

放射光を用いた遷移金属酸化物の外場誘起相転移の研究

奥山大輔 東北大学多元物質科学研究所

1. イントロダクション

外場印加により絶縁体から金属への相転移を示す物質群は、デバイスへの応用の観点から注目されている。負の巨大磁気抵抗を示すペロブスカイトMn酸化物や、電界による絶縁体金属転移を示すVO₂はその典型例であり、相転移に伴う結晶構造変化や相分離の出現が報告されている。これらの情報より、外場誘起相転移の発現機構を決定することが期待されている。

2. 研究目的と実験

目的 外場誘起相転移を示す物質で、外場下のX線回折、電気抵抗等のマクロな物性とX線回折/分光の同時測定で得られる情報から、絶縁体金属転移の発現機構を議論する。

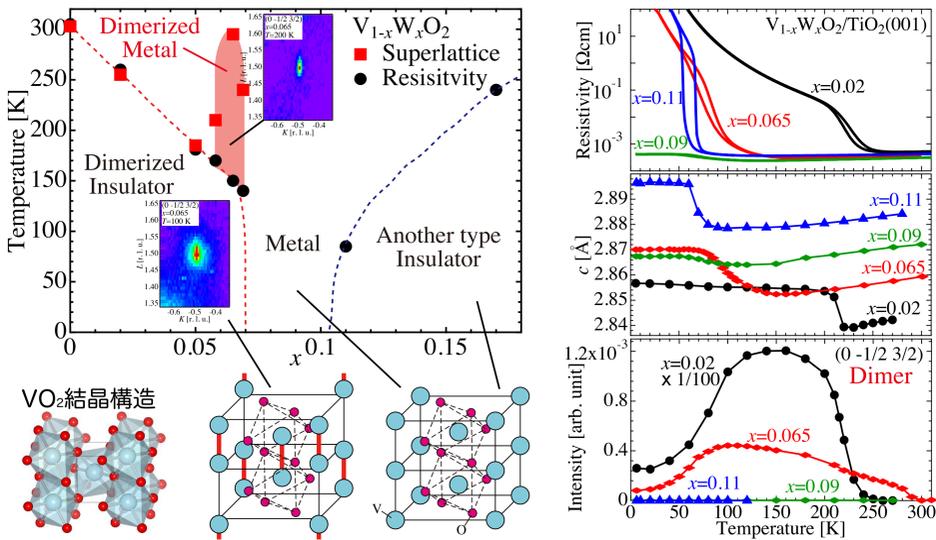
実験

- VO₂/TiO₂(001)薄膜(80 nm): X線、圧力誘起相転移
- [Pr_{0.5}Ca_{0.5}MnO₃/La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃]¹⁵/LSAT(011)超格子(40 nm): 磁場誘起相転移
- 使用ライン: KEK-PF, BL-3A and 4C, 使用エネルギー: E=9.5~10 keV
- VO₂/TiO₂(001) & V_{0.98}W_{0.02}O₂/TiO₂(001)薄膜(10 & 40 nm): 電界誘起相転移
- 使用ライン: SPring-8, BL-19LXU, BL39XU, 使用エネルギー: E=5~12.4 keV (全薄膜は基板にクランプ)

3. 実験結果

VO₂薄膜のX線、圧力、電界誘起相転移(KEK-PF, SPring-8)

V_{1-x}W_xO₂/TiO₂(001)薄膜における金属絶縁体転移と構造相転移(KEK-PF)



D. Okuyama *et al.*, Phys. Rev. B **91** 064101 (2015).

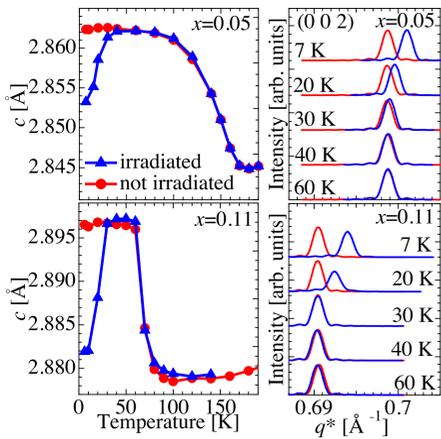
- 2つの絶縁体相は異なる構造。
- 二量体化は必ずしも絶縁体相転移を伴わず。
- c軸長増大と絶縁体化は強く結合。
- 超格子反射位置は電子ドーピングに対し不変。
- 0.02 ≤ x で Variable range hopping 伝導。

V_{1-x}W_xO₂薄膜では、
 パイエルス機構を否定
 W置換によるランダムポテンシャル
 c軸長増大によるバンド幅減少

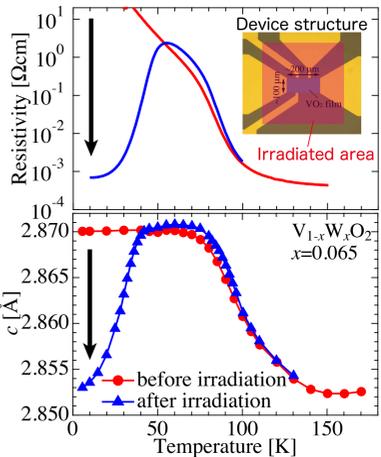
Mott-Anderson転移

V_{1-x}W_xO₂薄膜のX線照射下での電気抵抗とX線回折の同時測定(KEK-PF)

永続的なX線誘起相転移の発見



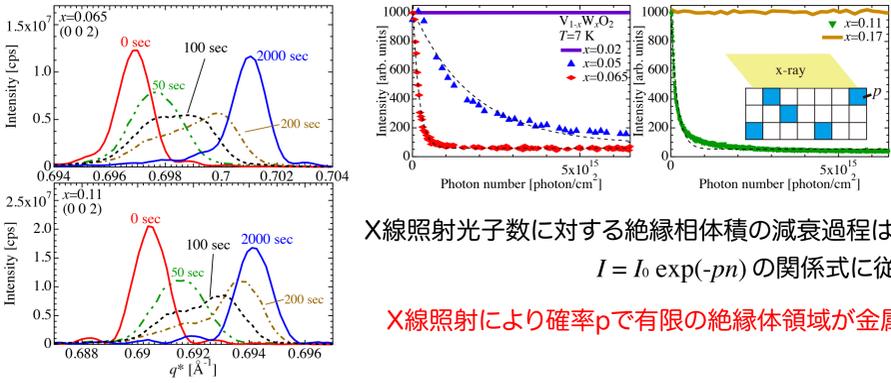
電気抵抗とX線回折の同時測定



V_{1-x}W_xO₂薄膜の低温金属相近傍の絶縁体領域の広い組成で構造変化を伴う永続的なX線誘起絶縁体金属相転移

K. Shibuya, D. Okuyama *et al.*, Phys. Rev. B **84**, 165108 (2011).
 D. Okuyama *et al.*, Phys. Rev. B **91** 064101 (2015).

X線誘起相転移の過渡状態



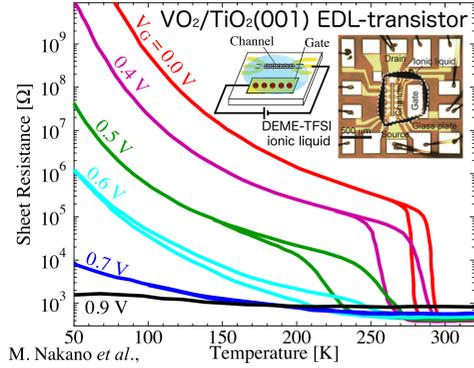
X線照射光子数に対する絶縁体相体積の減衰過程は

$$I = I_0 \exp(-pn) \text{ の関係式に従う。}$$

X線照射により確率pで有限の絶縁体領域が金属に

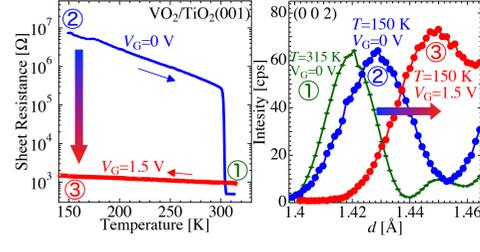
V_{1-x}W_xO₂薄膜の電界下での電気抵抗とX線回折の同時測定(SPring-8)

