

科学研究費補助金研究成果報告書

平成24年 5月12日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2008～2010

課題番号：20684014

研究課題名（和文） 高分解能光電子分光による微小超伝導体測定法の開発

研究課題名（英文） Development of high-resolution photoemission spectroscopy for small-size superconductor

研究代表者

相馬 清吾 (SOUMA SEIGO)

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：20431489

研究成果の概要（和文）：

重要な物性を示すが大型単結晶の育成が困難であったり、劈開面が存在しない物質について、物性発現に深く関わるフェルミ準位近傍の微細電子構造を決定するために、高分解能角度分解光電子法の微小単結晶実験技術・装置を開発した。その結果、鉄系超伝導体やセメント超伝導体などの、研究期間中に新しく発見された物質群について、その基本的な電子構造を明らかにし、さらに超伝導ギャップなどの微細電子構造の決定に成功した。

研究成果の概要（英文）：

To investigate the electronic structure of superconductors which has experimental difficulty such as tiny size of crystal and/or absence of cleavage plane, we have developed experimental techniques and apparatus for high-resolution angle resolved photoemission spectroscopy on a small-size sample. As a result, we have succeeded in directly observing the basal electronic structure and/or superconducting gap for recently discovered exotic compounds such as Fe-pnictide superconductors and cement C12A7 electride.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	9,300,000	2,790,000	12,090,000
2009年度	6,700,000	2,010,000	8,710,000
2010年度	3,200,000	960,000	4,160,000
年度			
年度			
総計	19,200,000	5,760,000	24,960,000

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：(1) 角度分解光電子分光 (2) 超伝導 (3) 強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体とは全く異なる物質で「BCSの壁」を越える超伝導を示した MgB_2 は、銅酸化物では混迷を極めた高温超伝導機構に対して、ある種の方向性を定める物質かもしれないとの期待から、短期間の間に勢力

的な研究が行われた。その結果分かったことは、 MgB_2 の高温超伝導は、B の sp^2 混成軌道で構成された2次元蜂の巣格子における高振動数フォノンが主要因であり、基本的には狭義のBCS超伝導機構の枠組みで説明できるというものであった。 MgB_2 研究の初期の頃から観

測されていた「多重超伝導ギャップ」については、“特異な”超伝導機構を示すものとして様々なモデルが提唱されたが、電子バンド構造の直接観測手段である角度分解光電子分光によって、2次元面内のフォノンと強く結合する・バンドと、比較的高い3次元性を持つ・バンドにおいて、超伝導ギャップの大きさが異なる事が観測され、多重ギャップの起源が、それぞれのバンドにおいて電子フォノン結合の異なる事によることを見出された。これらの研究結果は、角度分解光電子分光による精緻な電子構造研究により、複雑なバンド構造を持っていた物質でも、その超伝導機構を明らかにできるという事を示している。

しかしながら、一方で銅酸化物高温超伝導体の超伝導機構の解明には依然として大きな進展がなく、 MgB_2 と対比すると、この問題の難しさが浮き彫りとなった。銅酸化物の問題を複雑にしているのは、結晶構造やドーピングにより様々な事なる秩序相が見出され、それらと超伝導の関係が明確でないために、クーパー対を結合する相互作用の特定が困難である事である。従って、本研究の開始当初は、高温超伝導機構の解明には、銅酸化物から離れて高温超伝導機構を見つめ直せるような、新しい超伝導体の登場を待っているという状況であった。

2. 研究の目的

新たに超伝導体が発見される時は、必ず多結晶試料についてであり、その次に単結晶合成が行われるが、いつも大きな結晶が得られるとは限らない。角度分解光電子分光法は、物質内電子のエネルギーと運動量を直接的に決定できるという、他の実験手法に無い大きな利点を持つ強力な実験手法であるが、この手法には、研究対象が大型単結晶の育成できる物質に限られ、小さい単結晶の測定では分解能を犠牲にせざるを得ないというような致命的欠陥があり、これが研究の阻害要因となっていた。本申請研究は、角度分解光電子分光法の適用限界を押し広げ、これまで実験の困難であったエキゾチック超伝導体について、また、次々と発見されていく新奇超伝導体について、物性に直接関わるフェルミ準位近傍の微細電子構造を決定し、異常物性の発現機構を解明する事を目的とした。

3. 研究の方法

「高分解能」を損なう事無く、微小単結晶についての角度分解光電子分光実験を可能にするため、東北大学において稼働している超高分解能角度分解光電子分光装置(東北大学)に以下の改良を施した。(1)「高輝度プラズマ放電管」からの紫外光を、測定試料上に集光する光学系を設計・製作を行った(2)

微小試料の清浄試料表面を、より確実に得るための「微小試料へき開機構」「微小試料表面作製・評価機構」を設計・製作を行った。

(3) 劈開の困難な超伝導物質の研究を行うため、単結晶薄膜をMBE成長させる「薄膜作成装置」の建設を行った。(4) 測定効率を上げるために、1個の試料から様々な方位のデータを一挙に測定できる多軸回転試料マニピュレーターの製作を行った。

以上の開発した測定システムを用いて、新たな超伝導体や新規機能物質について、その物性発現に関わる微細電子構造の決定を行った。

4. 研究成果

(1) 鉄系高温超伝導体

本研究が開始される直前の2008年2月に、鉄系高温超伝導体が新たに発見された。一般には超伝導を阻害するはずの鉄元素により超伝導が発現し、その T_c が24Kを越えたという事から、高温超伝導機構の研究にとって極めて高い重要性を持ち、研究展開にも高い緊急性が要求されたことから、本研究の微小試料実験技術を生かして高分解能角度分解光電子分光実験を行った。幾つかの異なるドーピング試料でフェルミ面、バンド構造を決定し、さらに超伝導ギャップの測定を行った。その結果、 Γ 点中心のホール面とM点中心の電子面の間で超伝導クーパー対が散乱される事が、この物質の超伝導にとって非常に重要である事を見出した。さらに、高分解能角度分解光電子分光による系統的な実験で、(i)超伝導ギャップには電子-ホール対称性があること、(ii)フェルミ準位近傍の主な準粒子相互作用は鉄軌道における磁氣的相互作用であること、(iii)超伝導ギャップの波数依存性は拡張s波対称性で良く説明できること、(iv) T_c 以上で擬ギャップが形成されており、その波数依存性は超伝導ギャップと同様のフェルミ面間の散乱で説明できること、などを明らかにした。以上の結果から、鉄系超伝導体の超伝導機構は、鉄3d電子間の反強磁性的な電子散乱が重要であると結論した。また、擬ギャップの波数依存性は、銅酸化物超伝導体とも類似しており、これら2つの物質の高温超伝導は、同一の機構により説明できる可能性がるあることも明らかになった。

(2) セメント超伝導体

開発したプラズマ放電管を中心とした微小スポット光学系により、セメント超伝導体 $12CaO7 \cdot Al_2O_3$ (C12A7)のバルク内電子を励起し、電気伝導に直接関わるフェルミ準位極近傍の電子状態の決定を行った。C12A7は $\sim 7eV$ のギャップを持つ典型的な絶縁体であるにもかかわらず、電子を容易にドーピングすること

ができ、その伝導特性はキャリア量の増大に伴って半導体から縮退状態を経て金属に変わる物質で、2007年には超伝導まで示すことで、その超伝導機構とともに大きく注目されていた。この驚くべき性質は、C12A7が結晶構造内にもつ3次元的に繋がったナノサイズのケージに内包された「ケージ伝導電子」という特徴的な電子状態に由来すると考えられていたが、劈開表面において形成される絶縁層の存在により、電子状態の研究が困難であった。本研究で開発した光学系のバルク敏感性と微小スポットを用いる事で、ケージ伝導電子の直接観測に世界で初めて成功した。高分解能測定により、ケージ伝導電子の微細電子構造を詳しく解析した結果、C12A7の超伝導は、フォノン媒介のintermediate結合のBCS超伝導で良く説明できる事を見出した。この研究成果は、日本物理学会誌の注目論文に選定された。

(3) Pb 薄膜超伝導体

典型的強結合BCS超伝導体であるPbが薄膜化したときに示す、超伝導転移温度の特異な振動現象の起源について電子構造に基づいた理解を得るために、原子層レベルに制御した良質なPb単結晶薄膜を作成し、高分解能ARPESによってバンド構造とフェルミ面の膜圧依存性を決定した。その結果、G点における“M字型”バンドの縁によって形成される電子状態密度のピークが、膜圧方向の量子化によって周期的に現れることが、超伝導転移温度の振動現象と密接に関わる事が明らかになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計20件)

- “Fermi surface dichotomy of the superconducting gap and pseudogap in underdoped pnictides”
Y.-M. Xu, P. Richard, K. Nakayama, T. Kawahara, Y. Sekiba, T. Qian, M. Neupane, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, H.-Q. Luo, H.-H. Wen, G.-F. Chen, N.-L. Wang, Z. Wang, Z. Fang, X. Dai and H. Ding
Nat. Commun., **2** (2011) 392, (査読あり)
- “Direct evidence for cage conduction band in superconducting cement $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ by low-energy high-resolution photoemission spectroscopy”
S. Souma, T. Arakane, T. Sato, T. Takahashi, S. W. Kim, S. Matsuishi, and H. Hosono
J. Phys. Soc. Jpn., **79** (2010) 103704 (editor's choice), (査読あり)
- “Van Hove Singularities as a Result of Quantum Confinement: The Origin of Intriguing Physical Properties in Pb Thin Films”
Yu Jie Sun, S. Souma, Wen Juan Li, T. Sato, Xie Gang Zhu, Guang Wang, Xi Chen, Xu Cun Ma, Qi Kun Xue and Jin Feng Jia, T. Takahashi, and T. Sakurai
Nano Res., **3** (2010) 800, (査読あり)
- “Ultrahigh-resolution spin-resolved photo-emission spectrometer with a mini Mott detector”
S. Souma, A. Takayama, K. Sugawara, T. Sato, T. Takahashi
Rev. Sci. Instrum., **81** (2010) 095101, (査読あり)
- “Direct evidence for the Dirac-cone topological surface states in the ternary chalcogenide TlBiSe_2 ”
T. Sato, K. Segawa, H. Guo, K. Sugawara, S. Souma, T. Takahashi, and Y. Ando
Phys. Rev. Lett., **105** (2010) 136802, (査読あり)
- “Pseudogap of charge-density-wave compound SmNiC_2 studied by high-resolution photo-emission spectroscopy”
T. Sato, S. Souma, K. Nakayama, T. Takahashi, S. Shimomura, and H. Onodera
J. Phys. Soc. Jpn., **79** (2010) 044707, (査読あり)
- “Superconducting-gap symmetry of $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ studied by angle-resolved photoemission spectroscopy”
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
Europhys. Lett. **85** (2009) 67002, (査読あり)
- “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”
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
Phys. Rev. Lett. **102**, (2009) 047003,
(査読あり)
9. “Magnetic Phase Transition of CeSb Studied by Low-Energy Angle-Resolved Photo-emission Spectroscopy ”
A. Takayama, S. Souma, T. Sato, T. Arakane, and T. Takahashi
J. Phys. Soc. Jpn., **78** (2009) 073702,
(査読あり)
 10. “Metal-insulator transition of Na_xWO_3 studied by angle-resolved photoemission spectroscopy”
S. Raji, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, D. D. Sarma, and P. Mahadevan
Mod. Phys. Lett. B **23** (2009) 2819, (査読あり)
 11. “Band structure and Fermi surface of an extremely overdoped iron-based super-conductor KFe_2As_2 ”
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
Phys. Rev. Lett., **103** (2009) 047002,
(査読あり)
 12. “Band structure and Fermi surface of heavy Fermion compounds Ce_2TIn_8 (T=Co, Rh, In) studied by angle-resolved photoemission spectroscopy ”
S. Souma, S. Raji, J. C. Campuzano, T. Sato, T. Takahashi, S. Ohara, and S. Sakamoto
Physica B, **403** (2008) 752, (査読あり)
 13. “Low-energy excitations in graphite studied by ultrahigh-resolution angle-resolved photoemission spectroscopy”
K. Sugawara, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, and H. Suematsu
Physica B, **403** (2008) 1531, (査読あり)
 14. “Quasiparticle lifetime in graphite studied by ultrahigh-resolution ARPES”
K. Sugawara, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, and H. Suematsu
J. Phys. Chem. Solids, **69** (2008) 2996,
(査読あり)
 15. “Cooperative structural and Peierls transition of Indium chains on Si(111) surface”
Y. J. Sun, S. Agario, S. Souma, K. Sugawara, Y. Tago, T. Sato, and T. Takahashi
Phys. Rev. B, **77** (2008) 125115, (査読あり)
 16. “Superconducting Gap and Pseudogap in Iron-Based Layered Superconductor $\text{La}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)\text{FeAs}$ ”
T. Sato, S. Souma, K. Nakayama, K. Terashima, K. Sugawara, T. Takahashi, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono
J. Phys. Soc. Jpn., **77** (2008) 063708,
(査読あり)
 17. “Observation of Fermi-surface-dependent nodeless superconducting gaps in $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ”
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
Europhysics Letters **83** (2008) 47001,
(査読あり)
 18. “Superconducting Gap and Pseudogap in Iron-Based Layered Superconductor $\text{La}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)\text{FeAs}$ ”
T. Sato, K. Nakayama, Y. Sekiba, T. Arakane, K. Terashima, S. Souma, T. Takahashi, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono
J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) Suppl. C, 65-68, (査読あり)
 19. “Fermi arc in the superconducting state of impurity-doped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ ”
T. Sato, K. Terashima, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, T. Yamamoto, and K. Kadowaki
Phys. Rev. B **78** (2008) R100502, (査読あり)
 20. “Direct evidence for hidden one-dimensional Fermi surface of hexagonal $\text{K}_{0.25}\text{WO}_3$ ”
S. Raji, T. Sato, S. Souma, T. Takahashi, D. D. Sarma, Priya Mahadevan, J. C. Campuzano, M. Greenblatt, and W. H. McCarroll
Phys. Rev. B, **77** (2008) 245120, (査読あり)

[学会発表] (計 17 件)

1. 「高分解能光電子分光でみる強相関微細電子構造」
相馬 清吾 (招待講演)
日本物理学会 (第 65 回年次大会), 2011 年 3 月 21 日, 岡山大学
2. 「高分解能光電子分光でみる強相関微細電子構造」
Seigo Souma (招待講演)
The 14th Hiroshima international Symposium on Synchrotron Radiation, 2011 年 3 月 5 日, 広島大学
3. 「Spin-resolved ultrahigh-resolution ARPES study of Rashba effect on semimetal surface」
Seigo Souma (招待講演)
The 1st GCOE international Symposium, 2011 年 2 月 19 日, 東北大学
4. 「Ultrahigh-resolution spin-resolved ARPES of novel low-dimensional systems」
Seigo Souma (招待講演)
Electronic, transport, and optical properties of low-dimensional systems (WS10-ETOLDS), 2010 年 5 月 31 日, バレンシア, スペイン
5. 「バルク敏感スピン分解超高分解能光電子分光装置の開発と強相関化合物の電子構造研究」
相馬 清吾 (招待講演)
新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ, 2009 年 12 月 26 日, 岡山大学
6. 「Development of bulk-sensitive spin-resolved ultrahigh-resolution photoemission spectrometer」
Seigo Souma (招待講演)
LEPES2009 (UVSOR Workshop on Low-Energy Photoemission of Solids using Synchrotron Radiation), 2009 年 10 月 4 日, UVSOR, 岡崎
7. 「一次元 In 鎖の金属絶縁体転移の起源: 角度分解光電子分光」
相馬 清吾 (招待講演)
第一回界面科学研究会, 2008 年 12 月 19 日, 岡山大学
8. 「鉄ニクタイト超伝導体の高分解能角度分解光電子分光」
相馬 清吾 (招待講演)
9. 「High-resolution ARPES of novel superconductors」
Seigo Souma (招待講演)
Fudan-Tohoku workshop, 2008 年 11 月 12 日, 復旦大学, 上海

他 8 件

[図書] (計 0 件)

[
産業財産権]
○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

相馬 清吾 (SOUMA SEIGO)
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: 20431489