

令和 2 年 7 月 14 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05538

研究課題名(和文) 静水圧下超音波計測によるマルチバンド超伝導体の超伝導の発現機構の解明

研究課題名(英文) Elucidation of mechanism of superconductivity in multiband superconductors by ultrasonic measurements under hydrostatic pressures

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) 3,400,000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<sub>1-x</sub>Cox)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>の超伝導の発現機構の解明のため、強磁場下及び静水圧下での超音波計測を行った。その結果、Ba(Fe<sub>1-x</sub>Cox)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>の弾性定数C<sub>66</sub>の巨大なソフト化は、50 T以上の強磁場でも磁場依存性が小さいことが分かった。量子臨界点近傍の濃度の試料では、四極子-歪み相互作用が他の濃度と比較して突出して大きいことが分かった。また、この濃度の試料のC<sub>66</sub>は、強い圧力依存性を示した。これらの結果は、C<sub>66</sub>の巨大なソフト化の起源である四極子の揺らぎが超伝導の発現にも重要な役割を果たしていることを示唆していることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

縮退したマルチバンド構造を持つ鉄系超伝導体Ba(Fe<sub>1-x</sub>Cox)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>は、弾性定数C<sub>66</sub>が強磁場下でも磁場依存性が小さいことや、構造相転移の量子臨界点近傍では四極子-歪み相互作用が大きいこと、またC<sub>66</sub>の静水圧力依存性が大きいことが世界で初めて明らかになった。これは、以前、我々が提案した四極子がもたらす六極子の揺らぎが超伝導のドライブフォースの1つであることを強く支持している。これは、最近精力的に研究が行われている圧力下で構造相転移の量子臨界点近傍で超伝導を示す励起子絶縁体候補物質などでも同様の議論をできる可能性があり、新しい発現機構を持つ超伝導の物理の発展に強く寄与すると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In order to elucidate mechanism of superconductivity in multi-band iron-based superconductors Ba(Fe<sub>1-x</sub>Cox)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>, we have performed ultrasonic measurements under high magnetic fields and hydrostatic pressures. The huge softening of the elastic constant C<sub>66</sub> in Ba(Fe<sub>1-x</sub>Cox)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> shows very small field dependence under high magnetic fields. The sample of concentration near the quantum critical point has the quadrupole-strain interaction, which is larger than the other concentrations. In addition, the C<sub>66</sub> of this sample shows large pressure dependence. These results suggest that the quadrupole fluctuation, which are the origin of the huge softening of C<sub>66</sub>, also plays an important role in the mechanism of superconductivity.

研究分野：物性物理学

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

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 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、国内外の多くの研究者が精力的に研究を行っている [1]。本研究で取り上げる正方晶系  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  は、Co を添加することにより電子をドーピングしていることになり、母物質  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  では約 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  $\text{Fe}^{2+}$  の d 電子軌道の縮退を持つマルチバンド構造になっている [2]。特徴的な物性として、弾性定数  $C_{66}$  の巨大なソフト化が挙げられる。この化合物の超伝導の発現機構については、最近、我々は  $C_{66}$  のソフト化の起源が四極子であり、2 電子状態の四極子相互作用を考えることで、回転と同じ対称性の十六極子が超伝導の発現機構と密接に関わっている可能性を示した [3]。しかし、様々な議論が展開されているが、いまだ解決に至っておらず、新たな視点からの研究が要求されていた。

### 2. 研究の目的

本研究では、パルス強磁場や静水圧下の超音波計測により、鉄系超伝導体  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の弾性定数  $C_{66}$  を測定し、四極子の量子臨界現象や超伝導転移での臨界緩和現象における四極子効果・回転効果を明らかにし、マルチバンド超伝導体の超伝導の発現機構を解明する。

### 3. 研究の方法

超音波は、結晶中を伝播する微小な歪みの波動である。この歪みは電気四極子と結合する。また横波超音波では、回転も誘起される。回転は波動関数の位相に影響する。超音波で測定する弾性定数は歪み感受率の実部である。一方、超音波吸収係数は、歪み感受率の虚部であり、マルチバンドにおける電気四極子の動的情報が得られる強力な実験手段である。強磁場中の研究を行うため、ドイツのドレスデン強磁場研究所と東京大学物性研究所のパルス磁石を用いて超音波により弾性定数  $C_{66}$  の測定を行う。静水圧下の研究を行うために、最近開発した超音波計測用のピストンシリンダー型の静水圧セルを用いて  $C_{66}$  の測定を行う。  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の試料は、構造相転移と超伝導を示す濃度、量子臨界点近傍の濃度、超伝導だけが現れる濃度など複数の試料を用意し、強磁場下や静水圧下の実験を行った。

