

戦略的創造研究推進事業

研究領域「新規材料による高温超伝導基盤技術」

研究課題「高分解能 ARPES による鉄系高温超伝導体の微細電子構造の研究」

研究終了報告書

氏名 佐藤 宇史

所属・役職 東北大学大学院理学研究科・准教授

§ 1. 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究では、超高分解能角度分解光電子分光(ARPES)法を用いて鉄系高温超伝導体の電子状態を精密に決定することによって、その高温超伝導発現機構を解明することを目的とする。これを実現するために、現有の高分解能光電子分光装置の励起光源系や電子エネルギー分析系の改良を行い、1meV以下の精度の超高分解能 ARPES 実験を可能にした。改良した装置を用いて鉄系超伝導体単結晶のフェルミ面、エネルギーバンド分散、準粒子、超伝導ギャップ、および擬ギャップを直接観測する事により、フェルミ準位(E_F)近傍の微細電子構造を明らかにした。また、電子ドープ型およびホールドープ型や、様々な結晶構造を有する鉄系超伝導体について系統的な ARPES 実験を行うことによって、鉄系超伝導体の高温超伝導メカニズムについて電子状態の立場からの知見を得た。

装置の改良においては、より統計精度の高い超高分解能 ARPES 測定を実現しつつ微小単結晶の測定におけるシグナル強度不足や試料劣化の問題を克服するために、マイクロ波励起型ヘリウム放電管の差動排気系を強化し、紫外線を通しつつ残留ガスを防ぐ真空紫外線(VUV)フィルターの設置を行った。また、エネルギー分析器の分解能を向上させるために、高感度検出器を設置し、電子レンズパラメータの調整、浮遊電場の除去、地磁気の遮蔽などの改良を行うことで、900 μeV の超高エネルギー分解能を実現した。

改良した高分解能光電子分光装置および国内外の高輝度放射光施設を用いて、ホールドープ型および電子ドープ型 BaFe_2As_2 系(122系)、 LaFeAsO 系(1111系)、 AFeAs (A:Na,Li)系(111系)、 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ 系(11系)、およびペロブスカイト挿入型 $\text{Sr}_2\text{VO}_3\text{FeAs}$ の高分解能 ARPES を行い、各物質における E_F 近傍の電子状態、具体的には、バンド分散、フェルミ面、超伝導ギャップを高分解能で直接決定した。その結果、常伝導状態における基本的電子構造と超伝導ギャップの対称性を明らかにすることに成功し、すべての物質系(過剰ドープ領域を除く)で共通してブリルアンゾーンの Γ 点中心の1-3枚のホールのフェルミ面とM点中心の1-2枚の電子的フェルミ面を観測した。また、ホールドープ型 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ 、電子ドープ型 $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$ 、 $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ 、 LiFeAs 、および $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ において超伝導ギャップの波数・フェルミ面・温度依存性を決定することに成功し、すべての物質で超伝導クーパー対形成に伴う明瞭な準粒子ピークを観測し、超伝導ギャップがノードの無いs波対称性を示すことを明らかにした。また、超伝導ギャップの大きさはフェルミ面によって異なることも同時に見出した。また、122系の過剰ドープ領域のホールドープ型(電子ドープ型)試料においては、M点(Γ 点)の電子(ホール)面がほぼ消失するのに対応して超伝導転移温度も抑制(または消失)されることも明らかにした。これらの実験事実から、鉄系超伝導体の超伝導機構には、ブリルアンゾーンの Γ 点とM点を繋ぐフェルミ面同士のバンド間散乱が重要な役割を果たしていると結論した。

(2) 顕著な成果

① $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ 超伝導体の不足ドーピング領域における擬ギャップの観測

概要: ホールドーピング型鉄系超伝導体 $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ の高分解能 ARPES を行い、不足ドーピング領域の電子状態を決定した。その結果、超伝導転移温度以上において電子状態密度における擬ギャップを観測することに成功した。

② $BaFe_2As_2$ 系超伝導体における超伝導機構の電子-ホール対称性

概要: 電子ドーピング型鉄系超伝導体 $BaFe_{1.85}Co_{0.15}As_2$ の高分解能 ARPES を行い、超伝導ギャップの対称性を直接決定する事に成功した。その結果、超伝導機構の「電子-ホール対称性」が成り立っている事を明らかにした。

