

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「鉄系超伝導体のフェルミオロジーに挑む」

研究終了報告書

氏名

寺嶋太一

所属・役職

(独)物質・材料研究機構 環境・エネルギー材料部門 超伝導物性ユニット 量子物
性グループ 主席研究員

§ 1. 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究のねらいは、量子振動や角度依存磁気抵抗振動(AMRO)の観測により鉄系超伝導体のフェルミ面を直接的に明らかにし、その電子状態の解明につなげることである。殊に、ディスオーダーをもたすドーピングによらず、高圧により超伝導を発現するとの報告がある 122 系 AFe_2As_2 ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}, \text{Eu}$) に研究を集中した。

主たる実施内容は以下の3点。

① 122 系母物質 BaFe_2As_2 の Shubnikov-de Haas (SdH) 振動測定、過剰ホールドープに当たる KFe_2As_2 の de Haas-van Alphen (dHvA) 振動測定、角度依存磁気抵抗振動 (AMRO) 測定、サイクロトロン共鳴測定を行い、両物質の電子状態を詳細に調べた。

デッインした単結晶の SdH 測定から反強磁性状態の BaFe_2As_2 のフェルミ面を実験的に完全に決定した。LSDA のバンド計算は Fe の磁気モーメントを過剰に見積もるにもかかわらず、フェルミ面を基本的に再現できることを明らかにした。過去の角度分解光電子分光で報告されたフェルミ面には見直しが必要なこと、いわゆるディラック電子が仮にあるとしても伝導への寄与は極めて限られたものであることなども明らかにした。一方、 KFe_2As_2 のフェルミ面についてはバンド計算の予想とあわず、恐らく計算で Fe 3d の結晶場準位が正しく得られていないと思われた。さらに、質量増強(多体効果による有効質量のバンド質量に対する増強)は BaFe_2As_2 で2-3倍であるのに対し、 KFe_2As_2 では主要フェルミ面で3-7倍の大きな値となり、 KFe_2As_2 における電子相関の重要性が裏付けられた。

更に、 KFe_2As_2 では鉄系超伝導体では初めて AMRO、サイクロトロン共鳴の観測にも成功し、前者からはフェルミ面の面内形状が明らかになり、後者からはバンド内、バンド間の電子間相互作用のいずれも無視し得ないことが示された。

② EuFe_2As_2 の交流磁化率、電気抵抗、磁気抵抗、ホール効果などの高圧下物性測定を行い、この物質の圧力誘起超伝導と電子状態について詳細に調べた。

バルク超伝導は磁気・構造相転移が消失する約 25 kbar から約 30 kbar までの極めて限られた圧力域でのみ発現し、 Eu^{2+} モーメントの反強磁性秩序と共存することを示した。なお、磁気・構造相転移が消失する近傍の圧力では広い温度範囲で電気抵抗の温度依存性が温度の一次となる非フェルミ液体的振る舞いが観測される。圧力の静水圧性は重要なファクターで、固体圧力媒体を用いた静水圧性の悪い条件ではバルク超伝導は観測されないことが明らかになった。25 kbar における上部臨界磁場 B_{c2} の温度変化を測定し、その解析から Eu^{2+} モーメントから伝導電子に働く交換磁場が 100 T 程度であることが明らかになった。また、 Eu^{2+} モーメントによるスピンドイスオーダー散乱や異常ホール効果の大きさについて定量的に見積もった。

③ KFe_2As_2 、 LiFeAs について上部臨界磁場 B_{c2} の温度変化を測定し、WHH 理論で解析した。いずれの場合も、磁場が c 軸方向では軌道効果が支配的なものに対し、 ab 面内では常磁性効果が顕著に現れる。結果的に、 B_{c2} の異方性が低温で減少することになる。

(2) 顕著な成果

① BaFe₂As₂ のフェルミ面を完全に決定

概要: BaFe₂As₂ 単結晶をデツインして、シュブニコフ＝ドハース振動を測定し反強磁性斜方晶におけるフェルミ面を完全に決定した。局所密度近似のバンド計算が Fe モーメントを過大に見積もるにもかかわらず概ね正しいフェルミ面を与えることを示した。

② KFe₂As₂ における電子相関の重要性を指摘

概要: KFe₂As₂ 単結晶のドハース＝ファンアルフェン効果、角度依存磁気抵抗振動、サイクロトロン共鳴の測定を行い、そのフェルミ面が局所密度近似のバンド計算の予想と異なり、また質量増強も大きく、電子相関が重要であることを示した。

