

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「鉄ニクタイト系高温超伝導体の磁気共鳴法による
超伝導発現機構の解明」

研究終了報告書

氏名 小堀 洋

所属・役職 千葉大学・大学院理学研究科・教授

§ 1. 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究グループは、 BaFe_2As_2 及びホールドープ系 $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($0 \leq x \leq 1$) を中心に、産総研グループと協力して単結晶の育成と物性評価をおこないながら研究を進めてきた。この系は多結晶試料の結果が報告されていたが、アルカリ金属の取扱いが困難なため、 K 高濃度側で良質な単結晶が得られていなかった。我々は、 (K-As) 系の自己フラックスを用いて $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の良質な単試料を全領域にわたり作製することに成功し、以下の結果を得た。

1. 超伝導エネルギーギャップ構造について

$(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の超伝導相において、 K の低濃度領域 $x = 0.4$ 付近では超伝導転移温度 T_c が高く等方的な超伝導ギャップの存在が多数の研究で指摘されている。我々は他端の KFe_2As_2 において、超伝導ギャップに線状のノードを持つ大きなギャップと非常に小さなギャップから成るマルチギャップ構造が存在することを核スピン格子緩和率 $1/T_1$ (NMR) と比熱測定から指摘した。この結果は他のグループとの磁場侵入長 λ 、熱測定の共同研究で確定されており、引き続き μSR 、中性子線回折等を用いて詳しい超伝導ギャップ構造を調べている。 x の値が $x = 0.4$ から増加すると大きな超伝導ギャップは緩やかに減少し、小さな超伝導ギャップはフェルミ面の電子ポケットが消失する領域ではほぼ零に急激に減少する (NMR, ALPES)。

2. 反強磁性スピンの揺らぎについて

$(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の全領域の常伝導状態で、反強磁性のスピンの揺らぎが観測される (NMR: $1/T_1$ 測定)。 $1/T_1$ の大きな異方性は、ストライプ型の反強磁性スピン揺らぎの存在を示している。 K の高濃度領域 $x > 0.6$ において、スピン系の励起にギャップを伴う熱励起が観測され、 $x = 1$ ではギャップ型の熱励起は消える。この熱励起の変化は、 K によるホールドープに伴うフェルミ面の構造の変化、特にフェルミ面の電子ポケットの消失に伴うバンド構造の変化を強く反映する。

3. BaFe_2As_2 における圧力誘起超伝導

BaFe_2As_2 における高圧下の反強磁性の消失や超伝導相の出現の様子をキュービクアンビル装置を用いて 15 GPa、ブリッジマンアンビルセルで 8 GPa まで調べた。 Ba122 系において、構造/磁気相転移は圧力の静水圧性に極めて敏感である。静水圧性が高い場合には、超伝導相が 10 GPa 以上の圧力で発生する一方で、僅かの異方性圧力が存在により、直ぐに 3 GPa まで超伝導相の出現が低下する。この静水圧性に敏感な性質は、ホールドープ系 $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の圧力誘起相でも同様である。

(2) 顕著な成果

①

概要: $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の超伝導相の端 $x = 1$ (KFe_2As_2) が, 超伝導ギャップに線状のノードが存在する大きなギャップと非常に小さなギャップから構成されるマルチギャップ超伝導体であることを示した。

②

概要: ホールドープ系の $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の常伝導状態で, $1/T_1$ はストライプ型の反強磁性スピン揺らぎの存在を示す。また、ホールドープに伴うフェルミ面の構造の変化, 特にフェルミ面の電子ポケットの消失を反映するギャップ的な温度変化が観測される。

③

概要: BaFe_2As_2 における圧力誘起超伝導相が, 静水圧性が高い場合は 10 GPa 以上の圧力で発生し, 僅かの圧力の異方性の存在により直ぐに 3 GPa まで出現が低下する。 BaFe_2As_2 の構造/磁気相転移が, 圧力の静水圧性に異常に敏感な事を反映するためである。

§ 2. 研究実施内容

BaFe₂As₂, ホールドープ系 (Ba_{1-x}K_x)Fe₂As₂ (0 < x ≤ 1) を対象として, ⁷⁵As-NMR と圧力実験をおこない以下の結果を得た。

