

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010 ~ 2012

課題番号：22740222

研究課題名（和文）

鉄ニクタイド系化合物の超伝導ペアリング対称性

研究課題名（英文）

Superconducting pairing symmetry in iron pnictides

研究代表者

大成 誠一郎 (ONARI SEIICHIRO)

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：80402535

研究成果の概要（和文）：鉄ニクタイド系化合物において、超伝導状態だけではなく常伝導状態の研究も行い、相図全体の統一的な理解を目指した。結果として、構造相転移を説明するためには電子格子相互作用やクーロン相互作用のバーテックス補正（高次の効果）により引き起こされる軌道揺らぎが必要であり、その軌道揺らぎにより発現する超伝導ギャップ関数は符号反転のないことが分かった。更に軌道揺らぎにより輸送現象の異常な温度依存性を説明することに成功した。

研究成果の概要（英文）：We have studied both superconducting state and normal state of iron pnictides in order to understand the whole phase diagram. We have found that the structure phase transition can be explained by the orbital fluctuations, which are induced by the electron-phonon interaction and the vertex corrections (higher order terms) of the Coulomb interaction. The orbital fluctuations favor a superconducting gap function that has no sign change. We have also found that anomalous temperature dependence of transition phenomena is explained by the orbital fluctuations.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
総計	2,000,000	600,000	2,600,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強相関係、鉄系超伝導体

1. 研究開始当初の背景

2008年に発見された鉄ニクタイド系化合物超伝導体 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ は 26K もの T_c を持ち、銅酸化物高温超伝導体以来約 20 年ぶりの大発見であった。鉄ニクタイド系化合物超伝導体は世界中の注目を集めており、研究の進展が著しく、毎日プレプリントサーバーに論文が投稿されているほどであった。最初の $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ の発見から 2ヶ月以内に $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ 等の更に高い T_c を持つ鉄ニ

クタイド系化合物超伝導体が発見され、現在では最高 $T_c=55\text{K}$ まで達している。また、層状構造の異なる BaFe_2As_2 や FeSe 等も発見されている。55K もの高い T_c を説明することは conventional な BCS 理論では困難であり、鉄ニクタイド系化合物は unconventional な超伝導体であることが予想される。

Unconventional な超伝導を示唆する実験としては、(1)比熱において係数が $H^{1/2}$ に比例

する。(2)ポイントコンタクト・トンネルスペクトロスコープにおいて、ゼロバイアスにピークが見られる。(3)中性子散乱のスペクトルにおいてピーク構造が現れる、等が挙げられる。

一方で、**conventional な超伝導を示唆する実験**として、(1)Co 不純物による T_c の変化がほとんど無い。(2)磁場侵入長の結果から、超流動密度がノードのない BCS 的な超伝導ギャップ関数を示唆する。(3)Andreev スペクトロスコープが BCS 的な超伝導ギャップ関数を示唆する等が挙げられる。以上のように鉄ニクタイト系化合物超伝導は解明されておらず、全ての実験を説明するような理論も存在していなかった。

$\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ は Fe 原子の周りに As 原子が四面体構造をとっており、FeAs の 2 次元層が LaO 層に挟まれた構造になっている。フェルミ面近傍のバンドは主に Fe の 3d 軌道により構成されているが、八面体構造をとる銅酸化物高温超伝導体の時と異なり 3d の全 5 軌道が複雑に混ざり合っているため、5 軌道全てを取り込んだモデルが必要である。応募者は共同研究者らと、第一原理計算によって求めた 5 軌道モデルに、乱雑位相近似 (RPA) を用いて線形化された Eliashberg 方程式を自己無撞着に解くことにより、実験に対応するストライプ状の反強磁性揺らぎを媒介とした超伝導が $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ において発現することを明らかにした。バンド構造を用いて微視的に $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ の超伝導を調べた、世界で最初の研究であった。ここで得られたギャップ関数はバンド内ではフルギャップだが、バンド間で符号を反転する s_{+-} wave であった。また、鉄ニクタイト系における超伝導状態は、不純物による対破壊効果が d 波超伝導体である銅酸化物高温超伝導体と比べて、大変小さいことが知られている。我々は鉄ニクタイト系における不純物効果に早い時期から着目し、この系に多軌道 T 行列近似を適用して超伝導対破壊効果を調べた。その結果、スピン揺らぎ理論が予言する符号反転のある s_{+-} wave は d 波超伝導体同様、非常に不純物に弱いことが明らかになった。これは実験結果と不整合である。また、鉄ニクタイト系化合物は常伝導状態においても輸送係数の温度依存性が非フェルミ流体的振る舞いを示すことが知られており、強相関効果が重要であることが示唆される。更に、低ドーピング領域で反強スピン秩序が温度 T_N で起こるが、それよりも高い温度 T_S で正方晶相から斜方晶相への構造相転移(多くは 2 次転移)が起き、構造相転移に隣接して超伝導状態が発現するという著しい特徴がある。最近、 $T^*(>T_S)$ 以下の温度で、斜方晶相の歪みに対応する弾性率 C_{66} のソフト化や、面内抵抗の異方性や磁気トルクの実験から対称

