

12. $(La_{1-x}M_x)_2CuO_4$ ($M = Ba, Sr$) の超伝導と構造相転移に対する圧力効果

山田 修史

◎序論

1986年にJ. G. BednorzとK. A. Müllerにより、現在の高温酸化物超伝導の発端となった $(La_{1-x}Ba_x)_2CuO_4$ が発表された。この系の母結晶である La_2CuO_4 の結晶構造は、高温で正方晶系の K_2NiF_4 型構造(HTT⁽¹⁾)であり(図1)、約530Kで構造相転移を起こし斜方晶相(LTO⁽²⁾)となる。LaをBaで置換していくと、HTT-LTO転移温度(T_c)は置換濃度に対してほぼ直線的に減少し、 x が0.1を越えると全温度領域でHTT相となる。Baを添加した系(以下、Ba系と呼ぶ)の $0.03 < x < 0.10$ の濃度領域では、HTT-LTO転移が起こった後、再び低温で正方晶相(LTT⁽³⁾)に転移する。 La_2CuO_4 にBaを添加することで、 $x=0.03$ 付近から超伝導が出現する。 $x=0.045$ 付近で超伝導転移温度(T_c)が極大となった後、 $x=0.065$ を中心とした濃度領域で T_c が大きく落ち込む(図2)。Ba濃度の増加と共に再び超伝導が現れ、 $x=0.08$ 程度で T_c は極大となり、その後また減少する。Ba系の T_c が大きく落ち込む濃度領域では、50~60Kで電気抵抗、熱電能、ホール係数、磁化率に異常が現れることが知られている⁽¹⁾。また、この濃度領域はLTO-LTT転移温度が最も高くなるところでもある⁽²⁾(図3)。そのため、Ba系での T_c の大きな減少と、低温での構造相転移との関連性について興味もたれた。そこで本研究では、 $(La_{1-x}M_x)_2CuO_4$ ($M=Ba, Sr$)において、BaおよびSr濃度を系統的に変えながら、20kbarまでの圧力下で電気抵抗とマイスナー信号の測定をおこなった。

◎実験

測定に使用した試料はすべてセラミックである。高圧実験には、ピストンシリンダー型圧力発生装置を使用した。圧力媒体はケロシンとトランス油の1:1混合液である。また圧力シールにはブリッジマン・シールを採用した。電気抵抗は直流4端子法を用いて、またマイスナー信号は交流磁化率より測定した。

◎実験結果

- 1) 電気抵抗の温度微分を調べることにより、常伝導相の電気抵抗に小さな異常が見つかった。この異常の現れる温度は、置換濃度の増加と共に低温側にシフトしていくことが分かった。この結果を、 x 線回折により得られた T_c の置換濃度依存性と比較したところ、電気抵抗の微分における異常はHTT-LTO転移に伴うものと結論できた。また、この異常は圧力を加えると低温側にシフトしていくことが分かった(図4)。
- 2) Ba系の T_c が大きく落ち込んでいる濃度領域の試料の電気抵抗は低温(50~60K)で極小を持つ。圧力を加えると、電気抵抗が極小となる温度は下がり、かつ低温での電気抵抗の増加も小さくなっていくことが分かった(図5)。
- 3) Ba系において、 T_c は圧力を加えることにより上昇することが分かった。特に、常圧下で T_c が大きく落ち込んでいる濃度領域の試料の T_c は大きく上昇する(図6,7)。
- 4) Sr系においてもBa系と類似の現象が見つかった(図8)。

◎考察

Ba系の T_c が大きく落ち込んでいる濃度領域での T_c は、圧力を加えると急激に上昇し、同時に電気抵抗が極小となる温度は低下し、低温での電気抵抗の増加も小さくなることが分かった。従って、LTT相では超伝導が強く抑制されており、圧力を加えることによりLTT相が抑制されると、超伝導相が回復し、 T_c が上昇するものと考えられる。LTT相での T_c の減少

はフェルミ準位の状態密度の減少によるものであると思われる。

- ¹High-Temperature Tetragonal
- ²Low-Temperature Orthorhombic
- ³Low-Temperature Tetragonal

References

- (1) M.Sera et al.:Solid State Commun. 69 (1989) 851.
- (2) J.D.Axe et al.:Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 2751.

