

# 層状有機伝導体における電荷ガラス状態の緩和による二次元電荷秩序化

## [1] 要旨

層状有機伝導体において観測される電荷ガラス状態の経時変化が、通常のガラスに見られる単純な結晶化ではなく、二次元的な結晶化であることが報告された。従来の方法に加えて、電荷の自由度とは異なる観点から磁化率に着目し、電荷ガラス状態の経時変化が詳細に解析された結果、電荷ガラス相とも、既知の三次元的な電荷秩序相とも異なる、磁化率がそれらよりも大きな値を示す第三の相の存在が見出された。さらなる測定により、この新たな相は二次元的な電荷秩序状態であることが強く示唆された。

## [2] 本文

ガラスとは何か—この一見単純な問いは、現代物理学における最も根本的な謎のひとつである。スマートフォンのディスプレイや光ファイバー、建築資材など、ガラスは私たちの日常生活に広く利用されている。一方で、ガラスという「状態」の本質については、科学的にはいまだ明確に定義されていない。ガラスは、液体を急冷することで結晶化を回避し、粘性が急激に高まって固体のような状態へと移行することで生成される。この液体からガラスへの移行が、他の相転移（たとえば水から氷への変化）のような熱力学的相転移に該当するかどうかについては、現在も活発な議論が続いている。仮にこれが相転移であるとするれば、どのような秩序が変化しているのか、それを記述する「秩序変数」は何なのかという問いが生じ、これはガラスの本質を理解する上で中心的な未解決問題となっている。

興味深いのは、ガラス状態が特定の物質に限られた現象ではない点である。シリカ（石英）に代表される構造ガラスのみならず、金属ガラス、スピニングラス、さらには超伝導体に現れる磁束ガラスまで、実に多様な形態でガラス状態は観測されている。近年、層状有機伝導体  $\theta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>RbZn(SCN)<sub>4</sub> において、「電荷ガラス」と呼ばれる新しいガラス状態が発見され、注目を集めている。この物質は、ゆっくり冷却すると約 200K (−73°C) で電荷秩序状態へと転移する。この状態では、BEDT-TTF 分子上の電荷が一つおきに配列し、ストライプ状の秩序構造を形成することが知られている。ところが、冷却速度を 5K/分以上に速めると、この電荷秩序の形成が抑制され、物質は過冷却状態のままとなる。そのまま温度を下げていくと、電荷の空間的配列は秩序を持たないまま凍結し、「電荷ガラス状態」へと移行する。この状態は、電荷の動きが凍結することで秩序形成が阻まれたものであり、従来のスピニングラスや構造ガラスと類似した性質を持ちながらも、電子の自由度である電荷に起因する新奇なガラス相として位置づけられている。

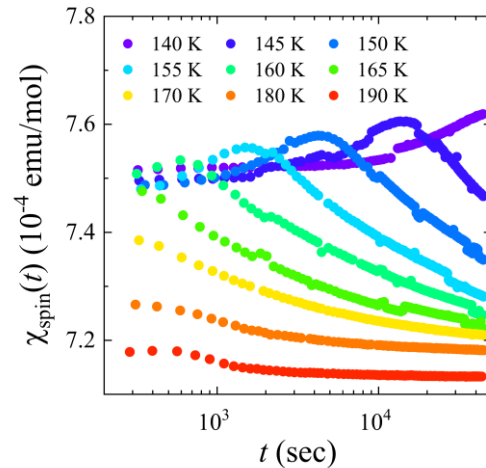
ガラスの重要な特性の一つとして、「結晶化現象」が挙げられる。これは、ガラスを比較的高温の環境に一定時間さらすことで、徐々に内部構造が整い、結晶化が進行する現象である。この現象は、ガラス状態から結晶状態への「相変態」として、ガラスの本質的理解に大きな手がかりを与える。そのため、これまで多くの種類のガラスにおいて、どのような温度

条件で結晶化が起こるのかが詳細に研究されてきた。

このような背景のもと、埼玉大学と東京大学物性研究所の研究グループは、電荷ガラス状態からの結晶化過程について研究を行った。これまで、この物質系に対しては、電気抵抗測定、NMR（核磁気共鳴）、ラマン分光といった手法が用いられてきたが、本研究では新たに「磁化率測定」に着目し、解析を行った。

その結果、電荷ガラス相とも、既知の（三次元的な）電荷秩序相とも異なる、磁化率がそれらよりも大きな値を示す第三の相の存在を見出した（図）。さらに、電気抵抗の異方性の測定結果および過去の X 線回折実験の知見を総合的に検討した結果、この新たな相は二次元的な電荷秩序状態であることが強く示唆される。特に、このような二次元的な結晶化現象は、この層状有機伝導体が示す電荷ガラスという特異な状態に特有の現象と考えられ、ガラスの物理のさらなる理解に大きく貢献するものである。この成果は JPSJ の 2025 年 8 月号に掲載された。

ガラスは、私たちの生活に密着した素材でありながら、その根源的な性質にはいまだ多くの謎が残されている。そこには、秩序と無秩序、静的と動的といった物理学の本質的対立が複雑に絡み合っており、今回の研究では、さらに、「二次元への制限」と「三次元への拡散」という新たな対立構造も明らかになった。電荷ガラスをめぐる研究は、物質世界に潜む深遠な原理への手がかりを与えるものであり、低次元系におけるガラス状態の物理や、将来的な応用分野への波及効果も期待されるものである。



図：層状有機伝導体  $\theta$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>RbZn(SCN)<sub>4</sub> の磁化率の経時変化。ガラス転移温度 163K 以下では、電荷ガラス状態からの状態変化を示しており、磁化率が一旦上昇してから減少していく様子がわかる。電荷ガラス状態でもなく電荷秩序状態でもない、第三の相の存在が示唆される。

#### 原論文（2025 年 7 月 10 日公開済）

Metastable Phase with Enhanced Spin Susceptibility Located between Charge Glass Phase and Charge Order Phase in a Layered Organic Conductor

H. Shiibashi, K. Higuchi, T. Hachiya, S. Michimura, T. Kobayashi, R. Murasaki, K. Yoshimi, H. Taniguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **94**, 083703 (2025).

<情報提供：問合せ先：氏名（埼玉大学大学院理工学研究科 教授）谷口弘三>