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*。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*。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*。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 Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆(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_xSr₂CaCu₂O_{8+δ}単結晶を用いる。 Bi_{2-x}Pb_xSr₂CaCu₂O_{8+δ}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}Sr₂CaCu₂O_{8+δ}(400atm), 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00l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Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₈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。Bi₂Sr₂CaCu₂O₈₊₆ 単結晶





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



 $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (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。T_c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}Sr₂CaCu₂O₈₊₆ (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}Sr₂CaCu₂O₈₊₆ (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た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、 $\operatorname{Bi}_{1.6}\operatorname{Pb}_{0.4}\operatorname{Sr}_2\operatorname{Ca}\operatorname{Cu}_2\operatorname{O}_{8+\delta}$ (400atm) \mathcal{C} if $T_c < Tscf \approx T^*$,

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 Tscf の変化を調 べるため、Bi_{2-x}Pb_xSr₂CaCu₂O_{8+ δ}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.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).