

戦略的創造研究推進事業

研究領域「新規材料による高温超伝導基盤技術」

研究課題「核磁気共鳴(NMR)実験によるオキシニクタイト化合物の研究」

## 研究終了報告書

氏名 石田 憲二

所属・役職: 京都大学大学院理学研究科・教授

## § 1. 研究実施の概要

### (1) 実施概要

東工大細野グループにより発見された“1111”構造の  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  超伝導体と、その関連物質で“122”構造の  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  超伝導体の超伝導状態、磁気状態を微視的な実験手法である核磁気共鳴実験から調べる。特にこれらの物質において

- ① 常伝導状態の磁気励起、
- ② 磁気相と超伝導相の関係、
- ③ 磁気励起と超伝導の相関、
- ④ 超伝導ギャップの構造、 ⑤ 超伝導対の対称性 等を調べ、

FeAs 系高温超伝導の特性を明らかにする。さらに超伝導転移温度の低い  $\text{LaMPO}$  ( $M = \text{Fe}, \text{Ni}$ ) の NMR も行い、なぜ FeAs 系で高い超伝導転移温度が現れたのかも考察する。得られた結果を銅酸化物高温超伝導体や他の遷移金属酸化物超伝導体、現在までに知られている強相関電子系超伝導体の結果と比較し類似点や相違点を明らかにし、今回の超伝導体の物性や特殊性、強相関電子系超伝導体に見られる普遍性を調べる。**最終的には鉄系超伝導体や強相関電子超伝導体の超伝導発現機構を解明することを目指す。**強相関電子系超伝導体に共通に見られる現象として、磁気相と超伝導相の共存、競合関係が知られている。**鉄系超伝導の相境界の試料において両相の関係を詳細に調べる。**

さらに“1111”構造のオキシニクタイトは、理想的な二次元構造を有している。 $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  では、超伝導層である FeAs 層と超伝導性が弱い  $\text{La}(\text{OF})$  層が積層しており、二次元超伝導体と考えられる。各層の電子状態や超伝導ギャップの様子を各層の NMR 実験を行うことにより調べる。また“1111”構造は磁氣的性質からも大変興味深い。例えば“1111”構造を有する  $\text{LaCoPO}$  は 43K で強磁性転移を示し、今まで報告例が少ない二次元遍歴強磁性体と考えられる。 $\text{LaCoPO}$  の磁気励起の特徴を NMR 実験から明らかにし、今まで知られている理論結果と比較する。また同じく“1111”構造を有する重い電子物質  $\text{CeFePO}$  も今までに例のなかった二次元重い電子系と考えられその低温物性に大変興味が集まる。低温、高磁場領域まで物性を調べることにより新奇な物性を探索する。

これら特に“1111”構造を有する様々な物質を研究することにより、オキシニクタイト構造がもつ二次元構造の特殊性を明らかにし、**超伝導と磁性が競合する新たな「強相関エレクトロニクス」の舞台としてふさわしいかどうかを検討する。**

NMR で得られた実験結果を反映させた新物質開発や試料作成を共同実験者と相談しながら行うつもりである。

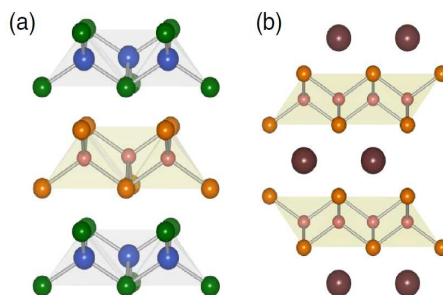


図 1: (a)  $\text{LaFeAsO}$  (1111 構造)と(b)  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  (122 構造)の結晶構造

(2) 顕著な成果

### ① 鉄系超伝導体が非従来型超伝導体であることの指摘

概要:  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  の超伝導発見直後、超伝導状態の核スピン-格子緩和率( $1/T_1$ )を測定した。鉄系超伝導の  $1/T_1$  には、通常の超伝導体に見られる転移直下のコヒーレンスピークや指数関数的温度依存性が見られないことを見出し、非従来超伝導と考えられることを指摘した。

### ② ‘122’ 構造の $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ における磁気ゆらぎと超伝導の相関

概要:  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  では As サイトを同価数の P で置き換えることで、磁気相から超伝導相に変化させることができる。この系において P-NMR を行い、磁気ゆらぎが低温でもっとも大きくなる P 濃度で最高の超伝導転移温度を示すことを見出し、磁気ゆらぎと超伝導の相関を指摘した

### ③ $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ における磁気秩序と超伝導の共存、競合

概要: 磁気相と超伝導相の境界に位置する試料において、磁気秩序と超伝導の関係を微視的に調べた。その結果、磁性と超伝導がミクロに共存していることを示した。さらに超伝導転移以下の温度で磁気モーメントが減少することも明らかにし、少なくともあるフェルミ面では磁性と超伝導は競合関係にあることが考えられる。

