



Title	反強磁性磁気秩序と共存する高温超伝導現象について
Author(s)	清水, 直; 椋田, 秀和; 北岡, 良雄
Citation	大阪大学低温センターだより. 2011, 153, p. 21-24
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/10784">https://hdl.handle.net/11094/10784</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

# 反強磁性磁気秩序と共存する高温超伝導現象について

基礎工学研究科 †清水 直 (内線6438)  
 棕田 秀和 (内線6437)  
 北岡 良雄 (内線6435)

† E-mail: shimizu@nmr.mp.es.osaka-u.ac.jp

## 1. はじめに

1979年に重い電子系物質であるCeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>で1 K以下の低温において非従来型の超伝導が発見されて以来、1986年に発見された銅酸化物高温超伝導体、そして新たに2008年に発見された鉄を含む超伝導体など、いずれも反強磁性相に隣接して新奇な超伝導が発見され、磁性と超伝導が絡み合う境界領域に超伝導のフロンティアがあることが近年強く認識されてきてきた。

その中でも銅酸化物高温超伝導体は、キャリアドーピングにより超伝導転移温度 ( $T_c$ ) が160 Kを越える現在最も高い $T_c$ を持つ物質群である。全ての銅酸化物高温超伝導体は、超伝導の舞台である二次元のCuO<sub>2</sub>面と、それを挟み込む電荷供給層からなる積層構造をもつ。そのCuO<sub>2</sub>面内のホール(キャリア)濃度  $p$  がゼロの母物質は反強磁性 (AF) を示し、ホールドーピングにより超伝導 (SC) が実現することが理解されている。これまで良く研究されてきた典型的な物質であるLa<sub>2-x</sub>Sr<sub>2-x</sub>CuO<sub>4</sub> (LSCO) とYBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+y</sub> (YBCO) の相図をそれぞれ図1(a)、1(b)に示す。

我々のグループは、磁性・超伝導などのミクロな性質を明らかにできる核磁気共鳴 (NMR) という実験手法を用いて、i) 銅酸化物の  $T-p$  相図が単位胞内のCuO<sub>2</sub>面数  $n$  に強く依存すること、ii)  $n=3$  の場合に超伝導と反強磁性の共存相 (図1(c)-(e)の網掛け) が存在することを明らかにした<sup>[1-3]</sup>。図1に示すように、 $n$ を増やすと反強磁性相の臨界点が高ホール濃度側に移動し、 $n=3$ 、4、5では反強磁性と超伝導が一様に共存する。これは $n=1$ であるLSCOや $n=2$ であるYBCOでは観測

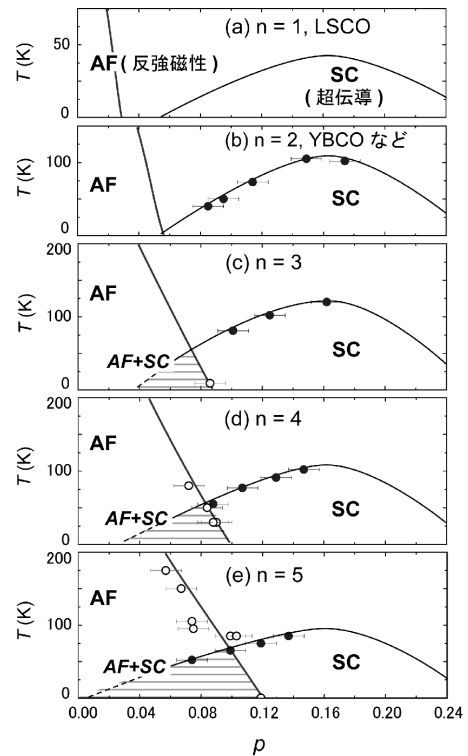


図1 銅酸化物高温超伝導体の相図。 $n$ は単位胞内のCuO<sub>2</sub>面の数を示す。

されなかった秩序相で、CuO<sub>2</sub>面を3枚以上もつ多層型物質の研究から初めて明らかになった。これらの結果は高温超伝導の起源が反強磁性秩序と深く関係していることを強く示唆するものである。

