

(様式第 5 号)

## 高温超伝導物質 $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$ の角度分解光電子分光測定 Angle-resolved photoelectron spectroscopy on high-temperature superconductor $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$

細川伸也、Jens R. Stelhorn  
Shinya Hosokawa, Jens R. Stelhorn

熊本大学大学院先端科学研究部（理学系）  
Department of Physics, Kumamoto University

### 1. 概要

$\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  高温超伝導体の電子状態密度を角度分解光電子分光 (ARPES) 法により、超伝導を起こす 15 K より低い温度で測定し、特に超伝導状態に特徴的なフェルミ準位付近のクーロン・ギャップを詳細に観測することを目指した。しかしながら、低速電子線回折測定においても、ARPES 測定においても、単結晶試料の信号は全く得られなかった。実験後のラウエ測定では正方晶のラウエ斑点が検出されたので、現在次回の実験の準備のために、今回の ARPES 実験の不調の原因を探っている。

#### (English)

In this experiment, we tried to investigate electronic density of states of  $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  high-temperature superconductor below 15 K where the superconducting nature of this material is realized, by angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES), and to obtain the so-called Coulomb gap near the Fermi energy characteristic to the superconductivity. However, no signals were observed by low-energy electron diffraction for confirming the crystallinity and ARPES. Since the tetrahedral Laue spots were obtained by a Laue photograph after the experiment, and the reason why the ARPES experiment was failed, is now under investigation for the next ARPES measurement.

### 2. 背景と目的

$\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$  はもともと単純な Fe 系高温超伝導体 (超伝導転移温度~10 K 台) として知られ、その超伝導性と、構造的、磁氣的自由度との関連性が詳しく調べられている。X 線回折[1,2]によれば、 $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$  の原子構造は、図 1 に示すように  $\text{Fe}(\text{Se},\text{Te})_4$  ユニットが作る層が積み重なった層状構造をしている正方晶である。Fe 原子層を基準とすれば、Se 原子層の高さに比べて Te 原子層の高さはやや高い。一般的に受け入れられていることは、磁氣的なゆらぎがその超伝導性に大きな役割を果たしているらしいということで、理論計算によれば、Fe 層に対するカルコゲン元素の高さが磁気モーメントに強く影響すると考えられている。

これまでわれわれは、蛍光 X 線ホログラフィー[3,4]や XAFS[5]実験により、Fe 原子面に対して Se や Te 元素の位置を詳しく探求してきた。その局所的な結果は、周期性を観測する X 線回折の結果と必ずしも適合しない。すなわち、Se 層と Te 層はよく分裂していない上、それぞれの原子が角度方向に大きな位置ゆらぎを持つ。また、Fe 原子の(001)面内の位置ゆらぎも大きい。

このような  $\text{FeSeTe}$  高温超伝導体の原子構造上の詳しい知識を背景として、超伝導状態、特に超伝導クーロン・ギャップを直接観測できる光電子分光実験を、複雑な結晶の方位に依存性を持つ角度分解法で行う意義は非常に深い。先行研究[6]では、さまざまな濃度における  $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$  高温超伝導体の ARPES 測定は行われているが、測定温度は 25 K までにとどまっておらず、残念ながら超伝導が発現す

る 15 K 以下の温度領域では測定は行われていない。

本研究課題では、これまでの原子配列についての研究成果を基盤として、 $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  高温超伝導体の電子状態密度を角度分解光電子分光 (ARPES) 法により、超伝導を起こす 15 K より低い温度で測定し、特に超伝導状態に特徴的なフェルミ準位付近のクーロン・ギャップを詳細に観測することを目的とする。

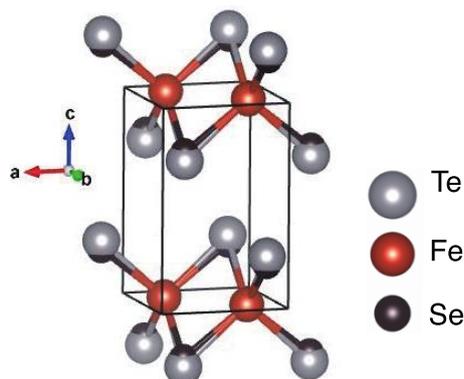


図1 X線回折によって得られた  $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  の結晶構造

### 3. 実験内容 (試料、実験方法、解析方法の説明)

$\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  単結晶試料は、物質・材料研究機構の高野義彦教授の研究室で、ブリッジマン法により作製したものを提供していただいた (図2参照)。劈開面から想定して  $\langle 001 \rangle$  方向からの写真であり、ラウエ写真を撮影してそれを確認した。



図2  $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  単結晶試料の外観

角度分解光電子分光法 (ARPES) による電子状態の測定は、BL10で行った。ビームラインに設置された結晶方位を確認するための低速電子線回折 (LEED) 装置、およびエネルギーバンド分散を調べるための ARPES 装置を、いずれも標準的な使用方法で用いた。 $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$  系超電導材料のフェルミ準位近傍のエネルギーバンド分散を調べた。液体 He を用いて試料温度を 10 K とし、超電導状態でのバンド分散の測定を行うことを試みた。

### 4. 実験結果と考察

結果からいうと、LEED 測定では結晶方位に関する情報は全く検知されず、ARPES 測定でもバンド構造を想定できる信号は、室温から 10 K の低温まで全く得られなかった。結晶構造に問題があると考えて、装置の外で劈開して測定を試みたが結果は変わらなかった。

熊本大学で実験後に同じ試料についてラウエ測定を行った結果を図3に示す。図から明らかなように、 $\langle 001 \rangle$  方向から見た正方晶のラウエ斑点がきれいに観測されるため、結晶構造が不完全であったわけではないことがわかる。したがって、ARPES 実験が不調であった原因は、現在でも良くわかっていない。

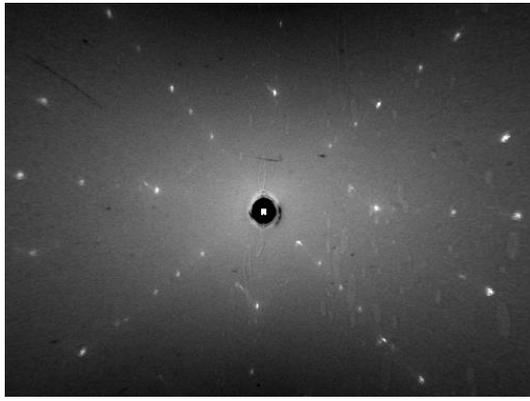


図 3 FeSe<sub>0.4</sub>Te<sub>0.6</sub> 単結晶試料の PES 測定後のラウエ写真

## 5. 今後の課題

まず、FeSe<sub>0.4</sub>Te<sub>0.6</sub> 単結晶試料を複数用意して、室温での測定を行うべきだろうと考える。その結果を精査して今回の測定の不調の原因を突き止め、次回の超低温測定に生かしたい。

## 6. 参考文献

- [1] M. Tegel et al., *Solid State Commun.* **150**, 383 (2010).
- [2] D. Louca et al., *Phys. Rev. B* **81**, 134524 (2010).
- [3] Y. Ideguchi et al., *Z. Phys. Chem.* **230**, 489-498 (2016).
- [4] J. R. Stellhorn et al., *Phys. Stat. Solidi B*, in press.
- [5] 細川伸也ほか、九州シンクロトロン光研究センター県有ビームライン利用報告書：1602001F (2016); 1611100F (2017).
- [6] E. Ieki et al., *Phys. Rev. B* **89**, 140506(R) (2014).

## 7. 論文発表・特許

該当なし

## 8. キーワード

電子構造、高温超伝導、光電子分光

## 9. 研究成果公開について (

② 研究成果公報の原稿提出

(提出時期： 2019年 6月)