## § 2. 研究実施内容

### LaFeAs( $\text{O}_{1-x}\text{F}_x$ ) における $^{139}\text{La}$ 、 $^{75}\text{As}$ -NMR

我々は  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  の超伝導発見当初より、細野グループの神原氏から試料の提供を受け、母物質  $\text{LaFeAsO}$  の電子状態や、超伝導体  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  における常伝導の磁気ゆらぎや超伝導ギャップ構造、F 濃度変化に伴う物性変化を  $^{139}\text{La}$  や  $^{75}\text{As}$  の NMR 測定から調べた。

図 1 に  $\text{LaFeAsO}$  の La-NMR で得られた、核スピン-格子緩和率( $1/T_1$ )と La サイトでの内部磁場の温度変化を示す。142K で反強磁性秩序に伴う臨界発散が  $1/T_1$  に見られ、その温度から La サイトに内部磁場が現れている。挿入図に見るように磁気励起は、構造相転移が起こる 160K から変化しており、構造相転移と磁気秩序が関連していると考えられる。(Y. Nakai et al. J. Phys. Soc. Jpn. 77 (08) 073701)

$\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  の磁場中配向試料を用い、母物質ストライプ型反強磁性状態の  $\text{LaFeAsO}$  が、F 置換(電子ドーピング)によって磁気状態がどのように変化していくのかを As-NMR による  $1/T_1$  の測定から調べた。その結果少量の F 置換により反強磁性秩序は抑制され、5%の F ドーピングで超伝導が現れること、7%F ドープの試料から擬ギャップ的振る舞いが見られるようになり F ドーピングによりこの振る舞いは顕著になることを明らかにした。(図 2 参照) またこの擬ギャップ的振る舞いのドーピング、温度依存性から、擬ギャップの起源が銅酸化物高温超伝導で議論された反強磁性相関による

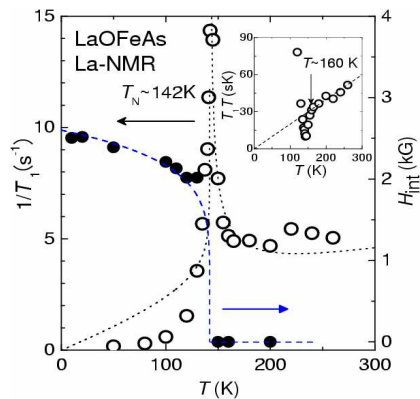


図 1 :  $\text{LaFeAsO}$  における La サイトの緩和率( $1/T_1$ )と内部磁場の温度依存性。挿入図は  $T_1T$  の温度依存性の図。構造相転移が見られる 160K 以下から  $T_1T$  の温度依存性が変化している。(Y. Nakai et al. J. Phys. Soc. Jpn.77 (08) 073701)

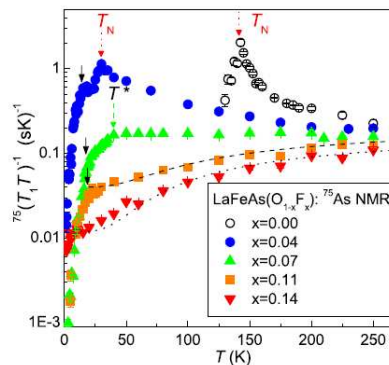


図 2 :  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  における様々な F 濃度における  $1/T_1T$  の温度変化。(Y. Nakai et al. : NJP 11 (2009) 045004)

ものではなく、鉄砒素超伝導体のフェルミエネルギー近傍のバンド構造に関係していることを指摘した。(Y. Nakai *et al.* NJP 11 (09) 045004)

また超伝導状態の緩和率( $1/T_1$ )を F 濃度の異なる数種類の試料で測定した。図 3 に  $x=0.04$ ,  $0.07$  の試料における  $1/T_1$  の温度依存性を示す。 $T_c$  直下にコヒーレンスピークが見られず、 $1/T_1$  が  $T^3$  に従うことから、通常の s 波超伝導とは異なることを指摘した。現在ではコヒーレンスピークがない結果は、 $s_{\pm}$  波超伝導状態のモデルで理解されている。(Y. Nakai *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. 77 (08) 073701)

さらに超伝導を示す  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  の試料では、常伝導状態の  $1/T_1$  に異方性が見られ、その大きさは中性子散乱実験で示唆されたストライプ相関の存在で理解される。また高濃度  $x$  で超伝導が消えた試料ではこの異方性が消えていることから、ストライプ相関が消失していると考えられる。これらの結果から、我々はストライプ型の反強磁性相関と超伝導に密接な相関があることを指摘した。(S. Kitagawa *et al.* Phys. Rev. B 81, 212502 (2010).)

