

## 銅酸化物高温超伝導体における分散キンの新しい景観

安齋太陽

大阪府立大学 〒599-8531 大阪府堺市中区学園町 1-1

井野明洋

広島大学放射光科学研究センター 〒739-0046 広島県東広島市鏡山 2-313

現所属：久留米工業大学 教育創造工学科 〒830-0052 福岡県久留米市上津町2228-66

## 要旨

銅酸化物系の高温超伝導現象において、どのような励起モードが電子間を仲介しているか意見が分かれ、激しい論争が続いていた。謎を解き明かす有力な手がかりになるのが、角度分解光電子分光で観測される分散のキンク構造である。低エネルギー放射光を用いた角度分解光電子分光実験を、極過剰ドープの銅酸化物高温超伝導体に波及させることで、複数のキンク構造の強度分布の全貌が明らかになった。極過剰ドープで強く観測される $\sim 78$  meVのキンク構造は、強い電子-格子結合が実現していることを示す決定的な証拠となる。

## 1. 背景

超伝導は、低温で電気抵抗がゼロになるという目覚ましい性質を示す現象である。金属や合金系の超伝導体は、超伝導状態へ転移する温度が低く、絶対零度近くまで冷やすことができる液体ヘリウムが必要になる。ヘリウムは天然ガスにわずかに含まれるものであるため、少量しか生産することができない。現在、液体ヘリウムの輸入価格は1リットルあたり2,500円と高騰している<sup>1)</sup>。一方、本稿で紹介する銅酸化物系の高温超伝導体は、液体窒素温度( $-195.8^{\circ}\text{C}$ )で超伝導を保つことができる。窒素は空気約8割を占めることから、その抽出は容易である。実際、液体窒素の価格は液体ヘリウムの約30分の1となっている。現在では、高い転移温度を示す銅酸化物超伝導体を、送電線や電磁石材料に応用する研究が進められている。高温超伝導体は、グリーン・イノベーションの推進を担う物質として期待されている。

しかし、高温超伝導が起きるメカニズムについては、統一見解が得られていない。大きな課題として残されているのが、高温超伝導を担う立役者の特定である。Bardeen, Cooper, Schrieffer (BCS) らの理論によれば、超伝導は二つの電子の間に何らかの引力が働き、電子対が形成されることで発現する<sup>2)</sup>。通常の超伝導体では、格子振動が反発し合う電子の間を仲介する<sup>3)</sup>。一方、銅酸化物高温超伝導体では、どのような励起振動が対形成を仲介しているかが未解明である。

固体中の電子は、周りにいる電子や陽イオンと相互作用しながら運動する。このような多体効果を電子に繰り込み、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。角度分解光電子分光 (Angle-Resolved Photo-

Emission Spectroscopy; ARPES) は、光電効果を利用して物質中を運動する電子の運動エネルギー $\omega$ と波数 $k$ を観測する実験手法で、準粒子の分散関係を直接的に決定することができる。

金属中の電子が、エネルギー $\Omega$ の励起振動と相互作用すると、 $|E-E_F| < \Omega$ の領域の電子の速度が低下し、 $|E-E_F| > \Omega$ の領域の電子の寿命が低下する。その様子は、準粒子分散の折れ曲がりやピーク幅の変化として観測され、キンク構造と呼ばれている。Fig. 1(a)に、金属中の電子がエネルギー $\Omega$ の励起振動と相互作用するときのARPES

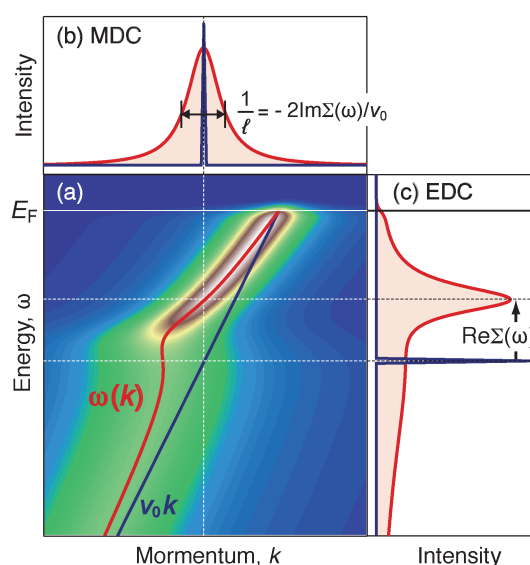


Fig. 1. (Color online) (a) Simulation of renormalized band dispersion for single-mode coupling. (b) Momentum distribution curve (MDC). (c) Energy distribution curve (EDC).

