

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「量子ビームによる鉄系高温超伝導の物性研究」

研究終了報告書

氏名 社本 真一

所属・役職 (独)日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門・研究主席

§ 1. 研究実施の概要

(1) 実施概要

当チームはこれまでに発見された鉄系超伝導体のなかで、もっとも高い超伝導転移温度 $T_c=55$ K が見つかっている LnFeAs(O,F)系 (Ln;ランタニド元素)を主な対象として、中性子と放射光X線を横断的に利用することで、鉄系超伝導体とその母相を含めた関連物質の結晶構造、電子状態ならびに原子間、スピン間および電子間の相互作用の強さについて、理論計算との比較からその本質を明らかにし、類似構造で超伝導体が多く見つかっている重い電子系との比較を目指すとともに、アクチノイド化合物を含めた物質探索と単結晶育成を進めた。

放射光X線での非共鳴非弾性散乱による LaFeAsO_{1-x}F_x 粉末試料および PrFeAsO_{1-y} 単結晶試料のフォノン測定ではFe-Asの格子振動に第一原理計算との間に顕著な違いがあることを発見した¹⁾。また中性子非弾性散乱による磁気励起測定では、LaFeAsO_{1-x}F_x系の高品質の粉末試料を用いた系統的研究から、母相および高い T_c の超伝導相で見えたスピン揺らぎが、フッ素濃度の高いオーバードープ試料 ($x=0.16$; $T_c \sim 7$ K)でなくなることがわかった³⁰⁾。一方、超伝導相の磁気励起にはレゾナンス的な振舞が観測された^{30,39)}。また超伝導ギャップにノードをもつ BaFe₂As_{1.3}P_{0.7} ($T_c=30$ K)でも同様な現象が観測され、理論との比較から同一のフェルミ面内のわずかな部分の符号反転で説明可能であることがわかった⁶⁵⁾。

鉄系超伝導体では第一原理計算が有用であり、多くの知見が得られている。我々のチームでも理論的な解析から構造と T_c との強い相関を、水素吸蔵鉄系超伝導体を例として示した⁶⁷⁾が、これは中性子回折による PrFeAsO_{1-x}F_xと PrFeAsO_{1-y}の系統的な結晶構造解析の結果とも一致し、この系ではドーピングしたキャリア数自身は、モット絶縁体とは対照的にあまり重要なパラメータではないことがわかった⁶¹⁾。このことは母相で複数個のフェルミ面があることと整合している。

また鉄 K 吸収端における共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) スペクトル測定を行い⁴³⁾、理論計算結果と比較することによって、RIXS スペクトルが電子間斥力 ($U \sim 3$ eV)の大きさや局所的な反強磁性磁気相関を反映していることを明らかにした。

放射光X線を用いた核共鳴散乱法では、母物質 AFe₂As₂ (A=Sr, Eu)の⁵⁷Fe核共鳴非弾性散乱スペクトルの温度依存性を測定し、鉄元素を選択してフォノン状態密度を抽出した。その結果、特定の光学振動モードの異常が、正方晶構造下での低温相斜方晶構造の局所的揺らぎに対応していることが示された。

5 バンドのタイトバインディング模型にオンサイトの電子間相互作用を導入したモデルミルトニアンから出発し、平均場近似によって反強磁性秩序状態の秩序パラメータを決定した¹⁷⁾。非磁性状態と磁気秩序状態のバンド構造を計算し、バンド間遷移による面内光学伝導度を求めた⁶⁰⁾。実験と同じ磁気モーメントを持つ磁気秩序状態では、実験で観測されているような低エネルギー領域での励起ピークが現れることを確認した。また、反強磁性秩序状態で特定の波数方向に生じるディラック型分散の形状と特徴を明らかにするとともに、ディラック分散の存在に伴う伝導特性の特徴¹⁷⁾や、バンド間遷移による面内光学伝導度の異方性の起源を解明した⁶⁰⁾。

アクチノイド系の物質探索では、U-T-Al三元系 (T:鉄族元素)において新物質を発見した。

URu₂Al₁₀ は斜方晶 YbFe₂Al₁₀ 型結晶構造をとる。ウラン化合物としては非常に珍しく、結晶場励起が観測された。

(2) 顕著な成果

① PrFeAsO_{1-y} 単結晶のフォノン分散¹⁾

概要: Fe-As のフォノン振動のみが、第一原理計算から予想されるエネルギーより見かけ上ソフト化していることを見出した¹⁾。また鉄系超伝導体で単結晶を用いたフォノン測定に世界で初めて成功した¹⁾。この成果は単結晶育成グループ、放射光非弾性 X 線散乱グループに加えて、理論チームが加わったことで初めて実現できた成果である。

② 反強磁性秩序状態の秩序パラメータの決定¹⁷⁾

概要: バンドのタイトバインディング模型にオンサイトの電子間相互作用を導入したモデルハミルトニアンから出発し、平均場近似によって反強磁性秩序状態の秩序パラメータを決定した。この結果は、NPG Nature Asia Materials research highlight に掲載された。

③ LaFeAsO_{1-x}F_x 系オーバードープ試料での磁気揺らぎの消失³⁰⁾

概要: LaFeAsO_{1-x}F_x 粉末試料 $x=0.06$ および 0.08 の超伝導相 ($T_c > 24$ K) で、母相のスピンドensity波相と同程度のスピンドensity揺らぎの散乱強度が残る一方で、 $x=0.16$ の $T_c \sim 7$ K のオーバードープ試料ではそのスピンドensity揺らぎが見えなくなったことから、スピンドensity揺らぎと高い T_c との相関が明らかになった。これは超伝導の対称性の変化も示唆している。

§ 2. 研究実施内容

鉄系でもっとも高い T_c が見つかっている LnFeAs(O,F)系 (ここでの Ln は中性子で吸収の小さい La および Pr) を中心として、中性子と放射光 X 線を横断的に利用することで、キャリア濃度依存性を含めて、結晶構造、電子状態ならびに原子間、スピン間および電子間の相互作用の強さについて、理論計算との比較から明らかにすることを目的として研究を行った。

PrFeAsO_{1-y} 系の単結晶にいち早く成功した²⁰⁾ことで、京大松田研との共同研究として、磁場侵入長の温度変化から、この超伝導がフルギャップの超伝導体であることを示した⁴⁾。またこの結晶で SPring-8 の BL35XU にて非共鳴 X 線非弾性散乱法により、鉄系超伝導体で初めての単結晶のフォノン測定に成功した¹⁾。LaFeAsO_{1-x}F_x、PrFeAsO_{1-y} 粉末試料を用いたフォノン状態密度の測定から始め、その後 PrFeAsO_{1-y} 単結晶を用いたフォノン分散関係の測定を行い、町田グループの第一原理計算によるフォノン分散と比較してきた。Fe-As 振動に関連するフォノン分散で第一原理計算との違いが明確に観測され¹⁾、磁性を考慮した計算を行なう事により一部説明された。しかしそれは完全ではなく、修正モデルをたてる事で二通りの説明(クリップモデルと面内ソフトモデル)ができる事を明らかにした⁷⁴⁾(図1)。また母相でスピンドensity波などの磁気秩序相のない LaFePO_{1-y} においても同様の実験と理論計算との差が観測され、これは鉄系化合物に一般的な性質であるこ

