

論文の内容の要旨

論文題目 鉄系高温超伝導体の光学スペクトル：
磁気・構造秩序相の面内電子異方性

(Optical Spectra of Iron-Based Superconductors:
In-Plane Electronic Anisotropy in the Magnetostructural Ordered Phase)

氏名 中島 正道

鉄系超伝導体の母物質は正方晶から斜方晶への構造相転移、ストライプ型反強磁性状態への磁気相転移を起こす。相図を見ると、この磁気・構造秩序相と超伝導相は隣接しており、磁気秩序状態にドーピングを施すことによって超伝導が発現するという点で銅酸化物高温超伝導体と類似している。しかし、銅酸化物の場合とは異なり、鉄系化合物は5つのFe3d軌道全てがフェルミ面の構成に関与しているマルチバンド系であり、しかも母物質は絶縁体ではなく金属である。そのため、鉄系超伝導体の電子状態を明らかにするためには、まずどのようなキャリアが輸送現象に寄与しているのかをはっきりさせ、そのキャリアが母物質の磁気・構造相転移によりどのような影響を受けるのか、ドーピングとともにどのように変化していくのかを調べるのが肝要である。

鉄系超伝導体の中でもBaFe₂As₂を中心とする一連の物質群は単結晶試料を作製することが比較的容易であるため、最も研究が進んでいる系である。しかしながら、FeとAs以外の組み合わせの3d遷移金属ニクタイトBaTM₂Pn₂ (TM=Fe, Co, Ni, Pn=As, P)は超伝導体となったとしても低い超伝導転移温度T_cしか示さないが、なぜBaFe₂As₂のみが磁気・構造秩序相を示し、高いT_cを持つ超伝導体の母物質たり得るのかについての解答は与えられていない。磁気・構造秩序相では格子、スピンともに4回回転対称性を破っており、異方的電子状態が形成されている。この電子状態がドーピングにしたがってどのように変化していき、どのように超伝導相につながっていくかについても、根本的でありながらも見過ごされてきた問題である。

以上を踏まえ、本研究では、(1) マルチバンド系であるこの系ではどのようなキャリアが輸送現象を支配していて、Fe-Asの組み合わせがなぜ磁気・構造秩序を示し高いT_cを持つ超伝導体になり得るのか、(2) 磁

気・構造秩序相ではどのように異方的な電子状態が実現しているのか、(3) 超伝導相とはどのようにつながっていくのかを明らかにすることを目的とした。実験手法としては、 BaFe_2As_2 とその類縁物質 BaTM_2Pn_2 の単結晶合成、結晶の良質化、ドーピング制御を行い、電子輸送現象、光学スペクトルの測定を行った。そして、これらの結果を俯瞰的に眺めることで、上に挙げたような疑問を解決することを試みた。

Fe と As の組み合わせの特殊性

BaFe_2As_2 とその類縁物質 BaFe_2P_2 、 BaCo_2As_2 、 BaNi_2As_2 、 BaNi_2P_2 の電気抵抗率の温度依存性を図 1(a) に示す。常磁性相の電気抵抗率を比較すると、 BaFe_2As_2 のみがかかなり大きな値を示していることが分かる。それ以外の物質は温度依存性の違いこそあれ、抵抗率が低いという点においては一致している。図 1(b) は室温での光学伝導度スペクトルである。 BaFe_2As_2 以外の物質では、高温領域での電気抵抗率が低いことを反映して $\omega = 0$ でのピークの高さが BaFe_2As_2 のそれをはるかに凌駕しており、大きなドルーデピークが存在している。それに引き換え、 BaFe_2As_2 はドルーデピークが非常に小さく、直流伝導度に寄与しているキャリアの数が少ないことが分かる。

