

令和 4 年 4 月 19 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03710

研究課題名(和文) ナローギャップ半導体鉄シリサイドの超強磁場物性研究による遍歴磁性発現機構の解明

研究課題名(英文) Elucidation of itinerant magnetism in narrow-gap semiconductor FeSi by investigating ultra-high-field properties

研究代表者

中村 大輔 (Nakamura, Daisuke)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員

研究者番号：70613628

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：強相関半導体鉄シリサイド(FeSi)の強磁場輸送特性を解明し、エネルギーバンド構造の磁場発展に関する知見を得た。FeSiではバンドギャップエネルギーが数十meVと小さいために、ゼーマンエネルギーによってバンド構造に巨大な変化が現れることが期待できる。そのため、東京大学物性研究所が保有する電磁濃縮超強磁場発生装置を用いて、500テスラに至る超強磁場領域までの高周波電気伝導度測定を行った。270テスラにおいてバンドギャップが閉じることによる磁場誘起金属転移が生じることを明らかにした。さらに80K以下の低温ではバンドギャップ内の準粒子が示すホッピング運動に関連すると見られる異常が現れることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強相関半導体FeSiにおいて超強磁場により誘起される電気伝導物性の変化を詳細に調査した。100テスラを大きく超える超強磁場領域でのこのような研究は発生磁場の信頼性および物性計測の再現性などの観点から、過去にほとんど例を見ないものである。そのため本研究は当該分野の物性計測技術の進展を顕著に示すものであり、今後多様な強相関半導体研究への展開が期待できる。例えば、伝導電子と遍歴電子との混成による近藤効果が生じ、極低温でトポロジカル絶縁体としての性質を示す近藤半導体SmB6に関して、現在研究が進行中である。

研究成果の概要(英文)：The evolution of energy band structure in strongly correlated semiconductor FeSi is investigated by the high magnetic field transport properties. Because the band gap energy of FeSi is less than 100 meV, the energy band structure could be drastically modified by the Zeeman energy. In this project, I used the electromagnetic flux compression megagauss generator in the Institute for Solid State Physics, University of Tokyo, and measured the high-frequency electrical conductivity up to the ultra-high field region of 500 T. As a result, I clarified that the field-induced semiconductor-metal transition takes place at 270 T, by closing the energy band gap. In addition, I observed the anomaly in the magnetoconductivity below 80 K, which might originate from the hopping motion of quasiparticle in the in-gap states.

研究分野：強磁場物性

キーワード：ナローギャップ半導体 超強磁場 鉄シリサイド 電気伝導 高周波

### 1. 研究開始当初の背景

強相関半導体鉄シリサイド(FeSi)は低温で半導体であるが、150 K 以上の高温では電気伝導度が大きく増加し金属化する。このような強相関半導体の電子物性を解明することで、単純なバンド半導体とは質的に異なる新しい機能性を有するデバイス応用への期待が持たれており、これからの発展が期待される。スピンゆらぎや強相関電子、ワイルフォノンなどが上記の物性を担う可能性が考えられているが、完全な理解には至っていない。磁場を用いた電子およびスピンの制御によって物性を評価、解明するアプローチは物性研究のいわば常套手段である。特に、FeSi ではバンドギャップエネルギーが数十 meV と小さいために、磁場のゼーマンエネルギーによってバンド構造に摂動項としての微小な寄与だけでなく、巨大な変化が現れることが期待できる。そのような新しい現象を見出すことが期待される一方で、実験には 100 テスラ以上の超強磁場が必要であるために、国内外でもごく限られた実験施設でしか研究を行うことができず、これまで系統的な研究は行われてこなかった。

### 2. 研究の目的

本研究では、数百テスラ級の超強磁場下での電気伝導度計測を行うことで、FeSi の低エネルギー励起に起因する磁気抵抗の異常を観測し、エネルギーバンド構造に関する知見を得ることを目指した。

