

# 論文審査の結果の要旨

氏名 國定聡

銅酸化物高温超伝導体が発見されて以来、その超伝導発現機構の解明を目指し多くの研究がなされてきた。銅酸化物高温超伝導体はいずれもCuとOからなる2次元的なCuO<sub>2</sub>面を持つ。母物質はCu<sup>2+</sup>が酸素を介した超交換相互作用により反強磁性長距離秩序を発現しており、これに元素置換によってキャリアがドーピングされることで反強磁性長距離秩序が抑制され超伝導が発現する。このため反強磁性的スピン揺らぎが超伝導クーパー対形成に寄与していると考えられており、反強磁性相に近い低ドーピング領域で反強磁性と超伝導との相関を明らかにすることが超伝導発現機構の解明にとって重要であると考えられる。この背景のもと、本博士論文は複数のCuO<sub>2</sub>面を持つ多層型銅酸化物高温超伝導体に着目した研究を行っている。多層型銅酸化物高温超伝導体では、電荷供給層から距離が遠い内側のCuO<sub>2</sub>面で不均一性の少ない低ドーピング領域が実現していることが知られている。実際NMRによる先行研究では超伝導と反強磁性が共存する結果も報告されており、反強磁性秩序と超伝導の電子状態を各CuO<sub>2</sub>面毎に議論することが可能な系である。また、Bi系銅酸化物高温超伝導体では、CuO<sub>2</sub>面の枚数が増える毎に最適ドーピングの超伝導転移温度( $T_c$ )が上昇し3枚で最大となることが知られているが、その原因解明も高い $T_c$ を理解するうえで重要であると考えられた。そこで本研究はBi系多層型銅酸化物高温超伝導体に着目し、主にレーザー角度分解光電子分光法(ARPES)によりその電子構造を決定し、多層型における $T_c$ の上昇の起源、反強磁性と超伝導との相関を解明することを目指したものである。

本論文は全9章からなる。第1章は序論であり本論文の構成が簡潔に述べられている。第2章は本研究の背景となる超伝導の基礎知識について概説されている。第3章は実験手法の説明であり、光電子分光の原理、角度分解光電子分光法の詳細、本研究で用いた量子振動測定によるフェルミ面極値断面積の決定法について記述されている。第4章はBi系銅酸化物高温超伝導体の結晶構造、タイトバインディングモデルによるフェルミ面の形状、銅酸化物高温超伝導体の典型的な相図、ハバードモデルに基づく「小さなフェルミ面」と「大きなフェルミ面」の描像が簡潔に述べられている。第5章は第6章の対象となる3層型Bi系銅酸化物高温超伝導体Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub>バルク結晶試料のX線回折、磁化率測定による $T_c$ の決定といった基礎測定、およびARPES測定による先行研究により得られているバンドの振る舞いなどが述べられている。第6章以降が本博士論文の主要な結果であり、第6章では5章に記載の3層型のARPES測定の結果が示されている。常伝導相では外側と内側それぞれのCuO<sub>2</sub>面に対応するバンドがキャリア密度の違いを反映して分離されているが、超伝導相においてはフェルミ面でのバンドの折り返しによって生じたバンド交差点で準位反発が生じた結果、ボゴリューボフ準粒子バンドの混成が生じることが明瞭に捉えられている。こ

の混成現象が、超伝導のBCSハミルトニアンに層間の一電子ホッピングを考慮することでよく説明できることが示されている。またバンド混成によって生じた反結合バンドの超伝導ギャップが広い波数空間で大きくなっていることが、Bi系銅酸化物高温超伝導体が3層型で最大の $T_c$ を与えることの一つの要因として議論されている。本章の最後には温度依存性の系統的な測定が示され、層ごとのクーパー対形成温度、及び偏光を利用した擬ギャップ形成温度の抽出について述べられている。

第7章は5層型である頂点フッ素系銅酸化物 $Ba_2Ca_{x-1}Cu_xO_{2x}(F,O)_2$ についての基礎物性、第8章は同5層型のARPES測定と量子振動測定の結果が示されている。5層型では各 $CuO_2$ 面に対応して内側から順に $IP_0$ 、 $IP_1$ 、 $OP$ の3つのバンドが存在することが知られているが、本研究ではこの $IP_0$ 、 $IP_1$ バンドで反強磁性秩序に起因する明瞭な折り返しバンド、即ち小さなフェルミ面を観測することに成功している。これは正孔ドーパ系銅酸化物高温超伝導体で、反強磁性秩序によりもたらされる小さなフェルミ面の存在をARPESによって初めて直接観測した成果といえる。さらに量子振動測定からフェルミ面の大きさを評価し、それがARPESから得られる結果と定量的によく一致することが示されている。 $IP_0$ バンドはドーパ量が2%と極めて低ドーパであるにもかかわらず金属的なバンドを示すこと、 $IP_1$ バンドでは超伝導ギャップも確認され、反強磁性と超伝導との共存が確認されている。

以上、本論文は銅酸化物高温超伝導体の機構解明にとって有用な知見を与えたものと評価され物性物理学への貢献が認められる。尚、本論文の中核をなす研究内容は指導教員らとの共同研究として学術雑誌に公表されているものであるが、論文提出者が自ら主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与は十分であると判断する。

以上の理由により、博士（理学）の学位を授与できると認める。