

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26610094

研究課題名(和文)レグットモード等を利用した多ギャップ超伝導体ギャップ構造研究の新しい方法論の構築

研究課題名(英文)Construction of new methodology of studying the structure of superconducting gap of multigapped superconductors using Leggt mode etc

研究代表者

前田 京剛 (MAEDA, Atsutaka)

東京大学・大学院総合文化研究科・教授

研究者番号：70183605

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：パルスレーザー堆積法で鉄カルコゲナイド $\text{FeSe}(1-x)\text{Te}_x$ エピタキシャル薄膜を作製し、バルクでは相分離のため合成不可能な組成領域も含めて、全組成領域の試料を作成することに成功し、臨界温度の上昇にも成功した。これら一連の試料のメリットを生かし、種々の共同研究を含む系統的物性追跡を行った。その中で、時間領域THz分光で、レグットモードの端緒となる信号をとらえることができ、現在さらに詳細な研究を継続している。また、理論的に、多成分超伝導体の新しい性質を予言した。一方磁束量子のフローからは、多成分渦の解離に相当する現象を見出すことはできず、これは最新の理論的予言とも一致する。

研究成果の概要(英文)：Using Pulsed Laser Deposition technique, we succeeded in synthesizing a series of epitaxial films of $\text{FeSe}(1-x)\text{Te}_x$ including the composition range where bulk crystals are not available because of the phase separation. We also succeeded in increasing T_c among these series of film samples. Utilizing the merit of our series of samples, we have performed the investigation of various physical properties, part of which is in collaborations with other research groups, as a function of Te content, x. Among the results, we obtained signals, probably corresponding to the Leggett mode, details of which are now under investigation. We also propose several new aspects of multigapped superconductors theoretically. As for the flux flow, we did not find any signature of the dissociation of the components of multiple gapped superconductivity, which is in agreement with the latest theoretical prediction.

研究分野：固体物理学

 キーワード：鉄カルコゲナイド パルスレーザー蒸着 多ギャップ超伝導 相分離 磁束フロー レグットモード
時間領域THz分光 渦の解離

1. 研究開始当初の背景

鉄系高温超伝導体(FSC)の発見により多ギャップ超伝導体が改めて大きな注目を集めるようになった。FSCの最大の関心事は超伝導ギャップ構造とペアリング機構であり、これまで精力的に実験研究が行われたが、物質依存の多様性が強調されるのみで、ペアリング機構については、現在に至って明確なコンセンサスは無い。その理由は、実験的に導入されている手法の多くが「古典的」であることによると我々は考える。多ギャップ超伝導体に対しては、多ギャップでないとは存在しない現象に注目し、それを利用しなければ、明確なコンセンサスは得られないと我々は考えた。そこで我々は、多ギャップ超伝導特有の以下の2現象に注目した。一つはレグレット・モード(LM)と呼ばれる、異なる秩序パラメーターの位相の相対的な集団運動であり、もう一つは多成分の磁束量子である。LMについては、最初の理論提案は古いが、理論的にはその存在は確立している。従って、FSCのギャップ構造の理解にも新しい視点を導入する可能性が生じる。2,3,5バンドいずれの場合もLMはラマン活性である。また、多ギャップ超伝導体/超伝導体の接合、あるいは多ギャップ層状超伝導体の固有接合等において、LMとジョセフソンプラズマの相互作用から、電流電圧測定に特徴的な構造が現れる。実験的には、2例の実験報告(ラマン散乱、点接触分光)がMgB₂であるのみで、FSCでは皆無である。もう一方の超伝導体の多成分磁束量子については数件の理論研究があるのみで、高駆動力下や不純物周辺では複数の成分が分離することが理論的に示唆されていたが、実験例は皆無であった。

2. 研究の目的

以上を踏まえ、本研究では、LMや多成分磁束量子などについて、(1)FSCで後述の実験・理論研究からその詳細を明らかにし、(2)その観点から、FSCのギャップ構造の理解を再考し、(3)それらを踏まえて、可能であれば、多ギャップ超伝導体のギャップ構造解明のための新しい方法論を創造する。これにより予想される結果と意義としては、(1)FSCのギャップ構造をめぐる議論の疑問点がLMという観点から整理されれば、FSCのペアリング機構をめぐる議論の混乱の解消につながる。(2)多ギャップ超伝導体の超伝導ギャップ構造解明のための新しい方法論が確立すれば、ちょうど、d波超伝導に対して位相敏感な実験が果たしたのと同様なインパクトを与え、その後の、多ギャップ超伝導研究の雛形になるものと期待された。

