

2007年3月

## La<sub>2-x-y</sub>Eu<sub>y</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>における超伝導と電荷秩序の競合

Competition between superconductivity and charge ordering in La<sub>2-x-y</sub>Eu<sub>y</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>

物質系専攻 56138 卞 舜生

指導教員：高木 英典（教授）

キーワード： La<sub>2-x-y</sub>Eu<sub>y</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>、電荷ストライプ、超伝導電子対密度、Uemura の関係

### 背景

高温超伝導体は電子間のクーロン斥力が強く影響する典型的な強相関電子系であり、そのメカニズムの解明のためには、超伝導が発現する CuO<sub>2</sub> 面における電子状態を詳細に分析することが重要である。その特異な電子状態の一つに、いくつかの高温超伝導体の CuO<sub>2</sub> 面において発現する電荷ストライプがある。これは電荷とスピンの周期的に並ぶ一次元的な電荷秩序である。電荷ストライプがクーパ対の形成を促す電子間引力を発生し得るとする理論がある一方で、特に低温で安定している静的電荷ストライプは  $T_c$  を抑制することが実験によって観測されている。このように電荷ストライプは高温超伝導メカニズムの解明に重要なヒントを与えるが、 $T_c$  以外の物理的パラメータにどのような影響を与えるかほとんど分かっていない。

高温超伝導体における最も重要なパラメータの一つに、超伝導電子対密度 ( $n_s$ ) がある。高温超伝導体においては  $T_c$  が超伝導電子対密度に比例するという Uemura の関係が知られている[1]。この実験事実から  $T_c$  を抑制する電荷ストライプの安定化は超伝導電子対密度も減少させることが類推できる。しかし、電荷ストライプと超伝導電子対密度の関係を明らかにする直接的な実験は行われていなかった。

### 本研究の目的と方針

本研究は電荷ストライプの安定化が超伝導電子対密度に対してどのような影響を及ぼすか評価し、CuO<sub>2</sub> 面の電子状態に関する知見を得ることを目的とする。

今回我々は、(La,Sr)<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> に Eu をドーブした La<sub>2-x-y</sub>Eu<sub>y</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> の単結晶を用いた。この物質は Eu ドープによってキャリア濃度 (Sr ドープ量) を変えずに電荷ストライプの安定性を制御できる。さらに、(La,Sr)<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> と比べて広いキャリアドーブ領域で電荷ストライプが安定化しているので、キャリア量を広い範囲で変えることができる。また、静的ストライプをもつ典型的な物質である Nd ドープ (La,Sr)<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> と比べて磁化の分析が簡便であるという利点もある。

本実験では、まず Eu および Sr のドーブ量を系統的に変えることによって電荷ストライプの安定性を制御したいくつかの La<sub>2-x-y</sub>Eu<sub>y</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> の単結晶を合成して物性評価した。そして、混合状態の可逆磁化の測定[2]から CuO<sub>2</sub> 面内の磁場侵入長 ( $\lambda_{ab}$ ) を求めた後、電荷ストライプの安定化に伴う超伝導電子対密度の変化を評価した。

### 単結晶の合成および評価

TSFZ 法によって La<sub>1.84-y</sub>Eu<sub>y</sub>Sr<sub>0.16</sub>CuO<sub>4</sub> ( $y = 0, 0.1, 0.2$ ) および La<sub>1.59</sub>Eu<sub>0.2</sub>Sr<sub>0.21</sub>CuO<sub>4</sub> の単結晶を合成し、ラウエ法によって結晶軸を決定した後に切り出した。成形したサンプルの電気抵抗率を四端子法によって測定し、さらにホール係数の測定も行った。

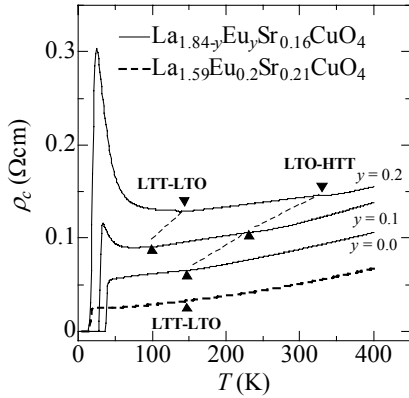


図 1.  $\text{La}_{2-x}\text{Eu}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の  $c$  軸方向電気抵抗率

