

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13500

研究課題名(和文) 鉄系超伝導体における新奇電子秩序相と超伝導の相関

研究課題名(英文) Relationship between novel electronic ordered states and superconductivity in iron-based superconductors

研究代表者

中島 正道 (NAKAJIMA, Masamichi)

大阪大学・理学研究科・助教

研究者番号：20724347

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：鉄系超伝導体の中でも特徴的な電子相図を示すBa<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>に対して、弾性抵抗率測定と単結晶X線回折実験を行った。弾性抵抗率は、試料に印加した歪みに対する電気抵抗率の応答である。この測定により、電子系の回転対称性の破れ、すなわち電子ネマティック状態を議論する際に重要な物理量であるネマティック感受率が得られる。ネマティック感受率の温度依存性を調べ、電子ネマティック状態が超伝導発現に強く関与していることが分かった。単結晶X線回折からは、何らかの電子秩序形成に起因すると考えられる格子の変調を発見した。この電子秩序と超伝導の関係は、今後明らかにしていく必要がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子が強く相関している系では、制御パラメータを振ることにより様々な秩序相が現れるので、豊かな電子相図が描かれる。それぞれの秩序相の関係性が明らかになれば、どのような状況で面白い物性が現れるのかを知ることができるため、機能性材料の開発につながる可能性もある。本研究では、複雑な電子相図を示す鉄系超伝導体を対象として、超伝導と深い関係があると考えられている秩序相について調べた。これにより、鉄系超伝導体で発現する超伝導に対する理解が深まった。今後、超伝導転移温度の高い超伝導体開発の指針を得ることができれば、応用面でも貢献できると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Among iron-based superconductors, Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> exhibits a unique electronic phase diagram. To investigate the relationship between normal-state electronic states and superconductivity, we performed elastoresistivity and x-ray diffraction measurements on Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> single crystals. Elastoresistivity, resistive response to strain, enables us to obtain nematic susceptibility, which is an important physical quantity when discussing an electronic nematic state with rotational symmetry breaking. We revealed from the temperature dependence of nematic susceptibility that the electronic nematic state plays a crucial role in emergence of superconductivity. From the x-ray diffraction measurement, we observed a diffraction peak which is considered to be related with a novel electronic order. This electronic order seems to have an intimate involvement in the occurrence of superconductivity.

研究分野：高温超伝導

キーワード：鉄系超伝導体 単結晶育成 電子ネマティック状態 弾性抵抗率

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、電子状態の回転対称性が自発的に破れた「電子ネマティック秩序」が強相関電子系におけるキーワードの一つとなっている。結晶格子の回転対称性を保ったまま異方的な電子状態が現れるという驚くべき現象であり、実際に銅酸化物高温超伝導体の擬ギャップ相においても観測されていることから、超伝導との関係が盛んに議論されている。

鉄系高温超伝導体でも電子ネマティック秩序の存在が指摘されている。鉄系超伝導体の母物質は、常磁性正方晶 (PT: paramagnetic-tetragonal) から反強磁性斜方晶 (AFO: antiferromagnetic-orthorhombic) への相転移を示す金属であり、この AFO 秩序を元素置換によって抑制することで超伝導が発現する。AFO 相では結晶格子とスピン配列がともに面内異方性を示しており、四回回転対称性の破れた電子状態が実現している。電子相図上に広く存在している電子ネマティック秩序は、AFO 秩序の揺らぎと密接に関係していると考えられている。

電子ネマティック秩序に実験的にアクセスする方法の一つに、弾性抵抗率の測定がある。鉄系超伝導研究の中で開発された新しい測定手法であり、AFO 転移に伴う格子変形に対応する Fe-Fe 方向の歪みを試料に印加し、電気抵抗率の変化率を測定することにより、電子系の応答を調べる。弾性抵抗率からは、電子ネマティック秩序の揺らぎの大きさの指標となるネマティック感受率という物理量が計算でき、この温度依存性を調べることにより、電子ネマティック秩序が電子相図上で果たす役割について議論することが可能となる。これまでの研究から、電子ネマティック秩序は AFO 相が消える組成近傍で量子臨界的振る舞いを示すことが明らかになっており、超伝導の発現にも深く関わっていることが指摘されていた。

