

岩井伸一郎

東北大学大学院理学研究科・教授

## 先端超短パルス光源による光誘起相転移現象の素過程の解明

### §1. 研究実施の概要

**研究全体のねらい:** 1-3 サイクル極短パルス光や広帯域、高強度のテラヘルツ (THz) 光を用いた時間分解分光によって、有機伝導体や遷移金属酸化物などの強相関電子系における光誘起相転移の初期過程を明らかにする。i) 光励起による電子分極の生成とその直後に起こる高周波分子内振動や格子振動との相互作用を実時間観測する。また、ii) 光誘起相転移によってできる物質相と、定常的な物質相の類似点、相違点を明らかにする。

**前年度までの研究の概要;** 前年度までに、初期過程解明のために必要な、赤外光領域の超広帯域(フーリエ限界スペクトル幅 8 fs に対応)パルスの発生と、パルス幅 12 fs(光の電場振動の 2.5 周期に匹敵)までの圧縮を成功し、光誘起相転移の典型物質における予備実験を行った。また、広帯域 THz 光発生用の新レーザーシステムを用いた、光励起-THz プロブ分光の広帯域化(2-20 meV)を行った。

#### 22年度の研究進捗状況、研究成果;

1) 赤外 12 fs パルスをを用いたポンププローブ測定により、二次元有機伝導体( $\alpha$ -(ET)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>)における光誘起電荷秩序絶縁体-金属転移の初期過程を明らかにした(Phys. Rev. Lett., 105, 246402(2010))。また、同じ電荷秩序系の類似物質( $\theta$ -(ET)<sub>2</sub>RbZn(SCN)<sub>4</sub>)やダイマーモット絶縁体( $\kappa$ -(d-BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>[N(CN)<sub>2</sub>]Br)などにおける実験も行い、有機伝導体における光誘起相転移のより一般的な理解への展開を進めた。(岩井 G)

2) 前年度までに構築した光励起-THz プロブ分光装置を用いて、強誘電酸化物(LuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)における光誘起相転移のダイナミクスを明らかにした。(岩井 G)

3) 電子強誘電体として注目されている、ダイマーモット型有機伝導体 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>において、誘電異常の起源であるダイマー内双極子の集団応答を THz 応答としてとらえた。(岩井 G、佐々木 G、岸田 G)

4) 有機伝導体に対してのエックス線照射による分子欠陥導入手法を確立し、モット転移近傍でのランダムネス制御によるモット-アンダーソン転移を $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br において観測した。量子臨界状態の制御にバンド幅に加えてランダムネス制御による手法を確立した。(佐々

木 G)

5) 3 角格子ダイマーモット絶縁体 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>における低周波数誘電異常の起源としてダイマー内電荷自由度に起因するダイポールグラスの存在を提案した。また、ダイマー格子構造による物質的分類学としての比較から $\kappa'$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>ICl<sub>2</sub>の低周波誘電応答と光学スペクトル測定を行い、モット絶縁体-ダイポールグラス状態の関係が光学ダイマーバンド間、ハバードバンド間遷移に関係付けられることを示した。(佐々木 G)

6) 光誘起相転移物質である  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>の電場印加状態における金属絶縁体転移の特徴を明らかにする目的で、電場印加状態における電子ラマン散乱のマッピング測定とスペクトルの詳細な解析を行った。電場印加によって不均一な電流路が形成されることや、電子ラマンスペクトルにみられるファノ干渉から、電子状態と振動の相互作用について考察した(岸田 G)。

7) ダイマーモット絶縁体 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Xにおいて、光吸収スペクトルの主要なピークに対応するエネルギー固有状態の物理的性質を明らかにした。また、モットギャップ内に、ダイマー内電気双極子モーメントとダイマー間ボンドオーダーの振動が強く結合した特異なモードが存在することを見出した。さらに、このモードは熱によるダイマー間ボンド長の乱れによりソフト化し、強誘電ドメインが形成されることを明らかにした。(高橋 G)

8) 1次元モット絶縁体において、光励起状態の緩和において、従来の描像とはまったく異なるオージェ緩和が重要な役割を果たすことを明らかにした。(高橋 G)

9) Fe フタロシアニン分子性導体の伝導電子・局在スピン結合モデルに対する数値計算により、巨大磁気抵抗効果のメカニズム解明を行い、物理量の温度依存性を実験と比較し磁化率の特異な振る舞いを説明した。(妹尾 G)

10) TMTTF 系の 2 次元モデルに対する数値的研究により、電荷秩序によって磁氣的性質がコントロールされること、すなわち次元性が高まりスピンパイエルズ相と比べて反強磁性秩序相が安定化する機構を解明した。(妹尾 G)

#### 今後の見通し;

1) 有機伝導体における光誘起絶縁体-金属転移の初期過程について一般的な理解を進める。また、更なる短パルス化(8 fs; 2 サイクル→4 fs; 1 サイクル)の可能性を検討、推進する。(岩井 G)

2) 更なる短パルス化に当たって、パラメトリック増幅の光源としているレーザーの変更、およびそのレーザーのキャリア-エンベロープ位相(CEP)制御の可能性を探る。(岩井 G)

3) 本年度までに発生に成功した広帯域 THz 光を用い、光励起-THz プロブ分光の測定領域を 20 THz 以上まで拡張する。(岩井 G)

4) 電子誘電体における光誘起相転移や THz 応答の探索を行う(岩井 G、佐々木 G、岸田 G)。

5)  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> のダイポールグラス状態に対して系統的にランダムネスを導入し、グラス状態とランダムネスとの対応を明らかにする。(佐々木 G)

6) 新たなダイマーモット系における新奇な光誘起相転移を探索するために、4 角格子系有

機物質の探索を行う。(佐々木 G)

7) 電場印加状態における光誘起相転移の観測を行うとともに、光誘起相転移物質の圧力印加による臨界状態を光学的に明らかにする。(岸田 G)

8) 観測された電場誘起臨界状態を用いて電場下の光誘起相転移現象の探索を行う。(岸田 G)

9) ダイマーモット絶縁体 $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ X における光誘起相転移のダイナミクスがパンプ光フォトンエネルギーに強く依存する実験結果の解明を目指す。(高橋 G)

10)  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$  における異常な誘電分散、モットギャップ内の光吸収ピークの特異な振舞いの起源を明らかにすることを試みる。(高橋 G)

11) TMTTF 系の温度圧力相図における特異な磁気基底相の競合を、電荷秩序の安定性および鎖間結合の強さをもとに整理し、統一的な描像を与える。(妹尾 G)

12) 有機中性イオン性転移系を表す擬 1 次元モデルを構築し、これに対して精密な有限温度シミュレーションを実施し様々な物理量の温度依存性や相図の特徴を実験と比較する。(妹尾 G)

## §2. 研究実施体制

### (1)「先端光計測」グループ

研究分担グループ長:岩井伸一郎(東北大学理学研究科)

研究項目

1. 数サイクル極短パルス光励起による電子分極の生成とその直後に起こる高周波分子内振動や格子振動との相互作用を明らかにする。

2. 広帯域(0.1-20THz)のテラヘルツ時間分解分光によって、光生成した電子状態や格子の状態を明らかにする。特に、光誘起絶縁体-金属転移における光誘起金属状態の局在と非局在の狭間にある低エネルギー電子状態の性質や、 $<100\text{ cm}^{-1}$ の低周波格子振動の役割を解明する。

### (2)「物質開拓」グループ

研究分担グループ長:佐々木 孝彦(東北大学金属材料研究所, 教授)

研究項目

- ・ 光誘起相転移候補物質の探索および先端光計測グループへの試料提供
- ・ 光誘起相転移創出のための精密物性パラメータ制御技術の開発と評価

### (3)「臨界制御グループ」グループ

研究分担グループ長:岸田 英夫(名古屋大学工学研究科, 准教授)

研究項目

電場下における光誘起相転移

- ・ 光誘起相転移物質における電場印加状態の電子状態を明らかにするための電場下マッピング

## グ光学測定

- ・ 光誘起相転移物質における電子状態特定のための低波数ラマン散乱測定

### (4)-a 「理論」グループ

研究分担グループ長:高橋 聡 (奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科、准教授)

#### 研究項目

- ・ 光励起後の量子ダイナミクスを大規模数値計算によって計算することにより、特定の配位座標を仮定することなく、初期過程も含めた光誘起相転移のダイナミクスを調べる。

### (4)-b 「理論」グループ(研究機関別)

研究分担グループ長:妹尾 仁嗣 (理化学研究所、専任研究員)

#### 研究項目

- ・ 微視的電子格子モデルを構築し、電子相関と電子-格子相互作用の量子効果を取り入れた計算をすることにより基底状態の揺らぎや相転移を精度よく記述する理論を構築する。

### §3. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(4-1)に対応する)

#### 1:先端光計測(岩井)グループ

##### 1-a)極短パルス光源による光誘起相転移素過程の解明

目的:強相関電子系における光誘起相転移の初期過程を明らかにする。

方法:有機伝導体や遷移金属酸化物などを対象に、赤外光領域の 1-3 サイクル極短パルス光を用いた時間分解ポンププローブ分光法によって、光励起による電子分極の生成と高周波分子内振動や格子振動との相互作用を実時間観測する。

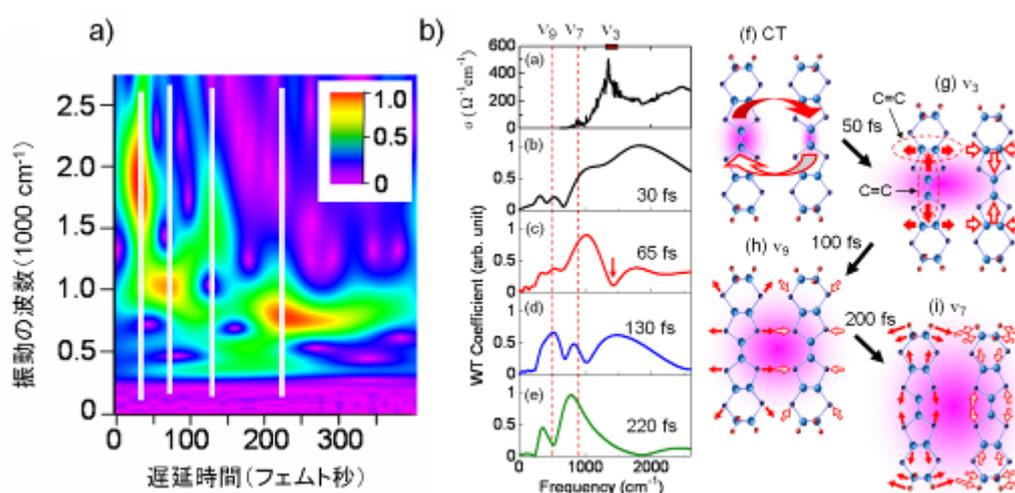


図 1-1 (a) 反射率変化の振動成分のスペクトルグラムと、(b) 30 fs, 65 fs, 130 fs, 220 fs における過渡スペクトルと、そのスペクトルに対応する電荷と分子振動の状態

**結果:** 昨年度までに製作した赤外 12 fs 縮退パラメトリック増幅器を用いて、電荷秩序系有機伝導体( $\alpha$ -(ET)<sub>2</sub>I<sub>3</sub>)における光誘起絶縁体-金属転移の初期過程を明らかにした(論文 1-1)。具体的には、過渡振動スペクトルの形状を、定常状態の電子、振動スペクトルと比較することによって、電荷秩序の光融解(光誘起絶縁体-金属転移)は、i)電荷秩序状態にある電荷のコヒーレントな振動、ii)その電荷の振動と、ET 分子中央部の C=C 伸縮振動( $v_3$ モード)、ET 分子のプリージングモードなどの分子内振動との相互作用によって起こることを明らかにした(図 1-1)。強相関電子系における電子状態のコヒーレント振動や、その分子振動との相互作用を反映したファノ干渉が、励起後時間差を経て現れる瞬間を捉えたのは世界で初めての例である。また、これらの結果は、この物質における光誘起相転移が、電子応答(とそれと強く結合した分子内振動)によって駆動されており、格子(分子間)の変位によるものではないことを直接示す結果である。また、電荷秩序系の有機伝導体である( $\theta$ -(ET)<sub>2</sub>RbZn(SCN)<sub>4</sub>) (以下 $\theta$ -RbZn)やダイマーモット絶縁体( $\kappa$ -(d-ET)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>[N(CN)<sub>2</sub>]Br) (以下 $\kappa$ -(d-Br))などにおける実験も行った。 $\theta$ -RbZn は、光励起によっては安定な金属状態はできない物質であり、一方、 $\kappa$ -(d-Br)は、分子間の変位による光転移

が起こる物質である。これらの物質においては、 $\alpha$ -(ET) $_2$ I $_3$ とは、異なる電荷、分子振動のダイナミクスが観測された。

また、更なる短パルス化についても、パラメトリック増幅器を改造し、8 fs (2 周期) までの短縮化に成功したが、測定に十分な強度、安定度を確保することができなかった。今後の短パルスについては、励起光源の変更やキャリアーエンベロープ位相 (CEP) の制御が必要となる。

### 1-b) 強誘電酸化物 (LuFe $_2$ O $_4$ ) における光誘起相転移のダイナミクス

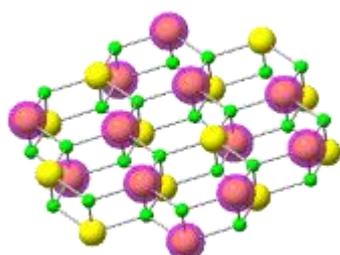


図 1-4 LuFe $_2$ O $_4$  の三角格子二重層構造の模式図。各層の電荷秩序の位相がずれていることによって層間に分極が生じる

前年度までに構築した、光励起-THz プロブ分光装置を用いて、三角格子二重層構造を持つ強誘電酸化物 (LuFe $_2$ O $_4$ ) における光誘起相転移のダイナミクスを明らかにした。この物質では、層内 (2-D) および層間 (3-D) の電荷秩序によって強誘電性が発現することが示唆されている。本研究では、光励起によってこれらの電荷秩序が瞬時に融解することを、THz 過渡応答を観測することによって明らかにした。(岡山大池田研究室との共同研究)

1-c) 電子強誘電体として注目されている、ダイマーモット型有機伝導体  $\kappa$ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$  において、誘電異常の起源であるダイマー内双極子の集団応答を THz 応答としてとらえた。このダイマー双極子は、電子相関によるものと考えられるので、光による誘電性の超高速かつ高感度な制御が期待できる。(佐々木 G との共同研究)

### 2: 物質開拓 (佐々木) グループ

物質開拓グループでは、先端光計測グループおよび臨界制御グループにおける光誘起相転移実験で必要とする物質の合成、提供および候補物質の探索を研究目的としている。本年度は、これまで研究代表者らと進めてきた  $\kappa$  型構造を有する BEDT-TTF 分子系物質における赤外ポンプ-プローブ実験に使用する単結晶試料のキャラクタリゼーション、定常赤

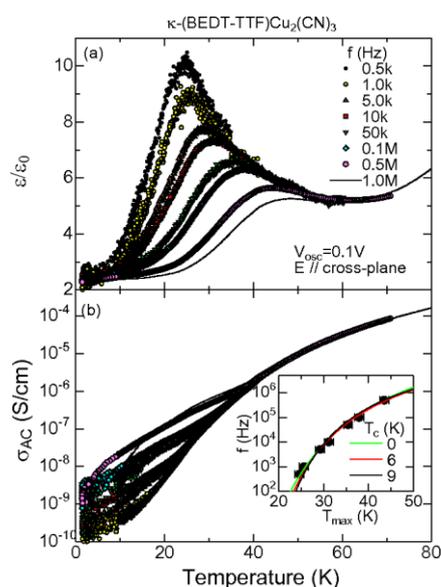


図 2-1  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$  の低周波誘電率に見られる異常なラクサー的誘電分散

外分光を行うと共に、昨年度から進めている新たな電荷自由度機構を有すると期待される  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> に関して低周波数誘電率測定による電子誘電性の研究(論文 2-1)とモット転移近傍の臨界状態制御のための新たな制御パラメータである系統的ランダムネス導入によるモット-アンダーソン転移(論文 2-2)の研究を中心に行った。量子スピン液体物質として研究が進んでいる  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> は分子ダイマー構造が本質的に内包していると考えられるダイマー内電荷自由度と電子相関により量子的な電荷ダイポールが形成され、格子変位や構造転移を伴わない強誘電性を獲得する可能性を秘めていることを低周波誘電率測定から明らかにした(論文 2-1)。図 2-1 に示すように低温で電荷ダイポールの形成とその動的な分域形成を示唆するリラクサー誘電体(ダイポールガラス)的な異常な誘電分散を観測した。このような格子変位を伴わず電荷自由度のみに寄る誘電応答性を示す物質では、電子誘電性の超高速光応答が実現する可能性がある。本年度、先端光計測、臨界制御グループに定常赤外分光によるキャラクターゼーションを行った単結晶試料を提供し高速ポンププローブ分光, THz 分光, 低周波数ラマン分光が行われている。また物質開拓の観点から、この物質に類似な分子ダイマー構造を有する物質の探索と光学スペクトル, 低周波誘電性の測定を行い、ダイマー構造に由来する電子誘電性を示唆する 4 角格子ダイマーモット系物質  $\beta'$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>ICl<sub>2</sub> を見出した。

### 3. 臨界制御(岸田)グループ

光誘起相転移物質である  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の電場印加状態における金属絶縁体転移の特徴を明らかにする目的で、電場印加状態における電子ラマン散乱のマッピング測定とスペクトルの詳細な解析を行った。前年度までに、電場印加によって電荷秩序絶縁体状態から低抵抗状態への変化を電子ラマン散乱法によってプローブできることを明らかにしている。本年度は、この低抵抗状態の空間分布を明らかにする目的で、マッピング測定により低抵抗状態形成を光学的にプローブすることを試みた。電子ラマン散乱スペクトルから見積もった、低抵抗状態への変化の割合の場所依存性を図 3-1 に示す。電流路が不均一に形成していることがわかる。このような不均一な電流路の形成は他の有機非線形伝導物質である K-TCNQ とは明らかに異なる。また非線形伝導状態や、電荷秩序状態の融解を理解するために、振動モードスペクトルの解析を行った。上述の電子ラマンプロセスとの干渉(Fano 干渉)効果の解析より、振動モードと電荷励起の結合の強さを明らかにした。その結果、電荷と振動モードの結合の強さが転移点より低温側から弱まっていることを明らかにした。

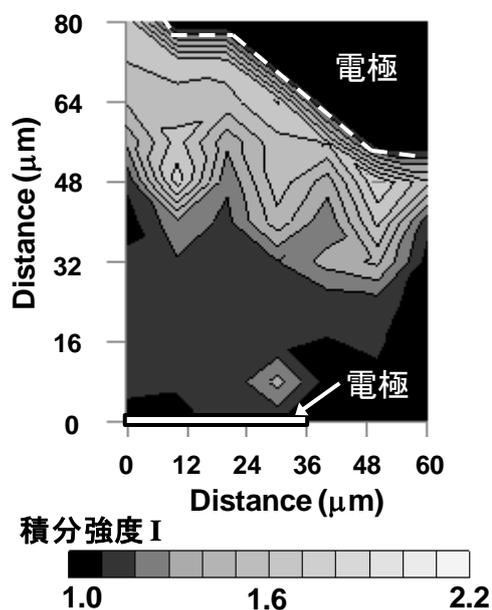


図 3-1 電子ラマン強度のマッピング測定結果

#### 4-a. 理論(高橋)グループ

ダイマーマット絶縁体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X において、光吸収スペクトルの主要なピークに対応するエネルギー固有状態を数値的に厳密に計算し、その物理的性質を調べた。光吸収スペクトルの低エネルギー側には、ダイマー間の電荷移動を伴うハバード励起の性質を強く持つ状態からなるバンドがあり、高エネルギー側にはダイマー内の結合軌道から反結合軌道へのダイマー励起の性質を強く持つ状態からなるバンドがあることがわかった。これにより、先端光計測グループの見出した

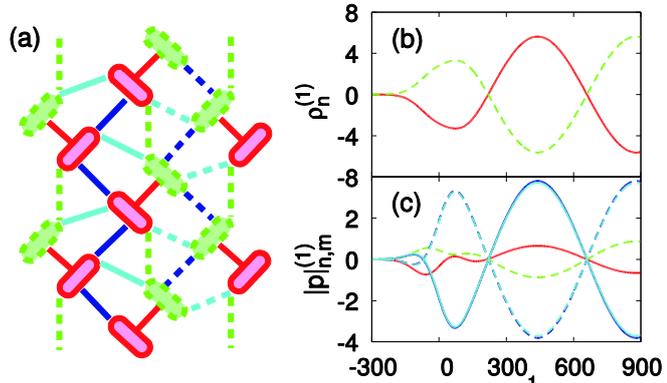


図 4-1 (a) 楕円は BEDT-TTF 分子、直線はボンドを表す。光励起によって誘起された、(b) 各分子での電荷の変化、(c) 各ボンドでのボンドオーダーの変化、の時間依存性を(a)で分子もしくはボンドを表したものと同一線種で表す。

した光誘起相転移のダイナミクスがパンプ光光子エネルギーに強く依存する実験結果が説明できると思われる。また、光吸収スペクトルのモットギャップ内に低エネルギーの微弱なピークが存在し、これがダイマー内電気双極子モーメントとダイマー間ボンドオーダーの振動が強く結合した特異なモードの励起によるものであることを見出した(図 4-1、論文 4-1)。これにより先端光計測および臨界制御グループの見出した、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> におけるモットギャップ内の光学伝導度のピーク、さらには光励起や温度変化に対するこれらのピークの特異な振る舞いを説明できる可能性がある。さらに、このモードは熱によるダイマー間ボンド長の乱れによりソフト化し、強誘電ドメインが形成されることを明らかにした。これにより、物質開拓グループが観測した異常な誘電分散を説明できる可能性がある。1 次元モット絶縁体において、光励起状態の緩和にオージェ緩和が重要な役割を果たすことを明らかにした。1 次元モット絶縁体においては、荷電キャリアがホールや励起電子とは本質的に異なっているため、オージェ過程は、従来の描像とはまったく異なるものとなっている。

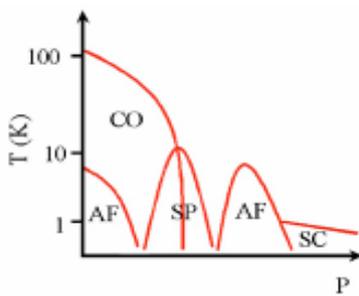


図 4-2 . TMTTF<sub>2</sub>X の温度圧力相図。CO、AF、SP、SC は電荷秩序、反強磁性、スピンパイエルス、超伝導相を表す。

#### 4-b. 理論(妹尾)グループ

磁場に対し巨大電気応答を見せる Fe フタロシアニン分子性導体に対し、伝導電子・局在スピンの結合した 1 次元モデルを構築し、これに対して厳密対角化法および量子モンテカルロ法による数値計算を前年度に引き続き行った。それにより局在スピンの存在による電荷秩序化の異常な増大や、外部磁場に対して局在スピンの秩序を不安定化することにより電荷秩序が融解することによ

る伝導の増大(巨大磁気抵抗効果)、および磁化率の温度依存性を伝導電子と局在スピンの2成分に分けて計算することにより実験における振る舞いを説明した[論文 4-5]。また、擬1次元  $\text{TMTTF}_2\text{X}$  の温度圧力相図(図 4-2)において近年議論されている特異な低温磁気状態の圧力依存性について、異方性を取りこんだ2次元拡張ハバードモデルに対する厳密対角化法による数値計算を行った。その結果、電荷秩序により局在スピン間の結合がより2次元的になり、有効超交換相互作用の次元性クロスオーバーが起き、スピンパイエルス状態が不安定化し反強磁性状態が安定化する機構を見つけた(図 4-3)。

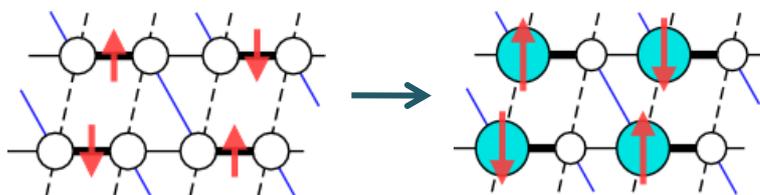


図 4-3 . TMTTF 分子の 2 次元伝導層におけるダイマーモット状態(左)と電荷秩序状態(右)の模式図。電荷秩序により反強磁性磁気秩序が安定化する。

## §4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

#### ● 論文詳細情報

- 1-1. Y. Kawakami, T. Fukatsu, Y. Sakurai, H. Unno, H. Itoh, S. Iwai, T. Sasaki, K. Yamamoto, K. Yakushi, and K. Yonemitsu, "Early-Stage dynamics of Light-Matter Interaction Leading to the Insulator to metal Transition in a Charge Ordered Organic Crystal", *Phys. Rev. Lett.*, 105, 246402(2010). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.246402)
- 1-2. H. Nakaya, K. Itoh, Y. Takahashi, H. Itoh, S. Iwai, S. Saito, K. Yamamoto, and K. Yakushi, "Terahertz Responses of the High-Temperature Metallic Phase and Photoinduced Metallic State in the Ferroelectric Charge-Ordered Organic Salt". *Phys. Rev. B* 81, 155111,(2010). DOI: 10.1103/PhysRevB.81.155111
- 1-3. Shinichiro Iwai, "Ultrafast IR and THz spectroscopy of photoinduced insulator to metal transition in highly correlated organic system", *J. Lumin.* 131, 409 (2011). DOI:10.1016/j.jlumin.2010.12.014
- 1-4. Y. Kawakami, T. Fukatsu, H. Itoh, S. Iwai, T. Sasaki, K. Yamamoto, and Y. Kyuya, "Dynamic electron molecular vibration (EMV) interference during photoinduced

