

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19740191
 研究課題名 (和文)
 ナノ不均質高温超伝導におけるボルテックスゆらぎのミュオンスピン緩和法による検証
 研究課題名 (英文)
 Muon-spin-relaxation study of the fluctuated state of vortices in the nano-scaled high- T_c superconductors
 研究代表者
 足立 匡 (ADACHI TADASHI)
 東北大学・大学院工学研究科・助教
 研究者番号：40333843

研究成果の概要：

最適ドープ領域の高温超伝導体において縦磁場下ミュオンスピン緩和実験を行った。その結果、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (BSCCO) において、20 ガウスの磁場下で、 T_c よりもはるかに高い 150 K 以下でミュオンスピン緩和率の増大を観測した。これは、超伝導のゆらぎの状態におけるボルテックスのゆらぎのために、試料内の磁場が不均一になったためと考えられる。以上のことから、BSCCO において、 T_c 以上でボルテックスのゆらぎの状態が実現している可能性が高いと結論した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,400,000	0	2,400,000
2008 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	270,000	3,570,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：銅酸化物高温超伝導体，不均一超伝導，ミュオンスピン緩和，ボルテックスゆらぎ，ビスマス系超伝導体，ランタン系超伝導体

1. 研究開始当初の背景

近年、高温超伝導の研究において、超伝導を担う CuO_2 面における所謂「電子的不均一性」が注目されている。アンダードープ領域においては、走査型トンネル顕微鏡実験などから超伝導のナノスケールでの不均一性の存在が指摘されており、さらに、 T_c 以上の高温で、様々な実験から所謂擬ギャップ状態が観測されている。これは、非

常に短いコヒーレンス長を持つ強結合超伝導によって、大きな超伝導ゆらぎ、 T_c 以上での擬ギャップ状態、 T_c 以下での不均一な超伝導状態が引き起こされると考えられる。

一方、オーバードープ領域では、従来型の BCS 超伝導と同様に均一な弱結合超伝導が実現していると考えられてきた。しかし、最近、我々は、La 系超伝導体

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) のオーバードープ領域における磁化率と比熱の測定から、ホール濃度の増加とともに超伝導の体積分率が減少し、さらに常伝導電子密度が増大することをそれぞれ見出した。これは、試料中で超伝導領域が不均一に分布していることを示す。オーバードープ領域において、伝導キャリアの多い常伝導の領域とキャリアの少ない強結合超伝導の領域に相分離しているならば、オーバードープ領域においても T_c 以上で大きな超伝導ゆらぎが観測されると期待される。

超伝導ゆらぎの状態ではボルテックスゆらぎの状態が観測される可能性がある。過去に、Xu らによる磁場中での大きなネルンスト効果の観測から、 T_c 以上でのボルテックス状態の存在が指摘されているが、詳細は明らかになっていない。なぜなら、大きなネルンスト効果はボルテックスが存在する直接の証拠にならないためである。したがって、ボルテックスゆらぎの状態の存在をより直接的な実験手法を用いて観測することが極めて重要である。

2. 研究の目的

本研究では、La系、Bi系、TI系超伝導体の単結晶試料を準備し、

- Bi系、TI系超伝導体における磁場中冷却下での磁化率の測定から超伝導の体積分率を評価し、超伝導の不均一性の普遍性を検証する。
- La系、Bi系、TI系超伝導体において、ボルテックスの形成による試料内での局所磁場の不均一に極めて敏感なミュオンスピン緩和 (μSR) 測定から、 T_c 以上でのボルテックスゆらぎの状態の検出を試みる。

これらの実験から、高温超伝導体における超伝導の不均一性の普遍性を実証し、また、 T_c 以上でのボルテックスゆらぎの状態の存在を明らかにすることで、超伝導の不均一性と高温超伝導の発現機構の関連に対する重要な知見を得ることを目指す。

3. 研究の方法

試料作製・評価

溶媒移動型浮遊帯域 (TSFZ) 法を用いて、以下の酸化物超伝導体単結晶を育成する。

- $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($0.05 \leq x \leq 0.30$) (La系)
- $(\text{Bi}, \text{Pb})_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ (Bi系)

フラックス法を用いて育成された $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ (TI系) の単結晶試料を岩手大・中島グループより提供してもらう。(確

