

## 平成 16 年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究状況報告書

ふりがな		たかはし たかし					
研究代表者氏名		高橋 隆		所属研究機関・部局・職		東北大学・大学院理学研究科・教授	
研究課題名	和文	超高分解能光電子分光装置の開発と高温超伝導体準粒子の研究					
	英文	Development of Ultrahigh-Resolution Photoemission Spectrometer and Research of High-Tc Quasiparticles					
研究経費		平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	総合計
16年度以降は内約額 金額単位：千円		38,000	20,600	18,200	7,300	0	84,100
研究組織（研究代表者及び研究分担者）							
氏名	所属研究機関・部局・職	現在の専門	役割分担（研究実施計画に対する分担事項）				
高橋 隆	東北大学・大学院理学研究科・教授	光電子固体物性	研究全体の遂行と統括				
佐藤 宇史	東北大学・大学院理学研究科・助手	光電子固体物性	光電子分光装置の建設・調整および測定（主にホール型高温超伝導体）				
相馬 清吾	日本学術振興会・特別研究員 DC1	光電子固体物性	光電子分光装置の建設・調整および測定（主にボロン系高温超伝導体）				
松井 浩明	日本学術振興会・特別研究員 DC1	光電子固体物性	光電子分光装置の建設・調整および測定（主に電子型高温超伝導体）				
当初の研究目的（交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。）							
<p>本研究は、超高分解能角度分解光電子分光法を用いて、高温超伝導体中の「準粒子」を直接観測し、その起源を明らかにすることによって、高温超伝導発現機構の解明を目指すものである。高温超伝導発現に直接関与すると考えられるフェルミ準位近傍の「準粒子」は、フェルミ準位近傍のバンド分散中の小さな「折れ曲がり(kink)」として現れ、その結合エネルギー位置および折れ曲がりの大きさが「準粒子」を特徴付けている。この kink の観測には、非常に高いエネルギー分解能と運動量分解能で、フェルミ準位近傍のエネルギー分散（バンド構造）を測定する必要がある。本研究では、準粒子のエネルギー分散を直接観測できる世界最高水準のエネルギーおよび運動量分解能を持つ「超高分解能角度分解光電子分光装置」の建設と整備改良を行う。建設した「超高分解能角度分解光電子分光装置」を用いて、ホールおよび電子型銅酸化物高温超伝導体、さらにボロン系高温超伝導体について測定を行う。現在、銅酸化物高温超伝導体については、その kink の起源について、「フォノン」と「磁氣的相互作用（マグノン）」の 2 つの可能性が提案され、世界中の研究者を巻き込んで大きな論争が展開されている。この高温超伝導発現機構に関する基本的問題に答えるため、様々なドーピングレベルを持つホールおよび電子型高温超伝導体について エネルギー分散中の kink を直接観測し、その運動量、温度、および CuO<sub>2</sub> 層数依存性を精密に測定する。実験結果の解析から、超伝導に関与する「準粒子」の起源を明らかにして、高温超伝導発現機構の総合的解明を目指す。</p>							

これまでの研究経過（研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、具体的に記入してください。）

### (1) 超高分解能光電子分光装置の建設と整備改良

図 1 に、建設整備を続けている「超高分解能光電子分光装置」の現状の概略図を示す。装置は、(1) 電子エネルギー分析器、(2) 光源放電管、(3) 測定分析槽、(4) 試料準備槽から構成される。目標の高分解能を達成するには、いずれの構成要素も最高の能力を発揮するよう条件整備する必要があった。電子エネルギー分析器については、静電半球型分析器および電子レンズシステムへの電位の安定化とその精密調整、さらに最後段の 2 次元電子検出器及び CCD カメラの相対位置と検出器の感度補正を徹底的に行った。光源放電管部については、分解能低下の原因となる測定真空槽への不純物ガスおよびイオンの流入を防ぐ目的で、アパーチャーを含む 2 段の差動排気システムを構築した。測定分析槽においては、試料を低温に保ったまま回転できる角度可変型試料マニピュレーターを製作した。さらに、試料の温度低下と槽内の真空度向上を図るため、循環型ヘリウムクライオスタットを用いた 4 段の熱シールド（図 2）を試料基板周りに作成した。試料準備槽においては、迅速な試料交換を図るために、大気圧からの試料搬入移送機構を製作した。これらの改造整備の結果、装置は現在、エネルギー分解能  $1.5\text{meV}$ 、運動量分解能  $0.007\text{\AA}^{-1}$ 、試料温度  $5\text{K}$ 、測定時真空度  $5 \times 10^{-10}\text{Torr}$  を達成している。図 3 に本装置を用いて測定した金のフェルミ準位近傍の超高分解能光電子スペクトルを示す。そのフェルミ端の立ち上がりから分解能  $1.5\text{meV}$  を達成していることが分かる。

