

氏名	上島 啓司
授与した学位	博士
専攻分野の名称	理学
学位授与番号	博甲第5144号
学位授与の日付	平成27年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科 数理物理学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	ペロブスカイト構造を有する鉄系高温超伝導体の NMR による研究
論文審査委員	教授 鄭 国慶 教授 野原 実 准教授 近藤 隆祐 准教授 大成誠一郎

学位論文内容の要旨

2008年に発見された鉄系高温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 を示す。その後、物質探索が盛んに行われ $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ を始めとする 1111 型や $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ に代表される 122 型、 LiFeAs のような 111 型、 FeSe の 11 型といった物質群が発見された。これらは鉄系高温超伝導体を代表する物質群で、精力的な研究が行われた。これまでに、母物質において構造相転移及び反強磁性磁気秩序が起き、キャリアーをドーピングすることで超伝導が発現する電子相図が明らかになり、構造相転移や反強磁性秩序による量子臨界ゆらぎと超伝導に相関が示唆されている。

近年発見されたペロブスカイト構造を有する鉄系高温超伝導 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_3$ は元素置換によるキャリアードーピングをしなくても $T_c^p=32\text{ K}$ の超伝導が発現する。また、圧力効果が大きく、圧力下電気抵抗測定より $P=4.15\text{ GPa}$ において $T_c^p=45\text{ K}$ に上昇する。しかし、従来の鉄系高温超伝導体と比べると、未解明な問題が多く、構造相転移や反強磁性秩序の有無がはっきりとしていない。比熱、メスバウアーの実験からは、 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_3$ は Fe の磁気モーメントによる反強磁性秩序はなく、 $T=150\text{ K}$ にて V が磁気秩序を起こしていると報告された。しかし、従来の鉄系高温超伝導体のメスバウアー測定の結果と比較すると磁気秩序以上からスペクトルがすでに2つに分裂している点、スペクトルの線幅がブロードである点、そういった事から Fe の磁気秩序を否定することは難しい。

そこで本研究は、 $T=150\text{ K}$ の異常が V によるものなのか、Fe によるものかを明らかにすることを目的の一つとした。これは従来の鉄系高温超伝導体において Fe の磁気秩序と超伝導に相関があると示唆されていることから、この問題を明らかにすることは重要である。もう一つの目的は、圧力印加による超伝導転移温度が上昇する原因を明らかにすることである。

常圧下において 150 K 付近における ^{75}As 核と ^{51}V 核の NMR スペクトルの測定、そして As 核のスピン-スピン緩和時間率 $1/T_2$ の測定を行った。As-NMR スペクトルより $T=165\text{ K}$ から高周波側にスペクトルがシフトする振る舞いを観測した。一方、V-NMR スペクトルではシフトは見られず、 $T=165\text{ K}$ より線幅に $\sim 0.005\text{ T}$ 程度の分布が見られたのみである。As-NMR の $1/T_2$ は $T=165\text{ K}$ でピークを示す結果を得た。これらより、 $T_N=165\text{ K}$ において鉄の磁気モーメントによる反強磁性秩序が起きていることを明らかにした。

圧力下 NMR において、As- $1/T_2$ 及びスピン格子緩和時間率 $1/T_1$ の測定を行った。 $1/T_2$ の圧力依存性からは圧力印加に伴い、 T_N が減少する振る舞いを観測した。また、 T_c の上昇は T_N の抑制によることを明らかにした。さらに、反強磁性秩序と超伝導が共存していることを明らかにした。常伝導状態においては T_N よりも高温の $T_0=200\text{ K}$ で $1/T_1$ がピークとなる新たな相転移を発見した。また T_0 は圧力に鈍感な振る舞いを示した。

$\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_3$ における圧力-温度相図は従来の鉄系高温超伝導体の電子相図と比較すると、反強磁性と超伝導が広い圧力領域にわたって共存しており、独特な特徴であることを明らかにした。また、高い転移温度を示す原因の一つに T_0 における未知の相転移による可能性を提示し、鉄系高温超伝導体の電子状態に新たな知見を得た。

論文審査結果の要旨

学位申請者はペロブスカイト構造を有する鉄系高温超伝導体 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_3$ を ^{75}As 及び ^{51}V 核磁気共鳴(NMR)法で詳細に調べた。また、圧力により電子状態を制御し、圧力温度相図を明らかにした。

$\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_3$ は数少ない化学量的な組成で高温超伝導を示す鉄系化合物である。電気抵抗等の測定で $T \sim 150\text{ K}$ で異常がみられ、V が反強磁性秩序を起こしていると推測されていた。学位申請者は NMR 法を用いて As 核及び V 核を測定した結果、 $T = 165\text{ K}$ 以下で As サイトが大きな内部磁場を感じていることを明らかにした。また、スピン・スピン緩和率 $1/T_2$ が $T = 165\text{ K}$ で鋭いピークを持つことを見出した。一方の V サイトにおいては、スペクトルのシフトは見られず、 $T = 165\text{ K}$ より低温で線幅に $\sim 0.005\text{ T}$ 程度の分布が見られたのみであった。これらのことより $T_N = 165\text{ K}$ において V ではなく Fe サイトで反強磁性秩序が起きていると結論づけた。また、高圧下における $1/T_2$ 測定により、圧力を印加すると反強磁性秩序温度 T_N が抑制され、超伝導転移温度 T_c が上昇することを見出した。さらに、大きいモーメントを持ちながら、高い超伝導転移温度を示し、広範囲において反強磁性と超伝導の共存は、これまでの鉄系高温超伝導体には見られず、ペロブスカイト型鉄系高温超伝導体 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_3$ のユニークな特徴であることを指摘した。

学位論文では、 T_N より高温の $T_0 = 200\text{ K}$ でスピン格子緩和率が発散していることから、未知の相転移の可能性も指摘した。

本研究はペロブスカイト型鉄系高温超伝導体 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_3$ において、未解明であった問題を解決し、他の鉄系高温超伝導体との類似点や相違点を浮き彫りにした。これまでに用いられることのなかった $1/T_2$ をプローブとすることに独創性があり、データの精度が高く解析が定量的である。本論文は鉄系高温超伝導体に対する理解に新たな知見を与えるもので、博士学位に値すると認める。