

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 23 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540368

研究課題名（和文）ルテニウム 2 次元酸化物に電場・圧力で誘起される新奇量子現象

研究課題名（英文） Electric field and pressure induced novel quantum phenomena in two-dimensional oxides

研究代表者

中村 文彦（NAKAMURA, Fumihiko）

広島大学・大学院先端物質科学研究科・助教

研究者番号：40231477

研究成果の概要（和文）：

モット絶縁体を外場によって金属化し、その金属相に現れる新奇量子凝縮状態を探索することを目的とした。4d 電子系モット絶縁体 Ca_2RuO_4 に電場・圧力を加え金属化させる事に成功した。圧力下では、遍歴電子強磁性、超伝導が出現する。一方、この物質に室温で乾電池一個程度の電圧を加えると構造転移を伴って金属化、さらに電流を流し続けると金属状態が低温まで維持されることが分かった。

研究成果の概要（英文）：

Here we report that the Mott insulator Ca_2RuO_4 shows unique insulator-metal transition induced by applying pressure or a dry-battery level voltage at room temperature. Perhaps the most peculiar of the present findings is that the induced metal can be maintained to low temperature by a weak current. Moreover, we have observed the itinerant FM states as the ground state of the metallic states.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
2012 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：強相関電子系、超伝導、圧力効果、磁性、モット絶縁体、電場効果

1. 研究開始当初の背景

現在の固体物理の中で、“モット絶縁体”は重要かつ注目される課題のひとつである。それは、モット絶縁体を金属化したときには p 波超伝導、高温超伝導、巨大磁気抵抗効果、遍歴電子磁性などの新奇量子現象が多彩に現れ、その発現機構の統一的理解に注目が集まるからである。

これまで、モット絶縁体を金属化する方法として、“圧力”が主に用いられてきた。確かに、圧力は系を乱すことなく物質の内部自由度を制御する方法であり、圧力誘起の磁性や超伝導、そしてそれらの関係を調べるのに最も適した手法として固体物理の研究手段として広く利用されている。

一方、応用の面からは、これら強相関電子

系物質を利用することで、新奇な動作原理を持つ低電力動作のデバイス実現が期待される。例えば“モット転移”に伴う抵抗変化を利用した抵抗変化メモリーなどである。しかし、モット転移を誘起するには圧力を利用する方法が一般的であるが、高圧装置は大きく複雑で、それを利用したデバイスは実際上製作困難である。

これに対し、圧力に変わるモット転移の手段として電場に注目が集まる。電場を金属化の手段とできれば、モット転移近傍の新奇量子現象を電子デバイスに応用することが簡単に出来る。しかし、これまでに知られる電場効果の実験の多くは、それ自体が本質的な現象かどうか議論が収束していない。

<4d電子系モット絶縁体Ca₂RuO₄>

我々は、4d電子系のMott絶縁体Ca₂RuO₄に着目し、約15年にわたって研究を行ってきた。それは、この系はスピン軌道相互作用が強く、わずかな外場でモット転移すること。その金属相で遍歴電子強磁性、巨大磁気抵抗効果など新奇量子現象が多彩にあらわれるからである。この系の金属化は元素置換、温度、圧力で誘起できることが知られている。(F. Nakamura, *et al.*, *PRB* **65** (2002) 220402.) 本研究には最適な系である。

2. 研究の目的

我々は、モット絶縁体Ca₂RuO₄が示す新奇量子相転移について、以下の2つの観点から研究を行った。

I. モット絶縁体Ca₂RuO₄の圧力相図：

モット絶縁体Ca₂RuO₄を加圧すると強磁性金属相が出現するが、さらに加圧した場合、Sr₂RuO₄と同様に超伝導は現れるのか明らかにしたい。

II. Ca₂RuO₄の電場誘起金属化の可能性：

この物質の実用化を考えた場合、圧力にかかわる外場を探索する必要がある。電場の可能性について調べる。

3. 研究の方法

I. モット絶縁体Ca₂RuO₄の圧力相図：

15 GPaの静水圧、100 mKの低温、40 Tの強磁場を組み合わせた多重極端条件下で超伝導相を探索し、そのときのフェルミ面の観察を行う。そのために英国ケンブリッジ大、米国フロリダ強磁場施設と共同研究を行う。

英国ケンブリッジ大と共同で15 GPaの静水圧、100 mKの低温までの圧力実験を行った。ここで使用した装置は、1999~2000年に中村

がケンブリッジ大に客員研究員として滞在中共同開発したモアサナイト・アンビルセルを使用した。このセルはダイヤモンドよりも安価な人工ダイヤモンド(SiC)の単結晶を用いた高圧セルで約15 GPaまで発生でき、希釈冷凍機や断熱消磁冷凍機に簡単に取り付けることが出来る。

広島大学では、Ca₂RuO₄の単結晶を育成、微小サイズ(0.2 x 0.07 x 0.03 mm程度)に整形し金電極をスパッタ、さらに金線を取り付けた。これらをケンブリッジ大へ送りモアサナイトセルにセット15 GPaまで加圧実験を行った。この実験は困難を極め2000年に始めた実験は2010年に初めて成功した。

4. 研究成果

I. モット絶縁体Ca₂RuO₄の圧力相図：

①強磁性相の近傍で超伝導を発見

図1に約10 GPa加圧した試料で観測した超伝導の証拠を示した(交流磁化率と電気抵抗(2端子測定)の温度変化に折れ曲がりが見られ、それらは磁場の印加で消えている)。さらにこれらの結果を圧力相図にまとめた

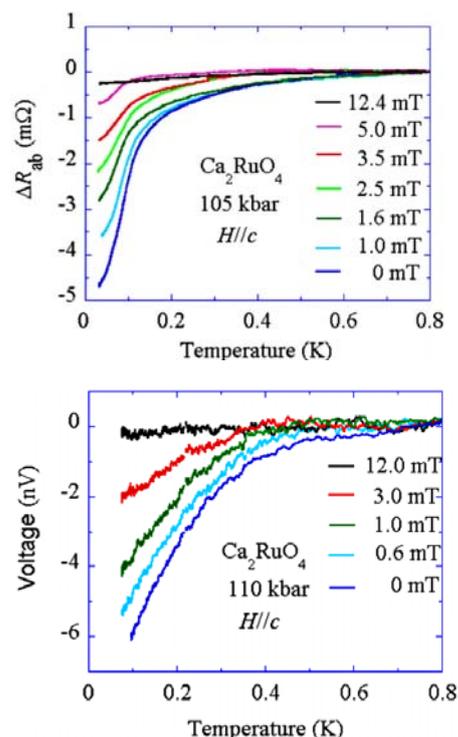


図1. 約10 GPa加圧させたCa₂RuO₄の(上)2端子電気抵抗と(下)交流磁化率の温度依存性。ゼロ磁場では特有の折れ曲がりが見られる。また、この折れ曲がり磁場で消失することから、これが超伝導相であることが分かった。

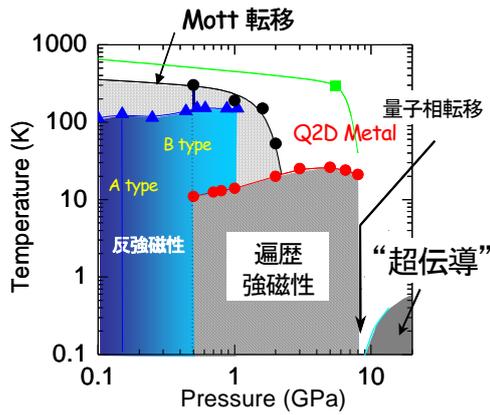


図 2 : モット絶縁体 Ca_2RuO_4 の圧力相図 : 強磁性が消失し, 超伝導が出現する. その最高転移温度は ~ 15 GPa で 0.4 K である.

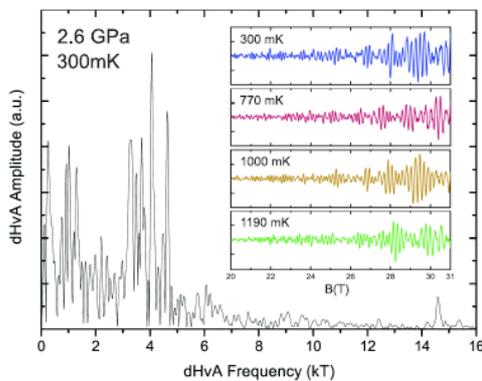


図 3 圧力下 Ca_2RuO_4 の量子振動 (シュブニコフ・ド・ハース振動) (上) $0\sim 18$ T, 83 mK, (下) $20\sim 31$ T, 300 mK

物が図 2 である. 強磁性が突然消失し超伝導相が出現している (最高超伝導転移温度は ~ 15 GPa で ~ 0.4 K). Sr_2RuO_4 が p 波超伝導であること, 超伝導相が強磁性相と接していることから, 圧力下 Ca_2RuO_4 の超伝導は p 波超伝導であると期待される.

