

論文の内容の要旨

論文題目

マイクロ波伝導度スペクトロスコピーを用いた 高温超伝導体における超伝導ゆらぎの研究

氏名

大橋 健良

1 序

高温超伝導は、1986年に発見されて以来20年以上経過した今日においても、未だ完全には解明されていないと言われている。解明されていない問題の中で特に重要と考えられているのが、高温超伝導体特有の電子相図の理解である。高温超伝導はモット絶縁体にキャリアドーピングすることで発現し、全ての高温超伝導体が図1に示すようなキャリア濃度 x 依存性を持つと考えられている。しかし、このキャリア濃度依存性の起源は良く理解されているとは言えない。なかでも、

- 超伝導転移温度 T_c のキャリア濃度依存性の原因は何か
- T_c 以上でも見られるギャップ構造（擬ギャップ）の起源は何か

という点については、鋭く対立する主張があり決着はついていない。

電子相図に対する理論的モデルは、超伝導相の内部に“隠れた量子臨界点”が存在するかどうかで、大きく2つに分類することができる。“隠れた量子臨界点”を仮定しない理論モデルでは、図2や図3のような相図が提案されている。図2では、電荷とスピンの自由度が分離してそれぞれ別々に相転移を起こし、両方が凝縮すると超伝導になると考えて T_c のキャリア濃度依存性が説明される(t - J モデル [1])。このモデルでは、擬ギャップ状態はスピンの自由度のみ秩序形成している状態と理解される。図3は、キャリア濃度の低い領域では超伝導秩序変数の位相がコヒーレンスになる温度で T_c が決まり、高い領域では秩序変数自体の成長で決まると考えるモデル [2] である。このモデルでは擬ギャップ状態は、超伝導秩序変数は成長しているが位相はゆらいでいる状態として理解される。

一方、“隠れた量子臨界点”を仮定することで電子相図を説明するモデルもある [3]。図4のように、擬ギャップを超伝導とは別の秩序によるものと考え、その秩序が消える量子臨界点の近傍で超伝導が発現すると考えるモデルである。

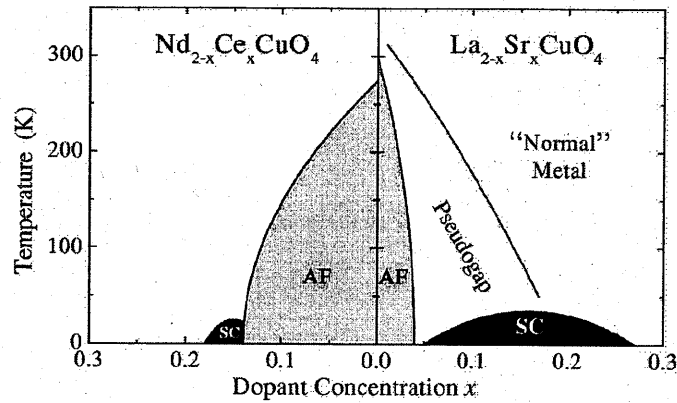


図 1: 高温超伝導体の電子相図

したがって、これらの理論モデルを実験的に吟味するには、

1. 擬ギャップは超伝導の前駆現象（位相ゆらぎ）かどうか
2. “隠れた量子臨界点”が存在するかどうか

が焦点となる。

本研究では、超伝導ゆらぎを測定することで上記の問題に取り組んだ。高温超伝導体では熱ゆらぎの効果が大きく、2次相転移に普遍的な秩序変数の絶対値のガウスゆらぎのみならず、超伝導転移の普遍性クラスを反映した臨界ゆらぎが観測される。したがって、超伝導ゆらぎを測定し、位相ゆらぎが観測された領域が擬ギャップの領域と一致するか調べることで、1. を検証できる。また、古典的な臨界現象の描像ではキャリア濃度の増減では相転移の普遍性クラスは変化せず、ゆらぎの性質も変わらない。しかし、仮に量子臨界点があり、その相転移が2次であれば、その近傍では量子ゆらぎが超伝導ゆらぎに影響を与えるかも知れない。したがって、超伝導ゆらぎのキャリア濃度依存性を調べることで2. を検証できる可能性がある。さらに、 $t-J$ モデルではホールドーピング系と電子ドーピング系の対称性が予想されており、ホールドーピング系と電子ドーピング系の試料を同様に測定することで、この観点からも吟味できる。

以上のような背景から、ホールドーピング系高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) と、電子ドーピング系高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (LCCO) の幅広いキャリア濃度の試料を用いて超伝導ゆらぎの測定を行った。

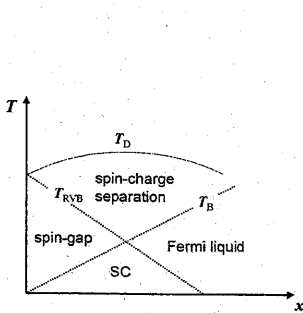


図 2: $t-J$ モデルの電子相図

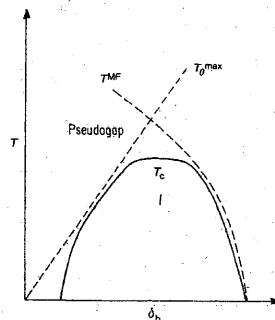


図 3: 擬ギャップを位相ゆらぎとみなす電子相図

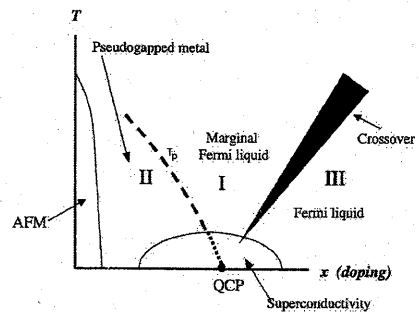


図 4: 量子臨界点を仮定するモデルの電子相図

また、電子相図の議論とは別に、本研究では混合状態と超伝導ゆらぎの関連性も探った。高温超伝導体では、ゆらぎが大きいことに起因して、磁束系が様々な秩序をとるなど混合状態に新奇な現象が引き起こされる [4]。例えば、秩序変数は十分発達しても磁束量子が自由に動き回れるためにゼロ抵抗とならない磁束液体相が存在する。興味深いのは、常伝導相と磁束液体相の間に相転移がなく、超伝導秩序が成長し出して磁束量子が良く定義された状態になるまでの過程が連続的であることである。このような変化を定量的に取り扱った研究はない。しかし、磁束系の物理を議論する上で、磁束量子の描像がどこまで成り立っているのかを明らかにすることは重要である。そこで、上部臨界磁場 H_{c2} が 10 T 程度と小さい LCCO を用い、広い磁場範囲で測定を行った。

2 解析方法・実験方法

臨界ゆらぎによる伝導度 σ_{H} は、動的スケーリング則

$$\sigma_{\text{H}} = \xi^{z+2-d} S(\omega \xi^z) \quad (1)$$

に従うと考えられる [5]。ここで $\xi(T) = |T/T_c - 1|^{-\nu}$ であり、 d は次元、 ν, z は臨界指数である。つまり、ゆらぎ伝導度の周波数依存性を T_c の近傍で測定することで、 d, ν, z が実験的に求まり相転移の普遍性クラスを決定できる。

一方、磁束量子の運動による伝導度（抵抗率）は、平均場近似による計算で

$$\rho = \frac{\rho_v + i\mu_0\lambda^2}{1 + 2i(\lambda/\delta_{\text{nf}})^2} \quad (2)$$

$$\rho_v = \frac{B\Phi_0}{\eta} \left[\frac{\epsilon + (\omega/\omega_p)^2 + i(1-\epsilon)\omega/\omega_p}{1 + (\omega/\omega_p)^2} \right] \quad (3)$$

と求められている [6]。ここで、 δ_{nf} は常流体による表皮厚さ、 λ は超流体による磁場侵入長、 η, ω_p, ϵ は磁束量子の粘性係数、ピン止め周波数、クリープ係数である。この場合も、伝導度の周波数依存性を、この式を使って合理的なパラメータでフィッティングできるかどうかで、磁束量子が良い定義となっているかどうかを判断できる。

このように、本研究の目的には伝導度の周波数依存性 $\sigma(\omega)$ の測定（伝導度スペクトロスコピー）が適当である。そこで以下のようなブロードバンド法を用いた。まず同軸ケーブルの片端に薄膜試料を密着させ、マイクロ波に対する複素反射率 S_{11} を周波数 ω 、温度 T 、磁場 B 、の関数として測定する。測定された S_{11} から、同軸ケーブルなどの寄与を較正すれば、

$$\sigma = \frac{1}{Z_{\text{vact}}} \frac{1 - S_{11}}{1 + S_{11}} \quad (4)$$

を用いて複素伝導度 $\sigma(\omega, T, B)$ を得られる。

3 結果と考察

高温超伝導体に先立って従来超伝導体 NbN の超伝導ゆらぎを測定し、動的スケーリング解析を行った。その結果、ガウスゆらぎで非常に良く説明できることを確認した。このことから、十分な精度で伝導度が測定できていること、ゆらぎ伝導度の動的スケーリング解析によって超伝導ゆらぎの性質を実験的に明らかにできることを確認した。

3.1 高温超伝導体における超伝導ゆらぎのキャリア濃度依存性

LSCO 薄膜 ($x = 0.07 \sim 0.20$) と LCCO 薄膜 ($x = 0.075 \sim 0.150$) について $\sigma_{\text{H}}(\omega, T)$ を測定し、動的スケーリング解析を行った。得られた結果をまとめたものが図 5 の電子相図である。

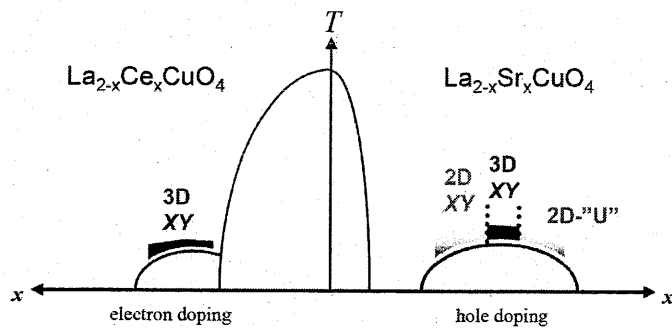


図 5: 高温超伝導体の超伝導ゆらぎ

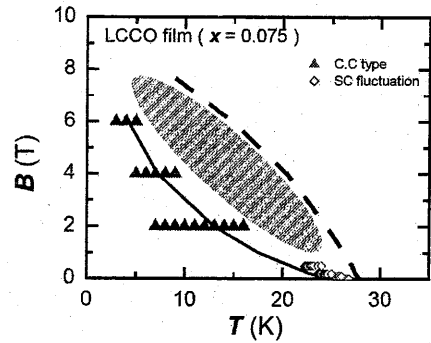


図 6: LCCO($x = 0.075$) の $H - T$ 相図

まず、擬ギャップについて検討する。擬ギャップが広い温度領域で見られるホールドーピング系の低ドーピング領域では、2次元 XY 的なゆらぎとなり、 T_c が位相のコヒーレンスで決まっていることが示唆される。しかし、超伝導ゆらぎの温度領域は高々 $2T_c$ 程度で、擬ギャップ領域より明らかに狭い。したがって、擬ギャップ領域全体を超伝導のゆらぎと解釈することはできず、図 3 のような相図とは矛盾する。

次に、隠された量子臨界点の有無を考察する。ホールドーピング系では、キャリアドーピングによってゆらぎの次元性が変化している。これは、古典的な臨界現象の範疇では説明できない。図 2 や図 3 からは一見、相転移の性質が変化するように思えるが、次元の変化を説明することは難しい。“隠れた量子臨界点”モデル (図 4) では、量子臨界点の近傍の強い量子ゆらぎが、超伝導ゆらぎの面間の相関に影響を与えると考えれば、2次元から3次元への変化を説明可能である。このシナリオでは、量子ゆらぎの影響がない高ドーピング領域と低ドーピング領域の2次元的なゆらぎが同じであることが予想される。しかし、高ドーピング組成での実験結果は、2次元 XY モデルともガウスゆらぎとも異なる臨界指数 $\nu \approx 0.9, z \approx 1.7$ を与えた (2次元 “U” と記述)。これは、2次元 XY モデルに乱れやフラストレーションを加えた結果現れた、新しい普遍性クラスである可能性が高い [7]。つまり、基本的には2次元 XY であり“隠れた量子臨界点”モデルでのシナリオに矛盾しない。LSCO では元素置換によりホールドーピングしているので高ドーピング組成で乱れが大きいことは自然である。しかし、超伝導秩序にフラストレーションが加わることは自明ではない。したがって、乱れの少ない高ドーピング組成が得られる $Tl_2Ba_2CuO_y$ などを用いて、乱れの影響かどうかを検証し、もしフラストレーションの影響であると結論できた場合にはホールドーピングによりフラストレーションが加わるメカニズムが明らかにされる必要がある。

最後に、ホールドーピング系と電子ドーピング系を比較する。電子ドーピング系ではゆらぎの性質はキャリア濃度に依存性せず、ホールドーピング系と対照的である。また、低ドーピング領域でも超伝導ゆらぎの温度領域はそれほど大きくはならない。この点からも、“隠れた量子臨界点”を仮定するモデルが支持される。ただし、

- ホールドーピング系でのみ2次の量子相転移が存在するのはなぜか
- 量子ゆらぎの効果を除くとホールドーピング系では2次元的なゆらぎ、電子ドーピング系では3次元的なゆらぎとなるのはなぜか

という問題が残る。逆に、これらの実験事実を説明できるかどうか、“隠れた量子臨界点”を仮定する理論群に対する試金石となると考えられる。

3.2 高温超伝導体における磁束量子のダイナミクス

LCCO($x = 0.07$) に対して磁場 $B = 0 \sim 8$ T の範囲で T_c 近傍の $\sigma(\omega)$ を測定し、動的スケールリング則と磁束量子のダイナミクスの平均場モデルを用いて解析した。結果を図 6 の $H - T$ 相図に示す。実線はゼロ抵抗温度、破線は抵抗が減少し始める温度であり、その間の領域がいわゆる磁束液体相である。磁束量

子の影響が小さい低磁場 ($B \leq 0.5$ T) でゆらぎ伝導度の動的スケーリング則が成立したのは自然である。しかし、高磁場中においても、実験結果が磁束量子モデルと整合したのは図の三角印の領域であり磁束液体相のごく一部でしかない。つまり、“磁束液体”というナイーブな名称とは異なり、図のハッチ部では超伝導ゆらぎの影響が強く、磁束量子の描像があまり明確になっていないことが明らかになった。この領域を定量的に取り扱ったモデルの構築が望まれる。一方、平均場近似が適用できないと考えられる相転移線(実線)近傍を含めて、平均場モデルで実験結果が記述できたのは注目に値する。このことは、少なくとも数 GHz 以上の高周波では磁束量子間の相関が事実上無視でき、相転移近傍でも平均場近似が有効であることを示している。

4 結論

ホールドープ系高温超伝導体 LSCO($x = 0.07 \sim 0.20$)、電子ドープ系高温超伝導体 LCCO($x = 0.075 \sim 0.150$) に対してゆらぎ伝導度の周波数依存性の動的スケーリング解析を行い、ホールドープ系ではキャリアドーピングによってゆらぎの性質が2次元 XY、3次元 XY、2次元 “U” と変化すること、一方で電子ドープ系では全てのキャリア濃度で3次元 XY 的であることを明らかにした。この結果から、高温超伝導体の電子相図に対して提案されている理論モデルのなかでは、超伝導相の内部に“隠れた量子臨界点”を仮定するモデルが最も適当であることを示した。また、それらのモデルで今後検証されるべき実験事実を提示した。

LCCO($x = 0.075$) に対して広い磁場範囲で伝導度の周波数依存性の測定を行い、磁束量子の描像が成立する温度、磁場領域を明らかにした。その結果から、いわゆる磁束液体相の大部分において磁束量子が良く定義された状態ではなく、超伝導ゆらぎの影響を考慮する必要があることを示した。

参考文献

- [1] Y. Suzumura, Y. Hasegawa, and H. Fukuyama, *J. Phys. Soc. Jpn.* **57**, 2768 (1988); N. Nagaosa and P. A. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2450 (1990).
- [2] V. J. Emery and S. A. Kivelson, *Nature* **374**, 434 (1995).
- [3] C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **55**, 14554 (1997); S. Chakravarty *et al.*, *Phys. Rev. B* **63**, 094503 (2001); J. Zaanen, *Nature* **404**, 714 (2000) など.
- [4] G. Blatter *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 1125 (1994).
- [5] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher and D. A. Huse, *Phys. Rev. B* **43**, 130 (1991).
- [6] M. W. Coffey and J. R. Clem, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 386 (1991).
- [7] P. Hølem, B. J. Kim, and P. Minnhagen. *Phys. Rev. B* **67**, 104510 (2003); M. Hasenbusch, A. Pelissetto, and E. Vicari, *J. Stat. Mech.*, P12002 (2005) など.