

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月 7日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2012

課題番号：23740251

研究課題名（和文）鉄ニクタイト超伝導体のディラックコーンへの不純物置換効果

研究課題名（英文）Impurity substitution effect on Dirac cone in iron pnictide superconductors

研究代表者

田邊 洋一 (Yoichi Tanabe)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：80574649

研究成果の概要（和文）：鉄ニクタイト超伝導体のディラックコーンに特徴的な輸送現象の観測と不純物置換効果を明らかにすることを目的として、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{TM}_x\text{As})_2$  (TM=Ru, Mn) において磁場中輸送特性の測定を行った。その結果、ディラックコーンの量子極限の出現に起因する線形な磁気抵抗効果を観測した。さらに、非磁性・磁性不純物に対してディラックコーンが安定であることを磁気抵抗効果から観測し、ポテンシャル散乱体による後方散乱が抑制されていることを確認した。さらに、磁性不純物とディラック電子の近藤効果に起因したバンド繰り込みと理解できる有効質量の増大を見出した。

研究成果の概要（英文）：Impurity substitution effects on Dirac cone in iron pnictide  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{TM}_x\text{As})_2$  (TM=Ru, Mn) were investigated from the magnetoresistance and Hall resistivity measurements. The linear magnetoresistance resulting from the quantum limit of Dirac cone has been observed in  $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ . Moreover, it was found from the magnetoresistance that Dirac cones are robust for both nonmagnetic- and magnetic-impurity substitution and the backward scattering of Dirac electrons via potential scatters are significantly suppressed. For the magnetic impurity substitution, the mass enhancement of Dirac electron has been confirmed at low temperatures, being consistent with the Kondo effect between Dirac electrons and localized electron spins.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：高温超伝導、ディラックコーン、磁気抵抗効果、不純物置換効果

### 1. 研究開始当初の背景

最近、鉄ニクタイト超伝導体の母物質において、線形なバンド分散が交差した状態、いわゆる、ディラックコーンが発見され注目を集めている。ディラックコーン型のバンド分散を持つ化合物としては、グラフェン[1]、有機導体[2]、トポロジカル絶縁体[3]などが知られており、高い易動度や後方散乱の強い抑制などの特徴を持つ。鉄ニクタイト化合物は、Feの5つの3d軌道から成る半金属

的なマルチバンド構造を持つことが知られている。Feの $d_{xz}$ と $d_{yz}$ 軌道を考慮した理論計算からは、電子ポケットと正孔ポケットが異なる擬スピン渦度(Pseudospin vorticity)を持つことが示唆されている[4]。低温では、電子ポケットとホールポケットのネスティングに起因して、スピン密度波状態(SDW)が出現する。このとき、電子ポケットと正孔ポケットの擬スピン渦度の差を埋めるために、SDWギャップがノードを持つ、所謂ノーダル

SDW 状態の出現が示唆されている[4, 5]。このSDWギャップのノードがディラックコーンである。ディラックコーン型分散の存在は、角度分解光電子分光[6]などの実験から確認されている。密度汎関数法による計算からは、ディラックコーンが3次元的な分散を持つこと、その他のパラボリックバンドと共存することなどが示唆されている[7]。すなわち、これらに特徴的な輸送特性の観測や不純物置換などを通じたディラック電子の多体相互作用の研究の舞台となり得る。

## 2. 研究の目的

本研究では、鉄ニクタイト化合物の代表的な母物質である  $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$  に着目し、以下の目的に基づいて研究を行った。

- (1) 3次元的な分散を持つディラックコーンに特徴的な輸送現象の観測
- (2) 不純物置換効果の解明
  - ① ディラックコーンへの非磁性不純物置換効果と後方散乱に対するベリー位相の効果の解明
  - ② ディラックコーンへの磁性不純物置換の影響の解明とディラック電子と局在電子スピンによる近藤効果の観測

ディラックコーン型の線形分散においては、その量子極限において、線形な磁気抵抗効果の発現が理論から予想されている[8]。ディラックコーンが3次元的な分散を持ちかつパラボリックバンドと共存している鉄ニクタイト超伝導体においては、グラフェンなどとは異なり、この線形な磁気抵抗効果の発現が期待される。

