

Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ の超伝導の圧力と組成による制御

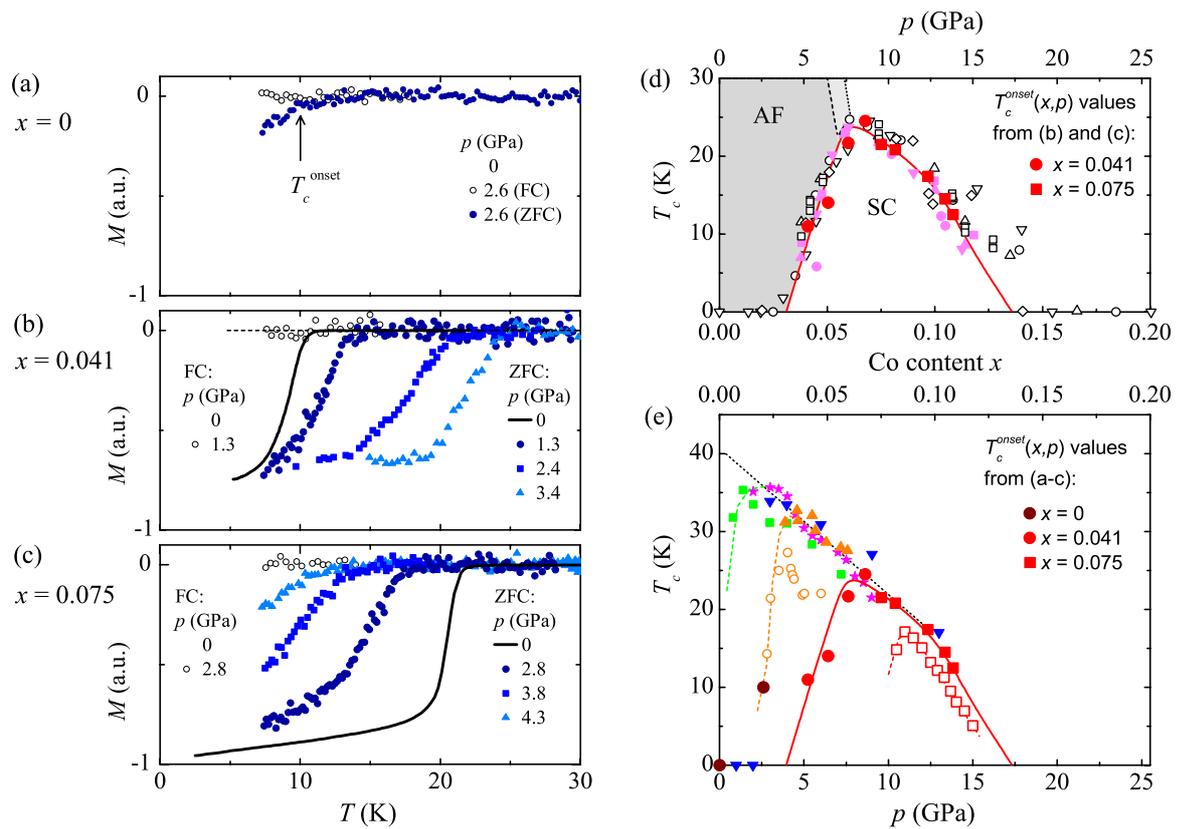
重い電子系化合物や銅酸化物超伝導体において、非通常型（通常の BCS 型ではない）超伝導が磁気秩序の近傍で観測されている。しかし、4f あるいは 5f 元素の金属間化合物である重い電子系化合物においては、超伝導転移温度が 1 K 程度であるのに対し、銅酸化物高温超伝導体の場合は、それが 100 K 程度に達している。銅酸化物高温超伝導体においては、互いに弱く結合した CuO₂ 擬 2 次元面がその超伝導を担っていると考えられているが、最近、鉄とプニクタイト元素から成る 2 次元面が同様に超伝導を担っていると考えられる新たな物質群が発見され、これらが、上記の 2 つのカテゴリの物質の間のギャップを埋めるのではないかと期待されている。特に、122 鉄砒素化合物 AFe₂As₂ (A=Ca, Sr, Ba) の場合は、その結晶構造が、典型的な重い電子系化合物 CeCu₂Si₂ のそれと同じ正方晶 ThCr₂Si₂ 型でありながら、その超伝導転移温度が比較的高い一方、超伝導を担うのが Fe₂As₂ 擬 2 次元面である点において銅酸化物超伝導体の場合との類似性を示している。この系の超伝導の母物質 BaFe₂As₂ は T_N ≈ 140K 以下の温度で斜方晶への構造相転移を伴って平行スピン反強磁性秩序を示す。この物質の Ba を K で置換していくと、この 2 つの転移は分離して低温側にシフトし、最高で T_C = 38K の超伝導が現れる。Fe を Co で置換しても Ba_{1-x}K_xFe₂As₂ と同様に超伝導が現れるが、T_C の最高値は 24K に減少する。K と Co による置換は、系にそれぞれ正孔と電子を注入していると考えられるので、これらの実験事実から、銅酸化物の場合と同様に、電荷キャリアが超伝導を制御していることが示唆されている。他方、AFe₂As₂ (A= Sr, Ba) の反強磁性母物質に対する高圧下において、重い電子系物質における圧力誘起超伝導と同様に、超伝導が観測され、構造変化のみで超伝導が誘起される可能性も示している。他方、重い電子系と銅酸化物超伝導体との類推で、これらの物質における超伝導の対形成に臨界磁気揺動が寄与している可能性が考えられる。

