

高温超伝導体 $\text{La}_{2-x-y}\text{Sr}_x\text{Ce}_y\text{CuO}_4$ 単結晶の磁束状態

Vortex State of Single Crystalline $\text{La}_{2-x-y}\text{Sr}_x\text{Ce}_y\text{CuO}_4$ Superconductors

岩手大・工 藤代 博之、内藤 智之、今野 友貴
 東北大・金研 西崙 照和、小林 典男
 H. Fujishiro¹, T. Naito¹, T. Konno¹, T. Nishizaki² and N. Kobayashi²
¹ Faculty of Engineering, Iwate University
² Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体の磁束相図は、代表的な物質である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO)[1] や $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (BSCCO)[2] についてはほぼ確立されたと考えられる。しかしながら、層状構造を例外なく有する銅酸化物超伝導体にとって重要なパラメータである異方性パラメータ $\gamma (= \xi_{ab} / \xi_c)$: ξ_{ab} 及び ξ_c はそれぞれ ab 面内及び c 軸方向のコヒーレンス長) に対する磁束状態は系統的にはまだ明らかにされていないと言える。上記 2 つの物質の異方性パラメータは、YBCO の 90K 相試料で 7 程度、YBCO の 60K 相試料で 20 程度、BSCCO で 70~200 程度 (キャリアドーパ量に依存) である。代表的な銅酸化物超伝導体のひとつである $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の γ の値は 10~70 程度であるため、未開の磁束状態を調べるには最適の物質である。これまでも、報告例[3-5]はいくつかあるが γ の値に対して系統的な結果を得るには至っていない。特に、磁束格子融解一次相転移の電気抵抗率測定による観測が難しいことで知られる。我々は、その原因のひとつとして CuO_2 面の歪みを考えた。 CuO_2 面の歪みは磁束配置の自由度を低下させる、すなわち磁束格子の形成を妨げる可能性があるからである。磁化がミクロな情報を観測できる、つまり CuO_2 面歪みによって磁束配置が乱されていても局所的に相転移があれば磁化に異常が現れるのに対して、電気抵抗率はマクロな情報を反映するため一次相転移が観測されにくかったと考えられる。

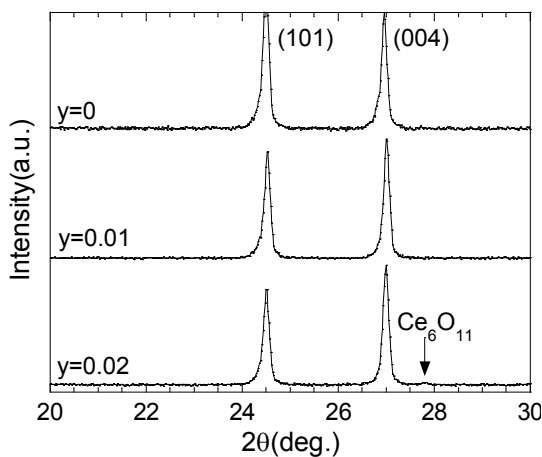


Fig. 1 : XRD patterns for LSCCO ($x=0.15$) polycrystals with various y .

La_2CuO_4 では 540K 以下では斜方晶に歪んでいるが、Sr 置換量の増加により斜方晶への構造相転移温度は単調に減少し、約 $x=0.2$ 以上では極低温まで正方晶が安定となる。この CuO_2 面の歪みは Sr 濃度の増加とともに緩和されることが知られている[6]。従って、 CuO_2 面の歪みを抑制するためには Sr 濃度を増加させた試料を用意すれば良い。しかしながら、Sr 置換量の増加は当然キャリア量も増加させる。本研究では、 CuO_2 面歪みの緩和とキャリア量の制御を同時に行うために、Sr と Ce を同時置換した $\text{La}_{2-x-y}\text{Sr}_x\text{Ce}_y\text{CuO}_4$ (LSCCO) 単結晶を育成し、磁場中電気抵抗測定から磁束状態と CuO_2 面歪みの相関に対する知見を得ることを目的とした。

2. 実験方法

まず、多結晶試料において Ce 置換量の限界値を調べた。その後、溶媒移動浮遊帯域(TSFZ)法で単結晶試料を作製した。LSCCO 多結晶試料は固相反応法で作製した。目的の組成となるように原料粉を秤量し、乳鉢で 30 分間混合した後、空气中 900°C で 24 時間仮焼きを行った。仮焼き粉を粉砕し、乳鉢でよく混合した後、ペレット状に整形したものを空气中 1150°C で 72 時間焼結を行い測定用試料とした。LSCCO 単結晶は上記の方法で作製した粉末から直径 7mm×長さ 70mm 程度の棒状試料を作製した後 TSFZ 法で育成を行った。試料の構造評価は粉末 X 線回折法で行った。LSCCO 多結晶試料についてはヘリウム冷凍機を用いて電気抵抗率を 10K~300K、熱膨張を 20~400K の温度範囲で測定した。LSCCO 単結晶試料については最大 15T の磁場

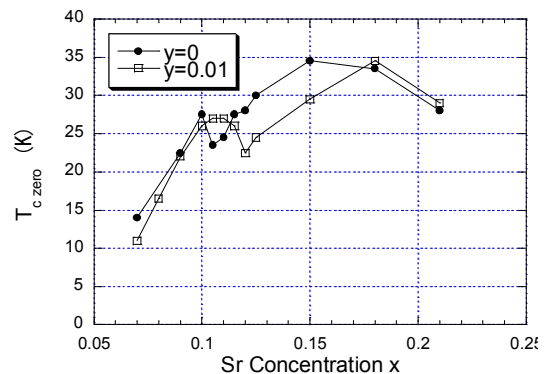


Fig. 2: $T_{c \text{ zero}}$ vs. Sr concentration for LSCCO polycrystals with $y=0$ and 0.01.

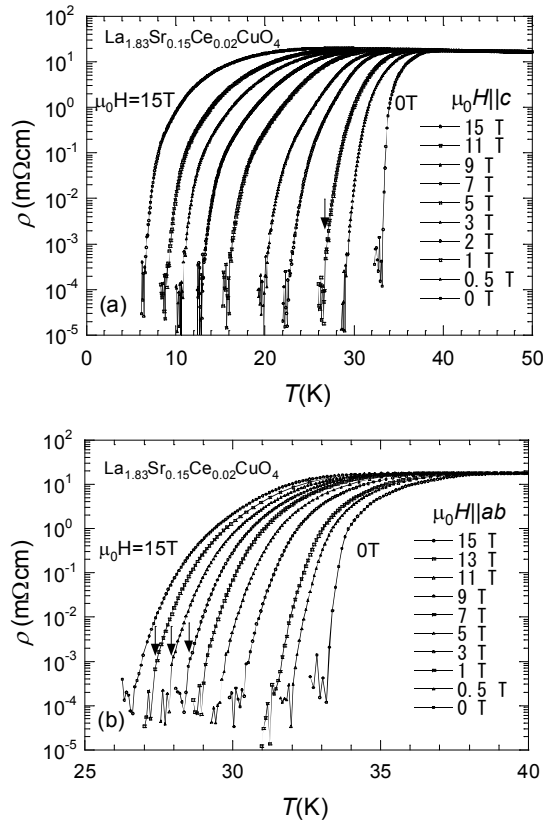


Fig. 3: Temperature dependence of the electrical resistivity for LSCCO ($x=0.15$, $y=0.02$) single crystal under the magnetic fields parallel to the c -axis (a) and ab -planes (b) up to 15 T.

中で電気抵抗測定を行った。5T までの測定は岩手大学の超伝導マグネットを用い、5T より高磁場の測定は東北大学金属材料研究所で行った。

3. 実験結果と考察

3-1. LSCCO 多結晶試料

LSCCO 多結晶試料($x=0.15$)の X 線回折パターンを回折角 $20^\circ \sim 30^\circ$ の範囲で図 1 に示す。Ce は仕込み量 $y \geq 0.02$ では一部が Ce_6O_{11} として排出されるということが分かった。図 2 に T_c の Sr 濃度依存性を Ce 置換量 $y=0$ と $y=0.01$ について示す。 T_c は $\rho=0$ となる温度で定義した。両者において観測されたディップ構造は 1/8 問題に起因するものであり、 T_c のピークも Ce 置換によって高 x 側にシフトしている。一方、ここでは示さないが熱膨張の温度依存性から見積もった構造相転移温度は Ce 置換量に依存しないことが分かった。定量的な問題は若干残っているが Ce 置換によって構造を変えずにキャリア量を制御できることが分かった。

3-2. LSCCO 単結晶における磁束系相転移

多結晶試料の XRD 実験から $y=0.02$ では微量の不純物ピークが観測されたが、なるべく多くの Ce を入れたのと熔融すれば固相反応法よりも Ce が入り易くなると

の予想から $y=0.02$ の単結晶試料の作製を行った。背面ラウエ写真から単結晶試料であることを確認した育成棒から数ミリ角の平板状試料を切り出して測定に用いた。Fig.3(a)および 3(b)に LSCCO($x=0.15$, $y=0.02$)において磁場を c 軸および ab 面に平行に印加した場合の電気抵抗率の温度依存性 $\rho(T)$ を各々示す。 c 軸平行磁場の場合、 $\mu_0 H = 1T$ において $\rho(T)$ に弱いながらもキック構造が観測された。一方、 ab 面平行磁場の場合は $\mu_0 H = 9 \sim 13T$ において $\rho(T)$ に不連続な転移が観測された。この試料の異方性が Ce 無置換の LSCO ($x=0.15$) と同程度の約 10 であると仮定すると、 ab 面平行磁場および c 軸平行磁場下で $\rho(T)$ に異常が観測された磁場値はほぼ異方性で説明が出来る。従って、観測された $\rho(T)$ の不連続な振る舞いは磁束系の一次相転移を反映していると考えられる。これまで、LSCO では磁化で一次相転移が観測されても電気抵抗率では観測されないことが多くあった。今回の結果は CuO_2 面の平坦性が良くなったことで磁束配置の自由度が向上し 1 次相転移が電気抵抗率で観測されるようになったと考えられる。

4. まとめ

今回、LSCO 単結晶の磁束状態と CuO_2 面歪みの相関に対する知見を得ることを目的として、Ce 置換 LSCO 単結晶を TSFZ 法で作製し、その磁場中電気抵抗率を測定した。育成に成功した $x=0.15$, $y=0.02$ の単結晶試料の電気抵抗率の温度依存性 $\rho(T)$ に 1 次相転移を反映した不連続な振る舞いが観測された。これは Ce 置換によって CuO_2 面の平坦性が向上したことによると考えられるが、この考えを確立するためには無置換試料も含めてさらに体系的な実験を行う必要がある。

参考文献

- [1] T. Nishizaki and N. Kobayashi, Supercond. Sci. Technol. **13**, 1 (2000).
- [2] E. Zeldov *et al.*, Nature **375**, 373 (1995)
- [3] T. Naito *et al.*, Czech. J. Phys. **46**, Suppl. S3, 1585 (1996).
- [4] H. Iwasaki *et al.*, Physica C **366**, 129 (2002).
- [5] T. Sasagawa *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 1610 (2000).
- [6] B. Dabrowski *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 1348 (1996).