

## 機能分子システム創成研究部門

山本浩史（教授）（2012年4月1日着任）

須田 理行（助教）

広部 大地（助教）

佐藤 拓朗（助教）

PACHARIYANGKUN, Anna（インターンシップ）

CHAIWAI, Chaiyon（インターンシップ）

SAENNAWA, Wiyada（インターンシップ）

KUMSAMPAO, Jakkapan（インターンシップ）

相澤 洋紀（大学院生）

森島 将基（大学院生）

鍋井 庸次（大学院生）

中島 良太（大学院生）

URBAN, Adrian（大学院生）

MALATONG, Ruttapol（大学院生）

友田 美紗（大学院生）

村田 了介（技術支援員）

鈴木 愛（事務支援員）

A-1) 専門領域：分子物性科学

A-2) 研究課題：

- a) 有機モット・トランジスタ
- b) カイラル分子によるスピン偏極デバイス
- c) 無機カイラル金属における電流誘起スピン偏極

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 有機モット絶縁体である  $\kappa$  型 BEDT-TTF (Bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene) 塩の薄膜単結晶を用いた電界効果デバイスを作製し、その電気的特性を測定した。モット絶縁体中では電子間に働くクーロン反発と格子整合のために本来金属的であるべきキャリアの伝導性が極端に低い状態が実現しているが、トランジスタのゲート電界により静電キャリアドーピングが行われると実効的なクーロン反発が遮蔽されて金属的な伝導性が復活する。また、このような強相関電子系では、金属-絶縁体転移に附随して超伝導転移もしばしば観測されることから、電界効果による超伝導のスイッチングが可能となる。本年は化学的にドーブされたモット絶縁体として知られている、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>4</sub>Hg<sub>2.89</sub>Br<sub>8</sub> を用いて FET (Field Effect Transistor) や EDLT (Electric Double Layer Transistor) デバイスを作製し、その電界効果測定に挑戦した。
- b) CISS (Chirality-Induced Spin Selectivity) はカイラル分子に対してトンネル電流を流すと、分子を通過してきた電子のスピンが電流と平行あるいは反平行に偏極する現象であり、近年新たな有機スピントロニクスや光学分割の手段として注目されつつある。我々はこのようなスピン偏極が、これまでの実験で用いられてきた薄膜におけるトンネル

電流だけでなくバルク物質においても起きうると考え、不斉部位をもつ TTF (Tetrathiafulvalene) 誘導体のカチオンラジカル結晶や、金ナノ粒子を不斉分子で架橋した材料などに対して磁性電極を配線し、磁場下で磁気抵抗を計測した。その結果、これらのバルク材料でも非常に大きな磁気抵抗を観測できることが明らかとなった。

- c) CISS 効果は有機分子に限定されるものではなく、カイラルな構造を有する無機材料でも発現可能であると考えられる。我々は一軸性のカイラル金属である  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  に着目し、これに電流を通じることによって生じるスピン偏極をいくつかの手法で検出した。まず、微細加工で作製した  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  のマイクロストリップにタングステン電極を貼り付けることによって、表面に蓄積したスピン偏極を逆スピンホール効果で検出することに成功した。また、当該タングステン電極に電流を通じることによってスピンホール効果によるスピン流注入を行い、逆 CISS 効果による電圧発生を観測した。興味深いことに、これらの現象は全て線形応答領域で観測されている。 $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  における CISS スピン偏極は、非局所配置によっても検出可能であった。さらには、 $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  に電流を通じながら SQUID 磁束計で直接磁化を測ることにより、偏極しているスピンの絶対数を求めることにも成功した。その結果、CISS 効果で期待される電子数の 100,000 倍にもなる巨大なスピン偏極が観測された。この巨大なスピン偏極を生じる有効磁場は、パウリ常磁性モデルで換算すると最大電流値において 1000 T 程度になることが想定される。

#### B-1) 学術論文

**Y. NAGAOKA, M. SUDA, I. YOON, N. CHEN, H. YANG, Y. LIU, B. A. ANZURES, S. W. PARMAN, Z. WANG, M. GRÜNWARD, H. M. YAMAMOTO and O. CHEN**, “Bulk Grain-Boundary Materials from Nanocrystals,” *Chem* **7**, 509–525 (2021).

**R. YOSHIMOTO, S. YAMASHITA, H. AKUTSU, Y. NAKAZAWA, T. KUSAMOTO, Y. OSHIMA, T. NAKANO, H. M. YAMAMOTO and R. KATO**, “Electric Dipole Induced Bulk Ferromagnetism in Dimer Mott Molecular Compounds,” *Sci. Rep.* **11**, 1332 (10 pages) (2021).

