

平成30年 8月26日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2013～2017

課題番号：25220707

研究課題名(和文) 極低温・超高分解能レーザー光電子分光の開発と低温超伝導体の超伝導機構の解明

研究課題名(英文) Development of ultralow temperature and ultrahigh-resolution laser-based photoemission spectroscopy and investigation of the mechanism of exotic superconductors

研究代表者

辛 埴 (SHIN, SHIK)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：00162785

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 156,700,000円

研究成果の概要(和文)：世界の追従を許さない最低温度と最高分解能の未踏性能を持つヘリウム3クライオスタット搭載型の角度分解光電子分光装置を開発し、エキゾチック低温超伝導体の機構解明に取り組んだ。我々は、1K以下の試料到達温度を達成し、また、光電子アナライザーとsCMOS型検知器システムを連動制御するソフトウェアを開発することで、高速フレームレート測定を可能とした。本研究により、世界で初めて、鉄系超伝導体がトポロジカル超伝導を示すことを実証した。更に、バルク超伝導体上に薄膜成長させたトポロジカル物質において、近接効果由来の超伝導ギャップがスピン偏極バンドに開く観察に成功した。

研究成果の概要(英文)：The main purpose in our project is to develop angle-resolved photoelectron spectroscopy (ARPES) which achieves the minimum temperature less than 1K and the highest energy-resolution not reached before, and elucidate the mechanism of unconventional low-temperature superconductors. We have developed the state-of-the-art ARPES equipped with He3 cryostat, which enables an extremely low temperatures less than 1K. We have also developed measurement software which incorporates a photoelectric analyzer and a sCMOS-type camera (not a conventional CCD camera) to allow measurements at a high-speed frame rate. We have demonstrated that an iron-based superconductor is a topological superconductor. In addition, we have succeeded in observation of detailed superconducting gaps in the spin polarization band for the topological material grown as a film on a bulk superconductor.

研究分野：電子物性

キーワード：光電子分光 レーザー 超電導 超低温 高分解能

1. 研究開始当初の背景

東大物性研は、レーザー光電子分光を世界に先駆けて開発することに成功し、エネルギー分解能において、常に世界をリードしてきた。特に、光電子分光器、ヘリウム4クライオスタット、そして高分解能用準 CW-7eV レーザーを独自に開発することで、角度分解光電子分光法 (ARPES) において現在世界最高分解能となる $70\mu\text{eV}$ のエネルギー分解能を達成している。また、試料部到達温度でも ARPES として世界最低温度となる 1.0K を達成していた。これにより、これまで注目されながらも T_c が低く従来の ARPES では不可能であった鉄系超伝導体 KFe_2As_2 ($T_c=3.4\text{K}$) の超伝導ギャップ構造を詳細に測定することが可能となった。他の鉄系超伝導体では、全方位でギャップが開くことが知られていた。それとは異なり、 KFe_2As_2 の超伝導ギャップにはノードが有ることを見出した (Okazaki et al. Science 2012)。装置開発でこれまで蓄積してきたノウハウを駆使することで、さらなる極限性能を持つヘリウム3クライオスタット搭載型の次世代レーザーARPESの開発と、その先にあるエキゾチック低温超伝導研究の可能性が開けてきた。

2. 研究の目的

超伝導の機構解明にアクセスするために最も重要な情報が超伝導ギャップの運動量空間での詳細構造である。ARPESは、物質の電子構造を直接観測する強力なツールであり、これまで、高温超伝導体を持つ超伝導ギャップの対称性や、超伝導対の形成を媒介するモードと電子がカップリングして発現するバンドの折れ曲り等、様々な微細電子構造を解明してきた。一方、 T_c の低い非従来型超伝導体が多く、その機構解明に重要となる超伝導ギャップの対称性を ARPES で直接観測することが不可能であった。これは、ARPES の分解能と最低到達温度が不十分であるために他ならない。超伝導の多様性を解明し、室温超伝導への可能性も含めて新規超伝導体の設計・発見への指針を得る上で、ARPES による低温非従来型超伝導体の研究を実現させることを目的とする。