### 4. 研究成果

(1)  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の仕込み Co 濃度が  $x = 0.07$  (反強磁性、構造相転移、超伝導が現れる試料)、0.075 (量子臨界点近傍の超伝導のみ現れる試料)、0.1 (超伝導のみ現れる試料) の 3 つ特徴ある試料を用いてパルス磁石を用いて超音波により弾性定数  $C_{66}$  の磁場依存性の測定を行った。図 1 に  $x = 0.07$  の  $C_{66}$  の磁場依存性を示す。構造相転移温度 65 K より上のノーマル相である 84 K のデータに注目すると、零磁場では室温から構造相転移温度まで  $C_{66}$  は 80% 以上のソフト化を示すのに対し、磁場依存性を見ると 60 T の強磁場をかけても 5% 前後しか回復しておらず、磁場に対して  $C_{66}$  のソフト化は非常に頑強であることが分かった。これは、他の 2 つの濃度の試料のノーマル相でも同様の結果が得られた。この  $C_{66}$  の小さい磁場依存性から、巨大なソフト化の起源がスピン揺らぎではなく d 軌道由来の四極子  $O_V$  であり、また、スピン - 軌道相互作用が弱いことが明らかになった。

(2) 常圧で量子臨界点近傍の仕込み Co 濃度の  $x = 0.075$  の試料の  $C_{66}$  の温度依存性の測定を行った結果、 $C_{66}$  は超伝導温度 25 K までに 60% 以上の巨大なソフト化を示した。解析し、以前に測定したその他の Co 濃度の解析結果と比較を行った。その結果、四極子 - 歪み相互作用の強さを示すフィッティングパラメーターである Jahn-Teller エネルギーが、他の Co 濃度と比較して量子臨界点近傍の  $x = 0.075$  が 1.5 倍ほど大きかった。これは、量子臨界点で四極子 - 歪み相互作用が増強されることが分かった。

(3) 量子臨界点近傍の Co 濃度  $x = 0.075$  の試料を用いて、超音波用ピストンシリンダー型静水圧力セルを用いて、静水圧力下での  $C_{66}$  の測定を行った。その結果、 $C_{66}$  は、前述したように、常圧では超伝導温度 25 K まで  $1/T$  に比例したキュリー的な 60% 以上のソフト化を示したのに対し、1 GPa の静水圧下では  $1/T$  から大きく外れた振る舞いを示した。また、超伝導転移による

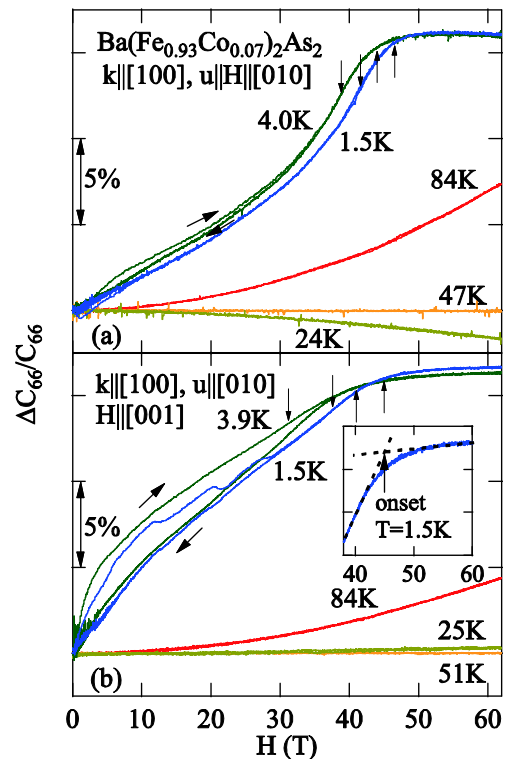


図 1  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$  の  $C_{66}$  のパルス磁場中の磁場依存性。

弾性異常を常圧とほぼかわらない 25 K で観測した。この  $C_{66}$  の大きな圧力依存性は、小さい磁場依存性と比較すると大きな特徴であり、静水圧力による Fermi エネルギーや伝導電子の状態密度の変化を敏感にとらえているものと考えられる。この振る舞いが量子臨界点近傍特有の性質なのか、母物質などでも現れるのか、追加の実験が必要となる。また、実験結果に対する解析や考察を進めている。