本稿ではこれらの結果を踏まえ、五層型 (n=5) 銅酸化物高温超伝導体の中でも最も低いT<sub>c</sub>をもつBa<sub>2</sub>Ca<sub>4</sub>Cu<sub>5</sub>O<sub>10</sub>(F,O)<sub>2</sub> (T<sub>c</sub>=52 K) について、我々の最新の研究成果を報告したい<sup>[4]</sup>。

## 2. 反強磁性磁気秩序と共存する高温超伝導現象

図2(a)に、Ba<sub>2</sub>Ca<sub>4</sub>Cu<sub>5</sub>O<sub>10</sub>(F,O)<sub>2</sub>の結晶構造を示す。この物質は単位胞内に5枚のCuO<sub>2</sub>面を持ち、T<sub>c</sub>=52 Kで超伝導状態に転移する。またホール濃度は約7%程度と見積もられ、これまで報告されている五層型物質のなかで最も低ドープな物質であることがわかっている。図2(b)にT=1.5 Kで測定したゼロ磁場NMRスペクトルを示す。これを図2(c)の三層型Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6</sub>(F,O)<sub>2</sub>と比較すると、外側のCuO<sub>2</sub>面(OP)、内側のCuO<sub>2</sub>面(IP)ともに、スペクトルが高周波側にシフトしていることが分かる。三層型Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6</sub>(F,O)<sub>2</sub>は磁気秩序せず、図2(c)のスペクトルは非磁性状態であることを示しており、図2(b)で見られるスペクトルの高周波側へのシフトは、OP、IPともにT=1.5 Kにおいて反強磁性秩序状態であることを意味している。またスペクトルの解析から、反強磁性磁気モーメントの大きさはOPで0.11 μ<sub>B</sub>、IPにおいて0.19 μ<sub>B</sub>と見積もられた。この結果は、T<sub>c</sub>=52 Kの超伝導体である五層型Ba<sub>2</sub>Ca<sub>4</sub>Cu<sub>5</sub>O<sub>10</sub>(F,O)<sub>2</sub>において、T=1.5 Kで静的な反強磁性秩序と超伝導が共存していることを示している。

T=1.5 Kで観測された反強磁性磁気秩序の発達を調べるため、フッ素サイトでのNMRを行った。図3はF-NMRスペクトルの温度変化であり、外部磁場をCuO<sub>2</sub>面に対し垂直方向(H//c)に印加して測定した。図に示すように、T=240 Kではシャープな単一ピークのスペクトルが観測されるのに対し、温度を下げていくと二つのピークをもつブロードなスペクトルに変化する。これは反強磁性磁気秩序にともなう内部磁場の影響を反映しており、磁気秩序の発達のために

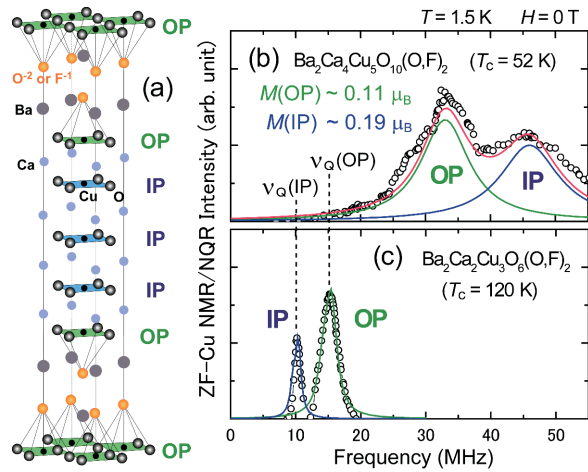


図2 (a) Ba<sub>2</sub>Ca<sub>4</sub>Cu<sub>5</sub>O<sub>10</sub>(F,O)<sub>2</sub>の結晶構造。CuO<sub>2</sub>面を5枚積層させた構造をとる。(b) T=1.5 Kでのゼロ磁場NMRスペクトル。これは(c)の非磁性状態のスペクトルと大きく異なり、磁気秩序状態にあることを示している。