(1) BaFe₂As₂, (Ba_{1-x}K_x)Fe₂As₂ (x < 0.2)における圧力誘起超伝導

BaFe₂As₂, (Ba_{0.84}K_{0.16})Fe₂As₂ において, 15 GPa までの範囲で得られた反強磁性の消失と超伝導の出現の様子を調べた^{4, 11, 12}。結果を図 1-1 と図 1-2 に示す。図の Cubic で示されるデータはキュービクアンビル装置を用いて高い静水圧性下で得られた相図であり, Bridgman で示されるデータは, ブリッジマンアンビルセルを用いて得られた結果である。対向アンビルを持つブリッジマンアンビルセルでは, 液体圧力媒体を用いても静水圧性は媒体の選択に強く依存する。圧力媒体としてフロリナートを用いると室温で 1 GPa, グリセリンでは 5 ~ 6 GPa 以上の圧力で固化し, 高い圧力で静水圧性が低下する。同じバッチから取り出した単結晶 BaFe₂As₂ の比較を図 1-1 に示す。静水圧性の高い状態では 10 GPa まで反強磁性相が存在し, それ以上の圧力で初めて超伝導が発生する。圧力媒体にフロリナートを用いると, 一軸性の効果が大きくなり 3 GPa 程度で超伝導相が出現している。本研究から, BaFe₂As₂ で色々なグループにより得られた混沌とした相図は, 静水圧性の差に依ることが理解できた。図 1-2 は常磁性相に近い組成 (Ba_{0.84}K_{0.16})Fe₂As₂ で得られた結果であり, キュービクアンビル装置, フロリナートやグリセリンを圧力媒体に用いたブリッジマンアンビルセルで得られた結果を示している。低温高圧下で生じる斜方晶/正方晶相転移に伴って (構造解析が必要), 反強磁性状態が消失して超伝導が現れると考えられる。この系を低温まで正方晶に保つことが出来れば, 広い領域にわたり 30 K 以上の高い T_c を持つ超伝導の発生が期待できる。

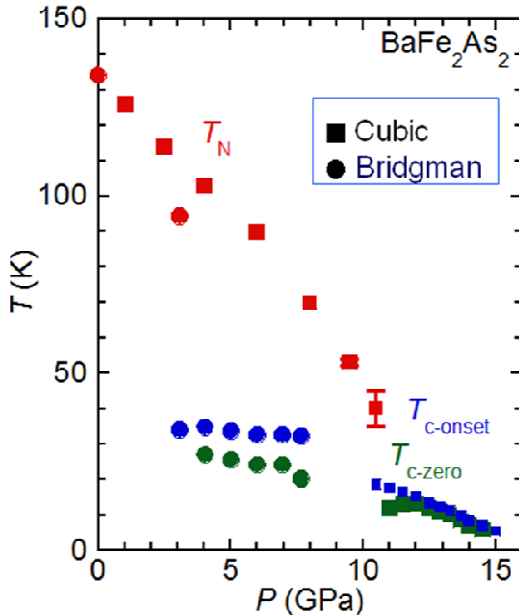


図 1-1 BaFe₂As₂ における静水圧下における反強磁性相の消失と超伝導相の出現の様子

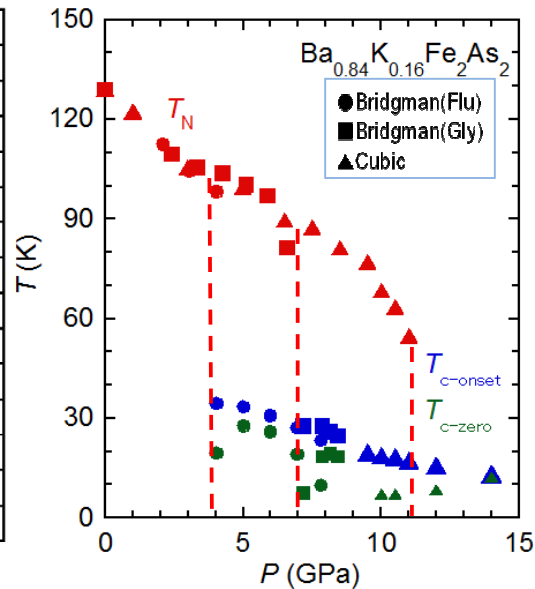


図 1-2 Ba_{0.84}K_{0.16}Fe₂As₂ におけるキュービクアンビル装置, ブリッジマンアンビルセルの比較。反強磁性相から超伝導相に相転移する。

(2) $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($0 \leq x \leq 1$) における NMR (NQR)

鉄ニクタイト系超伝導体におけるホールドーピングに伴うバンド構造の変化やクーパ対の引力の起源を探るために、核磁気共鳴から得られるナイトシフト K 、スピンの揺らぎを反映する核スピン格子緩和率 $1/T_1$ を、単結晶試料を中心に測定した。

(2-1) 常伝導相でのナイトシフト

K は $0 \leq x \leq 1$ の全ての範囲で殆ど温度変化せず、 x の増加にともない K は徐々に増大する。帯磁率の温度変化は少なくパウリ磁性的であり、 $q=0$ 近傍の長波長スピン揺らぎは小さい。温度変化が少ないために誤差が多いが、超微細結合定数は $20 \text{ kOe}/\mu\text{B}$ 程度で x の値にあまり依存しない。 K は磁化率の濃度変化を反映している。

