

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月30日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23740272

 研究課題名（和文） パルス強磁場中電子輸送現象測定による鉄系超伝導体の
量子化磁束の研究

 研究課題名（英文） Study of a quantum flux on iron-based superconductors
by high-field transport measurements

研究代表者

木田 孝則（KIDA TAKANORI）

大阪大学・極限量子科学研究センター・助教

研究者番号：50452412

研究成果の概要（和文）：本研究では、鉄系超伝導体の量子化磁束の振る舞いについて熱磁気効果（特にネルンスト効果）測定の手法を用いてアプローチするためにパルス強磁場中熱磁気効果測定装置を開発することを目的とした。ネルンスト電圧は磁場と垂直方向に温度勾配をつけた際に生じる起電力であるので、本研究で開発する熱磁気効果測定装置の核は、パルス強磁場中での正確な温度計測にある。測定用プローブの先端部分は、熱浴となる熱伝導率の良いサファイア基板、試料をマウントするエポキシ樹脂およびヒーターとなる小型のフィルム上ストレーンゲージで構成される。この測定システムを用いて、鉄系超伝導体の熱輸送現象の測定には至らなかったが、半金属のビスマスをを用いたパルス磁場中電気抵抗測定に成功した。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have developed a prototype apparatus for thermo-magnetic effect (Nernst effect) measuring in pulsed magnetic fields. Tip of the measuring probe is configured sapphire substrate with good thermal conductivity as a heat bath, on film strain gauge small a heater and an epoxy resin to mount the sample. Although we could not measure the Nernst phenomena on iron-based superconductors by using this measurement system, we succeeded to measure transport phenomena on a semimetal bismuth.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：パルス強磁場，ネルンスト効果，高温超伝導体，量子化磁束

1. 研究開始当初の背景

2008年に東工大の細野グループにより鉄を含む物質 $\text{LaFeAs}(\text{O},\text{F})$ が約 26 K で超伝導を示すことが報告され (Y. Kamihara *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **130** (2008) 3296.)，さらにその後の研究で La を他の希土類元素に変えると 50 K を超す超伝導転移温度 (T_c) が実現されたことから，世界中で鉄系超伝導体の研究が集中的に行われている。これまで研究代表者らは，鉄系超伝導体の磁場-温度相図を調べるために磁場中電気抵抗率を測定し，超伝導が

壊れる磁場，いわゆる上部臨界磁場 (H_{c2}) を評価してきた (T. Kida *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** (2009) 113701; *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 074706.)。銅酸化物高温超伝導体や鉄系超伝導体では，その T_c が高いことに伴って低温での H_{c2} も非常に大きな値を示し，銅酸化物超伝導体では通常 100 テスラのオーダーとなる。このため H_{c2} の温度依存性や，磁場で超伝導を壊した時の常伝導状態の研究にはパルスマグネット（最大磁場 60 テスラ）やハイブリッドマグネット（最大磁場 35 テスラ）を

用いた強磁場中輸送現象測定が強力なツールとなる。磁場中電気抵抗率測定から決定した各温度における H_{c2} をプロットすると磁場-温度相図が得られるわけであるが、鉄系超伝導体の 1 つである $\text{Fe}(\text{Te},\text{Se})$ は $T_c \sim 14 \text{ K}$ で超伝導転移を示し、鉄系超伝導体の中で最も単純な結晶構造 (PbO 型) を有することから、この系の超伝導発現機構を理解する上で大変興味深い物質である。研究代表者らは、 $\text{Fe}(\text{Te},\text{Se})$ の H_{c2} が T_c 近傍の磁場-温度曲線の傾きから理論的に予想される値に比べて、実験的には低温で大きく抑制されることを世界に先駆けて明らかにした。この結果は、 $\text{Fe}(\text{Te},\text{Se})$ における支配的な超伝導対破壊がスピンゼーマン効果による常磁性対破壊効果であることを示している。

一般的に、鉄系超伝導体や銅酸化物高温超伝導体は第二種超伝導体に分類され、外部磁場を変化させると、超伝導が壊れ始める磁場 (下部臨界磁場; H_{c1}) と完全に壊れる磁場 (H_{c2}) の間で超伝導と常伝導が共存した混合状態が現れる。この混合状態では磁場が細い糸のような量子化された磁束 (量子化磁束) の形で試料内部に侵入しており、その磁場中での運動が輸送現象に大きく関わっている。量子化磁束の研究は、その物理現象だけでなく超伝導線材などの応用にとっても重要であることから、特に銅酸化物高温超伝導体において精力的に研究され、その複雑な相図が明らかになりつつある。一方、鉄系超伝導体では研究が過渡期であることもあり、その量子化磁束について十分な理解が得られていない。

2. 研究の目的

本研究では、鉄系超伝導体の量子化磁束の振る舞いについて熱磁気効果 (特にネルンスト効果) 測定の手法を用いてアプローチする。一般に、ネルンスト効果とは磁場中におかれた導体に磁場とは垂直方向に電流を流すと電流の方向に温度勾配が生じる現象のことであるが、本研究では磁場と垂直方向に温度勾配をつけた際に生じる起電力 (ネルンスト電圧) を計測する。強磁場中におかれた第二種超伝導体では量子化磁束によるエントロピー輸送がネルンスト電圧を生じさせる。しかし、磁場をどんどん大きくして行って上部臨界磁場 (H_{c2}) を超え量子化磁束が消失してしまえば、つまり超伝導が完全に壊れてしまえばネルンスト電圧も消えるはずである。先行研究として、銅酸化物高温超伝導体について実施された Ong らによる報告がある (Y. Wang *et al.*, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 224519.)。これによると、ネルンスト効果から決定した H_{c2} は、磁場中電気抵抗率測定から決定した磁場よりも高い値を示すことが報告されている。したがって、超伝導体の磁場-温度相図

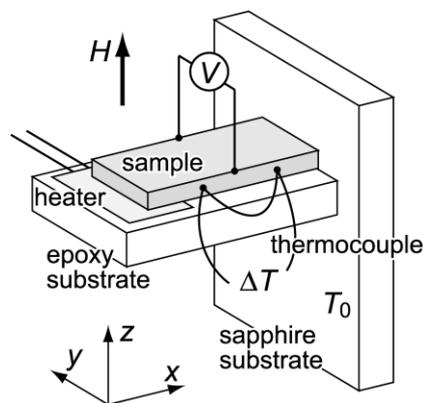


図 1: ネルンスト効果測定の概略図

は量子化磁束の運動を十分に考慮する必要がある。そこで本研究では、(1) パルス強磁場中熱磁気効果測定装置の開発、(2) 量子化磁束の運動を考慮した鉄系超伝導体の磁場-温度相図の完成、の 2 点を研究目的とした。

3. 研究の方法

ネルンスト電圧は磁場と垂直方向に温度勾配をつけた際に生じる起電力であるので、本研究で開発する熱磁気効果測定装置の核は、パルス強磁場中での正確な温度計測にあるといえる。特に導体試料では、パルス磁場発生に伴う渦電流により試料が発熱する可能性があるため、試料形状を工夫して渦電流の影響を極力小さくして、且つ測定中の温度勾配を一定に保つ必要がある。図 1 にネルンスト効果測定概略図を示す。z 軸方向と平行な磁場 (H_z) 中に試料をおき、x 軸方向に温度差 ΔT を与えたときに y 軸方向に発生する電場を E_y とすると、ネルンスト電圧の比例係数は $v = E_y / H_z (\nabla_x T)$ で与えられる。一定の温度勾配を生み出すために、熱浴 (T_0) として熱伝導率の良いサファイア基板を使用する。一定の温度勾配を生み出すために、熱浴として熱伝導率の良いサファイア基板を使用する。研究代表者らがこれまでに行ったパルス強磁場中電気抵抗率測定では、サファイア基板に試料をマウントすることで精度の良い温度制御を実現させている。試料および熱浴に比べて熱伝導率が十分低いエポキシ樹脂製の基板上に試料をマウントし、熱浴と逆側に取り付けるヒーターには小型のフィルム状ストレインゲージを使用する。温度勾配は極低温用熱電対を用いて計測する。

最初から鉄系超伝導体に対して測定するのは困難だと予想されるので、まずは磁場中で大きな熱起電力変化が観測される熱電変換材料の 1 つである Bi-Sb 合金を用いて、パルス強磁場中での温度計測技術を確立させる。その後、ランタン系あるいはビスマス系の銅酸化物超伝導体を用いてネルンスト効果を測定し、結果を比較することでパルス強

磁場中熱磁気効果測定技術の確立にフィードバックさせる。

パルス強磁場中熱磁気効果測定を鉄系超伝導体の代表的な3つの系(FeSe系, AFe_2As_2 系, $LnFeAsO$ 系)について行う。まずは、パルス磁場中電気抵抗率が比較的容易に測定できるFeSe系からスタートする。 AFe_2As_2 系と $LnFeAsO$ 系の常伝導状態での電気抵抗率は、FeSe系に比べて一桁近く小さくなるのでシグナルを捉えるのが困難であると予想される。そこで、これらの2つの物質については、十分なシグナルが得られ、且つ定常な温度勾配がつけられる試料形状を工夫する試行錯誤が必要になる。パルス磁場中電気抵抗率測定とパルス強磁場中熱磁気効果測定のそれぞれで決定した H_{c2} を比較し、銅酸化物高温超伝導体で指摘されたように、両者の違いが鉄系超伝導体においても見られるかどうか検討する。

鉄系超伝導体の物性は、結晶構造との相関が強いことが知られている(C.-H. Lee *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** (2008) 083704.)。FeSe系に比べて構造が複雑になる $LnFeAsO$ 系では、フェルミ面の異方性が大きくなる、すなわち二次元性が強くなるため、量子化磁束の運動が顕著に現れることが予想される。これを踏まえて、鉄系超伝導体におけるフェルミ面の異方性と量子化磁束の運動の関係について考察する。擬ギャップの存在については、ネルンスト効果測定だけで直接的な証拠をつかむことは困難であるので、他の実験(例えば角度分解光電子分光や走査トンネル分光)の結果と比較して議論する。

4. 研究成果

ネルンスト電圧は磁場と垂直方向に温度勾配をつけた際に生じる起電力であるので、本研究で開発する熱磁気効果測定装置の核は、パルス強磁場中での正確な温度計測にあるといえる。特に導体試料では、パルス磁場発生に伴う渦電流により試料が発熱する可能性があるため、試料形状を工夫して渦電流の影響を極力小さくして、且つ測定中の温度勾配を一定に保つ必要がある。本研究では、まず測定用プローブの作製から実施した。その先端部分は、熱浴となる熱伝導率の良いサファイア基板、試料をマウントするエポキシ樹脂およびヒーターとなる小型のフィルム上ストレインゲージで構成される。温度勾配は当初極低温用熱電対を用いて計測する予定であったが、適切な熱電対の入手が困難であったため、試料の両端に市販のチップ型セルノックス温度センサーを取り付けて温度測定を行った。パルス磁場の測定には、サファイア基板付近に取り付けたピックアップコイルを用いて行い、50テスラまでの正確な磁場測定を可能にした。測定システムは、ス

コープコーダ DL850 (横河メータ&インスツルメント社製)、ローノイズ電圧アンプ (シグナルリカバリー社製) および既設の測定機器を組み合わせ、GPIBを介した測定プログラムを作成した。この測定システムを用いて、鉄系超伝導体の熱輸送現象の測定には至らなかったが、比較的大きな熱起電力を示す半金属のビスマスのパルス磁場中輸送測定に成功した。

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7件)

(全て査読有り)

① T. Kida, M. Kotani, Y. Mizuguchi, Y. Takano and M. Hagiwara, "Angular dependence of the resistive upper critical field of the iron-based superconductor $Fe_{1+\delta}(Te,Se)$ in high magnetic fields", *J. Korean Phys. Soc.*, in press.

