

4. 外国人特別研究員との共同研究の概要（外国人特別研究員との分担状況を明らかにした上で簡潔に記述してください。）

Summary of the collaborative research (Clarify your role and the Fellow's role in the collaborative research.)

【研究背景】 電子同士のクーロン反発力による多体効果が重要となる「強相関電子系」は量子物質の典型で、しばしば電子が「凍結」したモット絶縁体が実現する。その凍結を溶かした導電体では、銅酸化物の高温超伝導やマンガン酸化物の巨大磁気抵抗など顕著な現象が現れる。このようにモット絶縁体という電子凍結状態を制御する方法として、これまで元素置換や圧力・磁場印加が広く用いられてきた。これに対して、最近、中村文彦教授（久留米工大）・前野（京都大学）らのグループは、モット絶縁体 Ca_2RuO_4 に電場・電流を印加することにより、構造相転移をともなう絶縁体・金属転移が起こることを明らかにした（Sci. Rep., 2013）。このような電流によるエネルギーの流れをともなう非平衡状態は、自然界で起こる様々な現象の基本的な舞台でもある。 Ca_2RuO_4 は 110 K 以下の低温で反強磁性秩序を起こすため、定常電流の下でこの磁気転移にどのような変化が起こるのかを調べることは重要な課題であり、これに Sow 博士が取り組んだ。

【研究内容】 Sow 博士がまず手掛けたのは、直流 (DC) 電流の下での非平衡定常状態 (Non-equilibrium Steady States, NESS) にある試料の導電性と磁性を同時に測定する装置の開発である。これには市販の精密磁気測定装置 (MPMS) の試料ロッドを改造したロッドを設計・製作した。電流によるジュール熱で試料の温度が上昇することは不可避であるため、試料冷却とともに試料そのものの温度を正確に測定することが重要となる。このため、磁性測定に誤差を及ぼさない範囲で、試料に極力近い位置にも温度計を配置した。

研究に用いたモット絶縁体試料として層状ルテニウム酸化物 Ca_2RuO_4 を選び、中村教授から提供を受けた浮遊帶法による良質単結晶試料に加えて、Sow 博士自らが京都大学で育成した結晶、そして Sow 博士が久留米工科大学に滞在して育成した単結晶も用いた。また、交流磁化率の測定による高磁場までの新現象の再現性を調べるため、東北大学金属材料研究所 (IMR) の強磁場センターでの実験も 2 回行った。

さらに、 Ca_2RuO_4 以外の物質での非平衡定常状態での効果を明らかにするため、 RuO_2 面 2 層を単位とする積層構造の類縁酸化物 $\text{Ca}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ も用いた。純粋な $\text{Ca}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ は金属であるが、Ru の 0.5% を Ti で置換すると弱いモット絶縁体となる。このモット絶縁体を用いての DC 電流効果を研究した。この研究では、菊川直樹博士 (NIMS) が京都大学で育成した高品質の単結晶を使用した。また、国際共同研究のための単結晶試料は Sow 博士が調製し、走査型近接場顕微鏡による DC 電流下での絶縁相・金属相境界の振舞の研究のために Mengkun Liu 准教授（米国、ストーンブルック大学）、また、ポンプ・プローブ分光による絶縁体-金属転移研究のために Tae-Won Noh 教授（韓国、ソウル国立大学）に送った。

5. 外国人特別研究員との共同研究の成果とその評価

Results and Evaluation of the collaborative research

【研究成果】 2 種のルテニウム酸化物で、モット絶縁相が DC 電流下で顕著に変化し、半金属的導電性と反磁性が出現することを明らかにした。

まず Ca_2RuO_4 については、比較的小さな DC 電流下で絶縁性は強く抑制され、電気抵抗の温度依存性は半金属的になる。この変化に伴い反強磁性秩序状態は、僅か 3 mA (1 A/cm²) の電流によって完全に抑制される。さらに顕著な新現象として、5 mA (1.5 A/cm²) 以上の電流下の低温 (50 K 以下) では、超伝導体が示すマイスナー反磁性を除いては最大となる反磁性を発見した。反磁性の起源に対する理論モデル構築に向けて、岡隆史グループリーダー・北村博士（ドイツ、ドレスデンの Max Plank Institute）、黒木教授（大阪大学）と共同研究を行った。その結果、電流によってモットギャップが減少する実験事実を基にすると、上部および下部ハバードバンドに有効質量が非常に軽い電子および正孔ポケットが出現することを明らかにした。さらにこれらのポケットに熱的に励起された軽い準粒子が、大きな軌道反磁性を示すことも導いた。この論文[1]は Sow 博士を筆頭著者として Science 誌に掲載された。また、東北大学 IMR での高磁場実験では、反磁性磁化率が低温で弱くなることも見出し、熱的に励起された軽質量準粒子の理論で良く説明出来ることも明らかにした。

