

論文内容の要旨

論文題目：高分解能光電子分光による MgB_2 と関連物質の超伝導ギャップの研究

氏名：津田俊輔

1. はじめに

2001年に発見された MgB_2 は[1]その転移温度が酸化物高温超伝導体以外では最も高く(約 40K)、この温度はフォノンを媒介とした従来の BCS 理論から期待される上限付近である。いくつもある MgB_2 の特異性の内、マルチギャップは最も特異な性質の 1 つである[2]。ここでマルチギャップとは複数の大きさの超伝導ギャップが共存している状態を指す。マルチギャップの起源はフェルミ面を構成している電子状態の対称性との関係が指摘されており[3][4]、高い転移温度も説明されている。しかし実験的には確認されておらず、それぞれのフェルミ面における超伝導ギャップの大きさを明らかにする必要がある。そこで本研究では角度分解光電子分光を用いてフェルミ面ごとに超伝導ギャップの大きさを調べた。また同じ結晶構造を持つ $\text{Ca}(\text{Al}_{0.5}\text{Si}_{0.5})_2$ (以後 CaAlSi)の角度分解光電子分光研究も行った。 MgB_2 の結果と比較し、フェルミ面の対称性とマルチギャップの関係を明らかにすることを目的とした。

2. MgB_2 の基本的な性質

MgB_2 は約 40K で超伝導転移を示す[1]。結晶構造は Mg の三角格子からなる層と B の六角格子からなる層が交互に積み重なって出来ている。転移温度の同位体効果は B に強くあらわれた[5]。この結果は MgB_2 の超伝導がフォノンによって引き起こされていることを強く示唆する。しかし従来の BCS 理論とその拡張した理論の枠内で T_c を説明する試みは失敗した[6]。この原因の 1 つに MgB_2 がマルチギャップ超伝導体であることが挙げられる。

電子状態に関しては第一原理計算から[6] MgB_2 の価電子帯は B の面内に 2 次元的な電荷密度分布を持つ σ バンドと B 面に垂直で 3 次元的な電化密度分布をもつ π バンドからなると考えられている。軟 X 線吸収・発光分光[7]、光電子分光測定[8]等から実験的に得られた電子状態は第一原理計算の結果とよく一致することが報告されている。

3. MgB₂の角度分解光電子分光研究

高温高压合成により得られた MgB₂ 単結晶[9]($T_c \sim 36\text{K}$)を用いて角度分解分光測定を行った。光源には HeII α (40.814eV)を用いた。

図 1 にフェルミ準位近傍の光電子強度分布を示す。下側が第 1、上側が第 2 ブリルアンゾーンである。わかりやすくするために、第 2 ブリルアンゾーンの $\Gamma(\text{A})$ 点近傍の強度を 3 倍にした。第 1 ブリルアンゾーンの $\Gamma(\text{A})$ 点近傍にはほとんど強度が観測されていない。M(L)点近傍に弧状の強度が観測された。また第 2 ブリルアンゾーンの $\Gamma(\text{A})$ 点近傍で円状に強度が観測された。図 1 中に第一原理計算[10]から得た $k_z = 0$ におけるフェルミ面を細い実線(σ バンド)と破線(π バンド)で示した。実験結果と比較すると、M(L)点近傍は π バンドからなるフェルミ面、 $\Gamma(\text{A})$ 近傍は σ バンドからなるフェルミ面であると考えられる。

図 2 中太い破線 1 に沿って測定して得られた光電子スペクトルの強度分布は図 1(b)のようになった。左側が第 1 ブリルアンゾーンである。図 2 中に第一原理計算[10]から得た $k_z=0$ におけるバンド分散を細い実線(σ バンド)と破線(π バンド)で示した。実験結果と比較すると、第 1 ブリルアンゾーンで M 点に向かって分散しているバンドは π バンド、第 2 ブリルアンゾーンで Γ 点に向かって分散しているバンドは内側の σ バンドであると考えられる。

