

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

1. 発表者：

松田 康弘（東京大学物性研究所 附属国際超強磁場科学研究施設 准教授）
中村 大輔（東京大学物性研究所 附属国際超強磁場科学研究施設 助教）
池田 暁彦（東京大学物性研究所 附属国際超強磁場科学研究施設 助教）
嶽山 正二郎（東京大学物性研究所 附属国際超強磁場科学研究施設 教授*）
壽賀 友貴（岡山大学大学院自然科学研究科 修士2年*）
中原 隼人（岡山大学大学院自然科学研究科 修士1年）
村岡 祐治（岡山大学異分野基礎科学研究所 准教授）

* 研究実施当時

2. 発表のポイント：

- ◆タングステン（W）を添加した二酸化バナジウム（VO₂）が磁場中で強相関絶縁体から金属になることを発見しました。
- ◆世界最強クラスの磁場を用いることで強相関電子の絶縁性がスピンにより制御できることを証明しました。
- ◆この発見は、強相関電子を用いた量子機能デバイス開発研究に新しい展開をもたらすと期待されます。

3. 発表概要：

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（VO₂:W 6%）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。VO₂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、スピンが絶縁体金属転移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。

本成果は7月17日付 *Nature Communications* に掲載される予定です。

4. 発表内容：

①研究背景

固体における電子相関効果は、新規デバイス開発に不可欠であると同時に、その理解は学術的に高い価値を有します。電子スピンは強相関物質（注1）の性質を決める最重要パラメータの1つであるにもかかわらず、磁場によるスピン制御の実験的研究は十分ではありませんでした。その理由は、強相関物質ではスピン状態を決定している相互作用エネルギーが大きいために、制御に必要な強磁場を実験室で発生できないためです。例えば、代表的強相関物質のVO₂では、67°C（340 ケルビン）で絶縁体金属転移が起り、スピンは反強磁性的に結合して

シングレット状態（注2）になります。スピンの制御には340ケルビンに相当するゼーマンエネルギー（注3）を与える磁場である約250テスラが少なくとも必要と予想されます。しかし、実験室で通常用いられる上限磁場は20テスラ程度、専用施設においても定常的な磁場は45テスラが世界最高値です。強相関物質の磁場によるスピン制御は極めて困難な実験であり、これまでに限られた報告例しかありません。

東京大学物性研究所では40年以上にわたり、100テスラ以上の超強磁場発生技術の開発とその固体物理への応用研究に取り組んできました。その結果、2018年には新規導入された電磁濃縮法磁場発生装置（注4）を用いて室内世界最高磁場である1200テスラの発生に成功し、今後の研究展開が世界的に注目されていました。強相関物質はその有力な研究対象のひとつであり、本研究ではその最初の具体的対象物質としてVO₂に着目しました。スピンが磁場によって制御され、その向きを揃えてシングレット状態が壊れることで、電気的絶縁性が失われて金属化する可能性があるかと予測しました。

②研究内容

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、VO₂に加えて、タングステン（W）を添加したV_{1-x}W_xO₂（ $x=0.036, 0.06$ ）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の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_xO₂（ $x=0.06$ ）薄膜における1.977μm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、VO₂（ $x=0$ ）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 T_{MI} 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、 T_{MI} 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、VO₂（ $x=0$ ）では1000テスラ以上が必要になる可能性があります。

本研究におけるスピン制御による金属化の発見は、VO₂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（注5）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。

③社会的意義・今後の予定など

発見されたV_{1-x}W_xO₂の強磁場金属相は、電子相関の強いエキゾチックな性質を持つ可能性があり、その理解は今後の課題です。添加の無いVO₂では磁場誘起金属相は1000テスラ領域になる可能性があり、その観測にも挑戦していきます。さらに、VO₂と性質の類似した強相関

物質は Ti_2O_3 , AlV_2O_4 , CuIr_2S_4 など多数発見されており、今後、強相関絶縁体のスピン制御効果の研究は大きく発展が期待されます。その成果は、実現が期待されるスピン制御スイッチング素子やモット転移 FET (注 6) などの室温動作量子機能デバイスの開発に大きく貢献すると考えられます。

なお、本研究は、日本学術振興会の科学研究費 (課題番号 18K18728) の助成を受けたものです。

5. 発表雑誌 :

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

論文タイトル : Magnetic-field-induced insulator-metal transition in W-doped VO_2 at 500 T

著者 : Yasuhiro H. Matsuda*, Daisuke Nakamura, Akihiko Ikeda, Shojiro Takeyama, Yuki Suga, Hayato Nakahara, and Yuji Muraoka

DOI 番号 : 10.1038/s41467-020-17416-w

6. 問い合わせ先 :

【研究内容に関すること】

東京大学物性研究所 附属国際超強磁場科学研究施設
准教授 松田 康弘 (まつだ やすひろ)

TEL : 080-4937-2595

e-mail : ymatsuda@issp.u-tokyo.ac.jp

岡山大学異分野基礎科学研究所
准教授 村岡 祐治 (むらおか ゆうじ)

