

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 4 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23740279

研究課題名(和文)鉄系圧力誘起超伝導体の高圧力下量子振動測定と4GPa級小型圧力発生装置の開発

研究課題名(英文)High pressure quantum oscillation measurement of the pressure-induced iron-based superconductor and development of 4GPa class high pressure apparatus

研究代表者

栗田 伸之(KURITA, NOBUYUKI)

東京工業大学・理工学研究科・助教

研究者番号：80566737

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：鉄系圧力誘起超伝導体EuFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>を対象とし、輸送特性及び量子振動効果の高圧力下研究を行った。電気抵抗率、ホール効果、及び上部臨界磁場の詳細な解析により、EuFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>では磁気及び構造相転移が消失する臨界圧力P<sub>c</sub>において有効質量が発散しないことが明らかになった。一方P<sub>c</sub>以上の圧力領域において、散乱率が温度に比例する振る舞いが見られた。磁場印加によりフェルミ液体的振る舞いへと変化することから、P<sub>c</sub>近傍での異常散乱の起源はスピン揺らぎであると考えられる。更に高圧力下シュブニコフ・ドハース振動(SdH)測定を行い、SdH振動数及び有効質量の圧力依存性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have investigated transport properties and quantum oscillation effect in the pressure-induced superconductor EuFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> under high pressure. Detailed analyses of the resistivity, Hall effect, and upper critical field indicate no divergence of quasiparticle effective mass at the critical pressure P<sub>c</sub> where the magnetic and structural transition disappears. On the other hand, we have shown that the scattering rates for both electrons and holes are approximately T-linear for P>P<sub>c</sub>. The recovery of the Fermi liquid-like T<sup>2</sup> dependence of resistivity at high fields clearly indicates that spin fluctuations are the origin of the anomalous scattering. In addition, we have studied pressure evolutions of the Shubnikov-de Haas frequencies and quasiparticle effective mass.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性II

キーワード：鉄系超伝導体 圧力誘起超伝導 量子振動 輸送特性

### 1. 研究開始当初の背景

2008年初頭、東京工業大学の細野教授らのグループにより鉄系化合物  $\text{LaFeAs}(\text{O},\text{F})$  が  $T_c = 26 \text{ K}$  という高い温度で超伝導転移を示すことが報告された。世界中で精力的な研究が進められた結果、様々な結晶構造の鉄系超伝導体が発見され、 $T_c$  は  $54\sim 56 \text{ K}$  にまで到達した。一方、鉄系化合物における高温超伝導の発現メカニズムに関しては、現在でも一致した見解が得られていない。

最高  $T_c$  が報告された"1111"系や純良単結晶試料の育成が可能な"122"系に属する鉄系超伝導体の母物質の多くは、鉄砒素層由来の反強磁性体(転移温度  $T_0$ )である。元素置換や圧力印加により磁気秩序を抑制することで、超伝導相が出現する。従って、基底状態が超伝導へと変化する過程における電子状態の系統的变化を明らかにすることは、鉄系超伝導の起源を理解する上で非常に重要である。現状では元素置換による研究手段が中心となっており、圧力を外部パラメータとした電子状態の研究報告は非常に少ない。これは、鉄系圧力誘起超伝導体の臨界圧力  $P_c$  ( $T_0$  が消失し超伝導が出現する圧力) が高く、測定手段に大きな制約が課せられることが原因と考えられる。

### 2. 研究の目的

磁性と超伝導が競合/共存する鉄系化合物の研究では、結晶に乱れを導入せずに本質的な物性変化を明らかにしうる圧力制御が適している。本研究の目的は、 $P_c$  が比較的低い鉄系圧力誘起超伝導体  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  ( $T_c \sim 30 \text{ K}$ ,  $P_c = 2.5\text{-}2.7 \text{ GPa}$ ) を対象とし、輸送特性及び量子振動測定により電子状態の圧力効果を明らかにすることである。特に  $P_c$  近傍における電子有効質量の変化に着目する。

### 3. 研究の方法

単結晶試料  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  を用いて、電気抵抗、磁気抵抗、ホール効果、及びシュブニコフドハース (SdH) 効果測定を高圧力 ( $0 \leq P \leq 3.2 \text{ GPa}$ )・強磁場 ( $0 \leq B \leq 20 \text{ T}$ )・極低温 ( $20 \text{ mK} \leq T \leq 300 \text{ K}$ ) 環境で行った。SdH 効果測定には残留低効率比 ( $RRR$ ) が 50、それ以外の測定には  $RRR = 13$  又は 7 の単結晶試料を使用した。また、以上の高圧力下研究に必要な小型高圧力発生装置の開発も行った。

