

水素置換鉄系超伝導体で発見された新たな秩序相の構造物性研究

真木祥千子

東京工業大学元素戦略研究センター 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町4259

山浦淳一

東京工業大学元素戦略研究センター 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町4259

飯村壮史

東京工業大学応用セラミックス研究所 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町4259

松石 聡

東京工業大学元素戦略研究センター 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町4259

村上洋一

KEK 物質構造科学研究所構造物性研究センター 〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

細野秀雄

東京工業大学応用セラミックス研究所 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町4259

要旨

2008年に発見された鉄系超伝導体は、銅酸化物系に続く新しい超伝導ファミリーである。最初に報告された鉄系超伝導体において、最近、新しい秩序相の存在が明らかになった。この秩序相は、鉄系超伝導体における転移点上昇の鍵になる可能性を有している。本稿では、結晶作製の進展に伴い大幅に更新された電子状態図を示し、放射光 X線回折、分光を用いた測定から得られた秩序相の平均構造と局所構造について紹介する。

1. はじめに

超伝導は、その劇的な相転移現象と産業への大きな波及効果が期待されるため、現代科学における重要な研究対象となっている。1986年に発見された銅酸化物系物質群が長らくその任を負ってきたが¹⁾、2008年、神原らによって、超伝導と最も相性が悪いと思われてきた鉄の化合物から新たな超伝導体 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ が報告された²⁾。この発見を契機として、鉄ニクタイトド、鉄カルコゲナイドを基本骨格とする新たな超伝導体が多数報告され、今も激しい研究競争の中で膨大な数の論文が生み出され続けている²⁻⁷⁾。

主な鉄系超伝導体は、銅酸化物系同様に結晶構造によるグループ分けが可能である。Fig. 1(a)は、 LnFeAsO (Ln = ランタノイド) で、元素の組成比をとって1111系と呼ばれる。物性を主に担うのは、 FeAs_4 四面体が辺共有した二次元層であり、 OLn_4 絶縁層と交互積層して結晶構造を形成している。最初に発見された $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ²⁾ やバルク体で最高の超伝導転移点 $T_c = 55 \text{ K}$ を持つ $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ は⁶⁾、この物質群に属する。Fig. 1(b)は、 AEFe_2As_2 (AE = アルカリ土類金属) で122系と呼ばれ、単結晶育成が容易なことから盛んに研究されている。また、砒素を他

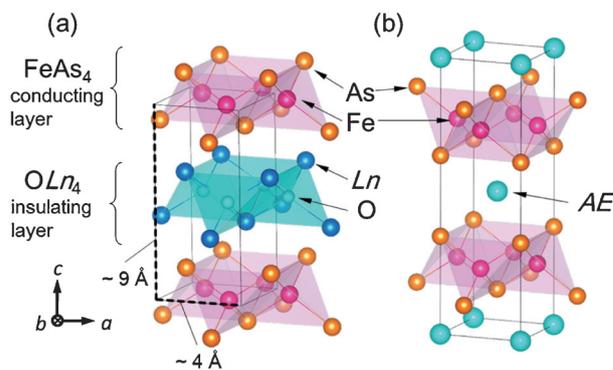


Fig. 1 (Color online) Crystal structure of (a) 1111-type LnFeAsO , and (b) 122-type AEFe_2As_2 .

のニクトゲンに置き換えることも可能である。この他にも、絶縁層のない鉄カルコゲナイドの11系などの系列物質が存在する²⁻⁷⁾。本稿では、最も“古典的な” LaFeAsO において見出された新しい秩序について取り挙げる。

