

論文審査の結果の要旨

氏名 藤巻 洋介

2次元結晶構造を持つ銅酸化物における高温超伝導の発見以来、低次元結晶構造を持つ銅酸化物の研究が盛んに行われてきた。なかでも1次元鎖が複数本平行に繋がった梯子型構造を持つ銅酸化物が発見され、多くの研究が積み重ねられてきた。とくに、 $S=1/2$ の局在スピンの2本脚梯子型に並んで反強磁性的に結合する場合には、スピン1重項が形成されスピギャップが見られること、ホールをドーピングすると超伝導が出現することが理論的に予言され、注目されてきた。実際、ホールをドーピングした梯子型銅酸化物 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ が高圧力下で超伝導を示すことが発見され、理論との関連、次元性、同じ物質で見られる電荷秩序など $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ に関して活発な研究が行われている。また、 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ は2本脚梯子層と鎖層が交互に積層した構造を持ち、梯子へのホールドーピングは梯子層と鎖層の間の電荷移動によっているが、最も基本的な量である梯子のホールドーピング量、ドーピングされたホールの入る軌道や電荷秩序のパターンについて一致した見解がない。本論文では、光学スペクトルの系統的な偏光・組成・温度依存性の測定と解析により、梯子にドーピングされたホール量とドーピングされたホールの入る軌道、電荷秩序のパターンについて調べている。

本論文は6章からなる。第1章では、まず本研究の背景と本研究の目的について簡潔に述べている。第2章では、本研究の背景をより詳しく説明するために、梯子型銅酸化物の理論的背景、 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の構造と物性について、磁性・輸送現象・核磁気共鳴・中性子散乱などの結果を網羅的に紹介している。とくに、本論文に直接関係のある光学スペクトルの先行研究、共鳴軟X線散乱、軟X線吸収、核磁気共鳴による梯子へのホールドーピングの見積もりと提案された電荷秩序パターンのモデルについて詳しく述べている。続く第3章で、本研究で用いた $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ 試料の作製と光学スペクトルの測定方法、解析方法について述べている。

第4章とそれに続く第5章では、実験結果とその解析・考察が述べられており、本論文の中核をなしている。従来の梯子のホールドーピング量の見積もりは文献によって大きく異なっていたが、その原因の一つとして、ホールドーピング量の少ない組成の測定結果を基準としたためにホールドーピング量の多い組成で誤差が積み重なったものと考え、本論文ではもっともホールドーピング量の大きい組成を基準とし、光学スペクトルの低エネルギースペクトル強度がホールドーピング量に比例することを利用して精度の高い見積もりを行っている。この結果と、最近の共鳴軟X線散乱で決定された電荷秩序の周期を併せて、全ての実験結果と矛盾しない電荷秩序パターンを提唱している。また、ホールドーピング量が少ない組成において、温度に依存して起こる特徴的なスペクトル強度の移動を見出し、この組成におけるホールが、理論的研究で前提とされ一般に信じられてきた Zhang-Rice 一重項ではなく、横木の酸

素に入り局在することを提唱している。梯子に垂直な偏光による光学スペクトルも測定し、この局在したホールがドーパ量の増加とともに非局在化しペアをつくることも示している。

最後の第6章で、本論文の結論をまとめ、今後の課題について述べている。

以上のように本論文は、作製から測定結果の解釈まで難しい物質である $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ と対象とし、ホールドーパ量の少ない組成を含む広い組成範囲に測定対象を広げ、測定に用いた光のエネルギー範囲も従来に比べて広げ、多くの新しい情報を実験的に初めて得ることによって、従来の矛盾を解消した新しいモデルの提唱をおこなった点で高く評価された。

なお、本論文の一部は、内田慎一氏、小嶋健児氏、中島正道氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、解析、考察を行なったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。