③ EuFe₂As₂ の圧力誘起バルク超伝導の確証と詳細な高圧相図の決定

概要: EuFe₂As₂ の圧力誘起超伝導がバルクであり、かつ Eu²⁺の反強磁性と共存することを示し、その詳細な高圧相図を決定した。さらに、上部臨界磁場を決定し、その解析から磁性超伝導体にとって重要なパラメータである局在磁気モーメントから伝導電子への交換磁場を見積もった。

§ 2. 研究実施内容

(1) BaFe₂As₂ の SdH 測定¹⁸⁾

122 系母物質 AFe₂As₂ (A = Ca, Sr, Ba, Eu) は冷却により正方晶から斜方晶へ転移する。その際、結晶は正方晶[110]または[1-10]方向に伸び(斜方晶 *a* 軸となる)、それと直交する方向には縮む(斜方晶 *b* 軸となる)。単結晶試料をそのまま冷やすと、ある部分では正方晶[110]方向に伸び、別の部分では正方晶[1-10]方向に伸び、結果として斜方晶では場所により *a* 軸と *b* 軸が入れ替わったツインになり、斜方晶の面内の異方性が見えなくなってしまう。最近、あらかじめ単結晶試料を正方晶[110]方向に圧縮あるいは伸張して冷却すれば、斜方晶の *a* 軸 *b* 軸のそろったデツインされた状態に出来ることが報告された。

これまでに報告された AFe₂As₂ (A = Ca, Sr, Ba) の量子振動はすべてツインでの測定であったので、今回デツインした BaFe₂As₂ の SdH 測定を行うことにした。

測定に用いた単結晶試料は産総研永崎チームから提供されたもので、残留抵抗比が 40-60 とこれまでに例がない高品質のものである。α、γ、δ の 3 々の周波数ブランチが観測され、*a* 軸と *b* 軸の異方性もは

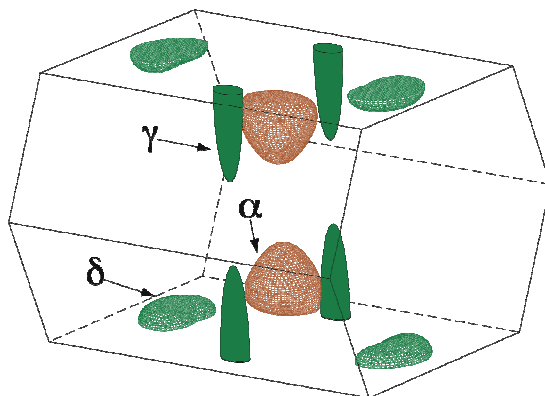


図 1 : 本研究で決定した BaFe₂As₂ の反強磁性相のフェルミ面。α ホール面と γ、δ 電子面からなる。

つきりと捉えられた。なお、以前報告のあった β 周波数ブランチは γ の 2 倍高調波であることが明らかになった。バンド計算との比較から決定されたフェルミ面を図1に示す。 α ホール面と γ 、 δ 電子面からなる。それぞれのキャリア数は基本単位格子あたりで 0.0235、0.0130、0.0116 と見積もられ誤差範囲でキャリアの補償が成立する。多体効果による質量増強 ($1 + \lambda$) は α ホール面で 3.1、 δ 電子面で 2.3 であり、 KFe_2As_2 で見られる 3-20 に比べるとだいぶ小さい。電子比熱係数は $5.0 \text{ mJ/K}^2\text{mol-fu}$ と見積もられ文献値 $5.1 \text{ mJ/K}^2\text{mol-fu}$ (C. R. Rotundu *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 144525 (2010)) と良い一致を示す。

得られたフェルミ面をこれまでの ARPES の報告と比較すると、一定の一致はみられるが、ARPES は現実よりも多くのフェルミ面のポケットを発見する傾向があるように思われる。また、電子相関を DMFT で取り入れた計算の予想するフェルミ面 (A. P. Yin *et al.*, Nature Phys. **7**, 294 (2011)) との一致は悪い。

局所密度近似のバンド計算で基本的にフェルミ面が説明でき、かつ質量増強も小さいことから、この物質における電子相関の効果が限られたものであることがはっきりしたが、一方で、バンド計算が反強磁性モーメントを過大に見積もる理由は不明である。