### 3. 研究の方法

500 テスラに至る超強磁場の発生には、東京大学が所有する電磁濃縮超強磁場発生装置を用いた。当該装置は 30 年以上に渡って開発・改良が続けられてきており、超強磁場領域での物性研究を行うためのノウハウが蓄積された世界に誇るべき実験装置である。本研究プロジェクトが始まる前年度の 2018 年には、1200 テスラに至る発生磁場の大幅な記録更新に成功した[1]。また、このような特殊な実験環境では物性実験に対して様々な制約があり、特に電気伝導度計測は巨大な電磁ノイズとの干渉など技術的に非常に困難であったが、これに対しても 2018 年に研究代表者(中村)が LCR 共振特性を利用した超強磁場下での高周波電気伝導度計測手法を開発した[2]。これによって、FeSi の超強磁場物性研究に必要な実験環境・技術が飛躍的に進展した下で物性研究を開始できたことで、スムーズな研究の進行が可能になった。

電磁濃縮装置では、一对のソレノイドコイルで発生した 3-4 テスラの磁場をライナーと呼ばれる金属円筒内に発生させ、その直後にライナーを電磁気力によって瞬時に収縮させることで、磁場の拡散速度よりも速いスピードでライナー内に閉じ込められた磁束が濃縮されることにより超強磁場が発生する。数百テスラ級の磁場においては磁場空間が直径 10mm 程度となるため、電気伝導度測定用のプローブおよび低温用ヘリウムフロックライオスタットをできる限り小径にして、ライナー内に設置した。図 1 は、実験のセットアップの模式図である。

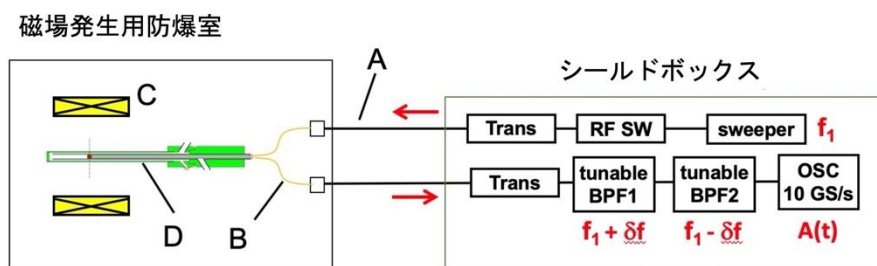


図 1 電磁濃縮超強磁場発生装置を用いた電気伝導度計測実験のセットアップ [3]。

磁場発生時に生じるマグネットコイルの爆発を抑え込むための防爆室内においてライナー(C)が収縮する。その内部には直径 5.5mm の自作ヘリウムフロックライオスタット(D)が設置され、その内部に測定試料がある。電気伝導度計測のバイアスとなる高周波電圧が防爆室から離れたシールドボックス内のスイーパーから発振され、フレキシブル同軸ケーブル(A,B)を通じてプローブに印加される。プローブは直径 60 $\mu$ m の銅ワイヤを平板渦巻状に巻いた構造で、その上に試料をエポキシ樹脂で固定することによって、プローブと試料との間の電磁氣的結合が生じ、試料の電気伝導度に応じた信号がプローブから帰ってくる。プローブから帰ってきた信号は、バンドパスフィルタによって磁場発生に付随する電磁ノイズ成分を除去した後、高速オシロスコープによってデータ取得した。

また、超強磁場下で測定したデータとの比較のために、ゼロ磁場下での直流電気抵抗測定および非破壊パルスマグネットを用いた 55 テスラまでの磁気抵抗測定も行った。

#### 4. 研究成果[3]

ゼロ磁場下での電気抵抗の温度依存性を図2に示す。 $T^* = 80$  Kにおいて電気抵抗の温度依存性の傾きが変わっており、キャリアの散乱機構が低温で変化していることが示唆される。高温側のデータをアレニウスの式で表されるようなバンドギャップ間の熱励起に起因するものと考えると、低温のデータは単純なアレニウスの式(図2では直線となる)ではなく、ランダムなサイト間をキャリアがホッピング伝導する、variable range hoppingの式(図2の破線)でよく説明できることがわかった。このようなふるまいは理想的な半導体ギャップ間に何らかのインギャップ状態が存在することを示していると捉えることができる。

