

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「鉄ニクタイト系化合物超伝導体の微視的・非経験的理論研究」

## 研究終了報告書

黒木和彦

電気通信大学 大学院情報理工学研究科・教授

## § 1. 研究実施の概要

### (1) 実施概要

本研究計画のねらいは主として以下の4点にまとめられる。(i) 第一原理バンド計算に立脚した鉄系超伝導体の有効模型の構築、(ii) 鉄系超伝導の発現機構、物質依存性の理解とより高い  $T_c$  を得るための指針、(iii) 多バンド系超伝導状態の研究やペアリング状態を判別する手段の考案、(iv) 鉄系超伝導に限らず、より広い視野からの高温超伝導研究。

(i)の有効模型構築については、1111系、122系、111系、11系についての第一原理計算からの低エネルギー有効模型の構築を行った。鉄のd軌道に注目した5軌道模型については、おおまかにいって、1111系、122系、111系、11系の順でワニエ軌道のサイズが大きい。これはこの順でアニオン p 軌道との混成が強いことに起因する。そのため、裸のクーロン相互作用はこの順で小さいことがわかった。また(iii)において重要となる不純物がポテンシャルや不純物が存在する場合のフェルミ面の変化を super cell を用いた第一原理計算によって調べた。

(ii)の超伝導発現機構に関しては、大きく分けて、スピンの揺らぎを媒介とした  $s\pm$  ペアリングと、軌道揺らぎを媒介とする  $s++$  ペアリングに関する研究を行った。鉄系超伝導の発見直後から指摘されたように、鉄系超伝導体の大きな特徴として、非連結なフェルミ面があり、フェルミ面間を指し渡す波数において発達するスピンの揺らぎによって、フェルミ面間で超伝導ギャップ(秩序パラメーター)の符号が反転した  $s\pm$  超伝導が自然に期待される。ただし、多軌道系であるために単一軌道系よりも事情は複雑であり、結晶構造によって変化するバンド構造とフェルミ面によって、場合によっては超伝導ギャップにノードが入ることが示される。また、ニクトゲンが正四面体構造をとる近傍においてフェルミ面の枚数が最大化されることに伴って  $T_c$  も最適化されること示された。一方、軌道揺らぎの理論においては、鉄系超伝導体のクーロン相互作用に加えて電子格子相互作用に着目し、フェルミ面の軌道間ネステイングによる軌道揺らぎを研究した。軌道揺らぎの発達によって符号反転の無い超伝導状態  $s++$  波状態が発現すること、さらに斜方晶転移や弾性定数  $C_{66}$  のソフニングがもたらされることを見出した。

(iii)のペアリング状態の判別については、不純物効果や中性子散乱実験の解析など、幅広く研究を行った。ペアリング状態を判定する手法の一つとして、鉄系超伝導体の5バンド模型を用い、Bogoliubov-de Gennes 方程式を解くことで、非磁性不純物近傍の局所状態密度を求めた。その結果、非磁性不純物近傍の局所状態密度の測定によって、 $s\pm$  状態と  $s++$  状態を実験的に区別する手法を提案した。また、多バンド超伝導体における位相モードについても研究を行い、3バンド以上の系に特徴的な複数のモードが存在することを示した。

(iv)については、鉄系超伝導体以外に、銅酸化物高温超伝導体についても、多軌道性という観点から、物質依存性を再訪した。 $T_c$  の低い La 系銅酸化物においてフェルミ面上における  $d3z^2-r^2$  軌道成分の混成が強いことに着目し、 $dx^2-y^2+d3z^2-r^2$  の二軌道模型を構築して、超伝導の解析を行った。その結果、この二つの軌道間のエネルギー差が  $T_c$  とフェルミ面の形状を決定する大きな要因となっていることを示した。

以上の成果により、チーム全体として45編の原著論文を著し、45件の国際会議招待講演を行っ

た。国内外に向けて研究成果を発信し、十分なインパクトを与えることができたと考えている。当初の目的のかかなりの部分は達せられた一方で、未解決の問題も残り、さらにはプロジェクトの発足当時には考えていなかった様々な興味深い問題も見つかり、今後の研究につながる事となる。

## (2) 顕著な成果

### ① スピン揺らぎ理論に基づく鉄系超伝導の物質依存性に関する研究

概要: 第一原理バンド計算をもとに構築した鉄系超伝導体の多軌道有効模型に対して、RPAまたは FLEX 近似を適用することによって、 $T_c$  や超伝導ギャップの物質依存性についての解釈をスピン揺らぎ機構の観点から与えた。鉄系超伝導体が多軌道系であり、かつフェルミ面がポケット状の小さいものであることに起因して、小さな構造上の変化に対してフェルミ面が敏感に変化し、超伝導に影響を及ぼすことを示した。

### ② 軌道揺らぎ理論に基づく超伝導発現機構および構造相転移の研究

概要: 鉄系超伝導体のクーロン相互作用に加えて電子格子相互作用に着目し、フェルミ面の軌道間ネスティングによる軌道揺らぎを研究した。軌道揺らぎの発達によって符号反転の無い超伝導状態 ( $s_{++}$  波状態) が発現すること、さらに斜方晶転移や弾性定数  $C_{66}$  のソフニングがもたらされることを見出した。