電気二重層(EDL)トランジスタにおける電界誘起絶縁体金属転移

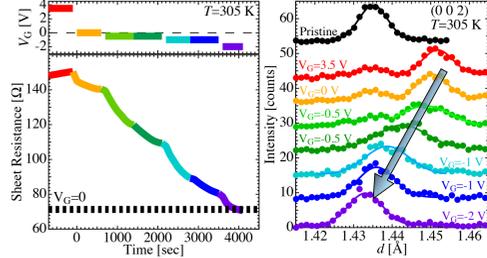


M. Nakano *et al.*, Nature. **487**, 459 (2012).

デバイス上で電気抵抗とX線回折の同時測定

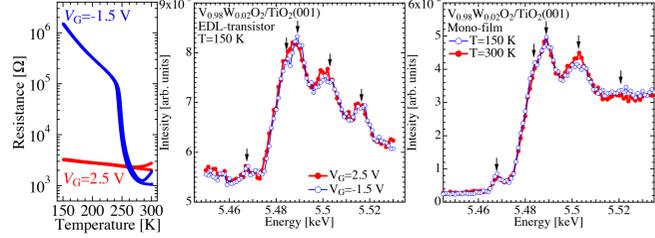


電界誘起相転移の過渡状態



D. Okuyama *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104**, 023507 (2014).

デバイス上で電気抵抗とV_{Kβ}-X線発光分光の同時測定



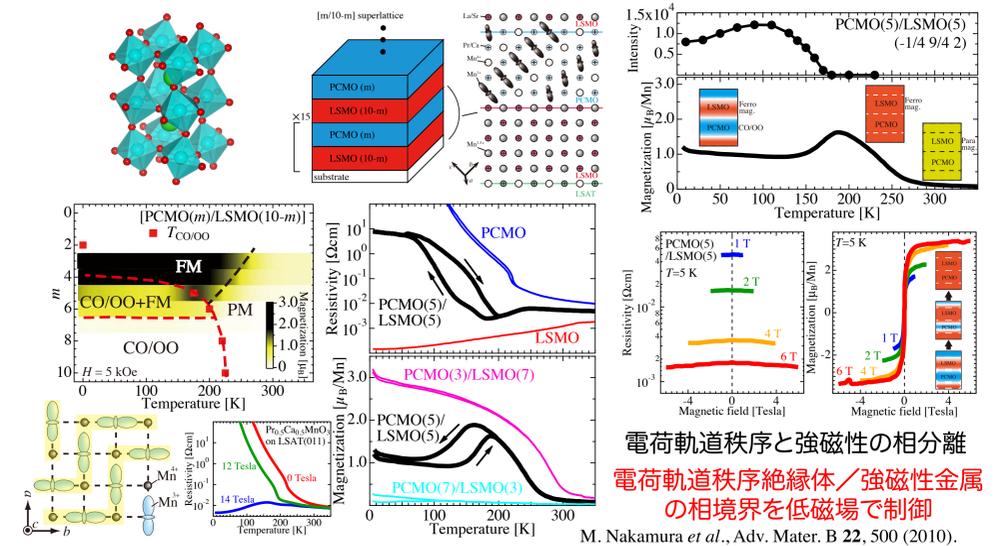
- 電界誘起金属相はc軸長が増大。(X線、圧力、熱誘起金属相と逆)
- 秒単位の非常に遅い電場応答。
- 電界誘起金属相の発光分光の結果は熱誘起の金属相に類似。(二量体化消失?)



電界印加の絶縁体金属相転移は、X線、圧力、熱誘起の相転移とは異なる機構

Pr_{0.5}Ca_{0.5}MnO₃/La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃超格子の磁場誘起相転移(KEK-PF)

ペロブスカイトMn酸化物と超格子の磁場誘起相転移



電荷軌道秩序と強磁性の相分離
 電荷軌道秩序絶縁体/強磁性金属の相境界を低磁場で制御

M. Nakamura *et al.*, Adv. Mater. B **22**, 500 (2010).

ラウエフリンジ減衰の解析から得られる相分離状態の磁場変化

D. Okuyama *et al.*, to be submitted.

4. 次世代光源で期待されること

5. 謝辞

Supervisor:
 有馬孝尚先生(東大新領域)
 田口康二郎先生(理研CEMS)
 岩佐義宏先生(東大物工)
 川崎雅司先生(東大物工)
 十倉好紀先生(東大物工)

KEK-PFでの実験:
 熊井玲児さん(KEK-CMRC)
 若林裕助さん(阪大)
 小林賢介さん(KEK-CMRC)
 山崎裕一さん(KEK-CMRC)
 中尾裕則さん(KEK-CMRC)
 村上洋一先生(KEK-CMRC)

SPring-8での実験:
 大隅寛幸さん(理研SPring-8)
 竹下聡史さん(KEK-CMRC)
 S. Tardifさん(CEA-Grenoble)
 水牧仁一朗さん(JASRI)
 高田昌樹先生(理研SPring-8)

VO₂薄膜作製者:
 渋谷圭介さん(産総研)
 中野匡規さん(東大物工)