約済み)

切り出した単結晶を用いて、X線背面ラウエ、粉末X線回折、ICP分析、磁化率、電気抵抗率から結晶の品質を評価する。

物性測定

Bi系、TI系超伝導体において、磁場中冷却下における磁化率を測定し、最低温 (2 K) での絶対値から超伝導の体積分率のキャリア濃度依存性を詳細に調べる。

La系、Bi系、TI系試料を用いた μSR 測定より、 T_c 以上でのボルテックスゆらぎの状態の検出を試みる。測定は、数種類の磁場下で T_c の前後の様々な温度において行う。

4. 研究成果

(1) 研究の主な成果

図1に、 $(\text{Bi}, \text{Pb})_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ (BPSCO) 単結晶における磁場中冷却下での磁化率の温度依存性を示す。ここで、ホール濃度 p は経験則から求めている。 $p \leq 0.160$ では、ホール濃度の増加とともに T_c は増加し、2 K での磁化率の絶対値 $|\chi_{2K}|$ も増大する。一方、 $p \geq 0.160$ では、ホール濃度の増加とともに T_c は低下し、 $|\chi_{2K}|$ も減少する。すなわち、ホール濃度に依存して超伝導の体積分率が変化することがわかる。

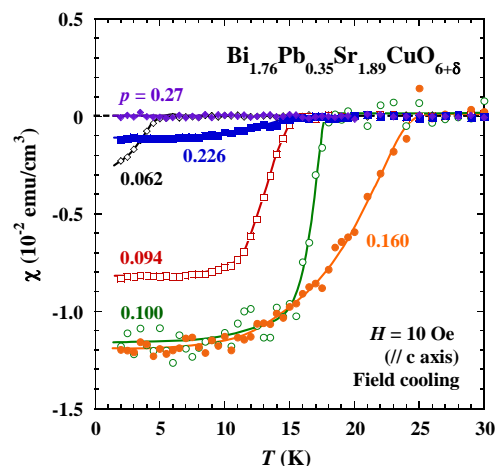


図1. $\text{Bi}_{1.76}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.89}\text{CuO}_{6+\delta}$ の様々なホール濃度 p における磁場中冷却下での磁化率の温度依存性。

図2に、BPSCOにおける T_c と $|\chi_{2K}|$ のホール濃度依存性を示す。アンダードープ領域では、ホール濃度の増加とともに $|\chi_{2K}|$ が増大し、一方、オーバードープ領域ではホール濃度の増加とともに $|\chi_{2K}|$ が減少する。これらの結果は、LSCOで観測されたものと定性的に一致する。すなわち、BPSCOにおい

ても、試料中で超伝導領域と非超伝導領域への相分離が実現している可能性が高いと思われる。

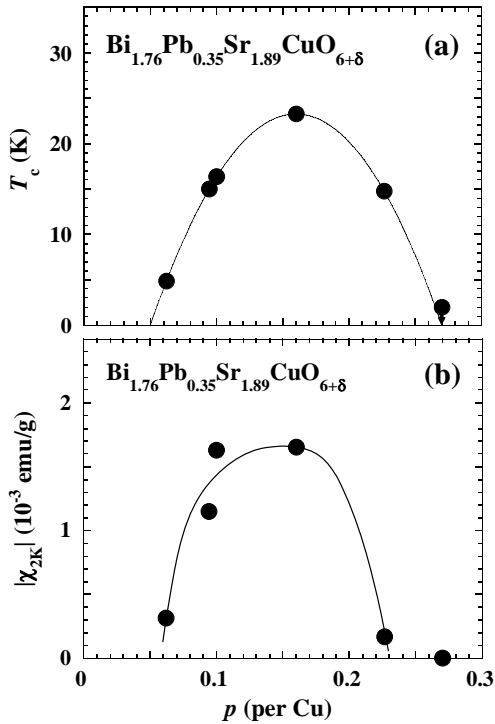


図2. $\text{Bi}_{1.76}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.89}\text{CuO}_{6+\delta}$ における(a) T_c と(b) $|\chi_{2K}|$ のホール濃度 p 依存性。

