

# 論文審査の結果の要旨

氏名 平田靖透

本論文は全7章からなる。

第1章は序論であり、銅酸化物高温超伝導体のこれまでの研究結果について、結晶構造およびドーピング効果さらに、面間ジョセフソン結合とその光学応答について説明している。特に、多層系銅酸化物、水銀系酸化物および頂点フッ素系酸化物について過去に行われた実験結果を紹介している。その中で、(1)多層内のジョセフソン結合のドーピング変化や温度変化に対する振る舞いは、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ の研究以外なされていない、(2)多層系においては、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ と同様の温度依存性が研究がなされていない、(3)ジョセフソン結合エネルギーの大きさと  $T_c$  の関係が、多層系銅酸化物高温超伝導体において詳しい報告がなされていないことに着目している。本研究では水銀系および頂点フッ素系の多層系銅酸化物高温超伝導体の多結晶試料の光学測定を行い、ジョセフソンプラズマ振動を観測することにより、面間に形成されたジョセフソン結合の振る舞いを明らかにし、これらの未解決問題の解明を目的としている。

第2章は実験方法であり、研究に用いた水銀系銅酸化物  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+2+\delta}$  ( $n=2, 3, 4, 5$ ) の最適ドーピング試料、 $n=4$  のアンダードーピング試料および頂点フッ素系銅酸化物  $\text{Ba}_2\text{Ca}_3\text{Cu}_4\text{O}_{8+\delta}\text{F}_{2-\delta}$  ( $\delta=0, 0.4$ ) の合成方法、試料評価および反射率測定と透過率測定の方法を説明している。

第3章は測定結果であり、水銀系銅酸化物  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+2+\delta}$  ( $n=2, 3, 4, 5$ ) の測定結果を説明している。 $n=2$  の試料では、多層内に強力なジョセフソン結合が生じていること、 $n=3, 4$  の試料は光学ジョセフソンプラズマモードとフォノンのモードが重なった複雑な構造が現れ、 $n=5$  の反射率スペクトルでは多層内の内側の  $\text{CuO}_2$  面のドーピングが小さくなっていることを反映した光学ジョセフソンプラズマモードが現れた。

第4章はモデルによる解析であり、 $n=3, 4$  の測定結果のモデル解析を試み、光学ジョセフソンプラズマモードが  $n=3$  には1つ、 $n=4$  には2つ存在することをモデルにより明らかにしている。

第5章は4層系のアンダードーピングと頂点フッ素系化合物であり、 $n=4$  のアンダードーピング試料 ( $T_c=100\text{K}, 90\text{K}$ ) および  $\text{Ba}_2\text{Ca}_3\text{Cu}_4\text{O}_{8+\delta}\text{F}_{2-\delta}$  ( $\delta=0, 0.4$ ) の反射率測定の結果を説明している。アンダードーピング試料は最適ドーピング試料と同様に光学ジョセフソンプラズマモードが2つ現れ、その振動数は低下することを示した。

第6章は考察であり、研究結果を考察している。まず、ジョセフソン結合を形成する  $\text{CuO}_2$  面のドーピングレベルが高いほどジョセフソン結合が強くなる傾向にあること、 $n=4$  のアンダードーピング試料や頂点フッ素系試料においては、多層間の結合だ

けでなく多層内のジョセフソン結合もドーピングが大きくなるほど結合が強くなることに着目し、アンダードーピング領域でストライプ秩序のような競合秩序が優勢になっている可能性を指摘している。次に、光学ジョセフソンプラズマモードの温度依存性について考察し、特に  $\text{CuO}_2$  面がアンダードーピングの試料では、 $T_c$  より上の温度から光学ジョセフソンプラズマモードが出現することを、 $\text{CuO}_2$  面内において局所的または面全体にわたって電子対の位相が揃っている状態で多層内の隣接した  $\text{CuO}_2$  面間で位相が揃い、これが超伝導揺らぎとしてのジョセフソン結合が形成されることに起因していると説明している。さらに、水銀系の最適ドーピング試料から得られたジョセフソンプラズマ振動数から面間のジョセフソン結合エネルギーを計算し、単位胞内のジョセフソン結合エネルギーの総和と  $T_c$  の 1 層系からの上昇分  $\Delta T_c$  との間の相関関係を明らかにした。水銀系の多層効果はジョセフソン結合エネルギーが超伝導凝集エネルギーの一部を担うことで  $T_c$  が上昇する可能性があることを示唆した。最後に、水銀系が他の銅酸化物と比べて高い  $T_c$  を持つ理由を、面間トンネル機構によって、多層の水銀系の高い  $T_c$  が実現していると推論している。

第 7 章は結論であり、研究結果を踏まえさらに高い  $T_c$  を示す超伝導体を実現するための必要条件について議論している。多層内でより強いジョセフソン結合を実現するために、頂点酸素を  $\text{CuO}_2$  面から引き離し、層間のドーピングの不均一の解消することにより実現できる可能性を説明している。

以上のように本論文で行われた研究は、銅酸化物系が  $\text{CuO}_2$  面積層構造のジョセフソン接合を持った試料であることに着目し、その多層系試料について光学測定を行った。その結果、ジョセフソン結合エネルギーと超伝導転移温度  $T_c$  との相関関係を多層系試料についてはじめて明らかにした。これらの結果は、より高い超伝導の実現に向けてより良い指針となる得る可能性があり高く評価された。

なお、本論文の一部は石田茂之と、第 3 章および第 4 章の主要部分は小島健児、内田慎一、石角元志、伊豫彰、永崎洋および田島節子との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験および考察を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、審査員全員の一致により、博士（理学）を授与できると認める。