博士（理学）　市　村　晃　一

学位論文題名

STM study of anisotropic superconducting gap of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$

（走査型トンネル顕微鏡による$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$の異方的超伝導ギャップの研究）

学位論文内容の要旨

低温用ＳＴＭ（走査型トンネル顕微鏡）を用い酸化物高温超伝導体$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$においてトンネル分光測定を行なった。この研究は、様々な結果の報告されている酸化物高温超伝導体のトンネル分光において統一的な見解をもたらすとともに、高温超伝導の発現機構を明らかにするという目的のもとに行なわれた。

ＳＴＭは、トンネル探針と試料との間の電子のトンネル効果を利用した測定手段である。探針は試料表面とは非接触であり、トンネル接合やポイントコンタクト等のトンネル分光法と比べて試料表面の電子状態を変えずに測定することができる有効な手段である。ＳＴＭでは、探針の位置を変えることにより試料の局所的な電子状態を探ることができる。実験には$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$単結晶を用い、そのへき開面と、それに垂直な側面において、トンネル微分コンダクタンスーバイアス電圧特性を測定した。

まず、へき開面において超伝導転移温度(T_c=87K)より十分低い温度4.2Kで測定を行ない、明確な超伝導ギャップ構造を観測した。試料表面の場所を変えて測定したところ、いくつかの試料では10nm程の範囲でギャップパラメーターΔが空間変化していることを見つけた。これは、この物質が第二種超伝導体で、短いコヒーレンス長(~1nm)を持つためと考えられる。また4.2KからT_c以上の高温まで、温度を変えて測定を行なった。低温で明確に観測されたギャップ構造が温度の上昇とともにぼやけていく様子が観測され、T_c以上で超伝導ギャップは消失した。ギャップパラメーターの温度変化はＢＣＳ理論と実験誤差の範囲内で一致した。

次に、へき開面で探針と試料の距離を変えて測定したところ、スペクトルの形が距離に依存することがわかった。探針と試料の距離が近いときには後述する真の電子状態密度に近いコンダクタンス曲線が得られるが、距離が遠いときには高バイアス領域

においてバイアス電圧の増加とともにトンネル微分コンダクタンスが上昇する傾向が見いだされた。この物質は、Cu-OやBi-Oの層の積み重ねからなる層状構造をしている。超伝導を担う金属的な電子状態はCu-O層内に局在し、一方へき開面に現われるBi-O層は半導体的である。このためへき開面でのトンネルでは、Cu-O層からの電子はBi-OやSr-Oの層と真空からなる複雑なトンネル障壁を通過することになる。このような場合、トンネル遷移確率のエネルギー依存はトンネル障壁の構造に極めて敏感になる。探針の距離を変えることは真空障壁の厚さを変えることに相当し、この結果遷移確率のエネルギー依存は強く変調を受けると考えられる。このため、へき開面でのトンネルコンダクタンスは必ずしも電子状態密度に比例しない。したがって、層状構造を持つ酸化物高温超伝導体のトンネル分光測定においてはＳＴＭ分光を含む全ての測定法において、トンネル障壁の性質を十分に制御した実験を行なわなければならないことが結論される。

このことが明らかになったため、真の電子状態密度を求めるべく、へき開面とは垂直な単結晶の側面において測定を試みた。側面での測定ではCu-O層の電子状態は表面に達しており、探針との間は真空のトンネル障壁のみで隔てられている。このため、トンネル障壁の構造によらないトンネルスペクトルが得られると期待される。しかしながら、Cu-O層が金属的であるために側面は表面の状態が不安定で、測定は極めて難しい。ごくまれに狭い領域(~0.2×0.2mm^2)で清浄な表面を得ることができる。そのような領域で測定を行なったところ、複数の試料のいくつかの位置で再現性のある結果を得た。このとき、探針と試料の距離を変えてもトンネル微分コンダクタンスは同一で変化を示さなかった。得られたコンダクタンス曲線の特徴は、ゼロバイアス付近でコンダクタンスがほとんどゼロにまで減少し、平坦な領域があるということである。これはギャップがフェルミ面全体で開いていることを強く示唆する。ギャップの両端では明確な盛り上がりを示し、高バイアス領域で電圧を増加させると、微分コンダクタンスは一定となる傾向を示した。また、ギャップの掘られた部分の面積とギャップの外へ押し上げられた部分の面積が一致した。つまり、側面で得られたコンダクタンス曲線では、ノーマル状態と超伝導状態とで確かに状態の数が保存する。これらのことから、側面で得られた微分コンダクタンスは高温超伝導体の超伝導状態における真の電子状態密度を表わしていることがわかる。

コンダクタンス曲線は、ゼロバイアス付近を除いて、ギャップ内の領域で有限のコンダクタンスを残している。これは、等方的(s-波)な電子対波動関数を仮定したBCS状態密度では説明できず、d-波的な異方的電子対が強く示唆される。d-波的異方性のためにギャップがノードを持ちフェルミ面上の線あるいは点で消失している場合、低エネルギー領域での電子状態密度はエネルギーのべき乗に比例する。しかし、得られたコンダクタンス曲線はこの様なべき乗則とは異なる。そこでギャップの値が、平均値Δ_1を中心に幅2Wで波数空間の方向に依存して変化しているモデルを考えたところ、Δ_1=21meV, W=0.5Δ_1としたときによい一致が得られた。このことは、ギャップに少なからず異方性はあるものの、フェルミ面全体にわたって少なくともΔ_1-W~10meVのギャップが開いていることを示す。得られた平均のギャップ値$\Delta_1 \simeq$ 21meV, $2\Delta_1/kT_c \simeq 6$はこの超伝導が強結合であることを明確に示している。