図3に、最適ドープ領域のLSCOの $x = 0.15$ ($T_c \sim 37$ K)と $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (BSCYCO)の $x = 0.2$ ($T_c \sim 88$ K)の多結晶試料における、20 Gaussの縦磁場下での μSR 測定から見積もったガウス分布幅 Δ の温度依存性を示す。LSCOでは、 T_c 以上ではほぼ一定であり、 T_c 以下では磁束の形成による増大が見られる。一方、BSCYCOでは、 T_c よりもはるかに高い150 K以下で Δ が徐々に増加し、 T_c 以下で増大の傾向がさらに強まることわかれる。

BSCYCOにおいて150 K以下で見られた Δ の増大は、超伝導のゆらぎの状態におけるボルテックスのゆらぎのために、試料内の磁場が不均一になったためと考えられる。すなわち、最適ドープのBSCYCOにおいて、 T_c 以上でボルテックスのゆらぎの状態が実現している可能性が高いと言える。

本研究から、BPCOにおいて、試料中で超伝導領域と非超伝導領域への相分離が実現している可能性が高いことがわかった。これらのことから、不均一な超伝導状態が高温超伝導体に普遍的な現象である可能性が極めて高いと結論した。また、

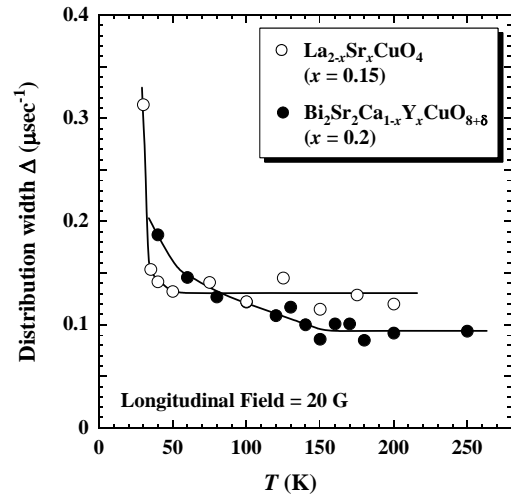


図3. $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x = 0.15$)と $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{CuO}_{8+\delta}$ ($x = 0.2$)における縦磁場下 μSR 測定から見積もったガウス分布幅 Δ の温度依存性。

BSCYCOにおいて、 T_c 以上でボルテックスのゆらぎの状態が実現している可能性が高いと結論した。

(2) 得られた成果の国内外における位置づけとインパクト

BPCOにおいて、超伝導領域と非超伝導領域への相分離が実現している可能性が高いことを示した点は、今までに例が無く、新しい結果といえる。さらに、我々が過去に示したLSCOの結果と合わせて考えると、ホール型高温超伝導体において、不均一な超伝導状態は普遍的な現象であり、高温超伝導の発現機構を解明する上で重要なものである可能性を示した点で、本研究のインパクトは高いと言える。

一方、BSCYCOにおいて、 T_c 以上でボルテックスのゆらぎの状態が実現している可能性があることを示した結果は、過去にネルンスト効果の研究から指摘されている T_c 以上のボルテックス状態の存在をより直接的に示したものである。本研究から、所謂擬ギャップ状態での電子対の形成の可能性が高まり、超伝導発現機構の解明に向けた研究が一步前進したと言えよう。