とを見いだした。

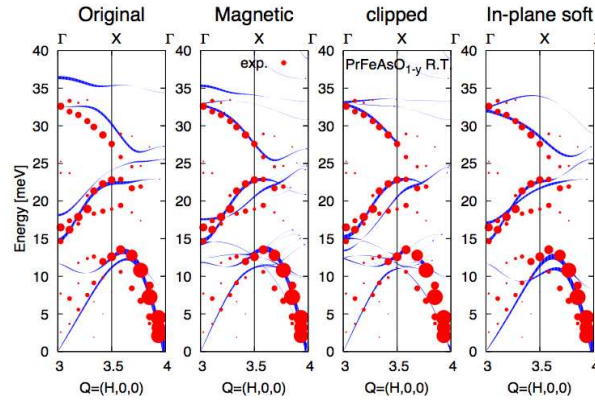


図1. <100>方向縦波フォノン分散関係。

赤丸は測定結果(面積 \propto ピーク強度)、青線は第一原理・モデル計算(線幅 \propto ピーク強度)。左から、磁気モーメントなし/ありの第一原理計算、クリップモデル、面内ソフトモデルとの比較。

中性子非弾性散乱により $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ 粉末試料を測定した結果、 $x=0.057$ および 0.082 の超伝導転移温度 T_c が 24 K 以上の超伝導相で、母相のスピンドensity波 (SDW) 相⁶⁾と同程度のスピンドensity揺らぎの散乱強度が残る一方で、 $x=0.158$ の $T_c \sim 7\text{ K}$ のオーバードープ試料では、その散乱強度がなくなることがわかった³⁰⁾。これはフッ素ドーピングという電子ドーピングにより、ホールのフェルミ面が消失したことで理解される。すなわち、ネスティング条件のない組成では、スピンドensity揺らぎはなく、そのような領域でも超伝導は消えないものの、 T_c は十分に抑制されたことになる。このことは鉄系超伝導においてスピンドensity揺らぎが非常に重要なことを示唆しており、また同時にオーバードープ領域では超伝導ギャップの対称性が変わることも示唆する。ここで強調したい点は、我々は試料のフッ素濃度を定量的にいち早く評価した点であり、また用いた超伝導体試料は十分なマイスナー体積分率を示すことである。同様な現象は $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ でも見つかった。また T_c 以下では超伝導オーダーパラメーターの発達に伴い、一般にスピンドensityレゾナンスと呼ばれるピークが磁気散乱に現れる。この変化は $x=0.057$ および 0.082 の両方で観測され、約2倍に増大した^{30, 39)}。この現象は鉄系超伝導体で普遍的に観測され、この系でもその磁気散乱ピークエネルギー E_{res} は T_c とよくスケール ($E_{\text{res}} \sim 4.6k_B T_c$) することがわかった³⁹⁾。これらのことも、スピンドensity揺らぎと T_c との強い相関を表している。またラインノードを持ちながら比較的高い T_c ($=30\text{ K}$) をもつ $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.65}\text{P}_{0.35})_2$ も調べたところ、このスピンドensityレゾナンスは他の高い転移温度の超伝導体と同じ散乱波数 Q でかつ同程度のエネルギーで、と多少小さい約1.7倍の増大を示した⁶⁵⁾。スピンドensity揺らぎによる超伝導を仮定した理論計算との比較からは、このことは2つのフェルミ面間で多くのフェルミ面領域で符号反転していると理解でき、このことがラインノードにも関わらず T_c が高い原因であると言える⁶⁵⁾。

鉄系超伝導体の特徴として、磁気秩序相である母相に、電子をドーピングしても、ホールをドーピングしても超伝導が観測され、さらに圧力下でも観測されることから、ドーピングの役割を再検証する目的で、高い T_c が観測されている $\text{PrFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ と PrFeAsO_{1-y} というフッ素と酸素欠損という2種類の

ドーピングの役割を中性子回折による結晶構造解析で調べた。その過程で、同じ母相でも常圧と高压で合成される相の常圧での格子定数が異なることを発見した⁶¹⁾。二つの相でわずかな構造の違いがあるものの、両者を比較すると、 T_c は鉄の有効価数 ($2 + \delta$) との相関がなく、むしろ As-Fe-As の結合角 α や鉄平面からのヒ素高さ h_{As} と良い相関にあることがわかった⁶¹⁾。このことは圧力効果とも関連し、この系の T_c がキャリア濃度よりも構造に敏感である特徴をよく示している。この系では母相で複数個のフェルミ面があることからわかるように、ドーピングしたキャリア数自身は、モット絶縁体とは対照的にあまり重要なパラメータではない。このような構造と T_c との強い相関は、第一原理計算から水素吸蔵鉄系超伝導体でも示された⁶⁷⁾。またこれまでに見つかった多くの鉄系超伝導体の電子状態を系統的に調べ、 Γ 点とM点での複数の2次元的なフェルミ面の存在という共通の類似性があることを確認している(図2)²²⁾。このようなマルチバンド特有の特徴として、量子トンネル効果のトンネル確率が極めて大きく増強されることを見出した⁶²⁾。

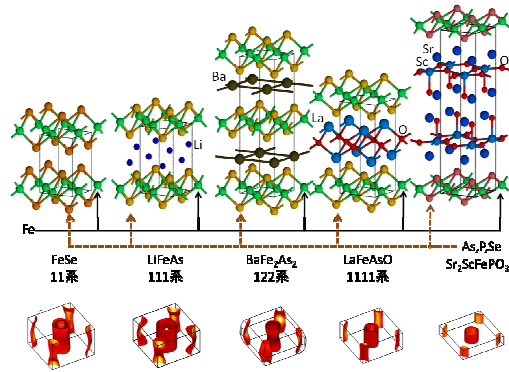


図2. 鉄系超伝導の結晶構造(上)と電子状態を表すフェルミ面の構造(下)²²⁾。

鉄系高温超伝導体のフェルミ面はマルチバンドであるとともに、主に鉄の $3d$ 軌道からなる複数の軌道が重要な役割を担っている。このような系においては、単に同一軌道のクーロン相互作用 U に加えて、異軌道間のクーロン相互作用 U' やフント結合 J の効果を考える必要がある。そこで電子励起の観測を通して、多軌道効果、及び電子間の相互作用を理解することを目的として、アンダードーピング領域にある $\text{PrFeAsO}_{0.7}$ ($T_c = 42$ K) の単結晶を用いて、鉄のK吸収端の共鳴非弾性X線散乱(RIXS)実験を行った⁴³⁾。この手法により、 U や J と同じエネルギースケールにある電荷励起スペクトルを運動量分解した形で得ることができる。また、実験で得られたスペクトルと比較するために、鉄の $3d$ 軌道と砒素の $4p$ 軌道を考慮した16バンド dp 模型⁷⁾を用いて乱雑位相近似(RPA)の範囲で電子相関の効果を取り入れた RIXS スペクトルの理論計算も合わせて行った。鉄 $3d$ 電子間のクーロン斥力パラメータを $U=3$ eV として、反強磁性(ストライプ的な反強磁性)状態を仮定することで、実験結果と概ね良い一致を得ることができた(図3)。これは、第一原理計算などから見積もられる値と概ね一致する。このことは、RIXS スペクトルが局所的な反強磁性の相関を反映していることを意味している。また、励起過程における電子相関の効果調べるために、RPAによる補正のない単純なバンド間散乱のみのスペクトルを計算したが、実験結果を説明することが