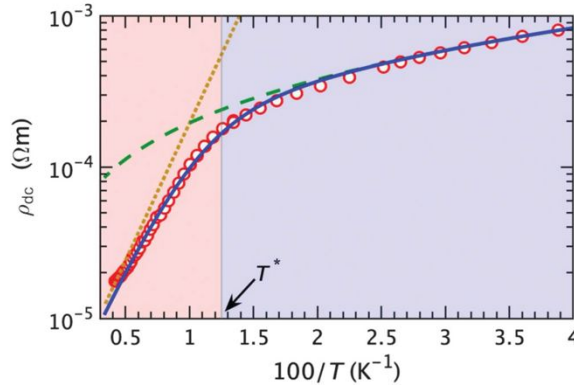


図2 FeSi のゼロ磁場下直流電気抵抗の温度依存性[3]。黒実線は高温側のアレニウスの式(点線)と低温側の variable range hopping の式から合成されたフィッティング曲線である。

次に、500 テスラに至る超強磁場領域での電気伝導度の磁場依存性を図3に示す。それぞれ、パルス磁場発生直前の試料温度が 53 K, 29 K, 6 K の時のデータである。パルス磁場中では、断熱条件となっている実験配置での試料の温度は一定ではなく、磁場上昇とともに上昇している(後述)。図3では、白丸がゼロ磁場下での直流電気抵抗測定から得られた値であり、超強磁場でのデータの外挿値と良い一致を示している。図では、特徴的な磁場が3種類あることがわかる( $B_{sh}$ ,  $B_{S-M'}$ ,  $B_{S-M}$ )。単純には、半導体のバンドギャップに相当するエネルギーの磁場印加によって磁場誘起半導体-金属転移が生じるはずであり、その意味で  $B_{S-M}$  は磁場誘起半導体-金属転移磁場と捉えることができる。 $B_{S-M}$  は 6-53 K の範囲であまり温度に依存しない。一方で、 $B_{sh}$  と  $B_{S-M'}$  はともに低温に向かって増大する傾向がある。 $B_{sh}$  まで電気抵抗が増大し、 $B_{S-M'}$  まで抵抗値が飽和するような磁場依存性は、先述した variable range hopping するキャリアの磁気抵抗として解釈することが可能であり、過去の理論研究と定性的に似た磁場依存性であることがわかった。そのため、直流抵抗の温度依存性において得られた知見と合わせると、 $B < B_{S-M'}$  ではインギャップの準粒子状態の磁気抵抗が支配的であり、 $B_{S-M'}$  で半導体のバンド端がゼーマン効果によって互いに近づいてくると、再び熱励起型のキャリア散逸が支配的になり、負の磁気抵抗を示して最終的にバンドギャップが潰れる、という解釈をすることができる。