(3) 今後の展望

今後は、BPCOにおいて比熱の測定を行い、超伝導領域と非超伝導領域への相分離の可能性をさらに検証することが重要である。また、LSCOと $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ において μSR 実験を行い、ボルテックスのゆらぎの状態の形成による T_c 以上の Δ の増大が見られるかどうかを検証する必要がある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者, 研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① Y. Tanabe, T. Adachi, H. Sato, K. Omori, Y. Koike, "Anomalous enhancement of vortex pinning and microscopic phase separation in the overdoped regime of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ", *Journal of Physics: Conference Series* **150** 巻, 052266(1-4) (2009), 査読有.
- ② S. Chamura, T. Adachi, Y. Tanabe, Y. Koike, "Possible inhomogeneity of superconductivity in $(\text{Y,Ca})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ probed by magnetic susceptibility and specific heat", *Journal of Physics: Conference Series* **150** 巻, 052032(1-4) (2009), 査読有.
- ③ I. Watanabe, T. Adachi, S. Yairi, Y. Koike, K. Nagamine, "Change of the dynamics of internal fields in the normal state of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ observed by muon-spin-relaxation", *Journal of the Physical Society of Japan* **77** 巻, 124716(1-6) (2008), 査読有.
- ④ Y. Tanabe, T. Adachi, K. Omori, H. Sato, T. Noji, Y. Koike, "Inhomogeneous superconducting state in the overdoped regime of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$: Comparison with the superconducting state of NbSe_2 ", *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **69** 巻, 3217-3220 (2008), 査読有.
- ⑤ T. Adachi, N. Oki, Risdiana, S. Yairi, Y. Koike, I. Watanabe, "Effects of Zn and Ni substitution on the Cu spin dynamics and superconductivity in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}(\text{Zn,Ni})_y\text{O}_4$ ($x = 0.15 - 0.20$): Muon spin relaxation and magnetic susceptibility study", *Physical Review B* **78** 巻, 134515(1-11) (2008), 査読有.
- ⑥ Y. Koike, T. Adachi, Y. Tanabe, K. Omori, T. Noji, H. Sato, "Inhomogeneous superconductivity in both underdoped and overdoped regimes of high- T_c cuprates", *Journal of Physics: Conference Series* **108** 巻, 012003(1-9) (2008), 査読有.

[学会発表] (計 10 件)

- ① 茶村慎吾, 「磁化率と比熱から見た $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ のアンダードープ領域における超伝導の不均一性」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 2009 年 3 月 30 日, 立教学院 (東京).
- ② 福本勝久, 「 $\text{Pr}_{1-x}\text{LaCe}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ ($x = 0.11 - 0.20$) における磁化率と比熱から見た超

伝導の不均一性」, 第 63 回応用物理学会東北支部学術講演会, 2008 年 12 月 4 日, 東北大学 (仙台).

- ③ 足立匡, 「酸化物高温超伝導体における電子的不均一性とストライプ相関」, 平成 20 年度大阪大学グローバル COE 若手秋の学校「多元環境下の量子物質相の研究」, 2008 年 11 月 15 日, 休暇村讃岐五色台 (坂出).
- ④ T. Adachi, 「Inhomogeneity of superconductivity in single-layer high- T_c cuprates studied by magnetic susceptibility and specific heat」, The 2nd International Symposium on Anomalous Quantum Materials (ISAQM2008), 2008 年 11 月 8 日, Tokyo (Japan).
- ⑤ Y. Koike, 「Inhomogeneity of superconductivity in high- T_c cuprates studied by magnetic susceptibility and specific heat」, 2nd CoMePhS Workshop in Controlling Phase Separation in Electronic Systems (CoMePhS2008), 2008 年 10 月 1 日, Nafplion (Greece).
- ⑥ 福本勝久, 「 $\text{Pr}_{1-x}\text{LaCe}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ における磁化率と比熱から見た超伝導の不均一性」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 2008 年 9 月 22 日, 岩手大学 (盛岡).
- ⑦ 小池洋二, 「磁化率と比熱から見た銅酸化物高温超伝導体の不均一な超伝導状態」, 2008 年秋季第 69 回応用物理学会学術講演会, 2008 年 9 月 4 日, 中部大学 (春日井).
- ⑧ S. Chamura, 「Possible inhomogeneity of superconductivity in $(\text{Y,Ca})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ probed by magnetic susceptibility and specific heat」, 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), 2008 年 8 月 12 日, Amsterdam (Netherlands).
- ⑨ Y. Tanabe, 「Anomalous enhancement of vortex pinning and microscopic phase separation in the overdoped regime of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}$ 」, 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), 2008 年 8 月 8 日, Amsterdam (Netherlands).
- ⑩ T. Adachi, 「Inhomogeneity of superconductivity and stripe correlations in single-layer high- T_c cuprates」, 6th International Conference on the Stripes Series (Stripes08) - Quantum Phenomena in Complex Matter -, 2008 年 7 月 28 日, Erice (Italy).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況（計0件）
- 取得状況（計0件）

〔その他〕

6. 研究組織

(1) 研究代表者

足立 匡 (ADACHI TADASHI)
東北大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号：40333843

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし