

研究課題名 電子自由度による強誘電体最前線

研究代表者名
東北大学・大学院理学研究科・石原純夫

研究分担者名
東北大学・金属材料研究所・佐々木孝彦

1. はじめに

強誘電体はミクロな電気双極子がマクロに出現した現象であり、コンデンサーや各種デバイスにおいて欠かすことのできない物質群である。その電気分極の微視的な起源として、イオン格子の変位、永久電気双極子の配向、水素原子核の空間秩序などが広く知られている。本研究課題で対象とする物質群では、従来の強誘電体とは全く異なり、電子が空間的に長距離秩序を起こすことで電気分極が発生するものであり、電子型強誘電体もしくは電荷秩序型強誘電体と呼ばれている(図1)。電子間のクーロン相互作用が強誘電相転移を生じさせることから、電子相関による強誘電体とも呼ばれている。近年このような物質群が遷移金属酸化物や低次元有機錯体において発見され、それぞれの分野で独立に研究が進行してきた。これらの発見を契機に、その特異な誘電性や電子物性さらには工学的な応用の可能性に多くの研究者の注目が集まっている。電子が直接電気分極を担うことに起因して、以下のような大きな特徴が見られる。(1) 電子の局在・遍歴と誘電性が直接関係しており、電場や光などの外場による誘電性の操作が容易である(図2)。(2) 電子は電荷の自由度に加えてスピンの自由度を有することから、従来に無い大きな電気磁気効果が期待される。(3) 変位型強誘電体で見られる大きな格子の変位がないことから、高速な分極反転が可能である。

本研究課題では、このような基礎物性物理のみならず応用上も特異な性質を有する電子型強誘電体に関する2日間の研究会を開催した。本研究分野の研究者は、誘電体、強相関酸化物、有機化合物、光物性など広い研究分野にわたる。普段意見を交わす機会が少ないこれらの研究者が一堂に集まり、最近の理論実験研究の現状について発表を行うとともに、異なる分野間で研究のアイデア、実験技術、理論計算方法についての意見や情報を交換し、共同研究の基盤を形成することを目的とした。研究代表者らはこれまで、この研究分野において以下のような研究会を開催してきた：2009年10月30日-31日、分子研研究会”新規な誘電体最前線—電子と強誘電性—”(分子研)、2010年11月26日-27日、研究会「相関電子系における電荷秩序と誘電異常—遷移金属酸化物と分子性化合物の最近の展開—」(青山学院大学青山キャンパス)。本研究会はこれらの研究会に続くものであり、最新の理論・実験研究について情報を交換すると共に、研究コミュニティの一層の連携を図ることを目的とした。

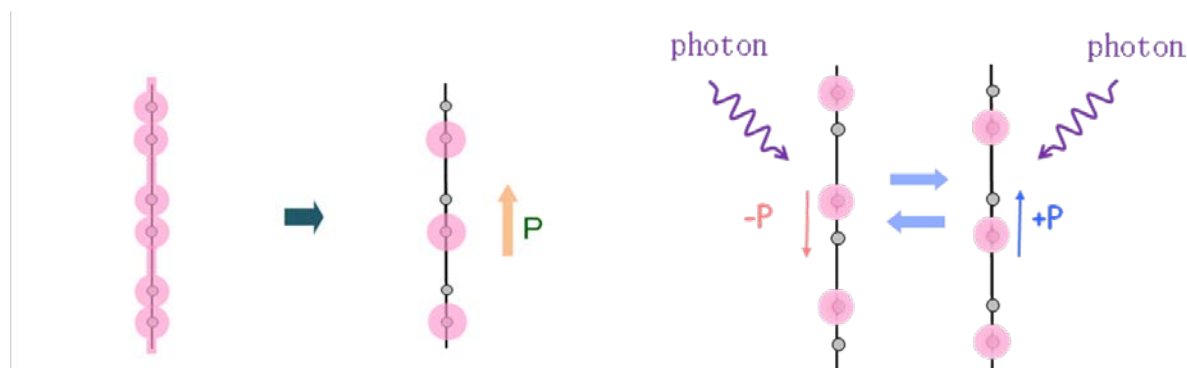


図1：電子強誘電体の模式図。左が常誘電相、右が強誘電相の電荷分布。

図2：電子強誘電体で期待できる光による電気分極の高速反転。

2. 研究経過

「電子自由度による強誘電体最前線」と題する本研究会は、平成23年11月1(火)日から2日(水)に東北

大学金属材料研究所講堂において開催された。本研究会は東北大学金属材料研究所「材料科学国際週間：Material Science Week 2011」の協賛、ならびに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」の共催として開催された。研究会の世話人として研究代表者の石原、分担者の佐々木に加えて、岡山大学大学院理学研究科・池田直教授ならびに、東北大学大学院理学研究科・岩井伸一郎教授が当たった。