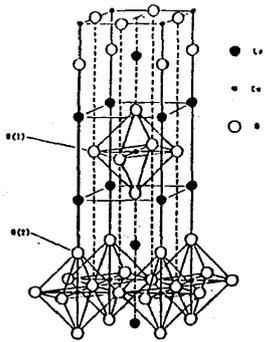


図1 K₂NiF₄型構造

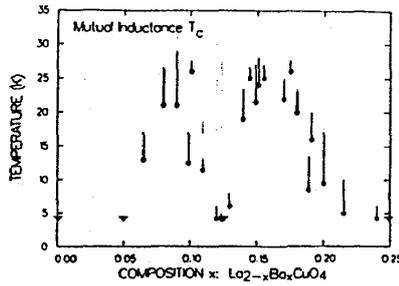


図2 Ba系のT_cのBa濃度依存性

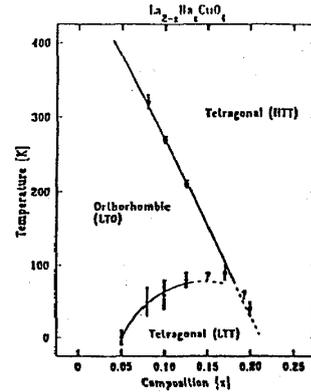


図3 Ba系の結晶構造のBa濃度依存性

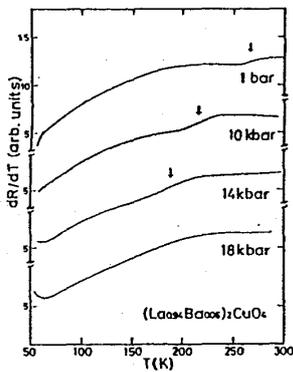


図4 Ba系x=0.06の電気抵抗の温度微分の圧力依存性

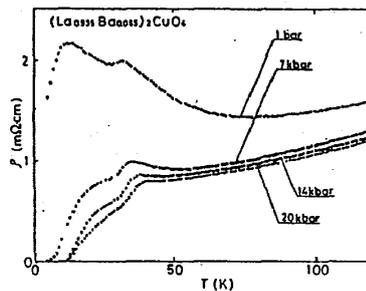


図5 Ba系x=0.065の電気抵抗の圧力依存性

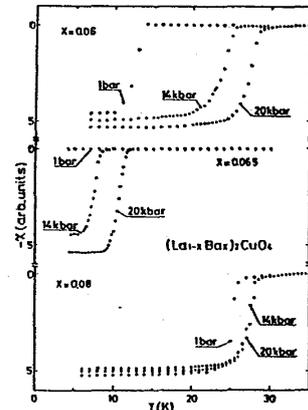


図6 Ba系の磁化率の温度依存性の圧力変化

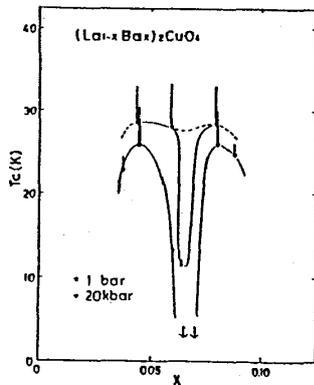


図7 Ba系のT_cのBa濃度依存性の圧力変化

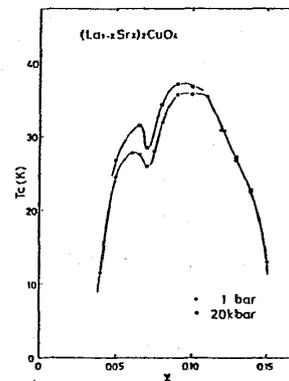


図8 Sr系のT_cのSr濃度依存性の圧力変化