

平成 22 年 5 月 20 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2009

課題番号：19540375

研究課題名 (和文) 電荷整列系におけるメモリー効果の理論的研究

研究課題名 (英文) Theoretical Study of the Memory Effects in Charge Ordered Systems

研究代表者

古川 信夫 (FURUKAWA NOBUO)

青山学院大学・理工学部・教授

研究者番号：00238669

研究成果の概要 (和文)：

電荷整列系における非線形伝導現象について、特にメモリー効果の解明を目的として研究を行った。このような伝導現象は、様々な長さスケールをもつ物理現象によって支配されるため、本研究ではミクロスケールからマクロスケールまでのさまざまな有効模型を相補的に取り扱い、これらの系に共通する非線形伝導現象について多くの知見を得た。

研究成果の概要 (英文)：

We have investigated non-linear conducting phenomena in charge-ordered systems with focuses on clarifications of the mechanisms of the memory effects. Since these phenomena are governed by physical processes which possess various length-scales, we have applied various effective models which have microscopic to macroscopic lengthscale in complimentary manners. We have obtained knowledges for the non-linear conductivity phenomena common in these systems.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
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：物性理論 メモリー効果 電荷整列 電荷密度波 摩擦 非線形伝導

1. 研究開始当初の背景

従来の半導体デバイスを凌駕するものとして、強相関電子系材料の研究開発が近年盛んに行われている。特に金属絶縁体転移近傍における抵抗率等の巨大応答、非線形応答は

応用のみならず基礎物理学としても興味深い現象を数多く含む。

(1) 研究開始当初、有機導体 θ -ET 塩、 α -ET 塩などではサイリスタ型の非線形電流-電圧特性や圧力下でスイッチングに履歴が生じるメモリー効果が観測された。その他、擬

1次元系の(DMe-DCNQI)₂Ag など電荷整列の見られる有機導体において、幅広く誘電非線形伝導やメモリ効果等が観測されている。

これらの系の非線形伝導は、伝導性の異なる複数の電荷秩序が競合して起こる可能性が指摘されていたものの、有機系の電荷秩序が具体的にどのように共存または競合し、非線形伝導やその履歴を生み出しているかは全くわかっていなかった。

(2) 一方、(Pr,Ca)MnO₃ などのペロフスカイト型マンガン酸化物においては、古くから巨大磁気抵抗効果がよく知られている。これは、磁場による電荷整列絶縁相-強磁性金属相間のスイッチング現象である。このスイッチングは、電場やX線、光パルスによっても誘起され、異常伝導がおけると報告されている。

この異常伝導の起源は強磁性金属相と電荷整列絶縁体相が空間的に競合することにあると考えられている。ただし、単に2相間の競合のみを考えただけでは、熱力学的に相分離が起きるだけであり、微弱な外場によってスイッチングを起こすことは困難である。しかし、系に不均一が存在すると考えると、絶縁のもっとも弱い部分のみを破壊することにより、微弱な外場でもスイッチングが可能と指摘されている。

(3) 秩序変数の動的な振舞いについて詳しく調べられている電荷整列系としては、電荷密度波(CDW)系に遡ることができる。1980年代を中心に、K_{0.3}MoO₃ や TaS₃ などにおける非線形伝導やメモリ効果の研究が活発に行われた。非線形伝導のマクロな機構に関しては、CDW のピン止めとスライディング運動の描像をもとに、およそ解明されたと考えられている。その基本には、秩序変数の位相の運動が伝導の本質を担うというマクロな考え方がある。不純物でピン止めされた密度波の位相は、臨界値 ET 以上の電場を与えるとコヒーレントに時間発展し密度波は秩序を保ったままスライドする。

しかし、実際は、電気伝導には CDW のみならず CDW に凝縮していない自由電子からの寄与があるとされている。たとえば、K_{0.3}MoO₃ の CDW が低温で示す ET 近傍の伝導度のジャンプ (スイッチング現象) および周辺での履歴現象 (メモリ効果) が観測されているが、この現象は自由電子を引きずって運動する CDW モードと、独立な CDW モードとから成る bistability の存在に起因する。

したがってこれらの系の非線形伝導をきちんと理解するためには、これら2成分の相関をミクロなスケールで解明することが鍵となる。しかし、そのような取り扱いを行った理論は研究開始当初は存在しなかった。

一方、CDW 系で最近注目を集めているの

がパルス中記憶効果である。これは、加えたパルス中が記憶される現象であり、K_{0.3}MoO₃ などで報告された。その起源は、マクロなモデル計算によって、CDW の強いピン止め効果にあることが示唆された。しかしその後、弱いピン止め系においてもこの効果が観測されたため、上記の2成分系の相関を考慮したミクロな理論が必要と考えられている。

