

ノート

■酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の 低ホール濃度領域におけるホール相分離

スピン-格子相関中性子散乱研究グループ ■松田 雅昌 ■

Electronic Phase Separation in Lightly-Doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Masaaki MATSUDA

Research Group for Neutron Scattering Study on Spin-Lattice Correlations

Extensive neutron elastic scattering studies on lightly-doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ have revealed that the static magnetic spin modulation changes from being diagonal to parallel at $x=0.055$, coincident with the insulator-to-superconductor transition. This establishes an intimate relation between the magnetism and the transport properties in the high-temperature copper oxide superconductors. Our recent neutron scattering experiments demonstrate the electronic phase separation of the doped holes in lightly-doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x<0.02$) which is theoretically predicted for a doped antiferromagnet. Some clusters with the hole concentration $c_h \sim 0.02$ exhibit the diagonal stripe correlations while the rest of the crystal with $c_h \sim 0$ shows three-dimensional antiferromagnetic order.

1. はじめに

10数年前に発見された銅酸化物高温超伝導体は超伝導発現のメカニズムを明らかにするために現在でも精力的な研究がなされている。全ての銅酸化物高温超伝導体に共通する基本構造は銅と酸素で形成される2次元ネットワークである。この2次元面が積層して結晶が形成されるが、一例として $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の結晶構造を図1に示す。この系では La^{3+} を Sr^{2+} で置き換えることにより銅-酸素2次元面上にホールドープを行うことができ、限られた範囲のドープ量 ($0.06 < x < 0.25$) で超伝導が発現する。銅酸化物高温超伝導体では銅がスピンを有しており、電気伝導と磁性が密接に関係しているのが特徴である。このために、磁気的相互作用による超伝導発現メカニズムも数多く提唱されている。そこで、超伝導発現機構を理解するためには電気伝導と磁性の関係を明らかにすることが不可欠である。

中性子散乱は電荷に対する情報（格子歪みを介して

観測）とスピンに対する情報の両方を得ることが出来るため、強力な測定手段である。さらにこれらの秩序

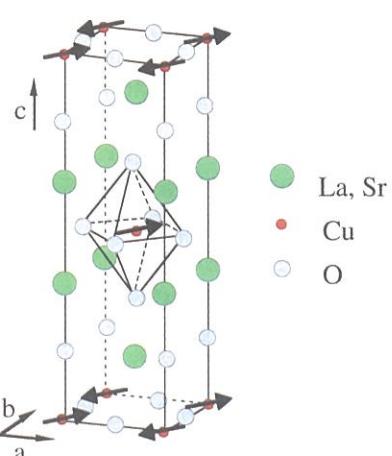


図1 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の結晶構造。矢印は低ホール領域で見られる反強磁性秩序相におけるスピン構造。

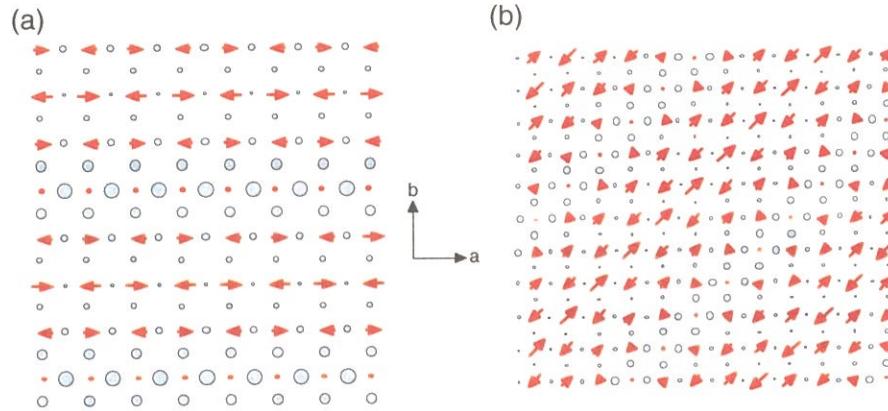


図2 水平ストライプ構造(a)と斜めストライプ構造(b)。矢印は銅位置のスピン、円は酸素位置のホールを示す。矢印の長さ、円の大きさはそれぞれスピンの大きさ、ホール濃度に対応する。赤い点はスピンが0であることを示す。CuO₂次元面でスピン密度波と電荷密度波の共存が見られる。

