

# 低エネルギー放射光角度分解光電子分光による銅酸化物高温超伝導体の研究の進展

井野明洋

広島大学大学院理学研究科 〒739-8526 広島県東広島市鏡山 1-3-1

要旨

超伝導発現機構の要となるのが、電子にまつわる多体効果である。銅酸化物高温超伝導体の角度分解光電子分光において低エネルギー放射光を用いると、強い励起光エネルギー依存性ととも、鋭い準粒子ピークが観測される。これにより、包括的な準粒子解析が進展し、高温超伝導解明の有力な手がかりとして、多体効果のエネルギー分布が得られた。

## 1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体の発見から四半世紀が経過した<sup>1)</sup>。これまでの研究によって、高温超伝導現象とその発現機構について多くの知見が得られたが、それらを統一的に理解する枠組みはまだ得られていない。

標準的な Bardeen, Cooper, Schrieffer (BCS) らの理論によれば<sup>2)</sup>、電子と電子の間に何らかの形で“引力”が働くと、フェルミ面上の電子が2つづつ組になってクーパー対を形成することで凝縮し、超伝導相へと転移する。銅酸化物系の高温超伝導状態においても、クーパー対の凝縮に由来するボゴリューボフ準粒子の分散が観測されており、この筋書きが成り立つことが裏づけられている<sup>3)</sup>。

問題となっているのは引力の成因で、BCS 理論では、フォノンが媒介する電子間引力によって従来型の超伝導現象を説明することに成功しているが、銅酸化物系の高温超伝導現象では、どのような励起モードが電子間に介在しているのか意見が分かれており、研究が続いている。電子が特定のエネルギーを持つ励起モードと結合すると、分散関係にキंकと呼ばれる屈曲構造が現れる<sup>4)</sup>。従って、分散のキंक構造を精密に解析することで、高温超伝導発現を担う励起モードの候補を洗い出すことができる。

本稿では、角度分解光電子分光法の概略を説明し、低エネルギー放射光の活用による研究手法の高度化と、銅酸化物高温超伝導体の研究の進展について解説する。

## 2. 角度分解光電子分光

### 2.1 基本原理

角度分解光電子分光 (Angle-Resolved Photo-Emission Spectroscopy: ARPES) は、固体内の電子を、光電効果で外に取り出して直接的に観測する実験手法である。Fig. 1 に示すように、励起光のエネルギー  $h\nu$  を固定して、光電

子の運動エネルギー  $E_{\text{kin}}$  と放出角  $\vartheta$  を測定する。光電子放出過程では、エネルギーが保存され、また試料表面の並進対称性から面内運動量も保存される。これらの保存則を、仕事関数  $\Phi$  と電子の質量  $m$  を用いて表すと、

$$h\omega + h\nu - \Phi = E_{\text{kin}} \quad (1)$$

$$\hbar k_{\parallel} = \sqrt{2mE_{\text{kin}}} \sin \vartheta \quad (2)$$

となり、電子をひとつ取り除くのに要するエネルギー  $-h\omega$  と面内運動量  $-\hbar k_{\parallel}$  が、実験的に得られる。多体効果を見れば、励起前の電子のエネルギーと面内運動量が、 $h\omega$  と  $\hbar k_{\parallel}$  になる。面直方向は運動量保存則が破れているため、 $\hbar k_{\perp}$  を直接決定することはできないが、光電子遷移の終状態の分散関係が決まっていれば、そこに  $E_{\text{kin}}$  と  $\hbar k_{\parallel}$  の値を代入して、 $\hbar k_{\perp}$  の値を間接的に導くことができる。簡便な手法として、終状態に自由電子的な分散を仮定すれば、

$$E_{\text{kin}} = \frac{\hbar^2}{2m} [k_{\parallel}^2 + (k_{\perp} + G_{\perp})^2] - V_0 \quad (3)$$

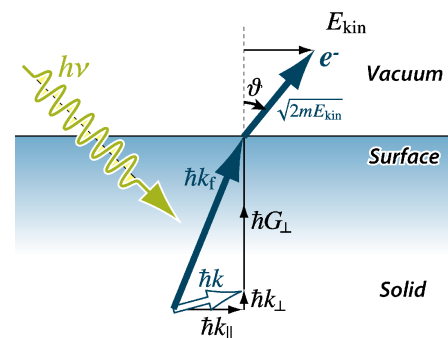


Fig. 1 (Color online) Schematic of ARPES experiments, where the in-plane momentum is conserved, and the kinetic energy,  $E_{\text{kin}}$ , and emission angle,  $\vartheta$ , of a photoelectron are measured.

