

レーザー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に関する研究

物質系専攻 47-086023 坂口文規

指導教員：辛埴（教授）

キーワード：鉄系超伝導体、レーザー角度分解光電子分光

I. 研究目的

銅酸化物高温超伝導体の発見以来、高温超伝導の起源解明に向けて精力的な研究が行われてきた。しかし、長い間「他の遷移金属化合物で高温超伝導が得られるか」「更に高い転移温度(T_C)は得られるか」という問題が未解決のままであった。ところが、2008年に東工大の細野グループにより鉄系超伝導体が発見された。鉄系超伝導体と銅酸化物の類似点として、高い T_C 、反強磁性相に隣接した超伝導相、二次元層状構造などが挙げられる。一方、鉄系超伝導体の母物質の基底状態は反強磁性金属であるのに対し、銅酸化物では Mott 絶縁体である。さらに前者は多軌道系、後者は単軌道系という相違点もある。従って、鉄系超伝導体の発見は高温超伝導を銅酸化物とは異なる視点から見直す機会を与えていると言える。

鉄系超伝導体においてもスピン揺らぎによる非従来型超伝導が提案されている。鉄系超伝導体のスピン揺らぎはフェルミ面のネスティングに由来するので、電子状態の詳細が超伝導に大きな影響をもたらすと考えられている。特にフェルミ面形状は鉄正方格子面からニクトゲンまでの距離に左右される。複数のスピン揺らぎ成分の競合により、ノードを持つ $\pm s$ 波もしくは d 波と、フルギャップ $\pm s$ 波のいずれかが実現する可能性が指摘されている[1]。実際に $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$ [2]では磁場侵入長、熱伝導率[3]及び NMR[4]からラインノードの存在が示唆されている。しかし非磁性不純物に強い T_C の振る舞いはスピン揺らぎでは説明がつかず、鉄系超伝導体の超伝導機構に関して統一した見解は得られていない。最近では軌道揺らぎによる超伝導が提案され[5]、鉄系超伝

導体固有の多軌道性に焦点が当てられている。

超伝導機構を議論する上で、実験による超伝導ギャップ対称性の決定は特に重要な知見を与える。本研究ではレーザー角度分解光電子分光(Laser-ARPES)を用いて、等原子価ドーブ系 $BaFe_2(As_{0.65}P_{0.35})_2$ 及びホールドーブ系 $(Ba_{0.6}K_{0.4})Fe_2As_2$ のホールフェルミ面上の超伝導ギャップを観測した。両物質は高い T_C 、反強磁性相に隣接した超伝導相及びフェルミ面形状等の類似点があるにも関わらず、 $BaFe_2(As_{0.65}P_{0.35})_2$ のみラインノードの存在が報告されており興味深い。Laser-ARPESにより両物質の超伝導ギャップ対称性を比較し、鉄系超伝導体の超伝導機構についての知見を得ることを本研究の目的とする。

II. 実験方法

本研究では東大物性研にあるレーザー光電子分光装置を用いた。励起光に 7eV の真空紫外レーザーを用いているため高エネルギー分解能とバルク感性が実現している。また、 p 偏光、 s 偏光及び円偏光の三種類の偏光を使用できる。単結晶試料はセルフフラックス法で合成された $BaFe_2(As_{0.65}P_{0.35})_2$ ($T_C=29K$)、 $(Ba_{0.6}K_{0.4})Fe_2As_2$ ($T_C=36K$)を用いた。銅板に固定した単結晶を超高真空中で 150K において劈開させ、実験に必要な清浄表面を得た。測定は 5×10^{-11} Torr 程度の超高真空の下で、エネルギー分解能を 3meV に設定して行った。

