

スピンラダー系銅酸化物 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の低エネルギー電荷ダイナミクス — 非線型電気伝導の測定 —

東京大学大学院総合文化研究科 井上 亮太郎¹, 北野 晴久, 前田 京剛
東京大学新領域創成研究科 本山 直樹, 小嶋 健児, 内田 慎一

1 はじめに

これまでに我々は空洞共振器摂動法を用いてスピンラダー系銅酸化物 $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の複素電気伝導度をマイクロ波領域で測定し、梯子方向の電気伝導度に 170 K 以下の温度領域で共振モードの発達することを発見した [1]。モードの中心周波数 55 GHz は測定される温度領域のエネルギースケールに比較して極めて小さく、この共振モードがコレクティブな起源を持っていることを強く示唆している。またこの系では、やはり 170 K 以下の温度領域で、直流抵抗率が熱活性化型の振舞いからずれ [2]、遠赤外反射率に鋭い立ちあがりが見えることが知られており [3]、この系の電荷ダイナミクスは低温で大きく変化している可能性がある。

このようなコレクティブモードの起源としてはピン止めされた電荷密度波 (CDW) などの電荷秩序が考えられるが、マイクロ波領域で観測されるコレクティブモードは極めて小さく鋭いこと [4]、同時に測定された誘電率も 100 程度でそれ程大きくないこと [5]、X 線回折測定で構造相転移が観測されていないことなどを考慮すると、所謂古典的な CDW [6] の描像は幾つかの実験事実と合致していないように思われる。

また少量 Ca 置換した系 $\text{Sr}_{13}\text{CaCu}_{24}\text{O}_{41}$ ($x = 1$) では、共振モードはやはり 55 GHz 近傍に観測されるものの、観測される温度が 130 K に下がり振動子強度もさらに小さくなることが分かった [7]。

これらの結果はこの系の電荷ダイナミクスが極めて特異なものであることを示唆している。そこで我々はマイクロ波領域のコレクティブモードについてさらに調べるため、電気伝導度の電場依存性を測定し非線型伝導を観測することを試みた。

2 実験

Ca 置換していない ($x = 0$) の系、少量 Ca 置換を行った ($x = 1$) の系、強く Ca 置換を行った ($x = 12$) の系という 3 種類の組成の単結晶を TSFZ 法によって作製した。銀蒸着によって電極をつけた後、酸素中でアニールして接触抵抗を下げた。

¹E-mail:inoue@maeda1.c.u-tokyo.ac.jp

電気伝導度の測定は各組成とも梯子 (ladder) 方向である c 軸方向について行った。 $x = 0$ の組成については横木 (rung) 方向である a 軸方向についても測定した。

全測定温度領域 (100 K ~ 200 K) で直流四端子測定とパルス四端子測定を併用した。パルス測定に使用した典型的なパルスは、周期が 100 Hz、パルス幅が 10 μsec で、周期及びパルス幅を変化させてジュール発熱の起こっていないことを確認しながら測定を進めた。

3 結果

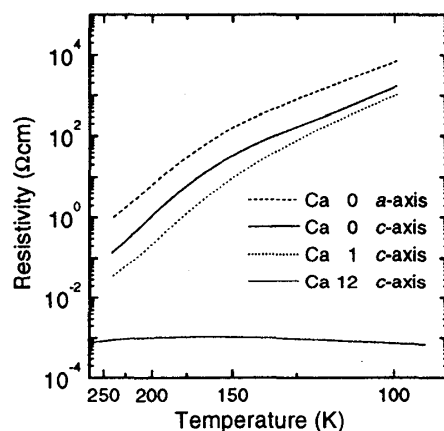


図 1: オーミック領域の抵抗率の温度依存性。

図 1 に各組成についての抵抗率の温度依存性をアレニウスプロットで示した。 $(x = 0)$ の c 軸及び a 軸、 $(x = 1)$ の c 軸とも低温で熱活性化型の振舞いからずれていることが分かる。また $(x = 12)$ の c 軸は低温まで金属的な温度依存性を持っている。

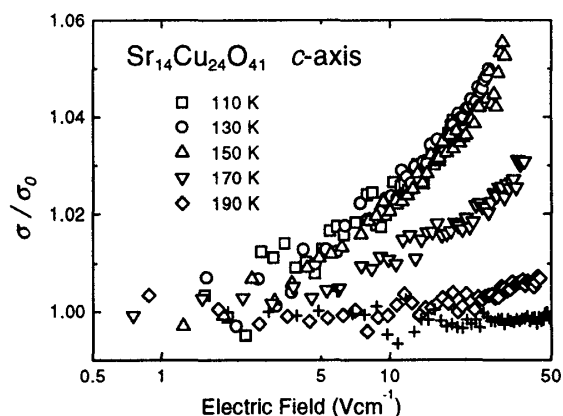


図 2: $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の c 軸電気伝導度の電場依存性。

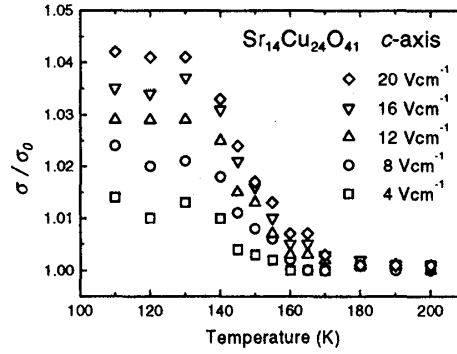


図 3: $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の c 軸電気伝導度の温度依存性。

図 2 は ($x = 0$) の試料の c 軸電気伝導度の電場依存性である。低温で非線型電気伝導が観測された。またオーミック領域の電気伝導度 $\sigma_0(T)$ で規格化すると低温ではスケーリング則

$$\frac{\sigma(E, T)}{\sigma_0(T)} = 1 + A \left(\frac{E}{E_T} - 1 \right)^\beta, \quad (1)$$

が成り立っていることが分かった。ここでしきい電場 $E_T \approx 2 \text{ Vcm}^{-1}$ 、 $A \approx 2.2 \times 10^{-2}$ 、 $\beta \approx 0.7$ で、測定温度領域においてオーミック領域の電気伝導度 σ_0 が 3 桁以上変化しているのに比較すればその温度依存性は弱い。このようなスケーリング則の成立は半導体的なバックグラウンドを持つ CDW ではしばしば観測されている [6]。

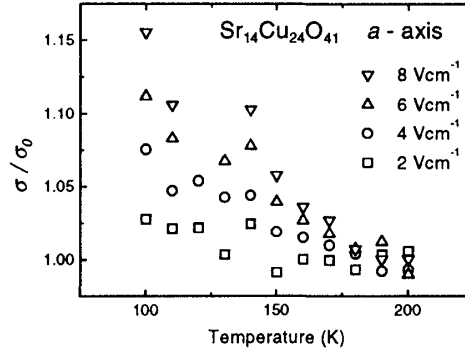
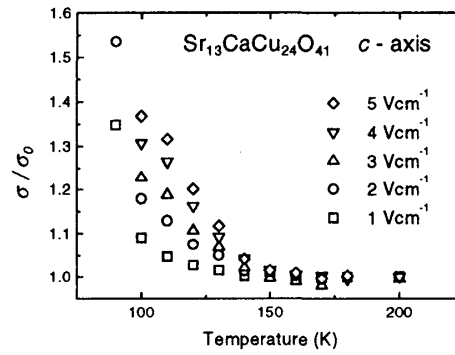
ピン止めされたコレクティブモードのピン止め周波数 ω_0 としきい電場 E_T の間には、次のような関係のあることが力学的な考察から容易に分かる。

$$eE_T = m^* \omega_0^2 \lambda. \quad (2)$$

ここで m^* はコレクティブモードキャリアの有効質量、 λ はコレクティブモードの実効的な波長に相当する。今 $\omega_0/2\pi \approx 55 \text{ GHz}$ 、 $E_T \approx 1 \text{ Vcm}^{-1}$ 、 $\lambda \approx 3.95 \text{ \AA}$ (梯子面の Cu-Cu 距離) とすると、 $m^*/m_e \approx 0.4$ という値が得られる。これは巨大な有効質量を持つ古典的な CDW の描像とは大きく異なっている。

同じデータを一定電場下における温度依存性としてプロットしたものを図 3 に示す。170 K を境に非線型電気伝導が起こっていることが分かる。こうして非線型電気伝導測定からもこの系の電荷ダイナミクスが低温で変化することが確かめられた。また 140 K 以下の温度領域で温度依存性が弱まっていることは、上述のスケーリング則の成立に対応している。

次に ($x = 0$) の a 軸の測定結果について述べる。($x = 0$) の a 軸でも低温で非線型電気伝導が観測された。しかしオーミック領域の電気伝導度が c 軸よりも 1 桁近く小さいことを考慮すると非線型電気伝導の大きさの絶対値は c 軸よりも小さい。図 3 と同様に規格化した電気伝導度を一定電場下の温度依存性として図 4 に描い

図 4: $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の a 軸電気伝導度の温度依存性。図 5: $\text{Sr}_{13}\text{CaCu}_{24}\text{O}_{41}$ の c 軸電気伝導度の温度依存性。

た。 0.1 Vcm^{-1} 以下の小さな電場から非線型電気伝導が観測されている。実験的には次式のような電場のべき乗に比例する形で表現できる [8][9]。

$$\frac{\sigma(E, T)}{\sigma_0(T)} = 1 + B(T)E^\gamma. \quad (3)$$

$\gamma \approx 0.8$ の温度依存性は弱い一方、 $B(T)$ は測定温度領域で 4 桁以上激しく温度変化している。これは c 軸と定性的に大きく異なる振舞いである。非線型電気伝導の観測される特徴的な温度が存在しないこと、低温でのスケーリング則 (1) が見られないことなども c 軸と異なっている。これらの振舞いはマイクロ波領域の電気伝導度に a 軸ではコレクティブモードが観測されていないことと対応しており、局在化した少数の 1 粒子的なキャリアが電場によって再び非局在化して電気伝導に参加するという伝導機構の描像に合致する。

($x = 1$) の c 軸電気伝導度の測定結果に移る。($x = 1$) の c 軸では低温で絶対値としても大きな非線型電気伝導が観測された。図 5 に温度依存性のプロットを示す。しきい電場は 0.1 Vcm^{-1} 以下と小さく、やはり温度のべき乗則 (3) でよく表現される。また温度依存性も ($x = 0$) の a 軸に類似している。これらの振舞いはマイクロ波領域のコレクティブモードの振動子強度が ($x = 1$) の系では約 1 桁小さく

なっていることと対応しており、コレクティブモードの起源と考えられる電荷秩序が ($x = 1$) の系では既に失われつつあることを示唆している。

($x = 12$) の c 軸では、20 K 以上の温度領域、38 Vcm⁻¹ 以下の電場領域で、非線型電気伝導は全く観測されなかった。これは通常の金属に近い振舞いと考えられる。

4 考察

($x = 0$) の c 軸で見られた非線型電気伝導と、($x = 0$) の a 軸及び ($x = 1$) の c 軸で見られた非線型電気伝導とを比較してみると、しきい電場の大きさが異なるばかりでなく、低温でのスケーリング則 (1) の有無、非線型電気伝導の急激に起こる特徴的な温度の有無など、両者は定性的に異なっている。

2 種類の非線型電気伝導の存在は、2 種類の電気伝導機構の存在を示唆している。

$$\sigma(E, T) = \sigma_{\text{q.p.}}(E, T) + \sigma_{\text{collective}}(E, T). \quad (4)$$

我々の測定結果を考え合わせると、1 粒子的なキャリアの伝導による寄与 $\sigma_{\text{q.p.}}(E, T)$ は、熱活性化型の温度依存性と非線型項のべき乗的な電場依存性 (3) を持ち、コレクティブモードによる寄与 $\sigma_{\text{collective}}(E, T)$ は、 c 軸にのみ存在し電場依存性にスケーリング則 (1) が成り立つと考えられる。まず ($x = 0$) の c 軸では $\sigma_{\text{collective}}(E, T)$ が支配的であるが、 a 軸ではその寄与はないため $\sigma_{\text{q.p.}}(E, T)$ の弱い非線型電気伝導が観測される。これに対し ($x = 1$) の c 軸では、コレクティブモードの起源であると考えられる電荷秩序は既に失われかけており、 $\sigma_{\text{q.p.}}(E, T)$ が支配的である。最後に ($x = 12$) の c 軸では電荷秩序は完全に消滅し、ホッピング伝導 $\sigma_{\text{q.p.}}(E, T)$ も金属的な電気伝導 $\sigma_{\text{metal}}(T)$ に変化している。

5 結論

Sr₁₄Cu₂₄O₄₁ の c 軸方向の電荷ダイナミクスは低温で極めて特徴的な振舞いをするのが、非線型電気伝導の測定からも明らかになった。コレクティブモードの起源と思われる電荷秩序は、Ca 置換による少数のキャリアの注入でも失われ、その有効質量は古典的 CDW と異なって自由電子程度の大きさである。

参考文献

- [1] 北野 晴久 他, 物性研究 本研究会報告.
- [2] 本山 直樹, 博士論文 (2000).
- [3] M. Takaba *et al.*, unpublished.
- [4] H. Kitano *et al.*, Physica B **284-288** (2000), 1936.

- [5] H. Kitano *et al.*, Physica C **341-348** (2000), 453.
- [6] G. Grüner, Rev. Mod. Phys. **60** (1988), 1129.
- [7] H. Kitano *et al.*, unpublished.
- [8] H. Fukuyama and K. Yoshida, Journal of Phys. Soc. Japan **46** (1979), 102.
- [9] S. Uchida and S. Tanaka, Physica **117B 118B** (1983), 673.