

研究種目：若手研究(B)  
 研究期間：2008～2009  
 課題番号：20740199  
 研究課題名（和文） 低エネルギー放射光による高温超伝導状態の  
 面間および面外相互作用の解明  
 研究課題名（英文） Study of the inter-layer and intra-layer interactions in high-Tc  
 superconducting states using low-energy synchrotron radiation  
 研究代表者  
 井野 明洋（INO AKIHIRO）  
 広島大学・大学院理学研究科・助教  
 研究者番号：60363040

研究成果の概要（和文）：低エネルギー放射光角度分解光電子分光法の高い分解能とバンド選択性を活用して、銅酸化物高温超伝導体の微細準粒子構造を直接観測により決定した。その結果、面外不規則性によるわずかな面内ポテンシャルの乱れによって、*d*波超伝導状態における強い電子対破壊効果がもたらされること、一方で、電子系の遮蔽を強く抑制するため、電子-フォノン相互作用や弾性不純物散乱が増大し、準粒子質量が増加することが明らかになった。

研究成果の概要（英文）：Exploiting the high resolution and band selectivity of low-energy synchrotron-radiation angle-resolved-photoemission, we have directly determined fine quasiparticle structures in high-Tc cuprate superconductors. We found that weak in-plane potential disorder due to the out-of-plane impurities makes a strong pair-braking effect in d-wave superconducting state, and that it also makes a suppression of the screening by the electronic system, leading to the increase in electron-phonon interaction and elastic impurity scattering, and thus to the enhancement of the quasiparticle mass.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,500,000	750,000	3,250,000

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、角度分解光電子分光、電子構造、放射光

### 1. 研究開始当初の背景

高温超伝導の発現機構の解明は、超伝導技術向上の鍵となるだけでなく、現代の物理学に残された大きな課題である。銅酸化物系では二次元  $\text{CuO}_2$  面が超伝導の舞台と考えられており、また層状窒化物など他の高温超伝導体も二次元性が強く、高温超伝導と次元性の関わりが実験・理論の両面から強く示唆されている。しかし、同じ  $\text{CuO}_2$  面を有する系でも、臨界温度が 100 K を超えるものから、超伝導を示さない系まで、幅広い多様性を示す。従って、高温での超伝導状態を安定化させる要因、もしくは本来のより高温な超伝導状態を阻害している要素を特定するためには、 $\text{CuO}_2$  面を独立した二次元電子系とみなすのではなく、 $\text{CuO}_2$  面の外部の状況が超伝導を担う二次元電子状態に及ぼす効果を明らかにする必要があった。

電子状態の変化を詳細に調べるには、単独の準粒子励起を波数・エネルギー空間で分解して直接観測できる角度分解光電子分光が強力な手法となる。特に、近接する  $\text{CuO}_2$  面間の相互作用により生じる二重の電子状態の分解は、マクロ物性測定では難しく、角度分解光電子分光が唯一の手法となる。それゆえ、これまで多くの角度分解実験が国内外で行われてきたが、有限の実験精度や励起光エネルギーによる制約のため、面間の相互作用や面外サイトの散乱による準粒子構造の変化を特定するには至らなかった。近年、低エネルギー放射光を用いることで、格段に良い波数・エネルギー分解能で角度分解測定ができることが判明した。

### 2. 研究の目的

本研究は、低エネルギー放射光角度分解光電子分光法の高い分解能とバンド選択性を活用して、銅酸化物高温超伝導体のバンド構造や微細準粒子構造を直接観測することで、 $\text{CuO}_2$  二次元面の外部の状況が、超伝導を担う電子状態におよぼす効果を明らかにすることを目的とする。具体的には、(1)  $\text{CuO}_2$  面から離れた面外サイトの原子や不純物の影響、(2)  $\text{CuO}_2$  面に隣接する頂点酸素の影響、(3) 他の  $\text{CuO}_2$  面との相互作用の効果の三点に着目して研究を行った。

### 3. 研究の方法

本実験では、低エネルギー領域を含む幅広いエネルギー範囲 ( $h\nu = 6\text{--}70\text{ eV}$ ) の放射光を用い、角度分解光電子分光法による直接観測から、微細準粒子構造を決定した。これにより、高い波数・エネルギー分解能での準粒子構造測定と、より高い割合で結晶深部からの信号を捉えた観測、さらに二重層分裂のある

$\text{Bi2212}$  系ではバンド選択的な測定が実現された。また、物質ごとに励起光のエネルギーを最適化することで、従来は測定が難しかった  $\text{SmLa}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  系や、単層系の銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi2201}$  系についても、高分解能ギャップ観測に成功した。試料は、溶媒移動浮遊帯域法で作製されたものを用い、超高真空中で劈開することで清浄表面を得た。

### 4. 研究成果

#### (1) 面外サイトの不規則性の影響

① 単層系銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.6}\text{Ln}_{0.4}\text{Bi}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  ( $\text{Ln}=\text{Bi2201}$ ) は、面外の Sr サイトを  $\text{Ln}=\text{La, Nd, Gd}$  で置換することで、結晶構造を保ったまま、 $\text{CuO}_2$  面内のポテンシャルに弱い不規則性を系統的に導入することができる。そこで、低エネルギー放射光を用いた角度分解光電子分光により、準粒子の散乱確率、およびギャップの大きさとその異方性のポテンシャル乱れ依存性を決定した。図 1 に示すように、光電子分光から決定した準粒子散乱確率は、面内電気抵抗から得られた散乱確率に比べて、約 2 倍の大きさになっており、前方散乱の割合が大きいことがわかる。また、図 2 に示すように、ポテンシャル乱れの増加とともに、ノード近傍のギャップが超伝導転移温度  $T_c$  に比例する形で小さくなった。この結果より、ノード近傍のギャップが超伝導状態を担っていること、面外不規則性によるわずかなポテンシャルの乱れによって強い電子対破壊効果が起きることを示している。従って、 $d$  波超伝導体の銅酸化物系では、従来の  $s$  波超伝導体とは異なり、面外不規則性などによるわずかなポテンシャルの乱れを抑え込むことが、超伝導転移温度  $T_c$  の向上につながるものと期待される。

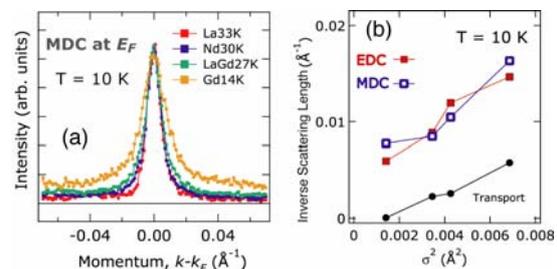


図 1 (a) 超伝導状態の  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.6}\text{Ln}_{0.4}\text{Bi}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  ( $\text{Ln}=\text{La, Nd, Gd}$ ) のノード方向におけるフェルミ準位での運動量分布曲線。(b) 角度分解光電子分光より決定した散乱確率の不規則性依存性。

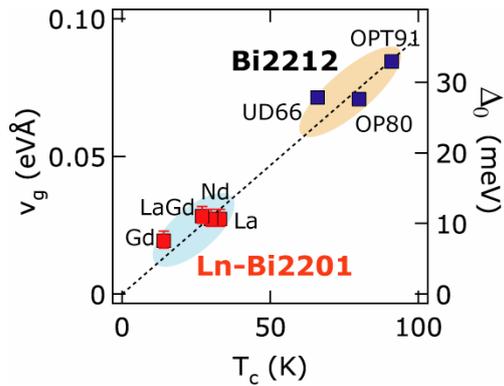


図2 ノード近傍で評価した超伝導ギャップ  $\Delta$  の大きさと、超伝導転移温度  $T_c$  の間の比例関係。左軸はギャップの傾き  $v_g = d\Delta/dk$  で、右軸は d 波の理論曲線で外挿した最大値。

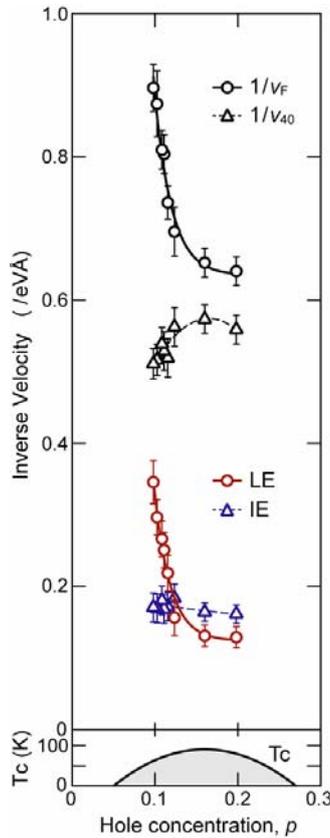


図3  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  の準粒子特性のホール濃度依存性。フェルミ速度の逆数  $1/v_F$  と 40 meV における群速度の逆数  $1/v_{40}$ 、有効質量増大における低エネルギー (LE,  $4 < \omega < 40$  meV) 領域および中間エネルギー (IE,  $40 < \omega < 130$  meV) 領域の寄与。

② Bi 系銅酸化物、特にの不足ドーブ領域では、面外不規則性の増加が避けられない。これが、超伝導転移温度  $T_c$  の低下にどれほど

寄与しているのか注目を集めている。低エネルギー放射光角度分解光電子分光を用いて、不足ドーブの  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.6}\text{La}_{0.4}\text{CuO}_{6+\delta}$  (Bi2201) および  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi2212) のノード準粒子の分散と散乱確率を精密に測定した。どちらの系についても、電子と他の励起との相互作用による構造が複数、観測された。70 meV 付近の準粒子構造はホール濃度依存性が小さいが、Bi2201では 40 meV 付近の準粒子構造、Bi2212では <15 meV 付近の低エネルギー準粒子構造が、ホール濃度の低下とともに急激に増大することがわかった。図3に、準粒子有効質量に比例する群速度の逆数と、質量増大における各エネルギー領域の寄与を示す。この現象は、電子系の遮蔽効果と関係していることが示唆される。面外不規則性によって面内ポテンシャルに乱れがあると、ホール濃度が低下のとともに、準粒子状態が局所的に枯渇し、遮蔽が有効に働かなくなる。このため、低エネルギー・フォノンとの散乱や、弾性不純物散乱が増大することになる。本実験結果は、主要な多体効果が、ホール濃度ともに移り変わることを示している。低エネルギー領域における結合定数の増大が、電子対形成に寄与するのか、それとも電子対破壊をもたらすのかについては、さらなる研究が必要である。