スペクトルのモデルを示す。スペクトルの強度分布を、エネルギー  $\omega$  が一定の経路に沿って切り出したものを運動量分布曲線 (Momentum Distribution Curve; MDC) と呼び [Fig. 1(b)], 運動量  $k$  が一定の経路に沿って切り出したものをエネルギー分布曲線 (Energy Distribution Curve; EDC) と呼ぶ [Fig. 1(c)]。電子が受ける多体効果は、自己エネルギー  $\Sigma(\omega)$  で表現され、EDCにおける準粒子ピークが、自己エネルギーの実部  $\text{Re}\Sigma(\omega)$  だけ移動する。その結果、準粒子の速度  $d\omega/dk$  は、裸の電子の速度  $v_0$  よりも低くなる。また、MDCの半値全幅は  $-2\text{Im}\Sigma(\omega)/v_0$  で与えられ、準粒子の平均自由行程  $l$  の逆数を与える。これは単位距離あたりの散乱確率を表しており、真空中の電子の寿命が無敵大なのに対して、固体中の準粒子の寿命は有限になる。このようなキング構造の振る舞いを調べることで、高温超伝導状態の電子と結合する集団励起振動を特定することができる。

銅酸化物高温超伝導体では、Fig. 2に示す  $\text{CuO}_2$  二次元面における  $d_{x^2-y^2}$  軌道を主成分とするバンドがフェルミ面を構成する。これまでの研究により、超伝導ギャップが  $d$  波動的な異方性をもち、 $\text{Cu-O}$  結合と平行な方向で大きく開き、斜め45度の対角方向で閉じていることが判明している。超伝導ギャップが閉じている波数点をノード、超伝導ギャップが大きく開く波数領域をアンチ・ノードと呼ぶ。1999年頃から、ノード方向の  $|\omega| \sim 65 \text{ meV}$  に大きなキング構造が観測されてきた<sup>4-6)</sup>。当時、キングのエネルギー位置は、物質系・ホール濃度・温度によらず、ほぼ一定であると考えられていた。その後、磁気的な不純物を導入した銅酸化物<sup>7)</sup>や、酸素同位体で置換した銅酸化物<sup>8)</sup>でARPES実験が行われ、キング構造について世界中で徹底的な研究が展開された。電子と結合する集団励起振動の候

補として残されたのが、 $\text{CuO}_2$  面の酸素原子による座屈振動モード<sup>9,10)</sup>と、非弾性中性子散乱実験で観測される磁気共鳴励起モード<sup>11,12)</sup>である。キングの起源については、激しい論争が15年以上も続いているが、その原因の1つとして、両候補のエネルギーが35~50 meVで互いに近接していることが問題になる。このため、キング構造の分布を高精度に観測する実験が求められている。

近年、レーザーを用いた高分解能ARPES実験により、大きなキング構造のエネルギー位置がノードからアンチ・ノードにかけて約30 meVほど移動すると報告された<sup>13)</sup>。現在のところ、格子振動や磁気共鳴励起の観点でこの大きな異方性を説明することはできていない。その他にも、最適ドーブ試料のノード方向では~10 meVに小さなキング構造が観測されており<sup>14)</sup>、大きなキング構造と合わせて包括的に理解する必要がある。

我々は、このような複雑な状況を打破するために、低エネルギー放射光を用いた高分解能ARPES実験を、極過剰ドーブのビスマス系銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi2212) に波及させた。本稿では、我々の研究グループが最近報告した成果について解説する<sup>15)</sup>。なお、ARPESの基本原理解析方法については、2013年放射光学会誌の特集記事を参考にさせていただきたい<sup>16)</sup>。

## 2. 本研究の特色

### 2.1 極過剰ドーブ

極過剰ドーブの試料を採用する利点は、三つある。一つ目は、温度を上げることなく超伝導ギャップを小さくできる点である<sup>17,18)</sup>。キングのエネルギー位置は、電子と結合している励起振動の周波数  $\Omega$  と、中間状態の波数  $k_m$  にお

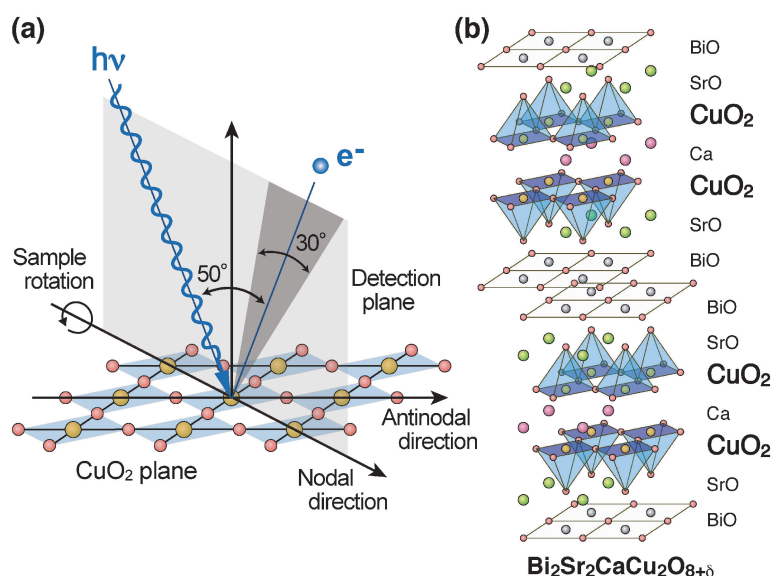


Fig. 2. (Color online) (a) Geometry of the present ARPES experiment. (b) Crystal structure of Bi2212.

