

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 杉田 悠介

杉田悠介氏が提出した博士論文は、「Theoretical study of spin-orbit coupled systems with honeycomb-layered structures (ハニカム層状構造をもつスピン軌道結合系の理論的研究)」というタイトルで、英文で執筆されており、全6章からなる。

原子層1枚からなるグラフェンの発見は、2次元的な電子状態をもつ原子層物質に対する爆発的な研究のきっかけとなった。グラフェンにおいて実現する線形分散をもったディラック電子状態や、スピン軌道相互作用のもとでのトポロジカルな電子状態の可能性は、その後の原子層物理の研究に2つの大きな潮流を引き起こしている。一つは、より大きなスピン軌道相互作用をもつ系の研究である。ここでは、Si, Ge, Snといった重い元素を用いたグラフェン様物質の開発が行われている。もう一つの潮流は電子相関の効果である。そこでは、グラフェンにおけるDirac nodeや、積層グラフェンに現れるquadratic band crossingなどの特異な電子状態に対して、電子相関が様々な不安定性を引き起こす可能性が論じられている。しかしながら、こうした原子層物質においてスピン軌道相互作用と電子相関の協調によって生じる現象については、未だに系統的な研究がなされていない。本論文では、ハニカム構造をもった2次元電子系に着目し、スピン軌道相互作用と電子相関によって生じる新現象を理論的に予言すると同時に、それらが発現しうる物質の設計指針を与えることに成功している。

第1章では、グラフェンに端を発するこれまでの原子層物質研究の進展を概観し、本研究の研究動機を述べている。第2章では、本研究で用いる第一原理計算手法、多軌道ハバード模型、および平均場近似法と線形応答理論について紹介している。

第3章では、遷移金属トリカルコゲナイドを対象とした研究の成果を論じている。従来主に扱われてきた3d電子系だけでなく、4d, 5d電子系も対象とし、特に e_g 軌道が重要な系に着目した研究を行なっている。具体的には、 MPX_3 (M は遷移金属、 X はS, Se)に対して第一原理計算を用いた電子状態計算を行い、 e_g 軌道の電子状態に8つの独立なディラック線形分散が現れることを見出している。その起源として、リガンドを介した第3次近接遷移金属サイト間の電子遷移の重要性を指摘している。さらに、この多重ディラック状態に対するスピン軌道相互作用の効果を調べ、線形分散にギャップが開くこと、そのギャップ構造が三方晶歪みによって制御可能であることを示している。また、電子相関の効果を平均場近似の範囲で調べ、電子ドーピングされた状態において、高いチャーン数をもったトポロジカルな強磁性状態が発現する可能性を指摘している。

第4章では、前章の知見を発展させ、ハニカム構造をもつ e_g 電子系に現れる特異な電子状態を系統的に調べ上げている。具体的には、最近接と第3次近接の電子遷移を含む強束縛模型を提案し、その遷移積分を系統的に変化させることで、グラフェンに似たDirac nodeやsemi-Dirac node、quadratic band crossing、line nodeなど、多彩な電子構造が実現することを明らかにしている。さらに、スピン軌道相互作用を導入することによって、これらの特異なバンド交差にギャップが生じ、高いチャーン数をもつトポロジカル絶縁体や Z_2 トポロジカル絶縁体が発現することを示し

ている。このモデル計算の妥当性を検討する目的で、ハライド化合物 AuX_3 ($X=\text{F}, \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$) に対する第一原理計算を用いた電子状態計算を行い、モデル計算で見出した特異なバンド交差の系統的な変化を確認している。

第5章では、ハニカム構造上の t_{2g} 軌道電子系の考察を行なっている。特に、スピン軌道相互作用と電子相関の協調によって実現するスピン軌道モット絶縁体と呼ばれる状態において、近年量子スピン液体の実現において大きな注目を集めているキタエフ型の異方的な交換相互作用に着目した研究を行なっている。具体的には、結晶構造に極性を導入することによって、リガンドを介した超交換プロセスの干渉を乱した影響を調べている。まず、多軌道ハバード模型に基づいた摂動計算により、極性の導入によって、反強磁性的なキタエフ型相互作用が生じることを見出している。この妥当性を検証するために、混合アニオン系 $\alpha\text{-RuH}_{3/2}\text{X}_{3/2}$ ($X=\text{Cl}, \text{Br}$) に対する第一原理計算を通じて交換相互作用を定量的に見積もり、大きな反強磁性的なキタエフ型相互作用と、その半分程度の強磁性的なハイゼンベルク相互作用が現れることを見出している。

第6章では、本研究の成果に関する総括と、今後の展望が示されている。

以上をまとめると、本論文では、ハニカム構造をもつ e_g 電子系と t_{2g} 電子系に着目し、第一原理計算による電子状態計算と、多軌道ハバード模型に基づくモデル計算を相補的に用いることで、特異な半金属状態やトポロジカル絶縁体をはじめとする興味深い量子状態や、量子スピン液体の安定化に寄与しうる特異な交換相互作用といった多岐にわたる現象を理論的に予言することに成功した。本研究の結果は、こうした現象の背後にある物理を解明するだけでなく、それらが実現しうる物質設計の指針も与えているという点で、基礎物理学的な側面だけでなく、原子層物質の応用上においても重要な成果として、物性科学・物理工学の発展に大きく寄与すると期待される。以上より、本論文審査委員会において審査員全員一致で、本論文が博士（工学）の学位論文として合格であると判定された。

なお本論文は他の研究者との共同研究の成果を含むが、論文提出者が主体となって進めた計算と解析からなり、その寄与が学位授与に当たって十分であることが認められた。