

高温超伝導体における電子構造の3次元性およびその超伝導遷移温度への影響の解明

Soft x-ray angle resolved photoemission spectroscopy of $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+d}$ high- T_c superconductors竹内 恒博¹⁾, 浜谷 陽一郎¹⁾, 大河内 拓雄²⁾, 斎藤 祐児⁴⁾

Tsunehiro TAKEUCHI, Yoichiro HAMAYA, Takuo OKOCHI, Yuji SAITOH

¹⁾名古屋大学 ²⁾原子力機構

銅酸化物高温超伝導体 $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+d}$ (過剰ドーブ, $T_c < 2\text{K}$)に対して軟X線励起角度分解光電子分光を実施した。測定時間を要するが、軟X線を励起源とした角度分解光電子分光を用いて、フェルミ準位近傍のエネルギーと運動量の分散関係およびフェルミ面を十分に観測できることを明らかにした。

キーワード : 軟X線角度分解光電子分光, 層状 Co 酸化物, 熱電変換材料

1. 目的

銅酸化物高温超伝導体は、2次元的に広がった CuO_2 面と、 CuO_2 面にキャリアー（電子あるいはホール）を供給する電荷貯蔵層が交互に積層した構造を有している。 CuO_2 面に平行な面内で観測される比抵抗は、 CuO_2 面に垂直方向の比抵抗と比較して2~4桁程度小さく、電子輸送現象や超伝導は CuO_2 面内で生じていると考えられている。典型的な材料 (Bi 系高温超伝導体) において CuO_2 面に垂直方向に電場を印可した場合に、ジョセフソン接合 (超伝導体-絶縁体-超伝導体) に特有の電流-電圧特性が得られていることから、2次元的な CuO_2 面内に伝導電子が閉じこめられていることが強く主張されている。

しかし、近年、酸化物高温超伝導体において3次元的な電子構造が観測されることが幾つかの実験により報告された。我々の研究グループでも紫外線領域の放射光を励起源とした角度分解光電子分光により、Bi 系酸化物高温超伝導体において3次元的なバンド分散の存在を確認し、その結果を報告している。[1]また、電子構造に3次元性が現れる原因として、2次元正方格子に特有の van Hove 特異点 (状態密度上の鋭いピーク) にフェルミ準位が一致することで、電子系のエネルギー不安定性が生まれ、3次元的な分散を有することでその不安定性を緩和していることを提案した。さらに、van Hove 特異点にフェルミ準位が一致する条件 (3次元的な電子構造を生み出す条件) はキャリア濃度が多い領域 (オーバードープ領域) の試料でのみ生じることを明らかにした。

我々の報告も含め、3次元性が観測された高温超伝導体は、オーバードープ領域の試料であり、最大の超伝導遷移温度よりも著しく低下した超伝導遷移温度を示す。この実験事実から、高い超伝導遷移温度を維持する為には2次元的な電子構造を有している (伝導電子が CuO_2 面に閉じこめられている) ことが重要であり、3次元的な電子構造は超伝導遷移温度を抑制していることが示唆される。すなわち、オーバードープ量域において超伝導遷移温度が低下するのは3次元性が発達する為である可能性が高いと考える。

本研究では、ドーブ量の異なる幾つかの酸化物高温超伝導体に対してバルク敏感であり、かつ、終状態による影響を受け難い軟X線励起角度分解光電子分光実験を実施し、酸化物高温超伝導体の電子構造の3次元性のホール濃度依存性とその超伝導遷移温度への影響を明らかにすることを目的とする。

2. 方法

測定に用いた単結晶試料はフローティング・ゾーン炉により作製した。超伝導遷移温度 T_c が 2K 以下になるように、1気圧酸素雰囲気下 400°C で試料をアニールした。超伝導遷移温度 T_c は SQUID 磁束計を用いて磁化率を測定することで決定した。SPring-8 の軟X線ビームライン BL23SU に設置された高分解能角度分解光電子分光装置を用いて、軟X線角度分解光電子分光実験を実施した。超高真空チャンバー内で試料を劈開することで得た清浄表面に軟X線照射し、角度分解光電子分光スペクトルを測定した。軟X線領域の光を励起源とした場合、双極子励起に関わる散乱断面積が小さいために、一般的には、十分な光電子強度が得られない。しかし、共鳴を引き起こすエネルギーの軟X線を用いることで光電子強度が大きくなり、現実的な測定時間でスペクトル強度を収集することが可能になる。2007B 期の測定において $h\nu - \text{W.F.} = 930 \text{ eV}$ の測定を実施したことから、2008A 期の実験には $h\nu - \text{W.F.} = 900 \text{ eV}$ および 915 eV を用いた。

3. 研究成果

図1に(Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+d}に対して $h\nu$ -W.F. = 900 eVにて測定した角度分解光電子スペクトルを示す図に示したスペクトルではバックグラウンド強度を差し引いてある。 $h\nu$ -W.F. = 900 eVの測定においてもフェルミ準位近傍において E - k 分散関係に相当する光電子強度の変化が明瞭に観測できることを確認した。観測された電子構造は、入射光のエネルギーと試料のブリルアンゾーンの大きさから予測されるように、ブリルアンゾーン2つ分の領域にわたり測定されていることがわかる。また、得られたスペクトルから E - k 分散関係およびフェルミ面を概ね決定することができた。

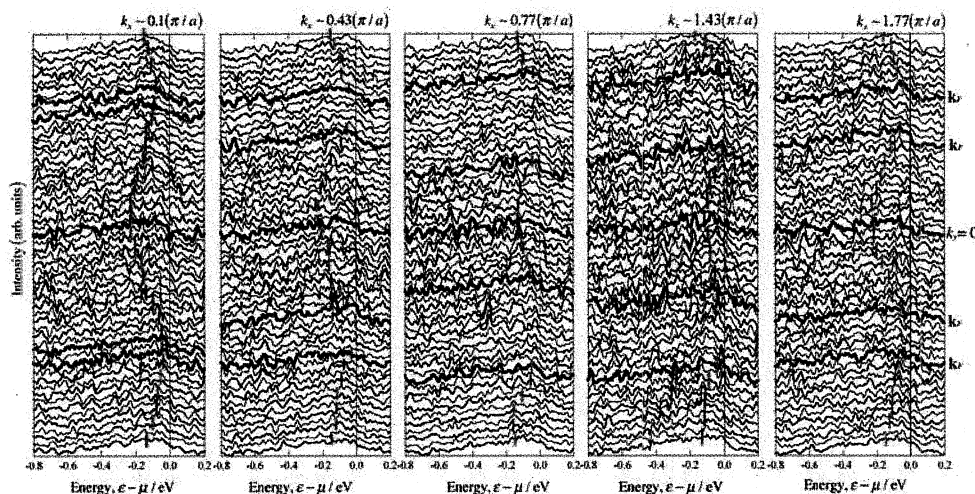


Fig.1 (Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+d}のフェルミ準位近傍の軟X線角度分解光電子分光スペクトル。入射光は $h\nu$ +W.F. ~ 900eV を用いた

フェルミ面や E - k 分散関係を概ね決定できることは前回の測定 ($h\nu$ -W.F. = 930 eV) と今回の測定 $h\nu$ -W.F. = 900eV および 915eV から明らかになった。しかし、 $h\nu$ -W.F. = 930 eV の測定と比較すると、今回の測定条件ではやや光電子スペクトル強度が弱いことも明らかになった。 $h\nu$ -W.F. = 930 eV は Cu 2p-3d 共鳴条件に一致することから、 $h\nu$ -W.F. = 930 eV において弱いながらも共鳴現象が生じていると判断される。

今回の測定では、1つの測定条件で4時間以上の測定を行ったにもかかわらず、フェルミ面や E - k 分散関係の入射光依存性 (k_z 依存性) を議論できるだけの十分なスペクトル強度を得ることができなかった。特定の測定条件 (角度および入射光エネルギー) に固定して、測定時間を長くする必要があると判断される。2008B 期に予定している測定において、この問題に対応した測定を実施する予定である。

4. 結論・考察

本研究により得られた結果により、軟X線を励起源とした角度分解光電子分光により、銅酸化物高温超伝導体のフェルミ準位近傍の電子状態を観測できることが明らかになった。今後は、軟X線角度分解光電子分光光電子の特徴 (脱出深さが深いことや、入射高のエネルギーに対する双極子遷移確率のエネルギー依存性が弱いこと) を生かして、電子構造の3次元性を定量的に評価する研究を実施する予定である。

[1] T.Takeuchi *et al.*, Physical Review Letters, **95**, 227004 (2005).