

平成 21 年 5 月 29 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19740212
 研究課題名 (和文) ビスマス系遷移金属酸化物の強相関絶縁相における誘電特性と絶縁体金属転移の研究
 研究課題名 (英文) Dielectric Properties and Insulator-Metal Transition in Strongly Correlated Bi-based Oxides
 研究代表者
 真木 一 (MAKI MAKOTO)
 佐賀大学・理工学部・准教授
 研究者番号：10359945

研究成果の概要：遷移金属酸化物の絶縁体-金属転移は、新奇な物性を生み出す舞台としてそのメカニズムが注目される。本研究では、複素誘電率を用いてビスマス系酸化物の電気伝導性が発達する様子に知見を求めた。その結果、酸化物とコバルト酸化物の双方において、2次元面の電荷キャリアが、面間方向には誘電分極をもたらすことを明らかにした。この現象は異方的で段階的な伝導度の発達を意味している。一方で、層間の酸素などが伝導性や誘電性に影響をもたらすという事実も確認した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 19 年度	3,000,000	0	3,000,000
平成 20 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	150,000	3,650,000

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、物性実験、誘電体物性、自己組織化

1. 研究開始当初の背景

銅酸化物における高温超伝導研究では、擬ギャップやストライプ秩序、超伝導不均一といった現象が、電子の自己組織化と関係付けられて議論されてきた。なかでも母物質絶縁体が遍歴性を帯びる過程においては、運動量空間の一部が金属化した絶縁体(ノーダルメタル)や円弧型フェルミ面(フェルミアーク)などの新概念が提唱され、非従来型の超伝導発現機構との関係解明に向けた研究に興味もたれてきた。

一般に遷移金属酸化物では、狭い d 電子バンドで遮蔽されずに残る電子間相互作用と、

d 軌道の部分占有に由来するスピン角運動量が新奇な物性をもたらすと考えられる。ただ、キャリアは化学的手法(元素置換や酸素量調節)によって注入されており、物質中の化学的圧力や不純物による局在効果などの影響も無視できない。従って、強相関電子系の絶縁体-金属(モット)転移の本質と、その延長に存在する新奇物性の機構を理解するためには、混晶系に不可避なランダムネスの影響なども含めて、キャリアのドーピングに伴う電気的性質の推移を正しく認識する必要があると考えられる。

2. 研究の目的

そこで本研究では、遷移金属酸化物の絶縁体-金属転移近傍における電子状態の変化のプロブとして、低周波誘電率に着目した。複素誘電率の測定からは、伝導性と誘電性(局在化傾向)の双方の情報が得られる。本研究では、ビスマス系銅酸化物とビスマス系コバルト酸化物を選び、誘電率を通して、絶縁体-金属転移近傍での誘電カタストロフィの実態、直流電気伝導度との関係、電気伝導性の発達過程での異方性(次元性)、元素置換に伴う誘電緩和の有無、さらには電荷秩序などエキゾチックな物性の出現を反映した誘電特性の有無などの情報を求めることにした。これらの知見から、従来型バンド半導体における絶縁体-金属転移と比したモット転移の特徴や、強相関効果の本質、ランダムネスの影響などを明らかにすることが目的である。

3. 研究の方法

測定用試料として、絶縁体組成の銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{RECu}_2\text{O}_8$ (RE:希土類元素) 単結晶と、ミスフィット構造をもつコバルト酸化物 $[\text{Bi}_2\text{Ca}_2\text{O}_4]_q\text{CoO}_2$ 単結晶を、いずれもフラックス法により作製した。前者においては、誘電特性における元素置換効果を調べるため RE = Dy, Y, Er の試料を準備した。また、キャリア量依存性を調べるため、アニール処理により含有酸素量の調節を行った。複素誘電率の測定は LCR メーターを用いて 20 Hz から 2 MHz までの周波数領域で実施した。測定温度範囲は 5K から室温までである。

4. 研究成果

(1) 図 1 は、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{YCu}_2\text{O}_8$ 単結晶における CuO_2 面間方向の誘電率(実部)の温度依存性である。200 K を超える温度 T_M から誘電率の値が急激に増大している様子が判る。

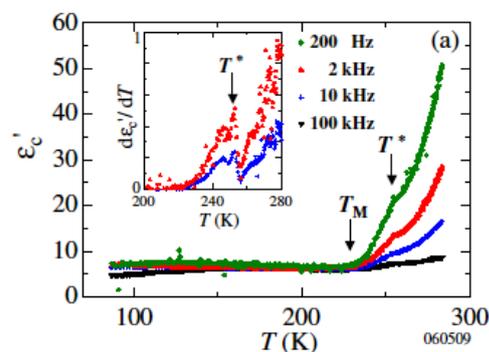


図 1 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{YCu}_2\text{O}_8$ 単結晶の面間誘電率

