

氏 名 西 島 辰 雄

学位（専攻分野） 博士(理学)

学 位 記 番 号 総研大甲第366号

学位授与の日付 平成11年3月24日

学位授与の要件 数物科学研究科 加速器科学専攻

学位規則第4条第1項該当

学 位 論 文 題 目 中性子散乱による酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ の
磁気励起の研究

論 文 審 査 委 員 主 査 助 教 授 那 須 奎 一 郎
教 授 新 井 正 敏
教 授 池 田 進
助 教 授 古 坂 道 弘
助 教 授 和 氣 正 芳
助 教 授 村 上 洋 一 (高エネルギー加速器研究機構)

論文内容の要旨

酸化物高温超伝導体はその母物質である反強磁性絶縁相にホールをドーピングして得られることから、磁性の側面から多くの実験的研究や理論的解釈がなされてきた。特に中性子散乱は、散乱強度が動的帯磁率に比例するため、磁気励起の研究を行う上で極めて有効な手段であるが大型の単結晶が必要なことから、研究の対象は単結晶の作成可能な $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) と $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ (YBCO) に限られてきた。LSCO の単結晶は比較的容易に作製することが出来ることから、中性子散乱により磁気励起の研究がかなり進んでおり、磁気散乱の温度依存性やホールドーピング依存性等について詳しく研究されている。LSCO の磁気散乱は反強磁性秩序を示す指数からずれた $(1/2 \pm \delta, 1/2)$, $(1/2, 1/2 \pm \delta)$ という波数に生じており、磁気散乱の弾性成分はないものの現在では非整合スピン揺らぎという言葉で定義されている。一方、YBCO では非整合位置には磁気散乱は観測されず、整合磁気散乱と理解されてきた。また、理論からは LSCO と YBCO の磁気励起の違いはフェルミ面の形状の違いからよく説明されている。すなわち、LSCO ではフェルミ面が良くネストする $(1/2 \pm \delta, 1/2)$, $(1/2, 1/2 \pm \delta)$ で帯磁率の極大を示すが、YBCO では LSCO のフェルミ面を 45 度回したような形になり LSCO で見られたフェルミ面のネスティングが起こらず、帯磁率は $(1/2, 1/2)$ のところで極大値をとるとされてきた。しかしながら、中性子散乱で観測されている YBCO の磁気散乱のシグナルは LSCO のものと比べるとブロードであり、非整合ピークの重なりにより一つに見えているとの解釈もあり、YBCO に関していえば磁気散乱の波数依存性について明確な結論が出ていなかった。また、磁気励起の研究は三軸型中性子分光器を用いた研究が主であり、50meV までの低エネルギー領域しか測定されていなかった。そこで、パルス中性子散乱により $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ の磁気励起の波数依存性を高エネルギー領域まで測定し、そこから得られる物理的な描像を明確にするというのが研究の目的である。

試料は超電導工学研究所の協力を得て、良質な大型単結晶を作製することが出来た。結晶の育成方法は同研究所で開発された SRL-CP 法(引き上げ法的一种)を用いている為、原理的には原材料である Y_2BaCuO_5 という絶縁相を取り込むことなく、結晶の連続成長が可能となっている。およそ一ヶ月に及ぶ長期間の酸素アニールにより、アンダードーピング組成(60K 相)の $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7}$ ($T_c=68\text{K}$, $\Delta T_c \sim 2\text{K}$) 最適ドーピング組成(90K 相)の $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ($T_c=93\text{K}$, $\Delta T_c \sim 1\text{K}$) を準備した。中性子散乱実験は英国のラザフォード・アップルトン研究所の中性子散乱施設に設置されている MARI 分光器、HET 分光器を利用して行った。どちらの分光器もチョッパー型の中性子非弾性散乱装置であり、多数の検出器により、広い波数-エネルギー空間のスペクトルを一度に測定できるものである。