このような側面におけるトンネル分光測定の結果を確かめるために磁場侵入長λの温度変化を単結晶の磁化率の測定から求めた。磁場侵入長の低温における温度依存性は低エネルギー励起を敏感に反映する。フェルミ面の全体でギャップが開いている場合、$\lambda(T)-\lambda(0)$は有限の励起エネルギーをともなった熱活性化型で与えられ、ギャップがフェルミ面上の線あるいは点で消失している場合は温度のべき乗に比例する。実験から得られた磁場侵入長の温度変化は明確に熱活性化型の振舞いを示し、フェルミ面の全体でギャップが開いているというトンネル分光測定での結果を強く支持する。このとき活性化エネルギーとして見積られるΔは、上記のギャップの最小値 Δ_1-W$\simeq$10 meVとほぼ一致する。

以上に示されるように、$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$の超伝導状態の電子状態密度は、フェルミ面全体にギャップを示し、かつギャップの異方性も相当に大きいことがわかった。このことは、超伝導電子対に対して純粋なd-波の対称性では説明できず、s-波の成分がかなり大きいことを示している。一方、小さくない異方性はd-波の寄与も示唆しており、超伝導電子対の形成がs-波とd-波の混合の対称性を持った電子間引力によることが理解される。酸化物高温超伝導体では、超伝導を担うCu-O層内の電子間の相関は極めて強くon-siteの電子間引力が大きくなるのは難しいと考えられている。本研究において得られた異方的な超伝導ギャップはd-波の相当の混ざりを表しており、電子間の引力が必ずしも局在していないことを示している。

学位論文審査の要旨

主　査　　教　授　　三本木　　孝

副　査　　助教授　　野　村　一　成

副　査　　助教授　　大　川　房　義

学　位　論　文　題　名

STM study of anisotropic superconducting gap of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$

（走査形トンネル顕微鏡による$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$の異方的超伝導ギャップの研究）

$La_{2-x}Ba_xCuO_4$において30Kを超える転移温度を持つ超伝導が発見されて以来、類似の結晶構造を持つ酸化物において相次いで高温超伝導が発見された。これらがいずれも、銅と酸素からなる層（Cu-O層）を骨格に持ち、このCu-O層内の電子が高温超伝導を担うことが解っている。また、その転移温度が電子格子相互作用による電子間引力を媒介としたBCS超伝導体に対する理論的上限値を大きく上回っていることから、新しい超伝導機構が示唆され、現在までに数多くの研究がなされている。

これまでBCS超伝導体にたいしてトンネル分光法により超伝導相の電子状態密度が測定されている。その結果は、超伝導相のエネルギーギャップ構造を最も明確に示すとともに、電子格子相互作用により超伝導がもたらされることの確証を与えている。高温超伝導体についてもその発現機構を明らかにするため、その発見以来多くのトンネル分光の研究が行われた。しかし、現在のところ必ずしも確定した結果は得られていない。トンネル分光測定において信頼性のある結果を得ることにより、高温超伝導の発現機構を探ることは固体物理学において重要な意義を持つものである。

申請者の研究は、試料に非接触なトンネル探針により局所的な電子状態が測定できるトンネル顕微鏡を用いて、高温超伝導体$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$において超伝導相の正確な

電子状態密度を測定し、この結果を基に超伝導電子対の波動関数並びに電子間引力の対称性を議論したものである。その内容の主要部分は下記のように要約される。

トンネル分光測定は、単結晶試料のへき開面とそれに垂直な側面において行われた。まず、へき開面におけるトンネル微分コンダクタンスを測定し、明確な超伝導ギャップ構造を観測した。トンネルコンダクタンスより求めたギャップパラメーターの温度変化はＢＣＳ理論と一致した。しかし、へき開面でのトンネルコンダクタンスが探針と試料の距離に依存する特異な振舞いも見いだした。酸化物超伝導体は、Cu-O層や他の層の積み重ねからなる層状構造をしている。申請者は、トンネルコンダクタンスの探針と試料の距離依存を、このような層状構造を通過してトンネルする電子の遷移確率のエネルギー依存によるものとして説明した。この結果は、層状構造を持つ酸化物高温超伝導体のトンネル分光測定において、トンネル障壁の微視的な制御が不可欠であることを明確にしたものである。

一方、表面に直接的に超伝導電子状態が現れている単結晶の側面での測定から、探針と試料の距離に依存しないトンネル微分コンダクタンスを得た。コンダクタンス曲線においてノーマル状態と超伝導状態とで状態数が保存していることから、側面での微分コンダクタンスは真の電子状態密度に対応すると結論した。得られた電子状態密度は、フェルミ面上に開いた有限のギャップとともに、ギャップ端の内側にも相当の状態の存在を示した。これは、等方的（ｓ波）な電子対波動関数を仮定したＢＣＳ状態密度とは異なり、平均値Δ_1=21meVを中心に幅2W（ W=0.5Δ_1）で波数空間の方向に依存して変化する異方的ギャップに対応すると解釈された。この異方的な超伝導ギャップは引力相互作用におけるｄ波の相当の混ざりを示唆しており、この系において電子間の引力が局在したものだけでないことを、申請者は推論している。

以上のように、申請者の研究は、酸化物高温超伝導体の超伝導相における電子状態密度をトンネル顕微鏡を用いた分光測定により実験的に調べ、超伝導電子対波動関数がｓ波とｄ波の混合の対称性を持つことにより理解できることを示し、高温超伝導の起源となる電子間引力を特定する上で指針となるデータを提供したもので、高温超伝導の発現機構の研究に大きな貢献をなすものである。

よって、審査員一同は申請者が博士（理学）の学位を受ける資格があるものと認めた。