②フェルミ面の観察

Sr_2RuO_4 や圧力下 Ca_2RuO_4 は共に 2D Fermi 金属であるが, 基底状態は遍歴強磁性, 超伝導と異なる. この原因を 2D Fermi 面の違いから明らかにするため, 米国フロリダ強磁場施設 31 T の強磁場と圧力を組合せた多重極端条件下で量子振動の実験を行った. 現在, 2.6 GPa の強磁性相で量子振動の観測に成功できた. そのときの 83 mK, $0\sim 18$ T, 300 mK $20\sim 31$ T の条件で測定されたシュブニコフ・ド・ハース振動を図 3 に示した. これらの結果から小さなフェルミ面を示す信号は観測されたが, Sr_2RuO_4 の γ バンドに対応する大きなフェルミ面は観測できなかった. これはこの物質の電子相関が極めて強いことを意味する.

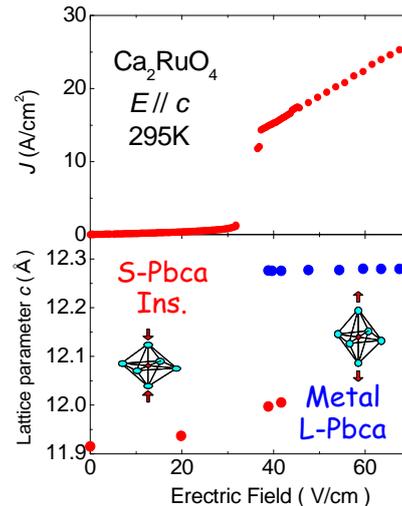


図 4 : Ca_2RuO_4 は モットギャップの $1/20$ 程度の低電場で構造相転移を伴い絶縁破壊する.

II. Ca_2RuO_4 の電場効果

① Ca_2RuO_4 の電場誘起金属化

Ca_2RuO_4 は室温で絶縁体であるが, これに室温で乾電池一個に満たない電圧 (約 0.8V) を印加すると金属化する. これを電場にする 40 V/cm でモットギャップの $1/20$ 程度である. このしきい電場は既知の絶縁破壊電場に比べても $1\sim 2$ 桁も小さい. 我々は, パルス電圧・電流による抵抗測定, 放射温度計による時間分解温度測定や試料のサイズ・形状依存性を調べ, この現象がジュール発熱や局所的金属化では説明できないことを明らかにした. また, しきい電場の温度依存性からこの金属化現象は局在した電荷のピンギングポテンシャルの熱揺らぎで説明できる. また, この相転移は圧力誘起の金属化と同様に, 1 次の構造相転移を伴っている.

この発見は, モット転移の新たな物理概念を提起するだけでなく, 低電力かつ高速で動作する Resistance RAM や結晶の大きな伸縮を利用した音波の発信器などの実用化が期待される.

②電場誘起金属状態を維持する方法

揮発性のスイッチング現象の場合, 電場で金属化した瞬間, 内部の電場が消失し絶縁体にもどってしまう. 金属状態を低温まで維持するにはどうするか?

平衡状態にある水は 0°C で凍ってしまうが, 非平衡定常状態にある川の水 (流水) は 0°C でも凍らない. 同様に, 電場で金属化した後の金属状態が電流を流し続けることで低温までその状態を維持できることを示した. さらに, その基底状態は圧力誘起金属相と同様に強磁性であることを実験的に示した.

