ボース・アインシュタイン凝縮による超伝導を初め て確認

極限コヒーレント光科学研究センター 岡崎 浩三

研究背景

多くの超伝導体は、Bardeen-Cooper-Schrieffer に よって提唱されたいわゆる BCS 理論によって理解される。 BCS 理論は電子対の起源である電子-格子相互作用が摂動 で扱える弱結合の場合を扱う理論であるが、強結合の場合、 超伝導はボース-アインシュタイン凝縮によって実現され ると考えられている。さらに、図1に示すように、弱結合 の BCS 超伝導と強結合の BEC 超伝導は、BCS-BEC クロ スオーバーを経て連続的につながっている[1]。BCS-BEC クロスオーバーは、フェルミ粒子のペアリングと凝集の理 解に非常に重要と考えられるが、ペアリングの強さを制御 するには2つのフェルミ粒子間の相互作用をコントロール する必要がある。極低温原子系の場合、この制御は磁場を かけることによる Feshbach 共鳴によって可能になる。固 体中の電子における BCS-BEC クロスオーバーの実現は、 様々な観点から非常に興味深い。例えば、図2に示すよう に、超伝導状態における Bogoliubov 準粒子(Bogoliubov quasiparticle, BQP)のバンド分散は、BCS 超伝導では特 徴的なバックベンディング型の分散になるが、クロスオー バー領域ではフラットバンドになり、BEC 超伝導では、 k = 0 でギャップが最小になる上凸型の分散になる、と いうような違いが見られることが期待される。さらに、 BEC 超伝導では、その転移温度 Tcのフェルミ温度 TFに



図 1: BCS-BEC クロスオーバーの相図。 T_c および Tはそ れぞれ凝集温度とペア形成温度。ペアリングの強さが強く なると Tと T_c が乖離し、 $T^* > T > T_c$ の温度領域において擬 ギャップが現れることが期待される。

対する比 TdTF(もしくは T。に比例すると考えられる超伝 導ギャップの大きさΔと TFに比例するフェルミエネルギー EFの比Δ/EF)が大きくなることから、BEC 超伝導はフェル ミ温度を基準として"高温の"超伝導であると言える。こ の超伝導メカニズムがより高いフェルミ温度を持つ物質で 実現できるようになれば、より高い温度での超伝導が実現 できる可能性もあり、BEC 超伝導の実現はより高い温度 での超伝導実現に非常に重要であると考えられる。しかし



図2: BCS 超伝導、クロスオーバー領域、BEC 超伝導における準粒子のバンド分散。BCS 超伝導では、バックベン ディング型のバンド分散となり、k = 0 近傍において下凸の分散になるが、クロスオーバー領域ではフラットバンド になり、BEC 超伝導では上凸の分散になることが期待される。

ながら、固体中の電子間の相互作用をコントロールするこ とが難しいため、これまで BCS-BEC クロスオーバーの確 固たる証拠は得られていなかった。Δ/εF~1 となる BCS-BEC クロスオーバー領域では、凝集が起こる温度より高 温でボース粒子とみなせるペアが形成され、その領域では 擬ギャップと呼ばれる現象が観測されることも期待される。 これまでいくつかの鉄系超伝導体においてもΔ/εF~1であ るとして BCS-BEC クロスオーバー領域の超伝導である 可能性が提案されていたが[2-5]、擬ギャップが観測され た例はなかった。

今回我々は、鉄系超伝導体 FeSe_{1-x}S_x[6-8]において、極 低温超高分解能レーザーARPES を用いて、超伝導状態に おけるバンド分散のS置換量依存性を観測し、図2のよう な BCS 超伝導から BEC 超伝導への変化に対応するS置 換量依存性となることを見出した。さらに、FeSe_{0.79}S_{0.21} に おいて擬ギャップを観測し、FeSe_{1-x}S_x における BCS-BEC クロスオーバーの確証を得た[9]。

実験結果

超伝導状態におけるバンド分散

図 3 は、FeSe_{1-x}S_x ($x = 0, 0.04, 0.13, 0.16, 0.21, T_c = 4$ -10 K)の超伝導状態(T = 2 K)における Brillouin ゾーン中心 付近 Γ -M 方向に沿った光電子強度の運動量-エネルギー依 存性を強度プロットしたものである。上段は-35 meV か ら+5 meV の範囲、下段はより E_F を拡大した-10 meV か ら+5 meV の範囲になっている。下段では、超伝導状態に おける BQP のバンド分散に対応する、エネルギー分布曲 線(EDC)のピーク位置を赤のマーカーで示している。この 結果から、x = 0 では下凸だった BQP バンド分散が、x =0.16 ではフラットになり、x = 0.21 では上凸になっている ことがわかり、まさに図2に示した BCS-BEC クロスオー バーにおける BQP バンド分散に対応していることがわか る。

擬ギャップの観測

我々はさらに、x = 0, 0.13, 0.21 の試料において、T = 2-25 K におけるフェルミ波数における EDC の詳細な温 度変化を測定した。この結果、x = 0 と x = 0.13 において は、 T_{c} (~ 10 K)以下で超伝導ギャップが開くのに伴うコ ヒーレンスピークがより低温で発達するのが観測されたの みであるのに対して、x = 0.21 では、 T^{*} ~15 K以下で擬 ギャップが開くことが観測された。x = 0.21 で上に凸の BQP バンド分散と擬ギャップが観測されたことから、 BEC 超伝導が実現していることの完全な証拠が得られた ことになる。

