

称号及び氏名 博士（工学） 久保田 大地

学位授与の日付 平成 23 年 3 月 31 日

論文名 「磁気トルクによる多バンド高温超伝導体単結晶の異方性  
に関する研究」

論文審査委員 主査 石田 武和

副査 石原 一

副査 秋田 成司

副査 林 伸彦

## 論文要旨

本論文では、多バンド超伝導体の異方性に注目し、理論と実験の両面から系統的に研究を実施し、まとめたものである。

初期の超伝導トルク理論は London 理論(磁気応答が局所場で決まるとする局所近似モデル)から導出された理論であり、現在に至るまで様々な異方的超伝導体に対して異方性の良い説明を与えることが知られていた。しかしながら、London 理論から導出されたトルクモデルにおいて渦糸コアが自由エネルギーに与える影響を厳密に取り扱われていない欠点を抱えていた。その後、Kogan は London モデルで共通の電子状態異方性として扱われていた異方性  $\gamma$  を、磁場侵入長  $\lambda$  の異方性  $\gamma_\lambda$  と上部臨界磁場（コヒーレンス長  $\xi$ ）の異方性  $\gamma_\xi$  に明確に区別することで、多バンドが関与する超伝導特性を議論できるモデルへと拡張した。しかしながら London モデルの局所性から来るコヒーレンス長  $\xi$  の扱いに関する懸案は依然残ったままであった。London 理論のよく知られた欠点は渦糸コアとして渦糸格子の逆格子空間 (G 空間) 内のカットオフ波数  $2\pi/\xi_c^{-1}$  を先験的に導入したことであり、実空間での現象論では、カットオフ長  $\xi_c$  はコヒーレンス長  $\xi$  程度と想定したことに対応したことに起因している。

その後、渦糸コア半径  $\xi_c$  は現実の系では磁場に依存することが示唆され、逆格子 G 空間

上で渦糸コアサイズの磁場依存を考慮し、従来のトルク理論を改良することへのニーズは年々高まっていた。本研究では Yaouanc らが発展させた自由エネルギーを評価できる内部磁場分布の離散 Fourier 解析法を利用して新しいトルク理論を構築した。Yaouanc らの理論は、磁場分布の局所変化を直接観測できるミュオンスピン共鳴 ( $\mu$  SR) や中性子散乱のデータを解析するために、理論的な渦糸格子を持つ高  $\kappa$  第 2 種超伝導体 ( $\kappa$  は Ginzburg-Landau パラメーター) において内部磁場の Fourier 成分を計算したものであり、渦糸コアを考慮した解析手段の有効性を示した。また Brandt は、理想渦糸格子では、空間的対称性に依らず、完全な Ginzburg-Landau 方程式の計算結果と比較して、この解析的な手法と良い一致を示すことを示した。Yaouanc らの理論手法は NbSe<sub>2</sub> 単結晶の渦糸状態に関する  $\mu$  SR 測定の結果を内部磁場の多バンド超伝導性の効果として記述することにも成功した。

本研究では、渦糸コアの影響を考慮した新たなトルクモデルを構築し、超伝導トルク実験の解析を系統的に行って異方性を決定し、異方的超伝導体の渦糸物理において、多バンドの効果が重要となる系に適用することを目的としている。多バンド超伝導性は近年の高い  $T_c$  をもつ超伝導体の発見以降、高温超伝導発現機構と密接な関連性を持っていると考えられている。主要なテーマである多バンド超伝導体 MgB<sub>2</sub>、PrFeAsO<sub>1- $\delta$</sub> 、および Ba(Fe, Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 単結晶の異方性についても言及する。

超伝導を伴う多バンド構造と Fermi 面の構造は密接な関係があり、Fermi 面上の準粒子の挙動に対して有用な情報を得るためにはコヒーレンス長  $\xi$  の異方性  $\gamma_\xi$  を注意深く取り扱うことが重要となる。また、Kogan は多バンド超伝導体中の異方性の関係が  $\gamma_\lambda \neq \gamma_\xi$  となり、単一バンドの超伝導体に対しては  $\gamma_\lambda = \gamma_\xi$  となる主張したが、現実の異方的超伝導体で成り立つのか否かという実験的検証にも興味があるところである。本研究では  $\gamma_\lambda \neq \gamma_\xi$  の関係式と実際の物質でどうなるか議論した上で、なぜ、 $\gamma_\lambda$  (超伝導電流に由来する成分) と  $\gamma_\xi$  (準粒子に由来する成分) の異方性がなぜ異なるのかについて物理的解釈を行った。

本論文は、以下の 6 章で構成される。

第 1 章において、銅酸化物系高温超伝導体についてと、本研究で用いた軽元素金属系高温

超伝導体  $\text{MgB}_2$ 、鉄ヒ素系高温超伝導体  $\text{PrFeAsO}_{1-\delta}$  及び  $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  について多バンド超伝導性に関して研究背景と研究目的を示した。

