

電流による新たな絶縁体金属転移

[1] 要旨

硫化サマリウム (SmS) は、黒色から金色への色の変化を伴う圧力誘起絶縁体金属転移だけでなく、最近、負の微分抵抗を伴う電流誘起絶縁体金属転移 (CIMT) を示すことが報告された。この CIMT の起源を明らかにするために、電流印加下の光反射スペクトルと光電子スペクトルによって電子構造変化を調査した。負の微分抵抗が観測された温度・電流領域では、電流の増加とともに急激なキャリア密度の増加と緩和時間の減少が観測され、さらに平均価数が増加することがわかった。これらの結果は、電流印加によって Sm の 4f 軌道と伝導バンドの混成強度が増加することが CIMT の起源であることを示唆している。

[2] 本文

電気が流れたり磁石になったり透明だったりする性質は、温度や圧力などの外部環境を変化させることで、別の性質が現れる (相転移) ことがある。例えば、高温では普通の金属的な性質を持ったものが低温で絶縁体になるものがあり、金属絶縁体転移と呼ばれている。また、透明で電気が流れない物質 (絶縁体) に圧力を加えることで、不透明になるのに加えて電気が流れ出す (金属化) 現象は、圧力誘起の絶縁体金属転移 (Pressure-induced Insulator-to-Metal Transition: PIMT) である。ほとんどの絶縁体は、地球の中心部のような数百万気圧の下では PIMT を示して金属化するが、稀に一万気圧に満たない低い圧力で PIMT を示す物質がある。このような物質は、通常的环境では相転移の近傍にあり、圧力によって電子・電子間相互作用や電子・格子間相互作用の大きさが変わることによって PIMT を示すと考えられており、その詳細な起源の解明に向けて多くの研究が行われている。このような研究は、圧力やその他の環境を変化させることによるマイクロなスイッチとしての応用が期待されている。

低い圧力で PIMT を示す物質の一つに、硫化サマリウム (SmS) がある。SmS は、大気圧 (1 気圧) では絶縁体で、電気抵抗が高いだけでなく、赤外線や更に長波長のテラヘルツ線も透過する。この物質を、針の先などで傷をつけたり、約 7000 気圧以上の圧力を加えたりすると、PIMT を起こして金属へと変化する。この性質の変化と同時に物質の色が黒色から金色に変化するため、多くの研究者が注目し、これまで数多くの研究が行われてきた。しかしながら、発見から 50 年以上経った現在でも論争があるなど、まだ PIMT の起源が特定されてはいない。

最近になって、圧力とは異なる外部環境での SmS の振る舞いが注目されてきた。その一つに、低温において通常より大きな電流を SmS に流したときに現れる負の微分抵抗がある (図 1a)。通常物質はオームの法則に従うことから、電圧の増加量を電流の増加量で割った値である微分抵抗は電流の大きさに関係なく一定になる。しかしながら、低温での SmS は、電流を上げたときに電圧が下がる負の微分抵抗を示すことが報告されていた。

大阪大学のメンバーを中心とする研究グループは、この負の微分抵抗の元となる電子状態変化を観測することを目的として、研究を行った。電流を印加しながらテラヘルツから真空紫外領域の光反射分光と光電子分光の測定ができる装置を開発して電子状態変化を観測したところ、電流誘起の絶縁体金属転移 (Current-induced IMT: CIMT) を示していることを発見した (図 1b)。そして、電子状態変化を詳細に解析した結果、この CIMT は、原子に局在した 4f 電子が、電流によって動かされ

ることで、4f 軌道と伝導バンドが混成することによって生じていることを明らかにした (図 1c)。この成果は JPSJ の 2024 年 1 月号に掲載された。

本研究で観測された CIMT の金属状態は、PIMT の金属相に比較して、伝導電子密度は低く、また色の变化も PIMT で観測された黒色から金色ではなく、黒色のままだった。このことは、電流によって 4f 軌道と伝導バンドの混成強度を増やしただけでは、金色への相転移は起きないことを示している。PIMT が CIMT と違う点は、圧力による格子圧縮であり、格子の縮みによる相互作用の大きさの変化が SmS の PIMT の起源かもしれない。このことを更に詳しく調査するために、いくつかの外部環境を変えた研究が進められている。1 つは光励起によって励起子を生成した場合であり、もう 1 つは表面にアルカリ金属を吸着させることでキャリアを導入した際の電子状態変化である。これらを統合して考察を進めることにより、PIMT の起源が解明できるものと考えられる。

SmS だけではなく、相転移近傍にある物質は、これまで多くの研究者によって多く発見され、研究が進められている。特に、絶対零度で外部環境のパラメータを変えることで相転移が起こる量子臨界点近傍では、従来の理論では説明できない超伝導や巨大磁気抵抗など、これまでに解明されていない物理現象が現れる。これらの物理現象が現れる時の電子状態を知ることは、物性発現の理由を知り応用する上で重要である。本研究は、このような量子臨界点近傍の物理現象にも他の外部環境変化を取り入れた研究が重要であることを示しており、今後の研究の展開が期待される。

原論文 (2023 年 12 月 7 日公開済)

Current-Induced Metallization and Valence Transition in Black SmS

S. Kimura, H. Watanabe, S. Tatsukawa, T. Nakamura, K. Imura, H. S. Suzuki, N. K. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. **93**, 013701 (2024).

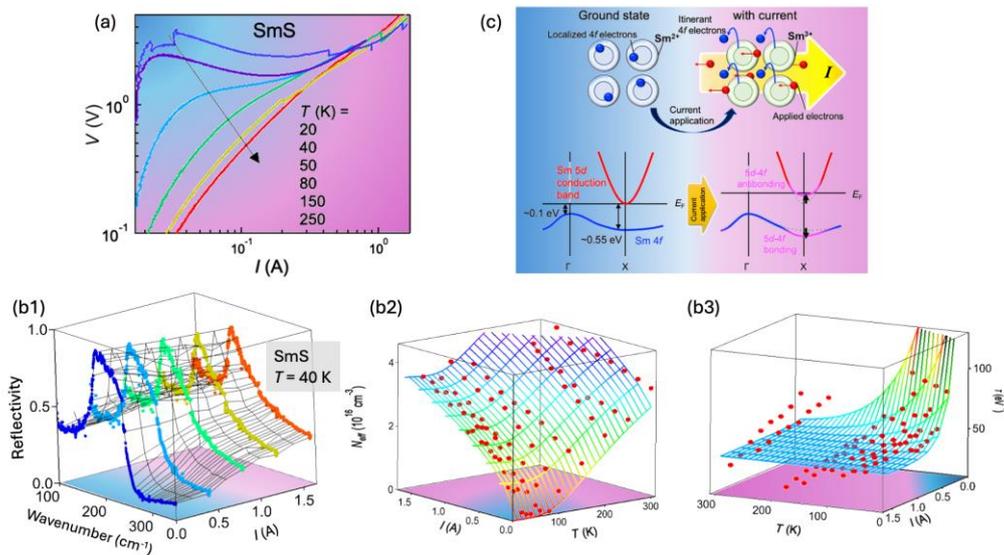


図 1. (a) SmS の I - V 曲線の温度依存性と (b1) テラヘルツ反射スペクトルの電流依存性。 (b2) と (b3) はドルーデ・ローレンツ関数によってフィッティングした結果得られたキャリア密度と緩和時間の電流温度依存性。 (c) 本研究で得られた電流による電子状態変化の模式図。すべての図で、青色は Sm^{2+} 局在状態の領域、紫色は温度・電流による混合原子価状態の領域を示す。