

氏名	岡 利英
授与した学位	博士
専攻分野の名称	理学
学位授与番号	博甲第4949号
学位授与の日付	平成26年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科 先端基礎科学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	NMR/NQR法を用いた鉄砒素系超伝導体 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ の研究
論文審査委員	教授 鄭 国慶 教授 横谷尚睦 教授 岡田耕三 准教授 工藤一貴

学位論文内容の要旨

鉄砒素系超伝導体は2008年に発見され、銅酸化物高温超伝導体に次ぐ高い超伝導転移温度(T_c)を示したことから世界的な注目を集めている。鉄砒素系超伝導体の母物質は構造相転移($T_s \sim 160\text{K}$)を伴う反強磁性体($T_N \sim 140\text{K}$)であるが、元素置換による電子(あるいは正孔)ドーピングにより、 T_s や T_N は抑制され、それぞれの量子相転移点近傍で高温超伝導が発現する。その電子相図は銅酸化物と類似しており、鉄砒素系超伝導を足がかりに、高温超伝導現象の理解が大きく進むことが期待されている。

鉄砒素系超伝導体には、最初に発見された $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ のように組成比が 1:1:1:1 である 1111 系の他に、122 系 ($\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ など)や 111 系 (LiFeAs など)、11 系 (FeSe など)といった類縁物質群が存在する。中でも 1111 系は他系に比べて単結晶の合成が難しく実験結果そのものが少ない。そのため基礎的情報である超伝導ギャップ対称性や、低ドーブ域における T_N や T_s の組成依存といった電子相図の詳細は不明である。しかし鉄系超伝導体における最高 $T_c \sim 55\text{K}$ は 1111 系で実現しており、さらなる高温超伝導実現には 1111 系の理解が必要不可欠である。以上を踏まえ、本研究では 1111 系 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ($x = 0.03 - 0.15$) について、 ^{75}As 核を対象に核磁気共鳴(NMR)/核四重極共鳴(NQR)測定を行った。

NMR/NQR 法は As サイトにおける電気四重極相互作用やナイトシフトの異方性を利用して多結晶試料でも単結晶試料と同様の情報を得ることが出来るという、他の実験手法には無い強みがある。単結晶が得られない 1111 系にとっては、特に有効な実験手法である。

As-NQR 測定の結果、スピン格子緩和率 $1/T_1$ が T_c 以下で指数関数的に減少することを明らかにした。これは超伝導ギャップがフルギャップであることを強く示唆する結果である。

また、As-NMR/NQR スペクトル及び $1/T_1$ の温度依存性から電子相図を得た。

$x=0.03$ ($T_s \sim 135\text{K}$)及び 0.04 ($T_s \sim 100\text{K}$)で構造相転移点を同定することに成功し、その結果 1111 系においても T_s が電子ドーピングにより超伝導相に向かって減少していくことを初めて見出した。

さらに、量子臨界点近傍の $x=0.03$ では反強磁性($T_N \sim 58\text{K}$)と超伝導($T_c \sim 9.5\text{K}$)が微視的に共存していることを明らかにした。興味深いことに、反強磁性と共存した超伝導状態では $1/T_1$ は非常に緩やかな温度依存性を示した。これは超伝導ギャップ内における大きな残留状態密度の存在を示唆している。このような残留状態密度の原因としては不純物散乱の効果が疑われるが、本研究で見出した残留状態密度の大きさは、既知の不純物効果では全く理解出来ないものであった。この結果は、磁性と超伝導の共存を起因として、全く新しい特異な超伝導状態が実現していることを示唆している。

$x \leq 0.08$ の常伝導状態は反強磁性スピンゆらぎが見られ、量子臨界点が $x=0.03\sim 0.04$ に位置することがわかった。一方、 T_c は $x=0.06$ で最大となるドーム型の x 依存性を示した。このようなゆらぎと T_c の相関関係は銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ と極めて類似しており、反強磁性スピンゆらぎが超伝導発現にとって重要であることを示唆している。これらの結果はいずれも鉄砒素系超伝導発現機構を理解する上で、基盤的情報となるものである。

論文審査結果の要旨

本論文は鉄砒素系超伝導体 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ における常伝導・超伝導特性を核磁気共鳴 (NMR) / 核四重極共鳴 (NQR) 法で詳細に調べ、電子相図、超伝導ギャップの対称性、及び反強磁性スピンゆらぎの役割を解明したものである。

代表的な鉄砒素系超伝導体である $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ は単結晶の合成が難しく、物性解明が進んでいなかった。学位申請者は多結晶でも実験可能であり微視的な情報が得られる NMR/NQR 法を用いて、 $x=0.03-0.15$ の試料について電子状態を詳しく調べた。その結果、構造相転移温度と反強磁性転移温度が電子ドーピングとともに減少することや、 $x=0.03$ 付近において反強磁性相と超伝導相が微視的に共存していること、超伝導転移温度 T_c がドーピング量に対してドーム状を呈することを見出した。また、最高 T_c を示す $x=0.06$ の試料においてスピン格子緩和率が T_c 以下で温度の指数関数に従って減少することを見出し、超伝導ギャップが等方的に開くフルギャップであることを明らかにした。一方、磁性との共存が見られる $x=0.03$ では超伝導ギャップ内の残留状態密度の異常に大きいことを発見した。これは不純物散乱では説明がつかず、磁性と超伝導との共存に起因した全く新しい特異な超伝導状態が実現していることを示唆した。さらに、最高 T_c が実現する領域では強い反強磁性スピンゆらぎを観測し、この系の超伝導発現にとってスピンゆらぎが重要な役割を果たしていることを明らかにした。

本論文は $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ における多くの問題を解決するとともに、鉄砒素系における相図の普遍性、銅酸化物高温超伝導体との類似性など、鉄砒素系超伝導の発現機構解明に有益な知見を与えており、博士学位に値すると認める。