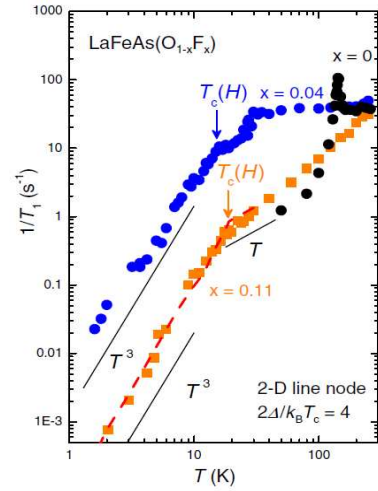


図 3: 低温域の As サイトの  $1/T_1$  の温度依存性。  $x=0$  では La サイトの  $1/T_1$  を超微細結合定数の比を用いて As サイトの  $1/T_1$  に規格化されている。(Y. Nakai *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. 77 (08) 073701)

## 122 構造の $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ における反強磁性相関と超伝導

$\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  において、常伝導の磁気励起と超伝導の関係を P-NMR 測定から調べた。図 4 は超伝導を示す濃度域 ( $0.2 < x < 0.7$ ) におけるナイトシフトと核スピン-格子緩和率 ( $1/T_1 T$ ) の温度依存性である。ナイトシフトは静的磁化率、 $1/T_1 T$  は動的帯磁率に比例する物理量である。ナイトシフトには温度依存性は見られず、 $x < 0.56$  の濃度域では濃度依存性も小さい。これは、As と同価数の P 置換ではキャリア数の変化が起こらないと考えられることと矛盾しない。これに対し  $1/T_1 T$  ではストライプ型の反強磁性相関が発達することに対応して、顕著な増大が見られる。特に反強磁性相関の見られない濃度の試料では超伝導も見られないことは注目値する。この結果は反強磁性相関と超伝導にプラスの相関があることを示唆する。反強磁性相関の特徴的な温度を  $1/T_1 T$  の温度依存性から求め、その値を図 5(下図) にプロットした。図を見てわかるように、磁気秩序が消える反強磁性量子臨界点の濃度で超伝導転移温度がもっとも高くなっていることがわかり、反強磁性量子臨界ゆらぎが超伝導に重要な役割をはたしていると考えられる。これらの結果は、電気抵抗の濃度、温度依存性からも支持される。図 5(上図) に電気抵抗の冪の contour-plot を示す。通常金属状

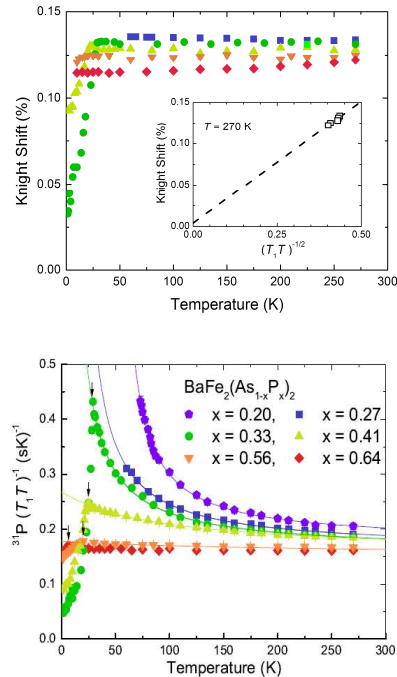


図 4 :  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  における超伝導を示す濃度でのナイトシフト(上図)、 $1/T_1 T$ (下図)の温度依存性 (Nakai *et al.* Phys. Rev. Lett. 105 107003 (2010))

態の  $\rho \sim T^2$  が見られる濃度域では超伝導転移温度は低い、異常金属の振る舞い  $\rho \sim T$  が見られる濃度域では超伝導転移温度は高くなっている。これらの結果は、超伝導は電子相関、中でも反強磁性相関と超伝導が密接に関係していることを示す結果である。ただしこれらの関係は 1111 系の  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$  では見られておらず、1111 系と 122 系の違いをどのように理解するのが今後の問題である。(Y. Nakai *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **105**, 107003 (2010))

また超伝導状態の緩和率を最高の  $T_c$  の試料 ( $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.67}\text{P}_{0.33})_2$ ;  $T_c \sim 31$  K) で測定した。 $T_c$  以下の温度依存性から超伝導ギャップに残留状態密度が存在し、磁場依存性や他の実験結果を考え合わせるとノードを持つ超伝導ギャップが実現していると考えられる。この超伝導体の超伝導のギャップ構造は他の鉄系超伝導体とは大きく異なる。今後ノードの位置を同定する必要がある。(Y. Nakai *et al.* *Phys. Rev. B* **81**, 020503 (R) 2010)

また磁気相と超伝導相の境界に位置する試料  $x=0.25$  において両相の関係を微視的な立場から調べた。磁気秩序温度  $T_N$  以下で磁気モーメントの発達に伴う内部磁場が P サイトで観測された。(図 6(a) 参照) 磁気相が超伝導転移する温度  $T_c^*$  以下では、磁気相の信号の緩和率に明確な異常が見られ、磁気相も超伝導転移を起こすことから磁性と超伝導はミクロに共存していることがわかった。(図 6(c) 参照) さらに超伝導転移に伴い磁気モーメントが減少することから、両相の秩序パラメーターは競合状態