図3(a)、(b)中にそれぞれ図 1 中破線 2、3 にそって測定した高分解能スペクトルを示す。黒丸が超伝導状態、灰色の四角が常伝導状態でのスペクトルである。本研究で用いた試料は小さい($300 \times 300 \times 50 \mu\text{m}^3$)ため、得られる信号は弱い。これを補うために運動量空間内で部分的に積分したスペクトルを用いて議論した。ともに超伝導状態ではスペクトル端のシフト(σ バンドでは 3.6 meV、 π バンドでは 0.9 meV)とピーク構造(σ バンドでは 8 meV 付近、 π バンドでは 4 meV 付近)が観測された。これらは σ バンドで大きなギャップが、 π バンドでは小さなギャップが開いている直接的な証拠である。白丸で示した 30 K においても 40 K のスペクトルに比べてフェルミ準位上での光電子強度が減少しており、バルクの T_c 近傍までギャップが開いていることがわかる。

得られたスペクトルは運動量空間でフェルミ面ごとに積分したスペクトルであるため、ギャップの大きさを定量的に見積もる際には、状態密度に対応した Dynes 関数[11]を用いて解析することが出来る。解析結果を図 3(a)、(b)中に実線で示した。Dynes 関数を用いて実験結果をよく再現することができた。測定した各温度のスペクトルを解析した結果得られたギャップの大きさを温度の関数としてプロットした(図 4)。小さいギャップは BCS 理論[12]と同様の温度変化を示すのに対し、大きいギャップは BCS 理論で予想されるより小さい値をとった。また、測定最低温でのギャップの大きさは $\Delta_\sigma = 5.5 \text{ meV}$ 、 $\Delta_\pi = 2.2 \text{ meV}$ となり、大きいギャップの値は角度積分光電子分光測定の結果(5.6 meV)と一致した[13]。小さいギャップは角度積分光電子分光測定の結果(1.7 meV)よりやや大きい。これは解析精度、エネルギー分解能等実験誤差で説明できる一方で k_z 方向にギャップの異方性が存在する可能性もある。また 2 つのギャップがバルクの T_c で閉じていることがわかった。これらの結果は電子格子相互作用の運動量依存性がマルチギャップひいては高 T_c の起源であるというモデル[3][4]を裏付けるものである。

4. CaAlSi の角度分解光電子分光研究

AlB₂構造を持つ系でフェルミ面の対称性とマルチギャップの関係を調べる目的でCaAlSi単結晶($T_c = 7.7$ K)[14]を用いて角度分解光電子分光研究を行った。HeI α を用いて得られたフェルミ準位近傍の強度分布を図5に示す。 Γ (A)点近傍とM(L)点近傍にそれぞれフェルミ面が観測された。第一原理計算の結果との比較から、これらのフェルミ面は、Ca、Al、Siそれぞれの電子が強く混成して出来た3次元的なバンドである。それぞれのフェルミ面上で高分解能測定を行い、転移温度上下でスペクトルを比較した結果を図6に示す。超伝導状態においてはピーク構造が4 meV付近に観測され、スペクトル端のシフトも観測された。超伝導ギャップの大きさを定量的に評価するためにDynes関数を用いてフィットした結果(図6中実線)、 Γ 点では1.1 meV、M点では1.2 meVのギャップが開いていることがわかった。この違いは解析精度の範囲内で、有意な差は観測されなかった。この結果からCaAlSiにおいては異なるフェルミ面上で等しい大きさの超伝導ギャップが開いていることがわかった。

5. まとめ

本研究ではMgB₂の角度分解光電子分光研究から異なる対称性を持つ σ バンドと π バンドに異なる大きさの超伝導ギャップが開いていることがわかった。またMgB₂と同じ結晶構造を持つCaAlSiでは対称性の等しいフェルミ面が2つあり、それらは等しい大きさのギャップを持つことがわかった。これらの結果はマルチギャップの起源がフェルミ面の対称性にあることを示唆する。また理論モデル[3][4]との比較からMgB₂の高い T_c は運動量に依存した電子格子相互作用を考慮することで説明できることがわかった。

