

2017年3月

極低温超高分解能レーザー角度分解光電子分光による鉄系超伝導体 FeSe の研究

物質系専攻 47-156041 橋本 嵩広

指導教員：辛 埴（教授）

キーワード：d 電子系、鉄系超伝導体、軌道秩序、光電子分光、超伝導ギャップ

超伝導のメカニズムは、より高い超伝導転移温度 (T_c) を持つ超伝導体の探索を目指してだけでなく、巨視的量子現象として基礎物性の観点からも盛んに研究されてきた。従来型超伝導体と銅酸化物超伝導体では、格子とスピンの自由度が超伝導を媒介すると考えられている。近年発見された鉄系超伝導体においては、低エネルギー励起に Fe の複数の $3d$ 軌道が関わるため、軌道の自由度も超伝導に対して重要な役割を果たしているのではないかと指摘されている。鉄系超伝導体ではいくつかの物質において、低温で Fe の $3d$ 軌道が非等価に占有されてバンドの縮退が解ける様子が観測されている。しかし、同程度の温度で反強磁性秩序が生じて電子構造が複雑になってしまうため、この非等価な占有と超伝導の関連は明らかでなかった。鉄系超伝導体 FeSe では構造相転移温度 (T_s) 以下で $3d_{yz}$ と $3d_{zx}$ の縮退が解け、電子系由来の軌道秩序であると言われている[1]。加えて、本物質は磁気秩序を持たないため、軌道秩序と超伝導の関連性を調べるうえで理想的な物質である。軌道秩序によって四回対称性が破れた電子構造での、超伝導ギャップの異方性に興味を持たれる。さらに、本物質では超伝導ギャップ異方性について、波数空間上でのゼロ点（ノード）の存在が指摘されている[2]。超伝導ギャップ異方性を決定するため、本研究では角度分解光電子分光（ARPES）を用いた。ARPES では、試料の電子構造を直接観測できることに加えて、十分なエネルギー分解能と冷却性能があれば超伝導ギャップ異方性を直接観測できる。これにより、 s 波や d 波などの対称性や超伝導に寄与する物性を調べることができる。我々は極低温超高分解能レーザーARPES を用い、FeSe 単結晶について、ブルリアンゾーンの中心においてフェルミ面を観測し、超伝導ギャップ異方性を測定した。

図 1 は組成の同じ二つの試料に対して、それぞれ二種類の直線偏光を用いて測定した軌道秩序状態のフェルミ面である。図 1(a)、(b) はそれぞれ p 、 s 偏光での測定で k_y 、 k_x 方向に伸びた楕円が観測された。一方、レーザーのスポット径を $200 \mu\text{m}$ 程度に絞ったところ、図 1(c) と (d) に示したように、 p 偏光では k_y 方向に伸びた楕円が観測されたが、 s 偏光では光電子強度が著しく弱かった。次の①~③より、観測されたフェルミ面を解釈する。① 先行研究[3]でフェルミ面が k_y 方向に伸びたほぼ $3d_{zx}$ 軌道成分からなる楕円であると報告されている。② T_s 以下で結晶構造は斜方晶になり、一般にデツインと呼ばれる操作をしなければ双晶による複数のドメイン形成が起こる。③ 光電子強度の行列要素内の電子の初期状態と入射光の偏光のパリティから、本研究の実験配置において $p(s)$ 偏光では $3d_{zx}(d_{yz})$ 軌道成分が強い強度で観測される。以上から、図 1(a) と (b) では二つの互いに垂直な双晶ドメインに由来する、波

数空間上で互いに 90° 回転した楕円フェルミ面がそれぞれの偏光によって観測されていると解釈できる (マルチドメイン試料)。一方、図 1(c)と(d)では小さいスポット径のため単一ドメインを測定し、そのドメインに由来する k_y 方向に伸びた楕円フェルミ面のみが観測されたと解釈できる (シングルドメイン試料)。次に、これらの試料について超伝導ギャップ異方性を測定した。図 2(a)はフェルミ波数での、フェルミ準位を基準としたエネルギーに対する光電子強度 (\propto 状態密度 \times フェルミディラック関数) である。 $T_c \sim 10$