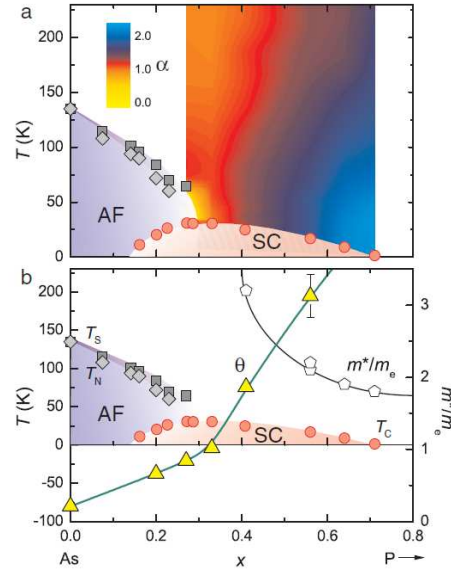


図 5: (a)  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  における電気抵抗の温度依存性の冪 ( $\rho(T) = \rho_0 + T^\alpha$ ) と (b)  $1/T_1 T$  から見積もられる  $\theta$  ( $T_1 T \propto T + \theta$ ).  $\theta = 0$  は  $T = 0$  での磁気秩序を示し反強磁性量子臨界点を示唆する。(Y. Nakai, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 107003 (2010)).

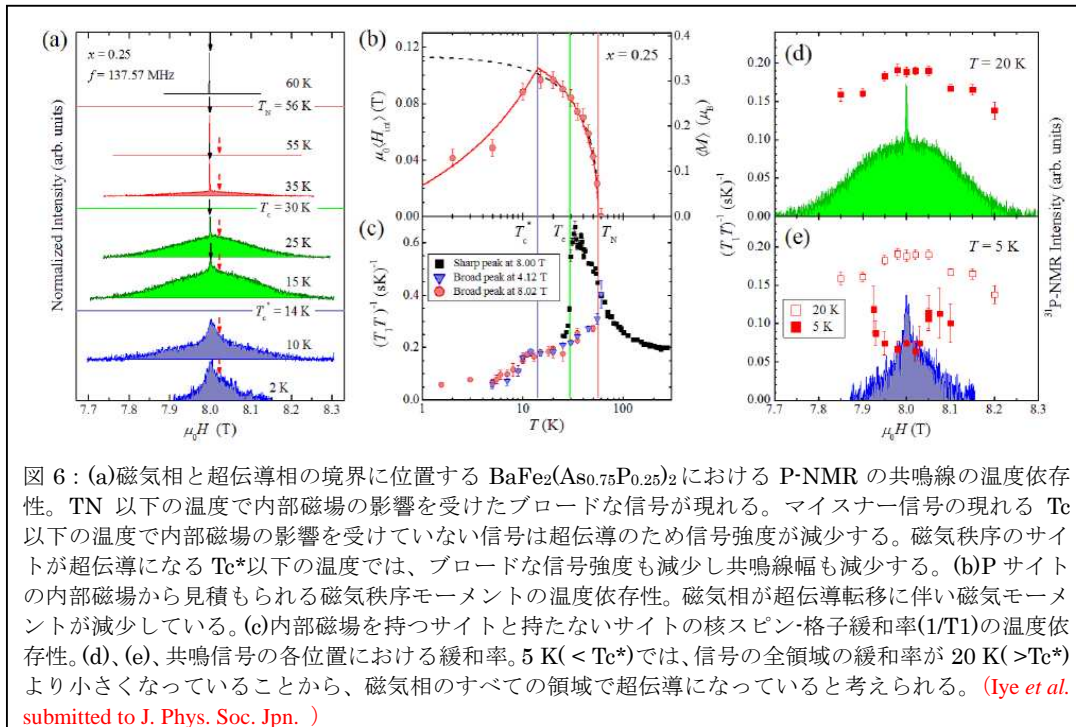


図 6: (a) 磁気相と超伝導相の境界に位置する  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.75}\text{P}_{0.25})_2$  における P-NMR の共鳴線の温度依存性。  $T_N$  以下の温度で内部磁場の影響を受けたブロードな信号が現れる。マイナー信号の現れる  $T_c$  以下の温度で内部磁場の影響を受けていない信号は超伝導のため信号強度が減少する。磁気秩序のサイトが超伝導になる  $T_c^*$  以下の温度では、ブロードな信号強度も減少し共鳴線幅も減少する。(b) P サイトの内部磁場から見積もられる磁気秩序モーメントの温度依存性。磁気相が超伝導転移に伴い磁気モーメントが減少している。(c) 内部磁場を持つサイトと持たないサイトの核スピン-格子緩和率 ( $1/T_1$ ) の温度依存性。(d), (e)、共鳴信号の各位置における緩和率。5 K ( $< T_c^*$ ) では、信号の全領域の緩和率が 20 K ( $> T_c^*$ ) より小さくなっていることから、磁気相のすべての領域で超伝導になっていると考えられる。(Iye *et al.* submitted to *J. Phys. Soc. Jpn.* )



