

放射光光電子分光による Ru 酸化物超伝導体における電子状態

岩澤英明

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

相浦義弘

産業技術総合研究所 〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1

■要旨

放射光の励起光エネルギーの可変性および偏光特性を活用することにより、マルチバンド系物質の特定の電子バンドを抽出し、電子構造・自己エネルギーの定量解析が可能となる。従来の自己エネルギーの導出方法の問題点と改善方法を説明するとともに、Ru 酸化物超伝導体を例にとり、電子・電子相互作用の影響を取り除いた“真”の電子・ボゾン相互作用の結合定数を示す。

1. はじめに

固体が示す電気伝導性・磁性・光学特性などの「物性」は、固体内部の電子の微視的な振る舞いと密接に関わっている。そのため、電子バンド分散やフェルミ面等の微視的電子構造を直接決定できる、角度分解光電子分光 (Angle-resolved photoemission spectroscopy: ARPES) は、固体物性研究において有力な実験手法となっている。ARPES スペクトルは、1 粒子スペクトル関数 $A(\mathbf{k}, \omega)$ と対応している¹⁻³⁾：

$$A(\mathbf{k}, \omega) = -\frac{1}{\pi} \frac{\Sigma''(\mathbf{k}, \omega)}{[\omega - \varepsilon_0(\mathbf{k}) - \Sigma'(\mathbf{k}, \omega)]^2 + [\Sigma''(\mathbf{k}, \omega)]^2}, \quad (1)$$

ここで、 $\mathbf{k}$ は運動量、 ω はエネルギー、 $\varepsilon_0(\mathbf{k})$ は相互作用を受けていない状態のバンド分散 (ベアバンド)、 $\Sigma(\mathbf{k}, \omega) = \Sigma'(\mathbf{k}, \omega) + i\Sigma''(\mathbf{k}, \omega)$ は自己エネルギーと呼ばれる複素関数であり、電子が受ける相互作用を表している。近年では、電子エネルギー分析器のエネルギーおよび角度分解能が飛躍的に向上し、ARPES スペクトルの形状解析から $\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$ を実験的に導出することが可能となり、電子が受ける相互作用が議論されるようになってきた¹⁻³⁾。しかし、精密な自己エネルギーの解析は、電子構造が比較的単純な単体金属表面や銅酸化物高温超伝導体などに限られている。これは、複数枚のフェルミ面を有するマルチバンド系物質では、電子バンドが交差・隣接し、形状解析を精度良く行うことが困難であるためである。

本稿では、マルチバンド系物質の代表例とも言えるルテニウム酸化物超伝導体 Sr_2RuO_4 ($T_c \sim 1.5 \text{ K}$)^{4,5)} の電子が受ける相互作用について説明する。 Sr_2RuO_4 は 3 枚のフ

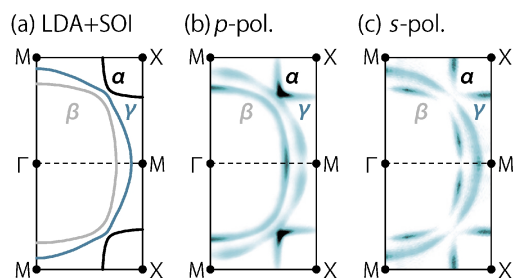


Fig. 1 Fermi surface (FS) of Sr_2RuO_4 . (a) Calculated FS by LDA with spin-orbit interaction. (b) and (c) Measured FS by ARPES using 65 eV at 10 K in (b) *p*- and (c) *s*-polarization geometries. After Iwasawa *et al.*, 2010⁷⁾.

エルミ面 (Fig. 1 参照：X 点中心の α フェルミ面、 Γ 点中心の β , γ フェルミ面) を有することが、ドハース・ファン・アルフエン (dHvA) 効果、ARPES、バンド計算 (局所密度近似：LDA) の結果から知られている。一方で、dHvA 効果から見積もられた α , β , γ バンドの有効質量は、LDA 計算と比べて、それぞれ 3.0, 3.5, 5.5 倍と重くなっている⁴⁾。しかし、この異方的な有効質量の増大の起源は判然としない。

本稿では、まず、放射光 ARPES の特徴である励起光エネルギーの可変性および偏光特性を活用することにより、 Sr_2RuO_4 のバンドを選択・分離して観測することが可能となることを説明する。次に、従来広く用いられていた自己エネルギーの導出方法の問題点とその改善方法を紹介する。その後、改善された自己エネルギーの導出方法を用いて、この系の電子が受ける相互作用の定量評価を行い、dHvA 効果から見積もられた有効質量の増大の要因を議論する。

