

Title	テラヘルツから見たアンダードープBSC00の擬ギャップ状態
Author(s)	村上, 博成; 斗内, 政吉
Citation	大阪大学低温センターだより. 2002, 119, p. 10-15
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/9857
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

テラヘルツから見たアンダードープ BSCCO の擬ギャップ状態

超伝導フォトニクス研究センター 村上 博成、斗内 政吉 (内線7982)

E-mail: murakami@rcsuper.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体における超伝導は、母体である反強磁性絶縁体にキャリアをドープすることによって出現するが、ドープしたキャリアの量によって、様々な物性を示すことが知られている。特に、アンダードープ領域ではフェルミ面付近の状態密度に実質的な減少をもたらす「擬ギャップ」や電子が1次元的に自己組織化する「電荷ストライプ」など様々なエキゾチックな現象が観測されている。これらアンダードープ領域で起こる現象は、高温超伝導の発現機構とも絡んで非常に興味もたれており、多方面において精力的な研究が進められている^[1-6]。

この擬ギャップに関して言うと、超伝導が生じる臨界温度 T_c よりも上部の常伝導状態において生じ、そのギャップが開きはじめる温度 T^* は、キャリアドープに伴い次第に超伝導転移温度 T_c に近づいてくる。その異方性については、角度分解光電子分光の実験結果から、超伝導ギャップと同じ dx^2-y^2 の対称性をもつ事が示唆されているものの、これら2つのギャップが超伝導状態で共存しているのかどうか、また T_c と T^* の間でミクロな物理現象として何が生じているのか等、超伝導との関わりが特に注目されている現象である^[7-12]。

このような、超伝導ギャップや擬ギャップといった低エネルギー励起ギャップが存在する複雑な系を研究する上で、フェムト秒光パルスを用いたポンプ・プローブ透過率(反射率)測定法は非常に有効であり、光励起されたキャリアの緩和過程を解析することにより、これらギャップについての詳細な情報が得られる可能性がある。即ち、この銅酸化物高温超伝導体において、もし超伝導ギャップと擬ギャップが共存するのであれば、個々の励起ギャップでの緩和過程を、光パルス幅に相当する時間分解能で分解して解析できる可能性がある。

一方、この擬ギャップと関連して、アンダードープ試料の T_c 以上で起こると考えられる超伝導オーダーパラメータの揺らぎ現象を高周波キャリアの振る舞いから調べてみることは非常に興味深い。特にテラヘルツ領域での振る舞いについては過去に殆ど研究されておらず、これにより、超伝導と擬ギャップの関わりについての新しい知見が得られる可能性がある。このテラヘルツ領域でのキャリアの振る舞いについて調べる方法として時間領域テラヘルツ分光法は非常に有効であり、これまでに酸化物高温超伝導体の高周波デバイスへの応用を目指した基礎研究として、 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) 薄膜試料において多くの研究が行われている。

本研究では、アンダードープ領域の $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$ (BSCCO) 薄膜試料に対し、このポンプ・プローブ

ブ透過率測定および時間領域テラヘルツ分光測定を行った結果、擬ギャップと超伝導の関わりについて、これまでにない新しい知見が得られたので報告する。

2. 実験

今回用いた試料は、レーザーアブレーション法により作成した c -軸配向薄膜試料（厚さ 50 ± 4 nm）であり、MgO 単結晶基板上に蒸着されたものである（東工大内山氏より提供）^[13]。その X 線回折パターンから見積った c -軸の長さは 3.088 nm であり、最適ドープ試料のもの（ 3.08 nm）に比べて若干長く、この試料がやや酸素欠損したアンダードープ領域の試料であることを示している。

また、抵抗の温度依存性は、流す電流密度 $J_{c1} = 33 \text{ A/cm}^2$ および $J_{c2} = 4 \times 10^3 \text{ A/cm}^2$ に対して、それぞれ $T_{c1} = 76 \text{ K}$ および $T_{c2} = 58 \text{ K}$ であった。この臨界電流密度 J_c は T_{c1} 以下で急激に、また T_{c2} 以下でゆるやかに上昇し、 10 K で $J_{cmax} = 4.3 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ を示した。この J_{cmax} の値は、これまで最適ドープの薄膜試料で報告されている値と比べて 1 桁程度小さいものであり、この結果もアンダードープ試料であることに由来しているものと思われる^[14]。

ポンプ・プローブ測定においては、ポンプ光照射により光励起されたキャリアは、電子-フォノン散乱、電子-電子散乱等を経て各ギャップの励起状態に緩和されてくる。これらの散乱に要する時間は、 0.1 ピコ秒程度であることが報告されており、フェムト秒光パルスを用いることにより、引き続き各励起状態からピコ秒程度の時間スケールで生じる緩和現象を詳細に観察する事が可能となる。なお、この励起されるキャリアは、単にポンプ光による直接励起のみでなく、上記散乱を介した 2 次的な励起によるものも含まれるが、これについても同程度の初期時間スケール内で各励起ギャップ上に緩和されてくるものと考えられる。この緩和過程を調べるため、今回の測定では、試料表面上の同一スポット（径約 $40 \mu\text{m}$ 程度）にポンプ光およびプローブ光の照射を行うが、プローブ光を照射する時間をポンプ光に対して遅延させることにより、その透過率の時間変化を観測した。即ち、ポンプ光照射により引き起こされる電子状態の変化を、プローブ光の透過率の変化として捉える事により、これら各ギャップでの緩和現象について調べることが可能となる。実験では、ポンプ光照射直前の透過光強度を \mathcal{T}_{ref} とし、時間 t における透過光強度 $\mathcal{T}(t)$ に対し $\Delta \mathcal{T}(t) = \mathcal{T}(t) - \mathcal{T}_{ref}$ を測定し、透過率の変化として $\Delta \mathcal{T}(t) / \mathcal{T}_{ref}$ を求めた。なお、ここで用いたポンプおよびプローブ光のパワーはそれぞれ約 0.36 nJ / パルスおよび 0.1 nJ / パルスであり、光源としては、モードロックチタン・サファイアレーザーから出射される波長 790 nm 、パルス幅約 100 フェムト秒、繰り返し周波数 82 MHz のものを使用した。

一方、テラヘルツ分光では、半導体光スイッチ材料にフェムト秒光パルスを照射することにより放射されるテラヘルツ電磁波パルスを薄膜試料に透過させる事によって、位相情報も含んだ時間領域透過スペクトルの測定が可能である。本研究では、この時間領域波形に対して、これまでよく用いられているクラマース・クローニツヒ変換による近似解を求めるのではなく、直接透過率を表す理論式とのフィッティングにより複素屈折率を算出し、これを元に複素コンダクタンス等の各パラメータを求めた。これら測定法の詳細については他を参照されたい^[7,15]。

3. 結果および考察

図1に観測された代表的な時間分解透過率データを示す。ポンプ光照射に伴う励起により、 $t=0$ ピコ秒付近で急激な透過率の減少が観測されている。この $t=0$ ピコ秒における透過率の最大変化量 $|\Delta T(0)/T_{ref}|$ の温度変化を図2(a)に示す。この値は、温度の降下に伴い $T^* \sim 210\text{K}$ 辺りで増加をはじめ、 $T_S \sim 100\text{K}$ 辺りで一旦飽和傾向を示した後、 T_{C1} での超伝導の出現に伴って急激な増加を示している。さらに詳しく調べるため、観測された透過率データに対して次の減衰関数を用いたフィッティングを行った。

$$\Delta T(t)/T_{ref} = A(T) \exp(-t/\tau_s) + B(T) \exp(-t/\tau_p) \quad (A(T)=0 \text{ for } T_C < T) \quad (1)$$

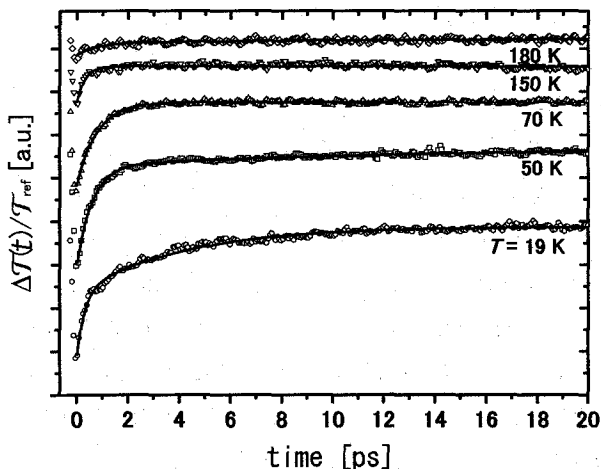


図1 代表的な温度における透過率の緩和曲線。図中実線は(1)式によって与えられる減衰関数によるフィッティングを表す。

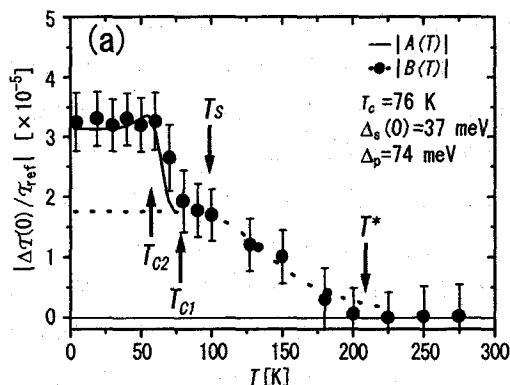


図2 (a) $t \sim 0$ ピコ秒における透過率変化の温度依存性。図中実線及び点線は参考文献6において与えられる $A(T)$ および $B(T)$ をそれぞれ示しており、図中に示すギャップの値を用いて計算したものである。

存性を図2(b)に示す。超伝導ギャップでの緩和過程に相当する τ_s は T_C 以下においてのみ観測されており、また擬ギャップでの緩和時間を反映していると思われる τ_p の値は T^* 以下において観測さ

ここで、 τ_s および τ_p はそれぞれ超伝導ギャップおよび擬ギャップでの緩和時間を仮定している。図1中にこの減衰関数を用いたフィッティング曲線も同時に示している。ここに示すように、今回観測した各温度での透過率の緩和曲線は、この減衰関数を用いて非常に良く再現される事が判明した。このフィッティングの結果得られた各緩和時間の温度依

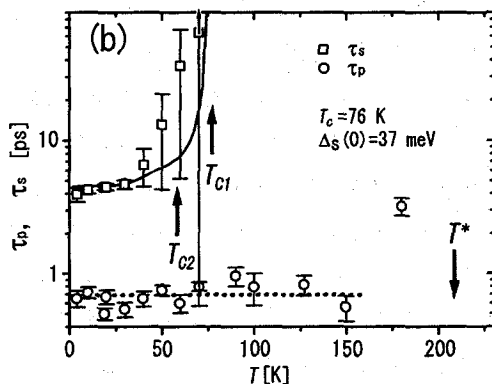


図2 (b) 減衰関数を用いたフィッティングにより求めた各緩和時間の温度依存性。

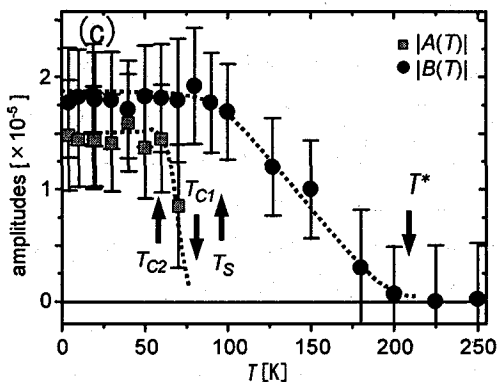


図2 (c) フィッティングにより求めた振幅 $|A(T)|$ 及び $|B(T)|$

て実際に得られた $A(T)$ 及び $B(T)$ をプロットしている擬ギャップと関係する $B(T)$ の値は $T^* \sim 210\text{K}$ 辺りから増加をはじめ、 $T_s \sim 100\text{K}$ あたりで飽和傾向を示し、その後超伝導ギャップの出現に伴って $A(T)$ の増加が生じていることがわかる。一方、図2(b)より擬ギャップでの緩和時間 τ_p は、この T^* 辺りで発散傾向を示し、約 150K 以下の温度においてはほぼ一定の値 $0.7 \pm 0.3\text{ps}$ を示している。このように 150K 以下の温度において緩和時間が一定の値であるにもかかわらず $B(T)$ の増加が見られていることから、擬ギャップは、 T^* 辺りで開きはじめ、少なくとも 150K 以下の温度においては、その大きさは一定の値をとっているものと予想される。また、 $B(T)$ の増加および飽和は、この擬ギャップを有する領域が T^* 以下の温度で増加していき、 T_s 辺りで飽和していることを表しているものと考えられる。興味深いのは、この擬ギャップ領域が飽和した後に超伝導が出現していることである。

