

Photoemission Studies on Chain Electronic Structures of $Y(\text{Pr})\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$

Y. G. Boo, W. S. Jung, Garam Han and C. Kim*

Institute of Physics and Applied Physics, Yonsei University, Seoul, Korea

(Received 2 April 2012; revised 18 April 2012; accepted 18 April 2012)

광전자실험을 이용한 $Y(\text{Pr})\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 물질의 체인 전자 구조분석

부영건, 정원식, 한가람, 김창영*

Abstract

$Y(\text{Pr})\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ system is one of the most studied high temperature superconductors. Substitution of Pr for Y in this system suppresses T_c and superconductivity finally disappears at a high Pr doping. There are competing theories for the suppression of T_c but systematic experimental results are very rare. In order to find the change in Fermi surface topology which can affect the superconductivity, we have performed angle-resolved photoemission studies on single crystal samples of $Y\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ and $\text{PrBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$. While the Fermi surface of $Y\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ shows a similar topology to those of other cuprates, we observe only 1D like band structures in $\text{PrBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$. We find no significant differences in the chain band for both samples.

Keywords : Superconductor, Cuprate, ARPES

I. Introduction

1986년 Bedmorz와 Muller에 의하여 BCS이론이 예측한 임계온도 한계를 넘는 산화구리기반 초전도 물질이 발견된 이래로, 고온초전도체의 미시원리를 찾는 문제는 26년간이나 고체물리학계의 풀리지 않는 과제로 남아있다 [1, 2]. 그 중

에서도 R-BCO 123물질($\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, Re = Y, Gd, Ho, La)은 합성하기가 복잡하지 않으면서도 상대적으로 높은 임계온도(90 K이상)를 가지고 있어 연구대상으로 가장 선호되어온 물질이다 [3, 4]. R-BCO 123물질은 페로브스카이트 구조를 가지고 있으며, 단위 격자 내부에 CuO_2 평면과 CuO 체인구조가 있다. 특히 CuO_2 평면은 산화구리기반 초전도체에 공통적으로 나타나는 부분으로 초전도성을 나타내는 구조로 믿어지고 있다 [5].

*Corresponding author. Fax : +82 2 392 1592

e-mail : changyoung@yonsei.ac.kr

R-BCO 123물질은 희토류원소의 종류에 상관 없이 90 K 안팎의 임계온도를 갖는 것이 알려져 있는데, Pr을 희토류원소부분에 치환하였을 때만 초전도성을 갖지 않는다 [6]. PrBCO에서 초전도성이 없어지는 현상은 R-BCO물질에서 중요한 이슈로, 이를 설명하는 다양한 이론이 제시되었다. 그 중 hole filling과 Pr 4f hybridization의 두 가지가 유력한 후보로 지목되고 있다 [7, 8]. Hole filling이란, 기본적으로 3개의 원자가전자를 가지는 다른 희토류원소와 다르게 Pr은 PrBCO에서 3가와 4가의 중간쯤의 원자가전자를 가져서 Pr에서 나온 여분의 전자가 CuO_2 평면에 있는 홀을 채우고, 그에 따른 홀의 감소가 초전도성의 억제로 나타난다는 이론이다. Pr 4f hybridization 이론은 Pr의 4f 모멘트와 CuO_2 평면상의 hole의 spin간에 강한 exchange coupling이 CuO_2 평면상의 hole의 움직임을 고정시키게 되어 초전도성이 감소하게 된다는 이론이다. 하지만 이런 오랜 노력에도 불구하고 아직 그 원인은 명확하게 밝혀지지 않았다.

지금까지의 이론 및 실험은 CuO_2 평면의 변화에 집중해 왔지만, R-BCO 물질의 페르미 준위 근처에는 CuO_2 평면 홀 밴드 외에도 CuO 체인 전자 밴드가 존재한다. YBCO 물질에 존재하는 CuO 체인 또한 CuO_2 평면의 임계온도보다 조금 낮은 지점에서 초전도 현상을 보이는 것이 보고되었다 [9]. 이 현상의 설명을 위해 YBCO와 CuO 체인의 구조가 똑같은 PBCO 물질에서 T_c 를 측정하였지만 0.5 K까지 초전도성이 보이지 않는 결과를 보였고, 체인자체가 초전도성을 갖는 것은 아니고 CuO_2 평면에 있는 쿠퍼전자쌍이 체인으로 조셉선접합을 통해 전달 된다는 이론이 제기됐다 [10]. 하지만 Pr이 CuO_2 평면의 초전도 성을 없었던 것과 같은 효과를 CuO 체인의 밴드에 주었을 가능성이 여전히 남아있다. 따라서 Pr이 체인의 전자 구조에 미치는 영향에 관해 연구하는 것은 그에 대한 정확한 단서를 줄 수 있지만 이와 관련된 실험이 아직 수행되지 않아왔다.

