

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 14 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24651170

研究課題名(和文) テラヘルツ渦糸フォトニック結晶の研究

研究課題名(英文) Study on vortex photonic crystal in terahertz frequency region

研究代表者

掛谷 一弘 (Takeya, Itsuhiro)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：80302389

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、層状高温超伝導体に侵入する渦糸格子を用いて光を制御し、渦糸フォトニック結晶の研究分野を開拓するために、超伝導体薄膜を育成し、テラヘルツ時間領域分光(THz-TDS)を行った。超伝導転移温度が比較的低い超伝導体薄膜については、THz-TDSにより超伝導ギャップと複素伝導率が明らかになった。また、希少元素をほとんど含まない新しい高温超伝導体の高品質単結晶薄膜を育成することに成功した。以上の成果により、磁場中の第二種超伝導体に存在する磁束格子を用いて、テラヘルツ(10¹² Hz)領域の周波数を持つ電磁波を操作するための基盤技術が整備されたことになる。

研究成果の概要(英文)：This project devotes for a pioneering work to develop a research field of vortex photonic crystal, in which terahertz (10¹² Hz) electromagnetic wave can be manipulated by vortex lattices in type II superconductors. In order to do that, we grew superconducting thin film and measure terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS). THz-TDS results in superconductors with T_c below 10 K have revealed temperature dependencies of superconducting gap and complex conductivity. Furthermore, we have been successful in growing high-quality single-crystalline thin-films of a superconductor with small quantity of rare-earth elements for the first time. These achievements brought fundamental knowledge on low energy excitation in superconductors and technical background for manipulating terahertz electromagnetic waves

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：マイクロ・ナノデバイス

キーワード：テラヘルツ波 時間領域測定 超伝導ギャップ 超伝導薄膜 渦糸状態

1. 研究開始当初の背景

超伝導体における量子化渦糸は巨視的量子状態を示す波動関数における位相の特異点であり、超伝導発現機構に関連した研究だけでなく、相互作用を制御した場合の粒子多体系の相転移や制御できるポテンシャル中の粒子の運動といった広範な物理的知見を得るための物理系として研究が行われている。その理解は複雑系物質の制御・製造や生体系におけるエネルギー輸送の理解などへの応用が期待されている。

申請者はこれまで量子化渦糸の相転移やダイナミクスが超伝導ジョセフソン接合の位相励起モードであるジョセフソンプラズマに与える影響について研究を進めてきた。

これまでの成果のうち、本研究の着想となる重要な知見は以下の2点である：

- A) 外部マイクロ波によって励起されたジョセフソンプラズマ励起の波数が層間ジョセフソン磁束の配列によって決定されることを示し、ジョセフソン磁束がプラズマ励起の散乱体になることを明らかにした
- B) 2次元ジョセフソン磁束状態では、c軸方向に高い波数をもつプラズマモードが励起されることを示した

一方で申請者は、高温超伝導体固有ジョセフソン接合からのテラヘルツ波自励発振を2006-08年度科研費基盤(A)研究において筑波大学の門脇らと確認した(L. Ozyuzer et al, Science 2007, H. Minami et al., APL 2009)。この現象は高温超伝導体のデバイス応用の可能性としてだけでなく、巨大同期現象として物理的にもきわめて注目されている。このTHz発振はゼロ磁場中で観測され、高温超伝導体単結晶上に形成されたメサ型素子における空洞共振モードと説明されており、外場による広範な周波数制御には工夫が必要である。そこで、上記A,B)の成果からジョセフソン磁束格子による周波数制御が可能であることを着想した

2. 研究の目的

本研究は超伝導とフォトニクスの学際領域に広がる研究分野を先導するために、層状高温超伝導体に侵入する渦糸格子を用いて光を制御し、渦糸フォトニック結晶の研究分野を開拓することが目標にある。本研究では、光学応答の測定法として、テラヘルツ時間領域分光 (THz-TDS) 法を選択し、高温超伝導体薄膜の透過スペクトルが測定できるようになることを目的とする。その結果、高温超伝導体のキャリアダイナミクスや低エネルギー励起について、新たな知見が得られ、磁場中測定を行う渦糸フォトニック結晶への基盤概念が整備される。