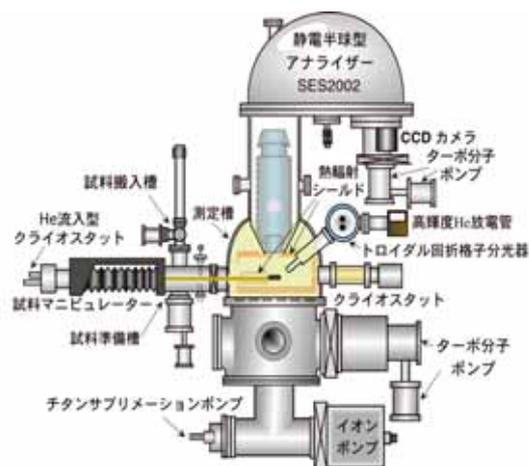


図 1 超高分解能光電子分光装置の概略図

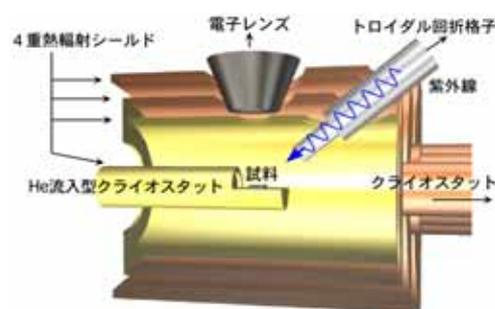


図 2 熱輻射シールドの概略図

### (2) 様々な高温超伝導体についての測定と解析

高温超伝導体中の「準粒子」の直接観測とその起源を同定することにより、高温超伝導発現機構の解明を目指して、以下の高分解能光電子分光研究を行い、いくつかの新しい知見を得た。

**$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  ( $n=1-3$ ):** Bi系高温超伝導体について、 $\text{CuO}_2$ 層の数( $n$ )が1枚から3枚の物質について、そのフェルミ面、超伝導ギャップ、コヒーレントピーク強度、擬ギャップ、分散中のkinkの位置および強度について系統的測定を行った。その結果、これらの物質について、エネルギーギャップとキャリアドーピング量の間にスケールリング則が成立していることを見出した。（Phys. Rev. Lett. 89, 067005; Phys. Rev. B 67, 060501(R)）

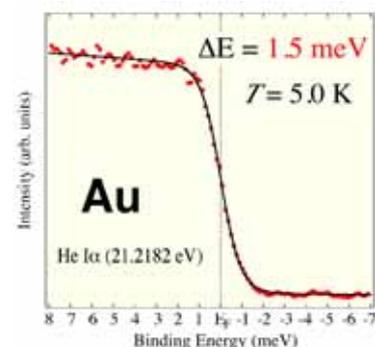


図 3 金のフェルミ端のスペクトル

**kink の運動量および温度依存性の精密測定：**  $\text{Bi2223}(n=3)$ につい

て、そのエネルギー分散中の kink の運動量および温度依存性を精密に測定し、その起源について議論した。（Phys. Rev. Lett. 91, 157003. 詳細は次ページの特記事項に記述）