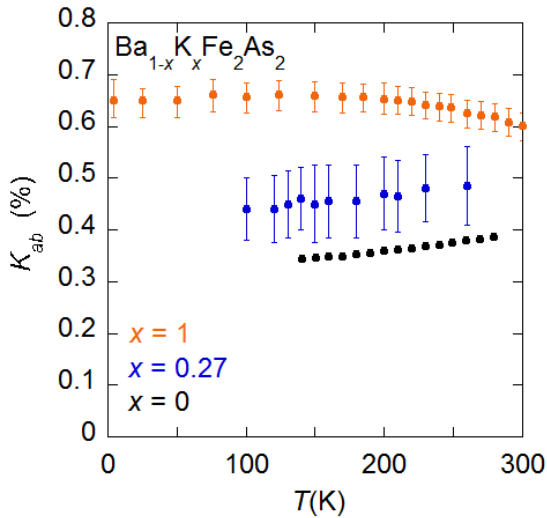


図 2-1 $H // ab$ -axis における K の温度及び x 依存

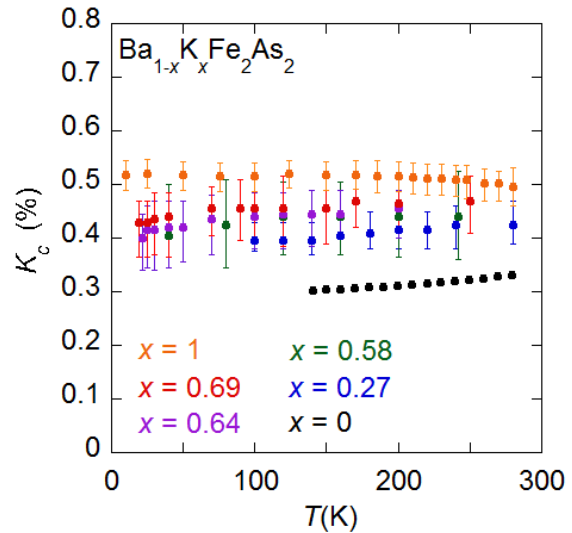


図 2-2 $H // c$ -axis における K の温度及び x 依存

(2-2) 常伝導相でのスピン格子緩和率

図 3 に緩和率 $1/(T_1 T)$ の温度変化を示す。 $1/(T_1 T)$ は $x = 0 \sim 0.2$ の領域で温度変化が大きく、この領域で強い反強磁性のスピン揺らぎが存在する事を示している。 $x = 0.4$ 付近の単結晶作製が遅れているが、多結晶試料でも同様な傾向を持つ。更に x の値が大きい $x = 0.6 \sim 0.7$ で 100 K 以下の温度でギャップ的な熱励起を反映した変化が観測される。電子面の消失に伴うバンド構造の変化がスピン系の熱励起に反映されている。 $x = 1$ の KFe_2As_2 においては、ギャップ的な振る舞いは消えて再び $1/(T_1 T)$ が増加し、低温まで反強磁性的な揺らぎが観測される。

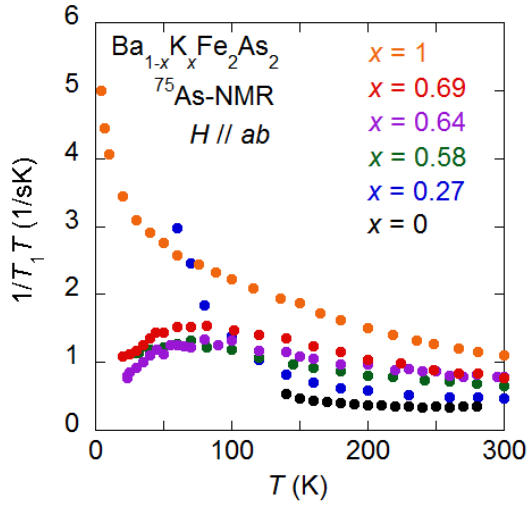


図 3-1 $H // ab$ -axis における $1/T_1T$ の温度及び x 依存

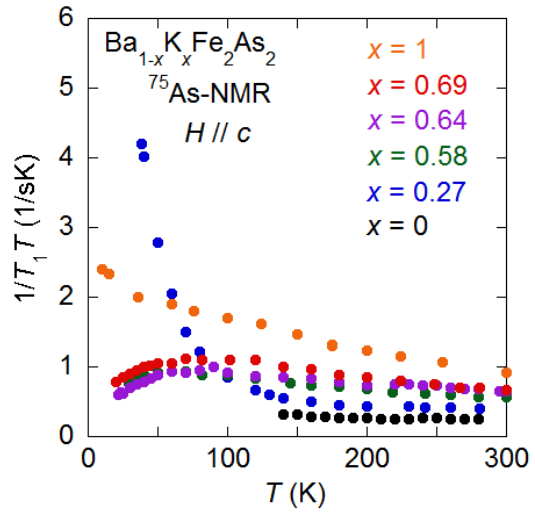


図 3-2 $H // c$ -axis における $1/T_1T$ の温度及び x 依存

複雑な x 依存は、ホールドープに伴うバンド構造の変化を反映していると考えられる。 $1/T_1$ の異方性を表す、 $H // a, b$ 軸で得られる $1/T_1$ の値と、 $H // c$ 軸で得られる $1/T_1$ の値の比は、全ての濃度範囲で 1.5 前後の値を持つ。この異方性を説明するには、模式図 3-3 のような Fe スピンの反強磁性ストライプ構造の揺らぎが鉄の存在する面から離れた砒素の位置で作る磁場の揺らぎが必要である。 $q = (\pi, \pi)$ 近傍のストライプ構造の反強磁性の揺らぎが大きい。

