



Title	銅酸化物高温超伝導体からのテラヘルツ波領域分光法
Author(s)	村上, 博成
Citation	大阪大学低温センターだより. 2006, 135, p. 7-11
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/7145">https://hdl.handle.net/11094/7145</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

# 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

レーザーエネルギー学研究センター 村 上 博 成（内線7982）

## 1．はじめに

近年のフェムト秒パルスレーザー技術の進歩に伴い、テラヘルツ電磁波パルスの発生およびその応用技術の急速な展開が見られている<sup>[1-7]</sup>。このテラヘルツ電磁波パルスの発生は、一般には半導体材料を用いて行われており、表面電場を有する半導体ウェハー材料もしくはバイアス電圧を印加した半導体光スイッチにフェムト秒光パルスを照射することにより、励起された光キャリアにより発生する超高速電流変調を利用する。

我々の研究室（斗内研究室）では、半導体材料以外にも銅酸化物高温超伝導体（高温超伝導体）材料やマンガン酸化物材料、また最近ではマルチフェロイック材料といった、いわゆる強相関電子系材料からのテラヘルツ電磁波パルス発生およびその応用に関する研究を行っている<sup>[6,8-13]</sup>。これらの材料を使ったテラヘルツ電磁波パルスの発生に関する研究は世界的に見ても大阪大学独自の研究であり、広く注目を集めている。ここではこのうち高温超伝導体材料からのテラヘルツ電磁波パルス放射現象についてご紹介する。

## 2．高温超伝導体からのテラヘルツ電磁波発生について

高温超伝導体からのテラヘルツ電磁波パルス発生機構の詳細は未だ判明していないが、現象論的にはフェムト秒光パルス照射に伴って生じる超伝導電流の超高速変調によって説明できる。半導体材料との大きな違いは、半導体の場合光パルス照射によって誘起される光電流を利用するが、高温超伝導体ではこのあと述べるようにクーパー対の破壊によって過渡的に引き起こされる超伝導電流の減少を利用する。

バイアス電流を印加した超伝導体にフェムト秒光パルス（波長780nm、単パルス当りのエネルギーは数nJ程度）を照射すると、超伝導電流の担い手であるクーパー対の一部が直接励起される。ただし、この直接励起されるクーパー対の数は入射フォトン数から考えるとごく僅かであり、この励起のみでは超伝導電流の実質的な変調は起こらない。この励起により生成される高エネルギーを持ったホットエレクトロンが雪崩効果により2次的、3次的に引き起こすクーパー対の破壊および、その後の緩和に伴い発生する超伝導電流の超高速変調が重要となる。この超伝導電流の変調に伴い発生する電磁波は、次のように表すことができる。

$$E \frac{dJ_s}{dt} = qv_s \frac{n_s}{t} + qn_s \frac{v_s}{t} \quad (1)$$

ここで $E$ は放射電場ベクトル、 $J_s$ は高温超伝導体に印加される超伝導電流密度、 $q$ 、 $n_s$ 、 $v_s$ はクーパー対の電荷、密度および速度をそれぞれ表す。この励起や緩和に要する時間がピコ秒程度であるため発生する電磁波パルスはテラヘルツ周波数成分を有することになる。また、この式を見るとわかるように、テラヘルツ電磁波放射現象は過渡的な非平衡超伝導状態で繰り上げられるクーパー対の超高速キャリアダイナミクスと密接に関係していることがわかる。

ここで念のため述べておくと、臨界温度以上の常伝導状態ではここで言う電磁波パルスの発生は生じないことから、この放射現象は超伝導キャリアのみが関与する現象である。

この高温超伝導体からのテラヘルツ電磁波放射に関して、我々はこれまで、発生するテラヘルツパルスのスペクトル特性におけるカットオフ周波数が試料の二次元性と密接に関係していること、発生する電磁波パルスの強度が試料のキャリア濃度と非常に深く関わっており、適度にアンダードープの試料において放射される電磁波強度が最大となることなど、実用上有益ないくつかの結果を見出している<sup>[14]</sup>。