なお、この特異な記憶現象は、非平衡系に見られる Self-Organized Criticality (自己組織化) という物理量のべき乗則分布のもととなる重要な概念につながっていることが指摘される。

2. 研究の目的

前項でふれたように、有機導体・マンガン系・CDW 系は、ミクロなレベルでは全く性質の異なるものと考えられてきたが、一方でマクロなレベルで非線形伝導とその履歴現象に関する共通の物理概念が存在することは非常に興味深い。具体的には、複数の準安定状態の存在と競合、およびそれに由来する秩序変数構造の自己組織化や熱力学的 multistability などである。

本研究は、メモリ効果の理解のために、様々な長さスケールの階層における各系のモデルを相補的に取り扱い、異なる長さスケールにおける様々な物理を明らかにすることを目的とする。得られた結果を総合することによって、電荷整列系を統一的に俯瞰し、メモリ効果の起源に関する新奇な知見を得ることを目指す。

具体的には、(1) 複数相の存在と競合 (ミクロ)、(2) 外場下における秩序変数・ドメインの動的ふるまい (メゾ)、(3) ドメイン構造の自己組織化的な形状形成 (マクロ)、熱力学的 multistability とそれらの間のポテンシャル障壁などである。

3. 研究の方法

電荷整列系 (電荷秩序系・CDW 系) におけるスイッチング現象、メモリ効果の機構を様々な角度から解明し、メモリ効果の制御・物質設計をめざす。具体的には以下のような階層構造を考える。各階層で適切なモデルをたて、結果を相互にフィードバックすることで理解を深める。

(1) ミクロスケール (~数サイト程度) における電荷整列。各対象物質に固有の条件を考慮し、格子上のミクロな量子力学的電子モデルを導入する。秩序変数・自由電子の振舞いおよび相の競合・共存を調べる。マクロなモデル (適正な秩序変数モデル) を導出し、そのパラメータを算出する。既存のマクロなモ

デルの正当性・不備を明らかにする（ここでは異なる系の比較は行わない）。

(2) メゾスケール（～ドメイン1つ程度）における秩序変数のダイナミクス。外場（電場や光など）に対する応答とピン止めなどの（非平衡）ダイナミクスを調べる。

(3) マクروسケールにおけるドメインの振舞い。特に本質的不均一性と自己組織化の可能性を、準安定状態の熱力学によって調べる。電荷整列系に共通のマクロな（古典的・統計力学的）物理描像を抽出する。以上を通じて対象物質間および非電荷整列型絶縁体との相違点を明らかにし、応用の可能性を探る。

4. 研究成果

(1) ミクروسケールにおける電荷整列の融解およびその制御について

① 二次元異方的三角格子上の強相関電子系を tV 模型によって解析した。電子間クーロン相互作用 V の異方性 (V'/V) のもたらすフラストレーション効果の大小が系の電子状態を決定する。 $V'=V$ の場合について、様々なフィリングにおける伝導電子のスペクトルを明らかにし、pinball 的な状態密度を得た。 $1/2$ -filling では、ある1方向の異方的な相互作用 V' が大きい時 ($V' > V$) 電荷は V' の方向で隣に並ぶのを避け、 V 方向のストライプ状の電荷秩序絶縁状態が形成される。この状態に電子あるいはホールをドープすると、ストライプに平行な伝搬に加え、電荷が二つの分数電荷 $e/2$ に分かれて V' 方向に伝搬する特異な状態が出現することを明らかにした。

② 2次元異方的三角格子において、電荷のフラストレーション効果に起因する異常電子状態について研究を行った。特に電荷が局所的に誘電性をもち、これが空間全体にわたってコヒーレンスを獲得する特異な状態を量子ゆらぎと熱ゆらぎの二つの効果のもとで調べ、それぞれについて新しい電子状態（分数電荷相と非局所擬秩序相）を理論的に提案した。

③ 二次元異方的三角格子 α -ET2I3 は電荷秩序相近傍に位置する電子間の相互作用の強い系である。この系において近年話題になっているディラックコーン型のエネルギー分散が出現する条件についても明らかにした。本研究ではサイト間の相互作用を平均場的に導入し、解析的および数値的に電子状態の幾何学的な性質を調べた。その結果、この系においてもディラックコーンの安定性が幾何学的に保証されていることが明らかに

