

論文の内容の要旨

論文題目 電子ドープ型高温超伝導体における電荷ダイナミクス

氏名 小野瀬 佳文

本研究が対象とする物質は、電子ドープ型高温超伝導体である $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ である[1]。この物質の存在は、高温超伝導体における電子-ホール対称性を示し、超伝導の発現機構に強い制約を与えた[2]。ごく最近では、電子ドープ系における超伝導の対称性がホールドープ系と同じく d 波的であることも確かめられた[3]。一方、ホールドープ系においては、超伝導最適組成(ホール濃度 $p \sim 0.15$)以下のアンダードープ領域における物性が特に異常であり、その異常性の多くは擬ギャップと呼ばれる現象に帰着できることが明らかになった[4]。しかし、系統的な実験結果が数多く報告されている現在においても、その起源については統一的な見解が得られておらず、そのことが高温超伝導体の物理を理解する上で大きな妨げとなっている。このような状況下においては、電子ドープ型高温超伝導体におけるアンダードープ領域から最適組成までの系統的な研究は重要な情報をもたらし得ると考えられるが、良質な大型単結晶育成が困難であることや、適当な還元が必要であることなどの理由により、電子ドープ系の研究は比較的進んでいなかった。本研究では、 $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ($0 \leq x \leq 0.15$) の良質な単結晶を TSFZ 法により作成し、輸送係数、光学測定を系統的に調べた。その結果、電子ドープ系のアンダードープ領域においても擬ギャップ的振舞いが観測され、輸送係数にもその影響が強く現れることが明らかになった。

図 1 に面内抵抗率の温度依存性を示す。母物質($x=0$)の抵抗率は絶縁体的であるが、電子をドープすると抵抗率は徐々に下がっていく。母物質と同様に、 $0.025 \leq x \leq 0.125$ の試料は低温で反強磁性秩序を示すが、それにもかかわらず比較的低い抵抗率を示している。しかし、これらの試料の抵抗率は、いずれも低温でアップターンが現れる。それに対して $x=0.15$ の試料の抵抗率にはそのようなアップターンは存在せず、 $T=25\text{K}$ 付近で超伝導転移が観測される。

図 2 に光学伝導度の温度依存性(0-1 eV)を示す。このエネルギー領域では、超伝導を示す $x=0.15$ の光学スペクトルにはあまり大きな温度変化は観測されない。それに対してアンダードープ領域($0.05 \leq x \leq$

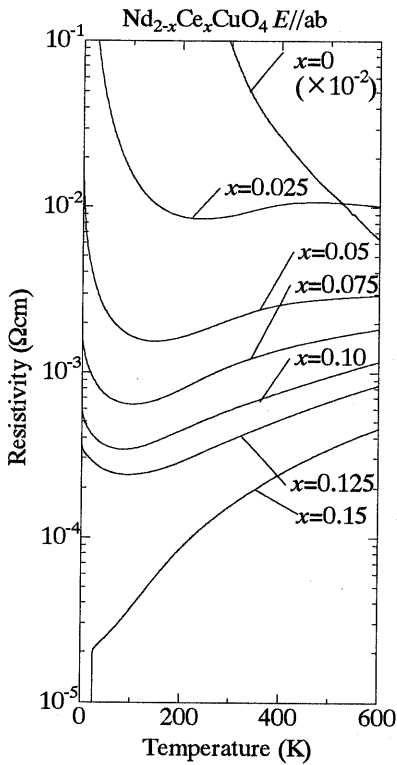


図1 面内抵抗率の温度依存性

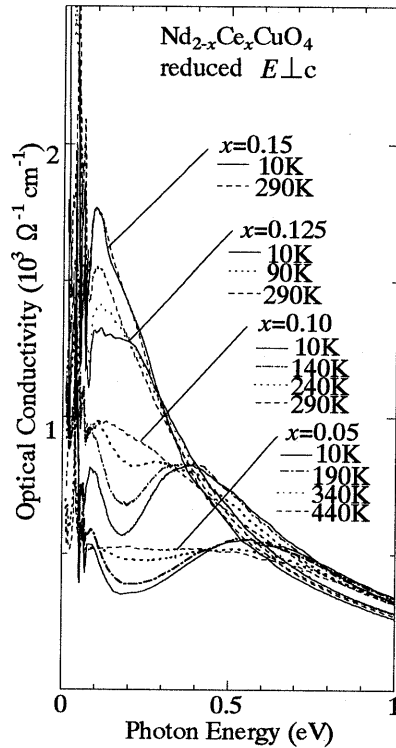


図2 $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ における光学伝導度の温度依存性 (0-1 eV)

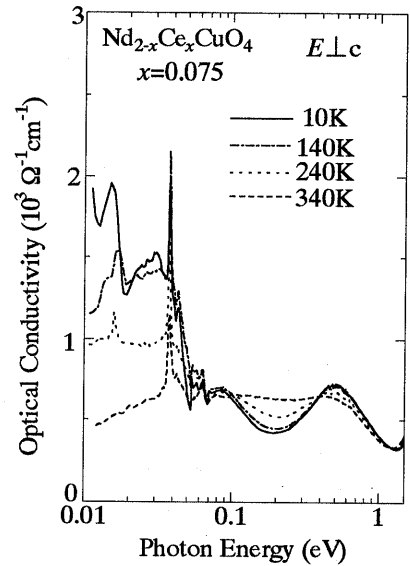


図3 $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ $x=0.075$ における光学伝導度の温度依存性。エネルギーを対数スケールでプロットしてある。

0.125)の試料は低温になるに従い 0.2 eV 付近のスペクトラルウェイトが徐々に減少し、低温でギャップ的な構造を示すようになる。ただし、最低温でも完全にギャップが開くことはない。この擬ギャップの大きさを等吸収点で定義すると、 $x=0.05$ では 0.43eV 程度でありドーピングが進むに従い小さくなっていく。擬ギャップ形成によって失われたスペクトラルウェイトは、一部は高エネルギー領域に移っているが残り低エネルギー部にも移っている。

低エネルギー領域の議論をするために、エネルギーを対数で表示した $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ $x=0.075$ の光学伝導度を図3に示す。高温 ($T \geq 340$ K) のスペクトルは、フラットな(インコヒーレントな)形状を示しているが、温度を下げていくと 0.1-0.3 eV 付近のスペクトラルウェイトは徐々に減少し擬ギャップが形成される。それと同時に、0.05 eV 以下のスペクトラルウェイトが徐々に増大し、低温でドルーデ応答が現れる。このようなドルーデ応答と擬ギャップの同時成長は極めて異常ではあるが、すべてのアンダードープ領域で観測される。

図4の下段に、等吸収点から測った擬ギャップの大きさ(Δ_{PG})と擬ギャップ形成が始まる温度(T^*)を、 μSR の測定により Luke らによって求められた Neel 温度(T_N)とともに示す。 Δ_{PG} 、 T^* ともにドーピング濃度が増加すると減少している。 Δ_{PG} と T^* の比は各組成とも一定で、 $\Delta_{\text{PG}}/k_B T^*$ は 10 程度と大きな値を示す。また、図4の上段に示すようにドルーデウェイトを反映している最低温(10 K)における 0.03 eV までの N_{eff} は、擬ギャップが観測される $x \leq 0.125$ においてドーピング濃度にほぼ比例した振舞いを示し、 $x=0.15$ ではその関係よりも大きい値を持つ。

このような擬ギャップの影響は、輸送特性にも強く現れている。c 軸方向の抵抗率の温度依存性を図5(a)に示す。アンダードープの試料は、温度を下げていくと矢印で示した光学伝導度から求めた T^* 以下で抵抗率が大きく減少する。光学スペクトルからみた擬ギャップと c 軸方向の抵抗率の相関は、抵抗率の微分をみるとより明確に分かる。図5(b)-(f)に c 軸方向の抵抗率の温度微分を示す。 $d\rho_c/dT$ は、抵抗

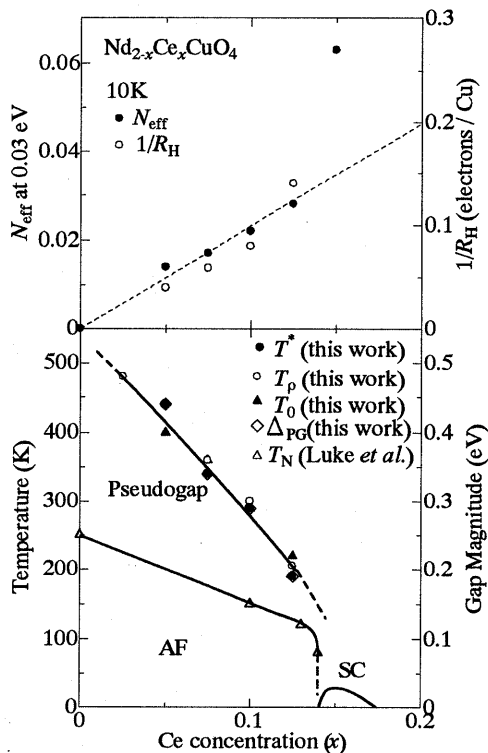


図4 上段: 10Kにおける0.03 eVまでの N_{eff} から見積もったドルーデ成分の重みとホール係数から見積もったキャリア数。下段: 光学伝導度、c軸の抵抗率、ホール係数から見積もった特徴的温度(T^* , T_ρ , T_0)、および光学伝導度から見積もった擬ギャップの大きさ(Δ_{PG})。Lukeらによって測定されたNeel温度(T_N)も一緒にプロットしてある。

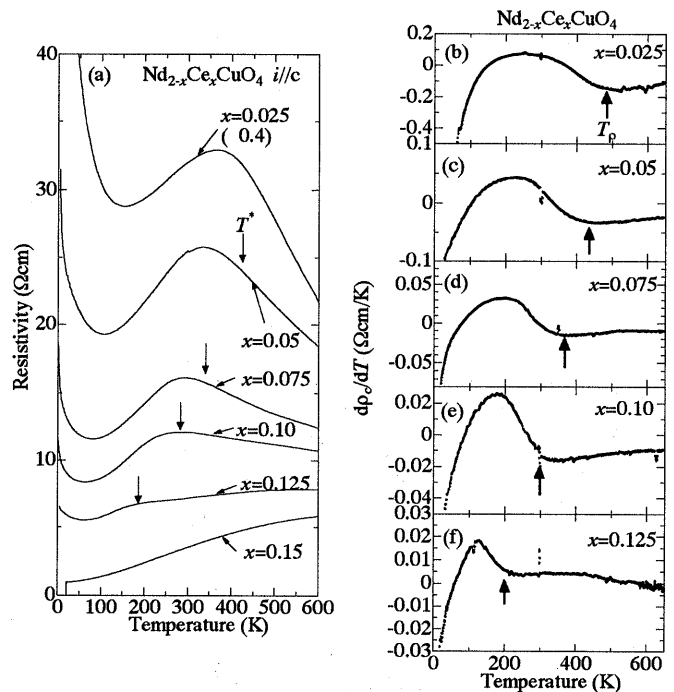


図5 (a):c軸方向の抵抗率の温度変化。(b)-(f):c軸方向の抵抗率の温度微分。矢印で示した微分量が増大し始める温度で特徴的な温度 T_ρ が定義される。

率の減少に対応して矢印で示した温度(T_ρ)以下で急速に上昇している。図4(下段)に示すように、この T_ρ は光学伝導度から求めた T^* とほぼ一致している。ホールドーブ系においては、擬ギャップの形成に伴ってc軸の抵抗率が大きく上昇する振舞いが報告されており、今まで見てきた電子ドーブ系の振舞いと対照的である。ホールドーブ系における面間の抵抗率の振舞いを説明する有力なシナリオの一つは、キャリアの面間方向の運動は $(\pi, 0)$ 付近の電子状態によって担われており[5]、 $(\pi, 0)$ 付近に擬ギャップが開くことに対応してc軸の抵抗率が大きく上昇するというものである。同様な議論が電子ドーブ系においても成り立つとするならば、面間の抵抗率が T^* (T_ρ)以下で顕著に減少することは、ホールドーブ系とは波数空間の対応が逆の、 $(\pi/2, \pi/2)$ 付近にギャップが生じ $(\pi, 0)$ 付近にコヒーレントな状態が形成されることを表しているのかもしれない。実際、ごく最近の角度分解光電子分光によれば、この系のアンダードーブ領域では $(\pi/2, \pi/2)$ 付近にギャップが開き、 $(\pi, 0)$ 付近に小さなフェルミ面が観測されることが確かめられている[6]。

また、このような小さなフェルミ面をもつ電子状態へのクロスオーバーはホール係数にも表れている。図6のインセットにホール係数の温度依存性を示す。アンダードーブの試料($x=0.05-0.125$)のホール係数は400 K程度の高温では比較的小さな値を示しているが、温度を下げていくとその絶対値が大きく上昇して低温では $-1/ex$ 程度の値を持つ。このような振舞いが、ホールドーブ系のホール係数とほぼ同様な振舞いであることは既に過去に確かめられている[7]。ホールドーブ系の代表例である $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 系においては、このようなホール係数のクロスオーバーを特徴的な温度 T_0 を用いて、 $R_{\text{H}}(T, x) = R_{\text{H}}^\infty(x) + R_{\text{H}}^0 f(T/T_0)$ のような関数でスケールされることが分かっている[8]。そこで、我々は $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ のアンダードーブの試料に対してこのようなスケール則の適用を試みた。スケールリングは、より任意性を少なくする

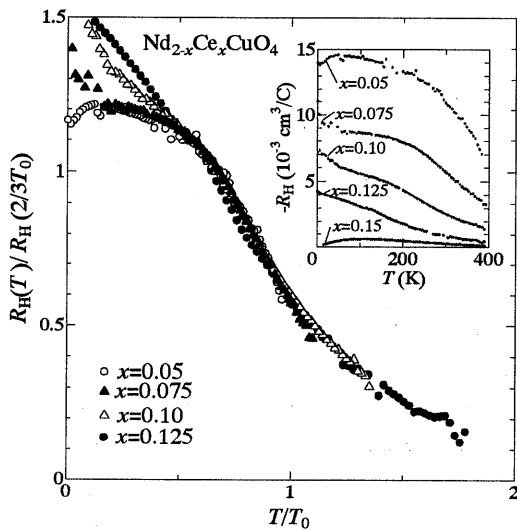


図 6 ホール係数(R_H)のスケールングプロット。 T_0 をスケールングパラメーターとして用いて、 $R_H(2/3 T_0)$ で規格化した $R_H(T)$ が、規格化した温度 (T/T_0)に対してプロットしてある。インセットは、通常のホール係数の温度依存性が示されている。

まず挙げられるが、この系では中性子散乱実験により (π, π) の位置に磁気的なブラックスポットが観測されており、これはストライプオーダーの存在を否定する。金属的なストライプオーダーが存在しないとすれば、電荷整列は通常金属的な伝導を抑制するため、ドルーデ応答が擬ギャップと同時に成長する実験事実は(a)のシナリオを否定する。また(b)のシナリオでは擬ギャップのエネルギースケールは超伝導ギャップと同じくらいの大きさと考えられるため、本研究で観測された大きなエネルギースケールの擬ギャップの起源としては考えにくい。従って、反強磁性相関によって擬ギャップが形成するというシナリオが最も有力である。実際、Tohyama らの最近の理論的計算[9]では、電子ドーピング系においては、強い反強磁性相関の発達に伴って光学伝導度に大きなエネルギースケールの擬ギャップが形成されること、および擬ギャップの発達と同時にドルーデ応答が成長することが確かめられている。さらに、擬ギャップ形成された状態では $(\pi, 0)$ 付近に小さなフェルミ面が現れることも再現されている。

参考文献

- [1] Y. Tokura, H. Takagi, and S. Uchida, *Nature* **337**, 345 (1989).
- [2] P. W. Anderson, *Science* **256**, 1526 (1992).
- [3] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 182 (2000).
- [4] T. Timusk and B. Statt, *Rep. Prog. Phys.* **62**, 61 (1999).
- [5] O. K. Andersen *et al.*, *J. Phys. Chem. Solids* **12**, 1573 (1995).
- [6] N. P. Armitage *et al.*, unpublished.
- [7] J. Takeda *Physica C* **231**, 293 (1994).
- [8] H. Y. Hwang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2636 (1994).
- [9] T. Tohyama and S. Maekawa, *Phys. Rev. B* **64**, 212505 (2001).

ためにパラメーターを T_0 のみにした式、 $R_H(T,x)=R_H(2/3 T_0) f(T/T_0)$ で行った。結果は図 6 に示す通りほぼスケールできており、スケールングから求めた T_0 は光学伝導度から求めた T^* とほぼ一致している (図 4 下段)。また、低温(10 K)におけるホール係数から求めたキャリア数は、擬ギャップが観測される $0.05 \leq x \leq 0.125$ の領域においてはドーピング濃度 x に比例した振舞いを示し、 $x=0.15$ のホール係数はそれよりもかなり大きい値を示している (図 4 上段)。

最後に、今まで見てきた光学伝導度における擬ギャップ形成およびそれに伴う輸送特性における異常の起源について考えてみたい。擬ギャップが形成され得るシナリオについて考えてみると(a)電荷整列、(b)Cooper pair もしくは spinon のシングレット対の形成、(c)反強磁性相関などが考えられる。(a)のシナリオの場合、特にホールドーピング系において観測される (金属的な) ストライプオーダーが