できないことが明らかになった。これによって、鉄 3d 電子の電子相関効果が RIXS の電子励起過程において重要な役割を果たしていることを示した。

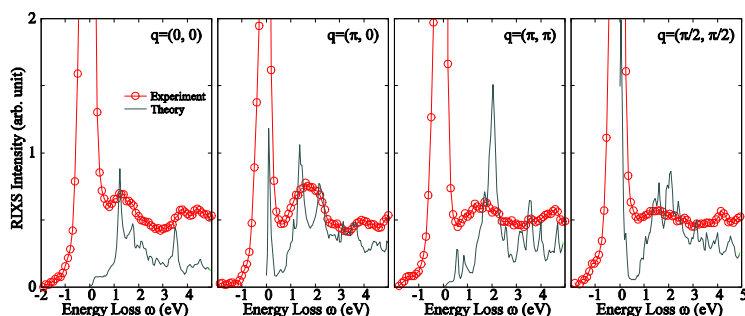


図3. RIXS スペクトルの実験結果(○)と理論計算結果(—)の比較。 q は光子の波数変化。基底状態として反強磁性状態を仮定した。電子間のクーロン積分は $U=3$ eV, $U'=1.8$ eV, $J=J'=0.6$ eV である。

関連する電子状態の計算として、5 バンドのタイトバインディング模型にオンサイトの電子間相互作用を導入したモデルミルトニアンから出発し、平均場近似によって反強磁性秩序状態の秩序パラメータを決定した¹⁷⁾。それに基づいて、非磁性状態と磁気秩序状態のバンド構造を計算し、バンド間遷移による面内光学伝導度を求めた¹⁷⁾。実験と同じ磁気モーメントを持つ磁気秩序状態では、実験で観測されているような低エネルギー領域での励起ピークが現れることを確認した。一方、第一原理計算と同じ磁気モーメントを持つ磁気秩序状態では実験を再現できないことがわかった。また、フェルミ面の形状を確認するため、面内磁場の角度を変化させた面間磁気抵抗実験の提案を行った¹⁶⁾。反強磁性秩序状態で特定の波数方向に生じるディラック型分散の形状と特徴を明らかにするとともに、ディラック分散の存在に伴う伝導特性の特徴や¹⁷⁾、バンド間遷移による面内光学伝導度の異方性の起源を解明した⁶⁰⁾。反強磁性秩序状態でのスピンおよび電荷励起を乱雑位相近似で計算し、非弾性中性子散乱実験と一致するスピン励起構造を得た³⁸⁾。さらに、鉄 L 端共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルをスピンおよび電荷感受率を用いて計算し、単一マグノン観測の可能性とスピン反転軌道励起の存在を確認し、実験に対する提案を行った⁷⁶⁾。

放射光X線を用いた核共鳴散乱法では、母物質 $A\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($A=\text{Sr}, \text{Eu}$) の ^{57}Fe 核共鳴非弾性散乱スペクトルの温度依存性を測定し、鉄元素を選択してフォノン状態密度を抽出した。その結果、特定の光学振動モードの温度依存性がSDW相転移温度の約 1.25 倍高い温度から異常を示すことが分かった。さらに、この光学振動モードの状態密度の異常は、正方晶構造下での低温相斜方晶構造の局所的揺らぎに対応していることが示された⁷⁵⁾。高圧力下 EuFe_2As_2 の ^{57}Fe メスバウアー分光と ^{57}Fe 核共鳴非弾性散乱測定を行った。その結果得られた超微細相互作用定数、光学振動モードのエネルギーや音速の圧力依存性が約 2.4 GPa で異常を示すことが分かった。当グループのフォノン第一原理計算結果と比較することにより、これらの圧力依存性の異常は、Fe 電子状態と c 軸方向の As-As 間の混成の変化に対応していることが示された。さらに、この Fe 電子

状態とAs-As間の混成の変化が、低温で起こる AFe_2As_2 の圧力誘起超伝導状態と関係していることが示唆された。

アクチノイド化合物を含めた物質探索では、アクチノイド(An)三元系化合物についてフラックス法による探索を行った。その結果、新たに斜方晶 $YbFe_2Al_{10}$ 型結晶構造を持つ URu_2Al_{10} 、 UOs_2Al_{10} 及び同型のTh化合物が存在する事を見いだした。また、U-Pt-Al系でも新物質の単結晶育成に成功しており、結晶構造解析からU-Alが相互に置換し合う複雑な構造を持つ事がわかり、解析を進めている。これらの中で、 URu_2Al_{10} 及び UOs_2Al_{10} では単結晶による物性測定が進展し、ウラン化合物としては非常に珍しく、結晶場効果が顕著に現れる事がわかった。また、ZrCuSiAs構造をとるUCuPO及びThCuPO単結晶の物性測定を行い、強い一軸磁気異方性を明らかにした³¹⁾。ThCr₂Si₂型結晶構造をとる重い電子系超伝導体 URu_2Si_2 の高純度単結晶を育成し、その伝導特性を詳細に調べた。超伝導転移温度直上の電気抵抗の振舞いは、フェルミ流体的挙動からずれる事を明らかにした。電気抵抗の振舞い、及び超伝導転移温度は圧力下で顕著に変化するが、両者が密接に関連している事を明らかにした。

§ 3. 研究実施体制

(1)「原子力機構」グループ(研究機関別)

① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	社本 真一	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究主席 (ユニット長)	H20.10～ H24.3
	樹神 克明	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究副主幹	H20.10～ H24.3
	脇本 秀一	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究副主幹	H20.10～ H24.3
	松田 雅昌	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究主幹	H20.10～ H22.3
*	石角 元志	(財)総合科学研究機構 東海事業センター	技術員	H21.4～H24.3
	Mohammad Ferdows	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	博士研究員	H21.11～ H22.11
	加倉井 和久	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	副部門長	H20.10～ H24.3
	梶本 亮一	(財)総合科学研究機構 東海事業センター	次長	H20.10～ H24.3
	新井 正敏	(独)日本原子力研究開発機構 J-PARC センター	ディビジョン長	H20.10～ H24.3
	福田 竜生	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究員	H20.10～ H24.3
	水木 純一郎	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	副部門長	H20.10～ H24.3

	Jarrige Ignace	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究員	H20.10～ H24.3
	石井 賢司	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究副主幹	H20.10～ H24.3
	小林 寿夫	兵庫県立大学大学院物質理学研究科	教授	H22.4～H24.3
	池田 修悟	兵庫県立大学大学院物質理学研究科	助教	H22.4～H24.3
	山本 悦嗣	(独)日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター	研究副主幹	H20.10～ H24.3
	松田 達磨	(独)日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター	研究員	H20.10～ H24.3
	酒井 宏典	(独)日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター	研究員	H20.10～ H24.3
	芳賀 芳範	(独)日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター	研究主幹	H20.10～ H24.3
	中村 博樹	(独)日本原子力研究開発機構システム計算科学センター	研究員	H20.10～ H24.3
	永井 佑紀	(独)日本原子力研究開発機構システム計算科学センター	研究員	H20.10～ H24.3
	町田 昌彦	(独)日本原子力研究開発機構システム計算科学センター	室長	H20.10～ H24.3
	妹尾 仁嗣	(独)理化学研究所基幹研究所	研究員	H20.10～ H22.3
	野村 拓司	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究員	H20.10～ H24.3
	坂井 徹	(独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門	研究主幹	H20.10～ H24.3
	遠山 貴巳	京都大学基礎物理学研究所	教授	H20.10～ H24.3
	安岡 弘志	(独)日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター	客員研究員	H20.10～ H24.3

② 研究項目

良質の単結晶育成や粉末の試料合成、物質開発(石角、社本、山本悦、松田達、酒井、芳賀、安岡)を行い、それを用いて中性子散乱(石角、脇本、梶本、樹神、社本、新井、加倉井)と SPring-8 の X 線散乱(福田、Jarrige、石井、小林、池田、水木)という最先端の量子ビームを利用して理研のグループと協力して、鉄系高温超伝導体関連物質のフォノン測定、磁気散乱測定を行った。また中性子回折実験による構造解析や共鳴 X 線散乱実験を行い、また同時にこれらの実験の計算機実験や理論解析(中村、永井、町田、野村、坂井、遠山、Ferdows)を行った。このように鉄系高温超伝導体およびその関連物質を、格子、電子またはスピンの主にダイナミクスの観点から明らかにすることを目指した。

(2)「理研」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
○	BARON, Alfred	(独)理化学研究所播磨研究所	准主任研究員	H20.10~H24.3
	加藤 健一	(独)理化学研究所播磨研究所	研究員	H20.10~H24.3

② 研究項目

鉄系高温超伝導体およびその関連物質について、SPring-8の放射光 X 線という最先端の量子ビームを利用して鉄系高温超伝導体のフォノン分散(Baron)と電子分布(加藤)を明らかにすることを目指した。

§ 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) 78 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

*

1. T. Fukuda, A. Baron, S. Shamoto, M. Ishikado, H. Nakamura, M. Machida, H. Uchiyama, S. Tsutsui, A. Iyo, H. Kito, J. Mizuki, M. Arai, H. Eisaki, H. Hosono, “Lattice Dynamics of $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ and PrFeAsO_{1-y} via Inelastic X-Ray Scattering and First-Principles Calculation”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 77 (2008) 103715. (doi:10.1143/JPSJ.77.103715).
Fe-As のフォノン振動のみが、第一原理計算から予想されるエネルギーより見かけ上ソフト化していることを初めて見出した。また単結晶を用いた測定にも世界で初めて成功した。この成果は単結晶育成チーム、放射光非弾性 X 線散乱チームに加えて、理論チームが加わったことで初めて実現できた成果である。
2. Takatoshi Nomura, Sung Wng Kim, Yoichi Kamihara, Masahiro Hirano, Peter V. Sushko, Kenichi Kato, Masaki Takata, Alexander L. Shluger, Hideo Hosono, “Crystallographic Phase Transition and High-Tc Superconductivity in LaFeAsO:F ”, *Supercond. Sci. Technol.* 21 (2008) 125028. doi:10.1088/0953-2048/21/12/125028
3. Yuki Nagai, Nobuhiko Hayashi, Noriyuki Nakai, Hiroki Nakamura, Masahiko Okumura, Masahiko Machida, “Nuclear magnetic relaxation and superfluid density in Fe-pnictide superconductors: An anisotropic \pm s-wave scenario”, *New J. Phys.* 10, 103026-1-17 (2008).

doi:10.1088/1367-2630/10/10/103026

4. K. Hashimoto, T. Shibauchi, T. Kato, K. Ikada, R. Okazaki, H. Shishido, M. Ishikado, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, and Y. Matsuda, “Microwave Penetration Depth and Quasiparticle Conductivity of PrFeAsO_{1-y} Single Crystals: Evidence for Full-Gap Superconductivity”, *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 017002. DOI:10.1103/PhysRevLett.102.017002
5. R. Okazaki, M. Konczykowski, C. J. van der Beek, T. Kato, K. Hashimoto, M. Shimozawa, H. Shishido, M. Yamashita, M. Ishikado, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, “Lower critical fields of superconducting PrFeAsO_{1-y} single crystals”, *Phys. Rev. B* **79** (2009) 064520. DOI:10.1103/PhysRevB.79.064520
6. M. Ishikado, R. Kajimoto, S. Shamoto, M. Arai, A. Iyo, K. Miyazawa, P. M. Shirage, H. Kito, H. Eisaki, S.-W. Kim, H. Hosono, T. Guidi, R. Bewley, S. M. Bennington, “Two-dimensional Spin Density Wave State in LaFeAsO ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol. 78, No. 4, (2009) 043705. DOI: 10.1143/JPSJ.78.043705
7. T. Nomura, “Perturbation Theory of High-Tc Superconductivity in Iron Pnictides”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 034716 (2009). DOI: 10.1143/JPSJ.78.034716
8. H. Nakamura, N. Hayashi, N. Nakai, M. Okumura, M. Machida, “First-principle electronic structure calculations for magnetic moment in iron-based superconductors: An LSDA + negative U study”, *Physica C* **469**, 908 (2009). doi:10.1016/j.physc.2009.05.096
9. H. Nakamura, N. Hayashi, N. Nakai, M. Machida, “First-principle calculation for the phonon structure on iron-based superconductors”, *Physica C* **469**, 1024 (2009). doi:10.1016/j.physc.2009.05.178
10. H. Nakamura, M. Machida, T. Koyama, N. Hamada, “First-Principles Study for the Anisotropy of Iron-Based Superconductors toward Power and Device Applications”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 123712 (2009). DOI: 10.1143/JPSJ.78.123712
11. H. Nakamura, M. Machida, “First-principles calculations of the effect of pressure on the iron-based superconductor LaFeAsO ”, *Phys. Rev. B* **80**, 165111 (2009). DOI: 10.1103/PhysRevB.80.165111
12. M. Okumura, N. Nakai, H. Nakamura, N. Hayashi, S. Yamada, M. Machida, “Exact Diagonalization Studies on Two-Band Minimal Model for Iron-Based Superconductors”, *Physica C* **469**, 932 (2009). doi:10.1016/j.physc.2009.05.102
13. Y. Ota, M. Machida, T. Koyama, “Inter-grain Josephson Currents in Multi-gap Superconductors: A Microscopic Origin of Low Inter-grain Critical Current and Its Recovery Potential in Iron-pnictide Materials”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 103701 (2009). DOI: 10.1143/JPSJ.78.103701
14. Y. Ota, M. Machida, T. Koyama, H. Matsumoto, “Theory of Heterotic

- Superconducting-insulator-superconducting Josephson Junctions between Single- and Multi-gap Superconductors”, *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 237003 (2009). DOI:10.1103/PhysRevLett.102.237003
15. Y. Nagai and N. Hayashi, "Surface Bound States in n-band Systems with Quasiclassical Approach", *Phys. Rev. B* 79 224508 (2009). DOI:10.1103/PhysRevB.79.224508
 16. T. Morinari, H. Nakamura, M. Machida and T. Tohyama, "Effect of Fermi Surface Topology on Inter-Layer Magnetoresistance in Layered Multiband Systems: Application to $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* 78, 114702(1-7) (2009), DOI: 10.1143/JPSJ.78.114702
- *
17. E. Kaneshita, T. Morinari and T. Tohyama, "Modeling the Antiferromagnetic Phase in Iron Pnictides: Weakly Ordered State", *Phys. Rev. Lett.* 103, 247202(1-4) (2009), DOI:10.1103/PhysRevLett.103.247202
 バンドのタイトバインディング模型にオンサイトの電子間相互作用を導入したモデルハミルトニアンから出発し、平均場近似によって反強磁性秩序状態の秩序パラメータを決定し、NPG Nature Asia Materials research highlight に掲載された。
 18. P. M. Shirage, K. Miyazawa, M. Ishikado, K. Kihou, C. H. Lee, N. Takeshita, H. Matsuhata, R. Kumai, Y. Tomioka, T. Ito, H. Kito, H. Eisaki, S. Shamoto, and A. Iyo, "High-pressure synthesis and physical properties of new iron(nickel)-based superconductors", *Physica C: Special Edition on Superconducting Pnictides*, 469, 9-12, (2009) 355-369. DOI: 10.1016/j.physc.2009.03.027
 19. Kiichi Miyazawa, Kunihiro Kihou, Motoyuki Ishikado, Parasharam M. Shirage, Chul-Ho Lee, Nao Takeshita, Hiroshi Eisaki, Hijiri Kito, and Akira Iyo, "Synthesis of LnFeAsO_{1-y} superconductors ($\text{Ln}=\text{La}$ and Nd) using high-pressure technique", *New Journal of Physics*, 11 045002 (2009). doi:10.1088/1367-2630/11/4/045002
 20. M. Ishikado, S. Shamoto, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, T. Ito, Y. Tomioka, Growth of Single Crystal PrFeAsO_{1-y} and its Characterization”, *Physica C* 469 (2009) 901–904, DOI: 10.1016/j.physc.2009.05.094.
 21. Takatoshi Nomura, Yasunori Inoue, Satoru Matsuishi, Masahiro Hirano, Jung Eun Kim, Kenichi Kato, Masaki Takata, Hideo Hosono, "Comparison of crystal structures and the effects of Co substitution in a new member of the Fe-1111 superconductor family AeFeAsF ($\text{Ae} = \text{Ca}$ and Sr): a possible candidate for a higher- T_c superconductor”, *Supercond. Sci. & Tec.* 22-5, 055016 (2009), DOI: 10.1088/0953-2048/22/5/055016.
 22. H. Nakamura, M. Machida, "Highly Two-dimensional Electronic Structure and Strong Fermi-Surface Nesting of the Iron-Based Superconductor $\text{Sr}_2\text{ScFePO}_3$: A First-Principles Study”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 013705 (2010). DOI: 10.1143/JPSJ.79.013705
 23. Y. Kamihara, T. Nomura, M. Hirano, J.-E Kim, K. Kato, M. Takata, Y. Kobayashi, S. Kitao, S.

- Higashitaniguchi, Y. Yoda, M. Seto, H. Hosono, "Electronic and magnetic phase diagram of superconductors, $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ", *New J. Phys.* **12**, 033005 (2010), DOI: 10.1088/1367-2630/12/3/033005.
24. T. Morinari, E. Kaneshita and T. Tohyama, "Fermi surface topology effect on interlayer magnetoresistance with in-plane magnetic field in layered multiband system: Application to FeAs-based superconductors", *Physica C* **420**, 95-97 (2010). DOI: 10.1016/j.physc.2009.10.062
25. S. Ishida, M. Nakajima, Y. Tomioka, T. Ito, K. Miyazawa, H. Kito, C. H. Lee, M. Ishikado, S. Shamoto, A. Iyo, H. Eisaki, K. M. Kojima, S. Uchida, "Strong carrier-scattering in iron-pnictide superconductors with highest T_c obtained from charge transport experiments", *Phys. Rev. B* **81**, 094515 (2010). doi:10.1103/PhysRevB.81.094515
26. H. Kashiwaya, K. Shirai, T. Matsumoto, H. Shibata, H. Kambara, M. Ishikado, H. Eisaki, Y. Iyo, S. Shamoto, I. Kurosawa, and S. Kashiwaya, "C-axis critical current of a $\text{PrFeAsO}_{0.7}$ single crystal", *Appl. Phys. Lett.* **96**, 202504 (2010). [doi:10.1063/1.3427464]
27. C. J. van der Beek, G. Rizza, M. Konczykowski, P. Fertey, I. Monnet, Thierry Klein, R. Okazaki, M. Ishikado, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, M. E. Tillman, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Flux pinning in $\text{PrFeAsO}_{0.9}$ and $\text{NdFeAsO}_{0.9}\text{F}_{0.1}$ superconducting crystals", *Phys. Rev. B* **81**, 174517 (2010). DOI: 10.1103/PhysRevB.81.174517.
28. Y. Ota, N. Nakai, H. Nakamura, M. Machida, D. Inotani, Y. Ohashi, T. Koyama, and H. Matsumoto, "Ambegaokar-Baratoff relations of Josephson critical current in heterotic junctions with multigap superconductors", *Phys. Rev. B* **81**, 214511 (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevB.81.214511)
29. T. Morinari, E. Kaneshita and T. Tohyama, "Topological and Transport Properties of Dirac Fermions in an Antiferromagnetic Metallic Phase of Iron-Based Superconductors", *Phys. Rev. Lett.* **105**, 037203 (1-4) (2010). DOI:10.1103/PhysRevLett.105.037203
- ***
30. Shuichi WAKIMOTO, Katsuaki KODAMA, Motoyuki ISHIKADO, Masaaki MATSUDA, Ryoichi KAJIMOTO, Masatoshi ARAI, Kazuhisa KAKURAI, Fumitaka ESAKA, Akira IYO, Hijiri KITO, Hiroshi EISAKI, and Shin-ichi SHAMOTO, "Degradation of Superconductivity and Spin Fluctuations by Electron Overdoping in $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.*, **79**-7, 074715 (2010). DOI: 10.1143/JPSJ.79.074715
- $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ 系粉末試料 $x=0.06$ および 0.08 の超伝導相 ($T_c > 24$ K) で、母相の SDW 相と同程度の磁気散乱強度が残る一方で、 $x=0.16$ の $T_c \sim 7$ K のオーバードープ試料ではその磁気散乱が見えなくなったことから、磁気散乱と高い T_c との相関が明らかになった。
31. H. Sakai, N. Tateiwa, T. D. Matsuda, T. Sugai, E. Yamamoto, Y. Haga, "Crystal Structure and