60K 相の実験結果から見てみると、横軸に(HH0)方向の波数、縦軸にエネルギーをとった 2 次元スペクトル(図 1)から $(1/2 \pm \delta, 1/2)$, $(1/2, 1/2 \pm \delta)$ の非整合の波数位置に存在する磁気散乱が 20meV から 40meV 付近に明瞭に観測された。反強磁性秩序を示す波数からのずれとして定義されている δ の値としては、スペクトルの波数依存性から求めることができ、30meV 付近においておよそ 0.11($\pm 1\sigma$)であることが分かった。一方、90K 相の試料では低温において整合波数 $(1/2, 1/2)$ 、エネルギー 41meV に共鳴的な強い磁気散乱が観測されているが、 T_c の直上のデータを詳しく解析してみると、散乱強度としてはかなり弱

くなっているが 60K 相とよく似たエネルギー依存性を持つ非整合磁気散乱が観測された。90K 相の δ の値は 0.17(r.l.u)であり、60K 相よりも大きくなっている。これらの非整合磁気散乱の波数位置は LSCO と全く同じシンメトリーであり、上述のフェルミ面のネスティングにより整合(YBCO)と非整合(LSCO)の違いを説明する解釈は全く意味をなさないものとなった。それでは LSCO と YBCO に共通に依存する非整合磁気散乱をどのように理解すれば良いのであろうか？ ここで、注目を集めたのは LSCO の La を少量の Nd で置換し T_c を抑制した系において、スピンと電荷が線上に秩序化したストライプ構造に対応した超格子反射が観測されたことである。Nd で置換した系の非整合磁気散乱の構造が超伝導相の非整合磁気散乱の構造と全く同じであることから、電荷密度の揺らぎが非整合磁気散乱を引き起こす可能性を示唆し、超伝導発現機構に重要な手がかりを与えるものとして、最近特に注目を集めている。このストライプ構造を念頭に置き我々の実験結果を考えると、60K 相については図 2(a), 90K 相については図 2(b)のようなモデルが最も実験結果を定性的に説明できるようである。すなわち、磁気散乱の波数依存性から得られる δ や相関長、また磁気散乱の積分強度から求まる Cu スピンの大きさが、これらのモデルを裏付ける値となっていることが分かった。この様に我々の結果はストライプ構造を積極的に支持するものであるが、超伝導を示す銅酸化物では電荷揺らぎに対応する超格子反射が今のところ観測されておらず、この描像が正しいかどうかについては現時点で決着がついたわけではない。しかしながら、高温超伝導の発現機構を解明する上で「ストライプ構造」が重要なキーワードと成り得ることは間違いないであろう。