③ $BaFe_2As_2$ におけるディラックコーンのバンド分散の直接観測

概要: 鉄系超伝導体の母物質 $BaFe_2As_2$ の高分解能 ARPES を行い、反強磁性相における E_F 近傍の電子バンド分散を精密に決定する事に成功した。その結果、バンド分散における「ディラック電子的振る舞い」を初めて明らかにした。

§ 2. 研究実施内容

鉄系高温超伝導機構を電子状態の立場から明らかにする目的で、光電子分光装置の励起光源系と電子エネルギー分析系の改良・整備を行い、 E_F 近傍の電子構造の超高分解能 ARPES 測定を可能にした。また、鉄系高温超伝導体の ARPES 実験を行い、様々な結晶構造を有する物質系のホールおよび電子ドーピング型におけるフェルミ面のトポロジー、エネルギーバンド構造、電子相関効果、および超伝導ギャップの決定を行った。以下に、装置の改良とそれを用いた ARPES 実験の研究成果について具体的に述べる。

(1) 光電子分光装置の改良

より統計精度の高い超高分解能 ARPES 測定を実現するために、励起光源系において、残留ガスを完全に遮断しつつ紫外線を通す VUV フィルターを導入した(図 1)。また、高速・大排気容量ターボ分子ポンプを放電管に接続する事により、差動排気系の強化を行った。これらの改良によって、ARPES 測定時における鉄系高温超伝導体の寿命を、従来に比べて5倍以上向上させた。静電半球型2次元電子エネルギー分析器の光電子入射スリ

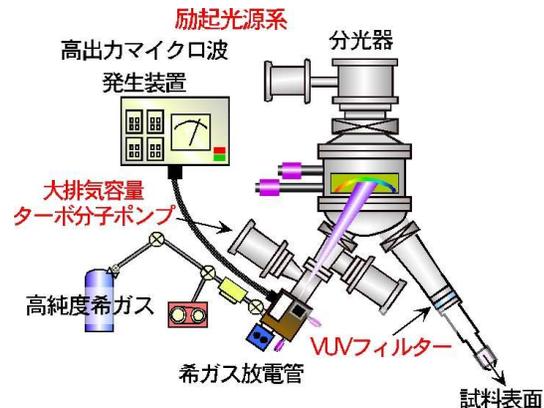


図 1: 改良した励起光源系の概略図

ット形状の最適化と小型化を行い、 $900\mu\text{eV}$ のエネルギー分解能を達成した。また、エネルギー分析器の静電半球部分および電子レンズの改良を行い、キセノン放電管からの $8\text{-}10\text{eV}$ の低エネルギー光に対応させた。さらに、鉄系高温超伝導体の ARPES データを高速で解析するためのソフトウェアの開発を行い、測定時に直ちにバンド構造やフェルミ面を描き出せるような機能を持たせた。これにより、鉄系高温超伝導体のデータ解析の速度と効率が著しく向上した。

(2) フェルミ面のキャリア符号・濃度依存性

最適ドープ領域のホールドープ型 $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($T_c=37\text{K}$) および電子ドープ型 $\text{BaFe}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{As}_2$ ($T_c=25.5\text{K}$) の高分解能 ARPES 実験を行い、フェルミ面形状を精密決定した。その結果、ホールドープ型試料¹⁾では、ブリルアンゾーンの Γ 点を中心に2枚のホール面 (α, β)、M 点を中心に2枚の電子面 (γ, δ) の計4枚のフェルミ面を観測した。さらに、 Γ 点中心の内側のホール面 α と M 点中心の電子面 $\gamma(\delta)$ が、反強磁性散乱ベクトル $Q=(\pi, 0)$ を通じて比較的良いネスティング条件を満たす事を見出した。一方、電子ドープ型の試料では、ホールドープ型で α ホール面を形成していたエネルギーバンドは E_F 以下約 30meV 程度まで沈み込んでおり、フェルミ面を形成していない事を明らかにした⁵⁾。また、 β ホール面はホールドープ型に比べて著しく縮小している事を見出した。それと同時に、M 点中心の2枚の電子面 γ, δ は、ホールドープ型に比べて拡大している事もわかった(図2)。これらの実験事実は、FeをCoで置換することによる電子ドープによるケミカルポテンシャルシフトで基本的には解釈できると結論した。

