

鉄系超伝導体のフォノンと磁性

－磁気秩序に伴うフォノンエネルギー分裂の観測に初めて成功－

要旨

理化学研究所（理研）放射光科学総合研究センター バロン物質ダイナミクス研究室の村井直樹大学院生リサーチ・アソシエイト（大阪大学大学院理学研究科大学院生）、福田竜生客員研究員（日本原子力研究開発機構副主任研究員）、アルフレッド・バロン准主任研究員と、大阪大学大学院理学研究科の田島節子教授、高輝度光科学研究センターの内山裕士研究員らの共同研究グループ^{*}は、大型放射光施設「SPring-8^[1]」に設置されている高分解能非弾性 X 線散乱分光器^[2]を使って、超伝導を示さない鉄系超伝導体^[3]母物質のフォノン^[4]（物質の結晶格子の振動）の精密測定に成功しました。

超伝導とは、金属などをある温度（超伝導転移温度）以下に冷却すると、電気抵抗がゼロになる現象です。通常、物質中をばらばらに運動している電子は、超伝導状態では 2 個ずつ対になって運動します。超伝導が発現するメカニズムには、物質のフォノンを介したものや、磁性^[5]を介したものなどが知られていません。

2008 年に日本で発見された高温超伝導体^[6]の 1 つである鉄系超伝導体には、フォノンを介した従来の超伝導発現メカニズムでは説明できない点があり、磁性を介した超伝導発現の可能性が探られています。その一方で、実際に観測されたフォノンと理論計算が一致しないという問題が指摘されています。例えば、理論計算から鉄系超伝導体が磁気秩序^[7]（磁気モーメント^[8]の秩序だった配列）状態になるとフォノンが異方的な（方向によって性質が異なる）振る舞いをするのが予想されていますが、これまでの測定ではフォノンのそのような振る舞いは観測されていません。

そこで、共同研究グループは磁気秩序状態にした鉄系超伝導体母物質「SrFe₂As₂」のフォノンの異方的な振る舞いの観測を試みました。その結果、磁気秩序状態でのフォノンエネルギーの分裂の観測に成功し、エネルギー分裂の大きさは理論計算よりも小さく、磁気揺らぎ^[9]の効果として説明できることを明らかにしました。

本成果は、鉄系超伝導体母物質のフォノン測定により磁性情報に対する知見を得た初めての例であると同時に、超伝導の発現に不可欠な要素であるフォノンと磁性がお互いにどのように関係しているのかという重要な問題提起をするものです。

本研究は、米国の科学雑誌『*Physical Review B (Rapid Communication)*』オンライン版（1月25日付け）に掲載されました。

1. 背景

超伝導とは、金属などがある温度（超伝導転移温度）以下に冷却すると、電気抵抗がゼロになる現象です。通常、物質中をばらばらに運動している電子は、超伝導状態では2個ずつ対になって運動します。超伝導が発現するメカニズムとして、フォノン（物質の結晶格子の振動）を介したものが広く知られています。しかし、1986年に発見された銅酸化物高温超伝導体のように、フォノンを介した従来のメカニズムでは説明できない、非常に高い超伝導転移温度（液体窒素温度(-196°C, 77K)以上)を持つ物質も存在します。

2008年に日本で発見された鉄系高温超伝導体^{注)}は、銅酸化物超伝導体に次ぐ高い超伝導転移温度を示し、この物質もフォノンを介した超伝導発現メカニズムでは説明できない点が多くあります。そのため、磁性を介した超伝導発現の可能性などが指摘されています。その一方、実際に実験で観測された鉄系超伝導体のフォノンと理論計算とが一致しないという問題もあります。例えば、磁気秩序（磁気モーメントの秩序だった配列）状態になるとフォノンが異方的な（方向によって性質が異なる）振る舞いをすることが理論計算から予想されていますが、これまでの測定ではフォノンのそのような振る舞いは観測されません。

そこで、共同研究グループは鉄系超伝導体の元となる物質（母物質）のフォノンを詳細に調べることで、この異方的な振る舞いの解明を目指しました。

注) Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, *J. Am. Chem. Soc.* 130, 3296 (2008).

2. 研究手法と成果

共同研究グループは、まず超伝導を示さない磁気秩序状態の鉄系超伝導体母物質「 SrFe_2As_2 」のフォノンの異方的な振る舞いの観測を試みました。

多くの鉄系超伝導物質は低温領域において、2つの異なるドメイン配向^[10]が結晶中で共存しているため、2つのドメイン配向により平均化された構造を観測してしまうという問題が生じます(図1(a))。この問題を解消するため、 SrFe_2As_2 に対して上下方向に圧力を加えたまま磁気転移温度まで冷却することで、ドメイン配向を単一化し磁気秩序状態となった単結晶試料を用意しました(図1(b)・(c))。

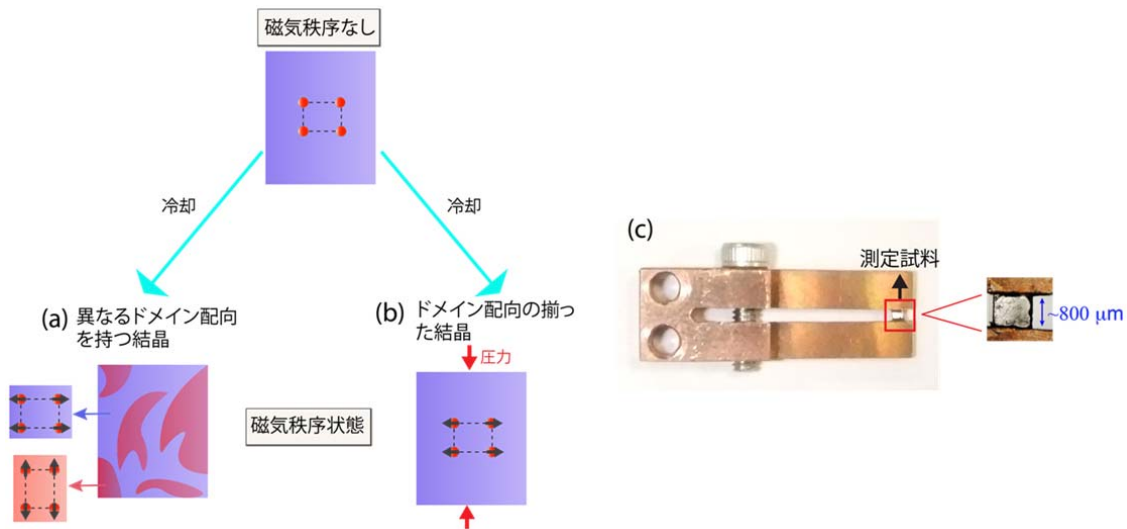


図 1 ドメイン配向の制御

- (a) 低温領域で現れる磁気秩序状態では、2つの異なるドメイン配向が結晶中で共存している。赤丸は鉄原子、黒の矢印は鉄原子の持つ磁気モーメントを表す。
- (b) 上下方向へ圧力を加えた状態で磁気移温度まで冷却すると、ドメイン配向の揃った単結晶試料となる。
- (c) 上下方向への加圧に使用した試料ホルダー。小さな測定試料を銅板で挟み込み、これをネジで締め付けることで試料に圧力を加える。測定試料の縦の長さは800マイクロメートル (μm 、 $1\mu\text{m}$ は100万分の1メートル)。

この単結晶試料のフォノンを、大型放射光施設「SPring-8」のビームラインBL43LXUとBL35XUに設置されている高分解能非弾性X線散乱分光器で測定しました。その結果、フォノンエネルギーの分裂の観測に成功しました。具体的には、磁気秩序状態になると、圧力を加えた方向（磁気モーメントが揃った方向）と、それに垂直な方向（磁気モーメントが互い違いに並んだ方向）（図1(b)参照）との間に、フォノンエネルギーや散乱強度に違いが現れました（図2下）。これは、フォノンの異方的な振る舞いの観測に成功したことを示します。