講演者は25名（2件の外国人講演者を含む）。参加者はおよそ48名でその内訳は学外およそ30名、東北大学金属材料研究所10名、金属材料研究所以外の東北大学8名である。講演会の様子を図4に示す。異なる分野での共通理解を深め共同研究の機会を形成するために、講演、質疑ともに十分な時間をとるように心掛けた。また口頭発表の全講演に対して概要集を作成し、全参加者に配布した（図6）。

研究会で取り扱った主なテーマを以下に上げる。

- 1) 酸化物電子強誘電体における特異な誘電性と電荷秩序の起源。とくに幾何学的フラストレーション効果との関連。スピン秩序と電荷秩序の協力と競争が誘電性に果たす役割の解明。特異な磁気誘電特性、非線形伝導性の解明とデバイスへの応用。薄膜試料作成技術とその特性について。
- 2) 有機化合物における電荷秩序と電子強誘電性。特に分子の2量体に起因するダイマー・モット絶縁相と強誘電相との競合。量子スピン液体や超伝導との関係。
- 3) 電子誘電体の光応答。特に光吸収分光、非弾性X線散乱による電子誘電体特有の電荷揺らぎの観測。超高速時間分解分光法による電荷揺らぎのダイナミクスの観測ならびにこれと格子揺らぎとの分離。
- 4) 電荷秩序系における電子誘電体の理論。特にフラストレート系における電荷秩序とそのダイナミクス。量子電荷揺らぎ、量子臨界性と誘電秩序との関係。
- 5) 新しい電子強誘電体の探索。

二日間にわたって行われた研究会のプログラムを以下に記す。

11月1日（火）

[Oxide I]

（座長：石原）

- 12:30-12:55 池田直（岡大理）
-はじめに- 高品質な RFe_2O_4 の合成と物性
- 12:55-13:20 森茂生（大阪府大工）
単結晶 YFe_2O_4 おける電荷秩序構造
- 13:20-13:45 岩田真（名工大工）
 $LuFe_2O_4$ のコメンシュレート相

[Organic I]

（座長：岩井）

- 14:00-14:25 山本薫（分子研）
擬次元有機伝導体 $(TMTTF)_2X$ 塩の静水常圧下顕微SHG観測
- 14:25-14:50 吉見一慶（東大理、産総研）
擬次元有機伝導体 TMTTF 塩における強誘電的電荷秩序と磁気状態の次元クロスオーバー
- 14:50-15:15 米満賢治（分子研）
三角格子上の有機伝導体の非線形伝導と選択的秩序融解
- 15:15-15:40 堀田知佐（京産大理）
三角格子系における電子誘電性
- 15:40-16:05 堀内佐智雄（産総研）
有機強誘電体の高分極化に向けた分子自由度の利用

[Organic II]

（座長：妹尾）

- 16:20-16:45 佐々木孝彦（東北大金研）
分子性ダイマー-モット系に内在する電荷自由度
- 16:45-17:10 後藤貴行（上智大理工）
三角格子有機磁性体 \square -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ の μ SR
- 17:10-17:35 Majed Abdel Jawad（理研）
Electronic relaxor-like dielectric response in dimer Mott insulators
- 17:35-18:00 山下穰（京大理）
二次元三角格子を持つ有機物におけるスピン液体状態
- 18:00-18:25 品岡寛（産総研）
層間スクリーニング効果を含めた κ -(BEDT-TTF) $_2X$ の第一原理有効モデルの数値解析
- 18:25-18:50 Torsten Clay (Minnesota, ISSP)

19:15- 懇親会ならびにポスター講演 会議室

11月2日(水)

[Organic III]

(座長：佐々木)

9:30-9:55 岩井伸一郎 (東北大理)
電子誘電体の光・テラヘルツ応答

9:55-10:20 岸田英夫 (名大工)
 κ 型ET 錯体の電子ラマン散乱

10:20-10:45 高橋聡 (名工大工)
ダイマーモット絶縁体におけるダイマー配置の乱れによって誘起される強誘電ドメイン

[Oxide II]

(座長：森)

11:00-11:25 石井賢司 (原子力機構)
励起状態に現れる隠れた電荷相関

11:25-11:50 大隅寛幸 (理研)
偏光X線でみた LuFe_2O_4 の磁気構造

11:50-12:15 安井幸夫 (名大理)
フラストレートしたスピン 1/2 の 1次元鎖をもつ $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$ の磁場誘起強誘電転移

12:15-12:40 有馬孝尚 (東大新領域)
マンガン酸化物系の電荷軌道整列と強誘電性

参加者の間の懇親ならびに意見交換を図るために、一日目の夜に懇親会を金属材料研究所会議室で行った(図7)。また若手研究者の発表の場を設ける目的で、懇親会場においてポスター講演(件数9件)を行った(図5)。さらに講演会の最後に、各分野の第一人者による講評(4名)を頂いた。



