

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 号
------	---------

氏 名 五十嵐 太一

論 文 題 目

面共有の RuO_6 構造を含む $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ と $\text{Ba}_3\text{MRu}_2\text{O}_9$ の
構造と機能の相関

論文審査担当者

主 査	名古屋大学大学院理学研究科	教 授	博士(工学)	寺 崎 一 郎
委 員	名古屋大学大学院理学研究科	教 授	工学博士	和 田 信 雄
委 員	名古屋大学大学院理学研究科	教 授	理学博士	神 山 勉
委 員	岡山大学大学院自然科学研究科	教 授	理学博士	野 上 由 夫

論文審査の結果の要旨

別紙 1 - 2

1986 年の高温超伝導の発見以来、遷移金属酸化物の基礎物性が注目され精力的に研究されてきた。主要な物性を担う価電子バンドは遷移金属の d 軌道からなり、その狭いバンド幅のため伝導電子間のクーロン斥力が十分に遮蔽されない。そのためバンド計算から予想される単純な一電子描像が成り立たない系、強相関電子系が実現する。強相関電子系では、電子の電荷・スピン・軌道の自由度が秩序化することで様々な相転移が生じる。新奇な相転移の発見と理解がこの分野の大きな目標である。

これまでの遷移金属酸化物の研究対象は、遷移金属と酸素イオンが作る八面体構造が頂点を共有して単位胞を構成する物質群が中心であった。それに対して申請者は八面体が面を共有する構造を含む特異な酸化物に注目した。具体的に注目した物質は $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ である。この物質は、三つの RuO_6 八面体が面を共有した Ru_3O_{12} 三量体を結晶構造の基本要素としている。三量体内での $\text{Ru}-\text{Ru}$ 距離は金属 Ru のそれより短く、強い軌道混成が生じている。申請者はこの特徴に注目し、 $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ の電子状態の理解と、105 K で生じる常磁性金属から反強磁性絶縁体への電子相転移の起源の解明を試みた。

まず申請者は、 $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ の単結晶試料を作成し、その X 線回折測定を室温から 78 K まで行った。そして信頼度因子 2% という高精度で精密に構造を解き、原子位置の詳細な情報から、 Ru イオンの価数が三量体内部で不均一化しており、温度低下とともにそれが進行することを見出した。そして、その結果を説明する電子状態モデルを構築し、これまで得られた他の実験結果をも説明できることを示した。

次に申請者は、上で提唱した電子状態モデルを用いた電子相転移機構を確かめるため、 Ru サイトを Ir で部分置換した多結晶試料 $\text{Ba}_4\text{Ru}_{3-x}\text{Ir}_x\text{O}_{10}$ を作成し、磁化率、比熱、抵抗率、熱電能を測定、解析した。その結果、105 K で生じる相転移は Ir 置換によって強く抑制されること、しかしながら磁気相互作用の大きさはほとんど変化しないことを見出した。このことは、105 K の相転移が、磁氣的相互作用ではなく軌道の秩序化によって生じていることを強く示唆しており、上の電子状態モデルと整合することを見出した。

さらに申請者は、 $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ で議論した面共有 RuO_6 構造の特異性を確かめるために、二つの RuO_6 八面体が面共有して二量体を形成している系である $\text{Ba}_3\text{MRu}_2\text{O}_9$ の物性の理解を試みた。この物質では M イオンによって系の磁氣的基底状態が異なることが知られていた。申請者は M イオンが Zn の場合、系がスピン液体状態の候補であることを見出した。スピン液体はルテニウム酸化物では初めての報告である。そしてその起源が、二量体内部と二量体間の相互作用が競合しているためであるというアイデアを提案した。

以上の成果は、自ら作成し評価した試料を用いた精密測定を基礎として、二つのルテニウム酸化物の新奇物性を論じたものであり、高く評価される。特に、三量体構造に基づく相転移機構の提案と二量体構造に基づくスピン液体候補の発見は、強相関電子系の物性研究に新しい方向を提示している。以上の理由により、申請者は博士(理学)の学位を与えられるに相応しいと認められる。