

学 位 論 文 題 名

Study on the Pseudogap and Superconducting Condensation Energy of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

($\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の擬ギャップと超伝導凝集エネルギーに関する研究)

学位論文内容の要旨

1. 序論

銅酸化物高温超伝導体が発見されて 16 年余り経つ。その発見から間もなく、高温超伝導も従来型超伝導体と同様に 2 個のホール (電子) がクーパー対を形成し、それらがボーズ凝縮を起こすことによって生じることが分かった。しかし、クーパー対の具体的形成機構は未だ未解明のままとなっている。

高温超伝導体の特徴の 1 つとして、NMR の T_1 、STS、ARPES 等の実験で見つかった常伝導状態での擬ギャップがある。この擬ギャップは超伝導ギャップ Δ_0 と同程度の大きさを持ち、 d 波超伝導体に対する平均場の特性温度 $T_{co}(= 2\Delta_0/4.3k_B > T_c)$ 付近から成長し、 T_c で連続的に超伝導ギャップへ移行すると考えられている。このため、擬ギャップが高温超伝導の発現に果たす役割に大きな関心が寄せられている。しかし、代表的な銅酸化物高温超伝導体の 1 つである La214 系では、まだ擬ギャップの有無が確認されておらず、擬ギャップが高温超伝導体に普遍的な現象かどうか問題となっている。また、従来型超伝導体と違って、高温超伝導体の T_c は Δ_0 とスケールしないことが知られている。銅酸化物超伝導体の T_c はホール濃度の増加と共に上昇から下降に転じ、いわゆる釣鐘型のホール濃度依存性を示すが、走査トンネル顕微鏡 (STS) や角度分解型光電子分光 (ARPES) 実験で測定された Δ_0 は T_c が上昇するホール濃度領域でも単調に減少するのである。

銅酸化物高温超伝導体では上記の特徴に加え、超伝導の凝集エネルギー $U(0)$ に関わる問題がある。それは、 T_c や Δ_0 と共に超伝導を特徴付ける重要なエネルギースケールである $U(0)$ が最適ホール濃度に近いオーバードープ領域からアンダードープ領域にかけて著しく減少するという現象である。この減少はクーパー対の形成機構と密接に関係するとの認識から大きな関心が持たれ、これまで様々な観点から議論されてきた。

以上の状況を踏まえ、本研究では La214 系の高温までの電子比熱をホール濃度を系統的に変えながら測定し、この系における擬ギャップの有無と凝集エネルギー $U(0)$ の著しい減少の原因を調べた。

2. 実験

擬ギャップの有無や凝集エネルギー $U(0)$ を調べるためには電子比熱を高温まで測定する必要がある。高温まで電子比熱を測定するには格子比熱の見積もりが最も重要な問題となる。高温超伝導体では、磁場を印加する代わりに少量の不純物を添加して超伝導を抑制して格子比熱を求めるが、その際、不純物添加に伴う格子比熱の変化が問題となる。我々は、Ni 不純物を用いて超伝導を抑制する場合、格子比熱はほとんど何も影響を受けないこ

とを見出し、La214系の正確な電子比熱を高温まで測定することに成功した。比熱の測定は断熱ヒートパルス法を用い、2~120Kの温度範囲で行った。また、 T_c は超伝導の反磁性の測定から決めたが、この測定には Quantum Design 社製の MPMS 磁化測定装置を用いた。

3. 実験結果と考察

得られた結果を項目毎に以下に記す。

(i) La214系の電子比熱

常伝導相 ($T > T_c$) の電子比熱係数 $\gamma (= C_{el}/T)$ は、高ホール濃度 ($x=0.22$) の試料では一定値をとるが、 $x \leq 0.20$ の試料ではある温度 $T' (> T_c)$ でブロードで小さなピークを示し、低温側へ向かって緩やかな減少を示す。 $T' (> T_c)$ 以下で見られる γ の減少はフェルミ準位 E_F での状態密度の低下を意味する。また、ピーク温度 T' はホール濃度に大きく依存するが、 T' は La214 系の平均場の特性温度 T_{co} にほぼ一致する。これらのことから、La214 系においても $x \leq 0.20$ の試料では、 T_{co} 付近から擬ギャップが発達するものと考えられる。実際、最近になって中性子実験や NMR 実験からも La214 系における擬ギャップの存在を支持する結果が報告された。

(ii) 超伝導の凝集エネルギー

La214 系の電子比熱係数 γ から見積もった凝集エネルギー $U(0)$ のホール濃度依存性は、これまでに報告されている結果と定性的に一致するが、定量的にはアンダードープ領域で 40% 程度のずれが見られる。しかし、擬ギャップ領域 ($x \leq 0.20$) で $U(0)$ が著しく低下するという特徴は確認できた。

d 波超伝導体の凝集エネルギー $U(0)$ は、 E_F における状態密度 $N(0)$ とギャップの最大値 Δ_0 を用いて $U(0) = \alpha N(0) \Delta_0^2$ と表すことができる。この式を用い、低温での γ 値から求めた $N(0)$ およびトンネル実験から求めた Δ_0 について $U(0)$ を計算してみると、高ホール濃度の試料 ($x=0.22$) では測定値と良く一致するが、擬ギャップ領域では実測値より遥かに大きな値となった。この擬ギャップ領域での大きな不一致は、実効的な超伝導ギャップの大きさ Δ_{eff} として Δ_0 を用いたことに起因すると思われる。高ホール濃度領域以外では T_c は $p\Delta_0$ にスケールすることから、 Δ_{eff} として Δ_0 ではなく $\beta p\Delta_0$ ($\beta = const$) を用いるべきと思われるからである。そこで、実効的な超伝導ギャップ Δ_{eff} を $\beta p\Delta_0$ として、 $U(0) = \alpha N(0) (\beta p\Delta_0)^2$ を計算してみると、 $\beta = 4.5$ としたときの計算値は擬ギャップ領域を含む全てのホール濃度領域で実測値と定量的に一致した。このことから、擬ギャップ領域では T_c や $U(0)$ を決める Δ_{eff} は Δ_0 でなく $\beta p\Delta_0$ であり、擬ギャップ形成に伴う $N(0)$ の減少まで考慮することで擬ギャップ領域における $U(0)$ の著しい低下を定量的に説明できることが分かった。

(iii) 擬ギャップ領域での実効的超伝導ギャップ

擬ギャップ領域では、何故 T_c や $U(0)$ を決める実効的超伝導ギャップの大きさが Δ_0 でなく、 $\beta p\Delta_0$ となるかを議論した。我々は擬ギャップが成長しても、 T_c でアーク状となって生き残る ($\pi/2, \pi/2$) 付近のフェルミ面に着目した。アーク状のフェルミ面にあるホールは CuO_2 面内で非常に大きな易動度をもっており、これらのホールがクーパ対を形成するとクーパ対の運動がコヒーレントになると考えられるからである。そして、アーク状のフェルミ面上に形成されるギャップが実効的な超伝導ギャップとして働くと考え、そこでギャップの最大値が $\beta p\Delta_0$ となる可能性を指摘した。

以上、本研究では La214 系においても T_{co} から擬ギャップが形成されることを確認し、超伝導転移温度 T_c や凝集エネルギー $U(0)$ を決定する実効的な超伝導ギャップの大きさが擬ギャップ領域では Δ_0 から $\beta p\Delta_0$ ($\beta \sim 0.4$) となることを明確にした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 伊 土 政 幸

副 査 教 授 大 川 房 義

副 査 教 授 小 野 寺 彰

副 査 助 教 授 小 田 研

学 位 論 文 題 名

Study on the Pseudogap and Superconducting Condensation Energy of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

($\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の擬ギャップと超伝導凝集エネルギーに関する研究)

銅酸化物高温超伝導体の低ホール濃度領域では、 T_c が超伝導ギャップの最大値 Δ_0 とスケールせず、超伝導の凝集エネルギー $U(0)$ も著しく減少することが知られている。これらの問題は、高温超伝導の発現機構と密接に関係するとの認識から大きな関心を持たれ、これまで様々な観点から議論されてきた。申請者は、これらの問題の背後に常伝導相での擬ギャップ形成があると推測し、 La_{214} 系の電子比熱の研究から凝集エネルギー $U(0)$ の著しい減少と擬ギャップ形成との関連性を詳しく調べた。

申請者は、Ni 不純物を添加して超伝導を抑制した試料の格子比熱を用いることで信頼性の高い電子比熱を測定することに成功し、以下に記す興味深い結果を得た。

(i) La_{214} 系における常伝導相の電子比熱

$x \leq 0.20$ の電子比熱係数 $\gamma (=C_{el}/T)$ から、常伝導相の平均場の特性温度 $T_{co} = 2\Delta_0 / (4 \sim 5)k_B$ ($> T_c$) 以下で、 E_F での状態密度 $N(0)$ が擬ギャップ形成に伴って緩やかに減少することを確認した。また、この $N(0)$ の減少と La_{214} 系の常伝導相で見られるネルンスト信号異常との関連性を指摘した。

(ii) 超伝導の凝集エネルギー

超伝導相の電子比熱から凝集エネルギー $U(0)$ を系統的に見積もり、 d 波超伝導体の凝集エネルギー $U(0) = \alpha N(0) \Delta_0^2$ ($\alpha = 0.4$) を基に解析を行った。擬ギャップ領域では、トンネル実験等から求めた Δ_0 をそのまま超伝導の特性エネルギーとすると、 $U(0)$ の計算値は実測値より遥かに大きい値となる。そこで、申請者は、擬ギャップ領域では T_c が $p\Delta_0$ にスケールすることから、超伝導の特性エネルギーとして Δ_0 の代わりに $\beta p\Delta_0$ ($\beta = 4.5$) を用いて $U(0)$ を再評価した。その結果、擬ギャップ領域を含む全てのホール濃度領域で $U(0)$ の実測値を定量的に説明できることを始めて明らかにした。

(iii) 擬ギャップ領域における超伝導の特性エネルギー

さらに、 $U(0)$ や T_c を決める超伝導の特性エネルギーが擬ギャップ領域で $\beta p\Delta_0$ となる理由を、擬ギャップが成長しても T_c までアーク状となって生き残る ($\pi/2, \pi/2$) 付近のフェルミ面に着目して議論した。そして、アーク状のフェルミ面にある大きな易動度をもつホールが

クーパ対のコヒーレントな運動に関与すると考えると、このフェルミ面に形成されるギャップがちょうど擬ギャップ領域での特性エネルギー $\beta p \Delta_0$ に対応することを指摘した。

以上の申請者の研究は、高温超伝導の発現機構に関する新たな知見をもたらすものとして高く評価できる。また、本研究に関連する申請者の6編の論文は、いずれも権威ある国際学術誌に公表されている。よって審査員一同は、著者が博士（理学）の学位を受けるに十分な資格を有すると認めた。