

高磁場層間伝導から見た高温超伝導体の擬ギャップ状態

Pseudogap State in the High Temperature Superconductors Investigated by High-Field Interlayer Transport

芝内孝禎

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻

Takasada Shibauchi

Department of Electronic Science and Engineering, Kyoto University

1. はじめに

銅酸化物における高温超伝導の理解は、今でも凝縮系物理学の大きな宿題の1つである。高温超伝導の大きな特徴は、図1に示すように、その母物質である反強磁性絶縁体にキャリアをドーピングすることにより発現することである。この相図を完全に理解することが高温超伝導発現機構解明に役立つと考えられている。その中でも、低ドーピング領域において、超伝導転移温度 T_c 以上において、低エネルギーでの状態密度の減少が報告され、常伝導状態にもかかわらず「擬ギャップ」(Pseudogap)を持つという異常な現象が存在することが知られている [1]。この擬ギャップは温度 T^* 以上では見られなくなり、この T^* はドーピングとともに減少していくことが明らかになってきている。この特異な擬ギャップの起源が明らかになれば高温超伝導の理解への鍵になると期待されている。

このような背景から、擬ギャップ状態の実験的研究は多くなされているが、今回は1つのアプローチとして、高磁場をかけるとどのように擬ギャップが破壊されるかという観点からの研究をご紹介させていただきたい。

2. 擬ギャップのプロブとしての層間伝導

状態密度をプロブする実験手法には様々なものがあるが、代表的な Bi 系高温超伝導体は、超伝導を担う CuO_2 面が絶縁体的な性質を示す層を介して c 軸方向に層状にスタックした構造を持ち、超

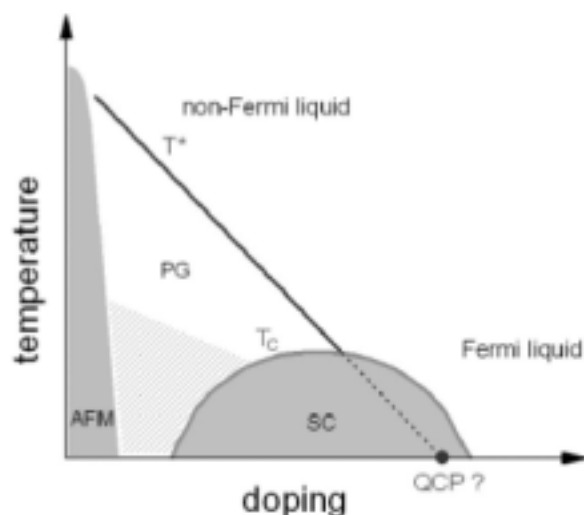


図1. 高温超伝導体の温度-ホールドーピング相図の概念図. 反強磁性体(AFM)の母物質にキャリアをドーピングすることにより超伝導(SC)が T_c 以下で現れる。低ドーピング領域では T^* 以下で擬ギャップ(PG)が存在し、高ドーピング領域の量子臨界点(QCP)で消失すると考えられている。

伝導層間が弱く結合したジョセフソン接合と見なせることが明らかになっている [2] . このような構造により , 超伝導層に対して垂直な方向の伝導特性はトンネル型の特徴を示す . トンネル電流は CuO_2 面の状態密度により決まるため , 層間トンネル分光(固有トンネル分光)により , CuO_2 面の状態密度のエネルギー依存性に関する情報を得ることができる . 実際に(短パルス電流を用いて発熱を抑えた)層間の電流-電圧特性から擬ギャップの定量的な測定が可能であることが知られている [3-5] .

