



平成 26 年 3 月 4 日

東京工業大学 広報センター長
大谷 清

鉄系超伝導体の絶縁体親物質が 電界により金属状態へ転移 — 超伝導転移温度の高温化に手がかり —

【概要】

東京工業大学元素戦略研究センターの細野秀雄教授らの研究グループは、鉄系超伝導体(用語 1)物質群の中では唯一のモット絶縁体(用語 2)である層状セレン化合物 $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ (Tl:タリウム、Fe:鉄、Se:セレン)に着目し、電気二重層トランジスタ(用語 3, 4)構造を利用して、外部電界の印加によって、超伝導現象の予兆とも言える金属に近い状態まで相転移させることに成功した。

今回の結果は、鉄系層状物質で初めて観察された電界誘起相転移である。トランジスタ構造を利用したキャリア生成方法は、一般的な不純物の添加によるキャリア生成とは異なり、自由にかつ広範囲にキャリア濃度を制御できるという特徴がある。従って、元素置換によるキャリア添加が不可能な物質であっても適用が可能であることから、今後の鉄系層状物質のより高い超伝導転移温度を実現する有力な方法になるものと期待される。

この成果は、3月4日(米国時間3日)に「米国科学アカデミー紀要(Proceedings of the National Academy of Science of the United States of America)」のオンライン速報版に掲載された。

●背景

超伝導とは、ある温度(転移温度)以下で電気抵抗がゼロになる現象である。2008年2月に細野教授らの研究グループが発見した新超伝導体 LaFeAsO (La:ランタン、Fe:鉄、As:ヒ素、O:酸素)は「鉄系超伝導体」と称され、その発見直後、磁性元素である鉄を含むにもかかわらず、ヒ素と組み合わせることで、高い温度で超伝導を示すという意外性に注目が集まった。現在の最高転移温度は55ケルビン(K、0Kはマイナス273.15度C)に達し、銅酸化物超伝導体(用語 5)の130Kの次に高い温度となっている。

銅酸化物と鉄系超伝導体は、超伝導体となる前のもとなる親物質(母相)

が反強磁性体（用語 6）であり、電子もしくは正孔を添加することによってその反強磁性の磁気的な秩序を消失させることで、超伝導が発現するという共通点をもつ。ところが、母相の性質として根本的に異なる点も知られており、銅酸化物は電子構造としてはエネルギーギャップを持つ「モット絶縁体」であるのに対し、鉄系物質のほとんどはギャップを持たない「金属」である。

そこで、本研究では、鉄系層状物質の中では唯一のモット絶縁体であり、かつ元素置換による電子の添加では超伝導体とはならないことが知られている $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ に着目し、外部から電界をかけて高濃度の電子を誘起することによって、絶縁体から金属のように電気がよく流れる状態、そしてさらには超伝導状態までの実現に挑戦した。

●研究成果

$\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ という化合物は、図 1(a,b) に示すように基本構造は $\text{Tl}:\text{Fe}:\text{Se}$ の組成比が 1:2:2 の 122 型と呼ばれる層状構造が基本である。ところが、形式的な電荷 ($\text{Tl}: 1+, \text{Fe}: 2+, \text{Se}: 2-$) を考えた場合、この 122 型基本構造では電気的中性を満足しない。そこで Fe の位置に空孔（鉄が存在しない場所）を生成し、基本構造に対して $\sqrt{5} \times \sqrt{5} \times 1$ 倍の $\text{Tl}_2\text{Fe}_4\text{Se}_5$ (245 型) という化合物になる。そしてその空孔が規則配列する場合とランダム相が混在する場合があることがバルクの単結晶で報告されている。この空孔が規則配列したものが、モット絶縁体としての振る舞いを示す。本研究でパルスレーザー堆積法（用語 7）により作製した $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ 薄膜は、上記の空孔サイトが規則配列した構造を有していた（図 1(c)）。

