

論文審査の結果の要旨

氏名 栗山 博道

本論文は、題目「イリジウム酸化物におけるスピン軌道相互作用と電子間相互作用 (Spin-orbit coupling and coulomb interaction in iridium oxides)」に表現されるように、イリジウム酸化物における強いスピン軌道相互作用とそれと同程度の電子間相互作用が、どのように系の基底状態を決めるかを明らかにした研究である。論文は全六章からなる。

第一章では、研究の背景が述べられている。周期表において $3d$ 、 $4d$ 、 $5d$ と下方の元素になるにつれて金属的な電子状態が得られることが単純には期待される。このため、 $5d$ 遷移金属イリジウム酸化物 Sr_2IrO_4 が Mott 絶縁体となることの異常性が注視されている。この新奇な Mott 絶縁体が、スピン軌道相互作用に誘起されたものであるとする最近の研究を紹介し、イリジウム酸化物におけるスピン軌道相互作用の重要性を強調している。スピン軌道相互作用を物質開発に積極的に取り入れることで、 $3d$ 、 $4d$ 遷移金属酸化物では成しえなかった電子相、機能開拓の可能性が示唆されており、研究の動機につながっている。

第二章では、研究の目的、物質開発の特徴、そして結果の概略が述べられている。 Sr_2IrO_4 における新奇な Mott 絶縁体の実現を受けて、イリジウム酸化物においてスピン軌道相互作用と電子間相互作用が、系の基底状態を決定する重要な相互作用であることに着目している。この観点から、結晶構造に依存したスピン軌道相互作用の効果を系統的に理解すること、スピン軌道相互作用に起因した新奇な電子相の実現を研究の目的として掲げている。目的実現のために、基板を鋳型とした薄膜合成によって結晶をデザインし、実験的、第一原理計算のアプローチから電子状態の解明を試みる。結果、三つの物質 CaIrO_3 、 Ir_2O_4 、 Na_2IrO_3 の開発に成功し、それぞれがスピン軌道相互作用に起因した新奇な基底状態をとることを明らかにした。

第三章では、斜方晶ペロブスカイト CaIrO_3 がスピン軌道相互作用によって誘起された半金属状態であることが述べられている。まず、薄膜合成によってバルクでは合成の難しい CaIrO_3 が単結晶薄膜として得られ、精密な物性測定の結果、低キャリアの半金属状態にあることが示されている。さらに、この半金属状態がスピン軌道相互作用によって誘起されることを、光学伝導度の特徴的なピーク構造と第一原理計算との対応から結論付けている。頂点共有で連結された IrO_6 八面体のかしぎとスピン軌道相互作用の協奏が半金属の電子構造を生み出す鍵であることを指摘している。さらにその延長上にはスピン軌道相互作用によってエネルギーギャップの開いた絶縁体が期待されることを候補物質とともに示している。

第四章では、新規スピネル型 Ir_2O_4 がスピン軌道相互作用によって誘起された新奇な Mott 絶縁体となることが述べられている。まず Ir_2O_4 が薄膜合成とソフト化学的手法を駆使して合成された

新物質であり、放射光を用いた振動写真などから、 Ir_2O_4 がスピネル型構造を有することが示されている。 Ir_2O_4 は Sr_2IrO_4 と同様にスピン軌道相互作用によって誘起された Mott 絶縁体であるが、結晶構造の対称性の相違に起因して、 Sr_2IrO_4 とは異なる基底関数をとることが指摘されている。このように Ir_2O_4 の発見から、スピン軌道相互作用誘起 Mott 絶縁体の多様性を見出している。さらに Ir_2O_4 は幾何学的フラストレーションの強い結晶構造を有するため、磁気モーメントのフラストレーションや特異な電子状態‘強相関トポロジカル絶縁相’の発現といった、研究の進展が期待される。

第五章では、 Na_2IrO_3 がスピン軌道相互作用と三方晶の強い結晶場によって特異な基底状態をとることが述べられている。まず、バッファ相の導入によって、単結晶基板と Na_2IrO_3 との格子定数の不整合を解消し、結晶性の良い薄膜試料が得られたことが述べられている。結果、 Na_2IrO_3 は Mott 絶縁体であるが、スピン軌道相互作用でギャップの開いた絶縁体に程近い状態であることが、他のイリジウム酸化物絶縁体(Sr_2IrO_4 、 Ir_2O_4)の光学伝導度との比較から推察されている。

第六章では、論文のまとめと今後の展望が述べられている。イリジウム酸化物の基底状態が結晶構造、スピン軌道相互作用、電子間相互作用によってどのように決まるかを系統的に理解できることが述べられている。そして今後の展望として、スピン軌道相互作用を活かした機能性材料の開発指針が示されている。

なお、本論文は高木英典、松野丈夫との共同であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上、本研究はイリジウム酸化物における結晶の横断的考察から、スピン軌道相互作用に起因した新奇な基底状態が、結晶構造とスピン軌道相互作用、電子間相互作用の協奏によって発現することを実証した。これらの結果はスピン軌道相互作用の強い $5d$ 遷移金属酸化物における物性物理、物質科学に貢献すること大である。したがって、博士(科学)の学位を授与できると認める。