

京都大学	博士（理 学）	氏名	北川 俊作
論文題目	Nuclear Magnetic Resonance / Nuclear Quadrupole Resonance studies of two dimensional layered compounds with the “1111” structure		
（論文内容の要旨） 北川氏の博士論文は、鉄系超伝導体の母物質である LaFeAsO に代表される正方格子の LaO 層と FeAs 層が交互に積層した二次元性の高い“1111”構造を有する物質が、低温で示す新奇な物性を微視的な実験手法である核磁気共鳴(NMR)の実験より調べた結果を報告している。博士論文の内容は大別して二つに分けられる。「二次元重い電子系物質 Ce(Ru_{1-x}Fe_x)PO」と、「鉄系超伝導体 LaFeAs(O_{1-x}F_x)」に関する内容である。また参考文献として、最近、京都大学工学部の陰山教授のグループにより発見された層状構造をもつ超伝導体 BaTi2Sb2O の常伝導・超伝導状態の物性を Sb-核四重極共鳴(NQR)により調べた結果も報告している。 1111 構造を有する CeFePO は低温において 700mJ/molK² の大きな電子比熱係数を持つ重い電子系物質であり、低温まで非磁性状態である。北川氏は多結晶試料を磁場中で配向させることにより c 軸を揃えた多結晶試料を準備し、磁化や核スピン-格子緩和率(1/T₁)の異方性を調べることにより、この物質が XY タイプの異方性を持つことを示した。さらに容易軸(c 軸に垂直)に磁場を印加することにより 4T あたりの磁場でメタ磁性的な磁化の増大を発見した。またこの磁場において 1/T₁T の値が低温まで増加し続ける“非フェルミ液体”的な振る舞いが見られることも見出した。今まで重い電子系物質のメタ磁性的振る舞いは、イジング的な異方性をもつ物質に容易軸に磁場を印加した場合だけ見られていたが、今回の発見によりメタ磁性的振る舞いは 2 次元 XY 的な異方性を持つ物質にも見られることをはじめて示した。 さらに Fe サイトを Ru に置き換えた CeRuPO は 15K で強磁性転移をすることから、これらの混晶系の Ce(Ru_{1-x}Fe_x)PO を詳細に調べることにより強磁性量子臨界点の探索を行った。その結果、x = 0.85 の試料まで強磁性転移温度は 300mK に連続的に抑えられていることから、x~0.86 に強磁性量子臨界点が存在することを示した。今まで報告されている遍歴強磁性体の量子臨界点近傍では 1 次転移的な振る舞いが見られていたが、今回の振る舞いは二次転移が T~0 K まで維持されておりこれまでの報告と異なる新奇な強磁性臨界現象であることを指摘した。さらに CeFePO で見られたメタ磁性的振舞いの磁場は、Ru 置換により連続的に抑制され、メタ磁性磁場も強磁性臨界点付近でゼロになっていることも示した。北川氏は Ce(Ru_{1-x}Fe_x)PO 系において強磁性転移とメタ磁性磁場の Fe 濃度依存性を調べ詳細な相図を作成した。また Fe 置換により磁気励起が三次元から二次元に変化し、層間の相互作用が弱まることにより強磁性転移が抑制されていることを指摘した。 後半の鉄系超伝導体 LaFeAs(O_{1-x}F_x)については、1/T₁ の異方性の値が局所的なストライプ相関の有無に関係していることを示し、超伝導とストライプ相関の関係を調べた。その結果、超伝導を示す試料ではストライプ相関が見られるのに対し、超伝導を示さない試料ではストライプ相関が見られないことから、ストライプ相関と超伝導に関係があることを指摘した。さらに非磁性不純物 Zn による効果を NMR 実験から調べ、Zn による超伝導の抑制は Zn が強い散乱体として働いていることを示し、超伝導状態は理論から予言されている S±波を支持することを指摘した。これらの結果は鉄系超伝導の発現機構を考える上で重要な実験結果である。 このように、北川氏は学位論文の研究を通し、層状 1111 構造を持つ二種類の物質が低温で示す新奇物性の発見と解明に繋がる重要な実験結果を示した。			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

1. 研究目的の評価

北川氏は二次元性の高い 1111 構造を有する重い電子系物質の $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{PO}$ と鉄系超伝導体 $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$ の物性を NMR 実験から明らかにした。前者の研究の意義は 1)最近発見された物質であり物性についてあまり調べられていない、2)強磁性の CeRuPO と常磁性の CeFePO の混晶系であり強磁性量子臨界現象を調べるには好都合の物質である、3)二次元性が重い電子状態にどのような影響を与えるのか、などがある。後者の研究意義は、1)超伝導と磁氣的相関の関係、2)超伝導に対する非磁性不純物の影響を明らかにすることである。上記の研究目的は明確で評価できる。

2. 研究手段に関する評価

今回用いられた実験手法である核磁気共鳴(NMR)は物質の電子状態を原子レベルで知ることが出来る微視的な実験手法であり、非常に弱い磁性や低エネルギー磁気励起を知るには適した手法である。実験手段の原理や概説も述べられている。 $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{PO}$ においては、 x の異なる 9 種類の試料を調べ、相図の全領域を探ろうとしている。また詳細な温度、磁場変化も調べられている。鉄系超伝導に対しても複数の試料で実験を行われており、実験結果は信頼に足るものと認められる。

3. 結果、考察の評価

北川氏は二次元重い電子 CeFePO においては、この物質の磁気励起が 2 次元 XY タイプの異方性を持つことを示し、容易軸方向に 4T 程度の磁場を印加することによりメタ磁性的な振る舞いをすることをはじめて示した。メタ磁性の起源については未知の点も多いが、今回の発見はその起源を考える上で大きな知見を与えた。さらに $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{PO}$ の系において強磁性転移とメタ磁性磁場の振る舞いを Fe 濃度に対し詳細に調べこの系の相図を作成した。また $x \sim 0.86$ に強磁性臨界点が存在すること、メタ磁性の磁場はこの濃度あたりでゼロとなることを示した。また Fe 置換の効果も考察し、置換に層間の結合が弱まったことによる磁気励起の次元クロスオーバーが原因と考えられることも指摘している。今まで強磁性臨界点近傍では三重臨界点が存在し一次転移の振る舞いが報告されていたが、今回の結果はそれらとは異なる新しい振る舞いとして強磁性臨界現象を理解する上で重要な結果と考えられる。また鉄系超伝導体 $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$ においても超伝導発現機構を考える上で重要な、ストライプ相関と超伝導の関係、非磁性不純物効果など NMR を通して明らかにしている。

このような理由から、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、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

論文審査日平成 24 年 12 月 27 日

要旨公開可能日： 年 月 日以降