

令和 3 年 6 月 21 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2020

課題番号：17K05556

研究課題名（和文）鉄系超伝導体の相図と電子状態、超伝導状態

研究課題名（英文）Phase diagram, electronic structure, and superconductivity of iron-based superconductors

研究代表者

寺嶋 太一（TERASHIMA, Taichi）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・グループリーダー

研究者番号：40343834

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000 円

研究成果の概要（和文）：（1）鉄系超伝導体母物質CaFeAsF、鉄系超伝導体FeSのフェルミ面を量子振動測定により決定した。特に、前者においては量子振動の位相の解析により、理論的予言通りディラック電子が存在することを確認した。

（2）鉄系超伝導体Ba_{1-x}K_xFe₂As₂（X ~ 0.69, 0.76）の磁気トルク測定において、顕著なピーク効果とその近傍磁場における一次転移的振る舞いを観測した。

（3）Ba_{0.5}K_{0.5}Fe₂As₂、CaKFe₄As₄、KCa₂Fe₄As₄F₂のelastoresistance測定を行った。いずれにおいても低温でelastoresistanceの顕著な増大を観測した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

2008年に東工大・細野教授らの報告した鉄系超伝導体は、銅酸化物超伝導体に次ぐ高い超伝導転移温度を持ち、実用化に期待が持たれている。一方で、より高い転移温度を実現するために、超伝導発現機構解明のための基礎研究も盛んに進められている。本研究では、金属の電子状態を理解するために最も基礎となるフェルミ面を、量子振動測定により決定すること。elastoresistanceと呼ばれる測定により電子状態の異方性を明らかにすること。線材応用にとって重要な磁束のピン止めに関連するピーク効果を調べることなどを実施して、鉄系超伝導体の基礎的理解を深めることに努めた。

研究成果の概要（英文）：(1)The Fermi surface in an iron-based superconductor parent compound CaFeAsF and an iron-based superconductor compound FeS was determined via quantum-oscillation measurements. The existence of Dirac fermions in CaFeAsF was established from the analysis of the oscillation phase.

(2) The magnetic torque in iron-based superconductor parent compounds Ba_{1-x}K_xFe₂As₂（X ~ 0.69, 0.76） was measured. A pronounced peak effect was observed, and a first-order-transition-like jump of the torque was observed.

(3) Elastoresistance measurements on iron-based superconductor parent compounds Ba_{0.5}K_{0.5}Fe₂As₂, CaKFe₄As₄, and KCa₂Fe₄As₄F₂ were performed. All the three compounds exhibit a pronounced enhancement of elastoresistance as the temperature is lowered.

研究分野：固体物理

キーワード：鉄系超伝導体 量子振動 フェルミ面 ピーク効果 弾性抵抗

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2008年に東工大・細野教授らの報告した鉄系超伝導体は、発見からわずか1年で超伝導転移温度が30度も上昇したため、高温超伝導体の有力な候補物質として注目され、実用化を目指した研究が進められている。また同時に、より高い転移温度を実現するために、超伝導発現機構解明の基礎研究も非常に盛んである。

2. 研究の目的

本研究は、鉄系超伝導体の相図と電子状態、超伝導状態についての基礎研究であり、具体的には下記を目指した。

- (1) 量子振動測定により、鉄系超伝導体(母物質)のフェルミ面を決定すること。
- (2) 低温の電子ネマチック状態における電子状態の異方性に関する知見を得ること。
- (3) 磁束系の相図を調べること。

3. 研究の方法

(1) 量子振動とは低温強磁場で金属の電気抵抗、磁化などが磁場の関数として、磁場の逆数に対して周期的に振動する現象である。電気抵抗の振動をシュブニコフ・ドハース(SdH)振動、磁化の振動をドハース・ファンアルフェン(dHvA)振動と呼ぶ。振動の周波数は、磁場に垂直なフェルミ面の極値断面積に比例し、様々な磁場方位の測定結果とバンド計算からの予想を照らし合わせることでフェルミ面が決定できる。さらに、振動の温度依存性から電子の有効質量が、また振動の磁場依存性から散乱時間が決定できる。測定には高品質の単結晶を必要とするが、本研究においては、Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology(中国)において育成された鉄系超伝導体母物質CaFeAsFの単結晶とNanjing University(中国)で育成された鉄系超伝導体FeSの単結晶を測定に用いた。また低温強磁場の発生には、物質・材料研究機構低温応用ステーションの20テスラ・希釈冷凍機、National High Magnetic Field Laboratory(米国)の45テスラハブリッド磁石・He3冷凍機などを利用した。

(2) 鉄系超伝導体母物質やアンダードープの鉄系超伝導体は低温で正方晶から直方晶への相転移を示す。結晶格子の変化が極めて小さいにもかかわらず、電子状態に大きな異方性が現れるため、通常の構造相転移ではなく、電子系に起源を持つ電子ネマチック転移と考えられ、超伝導との関係が注目を集めている。結晶に一軸ひずみを与えたときの電気抵抗の変化を観測するelastoresistanceは、電子ネマチック秩序の揺らぎを観測できると考えられ、様々な鉄系超伝導体で測定が行われている。本研究では、産業技術総合研究所で育成された鉄系超伝導体Ba_{0.5}K_{0.5}Fe₂As₂、CaKFe₄As₄とShanghai Institute of Microsystem and Information Technology(中国)で育成されたKCa₂Fe₄As₄F₂の単結晶について、elastoresistance測定を行った。

(3) 磁気的な測定を通じて磁束系の振る舞い、相図を明らかにすることは、基礎研究として重要なだけでなく、応用的な観点からも重要である。本研究では、産業技術総合研究所で育成された鉄系超伝導体Ba_{1-x}K_xFe₂As₂の磁気トルク測定を行い、磁束系の相図を調べた。測定に必要な低温強磁場はNational High Magnetic Field Laboratory(米国)の45テスラハブリッド磁石・He3冷凍機などを利用した。

4. 研究成果

(1) CaFeAsFのSdH測定によりフェルミ面を完全に決定した(図1)。フェルミ面は電子のおよびホール的の2種類の円筒状フェルミ面からなる。電気伝導を担うキャリア数が特異に少なく、鉄系超伝導体のバンドのトポロジカルな性質から反強磁性ギャップは必ずノードを持つとする予測(ノーダルSDW)と良く整合する。さらに、量子振動の詳細な解析により、電子的なフェルミ面が、「ディラック電子」と呼ばれる特別なタイプの電子によるものであることが明らかになった。

FeSのSdH測定、dHvA測定によりフェルミ面を精確に決定した。準粒子自己無撞着GW(QSGW)近似による電子状態計算によれば、フェルミ面はそれぞれ2枚のホール面と電子面からなると予想されるが、そこから期待される量子振動の周波数8ヶをすべて実験的に観測できた。観測されたフェルミ面のサイズと計算結果は、波数 k に依存しないかだか0.1eV以下のバンドエネルギーの調整を行うことで、ブリルアンゾーン断面積の0.2%の精度で一致した。

(2) Ba_{0.5}K_{0.5}Fe₂As₂、CaKFe₄As₄、KCa₂Fe₄As₄F₂のelastoresistance測定を実施し、三化合物すべてで低温におけるelastoresistanceの増大を観測した。Ba_{0.5}K_{0.5}Fe₂As₂、CaKFe₄As₄については既報と矛盾しない。KCa₂Fe₄As₄F₂については初めての測定データである。三化合物はいずれも母物質のFeに対し0.25個ホールドープした状態に当たる。しかしながら、鉄サイトの対称性はBa_{0.5}K_{0.5}Fe₂As₂のD_{2d}から、CaKFe₄As₄、KCa₂Fe₄As₄F₂ではC_{2v}に低下する。この結果、鉄の d_{xz} 、 d_{yz} 軌道の縮退がとける。他研究グループによるラマン測定の結果では、Ba_{0.5}K_{0.5}Fe₂As₂ではネマチック揺らぎの発達が観測されるのに対し、CaKFe₄As₄では観測されず、軌道縮退がとけて軌道起源

