

## 1-1 井口チーム Iguchi Team

### 異方的超伝導体の量子効果と新電磁波機能発現

#### **Quantum Effects of Anisotropic Superconductors and Evolution of Novel Electromagnetic Wave Functions**

The purpose of this project is to investigate the quantum effects of anisotropic high- $T_c$   $d$ -wave oxide superconductors and novel electromagnetic phenomenon based on the Josephson plasma, characteristic of these superconductors. The quantum effects are investigated by either the transport properties of superconducting junctions or an imaging technique, while Josephson plasma phenomenon is studied using films or crystals with the intrinsic-junction geometry. The development of sample-preparation technique including the ramp-edge junctions and the mesa structures is very important for this research. In this fiscal year, we have mainly concentrated on the imaging method using scanning SQUID microscopy, which yielded novel important results on both the superconducting state and the anomalous normal state, giving a new clue to anisotropic high- $T_c$  superconductivity mechanism. For the study of transport properties, we have succeeded in fabricating the Bi2212/YBCO hetero-junctions for the first time and obtained interesting Josephson and tunnel results. For Josephson plasma excitation, new important results were obtained for photo-irradiated Bi2212 and Tl2212 films using femtosecond laser pulses.

## 異方的高温超伝導体の量子効果と新電磁波機能発現

研究代表者 東京工業大学大学院理工学研究科 井口家成

Quantum Effects of Anisotropic Superconductors and Evolution of Novel Electromagnetic-Wave Functions

Ienari Iguchi, Research Director of CREST

Department of Physics, Tokyo Institute of Technology

酸化物高温超伝導体は転移温度  $T_c$  が高いばかりでなく、種々の面において通常のBCS超伝導体とは大きく異なっている。発見以来 15 年になるというものの、その超伝導メカニズムは未だ解明されていない。判明しているのは超伝導ペアリング対称性が等方的な s 波ではなく、異方的な d 波であるということだけである。BCS s 波超伝導体では、 $T_c$  以上では通常の常伝導状態になるのに対し、アンダードープ高温超伝導体では擬ギャップをもつ異常な状態に移る。このような特異な超伝導体の量子効果は、ジョセフソン効果、トンネル効果、接合界面における量子磁束のふるまいなどに顕著に現れる。また、ギャップ周波数がジョセフソンプラズマ周波数よりずっと大きいという事実から、ジョセフソンプラズマ現象の新しい電磁波源への応用の可能性が期待される。

本研究の目的は、特異な量子効果の実体を明らかにすると共に、量子効果発現に至る前駆物理現象までをも調べることであり、また高温超伝導体の新しいジョセフソンプラズマ電磁波発振源としての可能性を追究するものである。これまでに走査 SQUID 顕微鏡による観察、d 波接合の特性などいろいろな手法で d 波超伝導体の量子効果を明らかにしてきた。本年度もいろいろな研究成果が得られているが、特に走査 SQUID 顕微鏡が威力を発揮した研究成果が得られている。以下にその主なものを列記する。

### 高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の超伝導前駆状態の観測

走査 SQUID 顕微鏡を用いて、アンダードープ  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  薄膜 ( $T_c=18\text{K}$ ) 上の微小磁束の分布を  $T_c$  の上下で調べた。その結果、 $T_c$  以下ではトラップされた量子磁束が明瞭に観測されたのに対し、 $T_c$  以上では磁束分布は通常の常伝導状態のような一様な分布にはならず反磁性ドメインが観測された。反磁性ドメインは 80K 近傍ですでに  $5\mu\text{m}$  程度の芽となって観測され、温度の下降とともに成長し、これが全体的につながって  $T_c$  ではマイスナー状態に移行することがわかった。図 1 には温度とともに反磁性ドメインが変化していく様子が示されている(グレーの部分が反磁性ドメイン、白い部分がバックグラウンド磁気レベル)。観測された反磁性ドメインは超伝導の前駆状態と考えられる。

