

論文の内容の要旨

論文題目

狭線幅 8eV ファイバーレーザーの開発と鉄系超伝導体 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ の研究

氏名 山本 遇哲

本論文は、波数分解した電子状態を直接観測することが可能な実験手法である角度分解光電子分光(ARPES)を用いて、非従来型超伝導物質における超伝導発現機構を解明することを目的とする。著者は ARPES の可能性を向上させることが期待されるレーザー励起光源(8eV 励起高繰り返しファイバーレーザー)を開発し、非従来型超伝導体の一つであり微細な超伝導構造を持つ鉄系超伝導体 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ についてブリルアンゾーン全域を含めた超伝導ギャップ異方性の観測に成功した。その結果、超伝導ギャップ異方性が僅かな K ドープ変化に対して劇的な変化を示すことを発見し、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ の K オーバードープ領域における同一軌道間の相互作用の重要性を確かめ、スピン揺らぎが超伝導の異方性を発現する要因となっていることを明らかにした。以下でその詳細について記述する。

研究背景

2008年に発見された鉄系超伝導体は、フォノン媒介のBCS理論だけでは説明できない非従来型超伝導体であり、近年になって単層膜で T_c が 100K を超す可能性が報告される等、室温超伝導実用化に向けた研究が理論・実験の両側面から精力的に行われている。その超伝導機構の候補としては、ホール面と電子面間でのネスティングによってスピンの揺らぎが発達し、これが超伝導に起因しているとする理論や、電子-格子相互作用による軌道揺らぎを媒介とした超伝導発現の理論が提唱されており、これまでクローズアップされなかった軌道自由度が本質的な役割を担う可能性がある。そこで、ARPES で各バンドの軌道や超伝導ギャップノード有無の観測およびその波数位置を特定することで、超伝導の対称性の特定および超伝導をもたらす要因の選り分けを行うことが目標となる。

鉄系超伝導体の中で本論文で対象とした $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ は、母物質 BaFe_2As_2 の Ba サイトを価数の異なる K で置換することで超伝導が発現するホールドープ系である。最適ドープである $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ においては、ARPES の先行研究[1][2]から、その超伝導ギ

ギャップがフルギャップであり、ホール面間および電子面間でのギャップサイズが等しく、等方的であると報告されており、全ての軌道が同等に超伝導に寄与していると考えられる。一方、 T_c が10K程度以下と低いKオーバードープ領域では、ARPESおよび比熱測定や熱伝導測定の結果からノードの存在が示唆されており、1つの物質系で異なる超伝導対称性を持つ可能性が指摘されているため、興味深い。中でもKオーバードープ領域では、極低温高分解能7eV励起レーザーARPESによってゾーンセンター付近に存在する3枚のホール面が精査されており、フェルミ面ごとに異なるギャップ異方性が観測されただけでなく、ノードの入る波数位置が僅かなKドープ量依存性を持つことが確認された[3][4]。これらの結果から、Kオーバードープ領域では軌道依存性のある超伝導状態が発現しており、スピン揺らぎが超伝導の要因であることが示唆された。

しかしながら、この系ではブリルアンゾーンのコーナーにもフェルミ面が存在しており、上記の極低温高分解能7eV励起レーザーARPESでは励起エネルギーが不足している関係で、ゾーンコーナーにおける超伝導ギャップ異方性の議論は出来ていない。この系では、非弾性中性子散乱でゾーンセンターとゾーンコーナーを結ぶ対角線方向の波数にスピン揺らぎが観測される等[5]、他の実験手法や理論によってゾーンコーナーの重要性が広く認知されているため、ブリルアンゾーン全域における超伝導ギャップ異方性の観測が必須となるが、現状ではこうした微細なエネルギー構造を捉えることを可能とする高エネルギー分解能・極低温測定・高エネルギー励起の全てを満たすARPES装置が存在しない。そこで、以上の議論を行うための条件を満たすARPES装置を新たに開発する必要がある。

高エネルギー励起・高エネルギー分解能レーザーARPES装置の開発。

光電子分光では、励起エネルギーが高いほど測定できる波数空間が広がるので(図1a)、 $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ のゾーンコーナーにおける超伝導ギャップ異方性を精査するには、8eV程度の励起エネルギーが必要である(図1b)。

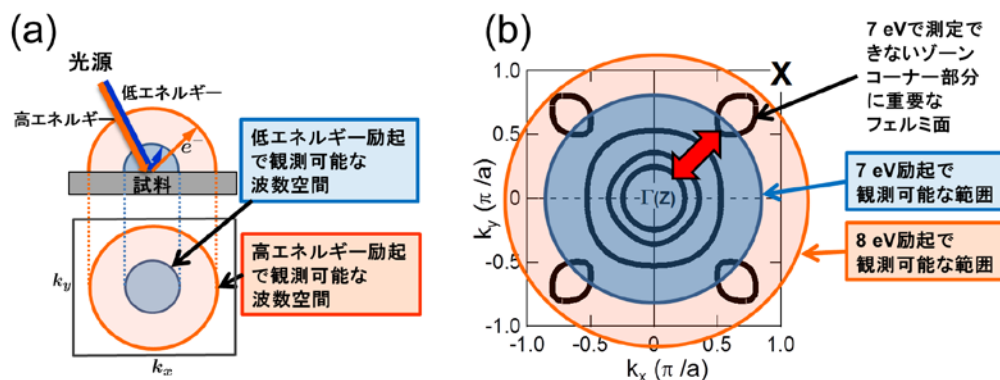


図1(a) 励起エネルギーと測定波数空間の関係。

(b) $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ のゾーンコーナー測定に必要な励起エネルギーの関係。

このようなエネルギーの条件を満たす光源をレーザーを用いて開発するには、赤外パルスレーザーを何らかの媒質を用いて波長変換する必要があるが、その際にスペースチャージと呼ばれる現象に留意しなければならない。これは真空中に一度に大量に放出された光電子がクーロン相互作用によって互いに反発し、分解能の悪化を引き起こす現象であり、これを回避するためにはパルス1つあたりに生じる光電子数を減らす必要がある。このように、レーザーパルスのピーク強度を下げて波長変換するためには固体を用いることが必須で、本論文では $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ (略称 **KBBF**) 結晶を用いた。KBBF 結晶は固体の中でも最短波長における波長変換を可能とするが、KBBF をもってしても 8eV 付近に吸収端があり、この周辺で十分な強度を持つ光を発生させることは容易ではない。そのため、本論文では上記の吸収端付近における波長の制御を可能とする Yb ドープ・ファイバーレーザーを用いることで、励起エネルギー 8.1eV、パルスの繰り返し数 33MHz、強度 1 nW、線幅 0.1 nm の光を発生させることに成功した[6]。そして、結晶の温調機構を工夫する等して、当初は微弱だった強度を約 2 万倍に向上し ARPES 可能な水準まで引き上げた。さらにレーザー光学系を光電子分光チャンバーへ接続することで、最低温度 1K、測定分解能 $690 \mu\text{eV}$ 、を得た。以上により、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ のゾーンコーナーにおける超伝導ギャップ異方性を精査可能なレーザー ARPES 装置が実用可能となった。

$\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ のゾーンコーナーにおける超伝導ギャップ異方性の観測

前述の 8eV 励起高分解能レーザー ARPES 装置を用いて、 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($x=0.88, 0.93, 0.97$) を測定した。図 2 に各組成におけるフェルミ面マッピングおよびバンド分散を示す。

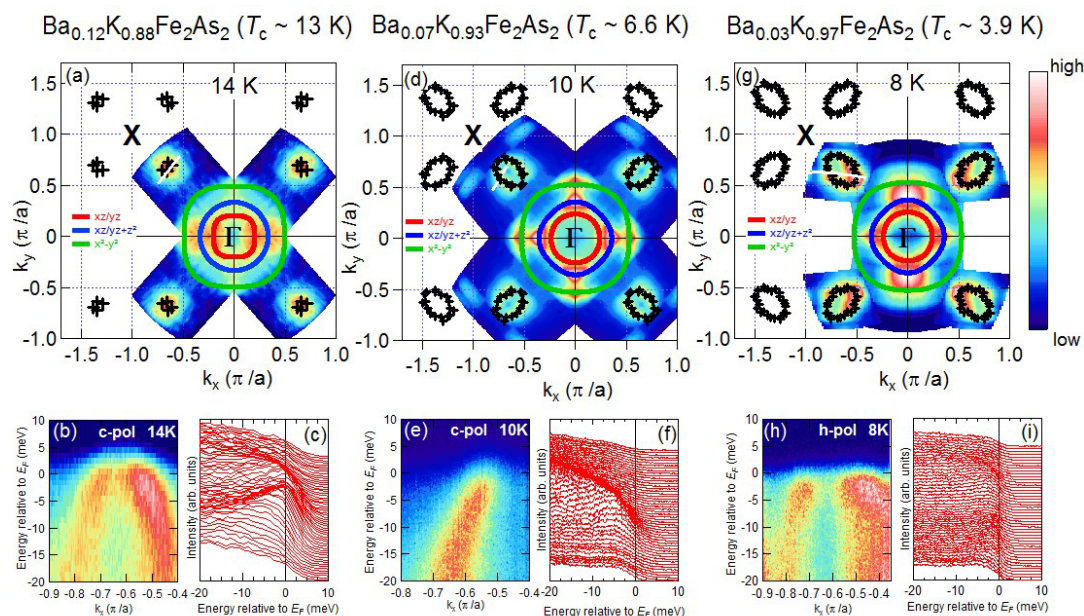


図 2 (a)(d)(g)各組成でのフェルミ面マッピング。

(b)(c)(e)(f)(h)(i)白線におけるバンド分散およびエネルギー分布関数(EDC)。

続いて、図 3(左)に $x=0.88, 0.93, 0.97$ におけるゾーンコーナーフェルミ面のフェルミ波数と、超伝導ギャップサイズを示す。この結果より、 T_c が下がるにつれてフェルミ面サイズが大きくなっていくこと、および超伝導ギャップ異方性が僅かな K ドープで著しく変化の様子が捉えられた。熱伝導率の実験結果[7]を踏まえると、超伝導ギャップ関数の符号反転は $x = 0.93 - 0.97$ 間で起こっており、競合している「ゾーンセンターの2つのフェルミ面(FS)間の inter-band scattering」、「ゾーンセンターFS とゾーンコーナーFS 間の inter-band scattering」、「ゾーンコーナーFS におけるフェルミ面内での intra-pocket scattering」の3つのペア散乱のうちどれが支配的になるのが切り替わることに対応すると考えることが出来る。以上の結果・考察は同一軌道間の相互作用の重要性を示唆しており、この系においてスピン揺らぎ機構による超伝導が発現していることを、本論文で開発したレーザーARPES 装置を用いることでブリルアンゾーン全域で確認することが可能となった。

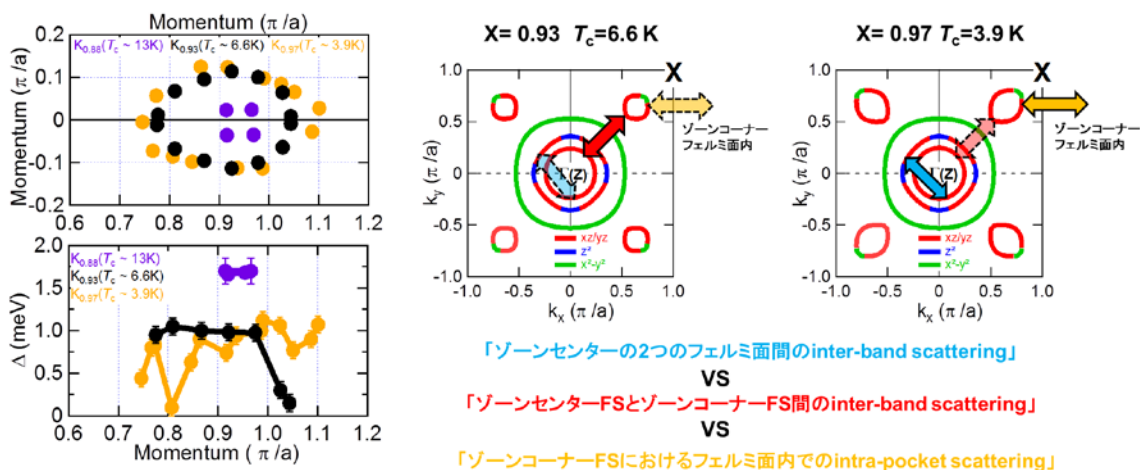


図 3 左図：(上段) ゾーンコーナーフェルミ面のフェルミ波数、
(下段) 上段で示した各フェルミ波数における超伝導ギャップサイズ
右図：実験結果から示唆される $x = 0.93 - 0.97$ 間での 3 種類のペア散乱の競合関係

参考文献

- [1] K. Nakayama *et al.*, EPL. **85**, 67002 (2009).
- [2] T. Shimojima, *et al.*, Science. **332**, 564 (2011).
- [3] K. Okazaki, *et al.*, Science. **337**, 1314 (2012).
- [4] Y. Ota, *et al.*, Phys. Rev. B. **89**. 081103(R) (2014).
- [5] C. H. Lee, *et al.*, Phys. Rev.Lett. **106**, 067003 (2011)
- [6] Y. Nomura *et al.*, Optics. Letters. **36**, 10 (2011)
- [7] D. Watanabe, *et al.*, Phys. Rev. B. **89**, 115112 (2014)