체인밴드의 전자구조를 밝히기 위해서 ARPES실험을 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 물질과 $\text{PrBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 물질에 대해 수행하였다. 위 물질들은 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 물질과 구조는 비슷하나 단위 날칸안에 체인구조가 두 개여서 체인의 신호를 보기에 더 적합

하다. CuO 체인밴드는 1D 밴드 구조를 가지고 있는데, ARPES는 이미 1D 물질의 연구를 하는데에 적합한 실험기법임이 알려져 있으므로 이번 실험에 가장 적합한 실험기법이다 [11]. 위 실험에서 얻은 데이터를 분석하여 R-BCO물질에 존재하는 CuO 체인의 전자구조에 미치는 Pr의 영향에 대한 직접적인 검증을 시도하였다.

II. Experimental

$\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ (Y124)와 $\text{PrBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ (Pr124)의 단결정은 높은 압력을 가한 상태에서 self-flux 방법을 이용하여 성장시켰다. 각분해 광전자분석 실험은 Advanced Light Source의 빔라인 7과 10에서 수행하였으며 빛에너지는 각각 85와 55 eV에서 수행하였다. 온도는 15 K에서 측정하였고 에너지 분해능은 40 meV 안팎이다.

III. Result and discussion

Fig. 1은 각 샘플의 페르미 면을 나타내고 있다. 각각 55와 85 eV의 빛을 이용하여 측정하였다. (a)는 Y124의 페르미 면, (b)는 Pr124의 페르미 면을 보여주고 있다. (a)의 페르미 면의 모양을 보면 이전의 ARPES실험 결과와 잘 일치하는 형태의 모양이 나왔음을 확인 할 수가 있다 [13]. M 지점을 중심으로 전형적인 산화구리기반 초전도체에서의 원형 홀 밴드가 있고 Γ - Γ 방향으로 직선의 체인밴드가 나타나 있는 것을 확인 할 수가 있다. (b)의 Pr124 샘플의 경우는 Y124샘플과는 확연히 다른 페르미 면을 갖는

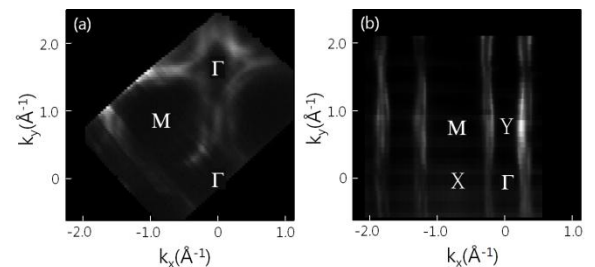


Fig. 1. Y124샘플과 Pr124샘플의 페르미 면. (a)는 Y124 샘플의 페르미 면. (b)는 Pr124 샘플의 페르미 면.

다. M지점을 중심으로 한 원형 홀 밴드가 많이 짜그러지고 Γ - Γ 방향으로 체인 밴드가 길게 보인다. 이러한 체인밴드만 강하게 나타나는 효과가 서로 다른 빛 에너지를 사용한 것에 의한 효과인지에 대한 검증이 더 필요하지만, Pr이 들어감에 따라서 전체적인 전자구조에 영향을 주는 것을 알 수 있다.

Fig. 2는 체인밴드가 어느 것인지 명확하게 하기 위하여, 체인밴드가 지나가는 Y124 샘플의 Y지점과 체인밴드가 지나가지 않는 Y124 샘플의 X 지점의 차이를 비교한 그림이다. a)는 체인이 지나가는 Y 지점부근의 데이터를 보여주고 있고 (b)는 체인이 지나가지 않는 X지점 부근의 데이터를 보여주고 있다. 이전에 발표된 논문에서 따르면 (a)에 보이는 4개의 밴드중 비교적 큰 에너지 분포를 가지는 α 와 β , 상대적으로 작은 에너지 분포를 가지는 γ 와 δ 밴드를 확인 할 수 있다. 체인이 없는 X지점의 데이터인 (b)를 보면 M-X 컷에 큰 에너지 분포를 가지는 α 와 β 밴드는 보이지 않고 γ 와 δ 밴드 두 개만 존재하는 것을 확인 할 수가 있다. 이로써 체인에서부터 비롯된 밴드는 α 와 β 밴드라는 것을 유추할 수 있다. 이런 밴드의 분포는 보고된 실험 결과와 일치한다 [12].

