

アルカリ金属アマルガム・グラファイト層状化合物 (C_8MHg , $M=K, Rb$) の超伝導に対する圧力の効果

物性研

家 泰弘 田沼 静一

前回の研究会では、アルカリ金属・アマルガム・グラファイト層状化合物のオ1ステージ C_8MHg ($M=K, Rb$)、およびオ2ステージ C_8MHg とともに超伝導になりしことを報告し、超伝導異方性のステージ依存性を議論した^[1]。今回は、これらのうち高い T_c を持つオ2ステージ化合物について、超伝導の圧力依存性を調べる。

高圧下での測定の際は、2つある。一つは、諸物性の圧力依存性との組合わせで、これらの物質における超伝導の機構を探る手掛りを得ようというものである。もう一つは、圧力によつて層間のカップリングの強さを変えて2次元性をコントロールしてみようというものである。超伝導に関しては、この種の物質はアマルガム層の間にグラファイト層をスペーサーとして挿入したものと見ることが許されるかと思うが、この意味では、グラファイト層の挿入と圧力の印加とは相補的な働きを持っている。すなわち前者は系の2次元性を増し、後者はこれを減ずる。

Fig. 1に圧力セルの断面図を示す。これはクランプセルあるいはマイクロポンプと呼ばれる圧力セルで、基本的にはピストンとシリンドラからなる。圧力媒体としてシリコンオイルを用い、可動部の圧力シールは銅とテフロン製のO-リングによって行っている。高圧を得るにはピストンをプレスで押して適当な圧力まで加圧したところで、ピストンをクランプし、これをクライオスタットにヒキつけて低温にもって行く。低温での圧力は、圧力媒体の収縮や固化時の体積変化によつて、クランプした圧力よりも幾分減少する。本実験では、低温での圧力をマンガン線の抵抗圧力ゲージを用いて決定した。マンガン線の抵抗の圧力依存性は20 kbarくらいまで直線的であり、その係数は $(d \log R / dp) \sim 2.0$ ないし $2.5 \times 10^{-3} \text{ kbar}^{-1}$ である。この圧力係数は室温温度でも殆んど変わらないことが知られているので、室温で校正したマンガン線圧力ゲージを使って低温でのクランプセル内の圧力を推定することが出来る。Fig. 1の挿入図はクランプ圧 P_c と低温での圧力 P_f との関係を示したもので、両者の関係はほぼ

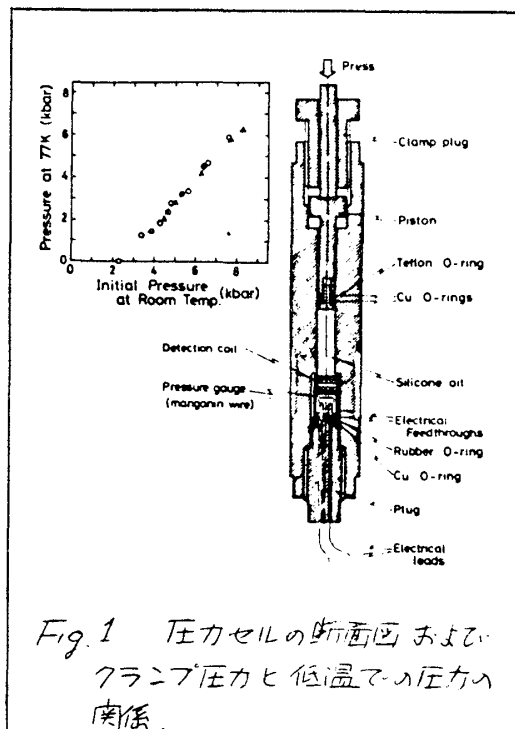


Fig. 1 圧力セルの断面図およびクランプ圧と低温での圧力との関係。

$$P_f = \alpha (P_c - P_0) \quad \left(\begin{array}{l} \alpha \sim 1.1 \\ P_0 \sim 24 \text{ kbar} \end{array} \right)$$

と表わされる。圧力を変えるには、一旦室温に戻してクランプし直すことになる。一つの試料についていくつかの圧力で測定する為には、その様なサイクルを数回繰り返すわけであるが、その間に試料が変質することを防ぐため、シリコンオイルは充分にガス出しを行な、してから使用する。また試料が室温にある時間を極力短くするようにした。その上で、一連の実験の最初と最後に常圧下での測定を行な、て再現性を確認している。ここで用いた、シリコンオイルで試料を大気から保護するという方法は、圧力の実験に限らず、グラファイト層状化合物の取扱いのいろいろな面に応用できると思われる。

超伝導の検出は、低周波(27Hz)の交流誘導率の測定によ、て行な、た。

Fig. 2は C_8KHg の超伝導臨界磁場 $H_{c2}^{\parallel}$, $H_{c2}^{\perp}$ の温度依存性を圧力をパラメータとして示したものである。Fig. 3は C_8RbHg についての同様の結果である。なお、 $H_{c2}^{\parallel}$ と $H_{c2}^{\perp}$ の $\parallel$ と $\perp$ の使い方は文献によ、てまちまちで混乱があるが、ここではC軸に対して平行・垂直の意味で使う。

