

博士論文の要旨及び審査結果の要旨

氏名 栗原 綾佑  
 学位 博士 ( 理学 )  
 学位記番号 新大院博 (理) 第 405 号  
 学位授与の日付 平成 28 年 3 月 23 日  
 学位授与の要件 学位規則第 4 条第 1 項該当  
 博士論文名 超音波による鉄ヒ素超伝導体  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の電気多極子効果の研究

論文審査委員 主査 教授・摂待 力生  
 副査 教授・大野 義章  
 副査 教授・武田 直也  
 副査 准教授・根本 祐一  
 副査 准教授・奥西 巧一

博士論文の要旨

鉄系超伝導体の超伝導相は、銅酸化物超伝導体や重い電子系の超伝導体にみられるような磁気秩序相に加えて、構造相転移と隣接する特徴をもつ。また、 $\text{Fe}^{2+}$  ( $3d^6$ ) の縮退した  $y'z$ ,  $zx$  軌道が複数のバンドやフェルミ面を構成するため、スピン揺らぎ媒介型の超伝導ではなく、今まで議論されてこなかった軌道自由度に由来する新しい超伝導発現機構が提案されている。本研究では、縮退した  $y'z$ ,  $zx$  軌道がもつ電気四極子  $O_{v'}$  と歪み  $\varepsilon_{xy}$  の結合による構造相転移を解明するため、超音波実験により  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の弾性定数および超音波吸収係数を測定した。さらに、構造相転移が消失し超伝導が発現する量子臨界点近傍での超音波吸収の臨界減速を解明するため、軌道角運動量  $l_z = -i(x'\partial/\partial y' - y'\partial/\partial x')$  の時間微分  $\partial l_z/\partial t$  で記述される電気十六極子  $H_z^a$  と回転  $\omega_{xy}$  の結合ハミルトニアンを構築し、電気十六極子秩序と超伝導との関係を考察した。

構造相転移を示すアンダードープの  $x = 0, 0.03, 0.07$  の超音波実験の結果、室温から構造相転移点  $T_s$  に向かっている弾性定数  $C_{66}$  の巨大なソフト化を観測し、四極子感受率  $C_{66} = C_{66}^0/[1-\Delta/(T-\Theta)]$  でフィットした結果、四極子-歪み結合定数  $g \sim 1000$  K や、強的な四極子間相互作用を示す正の Weiss 温度  $\Theta$  を得た。また、弾性定数がゼロとなる理論上の構造相転移温度  $T_c = \Theta + \Delta$  が  $T_s$  と一致することを明らかにした。また、 $x = 0.07$  の超音波吸収係数  $\alpha_{L[110]}$  を測定し、電気四極子揺らぎの緩和時間  $\tau$  を求めた。その結果、 $\tau$  が  $T_s$  に向かっている発散的な増大を示す臨界減速を観測した。以上の結果を記述するハミルトニアンを構築するため、第二量子化による四極子-歪み相互作用  $H_{QS} = -G\Sigma O_{v',\sigma}(\mathbf{k}, \mathbf{q})\varepsilon_{xy}(\mathbf{q})$  や歪みフォノン場を介した四極子間相互作用  $H_{\text{ind}}^{\text{QQ}} = \Sigma D_{\sigma}^{\text{QQ}}(\mathbf{k}, \mathbf{q})O_{v',\sigma}(\mathbf{k}, \mathbf{q})O_{v',\sigma}(\mathbf{k}', -\mathbf{q})$  を記述した。これによって、構造相転移は縮退した  $y'z$ ,  $zx$  軌道に由来する電気四極子  $O_{v'}$  の強四極子秩序として理解でき、 $O_{v'}$  と歪み  $\varepsilon_{xy}$  の結合により  $C_{66}$  のソフト化が生じることを解明した。

$T_{\text{SC}} = 23$  K の超伝導転移のみを示すオーバードープの  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$  でも、室温から超伝導転移点に向かっている弾性定数  $C_{66}$  の 21% のソフト化を観測した。他方、理論上の構造相転移温度は  $T_c = -26.5$  K であり、大きく異なることがわかった。 $O_{v'}$  を秩序変数とする強四極子秩序では、 $C_{66}$  と  $\alpha_{66}$  が共に  $T_c$  に向かっている発散的な振る舞いを示す。ところが、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$  の  $C_{66}$  は発散的なソフト化を示さなかったにもかかわらず、超音波吸収係

数  $\alpha_{66}$  が超伝導転移点  $T_{SC} = 23 \text{ K}$  に向かって発散的な増大を示した。この事実は、 $T_{SC}$  に向かって発散する  $\tau$  が、電気四極子  $O_v$  と歪み  $\epsilon_{xy}$  の結合で説明できないことを意味する。

そこで本研究では、 $C_{66}$  モードの横波超音波が歪み  $\epsilon_{xy}$  と同時に回転  $\omega_{xy}$  を誘起し、縮退軌道  $y'z, zx$  がもつ軌道角運動量  $l_z$  の時間微分と結合することに着目し、回転効果を調べた。サイト  $i$  と  $j$  に位置する 2 つの電子間に、歪み場を介した四極子間相互作用  $H_{\text{ind}}^{\text{QQ}}$  と、波動関数の空間的な広がり起因した異方的な四極子間相互作用の和  $H_{\text{QQ}}^{\text{ij}} = J_{ij}[O_v(\mathbf{r}_i)O_v(\mathbf{r}_j) + \gamma O_{x'y}(\mathbf{r}_i)O_{x'y}(\mathbf{r}_j)]$  が働く場合、2 電子状態は縮退した波動関数  $\psi_+$  と  $\psi_-$  で記述できる。このとき、 $H_{\text{QQ}}^{\text{ij}}$  に対する回転効果を考慮すると、電子対がもつ電気十六極子  $H_z^\alpha(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) = 2[O_{x'y}(\mathbf{r}_i)O_v(\mathbf{r}_j) + O_v(\mathbf{r}_i)O_{x'y}(\mathbf{r}_j)]$  と回転  $\omega_{xy}$  の結合  $H_{\text{rot}}^{\text{ij}} = i[l_z, H_{\text{QQ}}^{\text{ij}}]\omega_{xy} = -\hbar(\partial l_z / \partial t)\omega_{xy} = -2J_{ij}(1-\gamma)H_z^\alpha(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j)\omega_{xy}$  によって、 $\psi_+$  と  $\psi_-$  のエネルギーが分裂することを世界で初めて導いた。これより、超音波の回転によって十六極子感受率が観測できることを示した。さらに、回転フォノン場を介した十六極子間相互作用  $H_{\text{ind}} = \Sigma D^{\text{HH}}(\mathbf{k}, \mathbf{q})H_z^\alpha(\mathbf{k}, \mathbf{q})H_z^\alpha(\mathbf{k}', -\mathbf{q})$  を導出し、 $D^{\text{HH}}$  と  $\alpha_{66}$  から決定した緩和時間  $\tau$  を比較した結果、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$  は十六極子間相互作用が強的に働く領域に存在し、強十六極子秩序に伴う臨界減速と結論付けた。

以上より、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の構造相転移は、縮退した  $y'z, zx$  軌道を占有するバンド電子間に働く Ising 型の四極子間相互作用  $H_{\text{ind}}^{\text{QQ}}$  で記述できることを示した。また、 $H_{\text{ind}}^{\text{QQ}}$  を抑制すると構造相転移が消失し、等方的に近づいた四極子間相互作用  $H_{\text{QQ}}^{\text{ij}}$  によって電気十六極子を持つ超伝導クーパー対が形成されることを示した。これにより、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の特異な超伝導相では、強的な電気十六極子秩序が実現している可能性を示した。

#### 審査結果の要旨

超音波は結晶中に歪みを誘起し、量子系の電気四極子を観測できる。従来は、超音波によって弾性ソフト化を観測し四極子効果や電気十六極子効果を議論することで、希土類化合物の局在  $4f$  電子系の電子状態や、半導体シリコンの巨大な原子空孔軌道の研究が行われてきた。それに対し、本論文の研究の舞台は軌道縮退したマルチバンドの電子が伝導を担う鉄ヒ素超伝導体  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  であり、遍歴電子系での構造相転移と、構造相転移と隣接する超伝導発現機構の解明が主題であった。

構造相転移では、超音波実験によって観測した  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  の巨大な弾性ソフト化と超音波吸収から、強四極子秩序での臨界減速が議論された。また、強四極子秩序を記述するハミルトニアンを構築し、遍歴電子系での四極子秩序を議論した本論文の内容は、今後の強相関電子系における物理にとって重要な成果である。

また、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$  の発散する超音波吸収係数  $\alpha_{66}$  を説明するために、通常は弾性エネルギーを変えないため重要視されていなかった超音波により誘起される回転  $\omega_{xy}$  に着目し、電気十六極子と回転の結合による十六極子感受率を導いた。さらに、十六極子間相互作用を考慮することで、局在電子系と遍歴電子系をつなぐ新しい物理描像を提示した。

超伝導の発現機構については、構造相転移の量子臨界性から四極子間相互作用によって十六極子を持つクーパー対が形成されることを示した。これは、従来の超伝導体では議論されてこなかった軌道自由度の重要性を提示するものであり、今後の超伝導の研究に与える影響は大きい。これらの結果は、本論文の成果は非常に水準が高く、物性物理学の新しい地平を切り開いた結果であるといえる。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分なものであると認定した。