2. 高濃度電子ドーピングによる LaFeAsO 相図の更新

Fig. 2 にフッ素/水素置換 LaFeAsO の電子相図を示す。 $x=0$ つまり LaFeAsO では、173 K の正方晶-直方晶 (斜方晶) 構造転移の後、155 K 以下で反強磁性相 (AF1 相) が現れる。ノンドープの高温超伝導体における反強磁性状態は母相とよばれ、最も電子/磁気相関が強い状態である。ここに、絶縁層の酸化物イオン O^{2-} を価数が異なるフッ化物イオン F^- で置換し鉄原子に電子をドーピングすると、電子/磁気相関が弱まり $x \sim 0.04$ で AF1 相が消失する。その後すぐに超伝導相が現れ、 $x \sim 0.07$ で超伝導転移温度は最高値 $T_c = 27$ K を示す²⁾。しかし、フッ素の最大置換量は 20% であったため、より広い範囲でドーピング量を制御したいという願いは発見以来叶わなかった。そこで筆者らの一人が元々持っていたアイデア—酸素サイトを水素化物イオン H^- で置換することで新しい機能をつくる—を本物質に適用することにした⁸⁾。結果として、高圧下における固相反応法を用いて $LnFeAsO_{1-x}H_x$ の結晶を作製し、50% にも及ぶ広範囲の水素置換に成功している⁹⁻¹²⁾。

低濃度域、 $0 \leq x \leq 0.2$ 、において、LaFeAsO_{1-x}H_x はフッ素置換と同様の電子相図を示す。 $x=0.2$ よりさらに電子をドーピングしていくと、 T_c は再度上昇し $x \sim 0.35$ で 36 K の最高値を示した後、 $x \sim 0.45$ で超伝導は消失する。したがって、LaFeAsO_{1-x}H_x の超伝導相は $0.04 \leq x \leq 0.2$ に第一相 (SC1)、 $0.2 < x \leq 0.45$ に第二相 (SC2) を持つことになる。一般に、高ドーピング域では電子/磁気相関が弱まり常磁性の金属相が現れるため、2 つのドームを有する超伝導体は稀有な例といえる。

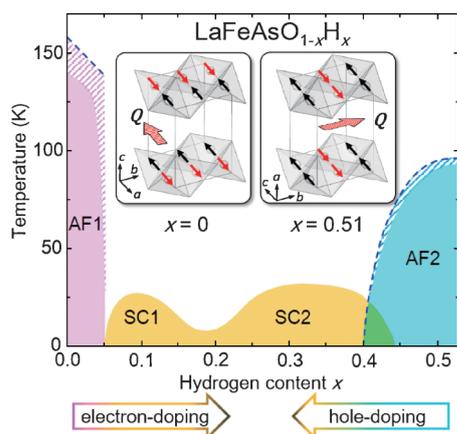


Fig. 2 (Color online) Magnetic, structural, and superconducting phase diagram of LaFeAsO_{1-x}H_x (F). Antiferromagnetic phases (AF1, AF2), the superconducting phases (SC1, SC2), and a coexisting phase of AF2 and SC2 are shown. Dashed lines indicate structural transition temperatures. The spin arrangements on Fe atoms in AF1 and AF2, and the in-plane antiferromagnetic propagation vector, Q , are illustrated.

我々は最近、SC2 相のさらに高ドーピング域 ($0.4 \leq x \leq 0.51$) で新たな磁気秩序相 (AF2 相) を発見した¹³⁻¹⁵⁾。AF2 相の決定には、ミュオンスピン回転/緩和法 (μ SR) を用いて多数の組成について磁気転移温度を迅速に決定し、中性子線回折により詳細な磁気構造を明らかにした。Fig. 2 に $x=0$ と 0.51 における鉄原子上の磁気構造を示す。いずれも格子整合のコリニアなストライプ型反強磁性スピン配列である。 $x=0$ でのスピン m は面内成分のみに着目した磁気伝搬ベクトル Q と平行 ($m \parallel Q$) に配列するが^{16,17)}、 $x=0.51$ で両者は直交 ($m \perp Q$) する。また、鉄の磁気モーメントの大きさは、 $0.63 \mu_B$ ($x=0$) と $1.2 \mu_B$ ($x=0.51$) と、高ドーピング側の秩序相においては 1111 系中で最大の値を示し¹⁸⁾、電子ドーピングするほど電子/磁気相関が増大することを示唆している。

3. 高ドーピング域における新たな構造秩序の発見

2 章の最初で述べたように、 $x=0$ の AF1 母相は構造転移を伴う。これは、多くの鉄系超伝導体に見られる性質で、電子、スピに加えて、結晶構造が超伝導の起源に重要な役割を果たしていることを想起させる。そこで、磁気秩序相における構造変化の有無を調べるため、PF-BL8A/8B にて放射光 X 線回折実験を行った。Fig. 3(a) に LaFeAsO_{1-x}H_x 粉末試料の X 線回折プロファイルを示す¹³⁻¹⁵⁾。室温における結晶構造は正方晶、 $P4/nmm$ の空間群をもつため、転移に伴う格子変化は、220, 200, 006 反射を見るとよい。結果として、 $x=0.51$ の 220 反射のみ低温で線幅のブロードニングを起し、200 や 006 反射の線幅には変化はないことが判明した。これは、 $a=b$ のまま、格子の ab 面の対角が非等価、つまり ab 面は菱形になることを意味している。この菱形に変形した格子は C 底心の直方晶で取り直すことができる。したがって、 $x=0.51$ では、AF1 相と同じく正方晶-直方晶転移が存在することが分かった。

$x=0$ では、構造転移温度 (T_s) は磁気転移温度 (T_N) より約 20 K 高い。 $x=0.51$ でも状況は同じであろうか。Fig. 3(b) (c) に $x=0.51$ の格子定数と正方晶からの格子歪みを表す直方晶度 ($(b_0 - c_0)/(b_0 + c_0)$)、及び、中性子線回折から得られている磁気反射強度の積分値の温度変化を示す。 T_s と T_N はそれぞれ 95, 89 K と見積もられるため、 $x=0$ と比べ非常に転移温度が近い。また、43 K における直方晶度は 0.19% で、 $x=0$ の 0.24%¹⁷⁾ や BaFe₂As₂ の 0.4%¹⁹⁾ と比べて小さく、格子歪みが小さいことがわかる。なお、 $x=0.51$ から水素置換量を減らしていくと、直方晶度、磁気/構造転移点ともに減少する (Fig. 2)。

次に、低温相の結晶構造を考察してみる。 $P4/nmm$ (No. 129) の部分群のうち消滅則を保持し、前述の格子歪を有するものは、 $Cmme$ (No. 67) と $Aem2$ (No. 39)

