

審査の結果の要旨

論文提出者氏名

戸部 克弘

現在、ペロブスカイト構造を有するマンガン酸化物の示す多彩な物性が、基礎科学的観点のみならず応用分野からも大きな注目を集め、盛んに研究がなされている。近年の精力的な研究によって、3d e_g 伝導電子が有する軌道自由度が、マンガン酸化物の示す複雑な磁気構造や電子相転移において重要な役割を担っていると認識されるようになってきた。軌道の方向秩序及びそれによって誘起される異方的な磁気秩序が、系の電子構造に著しく異方性を与えることは容易に想像できる。しかし良質な非双晶試料の育成は困難であり、現在までに電子構造の異方性が研究されることはほとんど無かった。本研究は、電子相図におけるほぼ全ての相にわたって良質の非双晶単結晶を作製し、光学伝導度スペクトルの異方性とその温度変化を測定することによって、複雑な軌道・スピン秩序が電子構造へ与える影響を明らかにしたものである。

本論文は全7章からなる。

第1章では、研究の背景となるペロブスカイト型マンガン酸化物の結晶構造、電子構造の特徴について概説した後、本研究の目的と本論文の構成について述べている。

第2章では、実験に用いた単結晶試料の作製及び非双晶化の詳細と、光学測定の詳細、得られた光学スペクトルの解析方法について述べている。

第3章から第6章までが具体的な実験結果とそれに関する議論を述べた部分である。

第3章では、母物質 LaMnO_3 と La サイトを置換した RMnO_3 ($R = \text{La, Pr, Nd, Sm, Gd, Tb}$) 系に関する実験結果を示している。 LaMnO_3 の光学伝導度スペクトルには電荷ギャップ遷移に対応するピーク強度に軌道秩序の型を反映した明瞭な異方性が観測され、スペクトルの異方性やギャップ構造の温度依存性は、電子構造を決定する上で軌道整列が重要な役割を果たしていることを示している。また、実験結果を O 2p 軌道と Mn e_g 軌道を考えた Slater-Koster の方法による遷移強度計算と比較して議論し、電子構造を議論する上で O 2p 軌道と Mn e_g 軌道の混成が重要な役割を果たしていることを明らかにしている。

第4章では $x=1/2$ 付近で見られる CB 型電荷・軌道整列反強磁性相の典型例として $\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ 系を取り扱っている。光学伝導度スペクトルの温度依存性からは、電荷・軌道整列によって 2 eV 以下のスペクトル強度が再分配され、ギャップ構造が形成されるという電子構造の変化が明らかにされた。

第5章はフィリング制御系 $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ に関する実験結果であり、特に高ドーピング濃度領域で見られる低次元的な軌道・スピン秩序状態に焦点を当てている。A 型及び C 型秩序状態で、スペクトルは軌道・スピン秩序を反映して顕著な偏光依存性を示し、この異方性は常磁性相においても観測され、磁気転移点よりはるかに高温まで $3z^2-r^2$ 型軌道整列が存在することを示唆している。また、3 次元的強磁性金属を示す系に対する測定結果と比較することによって、二重交換系の電荷ダイナミクスと伝導の次元性の関係について議論している。

第6章では電荷・軌道整列相や強磁性金属相が競合している領域で見られる複雑な相変化を対象として $\text{Pr}_{1/2}\text{Sr}_{1/2}\text{MnO}_3$ 及び $\text{Nd}_{1/2}\text{Sr}_{1/2}\text{MnO}_3$ を扱っている。両組成のスペクトルは磁気相転移を通して大きな温度変化を示す。特に、従来は等方的であると考えられていた強磁性金属相の電子構造にも異方性が存在することが明らかにされた。これは、強磁性金属相においても軌道の方

向秩序が存在することを強く示唆している。

第7章では、本研究で得られた成果をまとめて、本研究の意義を述べている。

以上を要するに、本論文では、磁気電子材料として高いポテンシャルを有するペロブスカイト型マンガン酸化物の電子構造について、非双晶試料を用いた光学スペクトルの偏光・温度依存性の測定によって詳細な知見を得た。マンガン酸化物の複雑な相図におけるほとんど全ての軌道・スピン秩序相にわたって系統的で詳細な実験データが得られており、その結果、O 2p-Mn e_g 軌道混成の重要性、軌道秩序による電子構造の再構成、二重交換系の電荷ダイナミクスと次元性との関連、常磁性相や強磁性金属相においても存在する軌道相関と異方的な電子構造といった多くの新たな、重要な知見が得られた。これらの点で、本研究は物性物理学、物理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。