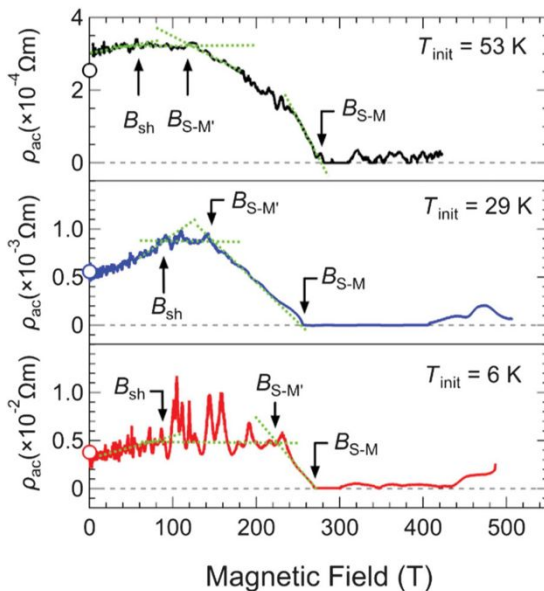


図3 電磁濃縮装置で発生した500 テスラに至る超強磁場領域での、FeSi の高周波電気伝導度の磁場依存性[3]。緑色の点線はガイドラインである。

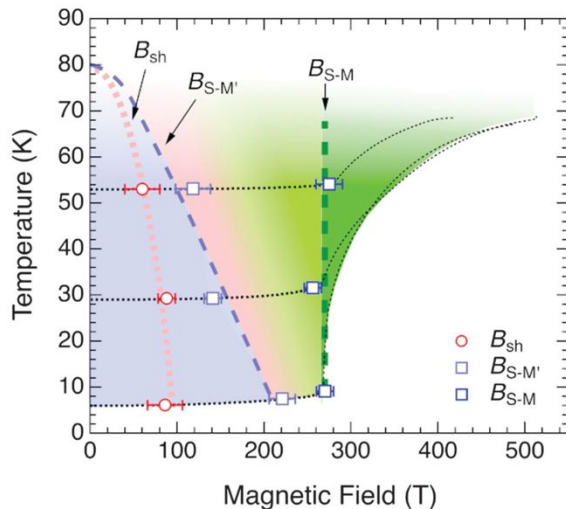


図4 FeSiの温度-磁場相図[3]。本研究で得られた特徴的な磁場の値から、インギャップ内散逸が支配的な領域( $B < B_{S-M'}$ )、熱活性化型の散逸が支配的で徐々に金属状態に向かう領域( $B_{S-M'} < B < B_{S-M}$ )、磁場誘起金属転移したあとの金属状態の領域( $B > B_{S-M}$ )に状態を区別して、異なる色でハッチングしている。黒い点線は試料温度の磁場変化を見積もった結果である。

本研究で得られた結果を、温度-磁場相図としてまとめたのが図4である。それぞれ、エネルギーバンド構造が質的に異なる磁場領域を異なる色でハッチしている。インギャップ状態の散逸が支配的であると考えられる  $B_{S-M'}$  以下の領域は 80 K に向けて漸近的に縮小しており、直流電気抵抗で観測された  $T = 80$  K での散逸機構の変化と整合性のある結果であると言える。各シンボルを結ぶ黒点線は試料温度の磁場中変化を見積もったものである。バンドギャップが閉じる前の比較的電気伝導度が小さいうちは試料温度の変化は顕著ではないが、磁場誘起金属転移を経て金属状態になると、試料温度が急激に上昇することが予想される。このような試料温度の変化をマイクロ秒スケールのパルス磁場下で抑制するのは極めて難しく、試料を薄膜状にして界面での熱拡散を支配的にするなどといった工夫が必要になる。

本研究(電気伝導度測定)によって、強相関半導体 FeSi の温度-磁場相図の全貌が初めて明らかになった。同一物質に対して磁化測定や熱伝導度測定と行った異なるプローブでの実験を行うことにより、相図中の各状態の特性をより詳細に明らかにすることが可能であると考えられる。本研究期間内に研究代表者の所属機関の変更があったために特殊な超強磁場下での実験は電気伝導度測定のみにとどまることとなったが、今後機会があれば、本研究を進展させていきたい。

#### <引用文献>

- [1] D. Nakamura *et al.*, Rev. Sci. Instrum. vol.89, p.095106 (2018).
- [2] D. Nakamura *et al.*, Meas. Sci. Technol. vol.29, p.035901 (2018).
- [3] D. Nakamura *et al.*, Phys. Rev. Lett. vol.127, p.156601 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nakamura Daisuke, Ikeda Akihiko, Matsuda Yasuhiro H., Takeyama Shojiro	4. 巻 -
2. 論文標題 Contactless ultra-high frequency AC-conductivity measurement applicable to destructive magnets above 100 T	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 conference record of the IEEE Xplore	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/MEGAGAUSS.2018.8722657	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakamura D., Matsuda Y.-H., Ikeda A., Miyake A., Tokunaga M., Takeyama S., Kanomata T.	4. 巻 127
2. 論文標題 Magnetococonduction in the Correlated Semiconductor FeSi in Ultrastrong Magnetic Fields up to a Semiconductor-to-Metal Transition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 156601
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.127.156601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 中村大輔、松浦航、中山裕之、山田貴大、池田暁彦、松田康弘、伊賀文俊
2. 発表標題 近藤絶縁体SmB6 のパルス超強磁場下における金属絶縁体転移
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Daisuke Nakamura
2. 発表標題 Semiconductor-Metal transition of correlated narrow-gap semiconductors under ultra-high magnetic fields up to 500 Tesla
3. 学会等名 ARHMF2020 & KINKEN Materials Science School 2020 for Young Scientists（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 中村大輔、三宅厚志、松田康弘、池田暁彦、徳永将史、鹿又武、嶽山正二郎
2. 発表標題 強相関ナローギャップ磁性半導体FeSiにおける超強磁場誘起半導体-金属転移の温度依存性
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村大輔
2. 発表標題 近藤半導体SmB6, FeSiにおける磁場誘起半導体-金属転移
3. 学会等名 強磁場科学研究会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関