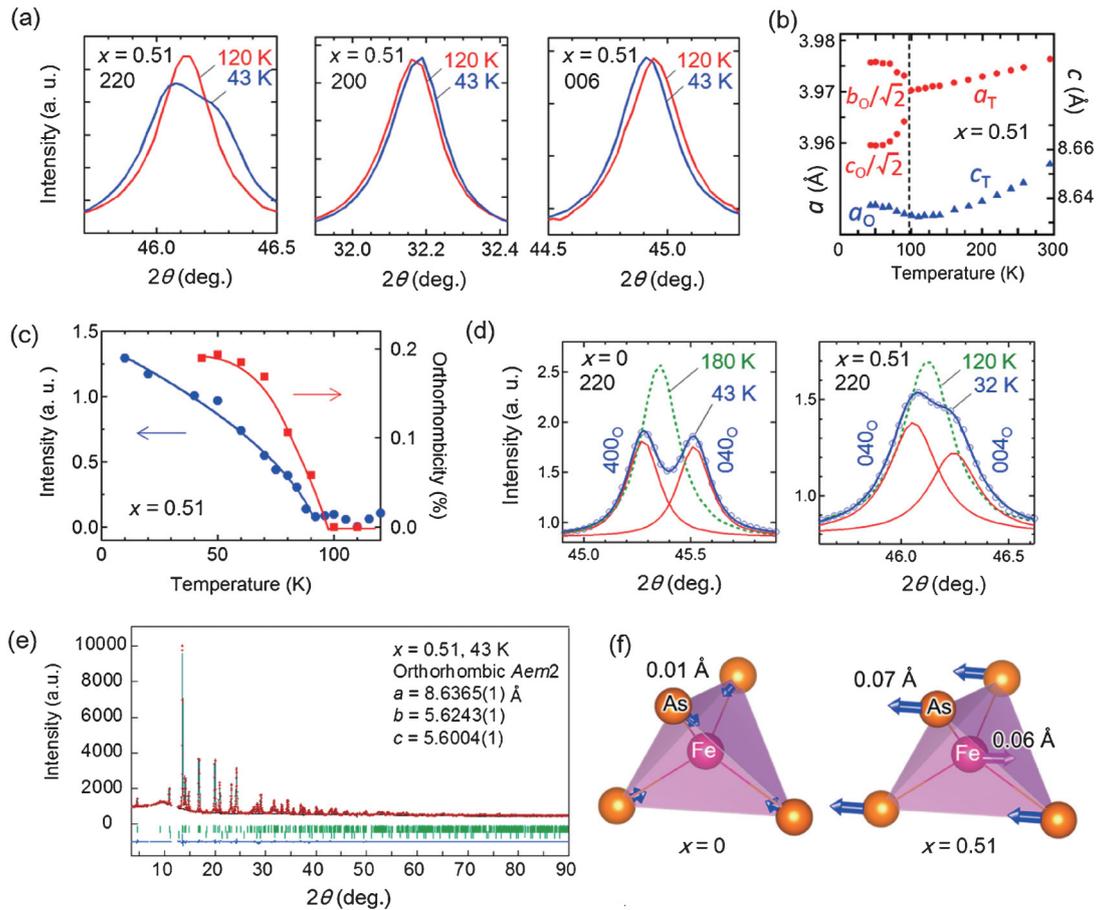


Fig. 3 (Color online) (a) X-ray profiles for 220, 200, and 006 reflections for $x=0.51$. (b) Temperature dependence of lattice parameters for $x=0.51$. The orthorhombic phase, the values of b_0 and c_0 are divided by $\sqrt{2}$. The cell setting in $x=0.51$ changes as $a_0=c_T$, $b_0=a_T+b_T$ and $c_0=-a_T+b_T$. (c) Temperature dependence for the intensity of the magnetic Bragg reflection and orthorhombicity. (d) X-ray profiles for 220 reflections in $x=0$ and $x=0.51$. (e) X-ray diffraction pattern on Rietveld refinement for $x=0.51$ in the structural ordered phase. (f) Atomic displacements on $FeAs_4$ tetrahedra for $x=0$ and $x=0.51$ through the structural transitions.

に絞られる。前者は、 $x=0$ のAF1相における空間群である。**Fig. 3(d)**に $x=0$ と $x=0.51$ の220反射のプロファイルを並べた。直方晶への転移に伴って2つに分裂したピークそれぞれの積分強度は、 $x=0$ では等価であるのに対して、 $x=0.51$ では非等価である。これは、 $x=0.51$ の分裂後の一方のピークである 004_0 の構造因子にのみ、対称中心の破れに伴う虚数項の混入が生じたためである^{13,15}。つまり、前者が反転対称中心を保持し、後者が対称中心を破っていることを意味する。したがって、 $x=0.51$ の秩序相の空間群は $Aem2$ と判明した。**Fig. 3(e)**に $x=0.51$ の低温相におけるX線回折データと、RIETAN-FPを用いたRietveld解析の結果を示す。原子変位を $FeAs_4$ 四面体に注目して見てみる(**Fig. 3(f)**)。 $x=0$ における $FeAs_4$ 四面体は結晶全体では対称中心を保持しているため、鉄原子は転移前後で変位しない。そのため、砒素原子は転移に伴い約0.01 Å変位するが、Fe-As原子間距離は4本とも等価のままである。一方、 $x=0.51$ では、対称中心の破れに伴い、FeとAs原子はそれぞれ、約0.06 Åと0.07 Åだけ逆位相で変位

し、構造秩序相で2種類のFe-As結合距離を持つようになる。このような対称中心を破る構造転移は、鉄系超伝導体では初めてであり、 $x=0$ の母相と異なる非常に珍しい構造秩序の存在が明らかになった。

さて、AF2磁気秩序相で構造転移を伴うということは、この相が一種の超伝導母相とみなせることを意味する。通常、母相はノンドープ近傍の状態を指すが、本物質の場合、何らかの理由で高ドープ域において再び電子/磁気相関が強まり、新しい母相が出現したと思われる。この考えに基づくと、SC2超伝導相は、SC1の高ドープ側に特異的に出現したというよりAF2母相への“ホールドープ”で出現したと考えられ、2ドームの超伝導相の存在を自然に説明できる(**Fig. 2**)。

AF2相出現の起源はまだよくわかっていないが、砒素原子の鉄面からの高さ h_{As} が重要と考えられる。 h_{As} の値によりバンド構造が大きく変化することが知られている²⁰⁻²³。LaFeAsO_{1-x}H_xでは、 h_{As} は1.31 Å ($x=0$)から1.42 Å ($x=0.51$)へ増大している¹¹。この結果、 $FeAs_4$

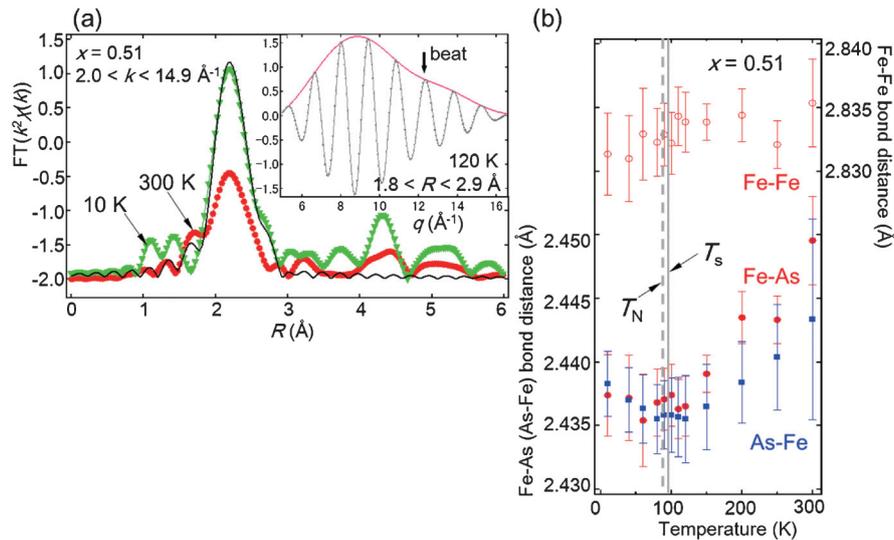


Fig. 4 (Color online) (a) Magnitude of the Fourier transforms for EXAFS oscillation spectra on the Fe K-edge for 300 K and 10 K. Solid line shows the result of R-fitting for the data at 10 K. Inset shows the amplitude and the real part of the q -spectrum which is obtained by transforming R-spectrum in the first shell, $1.8 < R < 2.9 \text{ \AA}$ at 120 K. (b) Temperature dependence of the Fe-Fe, Fe-As, and As-Fe bond distances. Solid and dashed lines show the structural transition temperature (T_s) and the Néel temperature (T_N), respectively.

は正四面体に近づくためバンドの縮重度は高くなり、軌道秩序が起き易くなっている可能性がある。鉄系では、超伝導電子対形成の起源をスピンではなく軌道のゆらぎとするアイデアもあり²⁴⁾、それとの関連も興味深い。しかし、相図全体を統一的に記述できる理論的説明はまだなく、今後明らかにしていく必要がある²⁵⁻²⁷⁾。

4. EXAFS 解析による秩序構造の観察

粉末 X 線構造解析で得られた秩序相の平均構造と局所構造の違いを見るため、EXAFS 解析を行った。測定は PF-BL9C にて、 $x = 0.51$ 粉末試料を鉄と砒素の K 吸収端で透過法を用いて行い、解析にはソフトウェア Athena 及び Artemis を用いた。Fig. 4(a) は、鉄の吸収端実験における k 空間の EXAFS 振動を、 $2.8 \leq k \leq 15.8 \text{ \AA}^{-1}$ の範囲で Fourier 変換して得た R 空間の $FT(k^2\chi(k))$ プロファイル (R -スペクトル) である。フィッティングは室温構造を元に $1.8 \leq R \leq 2.8 \text{ \AA}$ の範囲で、第一近接の Fe-As と第二近接の Fe-Fe の 2 つの散乱経路を含む形で行った。その結果十分な精度で、各構造パラメータを得ることができた。

Fig. 4(b) に、鉄の吸収端実験から得られた Fe-As と Fe-Fe 間距離、および、砒素の吸収端実験から得られた As-Fe 間距離の温度依存性を示す。Fe-As (As-Fe) 間距離に、構造転移点 $T_s \sim 95 \text{ K}$ に異常が観測された。3 章で述べたように、 $x = 0.51$ の秩序相で Fe-As 距離は 2 種類になる。EXAFS の解析では、低温域でも高温側の構造モデルを用いているので結合長の異常としてのみ検出できたと考えられる。このような異常は、秩序相において Fe-As