3. 研究の方法

これまで培ってきた高調波レーザー、極低温クライオスタット、高分解能光電子分光の技術を大幅に発展させて、未踏性能を持つ高分解能 ARPES 装置を開発し、これまで T_c が低すぎて測定が不可能であったエキゾチック超伝導体の超伝導ギャップの詳細な観察を行う(図1参照)。また、近年トポロジカル超伝導体の開拓が競って行われているが、ARPESでの直接バンド観察による実証がなされていなかった(図2参照)。本研究で開発する最新鋭の装置を用いることでそれが可能となり、物性研究に新たな展開をもたらす。建設する

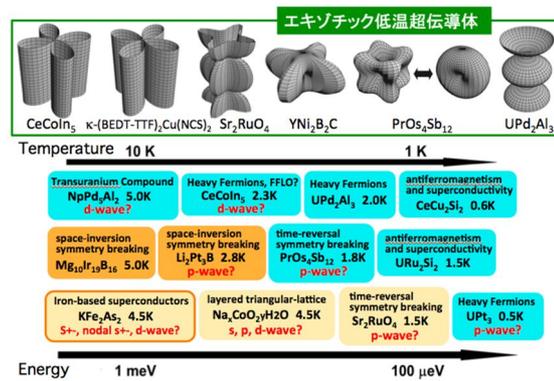


図1 種々なエキゾチック低温超伝導体性。

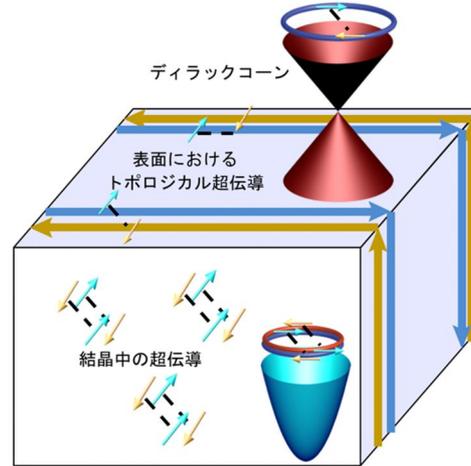


図2 結晶中の超伝導と表面に出来たトポロジカル超伝導の模式図。矢印は電子の持つスピンを表す。超伝導になると、電子同士がペアを作る。矢印は電子の持つスピンを表す。

装置では、ヘリウム3クライオスタットを新たに開発し、試料到達温度で 1K 以下を目指す。また、高調波レーザーの高繰り返し化・CW化を行うことにより、 1K 以下の測定を最大限活かすだけの極超高エネルギー分解能を達成する。具体的には、本研究では、試料到達温度 0.5K 、測定分解能 $50\mu\text{eV}$ を目指しての ARPES 装置の開発を目標にし、そのための主要パーツとして、 ^3He クライオスタットおよび、エネルギー分解能 $20\mu\text{eV}$ を持つ検知器を搭載し建設を行う。本プロジェクトにより開発される極限的 ARPES 装置により、図1に示すエキゾチック超伝導体の機構について、重要な知見を得る。また、図2に示すトポロジカル超伝導体で発現が予想されるマヨラナフェルミオンなど、新奇なトポロジカル量子相の実現可能性も検証する。多様な超伝導対形成機構の理解を進めることで、新規超伝導体の設計・発見にも大きく貢献できると考えている。

4. 研究成果

本研究により、図3のような超高分解能極低温レーザー光電子分光装置が完成した。低温に関しては、図4のように、装置の主要3箇所モニターした温度を表示しているが、試料部温度 0.59K を到達することに成功した。

