



**電場と光の相乗効果により、
電気の流れやすさを自在にコントロールすることに成功**
—有機材料の絶縁体状態と金属状態間の転移の制御—

研究成果のポイント

- ・絶縁体である有機材料にパルス電場を加えることにより、金属的な伝導性の発現に成功。
- ・パルスレーザー光とパルス電場を同時に用いることで、伝導性を自在に制御できることを示した。
- ・有機分子を用いた光エレクトロニクスデバイスへの応用や、光・電場誘起超伝導への展開が期待される。

研究成果の概要

絶縁体の有機材料にパルス電場とパルスレーザー光を作用させることで、金属状態を発現させるとともに、電気伝導性を制御することに成功しました。有機モット絶縁体^{注1}にパルス電圧をかけることで、伝導性の急激な上昇（スイッチング）がみられることがわかりました。これまでのように電界効果トランジスタ（FET）構造^{注2}を作成する必要がないため、素子構造を大幅に簡略化できます。また、光を電場と同時に作用させることで、伝導性を制御できることもわかり、光エレクトロニクスデバイスへの応用、さらには光と電場による超伝導発現への展開が期待されます。

論文発表の概要

研究論文名：Insulator-Metal Transitions Induced by Electric Field and Photoirradiation in Organic Mott-Insulator Deuterated κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br
(有機モット絶縁体である κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br 重水素化合物において電場と光照射により誘起される絶縁体-金属間の転移)
著者：氏名（所属）Farzana Sabeth, Toshifumi Iimori, Nobuhiro Ohta（北海道大学電子科学研究所）
公表雑誌：Journal of the American Chemical Society, (Communication)
(アメリカ化学会(American Chemical Society (ACS))の学術誌における速報)
公表日：米国東部時間 2012 年 4 月 4 日 (Web)

研究成果の概要

(背景)

一般的に金属と呼ばれる物質中には、「自由電子」が豊富に存在し、原子・分子間を自由に飛び移ることによって電流を運ぶことができます。ところが、「自由電子」を持ち本来金属であるべきにもかかわらず、電子間のクーロン反発により電子が運動しにくくなり、電流を流せなくなる「絶縁体」となってしまう物質が存在することも知られています。このように、一般的な絶縁体とは異なる機構によって絶縁性を示す物質は、「モット絶縁体」と呼ばれ、通常物質では見られない特異的な物理

現象の宝庫として注目されています。

電気の流しやすさである「電気伝導度」の制御は、様々なエレクトロニクスデバイスの要となっています。これまでの基礎研究によって、モット絶縁体は、電子状態が光や電場に対して敏感に反応して変化する場合が多いことが知られています。そこで、これらの物理的な外部刺激を用いて伝導性を自由に制御できれば、新しい分子エレクトロニクスデバイスへの応用が期待できます。

有機モット絶縁体を用いて電界効果トランジスタ（FET）構造を作成し、電場で伝導性を変化させる研究がこれまで行われてきました。しかし、FETデバイスの作成は簡単ではありません。また、有機モット絶縁体に短い時間幅を持つレーザー光を当て、スペクトルの変化を追跡することによって短時間、金属状態に変化すると結論されています。しかし、電気伝導度の変化を直接測定する実験は行われていません。さらに、光と電場を同時に作用させたときの挙動についてもわかっていませんでした。

（研究手法）

北海道大学電子科学研究所の太田信廣教授と飯森俊文助教のグループは、極低温の材料にパルス電圧とパルスレーザー光を照射し、それによって誘起される電気伝導度の変化を時間分解測定する手法の開発を手がけてきました。今回、有機モット絶縁体として知られている重水素化 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br^{注3・4}の単結晶を研究対象としました。

典型的な結晶の幅は、1 mm程度であり、結晶表面に約400 μm（マイクロメートル）の間隔で2端子の電極を作成しました。今回用いた試料は、FET素子構造に比べると非常に単純な構造となっており、試料を2電極で挟み込んだ構造をとっています。電極間に約40～50 ms（ミリ秒）の時間幅を持つパルス電圧を加え、電流値を測定することによって電気伝導度を測定します。さらに電極間に可視光のパルスレーザー光を照射し、照射後の電気伝導度の時間変化を追跡しました。

（研究成果）

試料の抵抗値は、温度の低下とともに増大し、温度10ケルビン（K）付近における抵抗値は、80 Kの抵抗値のおよそ1万倍の大きさに達します（図1）。15 Kにおいて、結晶はモット絶縁体状態となりますが、この状態でさまざまな大きさのパルス電圧をかけて、電流値を測定しました（図2）。

その結果、ある電圧値以下では、試料の高い抵抗値を反映して、非常に小さな電流値しか観測できませんが、かける電圧をわずかに増大させると、突然電流が流れ始めることがわかりました。結晶の電流値と電圧値の関係を測定すると図3のような結果が得られ、ある電圧値（図3では22 V）を境に、急峻な電気伝導度の変化（スイッチング）がみられます。また図3に見られるように電圧を上げていった場合と逆に下げていった場合でのスイッチングが起こる電圧が異なる、いわゆるヒステリシスも観測されます。さらには伝導度のスイッチングが生じる電圧の値は、温度に依存した変化を示すことも明らかになりました。

一般的に、物質を流れる電流の値は、「オームの法則」によって、電圧の値と線形比例関係を示します。しかし今回の図3の結果は、このオームの法則に従っていないことを明らかに示しており、このような伝導特性は「非線形伝導現象」と呼ばれています。今回観測されたような急峻な非線形伝導現象は、かける電圧の大きさを伝導度を制御するスイッチングデバイスへの応用が可能です。このような伝導性の変化は、モット絶縁状態が、電場の作用によって金属的なバンド構造を持つ電子状態へ変化することが原因のひとつであると考えられます。

また、電圧をかけると同時に、可視光パルスレーザー（波長470ナノメートル）を照射したとこ

ろ、非線形伝導特性が変化することを示しました（図4）。低電圧（図4では17V）をかけた場合、光を当てない状態では伝導度のスイッチングは生じませんが、レーザー光をパルス電圧と同時に作用させると、スイッチングを誘起することがわかります。したがって、光照射により非線形伝導特性を制御することが可能であり、有機モット絶縁体の光エレクトロニクスデバイスへの応用の可能性を示すことができました。結晶を光励起すると、モット絶縁体状態から金属的な状態に光誘起相転移を示し、そのことが伝導性の変化をもたらす原因の一つになっていると推測されます。

（今後への期待）

光と電場に対するモット絶縁体の応答を明らかにした今回の成果は、いまだ未解明の部分が多いモット絶縁体の物理を理解するうえで貴重な知見を与えられと考えられます。また、有機モット絶縁体に限らず、高温超伝導を示す物質として知られる銅酸化物においても、モット絶縁体状態と超伝導状態は隣り合わせになっていることが知られていることから、光と電場の作用によって超伝導を誘起する研究への展開も期待できます。

お問い合わせ先

所属・職・氏名：北海道大学電子科学研究所 教授 太田 信廣（おた のぶひろ）

TEL: 011-706-9410 FAX: 011-706-9406 E-mail: nohta@es.hokudai.ac.jp

ホームページ：http://www.ohta-laboratory.com/

【専門用語解説】

注1) モット絶縁体

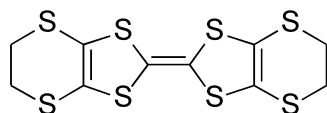
電子相関を考慮しないバンド理論によれば、電子が伝導帯を半分満たしているとき、物質は金属になる。しかし電子間のクーロン斥力を考慮すると、同一イオンを電子が占めるエネルギーとバンド幅エネルギーの大小関係によっては、電子が移動できなくなり、金属的な伝導が不可能になる場合がある。この状態をモット絶縁体という。

注2) 電界効果トランジスタ (FET)

ここでは、薄い酸化物絶縁膜を半導体のうえに形成させて、さらに金属ゲート電極を形成させたMOS-FETを指している。

注3) BEDT-TTF

電子を放出してプラスイオン（カチオン）になる傾向が強い有機分子であり、導電性を持つ有機結晶の原料としてよく用いられる。また今回は、重水素化されたBEDT-TTF分子を用いている。



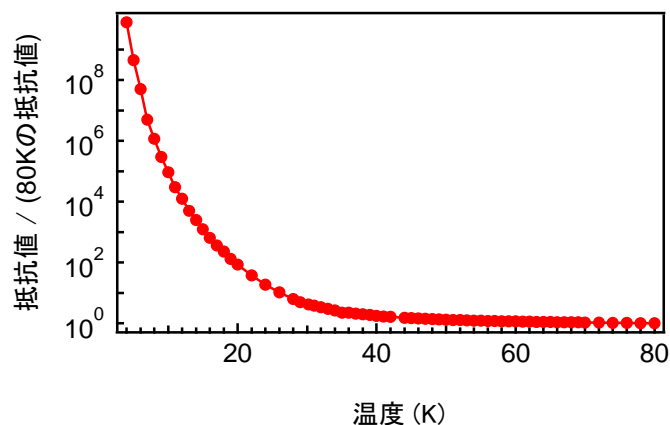
BEDT-TTF の分子構造

注4) κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br

BEDT-TTF が2分子で1価のカチオン((BEDT-TTF)₂⁺)となり、1価のマイナスイオン（アニオン）である[Cu[N(CN)₂]Br]⁻と塩（えん）を形成した物質。BEDT-TTF分子は、さまざまなアニオンと塩を形成し結晶を与えるが、BEDT-TTF分子のパッキング様式は多様であり、いくつかのパターンに分類できることが知られている。この配列パターンはギリシャ文字を用いて示され、今回の「 κ 」は、BEDT-TTF分子の2量体がユニットとなっている。

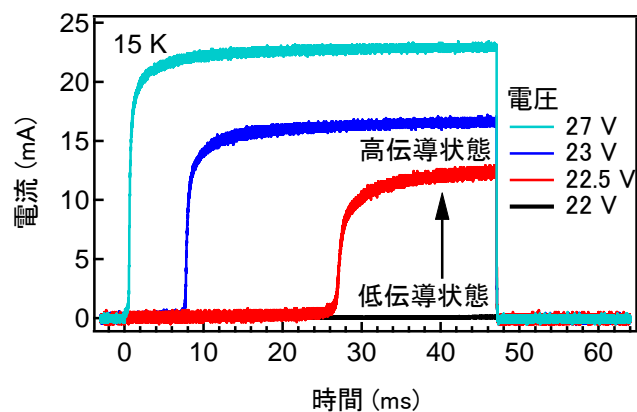
【参考図】

図 1



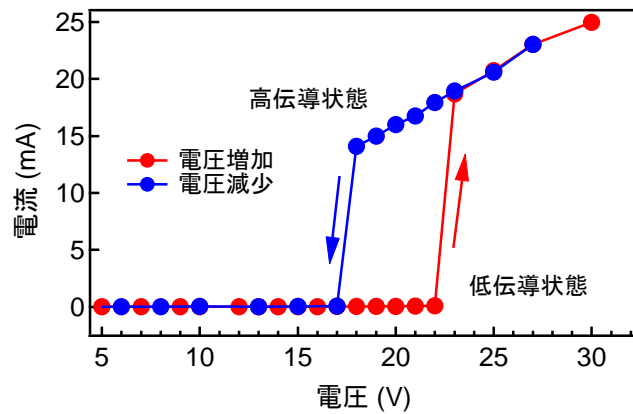
試料の抵抗値の温度依存性。縦軸は対数プロットであり、80 Kにおける抵抗値で割った値を示している。

図 2



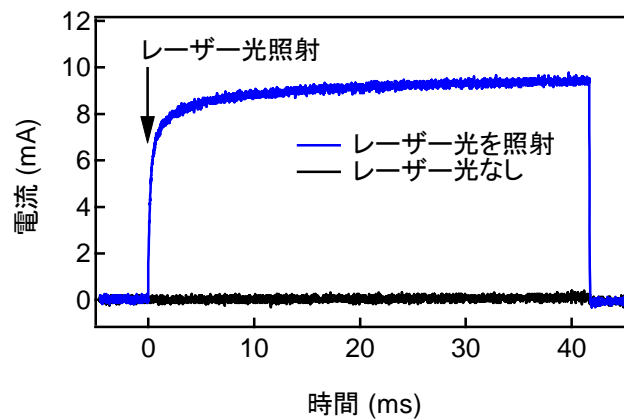
47 ミリ秒の時間幅を持つパルス電圧をかけて測定された電流値の時間変化。時間ゼロからパルス電圧をかけはじめている。電圧が22 V (黒), 22.5 V (赤), 23 V (青), および 27 V (シアン) の結果を示している。22 V を用いたときには、ほとんど電流は流れず、低伝導状態 (すなわち高抵抗状態) である。しかし 22.5 V を用いると、約 25 ミリ秒経過した後急に大きな電流が流れ、高伝導状態 (すなわち低抵抗状態) へ変化することがわかった。さらに電圧を増加させると、電流の増加が始まる時刻が早くなる。

図 3



試料を接続した回路の電流値の電圧依存性。温度は15 K。電圧を増加させていくと、ある電圧値を境に急激な伝導性の向上がみられ、低伝導状態から高伝導状態へスイッチングが生じる。逆に電圧を下げていくと低伝導状態へ戻るが、その際の電圧値は同じではなくヒステリシスが観測される。

図 4



17 V のパルス電圧をかけて測定された電流値の時間変化。時間ゼロからパルス電圧をかけはじめている。レーザー光を照射しない場合は低伝導状態であるが、パルスレーザー光を時刻ゼロにおいて同時に照射すると、高伝導状態へのスイッチングが見られる。