

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：10103

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03733

研究課題名(和文) 圧力下トンネル分光イメージングによる強相関超伝導物質の新奇電子状態の探索

研究課題名(英文) Search for novel electronic states of superconductivity in strongly electron systems by tunneling spectroscopy under pressure with the imaging

研究代表者

黒澤 徹 (KUROSAWA, Tohru)

室蘭工業大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：10615420

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：銅酸化物高温超伝導体Bi2212の広いホール濃度領域のSTM/STS実験に取り組み、ペア密度波の観測を行った。不足ドーピング領域では、ペア密度波の周期は格子間隔の約4倍で先行研究の最適ドーピングの結果と一致し、過剰ドーピング領域においては、変調構造の周期が約5倍となっていることが明らかとなった。このホール濃度依存性は、銅酸化物高温超伝導体で報告されている電荷秩序の振舞いと同一であることから、ペア密度波と電荷秩序の間には密接な関係があると考えられる。また、超伝導転移温度にスケールするエネルギーで、ペア密度波が顕著に観測されることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導を担うクーパー対の密度が空間的に変調することで起こるペア密度波の理解は、超伝導の発現機構を考えるうえで重要な役割を担っている。本研究では、ペア密度波が超伝導転移温度より高温で形成される電荷秩序と密接な関係があることを示唆する結果が得られた。今後、電荷秩序とペア密度波をコントロールすることで、より高温で超伝導を実現することや新規デバイスへの応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：To investigate the nature of the pair density wave in Bi2212, STM/STS measurements were performed. In the underdoped regime, a period of the pair density wave is of about 4 times lattice constant which is consistent with the previous result. On the other hand, in the overdoped regime, the period of the pair density wave is of about 5 times lattice constant. This tendency would be similar to that of the electronic charge order in the cuprates. This result indicates that the pair density wave would be closely related with the charge order. The pair density wave was clearly observed at an energy whose size is scale with superconducting transition temperature.

研究分野：固体物理

キーワード：銅酸化物高温超伝導体 ペア密度波 走査トンネル顕微鏡 走査トンネル分光法 電荷秩序

### 1. 研究開始当初の背景

近年、ホールドーブ系の銅酸化物高温超伝導体では、超伝導が発現する  $\text{CuO}_2$  面内でクーパー対の密度が空間的に変調を受けるペア密度波 (PDW) 状態が報告され、注目されている。ゼロ磁場下で観測された銅酸化物高温超伝導体における PDW は、これまで強磁場下で報告されている重い電子系などの Flude-Fereell-Larkin-Ovchinnikov 超伝導状態の PDW とは起源が異なると考えられており、その形成機構や高温超伝導の発現メカニズムとの関わりに大きな関心が集まっている。また、PDW と同様に超伝導が発現する  $\text{CuO}_2$  面内に形成される短距離電荷秩序も、銅酸化物高温超伝導体研究の中心課題のひとつであり、現在も精力的な研究が行われている。電荷秩序は高温超伝導体に特有な擬ギャップとの関連性から興味もたれてきたが、最近では擬ギャップに加え、PDW との関連性も大きな話題になっている。短距離電荷秩序や擬ギャップの起源を明らかにすることは、PDW の形成機構、さらには高温超伝導の発現機構の解明に繋がる重要な情報が得られるものと期待されている。

### 2. 研究の目的

本研究では、Bi 系銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (Bi2212) で報告されたクーパー対の密度が空間的に変調を受けるペア密度波 (PDW) の起源を明らかにするために、Bi2212 の不足ドーブから過剰ドーブに亘る広いホール濃度領域において系統的に STM/STS 実験に取り組む。それらの結果を総合して PDW の特性エネルギーや変調構造の周期等のホール濃度依存性を詳細に調べる。得られた結果を基に、PDW の起源に迫り、銅酸化物高温超伝導体に特有の擬ギャップや短距離電荷秩序といった現象の起源や PDW との関連性についての新たな知見を得る。また、擬ギャップや短距離電荷秩序の本質を明らかにするうえで新たな情報を得るために、一軸性圧力下での測定を可能とする STM 装置の開発に取り組み、銅酸化物高温超伝導体をはじめとした強相関電子系物質の電子状態の観測に取り組む。

### 3. 研究の方法

本研究では、ペア密度波 (PDW) のホール濃度依存性を正確に調べるため赤外線イメージ炉を用いた TSFZ 法 (溶媒移動型浮遊帯域法) により作製した Bi2212 単結晶試料に加えて超伝導が消失する超過剰ドーブ領域の結晶を比較的容易に作製できる  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+x}$  (Bi2201) の単結晶試料の育成を並行して行った。作製した試料について磁化測定を行い、超伝導転移温度からホール濃度を決定した。

作製した単結晶試料を低温・高真空中の STM 装置内において、劈開し、清浄で原子レベルで平らな試料平面を準備し、STM/STS 実験を行った。

一軸性圧力下での STM/STS 実験を行うための試料ホルダーの作製を行い、試料に一軸性のストレスを加えて STM 実験に取り組んだ。試料に加わった歪みの大きさについては、ストレインゲージを用いて歪みを加える前後での変化について見積を行った。

### 4. 研究成果

(1) これまで PDW は Bi2212 の最適ドーブの結晶について報告されていた。本研究では最適ドーブよりも低ホール濃度側の不足ドーブ領域の結晶と高ホール濃度側の過剰ドーブ領域の Bi2212 単結晶を育成し STM/STS 実験を行い、PDW に関わる電子系の変調構造を観測することに成功した。先行研究より、STS スペクトルに対してバイアス電圧 (エネルギー) で 2 階微分を行い得られるスペクトル (D カーブ) は、クーパー対の密度に関する情報を STS スペクトルから取り出すことができる手法として報告されており、特定のエネルギーに対して D カーブの値を 2 次元画像化することで得られる D マップはクーパー対の密度の空間依存性を示す。不足ドーブ領域の STS スペクトル (図 1(a)) から得られた D カーブには超伝導状態になり形成されるクーパー対の密度を反映したピーク構造がみられる (図 1(b))。

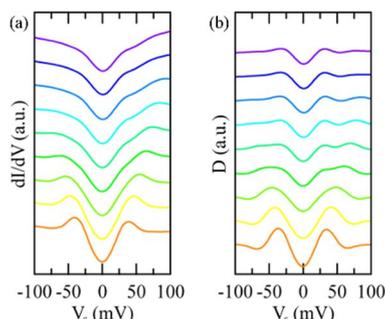


図 1: (a)不足ドーブ Bi2212 の STS スペクトルと(b)D カーブ

ピーク構造が現れるエネルギーの D カーブの値を画像化して得られた D マップには原子周期よ

りも長周期の構造が発達していることが確認できた。この変調構造を調べるために、フーリエ解析をした結果、原子周期の約 4 倍の 2 次元的な変調構造であることが明らかになった ( 図 2 )。

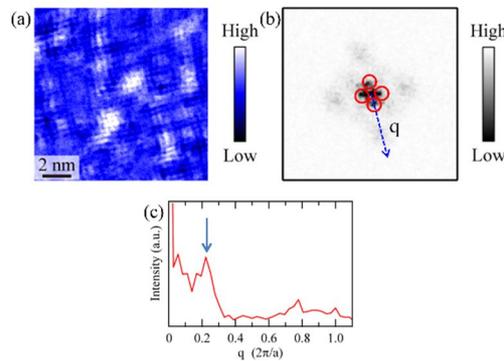


図 2 : (a)不足ドーブ Bi2212 の D マップ、(b)D マップのフーリエ変換像、  
(c)(b)内の q に沿ったラインプロファイル

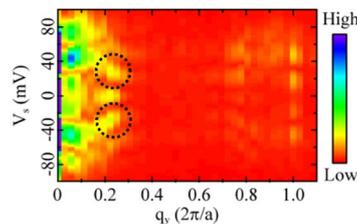


図 3 : 不足ドーブ Bi2212 のラインプロファイル ( 図 2(c) ) のエネルギー依存性

また、この変調構造の強度に対するエネルギー依存性を調べるために変調構造を反映するフーリエピークの強度のエネルギー依存性を調べると特定エネルギーでピークの強度が大きくなることが明らかになった ( 図 3 )。

一方、過剰ドーブの測定結果にも不足ドーブ領域の結果と同様に D カーブにはクーパー対の密度を反映したピーク構造が確認できたが、ピークの現れるエネルギーは不足ドーブの値とは異なることが明らかとなった。この結果を反映して変調構造の強度が大きくなるエネルギーも不足ドーブ領域のものとは異なる。また、不足ドーブ領域では約 4 倍であった変調構造の周期に関しては、過剰ドーブ領域では約 5 倍と長くなる傾向がみられた。

変調構造の周期に関するホール濃度依存性は、同じ電子系の変調構造の電荷秩序と似た振舞いであることから PDW と電荷秩序の形成には何らかの関係があることが示唆される。また、変調構造の強度が大きくなるエネルギーは、超伝導の形成に大きく寄与するフェルミアーク上に開く超伝導ギャップのギャップ端の大きさと同程度であることから、PDW の特性エネルギーと対形成のエネルギーが一致することを示唆する。

( 2 ) Pb 置換をおこない超伝導が消失する Bi2201 の過剰ドーブの結晶を育成し、STS 測定から電子状態を調べたところ、STS スペクトルに空間的に均一なギャップと不均一の 2 種類のギャップが観測された。先行研究において、超伝導が消失し擬ギャップの報告もないホール濃度において今回観測されたギャップについては、強磁性揺らぎとの関わりについて今後さらなる研究が望まれる。

