

## 4. Bi-Sr-Ca-Cu-O 系超伝導体単結晶のラマン散乱

木村俊則

### 1. 序論

La-Ba-Cu-O 系において高温超伝導が発見されて以来、これまでに多くの酸化物高温超伝導体が発見された。これらの超伝導機構として、BCS 理論を考えることができる。しかし、今までの研究結果には、これを支持するものと、否定的なものがあり、結論に至っていない。超伝導ギャップの大きさや性質は、超伝導機構を考える上で重要な情報となるため、トンネル分光や赤外分光によって研究されている。しかし、得られた結果には、ばらつきがあるため、さらに研究を続ける必要があると考えられている。

本研究では、試料として  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  単結晶を用い、偏光ラマン散乱の測定を行った。まず、この超伝導体は  $b$  軸方向に不整合構造を持つという特徴があるので、フォノンラマン散乱にこの結晶構造が及ぼす影響を調べることを、第1の目的とする。次に、フェルミ面上の電子（ホール）による電子ラマン散乱を調べ、超伝導ギャップに関する情報を得ることを第2の目的とする。

### 2. 実験

試料は無機材研、竹川博士作成の  $\text{Bi}_{2.2}\text{Sr}_{1.8}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  を用いた。実験では  $ab$  面でへき開した複数の試料を使用し、準後方散乱配置で、ラマン散乱の偏光依存性を調べた。測定温度は  $300\sim 15\text{K}$  である。電気抵抗は、いずれの試料も  $85\sim 86\text{K}$  で  $0$  抵抗を示した。散乱光強度が極めて弱いので、ゼロ分散型ダブルグレーティング分光器をプレモノクロメーターとして用い、明るいシングルグレーティング分光器と組み合わせて分光した。検出は、光マルチチャンネル検出器で行なった。

### 3. 結果・考察

$ab$  面に対する、すべての偏光においてスペクトルは、連続的なスペクトルの上に、フォノンラマン散乱による鋭いスペクトルが乗るとい形をしていることが見いだされた。

まず、フォノンモードに注目する。 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  は  $b$  軸方向に不整合構造を持つ斜方晶であるが、結晶構造を体心の正方晶、空間群  $D_{4h}^{17}$  であると仮定して因子群解析を行なうと、ラマン散乱活性なモードは  $6A_{1g} + B_{1g} + 7E_g$  となる。この仮定の下では、 $(aa)(bb)$  偏光で、同数のフォノンモードが等しい強度で観測されると予想される。しかし、測定結果を見ると(図1,2)、 $470\text{cm}^{-1}$  以外のモードは両偏光において強度に著しい差がある。これは、試料の

結晶構造に仮定した正方晶からのずれがあることによると考えられる。Yamamoto らの中性子回折の結果<sup>1)</sup>によると、不整合構造による原子位置の正方晶からのずれは、Bi-O 層で最大で Sr-O 層、Cu-O 層の順に小さくなることが明らかにされている。これと、ラマン散乱の結果とを比較すると、 $470\text{cm}^{-1}$  以外のモードは Bi-O 層や Sr-O 層内の原子の振動に関係していると考えられる。

次に連続的なスペクトルに注目する。これは  $3000\text{cm}^{-1}$  以上の高エネルギー領域でも観測されるが、顕著な温度変化を示すのは、 $1000\text{cm}^{-1}$  以下の領域である (図 3)。この領域で観測される連続的なスペクトルは、 $T_c$  より高温では変化がない。しかし、 $T_c$  以下の温度では、 $250\text{cm}^{-1}$  以下の低エネルギー領域で強度が減少し、 $300\sim 400\text{cm}^{-1}$  付近では逆に増加し、その結果幅の広いピークが形成される。この変化は  $T_c$  以下で超伝導ギャップが形成されたことによると考えられる。従って連続的なスペクトルは、フェルミ面上のホールによる電子ラマン散乱であると考えられる。このピークのエネルギーの偏光依存性を、複数の試料に対して調べた結果 (図 1, 2, 4)、1)  $(aa)(bb)$  偏光ではピークのエネルギーも強度も試料によらずほぼ一定である、2)  $(aa)(bb)$  偏光でのピークのエネルギーよりも  $(ba)$  偏光でのピークのエネルギーの方が大きい、3)  $(ba)$  偏光でのピークのエネルギーは試料依存性を持つ、などの性質を見出した。1) は  $a$  軸と  $b$  軸で異方性が小さいことを示し、従って上のフォノンラマン散乱に関する議論より、この連続的なスペクトルは Cu-O 層に関係した電子 (ホール) による散乱であると考えられる。また 2) は  $(aa)(bb)$  偏光での  $A_{1g}$  対称性の励起によるピークのエネルギーよりも、 $(ba)$  偏光での  $B_{1g}$  対称性の励起によるピークのエネルギーの方が大きいことを示している。3) は  $B_{1g}$  対称性の励起がフェルミ面上のある特定の電子を励起する散乱過程によるものと考えられるから、電子状態の試料による微妙な違いを反映して、ピークのエネルギーに試料依存性が現れると考えられる。

