

電子型強誘電体とダイマー・モット絶縁体

強誘電体とは電場をかけなくても巨視的な電気分極が出現し、その方向を電場により変化させることのできる物質である。代表的な物質としてチタン酸バリウム BaTiO_3 や亜硝酸ナトリウム NaNO_2 などがあり、アクチュエータ、強誘電体メモリー (FeRAM)、赤外線センサーなど工業的にも広く応用がなされている。その電気分極のミクロな起源は、陰イオンと陽イオンの相対的な変位や、分子が有する永久電気双極子の協力的な配向であることが古くから知られており、それぞれ変位型強誘電体、秩序無秩序型強誘電体と呼ばれている。最近これらとは異なるタイプの強誘電体が注目を集めている。“電子型強誘電体”もしくは“電荷秩序型強誘電体”と呼ばれる物質群では、電子が空間反転対称性を破るよう秩序化することで電気分極が発生する。電気分極発生に伴う格子変位が小さいことが予想されるため、光などによる高速の分極反転や高密度集積の可能性が期待できる。また電子は電荷とともにスピンの自由度を有するため、磁場による電気分極制御などの大きな電気磁気効果が期待される。

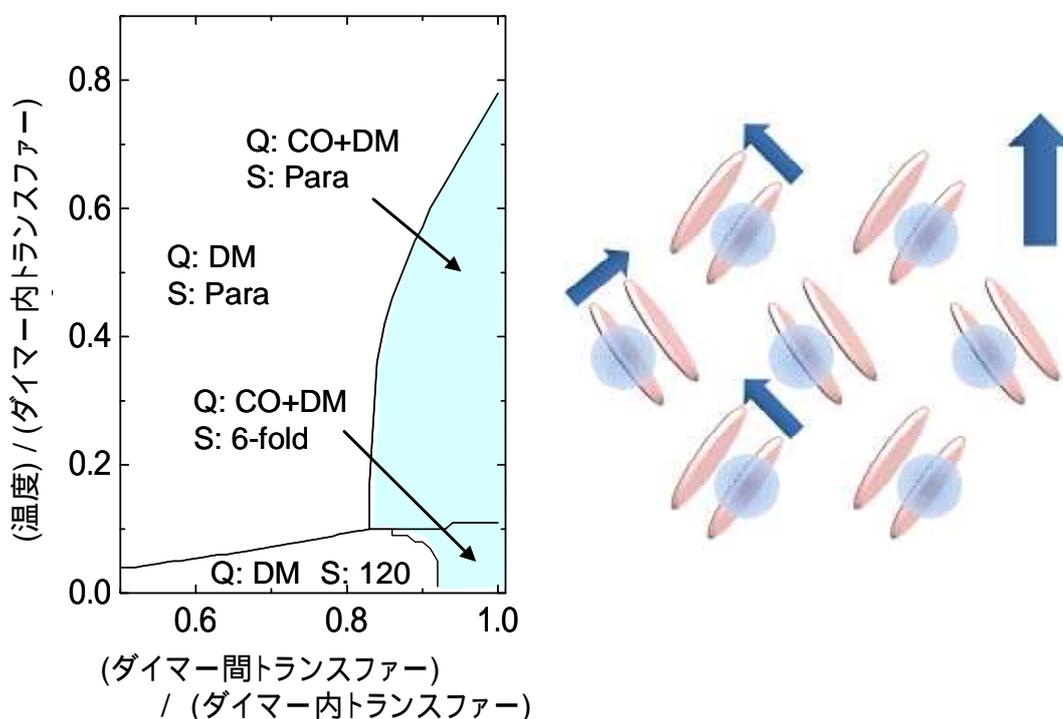


図 1 . 左 : 電子型強誘電相 (色のついた部分) とダイマー・モット絶縁相の相図。右 : 電子型強誘電相の電荷の偏り。

最近、東北大学大学院理学研究科物理学専攻の理論研究グループは、このような“電子型強誘電性”が新たに $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ と呼ばれる 2 次元有機錯体で実現している可能性が高いことを理論計算により示した。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ) の 2010 年 6 月号に掲載された。

この物質の結晶構造は BEDT-TTF 分子層と $\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ 層が交互に積層した層状構造である。主役となる BEDT-TTF 層では、二つの分子が対となるダイマーを形成し、これが 2 次元三角格子に配列している。ダイマーを形成する二つの分子に着目すると、それぞれの分子軌道から結合軌道と反結合軌道が生じる。ダイマー当たりのキャリア数は一個であり反結合軌道は半分占有されるため、軌道内の電子間相互作用が強い場合に系はモット絶縁体となる。これは “ダイマー・モット絶縁体” と呼ばれており、従来この視点からこの物質の研究が盛んに行われてきた。特に帯磁率や NMR では 32mK という極低温まで何も異常が見られないことから、三角格子における磁気フラストレーションにより磁気秩序が阻害されたスピン液体状態が実現されているのではないかとの見方がなされている。最近、早稲田大学、東北大学、京都産業大学の合同グループによりこの物質の 25K 近傍に誘電率の増大と特徴的な周波数依存性が見出された。この結果は、ダイマーを一つのユニットと考えるのではなく、“ダイマー内部の自由度” を考慮する必要性を示唆している。

本研究ではこの物質における電子型強誘電性の可能性、低温で予想されているスピン液体状態との整合性について理論的に調べられた。特に、ダイマー内の電荷の偏りに焦点が当てられた。ダイマーを形成する二つの分子に等価に電荷が分布した状態がこれまで考えられてきた “ダイマー・モット絶縁相” であり、電荷が片方の分子の偏った状態が “電子型強誘電相” に対応する。これら二つの状態は擬似的なスピン演算子を導入することで理論上統一的に取り扱うことができる。電子間相互作用が強い立場から導かれた理論モデルでは、通常のスピンと電気分極を記述する擬似的なスピンが強く結合することが示される。このモデルを基にした理論計算により、ダイマー内で電荷の偏りが生じる電子型強誘電相がこの物質において実現可能であること、この状態とスピン相関の発達したダイマー・モット絶縁相とは互いに排他的であることが明らかとなった (図 1)。これらの理論計算の結果から、 $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ が低温で電子型強誘電相もしくは電子型強誘電相の極近傍のダイマー・モット絶縁相に位置することが強く示唆された。これにより実験により見出されている誘電率の異常な振る舞いが自然に説明できると考えられる。

本研究においては、電子型強誘電相という新規な強誘電相が $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ という新たな物質で実現している可能性が高いことが示された。またこの相が、別な視点から盛んに研究されてきたダイマー・モット相、スピン液体相という異なる秩序相の極近傍で実現している可能性が指摘された。これらのことから本研究は現在多くの研究者の注目を集めている。このような理論予想と様々な実験結果との整合性や、数多く存在する同属物質における電子型強誘電相の可能性やこれと超伝導相など別の秩序相との相関、また光や電場に対して期待される特異な外場応答やその応用については未だ明らかではなく、今後の実験、理論研究の展開が期待される。

論文掲載誌 J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) No.6, p. 063707

電子版 <http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/79/063707> (6月10日公開)

< 情報提供：石原 純夫 (東北大学) >