

双能隙超导体 MgB_2 的热导^{*}

杨东升 吴柏枚 李 波 郑卫华 李世燕 樊 荣 陈仙辉 曹烈兆

(中国科学技术大学结构分析开放实验室, 物理系, 合肥 230026)

(2002 年 6 月 10 日收到 2002 年 7 月 9 日收到修改稿)

测量了多晶 MgB_2 的热导, 实验温区为 5—300K. 在双能隙模型下, 用基于 BCS 超导理论的 BRT 热导理论对实验结果进行了分析, 给出 MgB_2 中两个能隙大小分别为 1.6 和 5.1meV. 对电子热导的分析结果表明 σ 能带准粒子受到的杂质散射远小于 π 能带准粒子受到的杂质散射. 与单晶 MgB_2 的热导实验结果相比, 多晶 MgB_2 的声子热导结果表明在 c 方向上热传导声子受到来自 σ 能带准粒子的散射, 显示了 MgB_2 在能量输运上的各向异性.

关键词: MgB_2 , 热导率, 能隙

PACC: 7215E, 7430F

1. 引 言

自从 MgB_2 高达 39K 的超导性质被发现以来^[1], 人们对这种结构简单的二元化合物的各种物理性质进行了大量的研究^[2-5], 试图寻找 MgB_2 较高 T_c 的奥秘. 这些研究结果表明 MgB_2 是一种以声子为媒介的中等耦合强度 s 波电子配对超导体, 但 MgB_2 的超导性质在很多方面还与传统的 BCS 超导理论模型有很大的偏差. 热导作为一种基础性的输运性质测量, 可以反映正常态和超导态下的声子和准粒子的运动规律^[6,7]. 迄今已经有好几个研究小组对 MgB_2 的热导进行了测量^[8-12], 从已有的测量结果来看, 数值上并不一致, 甚至相差不少, 而且较早的报道中对热导实验结果的分析也比较简单. 本文给出了多晶 MgB_2 在 5—300K 温区的热导测量结果, 应用以 BCS 超导理论为基础建立的 BRT 热导理论, 在双能隙模型下对实验结果进行了分析与拟合.

2. 样品与实验

MgB_2 多晶样品使用固态反应法制备. 高纯度的 Mg 和 B 粉以化学配比均匀混合并压片, 包在 Ta 箔里, 然后密封在不锈钢管里, 在 950℃ 下通氩气流加

热 4h, 重复以上过程, 最终得到高密度的块状样品. 通过 x 射线衍射 (XRD) 分析发现没有杂相存在. 电导率测量采用常规的四端引线法, 热导率测量采用稳态热流法, 在自制的装置中进行. 使用镍铬-康铜差分热偶测量样品上的温差, 热偶上的温差电势使用 Keithley 2182 纳伏表测量. 整套实验装置采用计算机控制, 实现温度的自动控制和实验数据的自动采集^[13].

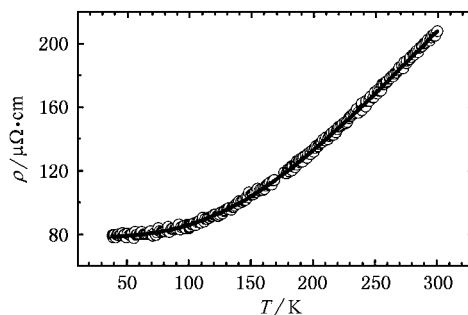


图 1 MgB_2 在 T_c -300K 温区的电阻率 — 为拟合曲线, \circ 为实验数据点

3. 结果与讨论

图 1 给出零场下的电阻率实验结果. 由实验曲线可知样品的 $T_c = 37.5K$, $\Delta T_c < 1K$. 室温附近的电

* 国家自然科学基金(批准号:10174070)和国家重点基础研究专项基金(批准号:G19990646)资助的课题.

阻率为 $210\mu\Omega\cdot\text{cm}$, T_c 附近的电阻率为 $80\mu\Omega\cdot\text{cm}$, 剩余电阻率比为 2.6. 正常态电阻率实验数据可以用 Bloch-Grüneisen 公式在整个温区很好地拟合:

$$\rho(T) = \rho_0 + (m-1)\rho'_0 \left(\frac{T}{\Theta_D}\right)^m \times \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^m dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})}.$$

拟合结果给出: $m = 3$, $\rho_0 = 77.8\mu\Omega\cdot\text{cm}$, $\Theta_D = 1130\text{K}$, $\rho'_0 = 0.72\mu\Omega\cdot\text{cm/K}$. 这些拟合数据表明, 在正常态下, 电-声子相互作用在 MgB_2 的电荷输运中起着重要的作用.