以上のことから、電子ラマン散乱は、酸化物超伝導体の超伝導ギャップに関する知見を得るための有力な手段であると考えられる。

## Reference

- 1) A. Yamamoto (private communication)

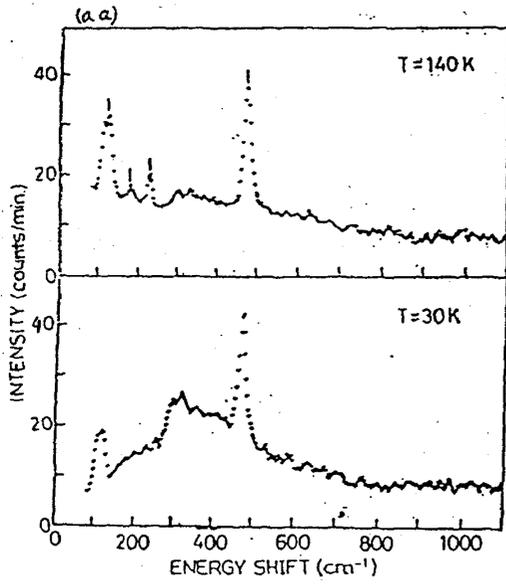


図1

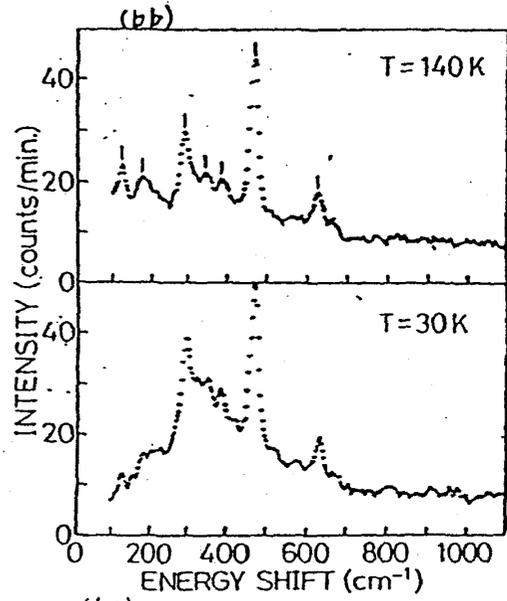


図2

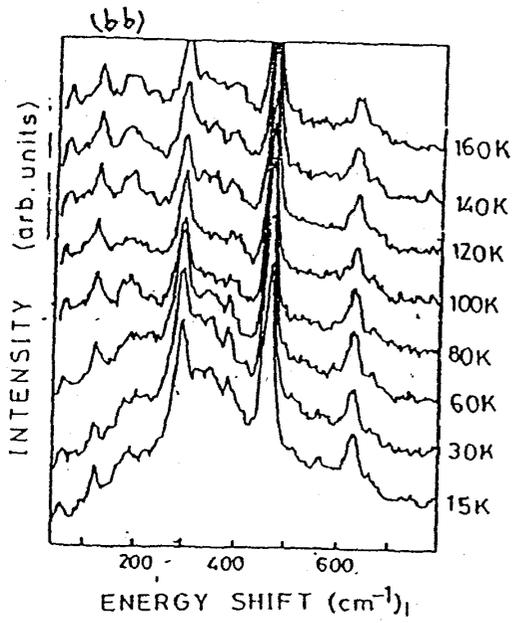


図3

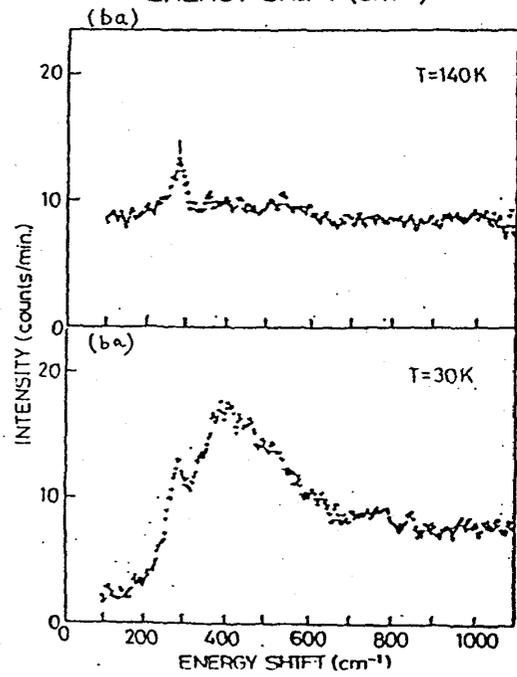


図4