

論文の内容の要旨

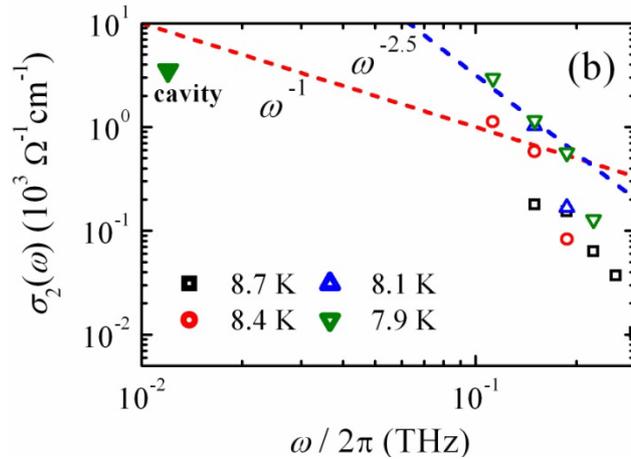
論文題目 テラヘルツ伝導度測定を用いた銅酸化物および鉄系超伝導体の研究

氏名 中村大輔

本研究ではテラヘルツ伝導度スペクトロスコピーにより超伝導体薄膜の低エネルギーの素励起について知見を得ることを目標として、低温かつゼロ磁場および磁場下で測定可能な透過型の時間領域分光法によるテラヘルツ伝導度の測定系および解析プログラムを一から作り上げた。本測定方法は近年発展の著しい分野ではあるが、当研究室においては知識の蓄積もなく、文字通り手探りの状態で研究を開始した。

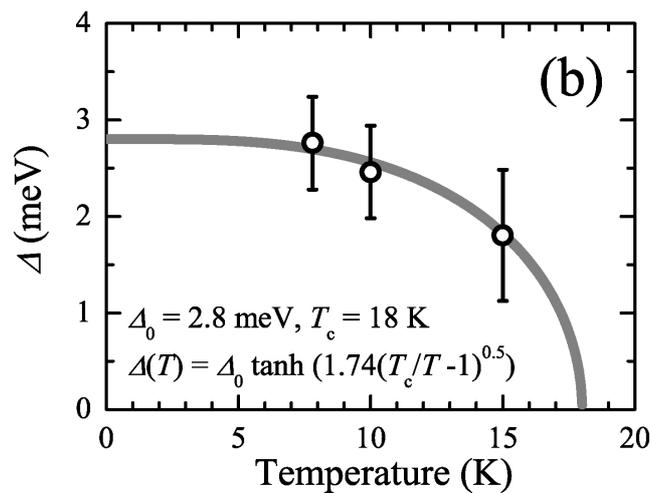
測定試料は近年発見されて盛んに研究の行われている鉄系超伝導体のうち、比較的良質な薄膜が作製されている $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ と $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ と、高温超伝導体のうちドーブ量を精密に変化させることができ高温超伝導体の電子相図を解明するのに有用と考えられる $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO)である。

当研究室で作製された鉄系超伝導体 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ 薄膜については、 T_c が低いこと (~ 10 K)、そして超流体密度が T_c 近傍では BCS 超伝導体よりも小さくなるような温度依存性を示すことなどにより、常伝導キャリアの寄与が顕著に観測された。そのため、測定の最低温度 (~ 8 K) で伝導度の実部の周波数依存性に明確な超伝導ギャップ構造を観測することはできなかった。しかし、複素伝導度の虚部の周波数依存性が超伝導ギャップのエネルギースケール近傍のふるまいを示すことに着目し、マイクロ波領域のデータと比較することにより、超伝導ギャップエネルギーを 0.6 meV 程度と見積もることに成功した(下図)。



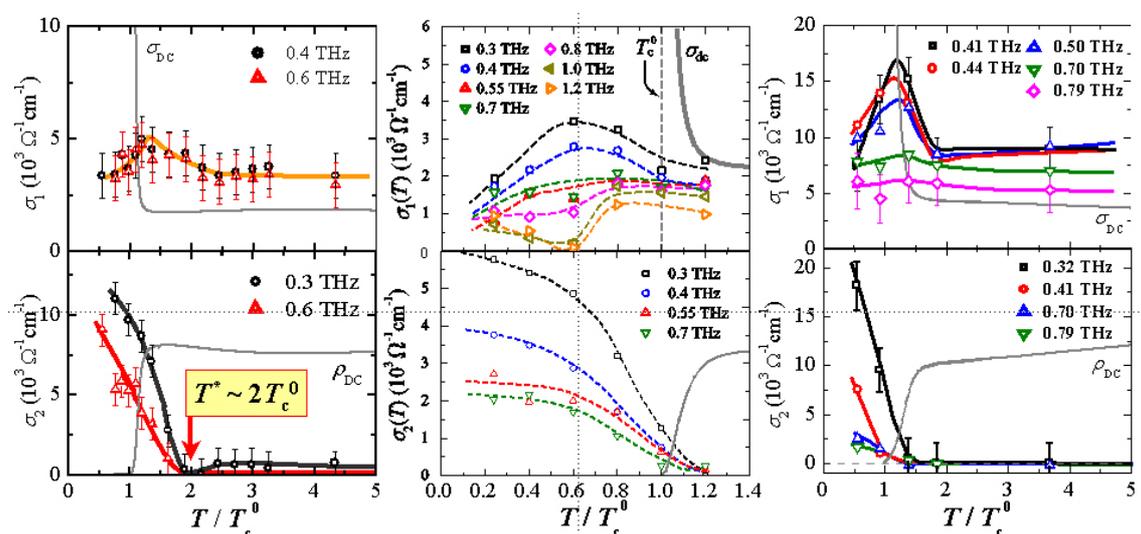
図：鉄系超伝導体 FeSe_{1-x}Te_x 薄膜の複素伝導度の虚部の周波数依存性

鉄系超伝導体 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ については、最適ドーピング試料において逆格子空間の M 点周りに存在する電子的なフェルミ面を開く超伝導ギャップ(2.8 meV)の存在を示唆する超伝導状態での透過率の変化を観測した(下図)。また、超伝導相と反強磁性相が共存する不足ドーピング領域の試料については、反強磁性相で複素伝導度の虚部が急激に減少するふるまいを観測した。この結果は、反強磁性相転移温度でフェルミ面の一部にできると ARPES により報告されている Dirac cone のキャリアの応答に起因するものではないかと考えられる。また、いくつかの試料を測定してみたところ、全体的に残留伝導度が特に低周波側で大きく観測されるような傾向があった。この結果は他のグループによる高周波伝導度測定でも報告されたおり、FeSe_{1-x}Te_xでも光学領域でバンド間遷移とみられる自由電子以外の伝導度への寄与が大きく観測されることと併せて考えても、鉄系超伝導体の伝導度スペクトルを議論するにはより広い周波数レンジで同一試料を測定することが重要ではないかと感じた。



図：鉄系超伝導体 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ 超伝導ギャップの温度依存性

銅酸化物高温超伝導体 LSCO については、マイクロ波伝導度とネルンスト効果で超伝導ゆらぎが観測される温度領域が大きく異なるという問題について、不足ドーパ領域から過剰ドーパ領域に至る様々なドーパ量の LSCO 薄膜試料を用いて THz 伝導度測定を行った。特に複素伝導度の虚部の温度依存性に着目し、ゼロ抵抗を示す温度 T_c^{zero} よりもどの程度高温から複素伝導度の虚部の急激な増加が見られるか、という観点から調べたところ、マイクロ波伝導度測定の解析により得られた結論と定性的に同じ温度領域であることが分かった。さらに、超伝導状態における複素伝導度の実部の温度依存性がキャリア量とともにどのように変化するかという見地から、超伝導状態および超伝導ゆらぎが観測される温度領域におけるドーパ量依存性について比較したところ、以下のような傾向が得られた。(下図)



図：高温超伝導体 LSCO の複素伝導度の T_c 付近の温度依存性

- 不足ドーパ領域($x = 0.07, 0.10, 0.12$) : $x = 0.07$ では複素伝導度の実部は T_c 直上で増加するが、これは直流伝導度の温度依存性と対応している。超伝導状態では $T \rightarrow 0$ で T_c 直上の値にからほぼ単調に減少する。複素伝導度の虚部は最大で $T = 2 T_c^{zero}$ から急激に増加し、その温度依存性は BKT 転移による universal jump が高周波でなまったものとして説明することが可能である。
- 最適ドーパ領域($x = 0.15, 0.16$) : 複素伝導度の実部は T_c 直上で増加しない。超伝導状態では $T \rightarrow 0$ で T_c 直上の値に比べ抑制されるが、温度依存性にブロードなピーク構造を有する。複素伝導度の虚部は最大で $T \sim 1.2 T_c^{zero}$ から急激に増加し、3つのドーパ領域の中ではもともと超伝導ゆらぎが観測される温度領域が狭い。
- 過剰ドーパ領域($x = 0.17, 0.225$) : 複素伝導度の実部は T_c 直上で比較的鋭いピーク構造を持つ。超伝導状態では $T \rightarrow 0$ でも残留伝導度が大きめに観測される。複素伝導度の虚部

は最大で $T = 1.5 T_c^{\text{zero}}$ から急激に増加する。

このような傾向に関して、過剰ドーピング側では残留伝導度が大きいという結果はマイクロ波ブロードバンド測定でゆらぎの臨界指数が既存のモデルに合わないことと、LSCO の過剰ドーピング側で相分離(超伝導になる組成とならない組成がマイクロなスケールで分離している)が生じていることの 2 つの実験結果を関連付ける結果であると考えられる。

そして、0.5 T の磁場下での測定では、最適ドーピング ($x = 0.15$) 試料に関して THz 領域の複素伝導度はエラーバーの範囲内でほとんど変化を示さなかった。

これらの結果から、THz 伝導度測定から得られた結果はマイクロ波伝導度測定での結論が正しいことを示唆するものである。ネルンスト効果の実験に対しては、超伝導ゆらぎ以外の寄与(異なる電荷秩序状態)を見ている可能性、磁場印加により超伝導ゆらぎが増加している可能性、非常に短い時間スケールの超伝導ゆらぎを観測している可能性などがあるが、ネルンスト効果による実験結果から T_c よりもはるかに高い温度から超伝導ゆらぎを観測したという結論は、少なくともゼロ磁場での電子相図においては適用できないと考えられる。