しかしながら、電子ネマティック秩序だけでは電子相図を十分には説明できないこともまた事実である。BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> を中心とする物質群は、単結晶試料が広い組成領域に渡って得られるため研究がとりわけ盛んに行われている系であるが、この中でも最も高い超伝導転移温度 ( $T_c$ ) を示すホールドーブ系の Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> は、複雑な電子相図を示す。とりわけ特徴的なのは、以下の二点である。(1)  $T_c$  が最大になる最適組成 ( $x = 0.40$ ) は AFO 相が消える組成 ( $x = 0.28$ ) とは明らかに異なっており、AFO 秩序の量子臨界点近傍に最適組成が位置しているわけではない。(2) 磁気秩序もなく、正方晶を保ったまま、バンドの折り畳みのみが超伝導相を覆うように広い組成に渡って観測されており、結晶格子と異なる周期を持つ電子秩序の存在が示唆されている (Shimajima, Nakajima *et al.*, *Sci. Adv.* **3**, e1700466 (2017). )

これまでの鉄系超伝導体研究では、AFO 秩序と超伝導の関係が主に調べられてきた。しかし、それだけでは不十分であることを、ホールドーブ系の電子相図は物語っている。高い  $T_c$  の超伝導がどのような電子状態によって生み出されているのかを知るためには、広い組成領域に渡って系統的に電子状態を調べる必要がある。

### 2. 研究の目的

以上の背景を踏まえ、本研究では、Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> の電子相図の理解を深めるため、超伝導と密接な関係にあると考えられる電子ネマティック秩序および詳細不明の新奇電子秩序について調べることを目的とした。電子ネマティック秩序についての知見を得るため、弾性抵抗率の測定ができる環境を整え、組成を振った系統的な測定を行う。また、詳細不明な電子秩序は何らかの電荷秩序である可能性が考えられる。そこで、放射光を用いた単結晶 X 線回折により、電子秩序に関連すると思われる回折ピークを探索する。

### 3. 研究の方法

自己フラックス法を用いて、幅広い組成領域の Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> の単結晶試料を育成した。弾性抵抗率は、試料をピエゾ素子に貼り付けて測定を行った。ピエゾ素子に電圧をかけて歪みを印加し、歪みゲージを用いて歪みの大きさを見積もった。試料に加わる歪みは等方的ではないため、モンゴメリー法によって、ピエゾ素子の伸縮方向とその垂直方向の電気抵抗率を同時に測定し、その歪み依存性からネマティック感受率を導出した。単結晶 X 線回折実験は、高エネルギー加速器研究機構のフォトンファクトリーにおいて行った。逆格子空間の対称性の良いラインに沿ってスキャンを行い、電子秩序形成に関連する回折ピークの探索を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) 弾性抵抗率測定

先行研究と遜色ない精度で測定可能な弾性抵抗率測定システムを構築することができた。この測定システムを用いて、様々な組成の Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> に対して弾性抵抗率測定を行い、ネマティック感受率を得た。ネマティック感受率の温度依存性は、キュリー・ワイス則に従うことが知られている。実験結果のフィッティングにより得られるワイス温度は、電子・格子相互作用を無視した場合の電子ネマティック転移温度に対応する。この温度は母物質 ( $x = 0$ ) では正であり、電子系が自発的に回転対称性を落とすような相転移を起こすことを意味している。K 置換に伴ってワイス温度は減少し、最適組成近傍で 0 K 近くに落ち込むことが分かった。このことは、Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> では最適組成近傍にネマティック量子臨界点が存在していることを示唆している。他の系との相違点は、AFO 秩序が消失する組成でワイス温度が正から負へと変化する様子が観測されたわけではないことである。本研究の結果は、電子ネマティック状態の超伝導発現機構への関与を強く示唆している。

