

審査の結果の要旨

氏名 松浦 康平

本論文「FeSe 系超伝導体の電子相図の研究」で研究対象としている FeSe 系超伝導体は、他の鉄系超伝導体とは異なり、反強磁性秩序を持たず、非磁性の電子ネマティック相を持ちながら超伝導を示すため、鉄系超伝導体の発現機構解明の鍵となる物質として着目されている。本論文では、この FeSe に対して、純良単結晶試料を用いた圧力下物性測定により電子相図の決定を行い、どのような条件で高温超伝導が発現するかを明らかにするとともに、敏感な磁気プローブであるミュオンスピン緩和 (μSR) により、この系が示す特異な超伝導状態を明らかにした。

本論文は、5つの章と結言、謝辞、および参考文献から構成されている。第1章の序論では、超伝導現象と鉄系超伝導の一般的な性質を、第2章では本論文の対象である FeSe 超伝導体のイントロダクションが述べられている。主な研究結果は大きく3つに分類され、以下のように第3章から第5章で述べられている。

第3章では、FeSe 超伝導体の圧力下電子相図の研究について述べられている。近年、化学蒸気輸送法を用いて FeSe の純良単結晶試料の合成が可能となり、電気抵抗率の温度依存性から電子ネマティック転移温度を決定できるようになった。これを受け、本研究では、FeSe の圧力下電気抵抗率測定を行うことで、温度-圧力の変化に対してどのような電子状態が実現するかを相図上にまとめることにより、電子ネマティック相と超伝導の関係を調べることを目的とした。先行研究により、電子ネマティック相が完全に抑制される前に圧力誘起の磁気秩序が現れることがわかっていたが、本研究により、その磁気転移温度が圧力の増加とともに一旦上昇し、その後低下するというドーム型の圧力依存性を示すことが明らかとなった。さらに、高压での磁気秩序抑制とともに超伝導転移温度が急激に上昇し、常圧での 9 K の超伝導転移温度が 38 K まで上昇することを見出した。

第4章では、FeSe の Se サイトの一部を等価数の S で置換した $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ の単結晶試料における圧力下電子相図の研究について述べられている。この等価置換系は、イオン半径の差により格子定数が縮む一方で全キャリア数の変化は期待されず、化学的な圧力効果とみなすことができるため、前章の物理的な圧力効果との比較が興味深い系である。本研究では、異なる S 置換量の純良単結晶試料を作製し、得られた試料における圧力下電気抵抗率測定により、温度-S 置換量-圧力の3次元空間における電子相図を完成させた。その結果、S 置換系では圧力により電子ネマティック相が完全に消失する圧力と、圧力誘起型磁気秩序の生成する圧力を完全に分離できること、およびその間の圧力では非磁性の正方晶状態となりその磁気秩序に隣接する圧力領域で転移温度が 30 K を超す高温超伝導が実現することを見出した。これは、高温超伝導出現に磁気秩序の揺らぎが大きく関わっていることを示唆する重要な結果である。また、構造解析の結果を合わせて、物理圧力と化学圧力の違いの原因を鉄平面からのカルコゲンサイトの距離で説明可能であることを議論している。

第5章では、 $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ の単結晶試料を用いた μSR 測定の結果により、この系の超伝導状態において時間反転対称性が破れている実験的証拠を得たことを述べている。この FeSe 系超伝導体で

は、非従来型異方的 d 波超伝導と等方的 s 波超伝導が混合した超伝導の実現が理論的に議論されており、特に $s+id$ のような複素数の秩序変数を持つ新しい状態となっていれば、超伝導状態において試料中に自発的な内部磁場が発生することが期待される。本研究では、ゼロ磁場の実験環境で試料を冷却し、内部磁場を敏感に検出可能である μSR 測定を行ったところ、超伝導転移温度以下で内部磁場の発生を示す緩和率の増大の観測に成功した。この結果は、FeSe 系超伝導の秩序変数が複素数で記述できるような特異な状態が実現していることを示唆している。

以上のように、本論文の結果は、FeSe 系超伝導体における電子相図を決定し、その特異な超伝導状態を実験的に明らかにしたものであり、鉄系超伝導の発現機構に重要な知見を与えるものである。なお、本研究は、水上雄太助教、大学院生の新井佑基、杉村 優一、邱 明璋、芝内孝禎教授らとの共同研究であり、圧力下物性測定については物性研究所の上床美也教授、中国科学院の Jinguang Chen 教授および香港中文大学の Swee K. Goh 准教授のグループ、構造解析については物性研究所の廣井善二教授および量子科学技術研究開発機構の綿貫徹研究員のグループ、 μSR 測定についてはコロンビア大学の植村泰朋教授らのグループ、試料作製については京都大学の松田祐司教授のグループの協力を得たものであるが、論文提出者が主体となって実験、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。

よって本論文は博士（科学）の学位請求論文として合格と認められる。

以上 1 9 6 9 字