複数の電子軌道が絡んだ多重スピン揺らぎが生み出す鉄系超伝導

鉄系高温超伝導では、鉄の異なる電子軌道にいる複数の電子が伝導に寄与するため、電子の併せ持つスピンと軌道の2つの特徴が超伝導の起源とどのように関係しているかが発見以来の大きな争点となってきた。本研究は、鉄系超伝導の典型物質 LaFeAsO 系において元素置換により構造と電子ドープ量を制御して広範な組成域に渡って系統的に核磁気共鳴(NMR)実験を行い、鉄の複数の縮退電子軌道が絡んだ多重反強磁性スピン揺らぎが、鉄系超伝導転移温度の上昇と極めて深く関係していることを明らかにした。今後、幅広い鉄系物質全体を理解する上で一つの重要な指針を与える研究成果である。

2008年に鉄を含む化合物で新しい高温超伝導が発見されて以来、類似構造で超伝導が続々と発見され、最近では超薄膜化でさらなる高温超伝導が報告されるなど将来夢の室温超伝導が実現する可能性のある新しい素材として世界中で注目されている。一方で、なぜこの物質群で超伝導が起きるのか? その謎を解き明かそうとする基礎研究が世界中で繰り広げられている。超伝導の発現には、物質中の電子2つが組となるクーパー対が形成されることが必須であり、対形成には電子同士が引き合う何らかの引力機構が必要となる。近年高温で起こる超伝導には、従来から知られる格子振動を媒介とする機構では理解できないものがあることがわかってきた。鉄系高温超伝導では、反強磁性秩序相や構造転移点に隣接して起こるため、スピン揺らぎや軌道揺らぎなど新しい引力機構が有力候補として挙がっているが、発見後8年を経てなお収束に至ってない。

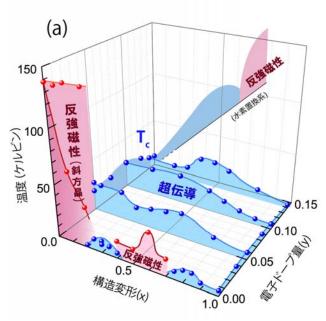
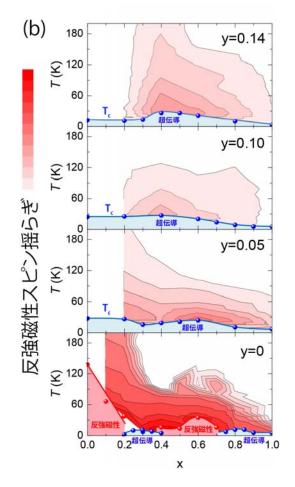


図 1 (a) 研究対象 $LaFe(As_{1-x}P_x)(O_{1-y}F_y)$ 系の超伝導相図と (b) NMR で観測された反強磁性スピン揺らぎの強度の等高線図。超伝導転移温度(T_c)が高い組成域で、反強磁性スピン揺らぎが特に増大していることがわかる。



最近、大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻および理学研究科物理学専攻のメンバーを中心とする研究グループは、鉄系超伝導が物質のどのような性質と関連しているかを調べるため、元素置換(x,y)による組成の変化に対して超伝導転移温度 (T_c) が非単調に大きく増減する鉄系物質 LaFe $(As_{1-x}P_x)(O_{1-y}F_y)$ 系に着目した。核磁気共鳴 (NMR)実験で系統的に電子状態を調べた結果、複数の電子軌道が絡んだ反強磁性スピン揺らぎが鉄系超伝導転移温度の上昇と極めて強く関連していることを明らかにした。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)の 2016 年 5 月号に掲載された。

対象とした $LaFe(As_{1-x}P_x)(O_{1-y}F_y)$ 系は、元素置換の組成の変化で構造(x)および電子ドープ量(y)を制御でき、図 1(a)に示すように超伝導転移温度 (T_c) が極めて大きく変化するため、超伝導と関係する因子を探るにはとても優れた系である。著者らは磁気や超伝導など多数の電子が創発するさまざまな物質の性質(物性)を微視的な観点から明らかにできる核磁気共鳴(NMR)法を用いて、その電子状態を広い組成域に渡って系統的に調べた。

その結果、図 1(b)に示すように超伝導転移温度 T_c が高い組成域で反強磁性スピンゆらぎが特に発達していることがわかった。さらに詳しく解析を進めると、反強磁性スピン揺らぎの性質は、有限のエネルギー域に特徴をもつものと、低エネルギー域に特徴をもつものの 2 種類あることがわかり、理論との比較から、前者の反強磁性スピンゆらぎは鉄の 3 つの電子軌道(dxy/dxz/dyz)に由来するもの、後者は 2 つの電子軌道(dxz/dyz)に由来するものと対応していることがわかった。それらが合流する組成域にかけて比較的高い超伝導転移温度(T_c)が現れていることから、広いエネルギー域に渡る反強磁性スピンゆらぎが超伝導に有利に働いていると解釈できる。以上の結果、 $LaFe(As_{1-x}P_x)(O_{1-y}F_y)$ 系の複雑な超伝導相図は、鉄の複数の縮退電子軌道に由来する多重反強磁性スピン揺らぎに起因していると結論された。

高温超伝導現象の代表例である銅酸化物では、単純に「単一バンド」で反強磁性相関をもつ「スピン」が共通する特徴であったのに対し、鉄系では異なる電子軌道の複数の電子が「多バンド」をなし、電子の「スピン」と「軌道」の二面性が絡んだ複雑な電子相図となる。そのため、超伝導と深く関係する因子を抽出することは容易ではなく、統一的な理解を阻む大きな要因となってきた。本研究により、縮退軌道の要素が構造(x)や電子ドープ量(y)によって変わり、鉄系固有の「多軌道性が関わる多重スピン揺らぎ」の特徴は変遷しながらも、高温超伝導現象と常に密接な関係にあることが示された。今後、鉄系超伝導全体の統一的理解を進める上で重要な視座を与える研究成果であり、さらなる高温超伝導を開発する上で一つの重要な指針を与える研究成果でもある。

原論文

Multiple Antiferromagnetic Spin Fluctuations and Novel Evolution of T_c in Iron-Based Superconductors LaFe(As_{1-x}P_x)(O_{1-y}F_y) Revealed by ³¹P-NMR Studies

Takayoshi Shiota, Hidekazu Mukuda, Masahiro Uekubo, Fuko Engetsu, Mitsuharu Yashima, Yoshio Kitaoka, Kwing To Lai, Hidetomo Usui, Kazuhiko Kuroki, Shigeki Miyasaka, and Setsuko Tajima J. Phys. Soc. Jpn.85, 053706 (2016)

問合せ先: 椋田 秀和 (大阪大学大学院基礎工学研究科 准教授)