このことを利用すると , 微小電流による層間の抵抗率測定から , 状態密度の低エネルギー部分の情報を引き出すことが原理的に可能である . しかも抵抗測定は , パルス磁石でしか得られないような非常に高い磁場領域まで高精度に測定が可能であるため , 擬ギャップの高磁場依存性の研究には最適であると考えられる . このアイデアをもとに , 層間抵抗率 ρ_c の温度依存性と磁気抵抗の測定を行なった . なお , 測定は米国国立高磁場研究所(NHMF)の 33 T 直流磁石および 60 T パルス磁石を用いて行なった . 試料についてはフローティングゾーン法により作製した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ 単結晶を用いた . なお , ホールドープ量については様々な酸素分圧の雰囲気下で試料をアニールすることにより , 酸素量 y を制御した . 実際のホール濃度は超伝導転移温度 T_c とホール濃度との間に成り立つ経験式を用いることで評価を行なった .

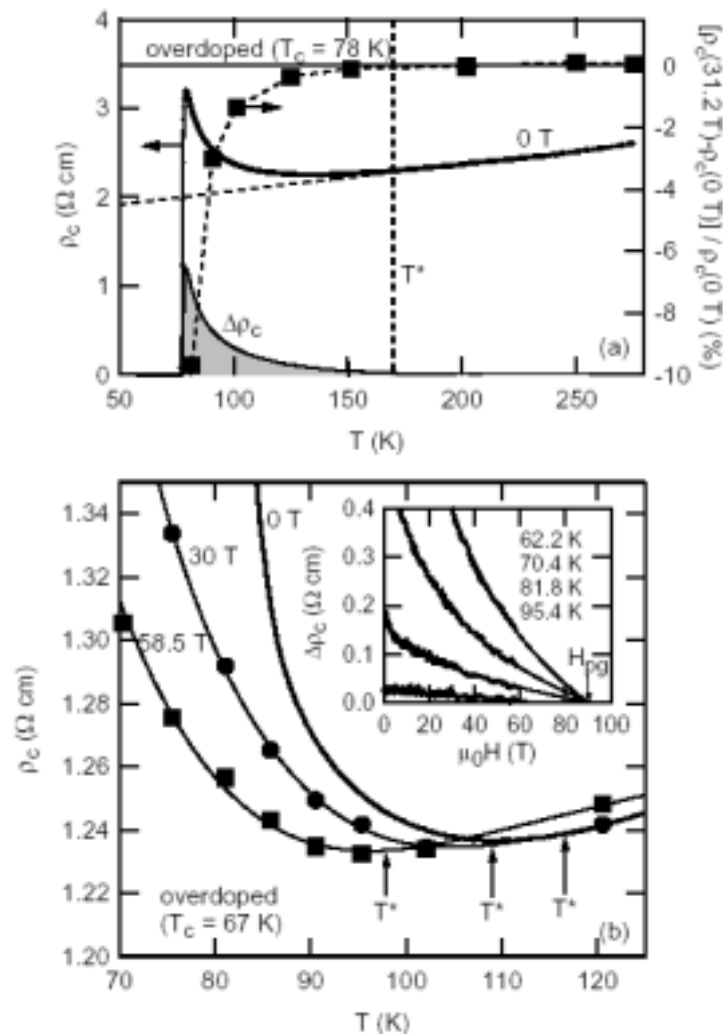


図 2. (a) $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ の層間抵抗率 ρ_c と磁気抵抗の温度依存性 . (b) 高磁場での ρ_c の温度依存性 . 挿入図は擬ギャップ磁場の評価方法 .

図 2 (a)に示したのは、ややドーパ量の多い試料($T_c = 78$ K)のゼロ磁場における ρ_c の温度依存性と 31.2 T における磁気抵抗の温度依存性である [6]。磁場は超伝導層に垂直にかけている。 ρ_c は高温側では金属的で温度に対して直線的に変化し、170 K 以下でずれ始めて低温では半導体的に上昇している。それと同時に、低温では負の磁気抵抗が見られている。このような変化は次のように考えると自然に理解できる。

