

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24340090

研究課題名(和文)中性子散乱による鉄系超伝導体のスピン揺動の研究

研究課題名(英文)Spin fluctuation of iron-based superconductors studied by neutron scattering

研究代表者

李 哲虎 (Chul-Ho, Lee)

独立行政法人産業技術総合研究所・省エネルギー研究部門・研究グループ付

研究者番号：80358358

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では中性子散乱を用いて鉄系超伝導体の磁気励起を調べ、超伝導の発現機構の解明を目指した。特に、レゾナンスモードと呼ばれる超伝導相で出現する強い磁気励起の振る舞いを明らかにした。その結果、磁性と超伝導の強い相関関係が明らかとなった。また、特定の濃度領域ではレゾナンスモードは出現せず、磁性以外の相互作用が超伝導に寄与していることが示唆された。これにより、鉄系超伝導では多様な相互作用が超伝導に寄与している可能性があることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：We studied spin fluctuations of iron-based superconductors using neutron scattering technique. Especially, we have examined the magnetic signal, so called spin resonance, which is enhanced strongly in superconducting phase. As results, strong relationship between magnetism and superconductivity has been demonstrated. The spin resonance disappears in a certain carrier concentration range, which suggests that other interactions rather than magnetism play an essential role in the appearance of superconductivity. Various interactions might cooperate for inducing the superconductivity in iron-based superconductors.

研究分野：固体物性

キーワード：鉄系超伝導体 中性子非弾性散乱 スピン揺動 レゾナンスモード

## 1. 研究開始当初の背景

2008年に超伝導転移温度が  $T_c = 56\text{K}$  の鉄系超伝導体が発見された。この転移温度は銅酸化物高温超伝導体に次いで高く、従来の理論で説明することは難しい。そのため、鉄系超伝導体における超伝導の発現機構を解明すべく、研究が盛んに行われている。

超伝導の発現にはクーパー対が形成される必要がある。このクーパー対の引力の起源の有力な候補として、磁氣的相互作用が挙げられる。この仮説の証明にはスピン揺動の全体像及び、スピン揺動と超伝導の相関関係の解明が必要不可欠である。しかし、その全体像解明にはほど遠い状況にあった。

鉄系超伝導の超伝導相は以下の3つの方法により出現する。母相への1)電子若しくはホールキャリアのドーピング、2)加圧及び3)元素置換による化学的加圧。これらのうち電子ドーピング系のスピン揺動の研究はある程度進んでいたが、その他の系についてはほとんど研究されていなかった。

## 2. 研究の目的

本研究では鉄系超伝導体における超伝導とスピン揺動の相関関係を明らかにし、スピン揺動が超伝導の出現に本質的に必要不可欠なのかを明らかにすることを目的とした。スピン揺動と超伝導の相関関係を調べるうえで特に重要となるのがスピンレゾナンスである。スピンレゾナンスとは中性子散乱により観測される、超伝導相で出現する強い磁気ピークのことを指す。このスピンレゾナンスにはクーパー対に関する情報が含まれており、その起源解明は超伝導の発現機構解明に直結する。そこで、本研究では鉄系超伝導体におけるスピンレゾナンスと超伝導の相関関係を明らかにすることを目指した。

## 3. 研究の方法

本研究では超伝導とスピン揺動の相関関係を明らかにするため、中性子非弾性散乱により鉄系超伝導体のスピン揺動を調べた。

中性子非弾性散乱では磁気励起の波数依存性及びエネルギー依存性を明らかにすることができる。そのため、スピン波分散の測定などが可能であり、磁気励起を調べる上で非常に強力である。実験はILL(仏)、FRM2(独)、LLB(仏)において実施した。

中性子散乱に用いる単結晶はフラックス法により作製した。(Ba,K)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>、BaFe<sub>2</sub>(As,P)<sub>2</sub>及びBa(Fe,Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>などの単結晶が作製された。(Ba,K)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>及びBaFe<sub>2</sub>(As,P)<sub>2</sub>は平面状の単結晶であり、試料体積を稼ぐために複数の単結晶をAl板に貼付けアSEMBルした。Ba(Fe,Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>は1~3個の単結晶を用いて実験を行った。

## 4. 研究成果

### (1) スピンレゾナンスの分散関係

BaFe<sub>2</sub>(As<sub>1-x</sub>P<sub>x</sub>) (x=0.34)は元素置換による化学的加圧によって超伝導が誘起される系である。そのスピン揺動は  $Q=(0.5,0.5,L)$  で観測され、c軸に平行な磁気ロッドを形成する。スピンレゾナンスはこの磁気ロッド上で観測され、そのピークエネルギーはc軸依存性を持つ。図1に中性子非弾性散乱により得られたBaFe<sub>2</sub>(As<sub>1-x</sub>P<sub>x</sub>) (x=0.34, 超伝導転移温度  $T_c = 29.5\text{K}$ ) の  $Q=(0.5,0.5,L)$  における動的磁化率  $\chi''(q,\omega)$  のエネルギー依存性を示す。図に示されているように  $E=8\sim 11\text{meV}$  において明瞭なスピンレゾナンスピークが観測された。レゾナンスエネルギーはc軸に沿った分散を示し、Lが0のときに高く、1に近づくにつれ低くなる。

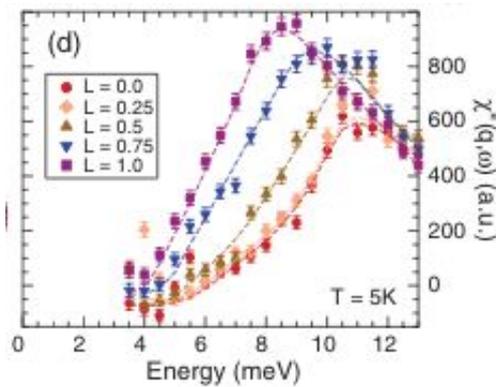


図1 BaFe<sub>2</sub>(As,P)<sub>2</sub> の  $Q = (0.5, 0.5, L)$  及び  $T < T_c$  における  $\chi''(q, \omega)$  [1]。

このようなスピンレゾナンスの  $c$  軸分散は P ドープ系だけでなく電子ドープでも観測される。これはレゾナンスの  $c$  軸分散が超伝導の誘起方法によらず 122 相に普遍的な現象であることを意味する。図 2 に様々な 122 相の鉄系超伝導体について  $L=$ 偶数と  $L=$ 奇数でのレゾナンスエネルギーの差(バンド幅)のドーピング依存性を示す。レゾナンスエネルギーは  $k_B T_c$  ( $k_B$  はボルツマン定数)で規格化した。また、ドーピング量は 3 次元反強磁性秩序が消失する濃度 ( $x_m$ ) で規格化した。その結果、ドーピング量が少なくなるにつれ、ユニバーサルな直線に沿ってバンド幅が大きくなることが明らかとなった。これは、いずれの物質でも同じ起源でレゾナンスのエネルギー分散が起きていることを示唆する。3 次元反強磁性秩序との近さがバンド幅を決めていることから、3 次元反強磁性相関がスピンレゾ

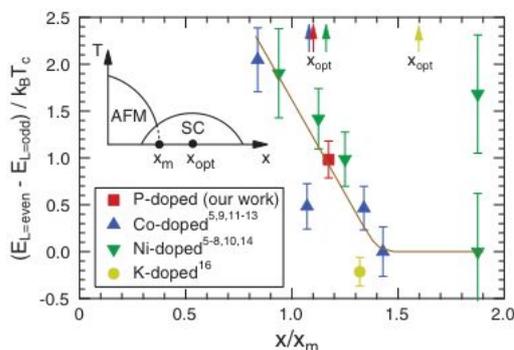


図2 様々な鉄系超伝導体におけるスピンレゾナンスの分散のバンド幅のドーピング依存性 [1]。

ナンスの  $c$  軸分散をもたらしているものと考えられる。このように本結果は磁性と超伝導の相関関係を強く示唆するものである。

### (2) スピンレゾナンスの偏極異方性

我々は電子ドープの Ba(Fe,Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> ( $x=0.06$ ,  $T_c=24K$ ) を用いて偏極中性子非弾性散乱実験を行った [2]。図 3 に  $Q=(0.5, 0.5, 1)$  における  $\chi''(q, \omega)$  のエネルギー依存性を示す。ab 面内方向の偏極成分は  $T_c$  以下で  $E \sim 8$  meV 付近にピークを形成する。これは非偏極中性子非弾性散乱実験で観測されたスピンレゾナンスに相当する。一方  $c$  軸方向の偏極成分では  $E \sim 8$  meV の他に 4 meV にシャープなピークを形成する。この低エネルギー側のピークは  $2\Delta = 1.8 k_B T_c$  に相当し、超伝導ギャップ内にてきたピークである。スピン軌道相互作用によりレゾナンスの偏極依存性が生じたものと思われる。

### (3) スピン揺動のホール濃度依存性

スピン揺動のホール濃度依存性を明らか

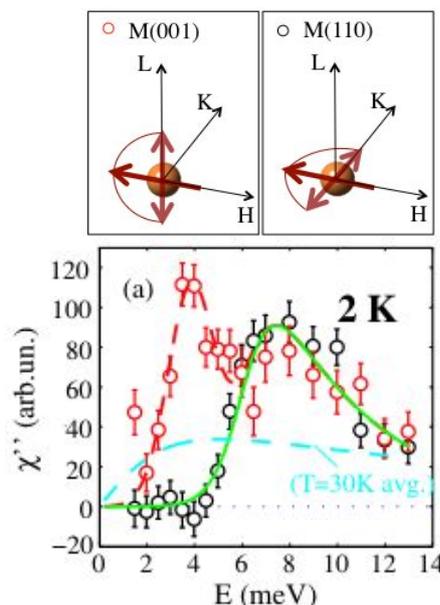


図3 偏極中性子非弾性散乱により測定した Ba(Fe,Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> (Co6%) の  $Q = (0.5, 0.5, 1)$  における  $\chi''(q, \omega)$  [2]。

にするため、 $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  のスピン揺動の  $K$  濃度依存性を調べた。その結果、 $x \leq 0.66$  において明瞭なレゾナンスピークが観測された。0.7 近傍でレゾナンスピークの振る舞いは激変し、 $x=0.84$  以上で消失した。一方、超伝導ギャップよりも高エネルギー側の磁気散乱強度は  $0.77 \leq x$  において  $T_c$  以下で増加した。この磁気散乱強度の増加はスピンエキシトンを起源とするスピンレゾナンスでは説明できない。状態密度のリノーマリゼーションか、或は軌道揺らぎを起源とするピークである可能性が考えられ、オーバードープ領域で超伝導の対称性が変化した可能性がある。磁気相関がドープとともに弱まり、磁気揺らぎの超伝導クーパ対形成への寄与がオーバードープ領域で小さくなったものと思われる。超伝導の発現に果たす磁性の役割はアンダードープ及びオプティマムドープ領域で大きく、オーバードープ領域では小さいことが示唆される。

#### <引用文献>

- [1] C. H. Lee, P. Steffens, N. Qureshi, M. Nakajima, K. Kihou, A. Iyo, H. Eisaki, and M. Braden, Phys. Rev. Lett. **111**, 167002 (2013).
- [2] P. Steffens, C. H. Lee, N. Qureshi, K. Kihou, A. Iyo, H. Eisaki, and M. Braden, Phys. Rev. Lett. **110**, 137001 (2013).

#### 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26件)

1. M. P. Allan, Kyungmin Lee, A. W. Rost, M. H. Fischer, F. Massee, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, T-M. Chuang, J. C. Davis, and Eun-Ah Kim, Nature Phys. **11**, 177 (2015), 有.
2. K. Kodama, M. Ishikado, S. Wakimoto, K.

Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, and S. Shamoto, Phys. Rev. B **90**, 144510 (2014), 有.

3. R. Morisaki-Ishii, H. Kawano-Furukawa, C. H. Lee (12番目), A. Iyo (13番目), H. Eisaki (14番目), 他14名, Phys. Rev. B **90**, 125116 (2014), 有.
4. N. Qureshi, C. H. Lee, K. Kihou, K. Schmalzl, P. Steffens, and M. Braden, Phys. Rev. B **90**, 100502(R) (2014), 有.
5. C. H. Lee, P. Steffens, N. Qureshi, M. Nakajima, K. Kihou, A. Iyo, H. Eisaki, and M. Braden, Phys. Rev. Lett. **111**, 167002 (2013), 有.
6. P. Steffens, C. H. Lee, N. Qureshi, K. Kihou, A. Iyo, H. Eisaki, and M. Braden, Phys. Rev. Lett. **110**, 137001 (2013), 有.
7. K. Okazaki, C. H. Lee (11番目), A. Iyo (12番目), H. Eisaki (13番目), 他20名, Science **337**, 1314 (2012), 有.
8. M. P. Allan, A. W. Rost, A. P. Mackenzie, Yang Xie, J. C. Davis, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, and T-M. Chuang, Science **336**, 563 (2012), 有.

#### [学会発表](計26件)

1. 李 哲虎、他、Anisotropic resonance peaks in iron-based superconductors studied by neutron scattering、LT27、2014年8月11日、ブエノスアイレス(アルゼンチン)
2. 李 哲虎、他、Anisotropic resonance peaks in  $BaFe_2(As,P)_2$  studied by neutron scattering、SCES2014、2014年7月9日、Grenoble(フランス)
3. 李 哲虎、他、Spin fluctuations of  $BaFe_2(As,P)_2$  studied by neutron scattering、ICNS2013、2013年7月10日、Edinburgh、イギリス

#### 6. 研究組織

(1)研究代表者

李 哲虎 (Chul-Ho Lee)  
産業技術総合研究所・省エネルギー研究部  
門・研究グループ付  
研究者番号：80358358

(2)連携研究者

永崎 洋 (Hiroshi Eisaki)  
産業技術総合研究所・電子光技術研究部門  
・首席研究員  
研究者番号：20242018

伊豫 彰 (Akira Iyo)  
産業技術総合研究所・電子光技術研究部門  
・上級主任研究員  
研究者番号：50356523

堀金和正 (Kazumasa Horigane)  
岡山大学大学院・自然科学研究科・准教授  
研究者番号：10406829