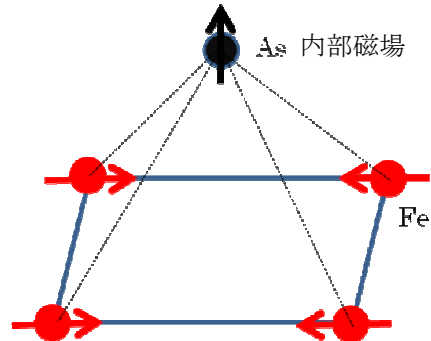


図 3-3 Fe の stripe 構造 と As 位置での内部磁場

(2-3) 超伝導相でのスピン格子緩和率

超伝導状態での $1/T_1$ の変化を図 4 に示す。K 濃度が $x = 0.4$ ¹⁾ から、 $x = 0.64$, 0.69 , 1 ²⁾ と増加すると、超伝導状態における $1/T_1$ の温度変化は徐々に緩やかになっている。この振る舞いは、超伝導ギャップ構造のホール濃度依存性が連続的に変わることを示している。 $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の全ての濃度範囲で、マルチギャップ超伝導が期待されているが、中でも $x = 0.4$ 付近では、等方的なギャップの存在、 $x = 1$ で線状のノードの存在が確立されている。ギャップ構造の濃度変化に興味を持たれる。

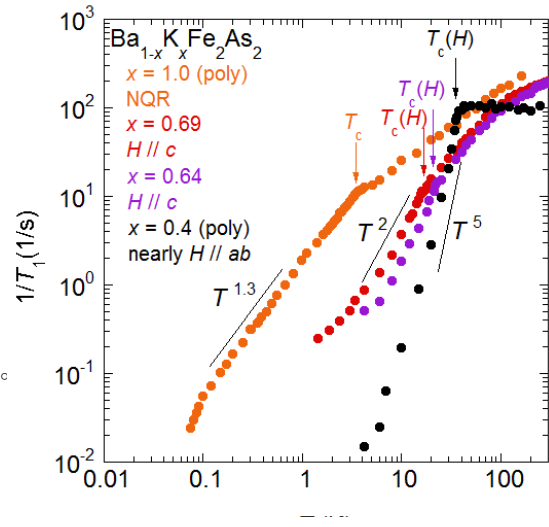


図 4 超伝導状態における $1/T_1$ の温度変化の x 依存性。

以上の研究を遂行するために、

(特に KFe_2As_2 に関して)

アルカリ金属の取扱いが困難なため、 $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ 系においては、K 高濃度側で良質な単結晶が得られていなかった。3年前は世界中のどのグループも作成に成功していなかった。 KFe_2As_2 に関して、純良単結晶の必要性を実感して、産総研グループと千葉大のグループで作成を始めた。結果的に、世界で最初に (K-As) 系の自己フラックスを用いて $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ の良質な単試料を全領域にわたり作製することができた。 KFe_2As_2 のバンド構造、磁性、超伝導物性に関して、千葉大グループが積極的に関わったため、この系に関する共著論文が存在する^{3, 5, 6, 8, 9, 10, 14, 15}。

(3) μSR 実験

$\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ 、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ に関して、理研 RAL、TRIUMF 施設を用いて反強磁性スピンの揺らぎの影響、超伝導状態における磁場侵入長の温度変化の精密測定、ボルテックスの構造に関する研究に取り組んできた。

(3-1) $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ の反強磁性磁気揺らぎの研究

鉄ニクタイト系超伝導体における反強磁性スピンの揺らぎを調べるため、最適ドープ域から過剰ドープ域に対応した良質な多結晶試料 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ($T_c = 27$ K, 23 K, 19 K) を用いて、常伝導領域から超伝導領域における磁気揺らぎの観測を理研-RAL ミュオン施設にて通常の μSR 測定よりも高統計で行った¹³。観測した時間スペクトルを久保-鳥谷部関数と指数

関数の積で解析し、得られた緩和率の温度依存性を図 6 に示す。図 6 には測定したすべての $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ 試料の緩和率と、比較のため同様の測定で得られた $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) の緩和率を示している。LSCO ではスピン相関の発達による緩和率の増大が 100 K 以下で生じるのに対して、 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ではすべての試料で緩和率は温度に依存しない。今回の結果と、中性子非弾性散乱実験、NMR 実験及び光電子分光実験の結果を総合的に判断すると、 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ の超伝導は、磁気揺らぎの効果とマルチバンド構造による両方の効果が重要になっていると考えられる。

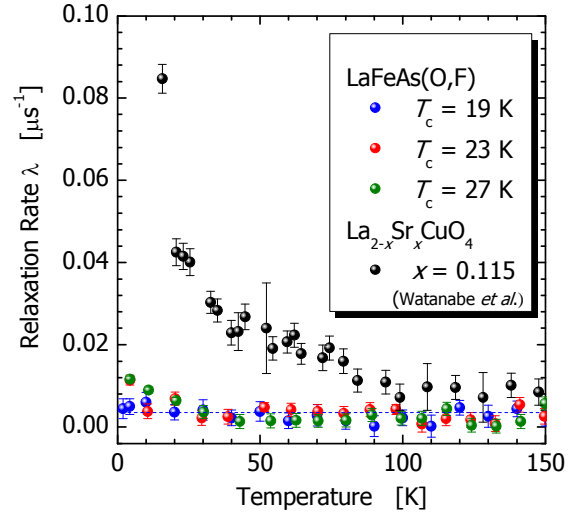


図 5 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ 及び $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ における緩和率 λ の温度依存性。