(4) 縮退を持つマルチバンド構造の超伝導体として、新たに  $1T\text{-TiSe}_2$  に注目し、超音波実験を行った。 $1T\text{-TiSe}_2$  は、励起子絶縁体候補物質として、精力的に研究が行われている。 $1T\text{-TiSe}_2$  は、約 200 K で電荷密度波 (CDW) 転移を示すことが古くから知られており、CDW 転移にともなって構造相転移する [4, 5]。CDW 転移は、Cu 添加や静水圧力によって減少し、量子臨界領域で超伝導が現れる [6]。Fermi エネルギー近傍のバンド構造は Ti イオンの 3d 軌道成分を持つバンドが縮退し、超伝導の発現機構では励起子揺らぎや格子揺らぎが重要な役割を果たしていると考えられており、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  との類似性も多く、新たな知見が得られると考え、着目した。図 2 に超音波で測定した  $1T\text{-TiSe}_2$  の弾性定数  $C_{11}$ ,  $C_{33}$ ,  $C_{44}$ ,  $C_{66}$  の温度依存性を示す。 $C_{33}$  と  $C_{44}$  は単調に増加するのに対し、 $C_{11}$  と  $C_{66}$  は CDW 転移に向かって大きなソフト化を示した。ソフト化する弾性定数が  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  と同じであるが、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  では室温から転移点まで広い温度範囲でソフト化するのに対し、 $1T\text{-TiSe}_2$  は転移点近傍で急激にソフト化を示すという違いがあることが分かった。ソフト化の起源が、Ti イオンの縮退した軌道  $d_{yz}$ ,  $d_{zx}$  由来の四極子によるものと考えられ、この点は  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  と類似している。今後、磁場や静水圧下での実験を進め、比較していく予定である。

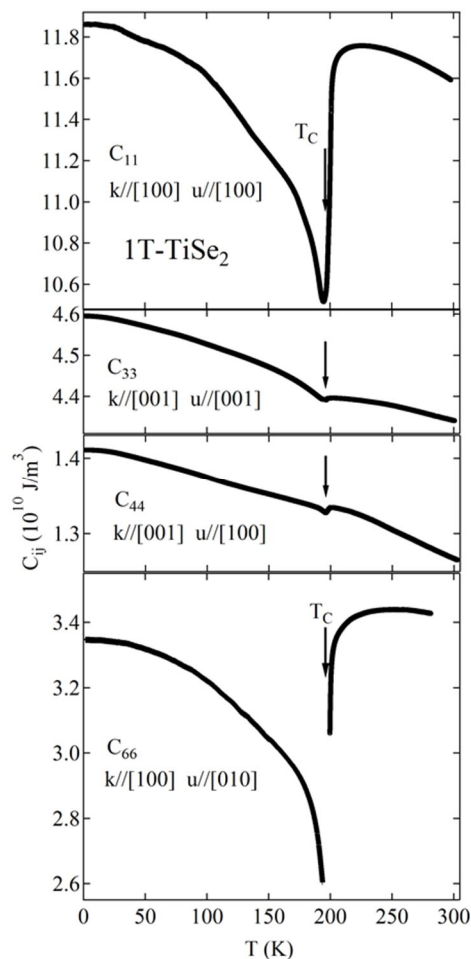


図 2  $1T\text{-TiSe}_2$  の弾性定数の温度依存性。

(5) 得られた成果の位置づけとインパクト、今後の展望

鉄系超伝導体  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  で観測した弾性定数  $C_{66}$  の巨大なソフト化の磁場依存性が小さいことは、ソフト化の起源が鉄イオンの d 軌道由来の四極子であることを強く支持しており、また量子臨界点近傍の Co 濃度の試料の静水圧力依存性が逆に大きいことは、量子臨界領域における四極子と格子不安定性の重要性を示唆している。新たに研究を始めた  $1T\text{-TiSe}_2$  では、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  と比較して、縮退した d 軌道やソフト化するモードが同じと類似するところも多いが、励起子が果たす役割も重要であるという点は大きく異なる。今後、さらにこれらの研究を進める必要があるが、超音波計測で得られたこれらの結果は、縮退したマルチバンド構造を持つ超伝導体における四極子物理の研究への発展に寄与するものと考えられる。

#### < 引用文献 >

- [1] Y. Kamihara *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
- [2] I. A. Nekrasov *et al.*, *JETP Lett.* **88**, 144 (2008).
- [3] R. Kurihara *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 064706 (2017).
- [1] F. J. Di Salvo *et al.*, *Phys. Rev. B* **14**, 10 (1976).
- [2] C. Risekel, *JSSC.* **17**, 289 (1976).
- [3] A. F. Kusmartseva *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 236401 (2009).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2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 Ryousuke Kurihara, Keisuke Mitsumoto, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Yoshiaki Kobayashi, Masatoshi Sato	4. 巻 86
2. 論文標題 Critical Slowing Down of Quadrupole and Hexadecapole Orderings in Iron Pnictide Superconductor	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 064706-1, -27
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.064706">https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.064706</a>	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 佐藤晴耕, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 栗原綾佑, 三本啓輔, 小林義明, 佐藤正俊	4. 巻 30
2. 論文標題 Multipole Flucuation of Iron Pnictide Superconductor Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 011052-1, -6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7566/JPSCP.30.011052">https://doi.org/10.7566/JPSCP.30.011052</a>	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14件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 早乙女秀俊, 佐藤晴耕, 広瀬雄介, 赤津光洋, 根本祐一, 摺待力生
2. 発表標題 V3Siの超伝導転移と構造相転移の相関
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 根本祐一, 佐藤晴耕, 赤津光洋, 後藤輝孝, 栗原綾佑, 三本啓輔, 小林義明, 佐藤正俊
2. 発表標題 鉄ヒ素超伝導体における歪み・回転と相互作用する多極子の対称性破れ
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 後藤輝孝, 根本祐一, 赤津光洋, 三本啓輔, 栗原綾佑
2. 発表標題 超音波による伝導電子系の研究
3. 学会等名 ISSPワークショップ スピン軌道強結合伝導系におけるサイエンスの新展開
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 栗原綾佑, 三本啓輔, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 小林義明, 佐藤正俊
2. 発表標題 鉄ヒ素超伝導体Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub> の歪みと回転フォノンによる多極子秩序と超伝導
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 赤津光洋, 栗原綾佑, 三本啓輔, 根本祐一, 後藤輝孝, Shadi Yasin, Sergei Zherlitsyn, Joachim Wosnitza, 小林義明, 佐藤正俊
2. 発表標題 鉄ヒ素超伝導体Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub> の強磁場中の四極子効果
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 三本啓輔, 栗原綾佑, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 小林義明, 佐藤正俊
2. 発表標題 鉄ヒ素超伝導体における十六極子秩序と超伝導
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 栗原綾佑, 三本啓輔, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 小林義明, 佐藤正俊, 徳永将史, 三宅厚志, 秋葉和人
2. 発表標題 パルス強磁場下での超音波計測による鉄ヒ素超伝導体Ba(Fe <sub>0.925</sub> Co <sub>0.075</sub> ) <sub>2</sub> As <sub>2</sub> の四極子 歪み相互作用の研究
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 赤津光洋, 佐藤晴耕, 根本祐一, 山本裕介, 小林義明, 伊藤正行
2. 発表標題 超音波による1T-TiSe <sub>2</sub> の構造相転移の研究
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤晴耕, 根本祐一, 赤津光洋, 後藤輝孝, 栗原綾佑, 三本啓輔, 小林義明, 佐藤正俊
2. 発表標題 量子臨界点近傍における鉄ヒ素超伝導体Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub> の四極子効果
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 赤津光洋, 栗原綾佑, 根本祐一, 後藤輝孝, 三本啓輔, 荒木幸治, Shadi Yashin, Sergei Zherlitysn, Joachim Wosnitza, 秋葉和人, 三宅厚志, 徳永将史, 小林義明, 佐藤正俊
2. 発表標題 Ultrasonic Study of Elastic Properties of the Iron-Pnictide Superconductor Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub> in High Magnetic Fields
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 根本祐一, 佐藤晴耕, 赤津光洋, 山本裕介, 小林義明, 伊藤正行
2. 発表標題 Ultrasonic Investigation of Lattice Instability in 1T-TiSe2
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤晴耕, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 栗原綾佑, 三本啓輔, 小林義明, 佐藤正俊
2. 発表標題 Multipole Flucuation of Iron Pnictide Superconductor Ba(Fe <sub>1-x</sub> Cox) <sub>2</sub> As <sub>2</sub>
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (国際学会)
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