

研究種目：若手研究(スタートアップ)
 研究期間：2008 ～ 2009
 課題番号：20840002
 研究課題名(和文) 高分解能角度分解光電子分光による電子型銅酸化物高温超伝導体の微細電子構造の研究
 研究課題名(英文) High-resolution angle-resolved photoemission study of fine electronic states in electron-doped high- T_c superconductors
 研究代表者
 リシャール ピアー (Richard, Pierre)
 東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教
 研究者番号：70513828

研究成果の概要(和文)：

銅酸化物高温超伝導発現機構の解明のためには、現存する多様な高温超伝導物質について系統的な研究を行い、その電子状態を相補的に比較する必要がある。最近発見された鉄ニクタイト系高温超伝導体も統一的超伝導機構探索のためには極めて重要な物質で、国内外で精力的な研究が展開されており、研究の緊急性が高い。本研究では、主に鉄ニクタイト超伝導体の高分解能角度分解光電子分光を行い、フェルミ面・バンド構造などの基本的な電子構造と、超伝導機構に直接関与する超伝導ギャップの直接測定を行い、電子型銅酸化物高温超伝導体との相互比較を行った。

研究成果の概要(英文)：

In order to elucidate the origin of superconductivity in high- T_c cuprates, it is indispensable to systematically investigate the electronic states of various superconductors and compare their electronic states with cuprates. Recently-discovered iron-pnictide superconductor is the best candidate to approach this issue. In this research, we have performed high-resolution angle-resolved photoemission spectroscopy of iron-pnictide superconductors and elucidated basic electronic states such as Fermi surface and band structure. In addition, we have directly observed the superconducting gap and established the superconducting pairing symmetry. We also compared the experimental electronic states between the iron pnictides and electron-doped cuprates.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,270,000	381,000	1,651,000
2009年度	1,180,000	354,000	1,534,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,450,000	735,000	3,185,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：角度分解光電子分光、超伝導、強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

高温超伝導機構に本質的な要素を明らかにするためには、多種に亘る超伝導試料の電子状態を系統的に決定する必要がある。銅酸化物高温超伝導体においては、ホールドーブ型高温超伝導体がこれまで精力的に研究され、基本的な物性が明らかにされてきた一方、電子ドーブ型においては研究が殆ど進んでおらず、高温超伝導機構に普遍の現象を導き出す上で大きな障害となっていた。この最たる理由は、角度分解光電子分光(ARPES)のエネルギー分解能が、超伝導転移温度の低い電子ドーブ型高温超伝導体の超伝導ギャップを直接観測するのに不十分であったためである。このような研究開始時の状況において、2008年2月に鉄と砒素を含む新型高温超伝導体が発見され、その直後から爆発的に研究が進展している。その超伝導転移温度は現段階で55K以上と、銅酸化物に次ぐ高い温度を記録しており、超伝導メカニズムについて実験・理論両方の立場から盛んに議論がなされている。鉄系超伝導体の注目すべき点は、銅酸化物と多くの点で共通していることである。例えば、電子相図には反強磁性相とそれと隣接超伝導層が存在し、また、超伝導を担う基本ブロックは、二次元の伝導面(CuO₂, FeAs 面)である。その一方で銅酸化物とは大きな違いも見受けられる。例えば、銅酸化物の場合母物質は絶縁体であるのに対して鉄系の場合は半金属であり、銅酸化物に鉄を印可すると超伝導が劇的に抑制されるのに対して、鉄系超伝導体では鉄の電子自体が超伝導を担う。上記の特徴的な類似点および相違点を解明する事は、鉄系超伝導体の超伝導機構を理解するだけでなく、銅酸化物の超伝導機構を研究する上で非常に重要である。

2. 研究の目的

本研究では、超高分解能 ARPES 法を用いて鉄系高温超伝導体の電子状態を精密に決定することによって高温超伝導発現機構を解明し、銅酸化物との相互比較を行う事で、その超伝導機構についての知見を得ることを目的とする。これを実現するために、現有の超高分解能光電子分光装置の分析系などの改良を行う。改良した装置を用いて鉄系超伝導体の基本的電子構造、具体的には、フェルミ面、エネルギーバンド分散、多体相互作用、超伝導ギャップを直接観測する事により、フェルミ準位(E_F)近傍の微細電子構造と超伝導発現機構との関係を明らかにする。電子ドーブ型およびホールドーブ型の両方について系統的な ARPES 実験を行うことによって、鉄系超伝導体の高温超伝導メカニズムを総合的に解明することを目指す。

3. 研究の方法

○高分解能光電子分光装置の改良

より高い分解能の ARPES 測定を実現しつつ微小試料測定におけるシグナル強度不足の問題を克服するために、マイクロ波励起型ヘリウム放電管の差動排気系を強化し、マイクロ波発生装置の改良・調整を行う。電子エネルギー分析器の改良を行い、ARPES データを高速で解析するためのソフトウェアの開発を行う。これらの改良により測定時で1meVの分解能を目指す。

○鉄系高温超伝導体の高分解能 ARPES 研究

ARPES 研究は、ホールドーブ(Ba,K)Fe₂As₂および電子ドーブ型 BaFe_{2-x}Co_xAs₂について以下の内容に分割して進める。

(1) フェルミ面とバンド構造の決定

フェルミ面の精密測定を行い、ドーブ量やキャリアの符号の違いで形状がどう変化するかを明らかにする。これにより、超伝導理解の基礎となる常伝導状態の電子構造が解明される。また、三次元的なフェルミ面を決定するために、高輝度放射光において励起光のエネルギーを系統的に変化させた ARPES 測定を行う。また、価電子帯のバンド構造を決定し、鉄の電子軌道とフェルミ面との対応を明らかにする。LDA バンド計算との比較により、それぞれのバンドにおける有効質量を精度よく見積もる。

(2) 多体相互作用の起源

E_F 近傍のエネルギーバンド分散の波数・温度・ドーブ量依存性を測定する。特に、多体相互作用の存在を示すバンド分散の折れ曲がり(kink)の振る舞いを明らかにする。その際、kink 構造のエネルギー位置と結合定数を、自己エネルギーの実部と虚部の定量解析から精度よく導き出す。得られた結果を他の実験と比較し、kink 構造を生み出すボソンの起源を明らかにする。また、電子型銅酸化物高温超伝導体における kink 構造との比較を行い、多体相互作用の類似点・相違点を明らかにする。

(3) 超伝導ギャップの対称性

超伝導ギャップの波数・フェルミ面依存性を精度良く測定し、超伝導ギャップの異方性を定量的に評価する。また、超伝導ギャップのドーブ量依存性測定を不足ドーブから過剰ドーブを網羅する広範囲のドーブ領域で系統的に行い、ドーピングによる超伝導ギャップのサイズと形状の変化を明らかにする。また、母物質における SDW ギャップの波数・フェルミ面依存性との定量的な比較を行い、超伝導と磁気秩序(SDW)の競合/共存についての知見を得る。

(4) 母物質における反強磁性転移の起源

母物質における高分解能 ARPES を行い、反強磁性・構造転移が電子状態に与える影響を明らかにする。この実験結果を輸送現象な

どの他の実験に見られる特異な振る舞いと比較し、相転移の微視的起源について考察する。

(5) 電子-ホール対称性

超伝導・擬ギャップのドーブ量依存性を、電子およびホールドーブ型の双方で比較する事により、電子型とホール型で電子状態が対称かどうかという電子-ホール対称性の有無を明らかにする。また、その際転移温度を上げる要因について考察する。

(6) 銅酸化物との比較研究

電子型銅酸化物超伝導体と鉄系超伝導体の電子構造を詳細に比較する事により、反強磁性と超伝導の関係の普遍性についての情報を得る。

以上、鉄系・銅酸化物および電子ドーブ型、ホールドーブ型の母物質のすべての実験結果を総合的に検討し、超伝導発現機構を同定する。

4. 研究成果

○高分解能光電子分光装置の改良

超高分解能 ARPES 測定を実現するために、励起光源系において、残留ガスを完全に遮断しつつ紫外線を通す VUV フィルターを導入した。また、高速・大排気容量ターボ分子ポンプを放電管に接続する事により、差動排気系の強化を行った。これらの改良によって、ARPES 測定時における鉄系高温超伝導体の寿命を、従来に比べて数倍向上させた。また、静電半球型アナライザーの電子出射スリットの改良を行い、1meV を切るアナライザーのエネルギー分解能を達成した。さらに、鉄系高温超伝導体の ARPES データを高速で解析するためのソフトウェアの開発を行い、測定時にバンド構造やフェルミ面を描き出せるような機能を持たせた。これにより、鉄系高温超伝導体のデータ解析の速度と効率が大きく向上した。

○鉄系超伝導体の ARPES 研究

・基本的電子構造と超伝導ギャップ

最適ドーブ領域のホールドーブ型 $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($T_c=37\text{K}$) および電子ドーブ型 $\text{BaFe}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{As}_2$ ($T_c=25.5\text{K}$) の高分解能 ARPES 実験を行い、フェルミ面形状を精密決定した。その結果、ホールドーブ型試料では、ブリルアンゾーンの Γ 点を中心に2枚のホール面 (α, β)、M 点を中心に2枚の電子面 (γ, δ) の計 4 枚のフェルミ面を観測した。さらに、 Γ 点中心の内側のホール面 α と M 点中心の電子面 $\gamma(\delta)$ が、反強磁性散乱ベクトル $Q=(\pi, 0)$ を通じて比較的良いネスティング条件を満たす事を見出した。一方、電子ドーブ型の試料では、ホール型で α ホール面を形成していたエネルギーバンドはフェルミ準位以下約 30meV 程度まで沈み込んでおり、フェルミ面を形成していない事を明らかにした。また、 β ホール面

はホール型に比べて著しく縮小している事を見出した。それと同時に、M 点中心の 2 枚の電子面 γ, δ は、ホールドーブ型に比べて拡大している事もわかった(図 1)。これらの実験事実

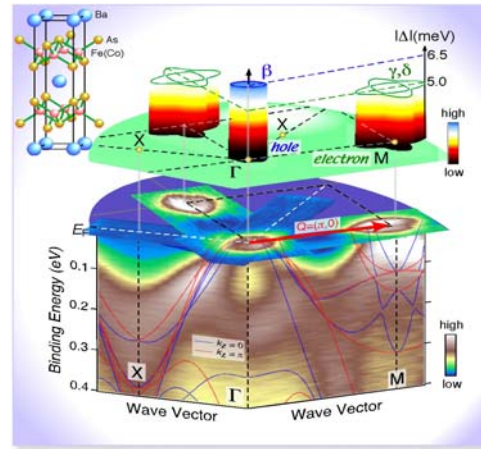


図 1: ARPES で決定した $\text{BaFe}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{As}_2$ の電子構造

は、Fe を Co で置換することによる電子ドーブによるケミカルポテンシャルシフトで解釈できると結論した。

電子ドーブ型 $\text{BaFe}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{Fe}_2\text{As}_2$ において決定したフェルミ面上で、超伝導ギャップの直接観測を行った。その結果、 β ホール面と γ, δ 電子面の両者において、超伝導状態で明確な準粒子ピークと超伝導ギャップを観測する事に成功した。また、同一フェルミ面上で波数依存性の測定を行った結果、実験誤差の範囲で超伝導ギャップに異方性は認められず、ほぼ等方的な s 波超伝導ギャップが開いている事を見出した。また、得られた超伝導ギャップのサイズは、 β 面と $\gamma(\delta)$ 面ともに強結合の値を示し、かつ、 β 面と γ 面が $Q=(\pi, 0)$ ネスティングベクトルでよく繋がる事から、電子ドーブ型鉄系超伝導体においてもホールドーブ型と同様、バンド間散乱が超伝導機構に密接に関連していると結論した。その一方で、バンド間散乱に最も寄与するフェルミ面は、ホールと電子ドーブ型で顕著に異なっていることも明らかになった。

電子ドーブ型の過剰ドーブ領域の非超伝導試料 $\text{BaFe}_{1.7}\text{Co}_{0.3}\text{As}_2$ において、フェルミ面のトポロジーを決定した結果、最適ドーブ試料で存在していた Γ 点中心の β ホール面が、過剰電子ドーブによってほぼ消失している事を見出した。また、電子ドーブによって、M 点の中心の γ, δ 電子面は、さらに拡大している事がわかった。これらの結果から、過剰ドーブ領域における超伝導転移温度の消失は、 Γ と M 点のフェルミ面を繋ぐバンド間散乱の消失に起因すると結論した。

ホールドーブ型 $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ の価電子帯のエネルギーバンド構造をブリルアンゾ

ーン全体に亘って ARPES 測定した。その結果、フェルミ面を形成するすべての鉄 3d バンドは、第一原理バンド計算に比べて約 2 倍程度有効質量が増強されている事がわかった。さらに、フェルミ準位近傍の一部のバンドは約 4 倍程度質量が増強されていることから、質量繰り込み効果には顕著な軌道(運動量)依存性があることを見出した。電子ドープ型の試料においても価電子帯のバンド構造の測定を行い、2-4 倍程度のバンド質量の繰り込みを見出した。これらの実験事実から、鉄系高温超伝導体の電子構造には電子・ホールドープ型の両者において電子相関の効果が大きく影響していると結論した。

・母物質の電子構造

122 系の母物質である BaFe_2As_2 の高分解能 ARPES を行い、磁気/構造転移に伴う電子状態の変化を測定した。その結果、反強磁性状態ではブリルアンゾーンの M 点近傍において電子エネルギーバンドが直線的分散を示すディラックコーンが形成される事を見出した。ディラックコーンの頂点のエネルギー位置 E_b はちょうどフェルミ準位に位置し、またディラックコーンのバンドのフェルミ速度には若干の異方性がある事がわかった。このディラックコーンはネール温度以上では完全に消失することから、反強磁性磁気秩序とディラックコーンの出現が密接に関係していると結論した。また、磁気秩序状態において M 点におけるエネルギーギャップの波数依存性を精密に決定する事に成功した。これらの結果と理論モデルとを比較する事により、 BaFe_2As_2 の磁気秩序相の電子状態はノードスピン密度波状態として良く記述できると結論した。

得られた鉄系超伝導体の電子構造と銅酸化物高温超伝導体の電子構造の相互比較を行った結果、基本的な超伝導機構は両者で共通でスピンの揺らぎを媒介とした超伝導が発現すると結論した。その一方で、鉄系超伝導体ではフェルミ面のネスティング条件がスピン揺らぎに重要であるのに対して、高温超伝導体では、フェルミ面のネスティングは反強磁性にはそれほど重要な役割を果たさないと結論した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 11 件)

- (1) P. Richard, T. Sato, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, Y.-M. Xu, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang, and H. Ding
"Angle-resolved photoemission spectroscopy of the Fe-based $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ high temperature superconductor: evidence for an orbital selective electron-mode coupling"

Phys. Rev. Lett. 査読有り, **102** (2009) 047003.

- (2) Y. Sekiba, T. Sato, K. Nakayama, K. Terashima, P. Richard, J. H. Bowen, H. Ding, Y.-M. Xu, L. J. Li, G. H. Cao, Z.-A. Xu, and T. Takahashi
"Electronic structure of heavily electron-doped $\text{BaFe}_{1.7}\text{Co}_{0.3}\text{As}_2$ studied by angle-resolved photoemission"
New J. Phys. 査読有り, **11** (2009) 025020.
- (3) K. Nakayama, T. Sato, P. Richard, Y.-M. Xu, Y. Sekiba, S. Souma, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang, H. Ding, and T. Takahashi
"Superconducting-gap symmetry of $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ studied by angle-resolved photoemission spectroscopy"
Europhys. Lett. 査読有り, **85** (2009) 67002-1-5.
- (4) 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
"Observation of Dirac Cone Electronic Dispersion in BaFe_2As_2 "
Europhys. Lett. 査読有り, **85** (2009) 67002-1-5.
- (5) K. Terashima, Y. Sekiba, J. H. Bowen, K. Nakayama, T. Kawahara, T. Sato, P. Richard, Y.-M. Xu, L. J. Li, G. H. Cao, Z.-A. Xu, H. Ding, and T. Takahashi
"Fermi surface nesting induced strong pairing in iron-based superconductors"
Proc. Natl. Acad. Sci. 査読有り, **106** (2009) 7330-7333.
- (6) M. Neupane, P. Richard, Z.-H. Pan, Y.-M. Xu, R. Jin, D. Mandrus, X. Dai, Z. Fang, Z. Wang, and H. Ding
"Observation of a Novel Orbital Selective Mott Transition in $\text{Ca}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{RuO}_4$ "
Phys. Rev. Lett. 査読有り, **103** (2009) 097001.
- (7) T. Sato, K. Nakayama, Y. Sekiba, P. Richard, Y.-M. Xu, S. Souma, T. Takahashi, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang, and H. Ding
"Band structure and Fermi surface of an extremely overdoped iron-based superconductor KFe_2As_2 "
Phys. Rev. Lett. 査読有り, **103** (2009) 047002.
- (8) K. Nakayama, T. Sato, Y. Sekiba, K. Terashima, P. Richard, T. Takahashi, K. Kudo, N. Okumura, T. Sasaki, and N. Kobayashi

- "Evolution of pairing-induced pseudogap from superconducting gap in $(\text{Bi, Pb})_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$ "
Phys. Rev. Lett. 査読有り, **102** (2009) 227006.
- (9) Z.-H. Pan, P. Richard, Y.-M. Xu, M. Neupane, P. Bishay, A. V. Fedorov, H. Luo, L. Fang, H.-H. Wen, Z. Wang, and H. Ding
"Evolution of Fermi surface and normal state gap in the chemically substituted cuprates $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{Bi}_x\text{CuO}_{6+d}$ "
Phys. Rev. B 査読有り, **79** (2009) 092597.
- (10) J.-H. Ma, Z.-H. Pan, F. C. Niestemski, M. Neupane, Y.-M. Xu, P. Richard, K. Nakayama, T. Sato, T. Takahashi, H.-Q. Luo, L. Fang, H.-H. Wen, Ziqiang Wang, H. Ding, V. Madhavan
"Coexistence of competing orders with two energy gaps in real and momentum space in high- T_c superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+d}$ "
Phys. Rev. Lett. 査読有り, **101** (2008) 207002-1-4.
- (11) H. Ding, P. Richard, K. Nakayama, K. Sugawara, T. Arakane, Y. Sekiba, A. Takayama, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, Z. Wang, X. Dai, Z. Fang, G. F. Chen, J. L. Luo, and N. L. Wang
"Observation of Fermi-surface-dependent nodeless superconducting gaps in $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ "
Europhys. Lett. 査読有り, **83** (2008) 47001-1-4.

[学会発表] (計 11 件)

- (1) P. Richard
On the Role of Fermi surface Nesting in the Iron-based Superconductor
WPI-AIMR annual workshop, 2010年3月26日, 仙台.
- (2) P. Richard
ARPES studies of FeAs-based compounds
American Physical Society March Meeting, 2010年3月15日, Portland, USA.
- (3) P. Richard
Observation of Dirac Cone Electronic Dispersion in BaFe_2As_2 , 2010年3月15日, Portland, USA.
- (4) P. Richard
ARPES on the new Fe-based superconductors: year 2, 2009年10月23日, Lac Carling, Canada.
- (5) P. Richard
Observation of an overdoped surface state in underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ortho-II

日本物理学会, 2009年9月22日, 盛岡大学、岩手県.

- (6) P. Richard
Observation of an orbital-selective electron-mode coupling in Fe-based high- T_c superconductors
日本物理学会, 2009年9月22日, 盛岡大学、岩手県.
- (7) P. Richard
On the interplay between superconductivity and magnetism in the iron-pnictide superconductors, 2009年9月9日, 東京大学, 東京都.
- (8) P. Richard
Observation of an orbital-selective electron-mode coupling in Fe-based high- T_c superconductors
日本物理学会, 2009年3月30日, 立教大学, 東京都.
- (9) P. Richard
Observation of an orbital-selective electron-mode coupling in Fe-based high- T_c superconductors
American Physical Society March Meeting, 2009年3月19日, Pittsburgh, USA.
- (10) P. Richard
Band structure and Fermi surface of extremely overdoped iron-based superconductors
American Physical Society March Meeting, 2009年3月19日, Pittsburgh, USA.
- (11) P. Richard
Electronic structure of the new Fe-based Scs: an ultra-high resolution ARPES investigation
WPI-AIMR annual workshop, 2009年3月5日, 蔵王, 宮城県.

[その他]
ホームページ
<http://arpes.phys.tohoku.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

リシャール ピアール (RICHARD PIERRE)
東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教
研究者番号: 70513828