にあると考えられる。これらの実験結果から、反強磁性と超伝導は特定のフェルミ面で競合関係にあると考えられ、今まで報告のなかった磁気秩序と超伝導の関係であることを明らかにした。(Iye *et al.* submitted to *J. Phys. Soc. Jpn.* )

### LaFeAsO<sub>1-δ</sub>における Zn の不純物効果

鉄系超伝導体の性質として Fe サイトの置換に対して超伝導が強いことが上げられる。電子間の相互作用、中でも磁気励起によって引き起こされている非従来型の超伝導体の場合、超伝導は不純物に敏感であることが知られていた。したがって超伝導が不純物に対して強いことは鉄系超伝導が従来型の超伝導のように電子-格子相互作用によって引き起こされる超伝導である指摘もなされた。ところが最近、LaFeAsO<sub>1-δ</sub>においては非磁性 Zn によって超伝導は大きく抑制される結果も報告され、不純物効果をどのように考えるか問題となっている。我々は、LaFeAsO<sub>1-δ</sub>における Zn による  $T_c$  抑制の原因を La と As 核の NMR より調べた。その結果、Zn ドープによりキャリア濃度、常伝導の電子状態は変化しないことがわかり、 $T_c$  抑制の原因は Zn の非磁性効果と考えられる。今まで調べられていた不純物は、ドープにより超伝導を誘起する不純物であり、不純物が母物質に与える効果は自明ではなかった。本論文ではドープする不純物によって超伝導体に対する影響が大きく異なることを指摘した。(S. Kitagawa *et al.*, *Phys. Rev. B* 83, R180501 (2011))

上記は超伝導物質の研究であるが、"1111"構造を有する下記の興味深い系についても研究を行った。

### LaCoPO における二次元遍歴強磁性状態

"1111"構造を持つ遍歴強磁性体 LaCoPO の磁気状態を P-NMR を用いて微視的に調べた。低磁場の緩和率が  $T_{Curie}$  で発散すること、緩和率の発散が磁場の印加で急激に抑制されること(図 8 参照)、 $T_{Curie}$  以上での緩和率と帯磁率の関係に  $1/T_1T \propto \chi^{3/2}$  の関係が見られることから、この物質は  $T_{Curie}$  以上で、二次元強磁性ゆらぎを持つことを明らかにした。二次元強磁性の物質は現在までにほとんど報告されておらず、今回の物質は大変興味深い物質である。今後この物質の強磁性転移がドーピング等で抑えることができるかどうか調べる必要がある。(H. Sugawara *et al.* *J. Phys. Soc. Jpn.* 78 (2009) 113705)

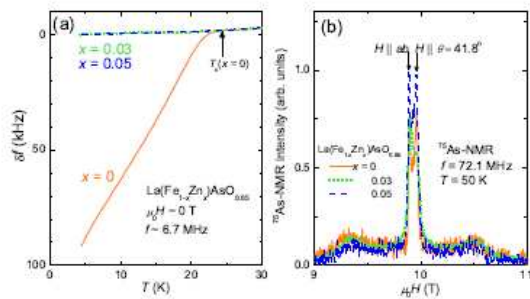


図 7: La(Fe<sub>1-x</sub>Zn<sub>x</sub>)AsO<sub>1-δ</sub>におけるマイスナー信号(a)と As-NMR 信号(b)。Zn3%で超伝導は消失しているが As の NMR 信号には変化はほとんど見られない。この結果は Zn ドープに対して結晶構造や電子状態の大きな変化がないことを示している。(S. Kitagawa *et al.* *Phys. Rev B* 83, R180501 (2011))

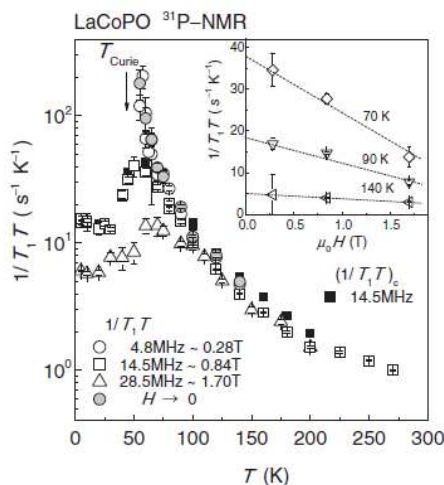


図 8: 遍歴強磁性体 LaCoPO における  $1/T_1T$  の温度依存性<sup>11)</sup>。挿入図は各温度における  $1/T_1T$  の磁場依存性。ゼロ磁場への外挿値を  $H \rightarrow 0$  の値として図 6 のメインの図に plot している。(H. Sugawara *et al.* *J. Phys. Soc. Jpn.* 78 (09) 113705.)

