

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 22 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14666

研究課題名(和文)磁気秩序・超伝導共存域で実現する新奇物性の解明

研究課題名(英文)Elucidating novel physical properties in the coexisting phase of magnetic order and superconductivity

研究代表者

村井 直樹 (Murai, Naoki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARCセンター・研究員

研究者番号：90784223

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：鉄系超伝導体における高温超伝導の発見は超伝導研究の新しい潮流を生み出したと言える。鉄系超伝導体で観測される特異な物性は、スピン、軌道、格子の自由度の相互作用によって生じる。このような複雑な相互作用がどのように鉄系超伝導体の特異な電子状態を生み出すのかは非常に興味深い課題である。本研究では、X線・中性子の非弾性分光技術を駆使することで、鉄系超伝導体のスピン・格子自由度の動的側面に焦点を当てた研究を行った。その結果、(1)フォノン分散における磁性の寄与、(2)動的スピン帯磁率の3次元強度変調とフェルミ面ネスティングとの関連、(3)中性子散乱スペクトルに現れるマルチギャップの観測、を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

鉄系超伝導体の諸物性を理解する上で、その磁性やフォノンの果たす役割を理解することは非常に重要である。本研究課題では、SPRING-8とJ-PARCの最先端の分光技術を用いた物性計測を行うことで、鉄系超伝導体のスピン揺らぎ、フォノンに対する新しい知見が得られた。本研究に用いた手法は、銅酸化物や重い電子系等の他の物質の研究への拡張も可能であり、非従来型超伝導体の電子状態研究におけるX線・中性子分光法の適用領域を広げるものである。

研究成果の概要(英文)：The discovery of high- T_c superconductivity in iron-based superconductors (FeSCs) has marked the beginning of a new era in superconductivity research. Many of the properties in FeSCs arise from an interplay of spin, orbital, and lattice degrees of freedom. A fundamental challenge in this context is to understand how such a complex interplay gives rise to emergent phenomena in FeSCs. Here, we performed extensive inelastic x-ray and neutron scattering studies that allow one to investigate the dynamical aspects of spin and lattice degrees of freedom. The results obtained in this study include (1) the effect of magnetism on phonon dispersion, (2) the observation of the multiple superconducting gaps in the neutron scattering response, and (3) the three-dimensional intensity modulation of the dynamical spin susceptibility and its relation to the Fermi surface nesting. Our work highlights the potential to use x-ray and neutron spectroscopy to investigate the complex electronic state of FeSCs.

研究分野：物性物理

キーワード：非従来型超伝導 非弾性X線散乱 非弾性中性子散乱 フォノン スピン揺らぎ

1. 研究開始当初の背景

鉄系超伝導体における高温超伝導は、隣接する磁気秩序相をキャリアドーピングや元素置換等で抑制することで発現する。この特徴は、銅酸化物や重い電子系などの所謂、非従来型超伝導体に共通して確認されている。鉄系超伝導体が内包する磁気不安定性の微視的起源の理解は、非従来型超伝導の発現機構を理解する上で不可欠である。

2. 研究の目的

本研究は、(1): 鉄系超伝導体の磁気揺らぎ・磁気秩序が格子自由度に与える影響の理解、(2): 磁気揺らぎの波数・エネルギー依存性の精密測定、の2点を主たる目的とする。

3. 研究の方法

上述の2点の目的を達成するため、本研究では、J-PARC, SPring-8の最先端の非弾性分光技術を用いた計測を行う。スピン揺らぎの計測にはチョッパー型非弾性中性子散乱装置を用いることで、広い運動量・エネルギー(Q-E)空間における磁気散乱強度の分布を高効率に計測する。フォノン分散測定には非弾性X線散乱装置を用いることで、中性子散乱では測定が難しい微小試料の測定が可能となる。