2. 光電子放出強度と双極子選択則

APRES によって観測される光電子放出強度 $I(\mathbf{k}, \omega)$ は,

$$I(\mathbf{k}, \omega) \propto |M_{f,i}^{\mathbf{k}}|^2 f(\omega, T) A(\mathbf{k}, \omega), \quad (2)$$

と表される¹⁻³⁾。ここで、 $M_{f,i}^{\mathbf{k}} = \langle \phi_f^{\mathbf{k}} | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | \phi_i^{\mathbf{k}} \rangle$ は遷移行列要素 ($\phi_i^{\mathbf{k}}$ ($\phi_f^{\mathbf{k}}$) は電子の始 (終) 状態の波動関数, $\mathbf{A}$ は入射光のベクトルポテンシャル, $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$ は運動量演算子), $f(\omega, T)$ はフェルミ・ディラック分布関数である。従って, 光電子放出強度は, 遷移行列要素, つまり, 入射光のエネルギーや偏光に依存する。これを活用することにより, 特定の電子バンドの強度を制御することが可能となる。特に, 直線偏光した入射光を用いると, $\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$, $|\phi_f^{\mathbf{k}}\rangle$, $|\phi_i^{\mathbf{k}}\rangle$ の対称性を反映した, 双極子選択則が利用できる。

双極子選択則の要点¹⁻³⁾は, 水平 (p : parallel) もしくは垂直 (s : senkrecht) 偏光を用いた場合, 光学遷移が許される始状態の波動関数の対称性が, それぞれ検出面に対して偶対称, 奇対称に限られることである (ここで, 検出面を試料の鏡映面とする)。つまり, 選択則を利用すると, 軌道対称性の異なる電子バンドを選択的に抽出することが可能となる。この選択則を活用するために, 近年, 我々のグループでは, 可能な高分解能 ARPES 装置を, 広島大学放射光科学研究センター (HiSOR) の直線偏光アンジュレータービームライン (BL-1) に建設した⁶⁾。

Fig. 1 は Sr_2RuO_4 のフェルミ面を示したもので, (a) は LDA + SOI バンド計算 (スピン・軌道相互作用 (SOI) を含めた LDA バンド計算), (b) および (c) はそれぞれ p 偏光および s 偏光配置で観測したフェルミ面である⁷⁾。バンド計算で予期されている X 点中心の α フェルミ面, Γ 点中心の β , γ フェルミ面, の計 3 枚のフェルミ面が, どちらの偏光でも明瞭に示されている。 α , β , γ フェルミ面はそれぞれ Ru $4d_{yz}$, $4d_{zx}$, $4d_{xy}$ バンドから主に構成されるた

め, 選択則が働く高対称軸上 (ΓM 方向 $[(0, 0) - (\pi, 0)]$ や ΓX 方向 $[(0, 0) - (\pi, \pi)]$) では軌道対称性を反映して, 双極子選択則に由来する偏光依存性が顕著に現れている。

3. ARPES による自己エネルギー導出方法の再考

多くの場合, ARPES スペクトルの形状解析を行う波数方向で自己エネルギーの波数依存性が無視できる²⁾: $\Sigma(\mathbf{k}, \omega) \sim \Sigma(\omega)$ 。この時, エネルギーを一定に保って波数を変化させると, スペクトル関数は単純な Lorentz 関数となる。従って, ARPES スペクトルにおいて, 各エネルギーにおける運動量分布曲線 (MDC: Momentum Distribution Curve) からピーク位置およびピーク幅を見積もることによって, 自己エネルギーの実部および虚部の導出が可能となる:

$$\Sigma'(\omega) = \omega - \varepsilon_0(\mathbf{k}) \quad (3)$$

$$\Sigma''(\omega) = -v_0 \Delta k \quad (4)$$

ここで, v_0 はペアバンドの群速度 ($\hbar^{-1} \partial \varepsilon_0(\mathbf{k}) / \partial k$), Δk は MDC ピークの線幅 (HWHM) を表す。故に, 自己エネルギー解析では, 実験的に観測することの出来ないペアバンド $\varepsilon_0(\mathbf{k})$ を仮定する必要がある。はじめに, 従来広く用いられてきた「 $\varepsilon_0(\mathbf{k})$ を直線等で近似する」手法⁸⁾に関して, その問題点と改善方法を示す。

Fig. 2(a) は, 多くの物質で主要に働くと考えられる電子・電子相互作用 (EEI: electron-electron interaction) と電子・ボゾン相互作用 (EBI: electron-boson interaction, フォノンあるいはマグノンなどのボゾンと電子との相互作用) が, 自由電子的な $\varepsilon_0(\mathbf{k})$ に働いた場合に想定されるバンド分散を模式的に示したものである⁹⁾。電子・電子相互作用はバンド幅 (数 eV) 程度, 電子・ボゾン相互作用は

