

Title	Study of Electronic Properties of 122 Iron Pnictide through Structural, Carrier-doping, and Impurity-scattering Effects
Author(s)	小林, 達也
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/56092
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 (小林 達也)

論文題名

Study of Electronic Properties of 122 Iron Pnictide through Structural, Carrier-doping, and Impurity-scattering Effects

(122型鉄ニクタイト系超伝導体の電子状態に対して結晶構造、キャリアドーピング、不純物散乱が与える影響)

論文内容の要旨

鉄系超伝導体は発見以来、その高い超伝導転移温度に注目が集まり、多くの研究が行われてきた。しかし、その超伝導発現機構や常伝導状態に見られる異常な電子状態の起源に関して、十分に明らかになったとは言えない。

本論文では、単結晶育成が容易な122型と呼ばれる物質群に着目し、鉄系超伝導体の電子状態に対して、結晶構造、キャリアドーピング、そして不純物散乱が与える影響を調べることで、その超伝導機構や常伝導状態に見られる異方的な電子状態、置換遷移金属による電子相図の違いの起源を明らかにすることを目的とした。

まず、 $\text{SrFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ の単結晶を $0 \leq x \leq 1$ の範囲で育成することに成功し、さらにポストアニールにより、超伝導転移温度が大きく上昇することを発見した。この改善された試料を用いて、その電子相図を初めて完成させた。この結果を等価数であるが格子定数の異なる $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ と比較すると、超伝導が発現する x の範囲と超伝導転移温度はほぼ同じであることが分かった。更に単結晶構造解析から、ニクトゲン高さやAs-Fe-As角といったFe周りの局所的な結晶構造はSr系とBa系でほぼ同じであることを明らかにした。これらの結果は、Fe周りの局所的な構造が超伝導転移温度と相関していることを強く示唆する結果である。さらに、アニール前後の試料を用いた磁場中比熱測定から、超伝導ギャップの対称性が s_{\pm} 波であることを示唆する結果を得た。さらに、共同研究として行った、核磁気共鳴や磁場侵入長測定においても s_{\pm} 波を支持する結果が得られた。これらの結果から、 $\text{SrFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ の超伝導機構はスピン揺らぎに基づく s_{\pm} 波超伝導であると結論した。

次に、反強磁性斜方晶相(AFO相)および常磁性斜方晶相(ネマティック相)に見られる面内電気抵抗率の異方性の起源を明らかにするために、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{TM}_x)_2\text{As}_2$ (TM=Co, Cr, Mn)の面内抵抗率の異方性を測定した。単結晶を育成し、一軸圧力を印加し非双晶化した試料の面内電気抵抗率 ρ を測定したところ、TM=CoとMnの場合は、同じ異方性($\rho_b > \rho_a$)となったが、TM=Crの場合は、置換と温度変化に伴い異方性が逆転($\rho_b < \rho_a$)することを発見した。CrとMn置換の違いを明らかにするためにHall効果を測定したところ、Cr置換ではホールがドープされている一方、Mn置換ではほとんどドープされていないことが明らかになった。これらの結果から、AFO相における異方性の起源はフェルミ面の形状に依存した不純物散乱であり、ネマティック相の異方性の起源はフェルミ面形状に依存したスピン揺らぎによる散乱にあると結論した。