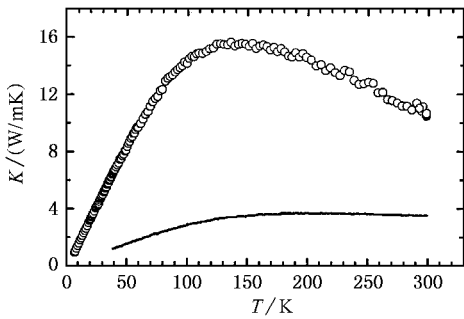


图2 MgB_2 在 5—300K 温区的热导率测量结果(○)及由电阻率数据计算出的正常态电子热导率 $\kappa_{e,n}$ (—)

图 2 给出 5—300K 温区内的热导率测量结果. 热导率值和其他报道中的多晶样品热导率值为同一数量级, 在低温下随温度上升单调增大, 在 T_c 附近没有发现明显的反常, 在 130K 左右有一个宽的极大. 由电阻率实验测量数据, 通过 Wiedemann-Franz 定律, 可以得到正常态电子热导为

$$\kappa_e(T) = \frac{L_0 T}{\rho(T)}, \quad L_0 = 2.45 \times 10^{-8} \text{W}\Omega\text{K}^{-2}.$$

从图 2 可以看到由电阻率实验结果给出的正常态电子热导. 在正常态下, MgB_2 多晶样品的电子热导占整体热导的(25—30)%左右. 根据 Matthiessen 定律, 电子导热主要受到来自声子和晶格缺陷两方面的散射, 晶格缺陷对电子的散射产生的热阻正比于 T^{-1} , 声子对电子的散射产生的热阻正比于 T^2 , 因此, 电子热阻可以写为

$$\frac{1}{\lambda_e(T)} \equiv W_e(T) = W_{e,0}(T) + W_{e,ph}(T) = \frac{A}{T} + BT^2.$$

用上式对 T_c 附近的正常态电子热导进行拟合, 得到 $A = 3.32\text{mK}^2/\text{W}$, $B = 2.32 \times 10^{-6} \text{m/WK}$. 拟合结果

显示在 T_c 附近, 电子受到的来自晶格缺陷的散射占电子受到的总散射的 96% 以上, 声子对电子的散射远远小于晶格缺陷对电子的散射.

在 40K 以下, 取电阻率 $\rho(T) = \rho_0$, 正常态电子热导率 $\kappa_{e,n} = L_0 T/\rho_0$. Bardeen 等人在 BCS 超导理论的基础上, 给出了超导态下的电子和声子热导, 这里称为 BRT 热导理论^[14]. 将超导体中的低能激发态看作是准粒子, 通过求解 Boltzmann 方程, 在电子主要受到来自晶格缺陷散射的情况下, 可以计算超导态下的电子热导率. 取能隙宽度为零, 即可得到正常态电子热导率. BRT 热导理论指出, 超导态电子热导率和正常态电子热导率之比为

$$f(T) = \frac{\kappa_{es}(T)}{\kappa_{en}(T)} = \frac{2F_1(-y) + 2y \ln(1 + e^{-y}) + y^2(1 + e^y)}{2F_1(0)},$$

其中 $F_n(-y) = \int_0^\infty \frac{z^n dz}{1 + e^{z+y}}$, $f(T)$ 为与超导能隙有关的函数.

声子热导率一般可以写为

$$\kappa_s(T) = AT^3 \int_0^\infty \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} \tau(T) dx,$$

其中声子弛豫率可以表示为各散射之和

$$\tau^{-1}(T) = 1 + \alpha T^4 x^4 + \delta T x + \gamma T x g(x, y),$$

其中各项分别代表边界散射、点缺陷散射、位错散射和电子散射. $g(x, y) = \tau_{es}^{-1}/\tau_{en}^{-1}$, 代表由于电子散射造成的声子弛豫率在超导态下和正常态下的比率. 声子的频率谱取 Debye 近似, Debye 温度取比热实验给出的值, $\Theta_D = 800\text{K}$. 因为温度远远低于德拜温度, $T \ll \Theta_D$, 可以忽略声子间的 U 过程散射.

在超导态下, 随温度的降低, 准粒子数目减少, 电子热导减小. 同时, 因为声子受到准粒子的散射减少, 声子热导增加. 如果使用 BCS 超导理论的各向同性单能隙对实验数据进行拟合, 只能使用远小于 BCS 超导理论值大小的能隙, 与实验结果也不能很好地符合.

