

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：13101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26800184

研究課題名(和文)超音波によるマルチバンド超伝導体の電気四極子効果の解明

研究課題名(英文)Elucidation of electric quadrupole effects in multiband superconductors by ultrasonic measurements

研究代表者

赤津 光洋 (AKATSU, Mitsuhiro)

新潟大学・自然科学系・助教

研究者番号：10431876

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：マルチバンド構造を持つ鉄系超伝導体Ba(Fe_{1-x}Cox)₂As₂とA-15超伝導体V₃Siの超音波吸収係数の精密計測を行い、構造相転移に向かって弾性定数の発散的なソフト化とともに超音波吸収係数の発散的な増大を観測した。これは四極子の臨界減速であり、構造相転移が強四極子秩序転移であることを示している。一方、超伝導転移点に向かっては、超音波吸収係数だけ発散的増大を示した。横波超音波が誘起する回転に着目し解析・計算を行った結果、四極子相互作用を介して2個の伝導電子が束縛状態を作り十六極子を形成し、超伝導転移に向かってその十六極子の揺らぎが発散的に増大する臨界減速を起こしていることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have measured the ultrasonic attenuation coefficients of iron-based superconductors Ba(Fe_{1-x}Cox)₂As₂ and A-15 Superconductor V₃Si with multiband structure. Ultrasonic attenuation coefficients show divergent increase with divergent softening of elastic constants toward the structural phase transition. Because this behavior indicates a critical slowing down phenomenon of quadrupole, the structural phase transition is a ferro quadrupole phase transition. On the other hand, Ultrasonic attenuation coefficient only shows divergent increase toward the superconducting transition. We performed analysis and calculation to focus the rotation induced by transverse ultrasound. We clarified that two conduction electrons form a hexadecapole to create a bound state and the critical slowing down occurs, which shows that the fluctuation of the hexadecapole increases divergently.

研究分野：物性物理学

キーワード：マルチバンド超伝導 鉄系超伝導体 電気四極子 超音波計測 弾性定数 超音波吸収係数

1. 研究開始当初の背景

2008年に発見された鉄系超伝導体は、高い超伝導転移温度と物質群の多様性から精力的に研究が行われている [1]。正方晶系 $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ は、Co を添加することにより、母物質 $BaFe_2As_2$ で約 140 K で現れる構造相転移と反強磁性転移が減少し、転移が消失する量子臨界点近傍の Co 濃度で超伝導が出現する。電子状態は、Fe-As で 2 次元的に構成される伝導面を持ち、複雑に構成された Fe^{2+} の d 電子軌道のマルチバンド構造になっている [3]。超伝導の発現機構と対称性について、スピン揺らぎ媒介の s_+ 波と電気四極子揺らぎ (軌道揺らぎ) 媒介の s_{++} 波の 2 つのモデルが提案されており [4, 5]、現在も研究が進められている。

1970年代から研究が行われている A-15 系超伝導体 V_3Si は、21 K で立方晶から正方晶への構造相転移を示し、17 K で超伝導を示す。電子状態は、3 次元的で複雑なマルチバンド構造をしており、フェルミ面近傍では V の主に d 電子軌道由来の縮退したバンドが存在している [6]。この V_3Si では、試料依存性が強く、試料によって構造相転移が現れない。構造相転移のない試料でも超伝導が現れることから、単なる試料の純良性だけで判断できず、超伝導の発現機構は明らかになっていない。

申請者は、 $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ の弾性定数を測定し、横波弾性定数 C_{66} の巨大なソフト化を観測した [7]。測定で結晶へ入射する歪み ϵ_T と電気四極子 O_T の関係 (四極子-歪み相互作用 $H = g_T O_T \epsilon_T$) から、縮退したマルチバンドが電気四極子 $O_V = x^2 - y^2$ を持ち、その四極子が巨大なソフト化の起源である可能性を指摘した。ここで、隣接する Fe-Fe 方向を x', y' 軸とした。一方、 V_3Si では、横波弾性定数 $(C_{11} - C_{12})/2$ と縦波弾性定数 C_{11} で巨大なソフト化を示し、電気四極子 $O_U = (2z^2 + x^2 + y^2)/3$ が重要であることを示唆している。構造相転移が現れない試料でも超伝導転移温度まで巨大なソフト化を示すことから、超伝導の発現機構にも四極子効果が重要な役割を果たしていると考えられる。本研究では、マルチバンド超伝導体での電気四極子効果を解明するために、超音波吸収係数測定と一軸圧力下での弾性定数測定を行った。

2. 研究の目的

本研究では、 $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ と V_3Si の構造相転移と超伝導を示す試料と超伝導だけを示す試料を用いて、超音波吸収係数の精密測定と一軸圧力下での弾性定数の測定を行うことにより、電気四極子の動的情報及び巨大な弾性ソフト化と超伝導への寄与を明らかにし、四極子効果を解明する。

