

時間分解光電子分光による銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ の研究

キーワード：d 電子系, 銅酸化物, 光電子分光, 超伝導

複雑理工学専攻 学籍番号 47-16611 岡崎研究室 修士課程 2 年

道前翔矢

指導教官 岡崎浩三 特任准教授

2018 年 3 月 2 日

背景

我々の行っている物性物理はマクロな物理現象をミクロな視点で解明を目指す学問である。本研究では、マクロな物理現象の一つとして超伝導現象に注目した。

超伝導とは、ある温度まで物質を冷却すると電気抵抗がゼロになる現象である。近年さまざまな応用が期待される極めて重要な物理現象であるが、物質が超伝導体となる温度（超伝導転移温度）は非常に低く、冷却に高いコストがかかるため実用化や普及を妨げている。銅酸化物高温超伝導体は他の超伝導体に比べ高い温度で超伝導を示す物質で、送電ケーブルや強力な磁場を発生させる電磁石への応用が始まっている。しかし、超伝導が発現するメカニズムは未だ分かっていないことが多く、物性物理学最大の謎とされている。

本研究では、超伝導機構の解明を目的として時間分解光電子分光を用いて銅酸化物高温超伝導体である $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ の準粒子ダイナミクスを測定した。

本発表では、本研究で得られた銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ の結果を中心に述べる。

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ の物性

図 1(1) に $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ のフェルミ面を示す。運動量空間における $(\pi/2, \pi/2)$ 付近で超伝導ギャップがゼロになり、 $(\pi, 0)$ 付近で超伝導ギャップが最大になる。それぞれの運動量方向をノード方向、アンチノード方向と呼ぶ。図 1(2) には銅酸化物高温超伝導体の相図を示す。ドーピング量の少ない領域を中心に擬ギャップ相があり、さらに、近年 銅酸化物高温超伝導体には電荷密度波相があるという報告もある。

実験手法

物質の性質はフェルミ準位 E_F 近傍の電子構造で決まるため、物質中の電子状態を知ることは物性研究において非常に重要である。電子状態は、結合エネルギーや運動量、さらに角運動量といった物理量によって記述されている。光電子分光 (PES) は、物質中の電子の束縛エネルギー及び運動量を直接的に観測できるので、物質の性質を知るための非常に強力な実験手法である。

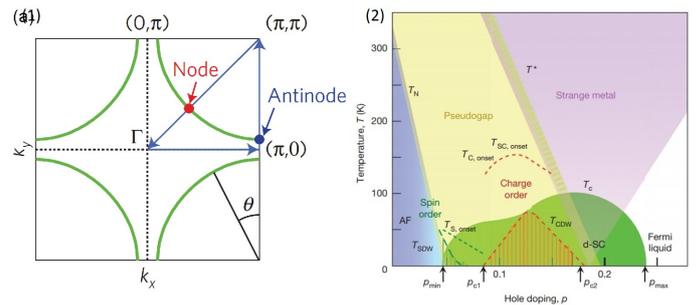


図 1 銅酸化物高温超伝導体の (1) フェルミ面, (2) 相図.

光電子分光は、物質に光を照射したときに電子が物質外へ放出される (外部) 光電効果を基本現象として利用している。光が結晶内に入射すると結晶中の電子を励起するが、その際、エネルギー保存測が成り立つ。ここで、入射光のエネルギー $h\nu$ と飛び出してきた光電子の運動エネルギー E_{kin} を決定することができれば、結晶中での電子の束縛エネルギー $|E_B|$ がわかる。この非常にシンプルな原理によって、物質中での電子のエネルギー分布を得ることができる。それらの関係を次式に示す。

$$E_{kin} = h\nu - |E_B| \quad (1)$$

光電子の放出角度を決めて測定すると、運動量についての情報も得ることができる。これを角度分解光電子分光 (ARPES) という。結晶中で光によって励起された電子は、真空中に飛び出す前に結晶の表面を通過するが、その際「運動量の表面に平行な成分は結晶内外で保存される」という性質がある。この為光電子は、結晶中での運動量についての情報を持ったまま真空中に放出される。表面に平行な運動量成分は、放出角度を測定することで決定できる。よって、電子のエネルギーと運動量 (波数) の関係 (バンド分散) を実験的に決定することができる。