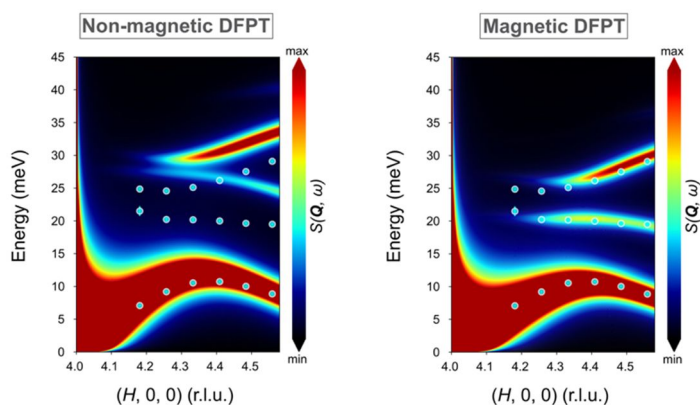
4. 研究成果

得られた研究成果は以下の3点である。

(1): フォノン分散における磁性の寄与

鉄系超伝導体 FeSe は磁気秩序を伴わない構造転移を示す点で、近年大きな注目を集めている。本研究課題では、SPring-8 に設置された非弾性 X 線散乱分光装置 (BL43LXU) を用いて、FeSe のフォノン分散測定を行った。得られた計測データを理解するために、密度汎関数摂動理論 (Density Functional Perturbation Theory, 以下 DFPT と略) を用いた FeSe の第一原理フォノン計算を行い、実験・理論間での定量比較を行った。その結果、FeSe のフォノンのバンド構造を正確に再現するためには、磁気秩序を考慮することが不可欠であることを示した (下図参照)。常圧下で FeSe は磁気秩序を示さないため、これは一見すると観測事実と矛盾する結果であるが、以下のように解釈可能である。

まず、スピン非偏極状態の DFT においては、鉄の 3d 軌道はスピナップ (↑)・ダウン (↓) 間で同じ数だけ占有された非磁性状態に対応する。しかし、FeSe で実現する非磁性相は、鉄の 3d 軌道の占有数が↑間で異なり、ローカルな磁気モーメントが存在するものの、それらが動的に揺らぐことで正味の磁気モーメントとしてはゼロという状態だと考えられる。これら2つのケースは、「非磁性」という意味においては同じであるが、フェルミ面上の状態密度が両者で大きく異なるため、レスポンス (フォノン分散) や原子間力に大きな違いが現れる。実際、FeSe は常圧下では磁気秩序を示さないものの、顕著なスピン揺らぎの存在が非弾性中性子散乱実験で観測されている。つまり、動的に揺らぐ局所的なスピンのある瞬間のスナップショットの計算を、比較的エネルギーの低い反強磁性状態を代表点として実行すれば、磁性のフォノンへの寄与をある程度取り込んだ形で計算することが可能である。この解析から、鉄系超伝導体のような強いスピン揺らぎを内包した磁気不安定性近傍の格子ダイナミクスに関する新たな知見が得られたと言える。



FeSe の第一原理フォノン計算と実験結果との比較
水色の丸は実測点。鉄系超伝導体のフォノン構造は鉄サイトのスピン状態の影響を強く受けるため、磁気秩序下における第一原理計算を行うことで、実験結果は再現される。
N. Murai et al., Phys. Rev. B 101, 035126 2020.

(2): 動的スピン帯磁率の3次元強度変調とフェルミ面ネスティングとの関連

鉄系超伝導体は鉄の 3d 軌道を主成分とする複雑なバンド構造を持ち、フェルミ面のネスティングに対応した波数において、顕著なスピン揺らぎが発達する。このようなスピン揺らぎの存在は、鉄系超伝導体における超伝導発現機構と密接に関係すると考えられている。本研究では、J-PARC の非弾性中性子散乱分光装置 (BL01 4SEASONS, BL14 AMATERAS) を用いて、鉄系超伝導体 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ のスピン揺らぎの精密計測とその詳細な解析を行なった。過去の研究で指摘されてきたように、フェルミ面のネスティングに対応した波数にスピン揺らぎの存在を観測したが、それだけでなく、スピン揺らぎの強度が面間方向に対して大きく変調していることを新たに発見した。この結果は、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ のスピン揺らぎは 3 次元構造を持つことを意味する。理論グループとの共同研究の結果、観測されたスピン揺らぎの 3 次元変調構造は、フェルミ面の 3 次元的な湾曲を反映した結果であることを明らかにした。