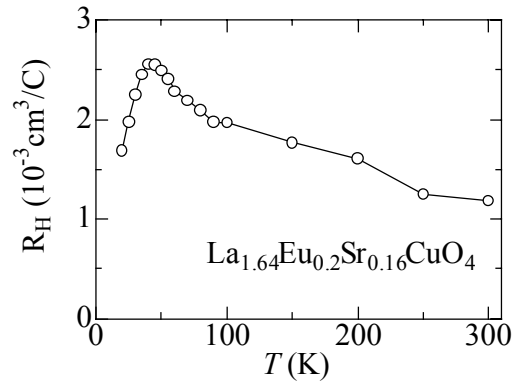


図 2.  $\text{La}_{1.64}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$  のホール係数

図 1 に示すように、 $c$  軸方向の電気抵抗率から  $T_c$  と、二つの構造相転移温度を求めた。 $\text{La}_{1.84-y}\text{Eu}_y\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$  の、高温正方晶 (HTT) から低温斜方晶 (LTO) への転移は 150~350 K、LTO から低温正方晶 (LTT) への転移は 100~150 K の範囲で起きていた。また、 $y = 0.2$  と同じ量だけ Eu をドーピングした  $\text{La}_{1.59}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_{0.21}\text{CuO}_4$  も同様に 150 K 付近で構造相転移を示した。Nd ドーピング ( $\text{La,Sr})_2\text{CuO}_4$  は LTT 構造において電荷ストライプが安定化することが知られており [3]、Eu ドーピングに伴う LTO-LTT 構造相転移温度の上昇と  $T_c$  の低下は、Eu ドーピングによる電荷ストライプの安定化を間接的に示している。

図 2 に  $\text{La}_{1.64}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$  のホール係数の測定結果を示した。40 K 以下で著しい減少が観測された。これは一次元的電荷ストライプの発生に伴い電子の移動が妨げられてホール電圧が減少するため起こると考えられる [3]。他の組成の単結晶に関しては  $T_c$  以上で同様なホール係数の減少は観測されなかったが、Eu や Sr のドーピング量の違いによる電荷ストライプの安定性の程度によるものと考えられる。

$\text{La}_{1.84-y}\text{Eu}_y\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$  に関して図 1, 2 から得られた結果を図 3 の物性相図に示した。この図は Eu の濃度を系統的に変化させることによって電荷ストライプを安定させていくと、 $T_c$  が低下していくことを示している。

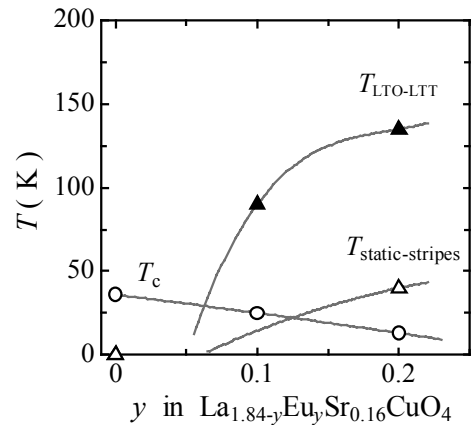


図 3.  $\text{La}_{1.84-y}\text{Eu}_y\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$  の物性相図

### 電荷ストライプの超伝導電子対密度に対する影響の評価

上述のように系統的に電荷ストライプの安定性を制御した単結晶を用いて、超伝導電子対密度の変化をその関数として表される  $\text{CuO}_2$  面内の磁場侵入長 ( $\lambda_{ab}$ ) の変化から求めた ( $\lambda_{ab}(T \rightarrow 0) \propto n_s^{-1/2}$ )。磁場侵入長は混合状態の可逆磁化から求めた。混合状態における磁化の対数磁場依存性は磁場侵入長の関数として表される ( $dM/d\ln H \propto \lambda_{ab}^{-2}$ ) ことが、London モデルにより示されている [2]。可逆磁化測定の結果の一部を図 4 に示した。 $\text{La}_{1.74}\text{Eu}_{0.1}\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$  の磁化曲線は  $\ln H$  に対して線形であり、その傾きは温度に伴い系統的に変化している。他の組成の単結晶に関しても同様に、磁場侵入長を温度の関数として求めることができた。

それらを温度 0 K に外挿した値 ( $\lambda_{ab}(T \rightarrow 0)$ ) を比べることで、電荷ストライプの安定化に伴う  $n_s$  の変化が分かった。図 5 はミュオンスピン緩和率  $\sigma$  ( $\sigma \propto n_s$ ) を横軸、 $T_c$  を縦軸にとり、Uemura の関係と本実験の結果を比較したものである。Sr 量  $x = 0.16$  の三つの組成の結果を比較すると、常伝導状態におけるキャリア量 (Sr 量) が一定であるにもかかわらず、電荷ストライプの安定化に伴って、超伝導電子対密度が大幅に減少することが明らかになった。さらに、 $n_s$  の低下に伴い  $T_c$  が低下するが、その傾きは Uemura の関係よりも緩やかである。また、Eu 量  $y = 0.2$  の二つの組成の結果から、Sr のドーピング量に関わらず Eu のドーピングによって超伝導電子対密度が抑制されていることが分かった。これは電荷ストライプが広いキャリア (Sr) ドーピング領域で安定化していることを示している。

これらの結果は、超伝導と電荷ストライプは互いに競合しあい、電荷ストライプの形成が超伝導電子対の形成を妨げる要因になることを示している。超伝導電子対密度の大幅な抑制は  $\text{CuO}_2$  面における波数空間上の電子密度の不均一性、または実空間上の超伝導相と電荷ストライプの相分離を示唆すると考えられる。

## まとめ

Eu と Sr のドーピング量を変えることによって電荷ストライプの安定性を制御した  $\text{La}_{2-x-y}\text{Eu}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  単結晶を合成し、輸送特性の測定などから相図を作成した。さらに混合状態の可逆磁化測定によって磁場侵入長  $\lambda_{ab}$  を評価した結果、電荷ストライプの安定化に伴い  $T_c$  とともに超伝導電子対密度も大幅に抑制するという超伝導と電荷ストライプの競合関係が示された。

## 参考文献

- [1] Y. J. Uemura *et al.*, Phys.Rev.Lett. **62**, 2317 (1989).
- [2] V.G. Kogan *et al.*, Phys.Rev.Lett. **70**, 1870 (1993).
- [3] T. Noda *et al.*, Science **286**, 265 (1999).

## 学会発表

- [1] 卞舜生、笹川崇男、高木英典、「高温超伝導体の電荷ストライプと超伝導電子対密度」、日本物理学会 2006 年秋季大会(2006 年 9 月、千葉大学)
- [2] S. Pyon, T. Sasagawa, H. Takagi, "The influence of static stripes on superfluid density in  $\text{La}_{1.84-y}\text{Eu}_y\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$ ", 19<sup>th</sup> International Symposium on Superconductivity, (Nagoya Japan October 30 – November 1, 2006)

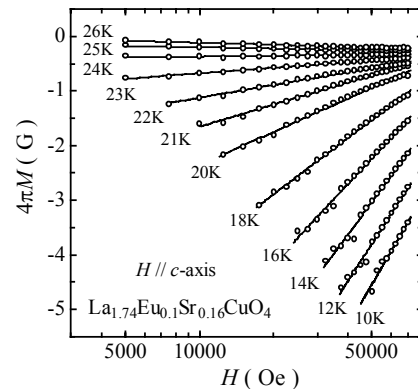


図 4. 様々な温度での  $\text{La}_{1.74}\text{Eu}_{0.1}\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$  の M-H 曲線

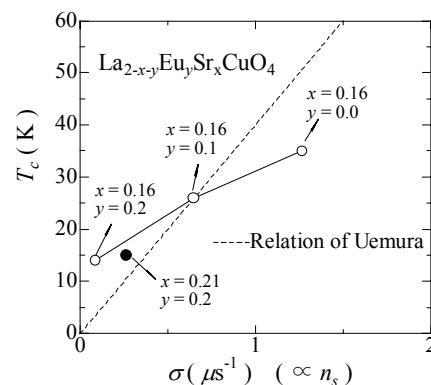


図 5.  $T_c$  と  $n_s$  の関係