ける電子励起のギャップ  $\Delta(k_m)$  の和によって、 $\omega_{\text{kink}} = \Omega + \Delta(k_m)$  と与えられる<sup>10)</sup>。超伝導ギャップ  $\Delta$  の変化によるキングのエネルギー移動を観測することで、キング構造に関与する素過程を選別できる。二つ目は、過剰ドープ領域では電子の寿命が長くなり、MDC ピーク幅の狭い光電子スペクトルが得られる点である。近接するキングを分離して観測するうえで重要となる。三つ目は、銅酸化物系の相図において反強磁性相から十分に離れることで、反強磁性揺らぎの影響を減らすことができる点である。非弾性中性子散乱の実験によれば、過剰ドープとともに  $40 < |\omega| < 70$  meV における磁気励起のスペクトル強度が低下する<sup>19,20)</sup>。

## 2.2 低エネルギー放射光 ARPES

我々の研究グループでは、 $5 < h\nu < 15$  eV 程度の低エネルギー放射光を用いた ARPES 実験に取り組んでいる。低エネルギー放射光の利点として、1. バルク敏感性の向上、2. 波数分解能とエネルギー分解能の向上、3. エネルギーの可変性の3つが挙げられる。

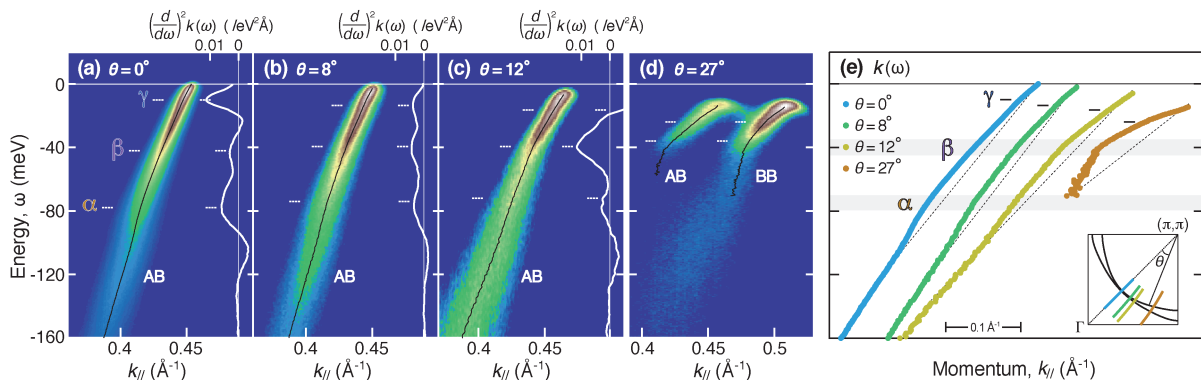
1. 一般に、固体の表面付近は、固体内部のバルクとは異なる電子状態を示すことが知られている。様々な物質において電子の運動エネルギーと固体中の平均自由行程の関係が調べられており<sup>21)</sup>、数十 eV の励起光を用いると、表面から数 Å の電子状態が観測される。一方、数 keV の X 線や数 eV 程度の励起光を用いると光電子の平均自由行程が長くなり、固体中のより深い部分からの光電子放出が増える。そのため、バルクの電子状態を強く反映した光電子が観測される。
2. 光電子の運動エネルギーが低下すると、光電子の放出角度が広がる。したがって、電子検出器の角度分解能が同じであっても、励起光のエネルギーが低いほうが、より高い波数分解能が得られる。また、光のエネ

ルギーを低くすると、分光後の光のエネルギー幅も狭くなるため、光電子分光実験のエネルギー分解能を上げやすい。

3. 室内光源であるヘリウム放電管や真空紫外レーザーでは、特定の波長の光しか利用できないが、放射光は波長を連続的に変えることができる。低エネルギー領域では、光電子遷移の選択性が高まり、終状態の分布によっては、始状態があっても光電子がほとんど放出されないことがある。我々の研究グループではこれを有効に活用し、Bi2212 の超伝導ギャップやキング構造の研究を推進してきた<sup>17,18,22,23)</sup>。Fig. 2 (b) に Bi2212 の結晶構造を示す。Bi2212 は  $\text{CuO}_2$  面が二重になっているために、フェルミ面を成すバンドが結合バンド (Bonding Band; BB) と反結合バンド (Antibonding Band; AB) に分裂する。Fig. 3 (a)–(c) に示すように励起光のエネルギーを 7 eV にすると、AB が選択的に観測されるが、少しエネルギーを上げて 8 eV 付近にすると、Fig. 3 (d) に示すように BB と AB が同時に観測される。

以上のような理由から、低エネルギー放射光を用いることで質の高い実験データが得られる。本研究では、超伝導転移温度が  $T_c = 63$  K となる極過剰ドープの Bi2212 (OD63) 試料について、低エネルギー放射光 ARPES 実験を実施し、キング構造と電子結合の強さのエネルギー分布を決定した。キング構造の波数依存性や温度依存性を調べることで、電子と強く結合する集団励起振動の決定的な証拠を捉えることに成功した。

実験は広島大学放射光科学研究センターの BL-9A にて行った。Fig. 2 (a) は、試料と光電子検出器の幾何学的な配置を示したものである。放射光と静電半球型アナライザーは  $50^\circ$  の関係で設置されており、検出面内に  $30^\circ$  の範囲で角度分解測定することができる。実験では、試料のノード方