TEL : 086-251-7898

e-mail : ymuraoka@cc.okayama-u.ac.jp

【報道に関すること】

東京大学物性研究所 広報室

TEL : 04-7136-3207

E-mail : press@issp.u-tokyo.ac.jp

7. 用語解説 :

(注 1) 強い電子相関、強相関物質

電子は負の電荷を持つため互いにクーロン反発力を感じながら運動します。その力が強い場合は多数の電子が協力的に振る舞うことが可能となり、超伝導や巨大電磁応答特性など様々な興味深い現象が発現します。このような場合、一般に強い電子相関があると言います。強い電子相関がある物質を強相関物質と呼び、固体物理学における主要な研究対象になっています。

(注 2) シングレット状態

一重項状態とも呼ばれます。異なる状態であるが同一のエネルギーの場合、それら複数の状態は縮退していると表現されます。シングレット状態は縮退する他の状態を有しない、ただ1つの状態です。複数スピンを考えたとき、その全スピンの量子数が S であるなら、縮退数は $2S+1$ となります。シングレット状態は $S=0$ であり、磁氣的に不活性（非磁性状態）です。

（注3）ゼーマンエネルギー

磁場中では電子のエネルギー状態はスピンと呼ばれる角運動量の向きによって変化します。電子スピンは上向きと下向きの2状態をとることができ、磁場中でエネルギー E は、そのそれぞれ $E+\Delta E$ 、 $E-\Delta E$ のように分裂します。分裂の大きさ $2\Delta E$ を一般にゼーマンエネルギーと呼びます。

（注4）電磁濃縮法磁場発生装置

電磁力によって金属円筒などを高速に収縮させ、磁束密度の増大によって強磁場を得る方法を電磁濃縮法と呼びます。東京大学物性研究所では2014年に電磁濃縮法による磁場発生装置を更新し、2018年9月に世界最高記録の1200テスラを達成しました。磁束濃縮過程では、直径数ミリメートルの円筒状の空間に百万分の数秒（数マイクロ秒）の短い時間に磁場が発生され、磁場発生後は、測定試料を含む磁場発生コイル周辺が電磁力開放による爆発のために完全に破壊されます。また、50万ボルト、8百万アンペアの強電装置でもあるため、応用研究に用いる際には装置耐性と実験条件を考慮した安全性を確保しながら運用する必要性もあります。今回、磁場上限を世界記録の50%の600テスラ程度に設定したパラメーターを用いて研究を行いました。今後、設定磁場上限を装置性能の100%に近づける運用を段階的に行っていく計画です。

（注5）ダイマー

2つの原子間の結合が強くなり対を形成した状態。2量体と呼ばれることもあります。

（注6）モット転移 FET

互いの強いクーロン反発によって電子が動けなくなり、金属から絶縁体に変化する転移をモット転移と呼びます。モット転移を利用した FET（Field Effect Transistor：電界効果トランジスタ）は新規デバイスとして注目されています。

8. 添付資料：

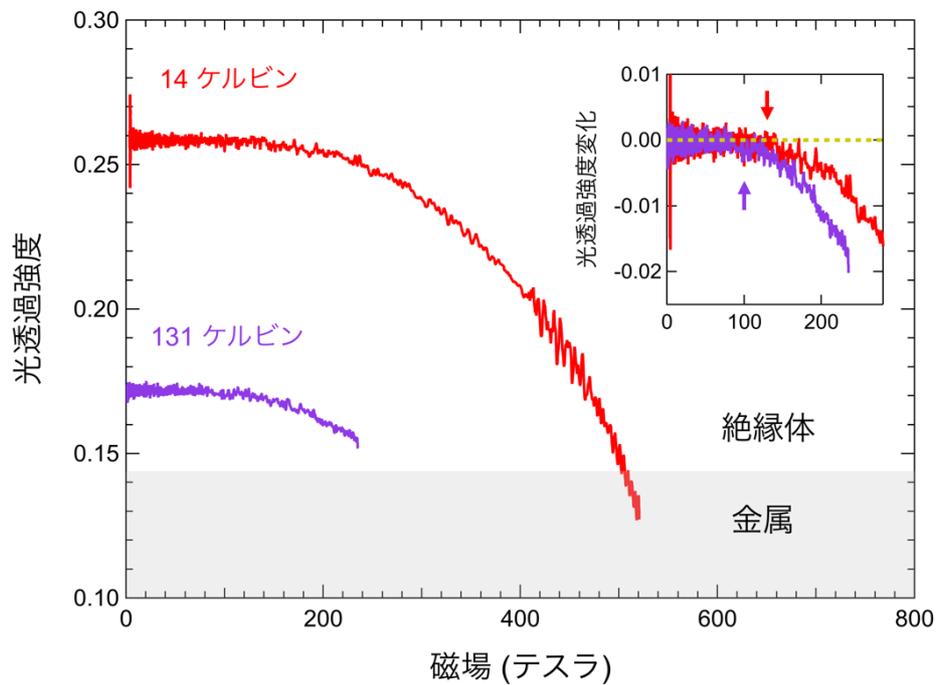


図1. $V_{1-x}W_xO_2$ ($x=0.06$) 薄膜 (膜厚 15 ナノメートル、 TiO_2 基板) のレーザー波長 $1.977\ \mu\text{m}$ での光透過強度の磁場依存性。14 ケルビンの温度では約 500 テスラで絶縁体から金属に変化することが捉えられました。挿入図は、磁場による透過光強度変化分を磁場の関数でプロットしています。温度にあまり依存せず、100 テスラ近傍から金属化への変化が起こることから、この相転移にはしきい磁場があることが分かります。