### ③ 鉄系超伝導体における不純物効果

概要: 鉄系超伝導体の5バンド模型を用い、Bogoliubov-de Gennes 方程式を解くことで、非磁性不純物近傍の局所状態密度を求めた。その結果、非磁性不純物近傍の局所状態密度の測定によって、 $s_{\pm}$  状態と  $s_{++}$  状態を実験的に区別する手法を提案した。

## § 2. 研究実施内容

研究期間全体の研究実施内容については、各グループ毎に報告を行うこととする。いくつかの研究についてはグループ間の共同研究であるため、重複する内容もあるが、それぞれのグループの視点から記述することとした。

### [黒木グループ]

黒木グループでは青木グループ、有田グループ、田仲グループと協力して、鉄系超伝導体の5軌道模型に基づき、スピン揺らぎ媒介による超伝導メカニズム (KK-3, KK-4) に関する研究を行った。特に鉄系超伝導体においては結晶構造の変化が超伝導に与える影響が大きいことが実験的に知られており、このことを理論的に解釈することを大きな柱として研究を進めた。まず、鉄系超伝導体の特徴的な複数の非連結フェルミ面のうち、特に波数  $(\pi, \pi)$  付近に現れる  $X^2-Y^2$  軌道を起源とするフェルミ面 ( $\gamma$  面) が鉄の面から測ったニクトゲンの高さ  $h_{Pn}$  に敏感であることに注目した。乱雑位相近似(RPA)の計算を行うことにより、NdFeAsO のように  $h_{Pn}$  が高いと  $\gamma$  面がしっかりと表れ、この場合には符号反転型の full gap  $s$  波超伝導 ( $s_{\pm}$  波) が安定であることがわかった。一方 LaFePO の

ように $h_{Pn}$ が低いと $\gamma$ 面が消失し、代わりに $Z^2$ 軌道を主起源とする3次元的なフェルミ面が現れる。この場合にはスピン揺らぎの競合効果により、ノードのあるs波とd波がほぼ拮抗する。すなわち、ニクトゲンの高低に応じて、ギャップ・ノードの有無の切替が起こることを示した KK-5)。

さらに、Fe-As-Fe 結合角と  $T_c$  の相関に関するいわゆる「Lee plot」を理解するために、1111 系において仮想的に結合角を変化させて得られる 5 軌道模型に対して、揺らぎ交換(FLEX)近似による解析を行った。その結果、スピン揺らぎ媒介によって生じる s±波超伝導は、ホール・フェルミ面の枚数が最大になる結合角付近で  $T_c$  が最も高くなることが示された KK-12)。一方、低エネルギースピン揺らぎの強さは角度が小さくなるにつれて大きくなる傾向があり、超伝導とは必ずしも関連しないことがわかり、実験的に観測されるスピン揺らぎ強度と  $T_c$  の相関関係に解釈を与えた。

また、3次元性の比較的強いフェルミ面を有する 122 系については3次元10軌道模型を RPA で扱うことによって調べた。その結果、ヒ素をリンに部分置換してニクトゲンの高さが下がった場合などにおいて、3次元的なフェルミ面形状を反映して、超伝導ギャップに水平方向にノードが入る可能性があることがわかった KK-8, KK-16)。また、122 系の研究を通じて、鉄系超伝導体におけるスピン揺らぎ非整合性の電子・ホール非対称性の起源についても理論的に解明した KK-11, KK-16)。

銅酸化物についても、青木グループ、有田グループと協力して、多軌道性という観点から物質依存性を調べた。 $T_c$  の低い La 系銅酸化物においてフェルミ面上における  $d3z^2-r^2$  軌道成分の混成が強いことに着目し、 $dx^2-y^2+d3z^2-r^2$  の二軌道模型を構築して、超伝導の解析を行った。その結果、この二つの軌道間のエネルギー差が  $T_c$  とフェルミ面の形状を決定する大きな要因となっていることを示した KK-10, KK-13)。

#### [青木グループ]

第一原理計算から構成される微視的有効模型を、黒木、有田、田仲、紺谷の各グループと共同で鉄系超伝導体に対して多バンド系という観点から世界に先駆けて構築した KK-3, KK-4, KK-5, HA-1)。一方、本 JST-TRIP 研究期間中に、有機超伝導(ピセンという芳香族)が発見され、その微視的有効模型を世界に先駆けて構築するとともに、鉄系超伝導の理論研究を踏まえて、銅酸化物高温超伝導体も見直す、ということ、黒木、有田のグループと共同で実行した KK-10)。物理的に興味深いのは、ピセンも多バンド超伝導体であり、また、従来は典型的な1バンド系と見なされてきた銅酸化物高温超伝導体も、実は2バンド系として捉えないと、物質依存性が理解できない、という結果が得られ、鉄系超伝導との比較(相同点、相違点)が興味深いことを指摘した。相関電子系を扱う方法論としては汎関数繰りこみの開発も行った。鉄系高温超伝導体の研究を主幹に、銅酸化物高温超伝導体、芳香族超伝導を理論研究しているグループは世界をみてもあまり例がなく、ユニークであるとともに、鉄系と他のカテゴリーの物質との比較も通して、新しい高温超伝導体の理論的物質設計を目指す、という当初の目的が現実味を帯びてきた。