### 重い電子系 CeFePO における磁場誘起量子臨界現象

CeFePO は低温まで常磁性状態を維持し、低温の電子比熱係数  $\gamma$  は  $700\text{mJ/molK}^2$  の大きな値を持つ重い電子系物質である。構造は「1111」構造を有しているため、重い電子系では珍しい二次元系と考えられる。我々はこの物質の低温電子状態を広い磁場領域で調べ、 $\mu H_{\text{Cti}} \sim 4\text{T}$  に臨界磁場が存在し、この磁場領域で  $1/T_1T$  が低温に向かって増大を続ける量子臨界現象が見られることを明らかにした。(S. Kitagawa et al. To be published in Phys. Rev. Lett.)

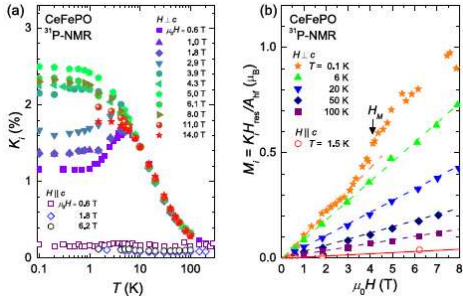


図 9: (a) 様々な磁場で測定した  $c$  軸方向に垂直 ( $H \perp c$ )、平行 ( $H \parallel c$ ) 方向の Knight-shift ( $K$ ) の温度依存性。  $H \parallel c$  の  $K$  は温度、磁場変化は小さいが、  $H \perp c$  の  $K$  は 5K 以下、2T 以上の磁場で変化が見られる。(b)  $M(H) = K_{\text{res}}/A_{\text{hf}}$  の関係から求めた様々な温度での  $M(H) - H$  curve。0.1K の  $M-H$  curve にはメタ磁性的な異常が見られる。

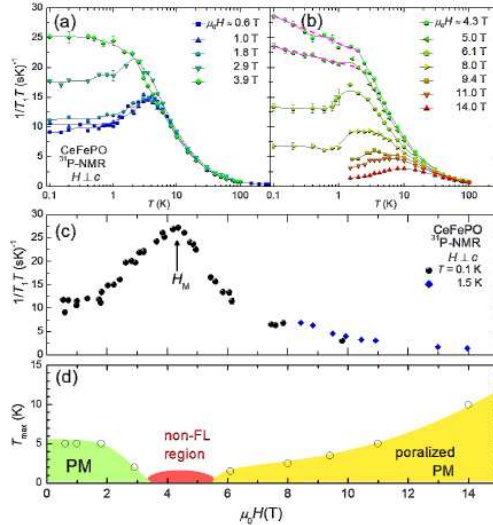


図 10: (a), (b) 様々な磁場で  $c$  軸に垂直に印加して測定した  $1/T_1T$  の温度依存性。臨界磁場の 4T あたりでは  $1/T_1T$  は低温まで上昇し続ける量子臨界的な振る舞いが見られた。(c) 0.1K と 1.5K で測定した  $1/T_1T$  の温度の磁場依存性。(d)  $c$  軸垂直に磁場を印加したときの  $1/T_1T$  の温度依存性から求めた相図。

### § 3. 研究実施体制

#### (1) 「京都大学」グループ

##### ① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	石田 憲二	京都大学	教授	H20 10
	中井 祐介	京都大学	特定研究員(JST)	H20 10
	北川 俊作	京都大学	D1	H20 10
	家 哲也	京都大学	M2	H21 4

##### ② 研究項目

核磁気共鳴(NMR)実験によるオキシニクタイト超伝導体及び関連物質の研究

## § 4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

- ① 発表総数(発行済:国内(和文) 0件、国際(欧文) 1件):
- ② 未発行論文数(“accepted”、“in press”等)(国内(和文) 0件、国際(欧文) 1件)
- ③ 論文詳細情報

[14] 著者: S. Kitagawa, H. Ikeda, Y. Nakai, T. Hattori, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano and H. Hosono

論文名: Metamagnetic Behavior and Kondo Breakdown in Heavy-Fermion CeFePO”

学会誌名: Accepted in *Physical Review Letter*

本論文では“1111”構造を持つ重い電子化合物 CeFePO が  $\mu H_{cr} \sim 4T$  にてメタ磁性的な振る舞いが観測されることを初めて報告した。またこの磁場領域近傍では物理量の温度依存性に量子相転移的な振る舞いも観測されることも報告した。

[13] 著者: S. Kitagawa, Y. Nakai, T. Iye, K. Ishida, Y. F. Guo, Y. G. Shi, K. Yamaura, and E. Takayama-Muromachi

論文名: Nonmagnetic pair-breaking effect in  $\text{La}(\text{Fe}_{1-x}\text{Zn}_x)\text{AsO}_{0.85}$  studied by  $^{75}\text{As}$  and  $^{139}\text{La}$  NMR and NQR

学会誌名: *Physical Review B* 83, R180501 (2011). (4 page)

発表年月巻号: 2011 年 5 月 6 日

DOI: 10.1103/PhysRevB.83.180501

[12] 著者: L. E. Klintberg, Swee K. Goh, S. Kasahara, Y. Nakai, K. Ishida, M. Sutherland, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and T. Terashima