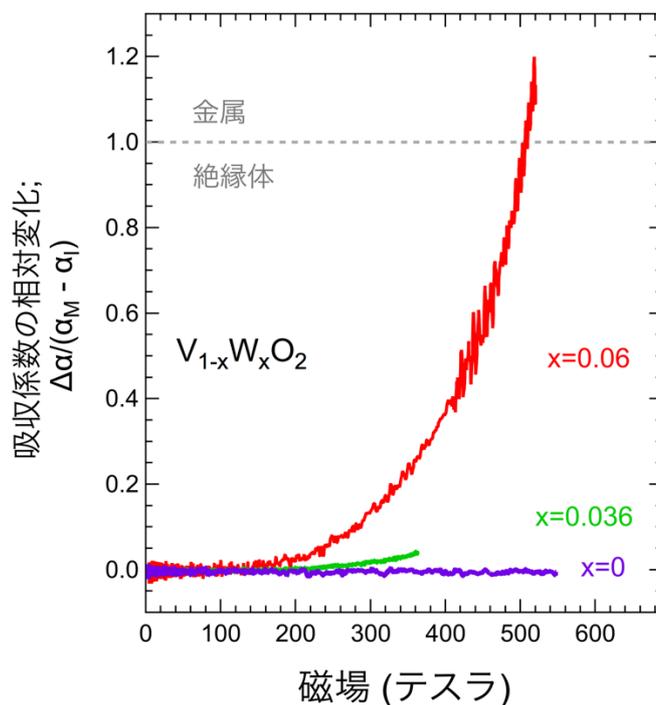


図2. $V_{1-x}W_xO_2$ ($x=0, 0.036, 0.06$)薄膜における、吸収係数 α の相対変化量の磁場依存性。 α_M 、 α_I はそれぞれ、ゼロ磁場における高温金属状態と低温絶縁体状態の吸収係数。 $x=0$ では540テスラまで磁場による金属化は観測されることがわかりました。 $x=0.036$ では、実験時の磁場発生装置の放電スイッチ同期不良により、最高磁場が360テスラまでに制限されましたが、金属化開始の兆候が200テスラ付近から観測されています。

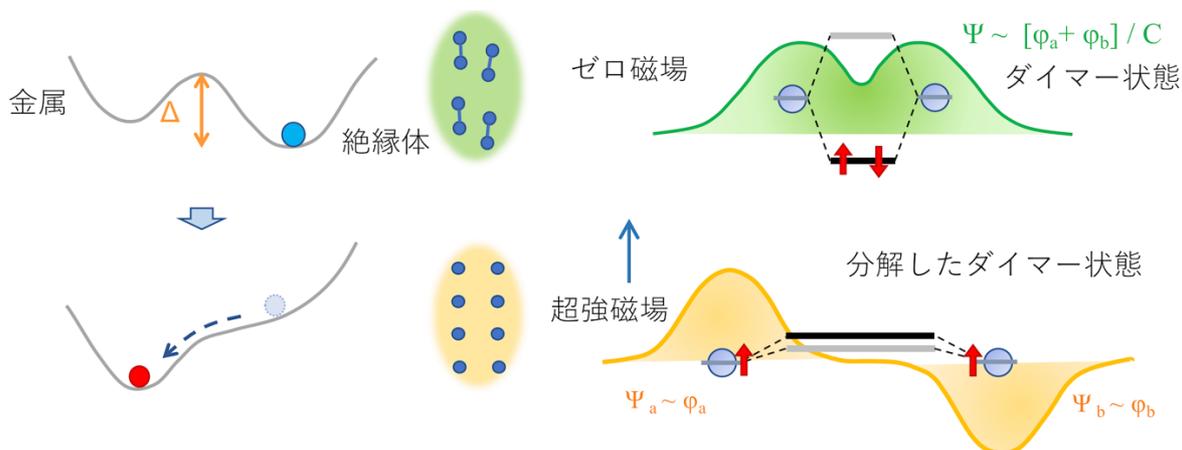


図3. 観測された磁場による金属化を説明する分子軌道崩壊の模式図。左図はポテンシャルエネルギーの変化の様子、中央の図はダイマーの分解を表しています。右図は、磁場によって電子スピンの向きが揃うことで、ダイマーを形成する分子軌道が壊れる様子を示しています。分

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。