### 4. 研究成果

(1) 非磁性 NiCrAl 合金製の三層式ピストンシリンダー型高圧力発生装置の作成を行った。NiCrAl 合金の硬度 (HRC) は熱処理温度により変化し、 $\text{HRC} = 10\sim 60$  の値をとる。この性質を利用して硬度の異なる 3 種類の NiCrAl 製シリンダーを用意し、圧入により三層構造のシリンダーを作成した。20T 超伝導マグネットでの測定を念頭に置き、外径  $18 \text{ mm}$ ・全長  $66 \text{ mm}$  とした。到達圧力を向上させるために、内径は  $3.6 \text{ mm}$  としマンドレル処

理を行った。圧力テストにより、 $3.2 \text{ GPa}$  までの圧力発生が可能であることを確認した。

(2)  $RRR = 13$  の  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  単結晶試料の高圧力下電気抵抗率測定を行い、温度 - 圧力相図を決定した。図 1 に示すように、 $RRR = 7$  及び  $13$  の試料はそれぞれの臨界圧力  $P_c = 2.5 \text{ GPa}$  及び  $2.7 \text{ GPa}$  でスケールできる。いずれの試料においても  $T_0$  は  $P = P_c$  で不連続的に消失しているため、量子臨界点は存在しないと考えられる。

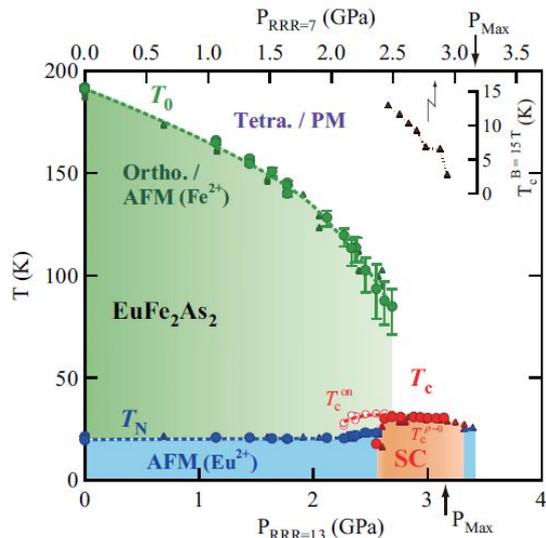


図 1 :  $RRR = 13$  及び  $7$  の  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  単結晶試料の温度 - 圧力相図。

(3) 高圧力下ホール抵抗及び磁気抵抗測定を行い、各圧力において 2 種類又は 3 種類のキャリアに基づく解析を行った。図 2 は  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  のキャリア密度  $n$ 、移動度  $\mu$ 、及び伝導度  $\sigma$  の圧力依存性である。いずれも  $P_c$  前後で異常は確認できない。従って、 $P_c$  近傍で電子有効質量は発散しないと考えられる。この結論は、本研究で得られた  $P_c$  近傍でのホール係数  $R_H$  の値及び超伝導相の上部臨界磁場  $B_{c2}$  の圧力依存性からも支持される。

に関して、 $P = 2.8 \text{ GPa}$  ( $\approx P_c$ ) で  $|R_H| = 0.16$  electron/Fe となり、バンド計算の結果と同程度の値をとる。従って  $P_c$  近傍においても単純な 2 キャリア描像で電子状態を理解することが出来る。に関して、各圧力で決定した  $B_{c2}$ - $T$  相図に対して  $\text{Eu}^{2+}$  磁気モーメントを考慮した多重対破壊モデルによる解析を行った。有効質量に比例する項の圧力依存性が得られたが、 $P_c$  近傍で有意な変化は現れなかった。

(4) 電気抵抗率の温度の冪 ( $\rho = \rho_0 + CT^x$ ) は、圧力増大に伴い  $x \sim 2$  から減少し、 $P_c$  近傍では広い温度領域で  $x \sim 1$  となることが明らかになった。ここでホール抵抗及び磁気抵抗の解析から、電子及びホールの散乱率  $\tau^{-1}$  は  $P_c$  近傍で温度に比例することが明らかになった。また、図 3 に示すように磁場増大

に伴い低温領域で  $x \sim 2$  のフェルミ液体的振る舞いへと変化していくことも明らかになった。これらは、 $P_c$  近傍での  $\tau^{-1} \propto T$  という異常散乱の起源がスピン揺らぎであることを示している。

