

# $^{57}\text{Fe}$ 核共鳴前方散乱による $\text{SrFe}_2\text{As}_2$ の電子状態研究 Electronic properties of $\text{SrFe}_2\text{As}_2$ studied by $^{57}\text{Fe}$ nuclear resonant forward scattering

池田修悟<sup>1,2\*</sup>, 小林寿夫<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> 兵庫県立大学院物質理学研究科, 〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1

<sup>2</sup> 多重極限物質科学研究センター, 〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1

Shugo Ikeda<sup>1,2\*</sup> and Hisao Kobayashi<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Graduate School of Material Science, University of Hyogo, 3-2-1 Koto, Hyogo, 678-1297, Japan

<sup>2</sup> Center for Novel Material Science Under Multi-Extreme Conditions Graduate School of Material Science University of Hyogo, 3-2-1 Koto, Hyogo, 678-1297, Japan

## 1 はじめに

臨界温度が 26 K の超伝導体  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  が発見されて以来、世界中で FeAs 系化合物の研究が加速している[1]。典型的な FeAs 系化合物の一つである正方晶  $\text{SrFe}_2\text{As}_2$  は、斜方晶への構造相転移と Fe サイトの反強磁性秩序が、一次相転移として約 200 K で同時に現れる[2]。中性子散乱実験から、約  $1\mu\text{B}$  の Fe の磁気モーメントが斜方晶の  $a$  軸方向を向いており、伝搬ベクトル  $q$  が  $[1,0,1]$  である、ストライプ型の反強磁性構造を持つことが分かっている[3]。静水圧を加えると、両相転移温度が減少し、消失する近傍の 5~7 GPa の範囲で、臨界温度が約 30 K のバルクの超伝導が現れる。また超伝導は、元素置換によっても発現することが報告されている。FeAs 系化合物の超伝導状態は、従来の BCS 理論では説明できず、クーパー対形成機構としてスピンや軌道の揺らぎが挙げられている。しかし最終的な結論は出しておらず、この分野の主な研究課題となっている。この点を解明するには、微視的な視点から超伝導相内の Fe の電子状態、中でもスピン状態を調べることが必要である。さらに元素置換が超伝導秩序変数の対称性に影響を与えるという理論的な指摘があるため、静水圧下による実験が望ましい。これまでに  $^{75}\text{As}$  核における圧力下 NMR 測定が行われており、超伝導転移温度以下で、内部磁場が存在するサイトと存在しないサイトが微視的に共存する特殊な電子状態が形成されていることが指摘されている[4]。

そこで我々は、磁性を担う Fe 核自身の微視的情報を得ることができる  $^{57}\text{Fe}$  核共鳴前方散乱実験を用いて、圧力下における  $\text{SrFe}_2\text{As}_2$  の電子状態を調べたので、その結果について報告する。

## 2 実験

核共鳴前方散乱実験は、meV 程度に単色化された放射光により対象核をコヒーレントに励起させ、その崩壊過程で放出される  $\gamma$  線の強度を時間スペクトルとして観測する分光測定の一つである。対象核のエネルギー準位が、超微細相互作用により分裂して

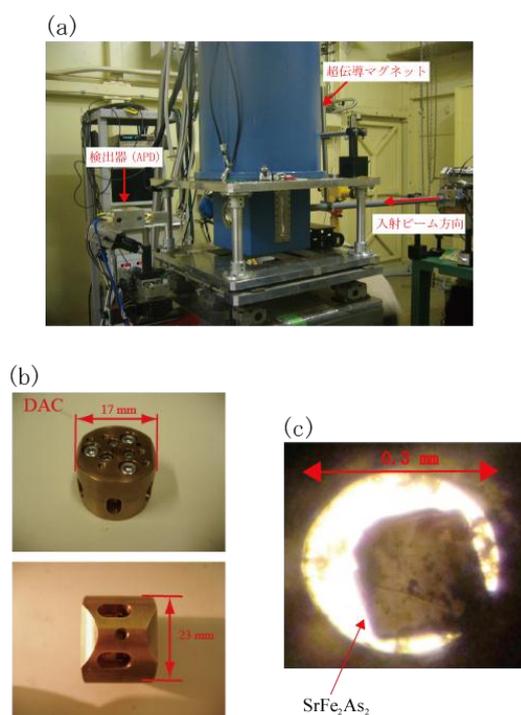


図 1: (a) 超伝導マグネットを用いて核共鳴前方散乱実験を測定している様子。(b) ダイヤモンドアンビルセルと(c) その試料空間。

いと、各準位の僅かなエネルギー差のために、互いに干渉しあい、量子ビートが現れる。また放射光は偏光しているため、単結晶試料を用いた測定の場合、超微細相互作用の主軸方向と入射ビームの角度により、時間スペクトルが変化する。この時間スペクトルを解析すれば、磁気秩序に伴う内部磁場や電場勾配の大きさと向きを決めることができる。

核共鳴前方散乱実験は、高い輝度を持つ放射光を用いるため、通常の R I 線源を用いるメスbauer分光に比べ、強磁場・超高压力などの極限環境下において、短い測定時間で S N の良いスペクトルを得

ることができる。現在 PF-AR NE1 では、図 1 に示すような OXFORD の超伝導マグネットとダイヤモンドアンビルセルを用いて、3 K, 20 GPa, 7 T までの多重極限環境下において実験が可能である。

### 3 結果及び考察

図 1 (a) は、単結晶試料  $\text{SrFe}_2\text{As}_2$  の 3.1 GPa において得られた  $^{57}\text{Fe}$  核共鳴前方散乱の時間スペクトルである。144 K では山が 2 つ程度の単調なスペクトルであるが、134 K の低温では複雑な量子ビートが観測されている。これは、磁気秩序に伴う内部磁場が Fe のサイトに現れたことを意味している。同様の測定をそれぞれの圧力で行い、磁気秩序温度  $T_0$  の圧力依存性を求めた結果が、図 1 (b) の赤丸のデータである。図 1 (b) の緑と青のラインは、参考文献 [2] で報告された圧力下電気抵抗と交流帯磁率から得られた圧力相図である。図 1 (b) から明らかなように、我々が核共鳴前方散乱実験から求めた 4 GPa までの  $T_0$  は、過去の結果と、誤差の範囲内で一致している。さらに我々は、超伝導が発現すると報告されている 5.5 GPa においても、内部磁場を観測することができた。また得られた  $T_0$  は、 $T_{sc}$  よりも高い 60 K 近傍である。この転移温度は、過去の NMR の結果とは異なっている [4]。より加圧を行った 6.0 GPa では、内部磁場は完全に消失する。以上の結果は、 $\text{SrFe}_2\text{As}_2$  の圧力誘起超伝導相内には、磁性と共存する相と超伝導のみが存在する相に分かれていることを示唆する結果である。

この点をより詳細に調べるために、最低温度 3 K において時間スペクトルの圧力依存性を測定した結果が図 1 (c) である。2.6 及び 5.0 GPa では、図 1 (a) と同様に、細かい量子ビートが観測されており、磁気秩序が存在していることが分かる。さらに量子ビートの周期は、2.6 GPa よりも 5.0 GPa の方が長くなっている。これは内部磁場が圧力に伴い減少していることを示している。冒頭で述べたストライプ型の磁気構造を想定することで、2.6 GPa と 5.0 GPa の時間スペクトルが解析できることから、5 GPa まで磁気構造は大きく変化していないことが分かる。解析から得られた 5.0 GPa の内部磁場は、常圧力下の内部磁場に比べて約 6 割程度まで減少している。一方 6.0 及び 6.9 GPa の時間スペクトルは、図 1 (a) の 144 K の時間スペクトルと形状が良く似ていることから類推される通り、内部磁場の無い常磁性状態を考慮することで解析ができた。次に超伝導と共存すると考えられる 5.5 GPa の時間スペクトルは、反強磁性状態 (2.6 GPa 及び 5.0 GPa) と超伝導・常磁性状態 (6.0 及び 6.9 GPa) のいずれの時間スペクトルとも形状が異なっている。ビートの周期の短さから、内部磁場が存在することは、ほぼ間違いない。つまり 5.5 GPa の磁気構造は、常圧のストライプ型から変化しており、それに伴う内部磁場の方向の変化を観測していると考えられる。現在は、様々な磁気構造を仮

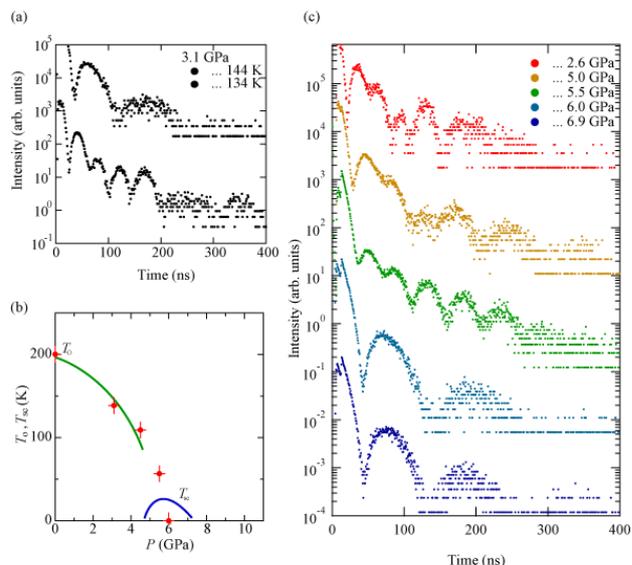


図 1: (a) 3.1 GPa における時間スペクトル。(b) 核共鳴前方散乱実験から得られた圧力相図。緑と青の線は、参考文献 [2] のデータ。(c) 各圧力下における 3 K での時間スペクトル。

定して、5.5 GPa の時間スペクトルの解析を試みている段階である。

### 4 まとめ

本研究は、単結晶試料を用いた  $^{57}\text{Fe}$  核共鳴前方散乱実験によって、 $\text{SrFe}_2\text{As}_2$  の磁性の圧力変化を調べた。その結果、圧力に伴い内部磁場は減少するが、5.0 GPa までは、常圧のストライプ型の磁気構造から大きく変化していないことが明らかとなった。また超伝導が発現する 5 から 7 GPa では、磁性が存在する相と存在しない相に分かれており、超伝導と共存する磁性は、常圧とは異なる磁気構造を持つことを示唆する結果も得た。以上の結果は、超伝導の発現に、Fe サイトの磁性が重要であることを示唆している。5.5 GPa の時間スペクトルの解析を進めることで、超伝導発現に重要な磁性について、より詳細な議論ができるであろう。

### 5 謝辞 (オプション)

本研究では、PF-AR NE1 のビームライン担当者である張小威氏、亀掛川卓美氏及び APD 検出器を開発して頂いた岸本俊二氏に協力して頂きました。ここに感謝致します。

### 参考文献

- [1] Y. Kamihara *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
- [2] K. Matsubayashi *et al.* *JPSJ.* **78**, 073706 (2009).
- [3] K. Kneko. *et al.* *PRB.* **78**, 212502 (2008).
- [4] K. Kitagawa. *et al.* *PRL.* **103**, 257002 (2009).