# 磁場中輸送特性による Bi-2212 の擬ギャップ相図

Pseudogap phase diagram of Bi-2212 studied

by measuring transport properties under the magnetic fields

弘前大・理工 村田 康介, 工藤 広信, 臼井 友洋, 櫛引 治樹, 渡辺 孝夫 東北大・金研 工藤 一貴, 西嵜 照和, 小林 典男
東北大・WPI 山田 和芳
東北大・工 野地 尚, 小池 洋二
K. Murata<sup>1</sup>, H. Kudo<sup>1</sup>, T. Usui<sup>1</sup>, H. Kushibiki<sup>1</sup>, T. Watanabe<sup>1</sup>,
K. Kudo<sup>2</sup>, T. Nishizaki<sup>2</sup>, N. Kobayashi<sup>2</sup>, K. Yamada<sup>3</sup>, T. Noji<sup>4</sup> and Y. Koike<sup>4</sup>
<sup>1</sup> Graduate School of Science and Technology, Hirosaki University
<sup>2</sup> Institute for Materials Research, Tohoku University

<sup>3</sup> World Premier International Research Center, Tohoku University

<sup>4</sup> Graduate School of Engineering, Tohoku University

## 1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体は、母結晶である Mott 絶縁 体にキャリアをドープすることで超伝導が発現する。しか し、その高い転移温度 T. をもたらす具体的な超伝導機 構は解明されていない。また、低ドープ領域において特 に顕著に現れる、電子状態密度が Teより十分高い温度 から減少し始める「擬ギャップ」という現象が多くの高温 超伝導体に共通して観測されており、この擬ギャップの 理解が高温超伝導の発現機構を解明する鍵を握ると考 えられている。擬ギャップの研究における最大の争点は、 擬ギャップが超伝導由来の電子対形成(プリフォームド ペア)を意味するか、反対に超伝導とは競合するなんら かの秩序形成を意味するのかにある。前者の場合、擬 ギャップが開き始める温度 T\*はキャリアのドーピングと 共に減少し、過剰ドープ側で超伝導揺らぎの開始温度 Tscf のように Tc と一致してゆくと考えられる。一方後者の 場合、T\*はあるドーピング量付近で T<sub>c</sub>と交差し、量子臨 界点と呼ばれる絶対零度の相転移点に向かうと予想さ れる。擬ギャップ温度 T\*を電子相図として実験的に明ら かにできれば、擬ギャップひいては高温超伝導機構の 理解につながる。

昨年度の共同利用研究では、主に過剰ドープ域 Bi-2212 単結晶を用いて、磁場中 c 軸方向抵抗率特性 を評価した。その結果、T<sub>c</sub> 近傍で明瞭な負の磁気抵抗 を観測し、その開始温度は、静帯磁率の測定によって 報告されている超伝導揺らぎの開始温度 T<sub>scf</sub>に近いこと から、この負の磁気抵抗開始温度をT<sub>scf</sub>と考えた[1]。

本年度は、このことを確認するために、同様な実験を ab面内抵抗で行い、超伝導揺らぎの実験的検証を行っ た。さらに、広範囲にドープ量を制御した Bi-2212 単結 晶を用いて、磁場中 ab 面内及び c 軸方向抵抗率測定 を行い、T\*と T<sub>scf</sub>のドープ量依存性の評価を行ったので 報告する。

## 2. 実験方法

測定試料として、Bi<sub>2+x</sub>Sr<sub>2-x</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>単結晶(x=0.1, 0.2)を用いた。単結晶は溶媒移動型浮遊帯域法(TSFZ

法)によって作製を行った。また、広範囲にドープ量を制 御した試料を作製するために、様々な酸素分圧下で熱 処理を行った。充分に過剰ドープ試料は、400atm~ 990atm の高酸素分圧下で熱処理を行うことによって作 製した。

試料の結晶評価は XRD により評価した。c 軸長の算 出には、N-R 関数の外挿法を用いた。N-R 関数は以下 に示す。

$$NR(\theta) = \frac{\cos^2 \theta}{\sin \theta} + \frac{\cos^2 \theta}{\theta}$$

各 00*l* ピークによって計算した c 軸長を y 軸に、そ の時の角度  $\theta$  を N-R 関数に代入し、得られた値を x軸にしてプロットする。プロットされた点を最小自 乗法で直線近似し、その直線の y 切片を c 軸長の値 とした。

磁場中 ab 面内抵抗率  $\rho_{ab}$ 及び c 軸方向抵抗率  $\rho_c$ 測定は直流四端子法によって行った。実験は東北大学金研の 20T 超伝導マグネット中で行い、印加磁場は最大 17.5T、磁場の印加角度は H/c として測定を行った。

*c* 軸抵抗率測定試料のホール濃度 *p* の決定には、ρ<sub>c</sub> と *p* との間に成り立つ経験式[2]を用いた。経験式は以下に示す通り。

$$p = 0.024 + \frac{0.993}{r + 4.696}$$
$$r = \rho_{c, \text{page}} / \rho_c (RT)$$

面内抵抗率測定試料のpは、このようにして求められた pの値を $T_c$ を用いて適当に外挿することによって求めた。

### 3. 実験結果と考察

#### 3-1. XRD による c 軸長の評価

TSFZ 法により作製し、様々な酸素分圧下で熱処理を 行いドープ量を制御した  $Bi_{2+x}Sr_{2-x}CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶を、 X線回折によって評価した。

Fig.1 に N-R 関数から算出した c 軸長と  $T_c$ との関係を示す。x=0.1、0.2 試料共に、オーバードープになるに従い  $T_c$ とc 軸長の減少が見られた。Bi-2212 単結晶では、



Fig.1 Transition Temperature  $T_c$  plotted against the c-axis length.