電子ドープ型 $\text{BaFe}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{Fe}_2\text{As}_2$ において決定したフェルミ面上で、超伝導ギャップの直接観測を行った。その結果、 β ホール面と γ, δ 電子面の両者において、超伝導状態で明確な準粒子ピークと超伝導ギャップを観測する事に成功した⁵⁾。また、同一フェルミ面上で波数依存性の測定を行った結果、実験誤差の範囲で超伝導ギャップに異方性は認められず、ほぼ等方的な s 波超伝導ギャップが開いている事を見出した(図2)。また、得られた超伝導ギャップのサイズは、 β 面と $\gamma(\delta)$ 面ともに強結合の値を示し、かつ、 β 面と γ 面が $Q=(\pi, 0)$ ネスティングベクトルでよく繋がる事から、電子ドープ型鉄系超伝導体においてもホールドープ型と同様、バンド間散乱が超伝導機構に密接に関連していると結論した。その一方で、バンド間散乱に最も寄与するフェルミ面は、ホールと電子ドープ型で顕著に異なっていることも明らかになった。

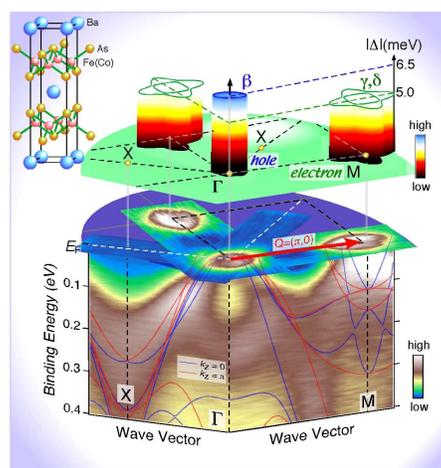


図2: 高分解能 ARPES で決定した $\text{BaFe}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{As}_2$ の電子構造と超伝導ギャップの対称性

電子構造のキャリア濃度依存性を明らかにする目的で、ホールドーブ型 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ および電子ドーブ型 $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$ におけるフェルミ面のドーブ量依存性を精密に測定した。その結果、最適ドーブ領域で良く満たされていた反強磁性ベクトル $Q = (\pi, 0)$ の波数をもつフェルミ面のネスティング条件は、過剰ドーブ領域で低下することを見出した。具体的には、電子型の過剰ドーブ試料 $\text{BaFe}_{1.7}\text{Co}_{0.3}\text{As}_2$ ではブリルアンゾーンの Γ 点中心のホールのフェルミ面が消失しつつ M 点の電子面が拡大することによってネスティング条件が悪化する³⁾一方で、ホール型の過剰ドーブ試料 KFe_2As_2 においては、 Γ 点のホール面が拡大して M 点の電子面がホール面に変化⁶⁾することによってバンド間散乱が抑制される事を明らかにした(図 3)。これらの実験事実から、極端過剰ドーブ領域における電子型とホール型の電子相図の違いは、 Γ 点と M 点の電子面とホール面を形成するバンドの有効質量の違いが密接に関連していると結論した。

また、放射光施設において励起光のエネルギーを系統的に変化させた ARPES 測定を行い、 $\text{BaFe}_{1.7}\text{Co}_{0.3}\text{As}_2$ の 3 次元的バンド分散を決定した。その結果、 Γ 点のホール面において結晶面と垂直方向に約 20meV の分散が観測された⁸⁾。このことから、122 系の電子ドーブ型の電子状態を正しく理解するためには、FeAs 面間の相互作用も考慮する必要があると結論した。

(3) バンド構造と電子相関効果

ホールドーブ型 $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ の価電子帯のエネルギーバンド構造をブリルアンゾーン全体に亘って ARPES 測定した。その結果、フェルミ面を形成するすべての $\text{Fe}3d$ バンドは、第一原理バンド計算に比べて約 2 倍程度有効質量が増強されている事がわかった。さらに、 E_F 近傍の一部のバンドは約 4 倍程度質量が増強されていることから、質量繰り込み効果には顕著な軌道(運動量)依存性があることを見出した。電子ドーブ型の試料においても価電子帯のバンド構造の測定を行い、2-4 倍程度のバンド質量の繰り込みを見出した。これらの実験事実から、鉄系高温超伝導体の電子構造には電子・ホールドーブ型の両者において電子相関の効果が大きく影響していると結論した¹¹⁾。

また、122 系の母物質である BaFe_2As_2 の高分解能 ARPES を行い、磁気転移に伴う電子状態の変化を明確に観測した⁷⁾。その結果、反強磁性状態ではブリルアンゾーンの M 点近傍においてエネルギーバンドが直線的分散を示す「ディラックコーン」が形成される事を

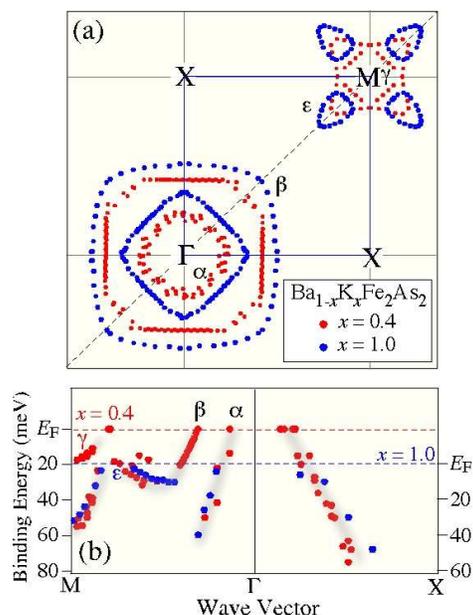


図 3: $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ の (a) フェルミ面と (b) バンド分散を、最適ドーブ ($x=0.4$) および過剰ドーブ ($x=1.0$) で比較したもの

見出した(図 4)。ディラックコーンの頂点のエネルギー位置はちょうど E_F に位置し、またディラックコーンのバンドのフェルミ速度には若干の異方性がある事がわかった。このディラックコーンはネール温度以上では完全に消失することから、反強磁性磁気秩序とディラックコーンの出現が密接に関連していると結論した。また、磁気秩序状態において M 点におけるエネルギーギャップの波数依存性を精密に決定する事に成功した。これらの結果と理論モデルとを比較する事により、 BaFe_2As_2 の磁気秩序相の電子状態は nodal SDW 状態として良く記述できると結論した。

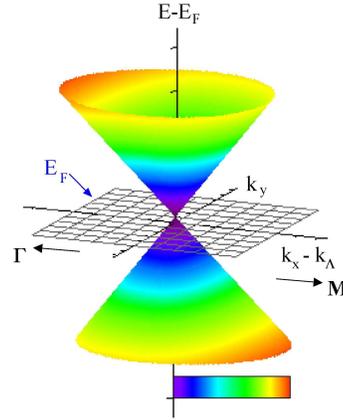


図 4: ARPES で決定した BaFe_2As_2 の磁気状態におけるディラックコーンのエネルギー分散

(4) 準粒子生成過程の同定

ホールドーブ型 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ および電子ドーブ型 $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$ の最適ドーブ領域において、 E_F 近傍のバンド分散のフェルミ面および波数依存性を測定した。その結果、最適ドーブ $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ では、反強磁性ベクトルで繋がるフェルミ面上で超伝導状態において結合エネルギー 25meV にバンド分散の kink が観測される一方、 $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$ における kink 構造はホール型に比べて不明瞭である事を見出した。この事は、電子ドーブ型とホールドーブ型における超伝導状態の磁気励起スペクトルの定量的な差異を反映していると考えられる。また、11 系 $\text{Fe}(\text{Se},\text{Te})$ において E_F 極近傍の高分解能 ARPES 実験を行い、超伝導状態において超伝導ギャップに関連したスペクトル端シフトとともに明確な準粒子ピークを観測する事に成功した⁸⁾。同様の測定を 111 系の $\text{Na}(\text{Li})\text{FeAs}$ においても行い^{1,14)}、非常に幅の狭い準粒子ピークを観測した。得られた超伝導ギャップの大きさがホールドーブ型の Ba122 系で得たものと良く対応する事から、鉄ニクタイトにおける超伝導準粒子生成過程は物質によらず共通であると結論した。