同様な擬ギャップの出現を反映した結果は、同じ試料を用いて行ったテラヘルツ分光測定においても今回はじめて観測された。図3にテラヘルツ分光法により得られた複素コンダクタンスの虚部 σ_2 の代表的な周波数および温度依存性を示す。一般に、 σ_2 の値は超伝導ペア密度と密接に関係しており、超伝導転移に伴い急激な増加を示すが、ここでは約 1 テラヘルツ (THz) 以上 ($f=1.0$ および 1.5THz) の σ_2 においては、まさに擬ギャップが開き始める T^* 以下の温度で増加を示している。また、その後超伝導転移が起こる T_c において急激な増加を示している。これに対し、低周波領域の $f=0.33\text{THz}$ の σ_2 では、 T^* 辺りでの変化は認められず、 T_s 以下で僅かな増加が観測されているのみである。この低周波領域の σ_2 で見られた 100K 以下での値の増加は、これまでも Corson らにより同じくアンダードープの BSCCO 薄膜試料で観測されており^[16]、彼らはこの現象を超伝導揺らぎに伴う位相の相関時間を用いて説明している。ここで注目すべきことは、このような超伝導揺ら

れており、また T_{c1} 以下の超伝導状態でも観測されている。このことから、超伝導転移温度において擬ギャップと超伝導ギャップが連続的に接続しているのでなく、超伝導状態ではこれら2つのギャップが共存していることがわかる。ここで、係数 $A(T)$ と $B(T)$ はともに温度依存を示すファクターで、それぞれの励起ギャップの大きさ、およびそのギャップで光励起されるキャリアの数に依存する。図2(a)に Demsar らにより与えられている $A(T)$ および $B(T)$ の表現式を用いてフィッティングを行った結果も示している^[6]。図2(c)にフィッティングの式(1)を用い

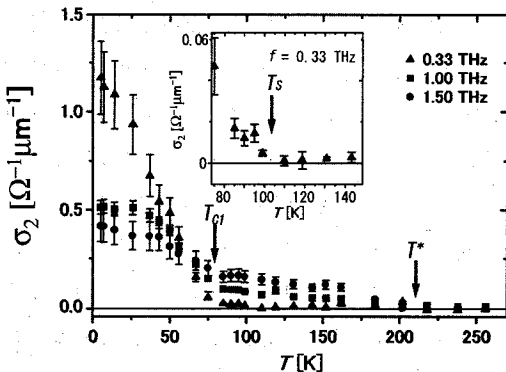


図3 時間領域テラヘルツ分光により観察された複素伝導率の虚部 σ_2 の温度及び周波数依存性。挿入図は、 0.33THz での振る舞いを詳細に示したものである。

ぎが丁度先ほどの擬ギャップ領域が飽和をはじめる T_S 辺りで起こっていることである。さらに、このように 1 THz 以上の高い周波数においてのみ、 T^* 以下で σ_2 の増加が観測されていることは、擬ギャップがこの高周波側のキャリアのみと密接な関係をもつことを示している。これについては、時間依存の Ginzburg-Landau 方程式が示すように、擬ギャップ領域のコヒーレントな位相の揺らぎが 1 ピコ秒 (1 テラヘルツに相当) 以下の速い時間スケールで生じていることを示しているものと捉えることもできる^[17]。