ポンプ-プローブ分光法を用いた時間分解光電子分光 (trPES) では、仕事関数以下の物質を励起するための光 (ポンプ光) を照射し、その後ある時間遅らせて仕事関数以上の光電子を放出するための光 (プローブ光) を照射することで、光励起されてからの非平衡な電子状態を時間依存で観測することができる。図 2(2) に示すように時間分解光電子分光を用いることで、光応答の違い

によりギャップの起源が理解できる。

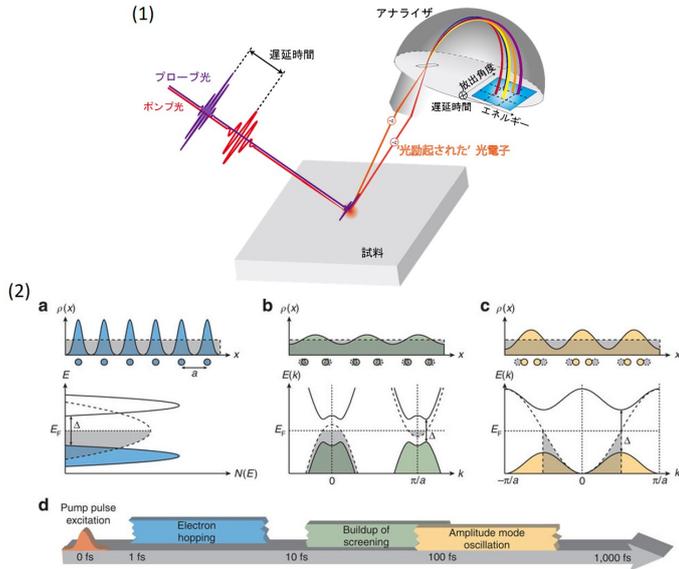


図2 (1) 時間分解光電子分光の概念図, (2) バンドギャップ崩壊時間 [1]

Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ の時間分解光電子分光測定

本研究はノード方向とアンチノード方向において、すべて測定温度 20 K で行った。ポンプ光に Ti:Sapphire Laser(1.5 eV)、プローブ光に極紫外レーザーである高次高調波 (2 倍波 3.1 eV の 9 倍波である 27.9 eV もしくは 7 倍波である 21.7 eV) を用いた。またエネルギー分解能 ~ 250 meV、時間分解能 ~ 84 fs の装置で行った。

ポンプ光の fluence = $550 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ で測定した時間・角度分解光電子分光 (trARPES) の結果を図 3(上) に示す。図 4(下) はポンプ光入射前からの差分である。0.07 ps 以降ではポンプ光によってフェルミ準位よりも励起された電子が緩和していく様子が分かる。励起された瞬間にフェルミ準位以下の占有部分の電子密度が減少していることも確認できる。

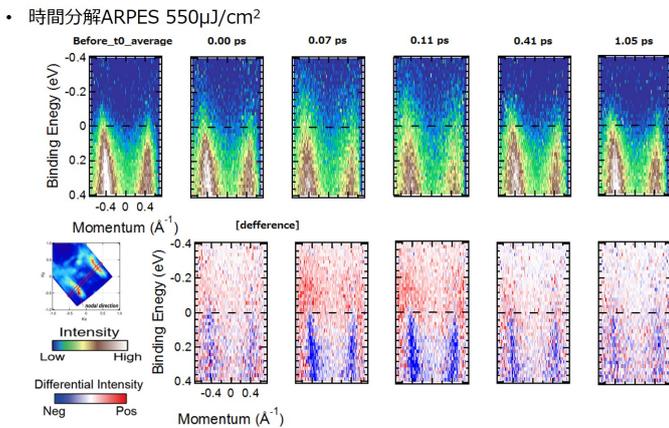


図3 Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ のノード方向での trARPES 測定結果。

続いて、ノード方向での緩和時間の励起密度依存性のグラフを図 4 に示す。このように高励起密度領域では大きな依存性がないことが分かった。先行研究では低励起密度領域での測定が盛んに行われており、励起密度を増加させると緩和時間が長くなる

