

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740238

研究課題名(和文) 構造・秩序相境界で発現する超伝導の研究と、それに関連する新奇物質群の開拓

研究課題名(英文) The research of superconductivity emerging in structural/order phase boundary, and the exploring the related novel materials

研究代表者

卞 舜生 (Pyon, Sunseng)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：40595972

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円、(間接経費) 780,000円

研究成果の概要(和文)：本研究期間中に二つの主要研究テーマを推進した。イリジウムカルコゲナイドIrTe₂に一部の元素を他の元素に置換することで超伝導が発現することを見出した。さらに、これまで知られていなかったIrTe₂の低温結晶構造および電子状態の詳細を明らかにした。これらの成果により、新奇物性の知見が得られ、物性物理の発展に大きく貢献した。重イオンを照射して欠陥を導入することによって、鉄系超伝導体の臨界電流密度が著しく増大することを示した。さらに、高い臨界電流密度を有する鉄系超伝導体の丸型線材の作製に成功した。鉄系超伝導線材が実用線材として非常に有望であることが示された。

研究成果の概要(英文)：Two researches were performed in this period. We found that the superconducting state appear in IrTe₂ with carrier doping. Low temperature structure and electronic states of IrTe₂ were also clarified. These results contribute to development of the field of condensed matter physics. We found that critical current density in iron-based superconductor is significantly enhanced by inducing defects by heavy ion irradiation. Furthermore, we succeeded to fabricate superconducting round wire which has large critical current density. It is shown that iron-based superconducting wire is the promising candidate for practical application.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：超伝導 新物質探索 構造解析 電子状態解明

1. 研究開始当初の背景

(1-1) イリジウム化合物 IrTe_2 は、280 K 以下の低温で構造相転移する。研究代表者のグループは、 IrTe_2 に白金をドーピングすると、構造相転移が抑制されるとともに超伝導が発現することを発見していた。低温構造の抑制に伴う超伝導の発現は、新奇的な物理現象の存在を示唆することから興味深い。それらの関係の詳細を明らかにするためには、良質な単結晶を用いた精密物性測定が不可欠であった。しかし、研究開始直前に他のグループが超伝導の発現しない組成の単結晶合成の報告をしていたものの、超伝導が発現する組成における単結晶合成方法は報告されていなかった。また白金のドーピング以外の方法でも超伝導が発現するかどうか明らかでなかった。

(1-2) 鉄系超伝導体は上部臨界磁場 H_c や臨界電流密度 J_c が高く異方性が小さいなどの特徴があり、超伝導線材応用に有利である。線材応用を考える際、粒内 J_c および粒間 J_c という二つのパラメータを考慮する必要がある。粒内 J_c は、単結晶の J_c と等価であり、その物質の J_c の実現しうる最大値に相当する。これまで鉄系超伝導体の J_c がどの程度向上しうるか明らかでなかった。粒間 J_c は結晶粒間の弱結合や不純物の存在によって実際に実現しうる J_c であり、作製する線材の J_c と等価である。そのため、線材の J_c を向上させるためには、試料の純良化及び高密度化が必須である。これまで、テープ化・単軸プレス、ホットプレス・コールドプレスの組み合わせなどによって J_c が向上することが報告されていた。しかし、実際の応用化のためにはできる限り単純な工程で作製可能な丸線が望ましいため、作製方法の更なる最適化が望まれている。

2. 研究の目的

(2-1) 超伝導が発現する組成の $\text{Ir}_{1-x}\text{Pt}_x\text{Te}_2$ 単結晶の合成方法を確立する。得られた単結晶を用いて低温下における結晶構造を明らかにする。それらの情報を用いて分光測定を行い電子状態に関する知見を得る。また $\text{Ir}_{1-x}\text{Pt}_x\text{Te}_2$ 以外の新しい超伝導体を発見する。

(2-2) 鉄系超伝導体の単結晶の J_c がどの程度向上しうるか調べ、線材としての潜在能力を評価する。また実際の丸型線材を単純な高压処理のみによって作製し、実用レベル (10^5 A/cm^2 オーダー) の J_c を実現する。

3. 研究の方法

(3-1) 様々な $\text{Ir}_{1-x}\text{Pt}_x\text{Te}_2$ 単結晶をフラックス法によって合成し、基礎物性を評価した。得られた結晶を SPring-8 において X 線回折実験を行い構造解析し(共同研:SPring-8, 千葉大学)、分光測定も行った(共同研:東京大学)。さらに他の Pt 以外の他のドーパントを置換することによって超伝導が発現しないかどうか調べた。

(3-2) $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 単結晶をフラックス法によって合成した。さらに金イオンを照射することによって欠陥を導入した後、磁化測定によって粒内 J_c を評価した。純良な $(\text{AE,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ (AE: Ba, Sr) 多結晶を固相反応法によって合成した、これを原料として powder-in-tube (PIT) 法によって線材を作製した。これに対して Hot isostatic press (HIP) 法によって高压熱処理を行った。得られた線材の特性を評価した。

4. 研究成果

(4-1) 下図に示すように、超伝導が発現する組成の $\text{Ir}_{1-x}\text{Pt}_x\text{Te}_2$ 単結晶の合成に初めて成功し、その相図を決定した。これによって、超伝導と構造の関係性を明らかにするための精密物性測定が可能になった。

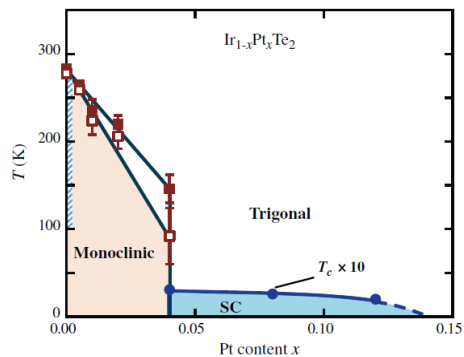
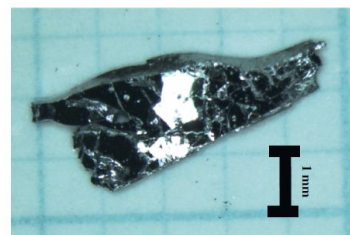


図 $\text{Ir}_{1-x}\text{Pt}_x\text{Te}_2$ 単結晶とその相図 (雑誌論文)

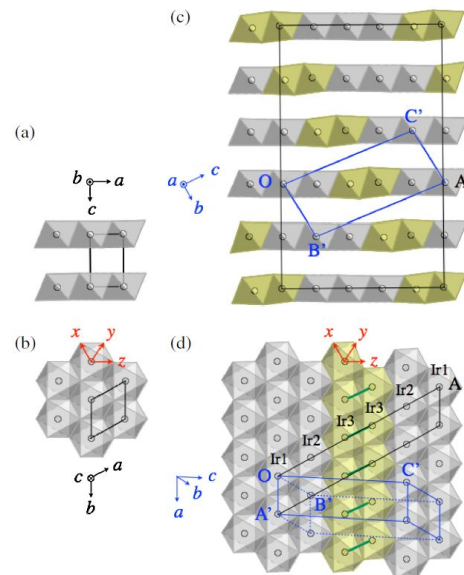


図 IrTe_2 の室温および低温での結晶構造 (雑誌論文)

得られた単結晶を用いた構造解析した結果、低温構造の決定に初めて成功した。室温で三方晶構造(上図(a), (b))のIrTe₂は、280 K以下では従来考えられていた単斜晶構造ではなく、三斜晶構造(上図(c), (d))となることが示された。Irの結合長が周期的に変化する興味深い構造であることが分かった。得られた結晶構造を元にしたバンド計算および光電子分光測定から、IrおよびTeのスピンの軌道相互作用が超伝導の発現に寄与している可能性が示唆され、新奇超伝導の発現に関する一定の理解が得られた。さらに、IrサイトにRhをドーブしたIr_{1-x}Rh_xTe₂においても超伝導が発現することを初めて発見した。

(4-2) 下図に示したとおり、(Ba,K)Fe₂As₂単結晶のJ_cは、金イオン照射によって欠陥を導入することで、ゼロ磁場中で10⁶ A/cm²からオーダーから10⁷ A/cm²オーダーまで飛躍的に向上した。これは導入した欠陥がボルテックスのピン止め中心として働いている効果である。さらに、40 kOeの高磁場中でも高いJ_cを維持した。これらの結果から鉄系超伝導体が将来の超伝導線材材料の有望な候補であることが示された。

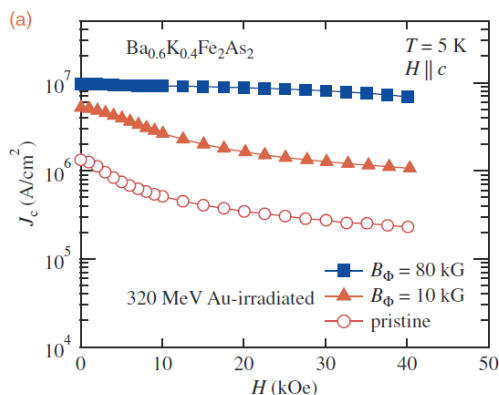


図 (Ba,K)Fe₂As₂単結晶のJ_cの磁場依存性

(雑誌論文)

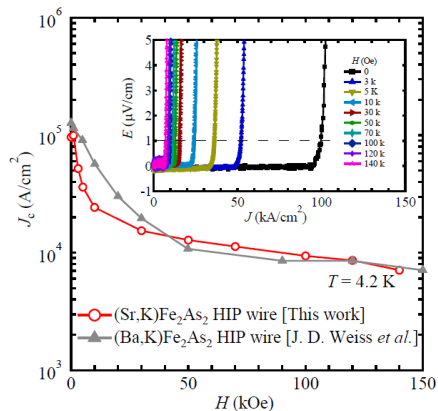


図 (Sr,K)Fe₂As₂線材のJ_cの磁場依存性

(雑誌論文)

さらに研究代表者は非常に高いJ_cを示す線材の作製に成功した。(Sr,K)Fe₂As₂を原料とした線材のJ_cは、上図に示すようにゼロ磁場中で10⁵ A/cm²を記録した。この値は、同様に図に示した(Ba,K)Fe₂As₂を用いた丸型線材におけるJ_cの最高記録に匹敵するものであり、(Sr,K)Fe₂As₂を原料とした丸型線材としては最も高い値である。単純な高圧熱処理によって、ゼロ磁場中で実用レベルのJ_cをもつ線材の作製に成功した。

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 18 件)

Sunseng Pyon, Yuji Tsuchiya, Hiroshi Inoue, Hideki Kajitani, Norikiyo Koizumi, Satoshi Awaji, Kazuo Watanabe, Tsuyoshi Tamegai, "Enhancement of critical current densities by high-pressure sintering in (Sr,K)Fe₂As₂ PIT wires"

Superconductor Science and Technology, 査読有, 2014, 掲載決定

Sunseng Pyon, Yuji Tsuchiya, Hiroshi Inoue, Norikiyo Koizumi, Hideki Kajitani, Tsuyoshi Tamegai, "Effects of high-pressure annealing on critical current density in 122 type iron pnictide wires" Physica C, 査読有, 2014, 掲載決定

Hiroshi Inoue, Yuji Tsuchiya, Shinya Tada, Sunseng Pyon, Hideki Kajitani, Norikiyo Koizumi, and Tsuyoshi Tamegai,

"Effects of high-pressure sintering on critical current density in Co-doped BaFe₂As₂ wires" Physica C, 査読有, 2014, 掲載決定

D. Ootsuki, T. Toriyama, S. Pyon, K. Kudo, M. Nohara, K. Horiba, M. Kobayashi, K. Ono, H. Kumigashira, and T. Noda, T. Sugimoto, A. Fujimori, N. L. Saini, T. Konishi, Y. Ohta, and T. Mizokawa, "Te 5 p orbitals bring three-dimensional electronic structure to two-dimensional Ir_{0.95}Pt_{0.05}Te₂", Physical Review B, 査読有, Vol.89, 2014, 104506-1-4 <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.89.104506>

Daiki Ootsuki, Tatsuya Toriyama, Masakazu Kobayashi, Sunseng Pyon, Kazutaka Kudo, Minoru Nohara, Takuya Sugimoto, Teppei Yoshida, Masafumi Horio, Atsushi Fujimori, Masashi Arita, Hiroaki Anzai, Hirofumi Namatame, Masaki Taniguchi, Naurang L. Saini, Takehisa Konishi, Yukinori Ohta, and Takashi Mizokawa, "Important Roles of Te 5p and Ir 5d Spin-Orbit Interactions on the Multi-band Electronic Structure of Triangular Lattice Superconductor Ir_{1-x}Pt_xTe₂", Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, Vol.83, 2014, 033704-1-1

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.033704>

B. Joseph, M. Bendele, L. Simonelli, L. Maugeri, S. Pyon, K. Kudo, M. Nohara, T. Mizokawa, and N. L. Saini

“Local structural displacements across the structural phase transition in IrTe₂: Order-disorder of dimers and role of Ir-Te correlations”, *Physical Review B*, 査読有、Vol.88, 2013, 224109-1-4

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.88.224109>

S. Pyon, T. Taen, F. Ohtake, Y. Tsuchiya, H. Inoue, H. Akiyama, H. Kajitani, N. Koizumi, S. Okayasu, and T. Tamegai, “Enhancement of critical current densities in (Ba,K)Fe₂As₂ by 320 MeV Au irradiation in single crystals and by high-pressure sintering in PIT wires”, *Applied Physics Express*, 査読有、Vol.6, 2013, 123101-1-4

<http://dx.doi.org/10.7567/APEX.6.123101>

Tatsuya Toriyama, Masao Kobori, Takehisa Konishi, Yukinori Ohta, Kunihisa Sugimoto, Jungeun Kim, Akihiko Fujiwara, Sunseng Pyon, Kazutaka Kudo, and Minoru Nohara, “Switching of Conducting Planes by Partial Dimer Formation in IrTe₂”, *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有、Vol.83, 2014, 033701-1-5

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.033701>

Sunseng Pyon, Kazutaka Kudo, and Minoru Nohara, “Emergence of superconductivity near the structural phase boundary in Pt-doped IrTe₂ single crystals”, *Physica C*, Elsevier, 査読有、Vol.494, 2013, 80-84

<http://dx.doi.org/10.1016/j.physc.2013.04.055>

Daiki Ootsuki, Sunseng Pyon, Kazutaka Kudo, Minoru Nohara, Masafumi Horio, Teppei Yoshida, Atsushi Fujimori, Masashi Arita, Hiroaki Anzai, Hirofumi Namatame, Masaki Taniguchi, Naurang L. Saini, and Takashi Mizookawa, “Electronic Structure Reconstruction by Orbital Symmetry Breaking in IrTe₂”, *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有、Vol.82, 2013, 093704-1-4

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.093704>

Kazutaka Kudo, Masakazu Kobayashi, Sunseng Pyon and Minoru Nohara, “Suppression of Structural Phase Transition in IrTe₂ by Isovalent Rh Doping”, *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有、Vol.82, 2013, 085001-1-2

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.085001>

D. Ootsuki, S. Pyon, K. Kudo, M. Nohara, M. Horio, T. Yoshida, A. Fujimori, M. Arita, H. Anzai, H. Namatame, M. Taniguchi, N. L. Saini, T. Mizokawa, “Band Jahn-Teller effects and Peierls Instability in IrTe₂”, *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有、Vol.428, 2013, 012018-1-4

<http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/428/1/012018>

Yue Sun, Toshihiro Taen, Yuji Tsuchiya, Qingping Ding, Sunsen Pyon, Zhixiang Shi, and

Tsuyoshi Tamegai, “Large, Homogeneous, and Isotropic Critical Current Density in Oxygen-Annealed Fe_{1-y}Te_{0.6}Se_{0.4} Single Crystal”, *Applied Physics Express*, 査読有、Vol.6, 2013, 043101-1-4

<http://dx.doi.org/10.7567/APEX.6.043101>

R. Schuster, S. Pyon, M. Knupfer, M. Azuma, M. Takano, H. Takagi, and B. Büchner, “Angle-dependent spectral weight transfer and evidence of a symmetry-broken in-plane charge response in Ca_{1.9}Na_{0.1}CuO₂Cl₂”, *Physical Review B*, 査読有、Vol.86, 2012, 245112-1-6

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.86.245112>

J. Chang, N. Doiron-Leyraud, O. Cyr-Choinière, G. Grissonnanche, F. Laliberté, E. Hassinger, J-Ph. Reid, R. Daou, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, and Louis Taillefer, “Decrease of upper critical field with underdoping in cuprate superconductors”, *Nature Physics*, 査読有、Vol.8, 2012, 751-756

<http://dx.doi.org/10.1038/NPHYS2380>

Daiki Ootsuki, Yuki Wakisaka, Sunseng Pyon, Kazutaka Kudo, Minoru Nohara, Masashi Arita, Hiroaki Anzai, Hirofumi Namatame, Masaki Taniguchi, Naurang L. Saini, and Takashi Mizokawa, “Orbital degeneracy and Peierls instability in the triangular-lattice superconductor Ir_{1-x}Pt_xTe₂”, *Physical Review B*, 査読有、Vol. 86, 2012, 014519 -1-5

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.86.014519>

T. Mizokawa, T. Sudayama, Y. Wakisaka, D. Ootsuki, M. Imaizumi, T. Noji, Y. Koike, S. Pyon, K. Kudo, M. Nohara, H. Anzai, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, N.L. Saini, “Orbital Degeneracy, Jahn–Teller Effect, and Superconductivity in Transition-Metal Chalcogenides”, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*、査読有、Vol.25, 2012, 1343-1346

<http://dx.doi.org/10.1007/s10948-01201626-x>

S. Pyon, K. Kudo and M. Nohara, “Superconductivity Induced by Bond Breaking in the Triangular Lattice of IrTe₂”, *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有、Vol.81, 2012, 053701-1-4

<http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.81.053701>

[学会発表](計 9 件)

S. Pyon, K. Kudo, M. Nohara, "Emergence of superconductivity in the vicinity of structural phase transition in IrTe₂", *International Conference on Electronic Materials 2014 (IUMRS-ICEM2014)*, 招待講演, Taiwan, Taipei, June 10-14 2014.

S. Pyon, H. Inoue, Y. Tsuchiya, N. Koizumi, H. Kajitani, T. Tamegai, “Enhancement of critical current densities in 122-type iron-based superconductor in powder-in-tube wires by high pressure sintering”,

International Conference on Electronic Materials 2014 (IUMRS-ICEM2014), Taiwan, Taipei, June 10-14 2014.

卞舜生、土屋雄司、井上啓、梶谷秀樹、小泉徳潔、淡路智、渡辺和雄、為ヶ井強、「高圧下熱処理した 122 系鉄ニクタイト超伝導線材の臨界電流」、日本物理学会 2014 年年次大会、27pCE-15、東海大学、2014 年 3 月 27-30 日

S. Pyon, Y. Tsuchiya, H. Inoue, N. Koizumi, H. Kajitani, T. Tamegai, "Effects of high pressure annealing on critical current density in 122 type iron pnictide wires", 26th International Symposium on Superconductivity (ISS2013), WT-30, Tokyo, Japan, December 18-20, 2013.

卞舜生、土屋雄司、井上啓、梶谷秀樹、小泉徳潔、為ヶ井強、「BaFe₂As₂ 系線材の臨界電流に対する高圧下熱処理効果」、日本物理学会 2013 年秋季大会、28aEC-13、徳島大学、2013 年 9 月 25-28 日。

卞舜生、土屋雄司、田縁俊光、大堀高広、井上啓、為ヶ井強「K ドープ BaFe₂As₂ 超伝導線材の臨界電流特性」、日本物理学会 2013 年年次大会、2013 年 03 月 26 日 ~ 2013 年 03 月 29 日、広島大学

S. Pyon, K. Kudo, M. Nohara, "Crystal growth of Pt-doped IrTe₂", Annual APS March Meeting 2013 (APS2013)、2013 年 03 月 18 日 ~ 2013 年 03 月 22 日、Baltimore, Maryland, USA

S. Pyon, K. Kudo and M. Nohara, "Emergence of superconductivity in the vicinity of the structural phase boundary in Pt doped IrTe₂", 25th International Symposium on Superconductivity(ISS2012) (招待講演)、2012 年 12 月 03 日 ~ 2012 年 12 月 05 日、Tokyo, Japan

卞舜生、工藤一貴、野原実、大城善博、池田陽一、荒木新吾、小林達生、「Pt ドープ IrTe₂ の単結晶育成」、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 09 月 18 日 ~ 2012 年 09 月 21 日、横浜国立大学

〔図書〕(計 1 件)

卞舜生、工藤一貴、野原実、(株)科学技術社、日本物理学会誌 (2012 Vol.67 No.8)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

無し

6. 研究組織

(1)研究代表者

卞舜生 (PYON, Sunseng)

東京大学・大学院工学系研究科・助教

研究者番号：40595972

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

()

研究者番号：