

## 論文審査の結果の要旨

論文提出者氏名 中村大輔

物性物理学においては、物理現象の起源となる「素励起」のエネルギースケールを知ることが極めて重要である。エネルギーの異なる電磁波をプローブとして素励起のエネルギースケールに対する知見を得るという測定手法(スペクトロスコピー)は古くから利用されている。しかし、マイクロ波や光学領域に比べてテラヘルツ帯の物性測定は、手軽に利用できるテラヘルツ帯の発振器及び検出器が近年まで開発できなかったことにより発展途上の領域といえる。

本論文はテラヘルツ領域における物性測定の新たな可能性を開拓することを目標として、テラヘルツ伝導度スペクトロスコピーによる銅酸化物高温超伝導体と鉄系超伝導体の薄膜を測定試料として用いた、低エネルギー素励起(超伝導ゆらぎや超伝導ギャップ)についての研究を報告している。

第1章は、研究の背景についての記述である。銅酸化物高温超伝導体、特に本研究の対象である  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の物性についての概説と、他のグループによって行われた超伝導ゆらぎに関連する研究が記述されている。鉄系超伝導体については、本研究の対象である  $\text{FeCh}$  (11系)と  $\text{AeFe}_2\text{As}_2$  (122系)の物性について概説し、様々な測定手法を用いて求められた超伝導ギャップエネルギーについてまとめている。そして、高周波の電気伝導度とテラヘルツ技術に関して本研究に関連する背景が記述されている。

第2章は、本研究の動機をまとめ、目的が記述されている。

第3章は、試料の作製方法、測定方法、および解析方法についての記述である。試料の作製方法としては超伝導体薄膜の作製に使用されたパルスレーザー蒸着法および透過分光測定に用いるための基板裏面の処理方法が記述されている。測定方法としては本論文の提出者が一から構築した透過型の時間領域分光法の構築方法、振動等の外来ノイズ除去の方法、そして低温測定方法について詳細に述べられている。解析方法では解析的なノイズ除去の方法、基板の厚み誤差を除去する方法などが詳細に記述されている。

第4章は、鉄系超伝導体  $\text{FeCh}$  (11系)の一種である  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  薄膜についての実験結果と考察の記述である。超伝導転移温度( $T_c$ )が最も高くなる  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  の組成の薄膜試料についてのテラヘルツ伝導度測定の結果が主に記されている。常伝導状態では Drude 型の複素伝導度の周波数依存性を示すことが報告されている。超伝導状態では、 $T_c$  が低い( $\sim 10$  K)ことと測定の最低温度が 7.8 K であることから、超流体に凝縮するキャリアの割合が少なく超伝導の兆候を検出しにくいことが記述されている。複素伝導度の虚部を

Matthias-Bardeen 理論とマイクロ波領域の伝導度の値を用いて比較した結果、超流体に凝縮するキャリアの割合が通常の BCS 理論の 50% 程度であると推察された。超流体密度の温度依存性が BCS 理論の示す値と異なるという最近の結果により、この結果についての説明ができたと記されている。結論として、この物質での絶対零度における超伝導ギャップエネルギーは  $\sim 1.0$  meV であると考察されている。

第 5 章は、鉄系超伝導体  $AeFe_2As_2$  (122 系) の一種である  $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$  薄膜についての実験結果と考察の記述である。最適ドープ領域の試料に対する測定から、常伝導状態のキャリアは Drude 型伝導度の周波数依存性を示すことが明らかにされた。超伝導状態では、 $T_c$  直上の値で規格化した透過率スペクトルから、超伝導ギャップの存在を捉えたと記されている ( $T = 0$ ) = 2.0-2.8 meV)。この物質が強結合超伝導体であると仮定した場合、 $2/k_B T_c = 3.6 \pm 0.6$  となり、角度分解光電子分光実験により報告された逆格子空間の M 点周りの電子的なフェルミ面に開いた超伝導ギャップエネルギーによる  $2/k_B T_c = 4.1$  と近い結果であることが記されている。また、不足ドープの試料では、反強磁性相転移温度付近で複素伝導度の虚部が急激に減少し、非 Drude 的な周波数依存性を示す結果が得られたと報告している。このふるまいは散逸の非常に少ないキャリアの輸送特性が付加されたこととみなすことができ、Dirac cone 上のキャリアの特異な輸送特性と関連している可能性があると考察されている。

第 6 章は、銅酸化物高温超伝導体の一種である  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  薄膜についての実験結果と考察の記述である。マイクロ波伝導度とネルンスト効果で超伝導ゆらぎが観測される温度領域が大きく異なるという問題について、様々なドープ量の LSCO 薄膜試料を用いて THz 伝導度測定を行った結果が記されている。特にゼロ抵抗を示す超伝導転移温度よりもどの程度高温から伝導度の虚部の増加が見られるか、という観点から調べたところ、マイクロ波伝導度測定の解析により得られた温度領域と定性的に同じであると報告している。さらに、複素伝導度の温度依存性には  $T_c$  付近および超伝導状態で顕著なキャリア濃度依存性が観測され、マイクロ波伝導度のスケーリング解析の結果と深い関係にあると考察している。さらに 0.5 T の磁場下での測定では、最適ドープ試料を用いてネルンスト信号は増大し始めているが高周波伝導度スペクトルでは超伝導ゆらぎが観測されない温度領域において測定を行った結果、THz 領域の複素伝導度はエラーバーの範囲内でほとんど変化を示さないことが記されている。これらの結果から、ネルンスト効果で観測される特徴的な温度領域は超伝導ゆらぎ以外の秩序状態を反映したものを観測している、という解釈が妥当であると考察している。これにより、ゼロ磁場の電子相図上では超伝導ゆらぎが観測される温度領域は最大でもゼロ抵抗を示す温度の 2 倍程度であるという明確な結論が報告された。

第 7 章は本論文のまとめの記述である。第 4 章、第 5 章、第 6 章で得られた結果と総括がまとめられている。

第 8 章は今後の展望の記述である。本研究で得られた結果を踏まえて、より高感度かつ広い周波数レンジを持つ測定系を構築するための展望と、テラヘルツ領域で興味のある物

性が観測されることが期待されるいくつかの物質について述べられている。

以上をまとめると、超伝導物質に対して多様なテラヘルツ領域の素励起現象(超伝導ゆらぎ、超伝導ギャップ、反強磁性相での特異な伝導度スペクトルなど)を観測し、テラヘルツ技術の分野で物性測定への応用の枠組みを更に広げることに本論文は成功している。さらに、第3章に記述された薄膜試料に対して基板の寄与を解析的に除去する手法は、超伝導体以外でも金属的な応答を示す物質に関して有効であり、反射型測定など異なる配置の測定系においても一般的に使用できる。そのため、解析上の困難を克服できるという点で波及効果が大きい。従って、高周波の電磁波応答が物質の素励起のプロープとして有用であることを、テラヘルツ帯においても明らかにしたという点で、本論文が物性物理学の進展に果たした役割は大きく評価できる内容である。

なお、本論文における研究成果は、本学大学院総合文化研究科の前田京剛氏、今井良宗氏、田中遼氏、高橋英幸氏、秋池孝則氏、渋谷雄輝氏、鍋島冬樹氏、東京工業大学応用セラミックス研究所・フロンティア研究センターの細野秀雄氏、平松秀典氏、片瀬貴義氏、電力中央研究所の塚田一郎氏、小宮世紀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できる。

したがって、本審査委員会は博士(学術)の学位を授与するにふさわしいものと認定する。