- (i) 高温の擬ギャップがない金属状態から T^* 以下で擬ギャップが成長するにつれて状態密度が減少していき、それにより層間のトンネル電流が減少することによって抵抗率 ρ_c が増加する。
- (ii) 磁場をかけることにより、擬ギャップがつぶれていき、状態密度が回復することで抵抗率 ρ_c が減少し、負の磁気抵抗となって現れる。

この考え方は負の磁気抵抗が見え始める温度が帯磁率やトンネル測定 [7] から求められた T^* とほぼ一致することからも支持される。なお、 ab 面内の抵抗率 ρ_{ab} の温度依存性にも、やはり擬ギャップを反映して、抵抗率がより減少するという異常が見られているが、その温度は上の T^* よりもやや低温であることが知られている。この温度の違いの原因として考えられているのは、1 つには、擬ギャップには波数空間において d 波的な異方性があることが知られているが、 ρ_{ab} に寄与する準粒子は主に擬ギャップのノード(節)部分の情報をプローブしており、擬ギャップの発達にはあまり敏感でないことが挙げられる [6,7]。それに比較して、 ρ_c 測定では、前に述べたように電子のトンネルにより低エネルギー状態密度に直結した情報をプローブできるので、より擬ギャップの発達に敏感であると考えられる。

このように考えると、磁場により完全に擬ギャップが破壊されると、状態密度は金属状態まで回復し、 ρ_c は高温で見られたような直線的な温度依存性を示すと期待できる。したがって、その期待できる温度変化からのずれ分を $\Delta\rho_c$ と実験的に定義して、その磁場変化をプロットすると図 2(b)の挿入図のようになり、 $\Delta\rho_c$ がゼロになる磁場を擬ギャップが閉じる磁場 H_{pg} として評価できるようになる。実際には、この磁場は非常に高磁場であり、60 T パルス磁場を用いても完全には届かないが、その磁場依存性を外挿することにより評価を行なった。ここで、このような評価はパルス磁場と層間抵抗率測定を組み合わせることにより初めて可能になったことを強調しておく。

各磁場における ρ_c の温度依存性を見てみると、図 2 (b)のように磁場を増加するに従い金属的な温度領域が低温にシフトしていき、低温での半導体的な抵抗率の上昇は抑制されている。よりドーパ量の多い試料では、このような傾向はより顕著になる [8]。図 3 に示すように、 $T_c = 60$ K の

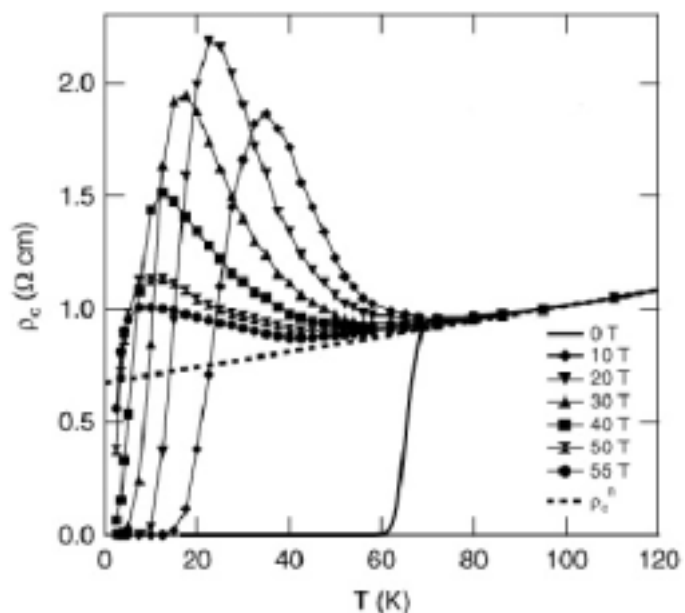


図 3. より高ドーパの試料における高磁場での ρ_c の温度依存性。点線は高温で見られる T に比例する温度依存性を外挿したものの。

試料ではゼロ磁場で半導体的な抵抗率の上昇はほとんど見えないが、10 T 程度の磁場により超伝導転移が低温にシフトし、半導体的な上昇があらわになる。さらに磁場を強くしていくとその上昇は抑制され金属領域がより低温まで続くようになる様子が見られる。このような変化は上述の(i), (ii)の解釈で無理なく説明することができる。

