過剰ドープ Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} の磁場中 c 抵抗率評価

Out-of-plane resistivity of over doped Bi-2212 under various magnetic fields

弘前大・理工 村田 康介, 櫛引 治樹, 渡辺 孝夫

東北大・金研 工藤 一貴, 西嵜 照和, 山田 和芳, 小林 典男

東北大・工 野地 尚, 小池 洋二

K. Murata¹, H. Kushibiki¹, T. Watanabe¹, K. Kudo², T. Nishizaki²,

K. Yamada², N. Kobayashi², T. Noji³ and Y. Koike³

¹ Department of advanced Physics, Hirosaki University

² Institute for Materials Research, Tohoku University

³ Faculty of Engineering, Tohoku University

1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体は、擬ギャップと呼ばれる T_c より高温側で低エネルギーの状態密度が減少する現象が普遍的に観測され、超伝導機構と密接に関係すると考えられて活発に研究されている。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ともに減少し、過剰ドープ側で T_c 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_c と交差し量子臨界点と呼ばれる絶対零度(基底状態)の相転移点に向かうと予想される。電子相図を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。

最近では、このような擬ギャップについて盛んに研究が行われており、例えば本研究で対象とする $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (Bi-2212) においては、60T の強磁場下で抵抗率測定を行うことによって、c 軸抵抗率の増大が擬ギャップによって起こることが報告されている[1]。この変化は擬ギャップに対して敏感に起きるので、c 軸抵抗を測定することは擬ギャップの研究において良い方法である。

一方、 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ は酸素量制御によってキャリア量を変えられることが知られているが、擬ギャップが開き始める温度 T*が T_c に近づく十分に過剰ドープ域は、試料の作製が困難なため報告例が少ない。

本研究では、擬ギャップの起源を調べることを目的として、広範囲にドープ量を制御した $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶を用い、磁場中でのc 軸抵抗率測定を行うことにより T*の振る舞いを調べたので報告する。

2. 実験方法

測定には、 $Bi_{2-x}Pb_xSr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶を用いる。 $Bi_{2-x}Pb_xSr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ は、溶媒移動型浮遊帯域法に

よって作製を行った。Pb 置換の単結晶は x=0.4 の組成の結晶を作製した。また、過剰ドープ領域における試料を作製するために、高酸素圧下で熱処理を行った。ドープ量を変化させるために熱処理の圧力を変えた試料の作製を行い、圧力条件は、400atm と990atm である。以下、試料の熱処理条件に基づいて、 $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}(400$ atm),Bi-2212(990atm),と表記する。

試料の結晶評価には、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001ピークによって計算したc軸長をy軸に、その時の角度 θ 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軸長の値とする。

それぞれの試料に直流四端子法を用い、c 軸抵抗率、磁場中 c 軸抵抗率測定を行った。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 とし、磁場の印加角度は H//c として測定を行った。

試料のドーピング量 p の決定には J. L. Tallon の式を用い[2]、Pb 置換結晶に対しても Bi-2212 と $T_{c,max}$ が変わらないと仮定して、以下の式により計算した。

$$\frac{T_c}{T_{c.\text{max}}} = 1 - 82.6(p - 0.16)^2$$

3. 実験結果と考察

3-1. XRD による c 軸長の評価

溶媒移動型浮遊帯域法により作製し、また高圧酸素下で熱処理を行い作製した $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶を、X線回折によって評価した。

Fig.1 に N-R 関数から求めた c 軸長と T_c との関係について示す。as-grown から熱処理をするに従い、c 軸長と T_c の減少が見られた。 $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ 単結晶

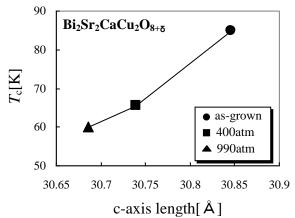


Fig. 1 c-axis length dependence on T_c

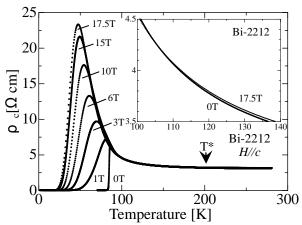


Fig.2 ρ_c for Bi-2212 (as-grown) under various magnetic fields

では、 δ の増大に伴い c 軸長、 T_c が減少することが報告されている[3]ので、この結果は、熱処理後の試料には酸素が確かにドープされていることを示している。

3-2. ドーピングによる T*の変化

Fig.2 に Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆ (as-grown)における各種磁 場下での c 軸抵抗率を示す。ゼロ磁場の抵抗率から、 擬ギャップが 200K 付近から開き始めていることが わかる $(T^* \approx 200K)$ 。磁場を印加すると、磁場の 増大と共に高温側では正の磁気抵抗が、低温側へい くに従い負の磁気抵抗が見えた。Fig.3 に、c 軸抵抗 率の温度微分を示す。負の磁気抵抗が表れた温度を、 温度微分から正確に見積もった。負の磁気抵抗は、 120K 付近から見られた。一般に、c 軸抵抗率の増大 は擬ギャップが開くことによって起こるとされてい るが、高温超伝導体のような二次元性の強い物質で は、超伝導揺らぎによってもc軸抵抗率の増大が起 こると予想される[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、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。この結果、 超伝導体に磁場を印加したことにより超伝導が抑制 され負の磁気抵抗が起こったと考えられる。ここで

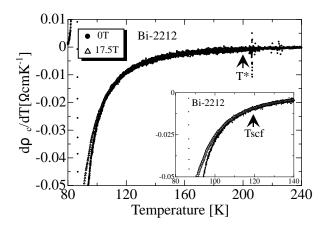


Fig.3 Temperature derivative of ρ_c for Bi-2212(as-grown)

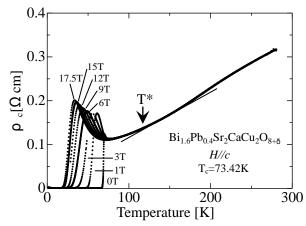


Fig.4 ρ_c for $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (400atm) under various magnetic fields

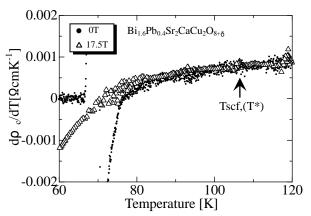


Fig.5 Temperature derivative of ρ_c for $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}(400atm)$

見積もられた負の磁気抵抗の開始温度は、静帯磁率の測定によって報告されている超伝導揺らぎ開始温度 Tscf にも近い[5]ことから、負の磁気抵抗の開始温度を Tscf と考えることができよう。 Tc 直上の c 軸抵抗率の上昇は、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。

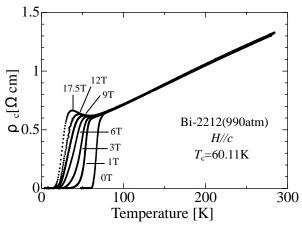


Fig.6 ρ_c for Bi-2212 (990atm) under various magnetic fields

Fig.4 に $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (400atm) における各種磁場下での c 軸抵抗率を示す。抵抗率の upturn は 110K 付近から見られた。また、Fig.5 には、 $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (400atm) における c 軸抵抗率の温度微分を示す。負の磁気抵抗が 110K 付近から見られる。このことから、 T^* , Tscf は共に 110K 付近に存在していると考えられる。

Fig.6 に、Bi-2212 (990atm) における、各種磁場下での c 軸抵抗率を示す。990atm 熱処理によって T_c 直上まで upturn を示さない金属的な試料を得た。また Fig.7 には、Fig.6 の T_c 近傍の拡大図を示した。3T の磁場を印加したことにより、65K 付近から upturn を示した。超伝導のオンセットに隠されていた擬ギャップの開始温度 T^* が、磁場印加に伴う超伝導の破壊によって顔を出したものと考えられる。一方、Tscf は確認することができなかったが、Tscf が T_c とスケールすると考えると、この場合は T^* よりも高温側にあると考えられる。ここでは Bi-2212 のドープが進み二次元性が弱くなったとめ超伝導揺らぎによる c 軸抵抗率の増大が見られなくなったと思われる。

以上の測定結果から、 T_c , T^* , Tscf の関係を Fig.8 に示す。Bi-2212 (as-grown) では $T_c < Tscf < T^*$ であるが、試料のドーピング量が増大するに従い、 $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (400atm)では $T_c < Tscf \approx T^*$ 、Bi-2212(990atm)では、 $T_c \approx T^* < Tscf$ と変化した。

4. まとめ

今回、過剰ドープ領域における擬ギャップの開始 温度 T^* と超伝導揺らぎの開始温度 T_{scf} の変化を調べるため、 B_{i_2} $P_{b_x}S_{r_2}C_aC_{u_2}O_{s_+\delta}$ 単結晶を用い、c 軸に平行な最大 17.5T の磁場中で、c 軸抵抗率を測定した。その結果、ドーピング量を増やすにつれて T^*

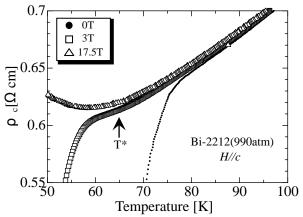


Fig. 7 Expanded view of Fig. 6 near T_c

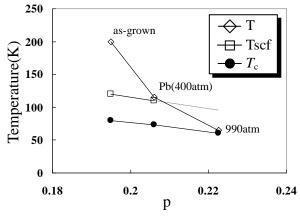


Fig.8 Hole concentrations dependence on T_c , T^* and Tscf

はTscfと交差し、その後 T_c に近づくことがわかった。この結果は、超伝導と擬ギャップが基本的には別現象であることを示唆している。

今後は、さらに T_c が低い試料を作製することによって、より過剰ドープ領域における、 T^* , Tscf の変化を調べていきたい。

参考文献

[1] T. Shibauchi, L. Krusin-Elbaum, Ming Li, M. P. Maley, and P. H. Kes: Phys. Rev. Lett. **86**, 5763 (2001).

[2] J. L. Tallon, J. R. Cooper, P. S. I. P. N. de Silva, G. V. M. Williams and J. W. Loram: Phys. Rev. Lett. 75, 4114 (1995).

[3] T. Fujii, I. Terasaki, T. Watanabe and A. Matsuda, Phys. Rev. B **66**, 024507 (2002).

[4] L. B. Ioffe, A. I. Larkin, A. A. Varlamov, L. Yu: Phys. Rev. B **47**, 8936 (1993).

[5] T. Watanabe, T. Fujii and A. Matsuda, Phys. Rev. Lett. **84**, 5848 (2000).