Osaka University Knowledge Archive

Title	NMR/NQR STUDIES OF MAGNETISM AND SUPERCONDUCTIVITY IN IRON PNICTIDES
Author(s)	木内, 宏彰
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/34505
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　木　内　宏　彰　）	
論文題名	NMR/NQR STUDIES OF MAGNETISM AND SUPERCONDUCTIVITY IN IRON PNICTIDES （NMR/NQRによる鉄ニクタイド化合物の磁性と超伝導の研究）

論文内容の要旨

2008年に$LaFeAs(O_{1-x}F_x)$において臨界温度T_c~26Kの超伝導が報告されて以降，アンチフルオライト型の鉄ニクタイド（Fe*Pn*）層を有する鉄系超伝導体が注目を集めている．これまでに*R*Fe*Pn*O（*R*：希土類金属），$AeFe_2Pn_2$（*Ae*：アルカリ土類金属），*A*Fe*Pn*（*A*：アルカリ金属），$(Ae_4M_2O_6)Fe_2Pn_2$（*M*：Sc, V, Al, *etc*.）などの関連物質が発見され，その超伝導の起源が実験と理論の両面から活発に研究されてきた．しかしながら，鉄系超伝導体のもつ多軌道性に由来した多彩な電子状態により，未だ統一的な理解に至っていない．

本研究では，等価数置換系$(Ca_4Al_2O_6)Fe_2(As_{1-x}P_x)_2$に注目し，核磁気共鳴（NMR）測定と核四重極共鳴（NQR）測定を行った．この物質系は，Feの価数を一定（Fe^{2+}状態）に保ちながらFe*Pn*層の局所構造を大きく変化させることができ，局所構造と電子状態の対応関係を調べるのに適している．この実験を通じて，私は次の3つのことを明らかにした．1つ目は，As（x=0）化合物の核磁気緩和時間（T_1）がT_c以下で急激に長くなること．2つ目は，$0.5 \leq x \leq 0.95$の中間領域においてNMRスペクトルが低温で矩形状に広がること．3つ目は，P(x=1)化合物の$1/T_1$が極低温で温度に比例する振る舞いを示すこと．これらの結果は，フルギャップ超伝導から反強磁性，ノーダルギャップ超伝導へと基底状態が連続的に変化することを示唆している．さらに他の鉄系超伝導体母物質との比較から，ブロック層の違いに依らずFe面からのニクトゲン原子の高さ（h_{Pn}）が$1.32Å < h_{Pn} < 1.42Å$の領域で反強磁性，$h_{Pn} > 1.42Å$でフルギャップ超伝導，$h_{Pn} < 1.32Å$でノーダルギャップ超伝導となっていることがわかった．この結果は，同じくFe^{2+}状態にあるLiFeAsがフルギャップ超伝導，NaFeAsが反強磁性であることや，等価数置換系$AeFe_2(As_{1-x}P_x)_2$ (*Ae* =Ba, Sr)での反強磁性からノーダルギャップ超伝導が現れることなどともよく対応している．今回の発見は鉄系超伝導体の超伝導機構解明への足がかりとなると期待している．

様式7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　木　内　宏　彰　）		
論文審査担当者	（職）	氏　名
	主 査　教 授	北 岡 良 雄
	副 査　教 授	宮 阪 博
	副 査　教 授	芦 田 昌 明
	副 査　准 教 授	草 部 浩 一

論文審査の結果の要旨

2008年に鉄系化合物$LaFeAsO_{1-x}F_x$が T_c=26 K の新奇な高温超伝導体であることが報告された。その直後に，LaをSmに置換した系でT_c は現在最高55 Kにまで達することがわかり、銅酸化物に次ぐ第2の新しい高温超伝導現象の舞台として世界中で研究競争が繰り広げられている。本鉄系化合物は、なぜこのような高温で超伝導を示すのか、これまでの超伝導と何が違うのか、どこまでT_cを上げることができるのかを知る上で、超伝導発現機構を解明することが重要な課題となっている。

本学位論文では、As-Fe-As ボンド角やニクトゲンの鉄面からの高さとT_c との間には明確な相関が見られることに着目した。研究の対象物質である、Fe^{2+}状態にあるFe(As,P)層をもつ等価数置換系$(Ca_4Al_2O_6)Fe_2(As_{1-x}P_x)_2$では、価数を一定に保ちながら局所構造(特にニクトゲン高さ)を大きく変化させることができる。申請者は、本系の磁性と超伝導について核磁気共鳴(NMR)および核四重極共鳴(NQR)手法を用いて系統的に調べ、

(1) As(x=0)化合物の超伝導状態でのエネルギーギャップはフェルミ面で等方的（フルギャップ超伝導）であること

(2) $0.5 < x < 0.95$ の中間領域において均一な整合反強磁性秩序を示すこと、

(3) P(x=1)化合物では、超伝導ギャップが消失している（ギャップレス超伝導）フェルミ面が存在すること、

を明らかにした [1,2]。数多くの鉄系化合物で報告されている反強磁性と超伝導に関する相図のなかで化学的置換した系の中間組成領域において反強磁性相が出現するのは初めての発見である。さらに、その原因を調べる過程で他の鉄系超伝導母物質の磁性と超伝導の性質について俯瞰的な整理を行い、結晶構造が多様な物質群が数多く存在するにもかかわらず、Fe^{2+}状態のFe面からのP_nの高さ(h_{Pn})の減少に対応して、フルギャップ超伝導相―整合反強磁性相―ギャップレス超伝導相へと物質群に依らず電子物性が系統的に変化するという未踏の結果を明らかにした。この構造変化に対するFeニクタイド系の物性を俯瞰する相図から、同じくFe^{2+}状態にあるLiFeAs が超伝導、 NaFeAs は反強磁性であることや、等価数置換系$AeFe_2(As_{1-x}P_x)_2$ (Ae =Ba, Sr)での反強磁性からギャプレス超伝導相が現れることなども自然に理解できることを示唆した。

以上の結果は、論文題名「ペロブスカイト型ブロック層を持つ鉄系高温超伝導体（$Ca_4Al_2Fe_2As_2O_{6-y}$）のNMR/NQRによる研究」として物理分野のトップジャーナル誌であるPhys. Rev. Lett.に刊行され、Nature Asia でも注目論文として高く評価された。反強磁性ゆらぎを媒介としてクーパー対が形成され、超伝導波動関数の符号が異なる s 対称性をもつ新規なs±波の超伝導ギャップが開くことを明らかにし、さらに、FeAs四面体の局所構造の変化(Fe面からのP_nの高さ)に対する超伝導と反強磁性の電子相図を初めて確立した本学位論文は、今後のさらなる研究の発展に大きく貢献することが期待され、博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。

[1] H. Kinouchi *et al*., Phys. Rev. Lett. 107, (2011) 047002.
[2] H. Kinouchi *et al*., Phys. Rev. B. 87.121101 (2013).