のダイナミクスも観測出来るという利点も合わせ持っている。我々は特に銅酸化物高温超伝導体 La_{2-x}Sr_xCuO₄ の磁気的性質を調べるためにJRR-3 Mに設置された中性子分光器を用いて中性子散乱実験を行っている。

2. 水平ストライプと斜めストライプ

高温超伝導体研究の初期の頃から報告されてきたように、超伝導相での磁気的性質の最も大きな特徴は、磁気相関が非整合であり、非整合磁気ピークが $(1/2 \pm \delta, 1/2)$, $(1/2, 1/2 \pm \delta)$ に観測されることである。この振る舞いを理解する一つの可能性として水平ストライプモデルが挙げられる(図2)。水平ストライプは $(La, Nd)_{2-x}Sr_xCuO_4$ 系で最初に提唱された低温秩序相に対するモデルであり、電荷密度波とスピン密度波が正方晶の軸方向に伝搬している¹。その後の研究により Nd を含まない $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ においても水平ストライプと同様の振る舞いが観測されている。この静的構造はアンダードープ相 ($0.06 < x < 0.12$) で広く観測されているが、ホール濃度が $1/8$ 付近で特に安定である。

一方、絶縁相では、我々の研究を含む最近の研究により $0.02 < x < 0.055$ の絶縁相における磁気秩序がクラスタースピングラス的な性質を示すことがわかり、さらにこの静的磁気相関が非整合的であることが明らかになった²⁻⁵。但し、弾性磁気ピークは $(1/2 + \delta, 1/2 - \delta)$, $(1/2 - \delta, 1/2 + \delta)$ に観測され、これは超伝導相で見られる位置と比べて45度回転している。水平ストライプモデルからの類推から、この構造はストライプが正方晶軸の対角線方向に進む斜めストライプであると考えられる(図2)。つまりこの結果は、電気伝導が絶縁相から超伝導相に転移する際に、磁性

は斜めストライプから水平ストライプに転移することを示している。

3. ホール相分離

次のステップとして我々はさらに低ホール濃度領域での磁気相関の振る舞いを調べている⁶。この研究は、後で述べるように反強磁性体にドープされた小数ホールがどのように振る舞うかという観点からの興味がある。中性子散乱実験の結果、 $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ の $0 < x < 0.02$ のホール濃度領域では室温から温度を下げていくと、先ず図1に示すような Cu²⁺ スピンの反強磁性磁気秩序が起こる。さらに温度を下げていくと 30K 付近で磁気秩序領域の一部が斜めストライプ相を持つクラスタースピングラスに置き換わることが明らかになった。図3には磁気反射強度の温度変化を示すが、温度を下げていくと反強磁性磁気秩序に起因した反射が出現し、さらに 30K 以下で減少する。これに対応して斜めストライプ構造に起因した磁気反射強度が増加する。非整合度 δ の値からスピングラス領域のホール濃度を推測することが出来るが、 $0 < x < 0.02$ 全ての領域で 2 % であった。また、散乱強度からスピングラス領域の大きさ(体積分率)を求めることが出来るが、 x が 0 から 0.02 に変化する際に体積分率が 0 から 1 にほぼ比例して変化することがわかった。

これらの結果を総合して考えると $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ ($0 < x < 0.02$) では 30K 以下でホール濃度が 0 % の領域と 2 % の領域に相分離し、ホール濃度の増加とともに 2 % の領域が増大すると考えられる。この現象は電気伝導⁷ と合わせて考えるとさらに興味深い。Cu²⁺ スピンの磁気秩序化が起こる温度領域では、伝導は金属伝導を示しており、ドープされたホールは均一に分布し