3. 擬ギャップ磁場のゼーマンスケーリング

このようにして擬ギャップが閉じる磁場 H_{pg} をドーパ量の異なる様々な試料について評価してやることができる。その低温での値を Cu 一個あたりのホールの数 p に対してプロットしたのが、図 4 中の四角で示したデータである。なお、この図において低ドーパの試料については、60 T までの負の磁気抵抗の傾きを高ドーパの試料と比較することによって概算で求めているため、誤差が大きくなっている。この図には同時に T_c および低温極限における $\rho_c(H)$ がピークを示す磁場 H_{sc} (これは従来の超伝導体における上部臨界磁場と必ずしも同じではないが、超伝導転移の 1 つの目安となる磁場であると考えられる[9]) についてもプロットしてある。この結果から、 H_{pg} はドーパ量とともにほぼ直線的に減少することが明らかになった。このようなドーパ量依存性は、超伝導転移を特徴付ける T_c や H_{sc} の 2 次関数的な変化とは対照的である。また、高ドーパの試料については T^* についても見積もることができる。挿入図に示すように H_{pg} と T^* の間に線形の関係があり、それはゼーマンエネルギー $g\mu_B H_{pg}$ が $k_B T^*$ とほぼスケールするという驚くほど単純な関係にあることを示唆している。ここで g は g 因子(~ 2)、 μ_B はボーア磁子、 k_B はボルツマン定数である。またそのエネルギースケールは、他の様々な測定から得られた擬ギャップの大きさの見積もり(網掛けで示した範囲に収まっている[1]) とほぼ一致する。

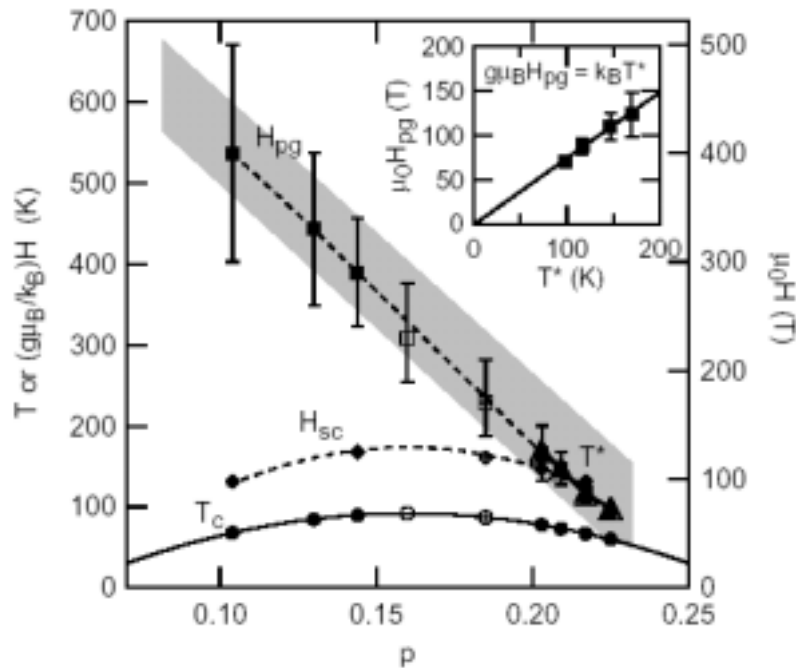


図 4. 擬ギャップが閉じる磁場 H_{pg} (四角), $\rho_c(H)$ がピークを示す磁場 H_{sc} (ダイヤモンド), T_c (丸) および T^* (三角) のホール濃度依存性。網掛けは他の測定から得られた擬ギャップのエネルギースケールを表す。挿入図は H_{pg} と T^* の間にゼーマンスケーリングが成り立つことを示している。

