

博士論文（要約）

Metal-insulator transitions in correlated-electron
materials with strong spin-orbit coupling:
pyrochlore iridates

（巨大なスピン軌道相互作用を有する強相関電子系物質
パイロクロア型イリジウム酸化物における金属絶縁体転移）

上田 健太郎

金属絶縁体転移は固体物理学における中心的な研究課題である。特に、電子間の斥力相互作用によるモット転移近傍においては、電荷自由度の局在化だけでなくスピンや軌道自由度も絡んだ様々な秩序相が現れるため、精力的に研究されている。一方、近年のトポロジカル絶縁体発見以来、固体中の相対論的スピン軌道相互作用の重要性が認識されてきた。重い元素を含む $5d$ 電子系酸化物は、現代の物性物理学における二大潮流の交差点に位置付けられ、電子相関とスピン軌道相互作用の協奏が非従来の電子・磁気基底状態を発現させる舞台として注目を集めている。特に、パイロクロア型イリジウム酸化物においては、磁性と結合した新奇なトポロジカル電子相の発現が期待されているが、金属絶縁体転移近傍における電子状態について不明な点が多く残されている。

本博士論文では、パイロクロア型イリジウム酸化物を対象として、金属絶縁体転移の起源の解明、新奇電子・磁気相の探索を目的として研究を行った。その結果、外部圧力や化学置換、外部磁場により電子相関や磁気構造を精密に制御することで、多岐にわたる磁気・電子相が現れることを明らかにした。さらに、反強磁性絶縁体相において、磁氣的界面に高い伝導性を持つ異常な金属状態が存在することを見出した。

本博士論文の構成

1. Introduction
2. Experimental Methods
3. Rh doping-induced metal-insulator transition in $\text{Nd}_2(\text{Ir}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{O}_7$
 - 3.1 Introduction
 - 3.2 Basic properties of $\text{Nd}_2(\text{Ir}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{O}_7$
 - 3.3 Optical spectroscopy on thermal and Rh-doping induced metal-insulator transition
 - 3.4 Summary
4. Electronic state on magnetic domain walls in $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
 - 4.1 Introduction
 - 4.2 Transport and spectroscopic study on domain-wall states
 - 4.2.1 Magnetotransport properties for $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
 - 4.2.2 Terahertz time-domain spectroscopy on domain-wall states for $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
 - 4.2.3 Bandwidth control effect on domain-wall states for $R = (\text{Sm}, \text{Nd}, \text{Pr})$ compounds
 - 4.3 Real-space observation of metallic domain walls by microwave impedance microscopy
 - 4.4 Summary
5. Bandwidth-control metal-insulator transition in $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
 - 5.1 Introduction
 - 5.2 Physical pressure and chemical substitution effect on $R = (\text{Sm}, \text{Nd}, \text{Pr})$ compounds
 - 5.3 Spectroscopic study on metal-insulator transition in $R = \text{Pr}-\text{Y}$ compounds
 - 5.3.1 Experimental results
 - 5.3.2 Discussion
 - 5.4 Summary
6. Magnetic field-induced metal-insulator transition in $(\text{Nd}_{1-x}\text{Pr}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
 - 6.1 Introduction
 - 6.2 Magnetic-field-induced metal-insulator transition in $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
 - 6.3 Bandwidth-control effect on magnetotransport phenomena in $(\text{Nd}_{1-x}\text{Pr}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
 - 6.3.1 Magnetotransport properties along [001] field direction

6.3.2 Magnetotransport properties along [111] field direction

6.4 Summary

7. Summary

3. Rh 置換した $\text{Nd}_2(\text{Ir}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{O}_7$ における金属絶縁体転移

パイロクロア型イリジウム酸化物 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は、低温で反強磁性転移し抵抗率が急激に増加する。本研究では、温度変化、化学置換による金属絶縁体転移近傍における電荷ダイナミクスを系統的に調べることで、金属絶縁体転移の機構に関する知見を得た。

3.2 Rh 置換した $\text{Nd}_2(\text{Ir}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{O}_7$ における基本物性

Rh は周期表で Ir の一つ上に位置するため、Rh ドープは電子数を変化させない化学置換であると考えられる。Rh ドープによって、系統的に磁気秩序と抵抗率の発散が抑制され、10%で最低温まで金属になることを見出した。

3.3 Rh 置換した $\text{Nd}_2(\text{Ir}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{O}_7$ における金属絶縁体転移と電荷ダイナミクス

遠赤外領域から真空紫外領域での広いエネルギー範囲で反射率を測定し光学伝導度を算出することで、金属絶縁体転移近傍における電子構造変化について知見を得た。母物質 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ においては、数百 K の温度変化で 1 eV のエネルギースケールでスペクトルが変化すること、磁気秩序に伴い 45 meV 程度の光学ギャップが連続的に開くことを明らかにした。これは、電子相関が金属絶縁体転移に大きく寄与していることを示唆している。Rh 置換によりスピン軌道相互作用の大きさが実効的に変化し、ギャップの開いた絶縁体からギャップレスな半金属、強相関金属へ転移することを明らかにした。

4. 磁氣的界面における電子状態の研究

多くの強相関電子系においては、金属絶縁体転移に（反強磁性）磁気秩序を伴う。そのため、磁気秩序が局所的に破れる磁氣的界面においては金属状態が保持される可能性が理論的に提唱されていたが、これまでに実証した例はなかった。本章では、電荷輸送測定、テラヘルツ時間分解分光法を用いて磁壁における金属状態の性質を議論した。さらにスタンフォード大学 Z.-X. Shen 教授のグループとの共同研究によるマイクロ波インピーダンス顕微鏡を用いて実空間観測を行った。

