

# 23pBD-7

## 中性子散乱でみた銅酸化物における磁気相間の電子・ホール非対称性

東北大学 金属材料研究所

藤田 全基

Electron-Hole Asymmetry in Spin Correlations of Cuprate  
Superconductor Studied by Neutron Scattering

Institute for Materials Research, Tohoku University Masaki Fujita

銅酸化物における高温超伝導が発見されて以来，この系の超伝導と磁気相関の関係が精力的に研究されてきた．頂点酸素を有しない  $T'$  構造の電子ドープ型  $(\text{Nd, Pr, La})_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  では，全超伝導組成で格子整合な低エネルギー磁気励起が存在し，その局所帯磁率 ( $\chi''$ ) がピークを示す特性エネルギーが超伝導転移温度と比例関係にあることなどから，超伝導と磁気ゆらぎの関係性が示唆されている [1, 2]．一方，高エネルギー領域 ( $\sim 180\text{meV}$ ) までの磁気励起を見ると，最適超伝導組成では散乱強度が反強磁性ゾーン中心に集まった”鉛筆型”励起であることや， $\chi''$  がスピン波模型の理論値よりもはるかに小さいという特徴が伺える [2,3]．しかし，電子ドープ型超伝導体の大型結晶育成が困難なことから，広いエネルギー帯域の磁気励起に対する系統的研究は進んでおらず，その出発点となる母物質ですら磁気励起の全体像が把握されてこなかった．我々は，母物質の磁気基底状態の解明，およびバルク試料での超伝導発現に不可欠な元素置換と還元熱処理が磁気相関にもたらす影響を明らかにするため，中性子を始めとする量子ビームを利用し  $(\text{Nd, Pr, La})_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  に対する包括的研究を進めている．

図 1 に中性子非弾性散乱実験で得られた高エネルギー磁気励起の Ce 濃度依存性を示す．試料は全て as-grown 状態の非超伝導試料で，低温で反強磁性磁気秩序が現れる． $x=0$  の磁気励起は分散関係，強度分布ともにホールドープ系超伝導体の母物質である  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  に酷似しており，2 次元 Heisenberg 模型でほぼ再現

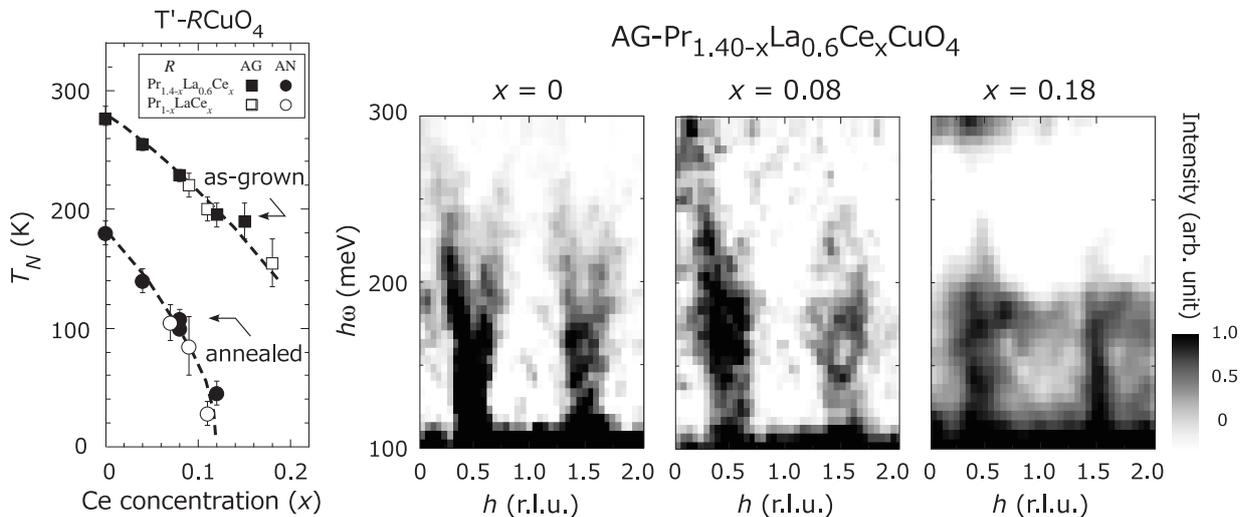


図 1 :  $T'$  構造  $\text{RCuO}_4$  ( $R$ :希土類イオン) における磁気転移温度の Ce 濃度依存性 (左) と as-grown  $\text{Pr}_{1.4-x}\text{La}_{0.6}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  の磁気励起スペクトル (右)。