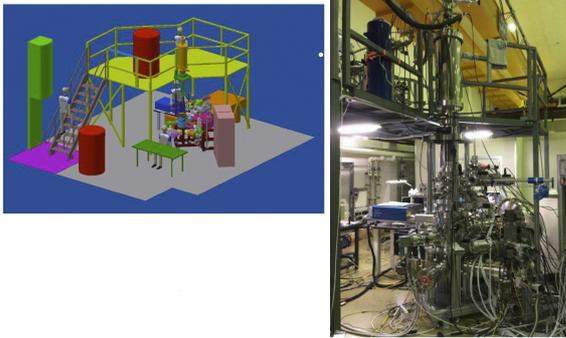


図3 本研究により完成した超高分解能極低温レーザー光電子分光装置（左図はボンチ絵、右図は写真）

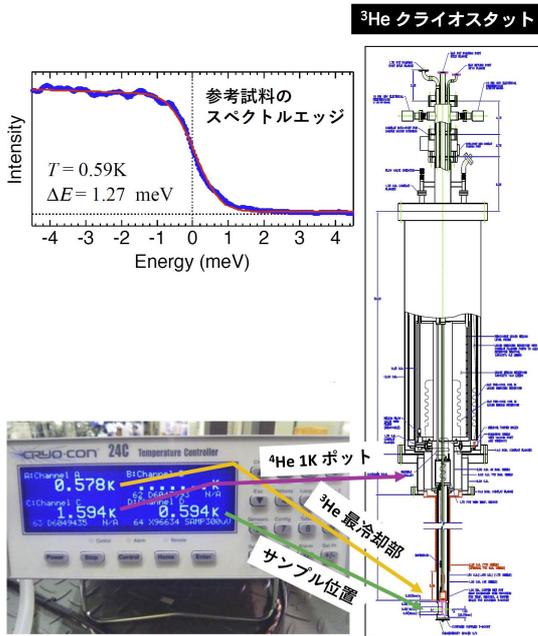


図4 本研究により達成された極低温クライオスタット（右側と左下図）、極低温化での光電子スペクトル（左上図）

試料上で、1K以下の到達温度を達成した光電子分光装置は世界で初めてである。一方、光電子分光検知器のエネルギー分解能 $20 \mu\text{eV}$ を持つ新型検知器も完成させることが出来た。しかし、参考試料のフェルミエッジから分解能を見積もったところ 1.27meV であった。この分解能の劣化の原因は、主として建物のアースの不備である事が判明しており、装置自体の分解能はもっと良いことが考えられる。目標として掲げる最高分解能 $50 \mu\text{eV}$ を得るためには、建物自体の電源アースの最適化等の大幅改修が必要となるが、今後も努力していく所存である。しかし、ほとんどの極低温超伝導物質の物性評価には本分解能でも十分可能であるため、この世界一の極低温高分解能光電子分光装置を物性研究所の全国共同利用施設として公開していく方針である。

FeSeにおけるネマティック状態に敏感な超伝導ギャップの異方性:
(Hashimoto et al., Nature. Communications 9,

282 (2018).)

高い温度での超伝導を実現するには、非従来型超伝導体における超伝導メカニズム、つまり電子対が形成されるメカニズム、を理解することが重要となる。鉄系超伝導体は銅酸化物高温超伝導体に次ぐ高い超伝導転移温度を持つ非従来型超伝導体の一つである FeSe では、超伝導のメカニズムの理解において最も重要な性質である超伝導ギャップにおけるノードの有無について意見が分かれていた。その解決には、ノードを詳細に観測することが重要だが、ノードを見分けるには 1 meV 以下のエネルギー分解能が必要であり、従前の手法ではエネルギー分解能が不十分なためにそのノードを直接観測することができなかった。本研究では、鉄系超伝導体の一種 FeSe について、極低温超高分解能レーザー角度分解光電子分光装置を用いて、超伝導ギャップを直接観測した。この極低温 超高分解能レーザー角度分解光電子分光装置は、非従来型超伝導体の超伝導ギャップを直接観測する装置として、現在世界最高のエネルギー分解能を有している。実験の結果、図3のように、超伝導ギャップにノードがある場合とノードが無い場合とがある事を発見した。これまでの研究で、走査型トンネル顕微鏡を用いた実験により、電子状態の対称性が結晶構造の対称性よりも低くなる「電子ネマティック秩序」のドメイン境界において、時間反転対称性が破れ、超伝導ギャップのノードが無くなる事が示唆されていた。今回の結果によって、試料表面でドメイン境界が少ない場所では超伝導ギャップにノードが存在し、ドメイン境界が多い場所ではノードが無くなる、という事が超伝導ギャップの直接観測によって確かめられた。

超伝導ギャップにおけるノードの有無は、超伝導メカニズムがフォノン媒介による従来型か、非従来型か、を判断する最も明確な基準の一つとなるが、多くの場合、比熱、熱伝導度、磁場進入長などといった試料全体を測定するいわゆるバルク測定で判断されてい

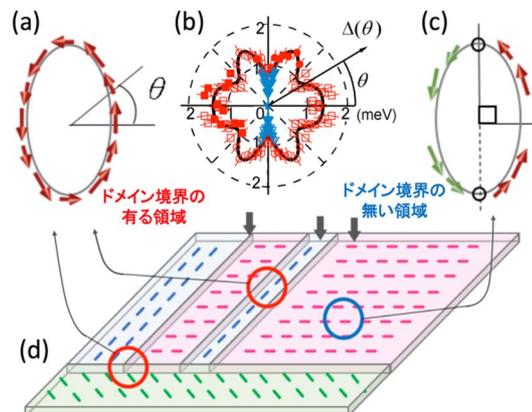


図5 (a,b,c) FeSe の単結晶表面でのドメイン境界と超伝導ギャップのノードの有無。(d) FeSe の表面では、「電子ネマティック秩序」のドメイン境界が多く存在する場所と少ない場所が存在する。

た。本研究の成果は、バルク測定では一見超伝導ギャップにノードが存在しないように見える物質でも、マイクロ測定により、超伝導ギャップを直接観測することによってのみ、ノードの存在が確かめられる場合があることが分かり、超伝導メカニズムの理解において、極めて重要な結果であると言える。

鉄系超伝導体表面で発現するトポロジカル超伝導の発見:

(Zhang et al., *Science* 360, 182–186 (2018).)

トポロジカル物質は、現在最も盛んに研究が展開されている分野の一つである。トポロジカルの理論的概念を超伝導体に適用すると、画期的に新しい性質が物質に付加されることが分かっている。また、トポロジカル超伝導体には、マヨラナ粒子が潜んでいる可能性が理論的に指摘されている。マヨラナ粒子は、素粒子物理学で「幻の粒子」と呼ばれる未発見の素粒子である。ニュートリノがマヨラナ粒子である可能性が指摘されているが、実験的にはまだ証明されていない。このため、このような幻の粒子を素粒子だけではなく固体表面にも発見する事が世界的な競争になっている。一方、マヨラナ粒子は、粒子と反粒子が同一になるという性質があり、この性質は擾乱に強い新しい量子コンピューターに利用できる可能性をもっており、この分野でも世界的な競争となっている。

これまで、高温超伝導体の1つとして広く知られていた鉄系超伝導体 $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ について、超高分解能レーザー角度分解光電子分光装置を用いて詳細な電子構造を測定した。その結果、図4のように、この物質においてトポロジカル状態の証拠の1つであるディラックコーンを発見した。更に、スピン編

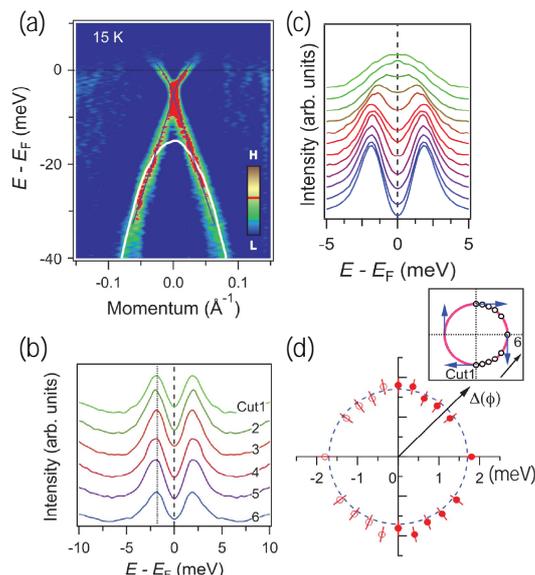


図6 (a) バルク由来のギャップ内に観測される表面ディラック電子構造。(b) 表面電子構造のフェルミ面周りで観測した超伝導ギャップ。(c) 超伝導ギャップの温度依存性。(d) 超伝導ギャップの方位依存性。

曲した表面電子構造に、超伝導ギャップを直接観測することに成功し、この物質の表面がトポロジカル超伝導であることを明らかにした。鉄系超伝導体はこれまで非常に多くの研究者によってその電子物性が調べられて来たが、従来の実験手法では分解能が足りず、今回見出したトポロジカル超伝導の証拠が発見されていなかった。本成果により、固体表面上のマヨラナ粒子を発見できることが技術的に可能である事が示された。今後、素粒子物理学では出来なかった研究、例えば、ニュートリノがマヨラナ粒子であるかどうかのヒントを得るなどの研究の展開が期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 87 件) 以下全件、査読有

1. Antiphase Fermi-surface modulations accompanying displacement excitation in a parent compound of iron-based superconductors: K. Okazaki, J. Itatani, A. Fujimori and S. Shin, 他 11 名, 15 番目, *Phys. Rev. B* 97 (2018) 121107(R) (1-6). DOI:10.1103/PhysRevB.97.121107
2. Kondo hybridization and quantum criticality in $\beta\text{-YbAlB}_4$ by laser ARPES: C. Bareille, S. Nakatsuji, T. Kondo and S. Shin, 他 5 名, 9 番目, *Phys. Rev. B* 97 (2018) 045112 (1-7). DOI:10.1103/PhysRevB.97.045112
3. Experimental Determination of the Topological Phase Diagram in Cerium Monopnictides: K. Kuroda, H. S. Suzuki, S. Shin, R. Arita and T. Kondo, 他 13 名, 16 番目, *Phys. Rev. Lett.* 120 (2018) 086402 (1-6). DOI:10.1103/PhysRevLett.120.086402
4. Observation of topological superconductivity on the surface of an iron-based superconductor: P. Zhang, T. Kondo, K. Okazaki, H. Ding and S. Shin, 他 6 名, 11 番目, *Science* 360 (2018) 182-186. DOI: 10.1126/science.aan4596
5. Superconducting gap anisotropy sensitive to nematic domains in FeSe: T. Hashimoto, T. Shibauchi, K. Okazaki and S. Shin, 他 8 名, 12 番目, *Nat. Commun.* 9(2018)282 (1-7). DOI:10.1038/s41467-017-02739-y
6. Superconducting Pairing of Topological Surface States in Bismuth Selenide Films on Niobium: D. Flötotto, K. Okazaki, S. Shin and T.-C. Chiang, 他 6 名, 10 番目, *Sci. Adv.* 4 (2018) eaar7214/1-5. DOI: 10.1126/sciadv.aar7214
7. Ultrafast Melting of Spin Density Wave Order in BaFe_2As_2 Observed by Time- and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy with Extreme-Ultraviolet Higher Harmonic Generation: H. Suzuki, K. Okazaki, J. Itatani, A. Fujimori and S. Shin, 他 11 名, 16 番目, *Phys. Rev. B* 95 (2017) 165112(1-6).

DOI:10.1103/PhysRevB.95.165112

8. Visualizing the evolution of surface localization in the topological state of Bi_2Se_3 by circular dichroism in laser-based angle-resolved photoemission spectroscopy: T. Kondo, Y. Ishida, Y. Tokura and S. Shin, 他 3 名, 7 番目, Phys. Rev. B 96 (2017) 241413(1-5). DOI:10.1103/PhysRevB.96.241413
9. Observation of Bogoliubov Band Hybridization in the Optimally Doped Trilayer $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$: S. Kunisada, S. Shin and T. Kondo, 他 8 名, 10 番目, Phys. Rev. Lett. 119 (2017) 217001 (1-5). DOI:10.1103/PhysRevLett.119.217001
10. Unconventional superconductivity in the BiS_2 -based layered superconductor $\text{NdO}_{0.71}\text{F}_{0.29}\text{BiS}_2$: Y. Ota, K. Okazaki, Y. Takano and S. Shin, 他 7 名, 11 番目, Phys. Rev. Lett. 118 (2017) 167002(1-6). DOI:10.1103/PhysRevLett.118.167002
11. Evidence for magnetic Weyl fermions in a correlated metal: K. Kuroda, R. Arita, S. Shin, T. Kondo and S. Nakatsuji, 他 17 名, 20 番目, Nature Mater. 16 (2017) 1090-1095. DOI:10.1038/nmat4987
12. Antiferroic electronic structure in the nonmagnetic superconducting state of the iron-based superconductors: T. Shimojima, W. Malaeb, A. Nakamura, T. Kondo, K. Kihou, Chul-Ho Lee, A. Iyo, H. Eisaki, S. Ishida, M. Nakajima, S. Uchida, K. Ohgushi, K. Ishizaka, S. Shin, Sci. Adv. 3, e1700466(1-6) (2017) DOI: 10.1126/sciadv.1700466
13. Fermi arc electronic structure and Chern numbers in the type-II Weyl semimetal candidate $\text{Mo}_x\text{W}_{1-x}\text{Te}_2$: I. Belopolski, Y. Ishida, T. Kondo, S. Shin and M. Z. Hasan, 他 28 名, 32 番目, Phys. Rev. B 94 (2016) 085127 (1-7). DOI:10.1103/PhysRevB.94.085127
14. Revealing the ultrafast light-to-matter energy conversion before heat diffusion in a layered Dirac semimetal: Y. Ishida, S. Ishiwata and S. Shin, 他 2 名, 5 番目, Phys. Rev. B 93 (2016) 100302(6 pages). DOI:10.1103/PhysRevB.93.100302
15. Slater to Mott Crossover in the Metal to Insulator Transition of $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$: M. Nakayama, T. Kondo, S. Nakatsuji and S. Shin, 他 15 名, 19 番目, Phys. Rev. Lett. 117 (2016) 05640(1-6). DOI:10.1103/PhysRevLett.117.056403
16. Quadratic Fermi node in a 3D strongly correlated semimetal, T. Kondo, Y. Ishida, S. Nakatsuji, L. Balents, S. Shin, 他 16 名 21 番目, Nature commun. 6, 10042 (2015). DOI:10.1038/ncomms10042
17. Temperature dependence of magnetically active charge excitations in agnetic across the Verwey transition, M. Taguchi, A.Chainani, Y. Ishida, S. Shin, 他 16 名 19 番目, Phys. Rev. Lett. 115, 256405(1-5) (2015). DOI:10.1103/PhysRevLett.115.256405
18. Spin polarization and texture of the Fermi arcs in the Weyl Fermion semimetal TaAs, S-Y. Xu, K. Yaji, T. Kondo, S. Shin, M. Z. Hasan, 他 24 名 25 番目, Phys. Rev. Lett. 116, 09680 (2015). DOI:10.1103/PhysRevLett.116.096801
19. Gigantic surface lifetime of an intrinsic topological insulator, M. Neupane, Y. Ishida, S. Shin, M. Z. Hasan, 他 12 名 11 番目, Phys. Rev. Lett. 115, 116801(1-5) (2015). DOI:10.1103/PhysRevLett.115.116801
20. Point nodes persisting far beyond T_c in Bi_2Tl_2 , T. Kondo, Y. Ishida, S. Shin, 他 5 名 8 番目, Nature commun. 6, 7699 (2015). DOI:10.1038/ncomms8699
21. Observation of quadrupole helix chirality and its domain structure in $\text{DyFe}_3(\text{BO}_3)_4$, T. Usui, M. Taguchi, A. Chainani, S. Shin, T. Kimura, 他 4 名 7 番目, Nature materials, 13, 611-618 (2014). DOI:10.1038/nmat3942
22. Surface electronic structure of the topological Kondo-insulator candidate correlated electron system SmB_6 , M. Neupane, T. Kondo, Y. Ishida, S. Shin, M. Z. Hasan, 他 14 名 16 番目, Nature commun. 4, 2991(1-7) (2013). DOI:10.1038/ncomms3991

[学会発表](計 56 件)

[その他]

ホームページ <http://shin.issp.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

- (1) 研究代表者 辛 埴 (SHIN, Shik)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号：00162785
- (2) 研究分担者 石田 行章 (ISHIDA, Yukiaki)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号：30442924
- (3) 研究分担者 近藤 猛 (KONDO, Takeshi)
東京大学・物性研究所・准教授
研究者番号：40613310