T_c についての議論はあと回しにして、まず異方性について見ることにする。

$H \parallel C$ 軸の場合、 H_{c2} vs T の直線の傾きは圧力に依らずほぼ一定であるのに対して、 $H \perp C$ 軸の場合には圧力とともに傾きが小さくなる、ているのが見られる。すなわち、圧力とともに H_{c2} の異方性は小さくなる、ている。こいをも、とは、きりした形で見えるために

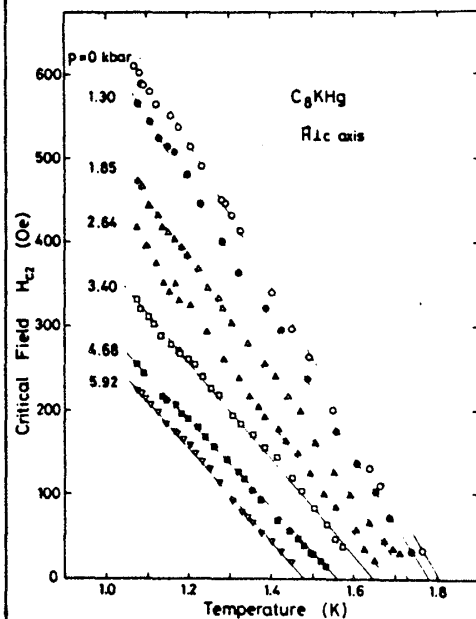
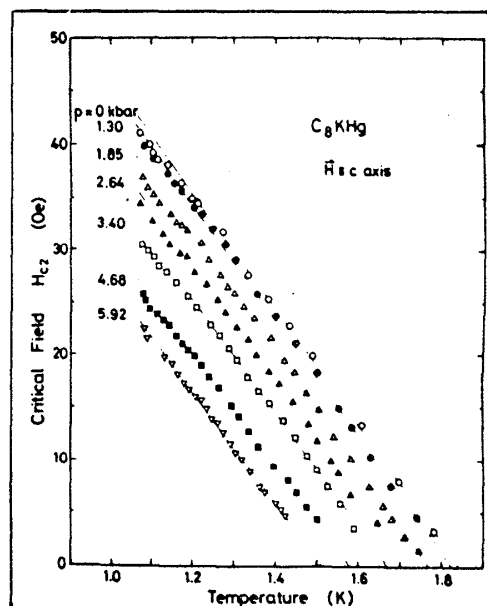


Fig 2 C_8KHg の $H_{c2}^{\parallel}$ および $H_{c2}^{\perp}$ の圧力-温度依存性.

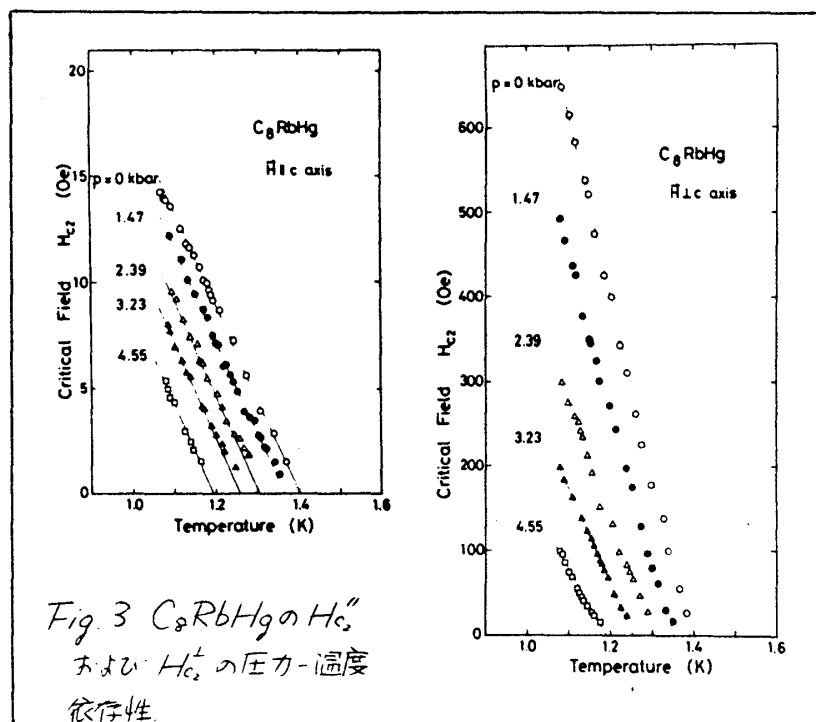


Fig 3 C_8RbHg の $H_{c2}^{\parallel}$ および $H_{c2}^{\perp}$ の圧力-温度依存性.

