

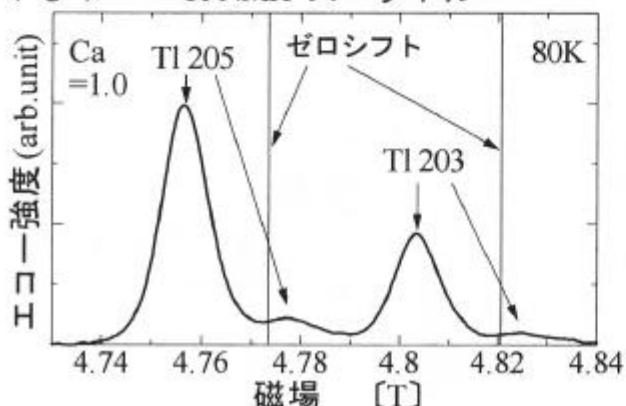
広範囲のドーピングにおける Tl 系酸化物超伝導体の NMR

低温物理研究室 A9774026 国井 裕司

【はじめに】 $TlBa_2Ca_xY_{1-x}Cu_2O_7$ (Tl1212) は、ホールドーピング酸化物高温超伝導体である。この系では Ca(2+)と Y(3+)を置換することでホール濃度を調節している。x=0 では絶縁体であり Cu-3d スピンは反強磁性を示す。ホールをドーピングしていくと x=0.6(最適ドーピング)で突然超伝導相が現れ、このとき T_c は最も高く約 110K となる。x=1 では、わずかに過剰ドーピングで約 86K まで落ちこむ。細かく組成を変えた試料での実験はあまり行われておらず、他の high- T_c 酸化物に見られる相図や現象(スピングャップ、ストライプ等)がユニバーサルに現れるか明らかでない。実際 Ba(2+)と Sr(2+)を置換した TlSr 系では異なった相図を持つことがわかっており、x=1 では完全に過剰ドーピングとなり超伝導相は消えてしまう。

【実験】 試料は c 軸配向した多結晶試料 $TlBa_2Ca_xY_{1-x}Cu_2O_7$ (x = 0, 0.1, ..., 1)を用いた。超伝導マグネットを用い、c 軸に垂直に約 4.8T の磁場をかけ、温度範囲 4.2K ~ 270K、共鳴周波数 117.27MHz で Tl 核の NMR を行った。Tl-site は Cu-site と超微細結合定数が大きいいため、Cu-3d スピンを調べるのに適したプローブである。Tl-site の NMR スペクトルを、スピンエコー法を用いてエコー信号強度をボックスカー積分器によって積分をし平均化しながら磁場掃引することにより得た。(Fig.1) 観測されたスペクトルピークの位置と、内部磁場ゼロとしたときの位置のずれより、ナイトシフト $K = -\Delta B/B_0$ を求めた。(Fig.2) このナイトシフトは、Tl の原子核位置においてのミクロな磁化率に対応している。

(Fig.1) Tl-NMR スペクトル



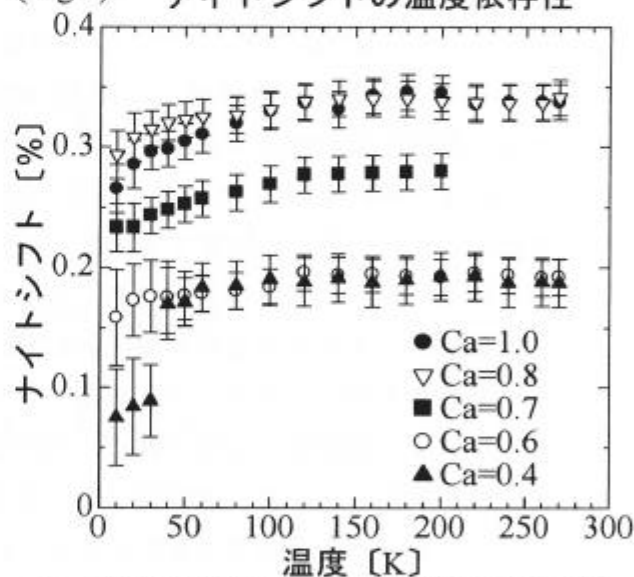
【結果及び考察】 Fig.1 の大きな2つのピークは、Tl の同位体 ^{205}Tl , ^{203}Tl がそれぞれ異なる大きさの核磁気モーメントを持つために現れる。それぞれのピ

ークから高磁場側に少しずれたところに強度約 1/10 のサテライトピークがある。これは Ca-site に入った Tl からの信号であり、Tl と Ca はイオン半径が近いため一部置換が起こっていることを現している。このようなサテライトは TlSr 系の試料では見ることはできない。TlSr 系では Sr と Ca のイオン半径が近く、すでに一部置換された状態になっているため、Tl と Ca の置換は起こらないと考えられている。

TlBa 系で Tl(3+)と Ca(2+)が置換されると、ブロック層は相対的に負に帯電する。その結果 Ca 量を増やしても、O(-2)量の急激な減少により補償され、結局ホール濃度はあまり増えない。

実際、150K 以上でのナイトシフト平均値は x=0.6 ~ 0.8 の間で増加しているが、x ≥ 0.8 で飽和しており、上記の説明と一致する結果を得た。

(Fig.2) ナイトシフトの温度依存性



一方、他の系のアンダードーピング領域で広く見られている、高温からのナイトシフトの緩やかな減少(スピングャップ的振舞い)は全く見ることはできなかった。すなわち x ≤ 0.6 のホール量が少ないと思われる領域においても、 T_c 以上でナイトシフトは温度によらず一定値をとる。これは他の銅酸化物の最適ドーピング域に現れる振舞いである。TlSr 系のアンダードーピングでは、高温からナイトシフトが減少することがわかっており、この異常な振舞いは TlBa 系に限定されたものである。以上より、この系ではアンダードーピング領域が存在しないか、または非常に狭いドーピング領域(x < 0.1)に閉じ込められているということがいえる。