(2) KFe_2As_2 の dHvA 測定¹¹⁾、AMRO 測定¹²⁾、サイクロトロン共鳴¹⁷⁾

BaFe_2As_2 で観測されたのは磁気秩序により分断された小さなフェルミ面であるが、二元系 $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ のホール過剰側のエンドメンバーである KFe_2As_2 ($T_c \sim 3 \text{ K}$) は磁気・構造転移を起こさず、大きなフェルミ面が観測できるはずである。そこで、産総研永崎チームにより合成された高品質単結晶 (残留抵抗比 ~ 600) を用いて、dHvA および AMRO 測定を試みた。

図2に観測された dHvA 振動の一例を示す。3 種類のシリンダー状フェルミ面 ε 、 α 、 ζ が観測され、ARPES の結果と対応づけられた。しかしながら、観測されたフェルミ面の大きさはバンド計算の予想と顕著に異なる。また、電子の有効質量は自由電子の 6 から 18 倍とかなり重く、バンド質量に対する質量増強因子は α 、 ζ で 3 から 7 倍に達する。これらの結果は、この物質の電子状態における電子相関の重要性を示している。バンド計算のフェルミ面の大きさが実験とあわないのは、バンド計算の Fe 3d 電子の結晶場分裂が正しくないためと思われる。

図3に観測された AMRO の一例を示す。 α 、及び、恐らく ζ フェルミ面に

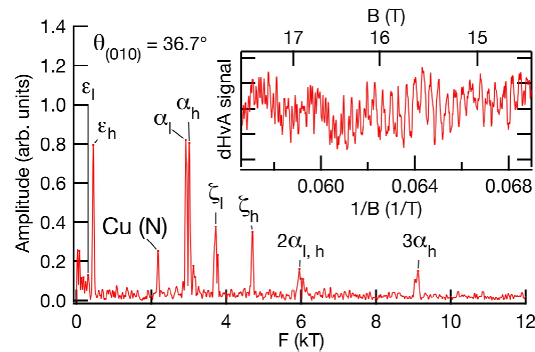


図2: KFe_2As_2 の dHvA 振動 (挿入図) とフーリエ変換。 ε 、 α 、 ζ の 3 種の周波数ペアが観測され、それぞれがシリンダー状フェルミ面に対応する。なお、 Cu(N) とマークされた周波数はピックアップコイルの銅線によるもの。

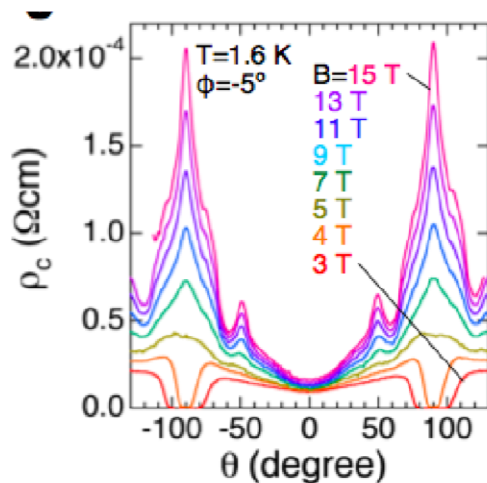


図3: KFe_2As_2 の AMRO の測定例。 c 軸方向の電気抵抗を磁場方位の極角 θ の関数として測定する。たとえば、 $\pm 50^\circ$ 、 70° 付近に見える構造は磁場強度によらないため AMRO によるものである。 θ の 2 階微分を取ることでより多くの構造が明らかになる。

対応づけられる振動が同定できた。様々な方

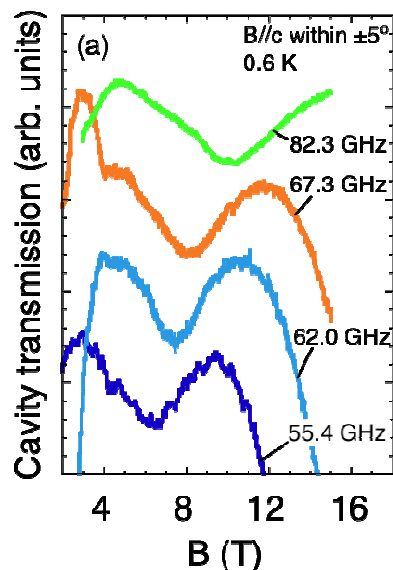


図4: KFe_2As_2 のサイクロトロン共鳴。空洞共振器を透過してきたマイクロ波強度を磁場の関数として示す。マイクロ波周波数により約6から10Tに見える凹みが共鳴。