のネマチック揺らぎが消失したと議論されている。elastoresistance の増大はネマチック揺らぎの増大を示すと考えられているので、我々の結果はラマンの結果と一見矛盾するように見える。どのような解釈が可能か検討した。

(3) $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($x \sim 0.69, 0.76$) の磁気トルク測定を行い、超伝導状態の温度-磁場相図を決定した、また異常なピーク効果を見出した(図2)。上部臨界磁場直下にピーク効果が見られ、磁場方位を c 軸から面内に傾けるに従い、ピーク効果は顕著になる。更に、磁場増大時と減少時でトルクがピークを示す磁場が大きく異なり、かつまた磁場増大時にはピークの高磁場側、減少時には低磁場側に一次転移を示唆するトルクの急激な変化が観測された。また、複雑な磁場履歴依存性も見られた。これらは、これまでに報告されているピーク効果の振る舞いと大きく異なる。面内に近い磁場方位の場合、上部臨界磁場はパウリ リミットに匹敵するので、この異常な振る舞いにスピン常磁性効果に関係している可能性もあると指摘した。

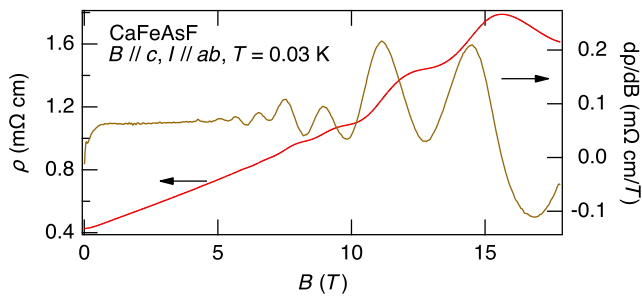


図1。CaFeAsF の SdH 振動と決定されたフェルミ面。T. Terashima *et al.*, Phys. Rev. X **8**, 011014 (2018).

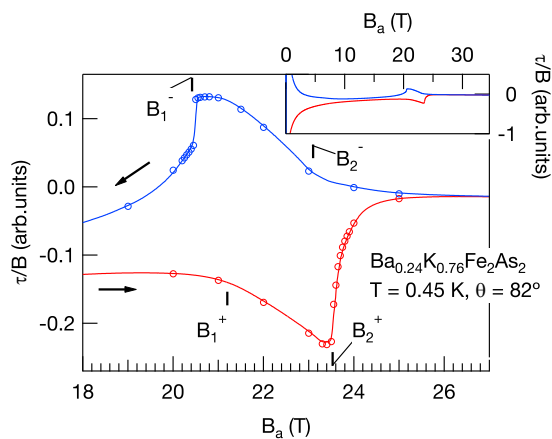
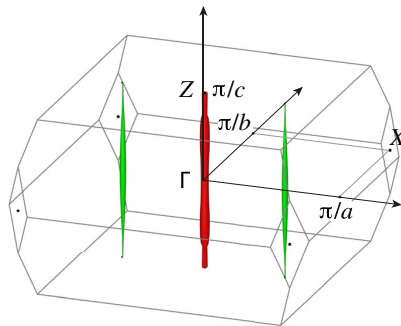


