

論文審査の結果の要旨

論文提出者氏名 木下健太郎

序

本論文は 5 章からなり、第 1 章では本研究の対象物質である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ を中心に、高温超伝導体について簡単に解説した後、本研究に関連する理論的、実験的研究、及び基礎的概念について述べ、研究の目的をまとめている。第 2 章では測定に用いた単結晶試料の作製手順や、測定手法である空洞共振器摂動法の原理、解析方法について述べている。第 3 章ではマイスナー状態、第 4 章では混合状態の実験結果とその考察を行い、最後に、第 5 章で結論を述べている。

高温超伝導体のコア(磁束量子が超伝導体を貫いている領域)は非常に多様な様相を呈し、内部が反強磁性の絶縁体なのか否か、状態密度が大きいか否かということさえ明らかになっていない。STM で観測されるコア内の状態密度が非常に小さく、マイスナー状態と殆ど変わりが無いのに対して、マイクロ波で観測される状態密度はマイスナー状態より遥かに大きい。また、磁束量子コア内の領域は超伝導と共存する常伝導的な領域であり、超伝導に隠されていた高温超伝導の本質に迫る可能性を秘めているばかりでなく、短いコヒーレンス長のために量子性が顕著になり、物理的にも非常に興味深い領域であることから、電子状態の解明が期待される。本研究はコアの電子状態に対して、空洞共振器摂動法を用いたマイクロ波表面インピーダンス測定の手法でアプローチしている。磁束量子の運動と内部の電子状態とは密接に結びついており、マイクロ波によって磁束量子の運動を引き起こし、運動を記述するパラメータである粘性係数とピン止め定数を測定することにより、コア内の電子状態に関する情報を得ている。しかし、ただ観測しただけでは複雑なコアの解明には不十分である。この研究の特長的な点は、マイクロ波応答測定と不純物置換効果の測定を組み合わせている点である。不純物をドーピングしてコアの電子状態に摂動を加え、生じた応答の変化を観測することで、より多くの情報を得ている。不純物には Cu と置換し、高温超伝導体の電子状態に極めて異なる影響を与える Zn と Ni を用いている。マイスナー状態で観測される STS スペクトルは Zn と Ni で全く異なる結果が得られている。コアの電子状態に対するこれらの不純物の効果は明らかにされていないが、コアの状態密度がマイスナー状態程度に小さいのであれば粘性係数やピン止め係数にも STS スペクトルを反映して Zn と Ni とで劇的な違いが予想される。本研究の目的は粘性係数とピン止め係数の Zn、Ni 濃度依存性を明らかにし、これらのパラメータを通じてコア内の電子状態を明らかにすることである。本研究のもう一つの目的は、アンドレーエフ反射による磁束と不純物の相互作用の統一的理解である。アンドレーエフ反射とは超伝導/常伝導界面で生じ、界面に入

射した電子がホールとなって反射し、入射電子と同じ軌道に戻っていく現象である。 d 波超伝導体中の超伝導が壊れた領域では、この反射によりアンドレーエフ束縛状態と呼ばれる準粒子の束縛状態ができることが知られている。コアや不純物は超伝導を壊し、アンドレーエフ束縛状態を形成するという意味で等価であり、両者をアンドレーエフ反射という共通の機構で記述できると考えてこの様な目的を掲げている。

本研究のような不純物効果の実験において、不純物以外の不規則性の小さな結晶を作製することは勿論、実際に試料にドーピングされた不純物量の特定や試料品質の確認等、試料の評価が重要である。著者は、他の不純物の混入がないよう、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の構成元素からなる Y_2O_3 坩堝を用いた自己フラックス法により、測定試料である $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{M}_x)_3\text{O}_y$ ($\text{M} = \text{Zn}, \text{Ni}$) 単結晶の作製を行い、 $x = 0 \sim 0.06$ の極めて広い濃度領域にわたり、実に 11 組成 (pure:1 組成、Zn:7 組成、Ni:3 組成) の試料を揃え、詳細な不純物濃度依存性の議論を可能にした。更に、双晶面による磁束の運動への影響を除去するため、測定には全て非双晶の試料を用いている。マイクロ波測定に十分なサイズの非双晶領域 ($\sim 400 \times 400 \times 20 \text{ } \mu\text{m}^3$) は一度の単結晶成長 (約 1 ヶ月) で数箇所しか存在せず、これを顕微鏡で偏光をかけて探索するのは非常に時間のかかる作業である。また、試料内の不純物量は ICP 発光分析により特定している。

本研究ほど広い濃度領域で混合状態における表面インピーダンスの Zn、Ni 濃度依存性を測定した例は過去に無いため、本測定である混合状態の表面インピーダンス測定を行う前に、マイスナー状態の表面インピーダンスを測定し、過去の測定との整合性を確認している。低 Zn、Ni 濃度の $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{M}_x)_3\text{O}_y$ ($\text{M} = \text{Zn}, \text{Ni}$) に限られるが、マイスナー状態においては、高品質試料を用いた信頼性の高い表面インピーダンス測定が他のグループにより既に行われており、本研究の測定結果はこれと極めてよく一致した。これは、本研究で用いた試料が現在最も品質が高いとされている試料に劣らないことを示すと同時に、正確な表面インピーダンス測定が行えていることを示す。

以上の過程を経た試料に対して磁場下での表面インピーダンス測定を行った結果、その磁場依存性は全ての測定試料で磁束量子間の相互作用を平均場近似によって取り入れた磁束の平均場モデルでよく記述できることが分かった。その結果、 $x = 0 \sim 0.06$ の極めて広い濃度領域における粘性計数とピン止め定数の Zn、Ni 濃度依存性が初めて明らかになった。 η の Zn 濃度 n 依存性は $n < 0.3 \%$ では、ほぼ不変である。これはコア内の状態密度が Zn をドーピングする前から既に大きいことによる。一方、 $n \geq 0.3 \%$ では η は n に対して指数関数的に減衰する。この振舞いは Zn 近傍にできる準粒子束縛状態がバンドを組む過程を反映しており、マイスナー状態においても既に大きな状態密度が存在していることを意味する。 η を CuO_2 面内の実効的な不純物濃度 n_{plane} に対してプロットすると、Zn と Ni で $\eta(n_{\text{plane}})$ は一致した。これは Zn ドーピングの結果のみからも示されたように、コア内の状態密度が不純物をドーピングする前から既に大きいこと、不純物のタイプによる差が顕著に現れないためである。 $n \geq 0.3 \%$ での一致は Zn と Ni がマイスナー状態に同程度の大きな状態密度を生じさせることを意味する。結論として、高温超伝導体のコアは不純物の有無に関わらず、常に大

きな状態密度を持つことが明らかになった。また、不純物近傍の準粒子束縛状態の存在を示し、低不純物濃度でコア、高不純物濃度で不純物近傍の準粒子束縛状態が支配的であることを示した本研究の結果は磁束、不純物の存在下において系の電子状態が全てアンドレーエフ反射、及びアンドレーエフ束縛状態によって決まっていることを示唆するものであり、アンドレーエフ反射の詳細な機構を解明することの重要性を示した。

結び

なお、本論文中の第 2、3、4 章は前田京剛、北野晴久、花栗哲郎、佐藤尚憲、西寄照和、前田昌孝、柴田憲治、小林典男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。
よって、本論文は博士(学術)の学位請求論文として合格と認められる。