

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 田口康二郎

近年、半導体エレクトロニクスに続く次世代技術としてスピネレクトロニクスについての関心が高まりつつある。これに伴って、物性工学の観点からは、固体中のスピ制御による電子物性、光物性の制御が中心的課題の一つとなっている。本論文はこのような背景のもとに、パイロクロア型モリブデン酸化物という独特な格子構造をもつ強磁性体を対象に行われた。パイロクロア型構造を有する酸化物は、その構造に由来する幾何学的フラストレーションという観点から、主に磁性に関して研究が行われてきた。特に、B-サイトがモリブデンである場合には、A-サイトの希土類イオンを変えることによって、基底状態はスピングラス絶縁体から強磁性金属へと転移することが知られていた。従来の研究が焼結体試料に対して行われていたのに対し、本論文では溶融結晶試料を作成し、金属絶縁体転移にともなう電子構造の変化を光学測定によって明らかにした。さらに、強磁性金属相における異常ホール効果や光磁気カー回転といった、伝導率テンソルの非対角成分に着目し、スピンの自明でない構造が電荷ダイナミクスに与える影響を明らかにした。

本論文は、6章からなる。

第一章では、序論として、本研究の背景が述べられている。特に、本研究で扱った物質系に最も特徴的である幾何学的フラストレーションに関する知見が述べられており、これを踏まえて、本論文の目的および意義が述べられている。

第二章では、試料作成法、輸送現象（抵抗率、ホール効果）測定、光反射率測定、光磁気カー回転測定、中性子回折実験などの各種実験方法が詳細に述べられている。

第三章は、希土類イオンを変えたときの金属絶縁体転移の様子を抵抗率や光学スペクトルの結果から議論している。まず溶融試料を用いた抵抗率と磁化の測定結果からこの系の電子相図を作製し、これが過去の結果と一致するものであることを確かめている。さらに、スピングラス絶縁体と強磁性金属の代表物質として $Y_2Mo_2O_7$ (YMO)と $Sm_2Mo_2O_7$ (SMO)を取り上げ、反射率測定から求めた光学伝導度スペクトルを示し、金属絶縁体転移に伴って1eVといった大きなエネルギースケールで電子構造が変化していることを明確にしている。さらに、SMOの場合、強相関金属の特徴、すなわち、基底状態における小さなドゥルーデピークと支配的な中赤外域のインコヒーレント吸収、およびドゥルーデピークの消失を伴った大きな温度変化などが観測され、本物質系の過去の研究において十分考慮されていなかった電子相関効果の重要性を明らかにしている。

第四章は、強磁性金属相における異常ホール効果についての結果を示し、その機構に関する議論がなされている。まず、 $Nd_2Mo_2O_7$ (NMO)系において、中性子回折実験の結果と合わせて、スピン状態と異常ホール効果との相関を明らかにしている。異常ホール効果は、強磁性転移温度以下2 Kに至るまで、低温に向けて増大し続けるが、40 K付近

での Nd モーメントが急速に増大する温度以下で顕著な異方性を示す。さらに、縦伝導率とモリブデンスピンの磁化が飽和する 20 K 付近以下においても、ホール伝導率のみが温度変化を見せるという異常な振る舞いを示している。このような振る舞いは、実験的にも理論的にも従来の異常ホール効果に関する定説とは相容れないが、スピンの作る非自明な構造、あるいはスピнкаイラリティーが異常ホール効果をもたらすとする最近のベリー位相理論とは定性的にも定量的にも一致するものであることを述べている。さらに、SMO 系において、Sm を Ca で 10%置換したときに、縦伝導率と磁化は 30%程度しか変化しないにもかかわらず、ホール伝導率のみが 800%にもおよぶ変化を見せることを明らかにした。このようなホール伝導率の極めて敏感なフィリング依存性も、従来の見方からすれば異常であるが、ベリー位相理論の予想とは一致するものであり、これらの実験結果から、この系における異常ホール効果はスピнкаイラリティーによってもたらされるものであると結論している。

第五章は、ホール効果の有限周波数版である光磁気カー効果の結果について、ホール効果と対比しながら検討している。まず、NMO において、プラズマ周波数付近で 0.2° 程度のカー回転角を観測し、これがマグネタイトやニッケルといった典型的強磁性体のカー回転角と同程度であり、また、光磁気記憶媒体として実際に用いられている物質のそれとも同程度であることを述べている。また、温度依存性が強い領域は 0.17eV 以下に限られるが、赤外域においても有限のホール伝導率が残っていることが明らかになった。スペクトルの解釈としては、コヒーレント成分とインコヒーレント成分の 2 成分にわけて考えるのが妥当であるとし、その際、ペロブスカイト型マンガン酸化物と比較して、インコヒーレント部においても光学伝導度の非対角成分にスピнкаイラリティーの影響がでている可能性があることを示唆している。

第六章は、本論文のまとめにあてられている。輸送現象と光学測定の結果をあわせて、本物質系においては、電子相関効果が重要なこと、および、それによって 1eV 程度のエネルギー領域にまでスピン状態が電荷ダイナミクスに影響を与えていることなどを総合的に討論している。最後に、この結果を踏まえて、将来の光磁気デバイスへの可能性について言及している。

以上を要するに、本論文ではパイロクロア型モリブデン酸化物において、熔融結晶を用いた輸送現象、光学測定の結果から、この系における電子相関効果の重要性を明らかにし、この強相関効果の現れとして、スピンの自明でない構造が直流および光学伝導率の非対角成分を生み出し得ることを初めて示した。強相関系におけるスピンと電荷の複合物性という観点から、また将来のエレクトロニクスへの新しい可能性を与えたという点からも、物性工学の進展に寄与するところが大きい。

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。