また、平成 22 年度からは、同じ JST-TRIP のメンバーである町田昌彦氏(原研)のグループとの共同研究として、「多バンド超伝導体における位相モード」の研究を行った HA-2)。これは、一般に超流動/超伝導転移に伴い Nambu-Goldstone モードが発生するが、多バンドに亘りゲージ対称性

が破れた状態において、集団励起モードに、単一バンドでは見られない特徴が存在するか、という問題設定である。多バンド系では異なるギャップ関数間の相対位相の揺らぎに伴い massive な集団励起モード(Leggett モード)が発生することは、2 バンド系については 1960 年代から知られている。これに対して、鉄系のようにバンド数が  $N \geq 3$  の場合は、複数種のバンド間ジョセフソン電流が存在するため、2 バンド系には無い複数モードが存在し、これらはバンド間ジョセフソン電流のパリティの違いに応じて Leggett モードの質量に劇的な影響を与える、という結果を得た。換言すると、2 バンド超伝導体では二つのギャップ関数の間の相対位相は convention により変わるが、3 バンド以上では convention ではない。これが実験的に観測されれば、多バンド超伝導を特徴付ける一つのポイントとなることが期待される。

[有田グループ]

1111 系、122 系、111 系、11 系についての第一原理計算からの低エネルギー有効モデルの構築を行った。鉄の d 軌道に注目した 5 軌道モデルについては、おおまかにいって、1111 系、122 系、111 系、11 系の順でワニエ軌道のサイズが大きい。これはこの順でアニオン p 軌道との混成が強いことに起因する。そのため、裸のクーロン相互作用はこの順で小さい。スクリーニングについては、1111 系では酸素の p 軌道が、122 系の  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  では Ba の d 軌道がスクリーニングに関与するため 11 系より相互作用パラメータの値が小さくなる傾向がある。おおまかな傾向として、 $\text{LaFePO}$  はより弱相関、FeSe、FeTe はより強相関領域にあるという結論が得られた<sup>RA-3)</sup>。

1111 系では、電子状態がより二次元的であるので、しばしば二次元有効モデルが解析される。3 次元系を二次元系と近似した場合には、層間のスクリーニングを考慮した相互作用を用いるべきである。この観点にたった二次元 downfolding の計算を行った<sup>RA-4)</sup>。その結果、相互作用はより短距離的になり(隣接サイト間の相互作用が弱められる)、onsite の相互作用も一割程度小さくなることがわかった。そこで得られた相互作用を用いて、有限サイトの変分モンテカルロ計算を行い、1111 系の磁性が調べられた。平均場レベルではほとんど各サイト  $S=2$  の完全偏極状態であるが、揺らぎの効果をいれることで秩序モーメントが  $0.6\mu_B$  程度に抑えられることが判明した<sup>RA-7)</sup>。

また、得られた FeSe がより強相関であるという結論に動機付けられ、FeSe の LDA+DMFT 計算が行われた。その結果、一粒子スペクトルのインコヒーレント部分に、下部ハバードバンド由来の構造がみられるはずであるという理論的予測が得られた。

1111 系についても LDA+DMFT 計算が行われ、スピンの時間相関が計算された。動的にスクリーンされた値は温度に依存しない領域でも  $t=0$  の瞬間的な値は  $2\mu_B$  程度の値が得られることがわかった<sup>RA-6)</sup>。

鉄にコバルト、ニッケルなどの遷移金属を不純物として導入したときのオンサイトのポテンシャルエネルギーの第一原理評価を行った。さらに、不純物を含む supercell の折りたたまれた小さなブリルアンゾーンをもとの normal cell のブリルアンゾーンに広げるという手法を駆使し、フェルミ面の形状の変化を系統的にしらべた。その結果、Co と Ni をドーピングする効果はほぼ rigid band shift 近似で記述され、系にドーピングされる効果が確かに存在することがわかった<sup>RA-9)</sup>。

[田仲グループ]

実験による  $s\pm$  波と  $s++$  波の判別法を提案するために、論文 T-1 において、簡単な 2 バンド模型を用い  $s\pm$  波と  $s++$  波の場合の表面状態密度を計算した。結果として  $s\pm$  波の場合に Andreev 束縛状態が出現し zero bias 以外にピークが現れることを示した。また論文 T-2 においてアンドレーエフコンダクタンスの計算を行い、2 バンド系固有のアンドレーエフ反射の特徴を明確にした。

論文 T-4 において、鉄系超伝導体における不純物効果の研究を報告した。結果としてスピン揺らぎに媒介される  $s\pm$  波は不純物に対して非常に弱く、実験結果と整合しないことが分かった。一方、ギャップ関数に符号変化のない  $s++$  波は不純物に対して強く、実験結果と整合した。

次に、論文 T-5 において、中性子散乱スペクトルの研究を報告した。中性子散乱スペクトルにレゾナンス的なピーク構造が現れた場合、ギャップ関数に符号反転があることの証拠になるが、鉄系超伝導体の場合にはなだらかな hump 構造が現れる。この hump 構造が  $s++$  波の場合に dissipation less 機構により再現されることを示した。一方で  $s\pm$  波の場合はデルタ関数的な鋭いピーク構造が出現し実験と整合しないことが分かった。