(3-2) $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ の超伝導ギャップ構造の研究

鉄ヒ素系超伝導体 $(\text{Ba}, \text{K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ の超伝導ギャップ構造は、K 濃度の低い領域では、フルギャップのマルチギャップ構造を有することが示唆されている。一方、K を全置換した KFe_2As_2 では、比熱及び NQR 測定より line node を有するギャップがマルチギャップ構造をとることが示唆され、K 濃度により超伝導ギャップ構造が変化する可能性が提案された。

KFe_2As_2 における超伝導ギャップ構造を調べるため、単結晶試料を用いて磁場侵入長 λ の温度依存性を $H \parallel c$ 及び $H \perp c$ の条件で観測した。まず始めに、 $H \parallel c$ の条件で得られた磁場分布から、磁束格子は三角格子を形成していることが判明した。この結果は、中性子小角散乱実験の結果とも一致する。続いて、図 6 に $H \parallel c$ 及び $H \perp c$ の λ の温度依存性を示

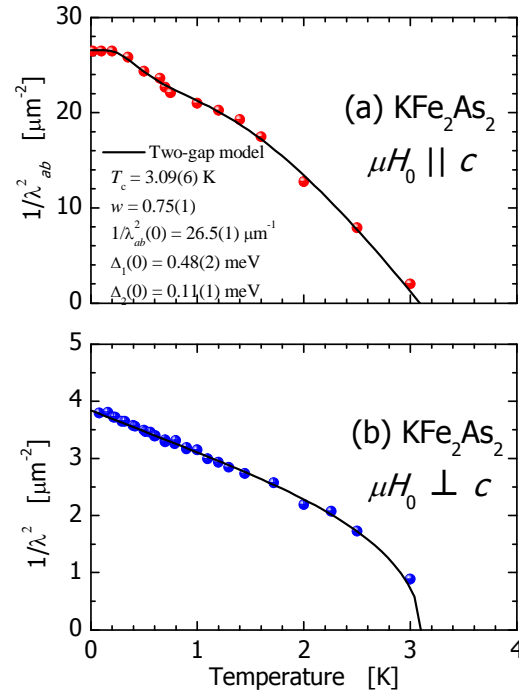


図 6 (a) $H \parallel c$ 及び (b) $H \perp c$ での $1/\lambda^2$ の温度依存性。

す。図より明らかなように、磁場の印可方向によりまったく異なる振る舞いが観測された。すなわち、 $H \parallel c$ ではフルギャップのマルチギャップモデルで温度依存性をよく再現できる一方、 $H \perp c$ では $T < T_c/2$ で T -linear な振る舞いが観測された。これは、line node の存在を示唆する。この結果は、一見矛盾するように思えるが、超伝導ギャップに水平 line node の存在を考慮することにより、すべての実験結果を矛盾なく説明できる。この結果は、水平 line node の存在を実験的に示すことに成功した。

これまでの結果により、超伝導ギャップ構造の変化は、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ の相図で T_c の変化にキックが現れる $x \sim 0.7$ 付近で生じている可能性が示唆された。我々は、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ の超伝導ギャップ構造の K 濃度依存性を調べるため、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($x = 0.27, 0.6, 0.7, 0.94, 1.0$) の単結晶試料を用いて、 $H \parallel c$ の条件で磁場侵入長の温度依存性を観測した。その結果得られた Δ の K 濃度依存性を図 7 に示す。大きいギャップ Δ_1 は K 濃度の増加に伴い減少する一方、小さいギャップ Δ_2 は、 T_c にキックが現れる $x \sim 0.7$ までほぼ一定値をとることが分かった。次に、どの K 濃度で超伝導ギャップ構造が、フルギャップから line node へと変化するのか明らかにするために、 $H \perp c$ の条件で磁場侵入長を測定する必要がある。しかしながら、現状では単結晶試料が雲母状に非常に薄い試料であること、また、 $x = 0.6, 0.7$ では T_c が KFe_2As_2 の $T_c = 3.5 \text{ K}$ に比べて高く、それに伴い H_{c1} の値が大きい ($\sim 0.2 \text{ T}$) ため、現在の μSR 実験装置では、 $H \perp c$ の条件で磁場侵入長を観測することは極めて困難である。今後の実験環境整備もしくは大型の単結晶試料の育成により、K 濃度が中間領域の $(\text{Ba,K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ における超伝導ギャップ構造を明らかにしていく必要がある。

(4) 理論的な取り組みについて

第一原理計算の手法により、 $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ 系超伝導体の $x = 0 \sim 1$ に渡る As サイトの電場勾配の系統的变化や、As 原子の位置との相関が議論され、NMR 実験への有用な示唆を与えた。また、フェルミ面の $x = 0 \sim 1$ に渡る系統的变化が明らかにされた。これらを基に、実験結果の定量的な解釈が進んでいる。さらに、鉄ニクタイト系超伝導物質が、フェルミ面近傍において基本的に電子の数とホール数が等しいセミメタル的状况にあることの意味を、単純化したモデルの数値計算に基づいて検討した。これにより、バンド理論がこの系の電子状態を比較的良好に記述する理由について考察した。