**Fig. 3.** (Color online) ARPES data for heavily overdoped Bi2212 ( $T_c = 63$  K; OD63). (a–d) Energy-momentum plots taken at off node angles of  $\theta = 0^\circ, 8^\circ, 12^\circ,$  and  $27^\circ$ , as marked in the inset of panel (e). Thick curves denote the MDC peak dispersion,  $k(\omega)$  (bottom axis), and its second energy derivative,  $(d/d\omega)^2 k(\omega)$  (top axis), respectively. In panel (d), the bonding band (BB) and antibonding band (AB) are simultaneously observed with  $h\nu = 8.5$  eV, whereas in panel (a–c), the AB is selectively observed with  $h\nu = 7.0$  eV. (e) Offset plot of the dispersion,  $k(\omega)$ , taken from (a–d). Dashed lines are guides to the eye.

向とアナライザーのスリットが平行になるように取り付け、ノード方向を軸に回転して波数空間を走査した。

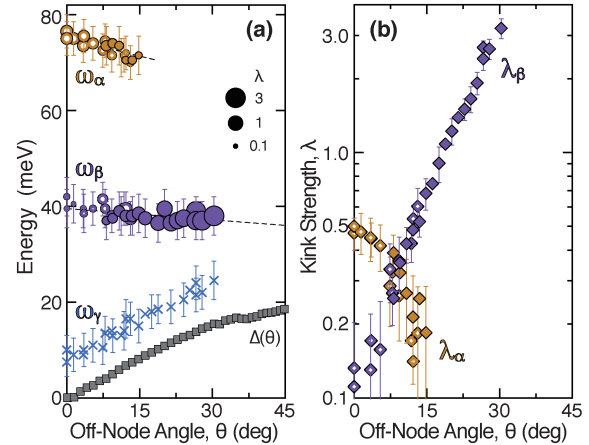
本研究で利用した Bi2212 の組成式は  $\text{Bi}_{1.54}\text{Pb}_{0.6}\text{Sr}_{1.88}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  で表される。移動溶融帯法を用いて単結晶を合成し、その後のアニール処理によりホール濃度を極過剰ドープ領域へと調整した。 $T_c$  は零磁場冷却および磁場中冷却磁化率の結果から 63 K と評価された。試料作製の詳細については文献<sup>24)</sup>を参考にさせていただきたい。

### 3. 結果

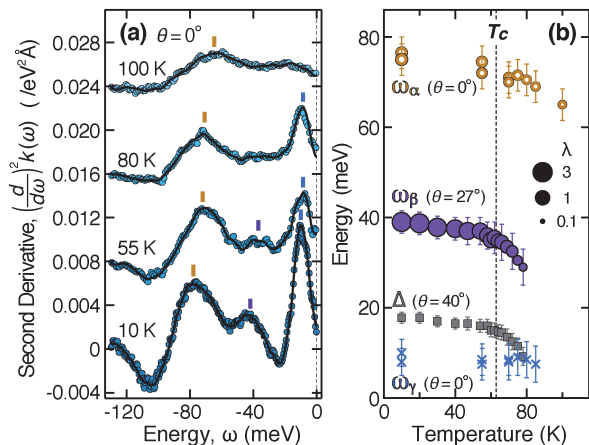
**Fig. 3(a)** に、OD63 のノード方向で得られた準粒子分散を示す。励起光エネルギーは  $h\nu = 7.0$  eV を用い、AB を選択的に観測した。低エネルギー放射光を用いることで、従来よりも鮮明な ARPES 像が得られた。MDC のフィッティング解析で決定したピーク位置  $k(\omega)$  を、ARPES 像に重ねて示す。準粒子の群速度  $d\omega/dk$  が  $|\omega| \sim 78$  meV で大きく変化する。バンド分散  $k(\omega)$  の右側の曲線は、二階微分  $(d/d\omega)^2 k(\omega)$  を表す。最適ドープで報告された  $\sim 10$  meV のキंकに加え、 $|\omega| \sim 40$  meV にもキंकが観測される。特筆すべきは、最適ドープでは大きなキंकが  $|\omega| \sim 65$  meV に観測されるが<sup>4-6)</sup>、極過剰ドープでは  $\sim 78$  meV と  $\sim 40$  meV にキंकが観測されることで、キंकの同定には注意が必要だ。以下では、極過剰ドープの Bi2212 で観測された三つのキंकを高結合エネルギー側から順に  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  と表記する。

ノードから離れた波数で観測された ARPES スペクトルを **Fig. 3(b)–(c)** に示す。本稿では、**Fig. 3(e)** の内挿図に示すように、 $(\pi, \pi)$  を視点とするノードからの離角  $\theta$  を用いて波数方向を表記する。ノードを離れると、 $\alpha$  と  $\beta$  キंकの強度が急激に変化するが、両者のエネルギーは明確に分離したまま共存する。キंकのエネルギー位置  $\omega_{\text{kink}}$  と結合の強さ  $\lambda_{\text{kink}}$  を定量的に評価した結果を、**Fig. 4(a)** および **(b)** に示す。結合強度は、キंकの上下のエネルギーにおける群速度比から、 $1 + \lambda_{\text{kink}} = v_{\text{H}}/v_{\text{L}}$  により算出した<sup>25)</sup>。 $\alpha$  キंकと  $\beta$  キंकのエネルギー  $\omega_\alpha$ ,  $\omega_\beta$  は 34 meV ほどの間隔で明確に分かれており、ノードから離れても大きな変化は見られない。 $\alpha$  キंकはノードで最も強く  $\lambda_\alpha = 0.5$  となり、 $\beta$  キंकはアンチ・ノードで最も強く  $\lambda_\beta = 3.2$  となる。これらの振る舞いは、 $\alpha$  キंकと  $\beta$  キंकをもたらず結合励起モードが異なることを示している。