**Bogoliubov 準粒子の観測：** 超伝導状態の  $\text{Bi2223}(n=3)$ について、フェルミ準位極近傍のエネルギー分散を精密に測定し、Cooper 対形成による Bogoliubov 準粒子のエネルギー分散とコヒーレンス因子を実験的に初めて決定し、BCS 理論との比較を行った。（Phys. Rev. Lett. 90, 217002. 詳細は次ページの特記事項に記述）

**Bi系高温超伝導体の不純物置換効果：**  $\text{Bi2212}(n=2)$ の  $\text{CuO}_2$ 面に、非磁性の Zn、磁性を持つ Co, Ni を置換した時の電子構造の変化を研究した。その結果、これらの不純物置換によってはフェルミ面の形状と大きさ、さらに超伝導ギャップの異方性は変化しないが、超伝導ギャップの大きさと超伝導コヒーレントピークの強度が減少することを見出した。

**$\text{MgB}_2$  の 2 バンド超伝導ギャップの直接観測：** 最近発見された新規ボロン系超伝導体  $\text{MgB}_2$ の微小単結晶について超高分解能角度分解光電子分光測定を行い、 $\sigma$ および $\pi$ バンドの超伝導ギャップを分離して観測することに成功し、 $\text{MgB}_2$ における 2 バンド超伝導機構を確立した（Nature 423, 65. 詳細は次ページの特記事項に記述）

特記事項 (これまでの研究において得られた、独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入してください。)

**(1) 高温超伝導体における Bogoliubov 準粒子の直接観測 (Phys. Rev. Lett. 90 (2002) 217002)**

高温超伝導体の超伝導機構が BCS 理論の枠内で記述できるのかどうかは基本的な問題である。これを検証するために、BCS 理論の基本概念である Bogoliubov 準粒子描像が、はたして高温超伝導体で成立しているかどうかを超高分解能光電子分光で調べた。測定は、建設を続けている「超高分解能光電子分光装置」を用い、Bi2223(n=3)微小単結晶について、そのフェルミ準位近傍の電子エネルギー分散を詳細に測定した。その結果、世界で初めて、Bogoliubov 準粒子の全エネルギー分散を観測することに成功した。特記すべきは、光電子分光では測定が非常に難しい「フェルミ準位より上のエネルギー分散」までも実験的に決定したことである。これは、建設中の装置の高いエネルギー分解能と高い安定性を示すものである。図 4 に、エネルギー分散と coherence 因子の ARPES 実験と BCS 理論との比較を示す。両者は非常に良い定量的一致を示している。このことは、高温超伝導体の超伝導状態が広義の BCS 理論の枠組みで記述できることを示している。

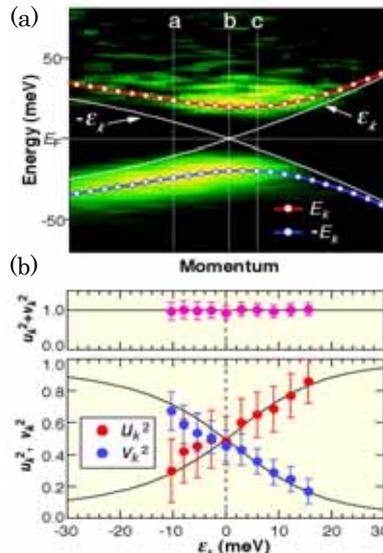


図 4 Bogoliubov 準粒子の (a) エネルギー分散と (b) コヒーレンス因子

**(2) ホール型高温超伝導体バンド分散中の kink の起源 (Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 157003)**

Bi 系ホール型高温超伝導体のフェルミ準位近傍のエネルギー分散に観測される「折れ曲がり (kink)」の起源とその超伝導発現機構との関係について、現在、「フォノン」と「磁氣的相互作用 (マグノン)」との間で大きな論争が起きている。しかし、これまでの ARPES 実験はブリルアンゾーン中の、主に(0,0)-(π,π)方向についてのみ行われており、起源を同定するための全フェルミ面上についての情報が欠如していた。我々は、建設した光電子分光装置の高分解能および高真空(試料劈開面の寿命が長いこと)という利点を活かして、Bi2223(n=3)について、フェルミ面を切る多くの運動量方向でエネルギー分散を測定し、kink の運動量依存性、さらに温度依存性を詳細に測定した。図 5 に、その結果を示す。(0,0)-(π,π)方向から(π,0)点に行くにつれ kink の大きさが増大し、また(π,0)点近傍の kink は超伝導転移温度以上では消滅することを観測した。このことは、(π,0)近傍の kink が超伝導と関係し、その起源が磁氣的相互作用であることを示している。

