

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2007～2010

課題番号：19340105

研究課題名(和文) 高温超伝導体の電子状態における酸素同位体効果に関する
角度分解光電子分光研究研究課題名(英文) Oxygen isotope effect on the electronic structure of high- T_c cuprates
studied by angle-resolved photoemission spectroscopy

研究代表者

相浦 義弘 (AIURA YOSHIHIRO)

独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・主任研究員

研究者番号：80356328

研究成果の概要(和文)：低エネルギー放射光源を用いた角度分解光電子分光手法により、酸素同位体置換した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の電子ボゾン結合に伴うノード方向の電子分散の屈曲(キンク)構造に明瞭な酸素同位体効果を示した。その大きさ(数 meV) およびエネルギーシフト方向は酸素同位体質量の変化量から予測される振動数の変化量と同等である。故に、本研究により、「フェルミ準位近傍に現れる電子分散のキンク構造は、電子格子相互作用により起きている」と結論した。

研究成果の概要(英文)：Angle-resolved photoemission spectroscopy with low-energy tunable photons along the nodal direction of oxygen isotope substituted $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ reveals a distinct oxygen isotope shift near the electron-boson coupling “kink” in the electronic dispersion. The magnitude (a few meV) and direction of the kink shift are as expected due to the measured isotopic shift of phonon frequency, and are also in agreement with theoretical expectations. This demonstrates the participation of the phonons as dominant players, as well as pinpointing the most relevant of the phonon branches.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2008年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	2,400,000	720,000	3,120,000
年度			
総計	14,100,000	4,230,000	18,330,000

研究分野：光電子分光

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：酸化物高温超伝導、角度分解光電子分光、電子構造、酸素同位体効果、電子格子相互作用

1. 研究開始当初の背景

超伝導には電子対形成が不可欠である。来型超伝導体において、この対形成機構は格子振動(フォノン)が媒介している。高温超伝導体、特に最高の超伝導転移温度(T_c)を示す最適ドーパ試料において、酸素同位体置換による T_c の変化量は従来超伝導体から予測される値と比べて著しく小さく、このことより、初期の高温超伝導体の研究においてフォノ

ンによる対形成機構の説明は困難と考えられてきた。

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) の走査型トンネル顕微鏡/トンネル分光法 (STM/STS) の詳細な研究において、ナノメートルスケールで電子-ボゾン相互作用エネルギーが無秩序に変動し、正孔密度を変化させてもその平均モードエネルギーと変調はいずれも影響をほとんど受けないことから、このボゾンモードは

電子構造や磁気構造と関係がないことを示した。更に、この物質の ^{16}O をすべて同位体の ^{18}O に置換することにより、酸素同位体置換が格子振動周波数に及ぼす効果の予測値と同程度の平均モードエネルギーの低下が示されたことにより、このモードは局在格子振動であることを明らかにした。本研究を契機として、高温超伝導体の対形成機構における格子振動の役割に再び強い関心が持たれるようになった。

高温超伝導体において格子振動が超伝導における電子ペアを媒介する可能性は、以前から角度分解光電子分光法 (ARPES) の研究において提唱されてきた。しかし、その後の酸素同位体に関する ARPES 研究は、非コヒーレントピークと呼ばれる高エネルギーの幅広い構造の中に (酸素同位体置換が格子振動周波数に及ぼす効果の予測値より) 「異常に」大きなエネルギースケールで現れると報告された。この ARPES による「異常な」酸素同位体効果の振る舞いは、STS/STM で報告された「正常な」振る舞いと矛盾する。しかし、その後の我々の高分解能 ARPES 研究により、ノード方向近傍では「異常な」酸素同位体効果は存在しないことを示した。