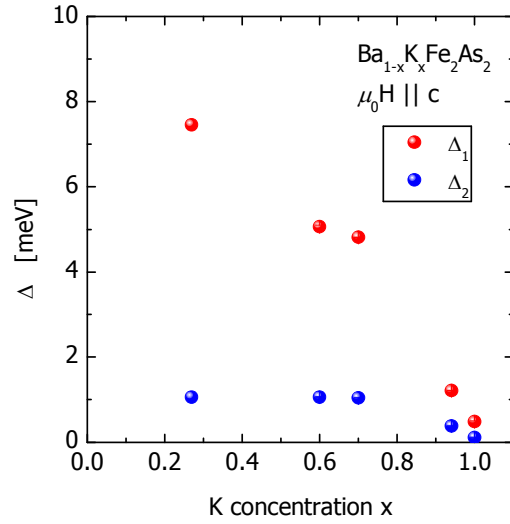


図 7 μSR より得られた $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ の超伝導ギャップの K 濃度依存性。

§ 3. 研究実施体制

(1) 「小堀」グループ (研究機関別)

① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	小堀 洋	千葉大学	教授	H20.10～
	大濱 哲夫	千葉大学	准教授	H20.10～
	深澤 英人	千葉大学	准教授	H20.10～

② 研究項目

鉄ニクタイド化合物超伝導体のNMR/NQRによる研究

(2) 「竹下」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
○	竹下 直	産業技術総合研究所	主任研究員	H20.10～

② 研究項目

超高圧NMR/NQR 実験技術の開発/提供

(3) 「渡邊」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
○	渡邊 功雄	理化学研究所	専任研究員	H21.4～
	石井 康之	理化学研究所	協力研究員	H21.4～
	大石 一城	理化学研究所	基礎科学特別研究員	H21.4～

② 研究項目

鉄ニクタイド化合物超伝導体の μ SRによる研究

(4) 「太田」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
○	太田 幸則	千葉大学	教授	H20.10～
	小西 健久	千葉大学	准教授	H22.4～

② 研究項目

鉄ニクタイド化合物超伝導体の電子状態に関する理論的研究

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

発表総数（発行済：国内（和文） 0件、国際（欧文） 16件）：

1. ⁷⁵As NMR Study of Hole-Doped Superconductor Ba_{1-x}K_xFe₂As₂ (*T_c* ~ 38 K);
H. Fukazawa, T. Yamazaki, K. Kondo, Y. Kohori, N. Takeshita, P. M. Shirage,
K. Kihou, K. Miyazawa, H. Kito, H. Eisaki, and A. Iyo,
J. Phys. Soc. Jpn, **78** (2009) 033704-1-4. 2009年3月
DOI: 10.1143/JPSJ.78.033704

ホールドーブ系Ba_{1-x}K_xFe₂As₂で最も*T_c*の高い*x* = 0.4の多結晶試料において、⁷⁵Asの1/*T₁*の測定をおこない、系が2次元の反強磁性量子臨界点に近い状態にあることを示した。超伝導転移温度直下にコヒーレントピークが存在せず、また低温での温度変化は緩やかである。温度変化はマルチギャップ超伝導として解釈される。
2. Possible Multiple Gap Superconductivity with Line Nodes in Heavily Hole-Doped Superconductor KFe₂As₂ Studied by ⁷⁵As Nuclear Quadrupole Resonance and Specific Heat;
H. Fukazawa, Y. Yamada, K. Kondo, T. Saito, Y. Kohori, K. Kuga, Y. Matsumoto, S. Nakatsuji, H. Kito, P. M. Shirage, K. Kihou, N. Takeshita, C.-H. Lee, A. Iyo, and H. Eisaki;
J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 083712-1-4. 2009年8月
DOI: 10.1143/JPSJ.77.073701

KFe₂As₂が、超伝導ギャップに線状のノードが存在する大きなギャップと非常に小さなギャップから構成されるマルチギャップ超伝導体であることを⁷⁵As-NMRと比熱の測定から示した。
3. Fermi Surface and Mass Enhancement in KFe₂As₂ from de Haas–van Alphen Effect Measurements;
T. Terashima, M. Kimata, N. Kurita, H. Satsukawa, A. Harada, K. Hazama, M. Imai, A. Sato, K. Kihou, C. H. Lee, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, H. Harima, and S. Uji
J. Phys. Soc. Jpn., **79** (2010) 053702-1-4, 2010年5月
DOI: 10.1143/JPSJ.79.053702

残留抵抗の小さな単結晶 KFe₂As₂(RRR>500)を用いて、ドハース・ファンアルフェン信号の測定をおこないホールオーバードープ系である KFe₂As₂ のバンド構造を決定した。バンド計算との比較から、得られた信号はΓ点近傍の重いホールバンドと、X点の近傍の小さなホールポケットに対応する。
4. Appearance of pressure-induced superconductivity in BaFe₂As₂ under hydrostatic conditions and its extremely high sensitivity to uniaxial stress;
T. Yamazaki, N. Takeshita, R. Kobayashi, H. Fukazawa, Y. Kohori, K. Kihou, C. H. Lee, H. Kito, A. Iyo and H. Eisaki
Phys. Rev. B, **81** (2010) 224511-1-5. 2010年6月
DOI: 10.1103/PhysRevB.81.224511

