

令和 3 年 6 月 14 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01159

研究課題名(和文) 梯子型鉄系化合物における超伝導とマルチフェロイクスの研究

研究課題名(英文) Superconductivity and multiferroics in Fe-based ladder materials

研究代表者

大串 研也(Ohgushi, Kenya)

東北大学・理学研究科・教授

研究者番号：30455331

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：複数の測定プローブを相補的に用いることで、梯子型鉄系化合物の電子物性を解明した。鉄の3d電子は、低次元性・多軌道性・強相関電子効果が協奏するために、多彩な磁気秩序/軌道秩序を示すことが分かった。ストライプ型磁気秩序/フェロ型軌道秩序の揺らぎは超伝導発現の源となる一方で、ブロック型磁気秩序/プロペラ型軌道秩序はマルチフェロイクス現象を示すことが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導やマルチフェロイクスを示す材料は、次世代エレクトロニクスで使用されるデバイスの基盤材料として有望である。本研究を通して、超伝導やマルチフェロイクスが発現する微視的機構が電子論的に解明されたことは意義深く、将来、より高温で動作するデバイス・より高い機能を有するデバイスを作成することに繋がる。

研究成果の概要(英文)：By using several complementary experimental probes, we have elucidated the electronic properties of iron-based ladder compounds. It is found that the 3d electrons of Fe exhibit a variety of magnetic and orbital orders due to the low dimensionality, multi-orbital nature, and strongly correlated electron effects. Fluctuations of the stripe-type magnetic order/ferro-type orbital order is responsible for the formation of superconductivity, while block-type magnetic order/propeller-type orbital order shows the multiferroic phenomena.

研究分野：物性物理

キーワード：強相関電子系 鉄系超伝導 マルチフェロイクス 軌道秩序 梯子格子

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

鉄系超伝導体は、エキゾチック超伝導という観点から重要な物質群である。鉄の3d電子間には大きなクーロン相互作用が働いており、常伝導状態において、相互作用の衣を纏った準粒子が形成されている。これらの準粒子は、スピン揺らぎ・軌道揺らぎを媒介とすることで、超伝導転移温度以下でクーパーペアを形成する。これまでに多数の鉄系超伝導ファミリーが知られているが、それらの物質においては鉄が正方格子を組んでいるという共通点があった。その唯一の例外となるのが、梯子型鉄系化合物 BaFe_2X_3 ($\text{X} = \text{S}, \text{Se}$) のファミリーである。梯子型鉄系化合物は、常圧でストライプ型/ブロック型磁気秩序を示すモット絶縁体である。圧力を印加すると、10 GPa 付近でモット転移を示し、それと同時に超伝導 (超伝導転移温度 $T_c = 24 \text{ K}$) が発現する。こうしたユニークな特徴を有する梯子型鉄系化合物について、軌道の自由度も含めて電子状態をより詳細に調べることで、鉄系超伝導発現機構に関して新たな知見を得ることができる。また、梯子型鉄系化合物においてマルチフェロイクスが発現するとの理論的予言がなされており、その実証を通して超伝導を超えた新奇電子相を開拓することが期待されている。

2. 研究の目的

本研究課題の目的は、梯子型鉄系化合物における軌道の自由度が電子状態形成に果たす役割を明らかにし、超伝導発現機構に関する知見を得るとともに、マルチフェロイクスなどの新奇物性を開拓することである。特に、以下の三つの観点に着目した。

- (1) $\text{BaFe}_2\text{S}_3/\text{BaFe}_2\text{Se}_3$ の 200/400 K に存在する構造相転移を、軌道自由度の観点から解明する。特に、 BaFe_2Se_3 については、軌道秩序誘起マルチフェロイクスの可能性を追求する。
- (2) 固溶体 $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ の常圧下における電子相図を描くことで、磁気秩序と軌道秩序の相関を解明する。
- (3) 固溶体 $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ の圧力下における電子相図を描くことで、磁気秩序と軌道秩序が超伝導発現に果たす役割を解明する。

3. 研究の方法

(1) 固溶体 $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ の合成

BaFe_2S_3 と BaFe_2Se_3 の固溶体 $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ を、固相反応法により合成した。結晶構造を粉末X線回折により、組成をSEM-EDXにより評価した。得られた試料の電気抵抗率・磁化率・中性子回折・反射率を評価することで、組成の関数として電荷ギャップ・磁気転移温度・構造相転移温度をプロットし電子相図を作成した。さらに、軌道秩序に伴い生じる微小なフェルミ面の变化を検出するために、磁気抵抗効果の磁場方位依存性を測定した。

