $1/T_1T$ の圧力効果の比較を行った。その結果、ナイトシフトの温度依存性は $1/T_1T$ ほど顕著な圧力変化を示していないことがわかり、 $1/T_1T$ がモット転移に向かって増大する効果が主に反強磁性ゆらぎの増大に起因するということが本研究から示唆された。今回得られたこの実験事実と、フラストレーションが強くモット転移相に反強磁性秩序が存在しない系 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃の金属相では擬ギャップが見られないという報告[5]をあわせて考えると、 κ -(ET)₂Xにおける擬ギャップは、金属相に隣接するモット絶縁体における反強磁性ゆらぎに関係することが示唆される。またこの擬ギャップと超伝導ゆらぎの関係を示唆する実験結果が報告されていることも、同じく重要であると考えられる[6,7]。本論文ではこの反強磁性ゆらぎと超伝導が擬ギャップにどう関係付けられるかについて議論している。

[4]K.Miyagawa et al., Phys. Rev. Lett **89** 017003 (2002).

[5]Y.Shimizu et al., Phys. Rev. B **81** 224508 (2010).

[6]M.Matsumoto et al., unpublished.

[7]S.Nam et al., Nature **449**, 584 (2007).

3) κ -(ET)₂Xにおけるモット転移の量子臨界現象

モット転移の相転移としての重要な問題のひとつは、モット転移の量子臨界現象は存在するか、存在するとしたらどのような性質を持つかというものである。なぜならモット転移は本質的に対称性の破れを伴わない相転移であり、その量子臨界現象がどのように記述されるのか確立しておらず、また金属絶縁体転移の量子臨界現象はこれまでに報告がないからである。本研究で扱う κ -(ET)₂Xにおいては低温におけるモット転移が一次転移であることから量子臨界点は存在せず、これまで量子臨界性は実験的に議論されてこなかった。しかし本研究では、有限温度の臨界終点よりも高温に位置するクロスオーバー領域の電気抵抗を詳細に測定し、その結果を量子臨界性という観点で初めて議論した。

まず、オンサイトクーロン反発エネルギー U やバンド幅 W は κ -(ET)₂Xにおいて0.5eV~5000Kであり、一次転移の臨界終点がある20K-40K程度を見るとクロスオーバー領域は十分低温に位置すると見ることができ、 $T_c < T \ll U, W$ という領域で量子臨界現象が見られる可能性がある[8]。この可能性を検証するために本研究では、 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃, κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Clという異なるフラストレーションを持つ系で温度 T 、圧力 P をパラメータとして電気抵抗 $R(T, P)$ を測定し、その量子スケーリングを試みた。手順としては、まず相図上のクロスオーバー領域で温度を固定し、圧力を掃引することで電気抵抗 $R(T, P)$ を測定し、それを各温度のクロスオーバーライン $P_c(T)$ とその上におけるクロスオーバー抵抗 $R_c(T)$ を用いて規格化し $R(T, P)/R_c(T)$ を得た。この規格化抵抗 R/R_c は温度とモット転移からの圧力差分 $P - P_c$

の2変数関数であるが、これを $T / |P - P_c|^{z\nu}$ という1変数でスケーリングできるか否かを検証した[9]。解析の結果、臨界指数が $z\nu = 0.60 \pm 0.05$ (κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃), $z\nu = 0.50 \pm 0.05$ (κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl) のとき、金属側、絶縁体側の規格化抵抗がともによくスケーリングされることがわかった(図3)。また、臨界指数、スケーリング曲線の関数形が過去に報告されたDMFTによる数値計算の結果[8]と比較的良好一致をしめすことも示された。DMFTとの一致の物理的意味、またフラストレーションの強弱による若干の $z\nu$ の差異についても本論文で議論されている。

[8] H.Terletska et al., Phys.Rev.Lett **107**, 026401(2011).

[9] S.L.Sondhi et al., Rev.Mod.Phys Vol.69, No.1, pp.315-333(1997).

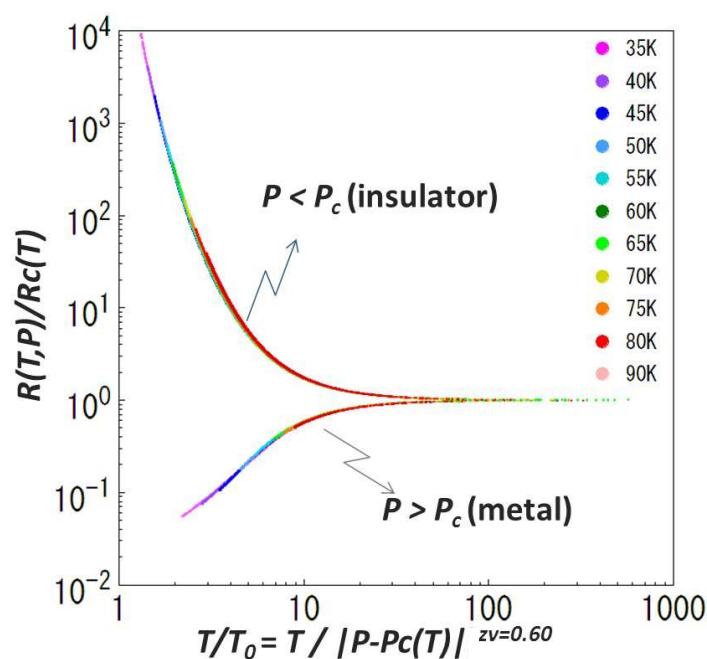


図3 スケーリングプロット [κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃]