

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. 研究実施体制

(1)「先端光計測」グループ

①研究代表者:岩井伸一郎 (東北大学・大学院理学研究科、教授)

②研究項目

i)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。

ii)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

①主たる共同研究者:佐々木 孝彦 (東北大学金属材料研究所, 教授)

②研究項目

i)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

ii)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

①主たる共同研究者:岸田 英夫 (名古屋大学大学院工学研究科、教授)

②研究項目

i)電場下における光誘起相転移

ii)強誘電性を示す光誘起相転移物質の電子ラマン分光と電場下分光

(4)-a 「理論」グループ

①主たる共同研究者:高橋 聡 (名古屋工業大学工学研究科、教授)

②研究項目

i)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、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

①主たる共同研究者:妹尾 仁嗣 (理化学研究所、専任研究員)

②研究項目

i)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。

§2. 研究実施内容

1: 先端光計測(岩井)グループ

昨年度までに、赤外 12 fs (～電場振動 3 サイクル) による強相関有機物質における電荷秩序やモット絶縁体の光融解(絶縁体－金属転移)の初期過程における電荷や格子のダイナミクスを明らかにしてきた。本年度は、I; 電荷の秩序やスピンの状態を変化させるような新たな光誘起相転移として、(i) 誘電異常を示す有機伝導体 (κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃, β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂) ;、ii) スピン転移(低スピン－高スピン転移)を示すコバルト酸化物 LaCoO₃, iii) 磁気転移(強磁性－反強磁性)を示す電荷秩序誘電体 LuFe₂O₄ への展開を進めた。II; 前年度、開発を開始した <8 fs (波長 1.5 μ m にて 1.5 サイクル)の赤外キャリア-エンベロープ位相(CEP)制御した「フルコヒーレント極超短パルス」を進めた。前年度発生した広帯域スペクトルの圧縮プロセスを開始し、フルコヒーレント 10 fs パルスを発生に成功した。

I-i (κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃, β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂)

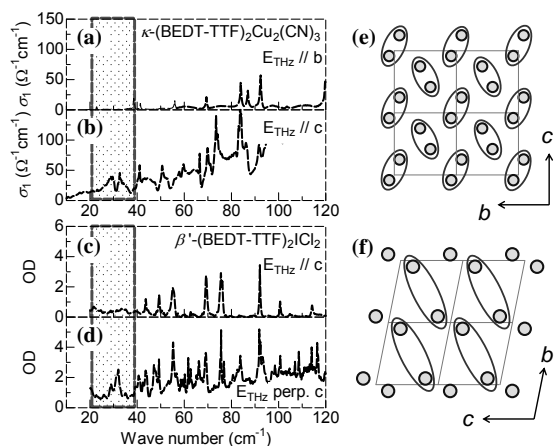


図 1-1 (a)(b) κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の光学伝導度スペクトル。

(c)(d) β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ のスペクトル。

(e)(f) 両物質の格子配置の模式図

強誘電リラクサー的な誘電異常を示す有機分子性結晶の光、テラヘルツ応答を調べている。前年度までに、三角格子ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ において、分極ナノクラスターの存在を特徴づけるダイマー内双極子の集団励起が、～1 THz に存在することや、分極ナノクラスターが近赤外パルスの照射によって増殖することなどを明らかにしてきた(文献 1-3)。本年度は、より強誘電状態に近い四角格子ダイマーモット絶縁体 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ を対象に、光誘起強誘電性を目指した研究を進めた。図 1-1(c,d) に β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ の光学伝導度スペクトルを示す。

κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ と同様の、～30 cm⁻¹ の異方的な光学遷移が観測された(図 1-1(d))。E//c 偏光(図(c))では明瞭なフォノンピークが観測されるのに対し、E//c 偏光(図(b))のスペクトルは電子遷移によるバック

グラウンドを持ち、ファノ干渉によってひずんだスペクトル構造が観測される。加えて～30 cm⁻¹ に、低周波の誘電異常に対応する特徴的な温度依存性を示す応答が観測された。これらのスペクトル上の特徴は、これまでに報告した κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ と類似しており、～30 cm⁻¹ のピークは、双極子の集団励起によるものと考えられる。(網掛け部分)。また、佐々木G、岸田Gとの協力により、DC 電場の印可下において、この～30 cm⁻¹ の変化を観測した。電場の印可によって、分極状態は増大することがわかった。次年度は、DC 電場下において照射実験を行い、光誘起強誘電性を目指す。

I-ii) スピン転移(低スピン→高スピン転移)を示すコバルト酸化物 LaCoO_3 、

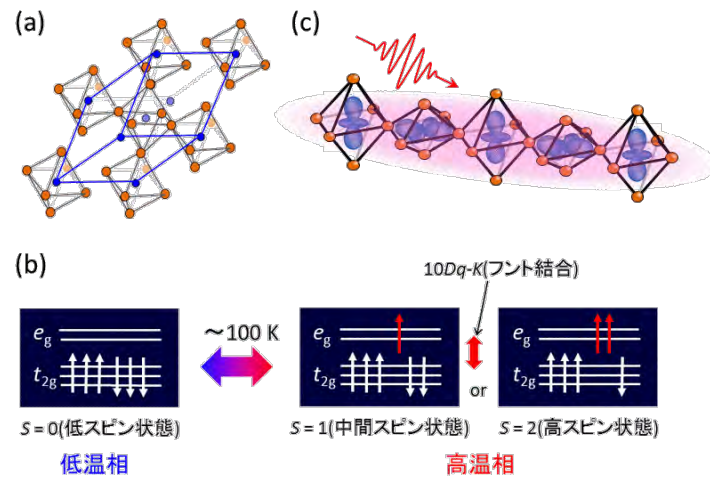


図 1-2 (a) LaCoO_3 の結晶構造. (b) 3d 軌道内の電子配置.
(c) 光励起によって $S=0$ (低スピン)相内に生成された $S=1$ 、JT クラスタ.

ペロブスカイト型コバルト酸化物 LaCoO_3 (図 1-2(a)) は、典型的な電荷移動型の強相関絶縁体であり、 $S=0$ から $S=1$ あるいは $S=2$ へのスピン転移 ($T_{\text{spin}} \sim 100 \text{ K}$, 図 1-2(b)) と絶縁体-金属転移 ($T_{\text{IN}} \sim 540 \text{ K}$) の両方を異なる温度で示す特徴的な物質である。本年度は、 LaCoO_3 における光誘起スピン転移の初期過程について赤外 12 fs パルスを用いた高時間分解分光によって調べた。まず我々は、光励起-中赤外(100 fs)分光およびテラヘルツ分光により、光によるスピン転移が起こることを明らかにした。特に、 0.89 eV ($1.4 \mu\text{m}$) の近赤外光励起では、**1光子あたり 1000 サイト**におよぶ高効率の光スピン転移 ($S=0 \rightarrow S=1$ or $S=2$) が起きることがわかった。次に 赤外 12 fs パルスを用いて、その高効率スピン転移の初期過程を調べた。図 1-3 (a) は反射率変化の時間発展、(b) はその高周波振動成分 ($>260 \text{ cm}^{-1}$) を示す。光励起直後、スピン転移による信号は、およそ 30 fs 程度という極めて早い時間内に立ち上がる。注目すべきことは、その立ち上がり時間にはほぼ等しい周期 $\sim 30 \text{ fs}$ の振動構造 ($\sim 1100 \text{ cm}^{-1}$) を伴っていることである。この振動数は、ラマン散乱で観測されるペロブスカイト構造のヤーンテラー(JT)モード (550 cm^{-1}) の倍音にほぼ対応する。その振動の振幅は極めて大きく、信号そのものが一瞬消えてしまうほどの強い変調を受けていることがわかる。この結果は、($S=1$ 状態とは強く相互作用し、 $S=2$ とは相互作用しないので、) **$S=1$ (中間スピン状態) が、JT 歪と、 e_g 電子の軌道秩序を伴って数百サイトにわたるクラスターを形成すること**を示している。この物質では、高温相が、 $S=1$ なのか $S=2$ なのか長年にわたって研究されてきたが、現

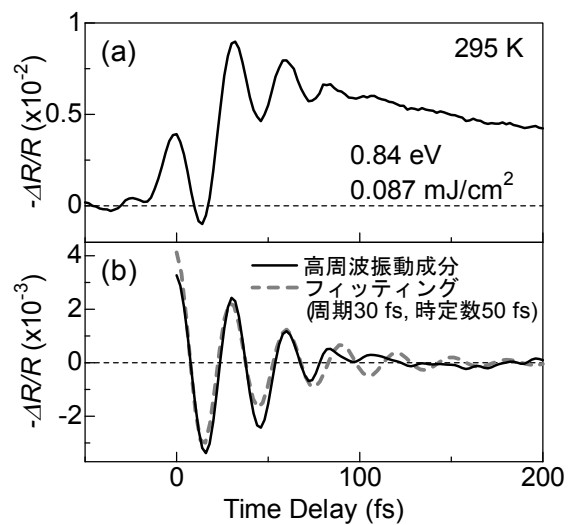


図 1-3 (a) 反射率変化の時間発展、(b) 振動成分

在でも明らかではない。しかし、少なくとも光励起によって $S=0$ から $S=1$ への転移が可能であることが明らかになった。

考慮するならば、光スピン転移の終状態は、 $S=1$ と考えるのが自然である。

また、30 fs という極めて早い立ち上がりは、サイト内でのスピン軌道相互作用によるスピン反転では説明できず、サイト間の電荷移動が関与している可能性を示唆する。しかし、この機構では、1光子当たり、1サイトのスピン転移しか起こらないので、軌道秩序を介した協力的な JT 歪が主要な機構を果たしていると考えられる。石原(腰原チーム)との共同研究によりさらに詳細な機構解明を行う。

I-iii) 磁気転移(強磁性—反強磁性)を示す電荷秩序誘電体 LuFe_2O_4 における光誘起相転移の探索

Fe-O 二重層と Lu-O の層からなる電荷秩序誘電体 LuFe_2O_4 は、電荷秩序相において常磁性—強磁性(FM)—反強磁性(AFM)転移を示すマルチフェロイック物質と考えられている。我々は、電荷秩序転移の転移温度近傍で電荷秩序の光融解について明らかにしてきたが、本年度は、FM-AFM 転移温度近傍(150 K)において、励起光の偏光に依存して異なる光誘起相転移が起こることを発見した。すなわち、 Fe-O 面に垂直な変更で励起した場合、 $\text{FM} \rightarrow \text{AFM}$ 転移が起こるのに対し、 Fe-O 面内の偏光で励起した場合は、FM の融解が起きる。

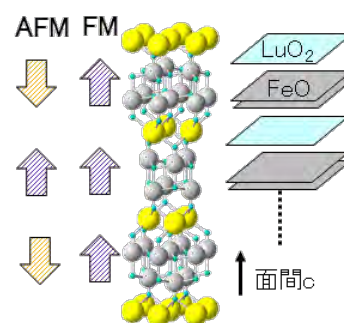


図 1-4 LuFe_2O_4 の結晶構造

II フルコヒーレント極超短パルスの開発

昨年度終わりに、新規レーザーシステムを導入し、パラメトリック増幅(アイドラ光発生)、中空ファイバーにおける自己位相変調を用いて位相制御した広帯域赤外白色光を発生させた。本年度は、広帯域スペクトルの圧縮プロセスを開始した。当初、チャープミラーによる圧縮を試みたが、ミラー制作会社が、設計通りのミラーを作成できないため、形状可変鏡を用いた圧縮に切り替え、フルコヒーレント 10 fs パルスを発生に成功した(ミラー制作会社とは交渉中。さらに、来年度からは、チャープミラー作成に関して新たにシグマ光機との共同研究を開始する予定となっている)。

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される有機物質の合成、評価および候補物質の探索を研究目的としている。これまでの CREST 研究によって、分子性ダイマーモット絶縁体に内在するダイマー内電荷自由度に起因すると考えられる誘電率の異常や電荷-スピン自由度の結合による電荷自由度起源のスピン液体状態の可能性の提案などを行い、光計測、臨界制御グループに物質提供、提案を行ってきた。このような電子相関により本質的に内在する電荷自由度の存在は、本 CREST 研究が目指す現実物質中の電子集団にお

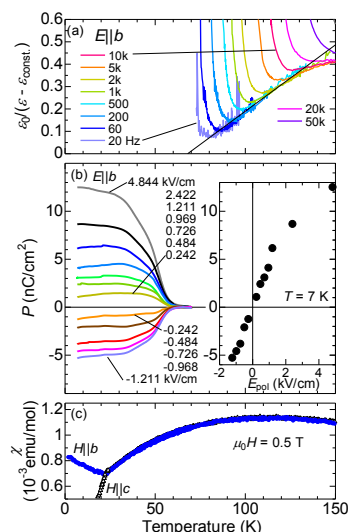


図 2-1 $\beta^1\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{ICl}_2$ の誘電率と分極 (論文 2-5)

ける光誘起相転移、非平衡相の解明と実現に重要な役割を与えている。本年度は、物質探索側からの更なるアプローチと最終年度へのまとめに向けて、フラストレーションの観点から、これまでの三角格子系の比較対象として四角格子系ダイマーモット絶縁体 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂の電荷状態研究を主として行った。その結果、スピン自由度と結合した新しい電荷ダイナミクスの発現と凍結を示す誘電異常、分極状態を見出した。(論文 2-5)

β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂は、常圧では22Kで反強磁性長距離秩序を示すダイマーモット絶縁体であり、高圧力下ではBEDT-TTF系有機導体で最高の超伝導転移温度を示す物質である。 κ -(BEDT-TTF)₂Xが持つ三角格子ダイマー構造とは異なり、四角格子ダイマー構造を持っている。このためフラストレーションが小さく、低温で反強磁性モット絶縁体化する。本研究では、このような系でも、高温では電子間斥力とスピン間交換相互作用の拮抗により、電荷-スピン自由度にフラストレーションが発生し、リラクサー的な周波数分散を示す誘電異常が発生することを発見した。また、低温モット絶縁体相においても、強電場印加により生じる電荷不均一状態を冷却、凍結することで強誘電的分極状態を固定化できることを示した。また、この電荷自由度の凍結、固定には、スピン系秩序(反強磁性長距離秩序)が重要であり、明らかな電荷-スピン自由度の結合があることが判明した。現在、この物質を先端光計測、臨界制御グループに提供し、電場印加下における光誘起状態とそのダイナミクス研究が行われている。

このような本年度の研究で、分子性ダイマーモット系物質における電荷ダイナミクスに対して、スピン自由度が結合していることが明らかになったので、最終年度では、スピンドイナミクスを磁場コントロールすることで、さらに臨界的な状況での電荷自由度変調を試み、新たな研究舞台を光グループに提示したい。

3 臨界制御(岸田)グループ

臨界制御グループでは、外場印加による相制御の観測を基礎として、臨界状態を精密に準備し、光誘起相転移の外場制御を目指している。物質開拓グループから物質提供を受け、外場相制御の制御と条件の検討を行い、先端光計測グループと共同で外場下光誘起相転移の実現を目指している。

1) β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂における電場印加ラマン測定

物質開拓グループにおいて見出された β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂における焦電性について、その電子状態を光学的に明らかにし、外場による制御することを目指し、電場印加状態におけるラマン散乱測定を行った。 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂において、BEDT-TTF分子が二量体化しユニットを形成している。平均価数はBEDT-TTF分子当たり+1/2であり、ダイマーあたり一つのホールが存在する。このホールがダイマー間の電子相関により絶縁体化したダイマーモット絶縁体であると考えられている。電荷分布を明らかにするために、価数に敏感なC=C伸縮モードである ν_2 モードに着

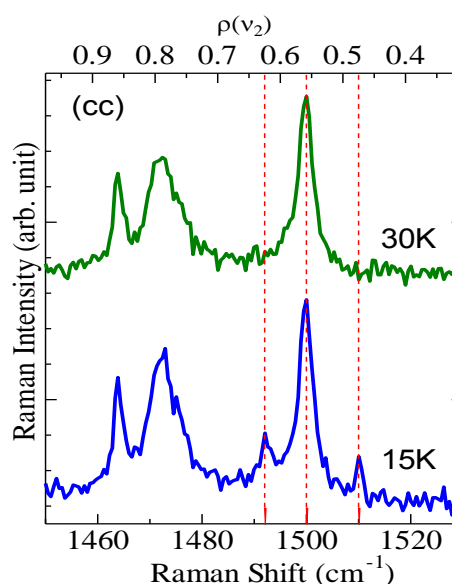


図 3-1 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂における電場印加状態のラマン散乱スペクトル

目し、ラマン散乱の温度変化の測定を行った。低温までピークの分裂はなく、一様な価数であることが示された。次に 15K において電場を印加したところ、零電場時のピークの高波数側、低波数側の両側に新たにピークが現れた(図 3-1 参照)。このピーク波数から価数の変化を求めるとおおよそ $\Delta\rho\sim 0.075$ 程度である。このように新たに二つのピークが同時に現れたことは、ダイマー内に均一に分布していた電荷が、一方の分子からもう一方に偏ったこと

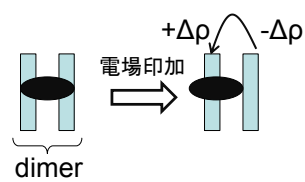


図 3-2 電荷不均化の模式図

とを強く示唆している(図 3-2)。すなわち電荷不均化(charge disproportionation)状態が電場により実現したことを明確に示している。これまで、電子誘電体の系において、電場によって分極が生じることが議論されてきたが、このようにミクロスコピックな電荷の偏りを明確に示した初めての実験結果である。電場により生じた分極は印加電場を外しても維持されることを確かめた。さらに電場強度依存性は閾値的な振る舞いをし、電場印加により新たに現れるピークの波数はシフトすることなくある一定の位置にあることが明らかになった。これらのことは、電荷が均一に存在する状態とダイマー内で偏った状態の二つの安定点があることを示唆しており、電場印加によりこの両者の間をスイッチできることを意味している。この二つの安定点の間で光誘起相転移が実現できる可能性がある。電場強度は精密に制御することができること、分極生成が閾値的な振る舞いをすることから、光による電荷不均化状態形成のための臨界状態が実現できている可能性がある。今後は、先端光計測グループと密接な連携を図り、当該物質における電場下光誘起相転移の実現を目指す。

2) 電子ラマン散乱の励起波長依存性測定

これまで $\alpha\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{I}_3$ における電子ラマン散乱と非線形伝導状態における分光測定を行ってきた。これらの実験において、電子ラマン散乱スペクトルと吸収スペクトルはその形状が一致している。強相関電子系における「光と物質の相互作用」の素過程の解明を目指す上で、先端光計測グループで研究を推進している光励起直後の初期過程の時間応答と、電子ラマン散乱スペクトル、吸収スペクトルとの比較が重要である。そこで、まず電子ラマン散乱スペクトルの詳細な理解を行うために、その励起波長依存性を調べ、共鳴効果とスペクトル形状の関係を調べた。図 3-3(b)に示す通り、633nm と 785nm 励起の場合でラマンスペクトルはほぼ一致した。このことはスペクトル形状が共鳴効果を反映したものではないことを示している。むしろ、電子励起状態の状態密度を反映していると考えられることができる。これらの情報と、先端光計測チームで得られている光励起直後の電子分極の時間応答の関係を明らかにすることで、電子相関の強い系における光励起と電子系、格子系の励起の相互関係を明らかにする。

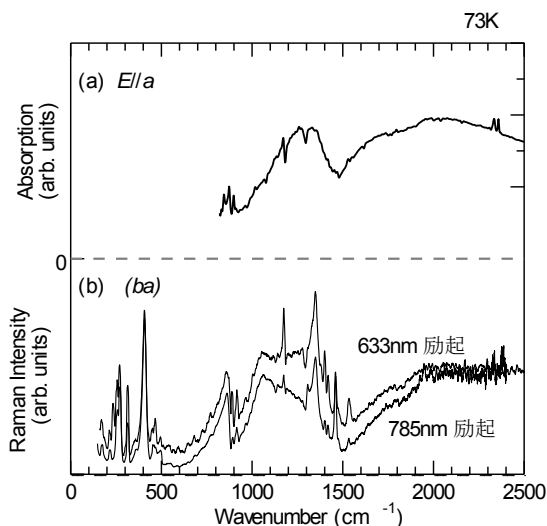


図 3-3: $\alpha\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{I}_3$ の吸収スペクトルと電子ラマンスペクトル

4-a. 理論(高橋)グループ

理論(高橋)グループでは、電荷秩序系やダイマーモット系が実現される低次元有機伝導体(BEDT-TTF 錯体や DCNQI 錯体)などの強相関物質における、初期過程も含めた光誘起相転移のダイナミクスの理論的な解析を行ない、励起直後から光誘起相転移にいたる過程を理解するための理論的な枠組みを構築することを研究目標としている。今年度は、岩井、佐々木、岸田グループで集中的に実験が行われているダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂X における光励起状態を主な対象に、以下の研究を行った。

(i) ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂X における強誘電ドメインとモットギャップ内光励起状態

ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂X を記述する拡張ハバードモデルにおいて、ダイマー間ボンド長の乱れを取り入れた場合の基底状態、および静電場を印加した状態を数値的に厳密に計算して、乱れの効果および静電場に対する電荷感受率を考察した(論文投稿中)。前年度は、ダイマーモット絶縁体と金属相の境界付近での振る舞いを主に考察したが、今年度は異なるスピン秩序をもつ別のダイマーモット絶縁体との相境界付近で、スピン揺らぎが極めて大きくなる領域を考察した。この領域では、c 軸方向に分極した静電場に対する電荷感受率が極めて大きくなることがわかった。さらに、多数の乱れのサンプル

に対してダイマー内電気双極子モーメントの b 軸方向成分の和 P_b と c 軸方向成分の和 P_c を求め、 P_c が P_b よりもはるかに幅広く分布すること、さらに、 P_c の分布に正負ふたつのピークがあることがわかった(図 4-1)。このことは、ダイマー内電気双極子モーメントがそろい、乱れにより強誘電ドメイン生成が生成されることを意味している。さらに、この領域での、モットギャップ内の低エネルギー光励起状態を数値的に計算し、これら状態の物理的性質を明らかにした。ギャップ内光励起状態のひとつは、基底状態とは異なる反強磁性スピン秩序をもつダイマーモット絶縁体であり、この状態が基底状態に混成することにより、巨大な静電場に対する電荷感受率が発生し、ダイマー内電気双極子モーメントに由来する強誘電状態ができることがわかった。物質開拓グループが誘電異常を見出した κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ はスピン液体状態であり、今年度に得られたスピン揺らぎが極めて大きい領域での結果は、スピン液体状態での誘電異常と強い関連があると考えられる。これまでに得られた金属相との相境界およびスピン揺らぎが極めて大きい領域での結果を、物質開拓グループの実験結果と比較検討することにより、様々なダイマーモット系の誘電性の統一的理解が進むことが期待できる。さらに、強誘電性が実現された状態における、光吸収スペクトル、さらにモットギャップ内の光励起状態の物理的性質を調べることにより、先端光計測グループが提唱しているダイマー内電気双極子モーメントの集団運動による励起に関する理解を進展させる。

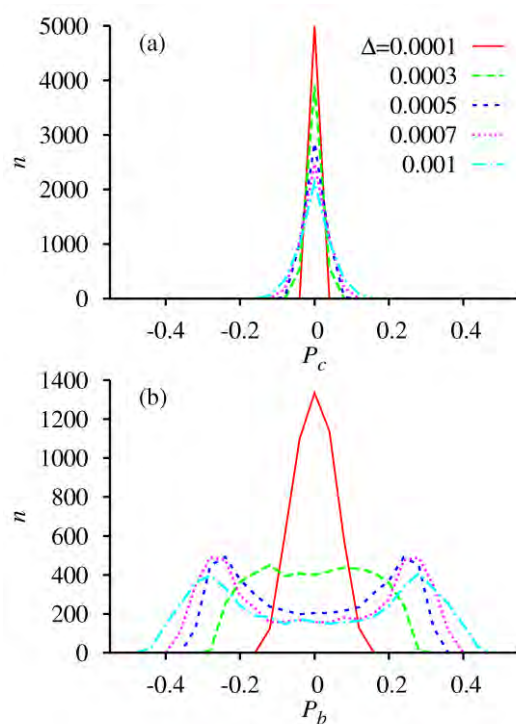


図 4-1 様々なダイマー位置の乱れに対する、ダイマー内電気双極子モーメントの b 軸方向成分の和 P_b と c 軸方向成分の和 P_c のヒストグラム。 Δ は乱れによる、ダイマー間遷移積分の変化の平均を表す。

(ii) ダイマーモット絶縁体における光誘起相転移のダイナミクス

これまでの光励起状態のダイナミクスの計算の多くでは、基底状態と励起状態が同じ格子波動関数を持つことが仮定されてきた。これを仮定せず、基底状態と励起状態が独立した格子波動関数を持つ場合のダイナミクスの計算を行った。ダイマー内励起状態を励起した場合、励起状態の格子波動関数においてダイマーを形成するボンドが伸び、基底状態と励起状態間の量子コヒーレンスが極めて早い段階で低下し、その結果コヒーレント項に由来する電荷振動が減衰することがわかった。その後、励起状態の電子波動関数が大きく変化し、光誘起相転移が起きることがわかった。この研究を、異なる励起状態や、電荷秩序状態においても行い、ここで得られた知見に基づき、先端光計測グループによる光誘起相転移の実験結果を再検証することにより、その初期過程の理解が進展させることを試みる。

4-b. 理論(妹尾)グループ

理論(妹尾)グループでは、代表的な光誘起相転移物質やその類縁物質において、光誘起相に対する取り組みを踏まえて、基底電子相の精密解析を行っている。

単一成分子性導体の有効モデル化と電子状態

多軌道がフェルミエネルギー近傍に寄与する新規の分子性導体系に対する有効モデル化とその解析を進めた。そのうち単一成分子性導体である金属錯体系 $M(\text{tmdt})_2$ [$M=\text{Ni, Cu, Au}$] においては π 電子と d 電子の混成が強く、物質間の系統性がその混成の度合いによって整理できることを提示し、その磁性状態も混成によって多様となりうることを示した。 $\text{Cu}(\text{tmdt})_2$ においては 2 種類の軌道にそれぞれ 1 個ずつ電荷が局在した「多バンドモット絶縁体」が、 $\text{Au}(\text{tmdt})_2$ においては混成が中途半端なせいで起きる特異な反強磁性金属状態が実現しているという実験の解釈を与えた。

β' -X[$\text{Pd}(\text{dmit})_2$] $_2$ におけるスピンプラストラクションと電荷自由度

$\text{Pd}(\text{dmit})_2$ 塩においては HOMO と LUMO が強い分子間 2 量体化によって逆転が起きることが以前から知られていたが、これの第一原理計算からの有効モデル構築を行い、HOMO-LUMO 混成が従来考えられていたより大きいことがわかった。この効果により、分子上の電子密度の偏りが顕著となる可能性を示唆した。またこのようにフェルミ面近傍のバンド構造を構成する軌道が従来の描像から修正を受けることにより、有効 1 バンド(ダイマー)モデルのパラメータも修正を受ける。その結果、スピンプラストラクションの起源となっているスピン系の相互作用の異方性が 1 次元的である新しい可能性を提示できた。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

1-1. Shinichiro Iwai,

"Photoinduced Phase Transitions in α -, θ -, and κ -type ET Salts: Ultrafast Melting of the Electronic Ordering", *Crystals*, 2(2), 590-617(2012). (DOI:10.3390/cryst2020590)

1-2. K. Itoh, H. Itoh, M. Naka, S. Saito, I. Hosako, N. Yoneyama, S. Ishihara, T. Sasaki, and S. Iwai, "Collective Excitation of an Electric Dipole on a Molecular Dimer in an Organic Dimer-Mott Insulator ", *Phys. Rev. Lett.* 110, 106401(2013), (DOI:10.1103/PhysRevLett.110.106401)

2-1 T. Sasaki, K. Sano, H. Sugawara, N. Yoneyama and N. Kobayashi, "Influence of randomness on the Mott transition in κ -(BEDT-TTF)₂X", *Phys. Status Solidi B* 249, 947-952 (2012). (DOI:10.1002/pssb.201100614)

2-2 T. Sasaki, "Mott-Anderson Transition in Molecular Conductors: Influence of Randomness on Strongly Correlated Electrons in the κ -(BEDT-TTF)₂X System", *Crystals* 2, 374-392 (2012). (DOI:10.3390/cryst2020374)

2-3 A. Antal, T. Feher, N. Yoneyama, L. Forro, T. Sasaki and A. Janossy, "Spin and Charge Transport in the X-ray Irradiated Quasi-2D Layered Compound: κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl", *Crystals* 2, 579-589 (2012). (DOI:10.3390/cryst2020579)

2-4 S. Nakajima, T. Suzuki, Y. Ishii, K. Ohishi, I. Watanabe, T. Goto, A Oosawa, N. Yoneyama, N. Kobayashi, F. L. Pratt, and T. Sasaki., "Microscopic Phase Separation in Triangular-Lattice Quantum Spin Magnet κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ Probed by Muon Spin Relaxation", *J. Phys. Soc. Jpn.* 81, 063706-1-4 (2012). (DOI:10.1143/JPSJ. 81. 063706)

2-5 S. Iguchi, S. Sasaki, N. Yoneyama, H. Taniguchi, T. Nishizaki, and T. Sasaki, "Relaxor ferroelectricity induced by electron correlations in a molecular dimer Mott insulator", *Phys. Rev. B* 87, 075107-1-5 (2013). (DOI: 10.1103/PhysRevB.87.075107)

- 5-1. H. Yoshioka, Y. Otsuka, and H. Seo, “Theories on quasi-one-dimensional molecular conductors”, *Crystals* **2** (2012) Issue 3, pp. 996-1016 (DOI: 10.3390/cryst2030996).
- 5-2. Y. Otsuka, H. Seo, K. Yoshimi, and T. Kato: Finite temperature neutral-ionic transition and lattice dimerization in charge-transfer complexes: QMCstudy”, *Physica B* **407** (2012) Issue 11, pp. 1793-1795 (DOI: 10.1016/j.physb.2012.01.031).
- 5-3. K. Yoshimi, H. Seo, S. Ishibashi, and S. E. Brown, “Spin frustration, charge ordering, and enhanced antiferromagnetism in $\text{TMTTF}_2\text{SbF}_6$ ”, *Physica B* **407** (2012) Issue 11, pp. 1783-1786 (DOI: 10.1016/j.physb.2012.01.029).
- 5-4. T. Tsumuraya, H. Seo, M. Tsuchiizu, R. Kato, and T. Miyazaki, “Cation Dependence of the Electronic States in Molecular Triangular Lattice System $\beta\text{-X}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$: A First-principles study”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** (2013) No. 3, art. no. 033709 (DOI: 10.7566/JPSJ.82.033709).
- 5-5. H. Seo, S. Ishibashi, Y. Otsuka, H. Fukuyama, and K. Terakura, “Electronic States of Single-Component Molecular Conductors $[\text{M}(\text{tmdt})_2]$ ”, to be published on *J. Phys. Soc. Jpn.* (in press).