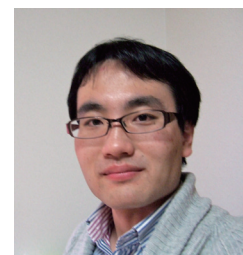


遷移金属酸化物 Ca_2RuO_4 の非線形伝導

岡崎 竜二 名古屋大学理学研究科



はじめに

このたび、「希土類化合物における金属絶縁体転移の電場制御」という表題で本新学術領域の公募研究に採択していただきました。私は博士課程のときに重い電子系化合物 URu_2Si_2 の隠れた秩序や超伝導状態など、本領域に関連深いテーマの研究を行っておりましたが（平成 23 年度 9 月発行のニュースレターにあります京都大学理学研究科・芝内先生の記事をご参照頂けますと幸いです）、いざ公募班として研究活動を行うとなるとやはり特別でして、身が引き締まる思いであります。本稿では、この申請課題に関連した内容として強相関電子系の非線形伝導現象の最近の研究結果にふれながら、この課題で目指すことについてご紹介できればと思います。

モット絶縁体 Ca_2RuO_4

Ca_2RuO_4 は $T_{\text{MI}} \sim 360 \text{ K}$ において構造変化を伴った金属絶縁体 (MI) 転移を示す遷移金属酸化物である¹⁾。この MI 転移の起源として、 Ru^{4+} の t_{2g} 軌道にある 4 つの d 電子のうち 3 つが下部ハバードバンドを埋め、残り 1 つが上部ハバードバンドの d_{xy} 軌道を占有するという軌道秩序の形成が示唆されている。この物質はさらに低温 ($T_{\text{N}} = 110 \text{ K}$) において反強磁性転移を示す。

この系の特徴はその多彩な電子状態にある。母物質は上述のとおり、反強磁性モット絶縁体であるが、 Ca^{2+} を Sr^{2+} で等価数置換することによって、基底状態はモット絶縁体から磁性金属、常磁性金属と変化し、全置換した Sr_2RuO_4 は非従来型の超伝導を示す。この系は圧力印加に対しても絶縁相から磁性金属相への転移を示す。さらに、ごく最近の実験ではおよそ 10 GPa 以上の高圧領域において超伝導が発現するという興味深い結果が報告されている。

電場による金属絶縁体転移とその問題点

近年、この系の電気伝導特性に関して非常に興味深い結果が広島大学のグループによって報告され

た。彼らは室温において数 10 V/cm 程度の非常に小さな電場を試料に印加したところ、この系が絶縁体から金属状態へと転移することを発見した²⁾。さらに興味深いことに、電流を印加したまま試料を冷却したところ、金属状態を保ったまま強磁性転移を示すような振る舞いが低温で観測された。このような電場が印加された状態は本質的に非平衡な状態であり、この電場による金属化のメカニズムの解明が待たれる。

一方で、このような高電圧・大電流を印加する非線形伝導測定を行う際には、ジュール発熱に常に注意を払わなければならない。すなわち、試料に投入した電力によって試料温度が上昇し、 T_{MI} を超えることで MI 転移を引き起こしたというおそれがある。このような問題を回避するために一般的に行われる手法として、ミリ秒からマイクロ秒程度の印加電圧によって計測を行うパルス測定がある。しかしながら、このパルス時間中にも有限の信号変化が観測されることが多々ある。結局のところ、電流を通電した状態で試料温度がいくつになっているかを知ることが最も基本的な課題であり、我々はこの問題からこの物質の非線形伝導現象の解明に取り組んだ。

非接触の温度計測手法による非線形伝導の評価

試料が自己発熱している状態において、試料温度を正確に決定することは非線形伝導測定において本質的に重要であることを上で述べた。しかしながら、通常の固体温度計を用いた計測手法では、試料と温度計との間の有限の熱勾配によって、正しく試料温度を評価できない。そこで我々は、物質の黒体放射を利用して温度計測するパイロメーターを用いて試料温度の評価を行った。この手法の利点は、非接触で対象物の温度を評価できる点であり、我々は熱浴から浮かした単結晶試料に電流通電し、自己発熱によって上昇した試料部分の温度を評価することに成功した。さらに、10 mm 程度の空間分解能をもつサーモグラフィを用いることで、ほぼ均一に試料内