(2) 圧力下の物性測定

固溶体 $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ に対して、圧力下の電気抵抗率を測定した。ピストンシリンダー型高圧発生装置とダイヤモンドアンビルセル型高圧発生装置を相補的に用いることで、15 GPa までの圧力領域で電気抵抗率を精密に測定した。

(3) 非線形光学効果の測定

マルチフェロイクス特性を示すことが理論的に指摘されている梯子型鉄系化合物 BaFe_2Se_3 を対象に、チタンサファイアレーザーを用いた非線形光学応答の測定を実施した。第二高調波発生テンソルを考察することで、空間反転対称性の破れの有無および磁気点群を決定した。

4. 研究成果

(1) BaFe_2S_3 における軌道秩序の解明[1]

梯子型鉄系化合物 BaFe_2S_3 における磁気抵抗効果の磁場方位依存性は、構造相転移が生じると考えられてきた 200 K 付近において、質的な変化を示すことを見出した。様々な実験配置における磁気抵抗効果の詳細な解析を通して、200 K においてフェロ型軌道秩序が生じていることを結論した。この軌道秩序は、120 K より低温で生じるストライプ型磁気秩序の安定化に関わっていると考えられる。

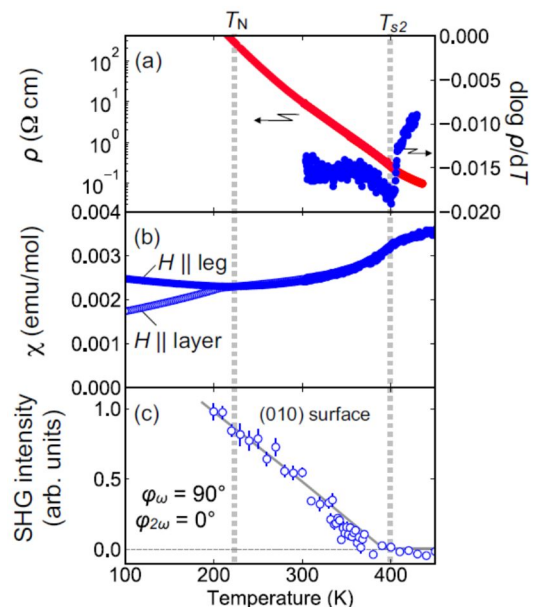


図 1. BaFe_2Se_3 の、(a)電気抵抗率、(b)磁化率、(c)第二高調波発生の温度依存性。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計13件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Fei Du, Yutaka Ueda, and Kenya Ohgushi	4. 巻 123
2. 論文標題 Large magnon contributions to thermal conductance in quasi-one-dimensional Fe-based ladder compounds BaFe ₂ (S _{1-x} Se _x) ₃	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Lett.	6. 最初と最後の頁 086601/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.086601	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 Takuya Aoyama, Kazutoshi Emi, Chihiro Tabata, Yusuke Nambu, Hironori Nakao, Touru Yamauchi, and Kenya Ohgushi	4. 巻 88
2. 論文標題 Semimetallic State in La ₃ Ir ₃ O ₁₁ with the KSbO ₃ Structure	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 093706/1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.093706	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 -
1. 著者名 Takuya Aoyama, Satoshi Imaizumi, Takuya Togashi, Yoshifumi Sato, Kazuki Hashizume, Yusuke Nambu, Yasuyuki Hirata, Masakazu Matsubara, and Kenya Ohgushi	4. 巻 99
2. 論文標題 Polar state induced by block-type lattice distortions in BaFe ₂ Se ₃ with quasi-one-dimensional ladder structure	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 241109(R)/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.241109	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 -
1. 著者名 Y. Imai, K. Konno, Y. Hasegawa, T. Aoyama, and K. Ohgushi	4. 巻 99
2. 論文標題 Hydrated lithium intercalation into the Kitaev spin liquid candidate material - RuCl ₃	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 245141/1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.245141	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 -