- Physical Properties of Uranium–Copper Oxyphosphide UCuPO”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 074721. doi:10.1143/JPSJ.79.074721
32. Y. Ota, M. Machida, and T. Koyama, “Theory of Josephson effects in iron-based multigap superconductor junctions”, *Journal of Physics: Conference Series* **248**, 012040 (2010). (DOI: 10.1088/1742-6596/248/1/012040)
 33. Masahiko Machida and Hiroki Nakamura, “Two-dimensionality of electronic structure and strong Fermi surface nesting in highly anisotropic iron-based superconductors”, *Physica C* **470** (2010) 1002-1006. (DOI: 10.1016/j.physc.2010.05.020)
 34. Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, Tomio Koyama and Noriaki Hamada, “First-principles calculations for anisotropy of iron-based superconductors”, *Physica C* **470** (2010) 1066-1069. (DOI: 10.1016/j.physc.2010.05.037).
 35. Y. Ota, M. Machida, T. Koyama, and H. Matsumoto, “Anomalous Josephson vortex solutions in Josephson junctions with multiple tunneling channels”, *Physica C* **470** (2010) 1137. (DOI: 10.1016/j.physc.2010.05.057)
 36. N. Nakai and M. Machida, “Simulation study on the vortex penetration in the presence of the square antidot array”, *Physica C*, **470** (2010) 1148. (DOI:10.1016/j.physc.2010.05.060)
 37. S. Shamoto, M. Ishikado, S. Wakimoto, K. Kodama, R. Kajimoto, M. Arai, T. Fukuda, H. Nakamura, M. Machida, H. Eisaki, “Spin Excitations in Iron Oxypnictide Superconductor System”, *Physica C* **470** (2010) S284–S287. doi:10.1016/j.physc.2009.11.132
 38. E. Kaneshita and T. Tohyama, "Spin and charge dynamics ruled by antiferromagnetic order in iron pnictide superconductors", *Phys. Rev. B* **82**, 094441 (1-5) (2010), DOI: 10.1103/PhysRevB.82.094441
 39. Shin-ichi Shamoto, Motoyuki Ishikado, Andrew D. Christianson, Mark D. Lumsden, Shuichi Wakimoto, Katsuaki Kodama, Akira Iyo, and Masatoshi Arai, “Inelastic neutron scattering study of the resonance mode in the optimally doped pnictide superconductor LaFeAsO_{0.92}F_{0.08}”, *Phys. Rev. B* **82**, 172508 (2010). DOI: 10.1103/PhysRevB.82.172508
 40. C.J. van der Beek, G. Rizza, M. Konczykowski, P. Fertey, I. Monnet, R. Okazaki, T. Kato, K. Hashimoto, M. Shimozawa, H. Shishido, M. Yamashita, M. Ishikado, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, T. Shibauchi, Y. Matsuda, “Disorder and flux pinning in superconducting pnictide single crystals”, *Physica C* **470** (2010) S385–S386. doi:10.1016/j.physc.2009.11.089.
 41. Shigeyuki Ishida, Masamichi Nakajima, Yasuhide Tomioka, Toshimitsu Ito, Kiichi Miyazawa, Hijiri Kito, Chul-Ho Lee, Motoyuki Ishikado, Shin-ichi Shamoto, Akira Iyo, Hiroshi Eisaki, Kenji M. Kojima, Shin-ichi Uchida, “Characteristic charge transport in oxygen-deficiency-controlled LnFeAsO_{1-y} (Ln = La and Nd)”, *Physica C* **470** (2010) S324–S325, doi:10.1016/j.physc.2010.01.026.
 42. M. Ishikado, S. Shamoto, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, T. Ito, Y. Tomioka, “Growth of

- PrFeAsO_{1-y} single crystals and its characterization”, *Physica C* 470 (2010) S322–S323. doi:10.1016/j.physc.2009.11.165.
43. I. Jarrige, K. Ishii, M. Yoshida, T. Fukuda, K. Ikeuchi, M. Ishikado, N. Hiraoka, K.D. Tsuei, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, “Resonant inelastic X-ray scattering in single-crystal superconducting PrFeAsO_{0.7}”, *Physica C* 470 (2010) S377–S378. doi:10.1016/j.physc.2009.11.039.
 44. Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, Alfred Q.R. Baron, Tatsuo Fukuda, Shin-ichi Shamoto, “Magnetic structure and phonon spectra of iron-based superconductors: A first-principle study”, *Physica C* 470 (2010) S430–S432. doi:10.1016/j.physc.2009.10.138.
 45. R. Okazaki, M. Konczykowski, C.J. van der Beek, T. Kato, K. Hashimoto, M. Shimozawa, H. Shishido, M. Yamashita, M. Ishikado, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, T. Shibauchi, Y. Matsuda, “Lower critical fields and the anisotropy in PrFeAsO_{1-y} single crystals”, *Physica C* 470 (2010) S485–S486. doi:10.1016/j.physc.2009.12.041.
 46. Shin-ichi Shamoto, Motoyuki Ishikado, Shuichi Wakimoto, Katsuaki Kodama, Ryoichi Kajimoto, Masatoshi Arai, Tatsuo Fukuda, Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, Hiroshi Eisaki, “Spin excitations in iron oxypnictide superconductor system”, *Physica C* 470 (2010) S284–S287. doi:10.1016/j.physc.2009.11.132
 47. N. Nakai, H. Nakamura, Y. Ota, Y. Nagai, N. Hayashi, and M. Machida, "Small Jump of Specific Heat and Small Gap in Iron Pnictide Superconductors", *Physica C* 470, S368 (2010). (doi:10.1016/j.physc.2010.01.055)
 48. Hiroki Nakamura and Masahiko Machida, “Pressure effects on iron-based superconductors: A first-principles study”, *Physica C* 470 (2010) S387-S388. (doi:10.1016/j.physc.2009.12.024).
 49. Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, Alfred Q.R. Baron, Tatsuo Fukuda and Shin-ichi Shamoto, “Magnetic structure and phonon spectra of iron-based superconductors: A first-principle study”, *Physica C* 470 (2010) S430-S432. (doi:10.1016/j.physc.2009.10.138)
 50. T. Nomura, “Perturbation theory of iron-pnictide superconductivity”, *Physica C* 470 (2010) S365–S367. doi:10.1016/j.physc.2009.12.037
 51. M. Machida, Y. Nagai, Y. Ota, N. Nakai, H. Nakamura, and N. Hayashi, “Phenomenological theory for $\pm s$ -wave superconducting states of iron-based superconductors”, *Physica C* 470 (2010) S372-S374. (doi:10.1016/j.physc.2009.10.087)
 52. N. Nakai, H. Nakamura, Y. Ota, Y. Nagai, N. Hayashi, and M. Machida, “First-principles-based $s\pm$ -wave modeling for iron-based superconductors: Specific heat and nuclear magnetic relaxation rate”, *Phys. Rev. B* **82**, 094501 (2010). (DOI:10.1016/j.physc.2010.05.060)
 53. Y. Ota, M. Machida, and T. Koyama, “Shapiro steps as a direct probe of $\pm s$ -wave symmetry in multigap superconducting Josephson junctions”, *Phys. Rev. B* **82**, 140509(R) (2010). (DOI:10.1103/PhysRevB.82.140509)

54. Yuki Nagai and Yusuke Kato, "Impurity scattering rate and coherence factor in vortex core of sign-reversing s-wave superconductors", *Phys. Rev. B* **82**, 174507 (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevB.82.174507)
55. Hiroki Nakamura and Masahiko Machida, "Magnetic ordering in blocking layer and highly anisotropic electronic structure of high-T_c iron-based superconductor Sr₂VFeAsO₃: LDA+U study", *Phys. Rev. B* **82-9**, 094503 (2010) (DOI: 10.1103/PhysRevB.82.094503).
56. Y. Ota, M. Masahiko, T. Koyama, H. Matsumoto, "Theory for Josephson Vortex Structure in Josephson Junctions with Multiple Tunneling Channels: Vortex Enlargement as a Probe for \pm s-wave Superconductors", *Phys. Rev. B* **81** 014502 (2010) (DOI: 10.1103/PhysRevB.81.014502).
57. Y. Ota, M. Machida, T. Koyama, and H. Matsumoto, "Collective modes and Josephson vortices in a heterotic Josephson junction between single- and two-gap superconductors", *Physica C* **470** S882 (2010) (DOI:10.1016/j.physc. 2009.10.023).
58. Y. Ota, M. Machida, and T. Koyama, "Inter-grain Josephson Currents in Two-gap Superconductors", *Physica C* **470** S489 (2010) (DOI:10.1016/j.physc. 2009.11.016).
59. Y. Imai, H. Takahashi, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, N. Nakai, Y. Nagai, Y. Uwatoko, M. Machida, and A. Maeda, "Microwave surface impedance measurements of LiFeAs single crystals", *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 013704 (2011). (DOI:10.1143/JPSJ.80.013704)
60. K. Sugimoto, E. Kaneshita and T. Tohyama, " Origin of In-Plane Anisotropy in Optical Conductivity for Antiferromagnetic Metallic Phase of Iron Pnictides", *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, (2011) 033706(L) (1-4), DOI: 10.1143/JPSJ.80.033706
61. Katsuaki KODAMA, Motoyuki ISHIKADO, Fumitaka ESAKA, Akira IYO, Hiroshi EISAKI, and Shin-ichi SHAMOTO, "Structural Analysis on Iron-Based Superconductor Pr1111 System with Oxygen Deficiency and Flourine Substitution", *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** (2011) 034601-1-6. DOI: 10.1143/JPSJ.80.034601
62. Y. Ota, M. Machida, and T. Koyama, "Macroscopic quantum tunneling in multigap superconducting Josephson junctions: Enhancement of escape rate via quantum fluctuations of Josephson-Leggett mode", *Phys. Rev. B* **83** 060503(R) (2011) (DOI:10.1103/PhysRevB.83.060503)
63. N. Nakai, N. Hayashi, and M. Machida, "Direct numerical confirmation of pinning-induced sign change in the superconducting Hall effect in type-II superconductors", *Phys. Rev. B* **83** 024507 (2011) (DOI: 10.1103/PhysRevB.83.024507).
64. Y. Nagai, and K. Kuroki, "Determination of the pairing state in iron-based superconductors through neutron scattering", *Phys. Rev. B* **83** 220516(R) (2011) (doi:10.1103/PhysRevB.83.220516).
65. 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, and S. Shamoto, “ s_{\pm} -like spin resonance in the iron-based nodal superconductor $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.65}\text{P}_{0.35})_2$ observed using inelastic neutron scattering”, *Phys. Rev. B* **84** 144517 (2011). DOI:10.1103/PhysRevB.84.144517
66. Y. Imai, H. Takahashi, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, N. Nakai, Y. Nagai, Y. Uwatoko, M. Machida, and A. Maeda, “Microwave Surface Impedance Measurements of LiFeAs Single Crystals”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** 013704 (2011) (DOI: 10.1143/JPSJ.80.013704)
67. Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, “First-Principles Studies for the Hydrogen Doping Effects on Iron-Based Superconductors”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 073705 (2011) (DOI: 10.1143/JPSJ.80.073705)
68. S. Shamoto, S. Wakimoto, K. Kodama, M. Ishikado, A. D. Christianson, M. D. Lumsden, R. Kajimoto, M. Nakamura, Y. Inamura, M. Arai, K. Kakurai, F. Esaka, A. Kyo, H. Kito, H. Eisaki, “Neutron scattering of iron-based superconductors”, *Physica C* **471** (2011) 639-642. 10.1016/j.physc.2011.05.015.
69. M. Ishikado, K. Kodama, R. Kajimoto, M. Nakamura, Y. Inamura, S. Wakimoto, A. Iyo, H. Eisaki, M. Arai, S. Shamoto, “Inelastic neutron scattering on iron-based superconductor $\text{BaFe}_2(\text{As,P})_2$ ”, *Physica C* **471** (2011) 639-642. doi:10.1016/j.physc.2011.05.016.
70. H. Gretarsson, A. Lupascu, Jungho Kim, D. Casa, T. Gog, W. Wu, S. R. Julian, Z. J. Xu, J. S. Wen, G. D. Gu, R. H. Yuan, Z. G. Chen, N.-L. Wang, S. Khim, K. H. Kim, M. Ishikado, I. Jarrige, S. Shamoto, J.-H. Chu, I. R. Fisher, and Young-June Kim, “Revealing the dual nature of magnetism in iron pnictides and iron chalcogenides using x-ray emission spectroscopy”, *Phys. Rev. B* **84**, 100509(R) (2011), 10.1103/PhysRevB.84.100509.
71. K. Kodama, S. Wakimoto, N. Igawa, S. Shamoto, H. Mizoguchi, and H. Hosono, “Crystal and magnetic structures of the superconductor $\text{CeNi}_{0.8}\text{Bi}_2$ ”, *Phys. Rev. B* **83**, 214512 (2011) , DOI: 10.1103/PhysRevB.83.214512.
72. T. Hanna, Y. Muraba, S. Matsuishi, N. Igawa, K. Kodama, S. Shamoto, H. Hosono, “Hydrogen in layered iron arsenides: indirect electron doping to induce superconductivity”, *Phys. Rev. B* **84** (2011) 024521. (7 pages) DOI:10.1103/PhysRevB.84.100509
73. I. Nishi, M. Ishikado, S. Ideta, W. Malaeb, T. Yoshida, A. Fujimori, Y. Kotani, M. Kubota, K. Ono, M. Yi, D. H. Lu, R. Moore, Z.-X. Shen, A. Iyo, K. Kihou, H. Kito, H. Eisaki, S. Shamoto, R. Arita, “Angle-resolved photoemission spectroscopy study of $\text{PrFeAsO}_{0.07}$: comparison with LaFePO ”, *Phys. Rev. B* **84** (2011) 014504 (5 pages). DOI: 10.1103/PhysRevB.84.014504.
74. T. Fukuda, A. Q. R. Baron, H. Nakamura, S. Shamoto, M. Ishikado, M. Machida, H. Uchiyama, A. Iyo, H. Kito, J. Mizuki, M. Arai and H. Eisaki, “Soft and isotropic phonons in PrFeAsO_{1-y} ” *Phys. Rev. B* **84** (2011) 064504. (doi:10.1103/PhysRevB.84.064504).
75. H. Kobayashi, S. Ikeda, Y. Yoda, H. Nakakura, M. Machida, “Orthorhombic fluctuations in

