

文目錄

頁數

中文計畫摘要	2
英文計畫摘要	3
I、本子計畫綜合概述	9
II、本子計畫工作內容詳述	11
一、改進雷射激發光源和時間解析光激發-光檢測系統	11
二、研究釷系薄膜的時間解析激發-探測光譜量測	13
(一) 利用極化可調飛秒級激發-探測光譜技術研究釷鉕銅氧 超導薄膜準粒子動力學的二向性行為	13
(二) 利用極化可調激發-探測技術研究過摻雜的釷鈣鉕銅氧 超導薄膜的超導能隙和偽能隙的對稱性問題	30
三、研究龐磁阻薄膜的的時間解析激發-探測光譜量測	42
四、利用各種材料產生兆赫電磁輻射之研究	49
五、研究時域兆赫波頻譜量測釷鉕銅氧超導薄膜的高頻響應特性	56
六、研究時域兆赫波頻譜量測釷鈣鉕銅氧薄膜的高頻響應特性	61
III、總結與自評	67
IV、參考文獻	70
V、本計畫相關已發表和即將發表之論文列表(含研究生畢業論文)	75

圖目錄

頁數

圖 1-1 光激發-光探測實驗的概念 -----	11
圖 2-1 角度解析光放射光譜量測準粒子沿節線和沿反節線方向之能量分布 -----	14
圖 2-2 利用角度解析光放射光譜量測和掃描穿隧顯微技術觀察微量摻雜鈉鈣銅氧氯(Na-CCOC) 樣品之結果，c 圖為二維電荷有序現象，稱之為棋盤式的電子晶體[43] -----	14
圖 2 -3 超導體在超導態時的光激發和弛緩過程示意圖 -----	15
圖 2 -4 Segre 等研究群[49]利用特殊的摻雜不足 YBCO OrthoII樣品作光激發檢測實驗，發現在極低的光激發功率密度下，其弛緩時間與光激發功率密度和溫度均有關 -----	16
圖 2 -5 在不同的低光激發功率密度下，其弛緩率與溫度的關係[49]-----	17
圖 2 -6 (a) Schneider 的實驗結果：無論是金屬態、絕緣態或超導態的樣品，均顯示其弛緩時間與 $T^{-3\pm0.5}$ 有關之發散行為；(b) 對鑷鋁銅氧樣品，在超導態且高光激發功率密度時，其弛緩時間在低溫時近乎常數；反之，在極低的光激發功率密度下，其弛緩時間在低溫時有發散行為[51] -----	18
圖 2 -7 本計畫建立的飛秒級激發-探測系統簡圖 -----	19
圖 2 -8 激發光及探測光之偏振可調整(Φ_1, Φ_2)，亦可轉動樣品改變入射光的角度(θ) -----	20
圖 2 -9 (001)YBCO 薄膜在超導態的典型 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形	21
圖 2 -10 是(100)和 (110)YBCO 之 $\Delta R/R$ 隨不同軸向檢測、溫度和延遲時間的變化情形 -----	21
圖 2 -11 對(001) (100)和(110)YBCO 薄膜在正常態和超導態之典型 $\Delta R/R$ 變化差異 -----	22
圖 2 -12 (a) 在 60K 時不同軸向的 $\Delta R/R$ 。(b)準粒子在不同軸向之弛緩時間隨溫度的變化，這些弛緩時間是利用公式適配 $\Delta R/R$ 的實驗數據而得 -----	24
圖 2 -13 (100) YBCO 滿氧(黑色正方形)和缺氧樣品(藍色正方形框)的遲緩時間隨溫度變化情形。我們並採用 Kabanov 所提出的理論方	

程式來做適配(紅色實線和藍色虛線),發現量測的結果非常接近 適配之結果 -----	25
圖 2 -14 (110) YBCO 薄膜樣品,檢測沿 ab 對角線軸向,其遲緩時間隨 溫度變化情形。在滿氧時,沿著 ab 對角線軸向的弛緩時間,隨 著溫度降低而增加;而缺氧樣品,其增加的趨勢比滿氧樣品來 得快。紅色和藍色虛線係與 Kabanov 理論適配 -----	25
圖2 -15 即使不在極低的光激發功率密度的實驗條件下,我們的實驗數 據仍可得到和參考文獻[49,51]類似的弛緩行為 -----	26
圖 2 -16 歸一化的 $\Delta R/R$ 振幅隨溫度的變化。(a) (001) YBCO 薄膜 (b) 沿(100) YBCO 薄膜的 b 軸 (c) 沿(110) YBCO 薄膜的 ab 對角 線。圖中實線、虛線及點線分別為式(2)或式(3)的適配結果 -----	27
圖 2 -17 YBCO 氧含量為 6.76 時的 $\Delta R/R$ 振幅 隨溫度的變化圖,圖中實 線及虛線分別為式(2)或式(3)的適配結果 -----	28
圖 2 -18 YBCO 在不同軸向之超導能隙與偽能隙,隨著不同的載子濃度 之變化情形,圖中十字符號數據部份,為 Demsar 所得到的結果 -----	29
圖 2 -19(a) (100) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜電阻與溫度關係圖 -----	30
圖 2 -19(b) (001) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 電阻與溫度關係圖 -----	31
圖 2 -19(c) (100) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜 XRD 圖 -----	31
圖 2 -19(d) (100) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜樣品 AFM 圖 -----	32
圖 2 -20 不同溫度下,檢測光電場平行(100) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜(010) 軸的瞬時反射率($\frac{\Delta R}{R}$)變化, (E//b-axis) -----	33
圖 2 -21 不同溫度下,檢測光電場平行(100) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜(001) 軸的瞬時反射率($\frac{\Delta R}{R}$)變化, (E//c-axis) -----	34
圖 2 -22 不同溫度下, (001) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 滿氧薄膜的瞬時反射率 ($\frac{\Delta R}{R}$)變化。激發與探測光束偏振方向互相垂直 -----	35
圖 2 -23 不同溫度下, (001) $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 滿氧薄膜的瞬時反射率 ($\frac{\Delta R}{R}$)變化。激發與探測光束偏振方向互相垂直 -----	36