4. 擬ギャップ状態の磁場方向依存性

今までの結果は磁場を超伝導層に垂直に(c 軸に平行に)印加した場合を見てきたが、次に磁場を層に平行にかけた場合との比較してみたい [10]. 2 章で述べたように、高温超伝導は CuO_2 面内(ab 面内)で起こるため、超伝導転移は磁場の向きによって大きな異方性を示すことが知られている。擬ギャップ磁場の小さくなる高ドーピングの試料を用いて ρ_c の磁場依存性を 2 つの磁場方向で比較したのが図 5 である。なお、縦軸は $\Delta\rho_c$ に直してあるため、これがゼロになる磁場が H_{pg} となる。 T_c 以下では超伝導転移のために低磁場では正の磁気抵抗を示し、ピークを持ったあと負の磁気抵抗となる。そのピーク磁場(あるいは超伝導転移)は超伝導状態の異方性を反映して、磁場方向により大きく異なることがわかる。また、高磁場では両方向ともに負の磁気抵抗を外挿すると、あまり温度依存しない磁場に収束するように見える。

このようにして見積もった H_{pg} の温度依存性を図 6 に示す。 $H//c$ および $H//ab$ の場合の両方について、その温度依存性は低温ではほぼ一定となる振る舞いを示している。さらに重要なことは、その大きさが $H//c$ の場合で 70 T 程度、 $H//ab$ の場合で 100 T 程度となっており、その比はわずかに 1.35 程度である。この異方性の大きさは超伝導を特徴付けるコヒーレンス長や磁場侵入長の異方性(数十から数百)と比較すると非常に小さいものである。このような H_{pg} の小さな異方性は 3 章で議論したゼーマンスケーリングとあわせて考えると、 g 因子のわずかな異方性で理解できる。実際、帯磁率の異方性測定から、 g 因子の異方性は 1.3 程度という報告 [7] があり、 H_{pg} の異方性 1.35 とほぼ一致している。