( 3 ) 一軸ストレスを加える試料ホルダーの作製を行い、不可逆ではあるが歪みを加えた状態で STM 実験を行うことに成功した。今後、より大きな歪を加えることができ、さらに可逆にストレスを加えることの試料ホルダーの開発が望まれる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Miao H., Fabbris G., Koch R. J., Mazzone D. G., Nelson C. S., Acevedo-Esteves R., Gu G. D., Li Y., Yilimaz T., Kaznatcheev K., Vescovo E., Oda M., Kurosawa T., Momono N., Assefa T., Robinson I. K., Bozin E. S., Tranquada J. M., Johnson P. D., Dean M. P. M.	4. 巻 6
2. 論文標題 Charge density waves in cuprate superconductors beyond the critical doping	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 31
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41535-021-00327-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Wang Ying, Takahashi Shotaro, Suda Takaya, Tamura Taro, Ohta Haruka, Kurosawa Tohru, Oda Migaku, Ido Masayuki, Momono Naoki	4. 巻 89
2. 論文標題 Impurity Effects on Superconductivity of La01-xFxBi1-ySb2 through Specific Heat Measurements	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 094708 ~ 094708
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.89.094708	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Frchet Mehdi, Vinograd Igor, Zhou Rui, Benhabib Siham, Wu Shangfei, Mayaffre Hadrien, Kr?mer Steffen, Ramakrishna Sanath K., Reyes Arneil P., Debray J?r?me, Kurosawa Tohru, Momono Naoki, Oda Migaku, Komiya Seiki, Ono Shimpei, Horio Masafumi, Chang Johan, Proust Cyril, LeBoeuf David, Julien Marc-Henri	4. 巻 16
2. 論文標題 Hidden magnetism at the pseudogap critical point of a cuprate superconductor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Physics	6. 最初と最後の頁 1064 ~ 1068
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41567-020-0950-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Wang QS., Horio M., von Arx K., Shen Y., Mukkattukavil DJ., Sassa Y., Ivashko O., Matt C.E., Pyon S., Takayama T., Takagi H., Kurosawa T., Momono N., Oda M., Adachi T., Haidar S.M., Koike Y., Tseng Y., Zhang W., Zhao J., Kummer K., Garcia-Fernandez M., Zhou Ke-Jin, Christensen N.B., Ronnow H.M., Schmitt T., Chang J.	4. 巻 124
2. 論文標題 High-Temperature Charge-Stripe Correlations in La1.675Eu0.2Sr0.125CuO4	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 187002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.124.187002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Nobukane H, Tabata Y, Kurosawa T, Sakabe D, Tanda S	4. 巻 32
2. 論文標題 Coexistence of the Kondo effect and spin glass physics in Fe-doped NbS <sub>2</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 165803 ~ 165803
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ab622a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nobukane H, Tabata Y, Kurosawa T, Sakabe D, Tanda S	4. 巻 32
2. 論文標題 Coexistence of the Kondo effect and spin glass physics in Fe-doped NbS <sub>2</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 165803 ~ 165803
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ab622a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Y. Miyai, K. Ishiba, Shiv Kumar, T. Kurosawa, M. Oda, K. Shimada
2. 発表標題 High-resolution ARPES of heavily overdoped Bi2201: evaluation of coupling parameters
3. 学会等名 第25回広島放射光国際シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 横井千熙, 宮寄一誠, 金井恭佑, 市村晃一, 丹田聡, 松永悟明, 黒澤徹
2. 発表標題 Fe <sub>1+x</sub> Teの誘電率測定II
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 S. Mizuta, T. Kurosawa, N. Momono, H. Yoshida, M. Oda and M. Ido
2. 発表標題 Coexistence of electronic superstructures in high-Tc cuprate Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> CaCu <sub>2</sub> O <sub>8+x</sub> studied by STM/STS
3. 学会等名 SNS2019 Spectroscopies in Novel superconductors (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Wang, N. Momono, T. Tamura, H. Ohta, S. Takeyabu, K. Nara, T. Kurosawa, M. Oda, and M. Ido
2. 発表標題 Impurity Effects on the Superconductivity in La <sub>0.5</sub> F <sub>0.5</sub> BiS <sub>2</sub>
3. 学会等名 SNS2019 Spectroscopies in Novel superconductors (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 横井千熙, 宮寄一誠, 金井恭佑, 市村晃一, 丹田聡, 松永悟明, 黒澤徹
2. 発表標題 Fe <sub>1+x</sub> Teの誘電率測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 水田崇聖, 黒澤徹, 吉田紘行, 小田研, 伊土政幸, 桃野直樹
2. 発表標題 STM/STSからみたBi <sub>2</sub> 212の電子系変調構造とエネルギーギャップ
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 銅酸化物高温超伝導体Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> Ca <sub>1-x</sub> DyxCu <sub>2</sub> O <sub>8+</sub> のp~1/8における電荷秩序
2. 発表標題 松田佳樹, 太田悠, 藤原秋司, 島崎翔太郎, 黒澤徹, 小田研, 伊土政幸, 雨海有佑, 高野英明, 桃野直樹
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 太田悠, 松田佳樹, 藤原秋司, 島崎翔太郎, 雨海有佑, 高野英明, 黒澤徹, 小田研, 伊土政幸, 桃野直樹
2. 発表標題 希薄ドーブBi系銅酸化物高温超伝導体のエネルギーギャップ
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	桃野 直樹  (MOMONO Naoki)  (00261280)	室蘭工業大学・大学院工学研究科・教授    (10103)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------