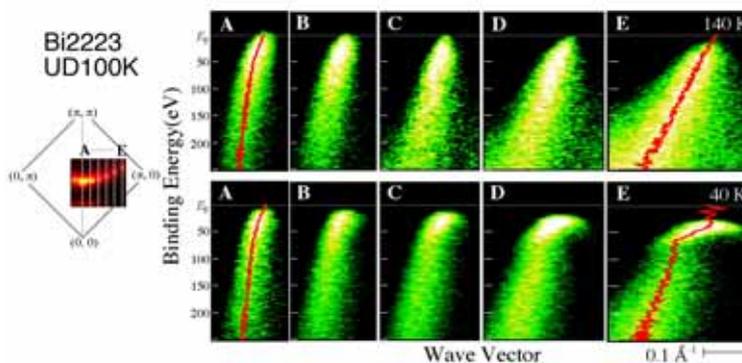


図 5 高温超伝導体 Bi2223 における kink の波数・温度依存性

**(3) ボロン系超伝導体 MgB<sub>2</sub> の 2 バンド超伝導ギャップの直接観測 (Nature 423 (2003) 65)**

T<sub>c</sub>=39K を持つボロン系超伝導体 MgB<sub>2</sub> に、2 種類の超伝導ギャップがあるのではないかの理論的予言 (2 バンド超伝導) がなされていたが、大きな単結晶育成が困難なことからその実験的確認が得られていなかった。我々は、微小 (0.1x0.1x0.01mm<sup>3</sup>) 単結晶の ARPES 測定に挑戦し、100 個以上の微小単結晶の超高温真空下での劈開を試み、その超高分解能角度分解光電子分光測定に成功した。図 6 に、ブリルアンゾーン中 ΓKM 方向のバンド分散と、バンドがフェルミ準位を切る位置で測定した ARPES スペクトルを示す。図から分かるように、σ バンドで大きな (Δ=6.5meV) π バンドで小さな (Δ=1.5meV) 超伝導ギャップが開いていることが分かる。このことは、MgB<sub>2</sub> に 2 種類の超伝導ギャップが存在していること (2 バンド超伝導) を示している。

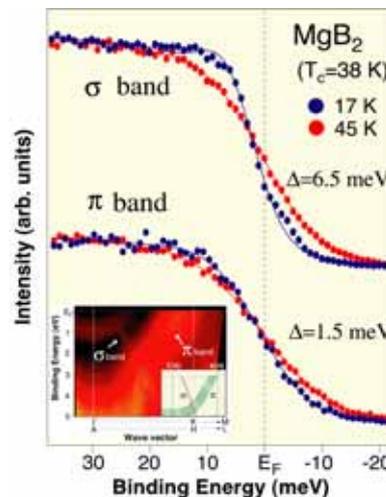


図 6 MgB<sub>2</sub> の超伝導ギャップ

本研究成果は、Nature(London)誌より世界に配信され、国内においては主要全国紙で報道された。

研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文 (発表予定のものを記入することも可能。) の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会等における発表状況について記入してください。)

### 発表原著論文

- (1) T. Sato, H. Matsui, S. Nishina, T. Takahashi, T. Fujii, T. Watanabe, and A. Matsuda  
Low energy excitation and scaling in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  ( $n=1-3$ ): Angle-resolved photoemission spectroscopy  
*Phys. Rev. Lett.*, **89**, 067005-1-4 (2002).
- (2) S. Nishina, T. Sato, T. Takahashi, S.-C. Wang, H.-B. Yang, H. Ding, and K. Kadowaki  
Zn-substitution effects on the low-energy quasiparticles in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  studied by angle-resolved photoemission spectroscopy  
*J. Phys. Chem. Solids* **60**, 1069-1072 (2002).
- (3) T. Takahashi  
Progress of high-resolution photoemission spectroscopy in strongly correlated electron systems  
*Surface Review and Letters* **9**, 995-1006 (2002).
- (4) H. Matsui, T. Sato, T. Takahashi, H. Ding, H.-B. Yang, S.-C. Wang, T. Fujii, T. Watanabe, A. Matsuda, T. Terashima, and K. Kadowaki  
Systematics of electronic structure and interactions in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  ( $n=1-3$ ) by angle-resolved photoemission spectroscopy  
*Phys. Rev. B* **67** 060501(R)-1-4 (2003).
- (5) T. Takahashi, H. Matsui, T. Sato, S.-C. Wang, H.-B. Yang, H. Ding, T. Fujii, T. Watanabe, and A. Matsuda  
Direct evidence for superconducting quasiparticle in triple-layered high- $T_c$  superconductor  
*Physica C* **388-399** (Proc. Int. Conf. LT23, invited talk) 305-306 (2003).
- (6) H. Matsui, T. Sato, T. Takahashi, H.-B. Yang, S.-C. Wang, H. Ding, T. Fujii, T. Watanabe, A. Matsuda, T. Terashima, and K. Kadowaki  
Low energy excitation in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  ( $n=1-3$ ) studied by high-resolution ARPES  
*Int. J. Mod. Phys. B* **17**, 3554-3558 (2003).
- (7) S. Souma, Y. Machida, T. Sato, T. Takahashi, H. Matsui, S.-C. Wang, H. Ding, A. Kaminski, J. C. Campuzano, S. Sasaki, and K. Kadowaki  
The origin of multiple superconducting gap in  $\text{MgB}_2$   
*Nature (London)* **423**, 65-67 (2003).
- (8) S. Souma, H. Komatsu, T. Takahashi, R. Kaji, T. Sasaki, and J. Akimitsu  
Electronic band structure and Fermi surface of  $\text{CaB}_6$  studied by angle-resolved photoemission spectroscopy  
*Phys. Rev. Lett.* **90**, 027202-1-4 (2003).
- (9) H. Matsui, T. Sato, T. Takahashi, S.-C. Wang, H.-B. Yang, H. Ding, T. Fujii, and T. Watanabe  
BCS-like Bogoliubov Quasiparticle in High- $T_c$  Superconductors Observed by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy  
*Phys. Rev. Lett.* **90**, 217002-1-4 (2003).
- (10) T. Sato, H. Matsui, T. Takahashi, H. Ding, H.-B. Yang, S.-C. Wang, T. Fujii, T. Watanabe, A. Matsuda, T. Terashima, and K. Kadowaki  
Observation of Band Renormalization Effects in Hole-Doped High- $T_c$  Superconductors  
*Phys. Rev. Lett.* **91**, 157003-1-4 (2003).

他 22 編

### 国際会議における発表状況

- (1) T. Takahashi, Direct evidence for superconducting quasiparticles in triple-layered high- $T_c$  superconductors, The 23<sup>rd</sup> International Conference on Low Temperature Physics (Hiroshima, 2002. 8. 20-27) invited talk.
- (2) T. Takahashi, High-resolution angle-resolved photoemission study of novel boride compounds, 7<sup>th</sup> German-Japanese symposium on cooperative quantum phenomena and superconductivity in strongly correlated electron systems (Seeon, Germany, 2002. 7.14-18) invited talk.
- (3) T. Takahashi, Many-body interaction in high- $T_c$  cuprates studied by ARPES, The 3<sup>rd</sup> international workshop on novel quantum phenomena in transition metal oxides (Sendai, 2003. 11.5-8) invited talk.

他 招待講演、一般講演を含めて 13件