となり、 $\hbar k_{\perp}$  が導出される。ここで、 $G_{\perp}$  は面直方向の逆格子ベクトルを表す。固体内の運動エネルギーの仮想的な原点の深さ  $V_0$  は、内部ポテンシャルと呼ばれる。

## 2.2 低エネルギー放射光の利用

高分解能 ARPES 実験における励起光の有力な選択肢として、 $5 \leq h\nu \leq 15$  eV 程度の低エネルギー放射光が挙げられる。一般に、分光方式が同じであれば、光のエネルギー幅は、エネルギーの絶対値におおむね比例する。従って、低エネルギー放射光 ARPES は、実験のエネルギー分解能を上げやすい。また、励起光のエネルギー  $h\nu$  が低いと、(1)式より光電子の運動エネルギー  $E_{\text{kin}}$  も低下するので、(2)式より光電子の放出角度  $\theta$  が広がる。つまり、電子分析器の角度分解能  $\theta_{\text{res}}$  が同じでも、励起光のエネルギー  $h\nu$  を下げると、運動量分解能  $k_{\text{res}}$  が向上する。ただし、その代償として、観測可能な運動量範囲が狭くなるが、放射光であれば、分解能と視野域の兼ね合いで  $h\nu$  を調節できる。

また、固体中の電子は、運動エネルギー  $E_{\text{kin}}$  の低下とともに、非弾性散乱が減少して、平均自由行程  $l$  が長くなることが知られている。物質によって幅があるものの、典型的な  $l$  の値は、 $h\nu = 40$  eV を用いた実験では数  $\text{\AA}$  程度なのに対して、 $h\nu = 7$  eV を用いると約  $100 \text{\AA}$  のオーダーに達する<sup>5)</sup>。従って、低エネルギー励起光を用いると、固体深部からの光電子の割合がより多くなると期待される。さらに、非弾性散乱の減少に伴って、不確定性関係より終状態のエネルギーのぼけが抑えられるため、光電子遷移の選択性が高まる。特に、面直運動量  $k_{\perp}$  は、(3)式のように終状態の分散関係によって選択されるため、面直方向の運動量分解能向上も期待される。一方、励起光のエネルギー  $h\nu$  によっては、終状態が固体のエネルギー・ギャップで禁止されて、光電子がほとんど放出されなくなる。このため、低エネルギー励起 ARPES では、放射光のエネルギー可変性が決定的な役割を果たすことがある<sup>6-8)</sup>。

## 2.3 準粒子励起スペクトル

光電子放出によって固体内に残されるホールは、周囲との多体相互作用に包まれる。固体内のホールは、伝導電子の密度を引き連れながら、また陽イオンの格子を押し分けながら運動する。このような多体効果の衣を、電荷励起に繰り込んで、ひとつの素励起として扱うことができる。これを準粒子と呼ぶ。ARPES 実験では、まさにこの準粒子励起のエネルギーと運動量を観測している (Fig. 2)。高分解能化の進展によって、準粒子に繰り込まれた多体効果を詳細に観測できるようになり、ARPES は、多体相互作用を電子の側から調べることができる強力な手段となった。

準粒子励起の時間発展は、遅延グリーン関数  $G^R(\mathbf{k}, t)$  によって記述される。これを周波数表示した  $G^R(\mathbf{k}, \omega)$  の虚数部分が、ARPES 実験で観測されるスペクトル関数

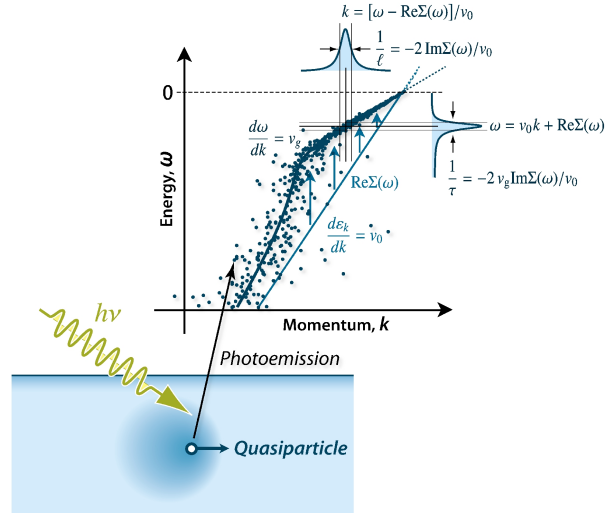


Fig. 2 (Color online) Schematic of the ARPES experiment, which serves as a probe of quasiparticles.

$$A(\mathbf{k}, \omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G^R(\mathbf{k}, \omega) \quad (4)$$

になる。一般に、量子状態の波動関数は、そのエネルギー  $\epsilon_{\mathbf{k}}$  を周波数として、時間とともに位相が回転する。多体効果が無いとき、励起は緩和しないので、波動関数の振幅は減衰しない。従って、励起を階段関数  $-i\Theta(t)$  で表現すると、その過渡応答として、裸の電子のグリーン関数  $G_0^R(\mathbf{k}, t) = -i\Theta(t)e^{-i\epsilon_{\mathbf{k}}t}$  が得られる。これを周波数表示に変換すると、正の微小量  $+0$  を用いて、

$$G_0^R(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{\omega - \epsilon_{\mathbf{k}} + i0} \quad (5)$$