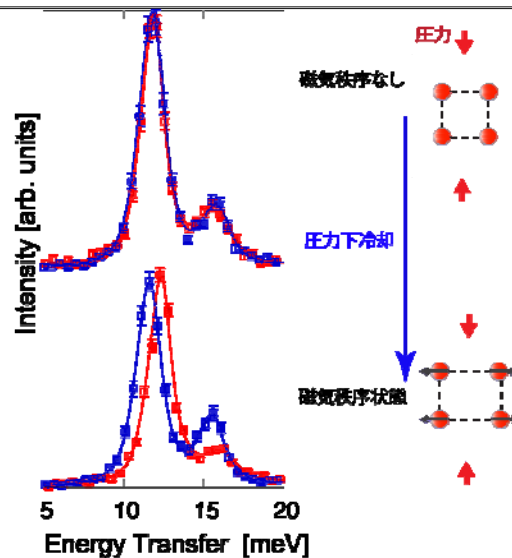


図2 磁気秩序状態におけるフォノンのピークの分裂

図上：上下方向に圧力を加え、冷却しない場合（磁気秩序がない場合）。圧力を加えた方向（磁気モーメントが揃った方向、赤線）とそれに垂直な方向（磁気モーメントが互い違いに並んだ方向、青線）では、フォノンエネルギーや散乱強度に違いが現れない。

図下：上下方向に圧力を加え、冷却し磁気秩序状態になると圧力を加えた方向（赤線）とそれに垂直な方向（青線）との間にフォノンエネルギーピークの分裂が起こり、散乱強度に違いが現れる。

また、理論計算との比較から、分裂の大きさは理論値よりも小さいことを見出しました。これと類似する実験と理論計算の不一致は、鉄系超伝導体の磁気モーメントの大きさについても報告されており、磁気揺らぎの効果が指摘されています。今回、共同研究グループが発見した鉄系超伝導体母物質におけるフォノンの測定結果と理論計算との不一致も、同様の磁気揺らぎの影響により異方的な振る舞いが約3分の1に抑制されると考えることで解消されることを示しました。

3. 今後の期待

共同研究グループは、これまであまり指摘されてこなかった鉄系超伝導体母物質におけるフォノンと磁性との密接な関係を明らかにしました。この成果は、超伝導の発現に不可欠な要素であるフォノンと磁性が、お互いにどのように関係しているのかという非常に興味深い問いを投げかけるものです。

また、本研究は超伝導を示さない母物質に対して行ったものですが、これを超伝導試料にまで拡張することで、超伝導とフォノン、磁性との関係の解明に向けた研究が可能になります。

4. 論文情報

<タイトル>

Effect of magnetism on lattice dynamics in SrFe_2As_2 using high-resolution inelastic x-ray scattering

<著者名>

Naoki Murai, Tatsuo Fukuda, Tatsuya Kobayashi, Masamichi Nakajima, Hiroshi Uchiyama, Daisuke Ishikawa, Satoshi Tsutsui, Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, Shigeki Miyasaka, Setsuko Tajima, and Alfred Q.R. Baron

<雑誌>

Physical Review B (Rapid Communication)

<DOI>

10.1103/PhysRevB.93.020301

5. 補足説明

[1] 大型放射光施設「SPring-8」

兵庫県の播磨科学公園都市にある世界最高の放射光を生み出す理化学研究所の施設で、その運転管理は公益財団法人高輝度光科学研究センターが行っている。SPring-8の名前は Super Photon ring-8GeV に由来する。放射光とは、電子を光とほぼ等しい速度まで加速し、電磁石によって進行方向を曲げたときに発生する、細く強力な電磁波のこと。

[2] 高分解能非弾性 X 線散乱分光器

物質に入射された X 線は、物質中のさまざまな励起状態とエネルギーのやり取りを伴い散乱されることがある。この場合、散乱 X 線のエネルギーと入射 X 線のエネルギーとの間に差が生じる。このような散乱過程を非弾性 X 線散乱という。フォノンの励起エネルギーは、入射 X 線のエネルギーの約 100 万分の 1 程度であるため、非常に高精度なエネルギーの測定が不可欠である。SPring-8 には、非弾性散乱された X 線のエネルギーを非常に高分解能で検出できる分光器が設置されている。

[3] 鉄系超伝導体

ヒ化鉄 (FeAs) 伝導層を持つ一連の超伝導体の総称。2008 年に東京工業大学の細野秀雄教授らにより発見された。その超伝導転移温度は銅酸化物超伝導体に次いで高い。これらの高温超伝導体で実現される非常に高い転移温度は、超伝導現象の説明に対して多大な成功を収めた BCS 機構(格子振動(フォノン)を媒介に電子同士に引力が生じ、2つの電子がペアを作ることによって超伝導が発生するという機構)では説明がつかない。そのため、高温超伝導体における超伝導の発現メカニズムを解明するためにさまざまな研究が行われている。

[4] フォノン

物質を構成する原子はお互いに結合して結晶格子を形成する。原子間の結合はバネのようなものであり、結晶格子中の原子は絶えず振動を繰り返している。結晶格子の振動は波であると同時に粒子でもあり、粒子的な性質に着目してこの格子振動をフォノンと呼ぶ。

[5] 磁性

磁性は、物質電子スピンの揃うことにより発生する。特に鉄、ニッケル、コバルトなどは磁性が発生しやすい金属としてよく知られる。電子スピンのすべてが平行に揃った場合を強磁性（普通の永久磁石）、反平行にそろった場合を反強磁性という。

[6] 高温超伝導体

一般に、液体窒素温度（ -196°C 、 77K ）以上で転移温度を示す超伝導体の総称。液体ヘリウム（ -269°C 、 4K ）より安価な液体窒素による冷却が可能のため、産業へ応用しやすいと考えられている。典型的な金属超伝導体の場合、フォノン（結晶格子の振動）が超伝導発現に重要な役割を果たすことが広く知られているが、高温超伝導体の発現メカニズムには未だに多くの謎が残されている。

[7] 磁気秩序

原子が持つ磁気モーメントが秩序配列をとった状態。鉄系超伝導体の母物質の場合、鉄の磁気モーメントが互い違いに並んだ磁気秩序を示す。

[8] 磁気モーメント

磁力の大きさとその向きを表すベクトル量。

[9] 磁気揺らぎ

磁気秩序のような静的な秩序配列とは異なり、磁気モーメントが時間的に変動するような動的な状況を指す。

[10] ドメイン配向

複数の同種の結晶がある角度で接合した状態（双晶）が実現され、1つの結晶の中に磁気モーメントの配向方向の異なる領域が分布した状態を指す。

6. 発表者・機関窓口

<発表者> ※研究内容については発表者にお問い合わせ下さい

理化学研究所 放射光科学総合研究センター バロン物質ダイナミクス研究室

大学院生リサーチ・アソシエイト 村井 直樹（むらい なおき）

准主任研究員

アルフレッド・バロン（Alfred Q.R. Baron）

客員研究員

福田 竜生（ふくだ たつお）

TEL：0791-58-0802（村井）（内線 7837）

E-mail：naoki@spring8.or.jp

大阪大学大学院理学研究科

教授 田島 節子（たじま せつこ）

TEL：06-6850-5755

E-mail：tajima@phys.sci.osaka-u.ac.jp

<機関窓口>

理化学研究所 広報室 報道担当

TEL : 048-467-9272 FAX : 048-462-4715

E-mail : ex-press@riken.jp

大阪大学理学研究科庶務係

TEL : 06-6850-5280

E-mail : ri-syomu@office.osaka-u.ac.jp

※共同研究グループ

理化学研究所 放射光科学総合研究センター

バロン物質ダイナミクス研究室

大学院生リサーチ・アソシエイト 村井 直樹 (むらい なおき)

(大阪大学大学院生)

准主任研究員

アルフレッド・バロン (Alfred Q.R. Baron)

客員研究員

福田 竜生 (ふくだ たつお)

(日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター環境・構造物性研究グループ 副主任研究員)

大阪大学大学院 理学研究科 物理学専攻

教授: 田島 節子 (たじま せつこ)

准教授 宮坂 茂樹 (みやさか しげき)

助教 中島 正道 (なかじま まさみち)

日本学術振興会特別研究員 小林 達也 (こばやし たつや)

高輝度光科学研究センター

研究員 内山裕士 (うちやま ひろし)

主幹研究員 筒井智嗣 (つつい さとし)

研究員 石川大介 (いしかわ だいすけ)

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター

システム計算科学センター

研究主席 町田 昌彦 (まちだ まさひこ)

研究員 中村 博樹 (なかむら ひろき)