第2章において、多バンド超伝導体のような渦糸コアの影響が重要となる系の超伝導トルクの解析のために、渦糸コアの性質を考慮したトルクモデルを構築した。従来の London 理論から自然な拡張性を持つ新しいトルク理論を構築するために、本研究では Hao らと Yaouanc らによる渦糸格子の内部磁場を取り扱うモデルを利用した。本研究で導出したトルク公式では Kogan 理論と異なりコアサイズを決めるための曖昧さを補正するために導入された  $\eta$  因子を必要とせず、実験データの解析から  $\eta$  を含まない正しい物理量を得ることができる。本研究で開発した  $\eta$  因子を含まないトルク理論公式を用いることで従来の London 理論と異なりトルク実験の解析によって正確な上部臨界磁場  $H_{c2}$  を見積もることができるようになった。本研究では London モデルに基づく  $\eta$  因子は渦糸コアの磁場依存性によって異方性  $\gamma$  と磁場  $H$  の関数でスケールされることを初めて示した。すなわち、単一バンド条件  $\gamma_\lambda = \gamma_\epsilon$  において、本研究で導いた新しいトルク理論と従来の London 理論に従うトルク理論との比較において  $\eta$  因子の値は  $\gamma / (B/H_{c2}^{\parallel c})$  の関数によって良くスケールされることが分かった。新しく発見された  $\eta$  因子のスケール則は、渦糸コアサイズの磁場依存性により解釈できることを示した。同様に、 $\eta$  因子の振る舞いは、多バンド条件  $\gamma_\epsilon \neq \gamma_\lambda$  の範囲でも調べることができた。この結果  $\eta$  因子は従来で考えられていた1程度の定数ではなく、磁場の値などで変化する因子（関数）であることを明らかにした。

第3章において、本研究で用いたトルク実験環境システムの概要を述べた。この装置におけるトルク検知の原理について示した。またトルクヒステリシスを外部磁場に直交する交流磁場を重畳印加させることによって減少させる交流磁場重畳加振法を説明し、加振コイル機構を実装したインサートへの改良について説明した。この装置の改善はバルクサンプルに対しピニングによるトルクヒステリシスが減少させることに有効と考えられる。

第4章において、 $\text{MgB}_2$  の多バンド超伝導を考える上で、単一バンド Kogan モデルよりも多バンド Kogan モデルの方がより  $\text{MgB}_2$  の可逆成分のトルクカーブを良く説明できることが結論された。この解析で  $\gamma_\epsilon$  の値が  $\gamma_\lambda$  に比べて小さくなる領域を見出した。本研究ではこの

$\gamma_{\epsilon}$ の抑制現象が $\sigma$ バンドと $\pi$ バンドの超伝導キャリアのバンド間散乱による効果によるものと考えた。

第5章において、鉄ヒ素系高温超伝導体に関して議論した。PrFeAsO<sub>1- $\delta$</sub> 単結晶において、常磁性の異方性からくるトルク寄与を補正し、Koganモデルによる解析を用いることで磁場30K Gにおいて磁場侵入長 $\lambda$ に関する異方性 $\gamma_{\lambda}$ はあまり大きくなく、温度とともに緩やかに上昇していく傾向を示した。また温度依存性に着目した場合の $\gamma_{\lambda}$ の値は、異方的常磁性と同様に14 K以下の反強磁性磁気秩序にあらわれると解釈した。多バンドのKoganモデルを解析に用いることで、PrFeAsO<sub>1- $\delta$</sub> の多バンド超伝導性によって $\gamma_{\lambda}$ の値は大きくなり、 $\gamma_{\epsilon}$ の値は若干小さくなることが明らかになった。また大変興味深いことにNéel温度 $T_N=14$  K以下で反強磁性磁気秩序が、超伝導を示すPrFeAsO<sub>1- $\delta$</sub> 試料でも起こることを見出した。これは鉄ヒ素系超伝導体において $T_N$ 以下の温度で反強磁性と超伝導は共存しているという根拠となる。さらに磁場誘起された弱い強磁性が $T_N$ 以下であらわれることを、反強磁性転移に続いて確認することに成功した。

もうひとつのBa(Fe, Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>単結晶のトルク測定に関しては、多バンドのトルクモデルでの磁場侵入長の異方性 $\gamma_{\lambda}$ とコヒーレンス長の異方性 $\gamma_{\epsilon}$ はあまり大きくないことからほぼ等方的な性質を持つことが明らかになった。BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>の $\gamma_{\lambda}$ の値は3程度と理論的に予想されており、我々の実験からも $\gamma_{\lambda}$ は1から3の範囲であることから、良い一致を示している。Ba(Fe, Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>の実験において、本研究で導出した $\eta$ 因子を含まないトルク理論による実験解析を行い、従来のKoganの理論と同様（ほぼ等法的）の結果を得たが、 $\eta$ 因子を含まない上部臨界磁場 $H_{c2}^{\parallel c}$ の値は他の研究で求めた値と良い一致を示した。また、 $\gamma_{\lambda}$ は温度が下降するにつれて減少していく傾向と、 $\gamma_{\epsilon}$ の値が1を下まわるまで抑制される効果が見られることから、本研究ではBa(Fe, Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>の超伝導の多バンド構造で3次元性が支配的になると結論付けた。