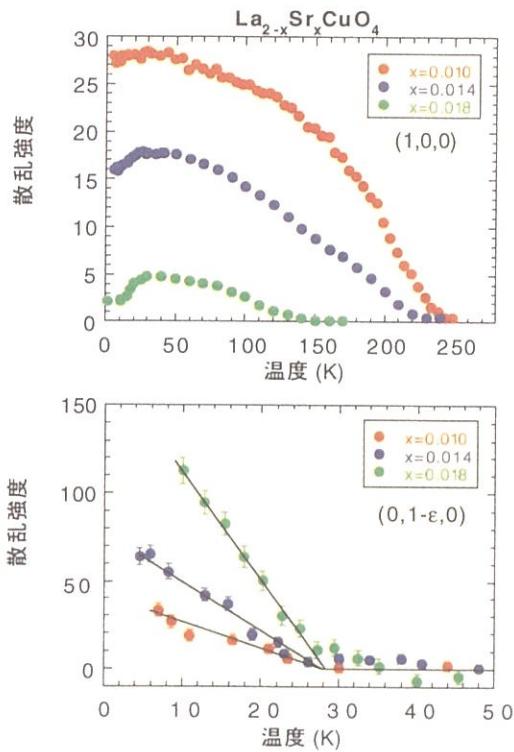


図3 磁気反射強度の温度変化。上段が反強磁性秩序に、下段が斜めストライプ秩序に由来するシグナル。

ていると考えられる。温度を下げていくと、伝導は絶縁的になりホールの局在が起こると考えられる。上に述べた中性子散乱実験結果からは、ホールが均一に局在せずに、0 %と2 %の領域に分離し、0 %の部分が特に強い絶縁性を示すと考えられる（図4）。

このホール相分離は理論的にも議論されており⁸⁾、反強磁性体にホールをドープする際に、長距離クローン斥力が十分弱い場合には低ホール濃度領域と高ホール濃度領域に相分離することが予想されている。ホール同士が近づくとクーロン斥力のために電気エネルギーは損をするが、反強磁性ボンドを断ち切る個数が減るために磁気エネルギーは得をする。結果的に両者の力のバランスから相分離の有無が決定するが、今回実験的に初めて $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ においてこの相分離が観測されたことになる。

参考文献

- 1) J. M. Tranquada et al.: Nature 375 (1995) 561.
- 2) S. Wakimoto et al.: Phys. Rev. B 60 (1999) R769.
- 3) S. Wakimoto et al.: Phys. Rev. B 61 (2000) 3699.
- 4) M. Matsuda et al.: Phys. Rev. B 61 (2000) 4326.
- 5) M. Matsuda et al.: Phys. Rev. B 62 (2000) 9148.
- 6) M. Matsuda, et al.: Phys. Rev. B 65 (2002) 印刷中.
- 7) Y. Ando et al.: Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 17001.
- 8) S. A. Kivelson and V. J. Emery: Strongly Correlated Electronic Materials, edited by K. S. Bedell et al. (Addison-Weley, NY, 1994), p.619.

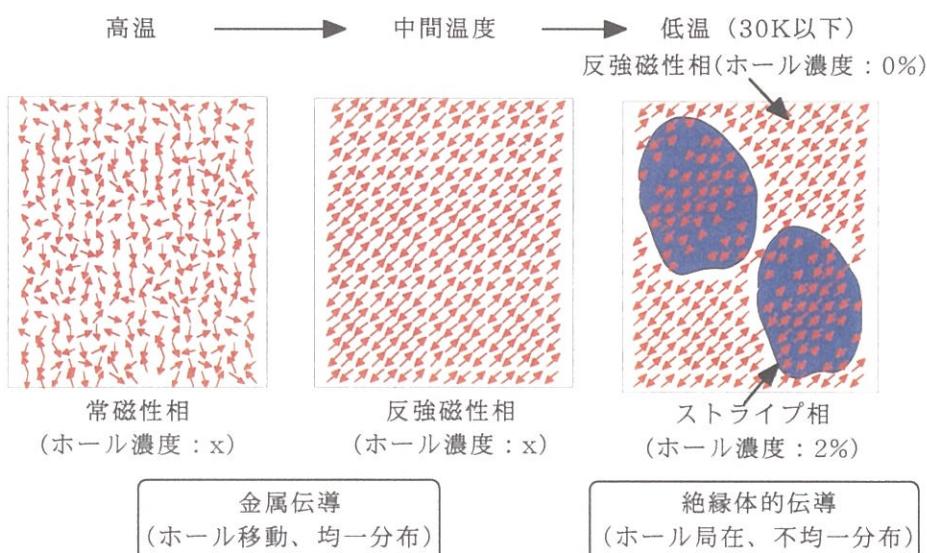


図4 磁性と電気伝導の温度変化を表す模式図。低温でのホール相分離により新たな磁気相（斜めストライプ相、濃い青色部分）が出現すると考えられる。