## (2) 単結晶 X 線回折

最適組成の  $x = 0.40$  の試料に対して放射光を用いた単結晶 X 線回折実験を行い、逆格子空間を走査して格子点に乗らない回折ピークを見出した。これは何らかの電子秩序に起因する格子の変調を見ていると考えられる。一方で、超伝導を示さない母物質では格子変調が観測されなかった。現状では測定した試料の組成がまだ限られており、今後詳細な組成依存性を測定する必要はあるが、本研究の結果は、この電子秩序が電子相図上で超伝導相を覆うように現れている可能性を示唆している。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 T. Wakimura, H. Yokota, M. Nakajima, S. Miyasaka, and S. Tajima	4. 巻 32
2. 論文標題 Effect of Cr substitution for V in Sr <sub>2</sub> VFeAsO <sub>3</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 64003
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6668/ab13f8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 S. Ishida, D. Kagerbauer, D. Song, H. Ogino, A. Iyo, M. Nakajima, J. Shimoyama, M. Eisterer, and H. Eisaki	4. 巻 98
2. 論文標題 Effects of post-growth heat treatment on electronic phase diagrams and critical current densities of Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub> and BaFe <sub>2</sub> (As <sub>1-x</sub> Px) <sub>2</sub> single crystals	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 54511
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.98.054511	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 C. Fujii, S. Simayi, K. Sakano, C. Sasaki, M. Nakamura, Y. Nakanishi, K. Kihou, M. Nakajima, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, S. Uchida, and M. Yoshizawa	4. 巻 87
2. 論文標題 Anisotropic Gruneisen Parameter and Diverse Order Parameter Fluctuations in Iron-Based Superconductor Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub>	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 74710
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.87.074710	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 D. Kagerbauer, S. Ishida, V. Mishev, D. Song, H. Ogino, H. Eisaki, M. Nakajima, A. Iyo, and M. Eisterer	4. 巻 32
2. 論文標題 Doping dependence of the pinning efficiency in K-doped Ba122 single crystals prior to and after fast neutron irradiation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 94004
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6668/ab2b51	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 S. Ideta, N. Murai, M. Nakajima, R. Kajimoto, and K. Tanaka	4. 巻 100
2. 論文標題 Experimental investigation of the suppressed superconducting gap and double-resonance mode in Ba1-xKxFe2As2	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.235135	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 N. Murai, T. Fukuda, M. Nakajima, M. Kawamura, D. Ishikawa, S. Tajima, and A. Q. R. Baron	4. 巻 101
2. 論文標題 Lattice dynamics in FeSe via inelastic x-ray scattering and first-principles calculations	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 35126
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.035126	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Adachi, M. Nakajima, Y. Gallais, S. Miyasaka, and S. Tajima	4. 巻 101
2. 論文標題 Superconducting gap and nematic resonance at the quantum critical point observed by Raman scattering in BaFe2(As1-xPx)2	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 85102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.085102	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 1件/うち国際学会 3件)

1. 発表者名 中島正道
2. 発表標題 鉄系超伝導体Ba1-xKxFe2As2における新奇電子秩序
3. 学会等名 つくば - 柏 - 本郷 超伝導かけはしプロジェクト ワークショップ (2) (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Nakajima
2. 発表標題 Effect of in-plane strain on charge dynamics in FeSe
3. 学会等名 The 31st International Symposium on Superconductivity (ISS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中島正道
2. 発表標題 FeSeの電荷ダイナミクスにおける面内歪の効果
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中島正道
2. 発表標題 Sr <sub>2</sub> VFeAsO <sub>3</sub> のVサイトの元素置換効果
3. 学会等名 日本物理学会大74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Nakajima
2. 発表標題 Optical spectroscopy of FeSe thin films on different substrates
3. 学会等名 Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Nakajima
2. 発表標題 Electronic phase diagram of Sr <sub>2</sub> V <sub>1-x</sub> Sc <sub>x</sub> FeAsO <sub>3</sub>
3. 学会等名 The 32nd International Symposium on Superconductivity (ISS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中島正道
2. 発表標題 Ba <sub>1-x</sub> K <sub>x</sub> Fe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> の弾性抵抗率測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----