第6章では、本研究により得られた結果をまとめ、今後の課題について述べている。

本論文は、多バンド超伝導体の異方性に関して理論と実験の両面から研究したものである。多バンド超伝導体の異方性に関して、初期の超伝導トルク理論では、渦糸コアの自由エネルギーへの寄与が不十分に評価されたのに対比して、本論文では自由エネルギーを内部磁場分布の離散 Fourier 解析法で表す新しいトルク理論を構築した。ついで、高温超伝導体である  $\text{MgB}_2$ 、 $\text{PrFeAsO}_{1-\delta}$ 、 $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  単結晶のトルク実験を行い、系統的に解析することで異方的超伝導体の多バンドの効果に関する新たな知見が得られ、次のような成果となっている。

- (1) 多バンド超伝導体のような渦糸コアの影響が重要になる系の超伝導トルクの解析のために、渦糸コアの性質を考慮したトルクモデルを構築した。本研究で導出したトルク公式では、Kogan 理論と異なりコアサイズの不確定性を補正するための  $\eta$  因子を必要とせず、トルク実験の解析によって正確な上部臨界磁場  $H_{c2}$  を見積もることができることを示した。また単一バンド条件  $\gamma_\lambda = \gamma_\epsilon$  において  $\eta$  因子の値が  $\gamma B/H_{c2}^{Hc}$  の関数として良くスケールされること、渦糸コアサイズの磁場依存性によること、 $\eta$  因子が 1 程度の定数ではなく磁場変化する関数であることを示した。
- (2)  $\text{MgB}_2$  単結晶を用いて、単一バンド Kogan モデルよりも多バンド Kogan モデルの方がより  $\text{MgB}_2$  のトルク曲線を良く説明できることを示した。この解析で  $\gamma_\epsilon$  の値が  $\gamma_\lambda$  に比べて小さくなる新しい現象を発見し、この  $\gamma_\epsilon$  の抑制現象が  $\sigma$  バンドと  $\pi$  バンドの超伝導キャリアのバンド間散乱による効果であるとする解釈を与えた。
- (3) 鉄ヒ素系高温超伝導体  $\text{PrFeAsO}_{1-\delta}$  単結晶において、常磁性の異方性からくるトルク寄与を補正し、磁場 30KG において磁場侵入長に関する異方性  $\gamma_\lambda$  はあまり大きくなく、温度とともに緩やかに上昇していく傾向を明らかにした。また温度依存性に着目した場合の  $\gamma_\lambda$  の値は、異方的常磁性と同様に 14K 以下の反強磁性秩序に表れると説明した。これは鉄ニクタイト系超伝導において  $T_N$  反強磁性と超伝導は共存することを示す初めての証拠を示したことになる。
- (4)  $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  単結晶では、磁場進入長の異方性  $\gamma_\lambda$  とコヒーレンス長の異方性  $\gamma_\epsilon$  は、ほぼ等方的な性質を持つことを示した。 $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  の理論的な  $\gamma_\lambda$  の予想値は 3 程度である予測されているが、本研究で得られた  $\gamma_\lambda$  は 1 ~ 3 の範囲となり良く一致するところ

を示した。 $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  単結晶の実験において、本研究で導出した  $\eta$  を含まないトルク理論により評価した上部臨界磁場  $H_{c2}^{\text{IIc}}$  の値は他の研究手法を使って報告された値と良い一致を示した。また、 $\gamma_{\parallel}$  が温度とともに減少する傾向と、 $\gamma_{\perp}$  が 1 より小さく抑制される効果は、 $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  の多バンド構造で 3 次元性が支配的になると説明した。

以上の諸成果は、異方的超伝導体の研究において適切に多バンド効果を取り入れた新しい理論を構築し、単結晶を用いた実験を実施し系統的な解析を与えたことは、詳細な研究が困難であった研究分野の現状を大きく変えるインパクトがある。さらに、実際の代表的な高温超伝導体である  $\text{MgB}_2$ 、 $\text{PrFeAsO}_{1-\delta}$ 、 $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  単結晶に適用し有用性を示したことは、本分野の学術的・産業的な発展に大きく貢献するとともに、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識を有することを証したものである。学位論文審査委員会は、本論文の審査の結果から、博士(工学)の学位を授与することを適当と認める。