位角での測定から、これらのフェルミ面の面内

形状が、各辺が $\langle 110 \rangle$ に平行な四角に丸みをつけたようなものであることが明らかになった。

図 4 に観測されたサイクロトロン共鳴を示す。共鳴磁場の周波数依存性から有効質量は自由電子の 3.4 倍である。dHvA 振動で観測された α 面を見ていると考えられるが、dHvA 振動から求められた有効質量は自由電子の 6.3 倍である。単一バンドの場合は Kohn の定理により電子相関はサイクロトロン共鳴に効かないが、今のように多バンド系の場合バンド間の電子間相互作用によってサイクロトロン共鳴磁場は renormalize される。解析によれば、 KFe_2As_2 の場合、バンド内およびバンド間の電子間相互作用はいずれも質量増強に無視できない寄与をしていることが明らかになった。

(3) EuFe_2As_2 の高圧下物性測定^{4, 6, 7, 16)}

EuFe_2As_2 については、本研究開始後すぐに静水圧性の良い高圧力下で100%のシールドイングとゼロ抵抗を観測し圧力誘起超伝導がバルクであることを確証した。さらに、 Eu^{2+} モーメントの反強磁性との共存も明らかにした。その後も引き続き高圧下での電気抵抗、磁気抵抗、ホール効果測定を詳細に実施した。なお、試料は物材機構鈴木博之氏より提供された高品質単結晶を用いている。

図5に最終的に確定した静水圧下での圧力相図を示す。バルク超伝導は磁気・構造相転移が消失する約 25 kbar から約 30 kbar までの極めて限られた圧力域でのみ発現する。超伝導転移

温度 T_c は約 30 K で圧力依存性はあまり顕著でない。一方、固体圧力媒体を使用してあえて印加圧力の静水圧性を低下させた実験ではバルク超伝導は発現せず、静水圧性が重要なファクターであることが明らかになった。 Eu^{2+} モーメントの反強磁性転移温度 T_N は図の圧力域でほぼ変わらず約 20 K で、この温度以下でバルク超伝導と共存する。

バルク超伝導相の周縁の圧力では、冷却とともに T_c 以下で一度ゼロ抵抗が実現した後、 Eu^{2+} モーメントの反強磁性転移温度 T_N 近傍で再び有限の抵抗が観測され、更に低温でゼロ抵抗に戻るリニアント振る舞いが見られた。

図6に超伝導最適圧力約 25 kbar における ab 面内の上部臨界磁場の温度依存性を示す。20 K 付近で上に折れ曲がる特異な温度依存性が見られる。実線は伝導電子に対する Eu^{2+} モーメントからの交換磁場を考慮に入れた多重対破壊モデルによる計算である。この計算では実測の T_c を用いた。20 K 付近の折れ曲がり再現され実験結果の定性的特徴はよく捉えられている。しかし、 T_c から T_N (Eu^{2+} モーメントの反強磁性秩序温度) 近傍での定量的一致は悪い。 Eu^{2+} モーメントは最終的には T_N で c 軸方向に反強磁性的に秩序

するものの、 Eu^{2+} モーメント間の支配的な相互作用は ab 面内の強磁性相互作用であり、 $T \rightarrow T_N$ で Eu^{2+} モーメントの強磁性的揺らぎが発達する。このため、常磁性状態を前提にする理論の予想よりも強く超伝導が抑制され上のような不一致が生じていると思われる。この問題を現象論的に回避するために実測より低い T_c を用いて実験結果をフィットしたのが点線である。(3 種類の B_{c2} の取り方を試してある、挿入図参照) 低温までの広い温度範囲で実験データをよく再現する。このフィットから Eu^{2+} モーメントによる交換磁場の大きさは最大約 75 T と見積もられた。 c 軸方向の上部臨界磁場についても同様な解析が可能であるが、最低温度域の上部臨界磁場は $T \rightarrow 0$ で飽和せずほぼ温度にリニアに増大する傾向を示し、他の鉄系超伝導体と同様多バンドの効果が現れているのか