と表される。多体効果が加わると、遮蔽によって励起に要するエネルギー  $|\epsilon_{\mathbf{k}}|$  が低下し、散乱によって励起が有限の寿命で減衰するようになる。この効果は、複素関数  $\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$  を用いて、グリーン関数の極を  $\epsilon_{\mathbf{k}} - i0$  から  $\epsilon_{\mathbf{k}} + \Sigma(\mathbf{k}, \omega)$  に移動させることで表現できる。

$$G^R(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{\omega - \epsilon_{\mathbf{k}} - \Sigma(\mathbf{k}, \omega)} \quad (6)$$

周囲との相互作用による効果を、準粒子自身のエネルギーとして封じ込めた関数  $\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$  は、自己エネルギーと呼ばれる。準粒子のスペクトル関数は、(4)式と(6)式より、

$$A(\mathbf{k}, \omega) = -\frac{1}{\pi} \frac{\text{Im} \Sigma(\mathbf{k}, \omega)}{[\omega - \epsilon_{\mathbf{k}} - \text{Re} \Sigma(\mathbf{k}, \omega)]^2 + [\text{Im} \Sigma(\mathbf{k}, \omega)]^2} \quad (7)$$

となるので、方程式  $\omega - \varepsilon_{\mathbf{k}} = \text{Re} \Sigma(\mathbf{k}, \omega)$  の解  $\omega$  が、準粒子ピークのエネギーを与える。

ここで、エネルギー  $\omega$  を固定したときに、 $A(\mathbf{k}, \omega)$  から得られる運動量分布曲線 (Momentum Distribution Curve: MDC) について考える。MDCのピークが対称的な形をしていれば、自己エネルギーの  $k$  依存性を無視できる。また、裸の電子の分散を直線で近似し、 $\varepsilon_{\mathbf{k}} = v_0 k$  とおく。このとき、(7)式より、MDCのピーク的位置  $k(\omega)$  と半値半幅  $\Delta k(\omega)$  は

$$k(\omega) = \frac{1}{v_0} [\omega - \text{Re} \Sigma(\omega)], \quad (8)$$

$$\Delta k(\omega) = -\frac{1}{v_0} \text{Im} \Sigma(\omega) = \frac{1}{2l} \quad (9)$$

となる。運動量の全幅は、準粒子の平均自由行程  $l$  の逆数、すなわち単位距離当たりの散乱確率  $1/l$  を与える。結局、MDCピークの分散の直線との差分  $k(\omega) - \omega/v_0$  から遮蔽エネルギー  $\text{Re} \Sigma(\omega)$  が得られ、MDCピークの幅  $\Delta k(\omega)$  から散乱確率  $-\text{Im} \Sigma(\omega)$  が得られる。自己エネルギーの実部と虚部の間には、Kramers-Kronigの関係式が成り立つ。

### 3. ノード準粒子の二重層分裂

低エネルギー放射光による ARPES スペクトルを、Fig. 3(a)-(c)に示す。Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> (Bi2212) 系の銅酸化物高温超伝導体を試料に用いて得られた。超伝導ギャップのノード点の準粒子は、弾性不純物散乱がほとんど抑制されるため、寿命が非常に長くなる<sup>6)</sup>。励起光のエネルギーを下げた結果、鋭い準粒子ピークと、約0.01 Å<sup>-1</sup>の微小な二重層分裂が姿を現した。Fig. 3(g)に示すように、Bi2212のCuO<sub>2</sub>面は二重になっているので、電子状態が混成して結合バンド (BB) と反結合バンド (AB) に分裂する。Fig. 3(f)に示すように、ノード方向では、 $d_{x^2-y^2}$ の対称性をもつ状態はCuのs軌道と混成できないため二重層分裂が最小になる。また、Fig. 3(a)-(c)の結果は劇的な  $h\nu$  依存性を示している。 $h\nu = 7.95$  eVではBBとABが観測されるが、 $h\nu = 7.0$  eVではBBが消えABのみが観測される。放射光のエネルギー  $h\nu$  を最適化し、BBとABを分解した上で同時に観測した結果、Fig. 3(e)に示すように、BBの散乱確率がABより低く抑えられていることが判明した<sup>6)</sup>。これは、主要な散乱源が二重CuO<sub>2</sub>層の外側にあることを示しており、面外不規則性が  $T_c$  抑制と相関することや、二層系の  $T_c$  が単層系より高くなることと整合する<sup>9)</sup>。

代表的なホール濃度におけるBi2212のノード準粒子分散を、Fig. 4(a)-(c)に示す<sup>8)</sup>。すべてのホール濃度で、 $\omega \approx 65$  meVの分散に大きなキックが観測されるが、不足

