

世界最強クラスの磁場により強相関絶縁体の金属化を発見

東京大学物性研究所の松田康弘准教授らは、岡山大学異分野基礎科学研究所の村岡祐治准教授らと協力し、タングステン(W)を僅かに添加した二酸化バナジウム(V02:W6%)が、世界最強クラスの磁場 500 テスラにおいて絶縁体から金属に変化することを発見しました。V02 は低温の絶縁体状態から約 67°Cで金属に相転移するため、スイッチやセンサーへの応用が期待されている機能性材料の 1 つです。しかし、強い電子相関(注 1)のため、その絶縁体金属転移のメカニズムは発見から 60 年以上経った現在も十分理解できていませんでした。

今回、スピンの相転移機構に本質的な役割を果たしている直接的証拠を発見し、相転移機構における主要因がバナジウム原子間の分子軌道形成であることが明らかとなりました。これは、今後実現が期待されるスピン制御スイッチング素子などの室温動作する量子機能デバイスの開発に大きく貢献する成果です。

実験では、磁場による電気伝導性の変化を近赤外レーザーの光透過強度から検出しました。絶縁体状態では光透過率は高いのですが、金属化で急激に透過率が減少するため、電気伝導性の変化を知ることができます。対象試料として、V02に加えて、タングステン(W)を添加した $V_{1-x}W_xO_2$ ($x=0.036, 0.06$) を準備しました。W を添加することで転移温度が低くなるということがこれまでに分かっており、 x が大きい試料では、磁場効果が観測しやすいと考えられたためです。また、磁場印加時の渦電流による発熱を避けるために、岡山大学異分野基礎科学研究所においてパルスレーザー堆積法によって成長された薄膜結晶を用いました。

図 1 に $V_{1-x}W_xO_2$ ($x=0.06$) 薄膜における $1.977 \mu\text{m}$ の光透過強度の磁場依存性の測定結果を示します。温度 14 ケルビンにおいて、およそ 100 テスラを超える磁場から透過強度が減少し、500 テスラで金属状態に変化する様子が捉えられました。一方、 $x=0.036$ の結晶では、200 テスラ以上の磁場で金属化への兆候が観測され、V02 ($x=0$) では、540 テスラの磁場まで絶縁性が維持されることがわかりました。

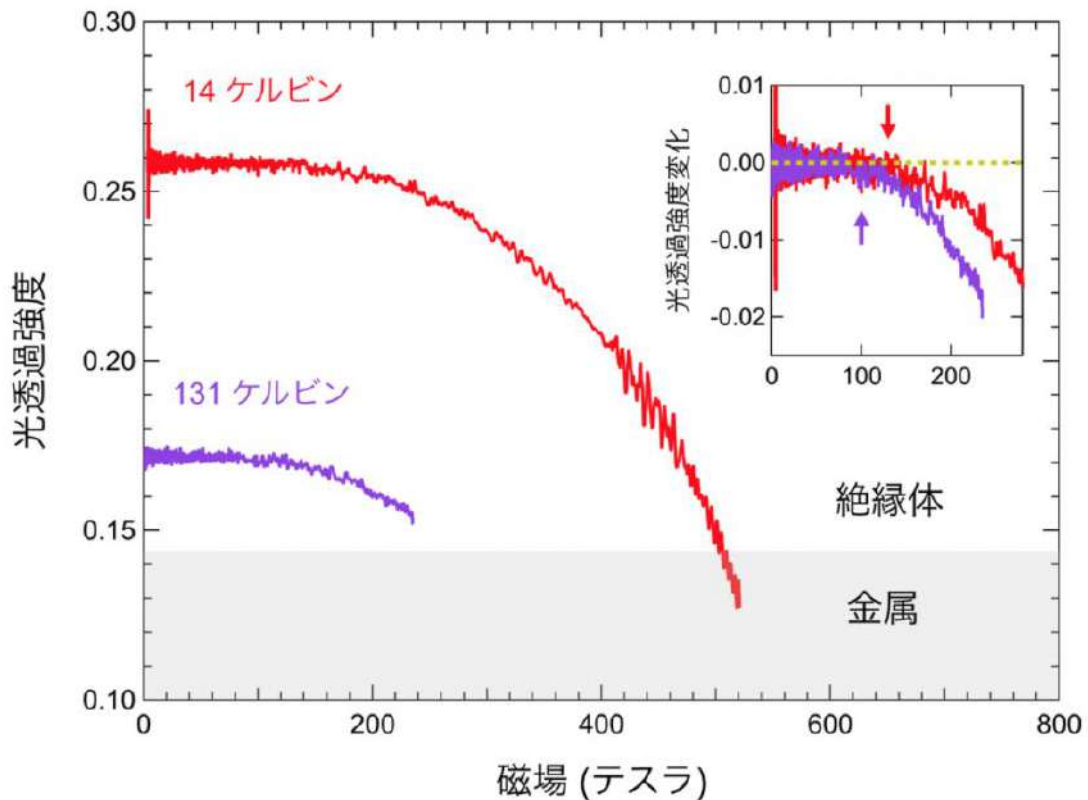


図 1. $V_{1-x}W_xO_2$ ($x=0.06$) 薄膜 (膜厚 15 ナノメートル、 TiO_2 基板) のレーザー波長 $1.977 \mu m$ での光透過強度の磁場依存性。14 ケルビンの温度では約 500 テスラで絶縁体から金属に変化することが捉えられました。挿入図は、磁場による透過光強度変化分を磁場の関数でプロットしています。温度にあまり依存せず、100 テスラ近傍から金属化への変化が起こることから、この相転移にはしきい磁場があることが分かります。

図 2 には、光吸収係数の磁場依存性を相対的なスケールで示しました。今回測定した薄膜結晶の金属絶縁体転移温度 TMI は、 $x=0.06, 0.036, 0$ のそれぞれで、およそ 100、200、300 ケルビンであり、TMI の上昇に伴い金属化に必要な磁場が高くなることが明らかとなりました。0.036 では完全な金属化に 600 テスラ程度が必要と予想でき、 VO_2 ($x=0$) では 1000 テスラ以上が必要になる可能性があります。