圖 2-24 不同溫度下，(001) $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 缺氧薄膜的瞬時反射率 $(\frac{\Delta R}{R})$ 變化。激發與探測光束偏振方向互相垂直 -----	37
圖 2-25 (001) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜， $\frac{\Delta R}{R}$ 振幅大小與溫度關係 -----	38
圖 2-26 (100) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜， $\frac{\Delta R}{R}$ 大小與溫度關係 -----	39
圖 2-27 $Y_{0.899}Ca_{0.101}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ， $\frac{\Delta R}{R}$ 大小與溫度關係 -----	39
圖 2-28 (100) $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜， $\frac{\Delta R}{R}$ 大小與溫度關係 -----	40
圖 2-29 超導能隙($\Delta(T)$)與偽能隙(Δ_p)之實驗所得的相圖，黃鶴色虛線反比於 p (載子濃度)；紅色虛線為目視 -----	41
圖 3-1 Double-exchange 示意圖 -----	42
圖 3-2 $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ 之溫度對電阻的關係圖與 X-ray 繞射圖 -----	43
圖 3-3 $La_{0.42}Ca_{0.58}MnO_3$ 之溫度對電阻的關係圖與 X-ray 繞射圖 -----	44
圖 3-4 $La_{0.7}Ce_{0.3}MnO_3$ 之溫度對電阻的關係圖與 X-ray 繞射圖 -----	44
圖 3-5 $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ 在不同溫度下的 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形 --	45
圖 3-6 $La_{0.42}Ca_{0.58}MnO_3$ 在不同溫度下的 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形--	46
圖 3-7 $La_{0.7}Ce_{0.3}MnO_3$ 在不同溫度下的 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形 --	47
圖 4-1 利用飛秒級雷射脈衝產生兆赫電磁輻射的實驗裝置圖 -----	49
圖 4-2 由於 YBCO 薄膜在超導態時，超導載子會因外受輻射光下，引起薄膜本身動態電感的變化(kinetic inductance)，使得原來入射之輻射時域波形會有再成形(pulse reshaping)的現象 -----	50
圖 4-3 兆赫波輻射時域暫態波形對不同量測溫度的變化關係 -----	50
圖 4-4 藉由適當的轉換函數 $T(\omega)$ ，可模擬出輻射時域波形的變化，並與實驗數據結果相符合 -----	51
圖 4-5 經由轉換函數 $T(\omega)$ 轉換後，其不同溫度時之原始輻射電場時域波形 -----	51
圖 4-6 光激發超導體產生兆赫輻射的源由是來自於超導電流密度隨時間的調變，從這些時間解析量測所獲得的兆赫瞬間電場輻射波形，	

可以得到載子在非平衡狀態下的動力行為	52
圖 4-7 SI-GaAs THz 輻射時域暫態波形和輻射場振幅與外加偏壓的關係	54
圖 4-8 SI-InP THz 輻射時域暫態波形和輻射場振幅與外加偏壓的關係	54
圖 4-9 早期與改進後得到的 THz 訊號比較	55
圖 4-10(a)早期系統 THz 訊號的訊雜比；(b)改進後系統 THz 訊號的訊雜比	55
圖 5-1 YBCO 薄膜複數折射率與溫度之關係	57
圖 5-2 YBCO 複數介電係數 ϵ^* 實部與溫度之關係	58
圖 5-3 YBCO 複數介電係數 ϵ^* 虛部與溫度之關係	58
圖 5-4 YBCO 薄膜之複數電導率 σ^* 實部與溫度之關係	59
圖 5-5 YBCO 薄膜之複數電導率 σ^* 虛部與溫度之關係	59
圖 5-6 YBCO 薄膜倫敦穿透深度 λ_L 隨溫度變化的情形	60
圖 6-1 THz 輻射時域訊號與頻域訊號：(1)室溫沒有去水氣沒有多重反射； (2)室溫去水氣下且沒有多重反射；(3)室溫去水氣下且有多重反射	61
圖 6-2 THz 經過自由空間的時域訊號以及 THz 輻射波經由鈹鎳氧(NGO)基板後得到之(a)穿透的輻射波訊號及(b)頻譜分布	62
圖 6-3 THz 經過 (NGO)基板及 LCMO 薄膜後得到之(a)穿透的輻射波訊號及(b)對應頻譜分布	62
圖 6-4 LCMO/NGO 之實驗透射係數比	63
圖 6-5 (a)不同溫度之下的複數折射率實部，(b)不同溫度之下的複數折射率虛部之頻率響應	63
圖 6-6 不同溫度下的複數介電函數虛部之頻率響應	64
圖 6-7 用 Drude Model 解釋 LCMO 薄膜在低溫之金屬行為，並使用數學擬合得(a)散射率(b)電漿頻率對溫度的關係圖	65
圖 6-8 LCMO 薄膜在不同溫度下的光學電導率實部之頻率響應	66
圖 6-9 LCMO 薄膜電導率實部在 0.7THz 隨溫度變化的關係	66

I、本子計畫綜合概述

超快雷射技術的快速發展，為我們提供了前所未有的超短、超強、超解析的實驗條件，如超高功率密度($>10^{20}\text{W}/\text{cm}^2$)、超高電磁場強度($>10^{11}\text{V}/\text{cm}$ 和 $>10^9\text{G}$)、超短光脈衝和超高時間解析度($<1\text{fs}$)、超高溫(10^9K)和超高壓(10^8bar)等，使得在雷射和光學物理、原子凝態物理、化學、光纖訊息通訊、生物醫學、能源、電子等各領域的研究，有更嶄新的突破性發展[1]。

在凝態物理方面，利用超快光譜技術研究半導體的電子動力行為，是很重要的研究項目。它對這些材料的電子-電子散射、電子-聲子散射、電子傳輸、聲子同調效應(coherent effect)、洞悉化合物或異質介面結構的量子集聚效應(effect of quantum confinement) [2]等之瞭解有很大的貢獻。最近，利用超快技術，對半導體之光激載子分布[3、4]產生多體相關性(many-body correlations)方面，有更深入之瞭解。

同樣地，利用超快光譜技術，對傳統金屬材料，如金、銀等之研究電子-電子散射、電子-聲子散射過程之基本物理特性，亦有深入之探討[5-7]。且伴隨著超快雷射技術之發展，與其在金屬和半導體之基本物理特性探討之應用，超快光譜技術在強關聯電子材料之研究，包含高溫超導體和巨磁阻等過渡金屬氧化物，亦有其重大之優點。掀起這方面研究的熱潮，是從不同摻雜的過渡金屬高溫超導體的研究開始，包含晶體和薄膜成長、許多特殊的精密量測技術等，均應用到此材料之研究。相關的研究，亦延伸到其他不同摻雜的過渡金屬氧化物，尤其是龐磁阻過渡金屬氧化物。追根究底，這些研究，主要是希望能瞭解這些材料之晶格、自旋、電荷、軌道自由度之間如何相互作用，而決定這些材料的基態特性。就其本身而論，建立實驗的技術能拆散不同交互作用的過程，進而闡明這些相互競爭自由度的貢獻程度，是很重要的。

本整合計畫之固態研究群，自 1990 年起，即利用脈衝準分子雷射蒸鍍，製備高溫超導、龐磁阻、壓電、氮化鈦、氧化鈦、鈦酸鋇、鈦酸鋁等材料的薄膜，並利用低功率超快雷射系統研究高溫超導體的準粒子動力行為、電子-聲子耦合行為、電子能帶結構(費米能階位置)、超導能隙與偽能隙之對稱性，超導物理機制、產生兆赫波和研究高溫超導體之電磁特性隨溫度與頻率的變化等[8-35]，已

