

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17750

研究課題名(和文)パルス中性子による鉄系超伝導体のスピンドイナミクスの研究-局在遍歴2面性の起源-

研究課題名(英文) Spin dynamics of iron-based superconductors studied by inelastic pulse neutron scattering -origin of localize and itinerant nature-

研究代表者

堀金 和正 (Horigane, Kazumasa)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・准教授

研究者番号：10406829

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：ホールドーブ系物質 $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ の過剰ドーブ領域に対応する $x=0.5(T_c=36K)$ および $x=1.0(T_c=3.4K)$ の単結晶を用い、中性子実験装置『四季』を用いて未知であった過剰ドーブ領域の磁気励起の研究を進めてきた。本研究課題により磁気励起スペクトルがスピン波的分散(局在性)と煙突型の磁気励起(遍歴性)とで構成されており、ホールドーブにより煙突型励起が発達することが明らかになった。また、スピン波励起のバンド幅のホール濃度依存性から、超伝導転移温度 $T_c$ の減少に伴いバンド幅の急激な減少が観測された。本結果から磁気交換相互作用 $J$ と $T_c$ の間に強い関係性があることを示した。

研究成果の概要(英文)：Understanding the overall features of magnetic excitation is essential for clarifying the mechanism of Cooper pair formation in iron-based superconductors. Here we report a study on the spin fluctuations of the hole-overdoped iron-based superconductors  $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  ( $x = 0.5$  and  $1.0$ ;  $T_c = 36$  K and  $3.4$  K, respectively) over the entire Brillouin zone using inelastic neutron scattering. We found that their spin spectra consist of spin wave and chimney-like dispersions. The chimneylike dispersion can be attributed to the itinerant character of magnetism. The band width of the spin wave-like dispersion is almost constant from the non-doped to optimum-doped region, which is followed by a large reduction in the overdoped region. This suggests that the superconductivity is suppressed by the reduction of magnetic exchange couplings, indicating a strong relationship between magnetism and superconductivity in iron-based superconductors.

研究分野：超伝導、中性子回折

キーワード：鉄系超伝導体 パルス中性子 磁気励起

## 1. 研究開始当初の背景

基底状態が金属であり、かつスピンを内包する鉄系超伝導体の発見は、金属磁性体物理の多彩さを我々に示す一方、いかにそれを理解することが困難かを世界へ強烈に知らしめた。例えば、鉄系超伝導体の母物質である  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  の磁気励起は  $100\text{meV}$  以下のエネルギー領域では銅酸化物超伝導体と同じく Heisenberg モデルに代表される局在スピンモデルで記述できる一方、 $100\text{meV}$  より高エネルギー領域では局在スピンモデルでは説明が出来ず、遍歴電子系で期待される Stoner 励起が現れる。この結果から鉄系超伝導体の磁性は局在-遍歴の 2 面性を有することが示唆されてきたが、遍歴電子モデルで磁気励起を記述できるというグループもあり、電子対生成の起源と考えられている鉄系超伝導体の磁性は現在も統一的な見解が得られていない。

この特異な磁気励起を解明するために、研究代表者は大型単結晶育成が可能でこれまで精力的な研究が行われてきた  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  の側からではなく、ホールが過剰にドーピングされた  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  ( $T_c=3.4\text{K}$ ) の磁気励起を出発点として、遍歴電子系の側から鉄系超伝導体における磁性の局在-遍歴 2 面性の理解を得るべく大強度陽子加速器施設(J-PARC)の中性子非弾性散乱装置「四季」を用いて中性子散乱実験を進めてきた。 $\text{KFe}_2\text{As}_2$  では過剰にホールを導入した領域であるため、磁気励起はもはや消失していると思われてきたが我々のグループは明確な磁気励起スペクトルの観測に成功した。このことは  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  の超伝導においても磁氣的な揺らぎが電子対生成の起源であることを示唆する結果である。また磁気励起の分散関係に注目すると、低エネルギー領域ではスピン波的な分散関係を有するのに対して、高エネルギー側では急峻な磁気分散(その形状から“チムニー構造”と呼ぶ)を示すことが明らかになった。このチ

ムニー構造は金属反強磁性体の典型物質である  $\text{Mn}_3\text{Si}$  や  $\text{Cr}$  においても観測されており、鉄系超伝導体の遍歴電子系極限での磁気励起スペクトルも類似の特徴を示すことが明らかになった。つまり  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  では局在-遍歴の 2 面性を有する分散関係を強く示唆する結果が得られた。上記の結果を踏まえ、 $\text{KFe}_2\text{As}_2$  で観測された局在-遍歴 2 面性を有する磁気励起スペクトルがホール濃度に対してどのような質的変遷で母物質  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  の磁気励起にいたるのかを探るべく  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  を研究対象とする本研究課題を実施した。

## 2. 研究の目的

本研究は、広いホール濃度領域で超伝導状態が発現する鉄系超伝導体  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  に着目し、鉄系超伝導体におけるスピンドYNAMICKSの全容をパルス中性子を用いて研究し、本超伝導における動的スピン相関の特徴(ホール濃度依存性)を明らかにする。特に、研究代表者が最近見出した過剰ホールドーブ物質  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  の磁気励起を出発点として、遍歴電子系の側から鉄系超伝導体における磁性の局在-遍歴 2 面性の起源に迫る。

## 3. 研究の方法

上記研究目的を達成するために、我々は  $\text{Ba}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{Fe}_2\text{As}_2$  ( $T_c=35\text{K}$ ) にターゲットを絞って、大強度陽子加速器施設(J-PARC)の中性子非弾性散乱装置「四季」を用いてパルス中性子による高エネルギー磁気励起の定量化および磁気励起モードの解析を行う。その結果をもとに過剰ドーブ領域から最適ドーブ領域に亘る磁気励起スペクトルの質的変遷を明らかにする。

また、超伝導転移温度と結晶構造のパラメーターである As-Fe-As 結合角に強い相関関係があることが研究初期のことから判明していることから、磁気励起スペクトルの質的変遷を明らかにするうえでホールドーピングとは異なるパラメーターとして As-Fe-As

結合角を考慮する。そのため、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  と同じ物質群かつホールドーブ系超伝導体である  $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  についても併せて研究を進める。具体的にはフラックス法による大型単結晶育成を試み、中性子散乱実験に耐える純良かつ大型な単結晶作成を目指す。

#### 4. 研究成果

図1(a)は  $x = 0.5$  における磁気励起スペクトルであり、約 200 meV に及ぶスピン波的な分散関係を持つ磁気励起が観測された。この磁気励起のエネルギースケールは母物質  $x = 0$  および、最適ドーブ試料  $x = 0.33$  で見られたものと同程度である[2]。一方、 $x = 1.0$  ではスピン波的励起の上限は約 80 meV まで減少し(図1(b))かつスピン波的励起よりも高いエネルギー領域では、ほぼ垂直な分散を持つ煙突型の励起が観測された。この煙突型磁気励起は  $x = 0.5$  においても高エネルギー側に存在しており、ホールドーブにより煙突型励起が発達することが明らかになった。

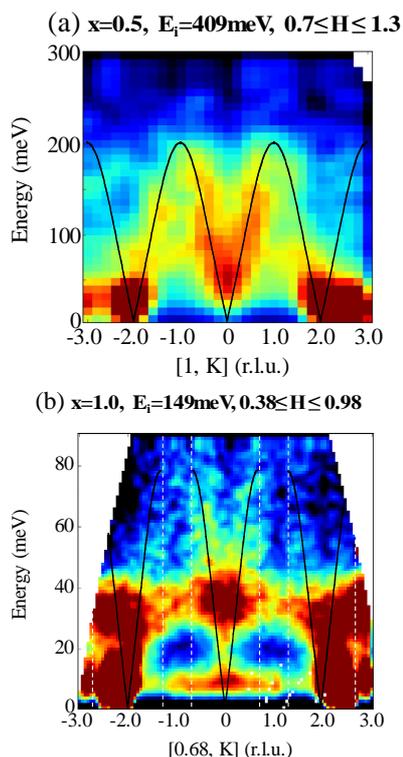


図1 (a)  $\text{Ba}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{Fe}_2\text{As}_2$  および(b)  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  の磁気励起スペクトル。横軸は斜方晶格子の K 方向の運動量(逆格子単位)、縦軸は励起エネルギー

