

## 第6章 結論及び今後の展望

### 1. オゾンを用いた MBE 法による YBCO 薄膜の作製

酸素を酸化源とした YBCO 薄膜作製では薄膜作製可能な最低圧力限界が相安定限界と一致していることから、オゾンを用いた YBCO 薄膜作製の作製限界を知る上でオゾン中での YBCO の  $P$ - $T$  相図を知ることが重要であると考えた。そこで、酸素とオゾンによる YBCO 薄膜の酸化特性を比較することにより、今まで調べられていなかったオゾン雰囲気での YBCO の  $P$ - $T$  相図を明らかにした。この相図をもとにして、実際の作製限界を調べるために、オゾンを用いた MBE 法により YBCO 薄膜の作製を行った結果、オゾンを用いた場合の作製限界は必ずしも相安定限界には一致しない事を明らかにした。作製限界の決定要因を調べるために、基板に入射する金属原子フラックスと作製限界の関係を調べた結果、YBCO 薄膜が成長するためには金属元素フラックスの 10 倍以上のオゾンフラックス、即ち基板表面上でそのオゾンフラックスに相当する局所オゾン圧力が必要であることを明らかにした。今まで、作製可能な最低圧力限界を決めるパラメーターとして主に温度だけが考慮されていたが、本研究で得られた結果は製膜速度もパラメーターであることを初めて示したものである。

### 2. レーザーアブレーション法による酸化物超伝導薄膜の作製

研究に薄膜試料を用いる場合、ただ単にバルク並の高い  $T_c$ 、 $J_c$  を有した薄膜を作製するだけでなく、特性の揃った高品位の薄膜が再現性良く作製できることも重要であることから、本研究ではレーザーアブレーション法により高い  $T_c$ 、 $J_c$  を有した  $c$  軸配向 YBCO 薄膜の再現性良く作製することを目的として、薄膜特性に大きく影響を与える作製条件パラメーターを明らかにし、作製条件の最適化方法を示した。作製条件の中でも、特にターゲット上に集光されたレーザー光のエネルギー密度と集光レンズの焦点の調整が重要であることを明らかにした。これは、エネルギー密度によりアブレーションされる元素の組成比が変化することが原因で、集光レンズの焦点がずれた場合は、ターゲット上に集光されたレーザー光のエネルギー密度分布に大きな勾配が生じ、組成ずれを起こしてしまうことを示した。以上の様な点を考慮して作製条件の最適化を行うことで、 $\text{SrTiO}_3(100)$  基板上に  $T_c > 90\text{K}$ 、 $J_c > 1 \times 10^6 \text{A/cm}^2$  を有する  $c$  軸配向 YBCO 薄膜を再現性良く作製できることを示した。ここで示した作製条件の最適化の手法は  $c$  軸配向 YBCO 薄膜だけでなく他の酸化物薄膜の作製にも有効であり、第5章で用いた LSMO 薄膜の場合も同様の手法で作製条件の最適化を行うことで、バルク並の強磁性特性を有する薄膜が再現性良く作製可能となった。

### 3. YBCO 薄膜における磁束ガラス-液体転移の膜厚依存性

薄膜の磁場中での  $J_c$  など輸送特性を決めている磁束の運動機構と次元性の関係を調べることを目的として、YBCO 薄膜の磁束ガラス-液体転移の膜厚依存性を調べる研究を行った。本実験に用いたすべての試料で、 $E$ - $J$  特性の綺麗なスケーリングが観測され、実験に用いた膜厚範囲 (18nm~1 $\mu$ m) では 3 次元の磁束ガラス-液体転移が起きていることが確認された。膜厚が減少すると  $T_g$  が下がることが確認されたが、これは膜厚が磁場侵入長より薄くなった場合に実効的な磁場侵入長が長くなることにより磁束の相互作用エネルギーが減少し、磁束系の 2 次元性が強くなった結果と推論された。

次に、従来の理論を用いた解析では矛盾が生じてしまう膜厚の薄い薄膜における  $E$ - $J$  特性のスケーリングと  $\xi_g$  の温度変化について、その両方を矛盾なく説明する方法として、実験の立場から、静的臨界指数 ( $\nu$ ) が膜厚方向と膜面内方向で異なった値 ( $\nu_{\parallel} \neq \nu_{\perp}$ ) を持つ異方的 3 次元磁束ガラス-液体転移モデルを提案した。このモデルでは  $\nu_{\parallel}$  と  $\nu_{\perp}$  の比  $\alpha = \nu_{\parallel} / \nu_{\perp}$  が膜厚の減少にともなって小さくなり、膜厚の薄い薄膜においても  $\xi_g$  が  $T_g$  近傍まで膜厚を越えなくなることで、膜厚の薄い薄膜のスケーリングと  $\xi_g$  の温度変化を矛盾無く説明できることを示した。このモデルによる解析結果では  $\nu_{\parallel}$  が膜厚により変化することから、磁束ガラス-液体転移の機構が膜厚により変ることが示唆され、このことは膜厚を薄くすると磁場侵入長が長くなり磁束の相互作用エネルギーが減少することと関係していると推論される。

本研究の結果は、サイズにより系の相互作用が変化するような場合の相転移温度のサイズ依存性と相関距離の温度変化は、有限サイズスケーリングモデルの様な通常良く用いられている理論では説明出来ないことを明らかにした。今後、端の効果以外にも、サイズ変化により系全体の相互作用や次元性が変化する効果を取りれた理論モデルが示されれば、本研究の磁束ガラス-液体転移の膜厚依存性や線幅依存性などのサイズ効果がより良く理解できるものと期待される。

また、磁束ガラス-液体転移の理論では、ボーズグラス転移を除いて、磁束ピンニングと磁束ガラス-液体転移の関係については議論されていない。そのため、ピン止めサイトの量、強さと  $T_g$  の関係なども分かっていない。今後の研究テーマとして、酸素欠損や薄膜試料に多く存在する双晶面及び粒界など磁束のピン止めとして働くことが予想される欠陥の種類やそれらの密度が、磁束ガラス-液体転移にどう作用するのかを調べる事などが考えられる。そのためには、その様な欠陥の種類や量を制御した薄膜作製の方法を確立する必要があり、まずは薄膜作製の段階に戻って研究する必要がある。

### 4. LSMO/YBCO 接合のトンネル特性とスピン偏極準粒子注入素子

酸化物強磁性体と酸化物超伝導体により作製した積層型接合のデバイス応用と酸化物超伝導体のスピン偏極トンネルを研究することを目的として、LSMO/YBCO 接合を用いてスピン偏極準粒子注入素子の作製とスピン偏極トンネル特性の評価を行った。LSMO/YBCO 接合のトンネルスペクトルに観測される ZBCP の大きさとその磁場依存性

を d 波超伝導体の F/S 接合のトンネル理論を用いて解析することによりスピン偏極率を見積もることができることを示した。また、トンネル特性の磁場依存性の測定結果からは、LSMO/YBCO 界面には本質的に強磁性的（又は常磁性的）バリアが形成されることを明らかにした。この接合の場合の様に、大きな組成変化、構造変化を伴わないで本質的に形成されるバリア層は、接合物質自体の電子状態が界面近傍で変化していることが原因であると考えられるため、TEM 観察などではその存在を調べることは不可能であり、トンネル特性の測定とその結果の解析がこの様なバリアの存在とその特性を調べるのに有効な手段であることを明らかにした。また、LSMO/YBCO 界面に本質的に形成される強磁性的バリアの存在が、トンネル準粒子のスピン偏極率をバルクのスピン偏極率よりも下げている原因である可能性があり、そのことが本研究で作製したスピン偏極準粒子注入素子において、素子として有効な 1 を越えるゲインが得られない原因と推測される。

また、LSMO/YBCO 接合と Ag/YBCO 接合の極低温でのトンネルスペクトルの磁場依存性を測定した結果、ZBCP に磁場応答する成分と磁場応答しない成分の 2 成分が存在することを明らかにした。磁場応答しない成分、即ち ZBCP にゼーマン分裂の見られない成分が存在することは、YBCO 表面にスピンの効果が消失した特殊な表面電子状態が誘起されている可能性を示している。

以上の様に、本研究ではトンネル特性の測定が LSMO/YBCO 界面、あるいは YBCO 表面の状態やスピン偏極率を調べるのに有効な手段であることを示した。特に極低温の磁場依存性の測定結果は、今までの理論では説明出来ない YBCO 表面の特殊な電子状態を捉えることができた。今後はこの特殊な電子状態が発現している原因を探ることが重要であると思われ、そのためには他の酸化物超伝導物質との比較、キャリア濃度依存性、この研究では制御していなかったバリアの特性を制御した測定などが必要と考えられる。また、より詳細に ZBCP の特性を調べるためには、ZBCP の形状に影響を与えることが理論的に予想されている界面の平坦性をさらに向上させることや、不純物相の表面への析出等を抑えることなど、薄膜作製技術の向上も必要である。その他にも STM など他の測定技術との組み合わせなども今後検討して行く必要がある。この様な実験的研究とともに、その実験結果を説明するために酸化物超伝導体を初めとする強相関電子物質の表面、界面の理論的研究が進むことが必要であり、今後の理論的研究の発展に期待する。