

Title	NMR and NQR Studies of High Temperature Superconductor La <sub>2-x</sub> Sr <sub>x</sub> CuO <sub>4</sub>
Author(s)	大杉, 茂樹
Citation	大阪大学, 1993, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.11501/3065963">https://doi.org/10.11501/3065963</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

氏名	大 杉 茂 樹
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 10791 号
学位授与年月日	平成5年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学位論文名	<b>NMR and NQR Studies of High Temperature Superconductor La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub></b> (高温超伝導体 La <sub>2-x</sub> Sr <sub>x</sub> CuO <sub>4</sub> の核磁気共鳴による研究)
論文審査委員	(主査) 教授 朝山 邦輔 (副査) 教授 西田 良男    教授 天谷 喜一 助教授 三宅 和正    助教授 北岡 良雄

#### 論文内容の要旨

銅酸化物高温超伝導体の超伝導発現の機構を解明するために、超伝導に本質的役割を果たすと考えられている CuO<sub>2</sub> 面の核磁気共鳴 (NMR) を La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> (LSCO) について行った。また、銅酸化物高温超伝導体の核磁気緩和のふるまいと比較するために、シェブレル相超伝導体の NMR も行った。

核スピン-格子緩和時間 ( $T_1$ ) の測定から、常伝導状態で LSCO の Cu の  $1/T_1 T$  は、 $\theta$  K 以上で  $C/(T+\theta)$  のキュリー・ワイス則に従い、 $T_c$  直上付近ではほぼ一定値を持つ。この結果は、反強磁性的スピンの揺らぎによるゾーン境界 [ $Q=(\pi/a, \pi/a)$   $a$ : 格子定数] での  $\chi_q$  の温度依存性がキュリー・ワイス則に従っていることを示している。Sr 濃度の増加で  $1/T_1 T$  は減少するが、これは  $\chi_q$  の減少を意味する。一方、 $c$  軸に垂直なナイトシフトは Sr 濃度で増加し、 $q=0$  での  $\chi_0$  の増加を意味する。

シェブレル相超伝導体の TlMo<sub>6</sub>Se<sub>7</sub> ( $T_c=12.2$ K) の <sup>205</sup>Tl の  $1/T_1$  は、 $T_c$  直下でコヒーレンス・ピークの存在なしに  $2\Delta=4.5$  K<sub>B</sub>  $T_c$  で指数関数的に減少する。これは強い電子-フォノン相互作用を考慮に入れた  $s$  波モデルで説明できる。一方、銅酸化物高温超伝導体に共通に見られる  $1/T_1$  の  $T_c$  直下での急激な減少や低温での  $T^3$  の温度依存性は、フォノンによる散乱を考慮しても  $s$  波モデルでは説明がつかない。

$T_c$  直下での LSCO の Cu の  $1/T_1$  やナイトシフトの急激な減少は、全ての Sr 濃度で見られる。これはまた、 $T_c$  の最大 38K よりも低い  $T_c$  を持つ超伝導相が存在することを示している。

LSCO の Cu の  $1/T_1$  が、ライトドープ領域 ( $x \leq 0.15$ ) の  $T_c$  以下の低温で一定値をとることや、Cu NMR のスペクトルの半値幅が広がること、Sr 濃度の減少で  $\theta$  は減少し、 $\theta$  が 0 K になるところで  $T_c$  も 0 K になることから、磁気相境界近傍では、非常に低周波の反強磁性的なスピンの揺らぎが増すことを示している。言い換えれば、Cu の  $d$  スピンの局在性が増している。このため、ホールは濃度の減少と共に運動の自由度も失い、 $T_c$  が減少すると考えられる。

LSCO のオーバードープ領域 ( $x \geq 0.15$ ) の  $T_c$  以下の低温で、Cu の  $1/T_1$  は温度に比例し ( $T_1 T = \text{const.}$ )、Sr 濃度の増加でその値は増加する。また、 $c$  軸に垂直方向の残留スピนนイトシフトも増加する。これらの  $T_1$  とナイトシフトのふるまいは、Fermi 面で有限に残る残留状態密度を考慮したギャップレス  $d$  波モデルにより説明できる。

また Cu に四重極共鳴周波数の異なる二種類のシグナルが存在し、共鳴周波数の大きな値を持つシグナルの強度は、Sr 濃度の増加で増加する。また、その共鳴周波数は、Sr 濃度の増加でほとんど変化せず、超伝導が消失した Sr 濃度

範囲での値にほぼ一致する。よって、その結晶構造は正方晶的であると考えられる。また、その  $1/T_1$  は、全温度領域で低周波数のものに比べ二分の一程度の大きさを持つことから、反強磁性的スピンの揺らぎが抑えられていると考えられる。上記のギャップレスの原因は、非磁性の Sr の増加によるこのような斜方晶から正方晶への結晶構造の不安定性によって起こる対破壊によるものと考えられる。対破壊の効果とスピンの揺らぎの抑制により、 $T_c$  はオーバードープ領域で減少すると考えられる。

クーパー対が d 波対の場合、超伝導はスピンの揺らぎを媒介に起こる可能性が高い。上記の LSCO の Cu の NMR の結果から、銅酸化物高温超伝導体の超伝導の引力は、スピンの揺らぎによるものと考えられる。

### 論文審査の結果の要旨

高温超伝導体  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  では Sr 濃度  $x$  の増大とともにホール濃度は増加する。 $T_c$  は最大値 38 K ( $x=0.15$ ) まで増加し次に減少する。

本論文は高温超伝導の発現機構解明のためにこの系の広い  $x$  の範囲で Cu の NMR を行ない、スピン格子緩和時間  $T_1$  やナイトシフト、電場勾配の研究を行なったものである。

常伝導状態では、反強磁性的スピンのゆらぎの程度を表す交番帯磁率  $\chi(Q)$  が Curie-Weiss 則  $C/(T+\theta)$  に比例することを見出した。 $\theta$  は  $x=0.1$  ( $T_c=0$ ) で 0 で  $x$  の増大と共に増加する。超伝導状態では  $1/T_1$  は他の酸化物高温超伝導体と同様に BCS 的なコヒーレンスピークを持たず、指数関数的な温度依存性も示さない。 $x$  の大きいところで低温で  $T_1 T = \text{一定}$  則が現れ、またこれと平行して残留スピンナイトシフトが増大する。これらの振舞いはギャップレス d 波モデルで良く説明できる。ギャップレスの原因は微視的なオルソ相とテトラ相の混在によるものと考えられる。また Chevrel 化合物  $\text{TlMo}_6\text{Se}_8$  における  $T_1$  との比較においても銅酸化物超伝導体の  $T_1$  が s 波モデルで説明困難である事を指摘している。 $x$  の小さい所では Cu スピンの局在性を表す  $T_1 = \text{一定}$  の振舞が現れる。クーパー対が d 対称の場合にはスピンのゆらぎが引力の原因になっている可能性が高い。

$T_c$  の極大はホール濃度の増大とスピンのゆらぎの減少、対破壊の増大の兼ねあいでおこるものと考えられる。

以上、本論文は高温超伝導発現に重要な示唆を与えており博士論文として価値あるものと認められる。