Fig.2 Out-of-plane resistivity  $\rho_c$  of an optimally doped Bi-2212 single crystal under the various magnetic fields.



Fig.3 In-plane resistivity  $\rho_{ab}$  of an optimally doped Bi-2212 single crystal under the various magnetic fields.

酸素量δの増大に伴い *c* 軸長と*T<sub>c</sub>は減少することが報告されている[3]ので、この結果はドープ量を制御した試料が確かに作製されていることを示している。* 

# 3-2. 最適ドープ試料の磁場中輸送特性

Fig.2 に Bi-2212(x=0.1) (最適ドープ)における各種磁 場下での pcを、Fig.3 に Bi-2212(x=0.1) (最適ドープ)に おける各種磁場下での ρ<sub>ab</sub> を示す。また、挿入図は T<sub>c</sub> 近傍を拡大した図である。ゼロ磁場の pc から、擬ギャッ プが室温付近から開き始めている (T\*=280K)。磁場を 印加するに従い  $T_c$  近傍で、 $\rho_c$  では負の磁気抵抗が  $\rho_{ab}$ では正の磁気抵抗が明瞭に観測された。一般に、T<sub>c</sub>近 傍で ρ<sub>ab</sub> が減少するのは、超伝導揺らぎによって起こっ ていると理解される。従って、Fig.3 の挿入図に示すよう に、正の磁気抵抗が観測され始める温度は T<sub>scf</sub>と考えら れる。また、この温度とp。に負の磁気抵抗が現れた温度 はほぼ一致した。この結果から、ρ。に負の磁気抵抗が 現れた温度も  $T_{scf}$ と考えることができる( $T_{scf} = 120$ K)。実 際、高温超伝導体のような極端に二次元性の強い物質 では超伝導揺らぎによっても ρ。の増大が起こると予想さ れている[4]。これは、超伝導揺らぎによる面内の状態密 度 (DOS)の減少が、擬ギャップによる効果と同様に c軸 方向の電子のトンネル確率を減少させるからである。こ のことから、高温超伝導体における ρ。の上昇は始めに (高温側では)擬ギャップによっておこるが、Tc 直上では 擬ギャップと超伝導揺らぎの効果が重なって起こってい ると考えられる。

# 3-3. 広範囲にドープ量を制御した試料の磁場中輸送 特性

Fig.4 に広範囲にドープ量を制御した Bi-2212 単結晶 の各種磁場下での  $\rho_c$  ((a)-(c))と  $\rho_{ab}$  ((d)-(f))を示す。ドー プ量は(a)から(c)、及び(d)から(f)へ向かって増大してい る。(a)(b)(d)(e)は不足ドープ、(c)(f)は過剰ドープであ る。

(a) Bi-2212(x=0.2) (Heavily under)の $\rho_c$ は、室温から upturn が始まっている。従って、T\*を見積もることはでき ないが、室温以上から擬ギャップが開き始めていること がわかる(T\* > 300K)。挿入図から負の磁気抵抗開始温 度は 70K 付近と見積もることができる。従って、  $T_{sef}\rho_c=$ 70K と見積もられる。

(b) Bi-2212(x=0.2) (Slightly under)の  $\rho_c$ も、室温から upturn が始まっている。従って、室温以上から擬ギャッ プが開き始めている ( $T^* > 300$ K)。挿入図から、負の磁 気抵抗開始温度は 95K 付近と見積もることができる。こ のことから、 $T_{scf}\rho_c=95$ K と見積もられる。

(c) Bi-2212(x=0.1) (Slightly over)の $\rho_c$ では、upturn が 170K 付近から観測された。従って、 $T^*=170K$ と考えるこ とができる。挿入図から負の磁気抵抗開始温度は 115K 付近と見積もることができる。従って、 $T_{scf}\rho_c=115K$ 、と見 積もられる。

(d) Bi-2212(x=0.2) (Heavily under)の  $\rho_{ab}$ では、正の磁気抵抗開始温度は 105K 付近、従って  $T_{scf}\rho_{ab}$ =105K、と見積もられる。この温度は、擬ギャップの影響によると考



Fig.4 (a), (b), (c) Out-of plane resistivity  $\rho_c$  and (d), (e), (f) in-plane resistivity  $\rho_{ab}$  of variously doped Bi-2212 single crystals under the magnetic fields. Their doping levels increase from (a) to (c) and (d) to (f).



Fig.5 Out-of-plane resistivity  $\rho_c$  of a Heavily doped (600atm) Bi-2212 single crystal under the various magnetic fields.

えられている高温 T-linear からの逸脱温度と明らかに 異なる。

(e) Bi-2212(x=0.2) (Slightly under)の ρ<sub>ab</sub>では、正の磁 気抵抗開始温度は 115K 付近、従って *T*<sub>scf</sub>ρ<sub>ab</sub>=115K、と



Fig.6 In-plane resistivity  $\rho_{ab}$  of a Heavily doped (400atm) Bi-2212 single crystal under the various magnetic fields.

見積もられる。この温度は、やはり pab に見られる擬 ギャップ温度と一致しない。

(f) Bi-2212(x=0.1) (Slightly over)の $\rho_{ab}$ では、正の磁気 抵抗開始温度は 115K 付近、従って $T_{scf}\rho_{ab}$ =115K、と見

#### 積もられる。

Fig.5 に高圧酸素を用いて充分に過剰ドープにした Bi-2212(x=0.2) (Heavily over)の各種磁場下での $\rho_c \varepsilon$ 、 Fig.6 に同様に充分に過剰ドープにした Bi-2212(x=0.1) (Heavily over)のゼロ磁場及び 17.5T の磁場下での $\rho_{ab}$ を示す。Fig.6 の試料の  $T_c$ は Fig.5 の試料のそれと比較 して高いが、これは Fig.6 の試料の中に僅かに存在して いるフィラメント状の超伝導領域のせいである。実際、こ の高  $T_c$ な領域は、1T の磁場印加によって消失した。 よって、これらの試料はほぼ同じドープ量であると考える ことができる。

Fig.5 の挿入図から、 $\rho_c$  の upturn が 75K 付近から観 測された。従って、 $T^*=75K$  と考えることができる。Fig.6 の挿入図から、正の磁気抵抗開始温度は 90K 付近と見 積もることができる。従って、 $T_{scf}\rho_{ab}=90K$  と考えられる。こ の結果、このドープ量では、 $T_{scf}$  は  $T^*$ よりも高温側に位 置する。Fig.5 の $\rho_c$ に超伝導揺らぎが始まる 90K 付近で 変化が見られないのは、過剰ドープに伴って系が比較 的三次元的になっているためと思われる。75K 付近から 擬ギャップが開き始めるに伴って電子状態が二次元化 し、擬ギャップと超伝導揺らぎの効果が同時に $\rho_c$ の急激 な増大をもたらしたと考えられる。

Fig.7 に  $T^*$ 、 $T_{scf}$ 、 $T_c$ のホール濃度依存性をまとめて示 す。 $T_{scf}$ は  $\rho_{ab}$  と  $\rho_c$  でほぼ一致し、 $T_c$  とスケールするよう に見える。p < 0.2 では、 $T_{scf}$ は  $T^*$ よりずっと低温側に位 置する。面内抵抗率に現れる擬ギャップ温度よりも低温 である。一方、p > 0.2 では、 $T_{scf}$ は  $T^*$ よりも高温側に位 置する。以上より、 $T_{scf}$ と  $T^*$ は明らかに異なると言える。



Fig.7 Characteristic temperature versus carrier concentration *p* obtained by this study.

# 4. まとめ

 $ρ_c の T_c$ 近傍で観測された負の磁気抵抗が、超伝導揺らぎによるものであるかを検討するため、また擬ギャップ 温度 T\*と超伝導揺らぎ開始温度 T<sub>scf</sub>のホール濃度依存 性を調べるため、広範囲にドープ量を制御した Bi-2212 を作製し、磁場中 *ab* 面内抵抗率  $ρ_{ab}$ 及び *c* 軸方向抵抗 率  $ρ_c$ を評価した。その結果、磁場印加に伴い T<sub>c</sub>近傍で  $\rho_c$ では負の磁気抵抗が、 $\rho_{ab}$ では正の磁気抵抗が観測 され、その開始温度は一致した。このことから、正及び 負の磁気抵抗開始温度は超伝導揺らぎ開始温度  $T_{sef}$ であると考えられる。過剰ドープ側では  $T_{sef}$  は T\*よりも 高温側に位置することがわかり、この結果は、超伝導と 擬ギャップが別現象であることを示唆している。

### 参考文献

- [1] 村田康介, 櫛引治樹, 渡辺孝夫, 工藤一貴, 西嵜 照和, 山田和芳, 小林典男, 野地尚, 小池洋二: 東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究 センター平成 20 年度年次報告 (2008) 11.
- [2] T. Watanabe, T. Fujii and A. Matsuda, Recent Res. Devel. Physics, 5 (2004) 51.
- [3] T.Fujii, I.Terasaki, T.Watanabe and A.Matsuda, Phys. Rev. B 66, 024507 (2002).
- [4] L. B. Ioffe et al, Phys. Rev. B 47, 8936 (1993).