図2に  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の相図とスピン波的磁気励起のバンド幅(最大エネルギー)のホール濃度(K濃度)依存性を示す。バンド幅に注目すると  $0 < x < 0.5$  ではほぼ一定であるが、 $x > 0.5$  で急激に減少している。この急激な減少に伴い超伝導転移温度も減少していることから、スピン波的磁気励起を記述する実効的な磁気交換相互作用  $J$  と超伝導転移温度  $T_c$  の間に相関があることが分かった。一方、 $x = 1$  において顕著にみられた高エネルギー領域における煙突型励起は、Cr等の遍歴反強磁性体で見られる磁気励起に類似しており。これまで報告がなされている理論計算結果と比較すると密度汎関数理論(DFT)と動的平均場理論(DMFT)を組み合わせた方法で計算された磁気励起スペクトルの結果と非常に良い一致を示し、鉄系超伝導体が局在性と遍歴性の両方を併せ持った性質を持つことが強く示唆される。

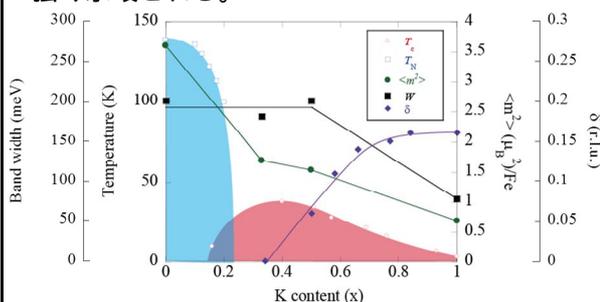


図2 (a)  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の相図。○は超伝導転移温度  $T_c$ 、□は反強磁性転移温度  $T_N$ 、●は全磁気モーメントの自乗  $\langle m^2 \rangle$ 、■はスピン波的励起のバンド幅  $W$ 、◇は磁気励起の逆格子空間における非整合度  $\delta$  を示す。

また、As-Fe-As 結合角を変化させた際にスピン波的な分散や煙突型の磁気励起がどのように変化するかを明らかにするため  $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の大型単結晶を進めてきた。幾つかの Flux 濃度で単結晶試料合成を試み現状では cm オーダーの結晶育成に成功した(図3)。XRD測定から見積もったNa濃度は  $x=0.56$  程度と見積もられ、10 バッチ程評価した際に程同程度の Na 濃度と見積もられ、濃度むらのない単結晶であることを確認した。また、

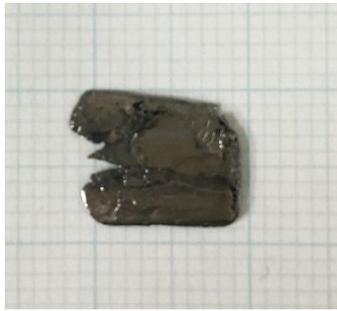


図 3 本研究課題で得られた  $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の代表的な単結晶試料。

磁化率測定で観測した超伝導転移温度 ( $T_c \sim 34\text{K}$ ) と対応することを明らかにした。また、Laue 測定により結晶性を確認したところ結晶構造の 4 回対称性に起因した回折パターンを観測したため、純良な結晶であることを確認している。従来報告では mm オーダーの結晶サイズが限界であったが、純良かつ cm オーダーの大型単結晶を得ることができたため、中性子実験を J-PARC 中性子実験装置『四季』を用いて実施する予定である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 4 件)

- [1] T. Kawaguchi, K. Horigane, Y. Itoh, K. Kobayashi, R. Horie, T. Kambe, J. Akimitsu, “Crystal structure and superconducting properties of  $\text{KSr}_2\text{Nb}_3\text{O}_{10}$ ”, *Physica B* **536**, 830-832 (2018). (査読有)
- [2] K. Horigane, M. Fujii, H. Okabe, K. Kobayashi, R. Horie, H. Ishii, Y. F. Liao, Y. Kubozono, A. Koda, R. Kadono, and J. Akimitsu, “Magnetic phase diagram of  $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{IrO}_4$  synthesized by mechanical alloying”, *Phys. Rev. B* **97**, 064425/1-8 (2018). (査読有)
- [3] K. Horigane, K. Kihou, K. Fujita, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, S. Ji, J. Akimitsu and C. H. Lee, “Spin excitations in hole-overdoped iron-based superconductivity”, *MLF Annual Report 2015 Research and Development Highlights* (2017), 36-37. (査読無)

