

## 論文内容の要旨

論文題目      **Angle-resolved photoemission study  
of the high- $T_c$  superconductor  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$**

高温超伝導体  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の角度分解光電子分光

氏 名              吉 田 鉄 平

### はじめに

Bednorz と Müller による高温超伝導体の発見以来、高温超伝導発現機構の解明を目指し膨大な数の研究が行われてきた。発見当初から、電子格子相互作用に起因する古典的な超伝導発現機構 (BCS 理論) を超えた新たな枠組みが必要であることが指摘され、とりわけ電子相関に起因する異常な物性が注目されてきた。銅酸化物高温超伝導体は  $\text{CuO}_2$  面にホールをドーピングすることで反強磁性モット絶縁体から超伝導体、そして常伝導金属へと大きく物性が変わる。そのため、その背後にある電子構造がホールドーピングによりどのように変化していくのか理解することが、超伝導発現機構を解明する鍵となる。

これまでの高温超伝導体の研究において、角度分解光電子分光はバンド分散を直接観測できるという強力な利点を生かし、擬ギャップ構造や超伝導ギャップの  $d$  波の異方性などの重要な観測で成功を収めてきた。しかし、ほとんどの研究がホール量の制御が難しい  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  (Bi2212) に集中してきたため、ホール濃度依存性の系統的な研究は成されていない。そして、Bi2212 特有の BiO 面の変調構造や 2 層の  $\text{CuO}_2$  面などの結晶構造の複雑さが光電子スペクトルの構造を複雑にし、解釈を難しくしてきた欠点があった。一方で  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (LSCO) は単純な結晶構造をもち、絶縁体から常伝導金属までホール濃度制御が可能のため、系統的な電子状態の研究に極めて適していると言える。にもかかわらず  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の角度分解光電子分光は、実験的困難から Bi2212 の研究に対して立ち遅れてきた。ヘキ関性などの実験的困難を克服し角度分解光電子分光が可能になったの

は最近の事である。本研究以前に角度分解光電子分光による LSCO の研究からバンド分散とフェルミ面の形状が明らかになっている。LSCO 特有の現象として、ブリルアン域の対角線方向のスペクトル強度が弱く、特に低ドーブ領域で抑制されているという奇妙な振る舞いが指摘されていた。この結果は低ドーブ領域でのストライプ構造と関連している可能性がある点で重要である一方、対角線方向で準粒子が存在することは磁場侵入長の測定などから明らかであり、その実験的観測が望まれていた。

近年、電子エネルギー分析器の技術の進歩によりエネルギー分解能、角度分解能が向上したため、輸送現象に関連したフェルミ準位近傍の微細構造が観測できるようになった。本研究では LSCO の角度分解光電子分光を高エネルギー分解能で行い、更に対角線方向で光電子遷移確率の高い実験条件を見出すことで、以前の観測で得られなかった、対角線方向にピーク構造をもつスペクトルやフェルミ準位付近の微細構造を観測することに成功した。対角線方向のスペクトルは  $\text{CuO}_2$  面内の常伝導輸送現象を反映することから、この観測により LSCO について角度分解光電子分光と輸送現象を結ぶ議論が可能になった。

#### 電子的フェルミ面とフラットバンド構造の名残の観測

フェルミ液体的な振る舞いが期待される過剰ドーブ領域( $x=0.22$ )において、遷移行列要素の効果を利用することにより、第2ブリルアン域の対角線方向において Bi2212 と同様の鋭いピーク状の構造を LSCO で初めて観測した。フェルミ準位から 30meV 以内のスペクトル強度を積分したものを運動量空間にマッピングし図1に示す。得られたパターンはフェルミ面の形状を反映しており、バンド計算と一致する明瞭な電子的フェルミ面を示している。強束縛近似により遷移行列要素の効果を実験的に計算し第2ブリルアン域でのスペクトル強度増大など、スペクトル強度分布の定性的な傾向を説明した。また $(\pi,0)$  付近のスペクトル強度分布はバンド計算からは予想されない構造で、最適ドーブ領域や過小ドーブ領域で観測される「フラットバンド」と同様の分布を持つことから「フラットバンドの名残」の構造と考えられる。ストライプ揺らぎの強い Nd-LSCO でも観測されるこの構造は縦型ストライプの擬一次元的電子構造を反映していると解釈できる。これらの類似性から  $(\pi,0)$  付近の構造とノード付近の構造のストライプ揺らぎの観点からの解釈も試みた。