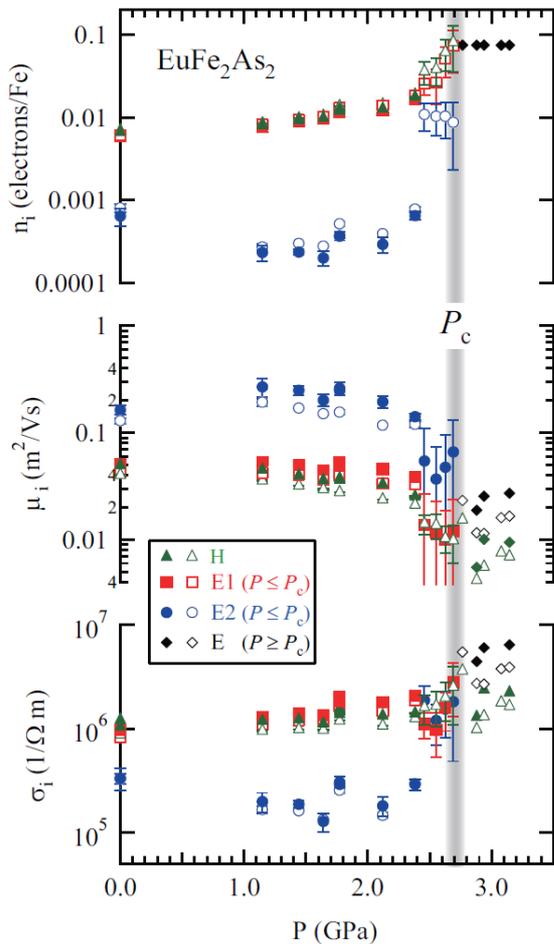


図 2: キャリア密度  $n_i$ 、移動度  $\mu_i$ 、及び伝導度  $\sigma_i$  の圧力依存性

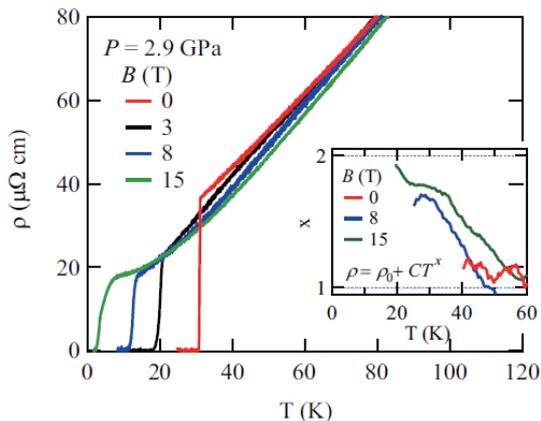


図 3: 2.9 GPa における各磁場での電気抵抗率の温度依存性。挿入図は各磁場での幂  $x$  の温度依存性。

(5)  $RRR = 50$  の  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  単結晶試料を用いた SdH 効果測定を行い、常圧における SdH

振動数の角度依存性を明らかにした。  $B//c$  で明瞭に観測された 2 種類の SdH プランチに関して 1.7 GPa ( $< P_c$ ) までの圧力効果測定を行った。両プラランチ共に圧力増大により SdH 振動数及び電子有効質量が単調増加を示すことが明らかになった。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 16 件)

N. Kurita, M. Kimata, K. Kodama, A. Harada, M. Tomita, H. S. Suzuki, T. Matsumoto, K. Murata, S. Uji, T. Terashima “Pressure induced superconductivity in  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  without a quantum critical point: Magnetotransport and upper critical field measurements under high pressure” Phys. Rev. B, 88, 224510 (2013), 査読有り

T. Terashima, N. Kurita, M. Kimata, M. Tomita, S. Tsuchiya, M. Imai, A. Sato, K. Kihou, C.-H. Lee, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, H. Harima, S. Uji “Fermi surface in  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  determined via de Haas-van Alphen oscillation measurements” Phys. Rev. B, 87, 224512 (2013), 査読有り

T. Terashima, N. Kurita, A. Kiswandhi, E.-S. Choi, J. S. Brooks, K. Sato, J. Yamaura, Z. Hiroi, H. Harima, S. Uji “Large and homogeneous mass enhancement in the rattling-induced superconductor  $\text{KOs}_2\text{O}_6$ ” Phys. Rev. B, 85, 180503(R) (2012), 査読有り

N. Kurita, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, A. Kismarhardja, E.-S. Choi, J. S. Brooks, Y. Uwatoko, S. Uji, T. Terashima “Upper critical field of the stoichiometric Fe-based superconductor  $\text{LiFeAs}$ ” J. Phys.: Conf. Ser., 391, 012133 (2012), 査読有り