参考文献

- [1] J. Nagamatsu *et al.*, Nature (London) **410**, 63 (2001).
- [2] レビューとして C. Buzea and T. Yamashita, Supercond. Sci. Technol. **14**, R115 (2001).
- [3] A. Y. Liu, I. I. Mazin, and J. Kortus, Phys. Rev. Lett. **87**, 087005 (2001).
- [4] H. J. Choi *et al.*, Nature (London) **418**, 758 (2002); H. J. Choi *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 020513 (2002).
- [5] S. L. Bud'ko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 1877 (2001); D. G. Hinks, H. Claus, and J. D. Jorgensen, Nature (London) **411**, 457 (2001).
- [6] J. Kortus *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 4656 (2001)
- [7] E. Z. Kurmaev *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 134509 (2002).
- [8] H. Uchiyama *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 157002 (2002).
- [9] Y. Takano *et al.*, Appl. Phys. Lett. **78**, 2914 (2001); M. Xu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **79** (2001) 2779.
- [10] H. Harima, Physica (Amsterdam) **378C–381C**, 18 (2002).
- [11] R. C. Dynes, V. Narayanamurti, and J. P. Garno, Phys. Rev. Lett. **41**, 1509 (1978).
- [12] J. R. Schrieffer, *Theory of Superconductivity* (Perseus Books, Reading, MA, 1983).
- [13] S. Tsuda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 177006 (2001).
- [14] M. Imai *et al.*, Phys. Rev. B **68**, 064512 (2003).