MgB_2 的能带结构计算, 如 Liu 等人^[15,16]指出, MgB_2 中费米面附近的电子能态主要来源于 B 原子的 p 轨道电子, p_x, y 轨道 σ 反键态形成准二维的圆筒状费米面片, p_z 轨道 π 成键和反键态形成三维的管状网络费米面片, 不同的费米面片上形成不同的能隙. 比热、拉曼散射、光电发射等实验结果都表明超导态 MgB_2 中存在双能隙结构^[17-23]. 双能隙结构对

MgB_2 的超导性质具有很重要的作用。

BCS 超导理论适用于弱耦合各向同性单能隙超导体, 对于双能隙超导体而言, 因为能隙之间的耦合作用, 两个能隙在同一温度打开, 仅仅得到一个较小的单能隙并没有多大的意义。比热等实验结果显示 MgB_2 的双能隙是一种体性质, 通过热导实验可以观察双能隙结构对 MgB_2 中的能量输运过程产生的影响。

假设 MgB_2 中存在两个各向同性能隙 Δ_1 和 Δ_2 , 两个能隙的温度依赖关系遵从 BCS 超导理论, 电子热导

$$\kappa_{es} = \kappa_{es1} + \kappa_{es2} = a\kappa_{en}f_1(T) + (1-a)\kappa_{en}f_2(T),$$

电子热导数据由三个独立的参数 Δ_1 , Δ_2 和 a 来拟合, $f_1(T)$ 和 $f_2(T)$ 是由能隙宽度 Δ_1 和 Δ_2 决定的函数, 和两个能隙分别相关的电子对电子热导的贡献的相对权重 $a = \kappa_{es1}/\kappa_{es}$, $1-a = \kappa_{es2}/\kappa_{es}$ 。

对于晶格热导而言, 与不同的能隙 Δ_1 和 Δ_2 分别相关的准粒子与声子的碰撞造成的声子弛豫率分别为 $g_1(x, y)$ 和 $g_2(x, y)$, 其中 $y(T)$ 为能隙的函数。声子与准粒子散射造成的总弛豫率为两部分之和, $g(x, y) = bg_1(x, y) + (1-b)g_2(x, y)$, 两部分在总弛豫率中的相对权重 $b = g_1(x, y)/g(x, y)$, $1-b = g_2(x, y)/g(x, y)$ 。

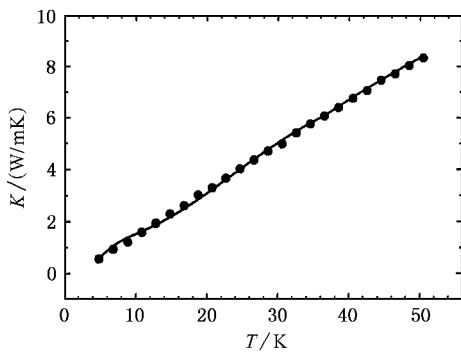


图3 MgB_2 在 5—50K 温区的热导率 ● 为实验结果, — 为拟合曲线

图 3 给出 5—50K 温区热导率的实验测量结果和拟合曲线。对实验数据的拟合结果给出两个能隙的大小分别为 1.6 和 5.1 meV, 两个能隙大小之比为 3.2。两个能隙在电子热导和声子热导中的贡献的相对权重参数 $a = 0.11$, $b = 0.85$, 亦即在电子热导中, 主要的贡献来源于较大的能隙, 而在声子热导中, 则主要的散射来源于较小的能隙。

我们得到的两个能隙的大小与其他一些实验如比热、拉曼散射、光电发射等得到的结果大致符合^[20-23]。Sologubenko 等人用类似的方法处理了单晶 MgB_2 基平面内的热导^[12], 得到两个能隙的大小分别为 1.65 和 5.3 meV, 我们的多晶样品和他们的单晶样品的结果相当一致。

Mazin 等人指出^[24], 对于类似于我们实验中使用的中等质量的多晶样品, 具有相对较低的 T_c 和较大的剩余电阻率 ρ_0 , 在双能隙模型下, 应有 σ 能带上的带内杂质散射小于 π 能带上的带内杂质散射。从我们的热导拟合结果看, 电子热导主要来源于较大的能隙, 较大的能隙与准二维的 σ 能带费米面片相联系, 亦即 σ 能带上的准粒子受到的杂质散射较小, 这一结果与 Mazin 等人的理论模型预言一致。对于类似于 Sologubenko 等人使用的高质量单晶样品, 具有较高的 T_c 和较小的剩余电阻率, σ 能带与 π 能带上的带内杂质散射相差较小, 因此得到相应的参数值略大。

单晶样品的拟合结果指出 MgB_2 在 ab 平面内的声子热导受到的准粒子散射几乎全部来源于与较小能隙相关的准粒子。对于多晶样品, 实验中测量到的声子热导包含 ab 平面内和 c 方向两部分声子热导贡献。与单晶样品的结果相比, 我们的多晶样品的实验结果表明, 在 c 方向上声子热导受到了少量来源于较大能隙的准粒子的散射, 这一结果显示了单晶 MgB_2 在能量输运上的各向异性, 与 MgB_2 的多能带结构有关。

