

論文の内容の要旨

論文題目： 非双晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 単結晶における
面内電荷輸送特性の研究

“In-plane charge transport properties
in untwinned $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ single crystals”

氏名： 瀬川 耕司

本研究では、過剰ドーパから希薄ドーパの非超伝導組成まで酸素量を広く系統的に変えた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) 非双晶単結晶を再現性よく作製する方法を確立し、その電荷輸送特性を精密に測定した。その中でも希薄ドーパ域の単結晶を非双晶化して物性を測定した例はこれまでになく、本研究が初めての報告となる。以上の測定から YBCO の CuO_2 面における輸送特性を求めて酸素量に対する系統性を詳しく議論した結果、YBCO 系に電荷ストライプが存在することを示唆する結果が得られたのでそれを報告する。

YBCO 系が他の高温超伝導体と異なる点として、1) 超伝導を示す組成でも Cu-O ボンド方向に伝導の異方性がある、2) 酸素量の変化する範囲が広いので、元素置換をせずに広い範囲でキャリア濃度を変化させられる、というものがある。これらの性質は電荷が一次元的に自己組織化してできるとされる「電荷ストライプ」の研究の舞台として適していると考えられる。結晶構造の面内異方性はわずかな一次元性を電子系に導入することが期待される。また、自己組織化という現象を研究するためには自己組織化のきっかけになりかねない結晶の不均一性は極力排除すべきである。このような系で電荷の振舞いを直接反映すると考えられる電荷輸送特性がどのように振舞うかはたいへん興味深い。しかし、非双晶結晶を使って系統的に広く酸素量を変えた実験はこれまでに報告されていなかった。

本研究の実験においては、構成元素しか含まないイットリアるつぼを使って高純度の YBCO 単結晶を作製し、広く酸素量を変化させてかつ非双晶化したものについて、面内の電気抵抗率、Hall 係数、磁気抵抗、熱電能を精密に測定した。試料の酸素量調整の後で

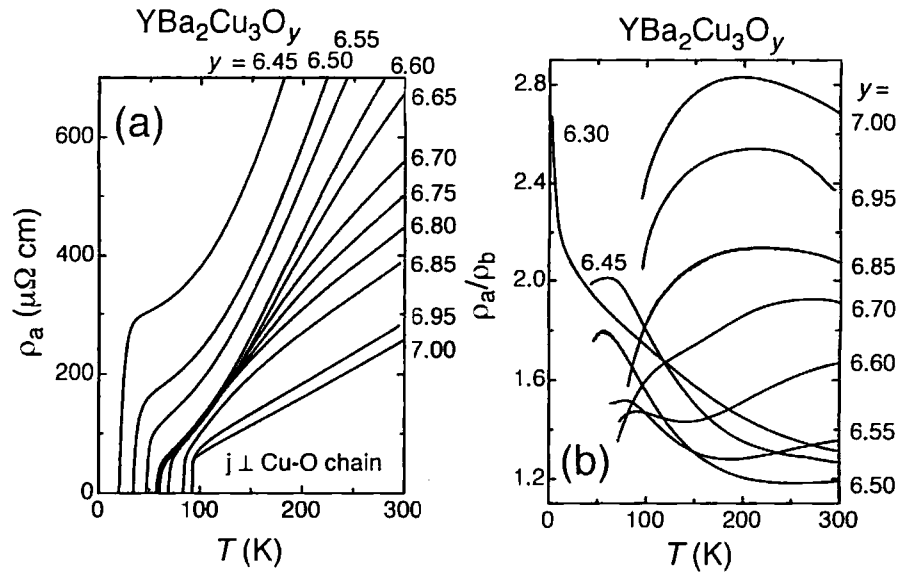


図 1: (a) 酸素量 $y=6.45\text{--}7.00$ の試料における、Cu-O 鎖に垂直方向の面内電気抵抗率 ρ_a の温度依存性。(b) 様々な酸素量の組成における ρ_a/ρ_b の温度依存性。

も非双晶化が可能であることは本研究で初めて見出された。この技術は特に希薄ドープ域の非双晶単結晶を得るために必要不可欠である。

図 1(a) に、酸素量 $y = 6.45\text{--}7.00$ の試料における a 軸方向の電気抵抗率 ρ_a の温度依存性を示す。 a 軸は Cu-O 鎖に垂直方向であるため、Cu-O 鎖が一次元的な電気伝導を示したとしてもそれは関与せず、 ρ_a は CuO_2 面の物性を反映すると期待される。高温では ρ_a は酸素量を減らすとともに単調に増加するが、低温では異常な振舞いが観測された。酸素量が $y = 6.60\text{--}6.80$ の範囲では ~ 120 K 以下で抵抗率の温度依存性がほとんど重なってしまっている。この現象の起源として、1) 酸素量が変わってもキャリア濃度が変化していない、2) キャリア濃度の変化の抵抗率への効果を打ち消すように散乱時間が変化している、の 2 つの可能性が考えられる。高温における Hall 係数や熱電能の振舞いからはこれらの試料で酸素量を減らすとキャリア濃度が単調に減少することが示唆されるため、観測された抵抗率の温度依存性の重なり起源は上記の可能性の後者である可能性が高い。Hall 係数と抵抗率から求めた Hall 移動度の酸素量依存性もこの説明と矛盾しない振舞いを示している。

当然ながら電気抵抗率は Cu-O 鎖に並行な方向に電流を加えても測定できて、面内抵抗率は ρ_a の他に ρ_b も得られるが、従来はこの 2 つの差を生み出す要素は Cu-O 鎖の電気伝導のみであると考えられていた。つまり、Cu-O 鎖から酸素が減少すればその一次元的な電気伝導は顕著に抑制されて ρ_a と ρ_b は同じ値に収束すると期待され、現に T_c が 60 K 程度を下回らない試料では実験的にも確かめられていた。しかし、本研究で希薄ドープ域まで酸素量を減らして ρ_a と ρ_b を測定すると、 T_c が 60 K を下回る領域では酸素量を減らすと面内異方性が増大する振舞いが観測された。様々な試料における ρ_a/ρ_b の温度依

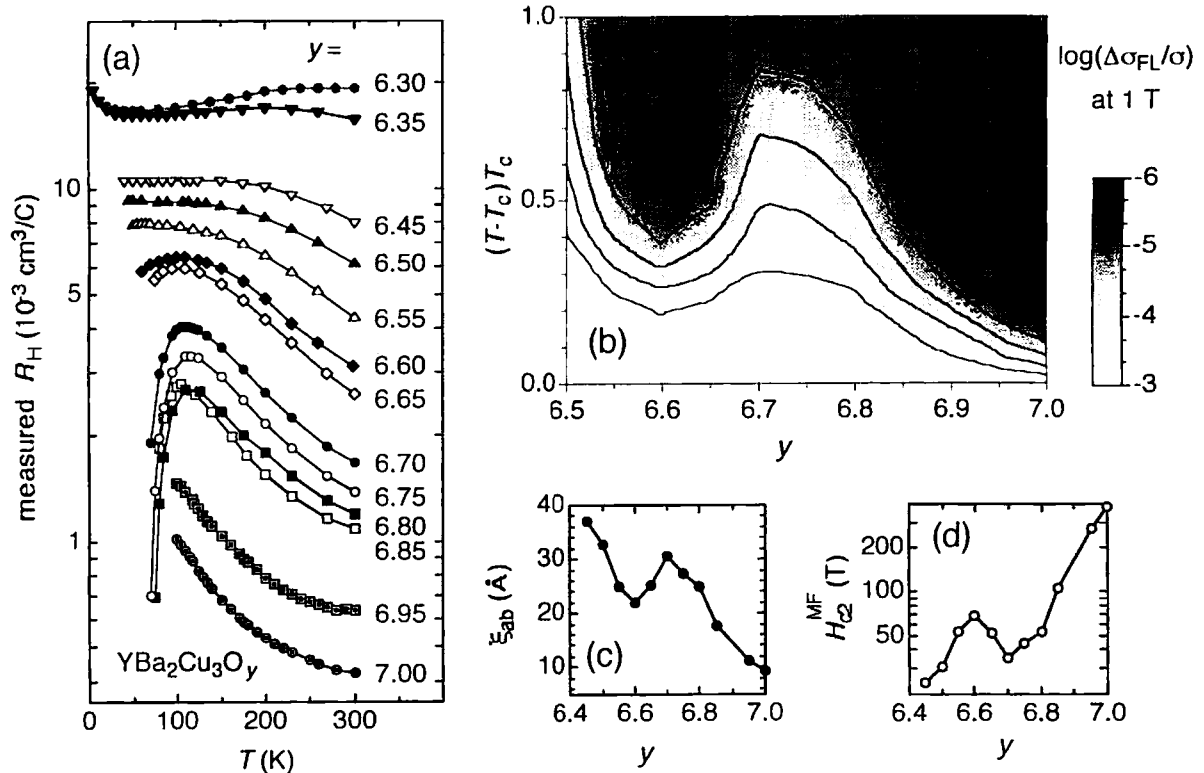


図 2: (a) 様々な組成における Hall 係数の温度依存性を片対数プロットした図。 (b) 磁気伝導率の超伝導ゆらぎ成分の変化を $(T - T_c)/T_c - y$ 平面でプロットした図。 (c) 磁気伝導率の超伝導ゆらぎ成分の温度依存性から求めた ξ_{ab} の y 依存性。 (d) ξ_{ab} から求められた平均場の H_{c2} の y 依存性。

存性を図 1(b) に示す。酸素量 $y \leq 6.55$ の試料では温度を下げると面内異方性が増大し、 $y = 6.30$ の試料では ρ_a/ρ_b が 2.5 を超えていることがわかる。過去の研究から格子定数の面内異方性は酸素量を減らすと単調に減少することがわかっているが、抵抗率の面内異方性はそれと逆の振舞いを示している。わずかな結晶の面内異方性をきっかけとして電子が一次元的に自己組織化して電荷ストライプを形成するというのがこの現象の起源の可能性の 1 つとして考えられる。

図 2(a) に、Hall 係数の温度依存性を様々な試料について示す。高温の Hall 係数は酸素量を減らすと単調に増大するが、低温では異常に減少する振舞いが $y = 6.60-6.85$ の試料で見られた。この減少は $y = 6.75$ 付近で最も顕著である。Hall 係数の急激な減少は $\text{La}_{2-x-y}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LNSCO) や $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ (LBCO) でも観測されており、電荷ストライプの存在によって起きている可能性が示唆される。

磁場中での電気抵抗の変化である磁気抵抗も、広い範囲の酸素量を持つ試料で測定した。横磁気抵抗から縦磁気抵抗を差し引いて求めた軌道磁気抵抗は、室温付近まで有限な値が観測された。これは常伝導状態の磁気抵抗であると考えられ、その温度依存性は磁気伝導率 $(-\Delta\sigma)$ が $(aT^2 + b)^{-2}$ となることがわかった。低温の磁気抵抗からは、常伝導状態

の寄与を差し引いて磁気伝導率の超伝導ゆらぎ成分を求めることができる。磁気伝導率の超伝導ゆらぎ成分を、横軸に試料の酸素量、縦軸に規格化した温度をとってグレースケールでプロットした図を図 2(b) に示す。磁気伝導率の超伝導ゆらぎ成分は酸素量の変化に対して単純な振舞いを見せず、酸素量 $y = 6.70-6.75$ で増大していることがわかる。この超伝導ゆらぎ成分の温度依存性を解析することで面内方向のコヒーレンス長と平均場の上部臨界磁場を求めることができる。その酸素量依存性を図 2(c) と 2(d) に示す。酸素量 $y = 6.70-6.75$ の試料でコヒーレンス長が増大し、上部臨界磁場が小さくなっていることがわかる。このことは、これらの組成ではその周囲の組成よりも磁場によって超伝導が抑制されやすくなっていることを示唆している。実際に強磁場下で抵抗率を測定すると酸素量 6.70 付近の試料は酸素量 6.65 の試料よりも超伝導が抑制されやすいことを示す結果が得られている。

本研究で、YBCO 系の輸送特性における未説明の様々な異常が明らかになった。不足ドープ域においては酸素量を減らすと格子定数の面内異方性が小さくなるにもかかわらず、電気抵抗率の面内異方性は逆に大きくなる振舞いが観測された。この事実から、YBCO 系では電荷の一次元的な自己組織化により、電荷ストライプが形成されて一次元的な電気伝導を示している可能性が考えられる。また、酸素量 $y = 6.75$ 付近の組成において、(1) 低温でのキャリアの散乱が酸素量に対して異常な変化を見せること、(2) Hall 係数が T_c 直上で顕著に減少すること、(3) 超伝導が磁場で抑制されやすくなっていること、が明らかになった。これらの組成は 60 K 付近で T_c が異常な酸素量依存性を示す「60 K 異常」の見られる組成であることから、今回観測された異常は「60 K 異常」である可能性が高い。また、この組成でのキャリア濃度は高温の Hall 係数や熱電能で見ると 1/8 付近と考えると矛盾せず、また観測された異常はホール濃度 1/8 付近の LBCO 系や LNSCO 系で観測されていた振舞いと類似していることから、YBCO 系の「60 K 異常」は La214 系の「1/8 異常」と同様に T_c の抑制によるものであり、電荷ストライプが密接に関係している可能性が高いと考えられる。La214 系だけでなく YBCO 系においても、電子状態を直接反映する電荷輸送特性に電荷ストライプの存在する可能性を示す結果が得られたことから、電荷ストライプ形成は La214 系に特有の現象ではなく、高温超伝導体に共通した現象であることが期待される。

付記：本論文と関連する論文リスト

Kouji Segawa and Yoichi Ando, Phys. Rev. Lett. 86, 4907 (2001).

Kouji Segawa and Yoichi Ando, J. Low Temp. Phys. 131, 821 (2003).

Kouji Segawa and Yoichi Ando, Phys. Rev. B 69, 104521 (2004).

Y. Ando, K. Segawa, S. Komiyama, and A. N. Lavrov, Phys. Rev. Lett. 88, 137005 (2002).

Yoichi Ando and Kouji Segawa, Phys. Rev. Lett. 88, 167005 (2002).