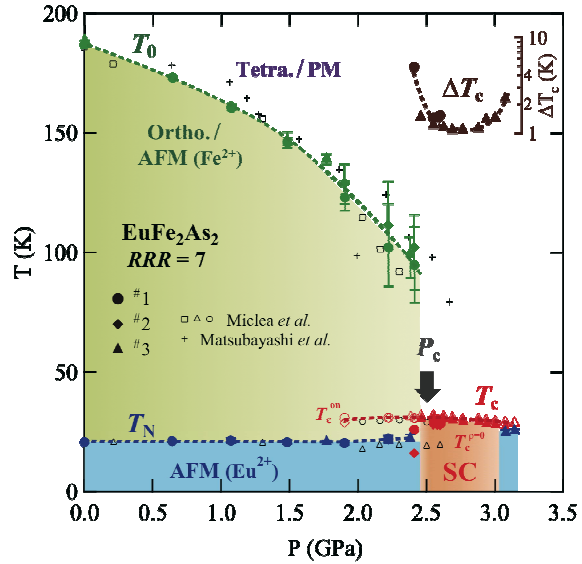


図5:本研究で決定した EuFe_2As_2 の高压相図。

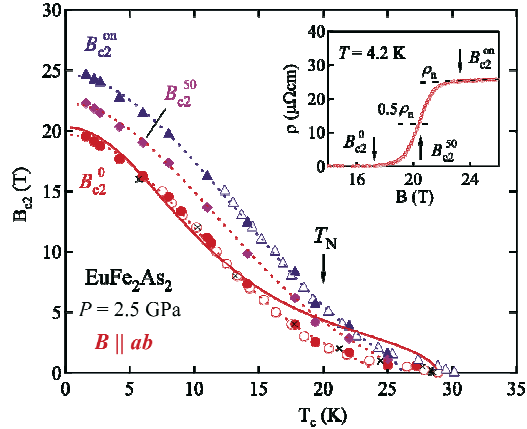


図6 : 25 kbar における EuFe_2As_2 の上部臨界磁場。挿入図に 3 種類の B_{c2} の取り方を示す。

もしれない。

(4) KFe_2As_2 ³⁾、 LiFeAs ¹³⁾の上部臨界磁場測定

二つの stoichiometric な鉄系超伝導体 KFe_2As_2 と LiFeAs について単結晶(前者は Prof. Nan-Lin Wang, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences のグループ、後者は東大物性研北川健太郎氏による)を用いて上部臨界磁場 B_{c2} を低温まで測定した。図 7 に LiFeAs の測定結果を示す。WHH 理論による解析では、両物質とも c 軸方向の上部臨界磁場が軌道効果で決まっているのに対し、 ab 面内の上部臨界磁場はスピン常磁性効果で強く抑制されていることがわかった。このため上部臨界磁場の異方性 B_{c2}^{ab}/B_{c2}^c は $T \rightarrow 0$ で減少する。殊に LiFeAs の場合は $T \rightarrow 0$ で 1.7 となり、かなり等方的である。

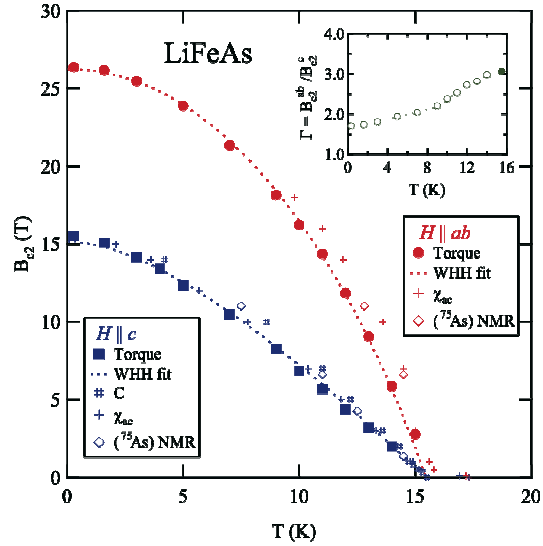


図7: LiFeAs の上部臨界磁場。挿入図は異方性の温度変化。

(当面公開は考えていない) * * * * *

(5) 反強磁性量子相転移前後の電子状態解明への第一歩

本研究計画提案時の最大の売りは、圧力をパラメーターとして量子振動計測により、反強磁性状態からそれが消失し超伝導が発現するまでの電子状態の変化を連続的に明らかにすることであった。残念ながらこの目標は未だ達成されていないが、この方向への重要な一歩は踏み出している。

一つには、反強磁性消失以上の高圧で EuFe_2As_2 の dHvA 振動の観測に成功したことである(図 8)。まだ一圧力点のみで信号も小さいが、現在物材機構鈴木博之氏が更なる高品質試料の作成に取り組まれており、それにより当初の目標が達成できると期待している。

二つ目は、混晶の $(\text{Ba}_{0.07}\text{K}_{0.93})\text{Fe}_2\text{As}_2$ の dHvA 振動の観測に成功したことである。混晶は、化学的にも構造的にも乱れが導入され電子

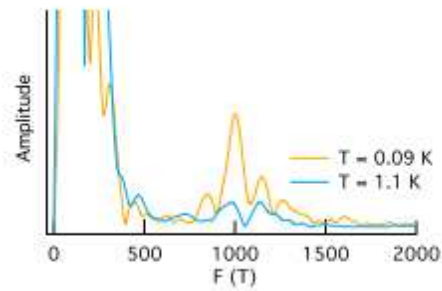


図 8: (非公開) 約 30 kbar ($> P_c$) における EuFe_2As_2 の dHvA 振動のフーリエ変換。 $T = 0.09$ K では約 1000 T 付近に dHvA 振動によるとみられるピークがある。その強度は、温度上昇に伴い減少する。

の散乱時間が短くなり量子振動観測は一般に困難であるが、今回測定した産総研永崎チームの試料は例外的に高品質であるようだ。今後、永崎チームの $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ 混晶試料について、 $x=0$ と $x=1$ の両側から最適ドープ方向へ向かって測定を試みたい。 $x=0$ から 1 まですべての量子振動計測が可能とは思えないが、 $x=0$ からの測定では反強磁性の抑制に伴う電子状態の変化が、 $x=1$ からの測定では nodal な $x=1$ (KFe_2As_2) から full gap の最適ドープへの電子状態の変化が、明らかに出来るものと期待している。

§ 3. 研究実施体制

(1) 寺嶋グループ

① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	寺嶋 太一	物質・材料研究機構	主席研究員	H20.10～H24.3
	宇治 進也	物質・材料研究機構	グループリーダー	H20.10～H24.3
	今井 基晴	物質・材料研究機構	主席研究員	H20.10～H24.3
*	栗田 伸之	物質・材料研究機構	NIMS ポスドク研究員	H21.8～H24.3
	木俣 基	物質・材料研究機構 東京大学	NIMS ポスドク研究員 助教	H21.11～H21.12 H22.1～H23.3

② 研究項目

BaFe_2As_2 、 EuFe_2As_2 などについて、圧力誘起超伝導の検証、圧力相図の決定、dHvA 効果測定、AMRO 測定を実施する。

(2) 播磨グループ

① 研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	播磨 尚朝	神戸大学	教授	H20.10～H24.3
*	朽尾 達紀	神戸大学	学術推進研究員	H20.10～H22.3
	金井 智祥	神戸大学	大学院学生	H20.10～H22.3
	安部 創	神戸大学	大学院学生	H20.10～H22.3

② 研究項目

BaFe_2As_2 などについて電子構造計算を行い、フェルミ面に関わる種々の物理量を評価する。

§ 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) 18件):

② 未発行論文数(“accepted”、“in press”等)(国内(和文) 0件、国際 (欧文) 0件)

③ 論文詳細情報

1. Taichi Terashima, Motoi Kimata, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Motoharu Imai, Shinya Uji, Hijiri Kito, Akira Iyo, Hiroshi Eisaki, and Hisatomo Harima, Fermi Surface in BaNi_2P_2 , J. Phys. Soc. Jpn. 78, 033706 (2009), DOI: 10.1143/JPSJ.78.033706.
2. R. Yoshida, T. Wakita, H. Okazaki, Y. Mizuguchi, S. Tsuda, Y. Takano, H. Takeya, K. Hirata, T. Muro, M. Okawa, K. Ishizaka, S. Shin, H. Harima, M. Hirai, Y. Muraoka, and T. Yokoya, Electronic Structure of Superconducting FeSe Studied by High-Resolution Photoemission Spectroscopy, J. Phys. Soc. Jpn. 78, 034708 (2009), DOI: 10.1143/JPSJ.78.034708.
3. Taichi Terashima, Motoi Kimata, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Shinya Uji, Hisatomo Harima, Gen-Fu Chen, Jian-Lin Luo, and Nan-Lin Wang, Resistivity and upper critical field in KFe_2As_2 single crystals, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 063702 (4 pages), DOI: 10.1143/JPSJ.78.063702.
- *4. Taichi Terashima, Motoi Kimata, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Shinya Uji, Hiroyuki S. Suzuki, Takehiko Matsumoto, and Keizo Murata, EuFe_2As_2 under High Pressure: An Antiferromagnetic Bulk Superconductor, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 083701 (4 pages), DOI: 10.1143/JPSJ.78.083701 [Erratum: Taichi Terashima, Megumi Tomita, Motoi Kimata, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Shinya Uji, Hiroyuki S. Suzuki, Takehiko Matsumoto, and Keizo Murata, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 118001 (1 page), DOI: 10.1143/JPSJ.78.118001].
静水圧性の良い高圧力で EuFe_2As_2 単結晶の交流磁化率、電気抵抗測定を行い、圧力 26 kbar 付近でのバルク超伝導発現、及び、その Eu 反強磁性との共存とを明らかにした。
5. N Kurita, M Kimata, K Kodama, A Harada, M Tomita, H S Suzuki, T Matsumoto, K Murata, S Uji and T Terashima, High-Pressure Electrical Resistivity Measurements of EuFe_2As_2 Single Crystals, J. Phys.: Conf. Ser. **273** 012098 (2011), doi: 10.1088/1742-6596/273/1/012098.
6. Nobuyuki Kurita, Motoi Kimata, Kota Kodama, Atsushi Harada, Megumi Tomita, Hiroyuki S. Suzuki, Takehiko Matsumoto, Keizo Murata, Shinya Uji, and Taichi Terashima, Upper critical field of the pressure-induced superconductor EuFe_2As_2 , Phys. Rev. B **83**, 100501(R) (2011) [4 pages], DOI: 10.1103/PhysRevB.83.100501.
7. Taichi Terashima, Nobuyuki Kurita¹, Akiko Kikkawa, Hiroyuki S. Suzuki, Takehiko Matsumoto, Keizo Murata, and Shinya Uji, Magnetotransport Studies of

