

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 金子 竜馬

強相関電子系における物性は、主として強いクーロン相互作用を持つ3*d*遷移金属酸化物において精力的に研究され、その中で、電子相関がもたらす多体効果が従前のバンド理論の枠組みを超えた多彩な電子相、例えば高温超伝導や超巨大磁気抵抗など、を生み出すことが明らかにされてきた。このような強相関電子系における最大の特徴は、実効的な電子相関を磁場や圧力といった複数の外部摂動によって変化させ、異なる電子相間の相転移を制御できることにある。一方で、貴金属酸化物に代表される4*d*、5*d*電子系では、3*d*電子系と比較して電子間のクーロン相互作用が比較的弱いために、相対的に、フント結合やスピン軌道相互作用など、よりエネルギースケールの小さい相互作用も重要となり、エネルギー非散逸性を特徴とするトポロジカル物性を開拓する上で、大きな注目を集めている。

このような背景の下、本論文は強相関電子系であり、かつ磁性と電荷のフラストレーション効果が顕在化する格子構造(パイロクロア構造)をもつパイロクロア貴金属酸化物を対象として、創発的な物性の発現についての研究を行っている。研究対象としたのは遷移金属としてルテニウムおよびイリジウムを含む物質系であり、4*d*、5*d*電子系における強相関物理を詳らかにすると共に、新物性・新物質の開拓を目指している。本論文は全六章から構成されており、以下にその概要を述べる。

第一章では本研究の全体的な背景として、強相関電子系やトポロジーに関する基礎的・理論的な背景を述べ、関連する実験研究の進展について述べている。また、第二章では本研究で用いた物質合成法、実験的手法について記述している。

第三章では、4*d*電子系である $R_2Ru_2O_7$ (R 、希土類イオン)における電荷ダイナミクスについて実験し、考察している。これまで強相関電子系の電子構造を記述するモデルとしては、しばしばモット・ハバードモデルが用いられてきたが、このモデルが比較的電子相関の小さな4*d*、5*d*電子系においての有効であるか否かは、必ずしも自明ではない。まず $R_2Ru_2O_7$ において元素置換と静水圧印加を組み合わせ、バンド幅制御による相関効果の変化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べ、金属絶縁体転移に伴う光学的伝導度のスペクトル重率の移動を定量的に評価した。その結果、3*d*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、 $R_2Ru_2O_7$ でも金属絶縁体転移近傍においてはよく成立していることを明らかにし

た。

第四章では、 $\text{Pr}_2\text{Ru}_2\text{O}_7$ (Ruあたり4*d*電子数*n*=4)と $\text{Ca}_2\text{Ru}_2\text{O}_7$ (*n*=3)の間の全域でバンドフィリングを制御した混晶系 $(\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ru}_2\text{O}_7$ について、中間フィリング領域に見出した異常金属相の物性を述べている。このドーピングによって現れた金属相における磁気輸送特性を測定し、巨大な異常ホール効果に加え、 $\text{Pr}_2\text{Ru}_2\text{O}_7$ にCaを50%以上($x>0.5$)ドーピングした領域において強磁性相が現れることを確認した。異常ホール効果に関しては、異なる希土類を持つ $(\text{Gd}_{1-x}\text{Cd}_x)_2\text{Ru}_2\text{O}_7$ との比較から、強い磁気異方性をもつPrモーメントの4*f*モーメントと4*d*モーメント間との交換相互作用に起因するスカラースピンのカイラリティによるトポロジカルホール効果が大きく寄与している可能性を提案している。また強磁性相に関しては、第一原理計算結果との比較から、フント結合によって媒介される多軌道の強相関効果とその発現に重要な役割を果たしていることを確かめた。これらの結果から、フィリング制御した $(\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ru}_2\text{O}_7$ が電子相関と磁性、トポロジが相互に絡みあった興味深い電子系であることを結論している。

第五章では、パイロクロアイリジウム酸化物 $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 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ている。常磁性金属として知られる $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 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。QBTは結晶対称性によって守られた構造であり、従って $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 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に関する輸送特性を広範囲の組成物質で調べるため、本論文ではモット絶縁性を有する $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ にホールドーピングを行い、得られた金属相における輸送特性を測定した。この中で、特異な温度依存性を示す熱電効果を発見し、ボルツマン輸送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、ホールドーピングで誘起された $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の金属相において半金属的なQBT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 $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の金属相における低エネルギー物理に重要な役割を果たしていることを明らかにしている。

第六章では、本研究で得られた成果についての総括を記述している。

以上をまとめると、本論文は、パイロクロ酸化物を舞台として化学ドーピングによる広範かつ系統的な電子相関効果の制御を試み、スピン軌道相互作用の効いた4*d*, 5*d*電子系における強相関電子系の基本物性を明らかにしたものであり、物性科学・物理工学の発展に資するものである。よって、本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。