

審査の結果の要旨

学位申請者氏名 羽合 孝文

2008年に発見されて以来、鉄系超伝導体はその高い超伝導転移温度の起源解明に向けて精力的に研究が続けられている。鉄系超伝導体の超伝導に対しては鉄原子の3d電子軌道のもつ軌道自由度と鉄格子の作る2次元性とその超伝導発現の鍵を握るものと考えられている。一方で、鉄原子が梯子型準一次元鎖を形成するいわゆる梯子形鉄系化合物に関しては本研究以前には全くと言って良い程その物性に関する研究は無かった。梯子型化合物は2次元正方格子からなる鉄系超伝導体の低次元アナロジーであり、同様の梯子型銅酸化物物質群が銅酸化物高温超伝導体研究に果たした役割から考えても極めて興味深い物質群であると考えられる。本研究では鉄系梯子型化合物 BaFe_2Se_3 , CsFe_2Se_3 およびそれらの混晶系に対して、中性子散乱、電気抵抗、比熱、帯磁率、高圧下電気抵抗等の物性測定を総合的かつ系統的に行っている。これらの実験結果から母物質と混晶系の輸送特性の違いの原因、および高圧下での金属化の確認等の極めて興味深い結果が見いだされている。本論文は6章から構成されており、以下にその概要を述べる。

第1章は序論である。梯子型鉄系化合物の現在の状況について述べ、本研究に関連する研究の基礎的な説明及び、これらの研究を基に設定された本研究の目的が述べられている。

第2章は試料の作成方法と実験手段に当てられている。本論文で使用された実験方法の詳細に加え、空間群情報を用いた磁気構造推定法等の解析法の解説も行われている。

第3章では、梯子型鉄系化合物の混晶系、 $\text{Ba}_{1-x}\text{Cs}_x\text{Fe}_2\text{Se}_3$ に対する温度組成相図の作成について詳細が述べられている。単結晶X線回折による空間群決定では $x=0.05$ と 0.15 の間に構造相転移が存在することが見いだされた。粉末中性子回折、帯磁率測定からは混晶系での磁気相転移温度および磁気構造の変化に関する詳細が明らかとなっている。電気抵抗と比熱測定からはこの1D VRH型電気伝導および比熱における有限な線形項の存在が見いだされている。作成された相図から結晶構造と磁気構造のあいだの相関が明らかになっただけでなく、中間組成において新たな磁気構造が現れることが発見された。この中間相においては、母物質の磁気構造と比較しモーメントサイズが大幅に減少していたが、これからは鉄系超伝導体における磁気構造との関連が示唆される。また、 $x=0.25$ 付近に中性子回折に磁気シグナルが現れない組成が発見され、梯子型鉄系化合物の豊かな磁性を明らかにしている。一方で、電気抵抗でみられた1D VRH型温度変化と比熱の有限な線形項の両者からは梯子型鉄系化合物の中間組成においてランダムポテンシャルが系に大きな影響を及ぼしている可能性が示唆された。

第4章では梯子型鉄系化合物に対する圧力下での電気抵抗測定をキュービクアンビルセルおよびダイヤモンドアンビルセルの2手法を用いて行っている。鉄系超伝導体の類似物質という観点から金属化は重要な課題であるが、本研究において $x=0.65$ 組成試料に対

して $P = 14.4 \text{ GPa}$ 以上の高圧下において金属化が確認された。一方で、極めて興味深いこととして、電気抵抗の圧力に対する減少率が母物質と中間組成試料で異なっていることが見いだされた。この結果は両母物質と混晶系の絶縁性の起源が本質的に異なることを示唆する重要な結果と考えられる。

第5章では本研究で得られた結果に基づいて、梯子型鉄系化合物に対する理解を深めるため議論を行っている。梯子形鉄系化合物の過去の電子構造研究を総括する形で母物質の電子構造を議論した後に、混晶系で考えられる電子構造が提案されている。その上で、梯子型鉄系化合物の母物質の絶縁性をモット絶縁体機構に、一方で、中間組成の絶縁性を **Ba**, **Cs** 置換が系にもたらすランダムポテンシャルによるアンダーソン局在機構に起因すると提案している。このような提案によって、母物質と混晶系の圧力下での電気抵抗減少率の違い等の輸送現象の差異を説明することに成功しており、輸送特性に関してはアンダーソン絶縁体という観点から統一的に理解されている。一方で、磁性に関しては鉄系梯子型化合物で見られた 3 種の磁気構造を鉄系超伝導体母物質等に見られる類似の構造、および既存の第一原理計算の両者と比較することでその起源の考察を試みている。

第6章では本研究について総括を行っている。

以上を纏めると、本論文では鉄系梯子型化合物の代表的な物質群である **BaFe₂Se₃**, **CsFe₂Se₃** およびその混晶系に対して中性子散乱、電気抵抗、比熱、帯磁率、高圧下電気抵抗等の幅広い物性測定法を駆使することで、その物性を総合的かつ統一的に明らかにしている。本研究の結果は 2 次元正方格子を持つ鉄系超伝導体の低次元アナロジーとしての梯子形鉄系化合物の物性解明に大きな寄与を与えるだけでなく、更には準低次元梯子型化合物に対するランダムネスの影響等の新規な知見を与えるものである。今回得られた成果は、物性科学・物理工学の発展に寄与する所大であり、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。