

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	NbO ₂ 層における二次元超伝導に関する研究
Title(English)	Study on Two-Dimensional Superconductivity in NbO ₂ Layers
著者(和文)	相馬拓人
Author(English)	Takuto Soma
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:乙第4199号, 授与年月日:2024年7月31日, 学位の種類:論文博士, 審査員:大友 明,平山 雅章,吉松 公平,平松 秀典,平原 徹,打田 正輝
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:乙第4199号, Conferred date:2024/7/31, Degree Type:Thesis doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文要約

物質が示す特性は基本的に電子のふるまいに由来し、我々はこれまでそれらをうまく制御することで多大なる恩恵を受けてきた。その最も顕著な例がエレクトロニクス発展であり、それは1930年代に成立したバンド理論に基づくことで電子のふるまいを理解し、デバイスとして集積・機能化したものである。一方で、遷移金属酸化物など電子の局在性が高いような物質では、電子間の相互作用のエネルギースケールが相対的に重要になる。このような物質は”強相関電子系”とよばれ、本質的に多数の電子が関わり合う多体問題となりバンド理論で仮定していた一体近似が成り立たなくなる。しかしながらその結果として、高温超伝導・金属-絶縁体転移・巨大磁気抵抗効果など個々の足し算では予測が不可能な創発的な物性が発現し、新しい物理や新原理デバイスのフロンティアとなっている。

強相関電子系という概念は1986年のCuO₂二次元層における高温超伝導の発見（1987年 Nobel 物理学賞）がきっかけとなり広く認識されるようになったといえるが、その概念は様々な新たな方向へと発展を続け、現代の物性科学の様々な概念を形成してきた。その歴史的経緯を振り返ると、二次元超伝導層に関する研究が重要な進展をもたらしていると解釈することができる。それらは既知の物質であったが、新しい物質観の下で、高結晶性な試料を合成し、先端計測を駆使しながら、精密なキャリア制御を行うことで”再発見”されてきた。その結果、更なる新たな物質観が醸成され、そこから物性科学の新しい領域が広がっていった。そこで、本研究では新しい二次元超伝導層を解明することで更に新しい物質観を創成することを目的として、NbO₂層に着目した。結晶構造内に二次元 NbO₂層を持つLiNbO₂という物質は超伝導を示すことが1990年に報告されているが、殆ど研究が行われていない現状にあり、物質合成にも課題がある。

本論文では、NbO₂層を持つLi_{1-x}NbO₂という物質を取り扱うべき理由を提示し（第1章）、超伝導エピタキシャル薄膜の合成を初めて実現し（第3章）、詳細な物性測定と計算により電子状態を解明し（第4章）、精密なキャリア濃度制御により電子相の全貌を解明した（第5章）。その結果、本物質が有する新しい特徴と今後の物性科学に有用であると考えられる物質観を提案した（第6章）。

第1章「序論」では、これまでの物性科学の歴史的経緯を振り返りながら二次元超伝導層を取り扱う意義や現在の課題点について述べられている。特に、NbO₂層を持つLiNbO₂という物質が持つ固体化学的・物性物理学的な特異性を指摘し、試料合成技術や物性が未開拓であることを述べ本研究の目的と意義を明確にしている。また、酸化物エレクトロニクス研究領域の歴史的経緯を概説し、本研究の課題点の解決法となりうる既存技術を提案している。

第2章「実験方法」では、第1章で述べられた解決法に基づき、本論文で使用される実験技術や手法が背景知識と共にまとめられている。

第3章「Li_{1-x}NbO₂ エピタキシャル薄膜の合成と *p* 型透明超伝導の発見」では、超伝導 Li_{1-x}NbO₂ エピタキシャル薄膜の合成法について述べられている。通常の直接合成法では薄膜成長が困難であることが明らかにされ、その問題を解決する手法として独自の”3段階合成法”が提案されている。その結果、超伝導エピタキシャル薄膜の合成に初めて成功し、種々の基礎物性について明らかにされている。特に、超伝導を示すのに

もかかわらず高い透明性を示すことが明らかにされ、その p 型透明超伝導体としての機能性が提案されている。また、その高い透明性の起源は本物質の特殊な配位構造と強い電子相関に起因するメカニズムが提案されており、固体化学と物性物理学の交点で生じうる特異的な物性と、新しい物質開拓における指針が考察されている。

第4章「 $2H$ 型 NbO_2 層における二次元超伝導と強相関電子」では、実現されたエピタキシャル薄膜を駆使した物性測定により $Li_{1-x}NbO_2$ の詳細な電子状態が明らかにされている。本物質の超伝導は高い二次元性を持つことが多面的に調査されており、二次元 NbO_2 層が本質であることが示されている。また、実験とシミュレーションから本物質の電子構造が明らかにされており、超伝導は $Nb\ 4d_{z^2}$ シングルバンドにおいて起こることが示されている。本物質は酸化物であるにもかかわらず例外的に三角柱型の配位構造を形成している結果として、強相関に最も有利な条件が実現していることが考察されている。

第5章「二次元三角格子 NbO_2 層における磁気量子臨界現象と超伝導ドーム」では、実現されたエピタキシャル薄膜を電極として用いた電気化学-電気輸送測定複合デバイスを作製することにより、 $Li_{1-x}NbO_2$ の電子相の全貌を解明している。そのデバイスは Li イオン充放電反応と *in-situ* 物性測定の高い精度での実現が可能になり、様々な Li 組成を持った $Li_{1-x}NbO_2$ の真の物性を調査することに成功している。その結果、本物質では Li イオンの脱離がドーピングに対応し、そのドーピング量に伴ってバンド絶縁体から Fermi 液体金属を経て、非 Fermi 液体挙動を伴う超伝導体へと変化することが明らかにされている。その変化に伴って磁性相互作用も系統的に変調されることから、超伝導化のメカニズムに磁気的な相互作用が関係している可能性が提案されている。また、その電子相図はこれまでに知られている強相関超伝導体のアナロジーとして理解できることから、量子臨界現象としての超伝導ドーム形成について議論されている。一方で、三角格子が持つスピンフラストレーションの寄与も議論され、超伝導化と転移温度に関する新たな知見を与えている。

第6章「総括と今後の展開」では、本論文で得られた知見についてまとめ、本研究が果たした意義について述べられている。 $Li_{1-x}NbO_2$ は新たな強相関超伝導体のファミリーであり、三角格子の結晶構造とシングルバンドの電子構造を持ち Li 組成でキャリア変調可能な強相関超伝導体として理想的な物質である可能性が提案されている。更に、本研究に続く展開を提案するとともに、そこから導かれる今後の物性科学の展望についても述べられている。この世に存在する様々な物質と比較しながら、高い超伝導転移温度の実現や物性科学の新しいフロンティアの開拓のために必要と考えられる要素が提案されている。

以上のように、本論文は NbO_2 層における二次元超伝導の全貌を解明した研究である。そこに含まれる物性科学的な新規性が明らかにされており、物性科学一般における新たな物質観が提供されている。