III. 実験結果と考察

1. $BaFe_2(As_{0.65}P_{0.35})_2$ の超伝導ギャップ観測

図 1.A に Laser-ARPES により観測した(0,0)点を中心とした三枚のホールフェルミ面を示す。フェルミ面の枚数は第一原理計算と一致してい

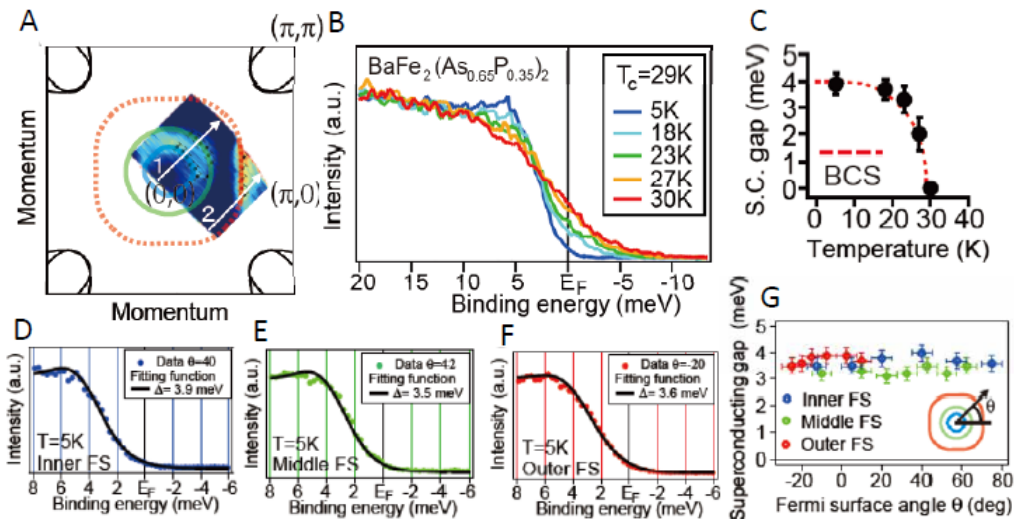


図 1 : (A)三枚のホールフェルミ面の観測結果。(B) 最外ホールフェルミ面における光電子スペクトルの温度変化 (C)超伝導ギャップサイズの温度依存性。(D-F) 超伝導状態における各ホールフェルミ面上での光電子スペクトル。(G)超伝導ギャップのフェルミ面角度(θ)依存性。挿入図はフェルミ面の模式図と θ の定義。

る。最外ホールフェルミ面が特に大きいことは、等原子価ドーピングによるニクトゲン位置の低下により説明できる。過去の放射光 ARPES により観測されたフェルミ面面積との定量的比較から、Laser-ARPES では波数空間における Z 点近傍を観測していると見積もることができる。

図 1.B を見ると、 T_c 以下で光電子スペクトルにピークが立ち、フェルミ準位上にギャップが開いていることが分かる。ギャップ形状を BCS スペクトル関数で再現すると、その温度依存性が BCS 曲線に乗ることから、これが超伝導ピークであることが分かる(図 1.C)。超伝導状態における各ホールフェルミ面上での光電子スペクトル(図 1.D-F)から、すべてのホールフェルミ面上で同程度の大きさの超伝導ギャップが開いていることが分かる($\Delta = 3.5 \sim 3.9$ meV)。また、超伝導ギャップはすべてのホールフェルミ面上でほぼ等方的に開いており、ノードは存在しないことが分かった(図 1.G)。

2. $(\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4})\text{Fe}_2\text{As}_2$ の超伝導ギャップ観測

図 2.A を見ると(0,0)点を中心とした三枚のホールフェルミ面が確認できる。フェルミ面の枚数は第一原理計算と一致している。また、レーザー

の偏光を変えると観測されるバンドの強度がほぼ完全に切り変ることから、各ホールバンドは固有の電子軌道成分を持つと考えられる。図 2.B に最内ホールフェルミ面上の光電子スペクトルをフェルミ-ディラック関数で割り、60K のスペクトルで規格化したものの温度変化を示す。温度が低下するにつれ、4meV 付近のピーク 1 と 13 meV 付近のピーク 2 の二つのピークが成長していることが分かる。さらに非占有側のピーク 1' も観測された。 T_c 以下で出現しているピーク 1 とピーク 1'、及びその間のギャップ構造は BCS スペクトル関数で再現することができる。ギャップサイズの温度依存性が BCS 曲線に従うことから、ピーク 1 を超伝導ピークとして考えることが妥当であることが分かる(図 1.C)。一方、詳細な温度測定の結果、ピーク 2 は T_c 以上でも存在することが明らかとなり、超伝導由来のピークではないと考えることができる。超伝導状態における各ホールフェルミ面上での光電子スペクトル(図 2.D-F)から、すべてのホールフェルミ面上で同程度の大きさの超伝導ギャップが開いていることが分かる($\Delta = 2.4 \sim 3.3$ meV)。また、超伝導ギャップはすべてのホールフェルミ面上で、ほぼ等方的でノードは存在しないことが分かった(図 2.G)。