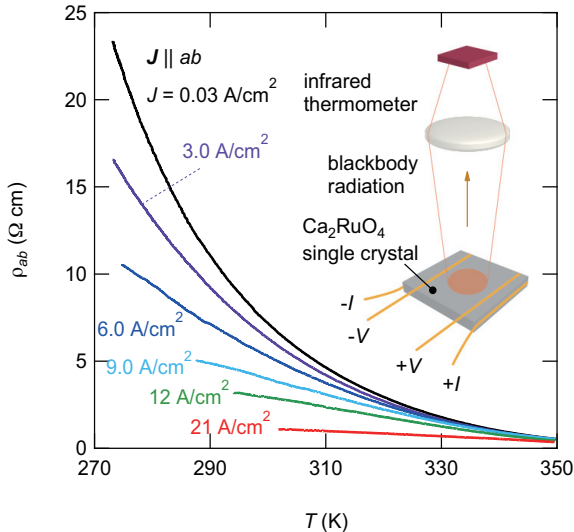


図 1: Ca_2RuO_4 の電気抵抗率の温度依存性. 異なる印加電流で測定した結果, 有意な非線形性が確認された. 内挿図は非接触の温度計測の概念図を示している.

部で発熱が起きていることを確認できた.

このような実験手法を用いて測定した Ca_2RuO_4 の電気抵抗率の温度依存性を図 1 に示す. 横軸の温度は上記の非接触の手法で決定した試料温度であり, ここでは印加電流を変化させて抵抗率計測を行っている. 印加電流が小さい場合, 系は半導体的な温度依存性を示すが, 印加電流の上昇につれてほぼ連続的に非線形性が現れている. また電流密度を 21 A/cm^2 にして計測した場合では, 半導体というよりむしろ金属的な伝導に近づいていることが分かる. このような振る舞いは電荷秩序を示す有機導体においても報告されており³⁾, そこでは系の絶縁性を特徴付けるエネルギーギャップが電流によって減少することが議論されている⁴⁾. 現在, 我々は電流通電下でのゼーベック係数測定の開発を行っており, 非平衡状態における他の輸送係数測定の結果と合わせて, このモット絶縁体における非線形性の起源について議論を進めていきたいと考えている.

特異な金属絶縁体転移を示す希土類化合物

本公募研究ではこのような非線形伝導現象の探索

とその起源解明を希土類化合物に拡張していく予定である. 具体的には, 低温で MI 転移を示すスクッテルダイト化合物 $\text{SmRu}_4\text{P}_{12}$ ($T_{\text{MI}} = 16.5 \text{ K}$) および $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ ($T_{\text{MI}} = 62 \text{ K}$) における非線形伝導の探索を現在行っている. これらの系では T_{MI} 以下の低温相において高次の多極子秩序の形成が示唆されているが, それらの電場応答は自明ではなく, 本研究を通して電場下の電子物性に対して知見を加えることができると考えている. 一方, これらの系は室温以上で計測を行った Ca_2RuO_4 とは異なり, より低温での測定となる. その温度領域では試料からの黒体放射の強度は急激に減少し, 上述の放射温度計の方法を用いることは極めて困難となる. 現在我々は他の非接触の温度計測手法として, 反射率に含まれるフォノンスペクトルなどを指標に温度を評価する thermoreflectance と輸送係数測定を組み合わせた計測システムの開発を進めている. これらの手法を用いることで, 低温においても試料温度の適切な評価のもとに非線形伝導測定を進めていきたいと考えている.

おわりに

本公募研究は, これまで本領域でほとんど取り挙げられなかった電流や電場といった非平衡量を新しい外部パラメータとして提案するものです. 本領域の他の計画・公募研究とは若干毛色が異なっているように私自身感じておりますが, 皆様のご指導・ご協力をいただけますと大変幸いです.

最後になりましたが, 本研究は仁科靖生, 安井幸夫, 寺崎一郎, 中村文彦, 木村有作, 坂木麻里子, 鈴木孝至, 青木勇二, 佐藤英行の各氏との共同研究です. ここに深く感謝申し上げます.

参考文献

- 1) C. S. Alexander *et al.*: Phys. Rev. B **60** (1999) R8422.
- 2) F. Nakamura *et al.*: (submitted).
- 3) F. Sawano *et al.*: Nature **437** (2005) 522.
- 4) S. Ajisaka *et al.*: Prog. Theor. Phys. **121** (2009) 1289.