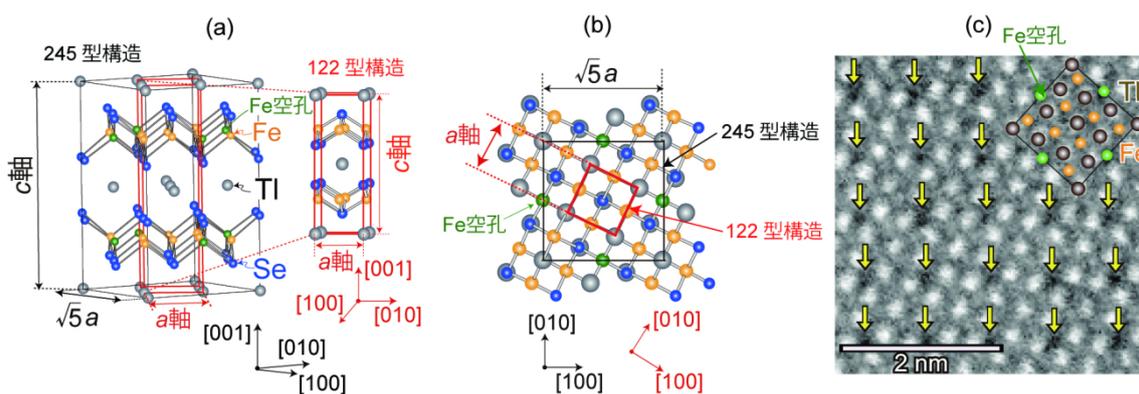


図 1: (a, b) $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ 結晶構造図。もとななる 122 型構造に対して、 $\sqrt{5} \times \sqrt{5} \times 1$ 倍の $\text{Tl}_2\text{Fe}_4\text{Se}_5$ (245 型) 構造中では、その中に存在する 16 個の鉄のうち 4 個が空孔（鉄が存在しない場所）となり、その鉄空孔は規則的に配列している。(c) 本研究で作製した $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ 薄膜の電子顕微鏡写真。鉄空孔は最も暗く写っており（図中黄色矢印）、それらが確かに規則的に配列している様子がわかる。

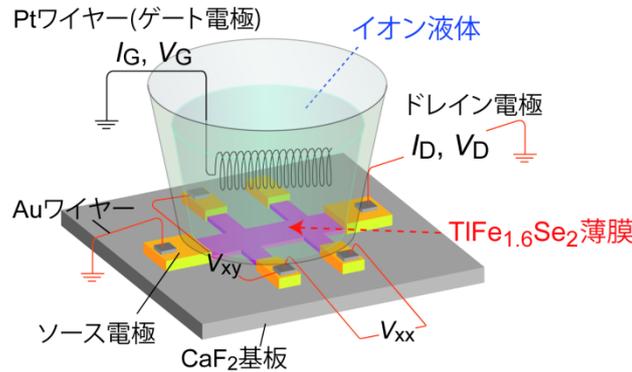


図 2: 本研究で作製した電気二重層トランジスタの概略図

外部からの電界印加方法としては、電気二重層トランジスタ構造（図 2）を用いた。6 端子状に形成した厚さ 20 ナノメートルの極薄の $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ 薄膜上に、ゲート絶縁体として働くイオン液体（用語 8）を流し込み、コイル状の白金で作製したゲート電極から外部電界（ゲート電圧）を印加し、 $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ 薄膜の表面に最大で $2.5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ （1 平方 cm 当たり）の伝導電子を誘起することに成功した。

その結果、図 3 に示すように、ゲート電圧を印加しない場合（0 ボルト）は絶縁体に特徴的な、温度が下がると電気抵抗が上昇する様子が観察されたのに対して、2 ボルト以上のゲート電圧を印加した場合には、特に低温域での電気抵抗の大幅な低下と共に、50 K 近傍に電気抵抗の「こぶ」が観察され（図中の矢印）、最大の 4 ボルト印加時には抵抗の温度依存性がほぼ消滅し、まるで金属のような電気抵抗の温度依存性を示した。

