

論文審査の結果の要旨

氏名 興石 圭佑

2008年にFe系化合物で高温超伝導が発見されて以来、その超伝導メカニズムを理解するため、実験・理論の両面から活発な研究が行われてきた。鉄系超伝導体は、その構造によって様々あるが、その中でも本研究では「122」型の $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_2\text{As}_2$ 及び「11」型の $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ の2種類に着目した。「122」型物質は、様々な元素置換が可能な多様性から、最も盛んに研究されてきた鉄系超伝導物質である。一方、「11」型 FeSe は最も単純な結晶構造を有し、反強磁性秩序が無く、電子ネマティック状態を研究する格好の舞台となることから、近年特に研究が活発化している物質である。本研究では、常伝導状態で観測される異常電子輸送特性の解明を目的に、それらを司る電子構造を光電子分光を用いて決定する研究を行なった。 BaFe_2As_2 では a 軸方向の伝導度がより高い面内異方性を示すが、FeサイトへのCr置換により、 b 軸方向の伝導度がより高くなる特異的振る舞いを示す。本研究によって、ある置換量を境に電子ポケットが消失することが見出され、Cr置換による伝導度の面内異方性の変化と電子構造の変化との関係が明らかとなった。一方「11」型 $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ では、TeサイトへのSe置換によって、ホール係数の符号が正から負へと反転する振る舞いが知られている。電子構造を精密に観察した結果、 FeTe では存在する2つのホールポケットのうち1つが、Se置換($x=0.4$)に伴い消失することが見出され、ホール係数の符号反転との関連が見出された。

第1章では、本研究の背景として、様々な鉄系超伝導物質における結晶構造の違いによる分類と、それらの電子相図、及び相図上で出現する様々な反強磁性秩序構造を紹介している。また、本研究の対象となる2種類の物質群 $\text{Ba}_2(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)\text{As}_2$ 及び $\text{Fe}(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)$ の先行研究として報告されている電子構造、及び特異な電子輸送特性(電気抵抗及びホール係数)を議論している。

第2章では、本研究で用いた実験手法である角度分解光電子分光法(ARPES)、共鳴光電子分光法(RPES)、及びX線光電子分光法(XPS)の原理が解説され、実際に活用した放射光施設の実験条件が記載されている。

第3章では、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_2\text{As}_2$ の電子構造におけるCr 3d軌道電子の寄与を、特に $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.81}\text{Cr}_{0.19})_2\text{As}_2$ を対象に、元素選択的RPES測定により調べている。フェルミ準位上に明瞭な状態密度が観測されたことから、Cr置換により効果的にホールドープされ、Cr 3d軌道電子が遍歴的特徴を持つことが見出された。一方で、より支配的な状態密度はフェルミ準位ではなく、むしろ約1 eVの結合エネルギーに位置することから、Cr 3d軌道電子の大部分は局在していることも確認された。

第4章では、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_2\text{As}_2$ において様々なCr置換量 x を持つ試料($x=0.06, 0.09,$

0.19) に対し ARPES 測定を行い、それらの電子構造を系統的に調べた。その結果、Cr 置換と共に、フェルミ準位がホールドープを反映してエネルギー的に移動する振る舞いが観察された。それに伴い電子ポケットが消失することが分かり、面内抵抗異方性の Cr 置換量依存性をフェルミ面の変化と関連づけた理論計算と整合する結果が得られた。

第 5 章では、 $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ において様々な Se 置換量 x を持つ試料 ($x = 0.15, 0.2, 0.3, 0.4$) に対し ARPES 測定を行い、それらの電子構造を系統的に調べた。Se 置換量が増加すると、M 点近傍で形成される電子バンドの幅が広がり、繰り込み因子の減少が確認された。さらに、 Γ 点近傍に位置するホールバンドの一つが Te 置換によってフェルミ準位以下に占有され、ホールポケットの消失が観察された。これらから、電子相関とフェルミ面形状の元素置換依存性が、ホール係数の符号反転を引き起こすと結論した。一方で、電荷中性条件を守るフェルミ面の k_z 依存性を今後調べる必要性が課題として残った。

第 6 章では、 $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ の温度変化時に観測される非自明なホール係数の符号反転を解明するため、 $x = 0.2$ と 0.4 の 2 種類の物質を対象に電子構造の温度変化を ARPES 測定により調べた。その結果、最適ドープ試料 ($x = 0.4$) においてのみ、電子バンドの準粒子スペクトル成分が温度上昇に伴い抑制され、100 K 以上では消滅することが明らかとなった。この温度変化と、ホール係数に見られる温度依存性(符号反転)との関連が議論されている。

第 7 章では、本論文の総括と、本研究を通して新たに見えてきた課題、及びそれらを解決する実験方法が提案されている。

本博士論文では、鉄系超伝導体の常伝導状態、及び反強磁性秩序相に着眼し、特に電気抵抗とホール係数に見られる異常な振る舞いを電子構造の直接観察から解明する研究がなされている。特に、2 種類の物質群 $\text{Ba}_2(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)\text{As}_2$ 及び $\text{Fe}(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)$ に焦点を当て、様々な置換量 x を変化させた電子構造の系統的測定を通して、電子輸送現象の特異性に妥当な解釈を与えた点が高く評価できる。また、様々な光電子分光技術を駆使して電子状態を解明しており、これらの総合的実験を通してのみ解釈される議論が展開されていることから、他の鉄系超伝導物質研究への波及効果が期待される。

なお、本論文は鈴木博人、Jian Xu、堀尾眞史、野中洋亮、中田勝、萩原健太、Chun Lin、鈴木雅弘、Yuxuan Wan、堀場弘司、小林正起、組頭広志、小野寛太、橋本信、Donghui Lu、Zhi-Xun Shen、出田真一郎、田中清尚、小林達也、宮坂茂樹、田島節子、大塚匠、渡辺孝夫、藤森淳の各氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって計画し実験と解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。