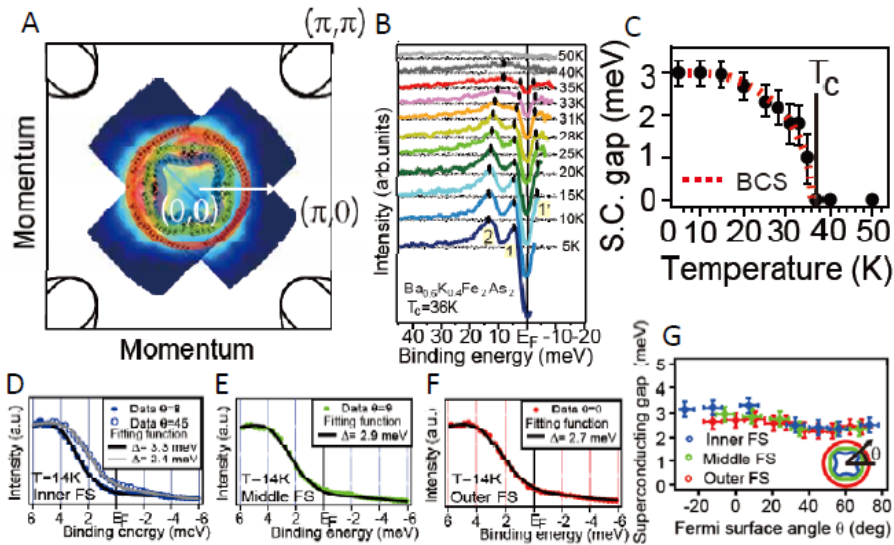


図 2 : (A)三枚のホールフェルミ面の観測結果。(B) T_c を境としたピーク 1 とピーク 2 の温度依存性。(C) BCS スペクトル関数を用いたフィッティングにより得られた超伝導ギャップサイズの温度依存性。(D-F) 超伝導状態における各ホールフェルミ面上での光電子スペクトル。(G)超伝導ギャップのフェルミ面角度(θ)依存性。挿入図はフェルミ面模式図と θ の定義。

3.超伝導ギャップ対称性から示唆されること

$BaFe_2(As_{0.65}P_{0.35})_2$ 及び $(Ba_{0.6}K_{0.4})Fe_2As_2$ の超伝導ギャップ対称性を観測した結果、いずれもホールフェルミ面上にノードは存在しないことが明らかとなった。従って、スピン揺らぎ機構による d 波超伝導の可能性は否定される。他の実験手法との整合性を考えると $BaFe_2(As_{0.65}P_{0.35})_2$ のラインノードは電子フェルミ面上に存在する可能性が高いと考えられる。

本研究の結果の中で最も注目すべき点は、両物質で三枚のホールフェルミ面上の超伝導ギャップサイズがほぼ揃っている点である。偏光依存測定や第一原理計算から、各ホールフェルミ面には各 Fe3d 軌道成分がほぼ 1 対 1 に対応することが示されている。従って、本結果は超伝導ギャップサイズが軌道依存性をほとんど示さないことを意味していると考えられる。スピン揺らぎによる超伝導の場合、電子対散乱は同一軌道成分内で起こるため、超伝導ギャップは各軌道(フェルミ面)によって異なることが予想される。一方、軌道揺

らぎによる超伝導の場合、電子対散乱はフェルミ面の異なる軌道間を含めて生じるため、各軌道(フェルミ面)上の超伝導ギャップサイズが揃う傾向にある。従って、本結果は純粋なスピン揺らぎ機構のみでは説明が難しく、超伝導に対する軌道揺らぎの効果も考慮に入れる必要があることを示唆している。鉄系超伝導体は銅酸化物高温超伝導体と異なり、スピンだけでなく軌道の自由度もその高い T_c に大きな役割を果たしている可能性がある。

参考文献

- [1] K. Kuroki, *et al.*: PRB **79**, 224511 (2009).
- [2] S. Kasahara, *et al.*: PRB **81**, 184519 (2010).
- [3] K. Hashimoto, *et al.*: PRB **81**, 220501(R) (2010).
- [4] Y. Nakai, *et al.*: PRB **81**, 020503(R) (2010).
- [5] T. Saito, *et al.*: PRB, **82** 114510 (2010).

学会発表

日本物理学会 2009 年秋季大会「レーザー角度分解光電子分光による鉄系超伝導体 $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$ の電子状態の観測」(他 1 件(2010 年第 65 回年次大会))