- tetragonal $A\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($A = \text{Sr}$ and Eu)", *Phys. Rev. B* **84**, 184304 (2011). doi: 10.1103/PhysRevB.84.184304
76. E. Kaneshita, K. Tsutsui, and T. Tohyama, "Spin and orbital characters of excitations in iron arsenides revealed by simulated Fe L-edge RIXS", *Phys. Rev. B* **84**, 020511(R) (1-4) (2011), DOI: 10.1103/PhysRevB.84.020511
77. T. Tohyama, E. Kaneshita, and T. Morinari, "Charge and spin dynamics in antiferromagnetic metallic phase of iron-based superconductors", *J. Phys. Chem. Solids* **72**, 315-318 (2011), DOI: 10.1016/j.jpcs.2010.10.056
78. K. Sugimoto, E. Kaneshita, and T. Tohyama, "Parameter dependence of optical conductivity in antiferromagnetic phase of iron pnictides", *Physica C* **471**, 666-669 (2011). DOI: 10.1016/j.physc.2011.05.022
79. S. Ikeda, K. Yoshida, and H. Kobayashi, "Electronic property of SrFe_2As_2 under high pressure studied by ^{57}Fe Mossbauer spectroscopy", *Hyperfine Int.* (accepted).
80. S. Shamoto, M. Ishikado, S. Wakimoto, K. Kodama, R. Kajimoto, M. Arai, "Dynamical Spin Susceptibility Studied by Inelastic Neutron Scattering on $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ", *J. Phys.:Conf. Series* in press.

(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

中性子非弾性散乱による磁気励起測定で、 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ 系の高品質の粉末試料を用いた系統的な研究から、母相および高い T_c の超伝導相で見たスピン揺らぎが、フッ素濃度の高いオーバードープ試料 ($x=0.16$; $T_c \sim 7$ K) でなくなることがわかった。このことから、我々は平成 21 年の上野の研究会で超伝導の対称性の変化の可能性を指摘したが、後に阪大椋田らにより、NQR 測定で確認された。ひとつの物質系でキャリア濃度を変えることで超伝導のギャップ対称性が変わるのが見つかったのは初めての例であろう。また同様な現象が、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ でも光電子分光実験による Γ 点でのフェルミ面の消失を含めて見つかっている。このことから、スピン密度波に由来するスピン揺らぎが高温超伝導と密接に関係していることがわかる。また、ニクトゲンの鉄平面からの高さが低くなった $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.65}\text{P}_{0.35})_2$ ($T_c=30$ K) では、超伝導ギャップにノードが見つかり、超伝導機構との関連が調べやすい系となった。この超伝導相でも磁気励起にはレゾナンス的な振舞が同様に強く観測された。詳細はまだ分からないが、理論との比較から、これは同一のフェルミ面内のわずかな部分が符号反転したことで説明可能である。このような符号反転の機構は、この高温超伝導機構と密接に関わっているはずであり、理論的にはそれがスピン揺らぎの軌道成分の変化により説明できている。また世界で初めてシグナルの測定に成功した共鳴 X 線非弾性散乱からも、

理論からも電子相関の重要性が指摘できた。しかし一方で、フォノンの温度変化による顕著な異常は見られていない。第一原理計算との不一致から、電子状態を議論することは大変興味深いものの、超伝導との関連はよくわかっていない。また軌道揺らぎの可能性は我々の結果からはわからない。詳細は今後の研究展開を待たなくてはならないが、個人的には超伝導電子対密度とスピン揺らぎのスピン成分との絶対値での比較が鍵になるのではないかと考えている。クーパー対の引力を考えると、トリプレットでもない限り、クーパー対のスピンシングレット状態の磁気エネルギーを低くするのが重要となる。いずれにしろ、今後、スピン密度波近傍で高温超伝導を探ることが重要となろう。

(5-2) その他

大型施設の相補利用は近年、その効果的な研究手法として注目されているが、当チームでは、まさに中性子源として JRR-3 と J-PARC、そして放射光X線として SPring-8 を横断的に利用しながら、理論計算との比較を重視して研究を進めてきた。これまで同じ原子力機構内であっても東海サイトと播磨サイト、システム計算科学センターでは、十分な交流がもてなかったが、国内でのチームミーティングで、未公開の実験結果や考え方を議論することで、互いに深い理解をして、また興味を持って研究を行うことができた。近年、当機構では旅費の削減が目標として掲げられているが、このような活性化に予算を使えたことは意義深かった。このような環境もあり、我々のチームでは、JST 予算で雇用した特定課題推進員の方に、測定試料を合成してもらい、それらを中性子と放射光X線で横断的に測定し、理論家メンバーにシミュレーションまでしていただくなど、素晴らしい理想的な研究環境で研究をすることができた。敢えて問題点として挙げられるのは、重い電子系を除けば、試料合成をほぼ一人に依存する形になってしまった点である。そのために、共同研究をしていた産総研との関係もあり、いったん始めた物質系以外に対象を広げることが、競合となり難しくなってしまった点である。研究費に関しては、故障した X 線回折装置の入れ替えや最終年度の人件費など、JST には困ったことに対して快く協力していただいた。全体としては、福山先生の下で学問的に緊張した空気を感じながら、また細野先生から実用性に関してするどい指摘をしていただくなど、異なった視点から一流の先生方のコメントを聞いたことが、いつも勉強になった。また TRIP 内の他のチームとの共同研究も容易で、産総研永崎チームには終始お世話になったが、その他のチームとも中性子回折実験を共同で行うことができた。このような素晴らしい環境下で研究できたことに大変感謝している。

最後に、このプロジェクトでは改めて大型施設での研究の一連の流れの重要性を感じた。それは個人の小さな研究と変わらず、アイデア、試料、測定実験、理論的解析、科学的発見の繰り返しである。当然、科学的なアイデアは重要だが、この流れの中でどれが欠けても研究は完成しない。個人の能力は限られることから、たゆまない科学の進展に向けて、今後益々、研究の流れ、交流を助ける努力が必要になっている。今後そのような役割を担っているのは、まさに JST のような研究助成機関でないかと思う。今後も小さな研究のシーズから大きなものまで、特徴のある優れたものを幅広い分野で多面的なものの見方で研究発展を助成していただけたらと思う。