ここでは誌面の関係もあり、このテラヘルツ電磁波の放射機構とも密接に関わった について紹介する。これについては、これまで $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8+x}$  (TBCCO) 薄膜試料を用いたジョセフソンプラズマ共鳴 (JPR) 発振に関する研究からも、このテラヘルツ電磁波のカットオフ周波数が、 $CuO_2$  面間の相互作用の強さと密接に関係するJPR共鳴周波数とほぼ同程度になるという結果を得ている<sup>[11]</sup>。

### 3．放射テラヘルツ電磁波のスペクトル特性

テラヘルツ電磁波パルス発生・検出用の光学システムおよびその原理については他を参照していただくとして<sup>[7-11]</sup>、ここで示す実験で用いた試料について簡単に説明する。

$YBa_2Cu_3O_7$  (YBCO) および $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$  (BSCCO) については、MgO単結晶基板 (厚さ:  $500\mu m$ ) の (100) 面上にレーザーアブレーション法により作製したもので、 $c$ 軸配向した薄膜試料である。超伝導臨界温度についてはBSCCO:  $T_c=76K$ であり、YBCOについてはYBCO-1:  $T_c=88K$ 、YBCO-2:  $T_c=84K$ 、YBCO-3:  $T_c=53K$ である。YBCO-2および-3については、詳細は省くが、製膜後還元雰囲気下でアニール処理をすることによりホールキャリア濃度の調整 (アンダードープ化) を行った。

また、TBCCO薄膜 ( $T_c=99K$ ) は、(1102) サファイア基板上に55nmの $CeO_2$ バッファ層を介し、マグネトロンスパッタリング法により作製したものである。この薄膜についても $c$ 軸配向膜である。これら薄膜試料をフォトリソグラフィ技術を用いてボウタイ型アンテナデバイス形状に加工し測定を行った。

図1 aにBSCCO、TBCCOおよび、YBCO-1試料、図1 bにYBCO-1、YBCO-2および、YBCO-3試料から放射されたテラヘルツ電磁波パルスの規格化フーリエスペクトルを示す。