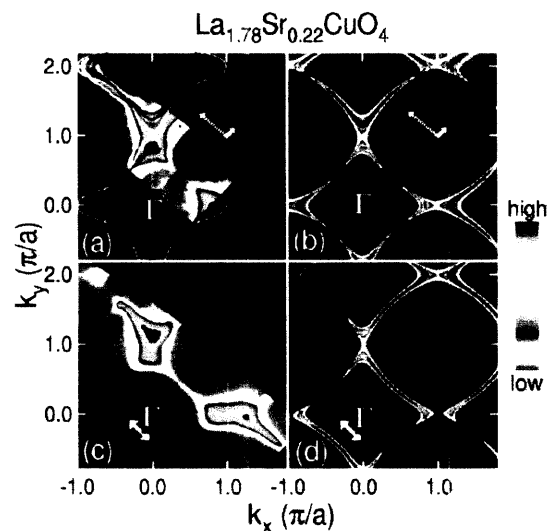


図1: (a)(c) 2種類の測定配置によるフェルミ準位付近のスペクトル密度の運動量空間分布。(b)(d) 強束縛近似に基づいた遷移行列要素を考慮した(a)(c)のシミュレーション結果

### 希薄ドープ領域における金属的な振る舞い

電気抵抗率の温度依存性はホールドープ量の非常に少ない希薄ドープ領域においても、高温で金属的( $dp/dT > 0$ )な振る舞いが観測されており、希薄ドープ領域から過剰ドープ領域まで電子状態が連続的に変化していることが示唆されている。本研究では  $x=0.03$  において、対角線方向で鋭い準粒子ピークがフェルミ準位を横切る様子を観測し、電気抵抗率で観測されている金属的な振る舞いと対応する電子状態を明らかにした。モット絶縁体にドープされたホールは、まず対角線方向でフェルミ準位近傍に電子状態を形成

し、ホールドープに伴ってスペクトル強度を増すとともに、運動量空間で広がり、フェルミ準位上にフェルミ面の一部をアーク状に形成する。このスペクトル強度の増加はキャリア数  $n$  が  $n \sim x$  にしたがって増加するホール係数の結果を説明する。また、希薄ドープ領域の輸送現象に見られる異常な振る舞い  $k_F d \ll 2\pi$  はフェルミ面が擬ギャップによって部分的に消失していることに起因することを見出した。更に、対角線方向スペクトルから得られた平均自由行程の値などを用いて電気抵抗率を見積もり、絶対値や温度変化が抵抗率の実験値の結果と一致することを示した。これらの結果は 2 次元モット絶縁体から超伝導体への連続的な電子状態の変化を説明し、ホール係数に見られた  $n \sim x$  を説明する自然なシナリオをあたえる。

### 希薄ドープ領域における二成分構造の観測

以前の研究で、希薄ドープ領域における  $(\pi, 0)$  付近のスペクトルは、下部ハバードバンドに対応する高エネルギー構造(結合エネルギー  $\sim 0.5$  eV)とフラットバンドを与える低エネルギー構造からなる二成分構造を持つことが分かっていた。本研究では、 $(\pi, 0)$  付近のみではなく対角線方向にも同様に二成分構造が存在することを観測した。更に、高エネルギー構造と低エネルギー構

