

報告番号	甲 第 11899 号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 **Bi 系銅酸化物高温超伝導体の超伝導ギャップと臨界温度**
(Superconducting gap and critical temperature of Bi-based high temperature superconductor)

氏 名 **坂本 英城**

論 文 内 容 の 要 旨

銅酸化物高温超伝導体は液体窒素温度(77 K)を優に超える超伝導臨界温度 T_c を有しており、1986 年に発見されて以来、基礎・応用の両面で様々な研究がなされている。しかし、発見から四半世紀以上経過したにもかかわらず、77 K 以上の高い T_c が得られる機構は十分に理解されておらず、その解明が強く望まれている。

酸化物高温超伝導体において、液体窒素温度 77 K を超える高い超伝導臨界温度 T_c が得られる理由を考える上で、超伝導臨界温度と直接的な関係がある超伝導ギャップの特徴を明らかにすることが重要である。また、銅酸化物高温超伝導体には、フェルミエネルギー近傍で超伝導ギャップとは異なる擬ギャップと呼ばれる状態密度の異常な落ち込みが存在する。擬ギャップについては T_c や超伝導ギャップとの関係が盛んに議論されているが、その起源や超伝導相への影響については統一的な理解は得られるに至っていない。さらに、超伝導臨界温度には顕著なキャリア濃度依存性が存在することから、このキャリア濃度依存性を生み出す機構を理解することが、高い超伝導臨界温度が得られる理由の理解につながると予想される。

そこで、本研究では、銅酸化物高温超伝導体の超伝導臨界温度 T_c 、超伝導ギャップ、擬ギャップを定量的に解析し、キャリア濃度の関数として整理することで、 T_c が高くなる条件を明らかにすることを目的に、様々なキャリア濃度 p 、臨界温度 T_c を有する $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{RE}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ (RE-Bi2201) および $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2(\text{Ca,Y})\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) に対して、超伝導ギャップと擬ギャップを、角度分解光電子分光測定を駆使して解析した。

第1章「序論」では、本研究の背景、意義、目的、および戦略を簡潔に述べた。

第2章「超伝導」では、超伝導の基礎理論として知られる BCS 理論における超伝導ギャップと臨界温度の関係を述べるとともに、銅酸化物高温超伝導体に対してこれまで行われてきた研究や、本研究に関連する報告についてまとめた。さらに、本研究で研究対象物質とした Bi 系銅酸化物高温超伝導体の特徴について説明した。

第3章「実験方法」では、本研究において最も重要な研究手法である角度分解光電子分光 (ARPES : angle resolved photoemission spectroscopy) の原理を述べた。特に、レーザー・放射光という 2 種の光源のエネルギーの違いによる測定可能な波数領域、およびエネルギー分解能の違いなど各々の利点を述べた。さらに、フェルミ面の形状から試料のホール濃度を見積もる方法や、エネルギーギャップ (擬ギャップおよび超伝導ギャップ) の解析方法について述べた。また、試料作製方法、構造評価方法、物性評価方法について詳しく説明した。

第4章「 $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{RE}_x\text{CuO}_{6+\delta}$, $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2(\text{Ca,Y})\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の構造および物性評価」では、本研究で用いた様々なホール濃度の Bi 系銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{RE}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ (RE-Bi2201) (RE = La, Nd, Sm) および $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2(\text{Ca,Y})\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) の単結晶試料の作製条件、および3章で述べた方法で評価した構造、および物性 (磁化率およびゼーベック係数の温度依存性) について記した。

第5章「 $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{RE}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ の角度分解光電子分光」では、RE-Bi2201 (RE = La, Nd, Sm) 試料に対し、放射光 ARPES 測定およびレーザー-ARPES を実施することで得たホール濃度、擬ギャップ、および、超伝導ギャップについて記した。これらを詳細に解析した結果、超伝導ギャップが置換元素 RE (= La, Nd, Sm) に依存しないこと、および、擬ギャップは RE がイオン半径の小さいものであるほど増大することも明らかにした。また、超伝導臨界温度には強い RE 依存性が存在することも明らかにした。この結果から、擬ギャップの存在によりクーパー対を形成し得る電子数が減少し、超伝導臨界温度が低下することが解明された。言い換えれば、「擬ギャップに阻害されない領域のフェルミ面 (フェルミアーク)」が超伝導を担っていると考えられる。クーパー対の密度 (超流動密度) は超伝導臨界温度と密接に関連していることが報告されていることを考慮すると、超流動密度を評価することで、 T_c の増大条件が理解できると判断した。また、本研究で実施した角度分解光電子分光により、超流動密度を反映した量をだまかに見積もることが可能であることを示すとともに、そこで評価した量を用いて、定性的ではあるものの、RE-Bi2201 における T_c のキャリア濃度依存性をよく説明できることを示した。

第6章「 $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2(\text{Ca,Y})\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の角度分解光電子分光」では高い超伝導臨界温度を示す Bi2212 に対し、レーザー励起 ARPES 測定を実施し、超伝導ギャップおよび擬ギャップのキャリア濃度依存性を議論した。特に、擬ギャップについては、レーザー-ARPES 測定で得られるスペクトルのうち、ノードから離れたフェルミ波数でのスペクトルにその影響が現れることを発見し、それを定量的に評価することに成功した。その結果、Bi2212 における超

伝導ギャップは不足ドーピングから最適ドーピングにかけて約 40 meV の最大値をとることが明らかになった。この値は Bi2201 の超伝導ギャップの最大値の約 2 倍であった。また、フェルミ面を、(1)超伝導のみが存在する領域、(2)超伝導と擬ギャップ共存する領域、(3)擬ギャップのみが存在する領域の 3 つに分類できることを見出した。さらに、(1)の波数領域において超伝導ギャップ内に存在する量子状態の数が、超流動密度を反映し、臨界温度 T_c と直線的な相関を有することを示した。

以上の研究結果から、銅酸化物高温超伝導体では、「擬ギャップに阻害されないノード近傍の超伝導ギャップに囲まれる領域がクーパ対の密度（超流動密度）を反映しており、この超流動密度が T_c を決定づけている」ということを明らかにした。

本研究は、角度分解光電子分光を用いることで、超流動密度を評価できることを示したことに意義を有している。この手法を用いて、高い T_c が得られるキャリア濃度の条件や結晶構造の特徴を整理すれば、高い T_c が得られる理由の理解につながると期待される。