[4] K. Horigane, K. Kihou, K. Fujita, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, S. Ji, J. Akimitsu and C. H. Lee, “Spin excitations in hole-overdoped iron-based superconductors”, *Sci. Rep.* **6** (2016) 33303. (査読有)

〔学会発表〕(計 9 件)

- [1] “オーバーホールドープ領域における  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の磁気励起”, 堀金和正, MLF チョッパーユーザーミーティング Direction2017, 2017年10月16-17日 いばらき量子ビーム研究センター(東海村).
- [2] “Spin excitations in hole-overdoped Fe-based superconductors”, C. H. Lee, K. Horigane, K. Kihou, J. T. Park, F. Waßer, N. Qureshi, Y. Sidis, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, S. Ji, J. Akimitsu and M. Braden, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2017), Prague (Czech Republic), 2017年7月16~21日, ポスター発表.
- [3] “Crystal structure and superconducting properties of  $\text{KSr}_2\text{Nb}_3\text{O}_{10}$ ”, T. Kawaguchi, K. Horigane, Y. Itoh, K. Kobayashi, R. Horie, T. Kambe, J. Akimitsu, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2017), Prague (Czech Republic), 2017年7月16~21日, ポスター発表.
- [4] “Spin excitations in hole-overdoped iron-based superconductors  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ”, K. Horigane, K. Kihou, K. Fujita, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, S. Ji, J. Akimitsu, C. H. Lee, APS March Meeting 2017, New Orleans (Louisiana) 2017年3月13~17日, 口頭発表.
- [5] “Spin resonance of  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  studied by neutron scattering”, C. H. Lee, K. Kihou, J. T. Park, K. Horigane, K. Fujita, F. Waßer, N. Qureshi, Y. Sidis, J. Akimitsu, and M. Braden, APS March Meeting 2017, New Orleans (Louisiana) 2017年3月13~17日, 口頭発表.
- [6] “オーバーホールドープ領域における  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の磁気励起”, 堀金和正, 木方邦

宏、藤田慧、梶本亮一、池内和彦、池聖大、秋光純、李哲虎、第 10 回物性科学領域横断研究会, 2016 年 12 月 9-10 日 神戸大学(百年記念館)。

[7] “オーバーホールドープ領域における  $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  の磁気励起”, 堀金和正, 木方邦宏、藤田慧、梶本亮一、池内和彦、池聖大、秋光純、李哲虎、日本中性子科学会第 16 回年会, 2016 年 12 月 1-2 日 名古屋大学(豊田講堂)。

[8] “オーバーホールドープ  $(Ba,K)Fe_2As_2$  のスピントリゾナンス”, 李哲虎、木方邦宏、J. T. Park, 堀金和正、藤田慧、F. Waßer, N. Qureshi, Y. Sidis, 秋光純, M. Braden 日本中性子科学会第 16 回年会, 2016 年 12 月 1-2 日 名古屋大学(豊田講堂)。

[9] “Spin excitations in hole-overdoped iron-based superconductors”, K. Horigane, K. Kihou, K. Fjita, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, S. Ji, J. Akimitsu, C. H. Lee, ICMM2016 Satellite Meeting New frontier of multi-functional magnets (NFM2016), 2016 年 9 月 9-11 日, Hiroshima City Bunka Kouryu Kaikan (Hiroshima).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

我々の鉄系超伝導体に関する研究紹介

[http://j-parc.jp/researcher/MatLife/ja/monthly\\_reports/2016\\_09.html](http://j-parc.jp/researcher/MatLife/ja/monthly_reports/2016_09.html)

<https://www.frm2.tum.de/en/news-media/press/news/news/article/reversed-symmetry/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

堀金 和正 (HORIGANE, kazumasa)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・准教授

研究者番号: 10406829