

酸化物高温超伝導体(Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+δ}の軟X線角度分解光電子分光

Soft x-ray angle resolved photoemission spectroscopy of (Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+d} superconductor

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

酸化物高温超伝導体(Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+d}に対して軟X線角度分解光電子分光実験を実施した。その結果、紫外線励起角度分解光電子分光と比較するとエネルギー分解能が悪く、測定時間を要するという欠点があるが、軟X線を励起源とした角度分解光電子分光でも十分に酸化物高温超伝導体の電子構造を観測可能であ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, 酸化物高温超伝導体, 3次元の電子構造

1. 目的

銅酸化物高温超伝導体は2次元的に広がったCuO₂面とCuO₂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。CuO₂面に平行な面内で観測される比抵抗は、CuO₂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CuO₂面内で生じていると考えられている。典型的な高温超伝導体であるBi系銅酸化物高温超伝導体においてCuO₂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CuO₂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。

近年、酸化物高温超伝導体において3次元の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。[1,2]申請者らも、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を用いることで、Bi系酸化物高温超伝導体において3次元のバンド分散の存在を確認し、その結果を報告している。[2]また同論文中において、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るはずであると考察し、3次元のエネルギー分散によりその不安定性を緩和できることが電子構造に3次元性を生み出す原因であると提案している。さらに、実際に、系に3次元性が発達する過剰ドーブ領域の試料でのみvan Hove特異点にフェルミ準位が一致する条件が満たされることを明らかにした。

電子構造に3次元性が生まれると、van Hove特異点まわりの電子状態密度が著しく変化し、超伝導遷移にも大きく影響を及ぼすことが容易に予想される。すなわち、電子構造における3次元性の発達が過剰ドーブ領域において超伝導遷移温度を抑制している可能性が高いと考えられる。上述した実験的事実やそれらに基づく考察から、高温超伝導の発現機構や超伝導遷移温度(T_c)の支配因子を特定する為には、高温超伝導体の電子構造における3次元性のキャリア濃度依存性を解明することが重要であると判断した。そこで、本研究では軟X線励起角度分解光電子分光を用いて、酸化物高温超伝導体の電子構造を解明することを目的とした。

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最終的な目的としているが、2007B期に実施した実験は、最終的な目的を達成する為の第1段階として、Bi系銅酸化物高温超伝導体のフェルミ準位近傍のバンド構造を軟X線角度分解光電子分光法を用いて観測できることを確認することを目的に実施した。

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。超高真空チェ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(SX-ARPES)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。実験にはCu2p-3d共鳴($h\nu - W.F. = 930\text{eV}$)を利用した。このエネルギーを利用することで、実際に、非共鳴光電子強度と比較して約2倍の光電子強度が得られることを確認した。

3. 研究成果

図1に(Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+d} 過剰ドーブ試料 ($T_c \sim 3K$) に対して, 入射高エネルギー $h\nu$ -W.F.= 930 eV, 試料温度 20K にて測定した角度分解光電子強度をエネルギーと角度(運動量)の関数としてプロットした図を示す. それぞれの測定に対応する運動量は図2に描いた逆空間上に破線として示した. 図1に示したいずれの角度分解光電子分光スペクトルにおいても, 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される.

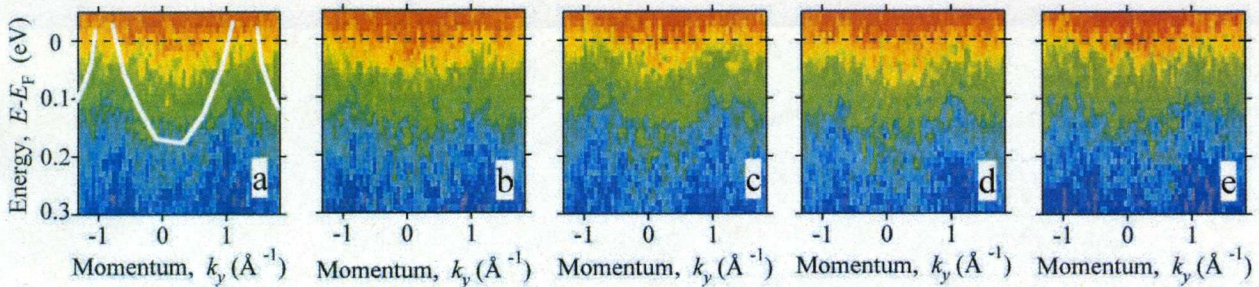


図1 (Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+d} 過剰ドーブ試料 ($T_c \sim 3K$) の角度分解光電子分光スペクトル. 測定は 20K にて行った. a~e で示した図に対応する波数空間上の運動量線は, 真空紫外光光電子分光実験で決定したフェルミ面と併に図2に示した. 光電子分光強度分布に対応するバンド分散を a に白線で示した.

フェルミ準位における Momentum distribution curve を用いてフェルミ波数を決定したところ, 図2に示すように, 真空紫外光励起角度分解光電子分光で報告されているフェルミ面を概ね再現していることが判明した. この実験結果から, 軟X線を励起源とした角度分解光電子分光法を用いて, Bi系酸化物高温超伝導体の電子構造を調べ, 議論できると判断した.

今回実施した実験により, 測定条件を確定することができたことから, 今後, 試料のキャリア濃度, 入射光のエネルギー, 及び, 測定温度を変化させた際の軟X線光電子分光スペクトルを収集することで, 研究の目的とする電子構造の3次元性と超伝導遷移温度の関係を明らかに予定である.

4. 結論・考察

2007年下期に実施した Bi系酸化物高温超伝導体に対する軟X線励起角度分解光電子分光実験により, 紫外線励起角度分解光電子分光と比較するとスペクトル強度が弱くエネルギー分解能が劣るが, 軟X線励起角度分解光電子分光を用いて十分な精度で酸化物高温超伝導体の電子構造を解明できることを明らかにできた.

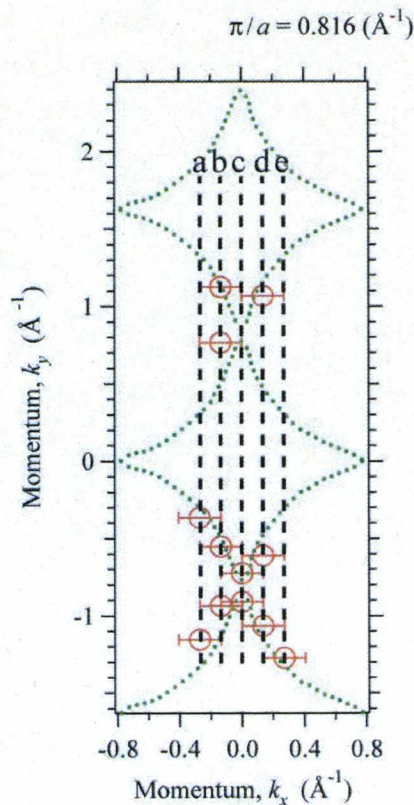


図2 $T_c \sim 3K$ を示す (Bi,Pb)₂Sr₂CuO_{6+d} 過剰ドーブ試料のフェルミ波数(赤丸). 緑色の点線は紫外線光電子分光にて決定したフェルミ面を示す. 黒い破線は測定した運動量を示している.

[1] N. E. Hussey *et al.*, *Nature* **425**, 814 (2003).

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