3. 研究の方法

まず、当初企画した研究方法は以下の通りである。(1)5バンド超伝導体のレグレット・モード(LM)の詳細、接合の電流電圧特性

に与える影響、さらに多成分磁束量子が解離する新たなケースなどについて理論的に詳細なケーススタディーを行う。(2)鉄系超伝導体 Fe(Se,Te)バルク単結晶のラマンスペクトルでLMの観測を試み、詳細なデータ収集から、モードの性質を明らかにする。(3)Fe(Se,Te)/CeO₂/Pb接合を作製し、マイクロ波照射下で電流電圧特性を測定し、LMとジョセフソンプラズマの相互作用によると考えられる構造を検出する。(4)これらの結果から、LMと、多ギャップ超伝導体のギャップ構造の関係を明らかにする。(5)欠陥を導入したFe(Se,Te)薄膜試料に磁束量子を導入し、欠陥にトラップされた磁束量子をマイクロ波顕微鏡で観察し、磁束量子の解離の検出を試みる。そして、(4)の結果をもとに、逆に、この現象が、超伝導ギャップの構造とどのように関係しているのかを明らかにする。(6)以上の結果をもとに、多ギャップ超伝導体のギャップ構造研究の方法論を創造する。

これに対して、研究期間に入ると、実際当初予期せぬ成果が得られたりしたこともあり、実際に行ったことは上述の内容と異なる部分もあり、それは次項でまとめて記すことにする。

4. 研究成果

(1)パルスレーザー堆積(PLD)法で、鉄カルコゲナイド、FeSe_{1-x}Te_xエピタキシャル薄膜を作製し、バルクでは相分離のために合成不可能な0.1<x<0.5の組成領域も含めて、0から1までのすべてのxの値に対してエピタキシャル薄膜試料を作製することに成功した。同様のことを、基板をCaF₂(フッ化カルシウム)及びLaAlO₃(LAO)(アルミン酸ランタン)に対して確かめた。この両者のデータ(X線回折による構造データ、電気抵抗率の温度依存性等)の比較から、以下の共通の振舞いが

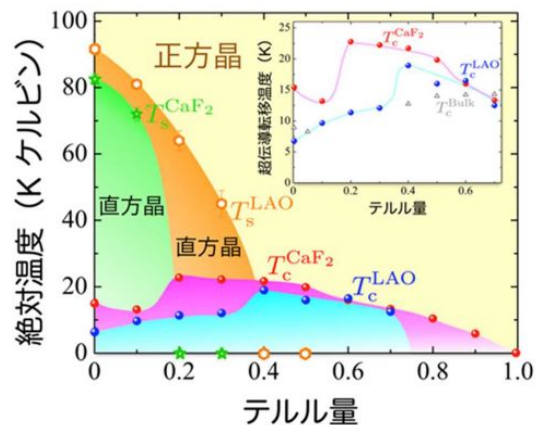


図1 LaAlO₃, CaF₂上に作製したFeSe_{1-x}Te_xエピタキシャル薄膜の温度-組成相図。T_c, T_sは、それぞれ、超伝導臨界温度、構造相転移温度を表し、"Bulk"はバルク試料を表す。(発表論文の図を軸の文字を日本語に変えたもの)

得られた。(a)超伝導臨界温度は、ある Te 量 x_c のところで跳びを示し、その直後に最大となる。特に CaF2 基板の膜では T_c が常圧下で 23.5K になり、これはバルク結晶における常圧下の T_c の 1.5 倍である。(b)Te の置換とともに構造相転移の温度が低下してゆき、構造相転移が消失するところが、 T_c の跳びが起こる Te 組成と一致する。したがって、構造相転移を抑制することのできる基板材料を選択できれば、この方法でもさらに T_c を上げることが可能である。

(2) 上述の成果により、鉄カルコゲナイド $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ 系で Te 量を連続的に変化させることによる、物性の連続的追及が初めて可能になったため、我々自らも含めて、他研究グループとの共同研究を系統的に展開した。具体的には、

上部臨界磁場、磁場中超伝導転移は x_c 以下、以上で大きく異なり、 x_c 以上ではいわゆるブロードニングが観測され、かつ、磁場を膜（鉄カルコゲナイド面）に平行にかけた場合の臨界磁場が T_c 近傍で大きく上昇する。このように、構造相転移が消失することにより、2 次元的側面が大きくなり、それが超伝導状態の物性にも反映されている。