EuFe₂As₂: The Influence of the Eu²⁺ Magnetic Moments, J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 103706 (4 pages), DOI: 10.1143/JPSJ.79.103706.

8. Taichi Terashima, Motoi Kimata, Nobuyuki Kurita, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Motoharu Imai, Akira Sato, Kunihiro Kihou, Chul-Ho Lee, Hijiri Kito, Hiroshi Eisaki, Akira Iyo, Taku Saito, Hideto Fukazawa, Yoh Kohori, Hisatomo Harima, and Shinya Uji, Comment on “Quantum Criticality and Nodal Superconductivity in the FeAs-Based Superconductor KFe₂As₂”, Phys. Rev. Lett. **104**, 259701 (2010) [1 pages], DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.259701.

9. Taichi Terashimaa, Motoi Kimata, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Motoharu Imai, Akira Sato, Shinya Uji, Kunihiro Kihou, Chul-Ho Lee, Hijiri Kito, Hiroshi Eisaki, Akira Iyo, Hideto Fukazawa, Yoh Kohori, and Hisatomo Harima, De Haas–van Alphen oscillations in KFe₂As₂, Physica C **470** (2010) S351–S352, doi:10.1016/j.physc.2009.11.007.

10. Taichi Terashimaa, Hiroyuki S. Suzuki, Megumi Tomita, Motoi Kimata, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Takehiko Matsumoto, Keizo Murata and Shinya Uji, Pressure-induced antiferromagnetic bulk superconductor EuFe₂As₂, Physica C **470** (2010) S443–S444, doi:10.1016/j.physc.2009.10.064.

*11. Taichi Terashima, Motoi Kimata, Nobuyuki Kurita, Hidetaka Satsukawa, Atsushi Harada, Kaori Hazama, Motoharu Imai, Akira Sato, Kunihiro Kihou, Chul-Ho Lee, Hijiri Kito, Hiroshi Eisaki, Akira Iyo, Taku Saito, Hideto Fukazawa, Yoh Kohori, Hisatomo Harima, and Shinya Uji, Fermi Surface and Mass Enhancement in KFe₂As₂ from de Haas–van Alphen Effect Measurements, J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 053702 (4 pages), DOI: 10.1143/JPSJ.79.053702.

永崎チーム合成の高品質 KFe₂As₂ 単結晶を用いて de Haas-van Alphen 効果の測定を行い、フェルミ面、電子有効質量等を決定した。得られた結果は強い電子相関の存在を示唆する。

12. 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, Quasi-Two-Dimensional Fermi Surfaces and Coherent Interlayer Transport in KFe₂As₂, Phys. Rev. Lett. **105**, 246403 (2010) [4 pages], DOI:10.1103/PhysRevLett.105.246403.

13. Nobuyuki Kurita, Kentaro Kitagawa, Kazuyuki Matsubayashi, Ade Kismarhardja, Eun-Sang Choi, James S. Brooks, Yoshiya Uwatoko, Shinya Uji, and Taichi Terashima, Determination of the Upper Critical Field of a Single Crystal LiFeAs: The Magnetic Torque Study up to 35 Tesla, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 013706 (4 pages), DOI: 10.1143/JPSJ.80.013706.