## (2) 頂点酸素の影響

頂点酸素を片側にのみ持つ  $T^*$  相高温超伝導体  $\text{SmLa}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (SLSCO) について、放射光を用いた角度分解光電子分光実験を行い、フェルミ面の形状とギャップ構造を直接観測し、それらのホール濃度依存性を決定した。その結果、SLSCO系のフェルミ面がLSCO系のフェルミ面に比べて曲率が大きいこと、SLSCO系では他の銅酸化物に比べて擬ギャップが非常に強く発達していることなどが明らかになった。これらの結果は、 $\text{CuO}_2$  面外の頂点サイトが、 $\text{CuO}_2$  面内の電子の移動積分に寄与することで、 $\text{CuO}_2$  面の電子状態と超伝導転移温度に影響を及ぼしていることを示唆している。

## (3) 面間相互作用の効果

低エネルギー放射光角度分解光電子分光で、二重層銅酸化物高温超伝導体 Bi2212 の二重層結合バンドと反結合バンドの分散を直接観測し、超伝導状態で両者の間に混成ギャップが開くことを明らかにした。これは、電子対形成相互作用が、隣接する  $\text{CuO}_2$  面間

にも働くことを示唆している。三層系の銅酸化物高温超伝導体の結果と比べると、二層系の混成ギャップはかなり小さい。これらの知見は、 $T_c$ の層数依存性を解明する重要な手がかりになると期待される。

#### 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4件)

① 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, and 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", *Physical Review B*, 査読有, Vol. 80, 2009, pp. 212501/1-4.

② Y. Chen, A. Iyo, W. Yang, A. Ino, M. Arita, S. Johnston, H. Eisaki, H. Namatame, M. Taniguchi, T. P. Devereaux, Z. Hussain, and Z.-X. Shen, "Unusual Layer-Dependent Charge Distribution, Collective Mode Coupling, and Superconductivity in Multilayer Cuprate  $\text{Ba}_2\text{Ca}_3\text{Cu}_4\text{O}_8\text{F}_2$ ", *Physical Review Letters*, 査読有, Vol. 103, 2009, pp. 36403/1-4.

③ Y. Aiura, K. Sato, H. Iwasawa, Y. Nakashima, H. Anzai, A. Ino, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, I. Hase, K. Miyazawa, P. M. Shirage, H. Eisaki, H. Kito, and A. Iyo, "Sheet Dependence on Superconducting Gap in Oxygen-Deficient Iron-Based Oxypnictide Superconductors  $\text{NdFeAsO}_{0.85}$ ", *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有, Vol. 77, 2008, pp. 103712/1-4.

④ 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", *Physical Review Letters*, 査読有, Vol. 101, 2008, pp. 157005/1-4.

[学会発表] (計5件)

① 安齋太陽 他, "Bi2212 のノード近傍準粒子構造のドーピング依存性: 低エネルギー放射光角度分解光電子分光", 日本物理学会 第65回年次大会, 2010年3月20日, 岡山県岡山大学.

② Akihiro Ino, "Low-energy ARPES study of novel multi-band superconductors at HiSOR", 2nd UVSOR Workshop on Low-Energy Photoemission of Solids using Synchrotron Radiation (LEPES 09), 2009年10月4日, Okazaki, Japan.

③ 井野明洋, "放射光角度分解光電子分光による高温超伝導電子状態と競合秩序", 日本物理学会 第64回年次大会 領域8 シンポジウム「多重秩序系における新しい物理-強相関系超伝導体と薄膜界面を舞台として」, 2009年3月29日, 東京都 立教大学.

④ 藤田泰輔 他, "低エネルギー放射光角度分解光電子分光による  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.6}\text{Ln}_{0.4}\text{Bi}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  の面外乱れの効果の研究", 第22回日本放射光学会, 2009年1月11日, 東京都 東京大学.

⑤ Akihiro Ino, "Quasiparticle Fine Structures in Single-Layer and Bilayer Cuprates Studied by Low-Energy ARPES", International Conference on Quantum Phenomena in Complex Matter of the series on Stripes and High- $T_c$  Superconductivity (Stripes08), 2008年7月28日, Erice, Italy.

#### 6. 研究組織

(1)研究代表者

井野 明洋 (INO AKIHIRO)

広島大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号: 60363040

(2)研究分担者

( )

研究者番号:

(3)連携研究者

( )

研究者番号: