

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 石坂 香子

強相関電子系における秩序形成は、多体効果のみならず自己組織化現象として多くの関心を惹き、盛んに研究されている。また秩序形態やその形成過程は系の電気伝導性、磁性、光学物性とも強く結合するため、新機能材料開発などの工学的見地からも重要となっている。その中で、本研究で対象とした層状ペロブスカイト型ニッケル酸化物  $R_{2-x}Sr_xNiO_4$  ( $R=La, Nd$ ) はストライプ型スピン電荷秩序を示すことでよく知られる系である。本論文では、幅広い組成領域で作製した大型良質単結晶を用いて、回折実験や光学測定などを系統的に行った結果を述べている。

本論文は全5章からなる。

第1章では、研究の背景となる層状ペロブスカイト型ニッケル酸化物の結晶構造、電子構造の特徴について説明し、本研究の目的を述べている。

第2章では、単結晶試料の作製および評価、光学測定、中性子回折、放射光 X 線回折などの実験方法について説明している。

第3章では、 $R_{2-x}Sr_xNiO_4$  ( $R=La, Nd$ ;  $0.33 < x < 0.7$ ) を対象とした中性子回折と光学測定の結果を説明している。これまで  $x > 0.5$  での単結晶作成が困難のため研究が進んでいなかったが、R に Nd を使うことにより高濃度領域の試料を得ることが出来た。この結果、低ドーピング側で観測されるストライプ秩序とは異なる起源を有する、高温のチェッカーボード (CB) 型秩序形成を  $x \geq 0.5$  の高ドーピング領域で新たに観測した。一方のストライプ秩序も  $x=0.7$  まで確認され、高ドーピング領域では2相が共存・競合する複雑な秩序状態が形成されることが明らかになった。また、系の電荷ダイナミクスはCB型電荷秩序とその動的相関に支配されており、 $x=0.9$  における絶縁体-金属転移がCB型電荷秩序の融解とともに起こることが示唆された。これらは、電荷秩序・ストライプ現象のプロトタイプと考えられていた、層状Ni酸化物において、その全体を俯瞰して、異なる秩序間の競合までをも明らかにした重要な成果である。

第4章では、ストライプ秩序の最も安定することが知られる  $La_{2-x}Sr_xNiO_4$   $x=1/3$  近傍に焦点を当てている。本研究では、高波数分解能を有する放射光 X 線回折実験を行い、そのストライプ秩序形成過程を詳細に調べた。その結果、 $x < 1/3$  領域でのみ顕著化する整合-非整合クロスオーバーを観測した。このようなクロスオーバーは、ハーフ・フィールド電荷ストライプ中に電子が入り出すことにより生じると考えられる。本論文では、電荷ストライプ中のホール濃度が変化することを許した理論モデルの解析により、この振る舞いを半定量的に再現した。また、クロスオーバーに伴い生じる余剰電子により、転移温度以下での残留エントロピーの発生が期待されるが、これを比熱測定により実際に確認した。このように、ストライプ秩序が、その内包するホールの濃度を温度によって変えるという、自己組織化強相関電子のまったく新しい側面を明らかにしたものであり、この成果は高く評価される。

第5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。

以上をまとめると、本論文では層状ニッケル酸化物の秩序形成現象について、幅広い組成領

域の良質単結晶を作製し、回折実験、分光測定などの多岐にわたる測定を行い相補的な知見を得た。これにより、秩序形態を明らかとするに留まらず、系の伝導性など基礎物性との関連についても総括的に議論している。その結果、室温以上の高温から発達する新たな秩序の観測、絶縁体-金属転移と秩序形成の関連性、電荷ストライプの可圧縮性、ストライプ形成時の相転移現象などについて、様々の重要で新たな知見を得ることが出来た。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。