なった。

④ 1次元の局在スピンの電荷秩序系とカップルした系において、電子系の基底状態の磁気的なセクターに強い擬縮退が存在することを密度行列繰りこみ群を用いて示した。この擬縮退を利用すると、外場（磁場）の印加に敏感な電子状態が期待できる。実際、フタロシアニン錯体 TPP[FePc(CN)₂]₂ は巨大な負の磁気抵抗を持つことが知られている。電荷秩序と磁性が絡むことによって、特徴的電子状態が得られるため、メモリ効果への応用も期待できる。

⑤ フラストレートした格子上の二重交換模型をモンテカルロ法によって数値的に調べた。フラストレーションの効果により、強磁性-常磁性転移は電荷不均一が伴う不連続転移であることがわかった。これを用いると、磁気的性質によって系の電荷分布をコントロールすることができ、新たなメモリ効果の発現につながると考えられる。

(2) メゾスケールにおける秩序変数ダイナミクス

マルチフェロイクスを示すマンガン酸化物系および鉄酸化物における誘電性ドメイン壁の構造およびダイナミクスを、スピンと電荷の自由度が強く結合したモデルをもちいて研究した。計算結果で得られた、複数の秩序変数間の複合的な結合を、さまざまな外場に対する応答の実験データと比較し、議論した。

(3) 電気伝導度とメモリー効果について

① 直流電気伝導度に現れるメモリー効果は、広義の摩擦現象の一種と見ることができ、低電場下での絶縁状態は、駆動力が最大静摩擦力より小さく静止している状態であり、ある閾値以上の駆動力をかけることにより電荷は運動を始め、静摩擦力より小さな動摩擦力を受けようになり電気伝導度は急激に上昇する。一度、運動を始めると、動摩擦力を受け続けるので、駆動力が最初の閾値以下に下がっても運動を続ける。この観点から課題の機構解明のため、界面及び固体内摩擦系の研究を行った。

② 直流電気伝導度に現れるメモリー効果を伴う非線形電気伝導を研究するため、ミクروسコピックな格子気体モデルに基づいた数値計算を行い、有限電場下の電荷秩序系のメゾスケールダイナミクスを導出した。計算手法として、新規開発した格子気体モデルに基づく非平衡拡張モンテカルロ法を用いた。

この方法ではマルコフ過程を越えた過程をモンテカルロ法により扱う事が可能である。この非線形伝導を広義の摩擦現象の一つとみなし、より広い立場からの研究を行い、結晶軸に対する外場の方向依存性等を明らかにした。これにより、非線形電気伝導を説明することはできたが、実験的に観測されているスイッチング的挙動を再現するには至らなかった。また、この問題と密接な関係がある摩擦の問題を数値的・理論的に調べ、特異な輸送現象を見いだした。

③ θ -ET 塩における非線形伝導現象を現象論的にあらわすものとして、局所電場によって秩序変数が影響を受けた結果として電気伝導率が変調されるマクロスコピックモデルをたて、これらの空間分布を自己無撞着に解くことによってマクロな I-V 特性を求めた。本質的不均一性と非線形伝導性の関連について議論した。

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 7 件)

Yukitoshi Motome and Nobuo Furukawa, Phase competition in the double-exchange model on the frustrated pyrochlore lattice, Phys. Rev. Lett. 104 (2010) 106407/1-4 (査読有).

N. Furukawa, S. Miyahara and C. Hotta, Frustrated Metals on a Triangular Lattice, Int. J. Mod. Phys. C **20** (2009) 1477-1484 (査読有).

N. Furukawa (6 名中 2 番目), Composite domain walls in a multiferroic perovskite ferrite, Nature Mat. **8** (2009) 558-562 (査読有).

M. Miyazaki, C. Hotta, S. Miyahara, K. Matsuda, and N. Furukawa, Variational Monte Carlo Study of a Spinless Fermion t-V Model on a Triangular Lattice: Formation of a Pinball Liquid, J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 014707/1-7 (査読有).

C. Hotta, Dimensional Tuning of Electronic States under Strong and Frustrated Interactions Physical Review Letters **100** (2008) 186404/1-4 (査読有).

H. Yoshino and H. Matsukawa, Non-linear rheology of layered systems - a phase model approach, Proc. of Int. Conf. on Science of Friction (2007) 1-10 (査読有).

C. Hotta and N. Furukawa, Filling dependence of a new type of charge ordered liquid on a triangular lattice system, J. Phys. Cond. Mat. **19** (2007) 145242/1-5 (査読有).