**H. YAMAKAWA, T. MIYAMOTO, T. MORIMOTO, N. TAKAMURA, S. LIANG, H. YOSHIMUCHI, T. TERASHIGE, N. KIDA, M. SUDA, H. M. YAMAMOTO, H. MORI, K. MIYAGAWA, K. KANODA and H. OKAMOTO**, “Terahertz-Field-Induced Polar Charge Order in Electronic-Type Dielectrics,” *Nat. Commun.* **12**, 953 (11 pages) (2021).

**A. PACHARIYANGKUN, M. SUDA, S. HADSADEE, S. JUNG SUTTIWONG, P. NALAOH, P. PATTANASATTAYAVONG, T. SUDYOADSUK, H. M. YAMAMOTO and V. PROMARAK**, “Effect of Thiophene/Furan Substitution on Organic Field Effect Transistor Properties of Arylthiadiazole Based Organic Semiconductors,” *J. Mater. Chem. C* **48**, 17297–17306 (2020).

**Y. UNOZAWA, Y. KAWASUGI, M. SUDA, H. M. YAMAMOTO, R. KATO, Y. NISHIO, K. KAJITA, T. MORINARI and N. TAJIMA**, “Quantum Phase Transition in Organic Massless Dirac Fermion System  $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$  under Pressure,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **89**, 123702 (5 pages) (2020).

**Y. KAWAKAMI, T. AMANO, H. OHASHI, H. ITOH, Y. NAKAMURA, H. KISHIDA, T. SASAKI, G. KAWAGUCHI, H. M. YAMAMOTO, K. YAMAMOTO, S. ISHIHARA, K. YONEMITSU and S. IWAI**, “Petahertz Non-Linear Current in a Centrosymmetric Organic Superconductor,” *Nat. Commun.* **11**, 4138 (6 pages) (2020).

**Y. NABEI, D. HIROBE, Y. SHIMAMOTO, K. SHIOTA, A. INUI, Y. KOUSAKA, Y. TOGAWA and H. M. YAMAMOTO**, “Current-Induced Bulk Magnetization of a Chiral Crystal  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$ ,” *Appl. Phys. Lett.* **117**, 052408 (5 pages) (2020).

**A. INUI, R. AOKI, Y. NISHIUE, K. SHIOTA, Y. KOUSAKA, H. SHISHIDO, D. HIROBE, M. SUDA, J. OHE, J. KISHINE, H. M. YAMAMOTO and Y. TOGAWA**, “Chirality-Induced Spin-Polarized State of a Chiral Crystal  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$ ,” *Phys. Rev. Lett.* **124**, 166602 (6 pages) (2020).

**Y. KAWASUGI, K. SEKI, J. PU, T. TAKENOBU, S. YUNOKI, H. M. YAMAMOTO and R. KATO**, “Non-Fermi-Liquid Behavior and Doping Asymmetry in an Organic Mott Insulator Interface,” *Phys. Rev. B* **100**, 115141 (7 pages) (2019).

**G. KAWAGUCHI and H. M. YAMAMOTO**, “Control of Organic Superconducting Field-Effect Transistor by Cooling Rate,” *Crystals* **9**, 605 (8 pages) (2019).

**S. OGIKUBO, G. HASHIMOTO, T. UBE, M. SUDA, H. M. YAMAMOTO and T. IKEDA**, “Photoinduced Deformation and Isomerization of Azobenzene Liquid-crystalline Polymer Films at Cryogenic Temperature,” *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **676**, 30–35 (2019).

**T. CHOOPPAWA, S. NAMUANGRUK, H. M. YAMAMOTO, V. PROMARAK and P. RASHATASAKHON**, “Synthesis, Characterization, and Hole-Transporting Properties of Benzotriazatruxene Derivatives,” *J. Mater. Chem. C* **7**, 15035–15041 (2019).

**Y. SHIOMI, J. LUSTIKOVA, S. WATANABE, D. HIROBE, S. TAKAHASHI and E. SAITOH**, “Spin Pumping from Nuclear Spin Waves,” *Nat. Phys.* **15**, 22–26 (2019).

**M. KAMEDA, D. HIROBE, S. DAIMON, Y. SHIOMI, S. TAKAHASHI and E. SAITOH**, “Microscopic Formulation of Nonlinear Spin Current Induced by Spin Pumping,” *J. Magn. Magn. Mater.* **476**, 459–463 (2019).

**N. ITO, T. KIKKAWA, J. BARKER, D. HIROBE, Y. SHIOMI and E. SAITOH**, “Spin Seebeck Effect in Layered Ferromagnetic Insulators  $\text{CrSiTe}_3$  and  $\text{CrGeTe}_3$ ,” *Phys. Rev. B* **100**, 060402(R) (6 pages) (2019).