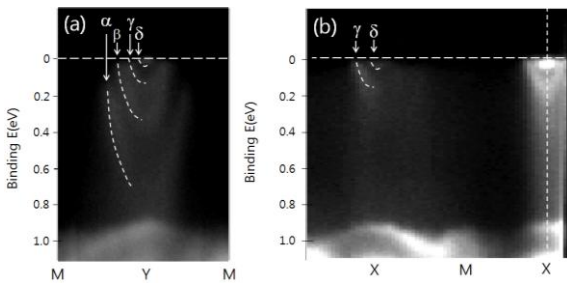


Fig. 2. Y124 샘플의 Y와 X 근처의 홀 밴드를 각기 M-Y-M, M-X-M 방향으로 자른 에너지 vs 운동량 그래프. (a)는 Y 근처의 홀 밴드를 M-Y-M 방향으로 자른 데이터 (b)는 X 근처의 홀 밴드를 M-X-M 방향으로 자른 데이터.

Fig. 3은 각기 Y124의 데이터와 Pr124의 데이터를 k_y 값이 $\pi, 3\pi/2, 2\pi$ 인 지점에서 M-Y 방향과 평행한 방향으로 컷을 잘라 에너지-운동량에 관한 그림으로 나타낸 것이다. (a), (b), (c)는 Y124의 k_y 값이 $\pi, 3\pi/2, 2\pi$ 인 지점에서의 데이터

이고 (d), (e), (f)는 k_y 값이 $\pi, 3\pi/2, 2\pi$ 인 지점에서의 Pr124 데이터이다. 먼저 k_y 의 변화에 따른 Y124샘플의 체인밴드의 변화를 보기 위해서 (a)와 (b)와 (c)를 비교해 보면 CuO_2 평면 밴드의 모양 변화는 보이지만, 체인밴드인 α, β 밴드 모두 에너지의 분포의 정도나 기울기 폭과 같은 모든 부분이 거의 변화를 보이지 않는다. (c)에 보이는 기울기가 완만한 밴드는 k_y 가 2π 인 지점에서의 γ 밴드이다.

반면(d), (e)와 (f)를 비교해보면 보이는 3개의 밴드 중 페르미 준위 근처에 존재하는 두 개의 밴드 중 안쪽 γ 밴드는 k_y 의 값이 점점 Γ 값에 가까워 짐에 따라 폭이 넓어지는 것을 확인 할 수 있다. 하지만 Y124의 데이터와 비교했을 때 Pr124 체인밴드라 생각되는 α 와 β 밴드는 k_y 의 값의 변화에 따른 변화가 거의 보이지 않는 것을 확인 할 수 있다.

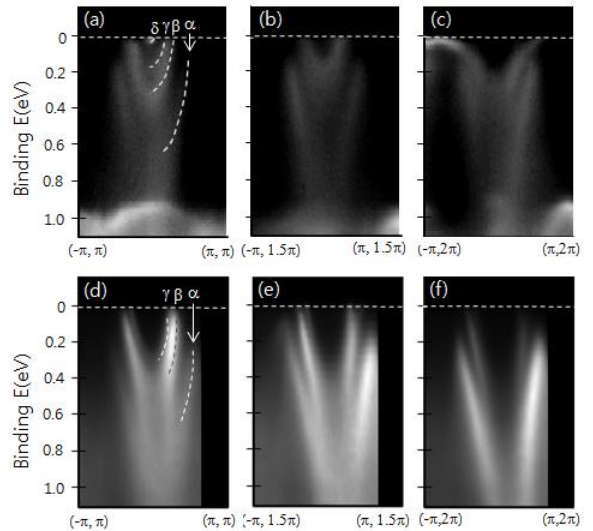


Fig. 3. Y124의 데이터와 Pr124의 데이터를 k_y 값이 $\pi, 3\pi/2, 2\pi$ 인 지점에서 M-Y 방향과 평행한 방향으로 자른 에너지-운동량 그래프. (a), (b), (c)는 Y124를 (d), (e), (f)는 Pr124의 데이터.

Y124와 Pr124의 전자구조를 비교해 보기 위해 Fig. 3의 (a)와 (d)를 살펴보면 안쪽 체인밴드인 β 밴드는 체인 밴드가 시작되는 지점 (Binding Energy = 0.34 eV 부근)에서 체인밴드와 체인밴드 사이의 거리를 비교 하였을 때 Y124와 Pr124간에 거리의 차이는 존재 하지 않았고,

Y124의 밴드보다 Pr 124의 밴드의 에너지에 따른 분포가 조금 더 깊은 것을 알 수 있다. 데이터로부터 측정된 기울기를 비교해 본 결과는 Y124의 체인밴드와 Pr124의 체인밴드의 기울기가 서로 다르기 때문으로 생각된다. Pr124의 경우가 더욱 가파른 기울기를 가지고 있고, 이는 Pr124의 경우 상대적으로 약한 상관관계를 가지고 있음을 이야기한다. 하지만 Pr124에서 완전히 형태와 기울기가 달라진 CuO_2 평면 밴드(γ 밴드)가 변화한 것과 비교했을 경우 상대적으로 작은 변화가 있었다.