そこで、論文 HK-4 において電子格子相互作用を考えることにより、軌道揺らぎを媒介とする  $s++$  波が出現することを示した。その際、鉄系超伝導体が多軌道系であることにより軌道揺らぎが増大することが分かった。また、この軌道揺らぎによるメカニズムにより Lee Plot<sup>HK-5)</sup> や弾性率のソフニング<sup>HK-7)</sup> が自然に説明されることが分かった。

特に  $\text{KFe}_2\text{Se}_2$  においては電子ポケットが存在しないため符号反転による利得が無く  $s\pm$  波が存在できず、ノードのある  $d$  波やフルギャップの  $s++$  波が出現することを示した<sup>HK-6)</sup>。

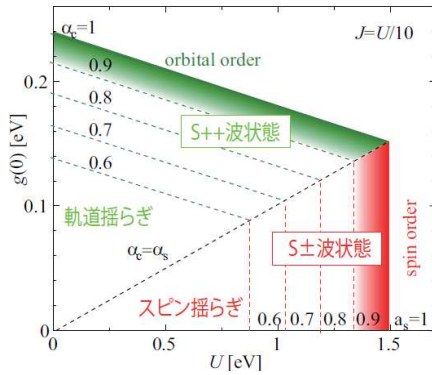
[紺谷グループ]

鉄系超伝導体における軌道揺らぎ理論を構築し、超伝導発現機構および構造相転移の研究を行った。鉄系超伝導体のフェルミ面近傍のバンド構造は、鉄の 3d 電子の 5 軌道全てが複雑に関与しており、多体電子状態におけるスピン揺らぎに加えて軌道揺らぎの重要性が示唆される。RPA においてハバード型短距離斥力(軌道内斥力  $U$ 、軌道間斥力  $U' = U - 2J$ 、フント結合  $J$ )のみ考慮すると、 $J \sim 0$  の場合にスピン揺らぎと軌道揺らぎは拮抗して発達するが、 $J \sim U/6$  ではスピン揺らぎが先に発達する。一方我々は群論的考察から、Fe の面内振動が電子間の四極子間相互作用  $H = -g(O_{xz}O_{xz} + O_{yz}O_{yz})$  をもたらすことを見出した。 $O_{xz(yz)}$  は  $xz(yz)$  対称性の電気四極子 ( $l=2$ ) 演算子である。As 四面体が反転対称性を持たないことから、相互作用  $g$  は必ず有限である。 $g$  が僅か 0.2 eV 程度存在すれば顕著な軌道揺らぎが発達し、符号反転の無い超伝導状態 ( $s++$  波状態) が発現することを見出した(図)。 $s++$  波状態は、鉄系超伝導体の超伝導状態が概して不純物に対して強いという実験事実と符合する。

なお  $g$  の値は  $\text{As}_4$  が正四面体の時に最大になるため、Lee-plot として知られる  $T_c$  と構造の経験的規則は、自然に説明される。さらに、ホール面が存在しない過剰電子ドーパ系  $\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  ( $T_c \sim 30\text{K}$ ) における超伝導発現機構も説明可能である。

さらに我々は、 $O_{xz(yz)}$  の反強的揺らぎの「第ゼロ高調波」として、 $O_{x^2-y^2}$  の強的揺らぎが発達する機

構を見出した(two-orbion 機構)。前者は 2 次元既約表現、後者は 1 次元既約表現に属し、揺らぎの小さい後者の揺らぎが必ず先に発散することが、理論的に証明される。 $O_{x^2-y^2}$  の強制的秩序は斜方晶構造相転移を与え、 $O_{x^2-y^2}$  の強制的揺らぎは  $C_{66}$  のソフニングを与えることから、これらの実験事実の説明に成功した。



RPA により得られた  $U$ - $g$  状態相図

#### [小形グループ]

鉄ニクタイト超伝導の発現機構として、スピンゆらぎ機構をはじめいくつかの理論が提唱されているが、(1)より小さい状態密度がより高い超伝導転移温度を与える傾向にある(光電子分光)、(2)スピンゆらぎと超伝導転移温度に一見相関がない(核磁気緩和率)などの謎が残されている。これらの謎を解決するために、“非遮蔽効果 (unscreening effect)”という新しい概念を提唱し、それによって上記実験の謎を解明しうることを示した<sup>0-1)</sup>。電子ドーピングの場合、状態密度が減少するが、“非遮蔽効果”によって遮蔽効果が薄れ、その結果電子間により大きなクーロン相互作用が働き、超伝導に有利になるというものである。現実的なモデルを用いた計算によって、このことが示された。

鉄系超伝導体における不純物効果の研究、特に局所状態密度の計算を、数值的・解析的な手法を組み合わせながら遂行した<sup>0-2)</sup>。まず、鉄系超伝導体の5バンドモデルを用い、Bogoliubov-de Gennes 方程式を解くことで、非磁性不純物近傍の局所状態密度を求めた。その結果、非磁性不純物近傍の局所状態密度の測定によって、 $s\pm$ 状態と  $s++$  状態を区別することが可能であることが示された。さらに、局所状態密度の形状の不純物散乱強度依存性を詳細に調べ、実際に実験結果を解釈する際に有用となる情報を与えることができた。