1. 著者名 K. Kobayashi, S. Maki, Y. Murakami, Y. Hirata, K. Ohgushi, and J. Yamaura	4. 巻 31
2. 論文標題 Crystal structure determination under high pressure in the iron-based ladder superconductor BaFe ₂ S ₃	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Supercond. Sci. Technol.	6. 最初と最後の頁 105002/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 -

1. 著者名 山内 徹, 高橋 博樹, 南部 雄亮, 佐藤 卓, 平田 靖透, 大串 研也	4. 巻 54
2. 論文標題 梯子型鉄系化合物BaFe ₂ S ₃ における圧力誘起超伝導	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 27-42
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 -

1. 著者名 大串 研也, 平田 靖透, 山内 徹	4. 巻 160
2. 論文標題 梯子型鉄系超伝導体の元素置換効果	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 FSST NEWS	6. 最初と最後の頁 5-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 S. Hosoi, T. Aoyama, K. Ishida, Y. Mizukami, K. Hashizume, S. Imaizumi, Y. Imai, K. Ohgushi, Y. Nambu, M. Kimata, S. Kimura, and T. Shibauchi	4. 巻 2
2. 論文標題 Dichotomy between orbital and magnetic nematic instabilities in BaFe ₂ S ₃	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Research	6. 最初と最後の頁 43293
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.2.043293	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 -

1. 著者名 Shin Nakamura, Takatsugu Masuda, Kenya Ohgushi, and Takuro Katsufuji	4. 巻 89
2. 論文標題 Mossbauer Study of Rare-earth Ferroborate NdFe ₃ (B ₀₃) ₄	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 84703
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.084703	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 -

1. 著者名 Mina Murase, Kaoru Okada, Yoshiaki Kobayashi, Yasuyuki Hirata, Kazuki Hashizume, Takuya Aoyama, Kenya Ohgushi, and Masayuki Itoh	4. 巻 102
2. 論文標題 Successive magnetic transitions and spin structure in the two-leg ladder compound CsFe ₂ Se ₃ observed by ¹³³ Cs and ⁷⁷ Se NMR	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 14433
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.014433	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 -

1. 著者名 Yoshinori Imai, Koya Sasaki, Takuya Aoyama, Kenji Shirasaki, Tomoo Yamamura, and Kenya Ohgushi	4. 巻 101
2. 論文標題 High-pressure synthesis of heavily hole-doped cuprates Mg _{1-x} LixCu ₂ O ₃ with quasi-one-dimensional structure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 245112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.245112	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 -

1. 著者名 Satoshi Imaizumi, Takuya Aoyama, Ryota Kimura, Koya Sasaki, Yusuke Nambu, Maxim Avdeev, Yasuyuki Hirata, Yuka Ikemoto, Taro Moriwaki, Yoshinori Imai, and Kenya Ohgushi	4. 巻 102
2. 論文標題 Structural, electrical, magnetic, and optical properties of iron-based ladder compounds BaFe ₂ (S _{1-x} Se _x) ₃	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 35104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.035104	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 大串研也, 江見知俊	4. 巻 55
2. 論文標題 BaMn2As2における磁気四極子秩序	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 623
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 -

