

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18340095  
 研究課題名（和文） トンネル走査顕微鏡によるビスマス系高温超伝導体の新規電荷秩序の研究  
 研究課題名（英文） Scanning tunneling microscopy study on novel charge order of Bi-based high- $T_c$  superconductor  
 研究代表者  
 伊土 政幸（IDO MASAYUKI）  
 北海道大学・大学院理学研究院・教授  
 研究者番号：90111145

## 研究成果の概要：

本研究では、低バイアス STM と STS 実験から、Bi 系高温超伝導体における非分散性の 2 次元電荷秩序の性質と擬ギャップ及び超伝導ギャップとの関連性を詳細に調べた。その結果、アンタインード領域の電子が関与する 2 次元電荷秩序が空間的に不均一な擬ギャップの起源であること、また、擬ギャップ領域にある試料では、ノード付近の電子（ホール）対ギャップが超伝導のエネルギースケールを決めていることを見出した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	11,100,000	3,330,000	14,430,000
2007 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2008 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
年度			
総計	15,200,000	4,560,000	19,760,000

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： 高温超伝導、ビスマス系銅酸化物、走査トンネル顕微鏡、走査トンネル分光、超伝導ギャップ、擬ギャップ

## 1. 研究開始当初の背景

擬ギャップは銅酸化物高温超伝導に特徴的な現象で、その理解は高温超伝導の発現機構を解明する鍵と言える。本研究がスタートする時点で、走査トンネル顕微鏡 (STM) 実験から Bi2212 や Na-CCOC の擬ギャップ領域で新奇な電荷秩序が発見され、擬ギャップ状態の隠れた秩序として大きな注目を集めていた。この電荷秩序は 2 次元的で、Bi2212 系や Na-CCOC の擬ギャップ領域 ( $T > T_c$ ) におい

てほぼ同時に見出された。それらの 2 次元電荷秩序の周期は格子定数  $a$  のほぼ 4 倍で、その周期がエネルギーにほとんど依存しない“いわゆる非分散型”の電荷秩序である。非分散型という点で、この 2 次元電荷秩序は Bi2212 系の超伝導状態で見つかった強い分散性を示す超伝導準粒子の干渉による電荷密度の濃淡とは全く異なる起源をもつと考えられる。

このような 2 次元電荷秩序はもともと

Bi2212 系の超伝導状態について報告されたものだが、その後、独立な2つのグループが否定的な結果を報告したため、「非分散性の2次元電荷秩序が超伝導状態にも現れるか否か」が大きな問題となっていた。この点を明確にすることは擬ギャップと高温超伝導の関係を考える上で大変重要な課題であり、その解決が高温超伝導の研究分野における急務となっていた。

以上の状況にあって、私達のグループは、低バイアス STM 実験から、Bi2212 の超伝導状態にも 4a の周期をもつ非分散性の2次元電荷秩序が現れることを明確な形で示すことに成功した。そして、超伝導状態に現れる2次元電荷秩序は Cu-0 面のホール濃度が低い試料ほど顕著となる傾向にあるが、同一のホール濃度をもつ試料でも、ピン止めセンターの違いにより電荷秩序の性質が大きく異なることを明らかにした。

## 2. 研究の目的

そこで、本研究では、

- (1) Bi 系における非分散性の2次元電荷秩序が擬ギャップの起源であるかどうか、
- (2) 2次元電荷秩序や擬ギャップと高温超伝導との関わりを明らかにする

ことを目的とし、STM と STS 実験から Bi2212 系と Bi2201 (La) 系における2次元電荷秩序と擬ギャップや超伝導ギャップの性質を詳しく調べた。

- (3) さらに、擬ギャップ領域における超伝導の  $T_c$  を決める超伝導の特性エネルギーの解明を試みた。

## 3. 研究の方法

本研究においては、非分散性の2次元電荷秩序が明瞭に現れる試料と2次元電荷秩序が弱い試料では STS によるトンネルスペクトルの性質が大きく異なる点に着目し、STM/STS 実験を行った。

測定に用いた Bi2212 及び Bi2201 (La) の単結晶は共に TSFZ 法で育成し、それらの  $T_c$  を SQUID による超伝導反磁性の測定から求めた。

また、2次元電荷秩序の測定には、独自に開発した“へき開面”の下に埋もれた Cu-0 面を直接観察できる低バイアス STM 法を用いた。低バイアス STM 法は極めて低いバイアス電圧を用い、しかも STM 探針を試料表面ぎりぎりまで走査させるもので、高度な STM 実験技術と経験を要する手法であるが、短い時間で Cu-0 面の情報が直接得られるため、研究を効率的に進めることができる点で大きなメリットがある。

## 4. 研究成果

- (1) はじめに、Bi2212 系と同様に、Bi2201 (La) 系でもピン止めセンターの違い

により、非分散性の2次元電荷秩序の性質が大きく異なることを確認した。その後、 $T_c$  以上で現れる非分散性の2次元電荷秩序は、 $T_c$  以下の超伝導状態までそのまま生き残ることを明らかにし、少なくとも2次元電荷秩序が現れる試料では、 $T_c$  以上で形成される擬ギャップはそのまま超伝導状態へ移行する可能性を指摘した。実際、この指摘は最近の角度分解光電子分光 ARPES 実験の結果と良く符合する。

- (2) また、STM 測定と同時に行った走査トンネル分光 (STS) 実験から、STM 像に非分散性の2次元電荷秩序が明瞭に現れる試料では、k 空間のアンタインードと呼ばれる領域のギャップ構造が空間的に不均一となることを明らかにした。また、2次元電荷秩序は不均一なギャップ構造と同じエネルギー領域 (STM/STS のバイアス領域) で現れることを示し、2次元電荷秩序も擬ギャップと同様にアンタインード領域の電子状態が関係していることを指摘した。

さらに、最近の ARPES 実験の結果との比較から、2次元電荷秩序が明瞭に現れる試料では、擬ギャップは空間的に非常に不均一であり、その平均の大きさは超伝導ギャップよりも大きいことを明らかにし、非分散性の2次元電荷秩序と不均一な擬ギャップとが互いに関係していることを結論した。

- (3) 次に、2次元電荷秩序が明瞭に現れる試料では、k 空間のアンタインード領域の擬ギャップは空間的に非常に不均一となるのに対し、ノード付近に形成される超伝導ギャップは空間的に均一である点に着目して STS スペクトルの解析を行い、超伝導のエネルギースケールを見出した。

具体的には、ノード付近の超伝導ギャップを反映して均一となるギャップ構造の底部 (STS バイアスの低い領域) から擬ギャップを反映して不均一な振る舞いに変るバイアス電圧 (エネルギー) が、ノード付近に形成される超伝導ギャップの大きさ  $\Delta_0$  を与えると仮定し STS スペクトルから  $\Delta_0$  を見積もった。そして、そのように見積もった、Bi2212 の  $\Delta_0$  は、擬ギャップの発達が顕著となるアンダードープ領域における  $T_c$  のホール濃度依存性を良く再現できることを示した。この結果は、高温超伝導の発見以来の謎であったアンダードープ領域での  $T_c$  が低下する理由を与えるものであり、「大きな易動度を持つノード付近のキャリア (ホール) が超伝導の発現と直接的に関わっている」とのシナリオを支持するものである。

今後、より広いホール濃度領域や他の高温超伝導体についても同様の実験を行い、本研究で得られた結論をより明確なものにした

## 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)

[雑誌論文] (計 20 件)

- ① M. Ido, T. Yoneyama, Y. H. Liu, Y. Takano, N. Momono and M. Oda, STM/STS study on nondispersive checkerboard superstructure in superconducting Bi2212 and La-Bi2201, J. Phys. & Chem. of Solids, 査読有, **69**, 2008, 3006-3010
- ② N. Momono, T. Kurosawa, T. Endo, K. Kurusu, K. Takeyama, M. Oda and M. Ido, STM/STS study in the stripe-ordered state of  $\text{La}_{2-x}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $x=1/8$ ,  $y\sim 0.4$ ), J. Phys. & Chem. of Solids, 査読有, **69**, 2008, 3031-3033
- ③ Y. H. Liu, K. Takeyama, T. Kurosawa, N. Momono, M. Oda and M. Ido, On the electronic inhomogeneity of underdoped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ , J. Phys. & Chem. of Solids, 査読有, **69**, 2008, 3039-3041
- ④ J. Chang, M. Shi, S. Pailh es, M. Mansson, T. Claesson, O. Tjernberg, A. Bendounan, Y. Sassa, L. Patthey, N. Momono, M. Oda, M. Ido, S. Guerrero, C. Mudry, and J. Mesot, Anisotropic quasiparticle scattering rates in slightly underdoped to optimally doped high-temperature  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  superconductors, Phys. Rev. B, 査読有, **78**, 2008, 205103-205107
- ⑤ Y. H. Liu, Y. Toda, K. Shimatake, N. Momono, M. Oda and M. Ido, Direct observation of the coexistence of the pseudogap and superconducting quasiparticles in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  by time-resolved optical spectroscopy, Phys. Rev. Lett., 査読有, **101**, 2008, 137003-137006
- ⑥ J. Chang, Ch. Niedermayer, R. Gilardi, N.B. Christensen, H.M. Ronnow, D.F. McMorrow, M. Ay, J. Stahn, O. Sobolev, A. Hiess, S. Pailh es, C. Baines, N. Momono, M. Oda, M. Ido, J. Mesot, Tuning competing orders in  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  cuprate superconductors by the application of an external magnetic field, Phys. Rev. B, 査読有, **78**, 2008, 104525-104529
- ⑦ T. Kurosawa, M. Oda, Y. H. Liu, K. Takeyama, N. Momono and M. Ido, Fermi-arc superconductivity, pseudogap and charge order in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ , J. Phys. & Chem. of Solids, 査読有, **69**, 2008, 2265-2267
- ⑧ M. Shi, J. Chang, S. Pailh es, M. R. Norman, J. C. Campuzano, M. Mansson, T. Claesson, O. Tjernberg, A. Bendounan, L. Patthey, N. Momono, M. Oda, M. Ido, C. Mudry, J. Mesot, Coherent d-wave superconducting gap in underdoped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  by angle-resolved photoemission spectroscopy, Phys. Rev. Lett., 査読有, **101**, 2008, 047002-047005
- ⑨ J. Chang, Y. Sassa, S. Suerrero, M. Mansson, M. Shi, S. Pailh es, A. Bendounan, R. Mottl, T. Claesson, O. Tjernberg, L. Patthey, M. Ido, M. Oda, N. Momono, C. Mudry, J. Mesot, Electronic structure near the 1/8-anomaly in La-based cuprates, New Journal of Physics, **10**, 2008, 103016.
- ⑩ K. Takeyama, Y. H. Liu, T. Kurosawa, N. Momono, M. Oda and M. Ido, STM study on the period of charge order in the PG state of Bi2212, International Journal of Modern Physics B, 査読有, **21**, 2007, 3220-3223
- ⑪ Y. H. Liu, K. Takeyama, M. Ishikura, N. Momono, M. Oda and M. Ido, STM studies on electronic charge order in the PG state of Bi2212, Physica C, 査読有, **460**, 2007, 961-962
- ⑫ N. Momono, T. Goto, K. Takeyama, M. Oda and M. Ido, STM/STS study on underdoped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , Physica C, 査読有, **460**, 2007, 965-966
- ⑬ M. Mansson, T. Claesson, U. O. Karlsson, O. Tjernberg, S. Pailh es, J. Chang, J. Mesot, M. Shi, L. Patthey, N. Momono, M. Oda, M. Ido, On-board sample cleaver, Review of Scientific Instruments, 査読有, **78**, 2007, 076103
- ⑭ Y. H. Liu, K. Takeyama, T. Kurosawa, N. Momono, M. Oda and M. Ido, 4x4a electronic charge order enhanced in the inhomogeneous pseudogap state of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ , Phys. Rev. B, 査読有, **75**, 2007, 212507-212510
- ⑮ J. Chang, S. Pailh es, M. Shi, M. Mansson, T. Claesson, O. Tjernberg, J. Voigt, V. Perez, L. Patthey, N. Momono, M. Oda, M. Ido, A. Schnyder, C. Mudry, J. Mesot, When low- and high-energy electronic responses meet in cuprate superconductors, Phys. Rev. B, 査読有, **75**, 2007, 224508-224513
- ⑯ N. B. Christensen, H. M. Ronnow, J.

- Mesot, R. A. Ewings, N. Momono, M. Oda, M. Ido, M. Enderle, D. F. McMorrow, A. T. Boothroyd, Nature of the magnetic order in the charge-ordered cuprate  $\text{La}_{1.48}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_{0.12}\text{CuO}_4$ , Phys. Rev. Lett., 査読有, **98**, 2007, 197003-197006
- ⑰ J. Chang, A. P. Schnyder, R. Gilardi, H. M. Ronnow, S. Pailhes, N. B. Christensen, Ch. Niedermayer, D. McMorrow, A. Hiess, A. Stunault, M. Enderle, B. Lake, O. Sobolev, N. Momono, M. Oda, M. Ido, C. Mudry, J. Mesot, Magnetic-field-induced spin excitations and renormalized spin gap of the underdoped  $\text{La}_{1.895}\text{Sr}_{0.105}\text{CuO}_4$  superconductor, Phys. Rev. Lett., 査読有, **98**, 2007, 077004-077007
- ⑱ A. Hashimoto, N. Momono, M. Oda, M. Ido, Scanning tunneling microscopy and spectroscopy study of 4x4a electronic charge order and the inhomogeneous pairing gap in superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ , Phys. Rev. B, 査読有, **74**, 2006, 064508-064518
- ⑲ G. I. Menon, A. J. Drew, U. K. Divarkar, S. L. Lee, R. Giladi, J. Mesot, F. Y. Ogrin, D. Charakambous, E. M. Forgan, N. Momono, M. Oda, C. Dewhurst and C. Baines, Muons as local probes of three body correlations in the mixed state of type-II superconductors, Phys. Rev. Lett., 査読有, **97**, 2006, 177004-177007
- ⑳ A. J. Drew, D. O. G. Heron, U. K. Divarkar, S. L. Lee, R. Giladi, J. Mesot, F. Y. Ogrin, D. Charakambous, N. Momono and M. Oda, Physica B, 査読有, **374**, 203-206

[学会発表] (計 20 件)

- ① 井上 諒、STM/STS から見た Bi 系銅酸化物高温超伝導体のチェッカーボード変調とギャップ構造、日本物理学会、2008 年 9 月 23 日、盛岡大学
- ② 伊土政幸、Spatially non-uniform pseudogap structure of high  $T_c$  superconductor observed by STM/STS、日本物理学会、2008 年 9 月 20 日、盛岡大学
- ③ 黒澤 徹、磁場中比熱から見た La214 系の超伝導に対する不純物効果 II、日本物理学会、2008 年 9 月 20 日、盛岡大学
- ④ 劉英豪、ポンプ・プローブ分光でみた Bi2212 の超伝導状態と擬ギャップ状態における準粒子緩和、日本物理学会、2008 年 3 月 26 日、近畿大学
- ⑤ 桃野直樹、電子ラマン散乱から見た Bi2212 における超伝導ギャップと擬ギャップ、日本物理学会、2008 年 3 月 26 日、近畿大学
- ⑥ 萩原将也、STM/STS から見た La-Bi2201 及び Bi2212 のチェッカーボード変調と大きな擬ギャップ、日本物理学会、2008 年 3 月 24 日、近畿大学
- ⑦ 黒澤 徹、磁場中比熱から見た La214 系の超伝導に対する不純物効果、日本物理学会、2008 年 3 月 24 日、近畿大学
- ⑧ 桃野直樹、STM/STS から見た  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  および  $\text{La}_{2-x-y}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の電子構造、日本物理学会、2007 年 9 月 24 日、札幌
- ⑨ 米山貴之、STM/STS から見た Bi2201 のチェッカーボード変調と超伝導ギャップ、日本物理学会、2007 年 9 月 21 日、札幌
- ⑩ 高野由衣、Bi2212 のチェッカーボード変調と超伝導ギャップ、日本物理学会、2007 年 9 月 21 日、札幌
- ⑪ Y. H. Liu、On the electronic inhomogeneity of underdoped Bi2212、Yamada Conference LXI: Spectroscopies in Novel Superconductors, 2007 年 8 月 24 日、Sendai
- ⑫ N. Momono、STM/STS study of stripe-ordered state of  $\text{La}_{2-x-y}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $x=1/8$ ,  $y=0.4$ )、Yamada Conference LXI: Spectroscopies in Novel Superconductors, 2007 年 8 月 23 日、Sendai
- ⑬ M. Ido、STM/STS study on nondispersive checkerboard superstructure in superconducting Bi2212 and La-Bi2201、Yamada Conference LXI: Spectroscopies in Novel Superconductors, 2007 年 8 月 20 日、Sendai
- ⑭ 来栖 潔、STM/STS から見た  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の超伝導ギャップとフェルミアーク、日本物理学会、2007 年 3 月 18 日、鹿児島大学
- ⑮ 竹山幸作、Bi2212 の擬ギャップ状態におけるチェッカーボード型電荷秩序の STM 観察、日本物理学会、2007 年 3 月 18 日、鹿児島大学
- ⑯ N. Momono、Checkerboard-like charge order and inhomogeneous Energy gap in superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ 、5<sup>th</sup> International Conference “Stripes06”、2006 年 10 月、Rome、Italy
- ⑰ 石倉光男、STM/STS から見た Bi2212 の電荷秩序と擬ギャップ、日本物理学会、2006 年 9 月 25 日、千葉大学
- ⑱ 黒澤 徹、電子比熱から見た  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Ni}_y\text{O}_4$  におけるノーダル超伝導、日本物理学会、2006 年 9 月 23 日、千葉大

学

- ①9 N. Momono、STM/STS study on superconducting  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 、8<sup>th</sup> International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity、2006年7月14日、Dresden、Germany
- ②0 M. Ido、 $4a \times 4a$  charge order and superconducting gap of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ 、8<sup>th</sup> International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity、2006年7月12日、Dresden、Germany

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

伊土 政幸 (IDO MASAYUKI)  
北海道大学・大学院理学研究院・教授  
研究者番号：90111145

### (2) 研究分担者

桃野 直樹 (MOMONO NAOKI)  
室蘭工業大学・大学院工学研究科・  
准教授  
研究者番号：00261280

### (3) 連携研究者

なし