次に RuO_2 面 2 層系の $\text{Ca}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ については、Ru サイトへの僅か 0.5% の Ti 置換で抵抗率が 8 枠も上昇し、Anderson-Mott 絶縁体の可能性がある。金属-絶縁体転移温度 (T_{MI}) の 50 K、反強磁性秩序温度 (T_N) の 56 K はこの濃度の Ti 導入では変化しない。 Ca_2RuO_4 の反強磁性秩序との違いは、 RuO_2 面 2 層内では強磁的に秩序化していることである。金属領域の抵抗率および磁化は DC 電流下の影響を受けない。しかし絶縁相領域 (50K 以下) では DC 電流下で電気抵抗が顕著に下がる。そして磁気秩序は保ったままで、10 K 以下で反磁性成分が支配的になり負の磁化率を示す。さらに重要な新奇な性質として、電流のオン・オフによって、反磁性をオン・オフできる。この磁性反転オン・オフの約 50 万回の切り替えサイクルを行

っても性質が維持されることを実証した。Sow 博士を筆頭著者とするこの成果論文[5]は、現在 Physical Review Letters 誌で審査中である。

また、関連の国際共同研究にも Sow 博士が提供試料調整等で貢献し、既に 3 報の共著論文[2-4]が出版済みまたは出版予定になっている。さらに Sow 博士が登壇した国内・国際会議での講演も下記の通り 7 件に上った。

【研究成果の意義】本研究は、DC 電流印加という基本的手法による非平衡定常状態 (NESS) が、量子物質に対して従来の制御パラメータではアクセスできない新奇な電子状態を創発しうることを実証したものである。他のさまざまな物質、特に強相関電子系 (SCES) で同様の効果が見込まれる。本研究は今後発展が期待できる新しい分野、すなわち SCES-NESS の物理の開拓に重要な起点を与えた成果といえる。

【成果論文】

- [5] C. Sow, R. Numasaki, G. Mattoni, N. Kikugawa, S. Yonezawa, S. Uji, and Y. Maeno,
In situ control of diamagnetism by electric current in $\text{Ca}_3(\text{Ru}_{1-x}\text{Ti}_x)_2\text{O}_7$,
Phys. Rev. Lett. (2nd round review) (2019), Impact Factor: 8.8, arXiv:1902.02515.
- [4] M-C Lee, C. H. Kim, I. Kwak, C. W. Seo, C. H. Sohn, F. Nakamura, C. Sow, Y. Maeno, E-A. Kim, T. W. Noh, K. W. Kim,
Strong spin-phonon coupling unveiled by coherent phonon oscillations in Ca_2RuO_4 ,
Phys. Rev. B (accepted) (2019), Impact Factor: 3.8, arXiv:1712.03028.
- [3] J. Zhang, A. S. McLeod, Q. Han, X. Chen, H. A. Bechtel, Z. Yao, S. N. G. Corder, T. Ciavatti, H. Tao, M. Aronson, G. L. Carr, M. C. Martin, C. Sow, S. Yonezawa, F. Nakamura, I. Terasaki, D. N. Basov, A. W. Millis, Y. Maeno, M. Liu, Nano-Resolved Current-Induced Insulator-Metal Transition in the Mott Insulator Ca_2RuO_4 , Phys. Rev. X **9**, 011032 (2019), Impact Factor: 14.4.
- [2] M. C. Lee, C. H. Kim, I. Kwak, J. Kim, S. Yoon, B. C. Park, B. Lee, F. Nakamura, C. Sow, Y. Maeno, T. W. Noh, K. W. Kim, Abnormal phase flip in coherent phonon oscillations of Ca_2RuO_4 , Phys. Rev. B **98**, 161115 (2018), Impact Factor: 3.8, arXiv: 1808.06026.
- [1] C. Sow, S. Yonezawa, S. Kitamura, T. Oka, K. Kuroki, F. Nakamura, and Y. Maeno, Current-induced strong diamagnetism in the Mott insulator Ca_2RuO_4 , Science **358**, 1084 (2017), Impact Factor: 37.2, arXiv: 1610.02222.

【Sow 博士が登壇した講演】

- (7) International mini-workshop on Nonequilibrium transport and phase transition in novel materials, Current-induced strong diamagnetism in the Mott Insulator Ca_2RuO_4 , Nagoya Univ., Nov 26, 2018.
- (6) 2nd international workshop on quantum materials and topological materials, Peking Univ., China, Sept 24, 2018.
- (5) International Conference on Magnetism (ICM), Current-induced giant diamagnetism and Mott semimetal behavior in single crystal Ca_2RuO_4 , San Francisco, USA, July 15, 2018.
- (4) JPS Annual meeting, Giant diamagnetism in Ca_2RuO_4 induced by DC current, Tokyo Univ. of Science, Noda, March 22, 2018.
- (3) TMS-EPiQS 2nd Alliance Workshop: Topological magnets and topological superconductors, Current induced Mott-semimetal behavior and giant diamagnetism in Ca_2RuO_4 , Kyoto Univ., Jan 11, 2018.
- (2) ETH-Amsterdam-Kyoto mini-workshop, Current induced giant diamagnetism in Ca_2RuO_4 , Kyoto Univ., Oct 20, 2017.
- (1) JPS Spring meeting, Switching between Mott-insulating state and diamagnetic state with DC current in $\text{Ca}_3(\text{Ru}_{1-x}\text{Ti}_x)_2\text{O}_7$, Iwate University, Sept 21, 2017.