図1 aのフーリエスペクトルから見積もることが出来るカットオフ周波数は、YBCO-1で

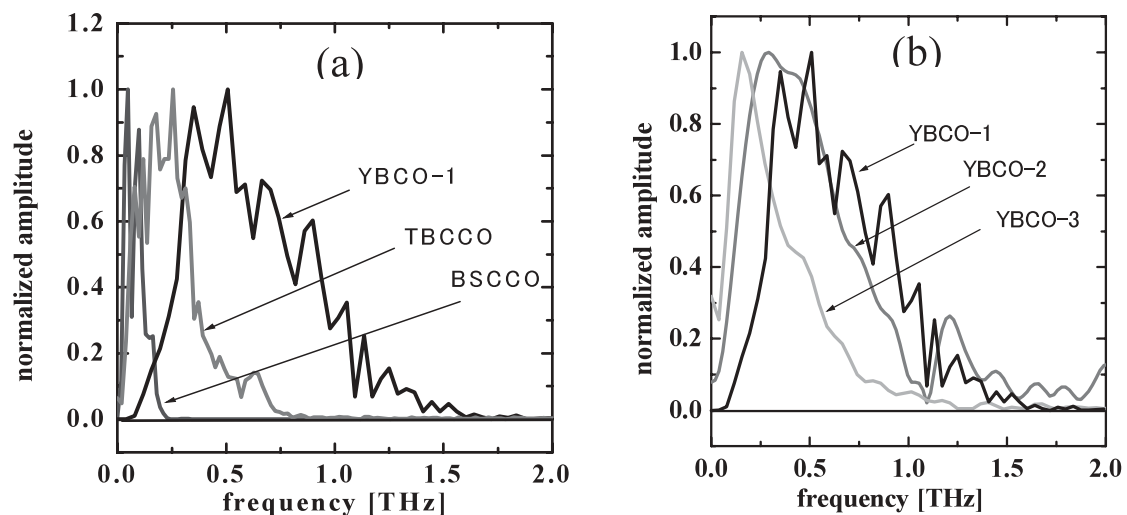


図 1

- (a) BSCCO ( $T_c=76\text{K}$ )、TBCCO ( $T_c=99\text{K}$ ) および YBCO-1 ( $T_c=88\text{K}$ ) から放射されたテラヘルツ電磁波パルスの規格化フーリエスペクトル。
- (b) ホールキャリア濃度を調整した YBCO-1 ( $T_c=88\text{K}$ )、YBCO-2 ( $T_c=84\text{K}$ )、YBCO-3 ( $T_c=53\text{K}$ ) から放射されたテラヘルツ電磁波パルスの規格化フーリエスペクトル。(a)、(b) 何れにおいても試料の二次元性が強くなるに従ってカットオフ周波数の低下が見られる。

～1.65THz、TBCCOで～0.75THz、BSCCOで～0.25THzとなっており、試料の性質がより二次元的になるに従ってカットオフ周波数の値が低くなっている様子がわかる。

また、一般に高温超伝導体では、キャリアドーピング量が減少していくにつれ超伝導を担う $\text{CuO}_2$ 面間の相互作用が弱くなり $T_c$ が減少すると同時に試料の二次元性もより強くなってくるが、図 1 b) においては YBCO-1 から YBCO-3 へとアンダードーピングが進むにつれて、放射スペクトル特性の高周波成分が削られていく様子が観測されている。

このようにフェムト秒光パルス照射による高温超伝導体からの放射電磁波スペクトル特性は、試料の二次元性と密接に関わっていることがわかっていただけたと思う。以下にその理由について考察してみる。

(1) 式を考えると、発生するテラヘルツパルスの周波数成分は右辺の  $n_s/t$  および  $v_s/t$  により概ね決定される。ここで  $n_s/t$  は超伝導キャリア密度の時間変化、 $v_s/t$  は超伝導キャリアの加速に伴って発生する電磁波成分を決定する。この超伝導キャリアの加速現象は超伝導キャリア密度の急速な変化に伴う超伝導電流の変化を補うために生じるが、無電界状態で走行している超伝導キャリアはその慣性のため即座に速度を変化できないであろう。よって、この加速現象によってカットオフ（最大）周波数付近の電磁波成分の放射は起きないと考えられる。実際、この変化がキャリアの過渡的な増減を補う程度に十分に超高速に起こるのであれば超伝導電流の変調は生じないため、電磁波の放射も起こらないであろう。よって、最大周波数付近の電磁波放射成分は超伝導キャリア密度の過渡的な変化が寄与しているものと考えられる。

この考えのもと、現在までに得ている機構の概念を簡単に紹介する。

この考察にあたり、詳細は省くがこれまでの我々の研究において、フェムト秒光パルスを照射した場合に生じる超伝導電流の変調はフェムト秒光パルスが照射される局所領域に限られることが判

明している<sup>[15]</sup>。この結果を考えると、*c*軸配向の高温超伝導体薄膜試料表面にフェムト秒光パルス  
を照射すると、光が透過する際に生じる吸収のため、この照射領域の試料表面付近と裏面付近に存  
在するCuO<sub>2</sub>面内で励起されるクーパ対の数は明らかに異なることが予想される。よってこの際、  
*c*軸方向の超伝導キャリアの密度勾配が光のパスに沿って過渡的に生じ、これによって互いに隣接  
するCuO<sub>2</sub>面間で生じる位相差によってジョセフソン電流が流れることになる。これに伴ってキャ  
リア密度の緩和が生じるが、この超伝導キャリア密度の緩和時間は、最も短くてもジョセフソンプ  
ラズマ共鳴周期程度となることが容易に予想される。このようにして放射テラヘルツ電磁波のカッ  
トオフ周波数が試料の二次元性、言い換えればCuO<sub>2</sub>面間のブロック層に誘起される超伝導オーダー  
パラメータと密接に関係するJPR共鳴周波数とも関わってくるものと考えている。