性が C_4 から C_2 に低下した電子ネマティック相の発現が見いだされた。これらの事実は、「電子相関による軌道揺らぎや秩序」の発現を強く示唆する。(軌道揺らぎとは、軌道偏極の 2 乗平均が発達した状態である。) しかしながら、構造相転移や C_{66} のソフト化は RPA や局所密度近似に基づく第一原理計算、動的平均場理論 (DMFT) 等では説明することができず、未解決な問題であった。

2. 研究の目的

多軌道モデルにおける各種物理量の精密な計算および超伝導発現機構の解明

反強磁性揺らぎの理論から導かれる s_{+-} wave だけではなく、超伝導ギャップ関数の候補である d -wave や符号反転のないフルギャップ (s_{++} wave) について、5 軌道モデルを用いて精密に輸送係数、中性子散乱スペクトル等各種物理量を計算し、実験結果との比較および実験結果の予測を行う。

T_c 以下の計算を詳細に行う際には RPA を異常グリーン関数を含むものに拡張する必要があり、更に計算が複雑になる。また、RPA には含まれていない電子相関からの効果を調べるために、揺らぎ交換 (FLEX) 近似や新しくパーテックス補正を取り入れて計算を行うことで、鉄系超伝導体の相図全体の理解を目指す。

3. 研究の方法

(1) 中性子散乱スペクトルの計算

中性子散乱スペクトルの $\omega < 2\Delta$ におけるピークはレゾナンスピークであり、超伝導ギャップ関数に符号変化が存在することを示すために非常に重要である。しかしながら、鉄ニクタイト系化合物超伝導体における中性子散乱スペクトルのピークはブロードであり、常伝導状態に比べてピーク構造は顕著ではない。また、符号変化のない s_{++} wave であっても超伝導ギャップが開くことにより $\omega < 2\Delta$ の領域において、スピン感受率が減少する。したがって、スピン感受率の和則を考慮することにより、 $\omega \sim 2\Delta$ のスペクトルにピークが現れる可能性が示唆される。そこで、中性子散乱スペクトルを現実的な異方性等を取り込んだギャップ関数 s_{+-} wave、 s_{++} wave 両方について計算する。その際に、松原周波数から実周波数への解析接続を数値的に行うのではなく、精度の向上のために感受率の表式を解析接続することによって実周波数の計算を行う。

(2) 軌道揺らぎによる s_{++} wave 及び輸送係数の計算

非磁性不純物効果と整合する s_{++} wave の発現機構を研究するために Fe 原子の振動に起因する電子格子相互作用を考慮した RPA により Eliashberg 方程式を解くことで超伝導状

態を計算する。更に FLEX 近似で求めた自己エネルギーを用いて抵抗率、熱起電力等の輸送係数を計算し、実験で観測される非フェルミ流体的振る舞いを再現するかどうかを確かめる。

(3) バートックス補正による軌道揺らぎ

RPA や FLEX 近似に含まれていない多体効果であるクーロン相互作用のバートックス補正を取り込むことにより、構造相転移や C_{66} のソフト化に対応する軌道揺らぎの計算を行う。具体的には FLEX 近似の自己エネルギーに対応するワード恒等式を満たすように、既約感受率にバートックス補正である

