

論文の内容の要旨

論文題目 T* 型銅酸化物超伝導体のジョセフソン・プラズマモード

氏名 掛下 照久

高温超伝導体の研究は、発見以来十余年が経過し、現在では、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 系、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 系、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 系が、研究の主流を形成している。その理由としては、これらの系は研究初期の段階で、単結晶作成法が確立し、定量的な詳細な物性測定が可能になったことがあげられる。主にこれらの系の研究を通じて露になった高温超伝導の特徴としては、以下の3つがあげられる。

- 擬ギャップ
- ストライプ相関
- c軸 Josephson プラズマ

擬ギャップとは、アンダードープ域の常伝導状態からスピン系に開き始めるギャップのことであり、物質間に大きさ差はなく、温度に換算すると、 $\Delta \sim 200\text{K}$ ほどの大きさであり、高温超伝導の起源であると考えられている。つまり、本来、どの高温超伝導体物質においても、その擬ギャップ程度の大きさの T_c を持ちうることになるが、現実には、 T_c は最適組成でみたとき、 $25\text{K} \sim 135\text{K}$ まで分布している。このことに関しては、ストライプの相関の強さが、 T_c の抑制の要因ではないかということが現在提案されている。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ や $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ で見られる動的な非整合の磁気秩序は、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ よりも高エネルギーの励起を持ち、これらの系においてはストライプ相関の揺らぎが $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 系よりも大きいとするならば、 $\sim 90\text{K}$ の T_c を有する $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ や $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ が正常な超伝導層であるのに対し、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ はストライプ相関の強さによって T_c が 40K に押さえられているのではないかということである。実際、 LaSrAlO_4 基盤上の

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x = 0.1$) 薄膜においては、バルクの T_c が $\sim 25\text{K}$ であるのに対し、 $\sim 50\text{K}$ の T_c を示すことが報告されており [1]、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の T_c が 40K 以上になりうる能力を本質的に有していることを示している。これらは、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ が本来持ちうる T_c を抑制している要因がなんらかの理由で取り除かれたためであると考えられる。

T^* 構造超伝導体は、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ と同じく単位胞に CuO_2 面を持ち、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ が単位胞中に含まれる 2 つのブロック層として岩塩構造を持ち CuO_6 八面体のネットワーク構造であるのに対し、 T^* 構造では、一方が岩塩構造、もう一方が蛍石構造という二種類のものを持ち、 CuO_5 ピラミッドのネットワーク構造を有している。この物質は、高温超伝導体研究の初期に発見されたものであるが [2, 3]、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 以上に T_c が低く ($\sim 30\text{K}$)、また著しい酸素欠損を起こすということから、高温超伝導の研究の歴史の中で埋もれていた物質である。

T^* 構造超伝導体を研究する目的としては、大きく二つあげられる。一つは、この T_c の低さということに着目し、この系においても $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ のような強いストライプ相関がみられるのかどうかということである。もう一つは、 c 軸 Josephson プラズマの研究である。 c 軸 Josephson プラズマとは、常伝導状態において、ブロック層が絶縁層の役目を果たすことによって面内に閉じ込められていたキャリアが、超伝導転移によって面間をコヒーレントに運動できるようになり、サブミリ～遠赤外という低エネルギー領域に現れる超伝導キャリアのプラズマ振動のことである [4]。この c 軸 Josephson プラズマにおい

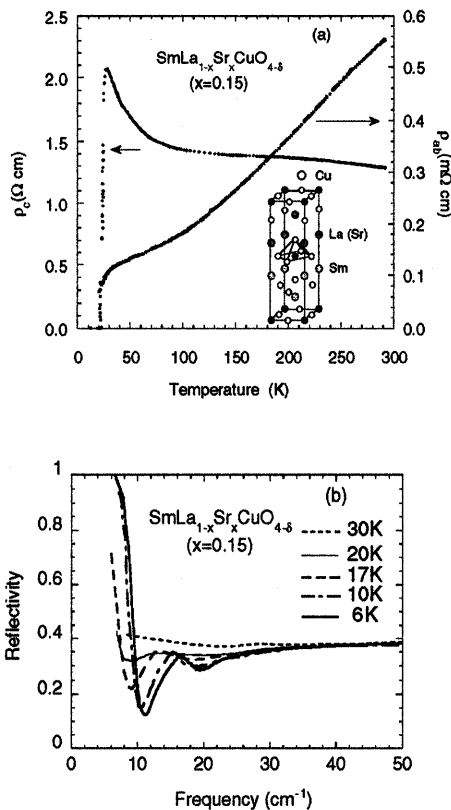


図 1: $\text{SmLa}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-d}$ ($x = 0.15$) の、(a) 面内及び面間電気抵抗率。(b) 面間光学反射率。

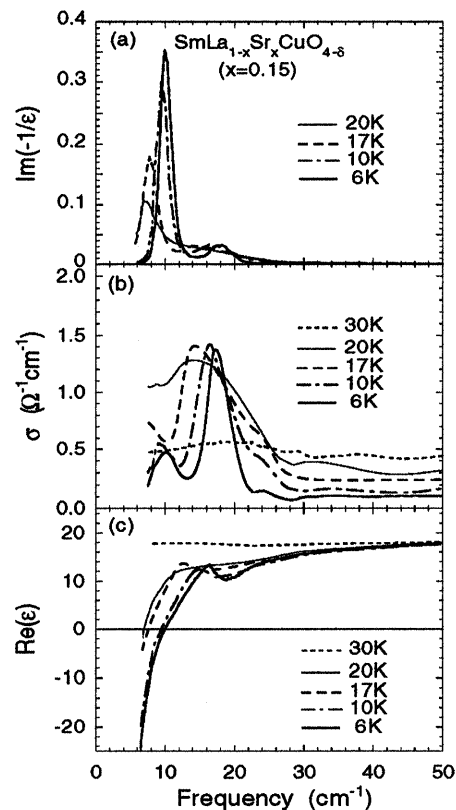


図 2: KK 変換によるスペクトル。(a) 損失関数。(b) 光学伝導度。(c) 誘電関数の実部。

では、単位胞に2つブロック層を有する超伝導体においては、Josephson プラズマの励起モードを2つもつということが理論的に予言されており、現在注目を集めている。これは、Multilayer モデルと呼ばれ、2つの縦プラズマに加えて新たに横プラズマの励起が存在するというものである [5]。このとき系全体の誘電関数は、準粒子によるダンピングの項を無視すると

$$1/\epsilon = x_1/\epsilon_1 + x_2/\epsilon_2 \quad (0 \leq x_i \leq 1, x_1 + x_2 = 1) \quad (1)$$

$$\epsilon_i = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_i^2}{\omega^2}\right) \quad (2)$$

より、

$$\epsilon = \frac{\epsilon_\infty(\omega^2 - \omega_1^2)(\omega^2 - \omega_2^2)}{\omega^2(\omega^2 - \omega_0^2)} \quad (3)$$

$$\omega^2 = x_2\omega_1^2 + x_1\omega_2^2 \quad (4)$$

が得られる。 ω_1 、 ω_2 はそれぞれ縦プラズマに対応し、 ω_0 は新たに現れた横プラズマに対応している。T* 構造超伝導体は、岩塩構造と蛍石構造という2つのブロック層をもち、高温超伝導体の興味深いc軸電荷ダイナミクスを研究するには最も適した系であるといえる。この系において、縦プラズマの存在は、sphere resonance とよばれる多結晶を用いた透過測定法によって明らかにされた [6] が、横プラズマに関しては、まだ明らかにされていない。

これらのことを検証するには、十分にバルクな超伝導を示す単結晶が必要不可欠である。本研究においてはまず、測定に十分耐えられ得る単結晶の作成を試みた。作成法としては、TSFZ法を用い、高酸素圧下 (~10atm)、低成長速度下 (~0.5mm/h) という条件において、 $\text{SmLa}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ 、 $\text{Nd}_{2-x-y}\text{Sr}_x\text{Ce}_y\text{CuO}_{4-\delta}$ という組成について大きな単結晶作成に成功した。得られた結晶は、多結晶試料の結果において従来知られていた通り、激しい酸素欠損のため超伝導を示さなかったが、HIPによる高酸素圧下 (~400atm) の処理によって、十分にバルクな超伝導試料を得ることが出来た。

図1(a)は、 $\text{SmLa}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ ($x = 0.15$) の面内及び面間の電気抵抗率である。高温超伝導体の面内の電気抵抗率の高温部は、物質間に大きな差がないことが知られており、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ と比べておおよそその実効ホール濃度数を見積もると、 $n_h \sim 0.13$ であり、酸素欠損量は $\delta \sim 0.01$ となる。一方、面間の電気抵抗率は、 $\sim \Omega\text{cm}$ のオーダーであり、これは、最も異方性が大きいことで知られる $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 系の面間の電気抵抗率の値に匹敵するほどの大きさである。図1(b)は、低温における面内の反射率である。 $T_c = 25\text{K}$ を境に、スペクトルは大きな変化を示す。 T_c 以下において、 $\sim 10\text{cm}^{-1}$ に急峻なプラズマエッジが現れるのに加えて、高エネルギー側に反射率の bump が現れる。これら2つのシグナルは、低温とともに高エネルギー側にシフトしていく。この反射率スペクトルを、KK変換することによって得られたものが図2である。図2(a)は、損失関数のスペクトルである。縦プラズマは損失関数のピークに対応し、6Kにおいては 10cm^{-1} と 18cm^{-1} にピークを持っている。縦プラズマを二つ持ち、高エネルギー側のピークが強くされているのは sphere resonance の結果と定性的にコンシステントである。図2(b)は、光学伝導度を表したものである。横プラズマは光学伝導度のピークに対応し、6Kにおいては 18cm^{-1} にピークを持ち、高エネルギー側の縦プラズマとほとんど同じ位置である。図2(c)は誘

電関数の実部であり、ゼロを横切る周波数が縦プラズマの周波数に一致し、6Kにおいては、 10cm^{-1} でのみゼロを横切っている。

これらの結果を、先の Multilayer モデルで解析する。式 (3) を $\omega = 0$ 、 $\omega = \omega_0$ のまわりで展開すると、

$$S(0) = \epsilon_{\infty} \left(\frac{\omega_1^2 \omega_2^2}{\omega_0^2} \right) \quad (5)$$

$$S(\omega_0) = \epsilon_{\infty} \left(1 - \frac{\omega_1^2}{\omega_0} \right) \left(\frac{\omega_2^2}{\omega_0} - 1 \right) \quad (6)$$

が得られる。誘電関数の重みを、ブロック層の常伝導コンダクタンスの体積分率の比と考えると、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の面間電気抵抗率から $\rho_2 \sim 0.1\Omega\text{cm}$ を仮定すると [7]、 $\rho_1 \sim 2\omega\text{cm}$ となり、これから、 $x_1 = 0.9$ 、 $x_2 = 0.1$ が得られる。測定結果から、 $\omega_1 = 10\text{cm}^{-1}$ 、 $\omega_0 = 18\text{cm}^{-1}$ とすると、式 (4) から $\omega_2 = 17.3\text{cm}^{-1}$ が得られ、これらを用いて振動子強度を求めると、理論値は $S(0) = 1900\text{cm}^{-2}$ 、 $S(\omega_0) = 330\text{cm}^{-2}$ が得られ、これは実験結果から得られたものと一致する。また、 $\omega_2 \sim \omega_0$ から $S(0) \sim \omega_1^2$ であり、磁場侵入長 $\lambda_c = 1/2\pi\omega_1$ から $\lambda_c = 38\mu\text{m}$ が得られる。この値は、 λ_c と σ_c のユニバーサルな関係とコンシステントである [8]。蛍石構造の誘電関数の重みが $x_1 \sim 0.9$ であり、この系においては、超伝導層、常伝導層ともに蛍石構造の絶縁性が、面間の電荷ダイナミクスを支配しており、このことが高エネルギー側の縦プラズマのダンピング及び縦プラズマ ω_2 と横プラズマ ω_0 の縮退の原因となっている。

以上の結果をまとめると、 T^* 構造超伝導体は、Multilayer モデルで予想されたように、二つの縦プラズマと一つの横プラズマを持つ。この結果は、テラヘルツ域における発光素子として、デバイスに応用できる可能性を持っており、その発光強度は式 (6) で与えられる。本研究によって得られた数々の結果は、今後の高温超伝導体の研究に新たな風を起すものと期待される。

参考文献

- [1] J.-P. Locquet *et al.*, *Nature* **394**, 453 (1998).
- [2] H. Sawa *et al.*, *Nature* **337**, 347 (1989).
- [3] Y. Tokura *et al.*, *Phys. Rev. B* **40**, 2568 (1989).
- [4] K. Tamasaku, Y. Nakamura, and S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1455 (1992); M. Tachiki, T. Koyama, and S. Takahashi, *Phys. Rev. B* **50**, 7065 (1994).
- [5] D. van der Marel and A. Tsvetkov, *Czech. J. Phys.* **46**, 3165 (1996).
- [6] H. Shibata and T. Yamada, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3519 (1998).
- [7] Y. Nakamura and S. Uchida, *Phys. Rev. B* **47**, 8369 (1993).
- [8] D.N. Basov *et al.*, *Phys. Rev. B* **50**, 3511 (1994); T. Motohashi *et al.*, *Phys. Rev. B* **61**, 9269 (2000).