温度を上げたときのノード方向の分散  $k(\omega)$  の二階微分  $(d/d\omega)^2 k(\omega)$  を、**Fig. 5(a)** に示す。温度が  $T_c$  を越えると、 $\alpha$  キंकと  $\beta$  キंकが低結合エネルギー側へ移動するのがわかる。キंकのエネルギー位置と結合強度の温度依存性を、**Fig. 5(b)** に示す。 $\beta$  キंकについては、 $\theta = 27^\circ$  の ARPES スペクトルから温度依存性を評価した。また、**Fig. 5(b)** には、 $\theta = 40^\circ$  のアンチ・ノード付近で決定した超伝導ギャップ  $\Delta$  の温度変化も示す。温度が  $T_c$  を越え



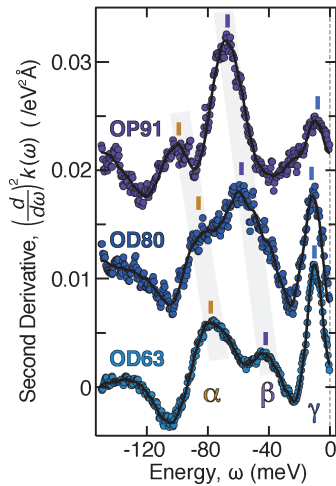
**Fig. 4.** (Color online) (a) Kink energies  $\omega_\alpha$ ,  $\omega_\beta$ , and  $\omega_\gamma$  determined from  $(d/d\omega)^2 k(\omega)$ . Circle size represents the kink strength, and dashed lines denote the linear fits. Also shown are the superconducting gap  $\Delta(\theta)$ . (b) Kink strengths  $\lambda_\alpha = v_{100}/v_{60} - 1$  and  $\lambda_\beta = v_{60}/v_{25} - 1$ , where  $v_{100}$ ,  $v_{60}$ , and  $v_{25}$  denote the experimental group velocities at 100, 60, and 25 meV, respectively.



**Fig. 5.** (Color online) (a) Second energy derivative of nodal dispersion,  $(d/d\omega)^2 k(\omega)$ , at  $T = 10, 55, 80,$  and  $100$  K, offset from each other by  $0.008 \text{ eV}^{-2} \text{\AA}^{-1}$ . (b) Energies of a nodal  $\alpha$  kink at  $\theta = 0^\circ$  (open circles), an off-nodal  $\beta$  kink at  $\theta = 27^\circ$  (filled circles), a nodal  $\gamma$  kink at  $\theta = 0^\circ$  (crosses), and an antinodal gap at  $\theta = 40^\circ$  (squares), observed across  $T_c = 63$  K. Circle size represents the kink strength.

てもギャップが閉じずに、擬ギャップが観測されているが、これは最近の高分解能 ARPES 実験の結果と一致する<sup>26,27)</sup>。**Fig. 5(b)** で注目すべき点は、キंकのエネルギーと超伝導ギャップが同じ温度依存性を示し、 $\omega_\alpha - \Delta$  や  $\omega_\beta - \Delta$  のエネルギー差がほぼ一定になっていることである。これは、 $\alpha$  キंकと  $\beta$  キंकがアンチ・ノードの電子状態と運動していることを示している。

ノード方向の分散の二階微分について、我々が過去に報告した最適ドープ (OP91) と過剰ドープ (OD80) の結果を比較したものを **Fig. 6** に示す<sup>18,23)</sup>。エネルギー範囲 30

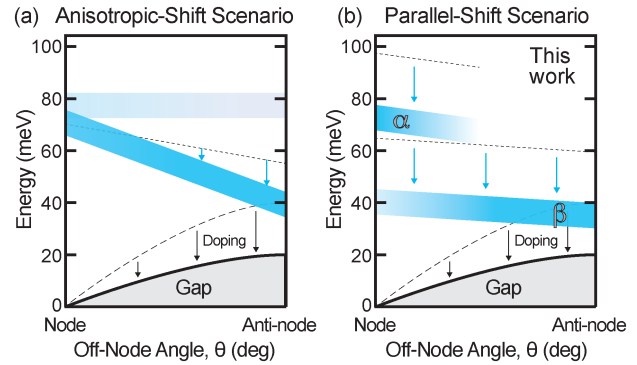


**Fig. 6.** (Color online) Second energy derivatives of dispersion,  $(d/d\omega)^2 k(\omega)$ , offset from each other by  $0.01 \text{ eV}^{-2} \text{ \AA}^{-1}$ . The original data taken with  $h\nu = 8.1 \text{ eV}$  for optimally doped  $T_c = 91 \text{ K}$  (OP91) and overdoped  $T_c = 80 \text{ K}$  (OD80) samples were reported in Ref. 23.