また鉄の3d軌道の役割および格子の自由度の役割を理解するために、orthorhombic なひずみで結びついている  $d_{xz/yz}$  軌道に注目し、反強磁性状態および超伝導状態の理論解析を行った<sup>0-3)</sup>。まず、縮退する  $d_{xz/yz}$  軌道間の交換相互作用とその2軌道間の Jahn-Teller 相互作用からなる有効モデルを構築し、 $d_{xz/yz}$  軌道間の交換相互作用を超伝導の引力であると仮定して平均場近似による超伝導状態の理論解析を行った。結晶構造として Tetra 相および Ortho 相を考慮した。その結

果フルギャップの  $s$  波状態が安定になること、Ortho 相での  $T_c$  は Tetra 相でのそれより低くなること、Ortho 相での超伝導ギャップが大きな異方性をもつことを示した。

### § 3. 研究実施体制

#### (1)「黒木和彦」グループ(研究機関別)

##### ① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	黒木和彦	電気通信大学大学院情報理工学研究科	教授	H20.10～
	鈴木雄大	電気通信大学 電気通信学研究科	院生	H21.4～
	榑原寛史	電気通信大学 電気通信学研究科	院生	H.22.4～H.23.3
	相澤啓仁	電気通信大学 電気通信学部	博士研究員	H.21.4～H.22.3
	池田浩章	京都大学 大学院理学研究科	助教	H22.4～

##### ② 研究項目

微視的モデルに基づく超伝導発現機構に関する研究。結晶構造と超伝導の関係についての研究。

#### (2)「青木秀夫」グループ(研究機関別)

##### ① 研究者名(当該研究実施年度の所属、役職、JST が雇用・派遣した研究者を含む。)

	氏名	所属	役職	参加時期
○	青木 秀夫	東京大学	教授	H20.10～
	岡 隆史	東京大学	助教	H20.10～
	高島宏和	東京大学	院生	H20.10～H21.3
	西口 和孝	東京大学	院生	H22.4～
	見上敬洋	東京大学	院生	H21.4～
	村上 雄太	東京大学	院生	H23.4～
	仮屋 夏樹	東京大学	院生	H23.4～

##### ② 研究項目

鉄系超伝導体に関するモデルの構築、および、数値計算による性質の解析。

#### (3)「有田亮太郎」グループ(研究機関別)

##### ③ 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	有田 亮太郎	東京大学大学院工学系研究科	准教授	H20.10～
	今田 正俊	東京大学大学院工学系研究科	教授	H20.10～
	中村 和磨	東京大学大学院工学系研究科	助教	H20.10～



④ 研究項目

- (1) ab initio downfolding による有効模型の構築
- (2) 動的平均場理論、変分モンテカルロ法による磁性の解析
- (3) 遷移金属不純物をいれたときの電子状態の実空間、波数空間の解析

(4)「田仲由喜夫」グループ(研究機関別)

① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	田仲 由喜夫	名古屋大学	准教授	H20.10～
	大成 誠一郎	名古屋大学	助教	H20.10～

② 研究項目

鉄系超伝導体超伝導発現機構の研究

鉄系超伝導体接合系の研究

(5)「紺谷浩」グループ(研究機関別)

① 研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	紺谷浩	名古屋大学	准教授	H20.10～
	齋藤哲郎	名古屋大学	院生	H21.4～
	井上善夫	名古屋大学	院生	H22.4～
	山川洋一	名古屋大学	PD	H22.4～

② 研究項目

軌道揺らぎ理論に基づく超伝導発現機構の理論研究

軌道揺らぎ理論に基づく構造相転移および  $C_{66}$  ソフニングの理論研究

(6)「小形正男」グループ(研究機関別)

① 研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	小形正男	東京大学大学院理学系研究科	教授	H.20.10～
	荻宿俊風	東京大学大学院理学系研究科	院生	H.20.10～H21.4
	松浦弘泰	東京大学大学院理学系研究科	助教	H.22.10～
	荒川直也	東京大学大学院理学系研究科	院生	H22.4～

② 研究項目

微視的模型に基づく超伝導発現機構、常伝導状態における磁気揺らぎに関する研究

## § 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) 45 件):

② 未発行論文数(“accepted”、“in press”等)(国内(和文) X 件、国際 (欧文)XX 件)

③ 論文詳細情報

KK-1) K. Kuroki, S. Onari, R.Arita, H.Usui, Y. Tanaka, H. Kontani, and H. Aoki:  
Erratum:unconventional pairing originating from the disconnected Fermi surfaces  
of superconducting  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ”, Phys.Rev.Lett. **102** (2009) 109002(E). DOI:10.1  
103/PhysRevLett.102.109902.

KK-2) K. Kuroki: Unconventional pairing in doped band insulators on a honeycomb  
lattice: the role of the disconnected Fermi surface and a possible application to  
superconducting  $\beta\text{-MnCl}$  ( $\text{M}=\text{Hf}, \text{Zr}$ )”, Proc. Int. Workshop on Superconductivity in  
Diamond and Related Materials 2008, Sci. Tech. Adv. Mat. **9** (2008) 044202(1-7),  
DOI:10.1088/1468-6996/9/4/044202.

KK-3) K. Kuroki, S. Onari, R.Arita, H.Usui, Y. Tanaka, H. Kontani, and H. Aoki  
: Unconventional pairing originating from disconnected Fermi surfaces in the iron  
-based superconductor , New J. Phys. **11** 025017, DOI:10.1088/1367-2630/11/2/0250  
17.

KK-4) K. Kuroki and H. Aoki: Unconventional pairing originating from disconnected  
Fermi surfaces in the iron-based superconductor, Physica C **469** (a special edition on  
superconducting pnictides), 635 (2009), DOI:10.1016/j.physc.2009.03.021.

\*KK-5) K. Kuroki, H. Usui, S. Onari, R. Arita, and H. Aoki: Pnictogen height as a  
possible switch between high- $T_c$  nodeless and low- $T_c$  nodal pairings in the iron-based  
superconductors, Phys. Rev. B **79** (2009) 224511, DOI: 10.1103/PhysRevB.79.224511.

鉄系超伝導体における結晶構造と超伝導状態の相関関係を理論的に調べた。特に、鉄面から測  
ったニクトゲンの高さに着目し、その高低によって、完全なギャップの開いた  $s\pm$  ペアリングとギャッ  
プにノードが入るペアリングの間で切り替えが起こることを示した。出版からの2年半のあいだに  
184 回の被引用回数がある。

KK-6) K. Kuroki: Unconventional superconductivity originating from disconnected Fermi surfaces in iron pnictides, *Physica C* **470** (2010) Supplement 1, S267-S272, DOI:10.1016/j.physc.2009.11.099.

KK-7) K. Kuroki: Unconventional superconductivity originating from disconnected Fermi surfaces in correlated superconductors : a case study for iron pnictides, *Physica C* **470** (2010) 996-1001, DOI:10.1016/j.physc.2010.05.019.

KK-8) K. Suzuki, H. Usui, and K. Kuroki: Possible Three-Dimensional Nodes in the  $s\pm$  Superconducting Gap of  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ , *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** (2011) 013710, DOI: 10.1143/JPSJ.80.013710.

KK-9) T. Hanaguri, S. Niitaka, K. Kuroki, and H. Takagi: Unconventional  $s$ -wave superconductivity in  $\text{Fe}(\text{Se},\text{Te})$ , *Science* **328**, 474 (2010), DOI: 10.1126/science.1187399.

KK-10) H. Sakakibara, H. Usui, K. Kuroki, R. Arita, H. Aoki: Two-Orbital Model Explains the Higher Transition Temperature of the Single-Layer Hg-Cuprate Superconductor Compared to That of the La-Cuprate Superconductor, *Phys. Rev. Lett.* **105** (2010) 057003, DOI:10.1103/PhysRevLett.105.057003.

KK-11) C. H. Lee, K. Kihou, H. Kawano-Furukawa, T. Saito, A. Iyo, H. Eisaki, H. Fukazawa, Y. Kohori, K. Suzuki, H. Usui, K. Kuroki, K. Yamada: Incommensurate spin fluctuations in hole-overdoped superconductor  $\text{KFe}_2\text{As}_2$ , *Phys. Rev. Lett.* **106**, 067003 (2011), DOI:10.1103/PhysRevLett.106.067003.

KK-12) H. Usui and K. Kuroki : Maximizing the Fermi-surface multiplicity optimizes the superconducting state of iron pnictide compounds, *Phys. Rev. B* **84** (2011) 024505(1-6), DOI:10.1103/PhysRevB.84.024505.

KK-13) K. Kuroki: Anion height as a controlling parameter for the superconductivity in iron pnictides and cuprates, in *Proc. Spectroscopies of Novel Superconductors 2010*; *J. Phys. Chem. Solids* **72** (2011) 307-314, DOI: 10.1016/j.jpcs.2010.10.01.

KK-14) Y. Nagai and K. Kuroki : Determination of the pairing state in iron-based superconductors through neutron scattering, *Phys. Rev. B* **83** (2011) 220516(R)(1-4) (Rapid Communications), DOI:10.1103/PhysRevB.83.220516.

KK-15) M. Ishikado, Y. Nagai, K. Kodama, R. Kajimoto, M. Nakamura, Y. Inamura, S. Wakimoto, H. Nakamura, M. Machida, K. Suzuki, H. Usui, K. Kuroki, A. Iyo, H. Eisaki, M. Arai, S. Shamoto : Strong spin resonance on  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.65}\text{P}_{0.35})_2$  with  $T_c = 30$  K  
Phys. Rev. B **84** (2011) 144517 (1-5), DOI:10.1103/PhysRevB.84.144517.

KK-16) K. Suzuki, H. Usui, and K. Kuroki : Spin fluctuations and unconventional pairing in  $\text{KFe}_2\text{As}_2$ , Phys. Rev. B **84** (2011) 144514 (1-7), selected as Editors' Suggestion, DOI:10.1103/PhysRevB.84.144514.

HA-1) Hideo Aoki: Model construction and pairing symmetry for the iron-based oxypnictides, Proc. 21st Int. Symposium. on Superconductivity, Tsukuba, Oct. 2008  
Physica C **469** (2009) 890-893, DOI:10.1016/j.physc.2009.05.092.

HA-2) Y. Ota, M. Machida, T. Koyama and H. Aoki: Leggett's collective modes in multiband superfluids and superconductors --- Multiple dynamical classes, Phys. Rev. B **83** (2011) 060507(R), DOI: 10.1103/PhysRevB.83.060507.