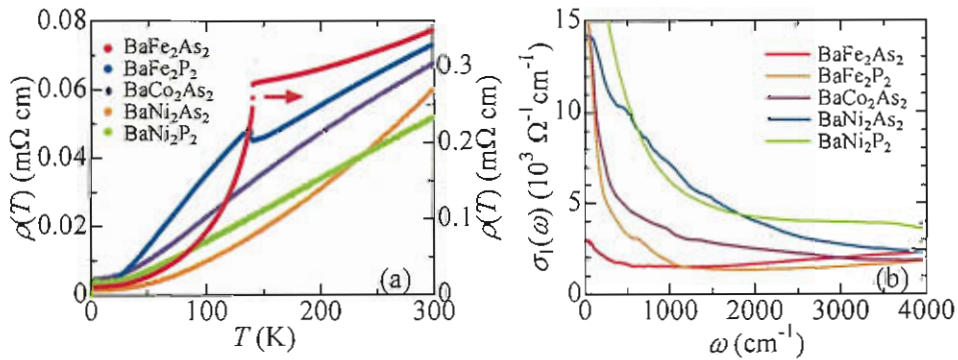


図 1 BaFe_2As_2 とその類縁物質 BaTM_2Pn_2 の (a) 電気抵抗率の温度依存性 (BaFe_2As_2 のみ右軸)、(b) 光学伝導度スペクトル

BaFe_2As_2 の低エネルギー領域光学伝導度スペクトルは、図 2 のように小さなドルーデ成分 (青) と散乱の非常に強いインコヒーレント成分 (灰) に分解できる。図を見ると、 BaFe_2As_2 ではインコヒーレント成分が直流伝導度に支配的であることが分かる。このような強く散乱されたキャリアの存在は、強相関電子系の超伝導体に広く共通する性質である。それに対して、図 1(c) から明らかのように Fe と As 以外の組み合わせを持つ BaTM_2Pn_2 の低エネルギー領域はほとんどコヒーレントなドルーデ成分によって占められていて、ドルーデ成分が支配的となっており、キャリアの数も多い。このため、電気抵抗率も BaFe_2As_2 だけ高い値を示し、他は低い値になると考えられる。

インコヒーレント成分の示す強い散乱は電子とボソン (軌道揺らぎまたはスピン揺らぎ) が強く結合していることを示している。これがクーパー対形成の強い相互作用になっていると推測される。

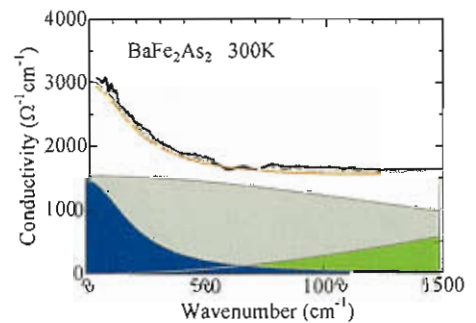


図 2 BaFe_2As_2 の室温での光学伝導度スペクトルの成分分解

磁気・構造秩序相の異方的電子状態

本研究により、 BaFe_2As_2 の磁気・構造秩序相における本質的な異方性は電気抵抗率ではなく、有限エネルギー領域に現れ、しかも約 2 eV という高いエネルギーまで続いていることが分かった (図 3)。この異方性の原因は、秩序形成に伴う大幅な電子構造の再構成とインコヒーレント成分に異方的なギャップが開くからである。 b 軸方向に開くギャップは a 軸方向よりも大きくなっていることが明らかになった。また、 a 軸方向のインコヒーレント成分には完全にはギャップが開かず、直流伝導度への寄与が低温でも残っている。結果として b 軸の低エネルギー領域光学伝導度は a 軸よりも低くなり、電気抵抗率が b 軸の方が僅かに高くなることも説明できる (図 4)。しかし、ドルーデ成分は磁気・構造秩序相でも等方的であり、低温では散乱も非常に小さくなるため直流伝導度への寄与をほぼ独占してしまう。このため、電気抵抗率には大きな異方性は現れない。

Co をドーピングしていくと、母物質に現れる有限エネルギー領域の異方性は弱まっていくが、今度は低エネルギー領域に異方性が出現する。ドルーデ成分を調べてみると、 a 軸と b 軸で重み自体に異方性はないものの、散乱の強度を表すドルーデ幅が有意な違いを持っていることが分かった。ARPES や量子振動ではほぼ等方的なフェルミが画観測されていること、残留抵抗率の異方性の大きさが Co ドープ量と比例していることを考えると、 Fe サイトに導入した Co 原子が異方的な散乱体として働くことによりドルーデ成分が異方的になっていると結論付けることができる。

磁気・構造秩序相と超伝導相

BaFe_2As_2 はどのサイトに元素置換を行っても磁気・構造秩序が抑制されていき、超伝導が発現する。超伝導が現れると、磁気・構造秩序は急速に壊れていく。この観点からは、両者は競合しており、磁気・構造秩序相を壊しさえすれば超伝導相を得られることになる。実際に、本研究の結果も超伝導組成の一手前である $x = 0.04$ の試料では母物質由来の高エネルギー領域の異方性はかなり小さくなっており、この考えを支持している。