(5) 超伝導ギャップ対称性の決定

ドーブ量を系統的に変化させたホールドーブ型 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ において、超伝導ギャップの波数・フェルミ面・温度依存性を高精度で決定した⁹⁾。その結果、不足ドーブから過剰ドーブまで、測定した全ての組成において超伝導ギャップが各フェルミ面上でほぼ等方的であること、また、フェルミ面間ではギャップサイズが異なっていることを明らかにした。超伝導ギャップの大

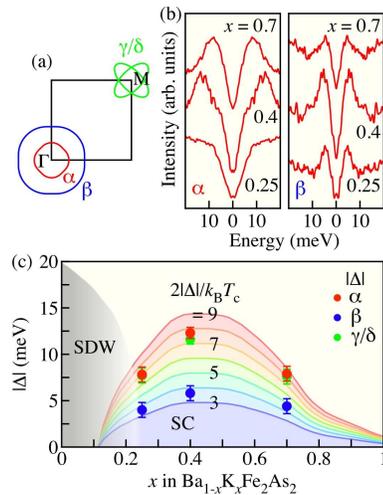


図 5: (a) $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ のフェルミ面の模式図. (b) 超伝導状態の ARPES スペクトルのドーブ量依存性. (c) 超伝導ギャップサイズのドーブ量依存性

きさはドーピング量に依存しており、 T_c と比例することを見出した(図5)。このことから、ペアリングの強さが T_c を決める重要な因子となっていると結論した。いずれの組成においても、反強磁性ベクトルで繋がれるフェルミ面上で強結合的なギャップが開いていることから、反強磁性相互作用によって超伝導が発現する場合に予想される超伝導ギャップ関数を用いたフィッティングを行った。その結果、ドーピング量によらず超伝導ギャップサイズのフェルミ面依存性を比較的良く再現できることを明らかにした。このことから、 $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ では超伝導相の広範に亘り、反強磁性相互作用を媒介とした超伝導が実現していると結論した。

(6) 擬ギャップの起源

ホールドーピング型 $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ および電子ドーピング型 $BaFe_{2-x}Co_xAs_2$ の不足ドーピング領域においてフェルミ面の複数点で ARPES スペクトルの精密な温度変化測定を行い、擬ギャップの波数・温度依存性を決定した。その結果、ホールドーピング型の不足ドーピング領域で、超伝導ギャップに比べてエネルギースケールの大きな擬ギャップが存在し、超伝導転移温度より十分高い温度から発達する事を見出した³⁾。得られた擬ギャップを銅酸化物のアンチノードにおける擬ギャップと比較することによって、擬ギャップの起源は反強磁性ゆらぎに密接に関係していると結論した。

(7) 結晶構造依存性

11系 $Fe(Te,Se)$ のバンド分散とフェルミ面形状を決定した⁸⁾。その結果、 ρ 点を中心とするホールバンドとM点を中心とする電子バンドがフェルミ面を形成していることを明らかにした(図6)。また、観測したホール面と電子面は $Q=(\pi,0)$ ベクトルによるネスティング条件を良く満たすことがわかった。バンド幅はLDAバンド計算に比べて2倍程度狭くなっており、電子相関の効果を考慮する必要があることを見出した。さらに、超伝導ギャップの直接観測に初めて成功した。その結果、ホールおよび電子面上で開く超伝導ギャップはノードを持たず、ほぼ等方的な s 波対称性を示すことを見出した。

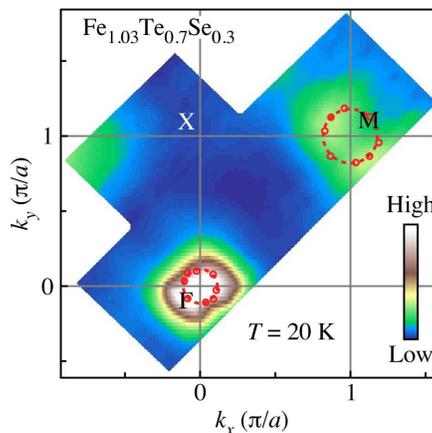


図6: $Fe(Te, Se)$ 超伝導体のフェルミ面

111系の $LiFeAs$ および $NaFe_{0.95}Co_{0.05}As$ におけるフェルミ面と超伝導ギャップの観測にも成功し、超伝導ギャップの温度・フェルミ面・波数依存性を決定することに成功した^{1,14)}。その結果、111系でも11系と同様のノードの無い s 波超伝導ギャップを観測した。さらに、超伝導ギャップ関数は、拡張 s 波対称性から予想されるギャップ関数で比較的良く再現されることを見出した。以上の実験結果と122系のデータとの比較から、11系と111系と122系における超伝導機構は共通の枠組みで理解できると結論した。

§ 3. 研究実施体制

(1) 佐藤研究グループ(東北大学)

① 研究者名

	氏名	所属	役職	参加時期
○	佐藤宇史	東北大学大学院理学研究科	准教授	H20.10～
	相馬清吾	東北大学原子分子材料科学 高等研究機構	助教	H20.10～
	Pierre Richard	東北大学原子分子材料科学 高等研究機構	助教	H20.10～H22.8
	高橋 隆	東北大学大学院理学研究科・ 東北大学原子分子材料科学 高等研究機構	教授	H20.10～
	Qian Tian	東北大学大学院理学研究科	博士研究員	H20.10～H.21.9
	菅原克明	東北大学原子分子材料科学 高等研究機構	助教	H20.10～
	中山耕輔	東北大学大学院理学研究科	助教	H20.10～
	荒金俊行	東北大学原子分子材料科学 高等研究機構	博士研究員	H20.10～

② 研究項目 高分解能 ARPES による鉄系高温超伝導体の微細電子構造の研究

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

① 発表総数(発行済:国内(和文) 0 件、国際(欧文) 14 件):

② 未発行論文数(“accepted”、“in press”等)(国内(和文) 0 件、国際 (欧文) 1 件)

(1) "Unconventional Anisotropic s-wave Superconducting Gap of LiFeAs Iron-Pnictide Superconductor"

K. Umezawa, Y. Li, H. Miao, K. Nakayama, Z.-H. Liu, P. Richard, T. Sato, J. B. He, D.-M. Wang, G. F. Chen, H. Ding, T. Takahashi, and S.-C. Wang
Phys. Rev. Lett., *in press*.

③ 論文詳細情報

(2) "Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy of the Fe-Based Ba_{0.6}K_{0.4}Fe₂As₂ 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** (2008) 047003-1-4. doi:10.1103/PhysRevLett.102.047003.
- (3) "Electronic structure of heavily electron-doped $\text{BaFe}_{1.7}\text{Co}_{0.3}\text{As}_2$ studied by angle-resolved photoemission"
Y. Sekiba, T. Sato, K. Nakayama, K. Terashima, P. Richard, J. H. Bowen, H. Ding, Y.-M. Xu, L. J. Li, G. H. Cao, Z.-A. Xu, and T. Takahashi
New J. Phys. **11** (2009) 025020-1-8. doi:10.1088/1367-2630/11/2/025020.
- (4) "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) 67002-1-5. doi:10.1209/0295-5075/85/67002.
- *(5) "Fermi surface nesting induced strong pairing in iron-based superconductors"
K. Terashima, Y. Sekiba, J. H. Bowen, K. Nakayama, T. Kawahara, T. Sato, P. Richard, Y.-M. Xu, L. J. Li, G. H. Cao, Z.-A. Xu, H. Ding, and T. Takahashi
Proc Natl. Acad. Sci. USA **106** (2009) 7330-7333. doi:10.1073/pnas.0900469106.
- 電子型とホール型で超伝導ギャップの対称性が等しい「電子・ホール対称性」が成り立っているという実験事実は、鉄系超伝導機構がキャリアの符合によらないことを示唆しており、超伝導メカニズム解明に向けての重要な知見になる。
- (6) "Band Structure and Fermi Surface of an Extremely Overdoped Iron-Based Superconductor 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) 047002-1-4. doi:10.1103/PhysRevLett.103.047002.
- *(7) "Observation of Dirac Cone Electronic Dispersion in BaFe_2As_2 "
P. Richard, K. Nakayama, T. Sato, M. Neupane, Y.-M. Xu, J. H. Bowen, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang, X. Dai, Z. Fang, H. Ding, and T. Takahashi.
Phys. Rev. Lett. **104** (2010) 137001-1-4. doi:10.1103/PhysRevLett.104.137001.