この結果は、超伝導転移直前の予兆とも言えるモット絶縁体から金属へ、もしくはこの物質に特有の磁気的な「相転移」が外部電界で制御できていることを示している。

●今後の展望

今回の結果は、鉄系層状母物質で初めて観察された外部電界誘起相転移であり、より高い超伝導転移温度の鉄系超伝導体の探索の新しいルートを提供するものと言える。

なお、この成果は、最先端研究開発支援プログラム（FIRST プログラム）および元素戦略プロジェクト＜研究拠点形成型＞により助成されたものである。

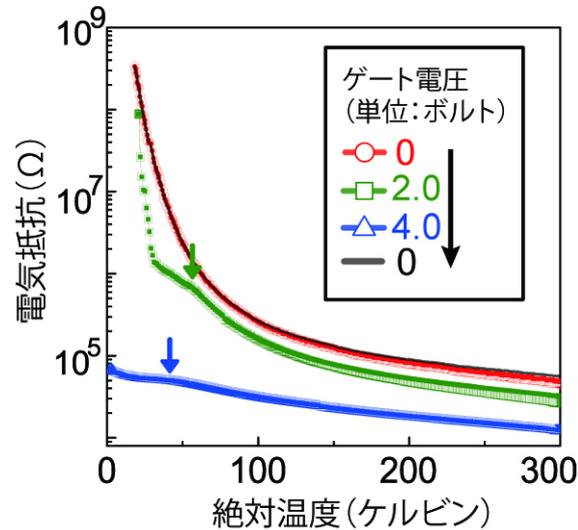


図 3: 電気二重層トランジスタに外部電界（ゲート電圧）を印加した場合の $\text{TIFe}_{1.6}\text{Se}_2$ 薄膜の電気抵抗の温度依存性

【用語説明】

1. 鉄系超伝導体：鉄を主成分として含む化合物の中で超伝導転移を示す層状化合物の総称で、超伝導を担う構造として FeAs または FeSe 層をもつ。
2. モット絶縁体：電子同士の静電反発が強いことが要因となって、絶縁体の状態（ギャップが開いた状態）になっている物質の総称。
3. トランジスタ：ゲート電極／ゲート絶縁体／半導体の3層構造に代表される電子デバイスで、ゲート電極に電圧を印加することによってゲート絶縁体の電気容量に依存した伝導変調を半導体中に誘起することができる。
4. 電気二重層トランジスタ：通常のトランジスタは、ゲート絶縁体として非晶質酸化物などの無機固体化合物が利用されるのに対し、ゲート絶縁体としてイオン性の電解液（イオン液体，用語説明 8 参照）を使うトランジスタ。1 ナノメートル以下の厚さの非常に薄い絶縁層がゲート絶縁体として働くために、非常に大きな電気容量を得ることができる。具体的には、通常の固体無機化合物をゲート絶縁体とした場合よりも2桁高い、最大 10^{15} cm^{-2} に及ぶ伝導キャリアを蓄積できる。
5. 銅酸化物超伝導体：1986年に発見された銅（Cu）と酸素（O）を含む超伝導体の総称で、結晶構造の中に CuO_2 面を有するという特徴がある。
6. 反強磁性体：隣接する磁気モーメント（スピン）が互いに反平行に整列している物質。

7. パルスレーザー堆積法：パルス状のレーザー光を、ある一定の間隔でバルク体ターゲット材料に照射することで、ターゲットから原子（分子）の引き剥がし（アブレーション）を行い、ターゲットに対向する基板上に薄膜を形成する手法
8. イオン液体：陽イオンと陰イオンが常温付近で液体として存在するイオン性物質

【論文名、掲載誌および著者】

・タイトル：Electric double-layer transistor using layered iron selenide Mott insulator $\text{TlFe}_{1.6}\text{Se}_2$ （和訳：層状鉄セレン化物モット絶縁体を使った電気二重層トランジスタ）

・掲載誌：Proceedings of the National Academy of Science of the United States of America

・著者：Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Toshio Kamiya, and Hideo Hosono

【問い合わせ先】

平松秀典(ヒラマツ ヒデノリ)

東京工業大学 応用セラミックス研究所／元素戦略研究センター

電子メール：h-hirama@lucid.msl.titech.ac.jp

電話：045-924-5855

細野 秀雄(ホソノ ヒデオ)

東京工業大学 フロンティア研究機構／元素戦略研究センター

電子メール hosono@msl.titech.ac.jp