図4：講演会場の様子。

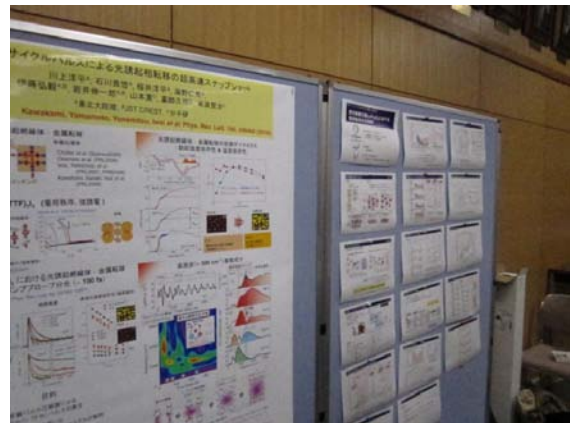


図5：ポスター会場の様子。

3. 研究成果

上のプログラムに示されたように、本研究会の一つの大きな成果は広い研究分野にわたる研究者が参加、講演、討論することで、研究上の情報、アイデアの交換がなされたことである。講演の内訳を物質で分類すると酸化物8件、有機物17件であり、また手法で分類すると理論(第一原理計算、モデル計算)9件、実験(光、誘電性、磁性、試料合成)16件である。

電子強誘電体の研究は遷移金属酸化物と有機化合物の研究分野において、ほぼ独立に発展してきた。また本研究テーマの推進には、誘電体分野、光物性分野の研究者との密接な議論や共同研究が不可欠である。これら異なる研究領域において類似の物理現象を対象としているにもかかわらず、これまで研究に関する議論やアイデアの交換、さらに共同研究のきっかけを作る機会がほとんどなかったのが現状である。本研究会のような多数の研究領域に跨った研究会を開催することで、異分野間の

融合を図ることができたと言える。特に代表的な物質である層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 と分子性導体 $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ における誘電異常は、いずれも我が国の実験研究者により見いだされたものであり、これらの誘電性に関する理論研究も我が国の理論研究者を中心に進められてきた。本研究会ではこのような発見をもとに進展した実験、理論研究を整理し今後の研究の動向について議論を行うことで、この分野の研究における我が国の地位の向上に貢献できた。

本研究会に関する予算・決算は以下のとおりである。

予算配分：

旅費	1,667,000 円 (30 人)
消耗品	156,000 円
計	1,823,000 円

使用経費：

旅費	1,280,700 円 (26 人)
消耗品	218,629 円
計	1,499,329 円

差額：

323,671 円

(11月27日に金属材料研究所・佐々木孝彦教授を通して金属材料研究は研究協力係に返却通知)

消耗品の内容：

ワークショップ概要集印刷製本 (図6)
プログラム情報の印刷、
ポスターなどの印刷用プリンターカラートナー

当初予算との旅費差額が発生した主な理由：

相手先の経費を使用して本研究会に参加した (理由：発表なし参加者、エフォート管理の問題)
連続出張との組み合わせで半額支給 となった。
遠方からの参加者の多くが航空機パックを利用 した。
金属材料研究所の宿舎を利用したために支給宿泊費が低下した。



図 6：研究会概要集。



図 7：懇親会の様子。

4. まとめ

この研究分野の特色は領域横断型であり、磁性、誘電性、酸化物、有機物、光、X線など多分野の概念、実験手法、理論手法が互いに組み合わせたり刺激しあうことで研究が進展している。このような領域横断型の研究を推進するには、異分野の研究者の間でのコミュニケーション、情報や実験技術、計算技術の交換、研究者の交流が研究の成否を左右すると言っても過言ではない。この様な意味で、本研究会は実験理論合わせた多分野の研究者が参加、講演を行い、分野の垣根を越えて研究の交流が図ることができたと言える。また通常、形式的な講演になりがちな研究会のスタイルを意識的に改めて、ざっくばらんな質疑と議論に時間をかけることで、研究上のアイデアや今後の研究の方向について探る良い機会を得ることが

できたと言える。前述のように、この研究分野で代表的な物質となっている層状鉄酸化物 LuFe_2O_4 と分子性導体 $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ における誘電異常は、いずれも我が国の実験研究者により見いだされ、微視的な起源については我が国の理論研究者を中心に進められてきた。化学合成から理論研究までカバーする研究コミュニティは我が国独自のものであり、この様な研究会を今後も続けることで、電子型誘電体とフラストレーション、超伝導、金属絶縁体転移などの更に発展した話題に研究が進み、この分野における我が国の優位な地位がより強化されることが期待される。

最後となったが、研究会の開催にあたり財政面を含めて多大な援助をいただいた東北大学金属材料研究所に感謝をする。