

平成22年5月14日現在

研究種目：若手研究（スタートアップ）

研究期間：2008～2009

課題番号：20840028

研究課題名（和文）高温超伝導体の反射型テラヘルツ時間領域分光

研究課題名（英文）Terahertz time-domain reflection study on high-Tc cuprates

研究代表者

田中 清尚（TANAKA KIYOHISA）

大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：60511003

研究成果の概要（和文）：本研究では、これまで適切な発生・検出技術が存在せず未踏の領域と呼ばれていたテラヘルツ波に着目し、分光測定に用いることで、新しい反射型テラヘルツ時間領域分光システムを構築・改良し、高温超伝導体の低エネルギーの電子状態を解明することを目的とした。現有するテラヘルツ時間領域分光装置の改良により、測定精度を大幅に向上させることに成功し、高温超伝導体試料 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の $x=0.10, 0.12, 0.13, 0.15$ の c 軸偏光反射率の測定から、スピン・電荷のストライプ秩序が報告されている $x=0.13$ の試料でのみ、これまで報告されていないダブルジョセフソンプラズマ的な振る舞いが観測されることを発見した。

研究成果の概要（英文）：In this research, we focused on terahertz wave, which has not been used for a long time because of the lack of the proper way to generate and detect, and we used it for the spectroscopy measurement. We have developed a terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) system and measured reflectivity spectra of high-Tc superconductor $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x=0.10, 0.12, 0.13, 0.15$). We found double-Josephson-plasma like behavior in the reflectivity and the optical conductivity only for $x=0.13$ which has spin and charge stripe order.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,320,000	396,000	1,716,000
2009年度	1,160,000	348,000	1,508,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,480,000	744,000	3,224,000

研究分野：物性物理学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：強相関電子系、酸化物高温超伝導、テラヘルツ、光学測定、低温物性

1. 研究開始当初の背景

強相関物質におけるスピンや電荷の特異な動きにもとづいた新奇な物性は、高温超伝導体や巨大磁気抵抗など次世代の機能材料

のホープとして近年話題になっており、それらの新奇量子現象の研究は、新しい物理の構築に大きく貢献している。これらの異常な物性が何故起こっているのかを解明するには、

電子状態の研究が最も重要と考えられる。光学測定はこれまでも高温超伝導体の電子状態の解明に大きな役割を果たしてきた。

(1)銅酸化物高温超伝導体

銅酸化物高温超伝導は転移温度が 100K を越えることで注目を浴びる一方、同時にいくつもの異常な振る舞いが報告されている。最も有名な振る舞いの一つは、不足ドープ領域において超伝導転移温度以上で観測されるエネルギーギャップ、いわゆる擬ギャップの存在である。擬ギャップについては超伝導ギャップとの関係が長年議論されていた。申請者は不足ドープ領域の試料の角度分解光電子分光スペクトルの測定を行い、異なる運動量空間で異なるドープ量依存、温度依存性を示す二つのエネルギーギャップを観測し、擬ギャップが超伝導ギャップとは異なるギャップであることを報告してきた。[K. Tanaka et al., Science, 314 1910 (2006), W.S. Lee et al., Nature 450, 81 (2007).]

一方高温超伝導体のもうひとつの大きな特徴として、La 系銅酸化物高温超伝導体でホール濃度 $\sim 1/8$ 近傍で超伝導が著しく抑制される現象、いわゆる $1/8$ 異常と呼ばれる現象が広く知られている。中性子散乱の結果などから、ホールとスピンのストライプ状に配列した動的な秩序が存在し、動的なストライプ秩序がピン止めされ、静的ストライプ秩序が形成されたために超伝導が抑制されるというストライプモデルが提唱されてきた。しかし、このようなストライプ秩序が実際に電子のエネルギー状態に与える影響については、あまり明らかにされていない。最近、ストライプ秩序がエネルギーギャップを大きくするという報告[T. Valla et al., Science, 314 1914 (2006)]と、異なる運動量空間では逆にギャップが小さくなるという報告が角度分解光電子分光から報告されており、大きなトピックとなっている。ストライプは直接超伝導を抑制しているように見えるため、ストライプの存在が電子のエネルギー状態をどのように変化させているかを知ることは高温超伝導メカニズムの理解につながるものと考えられる。またストライプを擬ギャップと同一とみなす考えもあり、ストライプと擬ギャップの関係は、今後明らかにすべき大きな課題として残されたままとなっている。

(2)低エネルギー電荷応答測定の現状

20 年にわたる高温超伝導体の研究にも関わらず、光学測定による低エネルギーの電荷応答についてはデータの信頼性があまり高くなく、その結果不明な部分がいまだに多い。その理由として、光源である水銀灯が低エネルギーで十分な強度を持たないのに加えて、検出素子の検出効率が低いため、遠赤外波長領域以下の低エネルギー領域のデータが欠

落していたこと。さらには従来の遠赤外領域の反射率スペクトルの測定がフーリエ型分光器を用いて行われていたため、振幅情報しか得ることができず、光学定数を導出するために位相情報を得るには、測定範囲外であるゼロエネルギーまでの低エネルギーのデータの外挿を行った上で Kramers-Kronig 変換 (K-K 変換) を用いる必要があり、得られた位相が外挿処理に大きく依存していたことなどが挙げられる。一方で高温超伝導体では通常の Hagen-Rubens の外挿を許さない奇妙な振る舞いが多いことが知られており、本当の意味での低エネルギーのデータは得られていないといつてよい。

申請者らは遠赤外領域よりも低エネルギーであり電磁波との中間領域にあたるテラヘルツ波 (1THz=10¹²Hz) に着目している。この領域は適切な発生・検出技術が存在せず様々な応用が可能なほどの十分な強度を得る手段が限られていたため、研究面や応用面で長い間手付かずとなっており、未踏の領域と呼ばれていた領域である。近年フェムト秒パルスを用いたコヒーレントなモノサイクル電磁波パルスの発生・検出技術が急速に発展し、新しいテラヘルツ分光・イメージング技術が誕生してきた。テラヘルツ波技術は基礎科学分野のみならず新機能センシング・情報通信・エレクトロニクス分野において、新規産業の開拓に大きな役割を果たすことが期待され、次世代に不可欠な科学技術と位置づけられ注目を集め始めている。

テラヘルツ時間領域分光装置は、まだ世界でも数少ないが、装置の構築が比較的簡単であるために、現在存在する分光装置はそのほとんどが透過型となっている。しかし透過型で測定するためには、非常に薄い試料が必要であり、さらに超伝導試料は超伝導状態において反射率がほぼ 100% となるために透過配置では測定が困難である。そのため申請者の所属するグループでは、超伝導試料のみならずあらゆる試料の測定を可能とするために、近年、反射型のテラヘルツ時間領域分光装置の構築を目指して研究を行ってきた。その結果、La_{2-x}Sr_xCuO₄ の c 軸 (CuO₂ 面に対して垂直方向) 偏光スペクトル測定を行うことができるまでに至った。しかし今後、より詳しい物性を明らかにするためには、実験精度の向上が必要不可欠となっている。

2. 研究の目的

以上のような研究背景を踏まえ、反射型のテラヘルツ光反射型時間領域分光のシステムを改良することで実験精度を向上させ、銅酸化物超伝導体の電荷応答の詳細を測定することを本研究の目的とした。具体的には、(1)反射型のテラヘルツ光反射型時間領域分光装置の実験精度の向上

- ①装置の冷却システムの変更と冷却中の振動を低減する機構の構築
- ②実験中のレーザー強度の監視による振幅の補正の実現
- ③測長計による試料位置の監視による位相因子の補正

(2)高温超伝導体の低エネルギー電荷応答

- ①銅酸化物超伝導体の電荷応答を、特にこれまであまり報告のなかった遠赤外領域以下の低エネルギー領域も含めて詳細に測定し、長年光学測定で議論を呼んでいる外挿問題に決着をつける。
- ②ストライプの存在が報告されている $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 、 $(\text{La}, \text{Eu}, \text{Nd}, \text{Sr})_2\text{CuO}_4$ の反射率を測定する。c 軸方向、面内方向の偏光を用いて異なる運動量空間の電子状態を区別して観測し、ストライプ秩序の強さの違いにより運動量空間で電子状態がどのように変化するかを明らかにする。

3. 研究の方法

現在申請者らは、テラヘルツ光反射型時間領域分光システムの構築中であるが、試験的な測定を行った結果、いくつかの問題点が明らかとなってきた。具体的には試料を冷却するために用いている GM サイクル型冷凍機からの振動や、試料温度変化時の冷却金属部の収縮により、試料位置が測定中に変動してしまうことがまず挙げられる。結果として反射光に光路差が生まれ、位相差が生じるため肝心の位相が正確に決定できない。また冷凍機の試料保持部分の特異な構造（試料保持部、輻射シールド部、真空チェンバー部）により、試料直前の集光ミラーを十分に試料に近づけることができず、試料上でのテラヘルツ波のスポット径が 4mm と非常に大きくなってしまっている。このため測定する試料は 5mm 以上の大きさであることが求められ、測定可能な試料が大きく限定されてしまっている。

これらの問題の解決のために、振動の少ない He flow 型の冷凍機を用いる。それに伴い試料周りを変更し、集光ミラー等を試料に近づけることができるようにする。また冷凍機を光学定盤に押し付ける機構を取り付けることで、冷却中の振動の低減を目指す。

以上のように冷却システムの変更と、それに伴う試料周りの変更により、多くの問題が解決されると考えられるが、どれほど試料の位置が移動したかを精密に計測することは測定精度の向上を図る上で重要である。非接触型のレーザー測長計を用いることで試料の傾き、移動量を直接測定する。試料位置を計測することは、振動低減の効果を直接確認できるばかりではなく、スペクトルの解析時に位相差を補正することも可能となり、測定精度を大きく向上させることができると期待される。