以上のように、高磁場における層間伝導測定から、擬ギャップ磁場は磁場の方

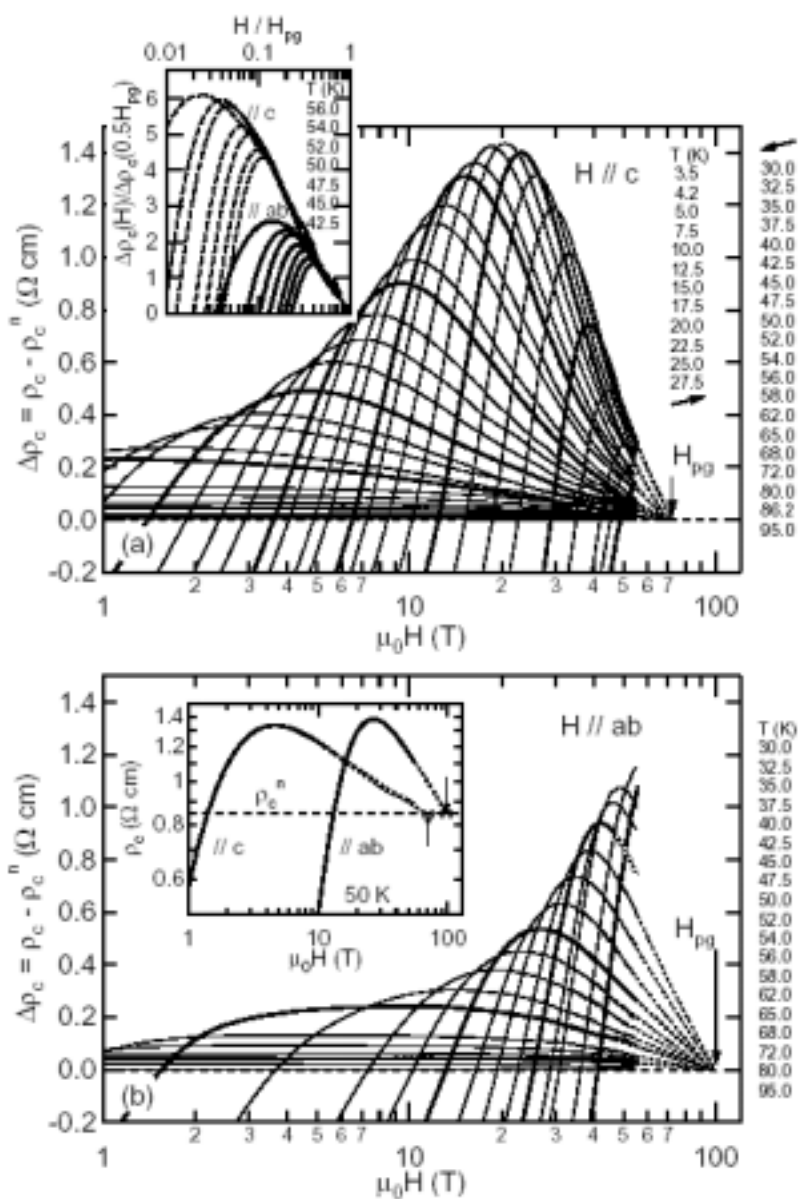


図 5. $\Delta\rho_c$ の磁場依存性。(a) $H//c$ の場合。(b) $H//ab$ の場合。挿入図は $H//c$ および $H//ab$ のデータを比較したもの。

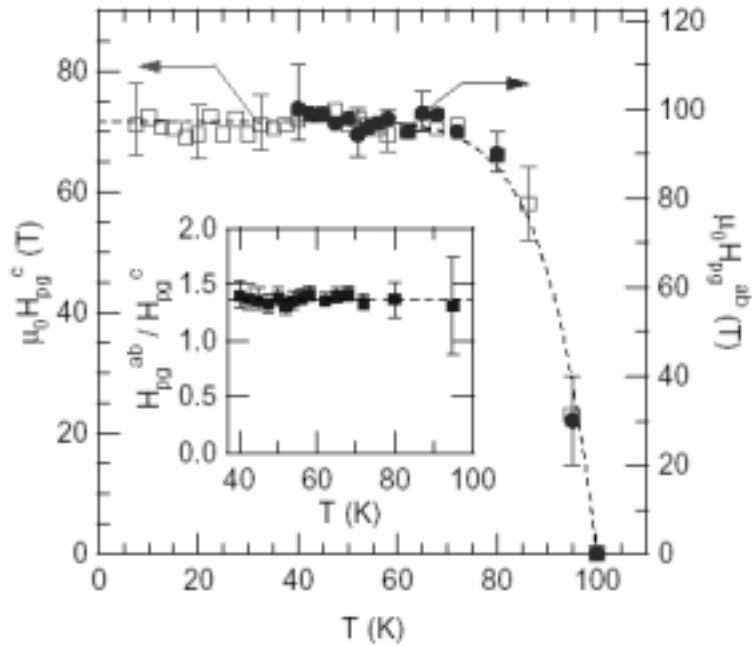


図 6. $H//c$ (左軸)および $H//ab$ (右軸)の場合における擬ギャップ磁場 H_{pg} の温度依存性．挿入図はその比の温度依存性．

向によらず擬ギャップ温度 T^* とゼーマンスケーリングを示すことが明らかになった．この結果は，擬ギャップの形成にスピン 1 重項的な相関が関与しており，その磁気的な相関が磁場をかけることによりゼーマン分裂のため消失していくことを強く示唆している．