N. Kurita, M. Kimata, K. Kodama, H. Satsukawa, A. Harada, H. S. Suzuki, T. Matsumoto, K. Murata, S. Uji, T. Terashima “Effects of Pressure and Magnetic Field on the Pressure-Induced Superconductivity in  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$ ” J. Phys.: Conf. Ser. 391, 012132 (2012), 査読有り

T. Terashima, N. Kurita, M. Tomita, K. Kihou, C.-H. Lee, Y. Tomioka, T. Ito, A. Iyo, H. Eisaki, T. Liang, M. Nakajima, S. Ishida, S. Uchida, H. Harima, S. Uji “Complete Fermi surface in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  observed via quantum oscillation measurements on detwinned single crystals” Phys. Rev. Lett., 107, 176402 (2011), 査読有り

M. Kimata, T. Terashima, N. Kurita, H. Satsukawa, A. Harada, K. Kodama, K. Takehara, Y. Imanaka, T. Takamasu, K. Kihou, C.-H. Lee, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo, H. Fukazawa, Y. Kohori, H. Harima, S. Uji “Cyclotron resonance and mass enhancement by electron correlation in  $KFe_2As_2$ ” Phys. Rev. Lett., 107, 166402 (2011), 査読有り

〔学会発表〕(計 28 件)

栗田伸之, 土屋聡, 杉井かおり, 鈴木博之, 松本武彦, 村田恵三, 播磨尚朝, 宇治進也, 寺嶋太一 “圧力誘起超伝導体  $EuFe_2As_2$  の上部臨界磁場の圧力効果” 日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 25 日、徳島大学

N. Kurita, S. Tsuchiya, K. Sugii, H. S. Suzuki, T. Matsumoto, K. Murata, H. Harima, S. Uji, T. Terashima “Shubnikov-de Haas oscillations in  $EuFe_2As_2$ ” The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2013/08/05, Tokyo, Japan

N. Kurita, S. Tsuchiya, K. Sugii, H. S. Suzuki, T. Matsumoto, K. Murata, H. Harima, S. Uji, T. Terashima “Shubnikov-de Haas effect in  $EuFe_2As_2$ : A parent compound of iron-based superconductors” The 12th Asia Pacific Physics Conference, 2013/07/14, Chiba, Japan

栗田伸之, 土屋聡, 杉井かおり, 鈴木博之, 松本武彦, 村田恵三, 播磨尚朝, 宇治進也, 寺嶋太一 “圧力誘起超伝導体  $EuFe_2As_2$  の高圧力下量子振動測定” 日本物理学会第 68 回年次大会、2013 年 3 月 26 日、広島大学

栗田伸之, 土屋聡, 杉井かおり, 鈴木博之, 松本武彦, 村田恵三, 播磨尚朝, 宇治進也, 寺嶋太一 “圧力誘起超伝導体  $EuFe_2As_2$  のシュブニコフ・ドハース振動” 日本物理学会秋季大会、2012 年 9 月 18 日、横浜国立大学

栗田伸之, 寺嶋太一, 木俣基, 小玉恒太, 原田淳之, 富田恵生, 鈴木博之, 松本武彦, 村田恵三, 宇治進也 “ $EuFe_2As_2$  の圧力誘起超伝導と電子状態 I” 日本物理学会第 67 回年次大会、2012 年 3 月 24 日、関西学院大学

栗田伸之, 北川健太郎, 松林和幸, A. Kismarhardja, E.-S. Choi, J. S. Brooks, 上床美也, 宇治進也, 寺嶋太一 “鉄系超伝導体  $LiFeAs$  の上部臨界磁場” 日本物理

学会秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学

N. Kurita, M. Kimata, K. Kodama, A. Harada, M. Tomita, H. S. Suzuki, T. Matsumoto, K. Murata, S. Uji, T. Terashima “Upper critical field and de Haas-van Alphen oscillations in pressure-induced superconductor  $EuFe_2As_2$ ” International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2011/08/29, Cambridge, UK

N. Kurita, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, A. Kismarhardja, E.-S. Choi, J. S. Brooks, Y. Uwatoko, S. Uji, T. Terashima “Upper critical field of the stoichiometric iron-based superconductor  $LiFeAs$ ” International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2011/08/29, Cambridge, UK

6. 研究組織

(1) 研究代表者

栗田 伸之 (KURITA NOBUYUKI)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：80566737

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし