

Title	高温超伝導体YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> からのテラヘルツ電磁波パルス放射特性に関する研究
Author(s)	富成, 征弘
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/34405">https://hdl.handle.net/11094/34405</a>
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

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

Osaka University

## 論文内容の要旨

[ 題 名 ] 高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ からのテラヘルツ電磁波パルス放射特性に関する研究

学位申請者 富成 征弘

本論文はテラヘルツ機能性材料の一つである「超伝導体」に着目し、フェムト秒レーザーパルスを用いた光励起による銅酸化物高温超伝導体からのテラヘルツ電磁波パルス放射特性について詳細に調べた一連の研究成果をまとめたものである。具体的には、酸素含有量を精密調整した銅酸化物高温超伝導体薄膜試料を準備し、そのテラヘルツ電磁波パルス放射およびテラヘルツ時間領域分光 (THz-TDS) 測定を行い、これらより得られた結果を基に放射強度や周波数帯域などの放射特性について考察を行った。本論文は全7章構成されており、その概要を以下に記す。

第1章では、諸言としてテラヘルツ周波数領域における機能性材料として注目されている超伝導体に関する研究背景について述べた。本研究で扱うフェムト秒レーザーパルス励起による銅酸化物高温超伝導体からのテラヘルツ電磁波パルス放射に関する研究では、これまでテラヘルツ電磁波パルスの放射強度はその物質のキャリア濃度と密接に関係して、キャリアドーピング量が減少するにしたがって増大すると考えられていた。これは、テラヘルツ周波数領域における試料の透過率の増大、屈折率の減少による基板とのインピーダンス不整合の緩和が原因と考えられていたが、その実験的に詳細な裏付けは与えられていなかった。この放射強度のキャリア濃度依存性に対してより詳細な知見を得るためには、系統的にキャリアドーピングの調整を行った薄膜試料を用いた実験が必要不可欠であり、本研究がこれを調査研究することを目的としていることを述べ、さらに各章の構成について述べた。

第2章では、今回実験に用いた銅酸化物高温超伝導体の一般的な結晶構造および電子状態、また超伝導体の光応答およびジョセフソンプラズマ共鳴 (JPR) 現象について述べた。さらにテラヘルツ電磁波パルスおよびTHz-TDS測定に用いた銅酸化物高温超伝導体である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) および $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (TBCCO) の基本物性について述べた。

第3章では、フェムト秒レーザーパルスを用いた半導体光伝導アンテナ素子および高温超伝導体アンテナ素子からのテラヘルツ電磁波パルスの放射原理について述べた。また、今回実験を行ったテラヘルツ電磁波パルス放射測定およびTHz-TDS測定システムに関する詳細および解析方法について述べた。

第4章では、YBCO多結晶ペレットを併用した独自のYBCO薄膜の酸素含有量精密調整方法について述べ、実際に酸素含有量を調整した薄膜試料の評価 (X線回折測定・電気抵抗の温度依存性) を行った。その結果、今回の手法により酸素含有量を調整した薄膜試料は、各試料とも $c$ 軸長の長さが最適ドーピングの試料 ( $c = 11.68 \text{ \AA}$ ) に比べて長く、全ての試料がアンダードーピング領域の試料であることがわかった。また、この観測で得られた $c$ 軸長と $T_c$ との関係は、これまでに報告があるバルク試料のそれとほぼ一致しており、今回作製した薄膜試料の酸素含有量 (キャリア濃度) が精密に制御・調整できていることを示した。

第5章では、第4章で作製したYBCO薄膜を用いたテラヘルツ電磁波パルス放射測定およびTHz-TDS測定の結果およびその考察について述べた。キャリア濃度が減少するに従って放射された電磁波パルスのパルス幅が $0.91 \text{ ps}$ から $1.25 \text{ ps}$ へと広がる傾向を今回初めて示すことができた。一方、キャリア濃度に対する電磁波パルス放射強度依存性については $T_c = 70 \text{ K}$ 程度の中程度にキャリア濃度を減少させた試料で最も放射強度が大きくなるという、これまでの報告とは異なる結果を得ることができた。この結果を説明するため、従来から考えられていた消衰係数や透過率依存性以外に、超伝導キャリア密度、レーザーパルスにより破壊された超伝導キャリアの変化量、超伝導電流の変調時間などを今回新たに考慮することで、この放射強度のキャリア濃度依存性を再現することができた。

第6章では、TBCCO薄膜についてのテラヘルツ電磁波パルス放射測定の結果および考察について述べた。その結果、磁場印加状態においてアンダードーピング領域の試料にレーザーパルスを照射することにより、JPRによるコヒーレントなテラヘルツ電磁波パルスの放射に成功した。具体的には、放射された電磁波パルスの周波数スペクトルの $620 \text{ GHz}$ 付近に共鳴ピークが観測され、この共鳴周波数は温度上昇と共に低周波側 ( $80 \text{ K}$ で $300 \text{ GHz}$ ) ヘシフトして行き、 $T_c$ 以上で消失することを確認した。このJPRによるテラヘルツ電磁波放射の結果は、レーザーパルスを用いた方法、また十分強度のあるテラヘルツ電磁波を観測したという点において世界初の成果である。

