

学 位 論 文 題 名

Study on the Electric and Magnetic Properties of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ Single Crystal($\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 単結晶の電氣的性質と磁氣的性質に関する研究)

学位論文内容の要旨

§ 1 序 論

$\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ で転移温度 T_c が $\sim 30\text{K}$ の超伝導が発見されて以来、Y系 ($T_c \sim 90\text{K}$) や Tl系 ($T_c \sim 125\text{K}$) など多くの銅酸化物高温超伝導体が発見されている。これら全ての系は CuO_2 から成る 2 次元面 (Cu-O 面) を持つことが分かっており、超伝導のペアリングは Cu-O 面内で起こっていると考えられている。従って、ペアリングの機構を解明するためには、Cu-O 面内でのキャリアー (ホール) の運動を詳しく調べることは重要である。

La-系の母結晶 La_2CuO_4 は電荷移動型絶縁体である。また、この系では、 $S=1/2$ のスピンが Cu サイトに局在し、これらが $T_N \sim 210\text{K}$ で反強磁性秩序を示す。La を Sr や Ba で置換することによって母結晶にホールを添加すると、反強磁性秩序は急速に抑えられ、完全に消失するまでホールが添加されると、この系は超伝導を示すようになる。しかし、超伝導になる試料でも、Cu スピンは Cu-O 面内で反強磁性的に相関していることが中性子散乱の実験から明らかになっている。Cu スピンの反強磁性相関は、もっと高い T_c を持つ Y 系などでも観測されており、ペアリングの機構に重要な役割を果たしていると考えられている。従って、Cu スピンの磁氣的性質やホールとの磁気相互作用を詳しく理解することは重要である。しかし、ホールの添加と共に Cu スピンの局在性が薄れるため、超伝導を示す系のこれらの性質は非常に複雑になっている。 La_2CuO_4 の単結晶では、La 欠陥があるためにホールは存在するが、その数はごく僅かであり、Cu スピンは完全に局在している。Cu スピンの磁氣的性質やホールとの磁気相互作用を明らかにするためには、まず、ホールの少ない系の単純な場合について詳しく調べるのが重要と考えられる。

本研究では、 La_2CuO_4 の磁気的性質を調べるために、磁化の温度変化、磁場依存性を測定した。また、この系のホールの運動、及び、ホールとCuスピンとの磁気相互作用を調べるために、電気抵抗率の異方性、温度変化、磁場依存性を測定した。さらに、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ と $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_{6.9}$ で超伝導の上部臨界磁場の異方性を測定し、この結果から、ホールの運動に関する2次元性の程度を評価した。

8.2 実験方法

本研究では、NTT電気通信研究所でCuOフラックス法により作成された単結晶を用いた。磁化の測定はQuantum-Design社製MPMS磁化測定装置を使用した。電気抵抗は直流4端子法で測定した。また、この異方性の測定にはMontgomery法を併用した。磁場中の電気抵抗、上部臨界磁場の測定にはOxford社製超伝導磁石を使用した。

8.3 実験結果と考察

La_2CuO_4 の反強磁性状態でCu-O面に垂直(b-軸)に磁場を印加すると、臨界磁場 H_c で弱強磁性転移が起こることが知られている。また、この磁気転移はCuサイトの磁気モーメント M_s がb-軸に沿って僅かに傾いていることに起因することが明らかになっている。b-軸に沿う磁場が H_c よりも小さいときには、 M_s のb成分 M_b は隣合ったCu-O面で反対向きになっているが、 H_c 以上では、磁場と反対向きの M_b を持つモーメントが反転し、全ての M_b が磁場の向きに揃う。このため、 H_c 以上で弱強磁性が誘起され、また、 H_c で磁化がステップ的に増大することになる。我々はこの磁気転移の H_c と磁化の増大 ΔM を正確に測定し、これらの温度変化を詳しく調べた。その結果、i) H_c と ΔM が同じ温度変化を示すこと、ii) これらは、 T_N 以下で急速に増加し150K付近でほぼ一定になるが、 $T^* = 110\text{K}$ で再び増大することが分かった。i)の簡単な考察から、 M_s が傾いている角度 θ_0 (0.17°)が温度に依存しないこと、 H_c 、 ΔM の温度変化は M_s の温度変化を反映することが分かった。従って、ii) から、 M_s が T^* の低温で増大することが結論される。 T^* で磁化率が小さなピークを示すことも明らかになっており、この温度で何らかの磁気転移が起こっていると考えられる。また、 H_c と ΔM から、Cu-O面間のCuスピンの結合定数 $J_\perp$ ($3 \times 10^{-2}\text{K}$)が決定された。これは面内の結合定数(10^3K)に比べ5桁も小さい。この系では、Cu-O面内での反強磁性スピン相関の発達が顕著であることから、Cuスピンの