論文名: Chemical Pressure and Physical Pressure in  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$

学会誌名: *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 123706 (4 pp)

発表年月巻号: 2010 年 11 月 25 日

DOI: 10.1143/JPSJ.79.123706

\*[11] 著者: Y. Nakai, T. Iye, S. Kitagawa, K. Ishida, H. Ikeda, S. Kasahara, H. Shishido, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and T. Terashima

論文名: Unconventional Superconductivity and Antiferromagnetic Quantum Critical Behavior in the Isovalent-Doped  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$

学会誌名: *Physical Review Letter*

発表年月巻号: 2010 年 9 月 2 日 **105** (2010) 107003 (4 pp)

DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.107003

(要旨) 本論文は、122 構造の母物質  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  に、同価数の P を置換した系  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  において現れる超伝導と常伝導状態の磁気励起の関係を P-NMR から調



べた論文である。ストライプ型の反強磁性秩序は P の置換に伴い抑制され超伝導が現れ、反強磁性量子臨界点付近で最高の超伝導転移温度が見られる。更なる P 置換で反強磁性ゆらぎも弱くなり超伝導転移温度も抑制され、反強磁性ゆらぎの見られない濃度域では超伝導も見られない。これらの結果から、ストライプ型反強磁性ゆらぎと超伝導の関係を指摘した。

[10] 著者: Swee K. Goh, Y. Nakai, K. Ishida, L. E. Klinberg, Y. Ihara, S. Kasahara, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and T. Terashima

論文名: Anisotropic superconducting properties of optimally doped  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.65}\text{P}_{0.35})_2$  under pressure

学会誌名: *Physical Review B* **82** (2010) 094502 (5 pp)

発表年月巻号: 2010 年 9 月 2 日

DOI: 10.1103/PhysRevB.82.094502

[9] 著者: S. Kitagawa, Y. Nakai, T. Iye, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano and H. Hosono

論文名: Stripe antiferromagnetic correlations in  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  probed by  $^{75}\text{As}$  NMR

学会誌名: *Physical Review B*

発表年月巻号: 2010 年 6 月 3 日、**81** (2010) 212502 (4 pp)

DOI: 10.1103/PhysRevB.81.212502

[8] 著者: Y. Nakai, T. Iye, S. Kitagawa, K. Ishida, S. Kasahara, T. Shibauchi, Y. Matsuda and T. Terashima

論文名: Antiferromagnetic fluctuations in iron pnictide superconductor  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.67}\text{P}_{0.33})_2$  investigated by  $^{31}\text{P}$  NMR

学会誌名: *Physica C*

発表年月巻号: 2010 年 1 月 25 日

DOI: 10.1016/j.physc.2010.01.047

\*[7] 著者: Y. Nakai, T. Iye, S. Kitagawa, K. Ishida, S. Kasahara, T. Shibauchi, Y. Matsuda and T. Terashima

論文名:  $^{31}\text{P}$  and  $^{75}\text{As}$  NMR evidence for a residual density of states at zero energy in superconducting  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.67}\text{P}_{0.33})_2$

学会誌名: *Physical Review B* **81** (2010) 020503(R)

発表年月巻号: 2010 年 1 月 6 日

DOI: 10.1103/PhysRevB.81.020503

(要旨) 本論文は、122 構造の母物質  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  に P を置換した系で最高の  $T_c$  を持つ  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.67}\text{P}_{0.33})_2$  において常伝導状態の磁気励起、超伝導ギャップの構造を NMR 実験

から調べた論文である。実験から  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.67}\text{P}_{0.33})_2$  は磁気量子臨界点近傍に位置すること、超伝導状態の低温で残留状態密度が存在し、line-node を持つと考えられることを示した。

- [6] 著者: H. Sugawara, K. Ishida, Y. Nakai, H. Yanagi, T. Kamiya, Y. Kamihara, M. Hirano  
and H. Hosono  
論文名: Two Dimensional Spin Dynamics in the Itinerant Ferromagnet LaCoPO Revealed by  
Magnetization and  $^{31}\text{P}$ -NMR Measurements  
学会誌名: Journal of the Physical Society of Japan  
発表年月巻号: 2010年11月10日、 **78**, 113705 1-4 (2009)  
DOI: 10.1143/JPSJ.78.113705
- [5] 著者: S. Kitagawa, Y. Nakai, T. Iye, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano and H. Hosono  
論文名: F-doping dependence of  $^{75}\text{As}$  nuclear quadrupole resonance frequency in  
 $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$   
学会誌名: Physica C  
発表年月巻号: 2009年10月29日  
DOI: 10.1016/j.physc.2009.10.106
- [4] 著者: Y. Nakai, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono  
論文名: An NMR study on the F-doping evolution of the iron oxypnictide  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$   
学会誌名: New Journal of Physics **11** (2008) 045004 (15pp)  
発表年月巻号: 2009年4月27日  
DOI: 10.1088/1367-2630/11/4/045004
- [3] 著者: Y. Nakai, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono  
論文名:  $^{75}\text{As}$  and  $^{139}\text{La}$  NMR/NQR investigations of iron-based superconductor  $\text{LaFeAs}(\text{O}_{0.89}\text{F}_{0.11})$   
学会誌名: Journal of Physics: Conference Series **150** (2009) 052179  
発表年月巻号: 2009年4月3日、  
DOI: 10.1088/1742-6596/150/5/052179
- [2] 著者: Y. Nakai, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono  
論文名: Spin Dynamics in Iron-Based Layered Superconductor  $(\text{La}_{0.87}\text{Ca}_{0.13})\text{FePO}$  Revealed by  $^{31}\text{P}$   
and  $^{139}\text{La}$  NMR Studies  
学会誌名: Physical Review Letters **101** (2008) 077006  
発表年月巻号: 2008年8月15日、