第7章では、本研究の総括について述べた。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 富 成 征 弘 )		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教 授 斗内 政吉
	副 査	教 授 伊藤 利道
	副 査	准教授 村上 博成
	副 査	准教授 川山 巖
	副 査	教 授 森 勇介
	副 査	教 授 片山 光浩
	副 査	教 授 尾崎 雅則
	副 査	教 授 栖原 敏明
	副 査	教 授 近藤 正彦
	副 査	教 授 大森 裕
副 査	教 授 八木 哲也	

## 論文審査の結果の要旨

近年のテラヘルツ技術の著しい進歩は、新しい産業応用や安心安全な社会の構築など、様々な分野での応用が期待されている。「超伝導体」はテラヘルツ機能性材料の一つとして、テラヘルツ発振や受信デバイスとして世界中で精力的に研究されており、そのような状況の中で、本論文はフェムト秒光パルスを用いた光励起により銅酸化物高温超伝導体から放射されるテラヘルツ電磁波パルスの特性について詳細に研究を行ってきた結果をまとめたものである。以下に本研究で得られた主たる研究成果を要約する。

- (1) 本研究で研究対象とした  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  薄膜試料は、多結晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ペレットを併用した独自のアニール手法により酸素含有量（キャリア数）の制御を行っている。このように酸素含有量を調整した試料の評価を X 線回折による結晶  $c$  軸長の評価および超伝導転移温度  $T_c$  測定評価から行っており、その結果この方法により酸素含有量を精密に制御した試料の作製に成功している。
- (2) この酸素含有量を精密調整した薄膜試料を用いてフェムト秒光パルス励起によるテラヘルツ電磁波パルス放射測定および時間領域テラヘルツ分光測定を行い、放射特性を解析・評価する上で必要な複素屈折率や超伝導キャリア濃度など、様々な物理パラメータの取得を行っている。酸素含有量を系統的に変化させた試料におけるこれら物理パラメータの観測はこれが初めての試みである。
- (3) テラヘルツ電磁波パルス放射測定において、試料のキャリア濃度が減少するに従って放射される電磁波パルスのパルス幅が  $\sim 0.91\text{ps}$  から  $\sim 1.25\text{ps}$  へと広がり、放射される電磁波の帯域が狭くなっていく傾向を今回初めて明らかにしている。
- (4)  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  の超伝導転移温度  $T_c$  は酸素欠損の殆どない最適ドーピング試料からアンダードーピング試料になるにつれて、90K 付近から 50K 付近まで単調に減少していくが、この系統的に酸素含有量を調整した試料を用いた実験では、超伝導転移温度が 70K 程度を持つ中程度にアンダードーピングの試料において放射されるテラヘルツ電磁波パルスの放射強度が最大となる結果を得ている。従来、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  からのテラヘルツ電磁波パルス放射強度は酸素含有量が減少してアンダードーピングが進むにつれて増加するという予測がなされていたが、本研究において実験的にこの予測と異なる結果を得ている。またこの得られた結果については、従来から考えられていた消衰係数や透過率依存性のみをの寄与以外に、新たに実験的に求めた超伝導キャリア密度や超伝導電流の変調時間、またレーザーパルスにより破壊された超伝導キャリアの変化量などを考慮することで説明できることを明らかにしている。

(5) 銅酸化物高温超伝導体はジョセフソン接合が天然に積層した結晶構造を有しており、この結晶構造に由来したジョセフソンプラズマ共鳴現象による高強度かつコヒーレントなテラヘルツ電磁波放射の可能性が理論的に予測されていた。この理論的予測に基づいて、メサ型のデバイス等を利用したテラヘルツ電磁波発生が実験的に試みられテラヘルツ電磁波の発生および検出に成功していたが、その強度はかなり小さなものであった。本研究では、独自の手法としてフェムト秒光パルス励起を使ったジョセフソンプラズマ共鳴によるコヒーレントかつある程度強度のあるテラヘルツ電磁波の放射に成功している。具体的には、温度 24K において磁場を印加した銅酸化物高温超伝導体の一つである  $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8-\delta}$  のアンダードープ薄膜試料に対しフェムト秒光パルスを照射することで、ジョセフソンプラズマ共鳴による 620GHz のテラヘルツ電磁波の発生に成功している。この 620GHz の共鳴周波数は温度の上昇と共に低周波側 ( $T = 80K$  において 300GHz~400GHz) ヘシフトしていき、 $T_c$  以上で消失していることも明らかにしている。

以上のように、本論文は高温超伝導体  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  薄膜の酸素含有量の精密な調整からそれら作製した薄膜試料を用いたフェムト秒光パルス励起によるテラヘルツ電磁波パルス放射特性について述べたものである。また、光パルス励起により初めて高温超伝導体  $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8-\delta}$  試料からのジョセフソンプラズマ共鳴によるコヒーレントテラヘルツ電磁波の発生を観測した結果について述べたものである。これらの結果は高温超伝導体を用いたテラヘルツ電磁波発振素子の基礎技術として、テラヘルツ波工学の発展に寄与する可能性が大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。