ことが報告されていた [2]。一方、我々の高励起密度領域で依存性がみられなかったのはギャップが完全に消失してしまったことにより、キャリアダイナミクスの変化がなくなり、緩和時間に依存性が現れなかったと考えた。

次に、アンチノード方向での緩和時間の励起密度依存性のグラフを図 5 に示す。10kHz レーザーを導入したことにより比較的 low 励起密度領域の測定が可能になった。アンチノード方向では、広い励起密度領域において緩和時間が少しずつ長くなっていくというノード方向には見られない変化が確認された。

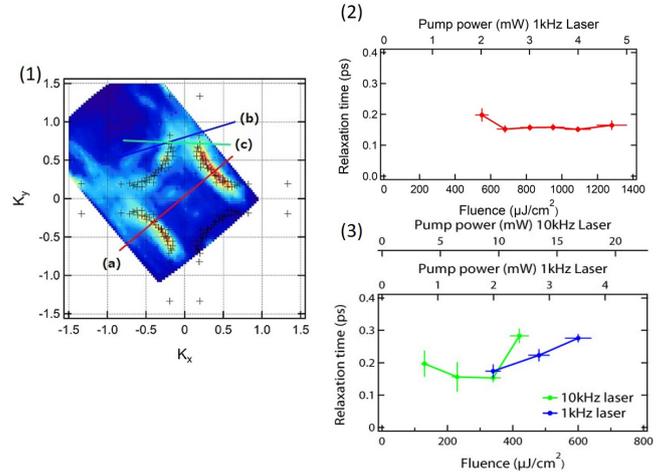


図4 ノード方向での trARPES 解析結果. (1) フェルミ面上の測定カット, (2) 緩和時間のポンプ光強度依存性 (ノード方向), (3) 緩和時間のポンプ光強度依存性 (アンチノード方向) .

最後に、アンチノード方向で非常に高励起密度で測定を行ったキャリアダイナミクスについて報告する (図 5)。1 つ目のピークはノード方向のダイナミクスと立ち上がり時間が一致していることから、超伝導ギャップが閉じたことによる、金属的な超伝導ギャップの示すダイナミクスであると考えられる。2 つ目のピークは立ち上がりが緩やかな成分があり、金属的な応答とは異なる機構の光応答による成分があるのではないかと考えられる。図 2(2) から電荷秩序によるギャップは数百 fs で崩壊することが分かる。この時間スケールは測定結果の 2 ピーク目の応答時間と一致していることから、擬ギャップの起源が電荷秩序によるものの可能性が示唆された。

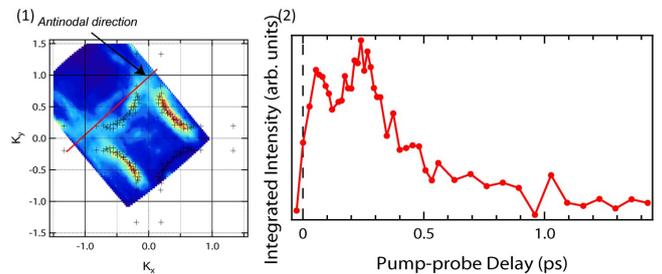


図5 アンチノード方向の高励起密度におけるキャリアダイナミクス. (1) フェルミ面上の測定カット, (2) 緩和曲線

参考文献

[1] S. Hellmann *et al.*, Nat. Comm. **10.1038**, 2078 (2012).
 [2] C. L. Smallwood *et al.*, Science **336**, 10.1126 (2012).