

## 鉄系超伝導体の鉄原子の振動から電子分布の対称性を読み解く

### 発表の要点

- ・大型放射光施設「SPring-8」を活用し、鉄原子の振動だけを選択的に測定。
- ・鉄系超伝導体  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  で到達できる  $x > 0.3$  の領域に着目し、超伝導組成と磁気秩序組成で広い温度域にわたる鉄原子の振動の現れ方の違いを可視化。
- ・理論計算との比較から、鉄原子まわりの電子分布の対称性変化を示唆。超伝導や磁気秩序が発現する前段階の新たな知見の獲得。超伝導と磁気秩序の発現機構解明の手がかりに。

### 研究の概要

兵庫県立大学理学研究科の 河智 史朗 助教 および 小林 寿夫 教授 らの研究グループは、東北大学、東京大学、物質・材料研究機構、日本原子力研究開発機構、高輝度光科学研究所センター、東京科学大学と共同で研究を行いました。

大型放射光施設 SPring-8 の極めて明るく、パルス状で単色の X 線を活用した手法により、鉄系超伝導体<sup>1</sup>  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  の  $x > 0.3$  の領域に着目して、鉄原子の振動だけを選択的に調べました。その結果、超伝導が発現する組成 ( $x = 0.35$ ) と磁気秩序が現れる組成 ( $x = 0.51$ ) の間で、鉄原子の振動の現れ方に明確な違いを見いたしました。理論計算との比較から、この差が鉄原子周りの電子分布の対称性の違いと整合することを示しました。この結果は、超伝導や磁気秩序が確立する前段階での電子状態に関する新たな知見を与え、それらの成り立ちを解明するための手がかりとなります。

本成果は物性物理学の国際学術誌 Physical Review B に掲載され、編集部が注目度・重要性・明快さの観点から選定する Editors' Suggestion に選ばれました（掲載日：2026 年 1 月 30 日 [米国東部時間]）。

### 研究の背景

超伝導は、電気抵抗がゼロになるだけでなく、磁場を内部から排除する「完全反磁性」を示す特異な量子現象です。なかでも鉄系超伝導体は、銅酸化物超伝導体に次ぐ高い超伝導転移温度を示す物質群（高温超伝導体）として発見以来注目され、現在でも研究が進められています。超伝導や磁性といった物質の性質は、物質内部の電子状態によって決まります。鉄系超伝導体では、化学組成をわずかに変えて物質中の電子数を調整し、電子状態を変化させ

ることで、超伝導や反強磁性<sup>2</sup>が現れることが知られています。したがって、電子数の調整によって電子状態がどのように変わり、超伝導や反強磁性が発現するかを理解することは、量子状態を設計するといった学術的挑戦に繋がると同時に、次の超伝導材料探索へ向けた基盤になります。

$\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  は、ヒドリド (H-)<sup>3</sup>置換によって多くの電子数を注入（電子ドープ）できるため、鉄系超伝導体における電子状態の変化を幅広く調べることができる代表的な物質です。実際、ヒドリド置換量（すなわち電子数を変える一つのパラメーター）の調整で、二種類の反強磁性相（P1 と P2）の間に、二種類の超伝導相（SC1 と SC2）が入り組んで現れる豊かな相図を示します（図 1）。さらに近年、SC1 と SC2、P1 と P2 は、いずれも超伝導・反強磁性という性質は共通しながら、内部の秩序状態や対称性が異なることが指摘されています。

一方で、ヒドリド置換が多い領域に現れる SC2 や P2 については、それらの発現機構の理解が十分に得られていません。これらの成り立ちを明らかにすることは、電子ドープに伴う電子状態の切り替わりという観点から、鉄系超伝導体に共通する「超伝導と磁性がどのように結びつくのか」という根本課題に重要な手がかりを与える可能性があります。そこで、SC2 や P2 の超伝導や反強磁性秩序が発現する温度よりも高い温度から、電子状態にどのような変化が現れているのかを捉えることが、発現機構の理解に向けて重要になります。そのためには、結晶全体の平均像とは異なる切り口から電子状態に迫る実験的手法が求められていました。

## 手法と成果

本研究では、物性の中心となる鉄原子に注目し、鉄原子の振動のみを選んで調べることで、超伝導や磁気秩序が発現する前段階の電子状態を探る手がかりを得ようとした。そこで、大型放射光施設 SPring-8 の高輝度 X 線を用い、安定同位体 <sup>57</sup>Fe の原子核をプローブとした核共鳴非弾性散乱測定 (NRIS)<sup>4</sup>を行いました。NRIS は、特定元素の原子核共鳴を利用して、その元素（本研究では鉄）に由来する原子の振動のみを選択的に調べることができる手法です。

対象としたのは、鉄系超伝導体  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  のうち、低温で超伝導が現れる  $x = 0.35$  と、低温で反強磁性が現れる  $x = 0.51$  の二つの組成です（図 1 の点線）。両者を 5–300 K の広い温度範囲で比較した結果、鉄原子の振動の分布に明確な違いが現れることを見いだしました。具体的には、超伝導組成 ( $x = 0.35$ ) で顕著に現れる特徴的な成分 [図 2(a) 緑のコブ] が、反強磁性組成 ( $x = 0.51$ ) では広い温度範囲にわたって抑制されていることが分かりました。

第一原理計算<sup>5</sup>との比較から、この特徴的なコブは最近接 Fe 原子方向に関わる Fe の

振動モード [図 2(b)] に対応し、その見え方が両者の電子分布の局所的な対称性の違いによって生じていることが示されました。特に、 $x = 0.51$  における特徴的なコブの抑制は、電子分布の対称性の破れを示唆しており、[電子ネマティシティ](#)<sup>6</sup> の描像と整合することがわかりました。

NRIS は原子核共鳴の寿命に対応するナノ秒の時間スケールで情報を平均して観測します。したがって、本研究は、SC2 相や P2 相近傍の電子状態について、普通の原子の振動よりもゆっくりした時間スケールで観たときに、電子ドープに伴って局所的な対称性が変化していることを示しました。結晶全体の平均的な構造だけでは捉えにくいこの変化を、SPring-8 の放射光を用いて原子の振動から調べた点が、本研究の特徴です。

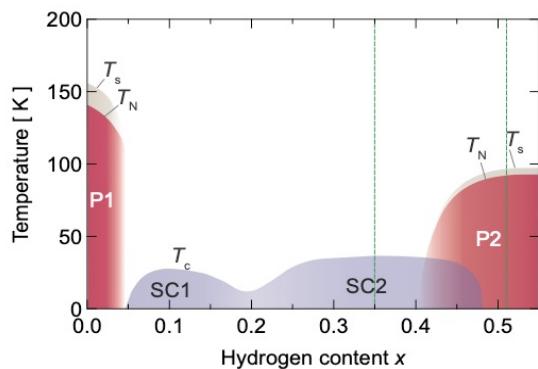


図1.  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  のヒドリド ( $\text{H}$ ) 置換量  $x$  に伴う構造相転移温度  $T_s$ 、反強磁性転移温度  $T_{\text{N}}$ 、超伝導転移温度  $T_c$  の相図。本研究では、低温で超伝導を示す組成  $x = 0.35$  と反強磁性を示す組成  $x = 0.51$  に着目して測定を行った。

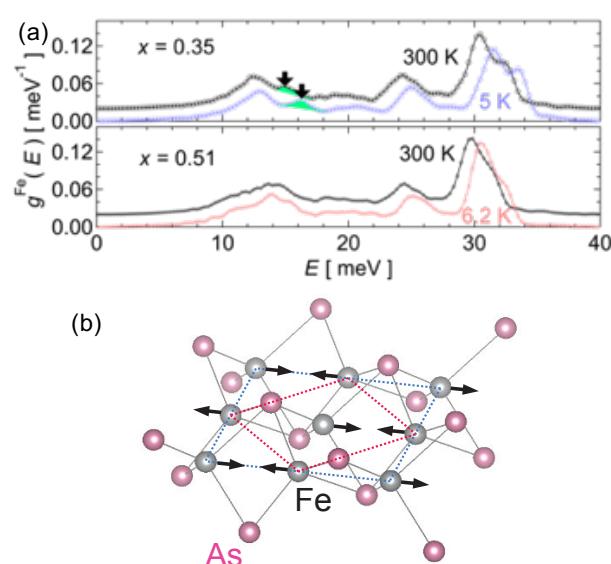


図2 (a) ヒドリド置換鉄系超伝導体  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  における鉄 (Fe) 由来のフォノン状態密度 (PDOS) のエネルギー依存性 ( $x = 0.35$  および  $0.51$ )。緑で示したコブは、 $x = 0.35$  で顕著である一方、 $x = 0.51$  では強く抑制される。

(b) 第一原理計算により同定した、(a) の緑のコブに対応する鉄原子の振動モードの模式図。鉄 (Fe) とヒ素 (As) の層構造を示し、Fe の振動を矢印で表している。

## 今後の期待

本研究で得られた鉄原子の振動に関する現れ方の違いは、高い電子ドープ領域 ( $x \sim 0.5$ )において、電子の分布が結晶学的に等価な方向でも同じでなくなり、向きによって差が生じる「電子ネマティシティ」と整合するものであり、室温付近から強まると報告されている反強磁性ゆらぎと同じ温度帯で現れることが示唆されます。これは、超伝導が現れる条件や、低温で反強磁性が秩序化していく過程を考える上での手がかりとなります。

ヒドリド置換鉄系超伝導体  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  は、電子ドープ量を変えるだけで超伝導と磁

性が入り組んだ多彩な相図を示します。この知見は、電子ドープに伴って電子状態がどのように切り替わり、超伝導や磁性の発現に結びつくのかという、鉄系超伝導体に共通する根本課題を考える上での指針となると期待されます。

## 用語

### <sup>1</sup> 鉄系超伝導体

鉄(Fe)を含む層状化合物を中心とした高温超伝導体の一群。高い温度で超伝導を示す物質群として知られ、電子の状態と磁性が強く結び付くことから、超伝導が生まれる仕組みを理解するための重要な研究対象となっています。

### <sup>2</sup> 反強磁性

物質中の原子がもつ小さな磁石(磁気モーメント)が、となり合う原子同士で互いに逆向きにそろって並ぶ磁性の状態。全体としては磁石のように強く磁化しない一方で、物質内部では規則正しい磁気の秩序が成立しています。

### <sup>3</sup> ヒドリド(H<sup>-</sup>)イオン

水素がマイナス電荷(H<sup>-</sup>)を持つ状態で結晶中に取り込まれる状態。

### <sup>4</sup> 核共鳴非弾性散乱(NRIS)

特定元素(本研究では安定同位体<sup>57</sup>Fe)に由来する結晶中の原子の振動を選択的に調べる放射光実験手法。

### <sup>5</sup> 第一原理計算

量子力学に基づいて、物質中の電子のふるまいを計算し、原子の配置や磁性、原子の振動などの性質を理論的に見積もある方法。実験で得られた構造情報を入力として用いることも多く、実験結果の解釈を助ける役割を果たします。

### <sup>6</sup> 電子ネマティシティ

結晶の見かけの対称性が保たれていても、局所的な電子の分布の対称性が破れた秩序状態。

## 研究支援

本研究は、文部科学省「元素戦略拠点形成型プロジェクト」(JPMXP0112101001)および兵庫県立大学 特別研究助成(2023年度)の支援を受けて実施しました。また、JSPS 科研

費（23K04637）の一部支援を受けました。

放射光実験は、大型放射光施設 SPring-8において、高輝度光科学研究センター（JASRI）の承認（課題番号：2014A1422）のもとで実施しました。第一原理計算（DFT）は、日本原子力研究開発機構（JAEA）計算科学技術センター（CCSE）が運用するスーパーコンピュータ HPE SGI8600 を用いて行いました。

## 発表先

雑誌名: Physical Review B

掲載日：2026年1月30日 [米国東部時間]

DOI: 10.1103/7zd9-5t9z

題名: Doping-dependent Fe phonon dynamics in LaFeAsO<sub>1-x</sub>H<sub>x</sub> studied by <sup>57</sup>Fe nuclear resonant inelastic scattering

著者: Shiro Kawachi, Haruhiro Hiraka, Jun-ichi Yamaura, Soshi Iimura, Hiroki Nakamura, Satoshi Tsutsui, Yoshitaka Yoda, Masahiko Machida, Hideo Hosono, and Hisao Kobayashi.

連絡先:

兵庫県立大学 理学研究科 河智 史朗

kawachi@sci.u-hyogo.ac.jp

## 発表者

河智 史朗	兵庫県立大学 大学院理学研究科 助教
平賀 晴弘	東北大学 材料科学高等研究所(WPI-AIMR) 特任准教授
山浦 淳一	東京大学 物性研究所 准教授
飯村 壮史	物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究センター 水素材料分野 水素イオン材料グループ グループリーダー
中村 博樹	日本原子力研究開発機構 システム計算科学センター A I・D X基盤技術開発室 研究主幹
筒井 智嗣	高輝度光科学研究センター 産学総合支援室 主幹研究員
依田 芳卓	高輝度光科学研究センター 精密分光推進室 特任研究員
町田 昌彦	日本原子力研究開発機構 システム計算科学センター 上級研究専門官
細野 秀雄	東京科学大学 元素戦略 MDX 研究センター 特命教授, 物質・材料研究機構 ナノアーキテクtonics材料研究センター チームリーダー
小林 寿夫	兵庫県立大学 大学院理学研究科 教授