

La_{2-x}Sr_xCuO₄ の $x = 0.21$ 近傍における磁場中面内電気抵抗率と 磁場が誘起するストライプ相関の発達

In-plane electrical resistivity in magnetic fields and magnetic-field-induced development of stripe correlations around $x = 0.21$ in La_{2-x}Sr_xCuO₄

東北大・工 足立 匡, 宮崎 真史, 佐藤 秀孝, 小池 洋二

東北大・金研 西嶋 照和, 佐々木 孝彦, 小林 典男

T. Adachi¹, M. Miyazaki¹, H. Sato¹, Y. Koike¹, T. Nishizaki², T. Sasaki², N. Kobayashi²

¹ Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University

² Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

ホール型銅酸化物高温超伝導体のオーバードープ領域（ホール濃度の増加とともに超伝導転移温度 T_c が低下する領域）では、中性子非弾性散乱で見た非整合な磁気相関の強さの低下[1]、ミュオンスピン緩和 (μ SR) [2]、磁化率[3]、比熱[4]で見た超伝導領域と非超伝導領域への相分離などが指摘されている。なかでも、La 系超伝導体 La_{2-x}Sr_xCuO₄ (LSCO) の $x = 0.204$ 近傍において、Fig. 1 に示すような T_c のわずかな低下[5,6]、 μ SR で見た磁気相関の発達[7]、音速で見た磁場による格子不安定性の増大[8]、磁場による準粒子生成に伴う熱伝導率の増大の消失[9,10]などが報告されている。これらの異常は、所謂電荷とスピンのストライプ秩序[11]が発達する $x = 1/8$ 近傍で観測されている異常と同様であるため、 $x = 0.204$ 近傍でもストライプ相関が特異的に発達している可能性があると思われる。

以前、我々は、磁場によって形成されるストライプ秩序、すなわち磁場によるストライプ秩序の安定化の可能性を輸送特性の観点から調べるために、La_{2-x}Ba_xCuO₄ (LBCO) と La_{2-x}Sr_xCu_{1-y}Zn_yO₄ の $x = 1/8$ 近傍の単結晶試料を用いて、 c 軸に平行な磁場中での CuO₂ 面内電気抵抗率 ρ_{ab} を測定した[12-16]。その結果、ゼロ磁場で電荷ストライプ秩序が安定化している場合には、磁場中における ρ_{ab} の温度変化に現れる超伝導転移カーブが磁場の増加とともに低温側へほぼ平行移動（パラレルシフト）し、さらに、低温常伝導領域の ρ_{ab} が磁場にほとんど依らないことを見出した。一方、ゼロ磁場で電荷ストライプ秩序が不安定な場合には、 ρ_{ab} の超伝導転移カーブがアンダードープ領域の試料に特有のブロードニング（磁場の増加とともに超伝導転移温度幅が増大する現象）からパラレルシフト的な振る舞いに変化し、低温常伝導領域の ρ_{ab} が磁場によって増大することを

見出した。これらの結果から、(i)磁場の印加による ρ_{ab} の増大の大きさは、ゼロ磁場での電荷ストライプ秩序の安定性と密接な関連があり、さらに、(ii) La 系超伝導体において、CuO₂ 面に垂直な磁場と非磁性不純物 Zn はともに電荷ストライプ秩序を安定化させる効果を持つと結論した。

これらの結果を踏まえて、 $x = 0.204$ 近傍においてストライプ相関が発達していれば、 ρ_{ab} の特徴的な磁場効果が観測されるかもしれないと予想した。そこで、 $x = 0.204$ 近傍における異常とストライプ相関との関連を明らかにするために、平成 20 年度まで [17,18]に引き続き、LSCO の $x = 0.204$ 近傍を含む幅広いホール濃度領域の試料を用いて 17.5 T までの磁場中で ρ_{ab} を測定した[19]。

2. 実験方法

測定に用いた LSCO ($x = 0.195, 0.204, 0.220, 0.229$)

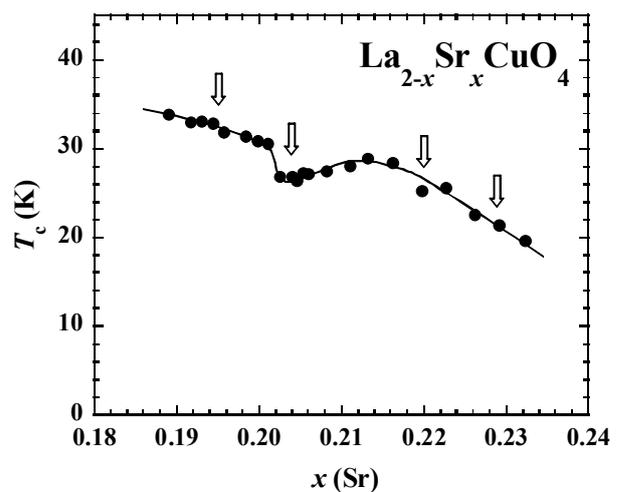


Fig. 1. Sr-concentration, x , dependence of the superconducting transition temperature, T_c , defined at the midpoint of the resistive transition, in La_{2-x}Sr_xCuO₄. Arrows indicate the samples used for the present resistivity measurements.

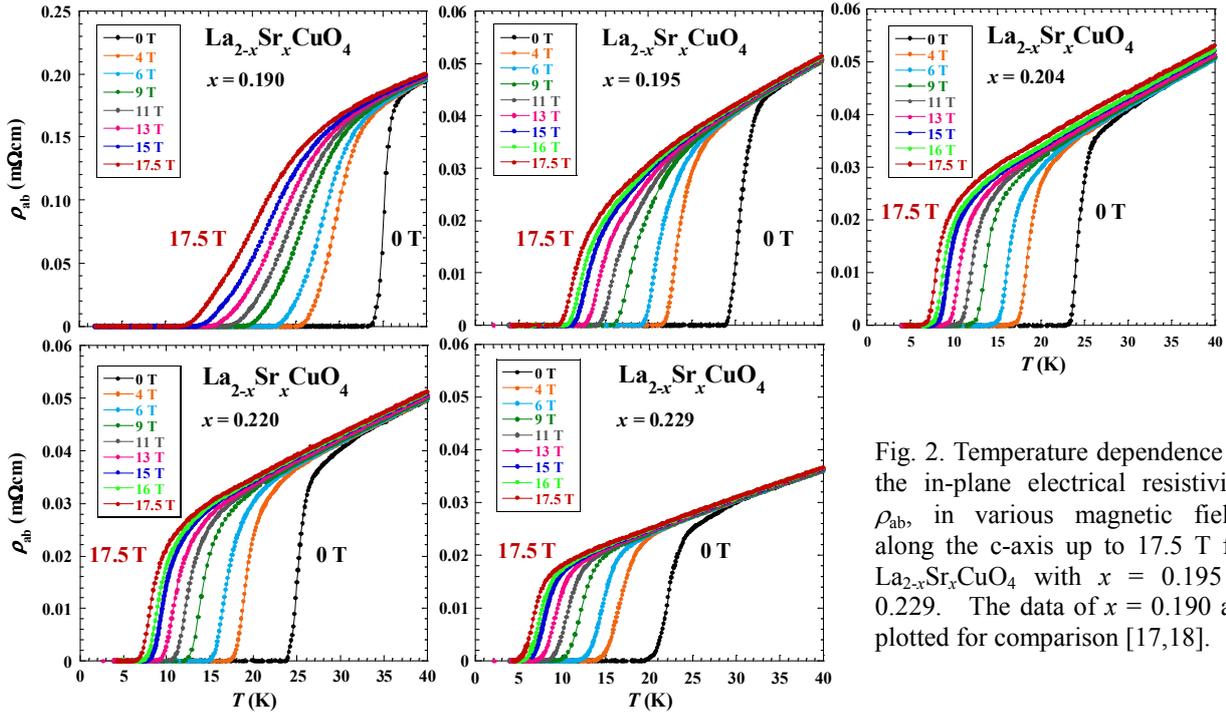


Fig. 2. Temperature dependence of the in-plane electrical resistivity, ρ_{ab} , in various magnetic fields along the c-axis up to 17.5 T for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ with $x = 0.195 - 0.229$. The data of $x = 0.190$ are plotted for comparison [17,18].

の単結晶試料は、溶媒移動型浮遊帯域溶融法によって育成した。なお、Fig. 1 に示すように、 $x = 0.204$ は超伝導が特異的に抑制されている異常な組成、 $x = 0.195, 0.220, 0.229$ はその両側の正常な組成に対応する。結晶中の Sr 量は、高周波誘導結合プラズマ分析を用いて評価した。

磁場中での ρ_{ab} の測定は、東北大金研附属強磁場超伝導材料研究センターの 20 T 高均一マグネット (20T-SM) を用いて、一定磁場中で冷却しながら行った。磁場は試料の c 軸に平行に印加した。

3. 実験結果と考察

一般に、アンダードープ領域では、 ρ_{ab} の超伝導転移カーブがブロードニングを示すが、これは、短いコヒーレンス長を持つゆらぎの大きい超伝導に起因する。一方、ホール濃度の増加とともにブロードニングは徐々に消失し、オーバードープ領域では、長いコヒーレンス長を持つゆらぎの小さい超伝導に起因するパラレルシフト的な振る舞いに変化する[20]。Fig. 2 に、LSCO の $x = 0.195, 0.204, 0.220, 0.229$ における 17.5 T までの磁場中での ρ_{ab} の温度依存性を示す。参考のために、以前測定した $x = 0.190$ の結果 [17,18] も載せた。 $x = 0.190$ や 0.195 では、比較的ブロードニングの傾向が強い。しかし、 $x = 0.204$ ではパラレルシフト的になっている。これは、 $x = 0.204$ 付近でゆらぎの小さい超伝導が実現していることを示唆する。

これらの違いをより詳しく見るために、Fig. 3 に、 ρ_{ab} の超伝導転移カーブから見積もった転移温度幅 ΔT_c をゼロ磁場での ΔT_c で規格化したものの磁場依

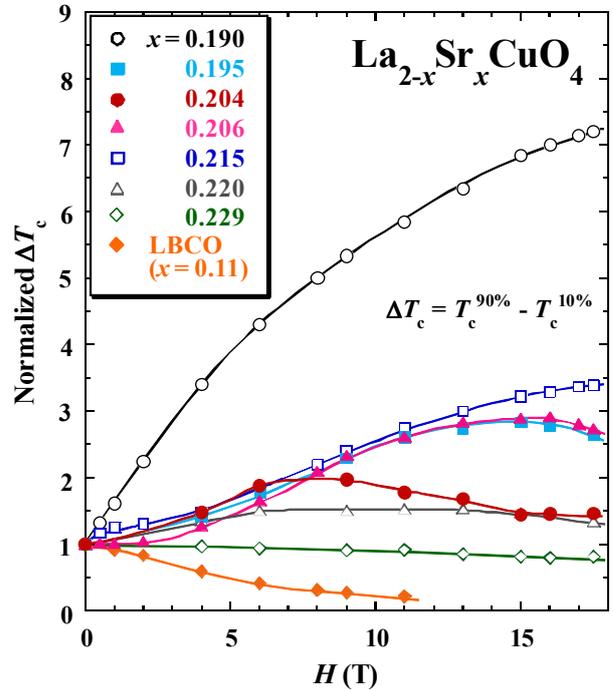


Fig. 3. Magnetic-field dependence of the superconducting transition width, ΔT_c ($= T_c^{90\%} - T_c^{10\%}$), normalized by ΔT_c in zero field, for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ with $x = 0.195, 0.204, 0.220, 0.229$. The data for LSCO with $x = 0.190, 0.206, 0.215$ [17,18] and $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ (LBCO) with $x = 0.11$ [12-16] are plotted for comparison.

存性を示す。ここで、 $\Delta T_c = T_c^{90\%} - T_c^{10\%}$ (常伝導状態における ρ_{ab} の90%と10%の値を示す温度の差)と定義している。なお、以前測定した $x = 0.190, 0.206, 0.215$ [17,18]と、ゼロ磁場でストライプ秩序が発達するLSCOの $x = 0.11$ の結果[12-16]も併せて示す。 $x = 0.190$ と 0.215 では、磁場の増加とともに ΔT_c は単調に増大する。また、磁場による増加の度合いは x の増加とともに減少し、 $x = 0.220$ と 0.229 では、 ΔT_c は磁場に対してほとんど変化しない。これは、磁場によるブロードニングが x の増加とともに弱まり、パラレルシフト的になっていくことを意味する。一方、 $x = 0.204$ では、およそ9 T以上で ΔT_c が減少することがわかる。さらに、 $x = 0.204$ に近い $x = 0.195$ と 0.206 でもおよそ16 T以上で ΔT_c が減少する傾向がある。この減少は、LSCOの $x = 0.11$ [12-16]と同様であり、超伝導転移カーブが高磁場下でパラレルシフト的になっていくことを示す。

前述のように、 $x = 1/8$ 近傍において、ゼロ磁場で電荷ストライプ秩序が安定化している場合にはパラレルシフト的な振る舞いが観測されている。一方、高磁場下でパラレルシフト的な振る舞いが観測された $x = 0.204$ 近傍では、Fig. 1で見られるように T_c が特異的に低下している。これらの結果から、次のように考えることができる。 $x = 0.204$ 近傍では、ゼロ磁場でストライプ相関がやや発達しており、 T_c が特異的に低下し[5,6]、また、 μ SRの実験によれば1 K以下の低温で磁気相関が発達している[7]。ここで、磁場を印加すると、電荷ストライプ相関がさらに発達し、 ρ_{ab} の超伝導転移カーブがパラレルシフト的な振る舞いになる。以上のことから、 $x = 0.204$ 近傍ではストライプ相関が特異的に発達しており、また、磁場によって安定化している可能性が高いと思われる。

一方、オーバードープ領域では、試料中で超伝導領域と非超伝導領域へのナノスケール相分離が実現していると指摘されている[2-4,21]。そこで、 $x = 0.204$ 近傍で高磁場下における磁化率の温度変化と磁化曲線の測定を行った。その結果、磁化率の2段転移や所謂第2ピークが観測された。これらは、他のオーバードープ領域の試料を用いた測定結果[21]と同様であり、超伝導のコヒーレンス長と同程度のナノスケールの相分離が実現している状況で、非超伝導領域に磁束が強くピン止めされたためと解釈できる。以上のことから、ゼロ磁場においてナノスケールの相分離が実現している状況で、 $x = 0.204$ 近傍ではストライプ相関が特異的に発達しており、磁場の印加

とともにストライプ相関がより発達するものと思われる。この状況を説明するモデルとして、(i)超伝導領域、非超伝導金属領域、ストライプ相関が発達した非超伝導領域の3つの相の共存、あるいは、(ii)超伝導領域とストライプ相関が発達した非超伝導領域の2つの相の共存、の2通りが考えられるが、これらのモデルの妥当性を検証するために、今後、磁場中での比熱、 μ SR、中性子散乱実験などを行っていきたい。

4. まとめ

LSCOの $x = 0.195 - 0.229$ の単結晶試料を用いて、磁場中で ρ_{ab} を測定した結果、 T_c が特異的に低下している $x = 0.204$ において、 ρ_{ab} の超伝導転移カーブがおよそ9 T以上でブロードニングからパラレルシフト的な振る舞いに変化することを見出した。さらに、 $x = 0.204$ の周辺の組成でも、およそ16 T以上でパラレルシフト的な振る舞いに変化することがわかった。これらのことから、 $x = 0.204$ 近傍において電荷とスピンのストライプ相関が特異的に発達しており、強磁場の印加によって安定化している可能性が高いと結論した。これらの結果は、 $x = 1/8$ 近傍での結果と同様であり、ストライプ相関が特異的に発達すると超伝導が抑制されることを示すものである。また、この結果は、アンダードープ領域だけでなく、オーバードープ領域でもストライプ相関が存在することを示しており、ストライプ相関がゆらいだ状態が超伝導の発現に効いていることを主張するものである。

参考文献

- [1] S. Wakimoto, H. Zhang, K. Yamada, I. Swainson, H. Kim and R. J. Birgeneau: Phys. Rev. Lett. **92**, 217004 (2004).
- [2] Y. J. Uemura, A. Keren, L. P. Le, G. M. Luke, W. D. Wu, Y. Kubo, T. Manako, Y. Shimakawa, M. Subramanian, J. L. Cobb and J. T. Markert: Nature (London) **364**, 605 (1993).
- [3] Y. Tanabe, T. Adachi, T. Noji and Y. Koike: J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 2893 (2005).
- [4] Y. Wang, J. Yan, L. Shan, H.-H. Wen, Y. Tanabe, T. Adachi and Y. Koike: Phys. Rev. B **76**, 064512 (2007).
- [5] N. Kakinuma, Y. Ono and Y. Koike: Phys. Rev. B **59**, 1491 (1999).
- [6] T. Kawamata, T. Adachi, T. Noji and Y. Koike: Phys. Rev. B **62**, R11981 (2000).
- [7] I. Watanabe, M. Aoyama, M. Akoshima, T.

- Kawamata, T. Adachi, Y. Koike, S. Ohira, W. Higemoto and K. Nagamine: *Phys. Rev. B* **62**, R11985 (2000).
- [8] T. Suzuki, T. Ota, J. Tonishi and T. Goto: *AIP Conf. Proc.* **850**, 409 (2006).
- [9] 足立匡、ハイダル、菅原直樹、金子直人、上坂正憲、佐藤秀孝、田邊洋一、野地尚、小池洋二、川股隆行、工藤一貴、小林典男：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 19 年度年次報告 pp. 8 – 11 (2008).
- [10] T. Adachi, S. M. Haidar, T. Kawamata, N. Sugawara, N. Kaneko, M. Uesaka, H. Sato, Y. Tanabe, T. Noji, K. Kudo, N. Kobayashi and Y. Koike: *J. Phys.: Conf. Series* **150**, 052115 (2009).
- [11] J. M. Tranquada, B. J. Sternlieb, J. D. Axe, Y. Nakamura and S. Uchida: *Nature (London)* **375**, 561 (1995).
- [12] T. Adachi, N. Kitajima, T. Manabe, Y. Koike, K. Kudo, T. Sasaki and N. Kobayashi: *Phys. Rev. B* **71**, 104516 (2005).
- [13] 足立匡、川股隆行、眞鍋武、小池洋二、工藤一貴、佐々木孝彦、小林典男：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 16 年度年次報告 pp. 3 – 6 (2005).
- [14] 足立匡、大森圭祐、川股隆行、小池洋二、工藤一貴、佐々木孝彦、小林典男：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 17 年度年次報告 pp. 3 – 6 (2006).
- [15] T. Adachi, T. Kawamata, Y. Koike, K. Kudo, T. Sasaki and N. Kobayashi: *AIP Conf. Proc.* **850**, 429 (2006).
- [16] T. Adachi, K. Omori, T. Kawamata, K. Kudo, T. Sasaki, N. Kobayashi and Y. Koike: *J. Phys.: Conf. Series* **51**, 259 (2006).
- [17] 足立匡、ハイダル、佐藤秀孝、小池洋二、工藤一貴、佐々木孝彦、小林典男：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 19 年度年次報告 pp. 5 – 7 (2008).
- [18] 足立匡、ハイダル、福本勝久、渡辺舞、佐藤秀孝、小池洋二、工藤一貴、西嶋 照和、佐々木孝彦、小林典男：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 pp. 5 – 8 (2009).
- [19] M. Miyazaki, T. Adachi, Y. Tanabe, H. Sato, T. Nishizaki, K. Kudo, T. Sasaki, N. Kobayashi and Y. Koike: *Proc. LT26*.
- [20] M. Suzuki and M. Hikita: *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L1368 (1989).
- [21] Y. Tanabe, T. Adachi, K. Omori, H. Sato, T. Noji and Y. Koike: *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 113796 (2007).