14. T. Yoshida, I. Nishi, A. Fujimori, M. Yi, R.G. Moore, D.-H. Lu, Z.-X. Shen, K.

Kihou, P.M. Shirage, H. Kito, C.H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, and H. Harima, Fermi surfaces and quasi-particle band dispersions of the iron pnictides superconductor KFe_2As_2 observed by angle-resolved photoemission spectroscopy, *J. Phys. Chem. Solids* **72**, 465-468 (2011), doi:10.1016/j.jpcs.2010.10.064.

15. T. Kanai and H. Harima, Fermi surfaces of LaFePO and the related compounds, *Physica C* **207** (Suppl. 1) (2010) S320–S321, doi:10.1016/j.physc.2009.11.030.

16. N. Kurita, T. Terashima, S. Uji, M. Kimata, K. Kodama, M. Tomita, H. Suzuki, T. Matsumoto, A. Harada, K. Murata, Phase Diagram of Pressure-Induced Superconductivity in EuFe_2As_2 Probed by High-Pressure Resistivity up to 3.2 GPa, *Phys. Rev B* **83**, 214513(2011), DOI: 10.1103/PhysRevB.83.214513.

17. M. Kimata, T. Terashima, N. Kurita, H. Satsukawa, A. Harada, K. Kodama, K. Takehana, Y. Imanaka, T. Takamasu, K. Kihou, C. H. Lee, H. Kito, H. Eisaki, A. Iyo, H. Fukazawa, Y. Kohori, H. Harima, S. Uji, Cyclotron resonance and mass enhancement by electron correlation in KFe_2As_2 , *Phys. Rev. Lett.* **107**, 166402 (2011), DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.166402.

*18. T. Terashima, N. Kurita, M. Tomita, K. Kihou, C. H. Lee, Y. Tomioka, T. Ito, A. Iyo, H. Eisaki, T. Liang, M. Nakajima, S. Ishida, S. Uchida, H. Harima, S. Uji, Complete Fermi surface in BaFe_2As_2 observed via Shubnikov-de Haas oscillation measurements on detwinned single crystals, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 176402 (2011), DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.176402.

永崎チーム合成の高品質 BaFe_2As_2 単結晶をデッインして Shubnikov-de Haas 振動の測定を行い、反強磁性状態のフェルミ面を完全に決定した。局所密度近似のバンド計算は反強磁性モーメントを過大に見積もるにもかかわらず、フェルミ面を基本的に正しく与えることが明らかになった。

(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

研究成果のポイントは二つ。一つは $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ 系の両エンドメンバー BaFe_2As_2 と KFe_2As_2 の量子振動測定に成功し、電子状態に対する電子相関の影響が二つの物質でかなり異なることを見出したこと。 BaFe_2As_2 のフェルミ面は局所密度近似のバンド計算で基本的に理解でき、電子相関による質量増強もせいぜい2-3倍である。一方、 KFe_2As_2 のフェルミ面はバンド計算の予想と顕著に食い違い、恐らく $\text{Fe } 3d$ の結晶場分裂が計算と実際で違うと推定される。また、質量増強も観測された主要フェルミ面で 3-7 倍と強い電子相関を裏付ける。鉄系超伝導体にお

ける電子相関の重要性は物質ごとにかなり異なり、個別の物質に即した丁寧な研究が必要であることを示している。二つ目は、 EuFe_2As_2 の圧力誘起バルク超伝導を確証しその詳細な相図を決定したこと。122 系の圧力誘起超伝導については、わずかな抵抗の落ちをもって超伝導と断定するずさんな論文が散見される中、当初から圧力の静水圧性に注意して精密な実験を行い信頼性の高いデータを示した自負している。必然的に乱れを伴うドーピングと異なり圧力はクリーンなチューニング法であり鉄系超伝導の本質を解明するのに重要な役割を果たしうる。そのための基礎となるデータを示した。

今後の展開としては、圧力、組成等をパラメーターとして、反強磁性状態から、それが消失し超伝導が発現するまでの電子状態の変化を、量子振動測定を通じて連続的に明らかにすることである。そのような研究は、超伝導発現前後での電子相関の影響の変化や軌道秩序の問題の解明に寄与するのみならず、鉄の反強磁性と超伝導の競合・共存の興味深い問題にフェルミ面の立場から貢献しうる(果たして小さいフェルミ面でも超伝導になるのか?)と期待している。

(5-2) その他

研究費の繰り越しが可能な点が大変良かった。