

論文審査の結果の要旨

氏名 河底秀幸

本論文は、題目「Two-dimensional Superconductivity in BaBiO₃/BaPbO₃ Heterostructure」(BaBiO₃/BaPbO₃ ヘテロ構造における二次元超伝導)であり、人工的に乱れを取り除いた酸化物ヘテロ構造において、界面超伝導の創成と転移温度 T_c 向上を目指した研究である。論文は全九章からなる。

第一章では、研究の背景が述べられている。超伝導物質の開発、電子格子相互作用による超伝導の転移温度の向上の可能性について述べている。その視点から注目される物質として BaBiO₃ における電荷密度波と超伝導を紹介している。BaBiO₃(BBO)と BaPbO₃(BPO)の固溶系超伝導を乱れの視点からさらに転移温度が向上しうる系として再定義する。薄膜ヘテロ構造の界面を用いた乱れの導入を伴わないキャリアドーピングと超伝導応用の例を紹介している。

第二章では、研究の目的が述べられている。乱れの導入を伴わない界面電荷移動によるキャリア導入により、BBO/BPO 界面での超伝導発現と転移温度の向上をその目標とする。単一界面での超伝導発現を第一のステップとし、BBO/BPO 超格子薄膜の構築により3次元性を導入し、転移温度 T_c 向上を狙う。

第三章では、今回用いた実験手法が述べられている。薄膜作製には、パルスレーザー堆積法を用い、基板には、BBO と BPO と格子定数のミスマッチが小さい MgO を選択した。超格子には、固溶体で最高の T_c を示す Ba(Pb_{0.75}Bi_{0.25})O₃ と同じ平均組成を有する BBO_{*m*}BPO_{*3m*} を選んでいる。構造解析・化学組成分析の手法とその原理、輸送特性の評価の方法が記述されている。

第四章では、薄膜の作製条件の最適化、および、BBO₇₅(~ 33 nm)/MgO と BPO₂₅(~ 11 nm)/MgO の構造と輸送特性が述べられている。固溶体 Ba(Pb_{0.75}Bi_{0.25})O₃ 薄膜の作製から、製膜中の高酸素分圧が高い結晶性につながることで、化学組成が基板温度・ターゲット物質に依存し、超伝導物性にも影響を与えることを示している。BBO 薄膜と BPO 薄膜について、作製条件の最適化を試み、BBO では Ba が、BPO では Pb が再蒸発しやすいこと明らかにし、ターゲット物質の化学組成を制御することで化学量論比通りの薄膜作製を報告している。BPO₂₅/MgO、BBO₇₅/MgO は、共にエピタキシャル成長を実現している。輸送特性は、BPO₂₅/MgO では局在の影響で抵抗率の上昇は確認されるものの、金属的な電

気伝導性を示し、 $\text{BBO}_{75}/\text{MgO}$ では絶縁体的な特性から電荷密度波の形成が示唆される。第五章では、界面の構築、特に単一の BBO/BPO 界面を有する $\text{BPO}_{25}/\text{BBO}_{75}/\text{MgO}$ 、 $\text{BPO}_{25}/\text{BBO}_{75}/\text{MgO}$ のエピタキシャル成長の方法論が述べられている。単膜の表面構造の解析から、 BBO/BPO 界面が BPO/BBO 界面と比べて高い品質を有すると指摘している。第六章では、単一の BBO/BPO 界面における電荷移動と超伝導を議論している。 $\text{BPO}_{25}/\text{BBO}_{75}/\text{MgO}$ 界面で $T_c=2.5 \text{ K} \sim 3.6 \text{ K}$ の超伝導転移を観測した。 $\text{BPO}_{25}/\text{BBO}_{75}/\text{MgO}$ における臨界磁場の角度依存性は2次元超伝導のモデル(Tinkham モデル)で再現でき、超伝導層の厚みは 8.3 nm と見積もられる。超伝導状態の輸送特性は Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 転移で説明でき、超伝導の2次元性、すなわち界面での超伝導発現を意味している。

第七章では、 BBO/BPO 超伝導界面の評価について述べている。透過型電子顕微鏡とエネルギー波長分散 X 線分光法により BBO/BPO 界面の原子分布を明らかにし、原子レベルで急峻な界面を確認している。 BBO/BPO 界面における超伝導層の厚みは 8.3 nm と見積もられているが、 $\text{Ba}(\text{Pb}_{0.75}\text{Bi}_{0.25})\text{O}_3$ 薄膜では膜厚 8.6 nm で超伝導が消失する。また、並列つなぎモデルと2キャリアモデルを用い、 $\text{BPO}_{25}/\text{MgO}$ と $\text{BPO}_{25}/\text{BBO}_{75}/\text{MgO}$ の輸送特性から見積もった BBO/BPO 界面のキャリア密度と電気抵抗率は、電荷移動と界面における乱れの抑制を示唆する。これらの事実は、 Pb と Bi の界面拡散によって理解することは困難であり、電荷移動によって界面の二次元超伝導が発現すると主張している。

第八章では、超格子構造の導入による転移温度 T_c の向上が述べられている。 $m=2 \sim 7$ の $\text{BBO}_m\text{BPO}_{3m}$ 超格子薄膜の作製し、超伝導転移を確認している。電気抵抗は、固溶体 $\text{Ba}(\text{Pb}_{0.75}\text{Bi}_{0.25})\text{O}_3$ 薄膜を下回り、乱れ除去の効果を示唆している。 m が5以上のとき、すなわち界面間の距離が十分に大きい時、 T_c は 4 K 前後の一定値となる。実質的に単一界面の超伝導が実現していると理解できる。 m が5より小さくなると、 T_c は単調に上昇し、 $m=2$ で 6.9 K となる。期待した三次元性とキャリア密度の上昇により転移温度の向上を実現したと結論付けている。

第九章では、論文のまとめと今後の展望および研究の意義について述べられている。

なお、本論文は主に高木英典、松野丈夫、平井大悟郎との共同であるが、論文提出者が主体となって分析及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上、本研究は酸化物超格子薄膜成長技術を、超伝導の物質開発に活用する先駆的な試みであり、物質科学、特に超伝導物質学、物性物理学、固体物理学などに貢献するところが大きい。したがって、博士(科学)の学位を授与できると認める。