- metallization in charge ordered organic salt", Proceedings of International Conference on Ultrafast Phenomena XVII, p. 167 (Oxford university press).
- 1-5. K. Itoh, H. Nakaya, Y. Kawakami, T. Fukatsu, H. Itoh. S. Iwai, T. Sasaki, and S. Saito, "Motional narrowing of phonon spectrum driven by ultrafast dielectric fluctuation in dimer Mott insulator", Proceedings of International Conference on Ultrafast Phenomena XVII, p. 170 (Oxford university press).
- 2-1. M. Abdel-Jawad, I. Terasaki, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi, Y. Uesu and C. Hotta. "Anomalous dielectric response in the dimer Mott insulator  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>." Phys. Rev. B 82, 125119-1-5 (2010). (doi:10.1103/PhysRevB.82.125119)
- 2-2. K. Sano, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi, "Electron Localization near the Mott Transition in the Organic Superconductor  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br." Phys. Rev. Lett. 104, 217003-1-4 (2010). (doi:10.1103/PhysRevLett.104.217003)
- 2-3. N. Yoneyama, K. Furukawa, T. Nakamura, T. Sasaki, and N. Kobayashi."Magnetic Properties of X-ray Irradiated Organic Mott Insulator  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl." J. Phys. Soc. Jpn. 79, 063706-1-4 (2010). (doi:10.1143/JPSJ.79.063706)
- 2-4. K. Sano, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi, "Suppression of superconductivity by X-ray irradiation induced disorders in organic superconductor  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br." Physica B 405, S279-S281 (2010). (doi:10.1016/j.physb.2009.10.044)
- 2-5. N. Yoneyama, T. Sasaki, N. Kobayashi, K. Furukawa and T. Nakamura, "X-ray irradiation effect on magnetic properties of Dimer-Mott insulators:  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl and  $\beta'$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>ICl<sub>2</sub>." Physica B 405, S244-S246 (2010). (doi:10.1016/j.physb.2009.10.043)
- 3-1 H. Kishida, T. Ito, A. Ito, and A. Nakamura, "Room-temperature current oscillation based on negative differential resistance in a one-dimensional organic charge-transfer complex ", Appl. Phys. Express 4 (2011) 031601. DOI. 10.1143/APEX.4.031601
- 4-1. Hiroki Gomi, Takayuki Imai, Akira Takahashi, and Masaki Aihara, "Purely electronic terahertz polarization in dimer Mott insulators", Phys. Rev. B, vol. 82, No. 3, pp. 035101-1-7, 2010 (doi: 10.1103/PhysRevB.82.035101)
- 4-2. H. Gomi, A. Takahashi, T. Tastumi, S. Kobayashi, K. Miyamoto, J.D. Lee, M. Aihara, "Photogenerated metallic states in charge-ordered insulators in (BEDT-TTF)<sub>2</sub>X", J. Phys. Soc. Jpn. 80, 034709(2011). (DOI:

10.1143/JPSJ.80.034709)

- 4-3. H. Yoshioka, M. Tsuchiizu, Y. Otsuka, and H. Seo, “Finite-Temperature Properties across the Charge Ordering Transition –Combined Bosonization, Renormalization Group, and Numerical Methods–”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 094714 (2010). DOI: 10.1143/JPSJ.79.094714
- 4-4. M. Tsuchiizu, Y. Omori, Y. Suzumura, M.-L. Bonnet, V. Robert, S. Ishibashi, and H. Seo, “Multi-Orbital Molecular Compound (TTM-TTP)<sub>I3</sub>: Effective Model and Fragment Decomposition”, J. Phys. Soc. Jpn. 80, 013703 (2011). DOI: 10.1143/JPSJ.80.013703
- 4-5. Y. Otsuka, H. Seo, and Y. Motome, “Charge ordering due to  $\pi$ -d coupling in one-dimensional system”, Physica B 405, S317 (2010). DOI: 10.1016/j.physb.2009.11.020
- 4-6. H. Seo, “Broken symmetry states in quasi-one-dimensional molecular conductors –competitions, co-existences, and frustration–”, Physica B 405, S126 (2010). DOI: 10.1016/j.physb.2009.12.080

(4-2) 知財出願

- ① 平成22年度特許出願件数(国内 0 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 0 件)