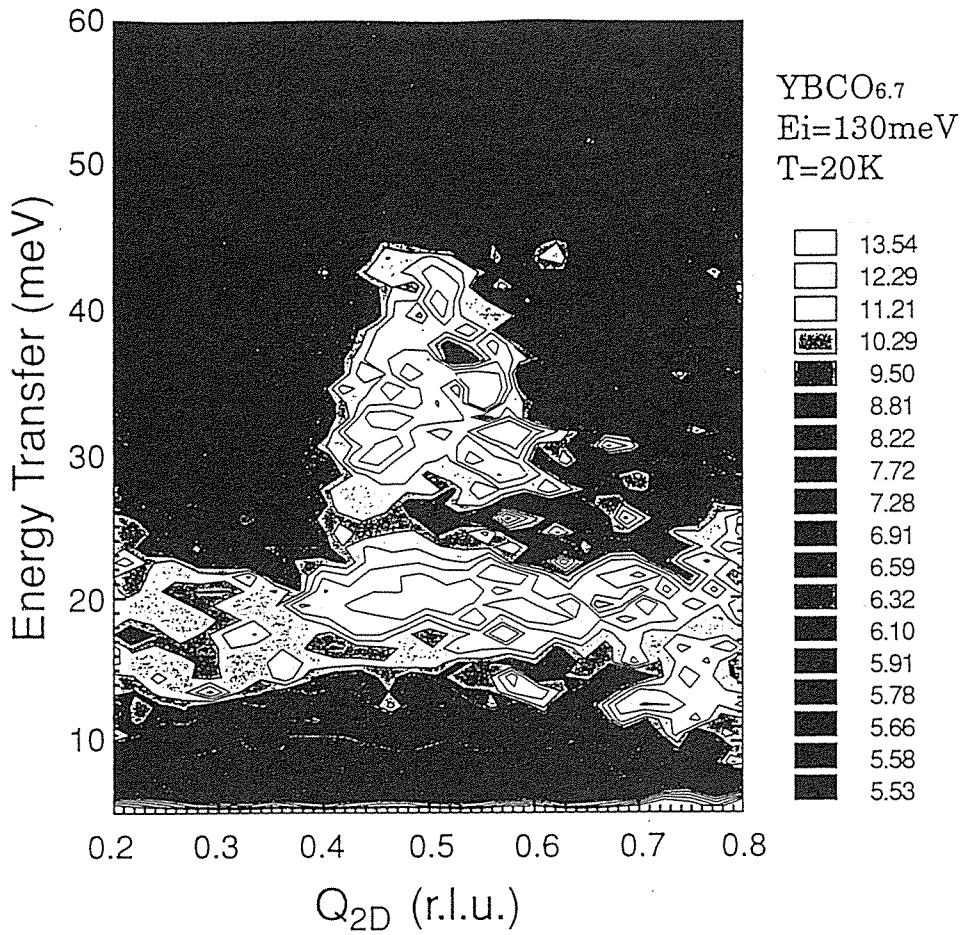


図1 YBa₂Cu₃O_{6.7} の二次元スペクトル

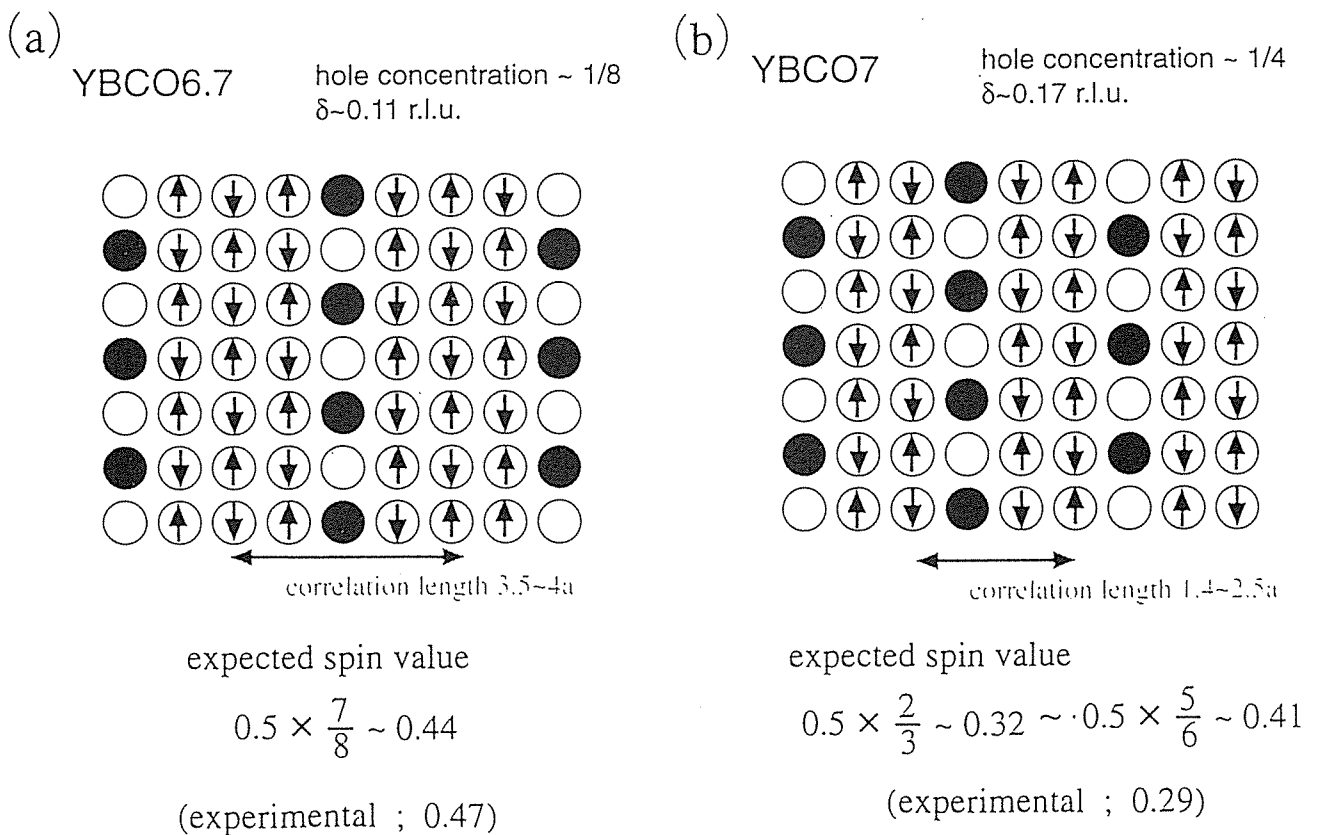


図2 非整合磁気散乱の解釈 (a) 60K 相、(b) 90K 相

論文の審査結果の要旨

西島辰雄君の博士論文内容は、銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ (YBCO) の磁気励起を、パルス中性子散乱を用いて解明した、物理的研究である。

銅酸化物での高温超伝導体の機構に関して、スピン・ダイナミクスが非常に重要な役割を持っている事が、理論的には屢々指摘されて来たが、スピン間交換相互作用が 1000K と大きく、また、運動量空間に広範囲に広がっている為、実際の実験的研究は、これまで非常に困難であった。この状況に鑑み、同君は、良質で多量の単結晶を超伝導工学研究所の協力により作製し、更に本研究機構が推進する日米科学技術協力事業により、世界最強のパルス中性子源であるラザフォード・アップルトン研究所 ISIS 中性子施設を利用する事により、これまで、何れの研究グループも成し得なかった研究成果を得る事に成功した。

同君が取り上げた試料は、超伝導転移温度が 67K と 93K の、所謂アンダー・ドープ組成と最適ドープ組成の二種類である。第一に上げられる大きな成果は、これらの物質系に於いても非整合磁気励起が初めて観測された事である。更に、その散乱強度分布の対称性は、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) 系で観測されたものと同じであった。この事は、これまで、理論的に議論されてきた、フェルミ面のネスティングによる解釈を否定するものであり、LSCO 系と YBCO 系のスピン・ダイナミクスが、ネスティング以外の、他の共通の性質に由来する事を示したことになる。