4.2 磁氣的界面における金属状態に関する輸送、分光法による研究

反強磁性絶縁体のバルクとは対照的な金属状態が、磁氣的界面に存在していることを発見した。外部磁場により磁壁が消失し、それに伴う巨大な磁気抵抗効果が観測された。テラヘルツ時間分解分光法により、磁壁の金属状態が、散乱確率 2meV 以下のドルーデ応答に類似した振舞を示すことを見出した。

4.3 マイクロ波インピーダンス顕微鏡による金属的磁壁の観測

厚さ 100nm 以下、シート抵抗 1 k Ω 程度の磁壁を実空間で観測することに成功した。さらに、[111]結晶軸方向に外部磁場を印加することで、磁壁を制御することに成功した。

4.4 $R=(\text{Sm},\text{Nd},\text{Pr})$ 混晶系の磁気界面における金属絶縁体転移と電荷ダイナミクス

希土類の平均イオン半径が小さくなるにつれ、電荷輸送特性における磁壁の寄与が系統的に小さくなることを見出した。テラヘルツ時間分解分光法により各組成の磁壁の光学伝導度を得た。実効的な電子相関が大きくなるに従い、ドルーデ重量が小さくなるだけでなく散乱確率も急激に大きくなる様子が観測された。これは、従来のモット転移近傍における質量発散またはキャリア数減少では説明できない、特異な電子状態が磁壁に実現している可能性を示唆している。

5. $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ におけるバンド幅制御による金属絶縁体転移

希土類イオン置換と外部圧力によりバンド幅を制御し、それに伴う金属絶縁体転移を輸送測定、分光測定を用いて議論した。物理パラメータを細かく制御することで精密な相図を作成し、電子相関と強いスピン軌道相互作用が生み出すバルクの磁性と電子状態の関係性を明らかにした。さらに分光測定により各々の相における電子バンド構造に関する知見を得、金属絶縁体転移の起源について考察した。

5.2 $R=(\text{Sm},\text{Nd},\text{Pr})$ 混晶系における外部圧力効果と化学置換効果

電荷輸送測定で外部圧力効果と化学置換効果を調べ、電子相関の実効的な制御が本系の金属絶縁体転移に重要であることを明らかにした。組成 $y=0.8$ ($R=\text{Sm}_y\text{Nd}_{1-y}$) 付近で常磁性絶縁体から常磁性金属へのクロスオーバーが観測され、モット臨界点が付近に存在する可能性を見出した。その組成付近において磁壁の金属性が喪失していることから、バルクの電子状態と強い相関がある可能性を議論した。電荷輸送特性を基に、希土類の平均イオン半径と温度を軸にとった相図を作成し、本系における電子間相互作用と電子・磁気相の分布の関係性を明らかにした。

5.3 $R=\text{Y-Pr}$ における金属絶縁体転移と電荷ダイナミクス

全温度領域で絶縁性の高い $R=\text{Y}$ から、低温まで磁気転移を示さず金属である $R=\text{Pr}$ までの広範な物質群の反射率測定を行い、バンド幅制御による金属絶縁体転移における電子状態変化についての知見を得た。希土類イオン半径の小さい物質 ($R=\text{Y-Sm}$) においては転移温度以上でギャップが開いており、強い電子間相互作用によって電荷が局在していることが明らかとなった。一方、希土類イオン半径の大きな物質 ($R=\text{Sm-Nd}$) においては、常磁性金属から反強磁性への転移に伴い、大きなスペクトル重度が急速に移動し光学ギャップを形成した。これは、反強磁性秩序化が絶縁体への転移に本質的であることを示唆している。さらに、 $R=\text{Pr}$ 近傍の組成では、磁気転移によって特徴的なギャップ構造を形成することを見出した。これは、現存の理論計算結果では説明できず、新奇なトポロジカル電子相の発現可能性が起源の一つとして考えられる。

6. $R=(\text{Nd},\text{Pr})$ 混晶系における磁場誘起金属絶縁体転移

パイロクロア型酸化物においては、幾何学的フラストレーションにより様々な磁気構造をとりえる。Ir 酸化物の電子バンド構造は、磁気対称性を強く反映することが理論計算で提案されている。本章では、磁場や希土類モーメントを調整することにより磁気構造を変調させ、それに伴う電子状態の変化を電荷輸送特性と理論計算を組み合わせで議論した。

6.2 $R=\text{Nd}$ における磁場誘起金属絶縁体転移

[001] 結晶軸方向への外部磁場による巨大磁気抵抗効果を発見した。これは、反強磁性的な磁気配置 (all-in all-out) から強磁性的な磁気配置 (2-in 2-out) への変化に伴う電子相転移と考えられる。 $f-d$ 相互作用を考慮した理論計算により、磁気対称性が変化する過程で巨大な状態密度を有する金属相が現れることが示され、実験結果を矛盾なく説明することに成功した。また、磁気配置と電子相関をパラメータとして多くの磁気・電子相が生じうる可能性を提案した。

6.3 $R=(\text{Nd},\text{Pr})$ における磁気輸送現象

希土類サイトの置換と圧力印加により実効的に電子相関を制御し、その組成での磁気輸送特性を調べた。ホール抵抗率の測定により、理論で予測された電子相が磁気構造変化で逐次現れることを明らかにした。さらに、[111] 結晶軸方向の磁場印加により、強磁性的な磁気構造 (3-in 1-out) 変化に伴って 2-in 2-out 状態とは異なる半金属状態が生じることを見出した。磁場方向により、これまで提案されていなかった新奇なトポロジカル電子相が多数生じることが明らかとなった。