

論文審査の結果の要旨

論文提出者氏名 岩谷 克也

強相関電子系とは、互いに強く排斥しあう電子の集団を意味し、昨今、物性物理分野において多くの研究者の注目を集めている。電子密度がある程度大きい条件でクーロン反発が十分大きくなると、電子は動かない（局在する）ことで安定化しようとする。電子が局在化すると、電子の「粒子」としての性質（スピン、軌道、電荷など）が現れるのに対し、電子集団がかろうじて動き出すようになると電子の「粒子性」と「波動性」の両方が顕在化し、高温超伝導や超巨大磁気抵抗などの現象が生じることが知られている。こうした質的变化は、局所的に不均一な電子状態と密接に関連していることが予想され、微視的なスケールでの電子状態を明らかにすることは、強相関電子系特有の物性の本質を理解する上できわめて重要である。提出された論文は、この要請に応えるべく、低温、強磁場、超高真空の多重の極限環境対応型の高性能走査型トンネル顕微鏡（STM）を新たに開発し、ナノスケールの空間分解トポグラフィと同時トンネル分光計測(STS)を駆使することで、強相関電子系における金属-絶縁体(M-I)転移を統一的に理解するための基盤の形成を目指すものである。

本論文は4章118ページからなる。走査型トンネル顕微鏡概論、強相関電子系に関する導入説明に始まり、多重極限環境対応型STM装置の開発の詳細を経て、M-I転移メカニズムが異なる2種類の物質系における系統的なSTM/STS実験と、M-I転移と局所状態密度の相関に関する考察がなされ、最終章で総括が述べられている。

サブナノメートルの空間分解能を有し、電流-電圧特性を通じて局所状態密度を直接的に測定可能なSTM/STSは、強相関電子系の有効な評価手段となり得るにも拘わらず、現在までにSTMを用いて行われた強相関電子系の研究例は少ない。その理由は、(極)低温、強磁場といった特殊な計測環境、高いエネルギー分解能、近ゼロバイアス領域での探針安定性、試料の劈開性など、装置、試料に対する制約が強いからである。実際、強相関電子系におけるSTM研究の殆どは高温超伝導体(劈開容易なBi系)に限定されてきた。

今回新たに開発された装置は、超高真空 (10^{-10} Torr)、低温($3\text{K} \leq T \leq 100\text{K}$)、磁場下($\leq 11\text{T}$)の極限環境で動作可能なSTMであり、粗動機構ほか装置構成要素の改良に加えて、探針整形など測定を高度化するための多くの工夫が凝らされている。サブナノメートル分解能での原子像観測はもとより、低熱ドリフト特性を生かして、安定した走査型トンネル分光(STS)測定が可能となったことが、具体的事例とともに示されている。

強相関電子系の観測では、M-I転移近傍における電子状態の変化に注目し、フィリング制御、バンド幅制御型に大別される転移メカニズムの異なる2種類の物質系を対象に、M-I転移近傍で組成を系統的に変化させた試料における局所状態密度測定を行っている。

まず、フィリング制御型物質として、劈開性のあるオキシクロライド超伝導体 $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ の超不足ドープ領域試料に注目し、STM/STS計測より原子の四角格子に

重畳した、格子定数の5倍程度($\sim 20 \text{ \AA}$)の大きさをもつ特徴的な corrugation を見出している。詳細な STS 分光、仕事関数の空間分解測定から局所状態密度(LDOS)を求め、擬ギャップ的な構造を同定するとともに、STM 像のコントラストの差異に基づいて、ゼロバイアスで有限の DOS をもつ金属的な振舞いを示す領域と、状態密度がほぼゼロの絶縁体的な振舞いを示す反強磁性絶縁体的な領域が局所的に混在する可能性を見出している。そしてこのような不均一な電子状態が、まさに強相関効果の反映であることを指摘している。

一方、バンド幅制御型の金属-絶縁体転移に関しては、Ni パイライト化合物 $\text{NiS}_{2-x}\text{Se}_x$ を観測対象に、系統的な STM/STS 測定から異なる相間の比較を行っている。この物質に関しても、原子像観察は本研究が最初のものであり、観測される原子が (100) 劈開最表面の S と Se であること、これらの原子がジグザグに配列することを指摘している。また、詳細な STS 測定から、フィリング制御型のオキシクロライド超伝導体とは対照的に、電子状態が空間的に均一であることを明らかにしている。

さらに、STS 測定結果の解析から、従来の Se 置換にとまなうバンド幅制御型 M-I 転移機構に関する新たな知見を得ている。機構のモデルは主に2つあり、ひとつは $x = 0.5-1.0$ で現れる反強磁性金属相に起因し、その長距離秩序のためにギャップが形成されるせいで実効的にキャリア数が減少し、絶縁化するというものである。もうひとつは、S の欠陥によるホール・ドーピングを考慮したモデルである。 NiS_2 単結晶では、数%の S 欠損が生じてホールがドーピングされるという報告があり、Se 置換に伴って欠陥が増加することが予測されるものの、STM 測定の結果は、少なくとも従来のドーピング・モデルを支持しないことを指摘している。

また、STS で観測されるフェルミレベル(E_F)付近の微分コンダクタンスのピークが、組成が金属-絶縁体転移に近づくにつれ、 E_F 側にシフトするとともに先鋭化し、転移近傍の組成において電子状態が空間的に不均一になるという結果を得ている。これらは、キャリアの有効質量の増大とそれにとまなう局在化を反映したものと解釈され、 $\text{NiS}_{2-x}\text{Se}_x$ におけるバンド幅制御型の金属-絶縁体転移では、バルク測定に基づいて提案されていた反強磁性磁気秩序に起因するキャリア数減少だけでなく、キャリアの有効質量増大が寄与することを指摘している。一方で、同様な傾向がフィリング制御型 M-I 転移を起こすペロブスカイト型チタン酸化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ でも報告されている事実に鑑み、キャリアの有効質量増大と局在化が、金属-絶縁体転移という現象自体に普遍的な特徴である可能性に言及している。

以上のように、論文提出者は、本研究において新たに開発した多重極限環境対応の高性能 STM を駆使することで、強相関電子系物質における M-I 転移に関する数多くの新しい知見を見出すとともに、同物質系におけるナノスケール計測の有効性を実証することで、関係諸分野の今後の研究に新たな展開をもたらすべき大きな貢献を果たした。

以上の内容を審査委員会で審査した結果、本申請論文は博士(学術)の学位を授与するにふさわしいものと認定した。