鉄ニクタイト超伝導体のディラックコーンは、マルチバンド構造中の擬スピン渦度の差に起因して発現する。このため、少量の非磁性・磁性不純物置換に対してディラックコーンは安定に存在することが予想される。特に、非磁性不純物によるポテンシャル散乱に対しては、ディラックコーン型分散により現れる幾何学位相(ベリー位相)の効果により、ディラック電子の後方散乱が強く抑制された状態が出現する。一方、磁性不純物に対しては、ディラック電子と局在電子スピンの近藤効果や Rudermann-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY) 相互作用の発現が期待される。本研究では、理論から予想されるディラックコーンに特徴的な物性とディラック電子の多体相互作用の観測を目的として実験を行った。

## 3. 研究の方法

$\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{TM}_x\text{As})_2$  (TM = Ru, Mn) の単結晶は FeAs フラックスを用いたフラックス法により育成した[9]。単結晶の品質を評価し、不

純物相の混入の影響がないことを確認するため、放射光施設 SPring8BL02B1 において粉末 X 線回折実験を行った。リートベルト法による解析を行った結果、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{TM}_x\text{As})_2$  の単相試料が得られたことを確認した。磁気抵抗効果とホール抵抗の測定は4端子法を用いて 17.5T 以下の磁場中において行った。測定は東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターの超伝導マグネット 20T-SM を用いて行った。

## 4. 研究成果

- (1)  $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$  における線形磁気抵抗効果 ; ディラックコーンの量子極限の観測

$\text{Ba}(\text{FeAs})_2$  において3次元的な分散を持つディラックコーンに特徴的な輸送現象の観測を目的として、磁気抵抗効果の測定を行った。その結果、SDW 転移温度以下において、易動度の増大に起因して、磁気抵抗効果が急激に増大すること、さらには、高磁場領域で磁気抵抗効果が磁場に対して線形に振る舞うことを観測した。ディラックコーンにおいては、理論から、磁場中量子極限において線形磁気抵抗効果の発現が指摘されている[8]。実際に、線形磁気抵抗効果が出現するオンセット磁場  $B^*$  の温度依存性を調べると、 $B^*$  の 0.5 乗が温度に比例して増大することを見出した。この振る舞いは、ディラックコーン型線形分散における量子化されたランダウ準位間のエネルギー差と熱励起の効果を考慮した場合に導出される  $B^*$  の温度依存性と一致する。すなわち、 $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$  において、ディラックコーンの量子極限で理論から予測されている線形磁気抵抗効果を観測することに初めて成功した。(図 1, PRL2011)

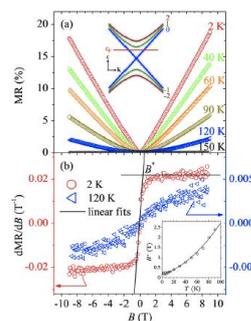


図 1.  $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$  の (a) 磁気抵抗効果と (b) 磁場微分の磁場依存性。

- (2) ディラックコーンに対する非磁性不純物置換効果と後方散乱の抑制

鉄系超伝導体のディラックコーンに対する非磁性不純物置換効果を明らかにすることを目的として、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x\text{As})_2$  の単結晶を育成し、磁場中輸送特性の測定を行った。Ru は 4d 軌道に含まれる電子の数が Fe の 3d 軌道と同じであるため、Fe に対して非磁性不純物に相当する。磁気抵抗効果の測定からは、易動度の減少に起因して絶対値の減少が見られるものの、Ru を置換した場合においても、

線形な磁気抵抗効果が発現すること、さらに、 $B^*$ の0.5乗が温度に比例して増大することを確認した。すなわち、この結果は、少量の非磁性不純物置換に対してディラックコーンが安定に存在することを示している。(図2, PRB2011) $B^*$ の温度依存性の解析からは、ディラックコーンのフェルミ速度( $v_F$ )がRu置換に対してほとんど変化しないこと、Ru置換に対してディラックコーンのフェルミエネルギー( $E_F$ )が増大することが明らかになった。半金属的なバンド構造の影響から、Ru置換によって系全体のキャリア数は変化しないものの、ディラック中性点のエネルギーなどが変化することによってディラックコーンのキャリア数が変化しているのかもしれない。さらに、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x\text{As})_2$ において超伝導とSDWが共存する組成において、超伝導を磁場で破壊した場合に、線形な磁気抵抗効果が表れることを観測した。この結果は、超伝導とディラックコーンが $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x\text{As})_2$ において共存していることを示している。

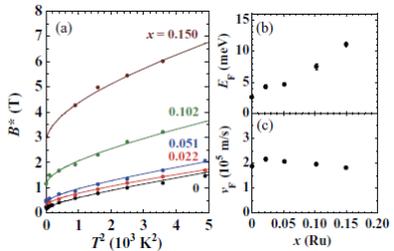


図 2.  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x\text{As})_2$  の (a)  $B^*$  の温度以前性と解析から得られたディラックコーンの (b)  $E_F$  と (c)  $v_F$ .

ディラックコーンの易動度への非磁性不純物置換効果を、磁場中輸送特性の低磁場極限の準古典近似を用いた解析から導出した。 $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ においては、ディラックコーンを含めて計4つの電子・ホールバンドが共存する複雑な電子構造がバンド計算から示唆されている[7]。このため、ディラック電子の易動度を輸送特性から直接見積もることは困難となる。一方で、鉄系超伝導体のディラックコーンにおいては、ベリー位相の効果によって電子の後方散乱が抑制されることが期待される。本研究で使用した単結晶は $\text{FeAs}$ フラックスを分離するため、 $1100^\circ\text{C}$ で急冷処理を行っている。この場合、急冷処理により生じた熱ひずみがパラボリックバンドの易動度を強く抑制する一方、ディラック電子に対してその影響は弱いと推測される。すなわち、準古典近似の2キャリアモデルから易動度を解析的に導出した場合、ディラック電子単体の易動度を導出することはできないが、得られた易動度がディラック電子の高い易動度を強く反映することが予想される。実際に、2キャリアモデルから導出した易動度の平均を取り、 $B^*$ の解析から導出した $E_F$ と $v_F$ から導出したディラックコーンのキャリア数 $n$ に対してプロットすると易動度の逆数が $n$ の0.5乗に比例することを観測した。ディラックコーン型の線形分散においてはサイ

クロトン有効質量がキャリア数の0.5乗に比例することが知られていることから[1]、Ru置換による易動度の減少がディラックコーンの $E_F$ の変化に起因していることを示している。さらに、 $B^*$ の解析から導出した $E_F$ と $v_F$ を用いて $m^*$ を導出し、キャリアの平均自由行程を導出した結果、Ru置換に対してほぼ一定であり、平均自由行程がRu-Ru間距離よりも長いことを明らかにした。本研究で用いた解析手法では、ディラックコーンの易動度を過小に見積もっていることから、この結果は後方散乱の抑制と矛盾しない。よって、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x\text{As})_2$ において、ディラックコーンのベリー位相の効果によって非磁性不純物による後方散乱の影響が強く抑制されていると結論した。(PRB2012)

### (3) ディラックコーンに対する磁性不純物置換効果と近藤効果によるディラック電子の有効質量の増大

鉄系超伝導体のディラックコーンに対する磁性不純物置換効果を明らかにすることを目的として、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ の単結晶を育成し、磁場中輸送特性の測定を行った。 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ においては、核磁気共鳴の実験から、Mnの3d電子が局在しており、Feの3d軌道へのキャリアドープが行われていないことから、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ においてMnが磁性不純物として振る舞うことが示唆されている。磁気抵抗効果からは、Mn濃度の増加に対して、急激に磁気抵抗効果の絶対値が減少するものの、 $x \leq 0.035$ において高磁場領域で磁気抵抗効果が線形に振る舞うことを観測した。さらに、 $B^*$ の温度依存性を解析した結果15K以上の温度領域において $B^*$ の0.5乗が温度に比例して増大することを確認した。すなわち、この結果は、少量の磁性不純物置換に対してディラックコーンが安定に存在することを示している。 $B^*$ の温度依存性の解析からは、Ru置換の場合と同様に、Mn置換量の増加に対して $v_F$ がほとんど変化しないこと、 $E_F$ が連続的に増大することを観測した。 $E_F$ の増大については、Mn置換によってキャリアドープが起らないことから、ディラック中性点のエネルギーの変化などが予想されるが、今後、パルス磁場を用いた強磁場輸送特性の測定と易動度スペクトルの解析を通して、パラボリックバンドを含む系全体のフェルミオロジーの解明を通して明らかにする必要がある。

一方で、15K以下の温度領域においては、特に $x \geq 0.028$ の領域において、 $B^*$ が急激に増大する振る舞いを観測した。線形磁気抵抗効果の起源がディラックコーンの量子極限である場合、 $B^*$ の増大は、ディラック電子の有効質量の増大を示唆している。実際、磁場中輸送特性の低磁場極限の準古典近似を用いた解析からは、15K以下の温度領域にお