ここで、ポンプ・プローブ測定とテラヘルツ分光測定で得られた結果についてさらに詳しく調べるため、次の式により超伝導ペア密度 N_s を簡単に導出し、その温度および周波数依存性を求めた。

$$N_s \propto \lambda^{-2} = \mu_0 \omega \sigma_2 \quad (2)$$

ここで、 λ は電磁波の表面侵入長、 μ_0 は真空透磁率である。本来なら、この式は常伝導キャリアの影響が無視できる T_c 以下で適用されるべきであるが、ここでは敢えて T_c 以上においても N_s の値を導出した。得られた結果を図 4 に示す。 $f_p \sim 1.3$ THz 付近の高周波側において、 T^* 以下の温度においてコヒーレントペアの出現が認められており、超伝導転移温度である T_{cl} において既に有限の値を有している事が分る。一方、超伝導状態に相当する 75K 以下での増加分のみを示した挿入図からわかるように、低周波側における顕著な増加が T_{cl} 以下において生じていることが分る。以上のことから、擬ギャップ状態は高周波側のコヒーレントペアと密接に関与し、巨視的な超伝導状態では、その直流コンダクタンスが無限大であることから予想されるように低周波側のコヒーレントペアが強く関与していることがわかる。

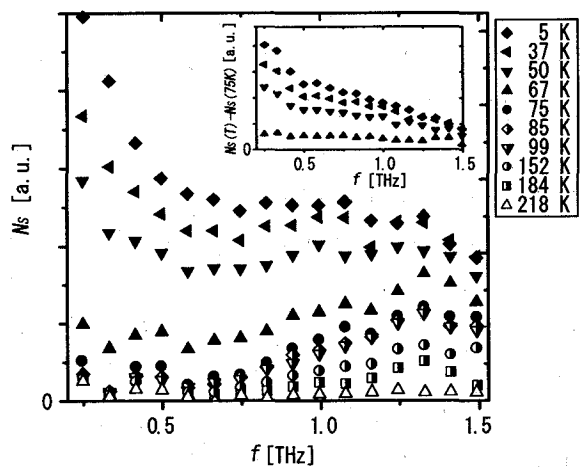


図 4 σ_2 より求めた超伝導ペア密度の温度および周波数依存性。挿入図は 75K 以下での増加分を示す。

以上得られた結果から、マクロスケールの超伝導の出現に関して次のようなシナリオが考えられる。まず、 T^* においてオーダーパラメータの寿命が 1 ピコ秒以下程度で揺らぐ局所擬ギャップ領域が出現し、この領域は温度の降下とともに増加し、 T_S 付近で飽和する。この飽和状態では、これら局所ドメイン間のオーダーパラメータの重なりによる相関が生じ、その寿命も数倍程度に長くなることが予想される。このため、低周波コヒーレントキャリアが重要な役割を示す巨視的超伝導の揺らぎが生じ、これにより T_{cl} 以下において超伝導が出現している可能性がある。

3. まとめ

今回ポンプ・プローブ測定およびテラヘルツ分光測定により、1ピコ秒以下程度の寿命をもった局所擬ギャップ領域が $T^* \sim 210\text{K}$ 以下で生じ、超伝導出現のための前駆体として重要な役割を果たしている可能性を見出した。今後キャリア数制御を行った試料に対し、系統的に研究を進めていく事により、高温超伝導の発現機構についてさらに詳細な知見が得られるものと思われる。

参考文献

- [1] H. Alloul *et al.*, Phys. Rev. Lett. **63**, 1700 (1989).
- [2] V. Puchkov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 3212 (1996).
- [3] S. Uchida *et al.*, Physica C **263**, 264 (1996).
- [4] Ch. Renner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 149 (1997).
- [5] H. Ding *et al.*, Nature (London) **382**, 51 (1996).
- [6] J. Demsar *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4918 (1999).
- [7] V.V. Kabanov *et al.*, Phys. Rev. B **59**, 1497 (1999).
- [8] H. Murakami *et al.*, Physica C in press.
- [9] S. G. Han *et al.*, Phys. Rev. Lett. **65**, 2708 (1990).
- [10] G. L. Eesley *et al.*, Phys. Rev. Lett. **65**, 3445 (1990).
- [11] T. Gong *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 14495 (1993).
- [12] S. Nasima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L663 (2000).
- [13] T. Uchiyama *et al.*, IEEE Appl. Super. **11**, 3297 (2001).
- [14] J. Otsuka *et al.*, Physica C **331**, 164 (1999).
- [15] T. Kiwa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, L38 (2001).
- [16] J. Corson *et al.*, Nature (London) **398**, 221 (1999).
- [17] C. Caroli *et al.*, Phys. Rev. **159**, 306 (1967)., and E. Abrahams *et al.*, Phys. Rev. **152**, 416 (1966).