5. おわりに

以上をまとめると，Bi 系高温超伝導体の擬ギャップ状態について， c 軸層間伝導の高磁場測定を用いた研究を紹介した．パルス磁石で測定可能な c 軸層間抵抗率から，状態密度の磁場による変化を捉えて，擬ギャップが閉じる磁場の定量評価を試みた．その結果，擬ギャップ磁場 H_{pg} と擬ギャップ温度 T^* が磁場方向によらずゼーマンスケーリングを示すことを明らかにした．この結果は，擬ギャップ形成に磁気的な相関が関与している直接的な証拠であると考えられる．

最後に，図 1 に示した相図について，擬ギャップが最終的にどのドーピング量でなくなるかということが最近盛んに議論されている [11,12]．この擬ギャップが消えるドーピング量では，基底状態の変化が期待できる（量子臨界点）．このような擬ギャップの消失は，比熱の解析などから $p=0.19$ 付近で起こるという主張がある [11] が，その解析方法を疑問視する声もある．我々の Bi 系高温超伝導体における結果では，図 4 のように，少なくとも $p=0.22$ 付近までは擬ギャップの存在を示している．ごく最近の光学測定 [12] でも我々の結果を支持する結果が得られている．今後，さらに高ドーピング領域の測定により詳細が明らかになることを期待している．

また，ここではキャリアがホールである場合について限定して見てきたが，最近では，電子ドーピング型の高温超伝導体における c 軸層間伝導特性の高磁場測定についても研究を行っている．現在までに，電子ドーピングについてもホールドーピング系と同様な擬ギャップの存在を示唆する結果を得ており [13]，より統一的な理解へ向けて定量的な比較が重要であると考えている．

謝辞

この研究は多くの方々の協力によって行なうことができました。全ての人の名前を挙げることはできませんが、ごく一部だけ列挙させていただきます。L. Krusin-Elbaum (IBM), N. Morozov, L. N. Bulaevskii, M. P. Maley (LANL), C. H. Mielke, B. Brandt, F. F. Balakirev, J. Betts (NHMFL), M. Li, P. H. Kes (Leiden), G. Blatter (ETH), 為ヶ井強氏(東大), 鈴木実氏, および鈴木研究室の皆様(京大)。ここに感謝いたします。また, この研究は一部科学研究費の支援を受けて遂行されたものです。

参考文献

- [1] 例えば, T. Timusk and B. Statt, *ep. Prog. Phys.* **62**, 61 (1999).
- [2] R. Kleiner and P. Müller, *Phys. Rev. B* **49**, 1327 (1994).
- [3] M. Suzuki and T. Watanabe, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4787 (2000).
- [4] K. Anagawa, Y. Yamada, T. Shibauchi, M. Suzuki, and T. Watanabe, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 2381 (2003).
- [5] Y. Yamada, K. Anagawa, T. Shibauchi, T. Fujii, T. Watanabe, A. Matsuda, and M. Suzuki, *Phys. Rev. B* **68**, 054533 (2003).
- [6] T. Shibauchi, L. Krusin-Elbaum, M. Li, M. P. Maley, and P. H. Kes, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5763 (2001).
- [7] T. Watanabe, T. Fujii, and A. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5848 (2000).
- [8] T. Shibauchi, L. Krusin-Elbaum, G. Blatter, and C. H. Mielke, *Phys. Rev. B* **67**, 064514 (2003).
- [9] N. Morozov, L. Krusin-Elbaum, T. Shibauchi, L. N. Bulaevskii, M. P. Maley, Yu. I. Latyshev, and T. Yamashita, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1784 (1999).
- [10] L. Krusin-Elbaum, T. Shibauchi, and C. H. Mielke, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 097005 (2004).
- [11] J. L. Tallon and J. W. Loram, *Physica C* **349**, 53 (2001).
- [12] J. Hwang, T. Timusk, and G. D. Gu, *Nature* **427**, 714 (2004).
- [13] T. Kawakami, T. Shibauchi, Y. Terao, M. Suzuki, and L. Krusin-Elbaum, preprint (2004).