光学伝導度スペクトルの成分分解で得られた結果に基づいた電気抵抗率の解析から、超伝導転移温度はコヒーレントなドルーデ成分の幅 ($1/\tau$) を決めている T に比例する項の大きさと相関していることが明らかになった。図 5 に示すようにオーバー

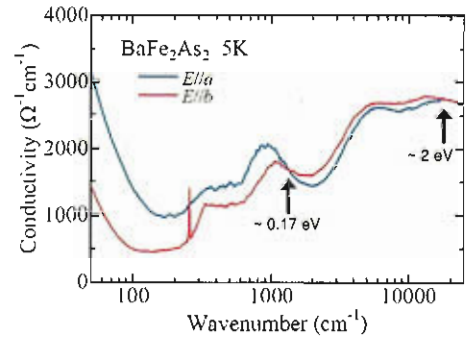


図 3 デツインした BaFe_2As_2 を用いて測定した光学伝導度スペクトルの異方性

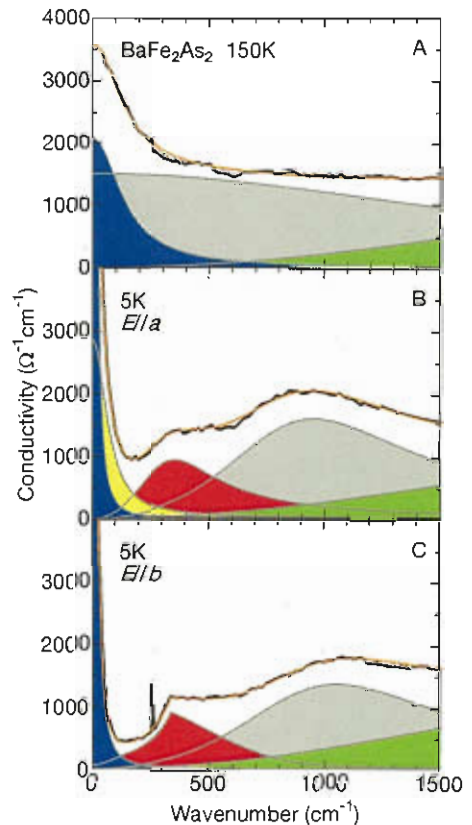


図 4 BaFe_2As_2 の a 軸、 b 軸光学伝導度スペクトルの 5K での成分分解

ドーピング領域からドーピングが減少するにつれ、 T -linear を示す項が現れると同時に超伝導が現れる。この出現は高い T_c を示す領域と一致しており、しかもこの項の大きさと T_c は良い相関を示す。最適組成よりもさらに母物質に近づくと磁気・構造相転移を起こすようになり、超伝導相は抑制されていく。アンダードーピング領域から母物質にかけての組成ではインコヒーレント成分が低エネルギー領域の伝導度を支配している。秩序相でのギャップがインコヒーレント成分に選択的に開くことから、秩序揺らぎがインコヒーレント成分に深く関わっていると推量される。

以上のように、鉄系化合物において超伝導を得るためには、強い散乱を示すインコヒーレント成分に加えて、ドルーデ成分の幅に T -linear 項が現れてくる必要があることが分かった。

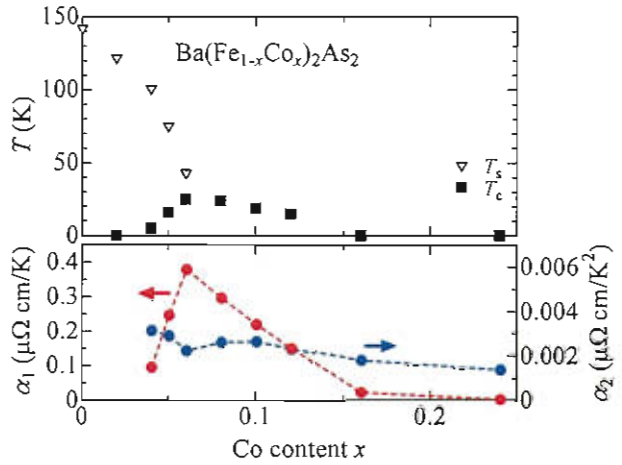


図5 (a) $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ の相図、(b) ドルーデ成分による温度依存性の T 、 T^2 項の係数