

# 論文の審査の結果の要旨

氏名 中島正道

2008年に発見された鉄系超伝導体は、銅酸化物高温超伝導体に次ぐ高い臨界温度( $T_c$ )を示す物質として多くの注目を集めている。鉄砒素系超伝導体の母物質の基底状態は反強磁性状態であり、これに元素置換（ドーピング）を施すことで超伝導が発現する。相図上では超伝導相は反強磁性磁気秩序相に隣接しており、銅酸化物との類似性も唆されるが、一方でFeの5つの3d軌道がフェルミ面の形成に寄与するマルチバンドの系であること、母物質が絶縁体ではなく金属であることは銅酸化物とは全く異なる。鉄系超伝導体の研究はその発見以来、急速な勢いで進められているが、多くの根本的な問題が未解決である。例えば、鉄系超伝導体の中では、Fe-As以外の3d遷移金属元素とニクトゲンの組み合わせを持つ類縁物質は、超伝導になったとしても $T_c$ が低い。なぜ、Fe-Asの組み合わせのみが高い $T_c$ を示すのか、についての十分な理解はなされていない。さらに、FeとAsの組み合わせでは、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し、異方的な電子状態が実現する。この異方的電子状態における電子構造や、それがドーピングとともにどのように超伝導相につながっていくのかについての明確な理解は得られていない。本論文は、これらの問題を解明することを目的として、鉄系超伝導体の典型的な母物質であるBaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>及びその類縁物質BaTM<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>(TM=Fe, Co, Ni, Pn=As, P)に焦点を当て、その単結晶合成、結晶の良質化、ドーピング制御を行い、光学スペクトル、電子輸送現象測定を行ったものである。

本論文は7章からなる。第1章は序論であり、鉄砒素系超伝導体の研究の歴史と現状が簡潔に述べられ、本論文の構成が記されている。

第2章では、本論文の背景として、BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>を中心に、類縁物質、元素置換系の輸送現象、バンド構造、光学測定に関するこれまでの研究がまとめられ、問題点が整理されている。

第3章は実験技術に関する記述であり、結晶育成、X線回折による結晶構造の評価、試料アニールの方法、一軸性圧力印加による非双晶化（デツイン）の方法、電気抵抗率測定、光学測定とクラマースクローニッチ(K-K)変換による光学伝導度解析の手法、について述べられている。

第4章は、まずアニールによる残留抵抗率の低減について記されている。続いて、良質の単結晶試料で行った面内電気抵抗率の測定から、各元素置換系Ba(Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>、BaFe<sub>2</sub>(As<sub>1-x</sub>P<sub>x</sub>)<sub>2</sub>、(Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>の相図が決定されている。さらに、BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>とその類縁物質BaTM<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>の光学伝導度スペクトルの比較がなされ、FeとAsの組み合わせの場合に限り、コヒーレントなドルーデ成分が非常に少なく、強い散乱を示す幅広のスペクトル（インコヒーレント成分）に支配されていることが明らかにされている。

第5章では、 $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ へのCoドーピングによって、どのように磁気・構造秩序相から超伝導相に変化するのかを光学伝導度スペクトルから調べている。電子ドーピングに対応するCoドーピングによりコヒーレントなドルーデ成分が増加することから、このドルーデ成分に寄与するキャリアは電子であると解釈された。一方、正孔ドーピングに対応するKドーピング系の場合は、高温域でインコヒーレント成分が支配的になることから、インコヒーレント成分は正孔由来であることが推察されている。超伝導相では、コヒーレント成分、インコヒーレント成分双方に超伝導ギャップが開くという観測結果を得た。このことは、高い $T_c$ を示すFeとAsの組み合わせの特徴として、インコヒーレント成分及びドーピングによって増加するコヒーレント成分両者が超伝導発現にとって重要であることを示唆する。電気抵抗の温度依存性の詳細な解析からは、コヒーレントなドルーデ成分の幅( $\tau^{-1}$ )を与える温度に比例する項の存在が、超伝導相発現、さらには $T_c$ と強く相関していることが示されている。

第6章では、インコヒーレントな成分の起源とその磁気・構造秩序との相関を説明することを主眼として、デツインした $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ 単結晶試料の電気抵抗率測定及び光学測定から、その磁気・構造秩序相における電子状態の異方性について調べている。その結果、磁気・構造秩序相においては、インコヒーレント成分のみに異方的なギャップが開くことが明らかにされた。この有限エネルギーに現れる異方的なギャップはCoドーピングとともに小さくなり、超伝導組成の一手手前の $x=0.04$ の試料では異方性はほぼ消失する。即ち、インコヒーレント成分にみられるギャップ形成が、ドーピングによる磁気・構造秩序形成の抑制によって妨げられ、超伝導相発現へと至ることが明らかにされている。母物質、或いは低ドーピング領域に見られる異方的な光学伝導度スペクトルは、バンド計算の結果とも整合し、ストライプ型反強磁性スピン配列に伴うFeの $3d_{xz}$ 及び $3d_{yz}$ 軌道の軌道縮重の解消を考慮することによって説明されている。しかし、実験で明らかになった高エネルギー領域( $\sim 2$  eV)まで及ぶ光学伝導度の異方性や、光学フォノンの異方性、Coドーピングに伴う低エネルギードルーデ成分の異方性の増加、即ち電子分極の異方性は、スピン自由度のみでは説明できないことから、異方的電子状態の形成にとって軌道自由度が影響していることも述べられている。

第7章は本論文の総括である。

以上、本論文では、鉄系超伝導体 $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ 及びその類縁物質 $\text{BaTM}_2\text{Pn}_2$ を対象として、電気抵抗率測定、光学測定から、磁気・構造秩序と超伝導の競合、光学伝導度スペクトルのコヒーレント及びインコヒーレント成分の存在とその起源、超伝導及び磁気・構造秩序相との相関について明らかにしたものであり、鉄系超伝導体の物性解明に高く貢献したものと評価される。本論文の一部は指導教員らとの共同研究に基づくものであるが、論文提出者が自ら主体となって行ったものであり、その寄与は十分であると判断する。以上より、審査員全員が学位論文として十分なレベルにあり、博士(理学)の学位を授与できると判断した。