RA-1) R. Arita and H. Ikeda: Is Fermi-surface nesting the origin of superconductivity in iron pnictides?: A fluctuation-exchange-approximation study, J. Phys. Soc. Jpn **78** (2009) 113707, DOI:10.1143/JPSJ.78.113707.

RA-2) H. Ikeda, R. Arita, and J. Kunes: Phase diagram and Gap anisotropy in iron-pnictide superconductors, Phys. Rev. B **81** (2010) 054502, DOI: 10.1103/PhysRevB.81.054502.

RA-3) T. Miyake, K. Nakamura, R. Arita, and M. Imada: Comparison of Ab initio low-energy models for  $\text{LaFePO}$ ,  $\text{LaFeAsO}$ ,  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ,  $\text{LiFeAs}$ ,  $\text{FeSe}$  and  $\text{FeTe}$ : Electron correlation and covalency J. Phys. Soc. Jpn **79** (2010) 044705, DOI: 10.1143/JPSJ.79.044705.

RA-4) K. Nakamura, Y. Yoshimoto, Y. Nohara and M. Imada: Ab initio low-dimensional physics opened up by dimensional downfolding: application to  $\text{LaFeAsO}$ , J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 123708, DOI:10.1143/JPSJ.79.123708.

RA-5) H. Ikeda, R. Arita and J. Kunes: Doping dependence of spin fluctuations and

electron correlations in iron pnictides, Phys. Rev. B **82** (2010) 024508, DOI: 10.1103/PhysRevB.82.024508.

RA-6) P. Hansmann, R. Arita, A. Toschi, S. Sakai, G. Sangiovanni and K. Held: Dichotomy between large local and small ordered magnetic moment in Iron-based superconductors, Phys. Rev. Lett. **104** (2010) 197002, DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.197002.

RA-7) T. Misawa, K. Nakamura, and M. Imada: Magnetic properties of ab initio model of iron-based superconductors LaFeAsO, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 023704, DOI:10.1143/JPSJ.80.023704.

RA-8) K. Nakamura, R. Arita and H. Ikeda: First-principles calculation of transition-metal impurities in LaFeAsO, Phys. Rev. B. **83** (2011), 144512, DOI:10.1103/PhysRevB.83.144512.

RA-9) S. Konbu, K. Nakamura, H. Ikeda and R. Arita: Fermi-Surface Evolution by Transition-Metal Substitution in the Iron-based Superconductor LaFeAsO, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 123701, DOI:10.1143/JPSJ.80.123701.

T-1) S. Onari and Y. Tanaka: Surface density of states of  $s\pm$ -wave Cooper pairs in a two-band superconductor model, Phys. Rev. B **79** (2009) 174526 (1-6) DOI:10.1103/PhysRevB.79.174526.

T-2) A. A. Golubov, A. Brinkman, Yukio Tanaka, I. I. Mazin, and O. V. Dolgov: Surface density of states of  $s\pm$ -wave Cooper pairs in a two-band superconductor model, Phys. Rev. Lett. **103** (2009), 077003 (1-4), DOI:10.1103/PhysRevLett.103.077003.

T-3) S. Onari and Y. Tanaka: Theory of tunneling spectroscopy in  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ , Physica C **469** (2009) 912-914, DOI:10.1016/j.physc.2009.05.097

T-4) S. Onari and H. Kontani : Violation of Anderson's theorem for the sign-reversing  $s$ -wave state of iron-pnictide superconductors, Phys. Rev. Lett. **103** (2009) 177001 (1-4), DOI:10.1103/PhysRevLett.103.177001.

T-5) S. Onari, H. Kontani, and M. Sato: Structure of neutron-scattering peaks in both

$s_{++}$ -wave and  $s_{\pm}$ -wave states of an iron pnictide superconductor, Phys. Rev. B **81** (2010) 060504(1-4) (R), DOI:10.1103/PhysRevB.81.060504.

T-6) S. Onari and H. Kontani: Nonmagnetic impurity effects and neutron scattering spectrum in iron pnictides, Physica C **470** (2010), 1007-1009, DOI:10.1016/j.physc.2010.05.021.

T-7) S. Onari and H. Kontani: Study of non-Fermi-liquid-like state and pairing symmetry in iron pnictides based on the multiorbital Hubbard-Holstein model, Physica C **471** (2011) 670-674, DOI:10.1016/j.physc.2011.05.023.

T-8) S. Onari and H. Kontani: Neutron inelastic scattering peak by dissipationless mechanism in the  $s_{++}$ -wave state in iron-based superconductors, Phys. Rev. B **84** (2011), 144518(1-9), DOI:10.1103/PhysRevB.84.144518.

HK-1) Jun Li, H. Kontani 他 6 名 (6 番目): Linear decrease of critical temperature with increasing Zn substitution in the iron-based superconductor  $\text{BaFe}_{1.89-2x}\text{Zn}_{2x}\text{Co}_{0.11}\text{As}_2$ , 査読有, Phys. Rev. B **84** (2011) 020513(R) (1-4), DOI: 10.1103/PhysRevB.84.020513, Editor's suggestions.

HK-2) Y. Senga, and H. Kontani: Impurity-induced in-gap state and  $T_c$  in sign-reversing  $s$ -wave superconductors: analysis of iron oxypnictide superconductors, New J. Phys. **11** (2009) 035005 (1-12), DOI: 10.1088/1367-2630/11/3/035005, 鉄系超伝導特集号招待論文

HK-3) Y. Senga, and H. Kontani: Impurity effects in sign reversing fully-gapped superconductors: analysis of FeAs superconductors, J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 113710 (1-4), DOI: 10.1143/JPSJ.77.113710.

\*HK-4) H. Kontani and S. Onari, Orbital-Fluctuation-Mediated Superconductivity in Iron Pnictides: Analysis of the Five-Orbital Hubbard-Holstein Model, Phys. Rev. Lett. **104** (2010) 157001(1-4), DOI:10.1103/PhysRevLett.104.157001.

鉄系超伝導体のクーロン相互作用に加えて電子格子相互作用に着目し、フェルミ面の軌道間ネステイングによる軌道揺らぎを研究した。軌道揺らぎの発達によって符号反転の無い超伝導状態 ( $s_{++}$ 波状態) が発現することを見出した。

HK-5) T. Saito, S. Onari, and H. Kontani : Orbital fluctuation theory in iron pnictides: Effects of As-Fe-As bond angle, isotope substitution, and  $Z^2$ -orbital pocket on superconductivity,

Phys. Rev. B **82** ( 2010) 144510(1-10) ,DOI:10.1103/PhysRevB.82.144510

HK-6) T. Saito, S. Onari, and H. Kontani: Emergence of fully gapped  $s_{++}$ -wave and nodal  $d$ -wave states mediated by orbital and spin fluctuations in a ten-orbital model of  $\text{KFe}_2\text{Se}_2$  , Phys. Rev. B **83** (2011) 140512 (1-4) (R)., DOI:10.1103/PhysRevB.83.140512

HK-7) H. Kontani, T. Saito, and S. Onari: Origin of orthorhombic transition, magnetic transition, and shear-modulus softening in iron pnictide superconductors: Analysis based on the orbital fluctuations theory, Phys. Rev. B **84** (2011) 024528 (1-17) DOI:10.1103/PhysRevB.84.024528

O-1) Y. Fuseya, T. Kariyado and M. Ogata: “Unscreening” effect of Coulomb interaction on Fe-pnictide superconductor, J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 023703(1-4), DOI:10.1143/JPSJ.78.023703..

\*O-2) T. Kariyado and M. Ogata: Single impurity problem in iron-pnictide superconductors, J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 083704(1-4) DOI:10.1143/JPSJ.79.083704.

鉄系超伝導体の5バンド模型を用い、Bogoliubov-de Gennes 方程式を解くことで、非磁性不純物近傍の局所状態密度を求めた。その結果、非磁性不純物近傍の局所状態密度の測定によって、いわゆる  $s_{\pm}$  状態と  $s_{++}$  状態を実験的に区別する手法を提案した。

O-3) N. Arakawa and M. Ogata: Orbital-Selective Superconductivity and the Effect of Lattice Distortion in Iron-Based Superconductors, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011), 074704(1-11), DOI: 10.1143/JPSJ.80.074704.

#### (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

[黒木] 鉄系超伝導体の理論解析を通じて、現実的なハミルトニアンに基づいた非従来型超伝導の研究が飛躍的な進歩を遂げたといえる。この進歩は鉄系超伝導にとどまらず、銅酸化物につい

でも新たな知見を得るに至った。今後、この方向での理論研究がさらに発展することにより、新しい高温超伝導体の理論的予言も視野に入れた研究を進めたいと考えている。

[青木] 鉄系超伝導体を中心に、銅酸化物や芳香族超伝導体も視野に入れることにより、「多バンド超伝導」に対する理解が深まり、新超伝導体の「物質設計」や、より高い $T_c$ への挑戦の現実性が増したと感じている。これを基に、実験家とも共同で、鉄系から発展した新超伝導体研究につなげたい。

[有田] 第一原理計算により他のグループのモデル計算の基礎となる情報を提供するという目的については一定の成果を挙げたと考えている。クリーンな系については1111系、122系、111系、11系について系統的な考察を行った。不純物が含まれる系についても電子系の情報としてはほぼ完全な知見を得たと考えている。一方、格子系との結合については、計算を進めているものの、コード開発に時間がかかり論文として成果をまとめきるにはいらず、今後の課題として残った。

第一原理計算から得られるモデルの非摂動論的計算による解析については、動的平均場理論や変分モンテカルロ法による磁性の解析で成果があがったが、超伝導の解析に課題が残っている。

[紺谷] 2009年に我々が提唱した軌道揺らぎ理論(文献HK-4)は、鉄系超伝導体における軌道自由度の重要性を広く喚起するきっかけとなった。事実、最近では構造相転移に伴う軌道秩序や室温から始まる弾性定数のソフニングなど、軌道自由度の重要性を示唆する発見が相次いでいる。今後は軌道揺らぎやスピン揺らぎの理論をさらに発展させ、超伝導発現機構や超伝導対称性の問題を解明したいと考えている。

[小形] 鉄系超伝導体は多軌道、多バンドであり、このような系での超伝導発現のメカニズムについて新たな知見が得られた。また $s_{\pm}$ という新しい超伝導状態に対する不純物効果について、これまでの $s$ 波や $d$ 波とは異なる知見が得られた。