

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 30 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2012

課題番号：23684027

研究課題名（和文） 汎用レーザー超高分解能光電子分光による相境界・共存相における特異な電子物性の解明

研究課題名（英文） Study of anomalous electronic phenomena in phase boundary/coexistence phase using commercially available laser ultrahigh resolution photoemission spectroscopy

研究代表者

木須 孝幸 (KISU TAKAYUKI)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・准教授

研究者番号：20391930

研究成果の概要（和文）：全て市販で入手可能な構成による汎用レーザー光電子分光システムの構築を行い、 $370 \mu\text{eV}$ のエネルギー分解能を達成し、Nb、 V_3Si など超伝導ギャップ観測に成功した。全て市販品で構成したレーザーを用いて分解能 1 meV 以下の分解能を達成したのは本課題が初めてである。将来的には $180 \mu\text{eV}$ を容易に達成可能である。国際競争力向上は大いに達成できたといえる。併せて、分子性超伝導体 $\text{k}-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$ の研究を行い、世界で初めてとなる超伝導ギャップ観測に成功している。

研究成果の概要（英文）：I have constructed commercially available laser photoemission system and achieved $370 \mu\text{eV}$ of energy resolution that enables us to measure superconducting gap of niobium and V_3Si . It is first time to realize the energy resolution better than 1 meV using commercially available laser. $180 \mu\text{eV}$ of energy resolution is easily realized using this system. Additionally, I have succeeded to observe the superconducting gap of $\text{k}-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$ for the first time in the world.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2011 年度	21,700,000	6,510,000	28,210,000
2012 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
年度			
総計	23,200,000	6,960,000	30,160,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：強相関係、レーザー光電子分光

1. 研究開始当初の背景

(1) 光電子分光法 (Photoemission spectroscopy: PES) は物質に光を入射して、外部光電効果により真空中に飛び出した電子のエネルギーを測定することにより、物質の占有電子状態を直接的に観測できる実験手法であり、十分に高いエネルギー分解能を持

ってフェルミ準位近傍のバンド分散を構成する準粒子を追えば、電子の輸送特性を決定づける物理量や電子に働く相互作用の強さを知ることができる。これを実現する超高分解能光電子分光は、研究代表者が前所属先の東京大学物性研究所においてレーザーを励起光源として用いることによって実現し、超

電導体の超伝導電子状態の解明など電子物性研究の切り札として非常に多くの成果を上げている。しかし、そのレーザーの構築のためには非線形光学結晶 KBBF が必須であるが、現在は入手不可能であるため、世界でも2か所のみでしか超高分解能レーザー光電子分光は実現していない。

(2) 強相関電子系において発現する諸物性はその電子構造と極めて密接な関連を持つ。特にフェルミ準位極近傍の電子構造は、これらの諸物性のデバイスへの応用に際して極めて重要である。例えば2008年に発見された鉄ニクタイトにおける高温超伝導は複数のバンドからなる複雑なフェルミ面を有しており、このような電子構造が生み出す特異な電子物性が注目を浴び、盛んに研究がなされている。強相関電子が織りなす特異な物性を利用した新規デバイス作成のため、レーザー超高分解能光電子分光を用いた電子状態のとy苦節観測により、直接的に諸物性発現のメカニズムを解明し、強相関が生み出す異常物性を利用した新規デバイス・材料開拓の指針を与えることが期待されている。

2. 研究の目的

本研究課題では、まず、光電子分光の励起光源となるレーザーを建設し、現所属研究室既存の光電子分光装置に導入し、超高分解能・偏光制御レーザー超高分解能ARPES研究を行えるようにする。そのうえで、汎用レーザー超高分解能光電子分光による強相関電子系における特異な電子物性の解明を目指し、「超高分解能光電子分光用レーザー開発」と「汎用レーザー超高分解能ARPESによる電子物性研究」の二つを大きな柱とする。

(1) 超高分解能光電子分光用レーザー開発
パルスレーザーを用いた場合、パルス毎に放出される光電子雲内において空間電荷効果(space charge effect)が発生して元の情報が失われてまい、数eVにも及ぶ分解能悪化を招く。これを避けるためには、パルスあたりの光子数を落とす上で光子数を確保するために繰り返し数を増やした連続・擬似連続光狭帯域レーザーが必要である。このようなレーザーは、現在のレーザーの進化の方向(大出力、広帯域超短パルス)とは真逆の方向である。KBBFを用いたレーザー($h\nu = 6.994$ eV)はこの条件を満たす最もエネルギーの高いレーザーであるが現在その構築は不可能である。そこで、繰り返し周波数80 MHz、出力2 mW、パルス長30 ps(バンド幅 ~ 100 μ eV)の狭帯域Ti:Sapphire第4次高調波レーザー(5.9 eV)を構築し、全分解能400 μ eV以下のシステム開発を目指す。

