

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14651

研究課題名(和文)鉄カルコゲナイド超伝導体薄膜における新奇超伝導現象の探索

研究課題名(英文)Exploration for novel superconductivity in epitaxial thin films of iron chalcogenides

研究代表者

鍋島 冬樹(Nabeshima, Fuyuki)

東京大学・大学院総合文化研究科・助教

研究者番号：30782776

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：FeSe_{1-x}Texと FeSe_{1-y}Sy薄膜の磁気輸送特性測定および磁場侵入長測定から、キャリア数とT_cが正の相関を示すことがわかった。この結果は、電子ネマティック転移によるフェルミ面の変化によるキャリア数の変化がS置換とTe置換で違って、それがT_cの振る舞いの違いの原因になっており、電子ネマティック転移やそのゆらぎ自身は超伝導(少なくともT_c)には直接的には影響しないことを示唆している。さらに、S置換試料のミュオンスピン緩和実験を行い、高S置換試料は低温で磁気秩序を示すことを世界で初めて明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

鉄カルコゲナイド超伝導体FeSeは超伝導転移温度T_cが低いものの、様々な方法でT_cを大幅に上昇させることができ、さらなるT_cの向上や実用化を目指し、超伝導メカニズム解明に向けて精力的に研究がなされている。FeSeは静水圧下でT_cが4倍程度に増大するが、元素置換による格子の圧縮(化学圧力)ではT_cの上昇は見られない。磁気的ゆらぎが超伝導の重要因子の一つだと考えられているが、本研究により、物理圧力と同様に化学圧力でも磁気秩序が誘起されることが明らかになった。今後この磁気秩序を詳しく調べることで物理圧力と化学圧力でのT_cの違いを明らかにし、この物質のT_c上昇のメカニズムを解明できる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：We found that carrier density and the superconducting transition temperature (T_c) have positive correlation from measurement of magneto-transport and magnetic penetration depth of thin films of FeSe_{1-x}Texと FeSe_{1-y}Sy. Our results suggest that the different T_c behavior between Te- and S-substitution results from the fact that Te- and S-substitution affect Fermi surface, or carrier density, differently. This also suggests that the electronic nematicity and its fluctuations do not play the primary role on superconductivity in iron chalcogenides. Furthermore, we demonstrated for the first time that S substitution induce magnetic order in FeSe from muon spin relaxation measurements of thin films of FeSe_{1-y}Sy.

研究分野：超伝導

キーワード：鉄カルコゲナイド超伝導体 磁気輸送特性 ミュオンスピン緩和 磁場侵入長 薄膜

1. 研究開始当初の背景

鉄カルコゲナイド超伝導体 FeSe は、2008 年に発見された鉄系超伝導体の中では超伝導転移温度 T_c が低い (~ 9 K) もの、様々な方法で T_c が大幅に上昇する ($T_c \sim 40$ -65 K) ことが知られており、さらなる T_c の向上や実用化を目指し、この物質の超伝導発現メカニズムの解明に向けて精力的に研究がなされている。超伝導研究に限らず、元素置換による系統的研究は物性研究の第一歩である。FeSe では、Se サイトを等原子価である Te または S による置換する研究が多く行われてきた。しかしながら Te 置換した試料 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ は、相分離のため母物質である FeSe を除くと $0.4 \leq x \leq 1$ の領域でしかバルク試料が得られないという問題があった。また S 置換試料 $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ に関しては、 $y > 0.2$ の組成の高品質単結晶試料の作製が困難という課題があった。

我々は以前の研究から、パルスレーザー堆積 (PLD) 法を用いて連続的に組成を変えた $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ および $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 単結晶薄膜試料の育成に成功し、Te 置換は全組成領域、S 置換は $y < 0.43$ の広い領域の単結晶試料を得ることに成功した。Te 置換では、電子ネマティック転移消失後に T_c が大幅に上昇する一方、S 置換では電子ネマティック転移の消失後も T_c に大きな変化はない。Te 置換と S 置換での対照的な振舞は、電子ネマティック転移は T_c に対して普遍的な役割を持たないことを意味している。またこの結果は、鉄カルコゲナイドの T_c を決定する因子を調べるには、Te 置換から S 置換の両方に渡る、広い組成領域の試料を用いた系統測定が必須であることも示している。

一方、 $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 単結晶薄膜試料は、高 S 置換組成において、低温で電気抵抗の温度依存性に折れ曲がり構造が観測される。この振る舞いは FeSe の静水圧下における磁気転移の振る舞いに類似しており、同様の磁気秩序が $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 薄膜でも発現していることを示唆している。Se をイオン半径の小さい S で置換すると結晶格子が小さくなるため、圧力を印加することに対応する (化学圧力)。FeSe に物理圧力を印加すると T_c が 40K 程度まで急激に上昇することが知られている一方、S 置換による化学圧力では T_c の上昇は見られない。この物理圧力と化学圧力の違いを明らかにするためにも、S 置換試料における磁気秩序の有無を調べることが重要である。