Maki-Thompson(MT)項と

Aslamazov-Larkin(AL)項を導入して計算を行った

4. 研究成果

(1) 中性子散乱スペクトルの計算

強相関電子系の非弾性散乱率 γ を考慮することで、 s_{++} 波で $\omega \gtrsim 2\Delta$ に hump 構造が現れることを初めて明らかにした。常伝導状態では大きな非弾性散乱率 $\gamma \sim \Delta$ により中性子散乱スペクトルは抑制されている。しかし、超伝導状態では非弾性散乱率 $\gamma(\epsilon)$ が $\epsilon < 3\Delta$ で 0 となるため $\omega < 3\Delta$ のスペクトルが増大し、その結果 $\omega \gtrsim 2\Delta$ の hump 構造が出現することを見いだした。なお、超伝導状態の $\omega < 2\Delta$ では粒子-正孔ギャップが開きスペクトルがなくなることは解析的に容易に理解できる。一方 s_{+-} 波の場合、非常に鋭いレゾナンスピークが $\omega < 2\Delta$ に現れた。本研究の結果、 s_{+-} 波よりも s_{++} 波の方が良く実験結果を再現することが分かった。

(2) 軌道揺らぎによる s_{++} wave 及び輸送係数の計算

電子格子相互作用(Fe の振動に由来)による電荷四重極相互作用($g \sim 0.2\text{eV}$)と軌道間ネスティングにより、反強軌道揺らぎ(波数 $(\pi, 0), (0, \pi)$ にピークを持つ電荷四重極揺らぎ)が増大し、 s_{++} 波を引き起こすという新しい超伝導発現機構を提唱した。この軌道揺らぎの増大は鉄系超伝導体が多軌道系であることに起因する。更に、この反強軌道揺らぎが強い場合、実験で観測される抵抗率や熱起電力の非フェルミ流体的振る舞いを再現することを明らかにした。

(3) バートックス補正による軌道揺らぎ

電荷四重極相互作用の起源について理解を深めるため、多軌道ハバード模型における解析を行った結果、電子格子相互作用が存在しなくても、クーロン相互作用のバートックス補正により、反強軌道揺らぎ及び強軌道揺らぎ(波数 $(0, 0)$ にピークを持つ電荷四重極揺らぎ)が増大することを最近明らかにした。(図 1) 自己無撞着にバートックス補正を計算した結果、MT 項は重要ではないが、AL

項により異なる波数間のスピンや軌道の揺らぎが干渉することにより、軌道揺らぎが増大することが分かった。具体的には強軌道揺らぎ($q=0$)を引き起こす AL 項は、波数 Q と波数 $-Q$ ($\pm Q$ はネスティングベクトル)の反強磁性揺らぎの積(two-magnon 機構)と、波数 Q と波数 $-Q$ の反強軌道揺らぎの積(two-orbiton 機構)の和で与えられる。また、反強軌道揺らぎと強軌道揺らぎの積(two-orbiton 機構)により、反強軌道揺らぎが増大される。

従って、軌道揺らぎとスピン揺らぎが two-orbiton 機構や two-magnon 機構を介して、協力的に強め合うことが分かる。これは、局在スピン・軌道モデルである

Kugel-Khomskii モデルに含まれるスピン・軌道結合項を記述する重要な機構であるが RPA や FLEX 近似では再現できなかった。この反強軌道揺らぎにより引き起こされる s_{++} 波は不純物効果や中性子散乱スペクトルの実験と整合する。さらに、強軌道揺らぎ(秩序)により構造相転移、電子ネマティック相、弾性率 C_{66} のソフト化等を矛盾なく説明できる。このように、軌道揺らぎ理論は鉄系超伝導体の相図や超伝導発現機構、各種物理量を統一的に説明することが可能である。

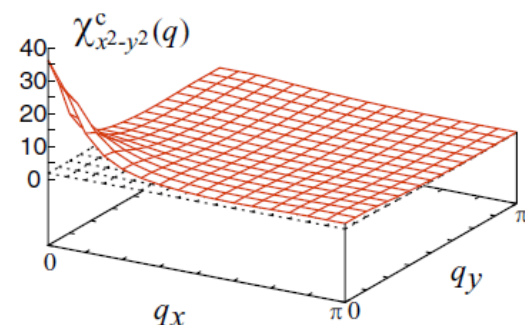


図 1: バートックス補正で得られた強軌道揺らぎ。構造相転移や弾性率 C_{66} のソフト化に対応。

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 14 件)

- ① Seiichiro Onari, Hiroshi Kontani, Non-Fermi-liquid transport phenomena and superconductivity driven by orbital fluctuations in iron pnictides: Analysis by fluctuation-exchange approximation, Physical Review B 85, 134507_1-134507_6 (2012), DOI: 10.1103/PhysRevB.85.134507 査読有り
- ② Seiichiro Onari, Hiroshi Kontani, Self-Consistent Vertex Correction

Analysis for Iron-Based Superconductors: Mechanism of Coulomb-Interaction-Driven Orbital Fluctuations, Physical Review Letters 109, 137001_1-137001_5 (2012)、DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.137001 査読有り

- ③ Seiichiro Onari, Hiroshi Kontani, Neutron inelastic scattering peak by dissipationless mechanism in the s_{++} -wave state in iron-based superconductors, Physical Review B 84, 144518_1-144518_9 (2011)、DOI: 10.1103/PhysRevB.84.144518 査読有り
- ④ Hiroshi Kontani, Seiichiro Onari Orbital-Fluctuation-Mediated Superconductivity in Iron Pnictides: Analysis of the Five-Orbital Hubbard-Holstein Model, Physical Review Letters 104, 157001_1-157001_4 (2010)、DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.157001 査読有り
- ⑤ Seiichiro Onari, Hiroshi Kontani, Masatoshi Sato, Structure of neutron-scattering peaks in both s_{++} -wave and s_{\pm} -wave states of an iron pnictide superconductor, Physical Review B 81, 060504_1-060504_4(R) (2010)、DOI:10.1103/PhysRevB.81.060504 査読有り

〔学会発表〕(計 18 件)

招待講演

- ① Superconductivity induced by the orbital fluctuation in iron-based superconductors、Seiichiro Onari、Energy Materials Nanotechnology (EMN2013)、Hilton Houston Post Oak, Houston, USA, January 12 (2013)
- ② 鉄系超伝導体における軌道揺らぎ及び超伝導発現機構-バーテックス補正の効果、Seiichiro Onari、多重極限物質科学研究センター研究会、University of Hyogo, Hyogo, Japan, December 13 (2012)
- ③ 鉄系超伝導体における軌道揺らぎおよび超伝導発現機構、Seiichiro Onari、日本物理学会 招待講演、Yokohama National University, Yokohama, Japan, September 19 (2012)
- ④ 鉄系超伝導体における四重極揺らぎ及び超伝導発現機構-自己エネルギーおよびバーテックス補正の効果-、Seiichiro Onari、基研研究会「鉄系高温超伝導の物理 ～スピン・軌道・格子～」、Kyoto

University, Kyoto, Japan, June 22 (2012)

- ⑤ Orbital fluctuation and mechanism of superconductivity in iron based superconductors、Seiichiro Onari、新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ、Iwate University, Morioka, Japan, June 9 (2012)
- ⑥ 鉄砒素系超伝導体における中性子散乱スペクトル及び輸送現象、Seiichiro Onari、TRIP 超伝導ワークショップ「格子と軌道結合」、The University of Tokyo, Tokyo, Japan, November 28 (2010)
- ⑦ Study of pairing symmetry in iron pnictides based on the multiorbital Hubbard-Holstein model、Seiichiro Onari、International Symposium on Superconductivity (ISS2010)、Epochal Tsukuba, Tsukuba, Japan, November 2 (2010)

〔図書〕(計 1 件)

- ① **計算科学講座 10 巻: 第 3 部, 超多自由度系の新しい科学**
田仲由喜夫, 大成誠一郎, 渡邊努
共立出版 217-251 (2010)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等
なし

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
大成 誠一郎 (ONARI SEIICHIRO)
名古屋大学・工学研究科・助教
研究者番号: 80402535

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者なし