結合が2次元的であると考えられていた。本研究では、この2次元性の程度を定量的に評価することができた。

La_2CuO_4 の電気抵抗率 ρ は大きな異方性 $\rho_{\perp}/\rho_{\parallel} \approx 50$ (//: Cu-O面内、 $\perp$: 面に垂直)を示した。 $\rho_{\parallel}$ の温度変化は $\rho_{\parallel} = \rho_0 \exp[(T_0/T)^{1/3}]$ となることが分かった。この系のホールは強いAnderson局在を示すと考えられている。強いAnderson局在を示す系でのキャリアの運動はVariable-Range-Hopping (VRH) 機構に従がい、この場合、 ρ は電子系の次元 d によって異なる温度変化を示す($\rho = \rho_0 \exp[(T_0/T)^{1/(d+1)}]$)。 La_2CuO_4 の ρ の温度変化は $d=2$ の場合と一致しており、従って、この系のホールはVRHによってCu-O面内を2次元的に運動していると考えられる。

T^* で磁気転移を示す結晶では、VRH伝導の特性温度 T_0 が T^* 以下で増大し、 $\sim 40\text{K}$ で再び一定になることが分かった。この T_0 の増大はホールの局在が T^* 以下で強まったことを意味する。従って、 T^* 以下でCuサイトのモーメント M_s が増大するのは、ホールの局在が強まったことに起因すると考えられる。 ρ の磁場依存性から、 H_c 以上で負の磁気抵抗が現われることが分かった。また、この負の磁気抵抗はホールの局在が弱まるためであることが分かった。 H_c では、Cu-O面間の最近接 M_s の秩序が反強磁性的なものから強磁性的なものに変化することが中性子磁気散乱の実験で示されている。従って、このようなCuスピンの磁気秩序の変化がホールの局在を弱めると考えられる。この系のホールのスピンはCuスピンと強く結合するため、ホールの回りではCuスピンの反強磁性的結合が破壊されと考えられている。従って、ホールがCu-O面内を動き回るとCuスピンの反強磁性秩序が乱されることになり、逆に、ホールの運動はCuスピンの反強磁性秩序の影響を強く受けることになる。本研究では、このような両者の関係を実験的にはっきりと示すことができた。

超伝導の上部臨界磁場 H_{c2} は、Cu-O面に平行な場合 $H_{c2\parallel}$ が垂直な場合 $H_{c2\perp}$ に比べて、La系で8~12倍、Y系で6~8倍と、大きな異方性を示すことが分かった。また、Y系では、 H_{c2} の角度依存性から、超伝導に関与するホールの有効質量の異方性 $M_{\perp}/M_{\parallel}$ が60と非常に大きいことが分かった。このように、本研究では、超伝導に関与するホールの運動が極めて強い2次元性を示すことが明らかになった。

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	伊 土 政 幸
副 査	教 授	塩 崎 洋 一
副 査	教 授	三 本 木 孝
副 査	助 教 授	熊 谷 健 一
副 査	助 教 授	大 川 房 義

学 位 論 文 題 名

Study on the Electric and Magnetic Properties of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ Single Crystal

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ は代表的な銅酸化物高温超伝導体の一つで、Cu-O面が伝導を担っており、Cu-O面の存在が超伝導の出現と深く係わっている。その母結晶である La_2CuO_4 は絶縁体で、Cuサイトのスピンが低温で反強磁性秩序を示す。LaをSrやBaで置き換えることによってCu-O面にキャリアー（ホール）を添加すると反強磁性秩序が急速に消失し、ホール濃度が6%を越えると低温まで金属的となって超伝導を示すようになる。超伝導を示す試料では、3d電子が動き始めるためCuスピンの局在性が薄れるが、Cuサイト間には反強磁性的相関が残っており、この反強磁性相関とホールとの磁氣的相互作用が超伝導の発現機構に強く関与していることが考えられ、現在、大きな興味をもたれている。

申請者は、CuOフラックス法により作成された良質の $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 単結晶を用い、磁化の温度依存性と磁場依存性、電気抵抗率の異方性と温度変化、磁気抵抗、超伝導の上部臨界磁場の測定を行いCu-O面内におけるホールの運動の様子や低ホール濃度領域での磁氣的性質を詳細に調べた。特に、Cuスピンが完全に局在している低ホール濃度領域では、反強磁性的に結合しているCuスピン系に対するホールの運動の影響を明らかにすることが試みられた。

得られた研究成果を以下に簡単にまとめる。

(1) ホールの少ない試料では磁場誘起による弱強磁性転移が起こることが知られているが、その臨界磁場 H_c と、 H_c における磁化の増大 ΔM を精密に測定することに成功し、 H_c と ΔM は共に Cu サイトの磁気モーメントの大きさ M_s によって決まっていることを明らかにした。また、 H_c と ΔM の値から、隣合う Cu-O 面間の Cu スピンの結合定数 J が見積られ、この系では、Cu スピンの結合が 2 次元的であることを定量的に明らかにした。

(2) さらに、 H_c や ΔM 、即ち、 M_s が $T^* = 110\text{K}$ で増加を示し、磁化率にも小さなピークが現れることから T^* で何らかの磁気転移が起こることを見つけた。一方、この系の電気抵抗率 ρ は大変異方的で、Cu-O 面内での温度変化は $\rho = \rho_0 \exp[(T_0/T)^{1/3}]$ となることを明らかにした。これらの結果から、ホールの運動は二次元的で、低温では強いアンダーソン局在を起こすことを明確にした。また、 T^* での磁気転移に伴って ρ の特性温度 T_0 が増大することを見つけ、 T^* 以下でホールの局在性が増すため M_s が増加すること示した。これは、Cu スピンとホールの磁氣的相互作用のために Cu スピンの反強磁性秩序とホールの運動が競合関係にあり、ホールの局在性が強まると Cu スピンの反強磁性秩序が回復すると共に M_s も増加するためであると結論した。

(3) 磁場中の電気抵抗 ρ は、 H_c での弱強磁性転移に伴って大きな負の磁気抵抗を示すことを見つけた。この負の磁気抵抗は、 H_c 以上では T_0 が減少することから、ホールの局在が弱まるためであると明らかにした。この現象も Cu スピン系の反強磁性秩序とホールの運動が競合関係にあることを示す例となっており、 H_c では Cu-O 面間の反強磁性秩序が失われるため、その分ホールの運動が回復するためと解釈できることを示した。

(4) 超伝導の上部臨界磁場 H_{c2} は、磁場が Cu-O 面に平行な場合は垂直な場合に比べて 8 ～ 12 倍大きく、大変異方的であることを示した。また、有効質量モデルによる H_{c2} の角度依存性の解析から、超伝導に関与するホールの有効質量の異方性が 60 であることを決定し、その運動が 2 次元的であることを明らかにした。

このような申請者の研究は、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 系におけるホールの運動と Cu スピン系に対する新たな知見をもたらした点で高く評価されている。参考論文 12 編はいずれも權威ある国際学術誌に発表されている。よって審査員一同は申請者が博士(理学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認めた。