アンダードープ酸化物高温超伝導体では、超伝導転移温度  $T_c$  以上で通常の金属の常伝導状態とは異なる異常な状態が出現することが、光電子分光、中性子散乱、トンネル分光、核磁気帯磁率、比熱の測定などから報告されている。理論的にも何らかのギャップ状態(しばしば擬ギャップ、

スピニギャップなどと呼ばれている)、また異常金属相が現れることが指摘されている。擬ギャップ状態は、超伝導発現機構の鍵を握っていると言われているが、モット絶縁体を基礎にした強相関電子論に基づく $t-J$ モデルの平均場近似では、スピニシングレット状態と言われている。また量子臨界論では、超伝導転移温度以上での超伝導位相揺らぎの存在の可能性を指摘しているが、これがプリフォームドペアの状態として議論されている。特に後者では局所ペアリング、局所超伝導も可能であるとも考えられており、その意味で観測された反磁性ドメインはプリフォームドペアによる擬ギャップ領域とも考えられるが、バイポーランロン理論でも $T_c$ 以上で反磁性が生じることが予言されている。詳細な解釈は今後の理論研究の発展に期待される。

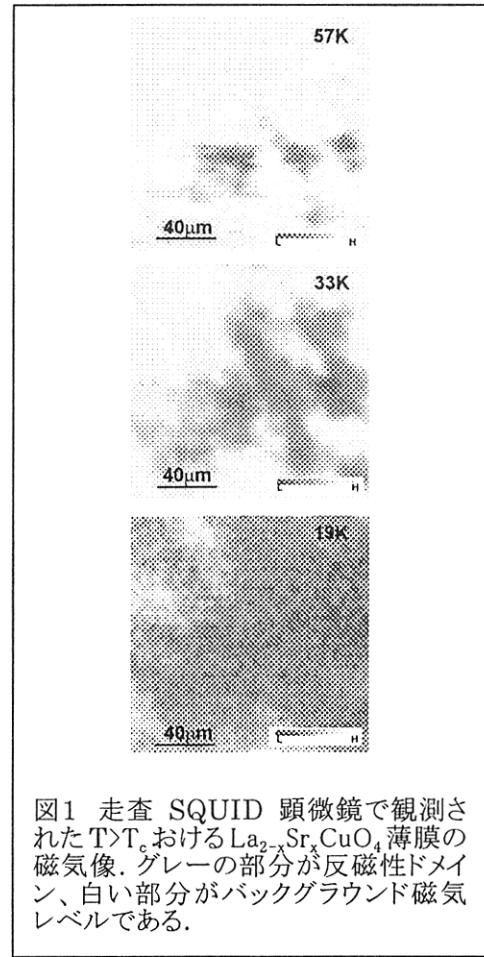


図1 走査 SQUID 顕微鏡で観測された $T > T_c$ における $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 薄膜の磁気像。グレーの部分が反磁性ドメイン、白い部分がバックグラウンド磁気レベルである。

### YBCO バイクリスタル接合界面の fractional vortex と d 波超伝導

酸化物高温超伝導体が d 波超伝導体であることは周知の事実になりつつあるが、異方的なd波超伝導体の場合、ジョセフソン界面での磁束のふるまいもs波超伝導体とは大きく異なったものになる。ジョセフソン電流の結晶軸/接合界面のなす角度(接合角)に対する依存性については、これまで種々の接合角をもつランプエッジ接合を作製し報告してきた。本実験では新たに異なる基板結晶角度をもつ  $\text{SrTiO}_3$  バイクリスタル基板上に YBCO 薄膜を堆積して、そのジョセフソン界面の磁束状態を走査 SQUID 顕微鏡を用いて調べた。その結果、非対称型  $0^\circ / 45^\circ$ 、 $0^\circ / 30^\circ$  接合では d 波に特有な1磁束量子  $\Phi_0$  以下の微小磁束(fractional vortex)が観測された。一方、対称的な  $18.4^\circ / 18.4^\circ$ 、 $22.5^\circ / 22.5^\circ$  接合では、界面にそのような vortex は観測されなかった。図2にその結果を示す。また fractional vortex は温度の上昇と共に変化していく様子が観察された。これらの

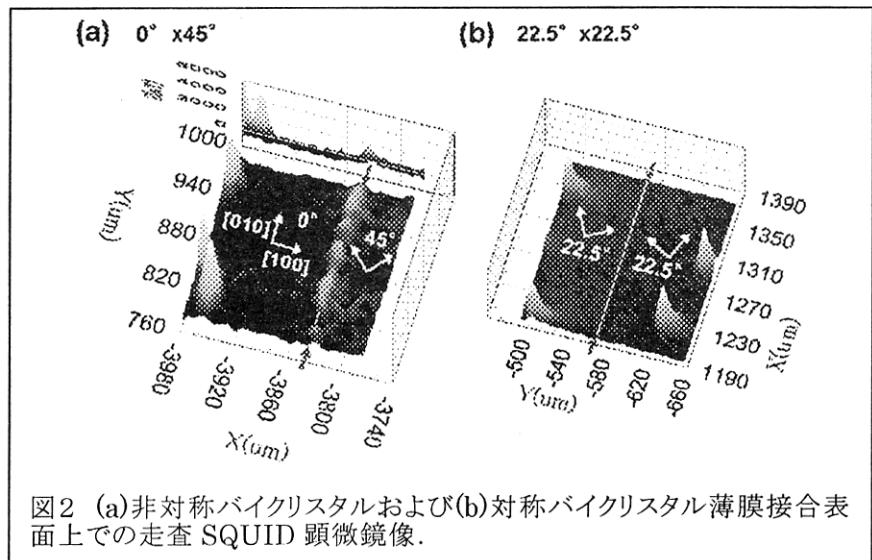


図2 (a)非対称バイクリスタルおよび(b)対称バイクリスタル薄膜接合表面上での走査 SQUID 顕微鏡像。

実験事実は YBCO 超伝導体が  $T_c$  以下のすべての温度で d 波超伝導体であることを証拠を新たに与えたものである。

### 異種高温超伝導接合 Bi2212/YBCO の作製とトンネル特性、ジョセフソン特性

これまで報告されている高温超伝導接合はすべて、YBCO/YBCO 接合をはじめとして、同種超伝導体を電極とするもののみである。異なる高温超伝導体を電極とした接合が開発されていない理由は、2 種類の薄膜で堆積条件が大きく異なるからである。すなわち同じ基板上で 2 つの異なる酸化物薄膜を超伝導にするのが困難であるからである。我々はこの困難を克服し、Bi2212 薄膜、

YBCO 薄膜両方が超伝導になるレーザ堆積の最適条件を、温度および酸素圧をパラメータとして求めることができた。そして異種高温超伝導体 Bi2212, YBCO を電極とするランプエッジ接合の作製に初めて成功した。トンネルは 2 つの物質の ab 面間で行われる。トンネルバリアとして自然バリア、また数 nm の PBCO を堆積する人工バリアをもつ接合を作製した。前者ではジョセフントンネリングによるシャピロステップが観測され、後者では 2 つの物質のギャップ構造に起因するギャップ和、差の構造が反映された準粒子トンネリングが観測された。図 3 はその一例である。このことは異種の高温超伝導接合のトンネルでも、d 波による特性のなまり、表面による超伝導性の劣化という問題があるものの、s 波超伝導体で取り扱われる半導体モデルがほぼ適用できることを示したものである。

### Bi2212/YBCO メサ構造の作製

c 軸異種高温超伝導トンネル接合、薄膜ジョセフソンイントリシック接合作製の目的で、c 軸方向に積み重なった Bi2212, YBCO 二層膜の作製およびメサ構造への加工を行った。この場合も 2 つの異なる薄膜を共に超伝導にするには、温度、酸素圧等で最適条件を定めることが必要であった。メサ構造の大きさは  $15 \times 15 \mu m^2$  である。c 軸方向へ電流を供給することにより、超伝導電流が流れることができた。マイクロ波照射によりシャピロステップが観測され、この電流がジョセフソン電流によるものであることが判明した。

### d 波超伝導体のトンネル現象の理論的研究

#### 1) d 波超伝導体と常伝導体との接合系

接合の透過率がいかに d 波超伝導体の界面に形成される時間反転対称性を破る状態に影響を与

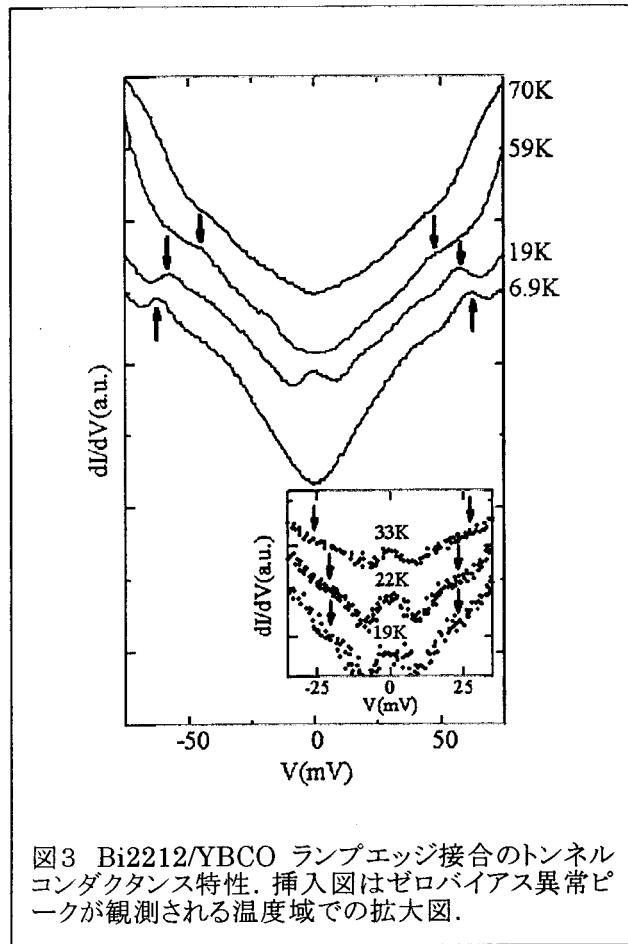


図 3 Bi2212/YBCO ランプエッジ接合のトンネルコンダクタンス特性。挿入図はゼロバイアス異常ピークが観測される温度域での拡大図。

えるのかを明らかにした。また常伝導体の不純物散乱の影響をとりいれるために、これまでの理論を久保公式と格子モデルで表わす新しい方法を考えた。常伝導体の不純物散乱の効果は従来のBCS超伝導体接合とはかなり異なった形で現れることが明確になった。

## 2) 酸化物超伝導体中の不純物まわりの電子状態

昨年度に引き続いてd波超伝導体の中の不純物まわりでの電子状態が詳細に調べられた。特に局在モーメントが形成されるか否かは不純物まわりでホールの密度が増加するのかどうかと密接なかかわりがあることが明らかになった。またホール密度が増加する場合が強相関領域にあることが1次元系の厳密解を用いて確認された。

## 3) 強磁性体と異方的超伝導体との接合

強磁性体・d波(p波)接合系でのトンネル効果が詳細に調べられた。特に電圧0での微分コンダクタンスの温度依存性から強磁性体の偏曲率が測定可能である事が理論的に確かめられた。

## 強磁性／高温超伝導接合の輸送現象とゼロバイアス異常ピーク

1) 強相関電子系での輸送現象を明らかにするために、YBCO/LSMO接合を作製し、サイズ効果、磁場応答などの接合特性を極低温で精密に測定した。まずサイズ依存性からは、接合サイズが10ミクロン以下において通常のマクロな接合に期待される特性(BTKタイプ)から大きくはずれ、いわゆる位相コヒーレントな特性を示すことがわかった。またその磁場応答はアハラノフ・ボーム型の干渉効果を示し、磁場に対して周期的な応答をする。これらの意味することは、強相関電子系であるLSMO内にも位相コヒーレンシーが存在し、輸送特性に大きな影響を与えていた。この結果は強相関ゲージデバイスの実現可能性を明示している。

2) 極低温STMによりYBCO配向膜の特性測定を行った。YBCOのas-grown表面は劣化が問題となるため、オゾンビームによる表面処理を行い、XPS等の光学的分光手段とin-situ連携させることにより、より劣化の少ない状態での観察を行った。その結果、1nm程度の空間分解能を有するSTSが可能となり、STMデータと比較することにより、ゼロバイアスアノマリーがc軸ステップ周辺でのみ観察されていることがわかった。これは理論予測にほぼ一致する結果であり、従来c軸接合にて観察されていたゼロバイアスアノマリーの起源を説明する。

3) 電子ドープ系超伝導体であるNCCOはドープ量0.12-0.18で発現し、全領域が最適あるいはオーバードープ領域に属すると考えられていた。我々はレーザーアブレーション法により還元条件を最適させたNCCO膜を各種ドープ量に関して作成し、従来知られていたよりずっと少ないドープ量0.095まで超伝導相が存在することを明らかにした。ドープ量0.12においてはTcが抑制され、1/8問題の存在が示唆される。

## フェムト秒レーザ励起によるテラヘルツ電磁波放射

これまでYBCO薄膜で観測されていたテラヘルツ電磁波放射を、新たにBi2212, Tl2212薄膜でも初めて観測した。放射特性はYBCO薄膜からのものとは大きく異なっていることを見出した。その違いは周波数成分に見られ、BiおよびTlからの放射で、それぞれ、約100GHz、および700GHzのカットオフ周波数が存在することを見出した。これは、プラズマ励起による遮断周波数と考えられ

る。放射効率は YBCO より優れていると判断される。磁場下(100 ガウス)での Tl2212 からのテラヘルツ電磁波放射において、中心周波数約 640GHz の共鳴集団励起による電磁波放射が確認された。その温度依存性から、垂直磁場を印加しているにもかかわらず、ジョセフソンプラズマが光励起されているものと考えられる。初めてジョセフソンプラズマ放射現象をダイナミックに励起・観測することに成功した。

一方、テラヘルツ分光(TDS)においては、Bi2212 薄膜放射のTDSを行ったところ、 $T_c$  以上および 210K 以下で、擬ギャップが開いていることを示唆する興味ある結果を得た。また  $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  薄膜において、CDW に起因すると思われる集団励起モードを観測した。これは、Mn酸化物では始めての発見である。さらに YBCO の高速電荷ダイナミクス評価方法として、ポンプ & プローブテラヘルツ電磁波励起を採用し、YBCO 薄膜におけるフォトン入射による雪崩崩壊現象を観測した。

### 準粒子注入ジョセフソンプラズマ発振の研究

準粒子注入高温超伝導 YBCO 薄膜からのジョセフソンプラズマ発振現象の高温ジョセフソン素子を用いたオンチップ検出について、熱効果の影響を避けるために新たにロックアンプ検出方式、また発振器、検出器基板分離方式を採用した。この結果、熱の影響は大幅に下げられ、より真のスペクトルに近いデータを検出することができた。検出電磁波スペクトルは 1THz をピークとする分布になっていることが判明した。またログペリエアンテナ形状を用いることにより、大きい検出信号が得られるようになった。