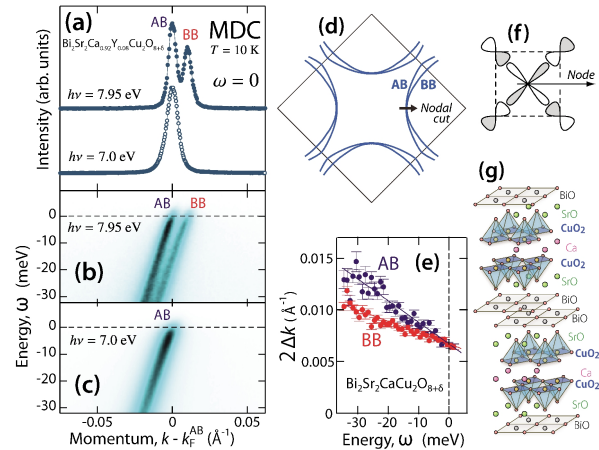


Fig. 3 (Color online) (a) Momentum distribution curves (MDCs) taken with  $h\nu = 7.0$  and  $7.95$  eV along the nodal direction of the superconducting gap for optimally-doped Bi2212. (b)–(c) Energy-momentum plot of ARPES intensity. (d) Nodal cut in momentum space. (e) Scattering rates of bonding band (BB) and antinodal band (AB) from Ref. 6. (f) Zhang-Rice singlet. (g) Crystal structure of Bi2212.

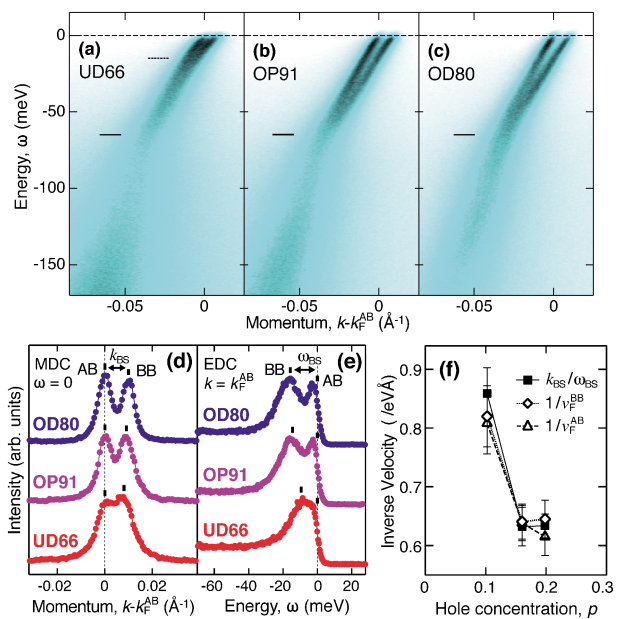


Fig. 4 (Color online) Nodal quasiparticles for UD66 (underdoped,  $T_c = 66$  K), OP91 (optimally-doped,  $T_c = 91$  K), and OD80 (overdoped,  $T_c = 80$  K) samples of Bi2212, taken from Ref. 8. (a)–(c) Energy-momentum plot of ARPES intensity. (d) MDCs at  $\omega = 0$ . (e) Energy distribution curves (EDCs) at  $k = k_F^{\text{AB}}$ . (f) Inverse Fermi velocities of BB and AB,  $1/v_F^{\text{BB}}$  and  $1/v_F^{\text{AB}}$ , and momentum-to-energy ratio of bilayer-splitting width,  $k_{\text{BS}}/\omega_{\text{BS}}$ .

ドーピングでは、 $\omega \approx 15$  meV 付近にもうひとつのキックが明瞭に観測される<sup>8,10–13)</sup>。MDC解析でBBとABの分散を決定し、その傾きとしてフェルミ速度  $v_F^{\text{BB}}$  および  $v_F^{\text{AB}}$  を評価した結果、Fig. 4(f)に示すように、どちらのフェルミ速度も、不足ドーピングで著しく低下していた。このフェルミ



速度の変化は、二重層分裂の幅にも、はっきりと現れている。Fig. 4(d)-(e)に示すように、運動量の分裂幅  $k_{BS}$  はホール濃度の減少とともに少しずつ狭まるが、エネルギーの分裂幅  $\omega_{BS}$  は最適ドープから不足ドープにかけて急激に狭くなる。従って、分裂幅の比  $\omega_{BS}/k_{BS}$  もまた、不足ドープによるフェルミ速度の低下を裏づけている [Fig. 4(f)]。これは、かつて提唱されていたフェルミ速度の普遍性から外れる挙動であり<sup>14)</sup>、超伝導相から反強磁性絶縁体相への転移点に向かって準粒子の有効質量が増大することを示している。この質量増大のしくみを理解するためには、次節に示すように、様々な多体効果による有効質量への寄与を分解して定量化する必要がある。

#### 4. 結合強度のエネルギー分布

銅酸化物高温超伝導体の準粒子分散に観測されるキंकは、何らかの励起モードが電子と強く結合している証拠であり、電子対形成を担う多体相互作用の有力候補の痕跡として興味を集めてきた。当初は、銅酸化物系全般で70 meV 付近にキंकが観測され、その普遍性が注目されていたが<sup>4,14)</sup>、実験精度の向上とともに、キंक構造の階層性や多様性が認識されつつある<sup>8,10-13)</sup>。複雑な準粒子構造の成因を解明するには、電子と励起モードの結合強度のエネルギー分布を定量化する必要がある。これまでに試みられた手法として、実験データの逆畳み込み操作などがあるが<sup>10,11,15,16)</sup>、実験データに高度な安定性と再現性が要求され、また解析結果についても信号とノイズの分離が常に問題となる<sup>17)</sup>。そのため、高分解能化の進展を踏まえた堅実な解析手法が求められていた。

そこで、準粒子の逆速度と微分散乱確率に着目する。まず、Ref. 18に従って、自己エネルギー  $\Sigma(\omega)$  の微分として、質量増大因子  $\lambda(\omega)$  を定義する。

$$\lambda(\omega) \equiv -\frac{d\Sigma(\omega)}{d\omega} \quad (10)$$

準粒子の群速度は、一般の波束と同様に、 $v_g = d\omega/dk$  で与えられるので、(8)-(9)式を  $\omega$  で微分すると、

$$\frac{d}{d\omega} k(\omega) = \frac{1}{v_0} [1 + \text{Re} \lambda(\omega)] = \frac{1}{v_g(\omega)}, \quad (11)$$

$$\frac{d}{d\omega} \Delta k(\omega) = \frac{1}{v_0} \text{Im} \lambda(\omega) \quad (12)$$

となる。(11)式は、多体効果の衣を引きずることで、準粒子の群速度が  $(1 + \text{Re} \lambda)$  分の1になることを意味している。有効質量が  $(1 + \text{Re} \lambda)$  倍になったと解釈しても良い。(12)式の微分散乱確率は、結合強度で重みをつけた励起モードの  $\omega$  分布を与え、ある種の結合スペクトルを

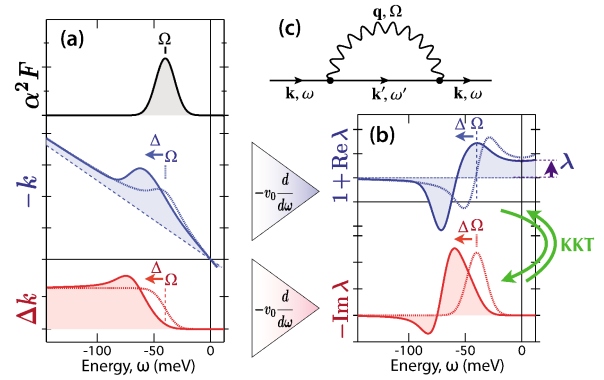


Fig. 5 (Color online) Simulation for a single coupling mode. (a) Eliashberg coupling function,  $\alpha^2 F(\omega)$ , dispersion,  $k(\omega)$ , and momentum width,  $\Delta k(\omega)$ . (b) Real and imaginary parts of  $1 + \lambda(\omega)$ . (c) Diagram of electron-boson interaction.

表している。ただし、有名な Eliashberg の結合スペクトル関数  $\alpha^2 F(\Omega)$  は、フォノンのエネルギー  $\Omega$  の関数だが、(12)式の  $\text{Im} \lambda(\omega)$  は、準粒子のエネルギー  $\omega$  の関数であり、両者の視点がフォノン側と準粒子側と異なっている。定義式(10)より、 $\lambda(\omega)$  についても、 $\Sigma(\omega)$  と同様に Kramers-Kronig の関係式

$$\text{Im} \lambda(\omega) = -\frac{\mathcal{P}}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\text{Re} \lambda(\omega')}{\omega' - \omega} \quad (13)$$

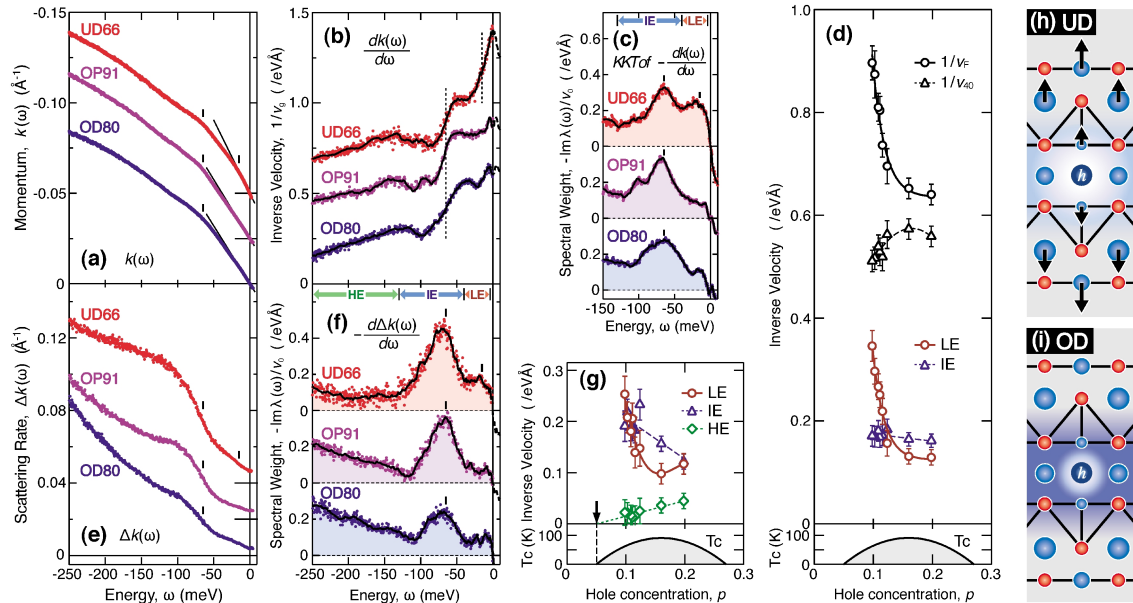
$$\text{Re} \lambda(\omega) = \frac{\mathcal{P}}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\text{Im} \lambda(\omega')}{\omega' - \omega} \quad (14)$$

が成り立つ。従って、実験的に  $1 + \lambda(\omega)$  の実部と虚部を独立に決定すれば、相互に変換して検証することができる。

質量増大因子  $\lambda(\omega)$  の典型的な形状を導出する。電子と結合するボソンのエネルギーを  $\Omega$  とし、Fig. 5(c)のファインマン・ダイアグラムから温度グリーン関数を用いて、電子ボソン相互作用の自己エネルギーを計算すると、

$$-\text{Im} \Sigma(\mathbf{k}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\Omega \text{sgn} \Omega \alpha_{\mathbf{k}}^2 F(|\Omega|) \times A(\omega - \Omega) [n_T(\Omega) + f_T(-\omega + \Omega)] \quad (15)$$

となる。ただし、簡単にするため、ボソンの運動量  $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$  に関する依存性を無視して平均化している。また、 $\text{sgn}$  は符号関数で、 $n_T(\Omega)$  はボーズ分布関数、 $f_T(\omega)$  はフェルミ分布関数を表す。 $\alpha_{\mathbf{k}}^2 F(\Omega)$  が  $\Omega = 40$  meV にピークをもつと仮定して、結合定数を  $\lambda = 0.8$ 、温度を  $T = 0$  と設定し、(15)式から算出した  $k(\omega)$ 、 $\Delta k(\omega)$ 、 $1 + \lambda(\omega)$  を、Fig. 5に示す。点線が、通常金属を想定して  $A(\omega)$  を一定としたときの結果で、実線が、 $\Delta = 30$  meV の  $d$  波ギャップが開いた状態密度  $A(\omega)$  を用いて得られた結果を示す。ギャップが無いときは、 $\omega = \Omega$  に、分散  $k(\omega)$  のキंक



**Fig. 6** (Color online) Nodal quasiparticle properties taken from Ref. 8. (a) Dispersions,  $k(\omega)$ . (b) Inverse group velocities,  $1/v_g(\omega) = dk/d\omega$ . (c) Differential scattering rates,  $-\text{Im} \lambda(\omega)/v_0$ , deduced from Kramers-Kronig transform (KKT) of  $-dk/d\omega$ . (d) Inverse group velocities at Fermi level,  $1/v_F$ , and at 40 meV,  $1/v_{40}$ , and partial coupling constants,  $\lambda/v_0$ , deduced from KKT of  $dk/d\omega$ . (e) MDC width,  $\Delta k(\omega)$ , excluding instrumental resolution. (f) Differential scattering rates,  $-\text{Im} \lambda(\omega)/v_0$ , directly determined from  $-(d/d\omega)\Delta k(\omega)$ . (g) Partial coupling constants,  $\lambda/v_0$ , deduced from  $(d/d\omega)\Delta k(\omega)$ . (h)–(i) Strong and weak electron-phonon couplings at low and high hole concentrations, respectively.

クと運動量幅  $\Delta k(\omega)$  の段差が生じ、それに従って、 $\text{Re} \lambda(\omega)$  の段差と  $\text{Im} \lambda(\omega)$  のピークが姿を現す。 $A(\omega)$  が一定であれば、 $\text{Im} \lambda(\omega)$  は  $\alpha_k^2 F(\omega)$  に一致する。ただし、ギャップ  $\Delta$  が開くと、 $\text{Im} \lambda(\omega)$  のピークは  $\omega = \Omega + \Delta$  に移動する。

Bi2212のノード方向について、低エネルギー放射光 ARPES スペクトルを MDC 解析して得られた分散  $k(\omega)$  と運動量幅  $\Delta k(\omega)$  を、**Fig. 6(a)** および **(e)** に示す<sup>8)</sup>。すべてのホール濃度で、 $\omega = 65$  meV 付近に分散のキックと散乱確率の段差が見られ、不足ドーブ (UD66) では、 $\omega = 15$  meV 付近にも、分散のキックと散乱確率の段差が認められる。**Fig. 6(b)** は、分散を微分して得た逆速度で、 $\text{Re} \lambda(\omega)$  が  $\omega = 65$  meV 付近で階段状に増大する様子を示しており、モード結合による質量増大の典型 [**Fig. 5(b)**] や、光学伝導度実験の結果と良く対応している<sup>19)</sup>。低エネルギー領域では、さらに  $\text{Re} \lambda(\omega)$  が増大するが、その段差は不足ドーブ (UD66) において急激に成長する。