4. 研究成果

装置の改良により、これまで問題となっていた測定中の試料の振動を $20\mu\text{m}$ から $1\mu\text{m}$ 程度までに低減させることに成功した。また試料の位置を 10nm のオーダーで監視する測長計を導入することで、反射型の装置特有の問題である位相問題を解決し、測定精度を大幅に向上させることに成功した。さらに試料室直前の放物面鏡の変更によりテラヘルツ光のスポットサイズを従来の 4mm から 2mm 以下に絞ることができるようになり、小さな試料の測定が可能となった。

測定精度の向上した反射型テラヘルツ時間領域分光装置を用い、高温超伝導体試料 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の $x=0.10, 0.12, 0.13, 0.15$ の試料の測定を行った。c 軸偏光の反射率を測定したところ、スピン・電荷のストライプ秩序が報告されている $x=0.13$ の試料でのみ、これまで報告されていないダブルジョセフソンプラズマ的な振る舞いがあることを発見した(図 1)。

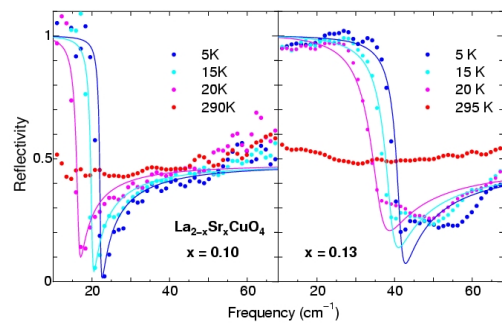


図 1 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の c 軸偏光反射率の温度依存性

この反射率から光学伝導度を求めたところ、 $x=0.13$ の試料では超伝導転移温度以下でピーク構造が確認された(図 2)。

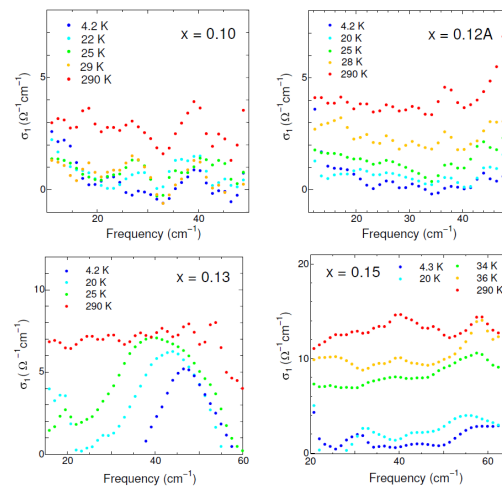


図 2 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の c 軸偏光光学伝導度の組成依存性

この特徴的なピーク構造の起源を探るため、ストライプ秩序がより安定化している(La, Eu, Sr)₂CuO₄のc軸偏光の反射率を測定したが、同種のピークは観測されなかった。従って、問題のピーク構造は、ストライプ秩序によるものではなく、結晶中に何らかの理由でT' 214構造が混じってしまったためではないかと推測される。この詳細を明らかにするためにはストライプ秩序を有する他の試料の測定など、今後さらなる研究の必要がある。

La_{2-x}Sr_xCuO₄の結果については国際会議で発表し、投稿論文の形にまとめた。

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1件)

T. Matsuoka, T. Fujimoto, K. Tanaka, S. Miyasaka, S. Tajima, K. Fujii, M. Suzuki, M. Tonouchi, "Terahertz time-domain reflection spectroscopy for high-T_c superconducting cuprates", Physica C、査読有、vol. 469、2009、982-984.

[学会発表] (計3件)

① K.Tanaka, T.Matsuoka, Y. Sakai, T.Fujimoto, S.Miyasaka, S.Tajima, K.Fujii, M.Suzuki, and M.Tonouchi, "Terahertz time-domain reflection spectroscopy on high-T_c superconducting cuprates", 2nd International Workshop on Terahertz Technology, 2009年12月2日、大阪

②松岡哲平、藤本貴士、田中清尚、宮坂茂樹、田島節子、藤井研一、鈴木正人、斗内政吉、"反射型テラヘルツ時間領域分光でみるLa_{2-x}Sr_xCuO₄の光学スペクトルの組成依存性"日本物理学会、2009年3月30日、立教大学

③松岡哲平、藤本貴士、田中清尚、宮坂茂樹、田島節子、藤井研一、鈴木正人、斗内政吉、"反射型時間領域分光でみるLa_{2-x}Sr_xCuO₄のミリ波領域光学スペクトル"日本物理学会、2008年9月20日、岩手大学

[その他]

ホームページ等

http://buna.phys.sci.osaka-u.ac.jp/news_j.html

6. 研究組織

(1)研究代表者

田中 清尚 (TANAKA KIYOHISA)
大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：60511003
(2)研究分担者 ()

研究者番号：

(3)連携研究者 ()

研究者番号：