

鉄ニクタイト化合物 $Ba(Fe_{1-x}Mn_xAs)_2$ におけるディラックコーンへの 磁性不純物置換効果

Magnetic impurity effect on Dirac cones in iron pnictide $Ba(Fe_{1-x}Mn_xAs)_2$

田邊洋一¹, 浦田隆広¹, Huynh Kim Khuong¹, 小黒英俊², 渡辺和雄² 平郡諭³, 谷垣勝己^{1,3}

¹ 東北大・理, ² 東北大・金研, ³ 東北大・WPI-AIMR.

Y. Tanabe¹, S. T. Urata¹, K. K. Huynh¹, H. Oguro², K. Watanabe², S. Heguri³ and K. Tanigaki^{1,3}

¹ Department of Physics, Tohoku University

² Institute of Materials Research, Tohoku University

³ WPI-Advanced Institute of Materials Research, Tohoku University

1. 研究背景

最近、鉄ニクタイト超伝導体の母物質において、線形なバンド分散が交差した状態、いわゆる、ディラックコーンが発見され注目を集めている。ディラックコーン型のバンド分散を持つ化合物としては、グラフェン[1]、有機超伝導体[2]、トポロジカル絶縁体[3]などが知られており、高い易動度や後方散乱の強い抑制などの特徴を持つ。鉄ニクタイト化合物は、Feの5つの3d軌道から成る半金属的なマルチバンド構造を持つことが知られている。Feの d_{xz} と d_{yz} 軌道を考慮した理論計算からは、電子ポケットと正孔ポケットが異なる擬スピン渦度 (Pseudospin vorticity) を持つことが示唆されている[4]。低温では、電子ポケットとホールポケットのネスティングに起因して、スピン密度波状態 (SDW) が出現する。このとき、電子ポケットと正孔ポケットの擬スピン渦度の差を埋めるために、SDW ギャップがノードを持つ、所謂ノードル SDW 状態の出現が示唆されている。[5]このSDWギャップのノードがディラックコーンである。このディラックコーン型分散の存在は、角度分解光電子分光[6,7]や複素伝導度[8]の実験などから確認されている。密度汎関数法による計算からは、ディラックコーンが3次元的な分散を持つこと、その他のパラボリックバンドと共存することなどが示唆されている[9]。すなわち、これらに特徴的な輸送特性の観測や不純物置換などを通じたディラック電子の多体相互作用の研究の舞台となり得る。

これまで、ディラックコーン型線形分散においては、その量子極限において線形な磁気抵抗効果が発現することが、アブリコソフの理論によって示唆されており[10]、実際に、 $Ba(FeAs)_2$ において確認されている[11]。Feに対する非磁性不純物とみなすことができるRuを置換した $Ba(Fe_{1-x}Ru_xAs)_2$ においては、超伝導とSDWが共存する領域において、ディラックコーンと超伝導が共存していること[12]、また、ポテンシャル散乱体による後方散乱が強く抑制されていることが観測されている[13]。

今回我々は、ディラックコーンへの磁性不純物置換効果を明らかにすることを目的として、FeサイトにMnを部分置換した $Ba(Fe_{1-x}Mn_xAs)_2$ の単結晶を育成し、磁場中輸送特性の測定を行った。先にも述べたように、鉄ニクタイト化合物のディラックコーンはFeの3d軌道に関係した擬スピン渦度によって出現するため、磁性不純物などの時間反転対称性を破る摂動に対して壊れないという特徴がある。このため、磁性不純物を部分置換するこ

とによって、ディラック電子と局在磁気モーメントによる近藤効果やRudermann-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY)相互作用などの研究が可能となる。

2. 実験方法

$Ba(Fe_{1-x}Mn_xAs)_2$ の単結晶はFeAsフラックスを用いたフラックス法により育成した[14]。単結晶の品質を評価し、不純物相の混入の影響がないことを確認するため、放射光施設 SPring8BL02B1 において粉末X線回折実験を行った。リートベルト法による解析を行った結果、 $Ba(Fe_{1-x}Mn_xAs)_2$ の単相試料が得られたことを確認した。電気抵抗率の温度依存性を4端子法を用いて測定し、その温度依存性から、Mn仕込組成の増加に対するSDW転移温度の変化を決定した。さらに、過去の報告と比較することによって、実際のMn濃度の決定を行った[14]。磁気抵抗効果とホール抵抗の測定は4端子法を用いて17.5T以下の磁場中において行った。測定は東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターの超伝導マグネット20T-SMを用いて行った。

3. 実験結果と考察

図1(a)に $x = 0.035$ において4-300Kの各温度で測定した磁気抵抗効果 R_M の磁場 B 依存性を示す。磁気相転移温度以下においては、300Kの場合と比較して R_M が顕著に増大することを観測した。これらの結果は、磁気相転移温度以下においてキャリアの易動度が急激に増大していることを示している。 R_M の傾きの詳細な変化を明らかにするために、図1(b)に $x = 0.07 - 0.035$ の30Kにおける R_M の B 微分 dR_M/dB の B 依存性を示す。 x の増大とともに R_M は減少するが、すべての試料において、 R_M が高磁場側で飽和すること、すなわち、磁場に対して線形な磁気抵抗効果を観測した。

$Ba(Fe_{1-x}Mn_xAs)_2$ の $x = 0 - 0.035$ において、磁気相転移温度以下の温度領域で磁場に線形な磁気抵抗効果を観測した。一般に、磁場中での電子の量子化されたサイクロトロン運動によって、電子のエネルギー準位は離散的なランダウ準位に分裂する。特に、強磁場極限では、すべての電子が、第0ランダウ準位を占める量子極限が実現する。ディラックコーン型のバンド分散においては、この量子極限において、理論から[11]磁場に対して線形な磁気抵抗効果の出現が予想され、 $Ba(FeAs)_2$ において実際に観測されている。

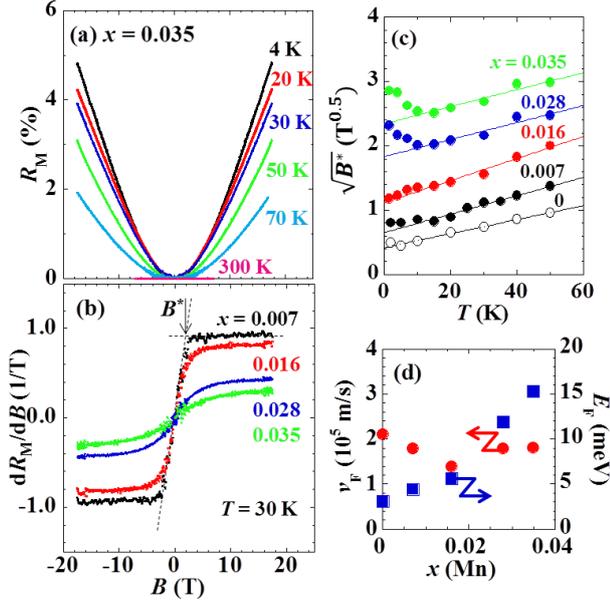


FIG. 1: (a) Magnetic field (B) dependence of magnetoresistance (R_M) for $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ at various temperatures. (b) A derivative of R_M (dR_M/dB) for $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ with $x = 0.007 - 0.035$ at 30 K. (c) Temperature dependences of a root square of a crossover magnetic fields (B) for $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ with $x = 0 - 0.035$, which is onset of the linear magnetoresistance against B . The solid lines were results of fitting using eq. 2 in $T = 15$ K. (d) x dependence of Fermi energy E_F and v_F for $x = 0 - 0.035$.

磁場中での第 0-第1ランダウ準位の分裂、量子極限が出現するクロスオーバー磁場の温度依存性、サイクロトロン有効質量は以下の式で表される。

$$\Delta_{LL} = \pm v_F \sqrt{2e\hbar B}, \quad (1)$$

$$B^* = (1/2e\hbar v_F^2)(E_F + k_B T)^2, \quad (2)$$

$$m^* = E_F/v_F^2 = \sqrt{\pi n_D}/v_F. \quad (3)$$

式(1)は磁場中での第 0-第1ランダウ準位の分裂を示している。ここで E_F と v_F はディラックコーンのフェルミエネルギーとフェルミ速度である。量子極限においては、 Δ_{LL} が E_F よりも大きくなる。このとき、熱励起の効果を含めると、量子極限が実現するクロスオーバー磁場 B^* は式(2)のように表される。 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ において観測した線形磁気抵抗効果がディラックコーンの量子極限として理解できるならば、各温度で実験的に決定した B^* は式(2)の温度依存性を満たすはずである。

図 1(c) に $x = 0 - 0.035$ における B^* の温度依存性を示す。 $x = 0 - 0.016$ においては全ての温度領域で、 $x = 0.028$ と 0.035 においては 15 K 以上の温度領域で、 $(B^*)^{0.5}$ が温度に対して線形に増加している。実際に 15K 以上の領域で式(2)を用いてデータをフィッティングすると、 B^* の温度依存性が式(2)と良い一致を示す。すなわち、この結果は、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ において観測した磁場に対して線形な磁気抵抗効果がディラックコーンの量子極限として解釈できることを示している。図 1(d)に

15K 以上の温度領域におけるフィッティングから得られた E_F と v_F の x 依存性を示す。 x の増加に対して、 E_F が

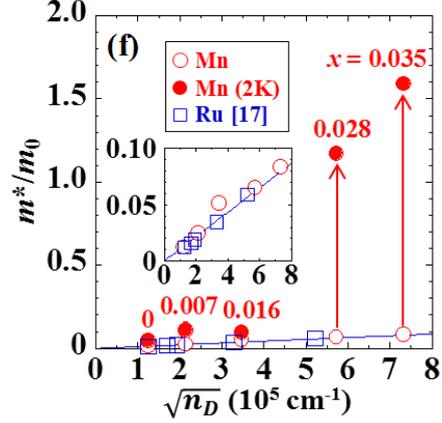


FIG2 : The cyclotron effective masses dependent on $(n_D)^{0.5}$ at 2 K (m_{2K}^*) for $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$. The dependences of m^* 's estimated from the parameters as shown in Fig. 1(d) are also displayed in the same figure. For comparison, m values for $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x\text{As})_2$ are displayed [13]. The drawn solid line is the linear fit for $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x\text{As})_2$.

増加する一方、 v_F はあまり変化しないことが分かる。一方で、特に、 $x = 0.028$ と 0.035 においては、低温で B^* が式(2)から逸脱し、異常に増大する振る舞いを観測した。式(2)において、 B^* は E_F と v_F に依存していることから、低温での B^* の増大は、 E_F と v_F の低温での変化を示唆している。

これまでの議論から、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ の $x = 0 - 0.035$ において観測した磁場に対して線形な磁気抵抗効果がディラックコーンの量子極限として理解できることが明らかになった。この結果は、磁性不純物置換によって鉄ニクタイト化合物のディラックコーンが破壊されないことを示している。Mn 置換に対して、ディラックコーンのキャリア数は増大する一方、 v_F はほとんど変化しない。Mn 置換によっては、半金属的なマルチバンド全体のキャリア数は変化しないものの[15]、ディラック中性点のエネルギー位置が変化するなどの振る舞いがあるように思われる。一方で、 $x = 0.028$ と 0.035 においては、15K 以下の温度領域で B^* が通常のディラックコーンの量子極限における振る舞いから外れて増大することを観測した。これらは、低温でディラックコーンの E_F が増大、または、 v_F が減少することを示唆している。ディラックコーン型の線形分散においては、サイクロトロン有効質量 m^* は式(3)のように表すことが出来る。 m^* が E_F と v_F を用いて式(3)のように表されることから、 E_F の増大、又は、 v_F の減少は、ディラックコーンの m^* が低温で増大している可能性を示している。

$\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ においては、磁性不純物である Mn がディラックコーンを乱さないことから、Mn の局在磁気モーメントとディラック電子による近藤効果が生じることが予想される。実際に電気抵抗率の温度依存性からは、 $-\log T$ に比例して電気抵抗率が増大し低温で飽和する振る舞いが見られる。これは、典型的な近藤効果の振る舞いである。S = 1/2 の局在磁気モーメントと伝導電子に

よる近藤効果が起った場合、低温で近藤 1 重項が形成されることによって、伝導電子の m^* が増大する。従って、 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ においても近藤効果によるバンドリノマリゼーション効果によってディラック電子の m^* が増大している可能性がある。

図 2 に実験から決定した 15K 以上と 2K における m^* を自由電子の質量で割った m^*/m_0 のディラックコーンのキャリア濃度 n_D 依存性を示す。 n_D と 15K 以上における m^* は、図 1(d) に示した E_F と v_F を用いて式(3)から導出した。2K における m^* については、近藤効果によってキャリア数 n_D が変化しないことを考慮して、式(2)と(3)を連立して導出した。また、Fe に対して非磁性不純物に相当する Ru を置換した場合の m^*/m_0 の n_D 依存性を合わせて示す[13]。15K 以上において m^*/m_0 は $(n_D)^{0.5}$ に対して線形に増大する。これは、Mn 置換による m^*/m_0 の変化がディラックコーンのキャリア数の変化のみによって説明されることを示している。さらに、Mn 置換における m^*/m_0 の n_D 依存性が Ru 置換における場合とよく一致している。すなわち、これらの結果は、非磁性・磁性不純物置換によって $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ において観測されたディラックコーンが乱されないことを示している。これは、理論から示唆される振る舞いと一致する[5]。一方、2K における m^* については、特に $x = 0.028$ と 0.036 において 15K 以上における m^* と比較して顕著な増大を示す。電気抵抗率の温度依存性からは、典型的な近藤効果による振る舞いが観測されていることから、この m^* の増大はディラック電子と Mn の局在電子スピンの近藤効果によるバンドリノマリゼーション効果として理解することが出来る。

4. まとめ

鉄ニクタイト化合物のディラックコーンへの磁性不純物置換効果を明らかにすることを目的として、Fe サイトに Mn を置換した $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As})_2$ の単結晶を育成し、磁場中輸送特性の測定を行った。その結果、磁気相転移温度以下において、ディラックコーンの量子極限として理解できる磁場に対して線形な磁気抵抗効果を観測した。この結果は、鉄ニクタイト化合物のディラックコーンが磁性不純物によって乱されないことを示している。一方、 $x = 0.028$ と 0.035 においては、線形磁気抵抗効果が発現するクロスオーバー磁場が低温で、急激に増大する振る舞いを観測した。さらに、解析を行った結果、 B^* の増大がディラック電子のサイクロトロン有効質量の増大に起因することが明らかになった。電気抵抗率の温度依存性からは、典型的な近藤効果による振る舞いが観測されていることから、ディラック電子と Mn の局在電子スピンの近藤効果によってバンドリノマリゼーションが起った結果、低温でディラック電子の有効質量が増大したと結論した。

5. 参考文献

- [1] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 109 (2009).
- [2] N. Tajima, S. Sugawara, R. Kato, Y. Nishio, and K. Kajita, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 176403 (2009).
- [3] M. Z. Hasan and C. L. Kane, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 3045 (2010).
- [4] Y. Ran, F. Wang, H. Zhai, A. Vishwanath, and D. H. Lee, *Phys. Rev. B* **79**, 014505 (2009).
- [5] T. Morinari, E. Kaneshita, and T. Tohyama, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 037203 (2010).
- [6] P. Richard, K. Nakayama, T. Sato, M. Neupane, Y. M. Xu, J. H. Bowen, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang, X. Dai, Z. Fang, H. Ding, and T. Takahashi, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 137001 (2010).
- [7] Y. Zhang, C. He, Z. R. Ye, J. Jiang, F. Chen, M. Xu, Q. Q. Ge, B. P. Xie, J. Wei, M. Aeschlimann, X. Y. Cui, M. Shi, J. P. Hu, and D. L. Feng, *Phys. Rev. B* **85**, 085121 (2012).
- [8] Y. Imai, F. Nabeshima, D. Nakamura, T. Katase, H. Hiramatsu, H. Hosono, A. Maeda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 043709 (2013).
- [9] Z. P. Yin, K. Haule, and G. Kotliar, *Naturephys.* **7**, 294 (2011).
- [10] A. A. Abrikosov, *Phys. Rev. B* **58**, 2788 (1998).
- [11] K. K. Huynh, Y. Tanabe, and K. Tanigaki, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 217004 (2011).
- [12] Y. Tanabe, K. K. Huynh, S. Heguri, G. Mu, T. Urata, J. Xu, R. Nouchi, N. Mitoma, and K. Tanigaki, *Phys. Rev. B* **84**, 100508 (2011).
- [13] Y. Tanabe, K. K. Huynh, T. Urata, S. Heguri, G. Mu, J. T. Xu, R. Nouchi, and K. Tanigaki, *Phys. Rev. B* **86**, 094510 (2012).
- [14] A. Thaler, H. Hodovanets, M. S. Torikachili, S. Ran, A. Kracher, W. Straszheim, J. Q. Yan, E. Mun, and P. C. Canfield, *Phys. Rev. B* **84**, 144528 (2011).
- [15] Y. Texier, Y. Laplace, P. Mendels, J. T. Park, G. Friemel, D. L. Sun, D. S. Inosov, C. T. Lin and J. Bobroff, *Europhys. Lett.* **99**, 17002 (2012).