

審査の結果の要旨

氏名 中山 充大

本論文は、パイロクロア型イリジウム酸化物において理論予測された「強相関係のワイル半金属」や層状ルテニウム酸化物において理論予測された「軌道選択的モット転移」の電子状態について、角度分解光電子分光法を用いて実験的な立証を試みたものであり、全6章から構成されている。

第1章の序論では、本論文で着目した4d,5d遷移金属酸化物の研究意義について述べている。これまでの強相関電子系における研究では、クーロン相互作用が大きな役割を担うため、3d電子系が主な研究対象となっていた。しかし、4d,5d電子系では、クーロン相互作用の他にも、スピン軌道相互作用やフントカップリングなどの相互作用を陽に考慮することで、強相関係トポロジカル量子相や軌道選択的モット転移などの未知なる電子状態を探索できることを述べている。

第2章では、研究背景と目的について、それぞれイリジウム酸化物とルテニウム酸化物の二つに分けて述べている。イリジウム酸化物では、スピン軌道相互作用が大きくなるため、スピンと軌道の角運動量が結合した J_{eff} 描像が良い量子数となることを解説している。その結果、波動関数のパリティが反転したトポロジカル量子相が出現することが予測されている。特に、パイロクロア型イリジウム酸化物 $Ln_2Ir_2O_7$ では、放物線状の価電子帯と伝導帯がフェルミ準位で接するフェルミノードと呼ばれるバンド構造を起点として、時間反転対称性が破れた磁気秩序相の中にワイル半金属が出現することを予測した理論について解説している。本論文では、この理論予測を実験的に立証することが目的であると述べている。また、ルテニウム酸化物では、多軌道電子系を反映してフントカップリングが電子相関の軌道異方性を増長する結果、軌道選択的モット転移の発現が理論的に予測されていることを指摘した。しかしながら、ルテニウム酸化物において軌道選択的モット転移を実験的に実証した例はないことを述べている。そこで本研究では、金属絶縁体転移を示す $Sr_3Ru_{2-x}Mn_xO_7$ に着目して、軌道選択的モット転移の有無を実験的に立証することを目的としたことが述べられている。

第3章では、角度分解光電子分光法の原理及び測定系について述べている。

第4章では、角度分解光電子分光を用いて観測したパイロクロア型イリジウム酸化物 $Ln_2Ir_2O_7$ の実験結果について報告されている。ランタノイド元素を系統的に置換し、その基底状態における電子状態と金属絶縁体転移による電子状態の変化を観測している。まず、 $Pr_2Ir_2O_7$ の基底状態では、理論予測されていたフェルミノードを実験的に初めて実証した。フェルミノードが実証できたことにより、時間反転対称性や立方対称性を破ることで強相関係トポロジカル量子相にアクセスできることが指摘されている。時間反転対称性が破れた磁気転移と共に金属絶縁体転移を示す $Nd_2Ir_2O_7$ においては、 $Pr_2Ir_2O_7$

と同様に金属相でフェルミノードを観測した。それと同時に、温度依存性を詳細に測定することで、スレーター絶縁体からモット絶縁体へとクロスオーバーする金属絶縁体転移の様子を観測した。この結果を理論計算と比較することによって、ワイル半金属が磁気転移温度直下に存在することを指摘した。 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ においては、基底状態で準粒子描像が破綻したモット絶縁体が出現することを明らかにした。さらに、Eu と Ir の組成比ずれによって絶縁体転移の起源が電子相関由来から磁気秩序由来へと変わる様子を観測した。この結果から、 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の近傍にモット転移点が存在することを指摘している。

第 5 章では、角度分解光電子分光を用いて観測した層状ルテニウム酸化物 $\text{Sr}_3\text{Ru}_{2-x}\text{Mn}_x\text{O}_7$ の実験結果について報告されている。Mn を系統的に置換していくと、Mn5%置換の組成において、擬二次元的な d_{xy} 軌道のみが絶縁体へと転移する様子を観測した。 d_{xy} 軌道の準粒子が消失することによって絶縁体化することから、 d_{xy} 軌道のみがモット転移する軌道選択的モット転移が実現していることを直接的に明らかにした。また、軌道選択的モット転移が発現する結果、フェルミ面が二次元的な形状から一次元的な形状へと変化することを観測した。この転移における起源として、Mn $3d_{x^2-y^2}$ と Ru $4d_{xy}$ の相互作用によって起きている可能性を指摘している。

第 6 章では、本研究全体の総括がなされている。

なお、本論文の一部は、金井洋貴、中島祐貴、山本遇哲、山本貴士、大田由一、吉田力矢、石川洵、Zhaoming Tian、Mario Halim、Malaeb Walid、Cedric Bareille、Eun Gook Moon、Ru Chen、富田崇弘、出田真一郎、黒田健太、石田行章、井波暢人、田中清尚、松波雅治、木村真一、小野寛太、組頭広志、Leon Balents、中辻知、近藤猛、辛埴各氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験及び解析を行ったものであり、また共同研究者全員の同意承諾書が提出されていることに鑑み、論文提出者の寄与が十分であると判断できる。

したがって、本委員会は論文提出者に対し博士(科学)の学位を授与できると認める。

以上 1980 字