#### 4．まとめ

各種高温超伝導体からのテラヘルツ電磁波放射スペクトル特性について考察した。その結果、放  
射電磁波の高周波成分はJPR共鳴周波数とも関係するCuO<sub>2</sub>面間の相互作用の強さと密接に関わっ  
ており、試料の二次元性が増すにつれて、より低周波側へシフトして行くことが判明した。

#### 謝辞

本研究は、旧超伝導フォトンクス研究センター、および現レーザーエネルギー学研究センター・  
レーザーテラヘルツ研究部門・テラヘルツフォトンクス研究室（斗内研究室）におけるプロジェク  
トの一環として行われたものであり、戦略的情報通信研究開発推進制度「特定領域重点型研究開発」、  
日本学術振興会科学研究費補助金「基盤研究（B）」No.16360033、文部科学省「萌芽研究」  
No.14655121および15656017による研究助成金を受けて行なわれたものである。ここに関係各位に  
感謝の意を表します。

#### 参考文献

- [ 1 ] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith, Appl. Phys. Lett. 45, 284 ( 1984 )
- [ 2 ] S. D. Brorson, R. Buhleier, J. O. White, I. E. Trofimov, H. -U. Habermeier and J. Kuhl, Phys. Rev.  
B 49, 6185 ( 1994 )
- [ 3 ] S. D. Brorson, R. Buhleier, I. E. Trofimov, J. O. White, H. -U. Habermeier and J. Kuhl, J. Opt.  
Soc. Am. B 13, No.9, 1979 ( 1996 )
- [ 4 ] D. Grischkowsky, and S. Keiding, Appl. Phys. Lett. 57, 1055 ( 1990 )
- [ 5 ] I. Wilke, M. Khazan, C. T. Rieck, P. Kuzel, T. Kaiser, C. Jaekel, and H. Kurz, J. Appl. Phys. 87,  
2984 ( 2000 )
- [ 6 ] N. Kida, M. Hangyo, and M. Tonouchi, Phys. Rev. B, 62, R11965 ( 2000 )
- [ 7 ] H. Murakami, T. Kiwa, N. Kida, M. Tonouchi, T. Uchiyama, I. Iguchi, and Z. Wang, Europhysics  
Lett. 60 ( 2 ), 288 ( 2002 )
- [ 8 ] M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, N. Wada and M. Hangyo, Jpn. J. Appl. Phys. 35, 2624

( 1996 )

- [ 9 ] M. Hangyo S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai and S. Nakashima, Appl. Phys. Lett. 69, 2122 ( 1996 )
- [ 10 ] H. Murakami, T. Kiwa, M. Misa, M. Tonouchi, T. Uchiyama, I. Iguchi and Z. Wang, Jpn. J. Appl. Phys. 41, 1992 ( 2002 )
- [ 11 ] Y. Tominari, H. Murakami, M. Tonouchi, H. Wald, P. Seidel and H. Schneidewind, Appl. Phys. Lett. 80, 3147 ( 2002 )
- [ 12 ] H. Wald, P. Seidel, H. Schneidewind, Y. Tominari, H. Murakami and M. Tonouchi, Physica C 378-81, 372 ( 2002 )
- [ 13 ] Y. Tominari, T. Kiwa, H. Murakami, M. Tonouchi, Wald, P. Seidel, and H. Schneidewind, IEEE Appl. Super.13, No. 2, 3730 ( 2003 )
- [ 14 ] H. Murakami, Y. Tominari, M. Tonouchi, T. Uchiyama, I. Iguchi and Z. Wang, Jpn. J. Appl. Phys. 44, 2998 ( 2005 )
- [ 15 ] T. Fukui, H. Murakami, and M. Tonouchi, IEICE Transaction on Electronics, E85-C ( 3 ), 818 ( 2002 )

## 用語説明

### テラヘルツ

テラヘルツ帯の電磁波のことで、直進性が非常に高い。日本の電波法では、電波は3THz以下の電磁波と定められており、それ以上は遠赤外線となる。テラヘルツ電磁波は大気によく吸収されるので、その到達距離は短い。テラヘルツ電磁波を利用する技術は近年になって開発されたもので、薬物検査、医学、バイオ応用、LSIの検査など、その応用が期待されている。