

(論文内容の要旨)

本論文は、2008年に発見された鉄を含む新しい高温超伝導体 $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$ (超伝導転移温度 $T_c=26\text{ K}$) の常伝導及び超伝導状態の物性を微視的な測定である核磁気共鳴(NMR)実験により明らかにしたものである。この鉄系超伝導体が発見されしばらくしてから、最高の T_c は銅酸化物高温超伝導体に次ぐ 55 K に達することが報告され、全世界的に精力的に研究が行われている。この超伝導体では、正方格子を持つ FeAs 層と LaO 層が c 軸方向に交互に堆積した2次元構造を持ち、強磁性元素として最もなじみのある鉄(Fe)元素を含む超伝導体が高い超伝導転移温度を示すという意味からも大変興味深い。この超伝導体の母物質 LaFeAsO は超伝導を示さないが、フッ素(F)を $4\%(x=0.04)$ ドープすることにより超伝導が出現し、約 $11\%(x=0.11)$ あたりで最高の T_c を示す。中井氏はいち早くこの超伝導体に注目し研究を始めた。

中井氏は、 $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$ に対し、超伝導を示さない母物質を含め6種類の異なる F 濃度の試料に対し La 、 As -NMR を行った。母物質における La -NMR から、この物質は 142 K において反強磁性秩序を起こすこと、核スピン-格子緩和率 $1/T_1$ の測定から約 160 K の構造相転移温度以下で反強磁性ゆらぎが急激に増大することを明らかにし、構造相転移と反強磁性秩序に相関があることを見出した。さらに F ドープによる反強磁性ゆらぎの変化を As 核の $1/T_1$ の測定から系統的に調べ、 $x=0.04$ では Curie-Weiss 的な反強磁性ゆらぎが見られたが、そのような磁気ゆらぎは T_c が最も高い $x=0.11$ では見られず、擬ギャップ的な振る舞いが見られることを明らかにした。このように、常伝導状態における反強磁性ゆらぎは F ドープに対して顕著に変化するのとは対照的に、 T_c はほぼ変化しないことから、NMR で見られる低励起反強磁性ゆらぎは超伝導とは相関が弱いことを指摘した。

超伝導ギャップの性質に対しては As 核の $1/T_1$ の測定から、等方的な s 波超伝導体において観測される T_c 直下のコヒーレンスピークが見られないこと、低温($\sim 0.1T_c$)まで $1/T_1$ が T^3 的な温度依存性を示すことを明らかにした。しかし、低温で残留状態密度の影響が見られないことから、超伝導ギャップに節(超伝導ギャップの秩序変数の符号が変化している領域)をもつ異方的超伝導体とは考えにくいことも指摘した。

さらにヒ素(As)をリン(P)に置き換えた LaFePO は、 LaFeAsO と同じ結晶構造を持つものの、母物質 LaFePO は 4 K 程度の超伝導体、電子($\text{LaFeP}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$)およびホールドープ($(\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x)\text{FePO}$)によって T_c は約 10 K 程度まで上昇することが知られている。 LaFeAsO と LaFePO のバンド構造はほぼ同じである点を考えると、両者の T_c が一桁程度も異なるのは非常に興味深く、両者を比較することは鉄系高温超伝導の起源を明らかにする上で有益であると考えられる。

中井氏は $(\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x)\text{FePO}$ においても NMR 実験を行い、 P 系母物質にホールドープした超伝導体 $(\text{La}_{0.87}\text{Ca}_{0.13})\text{FePO}$ ($T_c \sim 6\text{ K}$) では常伝導状態において、 As 系とは異なり二次元的な弱い強磁性的ゆらぎが存在することを P 核の $1/T_1$ 測定によって明らかにした。さらに超伝導状態においては超伝導ギャップの影響を受けて $1/T_1 T$ が減少するという通常の振る舞いは見られず、逆に T_c 以下で $1/T_1 T$ が増大し続け、磁場依存性を示すという異常な振る舞いを観測した。この新奇な振る舞いは、超伝導状態においてなんらかの低励起スピンゆらぎが発達していることを示唆している。

このような中井氏の学位論文は、鉄系超伝導体の常伝導及び超伝導状態の物性をいち早く明らかにしたものであり、この超伝導体の理解に大きく貢献した。

(論文審査の結果の要旨)

1. 研究目的の評価

中井氏の研究の行った鉄系超伝導体は 2008 年発見され、昨年の物性物理学の研究の中では最も注目された物質である。この超伝導体は、銅酸化物と同様な層状二次元構造を有し、強磁性元素である鉄元素を含むにもかかわらず、非常に高い超伝導転移温度 T_c を示すことから物理的に大変興味ある超伝導体である。しかし中井氏は今回の高い T_c を示す FeAs 系超伝導が発見される二年前の $T_c \sim 4\text{K}$ の LaFePO の超伝導が報告された時から Fe 系超伝導の重要性を認識し NMR 実験を始めていた。

中井氏の LaFeAs(O_{1-x}F_x)の研究の目的として、1)超伝導の母物質 LaFeAsO の磁気状態を理解、2)常磁性状態の磁気励起の有無、磁気励起がフッ素(F)濃度に対してどのように変化していくのか、3)超伝導状態のギャップ構造、超伝導対の対称性、4)超伝導と磁気励起の関係、等の問題を明らかにすることを念頭に研究を行った。さらに同じ構造で T_c の低い LaFePO や (LaCa)FePO の超伝導体についても測定し LaFeAs(O_{1-x}F_x)に見られる高い T_c の起源を探ろうとしている。上記の研究目的は明確で、本超伝導の発現機構を考える上からも重要と考えられ、研究目的として評価できる。

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。また LaFeAs(O_{1-x}F_x)においては、超伝導を示さない母物質から F 濃度の異なる 6 種類の試料を調べ、広範囲な F 濃度依存性を探ろうとしている。詳細な温度変化も調べられ、実験データも信頼に足るものと認められる。

3. 結果、考察の評価

中井氏は研究を通し、母物質 LaFeAsO は 142K に反強磁性秩序をすることを見出した。この結果は中性子散乱実験結果を裏付けるものとなったが、微視的測定から反強磁性秩序を示したことは重要である。また F ドープに伴い反強磁性秩序が抑制され超伝導へと移り変わることを示したことも評価される。中井氏の最も重要な結果として、超伝導を示す試料において、 T_c 以下で $1/T_1$ にコヒーレンスピークが見られず、 T^3 に従って減少していくことを見出したことである。この振る舞いはこの超伝導体は通常の s 波超伝導体とは異なる超伝導状態にあることを強く示唆する結果である。他の実験結果も考慮し、コヒーレンスピークが見られないことは理論から指摘されている $s_{\pm}$ 波超伝導状態で理解できるが T^3 の温度依存性については今後の問題であることを指摘した。さらに常伝導状態における反強磁性ゆらぎは F ドープに対して顕著に変化するのとは対照的に、 T_c はほぼ変化しないことから、NMR で見られる低励起反強磁性揺らぎは超伝導とは相関が弱いことを指摘した。これらの結果はこの超伝導を理解する上で大変重要であり、高く評価できる。

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。