

(論文内容の要旨)

2006年に鉄オキシニクタイト LaFePO において超伝導が発見された。 LaFePO の超伝導転移温度 (T_c) は 4 K 程度であるが、2008年に P を As に置き換え、さらに O サイトに F をドーピングした鉄オキシニクタイト $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ において、 T_c が 26 K にまで上昇することが発見された。さらに、La を他の希土類に置き換えることによって T_c が 55 K 程度となることも見出された。これは銅酸化物超伝導体を除くと最高の T_c であり、より高い T_c を実現するためにも、鉄オキシニクタイトの超伝導機構の解明は重要となっているものである。本論文では、この系の超伝導発現機構についての知見を得る事を目的として研究が行われた。特に、鉄オキシニクタイト中の Fe 原子の磁性およびフォノンについて注目して研究が行われた。Fe 原子を対象としているのは、第一原理バンド計算および光電子分光法等から鉄オキシニクタイトのフェルミ面がほぼ Fe 3d 電子によって構成されていることがわかっているためであり、Fe 原子はこの系の超伝導の機構と密接な関係があると考えられる。磁性およびフォノンを調べるための手法として、それぞれメスバウア分光法および放射光核共鳴非弾性散乱法が用いられた。

メスバウア分光法では $\text{La}_{0.87}\text{Ca}_{0.13}\text{FePO}$ (T_c : 5.4 K)、 $\text{LaFeAsO}_{0.93}\text{F}_{0.07}$ (T_c : 24 K) が測定試料として用いられた。測定はそれぞれの T_c の上下で外部磁場を印加して行われた (0T、7T、14T)。外部磁場が 0T の場合には、明らかな四極子分裂は観測されず、Fe 原子の周囲の電子状態がほぼ等方的であることを示している。外部磁場が 7T および 14T の場合では、いずれの場合も観測された磁気分裂の値は、測定誤差の範囲で印加した磁場の値とほぼ一致した。これは他の研究から得られている常磁性という結果と矛盾しないものであった。しかしながら、この結果は $\text{LaFeAsO}_{0.93}\text{F}_{0.07}$ の母物質である非超伝導体 LaFeAsO が低温で反強磁性を示すという結果とは大きく異なっている。このことは F をドーピングすることによって磁気秩序が抑制され超伝導性が現れることを示している。

放射光核共鳴非弾性散乱法においては、 $\text{La}_{0.87}\text{Ca}_{0.13}\text{FePO}$ (T_c : 5.4 K)、 $\text{LaFeAsO}_{0.89}\text{F}_{0.11}$ (T_c : 26 K)、 LaFeAsO が測定試料として用いられた。放射光核共鳴非弾性散乱法によって得られた Fe 原子のフォノン状態密度 (Fe-PDOS) を比較したところ、フォノンが超伝導発現機構であるとした場合に超伝導に関与すると思われる Fe-Fe および Fe-As の振動モードに対応するピークの位置や幅に関しては、ドーピングの有無および転移温度の上下において大きな違いは観測されなかった。このことから、実験的には超伝導の機構にはフォノンの関与が大きくは無いということが示唆される。また、先行研究による第一原理バンド計算から得られた Fe-PDOS とは概形で一致しており、第一原理バンド計算が信頼できるものであることを示している。Eliashberg 理論により超伝導発現機構が電子格子相互作用に由来している仮定して、この第一原理バンド計算結果から T_c を求めた場合、約 0.8 K という値が得られており、実験的に得られている 26 K とは大きく異なっている。これはフォノン機構だけで、観測されている超伝導転移温度を説明することが難しいことを示している。

以上より、本研究で得られた結果は、超伝導発現機構に大きな知見を与えるものであり、今後鉄オキシニクタイト超伝導体の機構を解明する上で大きな寄与をするものであると考えられる。

氏 名	東 谷 口 聡
-----	---------

(論文審査の結果の要旨)

申請者東谷口聡は、近年発見された鉄オキシニクタイト $\text{LaFePnO}_{1-x}\text{F}_x$ ($\text{Pn} = \text{P}, \text{As}$) に関して、メスバウアー分光法および放射光核共鳴非弾性散乱法を用いた研究を行い、その超伝導発現機構に関する知見を得たものであり、その先駆性は評価に値する。

鉄オキシニクタイト超伝導体においては、その超伝導転移温度 (T_c) は最高で 55 K 程度となっているが、これは銅酸化物超伝導体を除くと最高の T_c であることより、その超伝導発現機構がフォノンを媒介とした BCS 理論によって説明できるのか否かが大きな注目を集めているものである。このような状況において、申請者は、先行研究によって第一原理バンド計算および光電子分光法等から鉄オキシニクタイトのフェルミ面がほぼ Fe 3d 電子によって構成されていることが明らかにされていることに着目し、鉄オキシニクタイト中の Fe 原子の磁性およびフォノンについての研究を、それぞれメスバウアー分光法および放射光核共鳴非弾性散乱法を用いて実施した。これらの測定方法はいずれも原子核の共鳴励起現象を利用しているものであり、特定の元素についての情報を得ることが可能であるという特徴を持っており、今回のような研究目的に適したものとなっており、優れた着眼点であると評価される。

申請者は、 T_c の上下で外部磁場を印加してメスバウアー効果測定を実施した。これらの結果、超伝導体の試料においては、他の研究から得られている常磁性という結果と矛盾しないという結果を得た。これは、超伝導体の母物質である非超伝導体 LaFeAsO においては、140K 付近で磁気相転移が起こり、低温で反強磁性秩序を示すという結果とは異なったものであることを確認したものである。このように、鉄オキシニクタイトにドーピングを行うことによって Fe サイトにおける磁気秩序が抑制され超伝導が現れることを微視的観点から示すことが出来たことは評価に値する。放射光核共鳴非弾性散乱測定においては、申請者は測定によって得られた Fe 原子のフォノン状態密度の比較を行ったところ、超伝導発現機構がフォノンによるものであった場合に関与すると考えられる Fe-Fe および Fe-As の振動モードに対応するピークの位置や幅に関しては、ドーピングの有無および転移温度の上下において大きな違いがないことを発見した。さらに、申請者は先行研究によってなされている第一原理バンド計算から得られた Fe 原子のフォノン状態密度と概形が一致していることを確認し、第一原理バンド計算が信頼できるものであることを示した。この第一原理バンド計算結果からは T_c として約 0.8K という値が得られており、実験的に得られている 26 K とは大きく異なっている。これらの事より、申請者は、超伝導発現機構にはフォノンの関与が大きくは無いということを示唆するという結論を得ている。これらの結果は、超伝導発現機構に大きな知見を与えるものであり、鉄オキシニクタイト超伝導体の機構を解明する上で大きな寄与をするものであると考えられる。

以上のように、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、論文内容及び関連事項についての試問を行った結果、合格と認めた。