3. 研究の方法

(1) 超音波吸収係数測定

スピンに対する AC 帯磁率と比較すると、

超音波で測定される弾性定数は四極子感受率の実部である。他方、超音波吸収係数は四極子感受率の虚部であり、電気四極子揺らぎの動的情報が得られる。申請者は、超音波吸収係数測定において、従来手法によるアナログ回路からくるノイズを最低でも 1/100 以下に減らすデジタル処理による測定方法を新規開発した。また、超音波吸収係数測定は周波数の 2 乗に比例して感度が上がるため、高周波超音波発振用薄型 $LiNbO_3$ 圧電素子を開発する。この 2 つの技術により、超音波吸収係数の温度依存性を精密に測定し、 $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ と V_3Si の構造相転移の有無の比較と動的臨界現象の解析から、超伝導転移点に向かっている電気四極子揺らぎの動的情報 (臨界緩和) を明らかにする。

(2) 一軸圧下弾性定数測定

一軸圧は、電気四極子の外場として格子に歪みを生じさせる。 $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ では [110] 軸方向に一軸圧力を印可して電気四極子 O_V の外場となる格子歪み ϵ_{xy} を発生させることで、縮退したバンドが分裂し、電気四極子 O_V の揺らぎと C_{66} のソフト化が抑制されることが期待できる。 V_3Si では [001] 軸方向の一軸圧により電気四極子 O_U の外場となる格子歪み ϵ_u を発生させることで、縮退したバンドが分裂し、 $(C_{11} - C_{12})/2$ のソフト化が抑制されることが期待できる。一軸圧力を微調整できる専用プローブを開発し、弾性ソフト化と超伝導転移温度の一軸圧依存性を詳細に調べることにより、電気四極子の超伝導と巨大な弾性ソフト化への寄与を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 構造相転移、反強磁性転移、超伝導転移を示す量子臨界点 (QCP) よりアンダードープの $Ba(Fe_{0.93}Co_{0.03})_2As_2$ の超音波吸収係数 $\alpha_{L[110]}$ と同じモードの弾性定数 $C_{L[110]}$ の測定結果を図 1 に示す。

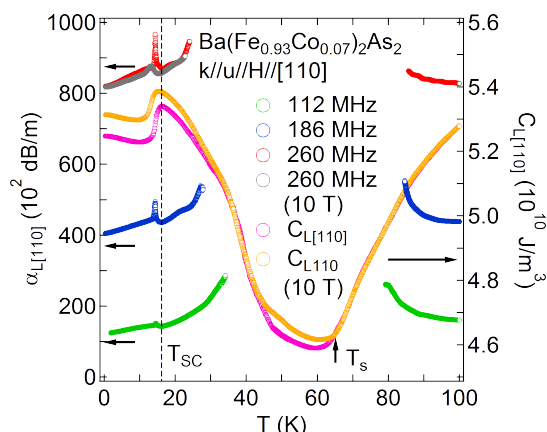


図 1 $Ba(Fe_{0.93}Co_{0.03})_2As_2$ の超音波吸収係数 $\alpha_{L[110]}$ と弾性定数 $C_{L[110]}$ の温度依存性。

横波弾性定数 C_{66} のソフト化が発散的に巨大で、激しい超音波吸収のため超音波吸収係数 α_{66} が測定困難だったため、 C_{66} 、 α_{66} が成分

として含まれている[110]方向の縦波超音波で測定を行った。 $C_{L[110]}$ は高温側から構造相転移 $T_s = 65$ K に向かって巨大なソフト化を示し、反強磁性転移 $T_N = 39$ K と超伝導転移 $T_{SC} = 16.6$ K で弾性異常を示した。 $\alpha_{L[110]}$ は、 T_s に向かって発散的に増大し、強い周波数依存性を示した。データが途中で消失しているのは、あまりに激しい超音波吸収のため、超音波エコー信号の電圧が消失してしまったためである。

構造相転移での弾性定数と超音波吸収係数が発散的振る舞いは臨界減速現象である。これを説明するため、四極子-歪み相互作用、四極子間相互作用を考慮して四極子感受率及びランダウの理論を用いて解析・計算を行った。その結果、構造相転移は秩序変数が O_v の強四極子秩序相転移であり、転移に伴う四極子揺らぎの臨界減速によって C_{66} の巨大なソフト化と α_{66} の発散的増大が現れることを明らかにした。

(2) 図2に超伝導だけを示すQCPよりオーバードープの $Ba(Fe_{0.9}Co_{0.1})_2As_2$ の超音波吸収係数 α_{66} と同じモードの弾性定数 C_{66} の測定結果を示す。