(3): 中性子散乱スペクトルに現れるマルチギャップの観測

ネスティング波数の始点と終点で超伝導ギャップが符号反転する場合、スピン感受率に共鳴ピークが現れる。そのため、非弾性中性子散乱実験を用いた超伝導対称性の議論が可能となる。本研究では、超伝導状態における鉄系超伝導体 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ のスピン感受率の測定を J-PARC の非弾性中性子散乱分光装置 (BL14 AMATERAS) を用いて実施した。スペクトルの微細構造を捕らえるために、比較的エネルギー分解能の高いセットアップで実験を行った。また、試料の回転範囲を制限し、1 角度ステップ当たりの計測時間を可能な限り伸ばすことで、高い統計精度で計測を目指した。その結果、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ のスピン感受率は超伝導状態において少なくとも 2 つのピーク構造を有することを見出した。理論グループとの共同研究を通して、鉄系超伝導体のような多バンド系は、その複雑なマルチギャップ構造を反映した複数のピーク構造がスピン感受率に現れることを指摘した。本研究により、中性子散乱実験を用いて超伝導ギャップ等の電子構造の抽出が可能である事が示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kazuaki Iwasa, Seiya Nakazato, Daisuke Hashimoto, Mami Shiozawa, Keitaro Kuwahara, Hajime Sagayama, Seiko Ohira-Kawamura, Naoki Murai, Devashibhai T. Adroja, and Andre M. Strydom	4. 巻 90
2. 論文標題 Magnetic Excitations in Chiral-Structure Phase of Ce3Ir4Sn13	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1,9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.90.124701	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 Hao YiQing, Wo HongLiang, Gu YiMeng, Zhang XiaoWen, Gu YiQing, Zheng ShiYi, Zhao Yang, Xu GuangYong, Lynn Jeffrey W., Nakajima Kenji, Murai Naoki, Wang WenBin, Zhao Jun	4. 巻 64
2. 論文標題 Field-tuned magnetic structure and phase diagram of the honeycomb magnet YbCl3	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science China Physics, Mechanics & Astronomy	6. 最初と最後の頁 1,6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11433-020-1626-3	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 Naoki Murai, Tatsuo Fukuda, Masamichi Nakajima, Mitsuaki Kawamura, Daisuke Ishikawa, Setsuko Tajima, and Alfred 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 035126-1-6
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 村井直樹, 福田竜生, 田島節子, Alfred Q. R. Baron	4. 巻 32
2. 論文標題 非弾性X線散乱で見る鉄系超伝導体の格子ダイナミクスと磁性の関係	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本放射光学会誌 放射光	6. 最初と最後の頁 199-208
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 村井直樹, 福田竜生, 中島正道, 河村光晶, 石川大介, 田島節子, Alfred Q. R. Baron
2. 発表標題 高分解能非弾性X線分光による鉄系超伝導体FeSeのフォノン分散の研究
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 村井直樹, 福田竜生, 中島正道, 河村光晶, 石川大介, 田島節子, Alfred Q. R. Baron
2. 発表標題 高分解能非弾性X線散乱を用いたFeSeの格子ダイナミクス研究
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 出田真一郎, 中島正道, 村井直樹, 梶本亮一, 田中清尚
2. 発表標題 角度分解光電子分光による一軸圧印加されたBa _{0.75} K _{0.25} Fe ₂ As ₂ の電子構造の温度変化
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------