〔学会発表〕 計25件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 大串 研也
2. 発表標題 Ferroic Order of Magnetic Quadrupoles in BaMn2As2
3. 学会等名 J-Physics 2019 International Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大串 研也
2. 発表標題 Exploring novel electronic properties near Kitaev spin liquid
3. 学会等名 3rd Asia-Pacific Workshop on Quantum Magnetism (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大串 研也
2. 発表標題 BaMn2As2における磁気四極子秩序
3. 学会等名 J-Physics地域研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今野 克哉
2. 発表標題 Alkali metal intercalation effect on a Kitaev spin liquid candidate material -RuCl ₃
3. 学会等名 GP-Spin Student Organized Seminar 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 青山拓也, 江見知俊, 木村尚次郎, 大串研也
2. 発表標題 BaMn ₂ As ₂ の交流伝導度測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今野克哉, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 アルカリ金属インターカレーション化合物A _x RuCl ₃ · yH ₂ O (A = Li, K, Rb)の合成と物性
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 野島綸斗, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物BaFe ₂ (S _{1-x} Sex) ₃ における圧力下電気抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 工藤 真裕
2. 発表標題 Magneto-transport properties in noncentrosymmetric antiferromagnets Ba _{1-x} K _x Mn ₂ As ₂
3. 学会等名 The 3rd Symposium for The Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今泉聖司, 青山拓也, 佐伯雄大, 今井良宗, 南部雄亮, Fei Du, 上田 寛, Maxim Avdeev, 大串研也
2. 発表標題 擬一次元梯子型鉄系化合物BaFe ₂ (Se _{1-x} S _x) ₃ における基礎物性測定
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 木村遼太, 今泉聖司, 佐々木宏也, 池本夕佳, 森脇太郎, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 擬一次元梯子型鉄系化合物BaFe ₂ (Se _{1-x} S _x) ₃ の赤外分光
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 富田健史, 池田修悟, 今泉聖司, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 小林寿夫
2. 発表標題 単結晶BaFe ₂ X ₃ (X=S, Se)の ⁵⁷ Feメスbauer分光法による研究
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大串研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物における超伝導とマルチフェロイクス
3. 学会等名 東京大学物性研究所 短期研究会「量子多体効果が生み出す液晶的電子状態」(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大串研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物の赤外分光
3. 学会等名 第36回 SPring-8先端利用技術ワークショップ ~強磁場中顕微赤外分光と高輝度放射光施設における赤外ビームラインの展望~(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今泉 聖司、青山 拓也、富樫 拓也、佐藤 佳史、松原 正和、大串 研也
2. 発表標題 第二高調波発生を用いた梯子型鉄系化合物Ba ₂ Se ₃ における極性構造の探索
3. 学会等名 第3回固体化学フォーラム研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ryota Kimura, Satoshi Imaizumi, Koya Sasaki, Yuka Ikemoto, Taro Moriwaki, Takuya Aoyama, Yoshinori Imai, and Kenya Ohgushi
2. 発表標題 Electronic phase diagram of quasi-one-dimensional iron-based ladder compounds BaFe ₂ (S _{1-x} Se _x) ₃
3. 学会等名 The 2nd Symposium for World Leading Research Centers -Materials Science and Spintronics- (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大串 研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物における量子液晶状態 超伝導とマルチフェロイクス
3. 学会等名 第12回 日本放射光学会 若手研究会「放射光若手スクール」(招待講演)(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 藤原秀行, 今井良宗, 山田和奏, 平岡巧, 青山拓也, 高橋遼太郎, 那波和宏, 萩原雅人, 奥山大輔, 鳥居周輝, 川股隆行, 後藤弘匡, 加藤雅恒, 佐藤卓, 大串研也
2. 発表標題 Kitaevスピン液体候補物質RuX ₃ (X = Cl, Br, I)の配位子置換効果
3. 学会等名 日本物理学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 青山 拓也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物 BaFe ₂ X ₃ (X = S および Se) における圧力誘起軌道スイッチング
3. 学会等名 第61回高圧討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 野島 倫斗, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物 BaFe ₂ (S _{1-x} Se _x) ₃ における圧力下電気抵抗測定 -II
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今井良宗, 山田和奏, 藤原秀行, 青山拓也, 高橋遼太郎, 那波和宏, 萩原雅人, 奥山大輔, 鳥居周輝, 川股隆行, 後藤弘匡, 加藤雅恒, 佐藤卓, 大串研也
2. 発表標題 Kitaevスピン液体候補物質ルテニウムハライドの高圧合成
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大串 研也
2. 発表標題 Bandwidth and filling control of Kitaev spin liquid in RuCl ₃
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」領域研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 青山 拓也
2. 発表標題 Pressure-induced orbital switching in iron-based ladder material BaFe ₂ (S _{1-x} Se _x) ₃
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」領域研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤原 秀行
2. 発表標題 Ligand substitution effect of Kitaev-spin liquid candidate materials RuX ₃ (X=Cl, Br, and I)
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」領域研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今井 良宗
2. 発表標題 新しいキタエフスピン液体候補物質ルテニウムハライドの高圧合成
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」量子物質開発フォーラム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 野島 綸斗
2. 発表標題 Electrical resistivity measurements under high pressure of for the iron-based ladder materials BaFe ₂ (S _{1-x} Se _x) ₃
3. 学会等名 材料科学拠点・スピン拠点国際シンポジウム
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究 分担者	今井 良宗 (Imai Yoshinori) (30435599)	東北大学・理学研究科・准教授 (11301)	
研究 分担者	青山 拓也 (Aoyama Takuya) (80757261)	東北大学・理学研究科・助教 (11301)	

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
---------	---------