3. 研究の方法

本研究では、テラヘルツ時間領域分光 (THz-TDS) システムを構築して、磁場中の超伝導体の振る舞いを調べる必要がある。

THz-TDSの性質上、薄膜の透過スペクトルを測定することが技術的な難度は低く、THz-TDS技術の蓄積のない我々にとっては、適当であるので、超伝導体薄膜を育成し、その透過スペクトルを測定した。

超伝導体としては、 T_c が 10K 以下でテラヘルツ領域に超伝導ギャップがある NbN および $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}$ (BPBO)、我々の研究室で単相・エピタキシャル化に挑戦している $\text{PbSr}_2\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_2\text{O}_{7+\delta}$ (Pb1212) を選択した。薄膜はスパッタ法で LaAlO_3 、 MgO もしくは、 SrTiO_3 基板上にエピタキシャル成長させた。

4. 研究成果

4.1 NbN の THz-TDS

電気通信大学の小久保准教授に提供いただいた s 波超伝導体 NbN 薄膜の透過スペクトルを測定した。 $T_c = 9.2$ K 以下で透過強度が温度減少と共に弱くなっていることが確認できた。複素導電率を求めると、虚数部が低周波数において発散し、その大きさは、低温に行くほど増大するという傾向が見えており、Mattis-Bardeen 理論とコンシステントである。フーリエ変換された周波数スペクトルから有限周波数における超伝導ギャップの温度依存性を見積もったところ、先行研究とコンシステントな結果が得られたので、実験手法、解析方法の妥当性が確認できた。

4.2 BPBO のエピタキシャル成膜と THz-TDS 測定

BPBO はペロブスカイト構造を持つ低キャリア数超伝導体で、銅酸化物超伝導体と共通の性質を示す。また最近、Pb を含まない BaBiO はトポロジカル絶縁体になり得るという理論的な指摘があり、超伝導体とトポロジカル絶縁体のヘテロ接合を作るための物質として興味深い。

我々は、 LaAlO_3 基板上に $\text{BPBO}(x=0.23)$ エピタキシャル膜を育成し、 $T_c = 7$ K の薄膜を得た。透過スペクトル強度は、 T_c 以下で温度と共に減少し、透過率から見積もった超伝導ギャップの温度依存性は Ambegaokar-Baratoff 理論に従う。0 K における超伝導ギャップの大きさ $\Delta(0)$ は $2\Delta(0) = 1.92$ meV と求められ、 $2\Delta(0)/k_B T_c = 3.0$ となり、弱結合超伝導体であることがわかった。複素伝導率の実部の低周波極限の値は直流伝導率とほぼ一致した。虚数部はやはり低周波数で発散する。この物質については、FTIR 測定結果からクラマースクローニッチ変換を用いて複素伝導率が求められている。本研究の結果と、この結果を比較すると、実数部の低周波数領域の振る舞いが異なり、本研究の結果では Drude モデルに従わず、補正された Drude モデルとして提案されている振る舞いに近いと考えられる。また、Mattis-Bardeen モデルとの比較から、本研究で使用した BPBO 膜は dirty limit にあると考えられる。

4.3 Pb1212 エピタキシャル膜の育成

本研究で、スパッタリングして堆積させたア

モルファス膜を加熱・徐冷して結晶育成を行う Two-step 法によって Pb1212 のエピタキシャル膜を世界で初めて育成することに成功した。

X線構造解析の結果から、育成された膜は不純物相を全く含まず、基板である SrTiO₃ の結晶面と揃ったエピタキシャル膜であることがわかった。a 軸格子定数は、SrTiO₃ より若干小さく、a 軸方向に基板からの圧縮ひずみがかかっていることが予想される。