DOI: 10.1103/PhysRevLett.101.077006

[1] 著者: Y. Nakai, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono

論文名: Evolution from Itinerant Antiferromagnet to Unconventional Superconductor with Fluorine Doping in LaFeAs(O<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>) Revealed by <sup>75</sup>As and <sup>139</sup>La Nuclear Magnetic Resonance

学会誌名: Journal of the Physical Society of Japan **77** (2008) 073701

発表年月巻号: 2008年6月25日、

(要旨) 本論文は、FeAs 高温超伝導体の超伝導状態の核スピン緩和率  $1/T_1$  の温度依存性を最初に報告した論文である。その振る舞いから、この物質の超伝導状態が従来の s 波とは異なることを指摘した。また、超伝導を示さない LaFeAsO が 142K で反強磁性状態にあること、Fドーピングに対し反強磁性ゆらぎが急激に抑制されることを示した論文である。

DOI: 10.1143/JPSJ.77.073701

#### (4-2) 特許出願

TRIP 研究期間累積件数(国内 0 件、海外 0 件)

## § 5. 結び

### (5-1) 研究成果の意義、今後の展開

我々の NMR グループは、多くの研究グループと共同実験を行い、鉄系超伝導体の基礎物性をミクロな視点から明らかにしてきた。基礎物性を明らかにすることにより、鉄系超伝導体と他の強相関電子系超伝導体の比較ができ、これら超伝導に見られる普遍的な現象と、鉄系超伝導だけに見られる特殊な面を明らかにした。普遍的な振る舞いとしては、

- 1) 超伝導体の母物質は反強磁性体であり、反強磁性相が物理パラメーターで壊される近傍に超伝導は出現する。母物質の反強磁性転移温度が高いほど超伝導の転移温度が高い傾向がある。
- 2) 超伝導転移温度直下に通常超伝導に見られる核スピン-格子緩和率  $1/T_1$  の増大が見られず非従来型の超伝導が実現している。超伝導ギャップはラインノードを持つケースが多い。
- 3) 通常、高い転移温度  $T_c$  は磁気相近傍の磁気ゆらぎが発達している領域で、様々な物理量に非フェルミ液体的な振る舞いが見られる。そして、通常金属状態では超伝導は消失する。

これに対し鉄系超伝導の特殊な面として

- 1) 多重バンド構造を反映して、ホールと電子の特徴を持つフェルミポケットを持ち、両間のネスティングに起因したストライプ相関を持つ。
- 2) 超伝導状態ではマルチバンドを反映してホールと電子のフェルミ面で符号の異なる超伝導ギャップが実現していると考えられている。
- 3) 磁気相転移よりわずか高温で構造相転移がある。また構造相転移以下の温度で磁気ゆらぎも変化しているので格子系と磁性が結びついていると考えられる。などがわかった。

格子系のゆらぎと磁性、超伝導の関連性を明らかにすることは、鉄系超伝導における重要課題のひとつである。

以下個人的な意見であるが、鉄系超伝導の研究を通して、多くの研究者が転移温度 77K を超える超伝導体は銅酸化物だけでなく広く遷移金属化合物一般に見られる可能性があることが認識できたことは非常に大きな成果と考える。さらに鉄系超伝導ではフェルミ面の形状だけでなく、フェルミ面を構成している軌道の性質が磁気ゆらぎや超伝導に重要な役割を果たしていることが認識されたことも重要な内容と考える。

### **(5-2) その他**

2008 年の鉄系超伝導発見直後に編成された研究組織 TRIP に加わり、試料育成や他の実験測定グループ、理論グループと研究会等で議論を重ねることが出来、自信の研究に大変プラスとなった。また TRIP グループという仲間意識が芽生えグループ内で共同研究も行いやすかった。

研究費に関しては、NMR 研究に必要な高均一超伝導磁石の購入、液体ヘリウムと窒素の寒剤、博士研究員の雇用に充てることが出来、鉄系超伝導の研究に集中することができた。また研究費使用に対してフレキシブルに対応していただいたので不便に思うことはなかった。今後解決すべき問題も残っているが、TRIP 期間中は大変有意義な研究活動を送ることが出来た。関係者の方に厚くお礼を述べたい。