単結晶 BaFe₂As₂ における圧力誘起超伝導に関して、静水圧性の高い状態での相図を15 GPa まで測定し、その結果超伝導は11 GPa 以上の圧力で圧力誘起することを見つけた。また、同じバッチの試料を用いて、小さな一軸性の応力が存在する場合に3 GPa で超伝導が発生することを確かめた。この結果から、BaFe₂As₂ における混沌とした圧力効果が静水圧性の差として整理できる。

5. Comment on “Quantum Criticality and Nodal Superconductivity in the FeAs-Based Superconductor KFe_2As_2 ”;
T. Terashima, M. Kimata, N. Kurita, H. Satsukawa, A. Harada, K. Hazama, M. Imai, A. Sato, K. Kihou, C. H. Lee, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, H. Harima, and S. Uji
Phys. Rev. Lett., 104 (2010) 259701-1. 2010年6月
DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.259701

J. K. Dong *et al.*, による Quantum Criticality and Nodal Superconductivity in the FeAs - Based Superconductor KFe_2As_2 , Phys. Rev. Lett. **104**, 087005 (2010).
へのコメントであり, KFe_2As_2 は量子臨界状態には無い事を指摘した。

6. Evidence for superconducting gap nodes in the zone-centered hole bands of KFe_2As_2 from magnetic penetration-depth measurements;
K. Hashimoto, A. Serafin, S. Tonegawa, R. Katsumata, R. Okazaki, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, H. Ikeda, Y. Matsuda, A. Carrington, and T. Shibauchi
Phys. Rev. B **82** (2010) 014526-1-6 2010年7月
DOI: 10.1103/PhysRevB.82.014526

KFe_2As_2 における磁場侵入長の温度変化から, 超伝導エネルギーギャップに線状のノードが存在することを示した。

7. ^{75}As NMR Study of Hole-Doped Iron-Based Superconductor $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$;
H. Fukazawa, T. Yamazaki, K. Kondo, Y. Yamada, T. Saito, Y. Kohori, N. Takeshita, P. M. Shirage, K. Kihou, K. Miyazawa, H. Kito, A. Iyo, and H. Eisaki
Physica C, 470 (2010) S464-S465. 2010年12月
DOI: 10.1016/j.physc.2009.11.075

$\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ におけるK置換に伴う反強磁性と超伝導の相ははっきりと相分離していることを, ^{75}As -NMRによって明らかにした。存在するのは, 反強磁性常伝導相と常磁性超伝導相であり, 両者は共存しない。

8. Single Crystal Growth and Characterization of the Iron-Based Superconductor KFe_2As_2 Synthesized by KAs Flux Method;
K. Kihou, T. Saito, S. Ishida, M. Nakajima, Y. Tomioka, H. Fukazawa, Y. Kohori, T. Ito, S. Uchida, A. Iyo, C. H. Lee, and H. Eisaki
J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 124713-1-5 2010年12月
DOI: 10.1143/JPSJ.79.124713

良質な KFe_2As_2 単結晶の K-As フラックス法を用いた作製方法と, その基礎的な物性を報告している。この研究により, 初めて KFe_2As_2 の詳細な物性を明らかになった。

9. Incommensurate spin fluctuations in hole-overdoped superconductor KFe_2As_2
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
Phys. Rev. Lett. 106 (2011) 067003 - 1-4 2011年2月
DOI: 10.1103/PhysRevLett.106.067003

KFe_2As_2 において中性子の非弾性散乱の実験をおこない, 逆格子空間の X 点近傍の位置にインコメンシュレートな反強磁性揺らぎの増大が存在することを明らかにした。

10. Quasi-Two-Dimensional Fermi Surfaces and Coherent Interlayer Transport in

KFe₂As₂;

M. Kimata, T. Terashima, N. Kurita, H. Satsukawa, A. Harada, K. Kodama, A. Sato, M. Imai, K. Kihou, C. H. Lee, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, H. Harima, and S. Uji
Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 246403-1-4. 2010年12月
DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.246403

KFe₂As₂における Angular-dependent magnetoresistance oscillations (AMROs)をおこない、特にホール面のバンド構造を詳細に報告している。

11. ⁷⁵As-NMR Study of the Iron Pnictide Ba_{1-x}K_xFe₂As₂ under High Pressure
T. Yamazaki, N. Takeshita, K. Kondoa, R. Kobayashi, Y. Yamada, H. Fukazawa, Y. Kohori, P. M. Shirage, K. Kihou, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo
J. Phys.: Conf. Ser. **215** (2010) 012041-1-4
DOI:10.1088/1742-6596/215/1/012041