超伝導のエピタキシャル膜を得るためには、空气中 815 度から液体窒素中に急冷することが必要である。このプロセスにより、結晶性が向上し、c 軸格子定数が減少していることが X線構造解析からわかった。

置換効果については、Y³⁺を Ca²⁺に置換した量 x を増加させることにより、x に比例した量のキャリアが導入されて、x = 0.32 で超伝導が出現し、x = 0.37 で最大の T_c = 66 K を得ることがわかった。このことは、Ca 置換により、キャリアだけでなく、不規則性も導入されていると言える。また、Pb サイトを Bi に置換する事も試みたところ、T_c は単調に減少し、不純物相が析出することになった。このことは、Bi 置換によりキャリアの導入は起こらず、不規則性だけが導入されたことがわかる。置換効果をまとめた結果を図 1 に示す。ab 面内抵抗による上部臨界磁場の測定から、コヒーレンス長と異方性パラメータを明らかにした。ab 面内のコヒーレンス長は 2.5 nm で、YBCO の 1.6 nm より若干長い。上部臨界

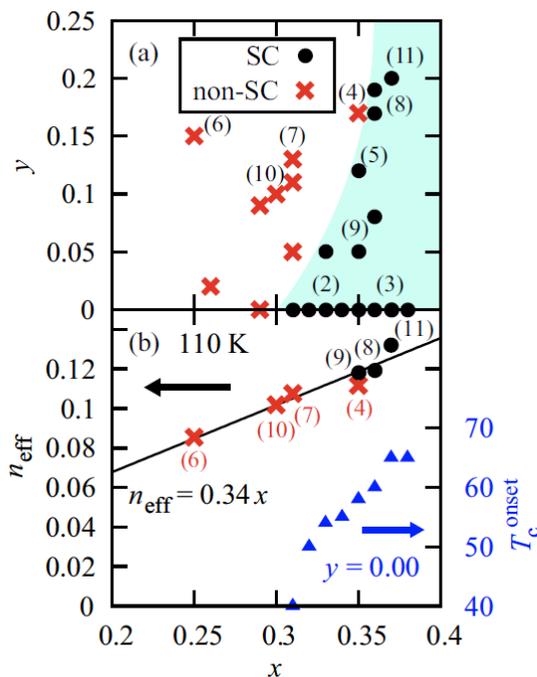


図 1 : Pb_{1-x}Bi_xSr₂Y_{1-x}Ca_xCu₂O_{7+δ} 置換効果のまとめ。(a)x と y を変えたときの超伝導出現の有無。ハッチ部が超伝導の現れる領域。(b) ホール効果測定から得られた実効キャリア濃度 (左スケール) および T_c (右スケール) の x 依存性。

磁場の温度微分は通常状態の平均自由行程を与えるので、YBCO と比較したところ、ほぼ同じ温度微分係数が得られたので、Pb1212 は YBCO よりわずかにクリーンな超伝導体であると言える。異方性パラメータは 9.2 となり、Bi2212 よりかなり小さく、Tl1212 や Hg1212 に近い値である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

(雑誌論文)(計 5 件)