最近、Drotziger 等は Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ の超伝導の圧力依存性を調べて、この系の超伝導における電子ドーピング、構造変化および化学的乱雑性のそれぞれの効果の関連を解き明かすことを試みた。その際彼らは、超伝導の発現を熱力学的に確認するために、輸送測定を用いず磁化測定によりこれを行った。Fig.1(a-c) に、x = 0, 0.041 および 0.075 の単結晶に対する磁化の測定結果を示す。Fig.1(a) は、x = 0 の試料が、2.6GPa の圧力で、T_C(onset) ≈ 10K の超伝導を誘起していることを示している。x = 0.041 の試料は、p = 0 で、すでに T_C(onset) ≈ 11K の超伝導を示している。圧力下でこの超伝導転移温度は高温側にシフトしているが、T_C における磁化のとび ΔM はほぼ一定である。他方、x = 0.075 の試料 (p = 0 で T_C(onset) ≈ 21.5K) では、x = 0, 0.041 の場合とは逆に圧力の増加とともに転移温度は減少している。

Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ の T_C の x 依存性からみて、x = 0, 0.041 はアンダードー側であり、x = 0.075 はオーバードープ側にある。したがって上記の dT_C/dp の符号の反転は dT_C/dx の変化を反映しているとみなせる。Drotziger 等は実験結果を定量的に議論するために、T_C の p 依存性が x 依存性に比例すると仮定した (Fig.1(d))。その結果、Δp / Δx ≈ 1.275 GPa / at.%Co としたときに、データがひとつの相線の上に乗ることを見出した。彼らは、この事実を基にして、Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ の種々の構造パラメータと T_C の相関関係を子細に検討した結果、この物質においては、Fe-Fe 距離、As-Fe-As 結合角、Fe₂As₂ 層間距離 (プニクタイト

原子の高さ), 正方晶の軸比 c/a のいずれでもなく, 唯一 Fe-As 結合距離が T_C を決定する上でキーとなるパラメータであることを見いだした。

この Fe_2As_2 面における圧力とドーピング濃度のスケール性は, わずかな Zn 原子の CuO_2 面に対する添加が超伝導を直ちに抑制する銅酸化物超伝導体の振る舞いとは著しく対照的である。同様な $T_C(p)$ と $T_C(x)$ のスケール性が, 重い電子系 CeCoIn_5 の In サイトに Cd をドーブした際に観測されている。しかしながら, この系では Ce 副格子への磁性および非磁性イオンの置換が, T_C の急速な減少をもたらす。このような, 磁性・非磁性不純物による T_C の強い抑制効果は, 非通常型超伝導の顕著な特徴である。低 Co 濃度の試料の圧力下での T_C が高 Co 濃度の試料の $p=0$ における T_C に, 特に最大 T_C において, 一致する事実は, ドーピングによる化学的乱雑性が超伝導転移温度に影響を与えていないことを示しており, このことは, 超伝導ギャップが完全に開いていてノードがないことと矛盾が無い。Co ドープ試料の圧力下とは対照的に, これまでに種々報告された母物質 BaFe_2As_2 ($x=0$) の圧力下の T_C は, 低圧側で大きく異なっている (Fig. 1(e)) が, しかし, ほんのわずかな一軸性の圧力が磁気秩序を押しさえ超伝導の発現を低圧力側にずらすことが知られている。実際, 斜方晶結晶の双晶化を押しやることに成功した圧力下の BFe_2As_2 のすべての実験は, ほぼ同じ圧力依存性を示している。 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ において観測された x と p のスケールリングと合致して, それらの実験結果は, オーバードープ試料の $p=0$ における相線に沿って集まっており, Fig. 1(e) に示されているように, 磁気秩序の終端の違いによらず, 一つの共通の相線を描いているように見える。もし, オーバードープおよび最適ドープ領域の T_C 依存性を p (あるいは x) = 0 へ外挿すると, 最大 T_C は約 40K となるが, この値は 122 鉄ヒ素化合物のドープ試料において得られている最高の T_C に近いものである。この成果は, 日本物理学会が発行する英文誌 *Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)* の 2010 年 12 月号に掲載された。



論文掲載誌 J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) No.12, p. 124705

電子版 <http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/79/124705> (12月10日公開済)

<情報提供 : Kai Grube (Karlsruher Institut für Technologie)>