

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名

大串 研也

磁性体におけるスピン軌道相互作用は、相互作用のエネルギースケールこそ小さいものの、永年、研究対象になってきた。これは、スピン軌道相互作用が他の相互作用と定性的に異なるが故に基礎科学的な観点から興味深いのみならず、光アイソレーターや磁気ディスクのように応用上も重要であるからである。本研究では「スピン軌道相互作用から新奇な量子現象が生じる可能性」と、「いかにして小さなエネルギースケールを持つスピン軌道相互作用から巨大な応答を引き出すか」の二点に着目し研究が行われている。対象とする物質としては、スピネル型クロム化合物  $\text{MCr}_2\text{X}_4$  ( $\text{X} = \text{S}, \text{Se}$ ) が選ばれ、特に M の二価イオンが磁性を持つ  $\text{M} = \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Co}, \text{Cu}$  に重点が置かれている。

本論文は全6章からなる。

第1章では、研究の背景となるスピン軌道相互作用由来の物理現象、及びスピネル型クロム化合物の物性に関して現在までに知られていることを概観し、しかる後に本研究の目的と本論文の構成を述べている。

第2章では、実験に用いた結晶の作製方法、実験手法、及び実験データの解析法について述べている。

第3章から第5章に実験、解析結果とそれに関する議論が述べられている。

第3章では酸化物、カルコゲン化物両者に対する系統的な分光と配位子場理論に基づいた解析を行った結果得られた、系の電子構造に関する知見が述べられている。(1) カルコゲナイドにおける真空紫外領域まで及ぶスペクトル重率の低エネルギーへのシフト、(2) d-d 遷移の振動子強度の相違、(3) 硫化物における大きく繰り返されたラカー係数、(4) スピン軌道相互作用の定数の相違、(5)  $\text{CuCr}_2\text{O}_4$  と  $\text{CuCr}_2\text{Se}_4$  の電子構造の大きな違い、などの考察からカルコゲナイドにおいて配位子の p 軌道が遷移金属の d 軌道との強い混成とその影響を定量的に明らかにしている。

第4章ではカルコゲン化物に対し磁気カー効果を測定した結果を議論している。 $\text{FeCr}_2\text{S}_4$  と  $\text{CoCr}_2\text{S}_4$  においてスピン許容 d-d 遷移に共鳴した  $4^\circ$  を超える巨大磁気カー効果を観測し、振動子モデルに基づいた解析によりその巨大性の起源が本系に特徴的な d-d 遷移の大きな振動子強度にあると議論している。 $\text{MnCr}_2\text{S}_4$  においては、スピン禁制 d-d 遷移を観測し配位子場モデルで解析を行っている。これら3, 4章での分光的研究によって、一群のスピネル型クロム化合物の d-d 遷移の詳しい特徴と系統性が、はじめて明らかになった。

第5章では零エネルギー近傍のスピン軌道結合の物理が議論されている。カルコゲン化物における立方異方性定数は  $K_1(\text{Fe}) > K_1(\text{Co}) > 0 > K_1(\text{Cu})$  なる関係を持っており、この関係を(1)  $\text{M}=\text{Cu}$  の系は磁気異方性が  $\text{Cr}^{4+}$  から生じていること、(2) 配位子場分裂エネルギーが  $\Delta(\text{Fe}) < \Delta(\text{Co})$  であること、から説明している。キャリアをドーピングして低抵抗化を図った  $\text{FeCr}_2\text{S}_4$  における磁気輸送現象は強い異方性を示すが、従来の磁性体での報告例を遥かに凌駕する 99% に達する異方的磁気抵抗を見出している。またその巨大性の起源を配位子場分裂エネルギーが小さい事に由来する大きなジャロシンスキー-守谷 (D-M) 相互作用に求めて、微視的な解釈を与えている。一方、この物質の異常ホール効果の磁場方位角度依存について、コサイン曲線から外れる明瞭

な異方性も観測している。その異方性を、D-M 相互作用を取り入れた強束縛モデルに基づく理論計算により再現し、異常ホール効果の物理とパリティ異常を関連付けて論じている。

第6章では、本研究で得られた成果をまとめている。

本論文には2つの補章が設けられている。

付録 A では、第3章、第4章で使われている配位子場理論が要約されている。

付録 B には、第5章で議論されているモデルに対するホール伝導度の具体的な計算が述べられている。

以上を要するに本論文では、スピネル型クロム化合物における、磁性、輸送現象、光学現象に現れるスピン軌道相互作用の物理を、伝導、磁性現象から赤外-紫外光学スペクトルに及ぶ広範なエネルギー範囲で系統的に調べた。その結果、磁気カー効果と異方的磁気抵抗の巨大化、異方的異常ホール効果の観測とそのパリティ異常の関連、磁気異方性の配位子場理論に基づく理解等、多くの新しくかつ重要な知見を得ている。また、スピンエレクトロニクス/material研究上、重要な意義をもつスピネル型クロム化合物において、一連の系統的な分光的研究によって、その電子構造の特徴を明らかにするとともに、酸化物とカルコゲナイドの大きな相違についても、重要な知見を得た。

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。