#### B-3) 総説, 著書

山本浩史, 「化学におけるカイラリティ」, *数理科学* **693(3)**, 66 (2021).

山本浩史, 「有機伝導体のナノ薄膜化とエレクトロニクス素材への展開」, *新東技報*, **38**, 83 (2020).

川楯義高, 関和弘, 柚木清司, 山本浩史, 「バンド幅とバンドフィリングの同時制御による分子性モット絶縁体の2次元超伝導相図」, *固体物理* **659**, 21 (2021).

須田理行, 山本浩史, 「分子モーターを用いた再構成可能スピン偏極デバイス」, *応用物理学会誌* **89(4)**, 203–207 (2020).

#### B-4) 招待講演 (\* 基調講演)

**H. M. YAMAMOTO**, “Chirality based spintronics,” 2020 International Seminar on China-Japan-Korea Frontier New Materials Collaborations, Shanghai (China) (Online), November 2020.\*

**M. SUDA**, “Generation and Manipulation of Spin-Polarized Current by Chiral Molecules,” CSJ Asian International Symposium, Noda (Japan), March 2020.

#### B-6) 受賞, 表彰

山本浩史, 永井科学技術財団学術賞 (2020).

#### B-7) 学会および社会的活動

##### 学協会役員等

物理学会領域7代表 (2019–2020).

分子科学会運営委員 (2018–), 幹事 (2020–), 顕彰委員長 (2020–).

##### 学会の組織委員等

MRM2019組織委員 (2018–2019).

MRM2021組織委員 (2020–2021).

##### 文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会 情報科学用有機材料第142委員会 運営委員 (2007–2020).

大学改革支援・学位授与機構専門委員 (2020–).

##### その他

Israel Science Foundation 審査委員 (2017–2019).

凝縮系科学賞審査委員 (2019–).

#### B-8) 大学での講義, 客員

東京大学教養学部総合文化研究科, 「物質基礎科学特殊講義I / 関連基礎科学特殊講義VIII」, 2020年12月.

#### B-10) 競争的資金

住友財団基礎科学研究助成, 「キラリティを有するスピン偏極電流による電気化学的不斉合成の実現」, 須田理行 (2019年–2020年).

科研費挑戦的研究(萌芽), 「キラル有機結晶における静的–動的キラリティ変換を用いたスピン流生成の開拓」, 広部大地 (2020年–2021年).

科研費基盤研究(A), 「有機強相関電子デバイスによる伝導性と磁性の制御」, 山本浩史 (2019年–2022年).

科学技術振興機構さきがけ研究「電子やイオンの能動的制御と反応」, 「スピン角運動量の能動的制御による革新的電気化学反応の創出」, 須田理行 (2019年–2022年).

科研費基盤研究(B), 「有機結晶表面への光キャリア注入と光誘起二次元超伝導の創出」, 須田理行 (2019年–2021年).

大幸財団自然科学系学術研究助成, 「キラル分子モーター修飾ナノ粒子を利用した高スピン偏極電流の生成と外場制御」, 須田理行 (2019年–2020年).

科研費挑戦的研究(萌芽), 「表面修飾ダイヤモンドにおける電界誘起超伝導の実現」, 須田理行 (2019年–2020年).

科研費新学術領域研究(研究領域提案型)(公募研究), 「キラル配位子修飾金属ナノ粒子ネットワークに基づく新奇スピントロニクス素子の創出」, 須田理行 (2019年–2020年).

科科研費研究活動スタート支援, 「カイラル化合物による電流–スピン流相互変換」, 廣部大地 (2018年–2019年).

学技術振興機構さきがけ研究「トポロジカル材料科学と革新的機能創出」, 「chiral-induced spin selectivityの幾何学的性質と分子スピン・光機能の探求」, 広部大地 (2020年–2023年).

### C) 研究活動の課題と展望

カイラリティによるスピンド生成は、近年益々注目されるようになってきている。どちらかと言うと化学分野で注目されている CISS のみならず、物性物理分野でも反転対称性を失った物質構造に基づく新たな物性発現が盛んになされており、両者の共通点と相違点を検討しながら実験を進めていく必要があると考えられる。本年の成果により、CISS がバルクの無機結晶において、線形応答領域でも観測されることを明らかにすることが出来たので、よりスピンド軌道相互作用の小さい有機分子でも同じような状況が実現できるのかどうか、さらに検証を進めて行きたい。同時に、様々な外場によるスピンドの制御や、詳細なメカニズムの解明など、より広い視点での展開を、共同研究によって実現していきたい。