

Title	Experimental Studies on Electronic States of Iron Pnictide Superconductors $R\text{Fe}(\text{P}, \text{As})(\text{O}, \text{F})$ ( $R = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$ )
Author(s)	竹森, 章
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/52313">https://doi.org/10.18910/52313</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

## 論文内容の要旨

氏名 ( 竹森 章 )

論文題名

Experimental Studies on Electronic States of Iron Pnictide Superconductors  
 $R\text{Fe}(\text{P}, \text{As})(\text{O}, \text{F})$  ( $R = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$ )  
 (鉄ニクタイト超伝導体  $R\text{Fe}(\text{P}, \text{As})(\text{O}, \text{F})$  ( $R = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$ )  
 の電子状態に関する実験的研究)

## 論文内容の要旨

近年発見された鉄系超伝導体は銅酸化物高温超伝導体に次ぐ高い超伝導転移温度 ( $T_c$ ) を有することから、現在世界中で精力的に研究がなされている。その中でも1111系鉄ニクタイト超伝導体  $R\text{FePnO}$  ( $R$ : 希土類元素、 $\text{Pn}$ : P, As) の  $T_c$  は  $\text{Pn}$  が As の場合には 50 K 以上に上るのに対し、 $\text{Pn}$  が P の場合には 5 K 程度に止まる。経験則的にはこの物質の  $T_c$  は Fe 周りの局所的な結晶構造パラメータに強く依存すると見られているが、物質内部の電子状態との関連は未だ明らかではない。

本研究では結晶構造の変化が  $T_c$  や電子状態等の物性へもたらす影響を解明するため、P と As を固溶させて構造を連続的に変化させた  $R\text{FeP}_{1-x}\text{As}_x\text{O}_{0.9}\text{F}_{0.1}$  ( $R = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$ ) の多結晶試料を合成し、結晶構造解析や輸送特性等の物性測定を行った。その結果、結晶構造パラメータは組成  $x$  に対し線型に変化したのに対し、 $T_c$  および電気抵抗率  $\rho(T)$  を  $\rho(T) = \rho_0 + AT^n$  の式でフィッティングした際の温度  $T$  に対するべき指数  $n$  は非線型に変化した。そして  $T_c$  と  $n$  の組成依存性から、 $x = 0.6 - 0.8$  を境に異なる超伝導状態が実現することが示唆された。即ち、 $x < 0.6 - 0.8$  の領域では  $T_c$  と  $n$  はほぼ As の固溶量  $x$  によって決定され、この領域では反強磁性揺らぎの増大が  $T_c$  の上昇をもたらすことが明らかになった。一方、 $x > 0.6 - 0.8$  の領域では  $T_c$  と  $n$  は希土類元素ごとに異なる振る舞いを示した。またホール係数の絶対値でも  $x = 0.6 - 0.8$  付近の組成で異常な増大が見られ、フェルミ面の形状が変化している可能性が示唆された。 $n$  を  $T_c$  に対してプロットした結果、希土類元素に関係なく  $x < 0.6 - 0.8$  の領域で  $T_c$  が 0 K から 30 K まで上昇し  $n$  が 2 から 1 へと減少するスケールラインが確認された。一方純粋な FeAs 伝導層を持つ物質においても  $T_c$  が 20 K から 50 K まで上昇するのに対し  $n$  が 2 から 1 へと減少するスケールラインが確認された。この2つのスケールラインは、両者で異なるネスティングベクトルを持った反強磁性揺らぎにより超伝導が実現している可能性を示唆している。

次にバンド構造とフェルミ面を直接観測することで  $x = 0.6 - 0.8$  付近で起きている異常を解明するため、 $\text{NdFeP}_{1-x}\text{As}_x(\text{O}, \text{F})$  の単結晶を育成し角度分解光電子分光の測定を行った。その結果 As の固溶量  $x$  の増加に対して、Fe の 3d 電子の  $d_{xy}$  軌道からなるホール面の縮小と  $d_{xz}$  軌道からなるホールバンドの沈み込みが確認された。これらのバンド構造とフェルミ面の組成依存性は先行研究の結果と照らし合わせても妥当な結果であり、理論計算と比較しても定性的に一致している。特に後者のバンドの沈み込み関連して、輸送現象の測定で異常が見られた  $x = 0.8$  の組成においてホール面の消失が見られ、このようなフェルミ面の形状の違いが  $T_c$  や輸送現象に影響をもたらす可能性が示唆された。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 竹 森 章 )			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教授	田島節子
	副 査	教授	黒木和彦
	副 査	教授	萩原政幸
	副 査	准教授	椋田秀和
	副 査	准教授	宮坂茂樹
論文審査の結果の要旨			
<p>2008年に発見された鉄系化合物超伝導体は、銅酸化物に次ぐ高い転移温度 <math>T_c</math> を示すと同時に、複数軌道の関与したマルチバンド系であるということで注目を浴びている。中心骨格となる鉄とニクトゲン（或いはカルコゲン）は共通するものの、その他の構造にバリエーションがあり、組成や構造によって <math>T_c</math> をはじめさまざまな物性の違いがある。<math>T_c</math> は結晶構造に敏感であることが経験的に知られているが、構造がどのような電子パラメータを通して <math>T_c</math> を制御しているのか不明であり、超伝導メカニズムについても統一見解が得られていない。</p> <p>本研究は、組成によって <math>T_c</math> を大きく変えることができる <math>RFeP_{1-x}As_xO_{1-y}F_y</math> (<math>R=La, Pr, Nd</math>)[R-1111] をとりあげ、P/As 置換による物性変化の系統的な研究によって電子状態の解明を目指したものである。3種類の希土類元素 <math>R</math> について、P/As 全固溶系を作製し、詳細な結晶構造解析、電気抵抗やホール係数などの輸送特性測定を行った結果、<math>R</math> 元素によらず As60%付近を境に電子状態が質的に変わる様子を見出した。As 濃度が 60%以下では、電気抵抗率の温度依存性の“べき指数 <math>n</math>”と <math>T_c</math> との線形な関係が、すべての R-1111 に共通して見られた。核磁気共鳴実験との比較から、スピン揺らぎの増大が超伝導転移温度の上昇を決めていることが結論できた。一方、As 濃度が 60%を超えると、質的に異なる電子状態に移行し、超伝導対形成機構についても異なる可能性があることを示唆する結果となった。</p> <p>電子構造の変化を直接観測するために Nd-1111 の単結晶を高圧合成法によって作製し、これを用いて角度分解光電子分光を行った。本系の単結晶育成は、これまで世界で 2 研究グループしか成功しておらず、その価値は高い。単結晶を用いた角度分解光電子分光の結果、電子状態の質的变化に対応した輸送特性の異常を示す As 濃度において、一つの電子バンドがフェルミ面直下に沈む様子が観測された。観測された電子構造の組成変化は、定性的にバンド理論による計算結果を支持するものであったが、理論との重要な相違点も見られた。これについては、今後の課題である。</p> <p>本研究の独創性は、(i)作製が困難な P を含む <math>RFeP_{1-x}As_xO_{1-y}F_y</math> の一連の多結晶や単結晶の作製に成功した点、(ii)それを用いた系統的な物性測定を行い、二つの質的に異なる電子状態が存在することを見出した点、(iii)異なる電子状態への移り変わりが特定のフェルミ面の消失と連動していることを見出した点、にある。</p> <p>結晶構造パラメータが電子構造とどのように関係しているかを実験的に明らかにした本研究結果は、鉄系超伝導体全体の統一的理解に大きく貢献するものであり、高く評価できる。</p> <p>よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。</p>			