4. 结 论

本文给出 MgB_2 多晶样品在 5—300K 温区的热导测量结果。在 T_c 附近没有观察到热导的明显变化, 这一现象很难用传统的单能隙 BCS 超导理论来解释。在双能隙模型下, 则可以用基于 BCS 超导理论的 BRT 热导理论很好地解释实验结果。结果给出 MgB_2 中两个能隙的大小分别为 1.6 和 5.1 meV。从电子热导分析结果看, σ 能带上的准粒子受到的杂质散射远小于 π 能带上准粒子受到的杂质散射。与单晶样品的热导实验结果相比较, 多晶样品的声子热导表明在 c 方向上声子受到来源于较大能隙的准粒子的散射, 这一结果显示了 MgB_2 在能量输运上的各向异性, 也是 MgB_2 中各向异性多能带结构的反映。

- [1] Nagamatsu J , Nakagawa N , Muranaka T , Zenitani Y and Akimitsu J 2001 *Nature* **410** 63
- [2] He L H , Hu G Q , Zhang P L and Yan Q W 2001 *Chin. Phys.* **10** 343
- [3] Zhao Z W *et al* 2001 *Chin. Phys.* **10** 340
- [4] Yang H S *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1197 (in Chinese) [杨宏顺等 2001 物理学报 **50** 1197]
- [5] Buzea C and Yamashita T 2001 *Supercond. Sci. Technol.* **14** R115
- [6] Wu B M *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 267 (in Chinese) [吴柏枚等 2000 物理学报 **49** 267]
- [7] Yang D S *et al* 1999 *Chin. J. Low Temp. Phys.* **21** 405 (in Chinese) [杨东升等 1999 低温物理学报 **21** 405]
- [8] Muranaka T , Akimitsu J and Sera M 2001 *Phys. Rev. B* **64** 020505
- [9] Bauer E *et al* 2001 *J. Phys. :Condens. Matter* **13** L487
- [10] Schneider M *et al* 2001 *Physica C* **363** 6
- [11] Putti M *et al* 2001 *cond-mat/0109174*
- [12] Sologubenko A V , Jun J , Kazakov S M , Karpinski J and Ott H R 2001 *cond-mat/0111273*
- [13] Yang D S and Wu B M 1999 *Chin. J. Low Temp. Phys.* **21** 156 (in Chinese) [杨东升、吴柏枚 1999 低温物理学报 **21** 156]
- [14] Bardeen J , Rickayzen G and Tewordt L 1959 *Phys. Rev.* **113** 982
- [15] Tan M Q and Tao X M 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1193 (in Chinese) [谭明秋、陶向明 2001 物理学报 **50** 1193]
- [16] Liu A Y , Mazin I and Kortus J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 087005
- [17] Zhang J *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 342 (in Chinese) [张杰等 2002 物理学报 **51** 342]
- [18] Wang Y , Plackowski T and Junod A 2001 *Physica C* **355** 179
- [19] Bouquet F , Fisher R A , Phillips N E , Hinks D G and Jorgensen J D 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 047001
- [20] Bouquet F *et al* 2001 *Europhys. Lett.* **56** 856
- [21] Szabo P *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 137005
- [22] Chen X K , Konstantinovic M J and Irwin J C 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 157002
- [23] Tsuda S *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 177006
- [24] Mazin I I *et al* 2002 *cond-mat/0204013*

Thermal conductivity of two-energy-gap superconductor MgB₂ *

Yang Dong-Sheng Wu Bai-Mei Li Bo Zheng Wei-Hua Li Shi-Yan Fan Rong Chen Xian-Hui Cao Lie-Zhao
(Structure Research Laboratory , Department of Physics , University of Science and Technology of China , Hefei 230026 , China)

(Received 10 June 2002 ; revised manuscript received 9 July 2002)

Abstract

We present in this paper the thermal conductivity of the superconductor MgB₂ between 5—300 K. The temperature dependence of the thermal conductivity can be fitted with the BRT thermal conductivity method by a phenomenological two-gap model. The sizes of the two energy gaps are 1.6 and 5.1meV. The analysis about electronic thermal conductivity indicates that the σ -band impurity scattering rate is small relative to the π -band scattering rate. In contrast to the single-crystal sample , our result indicates that the scattering of phonons from the σ -band quasi-particles exist in the c -axial direction heat transport of a polycrystalline sample. This result demonstrates the anisotropic energy transport in MgB₂ .

Keywords : MgB₂ , thermal conductivity , energy gap

PACC : 7215E , 7430F

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10174070) , and the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China (Grant No. G19990646) .