できることがわかった．従って，母物質の磁性はスピン自由度の相関のみを考慮すれば良く，Mott 絶縁体であることと矛盾しない．Ce 置換した試料では，反強磁性ゾーン境界に向けた分散曲線の広がりや測定エネルギー領域では見られず，ゾーン中心にのみ強度が存在しているように見える． $x = 0.08$  と  $0.18$  の試料では，磁気励起はより高いエネルギー領域まで存在すると考えられる．磁気励起の急峻化は，eV 領域までの励起スペクトルが観測可能な共鳴非弾性 X 線散乱実験で確認している．ホールドーピング系では高エネルギー励起の分散形状はほとんど濃度依存性を示さないことが示されており，エネルギーバンド幅が顕著に変わることは電子ドーピング系の特徴と言える．単純なスピン波モデルで解析し，この変化を最近接スピン間の交換相互作用定数 ( $J$ ) の変化に押し込めると， $x = 0.15$  以上の高ドーピング試料の値は母物質の  $J$  の 2 倍弱となり優に 200 meV を越える．ドーピングによってスピン間結合が著しく増強されるとは考えにくく，電子の遍歴的特徴が現れている可能性が伺える．また，単位エネルギー当たりの散乱強度はドーピングにより減少するが，励起スペクトルが高エネルギー領域に広がることを考慮すると，エネルギー積分した全散乱強度のドーピング依存性はさほど大きくなく，超伝導試料で非弾性磁気散乱強度が弱いことは還元熱処理によってもたらされると考えられる．事実，熱処理による散乱強度の著しい減少は， $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_4$  の磁気励起の詳細な観測から確かめられている．また興味深いことに，熱処理による分散関係の変化はほとんど見られない．

エネルギーバンドの幅が変わらないにも関わらず散乱強度が激変することは，局在スピン描像では動的構造因子の変化だけでは理解できない．残された可能性として，スピン密度分布の変化に起因する磁気形状因子の変化が挙げられる．この場合，熱処理は銅と酸素の化学結合に影響をもたらす，共有結合性を増強することでスピン密度の空間分布が酸素サイトにも広がったと考えられる．

これら元素置換と還元熱処理による磁気励起の変化はホールドーピング系では見られない特徴であり，講演では両系の実験結果を比較することから磁気相関のドーピング非対称性を議論する．また，量子ビームの相補利用で明らかになったことから， $T'$  構造銅酸化物の特異性についても言及したい．ここで紹介した実験結果は，多くの共同研究で得られた成果に基づいています．研究に関わる全ての方に感謝いたします．

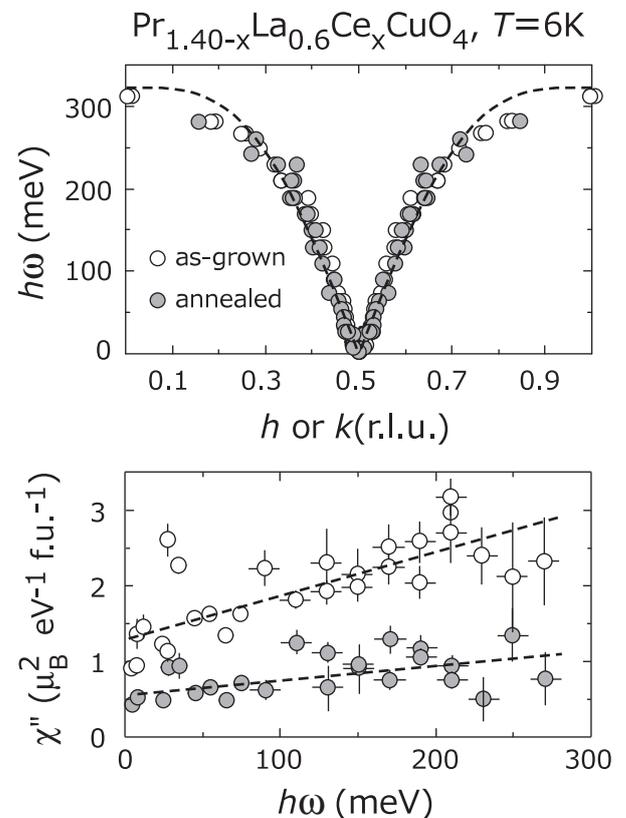


図 2 : as-grown および annealed  $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_4$  における磁気励起の分散関係 (上図) と局所磁化率 (下図)