グラフェンやトポロジカル絶縁体で報告されているディラックコーンが鉄系超伝導体の母物質で初めて実験的に発見されたということは意義深い。本実験結果は、ディラックコーンの存在

を予言する種々の理論の強力な実験的根拠となる。

- (8) "Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy of Iron-Chalcogenide Superconductor $\text{Fe}_{0.3}\text{Te}_{0.7}\text{Se}_{0.3}$: Strong-Coupling Superconductivity and Universality of Inter-Band Scattering"
K. Nakayama, T. Sato, P. Richard, T. Kawahara, Y. Sekiba, T. Qian, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang, H. Ding, and T. Takahashi
Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 197001-1-4. doi:10.1103/PhysRevLett.105.197001.
- (9) "Universality of superconducting gaps in overdoped $\text{Ba}_{0.3}\text{K}_{0.7}\text{Fe}_2\text{As}_2$ observed by angle-resolved photoemission spectroscopy"
K. Nakayama, T. Sato, P. Richard, Y.-M. Xu, T. Kawahara, K. Umezawa, T. Qian, M. Neupane, G. F. Chen, H. Ding, and T. Takahashi
Phys. Rev. B **83** (2011) 020501(R)-1-4. doi:10.1103/PhysRevB.83.020501.
- (10) "Electron-hole asymmetry in superconductivity of pnictides originated from the observed rigid chemical potential shift"
M. Neupane, P. Richard, Y.-M. Xu, K. Nakayama, T. Sato, T. Takahashi, A. V. Fedrov, G. Xu, X. Dai, Z. Fang, Z. Wang, G.-F. Chen, N.-L. Wang, H.-H. Wen, and H. Ding
Phys. Rev. B. **83** (2011) 094522-1-6. doi:10.1103/PhysRevB.83.094522.
- (11) "Electronic structure of optimally doped pnictide $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$: a comprehensive angle-resolved photoemission spectroscopy investigation"
H. Ding, K. Nakayama, P. Richard, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, M. Neupane, Y.-M. Xu, Z.-H. Pan, A. V. Fedorov, Z. Wang, X. Dai, Z. Fang, G. F. Chen, J. L. Luo, and N. L. Wang
J. Phys.: Condens. Matter **23** (2011) 135701-1-6. doi:10.1088/0953-8984/23/13/135701.
- (12) "Quasi-nested Fe orbitals versus Mott-insulating V orbitals in superconducting $\text{Sr}_2\text{VO}_3\text{FeAs}$ as seen from angle-resolved photoemission"
T. Qian, N. Xu, Y.-B. Shi, K. Nakayama, P. Richard, T. Kawahara, T. Sato, T. Takahashi, M. Neupane, Y.-M. Xu, X.-P. Wang, G. Xu, X. Dai, Z. Fang, P. Cheng, H.-H. Wen, and H. Ding
Phys. Rev. B **83** (2011) 140513(R)-1-4. doi:10.1103/PhysRevB.83.140513.
- *(13) "Fermi surface dichotomy of 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. Luo, H.-H. Wen, G.-F. Chen, N.-L. Wang, Z. Wang, Z. Fang, X. Dai, and H. Ding

Nature Commun. **2** (2011) 394-1-5. doi:10.1038/ncomms1394.