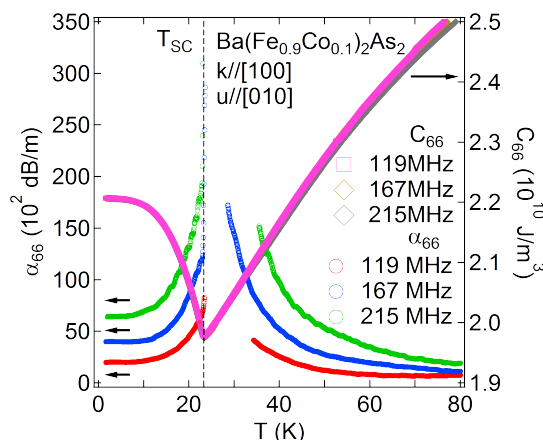


図2 $Ba(Fe_{0.9}Co_{0.1})_2As_2$ の超音波吸収係数 α_{66} と弾性定数 C_{66} の温度依存性。

C_{66} は、超伝導転移 $T_{SC} = 23$ K に向かって室温から 21% のソフト化を示し、 T_{SC} で明確な折れ曲りハード化する。 α_{66} は T_{SC} に向かって発散的増大を示し、 C_{66} は周波数依存性が無いのに対し、 α_{66} は強い周波数依存性を示した。 $Ba(Fe_{0.93}Co_{0.03})_2As_2$ の構造相転移では弾性定数、超音波吸収係数がともに発散的振る舞いを示したが、 $Ba(Fe_{0.9}Co_{0.1})_2As_2$ の超伝導転移では弾性定数は発散せず、超音波係数だけ発散的振る舞いを示した。この超伝導転移での振る舞いは、 $Ba(Fe_{0.93}Co_{0.03})_2As_2$ でもほぼ同様であった。そのため、これらの振る舞いは、(1) で述べたような四極子 O_v の揺らぎだけでは説明できない。

超伝導転移で超音波吸収係数だけ発散するような振る舞いを説明するため、横波超音波に特有の性質「回転」を考慮して、解析・計算を行った。縦波の超音波は疎密波であり、

歪み ϵ_{ij} だけを結晶格子に誘起する。一方、横波の超音波は、歪み ϵ_{ij} だけでなく、右回りと左回りの回転 ω_{ij} も同時に誘起する。まず、 yz と zx 軌道に 1 つの電子が占有するモデルを考えた場合、一般的な場合と同様に、回転は零磁場で系を不変に保ち、振る舞いを説明できなかった。次に、 yz と zx 軌道に 2 つの電子が占有するモデルを考えた場合、この 2 つの電子は、四極子間相互作用を介して束縛状態を作り、十六極子 H_z^α を形成することが分かった。この十六極子 H_z^α の対称性は、 C_{66} モードの横波超音波が誘起する回転 ω_{xy} と同じであり、 H_z^α と ω_{xy} が 1 次結合することが分かった(十六極子-回転相互作用)。さらに計算を進めた結果、超伝導転移で超音波吸収係数が発散的に増大する現象は、十六極子揺らぎの臨界減速に由来するものであり、弾性定数が発散的振る舞いを示さないことを明らかにした。

超伝導転移点に向かって、十六極子 H_z^α が臨界減速現象を示すことから、 H_z^α の揺らぎが超伝導発現のドライブフォースの 1 つとして役割を果たしている可能性があることを示した。

(3) 図3に V_3Si の超音波吸収係数 α_{11} と同じモードの弾性定数 C_{11} の測定結果を示す。

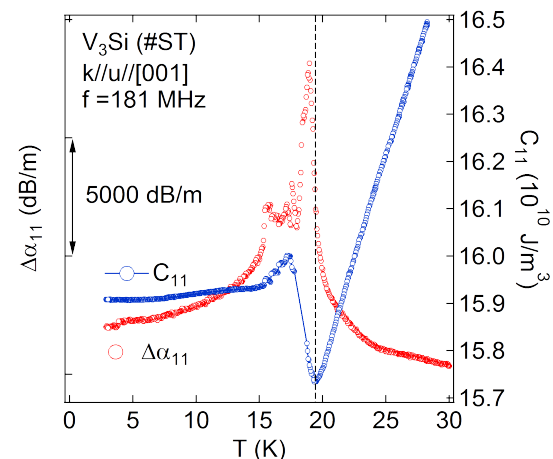


図3 V_3Si の超音波吸収係数 α_{11} と弾性定数 C_{11} の温度依存性の転移点近傍拡大図。

V_3Si では、弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ が巨大なソフト化とともに激しい超音波吸収を示したため、弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ を含む C_{11} モードで測定を行った。構造相転移 $T_s = 19$ K に向かって、室温から C_{11} は発散的な巨大なソフト化を示し、 α_{11} は構造相転移近傍で発散的な増大を示した。これは、四極子 O_u の揺らぎが増大する臨界減速現象であると考えられることを示した。