- [1] S. Komori, R. Inaba, K. Kaneko, S. Fujita, I. Kakeya, and M. Suzuki. Epitaxial growth and superconducting anisotropy of PbSr₂Ca_xY_{1-x}Cu₂O_{7+δ} thin films. *Phys. Rev. B* **89**, 174509, May 2014 [DOI | http]
- [2] Sachio Komori, Ryotaro Inaba, Itsuhiro Kakeya and Minoru Suzuki, Growth and superconducting properties of Pb_{1-y}Bi_ySr₂Y_{1-x}Ca_xCu₂O_{7+δ} epitaxial films. *J. Phys.: Conf. Ser.* **507** 012025. [DOI | http]
- [3] H. Kambara, I. Kakeya, and M. Suzuki. Increase of superfluid density with growth of quasiparticle density of states probed by intrinsic tunneling spectroscopy in Bi_{1.9}Pb_{0.1}Sr₂CaCu₂O_{8+δ}. *Physical Review B*, 87(21):214521, jun 2013. [DOI | http]
- [4] K. Kaneko, I. Kakeya, S. Komori, and S. Fujita. Band gap and function engineering for novel functional alloy semiconductors: Bloomed as magnetic properties at room temperature with α-(Ga,Fe)₂O₃. *Journal of Applied Physics*, 113(23):233901, 2013. [DOI | http]
- [5] H. Kambara, I. Kakeya, and M. Suzuki. Intrinsic Tunneling Spectroscopy for Pb-Substituted Bi2212 in the Underdoped Region. *Journal of Physics: Conference Series*, 400(2):022043, dec 2012. [DOI | http]

(学会発表)(計 8 件)

- [1] Itsuhiro Kakeya and Minoru Suzuki, "Collective quantum functions of superconducting intrinsic Josephson junctions", 6th GCOE International Symposium on Photonics and Electronics Science and Engineering, March 11, 2013, Katsura campus, Kyoto University
- [2] 小森祥央, 稲葉遼太郎, 金子健太郎, 藤田静雄, 掛谷一弘, 鈴木実, 「Pb_{1-y}Bi_ySr₂Y_{1-x}Ca_xCu₂O_{7+δ} 単結晶エピタキシャル薄膜の成長と評価」, 第 60 回応用物理学会春期学術講演会, 2013 年 3 月 27 日, 神奈川工科大学
- [3] 野村義樹, 神原仁志, 掛谷一弘, 鈴木実, 「Bi_{2-x}Pb_xSr_{2-y}La_yCuO_{6+δ} の固有トンネル分光による超伝導ギャップの観測」, 第 60

回応用物理学会春期学術講演会、2013年3月27日、神奈川工科大学

- [4] S. Komori, R. Inaba, I. Kakeya, and M. Suzuki, "Growth and superconducting properties of $Pb_{1-y}Bi_ySr_2Y_{1-x}Ca_xCu_2O_{7+\delta}$ epitaxial films", 11th Euroconference on Applied Superconductivity (EUCAS2013), Sep. 17, 2013, Genova, Italy
- [5] S. Komori, R. Inaba, *I. Kakeya, M. Suzuki, "Superconductivity of $Pb_{1-y}Bi_ySr_2Y_{1-x}Ca_xCu_2O_{7+\delta}$ epitaxial films grown by two-step method", International Workshop on Novel Superconductors and Super Materials 2013, Nov. 21, 2013, Tokyo
- [6] Hitoshi Kambara, Itsuhiko Kakeya, Minoru Suzuki, "Effect of Pb-substitution on Interlayer Tunneling Properties for Bi2212", International workshop on Pathbreaking Phase Sciences in Superconductivity 2012, 2012/01/14, Osaka, Japan (5 min. short presentation)
- [7] 小森祥央, 稲葉遼太郎, 掛谷一弘, 鈴木実, 「 $Pb_{1-y}Bi_ySr_2Y_{1-x}Ca_xCu_2O_{7+\delta}$ エピタキシャル薄膜の成長と評価」, 第73回応用物理学会学術講演会、愛媛大学、松山大学、2012年9月12日
- [8] 神原仁志, 掛谷一弘, 鈴木実, 「 $Bi_{2-x}Pb_xSr_{2-y}La_yCuO_{6+\delta}$ における固有トンネル分光」, 日本物理学会2012年秋季大会、横浜国立大学、2012年9月21日

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

なし

〔その他〕

ホームページ等

<http://sk.kuee.kyoto-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

掛谷一弘 (KAKEYA, Itsuhiko)

京都大学工学研究科准教授

研究者番号：80302389

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

鈴木実 (SUZUKI, Minoru)

京都大学工学研究科教授

研究者番号：10314238