いて易動度の減少が見られることから、 $B^*$ の増大がディラック電子の有効質量の増大と関係している可能性が高い。さらに、15K以上と2Kにおける $B^*$ の解析から得られた $E_F$ と $V_F$ を用いて、ディラックコーン型の線形分散を仮定した式から有効質量 $m^*$ を導出した結果、15K以上においては、Mn置換に対して、 $m^*$ がディラックコーンのキャリア数 $n$ の0.5乗に比例して増大し、その傾きがRu置換の場合と一致する一方で、2Kにおいては、 $m^*$ が15K以上における直線から逸脱し、10倍程度増大することを確認した。(図3)  $Ba(Fe_{1-x}Mn_xAs)_2$ においては、40 K以下の温度領域において、電気抵抗率が $-\log T$ に比例して増大し、10K以下において飽和する振る舞いが観測される。これらの振る舞いは、磁性不純物を希薄に含む系における近藤効果の振る舞いと一致する。ディラック電子と局在電子スピンの近藤効果が起こる場合、低温でバンド繰り込み効果によってディラック電子の有効質量が増大することが予想される。従って、近藤効果に起因するバンド繰り込み効果によってディラック電子の有効質量が増大している可能性が高いと結論した(論文投稿中)。

[1]A. H. Castro *et al.*, Rev. Mod. Phys. 81, 109 (2009). [2]N. Tajima *et al.*, Phys. Rev. Lett. 102, 176403 (2009). [3]M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. 82, 3045 (2010). [4]Y. Ran *et al.*, Phys. Rev. B 79, 014505 (2009). [5] T. Morinari *et al.*, Phys. Rev. Lett. 105, 037203 (2010). [6] P. Richard *et al.*, Phys. Rev. Lett. 104, 137001(2010). [7] Z. P. Yin *et al.*, Nature Phys. 7, 294 (2011). [8] A. A. Abrikosov, Phys. Rev. B 58, 2788 (1998). [9]A. Thaler

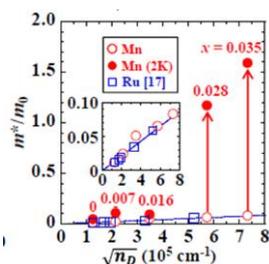


図3.  $Ba(Fe_{1-x}TM_xAs)_2$  (TM = Mn, Ru) において2Kと15K以上におけるディラック電子の有効質量のキャリア濃度依存性。

*et al.*, Phys. Rev. B 82, 014534 (2010).

## 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3件)

(1) Y. Tanabe *et al.*, Suppression of backward scattering of Dirac fermions in iron pnictides  $Ba(Fe_{1-x}Ru_xAs)_2$ , Physical Review B, 査読有り, 巻号 86, 2012, 094510-1 - 5, DOI:10.1103/PhysRevB.86.

094510

(2) Y. Tanabe *et al.*, Coexistence of Dirac-cone states and superconductivity in iron pnictide  $Ba(Fe_{1-x}Ru_xAs)_2$ , Physical Review B (Rapid Communications) 査読有り, 巻号 84, 2011, 100508-1 - 4, DOI:10.1103/PhysRevB.84.100508

(3) Khuong Kim Huynh, Yoichi Tanabe, and Katsumi Tanigaki, Both Electron and Hole Dirac Cone States in  $Ba(FeAs)_2$  Confirmed by Magnetoresistance, Physical Review Letters, 査読有り, 巻号 106, 2011, 217004-1 - 4, DOI:10.1103/PhysRevLett.106.217004

[学会発表] (計10件)

(1) Y. Tanabe, Impurity substitution effect on Dirac cone states in iron pnictide  $Ba(Fe_{1-x}TM_xAs)_2$  (TM = Co, Ru, Mn), Materials and Mechanism of superconductivity 2012, ワシントンD.C. (アメリカ), 2012年7月31日 (ポスター講演)

(2) Y. Tanabe, Suppression of the Backward Scattering of Dirac Fermion in Iron Pnictides  $Ba(Fe_{1-x}Ru_xAs)_2$ , International Conference of New Science Created by Materials with Nano Spaces, Sakura Hall (Sendai, Japan). 2011年11月26日 (口頭講演)

(3) Y. Tanabe, "Non-Magnetic Impurity Effect on Dirac Cone States in  $Ba(Fe_{1-x}Ru_xAs)_2$  Studied by Magneto-resistance and Hall Coefficient", ICC-IMR "Search for new physics in transition metal compounds by spectroscopies" Tohoku University (Sendai, Japan) 2011年7月30日 (招待講演)

[その他]

ホームページ等

<http://sspns.phys.tohoku.ac.jp/>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

田邊 洋一 (TANABE YOICHI)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：80574649

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し