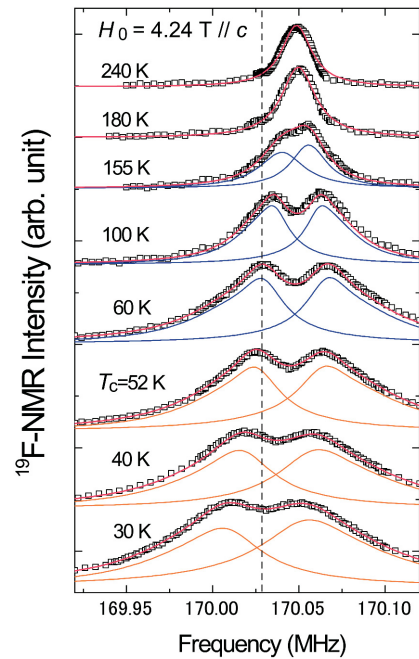


図3 F-NMRスペクトルの温度変化。T<sub>N</sub>=175 K以下で二つのピークに分裂する。点線はK=0。

低温に向けてスペクトルの分裂幅が大きくなっていくと考えられる。スペクトルの分裂幅から見積もられる、フッ素サイトにおける内部磁場 $H_{int}$ （外部磁場 $H$ に平行な成分）の温度変化を図4(a)に示す。 $T=175$  Kから内部磁場が発生し、低温にむけて $(T_N - T)^{1/2}$ に比例して増大することから、ネール温度 $T_N = 175$  Kの長距離的な反強磁性磁気秩序が発生していることがわかる。

図4(b)に、ナイトシフト $K$ の温度依存性を示す。ナイトシフトとはNMRの共鳴条件 $\omega_0 = \gamma H$ からの共鳴周波数 $\omega_{res}$ のずれとして定義され、図3における点線( $\omega_0$ )とスペクトルのピーク( $\omega_{res}$ )の差として求められる。 $T_N = 175$  K以下では、二つのピークの中心の値を $\omega_{res}$ としてナイトシフトを求めた。室温から温度を下げていくと、ほぼ温度変化をしない一定値をとるが、 $T_c = 52$  Kで減少し始める。こ

れは超伝導転移にともなう反磁性シフトであり、 $T_N = 175$  Kをもつ反強磁性秩序のバックグラウンドのなかで、一様に超伝導が発現していることを示している。また、この超伝導転移にともない、内部磁場 $H_{int}$ の温度依存性が $(T_N - T)^{1/2}$ のライン（図4(a)の実線）からずれ始めるが、これは反強磁性磁気モーメントの配列が超伝導転移の影響で変調されたことを示唆している。これはすなわち、銅酸化物高温超伝導体において、超伝導と反強磁性の秩序変数が互いに相関していることの証拠である。

### 3. まとめと展望

これまで述べてきたように、銅酸化物高温超伝導体において反強磁性秩序と超伝導は同じ $\text{CuO}_2$ 面内で一様に共存する。この一様共存相は本稿で報告した $\text{Ba}_2\text{Ca}_4\text{Cu}_5\text{O}_{10}(\text{F},\text{O})_2$ だけでなく低ドーブな多層型物質で共通して観測され、その反強磁性 - 超伝導相図は図1(c) 1(e)のようにまとめることができる。一方この相図（図1(c) 1(e)）は、長年研究されてきた単層型 ( $n=1$ ) LSCO、二層型 ( $n=2$ ) YBCOにおける、それぞれ2%、5%程度で反強磁性長距離秩序が消失する相図（図1(a), 1(b)）とは著しく異なる。これは、 $\text{CuO}_2$ 面数 $n$ を増やすことにより $\text{CuO}_2$ 面間の磁気的相互作用が強まり、高いホール濃度域まで反強磁性秩序が安定化されたことが原因と考えられる。

銅酸化物高温超伝導が発見後24年を経てなお完全なる理解に至っていない一つの要因として、現在「銅酸化物高温超伝導体の相図」として信じられている単層La系の磁気超伝導相図（図1(a)）が理論的に説明できないことがある。これに対し多層型の研究結果は、 $\text{CuO}_2$ 面数 $n$ の増加により張り出した反強磁性金属相と超伝導相の様に混ざった安定状態があり、そのような状況においても高い超伝導転移温度が維持できていることを示す。この事実から、高温超伝導は反強磁性と「競合」

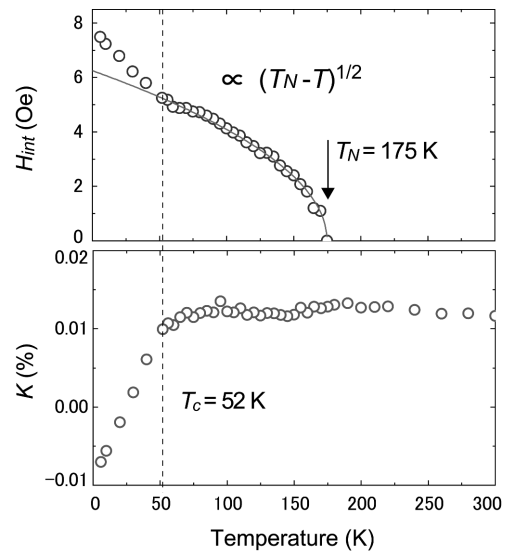


図4 (a) フッ素サイトでの内部磁場 $H_{int}$ 。  $T_c$ 以下で $(T_N - T)^{1/2}$ に比例した温度依存性からずれる。(b) ナイトシフト $K$ の温度依存性。 $T_c = 52$  K以下で超伝導転移にともない減少する。

しているというよりも、「協奏・協力」していると考えられ、その高温超伝導の起源は「反強磁性を生み出すものと同じのもの」、つまり反強磁性を生み出す超交換相互作用 ( $J$ ) と考えることで全体を非常にすっきりと見通せると思われる。

さらにLSCOやYBCOの低ドーブ域では、 $\text{CuO}_2$ 面の見せるさまざまな異常（磁場誘起反強磁性、ホールポケットの観測、擬ギャップ、ストライプ構造など）と超伝導との関係が、重要な未解決の課題として残っている。多層型物質の研究は、（層の数 $n$ によらず $\text{CuO}_2$ 面内の磁気的な結合は同程度 ( $J \sim 1300 \text{ K}$ ) であることから）均一にドーブされた乱れのない理想的な $\text{CuO}_2$ 面には12%程度まで本質的に反強磁性モーメントがあることを示唆している。これは、LSCOやYBCOでは弱い層間結合のため最適ドーブ域まで面内に反強磁性秩序が隠れている可能性を示唆しており、低ドーブ域での異常の解決への糸口になると考えている。

当研究成果は、我々北岡グループと産総研の伊豫グループの共同研究である。最後に、我々の研究室では毎年大量の液体ヘリウムを使って極低温までの実験を日夜行っており、本稿で報告した研究は、低温センターの皆様が安定して供給して下さる液体ヘリウムがあってこそ遂行できた。ここに感謝いたします。

## 参考文献

- [ 1 ] H. Kotegawa *et al.*, Phys. Rev. B 69, 014501 ( 2004 ).
- [ 2 ] H. Mukuda *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 77, 124706 ( 2008 ).
- [ 3 ] S. Shimizu *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 78, 064705 ( 2009 ).
- [ 4 ] S. Shimizu *et al.*, submitted.