

## 論文の内容の要旨

論文題目 低次元銅酸化物の異常金属相の研究

氏名 和久 公則

2次元のCT絶縁体である $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ と1次元のCT絶縁体である $\text{SrCuO}_2$ のARPESの結果の比較から、2次元よりも1次元の方がキャリアが動き易いことが知られている。それでは2次元の金属と1次元の金属ではどちらの方がキャリアが動き易いのかを調べることを目的として本研究が行われた。研究の対象には最も単純な金属的な $\text{CuO}_2$ 面を持つ $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (CNCOC)と、最も美しい金属的な $\text{CuO}$ 鎖を持つ $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ (Y124)を選択した。CNCOCの研究においては面内の光学反射率の測定等を行い、Y124の研究においては金属的な1次元の $\text{CuO}$ 鎖のキャリアが面間伝導を支配していることが知られていることから面間磁気抵抗の測定を行いキャリアのダイナミクスを調べた。

CNCOCは低温まで正方晶で単位構造の中には $\text{CuO}_2$ 面が1枚しかないという高温超伝導体の中で最も単純な $\text{CuO}_2$ 面を持っている物質であり、 $x=0.10$ の試料は $T_c \sim 18\text{K}$ の超伝導を示す。またARPESの測定結果からCNCOCには大きな擬ギャップが開いている可能性がある事が知られている。本研究では $x=0.06$ から $0.10$ の単結晶の面内抵抗率と面間抵抗率を測定し、世界で初めてCNCOCは抵抗の異方性が $10^4$ 程度と高温超伝導体の中でも非常に異方性が大きい物質であることを明らかにした。また高温超伝導体のアンダードープ領域で面内が金属的であるにも関わらず、面間伝導が半導体的な振る舞いを示すのは擬ギャップによるものであるという考え方があることから他の高温超伝導体と面間抵抗率の温度依存性を比較した。さらに $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (Bi2212)等では光の測定でも擬ギャップが見えていることから $x=0.06$ から $0.10$ の試料について、室温から $5\text{K}$ までの光学反射率を測定し、本当に大きな擬ギャップが開いているかどうかを調べた。さらに良く似た構造を持つ高温超伝導体である $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO)との比較を行った。

ARPESの測定結果の比較から $x=0.10$ のCNCOCと $D_y$ ドープにより $T_c=65\text{K}$ のアンダードープにしたBi2212では $x=0.10$ のCNCOCの方が擬ギャップが大きいという可能性が指摘されている。 $x=0.10$ のCNCOCと酸素量の調節により $T_c=70\text{K}$ のアンダードープにしたBi2212の面間抵抗率を比較するとBi2212の方がCNCOCよりもはるかに半導体的な温度依存性を示していることが分かる。このことからCNCOCの擬ギャップはBi2212より小さいか、もしくはアンダードープ領域における面間抵抗の温度依存性が擬ギャップの大きさにのみ依存するという考えが間違っていることが分かった。

反射率の測定から得られた光学伝導度をExtended-Drude解析するとエネルギーに依存する緩和時間 $\tau$ とプラズマ周波数 $(\omega_p/\text{m}^*)$ が得られる。擬ギャップが開いている場合は $T_c$ よりも高温から本来は $\omega$ -linearである $1/\tau$ が、あるエネルギー以下で抑制されるという振る舞いが見られはらずである。解析の結果、CNCOCの $1/\tau$ には $0.3\text{eV}$ 付近に折れ曲がり

が存在することが発見された。これは 0.3eV 付近に大きな擬ギャップが開いていると解釈することも出来るが、0.3eV での  $1/\sigma$  の値が既にかなり大きいことから  $1/\sigma$  の飽和 (準粒子がインコヒーレントになる様子) を見ている可能性もある。実際に  $k_F L$  が大体 1 になると伝導がインコヒーレントになるという仮定と Extended-Drude 解析から得られた  $n/m^*$  から、伝導がインコヒーレントになる時の  $\hbar/2m^*$  を計算すると  $x=0.10$  に対して約 1.2eV という値が得られる。この値は実際に折れ曲がりが見られるときの  $\hbar/2m^*$  と大体一致していることから 0.3eV で観測されている折れ曲がりには  $1/\sigma$  が飽和していく様子を見ていると考えられる。LSCO との比較からは、同じ  $x=0.06$  の試料で比べると CNCOC は超伝導にならないのに対して LSCO は超伝導になることが知られているが、1eV での  $N_{\text{eff}}$  を比較すると逆に CNCOC の方が大きいことが分かった。CNCOC の研究では測定したエネルギー領域には擬ギャップは見られなかった。また、ドーピングが進むにつれ  $1/\sigma$  が小さくなり、キャリアが少しずつ動きやすくなっていく様子が観測された。

Y124 は ab 面方向に広がる  $\text{CuO}_2$  面と b 軸方向に伸びる CuO 二重鎖が c 軸方向に交互に積み重なった構造をしており、 $T_c$  が 80K のアンダードーピング領域に位置する高温超伝導体である。この面間抵抗率は 200K より高温ではほとんど温度に依存せずその値は約  $8\text{m}\Omega/\text{cm}$  であり、この温度領域では面間伝導がインコヒーレントになっていると考えられる。また面間磁気抵抗の磁場方向依存性から Y124 では面間伝導が CuO 鎖のキャリアにより支配されていることが分かっている。磁気抵抗が最大になる方向である a 軸方向にさらに磁場をかけていくと  $B_{\text{cr}} \sim 20\text{Tesla}$  で面間伝導がインコヒーレントになる時の抵抗率を超え、同時に同じ磁場下での面間抵抗の温度依存性が金属的なものから半導体的なものへと変化することが知られている。この変化は磁場により系の次元性が低下したために起きていると考えられることから、磁場誘起次元交差現象と呼ばれている。この温度によらない一定の磁場で起きる磁場誘起次元交差現象は Gorkov-Lebed のモデルにより説明することが出来る。CuO 鎖のキャリアの運動が Boltzmann 方程式に従うとすると a 軸方向に磁場をかけたときキャリアは面間方向に磁場の強さに反比例する振幅で振動しながら CuO 鎖上を動く事が分かるが、Gorkov-Lebed のモデルでは、この振幅が面間方向の CuO 鎖間距離よりも短くなるとキャリアが CuO 鎖に閉じ込められて次元交差現象が起きると考える。このモデルはキャリアが十分に長い閉じ込め軌道を描くことを前提にしており、磁場誘起次元交差現象は Y124 の CuO 鎖ではかなり自由にキャリアが運動していることを反映していることになる。さらに Gorkov-Lebed のモデルは、キャリアの動きを邪魔して  $\mu$  を小さくしてやると  $B_{\text{cr}}$  は変化しないが局在が弱くなることを予測している。そこで我々は Y124 の CuO 鎖に Zn をドーピングして CuO 鎖のキャリアの動きを邪魔してその次元交差現象への影響を予想と比較することでモデルを検証し、本当に Y124 では CuO 鎖のキャリアがとても自由に運動しているために次元交差現象が起きているのかを調べた。

本研究で作成した Zn ドーピングした試料は ICP 分析の結果、Cu の約 3% が Zn と置き換わっていることが分かった。Zn ドーピングした試料の面間抵抗率の測定から Zn ドーピングにより  $T_c$

が下がっていることが分かった。このことから、Znの一部はCuO<sub>2</sub>面に入って超伝導を抑制する働きをしていると考えられる。また面間抵抗率は例えば30K付近ではZnドーピングにより4倍ほど大きくなっていることから面間伝導がCuO鎖のキャリアによる物であると考えればCuO鎖にもZnが入っていると考えられる。次にZnドーピングした試料としていない試料について磁場誘起次元交差現象を観測した。 $B_{cr}$ はドーピングしていない試料では20Teslaで、Znドーピングした試料では18 Teslaであった。面間抵抗率の変化に比べ、 $B_{cr}$ の変化は小さく第一近似としてはGorkov-Lebedのモデルが成立していると考えられる。さらに同じ温度と磁場の強さでの抵抗率を比べるとZnドーピングした試料の方が値が小さくなっていることが分かった。この結果は  $B_{cr}$  が小さくなると局在が弱まるというモデルの予測と一致している。また、モデルからは  $B_{cr}$  での面間抵抗率の値については何も予想されないが、Znドーピングした試料においても  $B_{cr}$  での抵抗率は約  $8m\ \Omega\ cm$  であることが分かった。このことは  $8m\ \Omega\ cm$  という値が面間伝導がインコヒーレントになる時の値という意味を持っていることを示す新たな証拠であると考えられる。以上のことから Y124 においてはGorkov-Lebedのモデルが成り立っており、またZnをドーピングしてキャリアの動きを邪魔してもなお次元交差現象が起きるほどY124のCuO鎖のキャリアは自由に運動していることが分かった。

CNCOCの研究では、Extended-Drude解析から高エネルギー側で  $1/\sigma$  が飽和する事と、ドーピングが進むにつれ  $1/\sigma$  が減少してキャリアが徐々に動き易くなっていく様子を見ることが出来た。Y124の研究では、CuO鎖のキャリアはかなり自由に動ける状況にあることにより磁場誘起次元交差現象が起きていることが分かった。またCuO鎖のキャリアの動き易さはZnをドーピングして運動を邪魔してもなお磁場誘起次元交差現象を起こすほどであることが分かった。