Δ/εFの置換量依存性

 $\Delta \ell_{\rm EF}$ がペアリングの強さの指標になると考えられること から、我々は $\Delta \ell_{\rm EF}$ のS置換量依存性を調べた。x = 0では BCS 超伝導的な下凸の BQP バンド分散、x = 0.21で上に 凸の BQP バンド分散と擬ギャップが観測されたことから、 $\Delta \ell_{\rm EF}$ はS置換とともに大きくなると予想されるが、この 予想に反して、実際には $\Delta \ell_{\rm EF}$ はS置換とともに小さくなる ことがわかった。このことは、FeSe1-xSx における BEC



図 3: 超伝導状態における Γ -M 方向に沿った FeSe_{1-x}S_xの ARPES 強度の運動量-エネルギー依存性。**a**-**e** はそれぞ れ x = 0, 0.04, 0.13, 0.16, 0.21において T = 2K で s 偏光のレーザーを用いた結果。**f**-**j** は E_F 近傍を拡大し、カラー スケールを変えたもの。赤のマーカーは BQP バンド分散に対応する。

超伝導実現のメカニズムに大きく関わっていると考えられ る。

考察

以上の結果から、x = 0.21 は BEC 超伝導に特徴的な上 凸の BQP バンド分散を示し、EDC の温度変化からは x = 0.21のみ擬ギャップを示すことがわかり、x=0.21におい て BEC 超伝導が実現していることが確認された。一方で、 ペアリングの強さの指標となるA/EFのS置換量依存性を見 ると、単一バンドの場合での理論からの予想に反して、S 置換とともにΔ/εFが小さくなることがわかった。我々は、 FeSe1-xSx における BCS-BEC クロスオーバーのメカニズ ムを次のように考察した。図2を見るとわかるように、 FeSe1-xSx では Brillouin ゾーン中心付近にフェルミ準位 (*E*_F)を横切るαバンドの直下にもう一本ホールバンド(βバ ンド)が存在する。αバンドとβバンドはスピン-軌道相互 作用が存在しなければΓ点において縮退すると考えられる が、実際にはスピン-軌道相互作用によって縮退が解けて いる。さらに、FeSeにおいては、 $T_s = 90 \text{ K}$ の構造相転移 温度以下において、電子ネマティック相と呼ばれる、電子 系が自発的に4回対称性を破り2回対称になることで、α バンドとβバンドの分裂幅が大きくなることが知られてい る[10]。FeSe1-xSx の電子ネマティック相への転移温度は、 S置換と共に低くなり、x = 0.17で転移温度が0Kとなる 電子ネマティック臨界点が存在し、x > 0.17においては最 低温においても4回対称を保った正方晶となる。x = 0.21 では電子ネマティック転移が抑制されていることから、α バンドとβバンドの分裂はスピン-軌道相互作用からの寄 与のみとなり、αバンドの頂上の位置から見積もられるεF が、E_Fとβバンドの頂上の位置の差よりも大きくなる。こ のことは、x = 0.21における超伝導状態において、 α バン ドがバックベンディング型の BQP バンド分散を示すと、 βバンドと混成し得ることを意味する。つまり、x = 0.21 においては、超伝導状態でβバンドもペアリングに寄与で きると考えられ、このことによって FeSe1-xSx ではS置換 とともにペアリングが強くなっていると考えられる。αバ ンドとβバンドの分裂幅は FeSe1-xSx における電子ネマ ティシティによって決まると考えられることから、 FeSe1-xSxにおける BCS-BEC クロスオーバーは電子ネマ ティシティによって制御されている、と結論づけることが できる。

謝辞

本研究は以下の方々(橋本 嵩広、大田 由一、都築 章宏、 長島 椿、福島 昭子、笠原 成、松田 祐司、松浦 康平、 水上 雄太、芝内 孝禎、辛 埴 各氏)との共同研究です。ま た、文部科学省科学研究費補助金 新学術領域(研究領域提 案型)「量子液晶の物性科学」(JP19H05824, JP19H05826)、 「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」(JP15H05852)、 JSPS 科 研費 (JP19H00651, JP19H01818, JP18H05227, JP19H00649, JP18H01177, JP18K13492, JP20H02600) の助成のもとに行われました。

参考文献

- M. Randeria and E. Taylor, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. 5, 209 (2014).
- [2] T. Shimojima et al., Sci. Adv. 3, e1700466 (2017).
- [3] H. Miao et al., Nat. Commun. 6, 6056 (2015).
- [4] S. Rinott et al., Sci. Adv. 3, e1602372 (2017).
- [5] Y. Lubashevsky et al., Nat. Phys. 8, 309 (2012).
- [6] F.-C. Hsu *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 105, 14262 (2008).
- [7] A. E. Böhmer et al., Phys. Rev. B 87, 180505 (2013).
- [8] S. Kasahara *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 111, 16309 (2014).
- [9] T. Hashimoto et al., Sci. Adv. 6, eabb9052 (2020).
- [10] M. D. Watson *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 053703 (2017).