② T. Kida, T. Kobayashi, S. Miyasaka, S. Tajima and M. Hagiwara, "Transport properties of the iron-based superconductor $SrFe_2(As,P)_2$ in high magnetic fields", *J. Low. Temp. Phys.* **170** (2013) 346(p1-p5).
DOI: 10.1007/s10909-012-0769-2

③ M. Hagiwara, T. Kida, K. Taniguchi and K. Kindo, "Present status and future plan at high magnetic field laboratory in Osaka University", *J. Low. Temp. Phys.* **170** (2013) 531(p1-p10).
DOI: 10.1007/s10909-012-0661-0

④ T. Kida, H. Kotsuji, J. Nishido, K. Akashi, K. Taniguchi, M. Hagiwara, K. Kindo, R. Settai and Y. Ōnuki, "Development of a two-axis rotator in pulsed high magnetic fields for a magnetic torque measurement", *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** (2012) SB067(p1-p4).
DOI: 10.1143/JPSJS.81SB.SB067

⑤ T. Kida, M. Kotani, M. Ishikado, H. Eisaki and M. Hagiwara, "Transport properties of the iron-oxypnictide superconductor $PrFeAsO_{1-y}$ ", *J. Phys.: Conf. Ser.* **400** (2012) 022053(p1-p4).
DOI: 10.1088/1742-6596/400/2/022053

⑥ T. Kida, R. Kammuri, M. Hagiwara, S. Yoshii, W. Kobayashi, M. Iwakawa and I. Terasaki, "High-Field magnetization and magnetoresistance of the A-site ordered perovskite oxide $CaCu_3Ti_{4-x}Ru_xO_{12}$ ($0 \leq x \leq 4$)", *Phys. Rev. B* **85** (2012) 195122(p1-p5).
DOI: 10.1103/PhysRevB.85.195122

⑦ S. Ishida, T. Liang, M. Nakajima, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, T. Kakeshita, T. Kida, M. Hagiwara, Y. Tomioka, T. Ito and S. Uchida, "Manifestations of multiple-carrier charge transport in the magnetostructurally ordered phase of BaFe_2As_2 ", Phys. Rev. B **84** (2011) 184514(p1-p7).

DOI: 10.1103/PhysRevB.84.184514

[学会発表] (計 17 件)

(国内会議)

① 木田孝則, 明石孝一, 西戸淳一, 谷口一也, 三宅厚志, 清水克哉, 金道浩一, 大貫惇睦, 萩原政幸, "重い電子系化合物 CeCu_2Si_2 のパルス強磁場・高圧力下輸送現象", 日本物理学会第 68 回年次大会 (2013 年 3 月 27 日, 広島大学) .

② K. K. Huynh, Y. Tanabe, T. Urata, S. Heguri, T. Kida, M. Hagiwara, K. Tanigaki, "Multi-band model analysis of transport properties of $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ ", 日本物理学会第 68 回年次大会 (2013 年 3 月 26 日, 広島大学) .

③ 木田孝則, "阪大強磁場施設における合極限環境下での物性測定の現状と将来展望", 東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究センター研究会「強磁場コラボラトリーが拓く次世代の強磁場サイエンスの展望」 (2012 年 11 月 27 日, 東北大学) .

④ 木田孝則, 石田茂之, 中島正道, 木方邦宏, 伊豫彰, 永崎洋, 内田慎一, 萩原政幸, "鉄系超伝導体 $(\text{Ba}, \text{K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ の上部臨界磁場のドーピング依存性", 日本物理学会 2012 年秋季大会 (2012 年 9 月 19 日, 横浜国立大学) .

⑤ Khuong Huynh, Y. Tanabe, T. Urata, S. Heguri, K. Tanigaki, T. Kida, M. Hagiwara, "Five-band model analysis of transport properties of $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ ", 日本物理学会 2012 年秋季大会 (2012 年 9 月 19 日, 横浜国立大学) .

⑥ 明石孝一, 西戸淳一, 木田孝則, 谷口一也, 三宅厚志, 清水克哉, 金道浩一, 大貫惇睦, 萩原政幸, "ダイヤモンドアンビル圧力セルを用いたパルス強磁場中高圧力下電気抵抗測定装置の開発", 日本物理学会 2012 年秋季大会 (2012 年 9 月 18 日, 横浜国立大学) .

⑦ 木田孝則, 小林達也, 平田渉, 宮坂茂樹, 田島節子, 萩原政幸, "鉄系超伝導体 $\text{SrFe}_2(\text{As}, \text{P})_2$ のパルス強磁場中輸送現象", 日本物理学会第 67 回年次大会 (2012 年 3 月 25 日, 関西学院大学) .

⑧ 西戸淳一, 木田孝則, 谷口一也, 明石孝一, 三宅厚志, 清水克哉, 金道浩一, 萩原政幸, "ダイヤモンドアンビルセルを用いたパルス強磁場中高圧力下物性測定装置の開発", 日本物理学会第 67 回年次大会 (2012 年 3 月 25 日, 関西学院大学) .

⑨ 木田孝則, 小辻秀幸, 谷口一也, 萩原政幸, 撰待力生, 大貫惇睦, 金道浩一, "2 軸回転機構を用いたパルス強磁場中での物性測定装置の開発 II", 日本物理学会 2011 年秋季大会 (2011 年 9 月 21 日, 富山大学) .

⑩ 木田孝則, 小林達也, 平田渉, 宮坂茂樹, 田島節子, 萩原政幸, "鉄系超伝導体 $\text{SrFe}_2(\text{As}, \text{P})_2$ のパルス強磁場中輸送現象", 日本物理学会 2011 年秋季大会 (2011 年 9 月 22 日, 富山大学) .

⑪ 木田孝則, 小谷真弘, 萩原政幸, 石角元志, 社本真一, 伊豫彰, 永崎洋, "鉄系超伝導体 $L\text{rFeAsO}_{1-y}$ ($L\text{r}=\text{La}, \text{Pr}$) のパルス強磁場中輸送現象 II", 日本物理学会 2011 年秋季大会 (2011 年 9 月 22 日, 富山大学) .

(国際会議)

① T. Kida, S. Ishida, M. Nakajima, K. Kihou, A. Iyo, H. Eisaki, S. Uchida, and M. Hagiwara, "K-doping Dependence of the Upper Critical Fields on the Iron-based Superconductors $(\text{Ba}, \text{K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ ", The 13th Japan-Korea-Taiwan Symposium on Strongly Correlated Electron Systems (16th January 2013, Osaka, Japan).

② T. Kida, T. Kobayashi, S. Miyasaka, S. Tajima, and M. Hagiwara, "Transport Properties of the Iron-based Superconductor $\text{SrFe}_2(\text{As}, \text{P})_2$ in High Magnetic Fields", The 10th International Conference on Research in High Magnetic Fields (RHMF 2012) (4th July 2012, Wuhan, China).

③ T. Kida, M. Kotani, Y. Mizuguchi, Y. Takano, and M. Hagiwara, "Angular dependence of the resistive upper critical field of the iron-based superconductor $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}, \text{Se})$ in high magnetic fields", The International Conference on Magnetism (ICM 2012) (11th July 2012, Busan, Korea).

④ K. Huynh, T. Urata, S. Heguri, Y. Tanabe, K. Tanigaki, T. Kida, and M. Hagiwara, "Five-band model analysis of transport properties of $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ ", Materials & Mechanisms of Superconductivity (M2S) (31st July 2012, Washington, D.C., USA).

⑤ T. Kida, H. Kotsuji, J. Nishido, K. Akashi, K. Taniguchi, K. Kindo, R. Settai, Y. Onuki, and M. Hagiwara, "Development of a Two-Axis Rotator in Pulsed High Magnetic Fields for a Magnetic Torque Measurement", International workshop on heavy fermions (TOKIMEKI 2011) (24th Nov. 2011, Osaka, Japan).

⑥ T. Kida, M. Kotani, M. Ishikado, H. Eisaki, and M. Hagiwara, "Transport Properties of the Iron-Oxypnictide Superconductor PrFeAsO_{1-y} in High Magnetic Fields", 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26) (13th Aug. 2011, Beijing, China).

[その他]

ホームページ等

<http://www.mag.cqst.osaka-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木田 孝則 (KIDA TAKANORI)

大阪大学・極限量子科学研究センター・助教

研究者番号：50452412