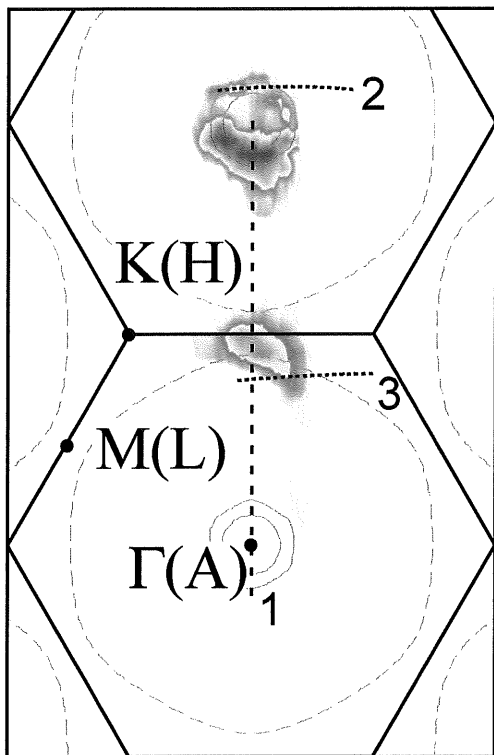


図1 MgB₂のフェルミ準位近傍における光電子強度分布

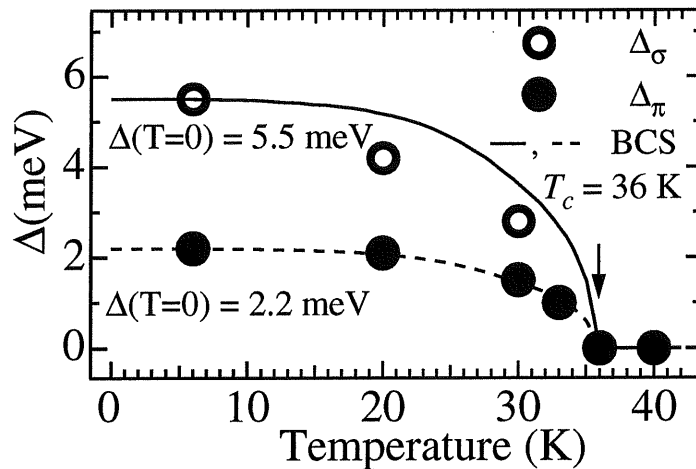


図4 超伝導ギャップの温度依存性

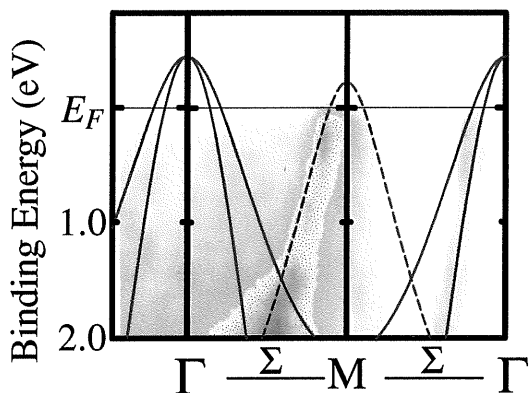


図2 MgB₂のΓ-M上における光電子強度分布

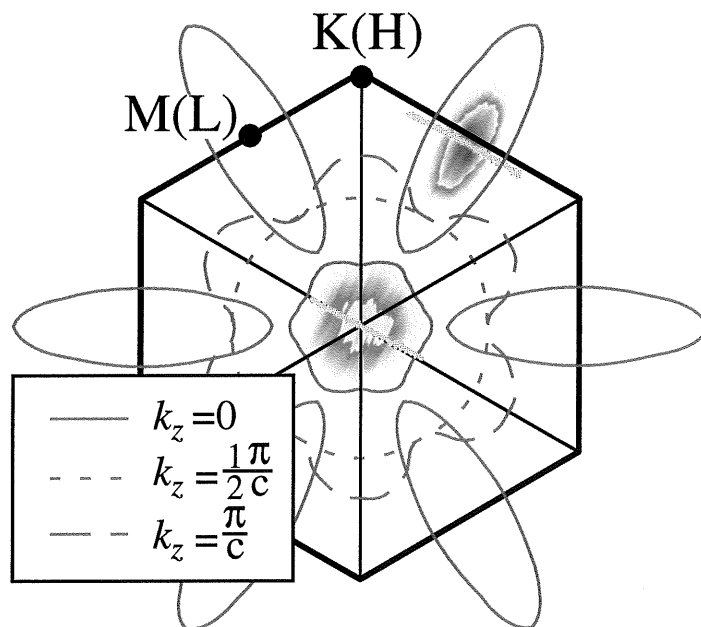


図5 CaAlSiのフェルミ準位近傍における光電子強度分布

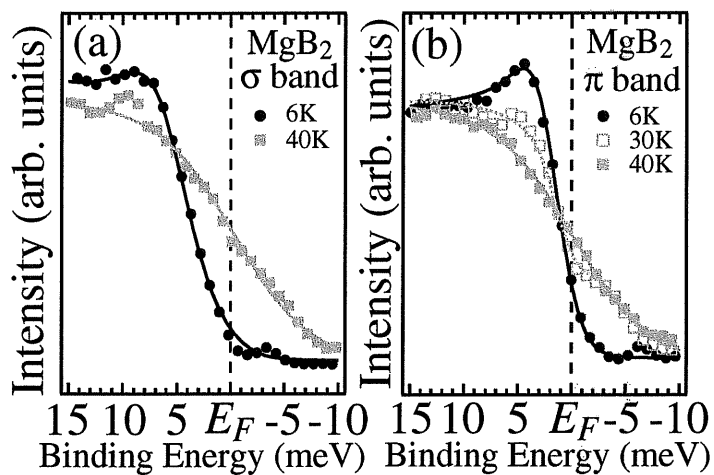


図3 (a) σ band (b) π band における高分解能スペクトル

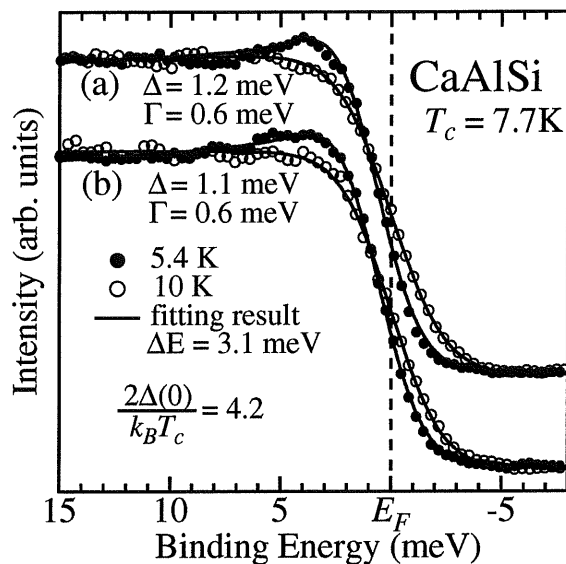


図6 CaAlSiの各フェルミ面における高分解能スペクトル