

氏 名	清水 真		
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	6 8 3 6	号
学位授与の日付	2 0 2 3 年 3 月 2 4 日		
学位授与の要件	自然科学研究科 学際基礎科学専攻 (学位規則第4条第1項該当)		
学位論文の題目	Density functional and spin fluctuation theory based study for iron-based and organic superconductors (密度汎関数理論およびスピンゆらぎの理論に基づく鉄系・有機系超伝導体の研究)		
論文審査委員	教授 笠原 成	教授 横谷 尚睦	准教授 安立 裕人
学位論文内容の要旨			
1) FeSe インターカレート系における電子ドーピングの効果 電子ドーピングされた FeSe 系物質は高い超伝導転移温度T_cを示すことで注目を集めているが、スピンゆらぎに必要な不可欠なホール面の欠如が指摘されており、超伝導発現機構は未解決の問題である。近年の実験および理論研究では、このような系でもスピンゆらぎが発達することが示唆されている。本学位論文で対象とした$\text{Li}_x(\text{C}_3\text{N}_2\text{H}_{10})_{0.37}\text{FeSe}$は、広いドーピング領域 ($0.06 \leq x \leq 0.68$) で超伝導が実現していることから、電子ドーピング FeSe 系の超伝導発現機構を探る格好の舞台として注目を集めている。 本研究では、$\text{Li}_x(\text{C}_3\text{N}_2\text{H}_{10})_{0.37}\text{FeSe}$の示すドーム型超伝導相 ($T_c$が低ドーピング領域で増大したのち高ドーピング領域で減少する振る舞い) の発現機構を明らかにするために、電子密度汎関数理論 (DFT) およびスピンゆらぎの理論に基づいた理論計算を行った。遍歴描像を用いた解析により、電子ドーピングによってスピンゆらぎが増大し、超伝導も増強されることを明らかにした。この結果は低ドーピング領域におけるT_cの増大に一致している。また、局在描像を用いた解析により、低ドーピング領域では超伝導発現に有利なストライプ型磁気ゆらぎが発達するのに対して、高ドーピング領域では超伝導発現に不利な双共線型磁気ゆらぎに変化することを示し、これが高ドーピング領域におけるT_cの減少をもたらすことを明らかにした。 2) κ-型 BEDT-TTF 電荷移動錯体 BEDT-TTF 電荷移動錯体の中で最多の超伝導物質を有するκ-(BEDT-TTF)$_2$Xは、長年にわたり研究がなされてきたものの、その超伝導ギャップ構造は議論が続いている。初期の実験や理論研究によってd波超伝導との見解がされてきたが、フルギャップの異方的s波や$s_{\pm} + d_{x^2-y^2}$波の可能性が近年の詳細な解析によって示唆されており、物質依存性を考慮した詳細な研究が必要となっている。本研究では、DFT に基づいて物質依存性を考慮し、ゆらぎ交換 (FLEX) 近似を適用したスピンゆらぎの理論を用いて超伝導対称性および転移温度の議論を行った。結果として、κ-(BEDT-TTF)$_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ ではフルギャップの異方的s波、κ-(BEDT-TTF)$_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$では$s_{\pm} + d_{x^2-y^2}$波を示す結果を得た。また、これらの超伝導対称性は、ある特定の飛び移り積分の比によって決定されることを明らかにした。			

論文審査結果の要旨

清水真氏はこの学位論文の中で、電子相関の強い強相関物質において観測されている超伝導現象について、第一原理計算とスピンゆらぎの理論に基づく理論研究を行っている。清水氏の研究は、強相関物質における超伝導発現機構、より具体的には、圧力やキャリアドーピングによる超伝導転移温度の変化や超伝導対称性を理論的に明らかにすることを目的としている。一般に、強相関物質での超伝導の理解には詳細な電子構造を考慮に入れることが必須である。清水氏は、密度汎関数理論に基づいた数値計算により電子構造を考慮し、さらにスピンゆらぎの理論を用いることで強相関物質での超伝導を議論している。学位論文では、以下の2つの化合物に注目し、独自の成果を得た。

(1) 鉄系化合物における高温超伝導は、その発見以降、世界中で活発な研究競争が繰り広げられている。清水氏は、そのなかにおいて、層状鉄系超伝導体 FeSe を母体として、層間への分子インターカレートにより電子が過剰ドーピングされる化合物 $\text{Li}_x(\text{C}_3\text{N}_2\text{H}_{10})_{0.37}\text{FeSe}$ に注目した。この物質は、電子ドーピングによって超伝導転移温度 T_c が極大値をとるドーム型の電子相図を示す。清水氏はスピンゆらぎの理論を用いることで電子ドーピングによりフルギャップの異方的 s 波超伝導の発現が優勢になることを示し、一方、高ドーピング側では局在描像を用いることで磁気構造が変化することを示し、これが T_c の減少をもたらすと結論した。

(2) 有機物質系の中でも κ 型構造をもつ電荷移動錯体 $\kappa\text{-(BEDT-FFT)}_2X$ は、反強磁性モット絶縁相近傍に位置し、多くの化合物が超伝導を示す物質群である。その超伝導対称性に関しては、強相関物質で多くみられる d 波超伝導が長らく有力視されていたが、近年、フルギャップの異方的 s 波超伝導を示唆する実験結果が複数報告されており、さらなる研究が必要となっている。清水氏は、詳細な有機分子間の電子の跳び移り積分を考慮に入れ、スピンゆらぎの理論を用いて、8つの κ 型電荷移動錯体の超伝導を調べた。その結果、一連の物質群の中で最も高い T_c を示す物質で異方的 s 波超伝導を示す結果を得るとともに、ある特定の飛び移り積分が小さい物質ではノードを持つ $s + d$ 波超伝導が優勢であることを示した。これは、この物質群における超伝導対称性の違いを微視的なパラメーターに関連付けて説明することに成功した重要な結果である。

以上のように、上記の研究はいずれも独自の着想に基づき行われた理論研究であり、当該分野の研究の進展に貢献するものであるといえる。また、論文発表会において、清水氏は審査委員等からの質問に明快に回答した。よって、清水氏の学位審査は合格と判断する。