

梯子格子系における新しい集団励起の観測

東京大学 大学院総合文化研究科

北野 晴久¹, 井上 亮太郎, 前田 京剛

東京大学 大学院新領域創成科学研究科

本山 直樹, 小嶋 健児, 永崎 洋, 内田 慎一

少量のホールが梯子上に注入された梯子型銅酸化物 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ に対するミリ波領域 (30 GHz~100 GHz) の複素電気伝導度測定から, 梯子方向の交流伝導度に低温で新しい集団励起モードを観測した. この励起モードの起源はまだ特定できないが, 梯子上に少量注入されたホール間の強い相関が密接に関係していると考えられる.

1 緒言

スピン 1/2 のハイゼンベルグ型反強磁性一次元鎖を複数本梯子のようにつなげた構造は「梯子格子」と呼ばれており [1], 単純な反強磁性一次元鎖から高温超伝導の舞台である反強磁性二次元平面へと連続的につなぐことのできる構造として注目され, 盛んに研究されてきた [2]. キャリアが注入されていない梯子格子の基底状態は, 足の数が偶数本か奇数本かで大きく異なり, 偶数本足梯子の場合には, 同じ横木 (rung) 上にあるスピン同士が一重項を組み, スピン励起に有限のスピンギャップが生じることが知られている [2]. このようなスピンギャップの開いた梯子格子にキャリアが注入された場合の電荷ダイナミクスは極めて興味深い.

$\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ は, Cu_2O_3 二本足梯子格子層と CuO_2 一次元鎖層をもち, 梯子格子へのキャリア (ホール) 注入に成功した唯一の例として知られている. この物質の Cu の平均価数は +2.25 なので, すでにホールが注入されていることが分かる. 梯子格子へのキャリア注入は, Sr サイトの Ca 置換に伴い CuO_2 一次元鎖層から Cu_2O_3 梯子格子層へホールが移動することで行われることが光学測定により明らかにされた [3]. この物質は, ホールが十分注入された組成 ($x > 11.5$) において 3 GPa 以上の高圧下で超伝導 ($T_c \sim 10$ K) を示すことが知られているが [4], 本研究では, むしろ少量のホールが梯子格子へ注入された場合の電荷ダイナミクスに着目し, 擬一次元物質ではよく知られた電荷密度波 (CDW) やスピン密度波 (SDW) 状態における集団励起と類似の振舞いがミリ波領域の複素電気伝導度測定から観測されたことを報告する.

2 実験方法

測定に用いた単結晶試料は, 全て溶媒移動浮遊帯域 (Traveling Solvent Floating Zone) 法で作製された [5]. ミリ波領域の複素電気伝導度測定には通常空洞共振器摂動法を用いた [6]. 周波数依存性を調べるために共振周波数の異なる 6 つの円筒形空洞共振器 (35, 40, 50, 55, 60, 98 GHz) を

¹ E-mail: hkitano@maeda1.c.u-tokyo.ac.jp

用意し、TE₀₁₁(又はTE₀₁₃)共振モードの交流電場の強い位置($r \sim R/2, z = L/2$, R, L は各々空洞の半径及び高さ)に試料を置き、共振周波数 f および Q 値の変化を各温度で測定した。

よく知られているように、試料サイズに比べ表皮深さが十分に大きく試料内の電磁場が準静的に扱える場合(depolarization regime)には、共振周波数および Q 値の変化($\Delta f/f$ と $\Delta(1/2Q)$)は、複素誘電率($\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$)と次のように関係付けられる[7]。

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{\gamma}{n^2} \frac{\left(\epsilon_1 - 1 + \frac{1}{n}\right)}{\left(\epsilon_1 - 1 + \frac{1}{n}\right)^2 + \epsilon_2^2} + C, \quad (1)$$

$$\Delta\left(\frac{1}{2Q}\right) = \frac{\gamma}{n^2} \frac{\epsilon_2}{\left(\epsilon_1 - 1 + \frac{1}{n}\right)^2 + \epsilon_2^2},$$

ここで、 n は試料形状から計算される反分極係数(depolarization factor)、 C は実験から決められる周波数シフト $\Delta f/f$ のオフセットである。以下で示す電気伝導度や誘電率は全て上式(1)を用いて解析された。

3 実験結果及び考察

図1に母物質であるSr₁₄Cu₂₄O₄₁に対する c 軸方向(梯子方向)及び a 軸方向(横木方向)の複素電気伝導度の実部 $\sigma_1 (= \omega\epsilon_2/4\pi)$ の温度依存性を示す。この物質は、光学測定より梯子上のCuIサイト当たり0.07個のホールが注入されていると見積もられている[3]。図1に示すように、 c 軸方向の電気伝導度 σ_1^c は、約170K以下から直流電気伝導度と異なる温度依存性を示し、かつ30 GHzから100 GHzまでの比較的狭い周波数範囲で測定周波数に強く依存した温度依存性を示す。

一方、 a 軸方向の電気伝導度 σ_1^a は、実験誤差の範囲内で低温までほぼ周波数に依らない温度依存性を示す。 σ_1^c において周波数依存性が顕著となる温度 T^* (~ 170 K)は、直流電気抵抗率のアレ

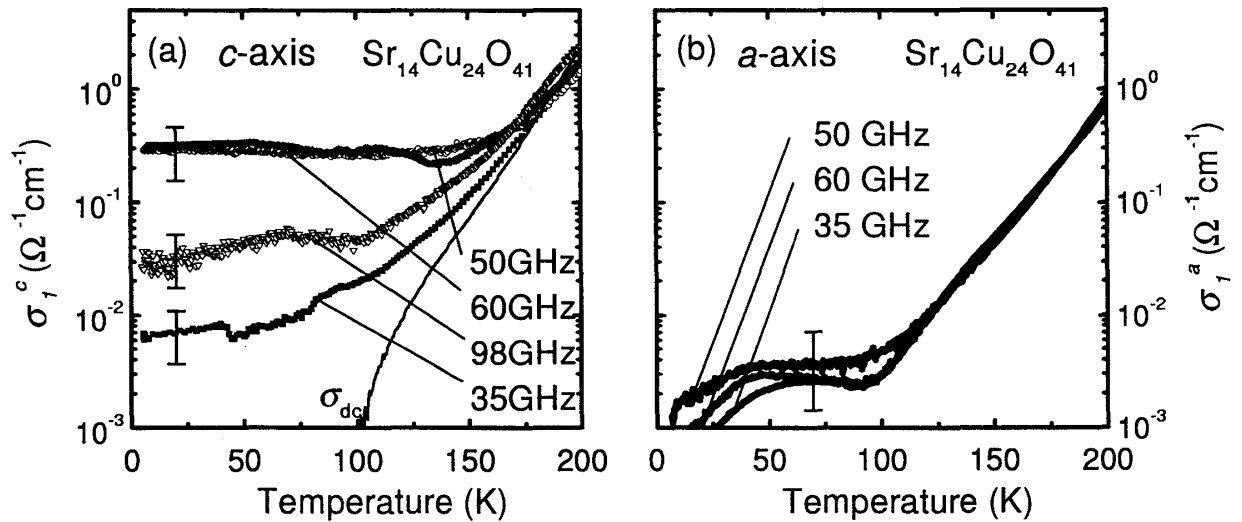


図1: (a)Sr₁₄Cu₂₄O₄₁の c 軸方向の電気伝導度。(b) a 軸方向の電気伝導度。

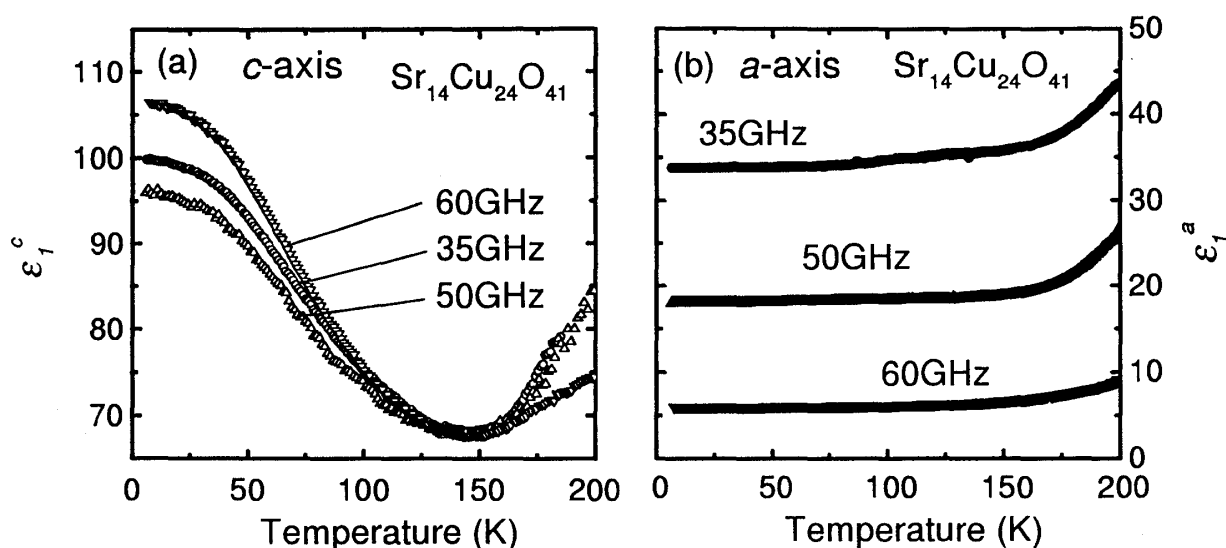


図 2: (a) $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の c 軸方向の誘電率. (b) a 軸方向の誘電率.

ニウスプロットに明確なキックが生じる温度 [8], および光学測定において 38 cm^{-1} 付近に鋭い反射率エッジが現れる温度とよく一致しており [9], 梯子上で何らかの電荷秩序が形成されている可能性を示唆している.

梯子方向の電荷ダイナミクスにおける特異な振舞いは, 複素誘電率の実部 ϵ_1 の温度依存性からも示唆される (図 2). a 軸方向の誘電率 ϵ_1^a は各周波数で温度減少と共に単調に減少する振舞いを示すのに対し, c 軸方向の誘電率 ϵ_1^c は T^* 以下の低温で温度減少と共に増大する振舞いを示すことが分かる. 