BaFe₂As₂に高圧下における、Kをホールドーピングした時の⁷⁹As-NMRの変化について報告した。

12. Pressure and K doping induced superconductivity in BaFe₂As₂
T. Yamazaki, N. Takeshita, R. Kobayashi, T. Saito, Y. Yamada, K. Kondo, M. Hirano, H. Fukazawa, Y. Kohori, K. Kihou, C. H. Lee, H. Kito, A. Iyo and H. Eisaki
J. Phys.: Conf. Ser. **273** (2011) 012096-1-4.
DOI: 10.1088/1742-6596/273/1/012096

BaFe₂As₂に圧力をかけた場合、及びKによりホールドーピングした場合に超伝導が発生する。圧力に関して、特に静水圧性の効果が大きい事、⁷⁵As-NMRの結果に関しては反強磁性揺らぎがKの濃度の増加と共に抑えられている事を報告している。

13. Fast Spin Fluctuation Viewed by Muon Spin Relaxation in Optimally Doped and Overdoped Iron-Based Oxypnictide Superconductors LaFeAsO_{1-x}F_x
K. Ohishi, Y. Ishii, K. Miyazawa, H. Fukazawa, I. Watanabe, Y. Kohori, P. M. Shirage, H. Kito, A. Iyo, and H. Eisaki
J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 024703-1-5. 2011年2月
DOI: 10.1143/JPSJ.80.024703

電子キャリアーをオプティマム及びオーバードープした領域の鉄系超伝導体 LaFeAsO_{1-x}F_xにおいて、電子スピンの揺らぎはμSRの時間スケール(10⁻¹¹s)よりもはるかに速い事を示した。

14. Gap in KFe₂As₂ studied by small-angle neutron scattering observations of the magnetic vortex Lattice;
H. Kawano-Furukawa, C. J. Howell, J. S. White, R. W. Heslop, A. S. Cameron, E. M. Forgan, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, R. Cubitt, C. D. Dewhurst, J. L. Gavilano and M. Zolliker
Phys. Rev. B **84**, (2011) 024507-1-9. 2011年7月
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.024507

単結晶 KFe₂As₂の小角中性子線回折実験をおこない、超伝導ボルテックス格子の構造を調べた。構造は綺麗な hexagonal 格子であり、c-軸方向の線状ノードの存在を存在を否定する。しかし、低温での信号強度の強い変化は小さなギャップの存在を示し、c-軸に垂直なノードの存在を示唆する。

15. Cyclotron Resonance and Mass Enhancement by Electron Correlation in KFe_2As_2 ;
M. Kimata, T. Terashima, N. Kurita, H. Satsukawa, A. Harada, K. Kodama, K. Takehana,
Y. Imanaka, T. Takamasu, K. Kihou, Chul-Ho Lee, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo, H. Fukazawa,
Y. Kohori, H. Harima and S. Uji
Phys. Rev. Lett. **107**, (2011)166402-1-5. 2011 年 10 月
DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.166402

KFe_2As_2 において、サイクロトロン共鳴の実験をおこない、 Γ 点にある2次元 α フェルミ面からの信号を見つけた。得られたサイクロトロン質量の値は自由電子の3.4倍であり、対応するドハース・ファンアルフェン信号から見積もられる値とは異なる。両者の差は、インターバンド、イントラバンド間の電子相関の寄与の差による。

(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

大型の純良単結晶試料が得られるホールドープ系 $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ を中心に的を絞って、産総研グループと協力してNMR・高圧実験をおこなってきた。最初、アルカリ金属の取扱いが困難なために、カリウムの高濃度側で良質な単結晶が育成出来なかった。しかし、現在はK-As系自己フラックスを採用することによって良質な大型単結晶が得られ、基礎的な物性の測定が可能になっている。 $^{29}\text{As-NMR}$ をおこなうと、K濃度の増大に伴ってホール面の状態密度が増大し、また全領域でストライプ型の反強磁性スピン揺らぎが存在することが明らかになった。鉄系の複雑なバンド構造を反映し、マルチギャップ構造の超伝導が発生している。 KFe_2As_2 について、超伝導ギャップに線状のノードを持つ大きなギャップと非常に小さなギャップが共存するマルチギャップ超伝導体であることを最初に指摘した。 BaFe_2As_2 の構造/磁気転移は圧力の質(静水圧性)に非常に敏感である。そのために、静水圧性が高い場合には、10 GPa以上の圧力、少し不均一な条件では3 GPaから圧力誘起超伝導が発生する。

本研究は、鉄系高温超伝導体の基礎物性を探索して、どのような相互作用が本超伝導体の発生機構の原因かを追求している状況にある。超伝導転移温度の高い場合、特に銅酸化物超伝導体より転移温度が高ければ社会的に大きなインパクトがある。現実には難しいところであるが、地道な発生機構の解明が次のイノベーションにつながると考えている。

(5-2) その他

JST-TRIP をふり返ってみて、鉄系超伝導研究の展開が速いのが特徴です。特に物質開発で展開が速く、中国が近年力を付けているのには驚かされます。その意味で、JST-TRIP の開始が、細野先生の「鉄系新物質の発見」から半年目の10月から開始されたのは英断であったと考えます。

次年度から開始する時間的な余裕は無かったです。他の TRIP 班との共同研究も盛んに行われており、全体的には上手く運営されていたと感じております。出来れば、JST-TRI の規模がもう少し大きくて参加人数が多ければ、より活発な展開があったと考えています。