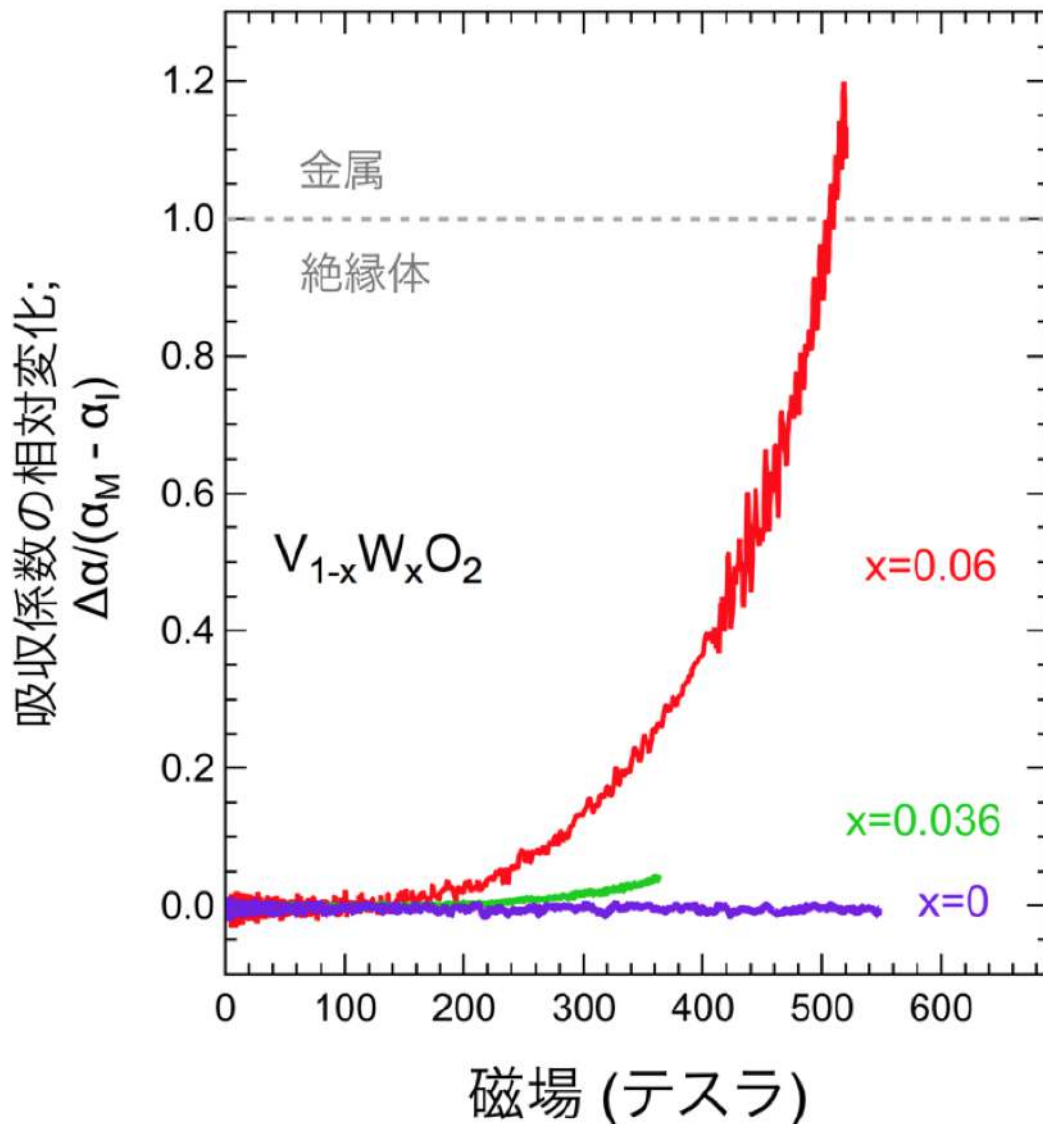


図 2. $V_{1-x}W_xO_2$ ($x=0, 0.036, 0.06$) 薄膜における、吸収係数 α の相対変化量の磁場依存性。 α_M 、 α_I はそれぞれ、ゼロ磁場における高温金属状態と低温絶縁体状態の吸収係数。 $x=0$ では 540 テスラまで磁場による金属化は観測されないことがわかりました。 $x=0.036$ では、実験時の磁場発生装置の放電スイッチ同期不良により、最高磁場が 360 テスラまでに制限されましたが、金属化開始の兆候が 200 テスラ付近から観測されています。

本研究におけるスピン制御による金属化の発見は、 VO_2 における電子の局在化がバナジウム原子間の分子軌道形成によって起こることを強く示唆しています。図 3 は、磁場誘起金属化のメカニズムについての模式図です。スピンが平行に制御されることで分子軌道の結合性軌道が不安定になり、ダイマー化していた

バナジウム原子がそれぞれ独立した状態に変化すると考えられます。分子軌道形成に寄与していた電子は局在性を失い、金属的伝導に寄与できるようになります。磁場による分子軌道の崩壊現象は、中性子星などでは理論的に予想される一方、地球上で人工磁場を用いる環境においては発想されたことすらなく、今回の発見は画期的です。

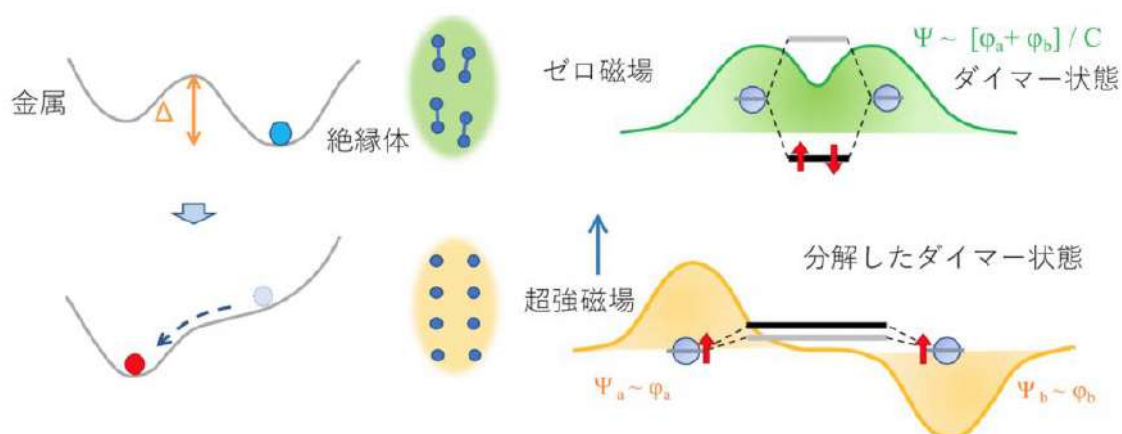


図 3. 観測された磁場による金属化を説明する分子軌道崩壊の模式図。左図はポテンシャルエネルギーの変化の様子、中央の図はダイマーの分解を表していません。右図は、磁場によって電子スピンの向きが揃うことで、ダイマーを形成する分子軌道が壊れる様子を示しています。分子軌道結合に寄与していた電子は、自由に移動が可能となり金属化が起こります。この現象は、ダイマーの分解を伴う一次相転移として理解できます。また、磁場による分子軌道の崩壊現象は中性子星などの宇宙空間で予想されており、化学的カタストロフィーと呼ばれることがあります。

論文情報

タイトル: Magnetic-field-induced insulator-metal transition in W-doped V02 at 500 T

雑誌: 「Nature Communications」(オンライン版:7月17日)

DOI: 10.1038/s41467-020-17416-w

日本語原文

<https://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/news2.html?pid=10907>

文 JST 客観日本編集部