

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 仙場 浩一

本論文は、題目「銅酸化物超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ のドーピング制御と輸送特性に関する研究」に表現されているように、典型的な高温超伝導体である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ についてドーピングの精密制御を行い、電荷輸送特性のキャリア数依存性を切り口として、この物質系に発現する高温超伝導の特徴・位置付けを明らかにすることを試みた研究である。論文は全8章からなる。

第1章 序論 では銅酸化物超伝導体の物性、超伝導発現機構に関する研究の現状がまとめられている。これに基づいて、本研究の問題意識が述べられ、銅酸化物高温超伝導が Mott-Hubbard 絶縁体へのキャリアドーピングによって作られ、キャリア密度変化によって系を特徴付ける物性パラメータを積極的に変え得る点が注目すべき特徴の一つであると指摘している。

第2章では $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ 単相の分離と同定および構造解析に関する研究が述べられている。単相の分離を目的に作成された焼結体試料が超伝導相である 1-2-3 相 と非超伝導相である 2-1-1 相とに自然に相分離し、EPMA 元素組成分析が決定的な解析手段となったことが示されている。

第3章では、単結晶育成と本研究において重要な役割を担う平衡酸素圧精密制御アニールによるドーピング制御およびその方法で作成された試料に関する分析結果等に関して述べられている。

第4章では、磁気抵抗測定あるいは磁場中抵抗転移の測定からこの系の超伝導コヒーレンス長および超伝導ゆらぎに関する研究について述べられている。コヒーレンス長は超伝導状態の基本パラメータの一つであるが、銅酸化物高温超伝導体の場合にはこれが nm 程度と桁違いに短く、熱ゆらぎの効果が顕著となるため、臨界磁場の $T_c \rightarrow 0$ 外挿値から求めたコヒーレンス長の信頼性が低いという問題が指摘されていた。この問題に対して、超伝導ゆらぎ理論を考慮した磁気抵抗データの解析から、コヒーレンス長を導出する方法が提案され、最適ドーピング結晶、Zn 置換結晶 あるいはドーピングを変化させた結晶について、 CuO_2 伝導面に 平行・垂直 なコヒーレンス長の成分の導出に成功している。また、鋭い超伝導転移を示す最適ドーピング単結晶に関する 縦・横 磁気抵抗の温度依存性より、従来型の超伝導体では軌道磁気抵抗に隠れて観測できなかった磁気抵抗の Zeeman 項（スピニングレット破壊に起因する磁気抵抗）の観測に成功している。さらに、従来型の s-波 超伝導体では普遍的に存在する超伝導ゆらぎ磁気抵抗である Maki-Thompson 項の寄与が $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ では、測定できないほど小さい可能性を指摘した。

第5章では、第3章で示された平衡酸素圧精密制御アニール法を主に単結晶に適用し、 CuO_2 伝導面に 平行・垂直 な抵抗率成分 および ホール係数 等の電荷輸送特性のドーピング依存性に関する研究について述べられている。平衡酸素圧精密制御アニール法で、約 100 時間程度をかけて注意深くドーピング制御された結晶の面内抵抗率およびホール密度 (n_H) の温度依存性が共に、 $x=0.5$ の酸素組成を境に急峻に変化し、低ドーピング側 ($0.2 < x < 0.5$) では温度依存性が抑制されホール密度が近似的に酸素組成 (x) の線型関数 $n_H \propto x-0.2$ で書けることを初めて明らかにした。また、有限サイズスケール解析の結果、ドーピング誘起 超伝導/絶縁体 (S/I) 転移が $x=0.3$ 、一対の CuO_2 面 あたりの面抵抗がクーパー

対の量子抵抗 $R_Q = h/(2e)^2$ に相当する抵抗率を境に生じていることが明らかとなった。S/I 転移近傍組成での電気伝導度の異方性は大凡 10^3 であることから、二次元系のスケーリング理論解析が妥当と考えられる。しかし解析の結果、抵抗スケーリングの傾向は見られるものの、厳密なスケーリングを得るには至っておらず、結晶あるいは異なる試料を用いた解析の限界であることが指摘されている。

第6章では、前章での困難を克服すべく、パルスレーザ蒸着法により SrTiO₃ 基板上に作成された c-YBa₂Cu₃O_{6+x} 薄膜試料を用いた抵抗スケーリング解析について述べられている。薄膜試料は、同一試料について引き続くドーピング制御が短時間で容易に実現でき、臨界点付近で多くのデータが必要な S/I 転移の臨界領域の研究には圧倒的に有利である。面内抵抗の有限サイズスケーリング解析の結果、結晶の場合と同様、クーパ対の量子抵抗 $R_Q = h/(2e)^2$ に相当する抵抗率 (cR_Q , c : CuO₂ 面に垂直方向のユニットセル長) を境に、大凡 60 K 以下の低温領域 かつ $x=0.4 \pm 0.02$ のドーピング範囲において単一のスケーリング関数に従うことが示された。これは、絶対零度に存在すると考えられる超伝導絶縁体量子臨界点の臨界領域が 60 K にまで達することを示す結果であり、実験が二次元ボゾンモデルで良く説明されることから、臨界領域では基底状態 (S/I) に係わらず、主要電荷はクーパ対であることが強く示唆されるとしている。また、スケーリング変数は、本質的にキャリア密度と考えられるため、本実験は、超伝導絶縁体転移における面抵抗スケーリングの様子をキャリア密度を制御変数として初めて観測した実験であると主張されている。キャリア密度を制御変数として超伝導絶縁体量子臨界点の臨界領域の存在をはじめて明らかにしたことになる。

第7章 総合討論 では、以上の研究成果を踏まえて コヒーレンス体積中の対密度に関する考察から、BCS 極限の対極にある BEC 極限に近い超伝導、Zn 不純物効果と d-波 超伝導、小さな Maki-Thompson ゆらぎと d-波 超伝導、超伝導ゆらぎの 古典・量子クロスオーバ、高温超伝導と臨界領域相図上での位置付けなどの議論が総合的に述べられ、『この系で発現した高温超伝導の本質は何か?』という研究当初の問題意識に対して『量子臨界領域に存在する高エネルギー量子ゆらぎを媒介とする BEC 極限に近い d-波 超伝導。』と締め括っている。

第8章では 本研究成果のまとめ と 今後の課題が述べられている。

以上、本論文にまとめられた研究は精密ドーピング制御によりはじめて明らかとなった YBa₂Cu₃O_{6+x} 系超伝導体の輸送特性のドーピング依存性、超伝導ゆらぎ、超伝導絶縁体量子臨界点 および その臨界領域 等に関する重要な知見を提供するものであり、YBa₂Cu₃O_{6+x} 系の理解に留まらず、広く銅酸化物系高温超伝導の理解の基礎を与える。超伝導工学の発展に寄与するところ大であり、本論文は博士 (工学) の学位請求論文として合格と認められる。