2. 研究の目的

以上のような背景から、本研究では鉄カルコゲナイド超伝導体 FeSe の T_c を決定する因子を明らかにし、さらにこの物質系における新奇超伝導の発現可能性を検証することを目的に、PLD 法により $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ および $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 単結晶薄膜を作製し、それを用いた系統物性測定を行う。特に $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 薄膜においては、磁気秩序の有無を明らかにするためにミュオンスピン緩和実験を行い、静水圧下での T_c の振る舞いとの違いを調べる。

3. 研究の方法

$\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ および $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 単結晶薄膜の常伝導・超伝導状態の伝導キャリアの特性について調べるために、常伝導状態の磁気輸送特性測定や、超伝導状態の磁場侵入長測定を行った。磁場侵入長は、薄膜試料をコプレーナ型の共振器に加工し、そのマイクロ波の共振特性の測定から求めた (伝送線共振器法)。さらに、 $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 薄膜の磁気秩序の有無を調べるために、スイスの Paul Scherrer Institut においてミュオンスピン緩和 (μSR) 実験を行った。

4. 研究成果

$\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ と $\text{FeSe}_{1-y}\text{S}_y$ 薄膜の磁気輸送特性測定の結果から、古典的な 2 キャリアモデルを用いて、常伝導状態の伝導キャリアの特性を調べた。キャリア数は S 置換では大きな変化が見られないのに対し、Te 置換でキャリア数の大きな増大が観測された。この振る舞いは、 T_c が S 置換で緩やかに減少していくのに対し、Te 置換では T_c が急激に上昇する振る舞いによく一致しており、両者の強い関係が示唆される。

さらに超伝導状態のキャリア (超流体密度 n_s) を調べるために、伝送線共振器法により磁場侵入長 (λ) 測定を行い、超流体密度を評価した。 $\lambda^{-2} \propto n_s$ という関係がある。磁場侵入長を測定する手法は様々なものがあるが、伝送線共振器法は磁場侵入長の絶対値を測定できるという利点がある。装置の最低到達温度に対して T_c が十分高い試料 ($\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ 薄膜, $0 < x < 0.5$) の測定を行った結果、 T_c は λ^{-2} に対して比例することがわかった。これは銅酸化物高温超伝導体で知られている経験則とよく一致する。 T_c は λ^{-2} に比例することは T_c が n_s に比例することを示唆しているが、この結果は常伝導状態のキャリア数が T_c と正の相関を示すこととよく一致する。

$\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ 薄膜は電子ネマティック転移が消失する組成で T_c が急激に増大する一方で、S 置換

試料では電子ネマティック転移の消失前後において T_c に大きな変化は見られない。今回の結果は、電子ネマティック転移によるフェルミ面の変化によるキャリア数の変化が S 置換と Te 置換で違っていて、それが T_c の振る舞いの違いの原因になっていることを示唆している。すなわち電子ネマティック転移は鉄カルコゲナイドの T_c に直接影響するのではなく、電子ネマティック転移によるフェルミ面の変化(キャリア数の変化)という間接的な影響しか持たないことを示唆している。

FeSe_{1-y}S_y 薄膜 ($y=0.3,0.4$) を用いて μ SR 測定を行った。どちらの試料も低温で初期アシンメトリの急激な低下が観測された。初期アシンメトリが急激な低下が観測された温度で緩和率は最大となるピーク構造を示した。これらの結果は FeSe_{1-y}S_y 薄膜は低温で磁気秩序を持つことを示している。一方、時間スペクトルには振動構造(ミュオンのコヒレントな歳差運動)が見られず、磁気秩序は短距離秩序であることがわかった。磁気転移温度は電気抵抗の異常の見られる温度とよく一致し、S 置換量が増えるに従って増大した。今回の結果は、S 置換により磁気秩序が誘起されることを示している。