$<|\omega| < 120 \text{ meV}$ に着目すると、大小二つのキングが約  $32 \text{ meV}$  離れて共存しているのがわかる。一見すると、OP91の  $67 \text{ meV}$  に観測される大きなキングを、OD63の  $78 \text{ meV}$  の  $\alpha$  キングに結びつけたくなるかもしれない。しかし、この仮説は以下の難点を抱えている。

1. 一般に、キングのエネルギー  $\omega_{\text{kink}}$  は、ボソン周波数  $\Omega$  とギャップの大きさ  $\Delta(\mathbf{k}_m)$  の和  $\omega_{\text{kink}} = \Omega + \Delta(\mathbf{k}_m)$  で表される。ここで  $\mathbf{k}_m$  は、電子散乱における中間状態の波数である。OP91 から OD63 へホール濃度が増え、アンチ・ノードのギャップは  $38 \text{ meV}$  から  $18 \text{ meV}$  へ減少する<sup>17)</sup>。また、磁気共鳴励起や格子振動モードのエネルギーも、ホール濃度とともに低下する傾向にある<sup>28,29)</sup>。したがって、キングが OP91 の  $67 \text{ meV}$  から OD63 の  $78 \text{ meV}$  へ移動する現象は説明できない。
2. OP91 で  $99 \text{ meV}$  に観測される小さなキングと OD63 の  $40 \text{ meV}$  に観測される  $\beta$  キングのホール濃度依存性を説明するのが難しい。かなり変則的なモデルが必要になるだろう。
3. OP91 の  $67 \text{ meV}$  のキングは、アンチ・ノードで最も強く観測される。これは、Fig. 4(b) に示した  $\alpha$  キングとは正反対の傾向で、 $\beta$  キングの振る舞いと一致する。

以上を考慮すると、OP91 の  $67 \text{ meV}$  のキングは、OD63 の  $\beta$  キングに結びつけるのが妥当と判断される。つまり、過剰ドーピングによって超伝導ギャップが縮小したために、OP91 の  $67 \text{ meV}$  と  $99 \text{ meV}$  のキングがそれぞれ約  $23 \text{ meV}$  ほど低結合エネルギー側へ移動し、OD63 で  $\beta$  および  $\alpha$  キングとして観測されたと考えられる。Fig. 6 から、過剰ドーピングによって  $\alpha$  キングが急激に成長し、 $\beta$  キングが弱ま



**Fig. 7.** (Color online) (a) Continuous main kink, whose energy shift with overdoping is highly anisotropic, proposed in Ref.13. (b) Two separate kinks, whose energy shifts with overdoping are parallel and nearly isotropic, based on the present result.

ることが読み取れる。

我々が観測したキングのエネルギーと結合強度の分布の模式図を Fig. 7(b) に示す。 $\alpha$  と  $\beta$  キングのエネルギー位置は、過剰ドーピングによって低エネルギー側に平行移動し、 $\alpha$  キングは急激に成長するが、 $\beta$  キングは衰退することが判明した。先行研究<sup>13)</sup>では、Fig. 7(a) のように過剰ドーピングによってキングのエネルギーが異方的に移動するモデルが提案されたが、新しい実験結果を踏まえると、 $\omega_\alpha$  と  $\omega_\beta$  のそれぞれが過剰ドーピングとともに平行に移動するモデルが導かれる。

#### 4. キング構造に寄与する中間状態

電子が、集団励起振動などのボソン励起と相互作用する過程のファインマン・ダイアグラムは、Fig. 8 のようになる。電子の始状態と終状態の波数を  $\mathbf{k}$ 、中間状態の電子の波数を  $\mathbf{k}_m$ 、ボソンの波数を  $\mathbf{q}$  と定義すると、波数保存則より  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_m + \mathbf{q}$  が成り立つ。電子-ボソン相互作用の自己エネルギー  $\Sigma(\omega)$  は、Fig. 8 の過程の全ての  $\mathbf{q}$  で積分したもので与えられるため、電子励起スペクトルとボソン励起スペクトルの畳み込み積分になる。そのため、ノード方向に観測されるキング構造も、全波数空間の電子励起スペクトルに依存する。

Fig. 5 および Fig. 6 に示すように、 $\alpha$  と  $\beta$  キングのエネルギーは、温度を上げても、ホール濃度を増やしても、縮小するギャップに足並みをそろえて移動する。そのため、中間状態の波数  $\mathbf{k}_m$  として、アンチ・ノードの電子状態が関与していると判断される。過剰ドーピングの銅酸化物では、 $\Delta(\theta) \propto \sin \theta$  の形をした  $d$  波のギャップが開く。ノード周辺では  $\Delta(\theta)$  の傾斜は急峻になり、アンチ・ノードでは傾斜が緩やかになる。ある程度幅のある波数  $\mathbf{k}_m$  でノードを経由する過程を積算すると、 $\Delta(\theta)$  の傾斜が急峻なためにキング構造のエネルギーが広がってしまう。一方、アンチ

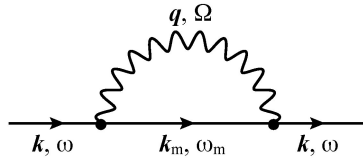


Fig. 8. Feynman diagram for electron-boson interaction.

・ノード周辺ではギャップの大きさがほぼ一定なので、アンチ・ノード経由の過程によって鋭いキング構造が形成される。Fig. 4(a)に示すように、OD63の超伝導ギャップは20 meVを下回る。また、キングのエネルギーは、 $T_c$ を越えてから約10 meVほど温度変化する。これらを考慮すると、電子と結合する二つの励起モードは、互いに32 meVほど離れており、 $\omega_\alpha$ や $\omega_\beta$ より10~20 meVほどエネルギーが低いはずだ。

## 5. 電子と結合する集団励起振動

まず、磁気励起を検討しよう。主要なエネルギーは $q = (\pi, \pi)$ の共鳴励起で与えられ、そこを起点として急峻な分散が上下にのびている。低エネルギー側と高エネルギー側の励起分散が交わるような形を示すことから、砂時計型の磁気励起と呼ばれている<sup>30</sup>。過剰ドープのBi2212では、磁気共鳴励起のピークが34 meVに観測されており<sup>31</sup>、 $\beta$ キングに割り当てることができる。しかし、磁気励起の急峻な分散の領域には、 $\alpha$ キングに割り当てられるような特徴的なエネルギーが無い。また、非弾性中性子散乱実験によると、過剰ドープとともに $40 < |\omega| < 70$  meVの磁気励起のスペクトル強度が低下する<sup>19,20</sup>。したがって、 $\alpha$ キングを説明するには、何か他の励起を考える必要がある。

格子振動については、これまで主に2つの励起モードが候補として議論されてきた。Fig. 9(a)のように酸素原子が面直に振動する座屈モードと、Fig. 9(b)のように酸素原子が面内で振動する呼吸モードだ。前者は $\Omega \sim 35$  meVに、後者は $\Omega \sim 65$  meVに観測されている<sup>28</sup>。強束縛模型のバンド分散から、酸素座屈モードは主にアンチ・ノード領域の電子と結合し、酸素呼吸モードはノード方向の電子と結合すると予想されている<sup>10</sup>。これらの傾向は、本実験で得られた $\omega_{\text{kink}}$ および $\lambda_{\text{kink}}$ の $\theta$ 依存性 (Fig. 4)と一致する。したがって、 $\beta$ キングは酸素座屈モードに、 $\alpha$ キングは酸素呼吸モードに割り当てられる。78 meVの $\alpha$ キングの起源については、格子振動以外では説明できない。

ただし、 $\sim 40$  meVに観測される $\beta$ キングについては、酸素座屈モードによるキングと、磁気共鳴励起モードによるキングが重なっている可能性を排除できない。しかし、酸素原子を同位体に置換した実験で、格子振動と $\beta$ キングのエネルギーが同程度移動することが報告されており<sup>8</sup>、格子振動の寄与が大きいことを示している。また、

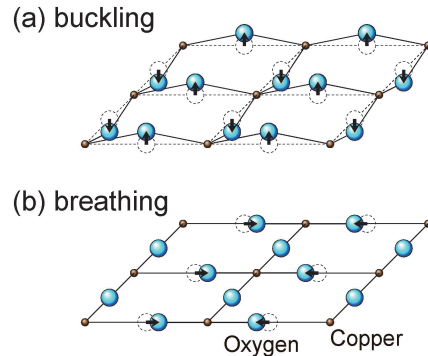


Fig. 9. (Color online) Illustration of buckling and breathing phonon modes.

本研究で観測された $\alpha$ キングは酸素呼吸モードにのみ割り当て可能なため、これを基準とすることで $\beta$ キングにおける酸素座屈モードの寄与を推計できる。最大強度で比較すると、Fig. 4(b)より、 $\lambda_\beta$ は $\lambda_\alpha$ の約6.4倍と観測されている。これは、電子-格子結合の計算値<sup>10</sup>より少し小さいため、 $\beta$ キングの主成分は、格子振動の酸素座屈モードによるものと推定される。

$\gamma$ キングについては、Fig. 4(a)に示すように、超伝導ギャップ $\Delta(\theta)$ から $\sim 10$  meVほど深いエネルギーに観測され、その波数依存性は $\omega_\gamma = \Delta(\theta) + 10$  meVに従う。この振る舞いは、最適ドープや不足ドープのBi2212で10-15 meVに観測されたキングと定性的に一致しており、その起源として、格子振動の音響モードとの結合などが提案されている<sup>14,23,32</sup>。

## 6. おわりに

極過剰ドープのBi2212の準粒子分散を、低エネルギー放射光を用いたARPESで精密に観測した結果、分散キング構造の新しい景観が得られた。ノード方向の $\sim 78$  meVに強いキング構造が観測されたが、これを説明するには格子振動が必要である。本実験で観測された複数の分散キングの分布は、電子と格子振動が強く結合していることを示す決定的な証拠になる。今後、高温超伝導発現機構の理論には、強い電子-格子結合を矛盾なく取り入れる必要があるだろう。

### 謝辞

本稿で紹介した成果は、有田将司、生天目博文、谷口雅樹、石角元志、藤田和博、石田茂之、内田慎一ら各氏との共同研究で得られたものです。心より感謝の意を表します。

### 参考文献

- 1) 「ヘリウム危機 超えゆく技術」日本経済新聞 2014年4月

- 3 日.
- 2) J. Bardeen, L. N. Cooper and J. R. Schrieffer: Phys. Rev. **108**, 1175 (1957).
  - 3) W. L. MacMillan and J. Rowell: Phys. Rev. Lett. **14**, 108 (1965).
  - 4) T. Valla *et al.*: Science **285**, 2110 (1999).
  - 5) A. Lanzara *et al.*: Nature **412**, 510 (2001).
  - 6) P. D. Johnson *et al.*: Phys. Rev. Lett. **87**, 177007 (2001).
  - 7) K. Terashima *et al.*: Nat. Phys. **2**, 27 (2006).
  - 8) H. Iwasawa *et al.*: Phys. Rev. Lett. **101**, 157005 (2008).
  - 9) T. Cuk *et al.*: Phys. Rev. Lett. **93**, 117003 (2004).
  - 10) T. P. Devereaux *et al.*: Phys. Rev. Lett. **93**, 117004 (2004).
  - 11) M. Vojta *et al.*: Phys. Rev. Lett. **97**, 09001 (2006).
  - 12) T. Dahm *et al.*: Nat. Phys. **5**, 217 (2009).
  - 13) J. He *et al.*: Phys. Rev. Lett. **111**, 107005 (2013).
  - 14) J. D. Rameau *et al.*: Phys. Rev. B **80**, 184513 (2009).
  - 15) H. Anzai *et al.*: Sci. Rep. **7**, 4830 (2017).
  - 16) 井野明洋: 放射光 **26**, 143 (2013).
  - 17) H. Anzai *et al.*: Nat. Commun. **4**, 1815 (2013).
  - 18) A. Ino *et al.*: Nanoscale Res. Lett. **8**, 515 (2013).
  - 19) S. Wakimoto *et al.*: Phys. Rev. Lett. **98**, 247003 (2007).
  - 20) O. J. Lipscombe *et al.*: Phys. Rev. Lett. **99**, 067002 (2007).
  - 21) M. P. Seah and W. A. Dench: Surf. Interface Anal. **1**, 2 (1979).
  - 22) T. Yamasaki *et al.*: Phys. Rev. B **75**, 140513 (2007).
  - 23) H. Anzai *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 227002 (2010).
  - 24) H. Hobou *et al.*: Phys. Rev. B **79**, 064507 (2009).
  - 25) S. Johnston *et al.*: Adv. Condens. Matter Phys. 968304 (2010).
  - 26) T. Kondo *et al.*: Nat. Commun. **6**, 7699 (2015).
  - 27) T. J. Reber *et al.*: arXiv:1508.06252 (2015).
  - 28) F. Venturini *et al.*: Phys. Rev. Lett. **89**, 107003 (2002).
  - 29) B. Fauqué *et al.*: Phys. Rev. B **76**, 214512 (2007).
  - 30) 山田和芳: パリティ **23**, 04 24-27 (2008).
  - 31) L. Capogna *et al.*: Phys. Rev. B **75**, 060502(R) (2007).
  - 32) S. Johnston *et al.*: Phys. Rev. Lett. **108**, 166404 (2012).

## 著者紹介



## 安齋太陽

大阪府立大学 准教授

E-mail: anzai@pe.osakafu-u.ac.jp

専門: 固体物理学

## 【略歴】

2011年広島大学大学院理学研究科博士課程修了, 博士(理学)。同年, 広島大学放射光科学研究センター研究員。2013年大阪府立大学大学院工学研究科助教。2018年より同准教授。



## 井野明洋

広島大学放射光科学研究センター 特任准教授

E-mail: ino@hiroshima-u.ac.jp

専門: 光電子分光, 固体物理学

## 【略歴】

1999年東京大学大学院理学系研究科博士課程修了, 博士(理学)。同年, 日本原子力研究所博士研究員。2001年広島大学放射光科学研究センター博士研究員。2003年広島大学大学院理学研究科助手。2015年より現職。

## Dispersion kinks in high- $T_c$ cuprates: a new landscape

**Hiroaki ANZAI** Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University, 1-1 Gakuen-cho, Sakai, 599-8531, Japan

**Akihiro INO** Hiroshima Synchrotron Radiation Center, Hiroshima University, 2-313 Kagamiyama, Higashi-Hiroshima, 739-0046, JAPAN  
Present address: Department of Education and Creation Engineering, Kurume Institute of Technology, 2228-66, Kamitsu-machi, Kurume, 830-0052, JAPAN

**Abstract** The collective excitation mode that mediates between electrons in high- $T_c$  superconductivity for cuprates has been at the center of a controversy, and intensively debated. An important clue to the key player is the dispersion “kink” observed by angle-resolved photoemission spectroscopy. Our angle-resolved photoemission experiments using low-energy synchrotron radiation has been extended to heavily overdoped high- $T_c$  cuprate, and revealed the full view of the multiple dispersion kinks and the distribution of kink strength. The kink rising at  $\sim 78$  meV with heavily overdoping provides conclusive evidence that the strong electron-phonon coupling is indeed realized in the cuprates.