(4) 一軸圧下弾性定数測定を行うため、専用プローブの開発を行った。鉄ヒ素超伝導体は、非常に劈開しやすく壊れやすい。また、大きな結晶が出来にくい。これに対応するため、

一軸性の力を結晶に数 N から 50 N まで、対象化合物を冷却したままで調整できるプローブを製作した。試料の問題で測定開始が遅くなり、現在も鋭意実験を推進している。

(5) 得られた成果の位置づけとインパクト、今後の展望

鉄ヒ素超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ で観測した超伝導転移点での超音波吸収係数 α_{66} の発散的増大という現象は、これまで様々な超伝導体でほとんど報告の無い現象である。また、解析・計算から横波超音波の回転と d 電子の yz と zx 軌道の 2 つの電子が形成する十六極子が 1 次結合し、十六極子揺らぎが臨界減速を起こし、超伝導のドライブフォースの 1 つの可能性を示した。これまで超伝導では全く考えられてこなかった十六極子揺らぎを提示出来たことは、超伝導物理に対して非常に強いインパクトを与えるとともに、これからの発展に強く寄与するものと考えられる。

この得られた成果を比較・検証していくために、圧力下で反強磁性秩序が消失する量子臨界点近傍に超伝導が現れる正方晶系化合物 CeRhIn_5 で既に実験を始めており、さらに様々なタイプの超伝導体で研究を展開していく予定である。

最後に、これらの研究成果は、2016 年 3 月で博士号を取得した共同研究者の栗原綾佑君の博士論文に含まれており、また夏までに論文に投稿するため、共同研究者と執筆をほぼ修了し校正など準備中である。

<引用文献>

- [1] Y. Kamihara et al., J. Am. Chem. Soc. 130 (2008) 3296.
- [2] S. Nandi et al., Phys. Rev. Lett. 104 (2010) 057006.
- [3] I. A. Nekrasov et al., JETP Lett. 88 (2008) 144.
- [4] K. Kuroki et al., Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 087004., [5] H. Kontani and S. Onari, Phys. Rev. Lett. 104 (2010) 157001.
- [6] B. M. Klein et al., Phys. Rev. B 18 (1978) 6411.
- [7] T. Goto et al., J. Phys. Soc. Jpn. 80 (2011) 073702.

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 件)

[学会発表](計 6 件)

赤津光洋、伊藤基樹、三本啓輔、根本祐一、後藤輝孝、広瀬雄介、摂待力生、静水圧下超音波による圧力誘起超伝導体

CeRhIn_5 の研究、日本物理学会第 71 回年次大会、2016 年 3 月 19 日 ~ 2016 年 3 月 22 日、「東北学院大学(宮城県・仙台市)」

赤津光洋、栗原綾佑、根本祐一、後藤輝孝、中村慎太郎、Sergei Zherlitsyn、12-bit DSO を用いた高精度超音波計測システムの開発、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 16 日 ~ 2015 年 9 月 19 日、「関西大学(大阪府・吹田市)」
栗原綾佑、赤津光洋、三本啓輔、根本祐一、後藤輝孝、小林義明、佐藤正俊、摂待力生、金子浩、鈴木治彦、大貫惇睦、鉄ヒ素超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ と A15 型超伝導体 V_3Si の電気四極子効果、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 16 日 ~ 2015 年 9 月 19 日、「関西大学(大阪府・吹田市)」

伊藤基樹、三本啓輔、赤津光洋、根本祐一、後藤輝孝、広瀬雄介、摂待力生、超音波を用いた圧力誘起超伝導体 CeRhIn_5 の静水圧下弾性定数測定、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 16 日 ~ 2015 年 9 月 19 日、「関西大学(大阪府・吹田市)」

栗原綾佑、赤津光洋、三本啓輔、根本祐一、後藤輝孝、小林義明、佐藤正俊、鉄ヒ素超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ における電気四極子揺らぎの緩和現象 II、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 7 日 ~ 2014 年 9 月 10 日、「中部大学(愛知県・春日井市)」

赤津光洋、栗原綾佑、根本祐一、三本啓輔、荒木幸治、後藤輝孝、Shadi Yasin、Sergei Zherlitsyn、Joachim Wosnitza、小林義明、佐藤正俊、Elastic Properties of the Iron Pnictide Superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ in Pulsed Magnetic Fields、The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2014、2014 年 7 月 7 日 ~ 2014 年 7 月 11 日、「グルノーブル(フランス)」

[その他]
ホームページ等

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

赤津 光洋 (AKATSU, Mitsuhiro)

新潟大学・自然科学系・助教

研究者番号：10431876