(2) 汎用レーザー超高分解能ARPESによる電子物性研究

① κ -(BEDT-TTF)₂X における超伝導・モッ

ト転移近傍の分子性導体における電子構造- κ -(BEDT-TTF)₂X はモット転移近傍に位置する擬二次元分子性導体である。この中でもX = Cu[N(CN)₂]Br ($T_c = 11.8$ K), Cu(NCS)₂ ($T_c = 10.4$ K)錯体は金属とモット絶縁体の境界領域に位置する典型的な錯体であり、強い電子相関が確認されている。その超伝導対称性は熱伝導実験より d_{xy} とされている。トンネル分光においては様々な値の超伝導ギャップサイズが報告されており、その起源はわかっていない。汎用レーザー超高分解能ARPESにより、バンド構造、超伝導ギャップ異方性、準粒子特性を明らかにし、分子性導体における電子相関と超伝導発現機構を解明する。

② 多層型銅酸化物高温超伝導体における超伝導・反強磁性と超伝導の共存-

3枚以上のCuO₂面を持つ「多層型」銅酸化物高温超伝導体には非等価な二種類のCuO₂面があり、外側2枚は酸素が5配位のピラミッド構造、内側は4配位の平面構造を持っている。核磁気共鳴(NMR)法により層ごとの超伝導、磁性について研究がなされており、特に五層型(Hg-1245, Cu-1245)においては層間におけるキャリアドープの不均一性により、超伝導と反強磁性の共存が見られる興味深い系であることが明らかになってきた。超高分解能ARPESにより、この物質におけるバンド分散、フェルミ面、超伝導ギャップの温度依存性及び異方性、高分解能を生かした二つの相に起因するバンド構造の分離を通じて、超伝導発現機構と高温超伝導実現に何が必要かを解明する。

3. 研究の方法

本研究では大阪大学において現在保有する角度分解光電子分光装置(本研究と並行してアナライザーの高度化を行う)に汎用狭帯域紫外レーザーを導入し、世界最高レベルの分解能を持つレーザーARPESを主軸とし、特異な電子物性を示す強相関物質の電子構造の解明を行う。具体的にはモット転移近傍の超伝導分子性導体 κ -(BEDT-TTF)₂ Cu[N(CN)₂]Br、 κ -(BEDT-TTF)₂ Cu(NCS)₂と多層型銅酸化物高温超伝導体Hg-1245、Cu-1245の良質な単結晶を対象とした高精度のARPESを行う。必要に応じて、他の励起光源(マルチ希ガス放電管(8~40 eV)、放射光(50~1000 eV))を相補的に用いることにより、広い運動量空間にわたり電子構造を網羅し、これらの物質における表面分子再構成や擬2次元性などの影響も考慮する。また、これらの温度依存性を詳細に追うことにより、相転移に伴う電子構造変化の詳細な直接観測を行う。

(1) 超高分解能光電子分光用汎用狭帯域レーザーの開発

レーザーは汎用性を考慮し、研究用としてよ

く用いられる Ti: Sapphire レーザーをベースとする。具体的には、励起用レーザーとして LD 励起 CW グリーン固体レーザー (Spectra-Physics Millennia Prime 15: 15 W) を使い、モードロック Ti:Sapphire レーザーとしては一般的に 100 fs 以下が用いられているが、エネルギー分解能の向上と空間電荷効果の軽減のため、パルス幅 30 ps のものを特注 (Spectra-Physics Tsunami 3950-HP ps) して用いる。このようなモードロック Ti:Sapphire レーザーの電子分光研究への用途は前例がないが、物性研究のためのツールとして将来必須のものになると考える。波長は基本波で 840 nm とし、2 倍波 (SHG) 420 nm、4 倍波 (FHG) 210 nm (5.905 eV) を非線形光学結晶 β -BaB₂O₄ (BBO) を用いて発生させる。長パルス化による尖頭値の減少に起因する波長変換効率の低下を補うため、BBO は通常の fs レーザーで用いるものより大幅に厚いものを用い、実現可能な高調波として 210 nm で 2mW の出力を目指す。なお、光電子分光測定時におけるビーム品質の確保のためオートコリレーターを設置し、常時パルス波形のモニターを行う。

(2) 汎用レーザー超高分解能 ARPES による電子物性研究

① κ -(BEDT-TTF)₂X における超伝導 -モット転移近傍の分子性導体における電子構造- これらの系において ARPES に耐える表面を得ることができるのは世界で研究代表者のみである。低エネルギー励起バルク敏感高効率超高分解能 ARPES を行うことにより、従来の制限を打破し、強相関分子性導体におけるバンド構造、超伝導ギャップ、準粒子特性を明らかにし、この系における電子相関や超伝導の起源及びその関連を解明する。

② 多層型銅酸化物高温超伝導体における超伝導 -反強磁性と超伝導の共存- レーザー超高分解能光 ARPES により、多層型銅酸化物高温超伝導体のバンド構造、特にノード方向及びオフノードにおける準粒子特性の異方性を高エネルギー分解能と高波数分解能を駆使して各要素ごとに分離して調べ、超伝導と反強磁性の関連について研究を行い、他の銅酸化物超伝導体との類似点、相違点を見出し、真の相図を知る指針を得て、長年の夢である高温超伝導実現の必要条件を解明する。

4. 研究成果

本研究課題の主題である、KBBF を用いない超高分解能光電子分光用の擬似連続狭帯域紫外レーザーの発振に世界で初めて成功した。並行して行っていた、既存光電子分光装置の高度化既存光電子分光装置の高度化と併せ、パスエネルギー 1 eV、測定温度 2.8 K

の条件下において 370 μ eV のエネルギー分解能を達成した。これは KBBF を用いた超高分解能レーザー光電子分光装置と同等であり、本研究課題目的を達成することができた。得られた超高分解能により、Nb、V₃Si の超伝導ギャップの直接観測にも成功した。

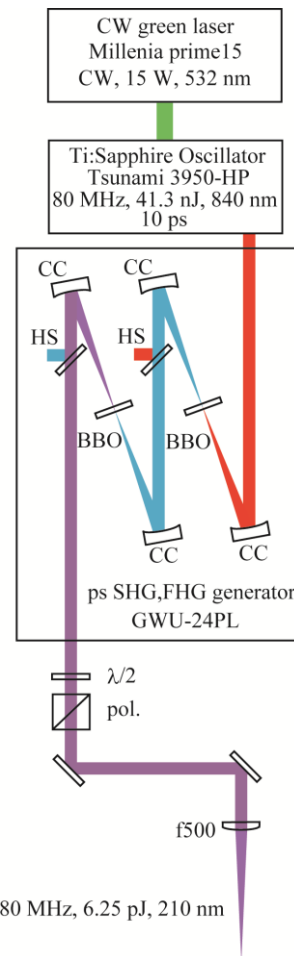


図 1. 建設したレーザーの概略図



図 2. 汎用レーザー光電子分光装置

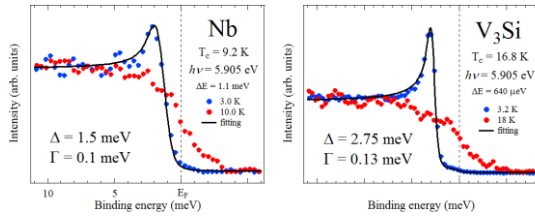


図3. Nb と V3Si の超伝導ギャップ

さらに将来の高度化を踏まえ、レーザーの単色性を簡単に半分にできるようにしているため、パルスエネルギー0.5 eVにおいて180 μeVを容易に達成可能となっている。

本研究課題における汎用レーザー光電子分光装置構築成功に対する反響は非常に大きく、国内各所にて本研究課題と同様のシステムの導入が検討されており、本研究課題の目的達成を通じて我が国における分光研究のボトムアップと国際競争力の向上に大きく貢献した。

相境界・共存相における電子状態の解明のため、分子性導体 $k-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$ においてフェルミ準位極近傍の電子状態の研究を行った。汎用レーザー光電子分光装置構築完了が最終年度12月であったため、本研究を期間内に完結できなかったものの、従来の装置よりはるかに効率的な光電子収量が得られ、世界で初めてとなる超伝導ギャップ観測に成功するなど、研究は順調に推移している。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計1件)

池田真司、山口貴司、畠山千佳、池内久晃、藤原秀紀、木須孝幸、関山明、汎用レーザーを用いた超高分解能光電子分光装置の建設、第26回日本放射光学会、2013.1.14、名古屋大学

[その他]

ホームページ等

<http://decima.mp.es.osaka-u.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木須 孝幸 (TAKAYUKI KISS)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・准教授
研究者番号：20391930