

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24244057

研究課題名(和文) 強相関電子系における電子ネマティック相の解明

研究課題名(英文) Research on the electronic nematic phases in strongly correlated electron systems

研究代表者

芝内 孝禎 (Shibauchi, Takasada)

東京大学・新領域創成科学研究科・教授

研究者番号：00251356

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、鉄系超伝導体や重い電子系化合物などの強相関電子系物質において存在が明らかになりつつある、電子状態が本来の結晶が持つ回転対称性を自発的に破った「電子ネマティック」状態を、様々な新しい実験手法を駆使して明らかにした。特に、長年の謎であったウラン化合物における隠れた秩序相において、微小試料での測定が可能な磁気トルク測定による磁気異方性の高感度検出、放射光を用いた高次ブラック散乱による高分解能単結晶構造解析、サイクロトロン共鳴による有効質量の角度依存性測定、ピエゾ素子を用いた電気抵抗異方性によるネマティック感受率測定を組み合わせ、4回回転対称性を破る状態が実現していることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this project, we have studied the so-called "electronic nematic" states in strongly correlated electron systems such as iron-based superconductors and heavy-fermion materials, by using several new experimental techniques. One of the most important achievements is that we identified broken fourfold rotational symmetry in the hidden-order phase in a uranium-based compound, whose nature has been a long-standing mystery in condensed matter physics. This conclusion has been consistently obtained from a variety of measurements including magnetic anisotropy measurements by using sensitive torque magnetometry, high-resolution crystal structure analysis by using synchrotron X-ray, angular dependence of the effective mass by cyclotron resonance, and nematic susceptibility analysis from elastoresistance measurements by using piezoelectric devices.

研究分野：固体電子物性

キーワード：対称性の破れ 隠れた秩序 電子相関 重い電子系 鉄系超伝導 構造解析 サイクロトロン共鳴 磁気トルク

1. 研究開始当初の背景

固体中の多数の電子が相互作用を及ぼし合い、その結果非自明な状態を創り出すことがしばしばある。特に、相互作用の強い強相関電子系とよばれる物質群では、最近電子ネマティック相とよばれる、結晶が持つ回転対称性を破る状態が出現することが明らかになりつつある。ネマティックというのは液晶の分野で並進対称性を保ちながら回転対称性を破る状態として知られているが、電子集団が相互作用をしながら動き回る液体状態が、方向によって性質が異なるような異方性を示す状態が出現し、回転対称性を自発的に破る状態を「電子ネマティック」状態とよぶ。例えば、正方晶の結晶を持つ物質では、90度回転させても同じように見えるはずで、4回回転対称性を持っている。しかし、電子ネマティック状態では、直交する二つの方向で異なる応答を示すというものである。このような状態では、しばしばミクロなドメイン構造が発生し、試料全体で平均化してしまうとその異方性が隠されてしまうため、回転対称性の破れを実証するには、適切な実験的手法を用いた研究が急務となっていた。

2. 研究の目的

本研究では、鉄系超伝導体や重い電子系化合物などの強相関電子系で可能性が議論されていた電子ネマティック状態を実験的に解明するため、様々な新しい実験手法を駆使して、多角的な研究により、回転対称性の破れを明らかにすることを目的とした。特に、鉄系超伝導体では、超伝導転移温度以上の常伝導相におけるネマティック状態の有無について明らかにすることを目指し、重い電子系化合物 URu_2Si_2 における「隠れた秩序」相において回転対称性の破れの有無を検証した。

3. 研究の方法

回転対称性の破れを実験的に明らかにするために、以下の測定方法に着目し、正方晶の構造を持つ鉄系超伝導体およびウラン化合物 URu_2Si_2 について、以下の複数の測定による多角的な検証を行った。

(1) 磁気トルクによる磁気異方性測定

正方晶の面内に磁場を印加し、磁気トルクの面内角度依存性を微小カンチレバー法により測定し、その角度依存性に2回対称性成分の有無を検知する方法を開発した。系の対称性が4回対称性を保っている場合には、2回対称性は出てこないが、4回回転対称性を破ると同時に2回対称性成分が出現する。カンチレバーにより、非常に高感度な測定が可能のため、ドメインサイズと同程度の微小単結晶試料の測定が可能となった。磁場の角度を正確に制御するためにベクトル型超伝導マグネットを使用した。

(2) サイクロトロン共鳴による有効質量の角度依存性測定

URu_2Si_2 の純良試料において、マイクロ波領域でのサイクロトロン共鳴の観測に成功した。この結果を受けて、共鳴磁場から求められる有効質量の角度依存性から、面内回転対称性に関する知見を得ることを試みた。

(3) シンクロトロン放射光を用いた高分解能単結晶構造解析

Spring-8 におけるシンクロトロン放射光の高強度 X 線を用いて、高分解能構造解析を行うために、広角反射の高次ブラッグピークに着目し、その温度変化を詳細に調べることにより、電子状態の回転対称性に伴うわずかな結晶構造の直方晶歪みの観測を目指した。特にウラン化合物では、吸収端による X 線の侵入深さの変化を考慮し、ドメインサイズよりも十分に長いバルクの情報を得られるように X 線の波長をチューニングする工夫を行って測定した。

(4) ピエゾ素子を用いた電気抵抗異方性測定

ピエゾ素子に試料を貼り付け、電圧を加えることにより一軸歪みを導入した時の電気抵抗の変化を詳細に測定することにより、電気抵抗の面内異方性が歪みに対してどの程度発達しやすいかを定量化した。この量はネマティック感受率と直接関連した物理量であることが最近示されている。このネマティック感受率の温度依存性から電子ネマティック相への相転移について調べることが可能となった。

4. 研究成果

重い電子系化合物 URu_2Si_2 および鉄系超伝導体の単結晶試料を用いて、前節で述べた様々な実験手法により、電子ネマティック状態に関する重要な知見を得ることに成功した。

(1) URu_2Si_2 の隠れた秩序相における回転対称性の破れ

本プロジェクトをスタートする時点で、我々は磁気トルクの面内角度依存性に2回対称成分が 17.5 ケルビンの隠れた秩序相転移温度以下において出現することを見出していたが、より確実な証拠が求められていた。まず第1に、この磁気トルク測定を極低温の超伝導状態まで行ったところ、1.4 ケルビン以下の超伝導相ではこの面内異方性が増大することが明らかになった。この結果は回転対称性の破れを反映して超伝導状態における上部臨界磁場の異方性が加わることを意味しており、本質的に電子状態が2回対称性になっていることを支持する結果である。第2に、サイクロトロン共鳴の磁場角度依存性の解析により、最も大きなフェルミ面上で有効質量と散乱時間が2回対称性の異方性を持つことを明らかにし、[110]方向に有効質量が大きくかつ散乱時間の短いホットスポットとよばれる構造ができていたことを明らかにした。第3に、純良単結晶試料を用いた高分解能結晶構造解析により、高次(880)のブラッグスポットが、隠れた秩序相において

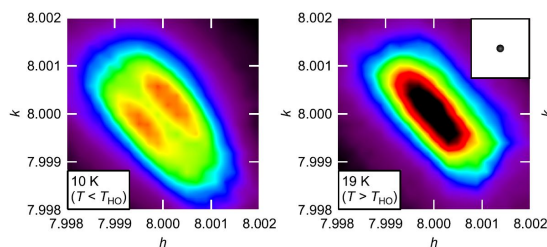


図 1. URu₂Si₂ 純良単結晶における(880)ブラッグスポット。隠れた秩序相転移温度以上では一つのピーク(右)であるのに対して、転移温度以下では明確な分裂(左)が観測された[S. Tonegawa *et al.*, Nat. Commun. **5**, 4188 (2014)].

図1のように明確な分裂を示すことを明らかにした。この分裂は、直方晶歪みがわずかに発生していることを直接観測したものであり、隠れた秩序相における対称性の破れを散乱実験により初めて明確に示した結果である。第4に、ピエゾ素子を用いて[110]方向に一軸歪みを導入した場合に、転移温度に向かってネマティック感受率が発散的に増大する振る舞いが観測された。この結果は隠れた秩序相転移において回転対称性を破ることを支持する結果であり、X線測定とコンシステントである。なお、同様な測定はスタンフォード大により報告されたが、ほぼ同時期に独立に我々も観測に成功した。

このような複数の測定により、隠れた秩序相において、4回回転対称性を破る電子状態となっていることを結論づけた。この結果は長年の謎であったこの相の秩序パラメータに非常に重要な制限を与えるものであり、30年来明らかになっていなかった対称性を決定したものである。

(2) 鉄系超伝導体における電子ネマティック状態

BaFe₂As₂を母物質として、Asサイトを等電荷元素のPで置換した試料について、正方晶-直方晶構造相転移以上において面内4回回転対称性を破る電子ネマティック状態が実現していることを磁気トルク測定および放射光X線測定により報告してきたが、同様な状態はFeサイトをCoで置換した試料についても観測された。また、共同研究により、P置換試料において光電子分光測定が行われ、回転対称性が破れはじめる温度より軌道の分裂や擬ギャップの形成を示唆する結果が得られた。さらにNMR測定においても軌道秩序を示唆する電場勾配の異方性が観測された。

また、90ケルビンに構造相転移を示しながら反強磁性を示さないFeSeについて、ネマティック感受率測定を行い、構造相転移に向かって発散的に増大することを明らかにした。現在、Seを一部Sに置換した一連の試料での測定を行っており、構造相転移温度の低下とともに感受率がどのように変化するかを調べ、反強磁性を示すBaFe₂As₂系との電子

ネマティック状態の相違点を明らかにすることを計画している。これにより、鉄系超伝導の電子ネマティック状態と反強磁性がどのように関連しているかを明らかにすることが今後の課題である。

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34件)全て査読有り

T. Iye, M.-H. Julien, H. Mayaffre, M. Horvatic, C. Berthier, K. Ishida, H. Ikeda, S. Kasahara, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Emergence of Orbital Nematicity in the Tetragonal Phase of BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂", J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 043705 (2015). [5 pages]
DOI: 10.7566/JPSJ.84.043705

S. Tonegawa, S. Kasahara, T. Fukuda, K. Sugimoto, N. Yasuda, Y. Tsuruhara, D. Watanabe, Y. Mizukami, Y. Haga, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki, H. Ikeda, Y. Matsuda, and T. Shibauchi, "Direct Observation of Lattice Symmetry Breaking at the Hidden-Order Transition in URu₂Si₂", Nat. Commun. **5**, 4188 (2014). [7 pages]
DOI: 10.1038/ncomms5188

T. Shimojima, T. Sonobe, W. Malaeb, K. Shinada, A. Chainani, S. Shin, T. Yoshida, S. Ideta, A. Fujimori, H. Kumigashira, K. Ono, Y. Nakashima, H. Anzai, M. Arita, A. Ino, H. Namatame, M. Taniguchi, M. Nakajima, S. Uchida, Y. Tomioka, T. Ito, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, K. Ohgushi, S. Kasahara, T. Terashima, H. Ikeda, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and K. Ishizaka, "Pseudogap Formation above the Superconducting Dome in Iron-Pnictides", Phys. Rev. B **89**, 045101 (2014) [10 pages]
DOI: 10.1103/PhysRevB.89.045101

T. Shibauchi, H. Ikeda, and Y. Matsuda, "Broken Symmetries in URu₂Si₂", Philo. Mag. **94**, 3747-3759 (2014).
DOI: 10.1080/14786435.2014.887861

S. Tonegawa, K. Hashimoto, K. Ikada, Y. Tsuruhara, Y.-H. Lin, H. Shishido, Y. Haga, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, Y.

Onuki, H. Ikeda, Y. Matsuda, and T. Shibauchi, "Cyclotron Resonance Study of Quasiparticle Mass and Scattering Rate in the Hidden-Order and Superconducting Phases of URu₂Si₂", Phys. Rev. B **88**, 245131 (2013) [13 pages]
DOI: 10.1103/PhysRevB.88.245131

M. A. Tanatar, K. Hashimoto, S. Kasahara, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and R. Prozorov, "Interplane Resistivity of Isovalent Doped BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂", Phys. Rev. B **87**, 104506 (2013) [5 pages]
DOI: 10.1103/PhysRevB.87.104506

芝内孝禎、松田祐司、「鉄系高温超伝導体の超伝導対称性と電子状態相図(解説)」日本物理学会誌 **68**(9), 592-601 (2013).

芝内孝禎、笠原成、松田祐司、福田竜生、杉本邦久、「鉄系超伝導体の電子ネマティック転移と斜方歪み」日本結晶学会誌 **55**(2), 128-134 (2013).

芝内孝禎、松田祐司、「URu₂Si₂の隠れた秩序相における対称性の破れ」固体物理 **47**(11), 663-672 (2012).

D. Watanabe, M. Yamashita, S. Tonegawa, Y. Oshima, H. M. Yamamoto, R. Kato, I. Sheikin, K. Behnia, T. Terashima, S. Uji, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Novel Pauli-Paramagnetic Quantum Phase in a Mott Insulator", Nat. Commun. **3**, 1090 (2012) [6 pages]
DOI: 10.1038/ncomms2082

ほか 24 件

[学会発表](計 28 件)

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Quantum Criticality and BCS-BEC Crossover in Iron-Based Superconductors", KITP Conference on Strong Correlations and Unconventional Superconductivity: Towards a Conceptual Framework, KITP, UCSB, Santa Barbara, CA, USA, September 22-26, 2014.

芝内孝禎 (シンポジウム講演)
"URu₂Si₂の隠れた秩序とエキゾチック超伝導", 領域 8 シンポジウム「重い電

子系化合物の新展開」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 中部大学, 愛知県春日井市
2014 年 9 月 7 日-10 日

Takasada Shibauchi (プレナリー講演)
"Quantum Criticality in Iron Pnictide Superconductors", 27th International Conference on Low Temperature Physics (LT27), Buenos Aires, Argentina, August 6-13, 2014.

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Symmetry Breaking in the Hidden-Order Phase of URu₂Si₂", REIMEI Workshop on "Electronic state of URu₂Si₂ and related systems", JAEA, Tokai, Ibaraki, Japan, June 23, 2014.

芝内孝禎 (シンポジウム講演)
"電子状態相図と不純物効果", 領域 8 シンポジウム「多軌道電子系としての鉄系高温超伝導体: 軌道とスピンの協奏」, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学, 神奈川県平塚市
2014 年 3 月 27 日-30 日

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Symmetry Breaking in the Hidden-Order Phase of URu₂Si₂", Lorentz Center Workshop on Hidden Order, Superconductivity, and Magnetism in URu₂Si₂, Leiden, the Netherlands, November 4-8, 2013.

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Electronic phase diagram of iron-pnictide superconductor BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂", The IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013): Advanced superconducting materials and its applications, Qingdao, China, September 22-24, 2013.

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Symmetry Breaking in the Hidden-Order Phase of URu₂Si₂", The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2013), The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo, Japan, August 5-9, 2013.

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Nematic Transition and Antiferromagnetic Quantum Critical

Point in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$,
Spectroscopies in Novel
Superconductors (SNS2013), Berkeley,
California, USA, June 24-28, 2013.

Takasada Shibauchi (招待講演)
`Antiferromagnetic Quantum Critical
Point and Nematic Transition in
 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ", International
Symposium on Superconductivity 2012
(ISS2012), Tower Hall Funabori,
Edogawa-ku, Tokyo, December 3-5,
2012.

Takasada Shibauchi (招待講演)
`Nematic Transition and
Antiferromagnetic Quantum Critical
Point in $\text{BaFe}_2(\text{As,P})_2$ ", Innovations in
Strongly Correlated Electrons
Workshop, Trieste, Italy, August
13-August 17, 2012.

Takasada Shibauchi (招待講演)
`Nematic Transition and
Antiferromagnetic Quantum Critical
Point in $\text{BaFe}_2(\text{As,P})_2$ ", Second Joint
Super PIRE REIMEI Workshop,
Bethesda, MD, USA, August 3-August
5, 2012.

Takasada Shibauchi (招待講演)
`Symmetry Breaking in the Hidden
Order Phase of URu_2Si_2 ", The 4th
International Workshop on the Dual
Nature of f-electrons, Jibasan Center,
Himeji, Hyogo, Japan, July 4-July 6,
2012.

Takasada Shibauchi (招待講演)
`Symmetry Breaking in the Hidden
Order Phase of URu_2Si_2 ", International
Conference on Superconductivity and
Magnetism (ICSM2012), Istanbul,
Turkey, April 29-May 4, 2012.

ほか 14 件

[その他]

ホームページ等

<http://qpm.k.u-tokyo.ac.jp/>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

芝内 孝禎 (SHIBAUCHI TAKASADA)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・

教授

研究者番号 : 00251356