YBCO では超伝導に重要とされる 2 つの Cu-O_2 面が隣接しており、それによる磁気相互作用により、スピン・ダイナミクスには、アコースティック成分とオプチカル成分が混在する事になる。さらに、c-軸方向には、磁気散乱強度の変調が入ってくることになり、データの解析は非常に難しいものとなる。同君は、これらの困難を克服し、是迄にない良い精度のデータを得ることに成功し、高温超伝導銅酸化物に共通するスピン・ダイナミクスを示す事に成功した。これは、非常に高く評価出来るものである。

これまでも、LSCO 系の非整合スピン・ダイナミクスは、スピンのストライプ型ドメイン構造により説明が可能とされてきた。実際、今回の YBCO の結果は、LSCO 系の非整合性と電荷濃度に対してスケールする事が出来、超伝導温度と非整合性物質によらず密接に関連している事を示した。更に、散乱強度の絶対値の見積りにより、電荷濃度とスピンの大きさとの関係についても、これまでにない良い精度で見積りもる事が出来た。これらの結果は、ストライプ・ドメイン構造の考えと矛盾するものではなく、超伝導機構に付いての理解を大きく進めるものと考えられるが、今後、より一層の研究が必要である。

同君は、データ解析とその整理において、上述した困難さを克服したばかりでなく、当該分野の研究成果を広く調査する事により、他の研究グループでなされて来た成果と本研究成果を、独創的手法により区別・整理し、本実験結果のみが持つ斬新の特徴を抽出・解明した。この点は特記されるべきである。この独創的なデータ整理法が無い限り本研究の進展は無かったものと思われる。

以上の研究は、数物科学研究科加速器科学専攻の博士論文として、極めて高い水準の研究であると判断され、博士論文として十分な内容を有するものと判断される。