T_M 以上の温度では、誘電スペクトルが周波数のべき乗に従うことから、キャリアであるホールのホッピングが生じていると判断できた。このことは、また同時に、200 K 超の

温度までは面間方向にキャリア移動が起こらないことを意味している。興味深いことに、アレニウス型の温度依存性をもつ直流伝導度は、 T_M を境に異なる活性化エネルギーをもつ。申請者は、2 種類の活性化エネルギーが、それぞれ CuO_2 面内、面間における値に対応することを指摘し、図 1 の結果は、 T_M 以下の温度でキャリアの動きが CuO_2 面内に制限されていることの反映であると考えた。

そこで、こうした振舞いの RE 依存性を調べたところ、多少の試料依存性はあるものの、RE = Dy, Y, Er の試料の全てで、殆ど同様の誘電特性が観測できた。この事実は、この誘電現象が $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{RECu}_2\text{O}_8$ に本質的であることを示している。一方で、含有酸素量を増やした試料では、低周波側に誘電緩和の成分が重畳し、結果的に温度依存性にも異なる(低温から緩やかに誘電率が上昇する)振舞いが見られた。これは BiO 間に位置する過剰酸素に起因する分極成分と考えている。

以上の実験結果は、ビスマス系銅酸化物が遍歴性を獲得する過程において、 CuO_2 面間方向の変化が面内に追従する形で起こること、つまり絶縁体-金属転移が 2 次元的性質をもつことを示唆している。高温超伝導の発見当初、 La_2CuO_4 における誘電カタストロフィが 2 次元的に生じるとする主張があったが、本研究の結果は、その主張との整合性を感じさせる。引き続き CuO_2 面内方向の誘電率測定を進め、この異方的な振る舞いが強相関電子系特有の現象であるか否かを明らかにする予定である。

(2) コバルト酸化物 $[\text{Bi}_2\text{Ca}_2\text{O}_4]_q\text{CoO}_2$ 単結晶における CoO_2 面間方向の複素誘電率の周波

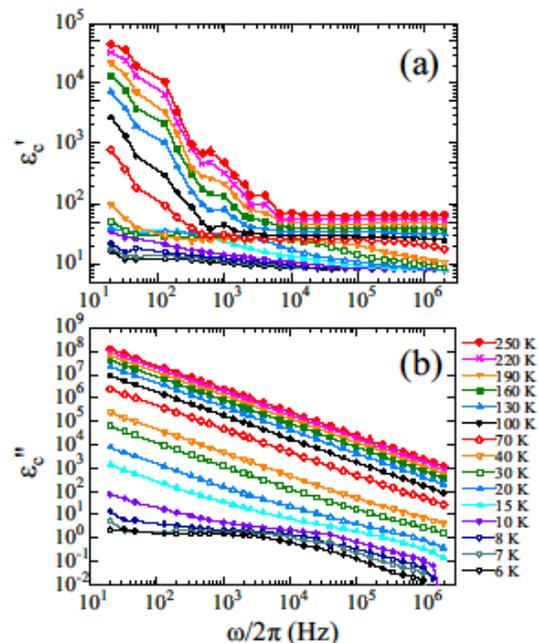


図 2 $[\text{Bi}_2\text{Ca}_2\text{O}_4]_q\text{CoO}_2$ 単結晶の面間誘電率

数依存性を図2に示す(実部(a)、虚部(b))。実部(a)を見ると、高周波側で誘電率の値が増大し、250 Kでは 10^5 にも達する巨大な値をもつ様子が見取れる。この誘電スペクトルは、通常の緩和過程に見られるコール・コール型では記述されず、さらに興味深いことに、印加交流電場の実効値を大きくすると消失し負の値に転じる(図3)。この現象は、

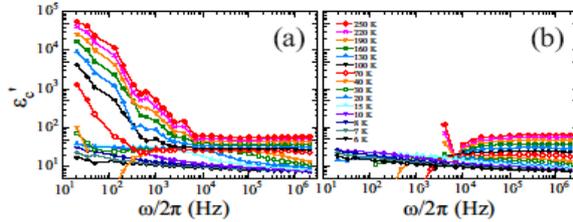


図3 面間誘電率の印加電場依存性
(a) 20V_{rms}/mm, (b) 200V_{rms}/mm

大きな電場の下でキャリアが動けるようになり、遮蔽効果が生じたものと解釈できる。つまり、低周波領域の誘電率増大はキャリアの分極によるものと判断できる。

図2において、低周波での誘電率増大は40–70 K程度の温度以上で現れるが、実はこの温度は、CoO₂面内の伝導現象に変化が見られる温度に対応している。図4(a)に、CoO₂面内方向の直流電気抵抗率の温度依存性を示す。全測定温度領域で半導体的な振舞いが見られるが、(b)、(c)に示すように、約63 K (=T*)の温度を境に、低温側ではバリアブル・レンジ・ホッピング的な伝導が、高温側では熱活性的な伝導が起こっている。つまり、

