

審査結果の要旨

論文提出者氏名 高橋 英幸

近年の物質科学においては、走査プローブ顕微鏡技術の急速な発展に伴い、ナノスケールの空間分解能で物性測定を行う重要性が高まっている。例えば銅酸化物高温超伝導体においては、電子状態がナノスケールの不均質性を持つことが走査型トンネル顕微鏡(STM)を用いた分光イメージングにより示されたことをきっかけに、他秩序・多秩序競合に関する研究はここ10年の間で急速な盛り上がりを見せている。ミクロな不均質性がマクロな物性の発現にどのような影響を与えているか、という視点から見ても概念的に新しく、興味深い問題である。

一般に物質機能の発現には固体中のさまざまな素励起のダイナミクスが重要な役割を果たしている。素励起のダイナミクスは複素交流電気伝導度に（電子の場合はマイクロ波領域）集約されるため、その測定は重要な意味を持つ。しかし従来のマイクロ波応答測定法では空間的不均質性に関する情報は平均化されてしまうので、これらの系の研究には適さない。本論文では従来の手法では困難な局所的複素交流伝導度測定の実現を長期的な目標として見据えた、走査型マイクロ波顕微鏡の装置開発・技術開発に関する研究を報告している。

第1章は、研究の動機、および研究の目的についての記述である。まず、物性のナノスケールの空間依存性を測定することの重要性を超伝導現象を例として挙げながら解説している。そしてそのような系で素励起のダイナミクスを調べるために局所複素電気伝導度測定が有効であり、そのためにマイクロ波近接場を用いた走査型マイクロ波顕微鏡(SMM)を応用することを提案した。続いて、SMMに関する先行研究を踏まえたうえで、マイクロ波検出感度や装置の安定度向上の余地があることを指摘した。そこで他グループにより報告されているものよりも高感度かつ低温動作可能なSMMを開発すること、そしてSMMを物性研究に応用するための解析手法や技術開発の研究を行うことが目的として掲げられた。近年、SMMは、STMや原子間力顕微鏡と複合化することにより空間分解能が高められているが、本研究ではこのうちSTMとの複合化を選択している。

第2章は、STMとSMMのそれぞれの原理や除震、探針作製などの要素技術について説明したあと、実際の装置開発について、顕微鏡の本体部分をはじめとしたハード面での開発と、測定環境や周辺装置の整備について詳しく記している。ハード面の開発においては、顕微鏡の心臓部分である共振器プローブに施された高いマイクロ波検出感度とトンネル電流検出を両立させる工夫や、安定な低温動作を実現するために低温インサートを設計・製作する際に必要な留意点などについて詳しく述べられている。続いて、STM、SMMを統合した測定系の説明がなされている。章の最後には、実際に立ち上げたSTM-SMMを用いて、

層状物質 Bi_2Se_3 を試料として液体窒素温度において表面形状と局所マイクロ波応答を同時に取得できることを確認したうえで、開発した装置のハード面での性能が非常に優れていることが示されている。

第3章では、近接場マイクロ波プローブによって得られる局所マイクロ波応答の解析手法について記されている。解析モデルは、まず共振器プローブの等価回路を導き、探針と試料の相互作用による回路特性の変化を検討することによって組み立てられている。プローブの等価回路を導出する際には、マイクロ波伝送路理論に基づいて分布定数線路に置き換え、さらに共振条件を考慮した上で等価な集中定数回路を導くという手続きを取っており、先行研究例でしばしばみられる直観的な導出方法とは一線を画している。探針と試料の相互作用についても定量的な評価が行われている。構築した解析モデルの有用性は、ドーピングによって伝導度の異なる Si ウエハの近接場応答を測定した結果と比較することによって確かめられた。

第4章では、開発した STM-SMM を鉄カルコゲナイド超伝導体の不均質性の観測に応用した。まず室温において、 $\text{K}_x\text{Fe}_y\text{Se}_2$ の観察結果を報告している。この物質では局所的な組成分析手法によってメゾスコピックな相分離が存在することが明らかになっていることを背景に、SMM でそれぞれの相の電気伝導度を評価することが試みられた。その結果、200 nm の空間分解能で結晶中の半導体相と金属相の相分離の可視化に成功している。また、この物質の観察の過程で、共振プローブの Q 値を一定に保ちながら試料を走査することで、SMM でしばしば問題になる表面の起伏の影響を軽減することができることも見出している。次いで液体ヘリウム温度での $\text{FeSe}_{0.33}\text{Te}_{0.67}$ の観察結果を報告している。この物質においては超伝導領域と金属領域の境界を、複素電気伝導度の虚部の変化を通してとらえることに成功している。

最後の第5章では本論文で得られた成果がまとめられたうえで、今後の研究の展望が述べられている。

以上のように、本研究では高感度かつ液体ヘリウム温度までの低温で安定した動作が可能な STM-SMM の開発に成功している。空間分解能に関しても、現在までに報告されている SMM の中でも最高レベルにある。さらに実際に鉄系超伝導体の研究に応用することで、物性研究における有用性を実証した。また新たに提案された解析モデルや、試料表面の起伏の影響を低減する走査手法も、今後の SMM の広い分野での応用を促す成果であり、大いに評価できる。

なお、本論文における研究成果は本学大学院総合文化研究科の前田京剛氏、今井良宗氏との共同研究であるが、論文の提出者が主体となって遂行したもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。したがって、本審査委員会は博士（学術）の学位を授与するにふさわしいものと認定する。