

研究課題名

高い反強磁性転移温度をもつ鉄系化合物 TlFe_2Se_2 の磁性

研究代表者名

九州工業大学・大学院生命体工学研究科・飯久保 智

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・藤田 全基

1. はじめに

超伝導転移温度 T_c が 50K を超える新規 Fe 系高温超伝導体は、その超伝導発現メカニズムに関して大きな注目を集めている。高い T_c の起源について現在盛んに議論がなされているが、そのうち最も注目を集めているのが磁気揺らぎである。FeAs 系を用いた中性子非弾性散乱では逆格子点(1/2,1/2,1/2)に強い磁気散乱が観測され、超伝導発現に関連があるのではないかと考えられている。申請者らのグループでも類似の結晶構造を持つ $\text{Fe}(\text{Se}_{1-x}\text{Te}_x)_y$ について磁気励起スペクトルの研究を行い、超伝導相では同じ逆格子点(1/2,1/2,1/2)に磁気散乱が観測されることを報告してきた。磁気揺らぎによる超伝導というシナリオのもとで考えると、その超伝導転移温度の上限を決定する重要な因子は磁気相互作用である。これまでに報告されている反強磁性秩序温度は高いもので高々150K程度であり、それが室温を超える銅酸化物と比較すると低く、超伝導転移温度の大幅な増加も期待できない。

申請者らは類似の結晶構造を有する TlFe_2Se_2 が、450K という大変高い反強磁性秩序温度を有する点に着目した。この系に対する研究報告はこれまでのところほとんどなされておらず、わずかにメスバウアー、第一原理計算の報告があるのみである。元素置換による超伝導化なども期待され、大変興味深い系であると考えている。本研究の目的は、 TlFe_2Se_2 の電子状態の詳細を詳細な試料評価、中性子散乱・電子状態計算を組み合わせることにより明らかにし、高い磁気転移点に寄与する電子状態の全貌を明らかにすることである。

2. 研究経過

昨年度までに整備した試料作成環境に改良を加えながら、試料作成を試みた。まずグローブボックス内で Fe と Se を 1 : 1 の組成比で混合し、ペレットに成形後、石英管に真空封入して 500°C 前後の温度域で焼結を行った。また電子状態計算に関しては、さまざまな類似化合物の磁気特性の計算に着手した。具体的には $\alpha\text{-Fe}$, $\gamma\text{-Fe}$, Fe_{16}N_2 を始め、 Fe_4N 等の逆ペロフスカイト型化合物、 Fe_2P 型化合物の元素を様々な遷移金属や軽元素で置き換えた化合物群についての電子状態計算を行った。計算は主に VASP コードを用いて磁性計算手法の詳細な検討を行った。

3. 研究成果

物質合成の結果、 TlFe_2Se_2 の前駆体として使用する FeSe の合成段階で克服すべき課題が見つかった。複数の条件下で焼結を行ったが、結果として全て Fe_7Se_8 が安定相として観測された。過去の文献を参照したところ、Fe-Se2 元系においても状態図が完全には決定されていないため、この点について今後状態図計算の研究テーマとして検討すること必要と考えられる。FeSe 相の安定性を明らかにした上で、今後 Tl を加えた 3 元系へと展開していきたいと考えている。電子状態計算の結果では、先行研究とコンシステントな結果が得られる段階まで習熟することができた。例えば Fe に固有の高スピン-低スピン状態の遷移などの再現された。また巨大磁気モーメントを有するとして注目されている Fe_{16}N_2 について、第一原理計算との差異が生じていることが既に報告されているが、この点についても再現することができた。さらには μeV オーダーのエネルギースケールを有する結晶磁気異方性エネルギーについても良好な計算が可能となり、逆ペロフスカイト型化合物、 Fe_2P 型化合物における磁石材料開発へと展望を開くことができた。

4. まとめ

超伝導体という観点からスタートした本研究課題であったが、課題を遂行する過程で磁性材料としての可能性にも注目して、多角的な視野から Fe 系化合物についての相安定性、磁気特性の検討を行った。新規磁性化合物探索をする上で重要な状態図、また磁気特性計算の手法開発において新しい知見を得ることができた。