距離の等価な $x = 0$ では観測されていない²⁸⁾。また、 $x = 0.51$ の Fe-Fe 間距離には $T = T_s$ で明瞭な変化はないが、 $T < T_s$ で標準偏差の増大が見取れる。一方、 $x = 0$ では Fe-Fe 間距離の平均二乗変位に明瞭な異常が見られる。Fe-Fe 間距離は格子歪と対応するので、格子歪がやや大きい $x = 0$ と、原子の変位量は大きい格子歪は小さい $x = 0.51$ の違いを反映している。したがって、EXAFS 解析から得られた局所構造の変化は、XRD による平均構造の解析結果とよく一致していると言える。

次に、Fig. 4(a) の挿入図に、120 K、 $x = 0.51$ における R -スペクトルの第一シェルを逆 Fourier 変換して得られた q 空間のスペクトルを示す。これは、 R -スペクトルの第一シェルに関わる Fe-Fe、および、Fe-As 間の散乱経路の寄与を波数空間のスペクトルに焼直すことに相当する。赤色の実線で示した振幅の形状は、約 12 \AA^{-1} でくびれている。これは、室温では見られず、正方晶-直方晶転移温度より高い温度領域から 10 K まで観測された。このくびれは、Fe-As 距離が 2 種類存在しているために位相の差として現れた「うなり (beat)」で、その値は、秩序相における 2 種類の Fe-As 距離の差に相当する。As K-edge のデータにも同様のうなりが観測された。以上の結果は、構造転移温度よりも高温から局所構造の歪みが存在していることを示唆する。このような、構造転移よりも高温側への構造揺らぎの広がりにはネマチック相と呼ばれ、122 系の $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ を始めとして²⁹⁾、幾つかの鉄系超伝導体、銅酸化物超伝導体において観測されているが、詳細な起源はまだよくわかっていない。本物質でもそのような新しい形の揺らぎと関連があれば面白いと思う。

5. おわりに

本稿では、LaFeAsO という、最初に発見された鉄系超伝導体の典型物質の高濃度電子ドープ域に隠されていた新たな秩序相を紹介させて頂いた。この研究の背景には、新しい結晶作製法を用いた合成法の進展と、放射光 X 線、及び、今回はほとんど紹介できなかったが、中性子とミュオンの量子ビームを同時に使うマルチプローブ測定の大きな貢献があった。それらの詳細な結果は、論文を参考にして頂きたい¹³⁻¹⁵⁾。鉄系の1111系は、現在、バルク体最高の $T_c = 55$ K を示す SmFeAsO_{0.9}F_{0.1}や⁶⁾、高圧下 6 GPa において $T_c = 52$ K を示す LaFeAsO_{0.82}H_{0.18} が属する物質群であり³⁰⁾、いわば研究者が踏破すべき最も高い山である。しかし、単結晶試料が手に入り辛いいため、これまでの研究の主流は122系にあった。本研究では、放射光や量子ビームを使った精度の高い測定によって、粉末試料であっても、新たな電子相とその興味深い性質を明らかにできた。本稿で紹介した高ドープ側の新しい母相は、1111系における高い T_c と密接な関連があるに違いないと考えており、さらなる研究の進展に期待している。

謝辞

本研究の成果は、平石雅俊、小嶋健児、宮崎正範、山内一宏、幸田章宏、門野良典、平賀晴弘、鳥居周輝、石川善久、Ping Miao、池田一貴、神山崇、大友季哉、吉田雅洋、水木純一郎、石井賢司、熊井玲児、阿部仁の各氏との共同研究に基づくものです。この研究は、元素戦略プロジェクト「東工大元素戦略拠点」、および、KEK 実験課題 2013S2-002, 2009S05, 2009S06, 2013A3502, 2014V002 のサポートを受けて行われました。

参考文献

- 立木 昌, 藤田敏三: 高温超伝導の科学 (裳華房, 1999); J. S. Brooks and J. R. Schrieffer: Handbook of High-temperature superconductivity: Theory and Experiment (Springer, 2007).
- K. Kamihara T. Watanabe, M. Hirano and H. Hosono: J. Am. Chem. Soc. **130**, 3296 (2008).
- 細野秀雄, 松石 聡, 野村尚利, 平松秀典: 日本物理学会誌 **64**, 807 (2009).
- 前田京剛, 今井良宗, 高橋英幸: 固体物理 **46**, 453 (2011).
- J. Paglione and R. L. Greene: Nature Phys. **6**, 645 (2010).
- X. Chen, P. Dai, D. Feng, T. Xiang and F.-C. Zhang: Natl. Sci. Rev. **1**, 371 (2014).
- Z. A. Ren, W. Lu, J. Yang, W. Yi, X. L. Shen, Z. C. Li, G. C. Che, X. L. Dong, L. L. Sun, F. Zhou and Z. X. Zhao: Chin. Phys. Lett. **25**, 2215 (2008).
- K. Hayashi, S. Matsuishi, T. Kamiya, M. Hirano and H. Hosono: Nature **419**, 462 (2002).
- T. Hanna, Y. Muraba, S. Matsuishi, N. Igawa, K. Kodama, S. Shamoto and H. Hosono: Phys. Rev. B **84**, 024521 (2011).
- S. Matsuishi, T. Hanna, Y. Muraba, S. W. Kim, J. E. Kim, M. Takata, S. Shamoto, R. I. Smith and H. Hosono: Phys. Rev. B **85**, 014514 (2012).
- S. Iimura, S. Matsuishi, H. Sato, T. Hanna, Y. Muraba, S. W. Kim, J. E. Kim, M. Takata and H. Hosono: Nature Commun. **3**, 943 (2010).
- S. Matsuishi, T. Maruyama, S. Iimura and H. Hosono: Phys. Rev. B **89**, 094510 (2014).
- M. Hiraiishi, S. Iimura, K. M. Kojima, J. Yamaura, H. Hiraka, K. Ikeda, P. Miao, Y. Ishikawa, S. Torii, M. Miyazaki, I. Yamauchi, A. Koda, K. Ishii, M. Yoshida, J. Mizuki, R. Kadono, R. Kumai, T. Kamiyama, T. Otomo, Y. Murakami, S. Matsuishi and H. Hosono: Nature Phys. **10**, 300 (2014).
- 山浦淳一, 松石 聡, 細野秀雄, 飯村壮史, 平石雅俊, 小嶋健児, 平賀晴弘, 門野良典, 村上洋一: 固体物理 **50**, 11 (2015).
- 山浦淳一, 松石聡, 飯村壮史, 細野秀雄, 平石雅俊, 小嶋健児, 平賀晴弘, 門野良典, 村上洋一: 日本結晶学会誌 **57**, 5 (2015).
- C. de la Cruz, Q. Huang, J. W. Lynn, Jiyang Li, W. Ratcliff II, J. L. Zarestky, H. A. Mook, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang and P. Dai: Nature **453**, 899 (2008).
- N. Qureshi, Y. Drees, J. Werner, S. Wurmehl, C. Hess, R. Klingeler, B. Büchner, M. T. Fernández-Díaz and M. Braden: Phys. Rev. B **82**, 184521 (2010).
- M. D. Lumsden and A. D. Christianson: J. Phys. Condens. Matter **22**, 203203 (2010).
- Q. Huang, Y. Qiu, W. Bao, M. A. Green, J. W. Lynn, Y. C. Gasparovic, T. Wu, G. Wu and X. H. Chen: Phys. Rev. Lett. **101**, 257003 (2008).
- 黒木和彦, 有田亮太郎, 青木秀夫: 日本物理学会誌 **64**, 826 (2009).
- 石橋章司, 寺倉清之: 固体物理 **43**, 929 (2008).
- K. Kuroki, S. Onari, R. Arita, H. Usui, Y. Tanaka, H. Kontani and H. Aoki: Phys. Rev. Lett. **101**, 087004 (2008).
- K. Kuroki, H. Usui, S. Onari, R. Arita and H. Aoki: Phys. Rev. B **79**, 224511 (2009).
- H. Kontani and S. Onari: Phys. Rev. Lett. **104**, 157001 (2010).
- S. Onari, Y. Yamakawa and H. Kontani: Phys. Rev. Lett. **112**, 187001 (2014).
- Y. Yamakawa, S. Onari, H. Kontani, N. Fujiwara, S. Iimura and H. Hosono: Phys. Rev. B **88**, 041106(R) (2013).
- K. Suzuki, H. Usui, S. Iimura, Y. Sato, S. Matsuishi, H. Hosono and K. Kuroki: Phys. Rev. Lett. **113**, 027002 (2014).
- C. J. Zhang, H. Oyanagi, Z. H. Sun, Y. Kamihara and H. Hosono: Phys. Rev. B **78**, 214513 (2008).
- S. Kasahara, H. J. Shi, K. Hashimoto, S. Tonegawa, Y. Mizukami, T. Shibauchi, K. Sugimoto, T. Fukuda, T. Terashima, A. H. Nevidomskyy and Y. Matsuda: Nature **486**, 382 (2012).
- H. Takahashi, H. Soeda, M. Nukii, C. Kawashima, T. Nakanishi, S. Iimura, Y. Muraba, S. Matsuishi and H. Hosono: Sci. Rep. **5**, 7829 (2015).

著者紹介



真木祥千子

東京工業大学元素戦略研究センター
E-mail: maki.s.aa@m.titech.ac.jp

専門：構造物性

【略歴】

2013東京大学新領域創成科学研究科，
2014東京工業大学元素戦略研究センター
博士研究員 現在に至る。



松石 聡

東京工業大学元素戦略研究センター
E-mail: matsuishis.s.aa@m.titech.ac.jp

専門：無機固体化学

【略歴】

2005東京工業大学総合理工学研究科博士
課程修了，2013東京工業大学元素戦略研
究センター准教授 現在に至る。



山浦淳一

東京工業大学元素戦略研究センター
E-mail: jyamaura@lucid.msl.titech.ac.jp

専門：構造物性，固体化学

【略歴】

1997東京工業大学理工学研究科博士課程
修了，1997東京大学物性研究所助教，
2012東京工業大学元素戦略研究センター
特任准教授 現在に至る。



村上洋一

KEK 物質構造科学研究所構造物性研究セ
ンター

E-mail: myouchi@post.kek.jp

専門：構造物性

【略歴】

1985大阪大学大学院基礎工学研究科博士
課程修了，2009高エネルギー加速器研究
機構物質構造科学研究所教授 現在に至る。



飯村壮史

東京工業大学応用セラミックス研究所
E-mail: s_iimura@lucid.msl.titech.ac.jp

専門：固体化学

【略歴】

2012東京工業大学総合理工学研究科修士
課程修了，2013東京工業大学応用セラミ
ックス研究所助教 現在に至る。



細野秀雄

東京工業大学応用セラミックス研究所
E-mail: hosono@msl.titech.ac.jp

専門：無機材料科学

【略歴】

1982東京都立大大学院博士課程修了，東
京工業大学元素戦略研究センター，応用セ
ラミックス研究所，フロンティア研究機構
教授 現在に至る。

Study of structural physics on new ordered phase found in the hydrogen-substituted iron-based superconductor

Sachiko MAKI	Materials Research Center for Element Strategy, Tokyo Institute of Technology Yokohama, Kanagawa 226-8503, Japan
Jun-ichi YAMAURA	Materials Research Center for Element Strategy, Tokyo Institute of Technology Yokohama, Kanagawa 226-8503, Japan
Soshi IIMURA	Materials and Structures Laboratory, Tokyo Institute of Technology Yokohama, Kanagawa 226-8503, Japan
Satoru MATSUISHI	Materials Research Center for Element Strategy, Tokyo Institute of Technology Yokohama, Kanagawa 226-8503, Japan
Youichi MURAKAMI	Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK) Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan
Hideo HOSONO	Materials and Structures Laboratory, Tokyo Institute of Technology Yokohama, Kanagawa 226-8503, Japan

Abstract Iron-based superconductors discovered in 2008 are new family of superconducting following copper oxide. Recently, a new ordered phase has revealed in the first reported iron-based superconducting material LaFeAsO. In this paper, we show the electronic and magnetic phase diagram that has been significantly updated with the progress of the crystal synthesis. We also introduce the average and the local structure of the new ordered phase measured by x-ray diffractions and absorption spectra using synchrotron radiation. We consider that the advanced ordered phase has the potential to be a key for develop of the superconducting transition temperature in the iron-based superconductors.