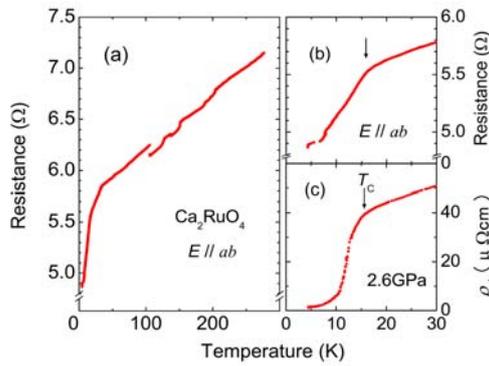


図5 電場で金属化後、一定電流を流し続けた非平衡定常状態にある金属状態を低温まで維持することに成功した。さらに、低温で強磁性相の存在を示唆する抵抗の急激な減少を観測した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計5件)

1. Control of the electronic states of Ca_2RuO_4 by uniaxial pressure, Ryo Ishikawa, Haruka Taniguchi, Swee Kuan Goh, Shingo Yonezawa, Fumihiko Nakamura, and Yoshiteru Maeno *Journal of Physics: Conference Series* 400 (2012) 022036. (査読有)
2. Charge stripe order near the surface of 12-percent doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, H.-H. Wu, M. Buchholz, C. Trabant, C. F. Chang, A. C. Komarek, F. Heigl, M. v. Zimmermann, M. Cwik, F. Nakamura, M. Braden, and C. Schüßler-Langeheine *Nature Communications* 3: 1023 doi: 10.1038/ncomms2019 (2012). (査読有)
3. Interplay between crystal electric field and magnetic exchange anisotropies in the heavy-fermion anti-ferromagnet YbRhSb under pressure, K. Umeo, H. Yamane, H. Kubo, Y. Muro, F. Nakamura, T. Suzuki, T. Takabatake, K. Sengupta, M.K.Forthaus, and M. M. Abd-Elmeguid, *Physical Review B* 85, (2012) 024412. (査読有)
4. Pressure induced novel-phenomena in Mott insulator Ca_2RuO_4 , Yohei Yamauchi, Fumihiko Nakamura, Mariko Sakaki, Tetsuo Takemoto, Takashi Suzuki, Patricia L Alireza, and Yoshiteru Maeno, *Physica C* 470 (2010) S740-S741. (査読有)
5. Evidence of superconductivity on the border of quasi-2D ferromagnetism in Ca_2RuO_4 at high pressure, Patricia Lebre Alireza, Fumihiko Nakamura, Swee Kuan Goh, Yoshiteru Maeno, Satoru Nakatsuji, Yuen Ting Chris Ko, Michael

Sutherland, Stephen Julian and Gilbert George Lonzarich, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 22 (2010) 052202. (査読有)

[学会発表] (計8件)

1. 中村文彦, 他4名, モット絶縁体 Ca_2RuO_4 の金属化はなぜ起こるのか?, 日本物理学会 第68回年次大会, 2013年03月27日, 広島大学(東広島市)
2. 山中悠也, 中村文彦, 他3名, Ca_2RuO_4 の電場誘起モット転移と電流で維持された金属状態, 日本物理学会 第68回年次大会, 2013年03月29日, 広島大学(東広島市)
3. 谷口晴香, 中村文彦, 他5名, モット絶縁体 Ca_2RuO_4 への面内一軸性圧力効果, 日本物理学会 第68回年次大会, 2013年03月27日, 広島大学(東広島市)
4. 中村文彦, 他5名, モット絶縁体 Ca_2RuO_4 の電場誘起金属現象はなぜ起こるのか?, 日本物理学会 67回年次大会, 2012年3月25日 関西学院大学(神戸市)
5. 谷口晴香, 中村文彦, 他3名, 一軸性圧力による Sr_2RuO_4 と Ca_2RuO_4 の基底状態の変化, 日本物理学会 67回年次大会, 2012年3月27日, 関西学院大学(神戸市)
6. 中村文彦, 他4名, モット絶縁体 Ca_2RuO_4 の電場誘起金属化, 日本物理学会 2011年秋季大会, 2011年9月22日, 富山大学(富山市)
7. 木村有作, 中村文彦, 他2名, パルス電場によるモット絶縁体 Ca_2RuO_4 の金属化, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月24日, 大阪府立大(堺市)
8. 坂本麻里子, 中村文彦, 他5名, 軟X線分光から見たモット絶縁体 Ca_2RuO_4 の電場誘起相転移, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月24日, 大阪府立大(堺市)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

中村 文彦 (NAKAMURA, Fumihiko)
 広島大学・大学院先端物質科学研究科・助教
 研究者番号: 40231477

(2)研究分担者

()
 研究者番号:

(3)連携研究者

()
 研究者番号: