

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24740215

研究課題名(和文) 角度分解光電子分光による鉄系超伝導体の超伝導ギャップ対称性と擬ギャップ相図の解明

研究課題名(英文) Angle-resolved photoemission spectroscopy study of superconducting mechanism and electronic phase diagram in iron-based superconductors

研究代表者

中山 耕輔 (NAKAYAMA, Kosuke)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：40583547

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：鉄系超伝導体における超伝導機構を明らかにする目的で、超高分解能光電子分光装置の改良を行った。改良した装置を用いて、結晶構造やキャリア量の異なる鉄系超伝導体において電子状態を決定した。その結果、様々な物質で磁気的な相互作用によって超伝導が生じていることを示唆する結果を得た。また、電子相図の物質・キャリア量依存性について新たな知見を得た。鉄系超伝導体の薄膜作成も行い、キャリア量を制御する手法を開発して、高温超伝導を発現させることに成功した。

研究成果の概要(英文)：In order to clarify the superconducting mechanism of iron-based superconductors, we have improved an ultrahigh-resolution photoemission spectrometer. By using this apparatus, we have performed systematic photoemission spectroscopy study of the electronic structure in various iron-based superconductors. The obtained results suggest an important role of spin fluctuations for the superconductivity. Our results also provide new insights into the electronic phase diagrams of iron-based superconductors. Besides performing photoemission, we have fabricated thin films of iron selenide and succeeded in converting non-superconducting multilayer films into high-temperature superconductors as a consequence of successful electron doping.

研究分野：光電子固体物性

キーワード：光電子分光 高温超伝導 鉄系超伝導体

### 1. 研究開始当初の背景

鉄系高温超伝導体の発見以来、超伝導機構の解明に直結する微細電子構造の決定が最重要課題となっている。角度分解光電子分光法 (ARPES) は、電子構造を直接決定できる強力な実験手法であるが、様々な障害により鉄系超伝導体の系統的な研究が困難とされてきた。

### 2. 研究の目的

本研究では ARPES 装置の励起光源系等の改良を行うことで困難を克服し、超伝導ギャップ対称性をはじめとする微細電子構造を、励起エネルギー・ドーピング量・物質依存性という観点から系統的に測定し、鉄系超伝導体の超伝導機構を総合的に解明することを目的とする。

### 3. 研究の方法

(1) 鉄系超伝導体の系統的な ARPES 研究を遂行する上での困難を克服するため、放電管の改良を行い、励起光エネルギーを変化させた超高分解能 ARPES 測定を実現する。また、超高分解能 ARPES 装置自体の改良も推し進める。

(2) 改良した装置を用いて、様々な鉄系超伝導体のフェルミ面、バンド分散、超伝導ギャップ対称性、擬ギャップの有無等を高精度で決定し、超伝導機構や電子状態と  $T_c$  の関係を明らかにする。

### 4. 研究成果

(1) 励起光源系の希ガス流入ラインを改良し、He や Xe 等の希ガスから放出される複数の紫外光を自在に切り替えた励起エネルギー可変測定を可能にした。また、光源の真空排気系を改良することで超高真空化を実現し、試料表面の劣化速度を抑え、これにより実験効率と実効的なエネルギー分解能を向上させた。また、新型の試料基板の設計や液体 He 循環機構の改良を行い、極低温で長時間安定して測定することを可能にした。

(2) 超高分解能 ARPES 装置の試料輸送機構を改良し、鉄系超伝導体の薄膜を作成することが可能な MBE 装置と連結させた。これにより、作成した鉄系超伝導体薄膜のその場 ARPES 測定を可能にした。

(3) 改良した装置と放射光を併用して、最適ドーピング  $Ba_{0.6}K_{0.4}Fe_2As_2$  と  $NaFe_{1-x}Co_xAs$  のバルク電子状態を決定し、各フェルミ面で開く超伝導ギャップを高精度で決定した。また、 $T_c$  以下でバンド構造に異常を観測し、その波数依存性とエネルギースケールから、電子が反強磁性的な相互作用を強く受けていることを明らかにした。以上の結果から、反強磁性揺らぎが超伝導に重要な役割を果たしていることを示唆した。

(4) 過剰ドーピング  $Ba_{0.1}K_{0.9}Fe_2As_2$  の超高分解能 ARPES を行い、超伝導ギャップを三次元的な波数の関数として決定した。その結果、M 点近傍でギャップノードを直接観測することに成功した。最適ドーピング組成とはノードの有無という大きな違いはあるものの、対称性という観点からは両者とも  $s_{\pm}$  波で説明できることから、超伝導機構自体は共通している可能性を示唆した。

(5)  $Ba(Fe,Ru)_2As_2$  の電子状態の励起エネルギー依存性を測定することで、フェルミ面の面外ワーピングが強いことを見出し、輸送特性などの物性との関係について重要な知見が得られた。また、超伝導ギャップの直接観測に成功し、その波数依存性が反強磁性相互作用を仮定した超伝導機構で説明できることを見出した。

(6)  $Fe(Te,Se)$  における電子状態の Se 濃度依存性を決定した。その結果、磁気秩序相から離れるにつれて、準粒子の寿命が長くなっており、 $T_c$  の上昇と相関があることを見出した。また、Se 濃度の増加に伴って有効質量が増大することから、FeSe 側において電子相関効果が重要になることを示唆した。

(7) FeSe において、回転対称性の破れを伴う電子ネマティック状態が実現することを初めて明らかにした。磁気秩序が存在しないにも拘らず、ネマティック秩序に由来する軌道分裂が大きいことから、軌道秩序によってネマティック相が生じている可能性を示唆した。また、Co 置換効果を測定し、電子相図を決定した。

(8) 鉄系高温超伝導体と同一の結晶構造を持つ、初めてのコバルト系超伝導体  $LaCo_2B_2$  の励起エネルギー可変 ARPES を行い、バンド構造やフェルミ面の三次元性など、超伝導機構を理解するうえで基礎となる電子状態を解明した。

(9) MBE 法を用いて高品質の FeSe 薄膜を作成することに成功した。基板応力を利用して圧力を印加することで、超伝導の圧力依存性の起源について知見を得た。特に、圧力に依存したフェルミ面形状とトポロジーの変化を直接観測することに成功した。

(10)  $SrTiO_3$  基板上に作成した FeSe 超薄膜のキャリア量を制御する新たな手法を開発した。これにより、これまで超伝導にならないと考えられていた多層膜において高温超伝導を発現させることに成功した。また、電子相図のドーピング量・膜厚依存性を解明し、母相の揺らぎが超伝導に重要な役割を果たすことを示唆した。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計9件)

Y. Miyata, K. Nakayama, K. Sugawara, T. Sato, and T. Takahashi, “High-temperature superconductivity in potassium-coated multilayer FeSe films”, *Nature Mater.*, *in press*, 査読有.

K. Nakayama, Y. Miyata, G. N. Phan, T. Sato, Y. Tanabe, T. Urata, K. Tanigaki, and T. Takahashi, “Reconstruction of Band Structure Induced by Electronic Nematicity in an FeSe Superconductor”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 113, pp.237001-1-5, 2014, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevLett.113.237001

E. Ieki, K. Nakayama, Y. Miyata, T. Sato, H. Miao, N. Xu, X.-P. Wang, P. Zhang, T. Qian, P. Richard, Z.-J. Xu, J. S. Wen, G. D. Gu, H. Q. Luo, H.-H. Wen, H. Ding, and T. Takahashi, “Evolution from incoherent to coherent electronic states and its implications for superconductivity in  $\text{FeTe}_{1-x}\text{Sex}$ ”, *Phys. Rev. B*, Vol. 89, pp. 140506(R)-1-5, 2014, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevB.89.140506

N. Xu, P. Richard, X. Shi, A. van Roekeghem, T. Qian, E. Razzoli, E. Rienks, G.-F. Chen, E. Ieki, K. Nakayama, T. Sato, T. Takahashi, M. Shi, and H. Ding “Possible nodal superconducting gap and Lifshitz transition in heavily hole-doped  $\text{Ba}_{0.1}\text{K}_{0.9}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ”, *Phys. Rev. B*, Vol. 88, pp. 220508(R)-1-5, 2013, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevB.88.220508

R. Ang, K. Nakayama, W.-G. Yin, T. Sato, H. Lei, C. Petrovic, and T. Takahashi, “Electronic structure of the iron-chalcogenide  $\text{KFeAgTe}_2$  revealed by angle-resolved photoemission spectroscopy”, *Phys. Rev. B*, Vol. 88, pp. 155102-1-5, 2013, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevB.88.155102

R. Ang, Y. Miyata, E. Ieki, K. Nakayama, T. Sato, Y. Liu, W. J. Lu, Y. P. Sun, and T. Takahashi, “Superconductivity and bandwidth-controlled Mot metal-insulator transition in  $1\text{T-TaS}_{2-x}\text{Sex}$ ”, *Phys. Rev. B*, Vol. 88, pp. 115145-1-5, 2013, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevB.88.115145

N. Xu, P. Richard, X.-P. Wang, X. Shi, A. van Roekeghem, T. Qian, E. Ieki, K. Nakayama, T. Sato, E. Rienks, S. Thirupathaiah, J. Xing, H.-H. Wen, M. Shi, T. Takahashi, and H. Ding, “Angle-resolved photoemission observation of isotropic superconducting gaps in isovalent Ru-substituted  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.75}\text{Ru}_{0.25})_2\text{As}_2$ ”, *Phys. Rev. B*, Vol. 87, pp. 094513-1-5, 2013, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevB.87.094513

R. Ang, Y. Tanaka, E. Ieki, K. Nakayama, T. Sato, L. J. Li, W. J. Lu, Y. P. Sun, and T. Takahashi, “Real-Space Coexistence of the Melted Mott State and Superconductivity in Fe-substituted  $1\text{T-TaS}_2$ ”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 109, pp. 176403-1-5, 2012, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevLett.109.176403

K. Nakayama, E. Ieki, Y. Tanaka, T. Sato, T. Takahashi, T. Kuroda, H. Mizuguchi, S. W. Kim, and H. Hosono, “Angle-resolved photoemission spectroscopy of Co-based boride superconductor  $\text{LaCo}_{1.73}\text{Fe}_{0.27}\text{B}_2$ ”, *Phys. Rev. B*, Vol. 86, pp. 14503-1-5, 2012, 査読有.  
DOI:10.1103/PhysRevB.86.014503

[学会発表](計21件)

中山耕輔, “FeSe 超薄膜の高分解能 ARPES”, 日本物理学会第70回年次大会, 早稲田大学, 東京, 2015年3月21日.

G. Phan, “High-resolution ARPES study of  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Se}$ ”, 日本物理学会第70回年次大会, 早稲田大学, 東京, 2015年3月21日.

中山耕輔, “鉄カルコゲナイド超伝導体の高分解能 ARPES”, 第28回日本放射光学会年会, 立命館大学, 滋賀, 2015年1月11日.

中山耕輔, “FeSe 単結晶の高分解能 ARPES”, 日本物理学会2014年秋季大会, 中部大学, 愛知, 2014年9月9日.

宮田康成, “単層および多層 FeSe 薄膜の高分解能 ARPES”, 日本物理学会2014年秋季大会, 中部大学, 愛知, 2014年9月9日.

G. Phan, “Strain effects on the electronic structure of FeSe”, 日本物理学会2014年秋季大会, 中部大学, 愛知, 2014年9月9日.

中山耕輔, “FeSe 薄膜の電子状態: 高分解能 ARPES”, 日本物理学会第69回年次大会, 東海大学, 神奈川, 2014年3月28日.

宮田康成, “FeSe/SrTiO<sub>3</sub> の高分解能 ARPES”, 日本物理学会第69回年次大会, 東海大学, 神奈川, 2014年3月28日.

G. Phan, “High-resolution ARPES of

FeSe film”, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学, 神奈川, 2014 年 3 月 28 日.

中山耕輔, “NaFeAs 系超伝導体の高分解能 ARPES”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学, 徳島, 2013 年 9 月 26 日.

家城英, “Se を過剰置換した  $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$  の高分解能 ARPES”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学, 徳島, 2013 年 9 月 26 日.

宮田康成, “電子ドーピング型 LiFeAs の高分解能 ARPES”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学, 徳島, 2013 年 9 月 26 日.

K. Nakayama, “High-resolution ARPES study of iron-based superconductors”, ICC-IMR international workshop, Sendai, Japan, 23 July 2013.

K. Nakayama, “Evolution of low-energy electronic states in an iron-chalcogenide superconductor studied by high-resolution ARPES”, Spectroscopy of Novel Superconductors 2013, Berkeley, USA, 24 June 2013.

Y. Miyata, “Doping evolution of electronic states in LiFeAs studied by high-resolution ARPES”, Spectroscopy of Novel Superconductors 2013, Berkeley, USA, 24 June 2013.

家城英, “ $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$  超伝導体の高分解能 ARPES”, 日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学, 広島, 2013 年 3 月 26 日.

宮田康成, “Co 置換 LiFeAs 超伝導体の高分解能 ARPES”, 日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学, 広島, 2013 年 3 月 29 日.

中山耕輔, “オーバードープ  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  の超伝導ギャップ: 高分解能 ARPES”, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 横浜国立大学, 神奈川, 2012 年 9 月 20 日.

家城英, “新型コバルト系超伝導体  $\text{LaCo}_2\text{B}_2$  の高分解能 ARPES”, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 横浜国立大学, 神奈川, 2012 年 9 月 20 日.

家城英, “ $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$  の電子状態の組成依存性: 高分解能 ARPES”, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 横浜国立大学, 神奈川, 2012 年 9 月 20 日.

④ K. Nakayama, “Low-energy electronic structure in iron-based superconductors studied by ARPES”, WPI-AIMR mini workshop “A route to high  $T_c$  superconductivity”, Sendai, Japan, 3 September 2012.

{ その他 }

ホームページ等

<http://arpes.phys.tohoku.ac.jp/>

## 6 . 研究組織

### (1) 研究代表者

中山 耕輔 (NAKAYAMA, Kosuke)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号 : 40583547