2. 研究の目的

(1) ARPES による電子状態における酸素同位体効果の再検証を行い、我々の STM/STS による結果との相互の理解を行う。

(2) STM/STS で報告されている「正常な」酸素同位体効果の存在を ARPES により検証し、その振る舞いを整理する。

(3) 酸素同位体効果のような微細な電子構造の変化を捉えるに、十分に酸素制御された試料作製技術の開発、および超高精度測定技術の高度化を行う。

3. 研究の方法

「酸素同位体置換した高温超伝導体単結晶の作製および評価」、「角度分解光電子分光による電子構造の酸素同位体効果の観測」、および「酸素同位体効果に関する理論考察」の3つの組織を連携取りながら研究を進める。各々の組織に情報を供給しフィードバックを行うことにより、高温超伝導の電子状態における酸素同位体効果の検証を効率的に展開する。

(1) 酸素同位体置換試料の作製および評価

良質の酸素同位体置換した高温超伝導体単結晶試料の作製、および定量的な評価を行う。これまでに高品質の高温超伝導体単結晶の作製を行い (永崎、吉田)、良く酸素制御された高温超伝導体単結晶試料の酸素同位体置換処理を行うための装置開発を進める

(相浦、阪東)。酸素同位体置換した試料の定量的評価は、ラマン分光を用いて行う (増井)。

(2) 角度分解光電子分光研究

ARPESにより電子構造の酸素同位体効果のような微細な変化を捉えるには、非常に高いエネルギーおよび運動量分解能測定が必要不可欠である。加えて、その再現性を確認するために、あらゆる条件で酸素同位体効果を検証することが求められる。そのために、広島大学放射光科学センター (HiSOR) の最先端の高分解能ARPESを用いて酸素同位体効果の研究を行う (相浦、岩澤)。

(3) 酸素同位体効果の理論的解釈

電子構造の始状態の対称性は、ARPESの偏光特性に強く依存する。更に、低エネルギー励起光を用いたARPESのスペクトル強度は、電子構造の終状態に強く依存する。言い換えれば、ARPESから得られる情報を解釈するためには、バンド計算 (長谷) による各バンドの詳細な情報が必要不可欠である。その上で、ARPESとSTM/STSとの実験的な相互理解を深め、電子構造における酸素同位体効果の起源を解明するために理論計算を行う (小池上)。

4. 研究成果

(1) 角度分解光電子分光手法の高度化

① 高精度2軸試料ゴニオメータ

銅酸化物の酸素を同位体酸素に置換した場合の電子構造の変化量は5%程度と予測される。ノード方向のキック構造の位置は約60meVなので、電子格子相互作用がキック構造の起源とすれば酸素同位体置換により約3meVの変化が起こるものと予想される。この僅かな変化量を検出するには、変化量と同程度以下のエネルギー分解能での測定が必要となる。加えて、2つの異なる試料 (標準試料、酸素同位体置換試料) の電子構造の相対変化を調べるためには、同じ方位 (運動量) で測定された結果の定量的な比較を行う必要がある。測定結果の高精度な比較を可能にするためには、高精度な位置合わせ技術開発が不可欠である。

超高真空中で高精度な位置合わせを可能にするために、高精度2軸試料ゴニオメータを開発した (図1)。この装置を用いることにより、面内回転の僅かのミスアライメントを *in situ* での補正が可能となった。

②低エネルギー放射光を用いたARPES



図1 高精度2軸試料ゴニオメータ

低エネルギーの放射光は、以下に示す3つの特徴を有することから、銅酸化物超伝導体の酸素同位体効果の様な微細な電子構造の変化を検証するのに理想的な光源である：

- 放射光のエネルギーを低くすることにより、容易に高いエネルギー分解能を得ることが出来る。
- 固体内での光励起された電子の平均自由行程は、その速度（エネルギー）に強く依存する。低エネルギーの光源を用いた場合、固体内の励起電子の速度が低くなり、平均自由行程が飛躍的に増加する。このことは、バルク敏感な情報を得ることが可能になることに加え、光電子スペクトルの線幅も鋭くなり微細な電子構造の変化を捉えることが出来るようになる。図2において、従来用いられてきた光エネルギーで測定したノード方向のARPES スペクトルの例（(e)の赤線、(f)）と低エネルギーの放射光を用いた例（(a)-(d)、(e)の青線）を示す。
- 固体内の終電子のエネルギーが低ければ、終状態はバンド構造に支配される。光励起の際に終状態が無ければ基底状態の電子構造は励起出来ない。故に、僅かの光エネルギーの調整により、必要な電子構造を選択できる。例えば、 $h\nu=7.5\text{eV}$ の放射光を用いた場合（図2(a), (b)）Bi2212の結合バンドおよび反結合バンドが観測されるが、 $h\nu=7\text{eV}$ の放射光を用いた場合（図2(c), (d)）結合バンドが消失して、反結合バンドのみが観測される。

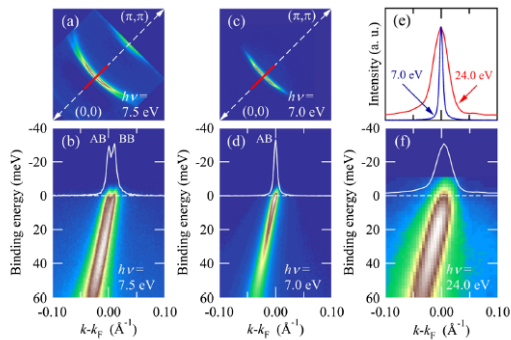


図2 低エネルギー放射光を用いたBi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}のARPES

(2) ノードキंक構造の酸素同位体効果

角度分解光電子分光手法の高度化により、銅酸化物の電子構造の微細な酸素同位体効果を検出する環境が整った。図3上図にBi2212のノード近傍のバンド分散の酸素同位体効果（青線：標準試料、赤線：酸素同位体置換試料）を示す。下図は各々の自己エネルギーの実部を示したものである。この図から酸素同位体置換により、ノード近傍のバンド分散の屈曲（キंक）構造にエネルギーシフトが示されることが分かった。

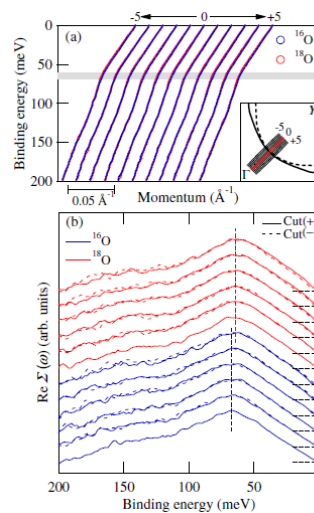


図3 Bi2212のノード近傍の分散関係（上図）および自己エネルギーの実部（下図）。青線：標準酸素試料、赤：酸素同位体置換試料

次の課題は、観測された電子構造の酸素同位体効果が酸素の質量変化から予測される「正常な」変化として示されるかどうかである。ノード方向の電子構造の酸素同位体効果の定量的評価を行うために、各々5個の標準酸素試料と酸素同位体置換試料のノード方向のキंक構造の酸素同位体効果を調べた。図4(a)および(c)に自己エネルギーの実部および屈曲位置を示す。(d)は自己エネルギーの虚部の変曲点を示す。これらの図から示されるように、ノードキंक構造は酸素同位体置換により3.2-3.4meV程度低エネルギー側にシフトすることが示された。この値は酸素同位体置換による格子振動の変化量 $\Omega[1-\sqrt{16/18}]=3.4\text{meV}$ と定量的に一致している。

以上のことから本研究により、「ノード分散に現れる屈曲構造は電子格子相互作用により引き起こされる」と結論した。

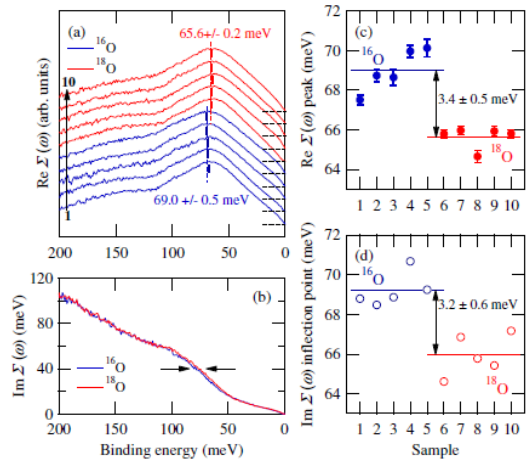


図4 (a) Bi2212のノード分散の自己エネルギーの実部（青線：標準酸素試料、赤：酸素同位体置換試料）、(b) 自己エネルギーの虚部の例、(c) 自己エネルギーの実部のピーク位置、(d) 自己エネルギーの虚部の変曲点