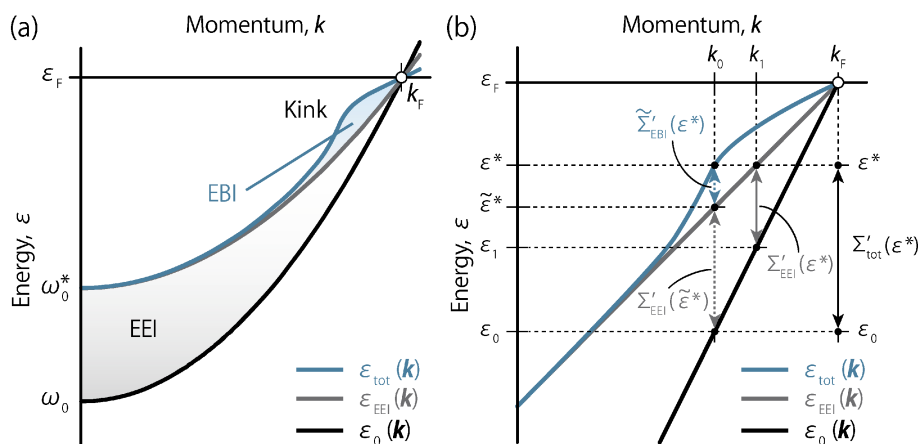


Fig. 2 (a) and (b) Schematic illustration of the band renormalizations due to the electron-electron and electron-boson interactions in the large-energy scale (a) and near the Fermi level (b). After Iwasawa *et al.*, 2013⁹⁾.

ボゾンのモードエネルギー ($\Omega \sim$ 数100 meV) 程度のエネルギースケールで自己エネルギーに構造を与える。これらの相互作用は互いに大きく異なるエネルギースケールを持つため、それぞれの散乱過程は独立であると仮定する。相互作用が働いていない電子バンド (**Fig. 2**: $\varepsilon_0(\mathbf{k})$) と比較して、電子・電子相互作用が働くことにより電子バンド全体のエネルギー分散幅が減少し (**Fig. 2**: $\varepsilon_{\text{EEI}}(\mathbf{k})$)、その結果、電子の群速度の減少・有効質量の増大をもたらす。一方、電子・ボゾン相互作用は、フェルミ準位近傍で支配的であり、電子バンドに特徴的な折れ曲がり (キンク) 構造を引き起こす。この電子・ボゾン相互作用もまた、フェルミ準位近傍の電子の群速度の減少・有効質量の増大をもたらす。

近年の多くの ARPES 研究では、電子・ボゾン相互作用を評価するために、電子・電子相互作用によって既に繰り込まれた $\varepsilon_{\text{EEI}}(\mathbf{k})$ をベアバンドと仮定して用いている⁹⁾。しかし、この手法で得られる自己エネルギーは“実効的”な値と認識はされてはいたものの、“真”の電子・ボゾン相互作用による自己エネルギーとの関連性についてはほとんど議論されてこなかった。

自己エネルギーの実部の導出に関して、フェルミ準位近傍の模式図 (**Fig. 2(b)**) を例に説明する。ARPES で決定されるバンド分散 ($\varepsilon_{\text{tot}}(\mathbf{k})$) は、電子・電子相互作用と電子・ボゾン相互作用により繰り込まれている。これらの相互作用は互いに大きく異なるエネルギースケールを持つために、近似的に、自己エネルギーの実部は、

$$\Sigma'_{\text{tot}}(\omega) = \Sigma'_{\text{EBI}}(\omega) + \Sigma'_{\text{EEI}}(\omega) \quad (5)$$

と表すことが出来る。波数 $k = k_0, k_1$ における各バンド分散のエネルギー差に着目すると、電子・ボゾン相互作用による自己エネルギーの実部は、

$$\begin{aligned} \Sigma'_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) &= \Sigma'_{\text{tot}}(\varepsilon^*) - \Sigma'_{\text{EEI}}(\varepsilon^*) \\ &= (\varepsilon^* - \varepsilon_0) - (\varepsilon^* - \varepsilon_1) \\ &= \varepsilon_1 - \varepsilon_0 \end{aligned} \quad (6)$$

となる。ここで、 $\varepsilon_0(\mathbf{k})$ と $\varepsilon_{\text{EEI}}(\mathbf{k})$ の群速度は、

$$v_0 = (\varepsilon_1 - \varepsilon_0) / (k_1 - k_0) \quad (7)$$

$$v_{\text{EEI}} = (\varepsilon^* - \tilde{\varepsilon}^*) / (k_1 - k_0) \quad (8)$$