この結果から、S 置換による化学圧力でも、物理圧力でも磁気秩序が誘起されることがわかった。圧力印加による電子ネマティックの抑制・消失、さらに磁気秩序の出現は化学圧力と物理圧力でよく似ている。しかし、超伝導の振る舞いは両者で全く異なる。物理圧力では T_c が 40K 程度まで上昇するのに対し、化学圧力では T_c はむしろ低下する。この超伝導の振る舞いの違いの由来を調べるために、今後は磁気秩序の特徴についてさらに詳しく調べることが重要であると思われる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Fuyuki Nabeshima, Tomoya Ishikawa, Naoki Shikama, Atsutaka Maeda	4. 巻 101
2. 論文標題 Correlation between superconducting transition temperatures and carrier densities in Te- and S-substituted FeSe thin films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184517/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.184517	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 N. Shikama, T. Ishikawa, F. Nabeshima, A. Maeda	4. 巻 1293
2. 論文標題 Transport properties of FeSe _{1-x} S _x and FeSe _{1-y} Te _y epitaxial thin films under magnetic fields	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012015/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1293/1/012015	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 -
1. 著者名 Shikama N, Sakishita Y, Nabeshima F, Maeda A	4. 巻 1590
2. 論文標題 Chemical pressure effect of the electron-doped FeSe films with an electric double-layer-transistor structure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012012 ~ 012012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1590/1/012012	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 Shikama Naoki, Sakishita Yuki, Nabeshima Fuyuki, Katayama Yumiko, Ueno Kazunori, Maeda Atsutaka	4. 巻 13
2. 論文標題 Enhancement of superconducting transition temperature in electrochemically etched FeSe/LaAlO ₃ films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 083006 ~ 083006
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/aba649	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 Nakayama K., Tsubono R., Phan G. N., Nabeshima F., Shikama N., Ishikawa T., Sakishita Y., Ideta S., Tanaka K., Maeda A., Takahashi T., Sato T.	4. 巻 3
2. 論文標題 Orbital mixing at the onset of high-temperature superconductivity in FeSe _{1-x} Te _x /CaF ₂	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 L012007/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.3.L012007	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 Nabeshima F., Kawai Y., Shikama N., Sakishita Y., Suter A., Prokscha T., Park S. E., Komiya S., Ichinose A., Adachi T., Maeda A.	4. 巻 103
2. 論文標題 Sulfur-induced magnetism in FeSe _{1-x} S _x thin films on LaAlO ₃ revealed by muon spin rotation/relaxation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184504/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.184504	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26件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Fuyuki Nabeshima
2. 発表標題 Comparison between Te- and S-Substitution Effects on Superconductivity in FeSe Thin Films
3. 学会等名 Research Frontier of Advanced Spectroscopies for Correlated Electron Systems (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 F. Nabeshima, T. Ishikawa, N. Shikama, S. Nakamura, H. Kurokawa and A. Maeda
2. 発表標題 Comparison of Te and S substitution in FeSe thin films
3. 学会等名 Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鍋島冬樹
2. 発表標題 鉄カルコゲナイド超伝導薄膜の超伝導特性とその組成依存性
3. 学会等名 高温超伝導フォーラム 第7回会合
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村奏太, 黒川穂高, 中島直哉, 石川智也, 色摩直樹, 小川亮, 鍋島冬樹, 前田京剛
2. 発表標題 超伝導体共振器を用いたFeSe _{1-x} Tex薄膜の磁場侵入長組成依存性
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 黒川穂高, 中島直哉, 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛
2. 発表標題 誘電体共振器による鉄カルコゲナイド薄膜の複素伝導度評価
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛
2. 発表標題 同族元素置換したFeSeの電気二重層トランジスタ
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛
2. 発表標題 電子ドープFeSe/LaAlO ₃ 薄膜における超伝導特性のゲート電圧依存性
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中村奏太, 黒川穂高, 崎下雄稀, 色摩直樹, 鍋島冬樹, 孫悦, 北野晴久, 前田京剛
2. 発表標題 コプレーナ線路共振器を用いたFe(Se,Te)薄膜の磁場侵入長測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 足立匡, 河合優茉, 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, A. Suter, パクサンウン, 小宮世紀, 一瀬中, 前田京剛
2. 発表標題 FeSe _{1-x} S _x 薄膜におけるスピン相関の発達
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Naoki Shikama, Yuki Sakishita, Fuyuki Nabeshima, Yumiko Katayama, Kazunori Ueno, Atsutaka Maeda
2. 発表標題 Enhancement of superconducting transition temperature in electrochemically etched FeSe/LaAlO ₃ films
3. 学会等名 American Physical Society March Meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hodaka Kurokawa, Sota Nakamura, Zhao Jiahui, Naoki Shikama, Yuki Sakishita, Yue Sun, Fuyuki Nabeshima, Yoshinori Imai, Haruhisa Kitano, Atsutaka Maeda
2. 発表標題 Complex conductivity of the FeSe _{1-x} Te _x films
3. 学会等名 American Physical Society March Meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Fuyuki Nabeshima, Yuma Kawai, Naoki Shikama, Yuki Sakishita, Andreas Suter, Sang Eun Park, Tadashi Adachi, Atsutaka Maeda
2. 発表標題 Sulfur-induced magnetism in iron-chalcogenide thin films
3. 学会等名 American Physical Society March Meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 趙嘉輝, 黒川穂高, 小林友輝, 崎下雄稀, 色摩直樹, 鍋島冬樹, 前田京剛
2. 発表標題 空洞共振器による鉄カルコゲナイド薄膜の複素伝導度測定
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鍋島冬樹, 色摩直樹, 小林友輝, 崎下雄稀, 前田京剛
2. 発表標題 Fe(Se,S)薄膜における磁気秩序の歪依存性
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 黒川穂高, 鍋島冬樹, 前田京剛
2. 発表標題 第一原理計算によるネマティック相と非ネマティック相におけるFe(Se,Te)のバンド分散の評価
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鍋島冬樹, 河合優茉, 色摩直樹, 崎下雄稀, Andreas Suter, Thomas Prokscha, パクサンウン, 小宮世紀, 一瀬中, 足立匡, 前田京剛
2. 発表標題 高濃度S置換 Fe(Se,S)薄膜における磁気秩序の観測
3. 学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鍋島冬樹, 河合優茉, 色摩直樹, 崎下雄稀, Andreas Suter, Thomas Prokscha, パクサンウン, 小宮世紀, 一瀬中, 足立匡, 前田京剛
2. 発表標題 Fe(Se,S)薄膜における常圧下の磁気秩序
3. 学会等名 高温超伝導フォーラム第8回会合
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hodaka Kurokawa, Sota Nakamura, Jiahui Zhao, Naoki Shikama, Yuki Sakishita, Yue Sun, Fuyuki Nabesima, Yoshinori Imai, Haruhisa Kitano, Atsutaka Maeda
2. 発表標題 Complex conductivity of FeSe _{1-x} Te _x (x = 0.1-0.5) film
3. 学会等名 33rd International Symposium on Superconductivity (ISS 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 黒川穂高, 中村奏太, 趙嘉輝, 色摩直樹, 崎下雄斗, 孫悦, 鍋島冬樹, 北野晴久, 前田京剛
2. 発表標題 Fe(Se,Te)薄膜の複素電気伝導度の組成依存性
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中山耕輔, 坪野竜治, 大和田健太, 鍋島冬樹, 色摩直樹, 石川智也, 崎下雄稀, 前田京剛, 高橋隆, 佐藤宇史
2. 発表標題 Fe(Se, Te)高温超伝導薄膜の高分解能ARPES
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, 片山裕美子, 上野和紀, 前田京剛
2. 発表標題 低ゲート電圧で電気化学的エッチングしたFeSe薄膜におけるTczeroの増大
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鍋島冬樹, 河合優茉, 色摩直樹, 崎下雄稀, A. Suter, パクサンウン, 小宮世紀, 一瀬中, 足立匡, 前田京剛
2. 発表標題 高濃度S置換Fe(Se, S)薄膜における磁気秩序
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 磯山和基, 吉川尚孝, 勝見恒太, Jeremy Wong, 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮
2. 発表標題 鉄系超伝導体FeSe _{0.5} Te _{0.5} における光誘起超伝導増強
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 滝澤 和輝、岡田 達典、淡路 智、色摩 直樹、鍋島 冬樹、前田 京剛、一瀬 中、中岡 晃一、和泉 輝郎
2. 発表標題 中間層最表面にCaF ₂ を用いたFeSe _{1-x} Texコート線材の臨界電流特性
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 色摩直樹、崎下雄稀、鍋島冬樹、片山裕美子、上野和紀、前田京剛
2. 発表標題 電子ドープFeSe/LaAlO ₃ 薄膜における超伝導特性のゲート電圧依存性
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鍋島冬樹、黒川穂高、中村奏太、色摩直樹、崎下雄稀、小林友輝、孫悦、北野晴久、前田京剛
2. 発表標題 Fe(Se, Te)薄膜の磁場侵入長の組成依存性
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
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
研究協力者	前田 京剛 (Maeda Atsutaka) (70183605)	東京大学 (12601)	
研究協力者	小川 亮 (Ogawa Ryo)		
研究協力者	黒川 穂高 (Kurokawa Hodaka)		
研究協力者	色摩 直樹 (Shikama Naoki)		
研究協力者	中村 奏太 (Nakamura Sota)		
研究協力者	崎下 雄稀 (Sakishita Yuki)		
研究協力者	齋藤 純 (Saito Jun)		

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	小林 友輝 (Kobayashi Tomoki)		
研究協力者	趙 嘉輝 (ZHAO Jiahui)		

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			
スイス	Paul Scherrer Institut			