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 8 件)

- ① H. Iwasawa, Y. Yoshida, I. Hase, S. Koikegami, H. Hayashi, J. Jiang, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, Y. Aiura, Interplay among Coulomb Interaction, Spin-Orbit Interaction, and Multiple Electron-Boson Interactions in Sr_2RuO_4 , 査読有, Phys. Rev. Lett. 105, 2010, 226406
- ② Y. Aiura, I. Hase, Y. Yoshida, S. Koikegami, H. Iwasawa, Enhancement of Hybridization between Two- and One-Dimensional Bands due to Coulomb and Spin-Orbit Interactions in Sr_2RuO_4 , 査読有, J. Phys. Soc. Jpn. 79, , 2010, 123702
- ③ N. C. Plumb, T. J. Reber, J. D. Koralek, Z. Sun, J. F. Douglas, Y. Aiura, K. Oka, H. Eisaki, D. S. Dessau, Low-Energy (<10 meV) Feature in the Nodal Electron Self-Energy and Strong Temperature Dependence of the Fermi Velocity in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-\delta}$, 査読有, Phys. Rev. Lett. 105, 2010, 046402
- ④ K. Sato, H. Iwasawa, N. C. Plumb, T. Masui, Y. Yoshida, H. Eisaki, H. Bando, A. Ino, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, S. Tajima, Y. Nishihara, D. S. Dessau, Y. Aiura, Enhancement of oxygen isotope effect due to out-of-plane disorder in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ln}_{0.4}\text{CuO}_{6+\delta}$ superconductors, 査読有, Phys. Rev. B80, 2009, 212501
- ⑤ H. Iwasawa, J. F. Douglas, K. Sato, T. Masui, Y. Yoshida, Z. Sun, H. Eisaki, H. Bando, A. Ino, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, S. Tajima, S. Uchida, T. Saitoh, D. S. Dessau, Y. Aiura, Isotopic Fingerprint of Electron-Phonon Coupling in High- T_c Cuprates, 査読有, Phys. Rev. Lett. 101, 2008, 157005
- ⑥ S. Koikegami, Y. Aiura, Kink structure in the electronic dispersion of high- T_c superconductors from the electron-phonon interaction, 査読有, Phys. Rev. B77, 2008, 184519

[学会発表] (計 26 件)

- ① T. J. Reber, 相浦義弘 他, Intrinsic Scattering Rates and the "Filling" Gap of Bi2212 , APS March Meeting 2011, 2011 年 3 月 21 日, Dallas, Texas
- ② Q. WANG, 相浦義弘 他, ARPES

lineshapes, coherent to incoherent ratios, and the waterfall self-energy of Bi2212 cuprate superconductors, APS March Meeting 2011, 2011 年 3 月 21 日, Dallas, Texas