であるから、電子・電子相互作用の結合定数 (λ_{EEI}) は、

$$1 + \lambda_{\text{EEI}} = v_0 / v_{\text{EEI}} = (\varepsilon_1 - \varepsilon_0) / (\varepsilon^* - \tilde{\varepsilon}^*) \quad (9)$$

と表すことが出来る。これらを用いると(6)式は、

$$\begin{aligned} \Sigma'_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) &= (1 + \lambda_{\text{EEI}}) (\varepsilon^* - \tilde{\varepsilon}^*) \\ &= (1 + \lambda_{\text{EEI}}) \tilde{\Sigma}'_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) \end{aligned} \quad (10)$$

と書き換えることが出来る。ここで、 $\tilde{\Sigma}'_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) \equiv \varepsilon^* - \tilde{\varepsilon}^*$ を導入したが、これは従来の手法で得られる“実効的”な電子・ボゾン相互作用による自己エネルギーの実部に相当する。つまり、従来の手法では、電子・ボゾン相互作用による自己エネルギーの実部の値を、 $(1 + \lambda_{\text{EEI}})$ だけ過小評価していたことがわかる。また、(10)式から、電子・ボゾン相互作用の結合定数は、

$$\lambda_{\text{EBI}} = (1 + \lambda_{\text{EEI}}) \tilde{\lambda}_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) \quad (11)$$

と与えられる (ここで、 $\lambda_{\text{EBI}} = -\partial \Sigma'_{\text{EBI}} / \partial \omega|_{\omega=0}$, $\tilde{\lambda}_{\text{EBI}} = -\partial \tilde{\Sigma}'_{\text{EBI}} / \partial \omega|_{\omega=0}$ を用いた)。

では、どうして従来の手法では上記のような過小評価が生じるのだろうか。従来の手法で得られる“実効的”な電子・ボゾン相互作用による自己エネルギーの実部が、

$$\tilde{\Sigma}'_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) = \Sigma'_{\text{tot}}(\varepsilon^*) - \Sigma'_{\text{EEI}}(\tilde{\varepsilon}^*) \quad (12)$$

と表されるように、電子・電子相互作用のエネルギーの基準点が ε^* ではなく、 $\tilde{\varepsilon}^*$ と異なっていることがわかる [(5) 式参照]。その結果、自己エネルギーの実部において、電子・電子相互作用の寄与が過大評価され、電子・ボゾン相互作用が過小評価されてしまう。なお、自己エネルギーの虚部に関しても、類似の議論から、

$$\Sigma''_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) = (1 + \lambda_{\text{EEI}}) \tilde{\Sigma}''_{\text{EBI}}(\varepsilon^*) \quad (13)$$

が示せる⁹⁾。従って、“実効的”な電子・ボゾン相互作用による自己エネルギーの実部と虚部も、クラマース・クロニッヒ (KK) 変換で結ばれている事がわかる。このことは、KK 変換を満たすだけでは、導出した自己エネルギーの強度の妥当性が保証されないことを示している。

4. 電子・電子相互作用の評価

前節で述べたように、“真”の電子・ボゾン相互作用を評価するためには、電子・電子相互作用を評価する必要がある。電子・電子相互作用は、電子バンド全体にわたり影響を与えるため、その評価のためには、電子バンドを広いエネルギー範囲にわたり観察する必要がある。

Fig. 3(a), (b) は、それぞれ p 偏光, s 偏光を用いて、広いエネルギー範囲で測定した、 ΓM 方向の Sr_2RuO_4 の ARPES イメージである¹⁰⁾。 ΓM 方向では E_F を横切る 2 つのバンド (β, γ) が予測されるが (**Fig. 1(a)**)、偏光を切り替えることにより、 β バンド (**Fig. 3(a)**)、 γ バンド

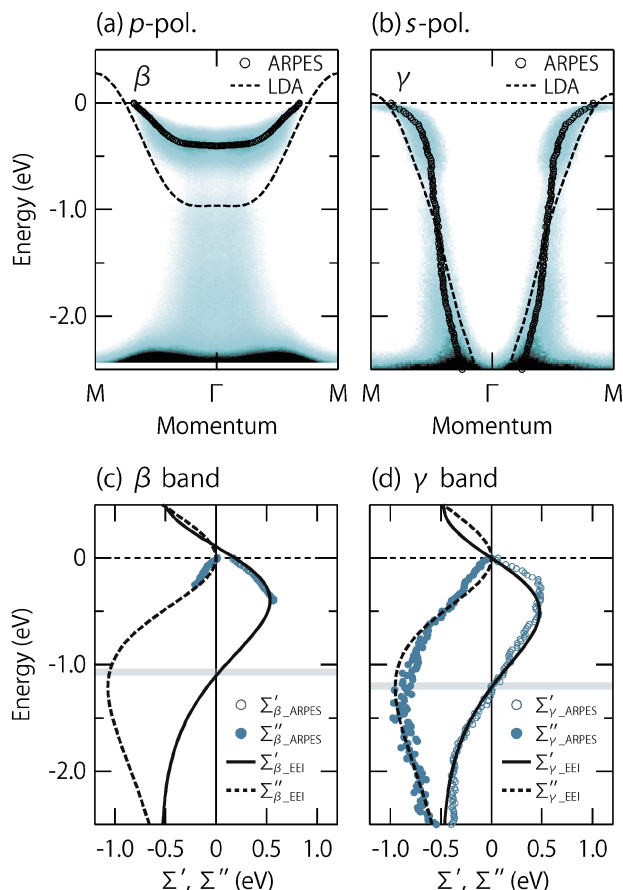


Fig. 3 (a) and (b) ARPES image plot of Sr_2RuO_4 taken at 88 eV and 10 K with p - and s -polarization, respectively. (c) and (d) Real and imaginary parts of the self-energy derived from ARPES and model for the (c) β band and (d) γ band. After Iwasawa *et al.*, 2012⁽¹⁰⁾.

(**Fig. 3 (b)**) を選択的に観測することが可能となる。ARPES から決定したバンド分散 (○) と LDA バンド計算 (点線) を比較すると、どちらのバンドも E_F 近傍で有効質量の増大が生じているが、その振舞いは大きく異なることがわかる。

これまで、電子・電子相互作用による電子バンドの繰り込みは、 β バンドで観測されているような「バンド幅の狭まり」(band narrowing) のみを引き起こすと考えられていた。しかし、 γ バンドの分散を見てみると、 E_F 近傍では有効質量が増大しているものの、 Γ 点 (バンドの底) 付近では、群速度 ($\hbar^{-1} \partial \varepsilon_0(\mathbf{k}) / \partial k$) が LDA バンド計算よりも速くなっている。さらに、LDA バンド計算との交点付近では、縦型の分散形状を示している。これは銅酸化物高温超伝導体で近年、広く観測されているボゾンエネルギーより高い結合エネルギー側におけるバンド分散の屈曲構造ならびに縦型の分散形状を伴う「高エネルギーバンド分散の異常」(HEA: High-Energy Anomaly) と類似している⁽¹¹⁾。

Fig. 3 (c), (d) は、LDA バンド計算の結果を基準として

導出した、それぞれ β , γ バンドの自己エネルギーの実部 (○) 及び虚部 (●) である。どちらのバンドの自己エネルギーも、フェルミ液体論に従う解析関数⁽¹⁰⁾

$$\Sigma_{\text{EEI}}(\omega) = \lambda_{\text{EEI}} \frac{\omega_c^2 \omega}{(\omega + i\omega_c)^2} \quad (14)$$

により再現できる。ここで、 λ_{EEI} は電子・電子相互作用の強さ ($= -(\partial \Sigma_{\text{EEI}}(\omega) / \partial \omega)|_{\omega=0}$: 結合定数) を表す。従って、 β , γ バンドの自己エネルギーの大域的なエネルギー依存性は電子・電子相互作用に起因していると考えられる。

式 (14) で表される自己エネルギーの虚部は常に負で、エネルギー無限大の極限で 0 に収束し、 E_F 近傍で ω^2 のエネルギー依存性を持つ。自己エネルギーの実部と虚部は

$$\Sigma'_{\text{EEI}}(\omega) = \lambda_{\text{EEI}} \frac{\omega_c^2 \omega (\omega^2 - \omega_c^2)}{(\omega^2 + \omega_c^2)^2} \quad (15)$$

$$\Sigma''_{\text{EEI}}(\omega) = -2\lambda_{\text{EEI}} \frac{\omega_c^3 \omega^2}{(\omega^2 + \omega_c^2)^2} \quad (16)$$

と表され、互いに KK 変換で結びつけられている。これらの式からわかる通り、このモデルでは、実部がゼロを取り、虚部が最小値を取るという特徴的なエネルギー ($\omega = \omega_c$) が存在する。 Sr_2RuO_4 の場合、報告されているクロン相互作用 (U) は 1.2–1.5 eV であり⁽¹²⁾、観測された ω_c と U が良く対応している。ただし、銅酸化物高温超伝導体の HEA のエネルギースケール (~ 0.3 – 0.6 eV) は U では説明がつかず⁽¹¹⁾、より小さな多電子励起のエネルギースケールを与える反強磁性交換相互作用 (J) との関連性を今後検証していく必要がある。

一方で、近年のバンド計算⁽¹³⁾や我々の ARPES の結果⁽⁷⁾から、スピン・軌道相互作用が E_F 近傍の電子状態に大きく影響を与えることが明らかとなっている。そこで、現象論的なモデル計算⁽¹⁴⁾により、電子・電子相互作用とスピン・軌道相互作用の影響を取り入れた (**Fig. 4**)⁽⁹⁾。計算は、 E_F 近傍の 3 つの LDA バンドを出発点とし、はじめに **Fig. 3** で求めたモデルの自己エネルギーの実部を導入する (**Fig. 4b(a)**)。これにより、 β バンドではバンド幅の減少、 γ バンドでは HEA が生じる。なお、このバンド間の繰り込み型の違いは、相互作用を受けていない状態でのバンドの底 (ω_0) と ω_c のエネルギーの大小で説明出来る: $\omega_0 < \omega_c$ の場合はバンド幅の減少が起こり (α , β バンド), $\omega_c < \omega_0$ の場合は HEA が現れる (γ バンド)。

モデルの自己エネルギーの実部を適用した後に、スピン・軌道相互作用を取り入れた計算結果が **Fig. 4(b)** である。バンドが近接・交差・縮退していた部分で、スピン・軌道相互作用が働き、軌道が混成する。また、 E_F 近傍では γ

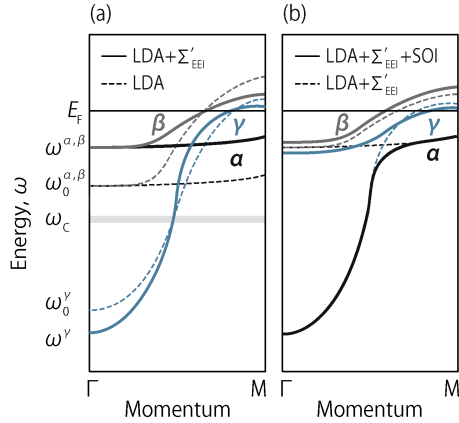


Fig. 4 (a) and (b) Schematic dispersions along the ΓM line of Sr_2RuO_4 derived from $\text{LDA} + \Sigma'_{\text{EEI}}$ and $\text{LDA} + \Sigma'_{\text{EEI}} + \text{SOI}$ calculations, respectively. After Iwasawa *et al.*, 2013⁹⁾.

バンドの有効質量が増大している。以上の結果から、 γ バンドの電子・電子相互作用の結合定数（スピン軌道相互作用を含む）は、

$$\lambda_{\text{EEI}} = \frac{m_{\text{LDA} + \Sigma'_{\text{EEI}} + \text{SOI}}^*}{m_{\text{LDA}}^*} - 1 = 1.9 \quad (17)$$

と見積もることが出来た。なお、 β バンドに対しても、同程度の電子・電子相互作用の結合定数が得られており、電子・電子相互作用による繰り込み効果はバンド間で等方的である。一方、 β バンドの自己エネルギーが電子・電子相互作用によりほぼ説明出来たのに対して（**Fig. 3(c)**）， γ バンドでは自己エネルギーの低エネルギー側の構造が電子・電子相互作用では説明が付かず（**Fig. 3(d)**），電子・ボゾン相互作用による有効質量の増大が顕著である。

5. “真”の電子・ボゾン相互作用の評価

前節の議論を基に、 Sr_2RuO_4 の γ バンドにおける“真”の電子・ボゾン相互作用の評価を行う。ARPES, LDA バンド計算, モデル計算（ $\text{LDA} + \Sigma'_{\text{EEI}} + \text{SOI}$ ）から決定した γ バンドの分散関係を **Fig. 5(a)** に示す⁹⁾。分散関係から γ バンドの有効質量等を見積もると、ARPES と dHvA の実験値が良く対応している（**Table 1**）。また、得られた有効質量から電子・電子相互作用と電子・ボゾン相互作用の結合定数は、

$$\lambda_{\text{tot}} = m_{\text{ARPES}}^* / m_{\text{LDA}}^* - 1 = 3.1 \quad (18)$$

$$\lambda_{\text{EEI}} = m_{\text{Model}}^* / m_{\text{LDA}}^* - 1 = 1.9 \quad (19)$$

$$\therefore \lambda_{\text{EBI}} = \lambda_{\text{tot}} - \lambda_{\text{EEI}} = 1.2 \quad (20)$$

と見積もることが出来る。従って、電子・ボゾン相互作用が強結合（ $\lambda_{\text{EBI}} \geq 1$ ）であることがわかる。さらに、“実効

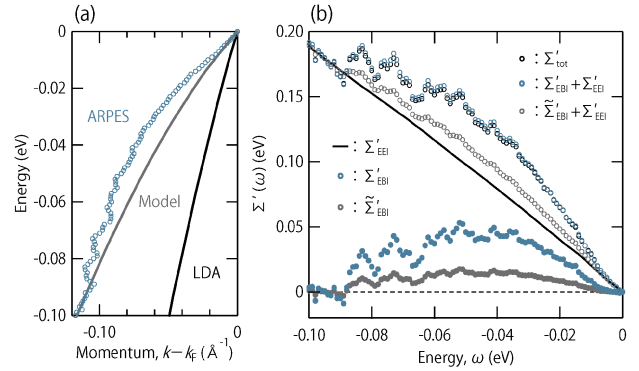


Fig. 5 (a) The γ -band dispersion of Sr_2RuO_4 obtained from high-resolution ARPES taken at 42 eV and 10 K with s -polarization, together with the model and LDA dispersions. (b) The real-part of the self-energies derived from the dispersions shown in (a). After Iwasawa *et al.*, 2013⁹⁾.

的”な電子・ボゾン相互作用は、

$$\tilde{\lambda}_{\text{EBI}} = m_{\text{ARPES}}^* / m_{\text{Model}}^* - 1 = 0.41 \quad (21)$$

となり、(11)式を満たす。

Fig. 5(b) は、**Fig. 5(a)** で示した 3 つの分散関係（ $\varepsilon_{\text{ARPES}}(\mathbf{k})$, $\varepsilon_{\text{Model}}(\mathbf{k})$, $\varepsilon_{\text{LDA}}(\mathbf{k})$ ）を用いて導出した自己エネルギーの実部である（ $\Sigma'_{\text{tot}}(\omega) = \varepsilon_{\text{ARPES}}(\mathbf{k}) - \varepsilon_{\text{LDA}}(\mathbf{k})$, $\Sigma'_{\text{EEI}}(\omega) = \varepsilon_{\text{Model}}(\mathbf{k}) - \varepsilon_{\text{LDA}}(\mathbf{k})$, $\tilde{\Sigma}'_{\text{EBI}}(\omega) = \varepsilon_{\text{ARPES}}(\mathbf{k}) - \varepsilon_{\text{Model}}(\mathbf{k})$ ）。さらに、 $\Sigma'_{\text{tot}}(\omega)$ と $\tilde{\Sigma}'_{\text{EBI}}(\omega) + \Sigma'_{\text{EEI}}(\omega)$ が完全に異なることから、従来の手法で得られる $\tilde{\Sigma}'_{\text{EBI}}(\omega)$ が、“真”の電子・ボゾン相互作用ではなく、あくまで“実効的”なものに過ぎないことが再確認できる。

実際に、 $\Sigma'_{\text{EBI}}(\omega)$ と $\Sigma'_{\text{EEI}}(\omega)$ の和を取ると、 $\Sigma'_{\text{tot}}(\omega)$ と一致する。この結果から、第 3 節で示した我々の自己エネルギー解析に関する議論の妥当性が確認できる。また、 E_F における自己エネルギーの実部の微分から求めた結合定数は、 $\lambda_{\text{tot}} = 3.1$, $\lambda_{\text{EEI}} = 2.0$, $\lambda_{\text{EBI}} = 1.1$, $\tilde{\lambda}_{\text{EBI}} = 0.36$ となり、有効質量から求めた値とも整合する。

このように、 γ バンドは電子・電子相互作用による電子バンドの繰り込みに加え、電子・ボゾン相互作用による顕著な有効質量の増大が起きている。これに対して、 β バンドは電子・ボゾン相互作用による電子バンドのフェルミ準位近傍のキック構造が顕著では無く⁶⁾、dHvA 効果で示された有効質量の増大は主に電子・電子相互作用による電子バンドの繰り込みに起因すると考えられる。我々は、 Sr_2RuO_4 の電子・ボゾン相互作用に対するバンド間の異方性が、この系の超伝導機構を解明する手がかりになると考えている。

6. まとめと今後の展望

本稿では、放射光 ARPES を用いて、 Sr_2RuO_4 の電子状

態, 特に, 電子・電子相互作用と電子・ボゾン相互作用の定量評価を行った^{7,9,10}。“真”の電子・ボゾン相互作用は, 従来の導出方法では, $(1+\lambda_{\text{EBI}})$ だけ過小評価される。これまで, γ バンドの“実効的”な電子ボゾン相互作用の強さ ($\tilde{\lambda}_{\text{EBI}}$) は 0.4 であると報告されていた¹⁵。しかし, 電子・電子相互作用の影響を正しく取り入れることにより, “真”の強さ (λ_{EBI}) は強結合 ($\lambda_{\text{EBI}} \geq 1$) であることが示された。これは, 理論の取扱いも大きく左右する結果と考えられる。今後, 特に銅酸化物高温超伝導体をはじめとした強相関電子系物質において, ARPES を用いた結合定数の評価を見直す必要があると考えられる。

一方で, このように非常に大きな結合定数が妥当かどうか, という問題がある。以前の我々の ARPES 結果に於いて, 電子と複数のボゾンモードとの結合が示唆されている⁷。つまり, 今回, 導出した“真”の電子・ボゾン相互作用の結合定数は, 複数のボゾンモードの結合定数の総和であると考えられる。今後は, これらの複数のボゾンモードの各結合定数を分離して, 定量評価することにより, 超伝導に特に関与するボゾンのモードの特定が可能になるのではないかと期待している。

謝辞

本研究は, 産業技術総合研究所の吉田良行氏, 長谷泉氏, セカンドラボの小池上繁氏, 広島大学放射光科学研究センター (HiSOR) の島田賢也氏, 生天目博文氏, 谷口

雅樹氏との共同研究である。また, 本稿で紹介したデータは, HiSOR の BL-1 の偏光依存 ARPES 装置を用いて測定したものであり, 本装置の建設・高度化に携わった多くの大学院生に心より感謝の意を表したい。

参考文献

- 1) S. Hüfner: Photoelectron Spectroscopy (Springer, Berlin, 2003).
- 2) A. Damascelli, Z. Hussain and Z.-X. Shen: Rev. Mod. Phys. **75**, 473 (2003).
- 3) Very High Resolution Photoelectron Spectroscopy, edited by S. Hüfner (Springer-Verlag, Berlin, 2007).
- 4) A. P. Mackenzie and Y. Maeno: Rev. Mod. Phys. **75**, 657 (2003).
- 5) Y. Maeno, S. Kittaka, T. Nomura, S. Yonezawa and K. Ishida: J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 011009 (2012).
- 6) H. Iwasawa, K. Shimada *et al.*: in preparation.
- 7) H. Iwasawa *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 226406 (2010).
- 8) T. Valla, A. V. Fedorov, P. D. Johnson and S. L. Hulbert: Phys. Rev. Lett. **83**, 2085 (1999); A. Lanzara *et al.*: Nature **412**, 510 (2001); P. D. Johnson *et al.*: Phys. Rev. Lett. **87**, 177007 (2001).
- 9) H. Iwasawa *et al.*: Sci. Rep. **3**, 1930 (2013).
- 10) H. Iwasawa *et al.*: Phys. Rev. Lett. **109**, 066404 (2012).
- 11) 10) 内の引用文献を参照。
- 12) T. Yokoya *et al.*: Phys. Rev. B **53**, 8151 (1996).
- 13) M. W. Haverkort *et al.*: Phys. Rev. Lett. **101**, 026406 (2008); T. Oguchi: J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 044702 (2009).
- 14) Y. Aiura *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 123702 (2010).
- 15) N. J. C. Ingle *et al.*: Phys. Rev. B **72**, 205114 (2005).

著者紹介



岩澤英明

広島大学放射光科学研究センター・助教

E-mail: h-iwasawa@hiroshima-u.ac.jp

専門: 固体物性, 光電子分光, 超伝導

【略歴】

2008年, 東京理科大学理学研究科博士課程修了, 博士 (理学)。2008年-2009年, 広島大学放射光科学研究センター, 日本学術振興会特別研究員。2009年, 広島大学放射光科学研究センター, 研究員。2010年, 同特任助教。2012年より現職。



相浦義弘

(独)産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・酸化物デバイスグループ長

E-mail: y.aiura@aist.go.jp

専門: 固体物理, 光電子分光

【略歴】

1990年筑波大学大学院物理学研究科物理学専攻博士課程博士 (理学)。1990年-2001年電子技術総合研究所主任研究官。2001年-2012年(独)産業技術総合研究所主任研究員。2012年より現職。

Electronic structures of ruthenate superconductor studied by synchrotron radiation photoemission spectroscopy

Hideaki IWASAWA Hiroshima Synchrotron Radiation Center, Hiroshima University
Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-0046, Japan

Yoshihiro AIURA National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan

Abstract By means of angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) utilizing the photon-energy tunability and linear polarization of synchrotron radiation, complex multiband electronic states can be disentangled, allowing us to analyze the electron self-energy quantitatively. In this article, we will review a derivation of ARPES self-energy, and describe the problem and improvement of the conventional method. We will also demonstrate the “true” coupling strength for the electron-boson interaction by properly taking into account the contribution from the electron-electron interaction in ruthenate superconductor (Sr_2RuO_4).