鉄系超伝導体の不足ドープ領域で擬ギャップが発見されたという本実験結果は、長年論争が繰り返されてきた銅酸化物高温超伝導体における擬ギャップの起源を理解する上でも非常に重要である。

(14) "Unconventional superconducting gap in $\text{NaFe}_{0.95}\text{Co}_{0.05}\text{As}$ observed by ARPES"

T. Qian, N. Xu, Y.-B. Shi, K. Nakayama, P. Richard, T. Kawahara, T. Sato, T. Takahashi, M. Neupane, Y.-M. Xu, X.-P. Wang, G. Xu, X. Dai, Z. Fang, P. Cheng, H.-H. Wen, and H. Ding
Phys. Rev. B **84** (2011) 064519-1-5. doi:10.1103/PhysRevB.84.064519.

(4-2) 特許出願

TRIP 研究期間累積件数(国内 0 件、海外 0 件)

§ 5. 結び

(5-1) 研究成果の意義、今後の展開

本研究は、高分解能 ARPES を用いて、鉄系高温超伝導メカニズムを電子状態の立場から明らかにすることを目指して開始したものです。研究を始めた当初は、高分解能 ARPES が、様々な結晶構造を有する鉄系高温超伝導体に対してどれほどの情報を提供できるのか不確定な点が多かったのですが、本研究を通して、122 系、11 系、111 系など、ほぼすべての鉄系超伝導体に対して、その電子状態を精密に調べる上で ARPES が強力な実験手法であることを示すことができたと考えています。とりわけ、本研究で明らかになった「母物質の磁気秩序状態におけるディラックコーン電子バンドの観測」は、近年大きな話題となっているグラフェンなどのディラック電子系と鉄系超伝導体との関連を見出したもので、鉄系超伝導体が、超伝導分野のみならずスピントロニクスなどの他の分野に対しても大きな波及効果があることを示唆しています。また、結晶構造が異なる様々な物質系で類似したフェルミ面のトポロジーが観測された ARPES 結果は、鉄砒素面(もしくは鉄カルコゲナイド面)の電子状態は結晶構造によらず普遍的で、超伝導のメカニズムも共通の枠組みで理解できることを示しています。さらに、鉄系超伝導体の不足ドープ領域において「擬ギャップ」が観測された実験事実は銅酸化物高温超伝導体における擬ギャップの関連を強く示唆するものであり、今後鉄ニクタイトと銅酸化物の電子状態の類似点・相違点を明らかにしていくことによって、銅酸化物高温超伝導体の超伝導機構に対しても重要な知見が得られるものと考えられます。

今後は、光電子分光装置の性能の更なる向上を図り、より T_c の低い(とりわけ超伝導ギャップ

のノード構造が示唆されている)鉄系超伝導体の超伝導ギャップの直接観測を試みることによって超伝導転移温度を決定する要素の絞り込みを行います。また、類似の結晶構造を持つニッケルニクタイトドやコバルト化合物等の超伝導機構を明らかにする研究を展開します。

(5-2) その他

まずはじめに、本研究に対する JST-TRIP の援助に心から感謝致します。

鉄系超伝導体の精密な ARPES 実験には、光電子分光装置の性能を向上した精度の高い実験が要求されますが、研究を始めた当初は試料表面の劣化や装置のエネルギー分解能が不十分だった問題などにより、より広汎な物質系に対して十分な精度の ARPES 実験が困難な状態でした。JST-TRIP の援助により、装置の大幅なアップグレードや改良を遂行することができ、上記の問題が解決できたことが、本研究において最も重要なポイントであったと考えております。また、新しい ARPES 結果が得られた際は、TRIP チーム内の多くの理論家や実験家とも議論する機会をいただき、論文を作成する上で大変有益な議論ができました。鉄系超伝導体関係の研究者が TRIP という一つのチームを作り、一堂に会して最新の情報を共有したり集中的に物理の議論をしたりしたことが、本研究の進展にとって非常に重要であったと思います。今後は、改良した光電子分光装置を利用した ARPES 研究をより強力に推進し、鉄系超伝導関連物質における超伝導機構を電子状態の立場から明らかにしていきたいと考えております。

最後になりますが、本研究を遂行するに当たり、研究統括・領域アドバイザーの先生方から多くの有益なご助言を頂きましたことに感謝いたします。