図2。Ba_{0.24}K_{0.76}Fe₂As₂ の磁気トルク測定で観測された異常なピーク効果。T. Terashima *et al.*, Phys. Rev. B **99**, 094508 (2019).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Terashima Taichi, Matsushita Yoshitaka, Yamase Hiroyuki, Kikugawa Naoki, Abe Hideki, Imai Motoharu, Uji Shinya, Ishida Shigeyuki, Eisaki Hiroshi, Iyo Akira, Kihou Kunihiro, Lee Chul-Ho, Wang Teng, Mu Gang	4. 巻 102
2. 論文標題 Elastoresistance measurements on CaKFe4As4 and KCa2Fe4As4F2 with the Fe site of C2v symmetry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 054511-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.054511	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Terashima Taichi, Kikugawa Naoki, Graf David, Hirose Hishiro T., Uji Shinya, Matsushita Yoshitaka, Lin Hai, Zhu Xiyu, Wen Hai-Hu, Nomoto Takuya, Suzuki Katsuhiko, Ikeda Hiroaki	4. 巻 99
2. 論文標題 Accurate determination of the Fermi surface of tetragonal FeS via quantum oscillation measurements and quasiparticle self-consistent GW calculations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134501-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.134501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Terashima Taichi, Kikugawa Naoki, Kiswandhi Anhdika, Choi Eun-Sang, Kihou Kunihiro, Ishida Shigeyuki, Lee Chul-Ho, Iyo Akira, Eisaki Hiroshi, Uji Shinya	4. 巻 99
2. 論文標題 Anomalous peak effect in iron-based superconductors Ba1-xKxFe2As2 (x ~ 0.69 and 0.76) for magnetic-field directions close to the ab plane and its possible relation to the spin paramagnetic effect	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 094508-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.094508	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Taichi Terashima, Hishiro T. Hirose, David Graf, Yonghui Ma, Gang Mu, Tao Hu, Katsuhiko Suzuki, Shinya Uji, and Hiroaki Ikeda	4. 巻 8
2. 論文標題 Fermi Surface with Dirac Fermions in CaFeAsF Determined via Quantum Oscillation Measurements	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW X	6. 最初と最後の頁 011014-1 - 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevX.8.011014	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Taichi Terashima
2. 発表標題 Fermi surface with Dirac fermions in an iron-based superconductor parent compound CaFeAsF via quantum oscillation measurements
3. 学会等名 International Conference on Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taichi Terashima
2. 発表標題 Quantum-oscillation Fermiology of 1111 and 11 iron-based superconductor (parent) compounds
3. 学会等名 Superstripes 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taichi Terashima
2. 発表標題 Effective masses of carriers in iron pnictides/chalcogenides and other superconductors determined via quantum oscillations
3. 学会等名 International Conference "ELECTRON CORRELATION IN SUPERCONDUCTORS AND NANOSTRUCTURES" (ECSN-2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺嶋太一、菊川直樹、David GrafA、廣瀬陽代、宇治進也、松下能孝、Hai LinB、Xiyu Zhu、 Hai-Hu Wen、野本拓也、鈴木雄大、池田浩章
2. 発表標題 量子振動測定とGW近似計算によるFeSのフェルミ面決定
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 寺嶋太一、廣瀬陽代、David Graf、Yonghui Ma、Gang Mu、 Tao Hu、鈴木雄大、宇治進也、池田浩章
2. 発表標題 CaFeAsFのフェルミ面とベリー位相
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Taichi Terashima
2. 発表標題 Fermi surface studies of iron-based superconductors via quantum oscillation measurements
3. 学会等名 International Workshop on recent progress in superconductivity (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 寺嶋太一、菊川直樹、Kiswandi Andhika、Choi Eun-Sang、木方邦宏、石田茂之、李哲虎、伊豫彰、永崎洋、宇治進也
2. 発表標題 鉄系超伝導体 Ba1 - xKxFe2As2 のピーク効果と磁束系の逐次相転移
3. 学会等名 日本物理学会 2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 寺嶋太一、廣瀬陽代、David Graf、Yonghui Ma、Gang Mu、 Tao Hu、鈴木雄大、宇治進也、池田浩章
2. 発表標題 強磁場を使った鉄系超伝導体のフェルミ面研究
3. 学会等名 強磁場コラボラトリーが拓く未踏計測領域への挑戦と物質・材料科学の最先端
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 寺嶋太一、廣瀬陽代、David Graf、Yonghui Ma、Gang Mu、Tao Hu、鈴木雄大、宇治進也、池田浩章
2. 発表標題 CaFeAsFのフェルミ面とベリー位相の検出
3. 学会等名 つくば-柏-本郷 超伝導かけはしプロジェクト ワークショップ(1)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

国際ナノアーキテクトニクス研究拠点(MANA) 量子物質特性グループ
<https://www.nims.go.jp/research/group/quantum-material-properties/>

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
中国	SIMIT, CAS	Nanjing University	
米国	National High Magnetic Field Laboratory		