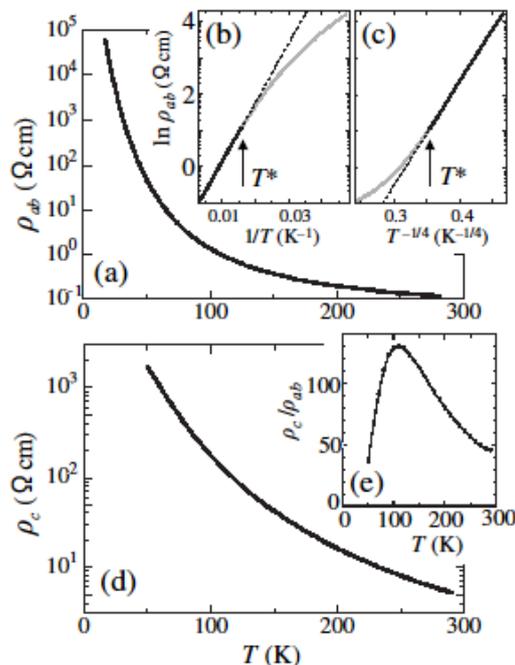


図4 [Bi₂Ca₂O₄]_qCoO₂の電気抵抗率

図2の結果は、T*で熱活性的になった面内のキャリアが面間方向に誘電分極を形成したことを示唆している。コバルト酸化物においても、電気伝導の発達が発方的であることは非常に興味深い。

面内に比して、面間方向の直流電気抵抗率には顕著な温度依存性が見られないため(図4(d))、結果的に、抵抗率の異方性には温度変化が観測される(図4(e))。こうした温度依存性は、強相関電子系の研究において、キャリアの散乱機構が面内と面間で異なる異常な現象として議論されることも多い。一方、誘電率の虚部(図2(b))から求められる直流伝導の成分は、図4(d)で測定された値より1-2桁ほど小さい。これは、測定される伝導度が駆動力に依存することを意味している。実際、誘電率から求める伝導度は印加交流電場の実効値に依存する。図4に示した直流測定では、大きな駆動力のため、伝導度が大きく観測されたと思われる。この結果は、(駆動力で乗り越えられる程度の)ポテンシャルの存在を示唆するものであり、面間方向の電気伝導機構を再考する必要を感じさせる。こうした結果が、ビスマス系酸化物以外の層状物質でも見られるか否か、今後研究を継続し、明らかにしていきたい。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計2件)

①真木一、町田晃一、森義志、西寄照和、小林典男、In-plane conduction and c-axis polarization in the misfit-layered oxide [Bi₂Ca₂O₄]_qCoO₂, Physical Review B, Vol.78, 073101-1-3, 2008年、査読あり

②真木一、中尾俊一、町田晃一、白石雅史、鄭旭光、内藤智之、岩崎秀夫、Dielectric Properties and Carrier Dynamics in Bi₂Sr₂YCu₂O₈, Journal of the Physical Society of Japan, Vol.76, 044711-1-6, 2007年、査読あり

[学会発表] (計6件)

①由布滋之、森義志、町田晃一、真木一、絶縁体金属転移近傍のBi₂212における面間誘電率測定Ⅲ、日本物理学会2008年秋季大会、2008年9月、岩手大学

②森義志、町田晃一、真木一、西寄照和、小林典男、層状Co酸化物[Bi₂Ca₂O₄]_qCoO₂における面間誘電特性、日本物理学会2008年秋季大会、2008年9月、岩手大学

③町田晃一、秀南正史、真木一、層状Co酸化物Bi₂M₂Co₂O_y (M=Ca,Sr)の単結晶育成とその電気的特性、第113回日本物理学会九州支部例会、2007年12月、大分大学

④栗原康介、町田晃一、由布滋之、真木一、絶縁体組成 Bi_{2212} における電気的特性のアニール依存性、第 113 回日本物理学会九州支部例会、2007 年 12 月、大分大学

⑤森義志、由布滋之、町田晃一、真木一、鄭旭光、希薄ドープ域 Bi_{2212} の異方的なホッピング伝導、第 113 回日本物理学会九州支部例会、2007 年 12 月、大分大学

⑥由布滋之、真木一、町田晃一、中尾俊一、鄭旭光、絶縁体金属転移近傍の Bi_{2212} における面間誘電率測定 II、日本物理学会第 62 回年次大会、2007 年 9 月、北海道大学

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://sc.phys.saga-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

真木 一 (MAKI MAKOTO)

佐賀大学・理工学部・准教授

研究者番号：10359945