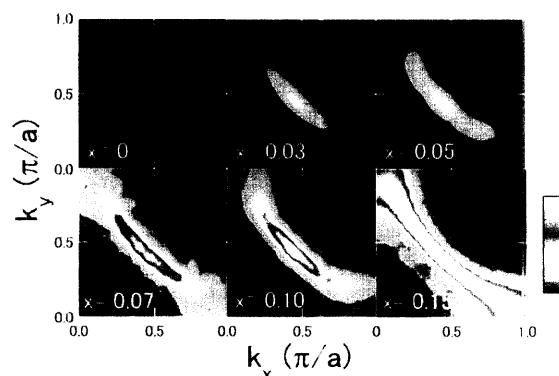


図 2: フェルミ準位上のスペクトル密度の運動量分布。対角線方向に対して対称化してある。

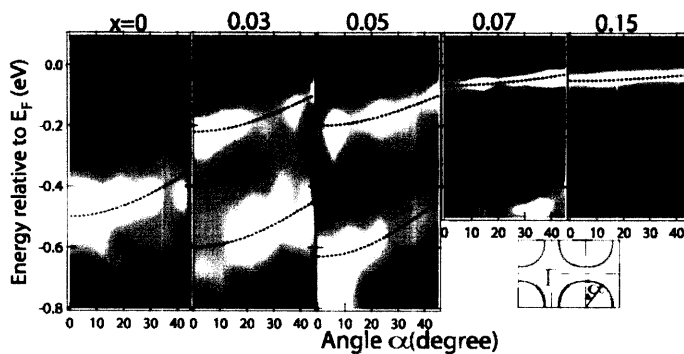


図 3: 「フェルミ面」(ギャップ最小点の軌跡で定義されたもの)に沿ったバンド分散。スペクトルの 2 階微分によって得られた。

造のエネルギー分散はともに  $d_{x^2-y^2}$  波の異方性を持つことを明らかにした (図3)。高エネルギー構造のバンド分散の幅は  $x=0$  で約  $0.1\text{eV}$  で、交換相互作用  $J=120\text{meV}$  に近いが  $\text{Ca}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  の  $300\text{meV}$  に比べて小さい。これらの二成分構造の起源は明らかでないが、一つの可能性として、ストライプ構造などで期待されるような電荷不均一や電荷の揺らぎが金属的な低エネルギー成分と絶縁体的な高エネルギー成分を構成していることが考えられる。他の可能性としては電子相関によるインコヒーレント部分とコヒーレント部分が高エネルギー構造と低エネルギー構造を与えていることが考えられる。

### 擬ギャップと超伝導ギャップの異方性

超伝導のギャップの大きさ及び異方性は、対生成のメカニズムを調べる上で重要な情報を与える。 $(\pi,0)$  付近のギャップ ( $\sim 10\text{meV}$ ) のドーピング依存性を調べ、ギャップの大きさがトンネル分光で観測されているものとほぼ一致していることが分かった。また、フラットバンドの結合エネルギーのドーピング依存性が、帯磁率のピークなどにみられる高エネルギーの擬ギャップ ( $\sim 200\text{meV}$ ) のドーピング依存性に一致することが分かり、フラットバンドによる van Hove 特異点が高エネルギー擬ギャップを与えていることを示した。ギャップの異方性を調べるため、 $x=0.10$  についてフェルミ面上のスペクトルを測定した。その結果、 $(\pi,0)$  付近から対角線方向に向かって系統的にギャップが閉じることがわかり、ほぼ  $d_{x^2-y^2}$  波の異方性を持つことが明らかになった。Bi2212 と大きく異なる点は  $T_c$  より低温であるにもかかわらず  $(\pi,0)$  付近でコヒーレントピークを示さないことである。これは他の単層銅酸化物 Bi2201 と同様であるので、単層の特徴であろう。

### まとめ

対角線方向でフェルミ準位を横切るピークを全ドーピング領域にわたって観測できたことにより、電子構造の変化をモット絶縁体から過剰ドーピング領域まで系統的、連続的に変化していることを明らかにすることができた。図4に、ホールドーピングによる電子状態の模式図を示す。希薄ドーピング領域では二成分構造が観測され、 $(\pi/2, \pi/2)$  付近の状態が金属的伝導を起こす。さらにホールをドーピングすると  $(\pi,0)$  付近のフラットバンドがフェルミ準位に近づき、超伝導に寄与すると推測される。これらの電子状態形成の結果を踏まえて、さらにフェルミ準位付近の微細構造を調べることが、超伝導のメカニズムを明らかにする手がかりとなるであろう。

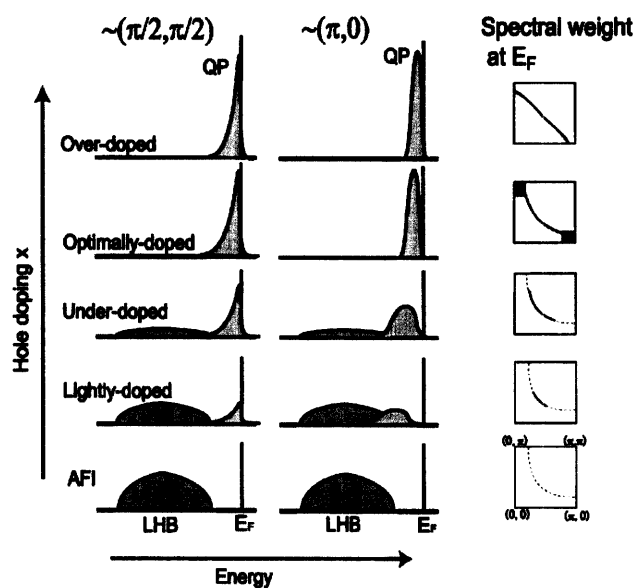


図4: 角度分解光電子分光から得られた電子状態の形成。右側の図はフェルミ面の形成を表す。