

平成 30 年 4 月 19 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17741

研究課題名(和文) 極低温超高分解能レーザー角度分解光電子分光による非従来型超伝導電子状態の解明

研究課題名(英文) Laser angle-resolved photoemission spectroscopy on unconventional superconductor

研究代表者

大田 由一(Ota, Yuichi)

東京大学・物性研究所・特任研究員

研究者番号：60737237

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：近年発見された新奇BiS2系超伝導体や、非従来型超伝導が提唱されている重い電子系超伝導体CeCoIn5の超伝導電子状態を直接観測するため、極低温超高分解能レーザー角度分解光電子分光装置の改良を行った。改良により微小領域を長時間安定して測定することが可能となり、BiS2系超伝導体やCeCoIn5超伝導体単結晶試料中の良質な部分を選択して測定することが可能となり、これらの超伝導電子状態の直接観測に成功した。

研究成果の概要(英文)：We update our laser-based angle-resolved photoemission spectroscopy apparatus and investigate the superconducting-gap anisotropy in recently discovered BiS2-based superconductor and heavy fermion superconductor CeCoIn5. By carefully adjusting the focal point of the laser and reducing the spot size to as small as ~ 0.1 μm at the cleaved sample surface, we can probe a region of high quality in the single crystal, and we observe a strongly anisotropic superconducting-gap.

研究分野：物性物理

キーワード：光電子分光 超伝導

1. 研究開始当初の背景

近年、室温超伝導実現への向けた研究として超伝導転移温度(T_c)が 100K を超える銅酸化物高温超伝導体やそれに次ぐ T_c を持つ鉄系高温超伝導体の非従来型超伝導機構解明が盛んに行われている。2012 年には水口らによってこれらの非従来型高温超伝導体と類似した層状結晶構造を持つ新奇 BiS₂ 系超伝導体($T_c \leq 10K$)が発見された[1]。これらは同様の層状結晶構造を持つものの、銅酸化物や鉄系超伝導体は d 電子が伝導を担う強相関電子系であるが BiS₂ 系超伝導体は p 電子が伝導を担うという相違もあり、どのような超伝導機構をもつのか興味深い。また、重い電子系超伝導体($T_c \leq$ 数 K)も局在 f 電子と伝導電子が混成しスピン揺らぎを媒介とした非従来型超伝導が発現すると提唱されており、これらの超伝導電子状態を特定することは室温超伝導を実現する非従来型超伝導メカニズム発見のために重要な課題である。

2. 研究の目的

我々が開発した極低温超高分解能レーザー角度分解光電子分光(ARPES)装置に改良を行うことによって、上記の新奇超伝導体や非従来型超伝導体の超伝導電子状態直接観測を可能とし、その超伝導機構を解明することで室温超伝導実現への知見を得る。

3. 研究の方法

極低温レーザーARPESによって新規 BiS₂ 系超伝導体 Ln(O,F)Bi(S,Se)₂ や重い電子系超伝導体 CeCoIn₅ の超伝導電子状態の直接観測を行う。そのためには、以下の2点が問題となるため、まずは光電子分光装置の改良を行う。

・光電子分光装置の改良

清浄平坦な試料劈開面と光電子分光装置の空間分解能

これまでに我々は LnO_{1-x}F_xBiS₂ 系で最も T_c の高い Nd 系 NdO_{0.71}F_{0.29}BiS₂ における ARPES 観測を行い超伝導ギャップにノードが存在することを明らかにしている。しかし、磁場侵入長測定ではノードが存在しないことが示唆されており、一見我々の結果と矛盾する。この相違に関して鉄系超伝導体における電子線照射実験から、超伝導ギャップ対称性が拡張 S 波でノードを持つ場合、格子欠陥によってギャップ異方性が抑制されノードが消失するということが報告されている[2]。Nd(O,F)BiS₂ 系は格子欠陥の少ない単結晶試料育成が難しいことが報告されており、試料全体では超伝導ギャップ異方性が抑制されてしまうと考えられる。よって BiS₂ 系超伝導体のバルクの物性評価には、欠陥の少ない微小領域を選択的に測定できる空間分解能が重要となる。また、この空間分解能は CeCoIn₅ の ARPES 測定を行う上でも重要な要素である。光電子分光測定は真空中で試料

を劈開・破断し清浄表面に励起光を照射して実験を行うが、重い電子系超伝導体において比較的 T_c の高く超伝導電子状態観測が可能な CeCoIn₅ や UPd₂Al₃、U₆Fe といった物質は劈開性が悪く、ARPES 可能な平坦な表面を得ることが難しい。破断表面から平坦な微小面積を選択可能な空間分解能が必要となる。

高エネルギー分解能測定における S/N と長時間測定時の測定位置安定性

ARPES 測定において測定条件を高分解能化すると光電子のシグナル強度が低下し、十分な S/N のデータを得るためには測定時間が長時間化する。一方で述べたように試料の良質な部分を選択しての測定が必要となるので、試料へのレーザー照射位置の長期安定性が求められる。

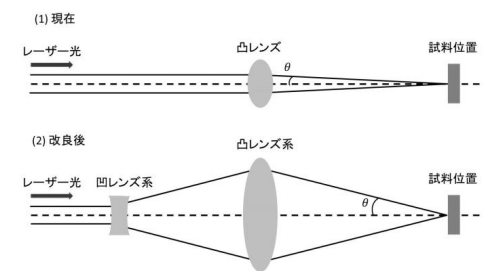


図1 集光光学系改良の概要

の問題を解決するため光学系の改良を行う。まずはの問題に対し空間分解能の向上を図る。励起光源のスポットサイズ狭窄化のための、集光光学系の改良である。

図 1(1)に現在の集光光学系の概要を示す。改良前の光学系は、ほぼ発散がない並行光線であるレーザー光をサンプル手前の凸レンズで試料位置に集光していた。試料位置でのスポットサイズ(回折限界)はを光源の波長、 n を屈折率として $\lambda/n \sin \theta$ と表せる。よって、図 1(2)に示すように、試料に集光する前のスポットサイズを一度拡大した後に集光することによって、試料位置でのスポットサイズをより絞ることが可能となる。実際には拡大したスポットサイズを並行光にするなどの工程があるため、凹レンズ系、凸レンズ系は図よりも複雑となる。この機構に関しては、同様のシステムの納入実績のある業者に設計を相談する。この改良は、他の劈開性の悪い破断試料においても有用である。破断面内から ARPES 可能な平坦部分を選択的に測定することが可能となる。

次にについて、光路の時間安定性の向上を行う。本研究において装置改良を行う前の我々の実験装置では、光電子分光の励起光源として 177nm の真空紫外光を用いている。これは、大気中で減衰してしまうため、真空チャンパー内光学系と組み、測定槽の試料位置に入射している。この真空チャンパー内のミラー等光学部品は、チャンパー外と治具を

使って直接接続して制御している。この機構のメカニカルな負荷によって光学系が不安定になっているので、真空チャンバー内の光学系制御機構を一新し、チャンバー外と直接接続せずアクチュエーターで動かすことでレーザー光路の安定化を図る。

・超伝導電子状態の観測

上記改良後の極低温超高分解レーザーARPESによって新規BiS₂超伝導体Ln(O,F)Bi(S,Se)₂と重い電子系超伝導体CeCoIn₅の超伝導電子状態観測を行い、超伝導ギャップ異方性の特定を行う。

4. 研究成果

以下に、主な3つの成果について示す。

・光学系改良：新規光学チャンバー導入

図2に、レーザー照射位置安定及びスポットサイズ狭窄化のために導入した新規光学チャンバーを示す。

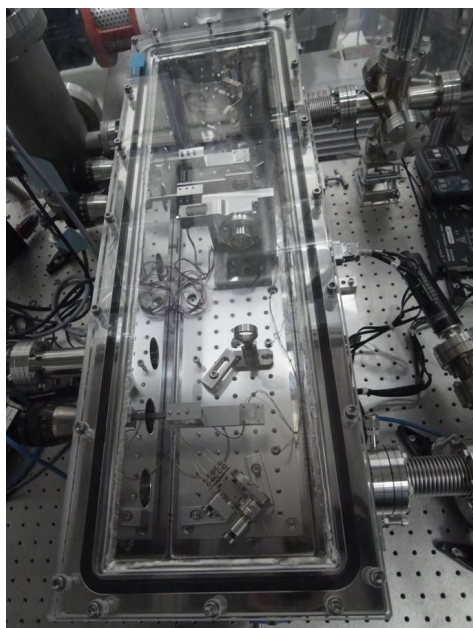


図2 新規導入した真空チャンバー

これまでではレーザー光を測定槽まで通すためのミラー調整に、治具を使って真空の外側から直接接続して調整していた。新規チャンバーではミラーにアクチュエーターを取り付け、非接触でのミラー調整が可能となり、光路の安定性が向上した。また、スポットサイズの狭窄化については、初期の研究計画では必要としている機構の納入実績のある業者に設計・製作を依頼する予定だったが、高額であるため同様の機構を自作することにした。図2のチャンバー内にプリントボードを取り付け市販の光学素子を組み合わせることにより安価に必要な機構を実現した。この機構の導入によって、改良前のスポットサ

イズ500 μmから改良後100 μmまで絞ることが可能となった。加えて、実験に合わせてスポットサイズを容易に変更することが可能となった。

・LaO_{0.6}F_{0.4}BiSe₂の超伝導ギャップ異方性観測

図3にLaO_{0.6}F_{0.4}BiSe₂のレーザーARPESによって観測された超伝導ギャップの波数依存性を示す。

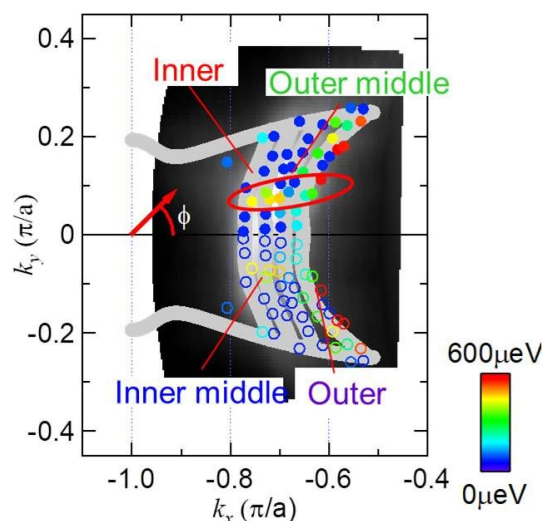


図3 LaO_{0.6}F_{0.4}BiSe₂の超伝導ギャップの波数依存性

我々はこれまでにNdO_{0.71}F_{0.29}BiS₂でのレーザーARPESで超伝導ギャップ異方性を観測しBiS₂系超伝導体における非従来型超伝導機構を示している[3]。今回LaO_{0.6}F_{0.4}BiSe₂において観測された異方性はそれとも異なり、BiS₂系超伝導体がどのような超伝導機構を持つのか興味深い。この研究で得られた結果については、日本物理学会2016秋季大会及び国際ワークショップ International Workshop on superconductivity and Related Function Materials 2016にて成果発表を行った。

・CeCoIn₅のレーザーARPES

図4にレーザーARPESによって観測したCeCoIn₅のバンド分散イメージを示す。これまでは超伝導ギャップの観測には成功していたものの、明瞭なバンド分散を観測することができず、超伝導ギャップの異方性と結晶方位との対応を調べるができなかった。今回の実験装置改良により177 nmレーザー光源を用いて測定した場合のCeCoIn₅フェルミ面のトポロジーが明らかになったので、今後超伝導ギャップ異方性の詳細な特定に期待できる。

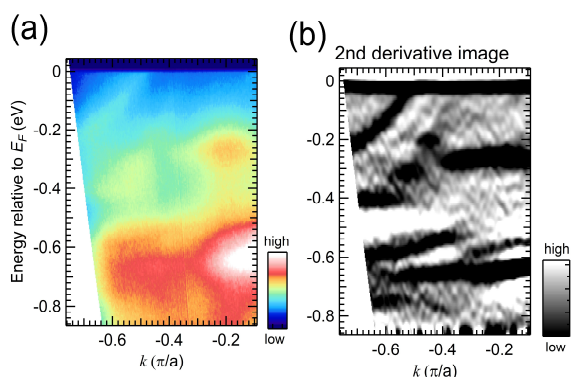


図 4 177 nm レーザ-ARPES で観測された CeCoIn₅ の(a)E-k イメージと(b)その 2 階微分イメージ

以上の主な 3 つの結果から、想定以上の研究成果を得ることができたと言える。

引用文献

- [1] Y.Mizuguchi *et al.* J.Phys.Soc.Jpn. **81** (2012)114725
 [2] Y.Mizukami *et al.* Nat.Commun. **5** (2014)5657
 [3] Y.Ota *et al.* Phys.Rev.Let. **118** 167002(2017)

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 2 件)

大田 由一 他、日本物理学会 2016 秋季大会、Ln(O,F)Bi(S,Se)₂ 超伝導体のレーザー角度分解光電子分光

大田 由一 他、International Workshop on Superconductivity and Related Materials 2016 (招待講演)、Laser angle-resolved photoemission spectroscopy on BiS₂-based superconductor

6 . 研究組織

(1)研究代表者

大田 由一 (Ota Yuichi)
 東京大学・物性研究所・特任研究員
 研究者番号：60737237