微分散乱確率  $\text{Im} \lambda(\omega)/v_0$  は、二通りの方法で得られる。**Fig. 6(c)** は逆速度を (13) 式で変換した結果で、**Fig. 6(f)** は運動量幅を直接微分して得られた結果だが、ホール濃度依存性は同じ傾向を示している。また、(14) 式に  $\omega = 0$  を代入すると、結合定数  $\lambda$  の積算式が得られる。

$$\lambda = \text{Re} \lambda(0) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\text{Im} \lambda(\omega)}{\omega} d\omega \quad (16)$$

積分範囲を分割すれば、準粒子有効質量における特定の  $\omega$  範囲の寄与を定量化できる。(16) 式を用いて、 $k(\omega)$  から得た結果を **Fig. 6(d)** に、 $\Delta k(\omega)$  から得た結果を **Fig. 6(g)** に示す。低エネルギー ( $4 < |\omega| < 40$  meV; LE) 領域の結合定数  $\lambda^{LE}$  が、最適ドーブから不足ドーブで急激に増大して約二倍になることから、フェルミ速度  $v_F$  のホール濃度依存性が主に  $\lambda^{LE}$  の増大によることがわかる。これは、モット絶縁体のエネルギー・スケールより小さな領域で起きており、モット転移近傍の質量増大とは異なる現象である。低エネルギー散乱確率の傾きが不足ドーブで増大する現象は、トンネル分光実験でも報告されている<sup>20)</sup>。また、不足ドーブでは、 $\lambda^{LE}$  が中間エネルギー ( $40 < |\omega| < 130$  meV; IE) 領域の寄与  $\lambda^{IE}$  を上回っており、主要な結合モードが交替することを示している。**Fig. 4(a)** において、 $\sim 15$  meV のキックは小さく見えるが、その準粒子質量への寄与  $\lambda^{LE}$  は、 $\lambda^{IE}$  に匹敵する。

不足ドーブにおける  $\lambda^{LE}$  の増大と対照的なのが、高エネルギー ( $|\omega| > 130$  meV; HE) 領域の寄与  $\lambda^{HE}$  で、**Fig. 6(g)** に示すように超伝導から絶縁体への転移点に向かって直線的に減少する。この  $\lambda^{HE}$  は、**Fig. 6(f)** の線形項  $\propto \omega$  によるもので、電子電子相互作用  $\text{Im} \Sigma^{e-e} \propto \omega^2$  に起因する。 $\lambda^{LE}$  と  $\lambda^{HE}$  の競合性から、**Fig. 6(h)–(i)** のような解釈が導かれる。ホール濃度が高いとき、電荷励起のポテンシャルは、高エネルギーの電子電子相互作用によって素早く遮蔽されてしまうため、低周波のフォノンには反応できない。し

かし、ホール濃度が低いと、電子系の遮蔽が働かなくなり、裸の電子とフォノンの強い結合が顕在化する。このとき、フォノン周波数が低いほどホール濃度依存性が激しくなるはずで、実験結果をうまく説明する。実際に、遮蔽の限界を示す証拠として、走査トンネル顕微鏡実験で、準粒子が枯渇したナノスケール領域が観測されており、それがまだら状に広がり出すホール濃度  $p \leq 0.13$  は、 $\lambda^{LE}$  が増大するホール濃度と一致している<sup>21)</sup>。

ノード分散の $\sim 15$  meV に観測されたキックは、アンチ・ノードのギャップ  $\Delta$  より低エネルギー側になる。もし、電子がアンチ・ノード状態を経由してボソン  $\Omega$  と相互作用しているとすると、Fig. 5 より、キックのエネルギーは  $\Delta + \Omega$  となって実験と合わない。従って、電子が経由するのはノード近傍の状態に限られ、面内運動量の小さいフォノンによる前方散乱が候補になる。具体的には、Bi や Sr など重い原子の振動に関わる低周波  $c$  軸光学フォノン<sup>10,22)</sup> が提起され、また、低周波音響フォノンを仮定したモデル計算との一致が報告されている<sup>13)</sup>。一般論として、広い運動量領域が関与する電子フォノン相互作用は、フェルミ面に沿って大きさや位相が変化する  $d$  波超伝導ギャップと相性が悪い。しかし、狭い運動量領域に制限される前方散乱は、 $d$  波の電子対形成を支えることができる<sup>23)</sup>。

ノード分散の $\sim 65$  meV に観測されるキックについては、様々な議論がなされている。まず、中間状態としてノードを経由する過程とアンチ・ノードを経由する過程に分けられる。前者であれば、結合モードのエネルギーは  $\Omega \sim 65$  meV となり、フォノンの半呼吸 (half-breathing) モードが候補となる<sup>4)</sup>。後者であれば、 $\Omega \sim 35$  meV 程度なので、フォノンの  $B_{1g}$  結合座屈 (bond-buckling) モードや磁気共鳴励起モードが候補となる<sup>24,25)</sup>。低エネルギー放射光 ARPES によって、ノード方向のキックの同位体効果がフォノン周波数の変化と同程度であることが観測されており、酸素原子の振動するフォノンが寄与していることは間違いない<sup>26)</sup>。その一方で、Fig. 6(c) および (f) における  $\text{Im} \lambda(\omega)/v_0$  の形状は、65 meV の構造が単独ピークではなく複数の成分で構成されていることを示唆している。

## 5. おわりに

低エネルギー放射光の利用は、銅酸化物高温超伝導体の ARPES において特に効果的であり、研究が目覚ましく進展した。鋭い準粒子ピークが観測され、微細構造の精密解析が可能になり、励起光エネルギーに依存する強いバンド選択性が明らかになった。視野域やバンド選択性は励起光のエネルギーで調節できるので、超伝導ギャップ端のボゴリューボフ準粒子分散の研究についても、低エネルギー放射光 ARPES の貢献が期待される。

## 謝辞

本稿で紹介したデータは、安齋太陽、山崎達也、市來健吾、加茂剛、藤田泰輔、有田将司、生天目博文、谷口雅樹、藤森淳、Z.-X. Shen、石角元志、石田茂之、藤田和博、内田慎一らの各氏との共同研究によるものです<sup>6,8)</sup>。ここに感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) J. D. Bednorz and K. A. Muller: *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- 2) J. Bardeen, L. N. Cooper and J. R. Schrieffer: *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).
- 3) H. Matsui *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **90**, 217002 (2003).
- 4) A. Lanzara *et al.*: *Nature* **412**, 510 (2001).
- 5) M. P. Seah and W. A. Dench: *Surf. Interface Anal.* **1**, 2 (1979).
- 6) T. Yamasaki *et al.*: *Phys. Rev. B* **75**, 140513 (2007).
- 7) S. Ideta *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **104**, 227001 (2010).
- 8) H. Anzai *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **105**, 227002 (2010).
- 9) H. Eisaki *et al.*: *Phys. Rev. B* **69**, 064512 (2004); H. Hobou *et al.*: *Phys. Rev. B* **79**, 064507 (2009).
- 10) J. D. Rameau *et al.*: *Phys. Rev. B* **80**, 184513 (2009).
- 11) N. C. Plumb *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **105**, 46402 (2010).
- 12) I. M. Vishik *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **104**, 207002 (2010).
- 13) S. Johnston *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **108**, 166404 (2012).
- 14) X. J. Zhou *et al.*: *Nature* **423**, 398 (2003).
- 15) X. J. Zhou *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **95**, 117001 (2005).
- 16) W. Meevasana *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **96**, 157003 (2006).
- 17) T. Valla: *Phys. Rev. Lett.* **96**, 119701 (2006); X. J. Zhou *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **96**, 119702 (2006).
- 18) G. D. Mahan: *Many-Particle Physics*, 2nd ed. (Plenum, New York, 1981), pp. 663-665.
- 19) A. V. Puchkov, D. N. Basov and T. Timusk: *J. Phys. Condens. Matter* **8**, 10049 (1996); J. Hwang, T. Timusk and G. D. Gu: *ibid.* **19**, 125208 (2007).
- 20) J. W. Alldredge *et al.*: *Nature Phys.* **4**, 319 (2008).
- 21) K. McElroy *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **94**, 197005 (2005).
- 22) N. N. Kovaleva *et al.*: *Phys. Rev. B* **69**, 054511 (2004).
- 23) M. L. Kulić: *Phys. Rep.* **338**, 1 (2000); M. L. Kulić and O. V. Dolgov: *Phys. Rev. B* **76**, 132511 (2007).
- 24) T. Cuk *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **93**, 117003 (2004).
- 25) P. Dai *et al.*: *Science* **284**, 1344 (1999).
- 26) H. Iwasawa *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **101**, 157005 (2008).

## 著者紹介



### 井野明洋

広島大学大学院理学研究科  
E-mail: ino@hiroshima-u.ac.jp  
専門: 光電子分光, 固体物理

### 【略歴】

1999年東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程修了, 博士(理学)。同年, 日本原子力研究所関西研究所博士研究員。2001年広島大学放射光科学研究センター研究員。2003年より現職。

## Progress in the study of high- $T_c$ cuprates with low-energy synchrotron-radiation angle-resolved photoemission

---

**Akihiro INO** Graduate School of Science, Hiroshima University,  
1-3-1 Kagamiyama, Higashi-Hiroshima 739-8526, Japan

---

**Abstract** Many-body effects on electrons are essential to the mechanism of superconductivity. Using low-energy synchrotron radiation for angle-resolved photoemission study of high- $T_c$  cuprates, one finds that the spectrum depends strongly on excitation-photon energy and shows sharp quasiparticle peaks. This made progress in comprehensive quasiparticle analysis, providing us with the energy distribution of the many-body effects as an important clue to understanding the high- $T_c$  superconductivity.