IV. Conclusion

지금까지 우리는 Y124 샘플과 Pr124 샘플의 ARPES 데이터를 비교 분석 하였다. 그 분석 결과는 크게 두 가지이다.

첫째, Y124와 Pr124의 데이터를 비교하여 체인밴드는 Pr로 치환하는 것에 따른 영향을 CuO_2 평면밴드에 비해서 크게 받지 않았음을 알 수 있었다. 체인에 관한 전자구조 비교실험은 처음으로 이루어진 것으로, CuO 체인구조와 초전도 현상은 연관성이 적은 것으로 생각된다. 또한 이 결과는 CuO 체인에는 자체적인 pairing mechanism이 없고 초전도성이 있는 것으로 알려진 CuO_2 평면과 CuO 체인간에 조셉슨 터널링접합을 통한 쿠퍼페어의 전달이 CuO 체인이 초전도성을 갖는 이유일 것이라는 예측을 뒷받침 하는 결과이다 [13].

둘째, Pr124 샘플의 페르미 면은 Y124 샘플의 페르미 면과 다르게 전형적인 CuO_2 평면의 형태가 아닌 선형 요철이 있는 형태의 페르미 면을 보인다. 이러한 변화가 Pr의 첨가에 따른 전자구조의 변화임을 이야기 하기 위해서는 같은 에너지의 빛을 이용해 데이터를 받는 실험과, Pr의 도핑비율을 바꾸어 가며 체계적으로 변화의 양상을 살펴보는 실험이 필요하다.

Acknowledgments

This work is supported by the KICOS under Grant No. K20602000008.

References

- [1] J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, "Theory of superconductivity", *Phys. Rev.* 108, 1175 (1957).
- [2] Bednorz, J. G, and K. A. Muller, "Possible high Tc superconductivity in the Ba-La-Cu-O system", *Z. phys. B : Condens. Matter* 64, 189 (1986).
- [3] M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, and C. W. Chu, "Superconductivity at 93 K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure", *Phys. Rev. Lett.* 58, 908-910 (1987).
- [4] Ruixing Liang, P. Dosanjh, D. A. Bonn, D. J. Baar, J. F. carolan, W. N. Hardy, "Growth and properties of superconducting YBCO single crystals", *Physica C : Superconductivity*, 195, 51-58 (1992).
- [5] D. N. Basov, T. Timusk, "Electrodynamics of high-Tc superconductors", *Rev. Mod. Phys.*, 77, 721-779 (2005).
- [6] M. B. Maple, Y. Dalichaouch, J. M. Ferreira, R. R. Hake, B. W. Lee, J. J. Neumeier, M. S. Torikachvili, K. N. Yang and H. Zhou, "RBaCuO(R=rare earth) high Tc magnetic supercoductors", *Physica*, 148B, 155-162 (1987).
- [7] J. Fink, N. Nucker, H. Romberg, M. Alexander, M. B. maple, J. J. Neumeier, J. W. Allen, "Evidence against hole filling by Pr in YBaCuO", *Phys. Rev. B* 42, 4823-4826 (1990).
- [8] R. Fehrenbacher, T. M. Rice, "Unusual electronic structure of PBCO", *Phys. Rev. Lett.*, 70, 3471-3474 (1993).
- [9] A. Serafin, J. D. Fletcher, S. Adachi, N. E. Hussey, A. Carrington, "Destruction of chain superconductivity in YBCO1248 in a weak magnetic field", *Phys. Rev. B* 82, 140506 (2010).
- [10] N. E. Hussey, M. N. McBrien, L. Balicas, J. S. Brooks, S. Horii, H. Ikuta, "Three-dimensional Fermi-liquid ground state in the quasi one dimensional cuprate PrBCO", *Phys. Rev. Lett.* 89, 086602 (2002).
- [11] B. J. Kim, H. Koh, E. Rotenberg, S. J. Oh, H. eisaki, N. Motoyama, S. Uchida, T. Tohyama, S. Maekawa, Z. X. shen, C. Kim, "Distinct spinon and holon dispersions in photoemission spectral functions from

- one-dimensional SrCuO”, *Nature physics* 2, 397-401 (2006).
- [12] T. Kondo, R. Khasanov, J. Karpinski, S. M. Kazakov, N. D. Zhigadlo, T. ohta, H. M. Fretwell, A. D. Palczewski, J. D. Koll, J. Mesot, E. Rotenberg, H. Keller, A. Kaminski, “Dual character of the electronic structure of YBCO: The conduction bands of CuO planes and CuO chains”, *Phys. Rev. Lett.* 98, 157002 (2007).
- [13] T. Xiang, J. M. Wheatley, “Superfluid anisotropy in YBCO : Evidence for pair tunneling superconductivity”, *Phys. Rev. Lett.* 76, 134-137 (1996).