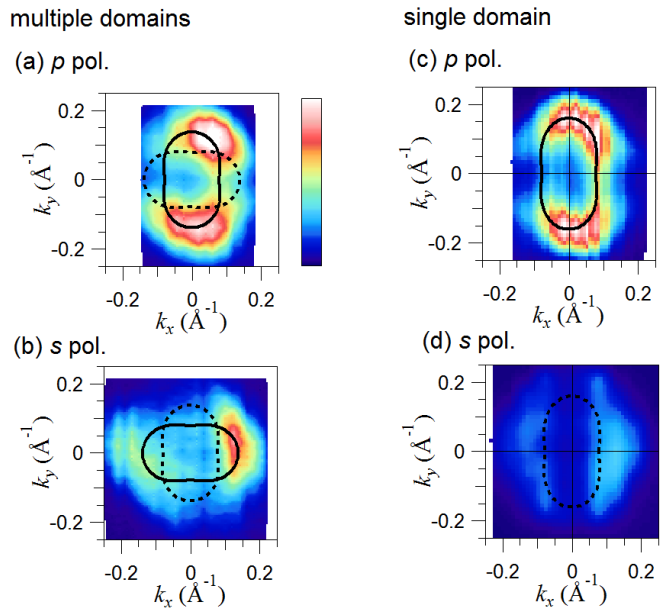


図 1 軌道秩序状態(15 K)でのフェルミ面。(a), (b) マルチドメイン。(c), (d) シングルドメイン。

K より十分低温 2 K (赤) で明瞭なピークを示しており、これは超伝導状態で生じるコヒーレンスピークである。2 K でのスペクトルに対して図 2(a)の黒曲線のように BCS 関数を用いたフィッティングを行い、超伝導ギャップの大きさを見積もった。各フェルミ波数に対してフェルミ面上での偏角を図 2(b)のように定義し、超伝導ギャップ異方性をまとめたのが図 2(c)である。超伝導ギャップ異方性は四回対称性を破り、顕著な異方性を示している。これは、軌道秩序により電子構造が二回対称になったことを反映していると考えられる。さらに、シングルドメイン (緑) では $\theta = 90^\circ$ で有限なギャップが観測されず、また、 $\theta = 90^\circ$ に向かって急激なギャップの落ち込みが観測された。マルチドメイン (図 2(c)の赤) とシングルドメイン (緑) ではギャップ異方性に違いがあり、 $\theta = 90^\circ$ 付近で差が最も大きい。本物質では走査トンネル分光によって双晶境界近傍で超伝導ギャップのノードが消滅することが観測されており、双晶境界近傍での時間反転対称性の破れが指摘されている [4]。ここから、本研究で観測されたマルチドメインとシングルドメインのギャップ異方性の違いは、双晶境界近傍での時間反転対称性の破れに由来すると解釈できる。本研究は、双晶境界により時間反転対称性が破れた状態における超伝導ギャップ異方性を測定した初めての例である。シングルドメインでは双晶境界の影響のない本質的なギャップ異方性を示すと考えられ、楕円フェルミ面の長軸の端でのノードの数は図 2(d)に示すように(i)一つ、あるいは(ii)二つの可能性がある。(i)の場合は p 波超伝導となるが、これは低温での上部臨界磁場にパウリ常磁性効果が効いていること [5] と矛盾するので、(ii)だと考えられる。ノードは分離して観測されなかったため、非常に狭い θ の領域に二つのノードが近接して存在することになる。

以上、本研究では単結晶 FeSe において、軌道秩序による電子構造の四回対称性の破れが超伝導ギャップ異方性に反映されていることを示した。また、双晶構造の異なる試料での測定から、双晶境界により時間反転対称性が破れた状態での超伝導ギャップ異方性を明らかにした。

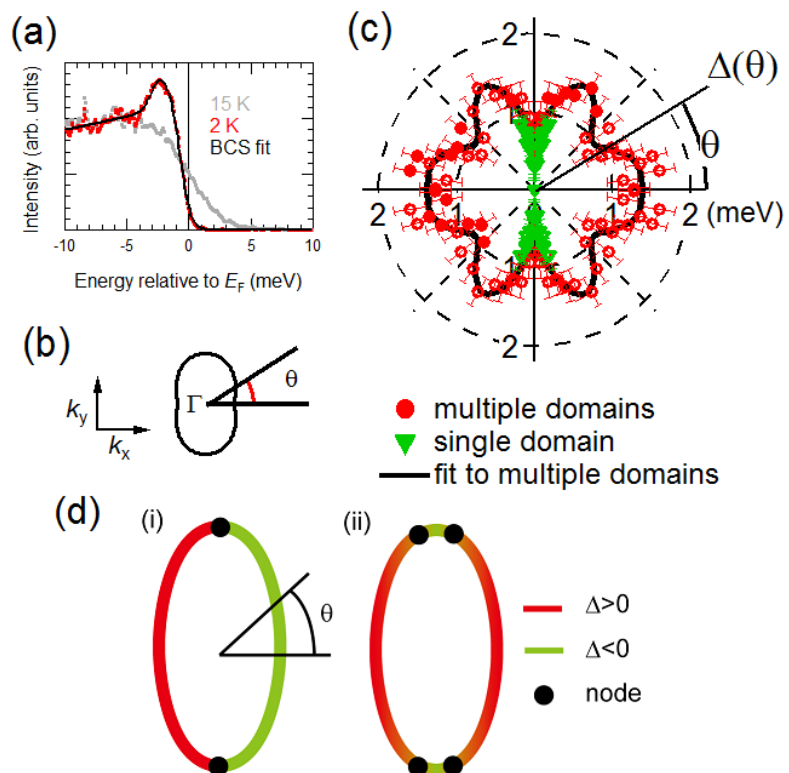


図 2 (a) 各温度でのスペクトルの一例。\$T_c\$より高温 (15 K) と低温 (2 K)。 (b) フェルミ面上での偏角 θ の定義。 (c) 超伝導ギャップ異方性。 (d) 超伝導ギャップ異方性のシナリオ。楕円フェルミ面の長軸の端でのノードの数が(i) 一つ、(ii) 二つ。

参考文献

- [1] T. Shimojima *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 121111 (2014).
- [2] S. Kasahara *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **111**, 16309 (2014).
- [3] Y. Suzuki *et al.*, Phys. Rev. B **92**, 051117 (2015).
- [4] T. Watashige *et al.*, Phys. Rev. X **5**, 031022 (2015).
- [5] T. Terashima *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 133517 (2014).

【論文・学会発表】

1. 日本物理学会 2015 年秋季大会「レーザー角度分解光電子分光による FeSe の軌道秩序状態における超伝導ギャップ異方性の観測」
2. 日本物理学会 2016 年秋季大会「レーザー角度分解光電子分光による FeSe の軌道秩序状態における超伝導ギャップ異方性の観測 2」
3. 日本物理学会第 72 回年次大会「レーザー角度分解光電子分光による Fe(Se,S)の超伝導ギャップの観測」