- ③ 岩澤英明, 相浦義弘 他, Sr_2RuO_4 の電子状態における偏光・励起光依存性, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 25 日, 大阪府立大学
- ④ T. J. Reber, 相浦義弘 他, Extracting Momentum Resolved Tunneling Curves of Bi2212 from ARPES, APS March Meeting 2010, 2010 年 3 月 16 日, Portland, Oregon
- ⑤ N. C. Plumb, 相浦義弘 他, Momentum and doping dependence of oxygen isotope substitution in Cuprates, APS March Meeting 2010, 2010 年 3 月 16 日, Portland, Oregon
- ⑥ 岩澤英明, 相浦義弘 他, Doping-dependence of oxygen isotope shift of the nodal kink in Bi-cuprates studied by low-energy ARPES, The 9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity (M2S-IX), 2009 年 9 月 8 日, 東京
- ⑦ 岩澤英明, 相浦義弘 他, Low-energy ARPES study in oxygen isotope substituted Bi-cuprates, International Workshop on Strong Correlations and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy (CORPES09), 2009 年 7 月 21 日, Zurich
- ⑧ T. J. Reber, 相浦義弘 他, Anomalous behavior of the nodal scattering rate of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+}$ near the Fermi energy, APS March Meeting 2009, 2009 年 3 月 16 日, Pittsburgh, Pennsylvania
- ⑨ N. C. Plumb, 相浦義弘 他, Novel feature in the nodal electron self-energy and strong temperature dependence of the Fermi velocity in the high temperature superconductor Bi2212 , APS March Meeting 2009, 2009 年 3 月 16 日, Pittsburgh, Pennsylvania
- ⑩ 岩澤英明, 相浦義弘 他, 低エネルギー励起 ARPES を用いた Bi 系高温超伝導体における酸素同位体効果の検証, 第 22 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 2009 年 01 月 11 日, 東京大学本郷キャンパス
- ⑪ 佐藤耕二, 相浦義弘 他, Bi2201 の酸素同位体効果, 2008 日本物理学会秋季大会, 2008 年 09 月 22 日, 盛岡市
- ⑫ 岩澤英明, 相浦義弘 他, 低エネルギー励起 ARPES による Bi2212 における酸素同位体効果の精密検証, 2008 日本物理学会秋季大会, 2008 年 09 月 22 日, 盛岡市

- ⑬ 佐藤耕二, 相浦義弘 他, Bi2212 の角度分解光電子スペクトルにおける酸素同位体効果 II, 日本物理学会 第 63 回年次大会, 2008 年 3 月 24 日, 近畿大学
- ⑭ N. C. Plumb, 相浦義弘 他, Theoretical fits of laser-ARPES energy distribution curves of the high Tc superconductor Bi2212, 2008 APS March Meeting, 2008 年 3 月 13 日, New Orleans, Louisiana
- ⑮ J. F. Douglas, 相浦義弘 他, Isotope effect on the nodal kink energy in Bi2212, 2008 APS March Meeting, 2008 年 3 月 13 日, New Orleans, Louisiana
- ⑯ 岩澤英明, 相浦義弘 他, Oxygen isotope effect in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ studied by low-energy ARPES, The 20th International Symposium on Superconductivity (ISS2007), 2007 年 11 月 7 日, つくば
- ⑰ 岩澤英明, 相浦義弘 他, Oxygen isotope effect in high-Tc cuprates studied by LE-ARPES, International Symposium on Lattice Effects in Cuprate High Temperature Superconductors (LEHTSC 2007), 2007 年 10 月 31 日, つくば
- ⑱ 小池上繁, 相浦義弘, ノード方向に現れるキルク構造について, 日本物理学会 第 62 回年次大会, 2007 年 9 月 21 日, 北海道大学
- ⑲ 岩澤英明, 相浦義弘 他, Oxygen isotope effect in Bi2212 studied by low-energy angle-resolved photoemission spectroscopy, The 8th International Conference on Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS2007), 2007 年 8 月 21 日, 東北大学
- ⑳ 岩澤英明, 相浦義弘 他, Oxygen isotope effect in cuprate superconductors studies by low-energy angle-resolved photoemission spectroscopy, 15th International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics (VUV15), 2007 年 7 月 30 日, Berlin, Germany

[その他]

http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2010/pr20101117/pr20101117.html
平成 21 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 (開発部門)、相浦 義弘、2009/04/14

6. 研究組織

(1) 研究代表者

相浦 義弘 (AIURA YOSHIHIRO)
独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・主任研究員
研究者番号：80356328

(2) 研究分担者

永崎 洋 (EISAKI HIROSHI)
独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・主任研究員

研究者番号：20242018

増井 孝彦 (MASUI TAKAHIKO)
国立大学法人大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：10403099

吉田 良行 (YOSHIDA YOSHIYUKI)
独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・研究員

研究者番号：50415767

(3) 研究協力者

岩澤 英明 (IWASAWA HIDEAKI)
国立大学法人広島大学・放射光科学研究センター・研究員

研究者番号：90514068