

論文の内容の要旨

論文題目 パイロクロア酸化物におけるフィリング制御金属絶縁体転移と輸送特性

氏 名 金子 竜馬

背景と目的

強相関電子系における物理は、主として強いクーロン相互作用を持つ $3d$ 遷移金属酸化物において精力的に研究されてきた。その中で、電子相関がもたらす多体効果が従来のバンド理論の枠組みを超えた多彩な電子相を生み出すことが明らかにされてきた。高温超伝導や金属絶縁体転移、超巨大磁気抵抗効果といった現象はその一例である。これらに代表されるように、強相関電子系における最大の特徴は電子相関を磁場や圧力といった複数の外部パラメータによって変化させ、異なる電子相の間を劇的に制御できることにある。

一方で近年では、これまでの固体物理学の枠組みすらも超えた取り組み、すなわちトポロジー（位相幾何学）と固体物理学の融合が試みられている。非自明なトポロジーを有する系、或いはそのような系がもたらす物性は、量子ホール効果に現れるような離散性と非散逸性によって特徴づけられる。これらの特徴は、高集積化の限界に近づきつつある既存の電子デバイスを置き換える高密度・高電力効率の新奇デバイスの実現につながる性質である。このような「トポロジカル物性」を強相関電子系の持つ劇的な相転移・多彩な制御性と組み合わせることによって、トポロジカルな電子系の持つ機能性を最大限に発揮できることが期待される。

以上のような背景の下、本論文では強相関電子系であるパイロクロア型遷移金属酸化物を対象とした研究を行った。特に研究対象としたのは遷移金属としてルテニウム、及びイリジウムを含む物質系である。これらの系では $3d$ 電子系と比較して電子間のクーロン相互作用が弱く、代わってフント結合やスピン軌道相互作用といった、よりエネルギー

一スケールの小さい相互作用が物性に顔を出す。更に一部の物質では、強いスピン軌道相互作用に由来するトポロジカルな電子相が実現することが理論的に予想され、いくつかの実験的示唆も存在する。そこで、このような強相関電子とトポロジカルな性質の協奏する系において、その基礎物性を詳らかにすると共に、トポロジカルな性質を利用した新物性・新物質の開拓を目指した。

1. $R_2Ru_2O_7$ におけるバンド幅制御及びフィリング制御金属絶縁体転移

強相関電子系の電子構造を記述するモデルとしてしばしば用いられるのがモット・ハバードモデルである。このモット・ハバードモデルに基づく物理的描像が、比較的電子相関の小さな $4d$, $5d$ 電子系においてどの程度有効であるかを確かめるため、パイロクロア型ルテニウム酸化物 $R_2Ru_2O_7$ に注目し、金属絶縁体転移に伴う電子構造の変化について調べた。まず我々は、 $R_2Ru_2O_7$ において元素置換と静水圧印可を組み合わせ、電子相関のバンド幅制御を広範な領域に渡って試み、バンドギャップの大きさや磁気転移温度の系統性を調べた。次に $R_2Ru_2O_7$ のフィリング制御金属絶縁体転移について調査し、金属絶縁体転移に伴うスペクトラルウェイトの移動を定量的に評価した。そして $3d$ 電子系における先行研究との比較から、モット・ハバードモデルに基づく物理的描像が、 $R_2Ru_2O_7$ においても限られたパラメータ領域では成立していると思われることを確かめた。

2. ホールドープした $R_2Ru_2O_7$ における強磁性相と異常ホール効果

次に、 $R_2Ru_2O_7$ にホールドープして現れた金属相における物理を調べた。 $4d$, $5d$ 電子系では、クーロン相互作用がフント結合や f - d 相互作用などのよりエネルギースケールの小さな相互作用と競合し始めるために、 $3d$ 電子系とはまた異なる物理が現れる可能性が期待される。この金属相における磁気輸送特性を測定した結果、巨大な異常ホール効果に加え、 $Pr_2Ru_2O_7$ にCaを50%以上ドープした領域において強磁性相が現れることを確認した。また、これらの磁気輸送特性の解析から、異常ホール効果には希土類の異方的な f モーメントと伝導電子の d 電子の f - d 相互作用が重要であること、強磁性相は d 電子の強相関効果によって媒介された可能性が高いことを明らかにした。

3. $R_2Ir_2O_7$ におけるトポロジカルなバンド構造と熱電効果

$5d$ 電子系であるパイロクロア型イリジウム酸化物 $R_2Ir_2O_7$ において、半金属的なバンド構造に由来する特異な熱電効果について調べた。常磁性金属として知られる $Pr_2Ir_2O_7$ では、Quadratic band touching (QBT)と呼ばれる、二つのパラボリックなバンドが波数空間の一点で縮退する半金属バンド構造が存在する。このQBTは結晶対称性によって守られた構造であり、従って $R_2Ir_2O_7$ の金属相に普遍的なバンド構造であることが予想される。このQBTにまつわる輸送特性を調査するため、いくつかの $R_2Ir_2O_7$ の組成でホールドープ

を行い、得られた金属相における輸送特性を調査した。この中で、特異な温度依存性を示す熱電効果を発見し、ボルツマン方程式に基づく解析から、この温度依存性がQBTに由来することを示した。また第一原理計算と実験結果との定量的な比較から、 $R_2Ir_2O_7$ の金属相において半金属的なバンド構造と強相関効果によって生じたフラットバンドが共存し、これらが $R_2Ir_2O_7$ の金属相における低エネルギー物理に大きな役割を果たしていることを明らかにした。

結論

本論文ではパイロクロア型構造を持つ $4d, 5d$ 遷移金属酸化物について、電子相関のフィリング制御と、それに伴う特異な輸送特性の開拓を目指した。結果として以下のような知見を得た。

- 一、 $R_2Ru_2O_7$ のバンド幅制御及びフィリング制御金属絶縁体転移に伴う電荷ダイナミクスを調査し、モット・ハバードモデルに基づく物理的描像がモット転移点の近傍では有効と見られることを確かめた。
- 二、ホールドープした $R_2Ru_2O_7$ の磁気輸送特性を調査し、強磁性相の存在とそれに伴う大きな異常ホール効果を確認した。また、それらの起源がクーロン相互作用や磁性が複雑に相互作用した強相関効果によるものであることを提案した。
- 三、 $R_2Ir_2O_7$ の金属相における熱電特性を調査し、結晶対称性に守られたバンド構造に由来する特異な熱電特性が、 $R_2Ir_2O_7$ の金属相において普遍的に現れることを確かめた。