最後に、置換遷移金属の違いが電子状態に与える影響を明らかにするために、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{TM}_x)_2\text{As}_2$ (TM=Co, Cr, Mn)の光学反射率を測定した。更にKramers-Kronig関係を用いて光学伝導度を求め、Drude-Lorentzモデルを用いて解析を行った。このモデルに基づくと、母物質 BaFe_2As_2 の低エネルギーの光学伝導度は幅の狭いコヒーレントなDrude成分と幅の広いインコヒーレントなDrude成分に分解できる。また、Co置換を行うと、コヒーレント成分が増加し、インコヒーレント成分はほとんど変わらないことが分かった。一方で、磁性不純物であるCr/Mn置換の場合は、置換量の増加とともに、コヒーレント成分が強く抑制されることが明らかになった。さらに、Cr/Mn置換した試料では、 500cm^{-1} 付近に反強磁性転移温度以上から局在状態に由来するピーク構造が現れることを発見した。これは磁性不純物が局所的な磁気秩序を形成し、伝導電子と相互作用することで、局在状態を作り出していると解釈できる。これらの結果から、鉄系超伝導体において、磁性不純物はコヒーレントな伝導成分を局在させることで超伝導の発現を阻害していると結論した。

これらの結果から、鉄系超伝導体の常伝導状態には強い磁気的な揺らぎが存在し、電子状態を支配していることが明らかになった。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (小林 達也)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教授	田島 節子
	副 査	教授	花咲 徳亮
	副 査	教授	木村 真一
	副 査	准教授	宮坂 茂樹
	副 査	准教授	椋田 秀和 (基礎工学研究科)

論文審査の結果の要旨

2008年に発見された鉄化合物超伝導体は、転移温度が非常に高いことや磁性を持った鉄の電子が伝導に関わることから、大きな注目を浴び、世界中で活発に研究が行われている。強い電子相関効果があらわになっている銅酸化物とは異なり、第一原理計算が比較的良好系の電子状態を記述することが知られているが、超伝導秩序パラメータの対称性や対形成機構、電子状態の異常な面内異方性など、解決すべき問題は多く残っている。本論文では、典型的な鉄化合物超伝導体である $\text{Sr}(\text{Ba})\text{Fe}_2\text{As}_2$ を取り上げ、様々な元素置換や熱処理による結晶乱れの制御を通して、上記問題点の解明を目指したものである。

研究内容は大きく3つに分かれている。第一は、 $\text{SrFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ の良質単結晶を育成し、超伝導転移温度や結晶構造パラメータが熱処理に対して非常に敏感であることを見出したこと、更にそれを利用して、結晶乱れの量による比熱等の物性の変化から超伝導秩序パラメータの対称性を議論したことである。第二の成果は、Feの一部をCo, Cr, Mnで置換した BaFe_2As_2 の結晶を育成して、ホールドープした場合に異方性が反転することを見出し、本系で見られる電気抵抗率の異常な面内異方性の原因を解明したことである。同一サイトを様々な元素で置換した系統的な研究により、異方性の原因が“異方的なスピン散乱機構”だけでなく、キャリアドープによるフェルミ面の変化に起因することを明らかにした。第三の成果は、これらの元素置換結晶の光学反射スペクトルの測定から、本物質系において磁性不純物が大きなキャリア散乱効果を与えることを明らかにし、新たな不純物誘起の局在磁性状態を発見したことである。このことが、非磁性のCo置換では高温超伝導が出現するのに対し、Cr, Mn置換では超伝導が発現しない原因であることを突き止めた。

これら3つの成果を総合すると、鉄化合物超伝導体では、常伝導状態でも超伝導状態でも磁気揺らぎが大きな役割を演じているという描像が明らかになった。本物質系の本質的理解に迫る大きな貢献をした成果であると言える。

また、非常に多くの組成の良質な単結晶を、最適条件を探しながら育成したこと、一軸圧力下での電気抵抗率測定や微小結晶の光学スペクトルの詳細な温度依存性測定など、数々の困難な実験を遂行したことなど、実験技術の観点からも高く評価できる。育成した結晶が国内外の多く共同研究者に供給されたことは、結晶の質の高さを物語っている。これにより、小林君が筆頭著者の4報の論文以外に、共同研究論文が12報も学術誌に掲載され、研究をより広い分野に展開することができた。

以上のように、研究の独創性や成果の超伝導研究分野への貢献度などの観点から、本論文は博士(理学)の学位論文として十分価値のあるものと認める。