

酸化物超伝導体の熱伝導率に対する理論解析

電子材料学講座 池部研究室 冨田 健

◇序論

従来の金属で現れた超伝導については、1957年にバーディーン (Bardeen)、クーパー (Cooper) とシュリーファー (Schrieffer) による超伝導理論 (BCS理論) が提案され、この理論が非常に良く現実の超伝導体の性質を説明できることが立証されている。従って、まだ完全な解決をみていない高温超伝導体の超伝導発現機構を理解する場合にも、まず、実験事実がBCS理論で合うのか合わないのかと言う事が出発点となり、合わなければ別の方法を考えねばならない。

我々は、今まで、超伝導エネルギーギャップ Δ をBCSギャップ Δ_{BCS} として酸化物超伝導体の熱伝導率を解析してきた。しかし、近年エネルギーギャップはBCSギャップのほぼ2~3倍であり、さらにギャップの対称性がd波 (角度依存性を考慮) のほうが、より実験結果と合うと考えられてきている。本研究では、Tewoldt と Wölkhausen により提唱された理論 (TW理論) を用いて熱伝導率 κ を測定値にフィッティングさせることでギャップの対称性におけるエネルギーギャップがS波動的か、d波動的かを議論する。S波動的とはエネルギーギャップが球対称 (等方的) であり、d波動的とはエネルギーギャップが線状のノードを持つこと (異方的) を意味する。(ただし、本研究では弱結合で考えた。)

◇フィッティング解析 (TW理論)

フォノン境界 (試料端面、結晶粒界)、格子欠陥、及び伝導電子などの散乱を受けながら、結晶中の熱エネルギーを輸送している。

フォノン熱伝導率は、ボルツマンの輸送方程式を緩和時間近似を用いて解くことで次式のように書ける。

$$\kappa_{ph} = \frac{3dnRv^2}{M} \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\Theta_D/T} \tau_{ph}(x) \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx \quad \dots \dots (1) \text{式}$$

ここで、 $x (= h\omega / (2\pi k_B T_c))$: ω (周波数) はフォノン還元エネルギーである。本研究では、フォノン散乱過程として境界、層状欠陥、点欠陥、及び伝導電子 (超伝導状態では準粒子) を考えた。これらの散乱過程における周波数依存性を考慮に入れると $\tau_{ph}(x)$ は以下のように表される。

$$\tau_{ph}^{-1} = \tau_b^{-1} + \tau_{ph}^{-1} + \tau_p^{-1} + \tau_e^{-1} \\ = \tau_b^{-1} + s (Tx)^2 + p (Tx)^4 + E (Tx) g(x, y)$$

ここで、 τ_b は境界散乱 (粒界表面や試料表面等) によるフォノンの緩和時間を表し、 s 、 p 、及び E はそれぞれ層状欠陥、点欠陥、及び電子によるフォノン散乱の強さを表すパラメータである (高温で重要になるフォノン-フォノン散乱は考えない)。式中の $g(x, y) = \tau_{phn} / \tau_{pha}$ は常伝導状態と超伝導状態における電子散乱によるフォノンの緩和時間の比 (還元エネルギーギャップに依存) を表している。 κ_{ph} に対して、(1)式を τ_b 、 s 、 p 、及び E をパラメータとして数値計算しフィッティングする事で各散乱要素の散乱強度を解析しS波とd波でどちらが良くフィットするか比較検討した。

◇ T_c 以下で見られる熱伝導率の異常 (エンハンス) について

一般に金属では、全熱伝導率 κ 、結晶の格子振動が熱を運ぶフォノン熱伝導率 κ_{ph} 、伝導電子が熱を運ぶ電子熱伝導率 κ_e には次のような関係がある。

$$\kappa = \kappa_{ph} + \kappa_e \quad \dots \dots (2) \text{式}$$

T_c 以上での電子の寄与 κ_e は測定した電気抵抗率 ρ と次式のWiedemann-Franz (WF) 則を用いて全熱伝導率から分離できる。

$$\kappa_e = L_0 \rho T$$

ここで L_0 はローレンツ数と呼ばれ $L_0 = (\pi^2/3)(k_B/e)^2 = 2.45 \times 10^{-8} V^2 K^{-2}$ で表される。上式のWF則は電子の不純物による散乱、もしくはフォノンによる弾性散乱が支配的な場合に対して成立する。

T_c 以下のフォノン熱伝導率は、(3)式(kadanoffの式)から κ_{ph} (超伝導状態の電子熱伝導率)を求めて(2)式を用いて κ_{ph} を分離した。

$$\frac{\kappa_{os}}{\kappa_{on}} = \frac{2}{3\pi} \int_0^\infty d\epsilon \epsilon^2 \operatorname{sech}^2 \left\{ \frac{1}{2} [\epsilon^2 + (\beta\Delta)^2]^{\frac{1}{2}} \right\} \frac{1 + \alpha \left(\frac{T}{T_c} \right)}{\left[\epsilon^2 + (\beta\Delta)^2 \right]^{\frac{1}{2}} + \alpha \left(\frac{T}{T_c} \right)} \quad (3) \text{式}$$

酸化物超伝導体の熱伝導率 κ の温度依存性には、 T_c 以下でいったん κ が増大する(エンハンス)という現象が、多くの研究グループによって報告されている。この熱伝導率の T_c 以下での異常は酸化物超伝導体の熱輸送の機構においてフォノンの寄与が支配的であることを示唆している。

◇考察

従来の熱伝導率の解析プログラムにおいては、エネルギーギャップ Δ とBCSギャップ Δ_{BCS} との比 χ を1として計算してきた(S波)。 $\chi=1$ として、即ちエネルギーギャップ Δ をBCSギャップ Δ_{BCS} として計算し、TW理論でフィッティングした結果がFig. 1である。 T_c より高温側ではフォノン-フォノン散乱を考慮していないのでフィットしないが、 T_c 以下ではある程度良くフィットしている。我々は、今までこの方法($\chi=1$)で解析してきた。

しかし、現在 Δ は Δ_{BCS} の約2~3倍ではないかという報告(トンネル分光、光電子分光etc...)が多い事から、 $\chi=2$ で計算しTW理論でフィッティングした結果がFig. 2である。横軸に温度(K)、縦軸にフォノンの熱伝導率 κ_{ph} (mW/cmK)をとった。Fig. 2はFig. 1と同様に T_c 以上では同じく合っていないが、さらにピークまでも高温側にずれている。次に、電子熱伝導率を $\Delta = 2\Delta_{BCS} \cos 2\theta$ ($0 \leq \theta \leq 45^\circ$) (角度依存性を考慮)で縦軸に κ 、横軸に T (K)をとって3°おきに15個計算し、その和の平均を κ_e (d波、弱結合)とした。結果がFig. 3である。 $\theta=0^\circ$ (S波)において、 T_c 以下で急激に κ_e が減少している。それに対してd波(弱結合)は、S波に比べて、徐々に(漸ら)減少しているのがわかる。さらにFig. 3の κ_e (d波、弱結合)を κ_{os} とし(2)式から κ_{ph} を計算し $\Delta = 2\Delta_{BCS} \cos 2\theta$ ($0 \leq \theta \leq 45^\circ$)としてTW理論でフィッティングした結果がFig. 4である。縦軸に κ_{ph} 、横軸に温度(K)をとった。高温側はこれまでと同様の結果だが低温側は、全温度範囲で良くフィットすることができた。

◇結論

これまで酸化物超伝導体のエネルギーギャップの対称性に注目し、TW理論を用いてフォノン熱伝導率を解析してきた。その結果、現在、トンネル分光、光電子分光などの報告からエネルギーギャップ Δ をBCSギャップ Δ_{BCS} の2倍とし、さらにそれに角度依存性を考慮に入れること(d波、弱結合)で、TW理論を用いて κ_{ph} の測定値をうまくフィッティング(解析)することができた。

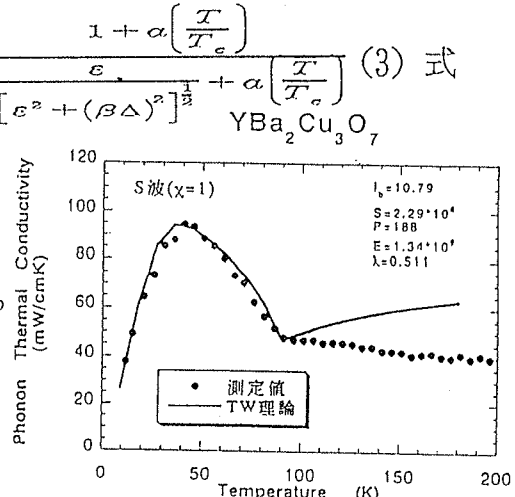


Fig. 1 S波(BCSギャップ)によるYBCOのフォノン熱伝導率とTW理論のフィッティング結果

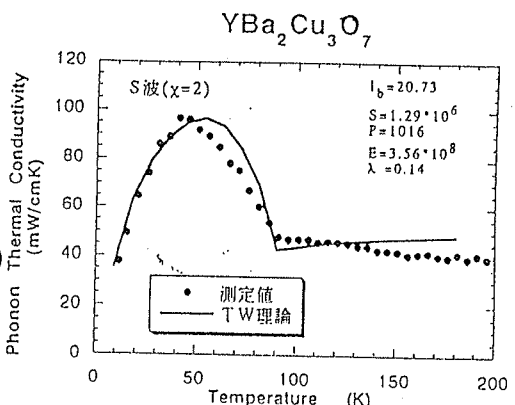


Fig. 2 S波(BCSギャップの2倍)によるYBCOのフォノン熱伝導率とTW理論のフィッティング結果

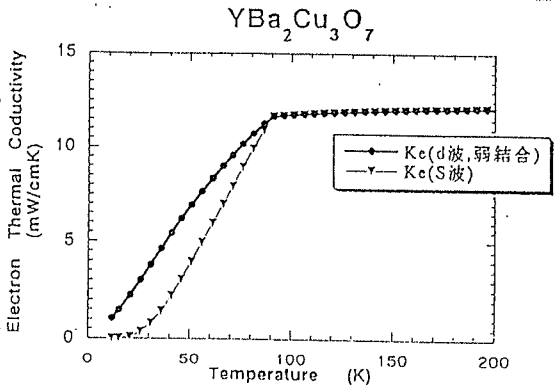


Fig. 3 S波とd波(弱結合)によるYBCOの電子熱伝導率

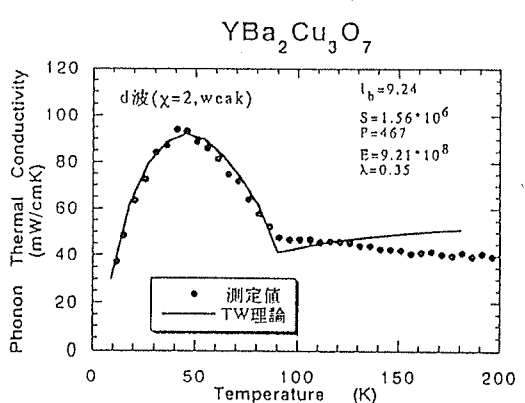


Fig. 4 d波(弱結合)によるYBCOのフォノン熱伝導率とTW理論のフィッティング結果