コヒーレンス長 ξ を求める。 T_c 付近での H_{c2} の直線的な温度依存性に、異方性を考慮した GL 理論による次の表式

$$H_{c2}^{\parallel} = \frac{\Phi_0}{2\pi \xi_a^2(0)} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)$$

$$H_{c2}^{\perp} = \frac{\Phi_0}{2\pi \xi_a(0) \xi_c(0)} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)$$

を適用することにより、 $T=0\text{K}$ での GL コヒーレンス長 $\xi_a(0)$ (層面方向) および $\xi_c(0)$ (c 軸方向) を求めると、その圧力依存性は Fig. 4 の様になる。 $\xi_a(0)$ は圧力に依らずほぼ一定であるのに対して $\xi_c(0)$ は圧力の増加とともに大巾に増大している。このことは圧縮率の異方性に関連している。すなわち、層面内の格子は非常に強く殆んど圧縮されないのに対して、c 軸方向は比較的大きな圧縮率をもっている。しかも $\xi_c(0)$ は層間のカ、ブリングの強さに敏感であるため、このような大きな圧力依存性を示す。 $\xi_c(0)$ の圧力による増加は、4 kbar 以上で飽和する傾向を示している。

Fig 5 は圧力による T_c の変化を示したものである。一般的に言て、 T_c に対する圧力の効果はいろいろな要素のからむ複雑な問題であるが、BCS および McMillan による表式

$$T_c \sim \langle \omega \rangle e^{-\frac{1}{g}} \quad g = \frac{N(0)J^2}{M\langle \omega^2 \rangle}$$

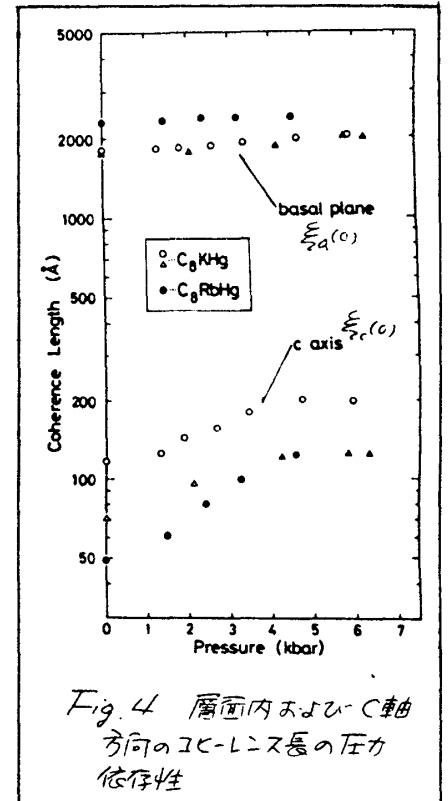


Fig. 4 層面内およびc軸方向のコヒーレンス長の圧力依存性

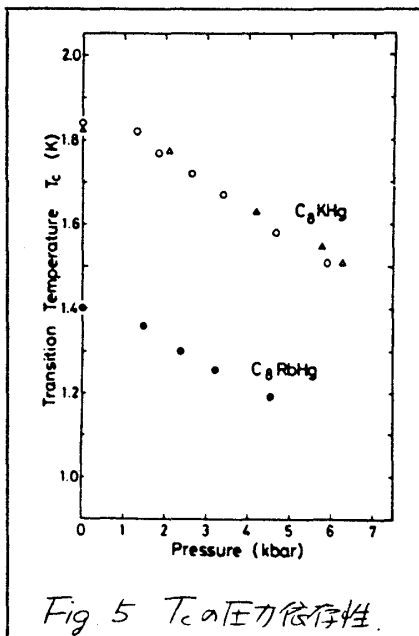


Fig. 5 T_c の圧力依存性

に基づいて考えると、圧力の効果は大雑把に言て $N(0)$ (フェルミ面の状態密度) および ω (フォノン振動数) の圧力依存性を通して入ってくる。まずフォノンについて考えると、圧力は ω を増加させる。これは pre-exponential factor を増加させるか、通常は g を減少させる寄与の方が勝って T_c を押し下げる方向に働く。一方、 $N(0)$ からくる圧力依存性はバンド構造の詳細により、 T_c を上昇させる場合も抑える寄与をする場合もある。それに加え、圧力によって結晶変態が生じたり、あるいは超伝導と競合する様な他の秩序状態 (例えば、磁気的秩序、CDW など) が存在する場合には問題は更に複雑になる。

C_6KHg , C_6RbHg の場合、 T_c の圧力依存性に不連続がないことから、結晶変態はこの圧力範囲では起きていない様である。 T_c の圧力依存性の要因としては次の二つが考えられる。

一つは先に述べたフォノン振動数の増加による電子・フォノン結合定数の減少である。もう一つの可能性は、圧力によって層間距離が変わることによる、アマルガム層とグラファイト層の間の電荷移動量の変化、これが $N(0)$ の変化をもたらすということである。どちらの要因が重要であるかを議論するには、他の諸物性の圧力依存性の測定を待たねばならないが、それはまたこの物質における超伝導の本質を明らかにする上で有用な情報を与えてくれると期待される。

本研究を行なうにあたり、高圧下での実験について助言を下された物性研の箕村茂教授と辻和彦氏に感謝致します。

[1] Y.Iye and S.Tanuma, to be published in Phys. Rev.