マイクロ波伝導度で超伝導ゆらぎを測定すると x_c の上下で定性的な変化は見られず、いずれも 3 次元 XY ゆらぎであった。ただし、 x が小さいほうがより高い温度からゆらぎが現れはじめる。これは、Te 量の変化によるフェルミ面の大きさの変化と関係していると思われる。

電界効果トランジスタを作製し（東大・総合文化・上野研究室）、電界効果エッチングで膜厚を薄くしてゆくと、基板の種類によらず T_c が 40 K になることが分かった。また、この場合、臨界膜厚は存在しない。これは、ひずみの有無にかかわらず、表面に十分はキャリアドープがなされれば、40 K の T_c が普遍的に実現することを示している。

FeSe において光学伝導度を測定した（大阪大学田島研究室）。構造相転移温度 T_s 以下の温度では、他の FSC シリーズと異なり、電子励起スペクトルにギャップは見られず、 T_s 以下の温度で徐々に電子励起スペクトルが変化してゆくことが分かった。また、同温度領域でフォノンモードに以上が見られることから、格子と軌道の自由度の強い結合が浮き彫りになり、構造相転移は軌道由来であることが示唆された。現在、Te が部分置換された組成のエピタキシャル薄膜についても同様の測定を実施中である。

角度分解光電子分光スペクトルを測定している（東北大学・高橋 / 佐藤研究室）。現在超伝導ギャップの情報も得られつつあり、詳細は解析中である。

高強度 THz パルス当てたポンププローブ分光を行った（東京大学・島野研究室）。FeSe においては、 T_c よりもかなり高い温度からポ

ンププローブ信号が観測され、Te を置換してゆくと、この信号が急速に抑えられてゆく。現在詳細を解析中であり、この中に LM の情報も入っていると考えられる。

(3) このように、相分離を抑制したエピタキシャル薄膜の作製に成功し、それに伴って臨界温度 T_c の上昇が実現したという成果が得られたため、実験面では、ほぼすべてのアクティビティーが、上述(2)(3)のことに使われ、当初計画の多くが、研究期間に実行できなかった。しかし、時間領域の THz ポンププローブ分光は、周波数領域でのラマン分光と等価な情報を含んでおり、その意味で本研究計画で当初狙った芽をつかむことができたと考えている。上述のように、この研究については、現在も継続中である。

(4) 種々の鉄系超伝導体単結晶について、磁束量子を小振幅の交流で駆動した時のフロー（磁束フロー、フラックス・フロー）を系統的に測定した。また、既存の理論を 2 バンド系に拡張した理論を構築し、それを用いて実験結果から超伝導ギャップ構造を求めることに成功した。それによると、磁束量子の解離を示唆するような結果は何もなく、これはごく最近の理論研究（磁束量子の解離は起こらないとするもの）と整合する。

(5) 理論研究では、多成分超伝導において、成分間に斥力が働く場合、位相差が非自明な値をとり、磁場がなくても時間反転対称性の破れた状態が現れる。この特異な超伝導状態について、以下の結果を得た。

時間反転対称性の破れた状態を実験的に確認できる方法の一つとして、従来型の単一成分超伝導とのジョセフソン接合を考えた。ジョセフソン超伝導臨界電流が電流方向によって異なることを理論的に明らかにした。すでに発表されている FSC の実験結果との比較を通じて、時間反転対称性の破れた超伝導状態が鉄系超伝導体で既に実現している可能性を指摘した。時間反転対称性の破れた超伝導状態はカイリティの異なる状態の 2 重縮退を持つ。それらが SQUID 構造に同時に存在する場合、SQUID に囲まれた磁束が磁束量子の分数分になることを理論的に解明した。SQUID の磁化曲線に分数磁束プラトーが複数個現れ、それぞれの値は物質パラメーターや温度によって変わり得る。しかし、プラトー間の和が磁束量子になることも突き止めた。この性質は、ここで議論している新規な超伝導状態の確認に役立つ。

以上の二つの理論的提案はいずれも位相敏感な特性であり、超伝導位相の操作、それを利用した他ギャップ超伝導体のギャップ構造の研究に新しい方向を示した。

(6) 以上総括すると、上述の事情により、当初目論んだ LM や磁束量子の解離を利用した、多ギャップ超伝導体のギャップ構造決定の

方法論構築は果たされていないが、前者については、時間領域 THz ポンププローブ分光の共同研究を継続中であり、そこから端緒がとらえられると考える。また後者については、本計画申請以降に行われた新しい理論研究により、磁束量子の解離そのものが起こらないであろうと考えられるようになり、我々の磁束フローの研究は、それと整合する形になった。加えて、理論研究でも、さらに新しい方法論を提案することができ、今後、実験的検証・照合が行われることになる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 25 件)(うち、14 件抜粋)

Gradual Fermi-surface modification in orbitally ordered state of FeSe revealed by optical spectroscopy: Phys. Rev. B95 (2017) 184502. 査読有
M. Nakajima, K. Yanase, F. Nabeshima, Y. Imai, A. Maeda, S. Tajima.

Control of structural transition in FeSe_{1-x}Te_x thin films by changing substrate materials: Scientific Reports 7 (2017) 46653. 10.1038/srep46653. 査読有
Y. Imai, Y. Sawada, F. Nabeshima, D. Asami, M. Kawai, A. Maeda.

Transport properties of FeSe_{1-x}Te_x thin films under magnetic fields up to 8 T: Physica C 530 (2016) 27-30. 査読有
Y. Sawada, F. Nabeshima, D. Asami, R. Ogawa, Y. Imai, A. Maeda.
<https://doi.org/10.1016/j.physc.2016.02.020>

Origin of lattice compression of FeSe_{1-x}Te_x thin films on CaF₂ substrates: AIP Advances 6 (2016) 095314/1-7. 査読有
I. Tsukada, A. Ichinose, F. Nabeshima, Y. Imai, A. Maeda.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4963646>

Investigation of Transport Properties for FeSe_{1-x}Te_x Thin Films under Magnetic Fields: J. Phys. Soc. Jpn. 85 (2016) 073703/1-4. 査読有
Y. Sawada, F. Nabeshima, Y. Imai, A. Maeda.
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.073703>

Suppression of phase separation and giant enhancement of superconducting transition temperature in FeSe_{1-x}Te_x thin films: Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 112 (2015) 1937-1940. 査読有
Y. Imai, Y. Sawada, F. Nabeshima, A. Maeda.
10.1073/pnas.1418994112

Exceptional suppression of flux-flow resistivity in FeSe_{0.4}Te_{0.6} by back-flow from excess Fe atoms and Se/Te substitutions: Phys. Rev. B 91 (2015) 054510/1-6. 査読有
T. Okada, F. Nabeshima, H. Takahashi, Y. Imai, A. Maeda.
10.1103/PhysRevB.91.054510

Gap Structure Seen in Magnetic Penetration Depth and Flux-Flow Resistivity of 122 Fe-Based Superconductors: Quantum Matter, 4 (2015) 308-313. 査読有
A. Maeda, T. Okada, H. Takahashi, F. Nabeshima, Y. Imai, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, M. Nakajima, A. Iyo, H. Eisaki.
<https://doi.org/10.1166/qm.2015.1197>

Crossover from hole- to electron-dominant regions in iron-chalcogenide superconductors induced by Te/Se substitution: Jpn. J. Appl. Phys. 54 (2015) 043102/1-5. 査読有
I. Tsukada, F. Nabeshima, A. Ichinose, S. Komiya, M. Hanawa, Y. Imai, A. Maeda.
<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.043102>

Fractional Flux Plateau in Magnetization Curve of Multi-Component Superconductor Loop: Phys. Rev. B vol. 92, (2015) 214516. 査読有
Z. Huang, X. Hu.
10.1103/PhysRevB.92.214516

Synthesis, characterization, Hall effect and THz conductivity of epitaxial thin films of Fe chalcogenide superconductors: Appl. Sur. Sci. 312 (2014) 43-49. 査読有
A. Maeda, F. Nabeshima, H. Takahashi, T. Okada, Y. Imai, I. Tsukada, M. Hanawa, S. Komiya, A. Ichinose.
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2014.02.124>

Induced lattice strain in epitaxial Fe-based superconducting films on CaF₂ substrates: A comparative study of the microstructures of SmFeAs(O,F), Ba(Fe,Co)₂As₂, and FeTe_{0.5}Se_{0.5}: Appl. Phys. Lett. 104 (2014) 122603/1-5. 査読有
A. Ichinose, I. Tsukada, F. Nabeshima, Y. Imai, A. Maeda, F. Kurth, B. Holzapfel, K. Iida, S. Ueda, M. Naito.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4869961>

Point-contact Andreev-reflection spectroscopy in Fe(Te,Se) films: multiband superconductivity and electron-boson coupling: Supercond. Sci. Technol. 27 (2014) 124014/1-8. 査読有
D. Daghero, P. Pecchio, G. Ummarino, F. Nabeshima, Y. Imai, A. Maeda, I. Tsukada, S. Komiya, R. Gonnelli.
doi:10.1088/0953-2048/27/12/124014

Josephson Effects in Three-Band Superconductors with Broken Time-Reversal Symmetry: Appl. Phys. Lett. vol. 104, (2014) 162602. 査読有
Z. Huang, X. Hu.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4872261>

〔学会発表〕(計 98 件)
(うち招待講演のみから抜粋)

A. Maeda

“ Flux Flow of Iron-based Superconductors -Novel Gap Spectroscopy and Universal large Dissipation- ”
3rd. TOYOTA RIKEN International Workshop "Dynamics of Electron Vortex and Spin Vortex"
(July 1, 2016, The Toyota Commemorative Museum of Industry and Technology, Nagoya, Aichi, Japan)

A. Maeda

“ Superconductivity fluctuation of Fe chalcogenide epitaxial films ”
Energy Materials and Nanotechnology (EMN) Dalian Meeting
(July 27, 2016, Swish Hotel Dalian, Dalian, China)

A. Maeda

“ Huge superconductivity fluctuation in Fe(Se,Te) films ”
5th International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM2016)
(April 26, 2016, Liberty Hotels Lykia & Sentido Lykia Resorts Spa, Fethiye, Turkey)

A. Maeda,

“ Complete phase diagram and giant increase of T_c in FeSe_{1-x}Te_x thin films ”
11th International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications
(June 16, 2015, Hyatt Regency Vancouver, BC, Canada)

前田京剛

“ 準安定相に着目して合成した超伝導体の

物性 ”

京都大学基礎物理学研究所研究会「多自由度と相関効果が生み出す超伝導の新潮流 ~ BCS から BEC まで ~ 」
(2015 年 6 月 10 日(水), 京都大学 湯川記念館パナソニック国際交流ホール, 京都府京都市)

X. Hu

“ Novel Vortex States and Josephson Effects in Multiband Superconductors ”
International Workshop on Vortex workshop (May 10-15, 2015, Madrid, Spain)

A. Maeda, T. Okada, H. Takahashi, F. Nabeshima, Y. Imai

“ Flux Flow of Fe-based Superconductors -Novel Gap Spectroscopy and Universal Large Dissipation- ”
27th International Symposium on Superconductivity (ISS 2014)
(November 25, 2014, Tower-Hall Funabori, Koto-ku, Tokyo, Japan)

前田京剛

“ 多バンド超伝導体の量子渦 ”
日本物理学会 2014 年秋季大会, 9pBA-7
(2014 年 9 月 9 日, 中部大学 春日井キャンパス, 愛知県春日井市)

〔図書〕(計 1 件)

(1) 前田京剛, 「超伝導磁束状態の物理」(全 674 ページ, 門脇和男編, 裳華房, 2017)
p.186-p.193, および, p.246-p.250

〔その他〕

アウトリーチ活動

出前授業 (東京都墨田区立桜堤中学校),
2017 年 2 月 18 日

出前授業 (東京都立町田高校),
2016 年 11 月 18 日

出前授業 (東京都立町田高校),
2016 年 11 月 18 日

出前授業 (東京都立町田高校),
2015 年 11 月 10 日

大人の科学教室 (千葉市科学館)
2015 年 1 月 4 日

出前授業 (東京都立町田高校),
2014 年 11 月 14 日

ホームページ等

<http://maeda3.c.u-tokyo.ac.jp/>

研究室紹介記事

A. Maeda, Impact 2017, No.3 99.83-85

(Science Impact Ltd)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

前田 京剛 (MAEDA, Atsutaka)
東京大学・大学院総合文化研究科・教授
研究者番号：70183605

(2) 連携研究者

今井 良宗 (IMAI, Yoshinori)
東北大学・大学院理学研究科・講師
研究者番号：30435599

胡 曉 (HU, Xiao)
独立行政法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・ナノ物性理論ユニット ユニット長
研究者番号：90238428

田島 節子 (TAJIMA, Setsuko)
大阪大学・理学(系)研究科(研究院)・教授
研究者番号：70188241

(3) 研究協力者

鍋島 冬樹 (NABESHIMA, Fuyuki)
東京大学・大学院総合文化研究科・助教
研究者番号：307827776

(研究期間の最初1年間は、同博士課程学生、
2年目は日本学術振興会特別研究員)

岡田 達典 (OKADA, Tatsunori)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号：50793775

(研究機関の最初2年間は、
同博士課程学生)