光学測定で観測された 38 cm^{-1} 付近の反射率エッジと本測定で得られたミリ波領域の誘電率の値を用いて Layddanne-Sachs-Teller の関係式 ($\omega_L^2/\omega_T^2 = \epsilon_0/\epsilon_\infty$) から見積もると, $15\sim 20 \text{ cm}^{-1}$ の領域に何らかの励起モードが T^* 以下の温度領域で存在することが示唆される. キャリアのない $\text{La}_6\text{Ca}_8\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ においても同様な反射率エッジが観測されたことから, おそらくこの励起モードは周波数の非常に低いフォノンモードと考えられる [9]. 従って, 図 2 に示す ϵ_1^c の増大はこのフォノンモードが温度減少と共にソフト化していることを示唆している.

また, σ_1^c の周波数に強く依存した振舞いに比べ, ϵ_1^c は周波数にほとんど依らないように見えるが, これは図 3 で示す集団励起の振動子強度が極めて小さいことに起因しており, 実験的には σ_1^c と ϵ_1^c の周波数依存性に何ら矛盾するところはない.

図 1 で得られた電気伝導度を周波数に対してプロットすると, 図 3 に示すように, $\sigma_1^a(\omega)$ はほぼ平坦な周波数依存性を示すのに対し, $\sigma_1^c(\omega)$ には共鳴的なピークが低温で生じることが分かる. このピーク周波数 ($\omega_0/2\pi \sim 50 \text{ GHz}$) のエネルギースケール ($\sim 0.2 \text{ meV}$) は, 共鳴ピークが観測される温度領域 ($T < T^*$) のエネルギースケール ($\sim 10 \text{ meV}$) に比べてはるかに小さいため, 個別励起で説明されるとは考えにくく, むしろ何らかの電荷秩序形成に関連した集団励起であることが強く示唆される. さらに複数の単結晶試料を用いて調べたところ, 伝導度ピークの位置や幅は図 3 に示すように試料バッチに依存することが分かり, 試料に含まれる不純物濃度に敏感であることが示唆された.

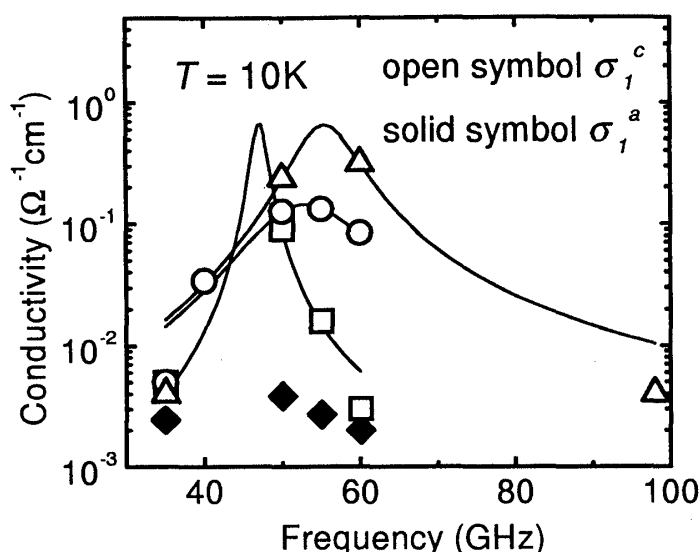


図 3: $T=10$ K における $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の電気伝導度の周波数依存性. $\circ$, $\triangle$, $\square$ は異なる試料に対する σ_1^c , $\blacklozenge$ は σ_1^a .

図 1 から図 3 で示した振舞いは、擬一次元系でよく知られた CDW や SDW などの密度波状態における不純物にピンングされた集団励起モードと非常によく似ている [10, 11]. 実際、密度波状態の集団励起モードでは、マイクロ波ミリ波領域で観測される交流伝導度ピークのピンング周波数 ω_0 と直流電気伝導度に非線形伝導が観測されるしきい電場 E_0 は、関係式

$$eE_0 \approx m^* \omega^2 \lambda \quad (2)$$

で結び付けられることが知られている. ここで m^* は有効質量, λ は集団励起が電場によって並進運動するのに必要な最小距離である.

本研究でも同じ物質を用いて非線形電気伝導の測定を行った結果, T^* 以下の低温で比較的小さい電場 (0.1~1 V/cm) から小さいながらも明瞭な非線形伝導が観測された [12]. λ を梯子方向の Cu-Cu 距離 (~ 3.95 Å) 程度であるとして上式 (2) から m^* を見積もると, 自由電子の質量とほぼ同じ有効質量が得られた. これは通常の CDW とは異なり, 格子変形をほとんど伴わない電荷秩序の形成を示唆する. 一方, ミリ波電気伝導度の周波数依存性から見積もられる集団励起モードの振動子強度は極めて小さく, 上式 (2) で見積もった m^* から予想される振動子強度よりも 6 桁以上も小さいことが判明した. このような著しく小さい振動子強度を持つ集団励起は, Bechgaard 塩などの SDW 状態でも報告されているが, 現在でもまだ明確な説明は与えられておらず [11], 電子相関が重要な系における集団励起に共通の問題として考える必要がある.

4 結論

本研究では, 少量のホールが梯子上に注入された梯子型銅酸化物 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ に対するミリ波領域 (30 GHz~100 GHz) の複素電気伝導度測定から, 梯子方向の交流伝導度に極めて小さ

いながらも低温で新しい集団励起モードを観測した。この励起モードの起源はまだ特定できないが、梯子上に少量注入されたホール間の強い相関が密接に関係していると考えられる。

参考文献

- [1] 永田 貴志, 秋光 純, 固体物理 **34** (1999), 159.
- [2] For a review, see E. Dagotto, Rep. Prog. Phys. **62** (1999), 1525.
- [3] T. Osafune *et al.*, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 1980.
- [4] M. Uehara *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996), 2764; T. Nagata *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998), 1090.
- [5] N. Motoyama *et al.*, Phys. Rev. B **55** (1997), R3386.
- [6] H. Kitano *et al.*, Physica B **284-288** (2000), 1936; Physica C **341-348** (2000), 463.
- [7] O. Klein *et al.*, Int. J. Infrared and Millimeter Waves **14** (1993), 2423.
- [8] 本山 直樹, 博士論文 (2000).
- [9] M. Takaba *et al.*, unpublished.
- [10] G. Grüner, Rev. Mod. Phys. **60** (1988), 1129.
- [11] G. Grüner, Rev. Mod. Phys. **66** (1994), 1.
- [12] 井上 亮太郎 他, 物性研究, 本研究会報告.