

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 井深 壮史

本論文では、近年高温での超伝導転移が見いだされ話題となっている鉄ニクタイト化合物が取り上げられている。本鉄系超伝導体の超伝導転移温度は銅酸化物超伝導体に次いで高く、その超伝導機構の解明が急務となっている。本超伝導では従来型の電子フォノン相互作用による超伝導機構は否定的な見方がされており、代わりに磁気ゆらぎや軌道ゆらぎによる超伝導機構が提案されている。さらに、本超伝導相には低濃度ドーパ組成側に低対称構造相及び反強磁性相が隣接して存在している。この二相が安定化する原因を解明することも、超伝導機構の議論に欠かせない。本論文では、鉄ニクタイト化合物の一種である BaFe_2As_2 に焦点を当て、中性子散乱法を用いて磁気相関を詳細に研究し、前述の二問題の解決を目指している。本研究の結果、超伝導と磁気ゆらぎとの一定の関係が示されるとともに、電子ドーパ物質 $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Co})_2\text{As}_2$ の通常状態の反強磁性磁気ゆらぎが、幅広いドーパ領域で多バンド特性を考慮に入れた正孔・電子フェルミ面間のネスティング描像に従うことが明らかにされた。さらに、本系母物質における反強磁性転移が一次転移であり、スピン軌道間相互作用（もしくはスピンとそれ以外の自由度との相互作用）により引き起こされることが示された。本論文は6章からなる。以下に各章の内容を概説する。

第1章では研究背景として、鉄系超伝導体の歴史と BaFe_2As_2 の基礎特性、現在提案されている超伝導機構がまとめられている。

第2章では実験技術として、中性子散乱法と BaFe_2As_2 単結晶育成法についてまとめられている。

第3章では電子ドーパ物質 $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Co})_2\text{As}_2$ の通常状態の磁気ゆらぎの研究結果が記述されている。これまで超伝導体組成における磁気ゆらぎの研究は盛んになされていたが、母物質や過剰ドーパ物質においては研究がなされていなかった。本研究では、それらの組成を含む幅広いドーパ領域において、主に常磁性・通常状態の磁気相関を単結晶試料を用いて hhl 面内にて測定を行っている。その結果、まず超伝導状態で磁気ゆらぎが増強されることが確認されたが、超伝導機構を特定するには不十分であると議論がなされた。次に母物質と適正ドーパ物質において反強磁性磁気相関が存在することを確認した上で、減衰係数の温度依存性が二物質で同一であることを発見している。母物質では磁気転移点直上で減衰係数が有限に残ることに注目し、本転移がスピンと他自由度との相互作用により引き起こされることが指摘している。適正ドーパ物質では減衰係数が絶対零度で0に向かうことが示され、反強磁性磁気ゆらぎと超伝導との一定の関係が示される。さらに過剰ドーパ物質では、反強磁性磁気相関が存在しないことが示されている。最後に、ドーパ濃度依存性から、磁気相関の機構が正孔・電子フェルミ面間ネスティングであると結論された。

第4章では同一物質について $hk0$ 面内での磁気相関異方性の研究結果が記述されている。超伝導相近傍で現れる本異方性の原因は、低対称構造転移及び反強磁性転移を引き起こす原因と同一の異方的相互作用である可能性があると考えられていた。もしそうであれば、異方的相互作用と

超伝導との関連性が示され興味深い。本章では磁気相関異方性のドーピング濃度依存性を通常相で測定することにより、異方性が磁気転移点近傍でも増強しないこと、母物質で異方性が小さいことを突き止めている。このことは、予想に反し本異方性の原因が前述の異方的相互作用と関係がないことを示唆している。この異方性は、多バンド特性を考慮に入れると、3章で述べられたフェルミ面間ネスティング描像の枠内で理解できることが示された。

第5章では同族元素置換物質 $\text{BaFe}_2(\text{As},\text{P})_2$ の秩序モーメントと結晶構造の置換量依存性及び高分解能 X 線回折による構造相転移点近傍での構造歪みの研究結果が記述されている。本置換物質では電荷量に変化せず超伝導が発現するため、超伝導に直接関係したパラメータを議論しやすい。本章では粉末及び単結晶中性子回折実験により秩序モーメントが置換に従い減少することを発見している。物理圧印加による超伝導発現との関係から、*c* 軸方向への格子縮みが秩序モーメントの減少と本系の超伝導発現の鍵であると議論される。さらに、低濃度ドーピング物質における格子歪みの詳細観察では、二次転移的な歪みが生じた後、より低温側で磁気秩序に関連するとみられる一次転移的な歪みが生じることが示される。この特徴的な結果から、磁気秩序の原因がスピン軌道相互作用であると議論される。

第6章では本研究の成果がまとめられている。

以上をまとめると、本論文は中性子散乱法を駆使することにより、 BaFe_2As_2 の磁気相関をドーピング濃度依存性に焦点をあて微視的に解明しており、鉄ニクタイト化合物における超伝導機構及び磁気秩序の議論に有用な知見を与えている。審査会では、多バンド特性の議論が成立する為に必要なフェルミ面形状を明確にすること、超伝導相での磁気ゆらぎの特徴を明確にすることなどのコメントがあった。前者について、ドーピングに従い正孔・電子フェルミ面サイズの差が広がることで成立する強固な議論であり、今後の研究で現在提案されているフェルミ面形状に微細な修正が加えられても、議論は無効とならないことが示された。後者について、超伝導状態で磁気ゆらぎのエネルギー依存性は大きく変化するものの、面内波数依存性には変化がみられないことが示された。多数のグループが適正ドーピング超伝導体における磁気相関の研究を行う中で、本論文はドーピング濃度依存性に注目し、幅広い組成領域にわたり同一の測定条件下で磁気相関を測定することに成功し、俯瞰的かつ微視的な議論により、磁気相関の普遍的な起源を明らかにした点が独創的であると認められる。自ら巨大かつ純良な単結晶試料の育成を行う技術的優位性が、他に後れを取ることなく本研究を遂行することを可能にしたと言える。

よって本論文は物性科学・物理工学の発展に寄与するところ大であり、博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。