[学会発表] (計 20 件)

松川 宏, ナノ界面における摩擦・潤滑現象、摩擦の科学 国内会議、2009 年 12 月 5 日、名古屋国際会議場

N. Furukawa, Pinball State in the strong repulsion limit of the spinless fermion model on a triangular lattice, International Conference of Magnetism, 2009 年 7 月 30 日、Karlsruhe, Germany

伊藤英俊, 堀田知佐, 久保健, ダイマーモット絶縁体と電荷秩序絶縁体, 日本物理学会第 64 回年次大会、2009 年 3 月 30 日、立教大学

堀田知佐, π d 系再考、日本物理学会第 64 回年次大会、2009 年 3 月 27 日、立教大学

堀田知佐, 古川信夫, F. Pollmann, K. Penc, 三角格子上の電荷のフラストレーション：誘電性と金属性、特定領域研究第三回トピカルミーティング「フラストレーションとスピン液体」、2008 年 12 月 23 日、神戸大学

堀田知佐, DMRGにおける並進対称性の破れ、京都大学基礎物理学研究所研究会「密度行列繰り込み群法を用いた物性研究の新展開」、2008 年 12 月 17 日、京都大学基礎物理学研究所

松川宏, マクロスケールから巨大スケールの摩擦：紙、岩石から地震へ、第 28 回表面科学学術講演会、2008 年 11 月 13 日、早稲田大学

堀田知佐, 清田哲広, 古川信夫, 異方的三角格子イジングモデルにおけるノンローカルオーダー、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 22 日、近畿大学

C. Hotta, F. Pollmann, N. Furukawa, In between one and two dimension, International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2008, 2008 年 9 月 10 日、Braunschweig, Germany

松川宏, 摩擦の理論、日本応用物理学会シンポジウム「トライボロジー研究の最前線 - 摩擦の物理と応用-」、2008 年 9 月 2 日、中部大学

堀田知佐、異方的三角格子の強結合電子系に見られる 1+1 次元性、ISSP ワークショップ：分子性導体の電荷揺らぎと非線形伝導、2008 年 5 月 21 日、東京大学物性研究所

堀田 知佐, 小林 晃人, 浅野 建一、ディラックポイントと電荷不均化・電荷秩序、日本物理学会 第 62 回年次大会、2008 年 3 月 24 日、近畿大学

堀田 知佐、異方的三角格子系における電荷の強相関物性、「強相関電子物性 理論研究会」、2008 年 2 月 13 日、箱根

堀田 知佐、 α 型有機結晶のコンタクトポイントの安定性に対する相互作用の効果、基研研究会「分子性ゼロギャップ物質の新物性」、2007 年 12 月 4 日、京都大学基礎物理学研究所

C. Hotta、Dimensional tuning of electronic states under strongly frustrated interactions、Yukawa International Seminar 2007 (YKIS2007)、2007 年 11 月 29 日、京都大学基礎物理学研究所

C. Hotta、Exotic states in organic triangular lattice system、The 7th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and ferromagnets、2007 年 9 月 26 日、Peñiscola (Spain)

宮崎 真長, 堀田 知佐, 宮原 慎, 松田 圭介, 古川 信夫、変分モンテカルロ法による三角格子 t - V スピンレスフェルミオン模型の密度波状態、日本物理学会 第 62 回年次大会、2007 年 9 月 21 日、北海道大学

堀田 知佐, Frank Pollmann、異方的三角格子におけるfractional charge、日本物理学会 第 62 回年次大会、2007 年 9 月 21 日、北海道大学

Hiroshi Matsukawa、Dependence of maximum static friction on waiting-time using dynamics of Vortices in superconductors、International Conference on Science of Friction、2007 年 9 月 13 日、Irago, Aichi

C. Hotta、Geometrically frustrated charges on the anisotropic triangular lattices、School and Workshop on Highly Frustrated Magnets and Strongly Correlated Systems、2007 年 8 月 8 日、Trieste (Italy)

〔図書〕 (計 2 件)

①松川 宏 (他多数)、丸善株式会社、表面物性工学ハンドブック第 2 版、2007、1064 ページ

②日高芳樹・甲斐昌一／松川宏、培風館、液晶のパターンダイナミクス／滑りと摩擦の科学、2009、228 ページ

6. 研究組織

(1) 研究代表者

古川 信夫 (FURUKAWA NOBUO)
青山学院大学・理工学部・教授
研究者番号：00238669

(2) 研究分担者

松川 宏 (MATSUKAWA HIROSHI)
青山学院大学・理工学部・教授
研究者番号：20192750

堀田 知佐 (HOTTA CHISA)
京都産業大学・理学部・講師
研究者番号：50372909