累積相當多的超快雷射光譜量測的經驗和成果。

在上三年計畫[36]中，我們即利用飛秒級超快雷射光源和極化激發-探測量測技術，來量測分析在不同溫度下，不同氧含量釔系薄膜($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$)，在不同極化光激發-探測下的 $\Delta R/R$ 大小。並詳細分析這些量測到的 $\Delta R/R$ ，隨不同軸向和溫度的變化曲線，得到各向異性的超導能隙(superconducting gap)和偽能隙(pseudogap)的資訊。我們亦利用飛秒級超快雷射光激發半導體或高溫超導體製作光致兆赫波輻射產生源，且利用自由空間電光取樣技術量取高溫超導薄膜在以飛秒脈衝雷射激發下，產生之 THz 輻射的時域暫態波形。

在本三年度整合計畫中，我們除了繼續超快光譜量測技術應用於超導薄膜外，亦應用於龐磁阻錳氧化物等材料的研究，完成的工作項目如下所列：

- (1) 改進雷射激發光源、時間解析光激發-光檢測系統和兆赫波時域光譜量測系統。
- (2) 研究釔系高溫超導薄膜的時間解析激發-探測量測。
- (3) 研究在不同溫度下龐磁阻(CMR)薄膜的時間解析激發-探測量測。
- (4) 利用各種材料產生兆赫電磁輻射之研究。
- (5) 研究時域泰拉赫茲頻譜量測釔鋁銅氧超導薄膜的高頻響應特性。
- (6) 研究時域泰拉赫茲頻譜量測鑷鈣錳氧薄膜的高頻響應特性。

以下章節將針對上述項目作詳細的報告。

II、本子計畫工作內容詳述

一、改進雷射激發光源和時間解析光激發-光檢測系統

圖 1-1 是光激發-光探測實驗的概念圖，一束中心頻率為 ω_1 的飛秒級超快脈衝聚焦後入射至樣品，使樣品的載子分布瞬間產生急劇變化，這些變化可由不同時間入射的另一束較弱、中心頻率為 ω_2 的飛秒級超快脈衝檢測。激發與檢測兩者脈衝之時間差可利用精密的機械移動平台控制，以便量測整個弛緩過程中，物理量隨時間的變化情形。一般激發-探測實驗中，量測的物理量為經樣品的瞬時反射率或穿透率的變化。事實上，當樣品受超快光激發時，其熱效應使樣品內部的變化，是相當複雜的，光激發-光探測所量測的瞬時反射率(或對應的介電函數、導電率等)是所有弛緩過程的綜合結果，所以分析量測到的弛緩行為，是有其困難度，除非其弛緩時間可以顯著地分開。但無論如何，這些量測結果與材料在非平衡狀態下的載子動力行為，有密切的關係存在。

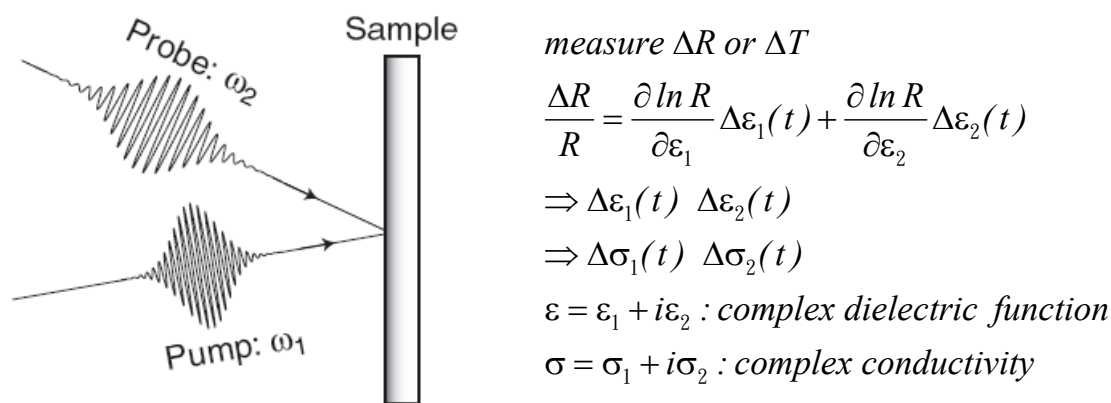


圖 1-1 光激發-光探測實驗的概念圖

我們原先使用一部氬離子雷射(Ar^+ Laser)作為鈦藍寶石雷射之激發光源(Pumping source)。但是，由於氬離子雷射，在長時間的使用之後，會造成光輸出不穩定，進而使得鈦藍寶石雷射輸出光能量不穩定，甚至無法鎖模之情形。

在購新固態雷射經費被刪的情形之下，為解決此一問題，我們便與本系褚德三老師進行合作。在搬遷至新館舍(工六館)後，便重新架設超快光源系統，使用褚老師之固態雷射為光激發源。在系統更新之後，我們終於得到了品質較穩

定之超快雷射光源。目前，超快雷射光源之輸出能量，在鎖模狀態約為 600mW，比原本使用氬離子雷射之 350mW 高出不少。並且，由於固態雷射之穩定性，在長時間的使用之後，不再出現出光能量不穩定，甚至無法鎖模之情形產生。

在激發探測系統中，由於所需之信號甚為微弱，幾乎為雜訊所埋沒。實驗時為得到良好的 S/N 比，所以在數據量取過程當中必須使用鎖相放大器。使用鎖相放大器，必須先對所要量測之信號做調制之動作。越高頻的環境當中，存在之背景雜訊越低。因此，若鎖相放大器調制之頻率越高，越能夠濾除環境中之背景雜訊。故我們將系統作部份之改進：

a. 更新高頻之鎖相放大器

舊系統當中，所使用的鎖相放大器為 Stanford Research SR830，其最高可用之調製頻率為 102.4kHz。改進之系統中，我們已將其更換為 Stanford Research SR844 鎖相放大器。配合聲光調製器(AO-modulator)之使用，可將信號調製頻率提升到 1MHz 左右。

b. 時間延遲平移台之更新

我們將激發探測系統當中，用來作為時間延遲的平移台，更新為 Newport PM500。Newport PM500 為高解析度之精密平移台，其解析度可達 0.1 μ m，高於原使用之平移台的解析度 1 μ m。

我們完成以上兩部份之系統更新，並完成實驗量測所使用之 Labview 儀器控制程式之改寫。完成以上更新，可以大幅提升激發探測系統之訊雜比，可量測的瞬態反射率變化能力為 $\Delta R/R < 10^{-6}$ 。

二、研究釔系薄膜 ($Y_xCa_{1-x}Ba_2Cu_3O_7$) 的時間解析激發-探測光譜量測

(一) 利用極化可調飛秒級激發-探測光譜技術研究釔鋇銅氧超導薄膜準粒子動力學的二向性行為(Study of Spatial Dichotomy of Quasiparticle Dynamics in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ Superconducting Thin Films by Polarized Femtosecond Spectroscopy)[10]

自 1968 發現高溫超導體以來，有許多關鍵的問題仍存在著爭議和相互矛盾，如：1.超導能隙和偽能隙的對稱性和它們之間的關聯性(互相協合？互相競爭？互相獨立？相輔相成？前因後果？等)；2.高溫超導體相圖及理論模型；3.高溫超導電子配對和機制等[37]。

至今全世界，無論是理論或實驗、均投入龐大的資源和努力，希望能早日揭開高溫超導體神秘的面紗。在實驗方面，有許多先進精密的量測技術，用來研究高溫超導薄膜：如三晶超導薄膜相敏穿隧(phase-sensitive tunneling in tricrystal cuprates)、微波量測、富氏轉換遠紅外線光譜、兆赫波時域光譜、掃描穿隧顯微技術、角度解析光放射光譜、超快光譜、中子繞射、磁核共振、同步吸收光譜等[38-43]。

角度解析光放射光譜(ARPES)是研究高溫超導物理機制和電子結構，最重要的工具之一。由於其能量和角解析能力不斷地提高，樣品的品質亦不斷地改進，ARPES 已可以觀察到在不足的摻雜(underdoped)樣品時，準粒子沿節線(nodal line)和反節線(antinodal line)間的二向性行為[43-45]。沈志勳教授首先用二向性(dichotomy)此術語，描述在動量空間中，沿節線和反節線的電子激發特性有顯著的差異。他們發現，對不足的摻雜樣品量測，沿節線的方向有明顯的準粒子尖峰存在；而沿反節線方向，僅有寬廣的準粒子能量分布[43](圖 2-1)。

掃描穿隧顯微技術亦是研究高溫超導表面狀態、電子結構和穿隧光譜等，重要的工具之一。利用掃描穿隧顯微技術觀察非常平整的原子級表面的微量摻雜鈉鈣銅氧氯 (Na-CCOC) 樣品，發現有二維電荷有序現象，他們稱之為棋盤式的電子晶體(圖 2-2) [46]。但這些在真實空間觀察的結果與 ARPES 在動量空間觀察的結果又有顯著的不同，稱為兩者之二向性行為[43]，兩者之間的關連性，是科學家急需解答的問題。

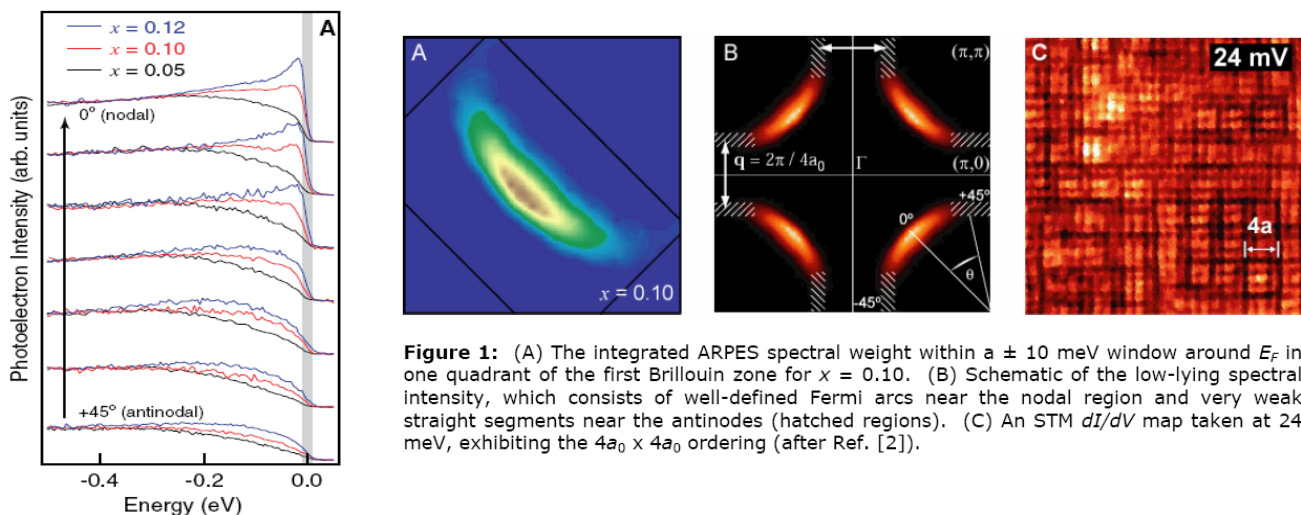


Figure 1: (A) The integrated ARPES spectral weight within a ± 10 meV window around E_F in one quadrant of the first Brillouin zone for $x = 0.10$. (B) Schematic of the low-lying spectral intensity, which consists of well-defined Fermi arcs near the nodal region and very weak straight segments near the antinodes (hatched regions). (C) An STM dI/dV map taken at 24 meV, exhibiting the $4a_0 \times 4a_0$ ordering (after Ref. [2]).

圖 2-1 角度解析光放射光譜量測準粒子沿節線和沿反節線方向之能量分布

圖 2-2 利用角度解析光放射光譜量測和掃描穿隧顯微技術觀察微量摻雜鈉鈣銅氧氣

(Na-CCOC) 樣品之結果，c 圖為二維電荷有序現象，稱之為棋盤式的電子晶體[43]

另一種重要的研究超導配對機制方法，即設法將超導 Cooper 對分開，再觀察它們如何再結合成 Cooper 對。為達到上述目的，最簡單有效的方法，即利用超快激發-檢測技術。

在本計畫中，我們利用極化超快光譜技術配合軸向分明的高溫超導薄膜樣品，可以量測到不同軸向的準粒子弛緩行為和能隙有顯著的差異，我們亦稱為準粒子弛緩之二向性行為[10]。在介紹準粒子弛緩之二向性行為之前，我們先介紹超快激發檢測技術應用到高溫超導樣品量測的基本原理。

飛秒級光激發-光探測實驗的概念，在II之一節已介紹，而超導體在超導態時的光激發和弛緩過程又稍加複雜，其過程簡述如下(圖 2-3)：入射光子將 Cooper 對分開，並產生帶著高能量之準粒子；高能量之準粒子經由電子-電子和電子-聲子散射，而形成低能量之準粒子分布；在一般激發檢測的條件下(見後面說明)，準粒子弛緩的過程和時間，由強聲子瓶頸效應 (strongly phonon bottleneck effect) 主導，即兩個準粒子結合形成 Cooper 對，且放出能量大於 2Δ 的聲子，此聲子又被 Cooper 對吸收，而分離成兩個準粒子。如此重複循環，直到聲子能量小於 2Δ ，且經由基板擴散到其他環境中，而回復到起始狀態。對 d-wave 超導體而言，準粒子產生所須的能量，亦與動量大小方向有關，所以尚可能存在其他弛緩過程，而使問題變得更複雜。

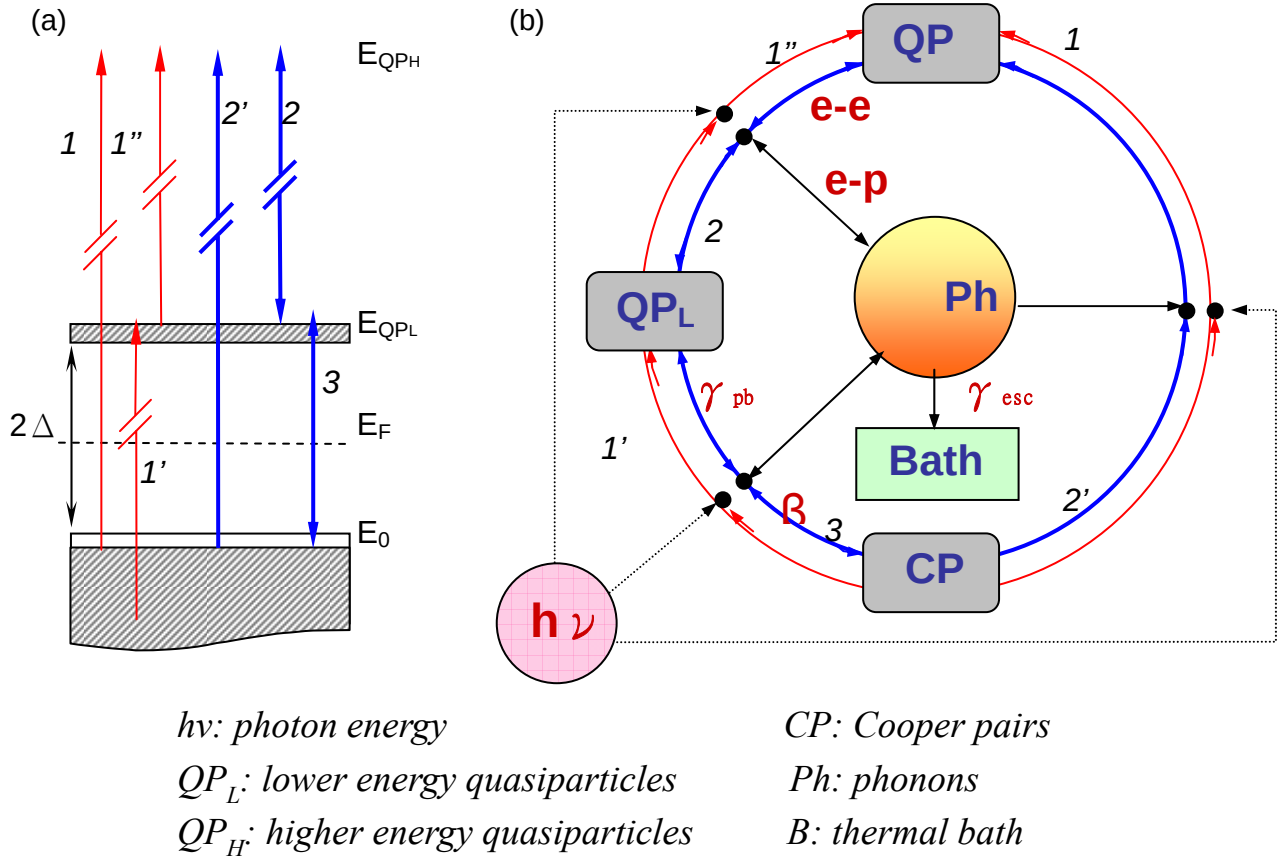


圖 2-3 超導體在超導態時的光激發和弛緩過程示意圖 [Prof. Lou Ph.d thesis]

在理論上，準粒子數和能量大於 2Δ 之聲子數之變化率可由 Rothwarf-Taylor (RT) 方程式描述[47-48]：

$$\frac{dn_{QP}}{dt} = I_{QP} + 2\gamma_{pb}N_{ph} - \beta n_{QP}^2$$

$$\frac{dN_{ph}}{dt} = I_{ph} + \frac{1}{2}\beta n_{QP}^2 - \gamma_{pb}N_{ph} - (N_{ph} - N_{ph}^0)\gamma_{esc}$$

where $n_{QP} = n_{QP}^0 + n_{QP}^* = \text{no. densities of quasiparticles (QP)}$

$$= QP_{\text{at thermal equilibrium}} + QP_{\text{photoexcited}}$$

$$N_{ph} = N_{ph}^0 + N_{ph}^*$$

= no. densities of phonons (ph) (with energy $> 2\Delta$)

$$= ph_{\text{at thermal equilibrium}} + ph_{\text{photoexcited}}$$

I_{QP} = external generation rate of QP by laser pulse

I_{ph} = external generation rate of ph by laser pulse

γ_{pb} = Cooper pair breaking rate

β = pair recombination rate

γ_{esc} = phonons escaping rate (to thermal bath)

在不同的實驗條件(溫度、激發功率密度、光極化方向、磁場、摻雜量等)下，解此非線性耦合微分方程式，可獲得許多重要的資訊，如聲子和準粒子數隨時間變化情形、不同型式的弛緩過程特性和復合率(recombination rate)等[48]。在常見的實驗條件下(光激發功率密度大於 $3 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ，但產生的準粒子約為總準粒子數之百分之十以下)，弛緩過程主要由強聲子瓶頸效應主導，此時弛緩時間 τ 的特性為 a. 與光激發功率密度無關；b. 溫度自低溫區靠近臨界溫度 T_c 時， τ 會有發散現象；c. 溫度在低溫區， τ 近乎常數。反之，依據最近一些實驗結果報導[14, 49-51]，顯示在極低光激發功率密度條件下(小於 $1 \mu\text{J}/\text{cm}^2$)，弛緩時間在低溫區，會有發散現象，且與光激發功率密度有關。但是，不同研究群對此弛緩時間之發散現象和其對應之弛緩過程之解釋莫衷一是。

如 Segre 等研究群[49-50]利用特殊的摻雜不足 YBCO OrthoII樣品作光激發檢測實驗，發現在極低的光激發功率密度下，其弛緩時間與光激發功率密度和溫度均有關(圖 2 -4 和圖 2 -5)。他們認為在此條件下，準粒子的弛緩過程與高光激發功率密度激發的弛緩機制不同，此時熱效應為其主要的弛緩過程(也就是說，兩個準粒子結合形成 Cooper 對時，非釋出能量大於 2Δ 的聲子，而是自旋擾動之能量[49])。依此理論，可得到弛緩率($=1/\text{弛緩時間}$)與 T^3 的關係，亦對應節線上準粒子的弛緩行為。

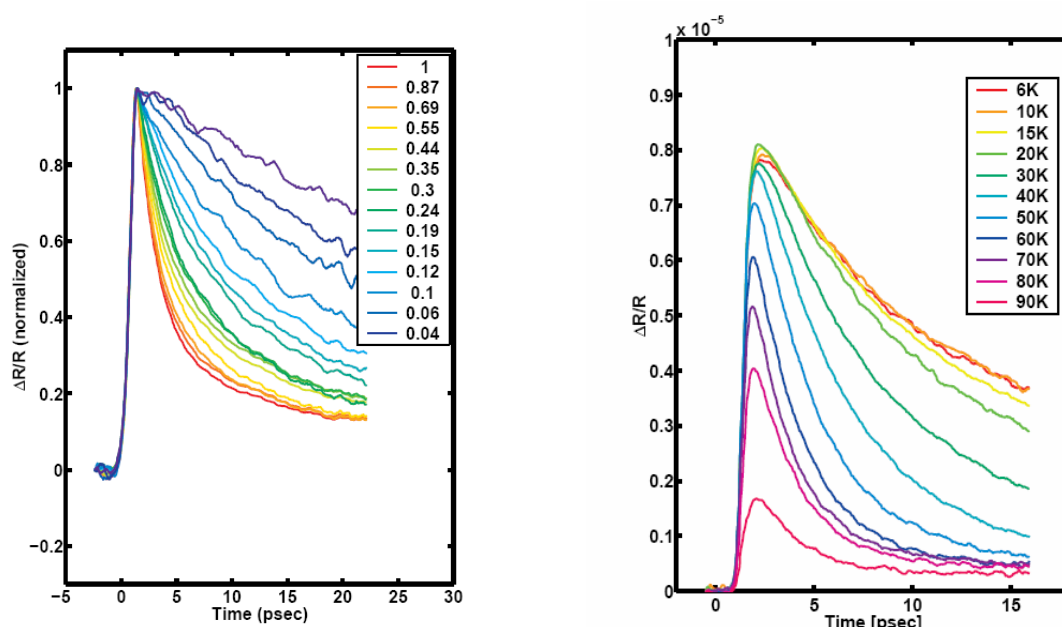


圖 2 -4 Segre 等研究群[49]利用特殊的摻雜不足 YBCO OrthoII樣品作光激發檢測實驗，發現在極低的光激發功率密度下，其弛緩時間與光激發功率密度和溫度均有關

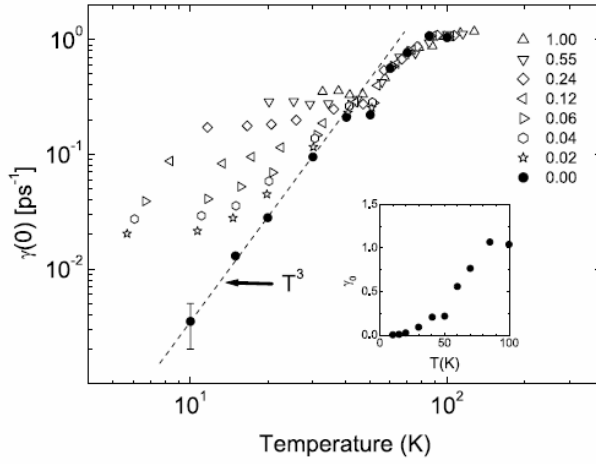


FIG. 4. Initial decay rate $\gamma(0)$ vs T at fixed I (open symbols). Decay rate in low I limit, γ_{th} , vs T (solid symbols in main panel and inset).

圖 2-5 在不同的低光激發功率密度下，其弛緩率與溫度的關係[49]

尚有其他四個研究群，包含 Schneider [51]等，亦作極低的光激發功率密度的光激發檢測實驗，但使用各種超導和非超導的銅氧化合物，他們發現，無論是金屬態、絕緣態或超導態的樣品，均顯示其弛緩時間與 $T^{-3 \pm 0.5}$ 有關之發散行為(圖 2-6)。他們列舉五種可能的弛緩機制：1. 類似重費米子之弛緩行為；2. 超導態在極低的光激發功率密度之弛緩行為；3. 傳統金屬二溫度模型之理論預測；4. 電子聲子散射隨光激發功率密度之變化之弛緩行為；5. 樣品空間不均勻因素等之弛緩行為。他們亦發現，對鑰鑰銅氧樣品，在超導態且高光激發功率密度時，其弛緩時間在低溫時近乎常數，故其弛緩行為遵行強聲子瓶頸效應；反之，在極低的光激發功率密度下，其弛緩時間在低溫時有發散行為，而對應非超導的準粒子弛緩行為。由以上實驗結果，他們傾向於利用樣品空間不均勻因素，來解釋極低光激發功率密度下的光激發檢測弛緩行為。

然而，所有這些光激發檢測實驗，有一個很嚴重的缺點，即無法單獨檢測沿節線方向的準粒子的弛緩行為，即使使用無 twin 的單晶體和極化可調的檢測光，因為極化檢測光方向沿節線方向時，仍包含等量沿 a 和 b 軸的光學反應，而非真正的沿 ab 對角線(ab diagonal)方向的準粒子光學反應。所以上述光激發檢測實驗，不同的弛緩過程均混在一起，故只可能利用改變光激發功率密度來分離不同的弛緩行為。本計畫之重點之一，是製備軸向分明的(100)和(110)薄膜，使我們可以很清楚地分離沿節線方向和沿反節線方向的光學反應，進一步得到各向異性的準粒子弛緩行為和其能隙之對稱分布。

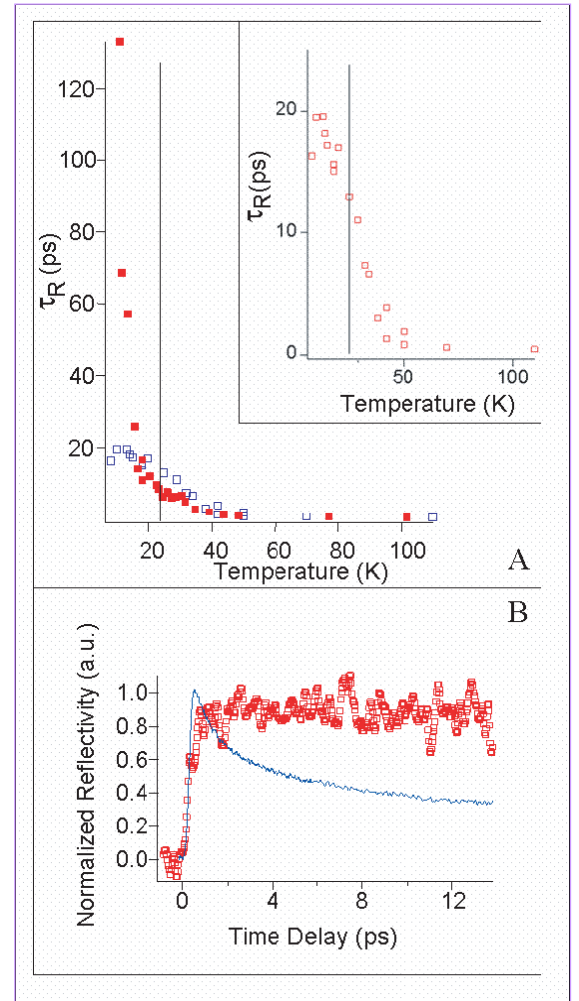
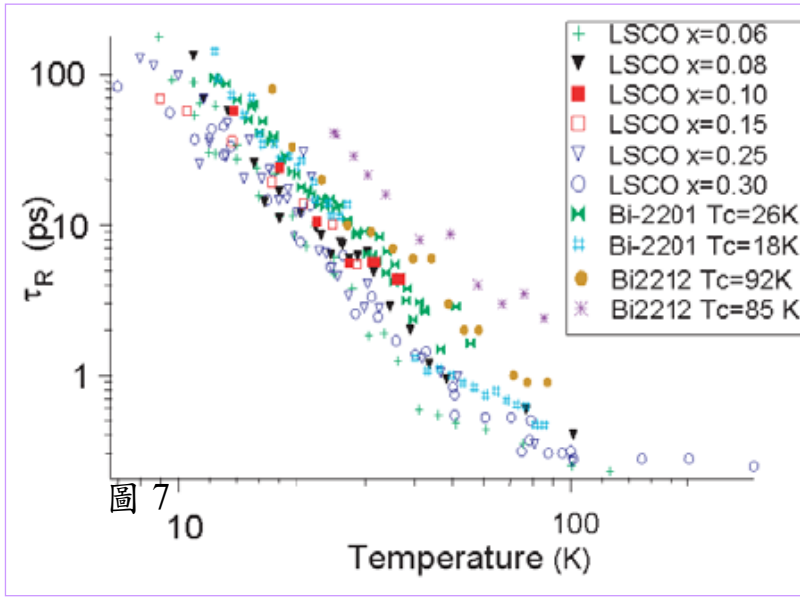
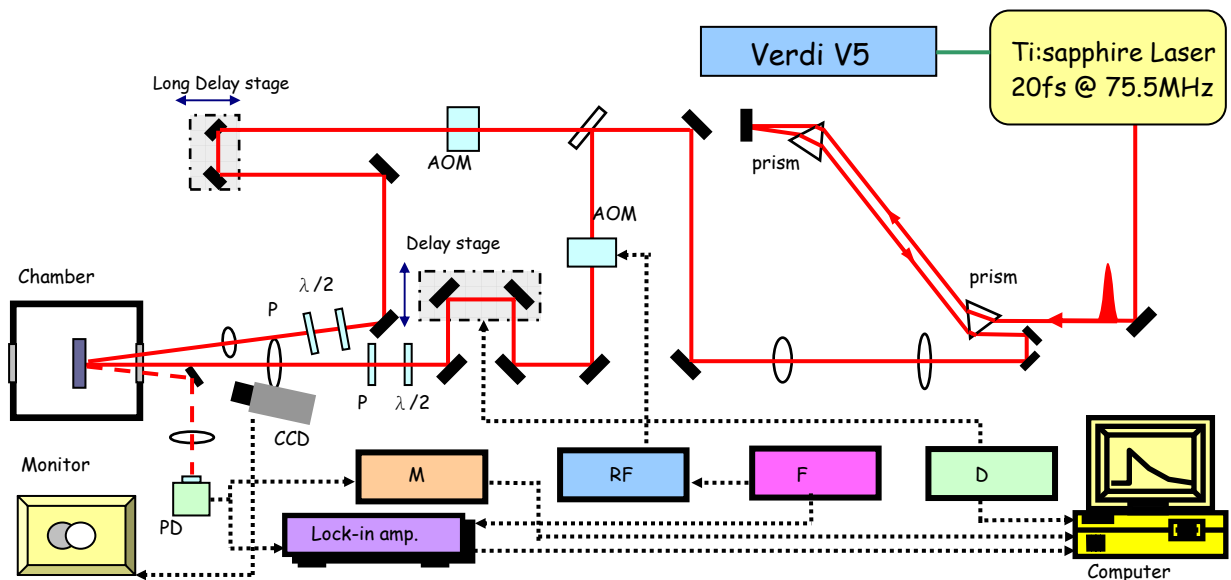


圖 2 -6 (a) Schneider 的實驗結果：無論是金屬態、絕緣態或超導態的樣品，均顯示其弛緩時間與 $T^{-3 \pm 0.5}$ 有關之發散行為；(b) 對鏷銅氧樣品，在超導態且高光激發功率密度時，其弛緩時間在低溫時近乎常數；反之，在極低的光激發功率密度下，其弛緩時間在低溫時有發散行為[51]。



AOM : Acousto-Optic modulator, P : Polarizer,
 PD : Photo Detector, M : Multimeter, RF : RF Driver
 F :Function Generator, D : Delay Stage Controller.

圖 2 -7 本計畫建立的飛秒級激發-探測系統簡圖

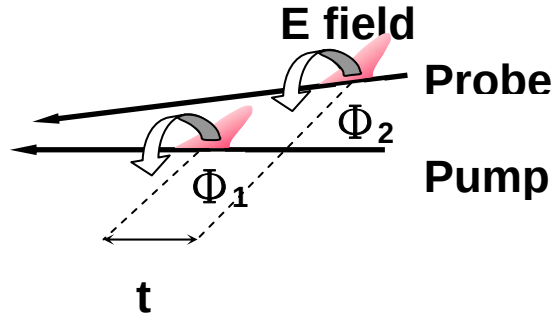
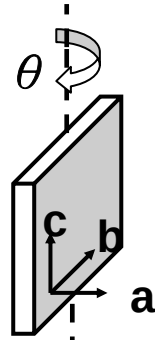
圖 2 -7 為我們實驗室建立的飛秒級激發-探測系統簡圖，光源為奧地利 Femtolaser 公司生產的鎖模鈦-藍寶石雷射。其輸出的脈衝寬度可低至 20 fs，重複率為 80MHz，而波長為 780nm。此雷射的激發光源為 Coherent Inc. Verdi 型固態 Nd 雷射。利用分光鏡將脈衝雷射光束分成較強的激發光及較弱的探測光。其中探測光經過一時間延遲器(精密的機械移動平台 Newprot PM500，其解析度可達 0.1 μ m)，以控制探測光脈衝與激發光脈衝間的時間延遲。此外，激發光以大約 3°~30°的角度入射樣品；而探測光則以近乎垂直的角度入射樣品。經樣品反射的探測光變化則由光二極體偵測，再利用鎖相放大器將信號取出。低溫的量測則將樣品置於低溫設備中，光經由光窗入射至樣品並經由光窗反射或穿透。

本實驗系統另一特點是，激發光及探測光之偏振，可藉由光徑上之極化片和二分之一波片獨立調整(Φ_1 , Φ_2)，此外亦可轉動樣品改變入射光的角度(θ)，如圖 2 -8 所示。藉由上述的設計，我們可以量測樣品上任意晶軸方向的飛秒光譜。有關(100)和(110)釕系超導薄膜的製作量測和控氧程序等，請見上期結案報告和相關發表論文，在此不再贅述[36]。

所以綜合上述，利用極化超快光譜技術和軸向分明的(100)和(110)釕系超導薄膜，使我們可以很清楚地分離沿節線方向和沿非節線方向的光學反應，進一步得到準粒子弛緩之二向性行為和其能隙之對稱分布。

(1)

(100)YBCO



(2)

(110)YBCO

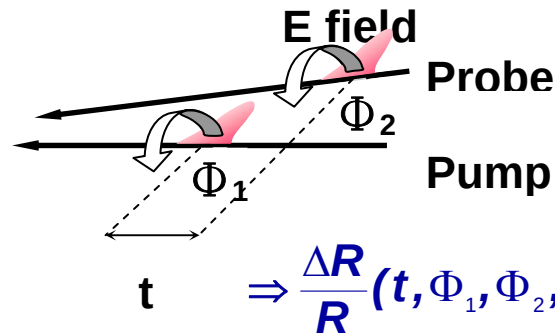
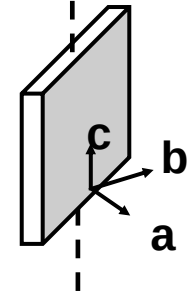


圖 2-8 激發光及探測光之偏振可調整(Φ_1, Φ_2)，亦可轉動樣品改變入射光的角度(θ)

圖 2-9 為 (001)YBCO 薄膜在超導態的典型 $\Delta R/R$ 隨延遲時間(delay line)的變化情形，一般而言，此曲線包含兩個分量(請見圖之插圖)，對應不同的弛緩過程，其中較快的分量，其弛緩時間(relaxation time)常數約在次皮秒；較慢的分量，其弛緩時間常數約在數皮秒左右。圖 2-10 是(100)和 (110)YBCO 在正常態和超導態的典型 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形，圖 a 顯示當檢測光沿 c 軸時即使在超導態時，其光學反應近乎零。其餘不同軸向薄膜的 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形，請參閱上期三年結案報告[36]。

綜所述之(圖 2-11)，對(001)YBCO 薄膜，因為 ab 軸向不能區分，所以從 $\Delta R/R$ 量測結果，只有平均的資訊可以獲得；對(100)YBCO 薄膜，且檢測光沿著 b 軸，則我們發現在超導態時， $\Delta R/R$ 的大小、弛緩時間常數和正負號，均有顯著的變化；對(110)YBCO 薄膜，且檢測光沿著 ab 對角線軸向，則我們發現，即使在超導態， $\Delta R/R$ 仍僅存在快分量。

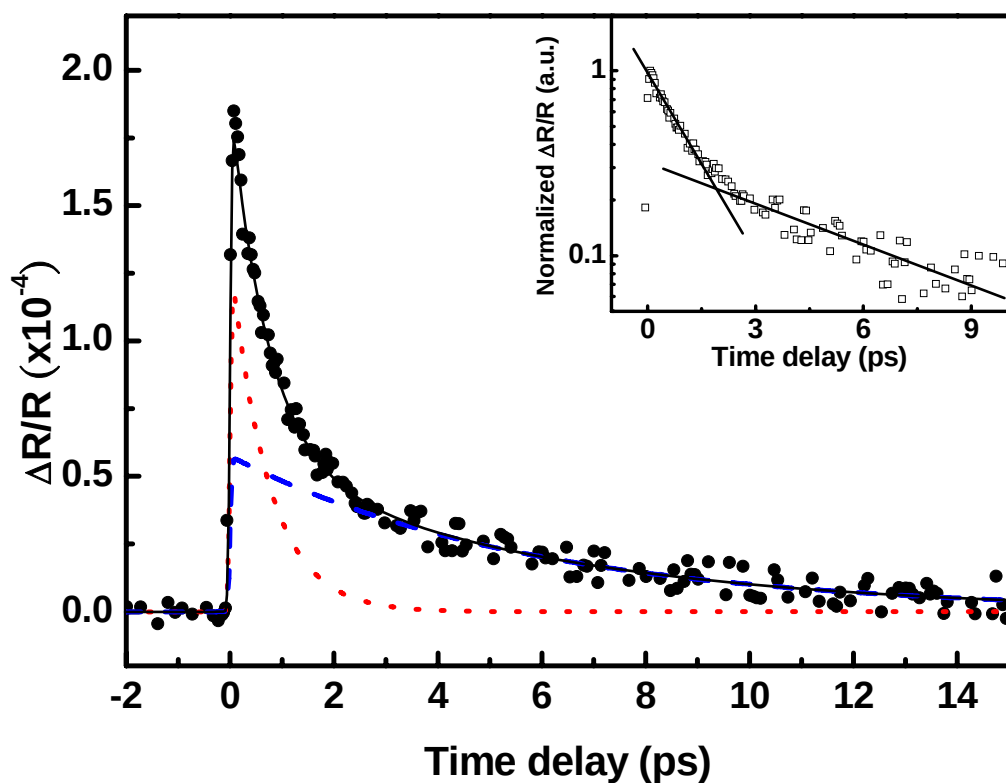


圖 2-9 (001)YBCO 薄膜在超導態的典型 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形

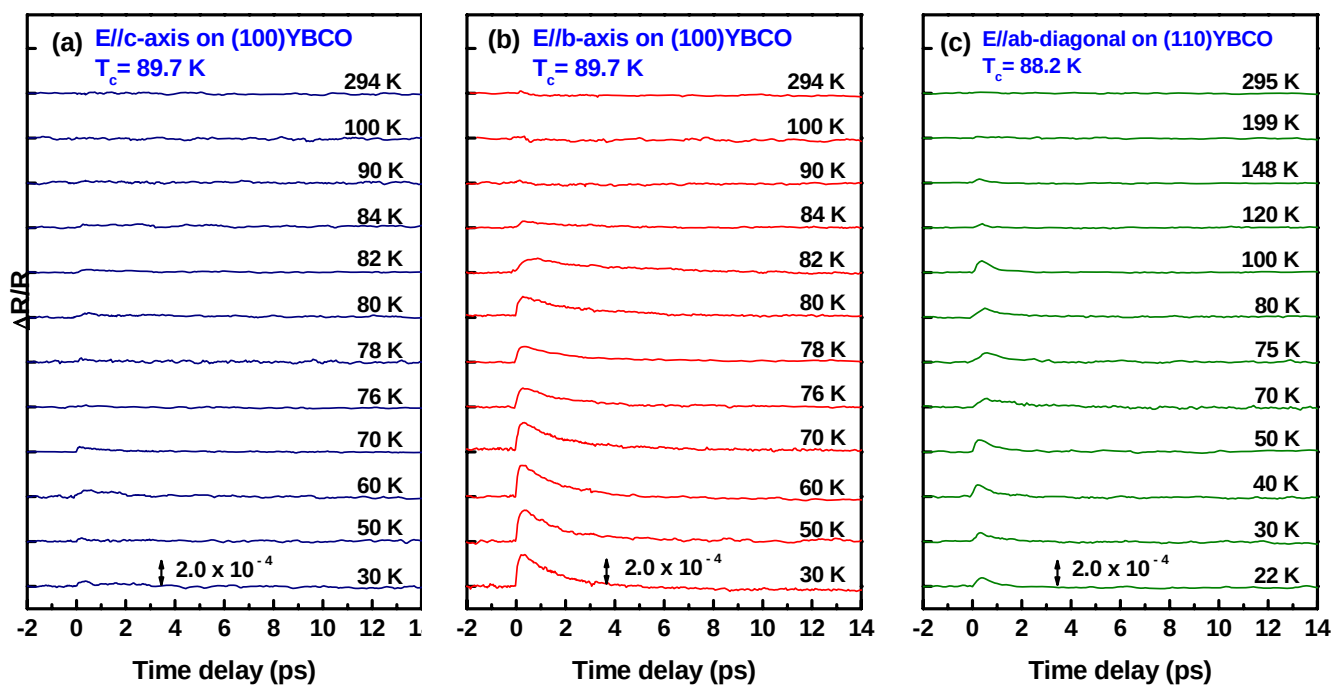
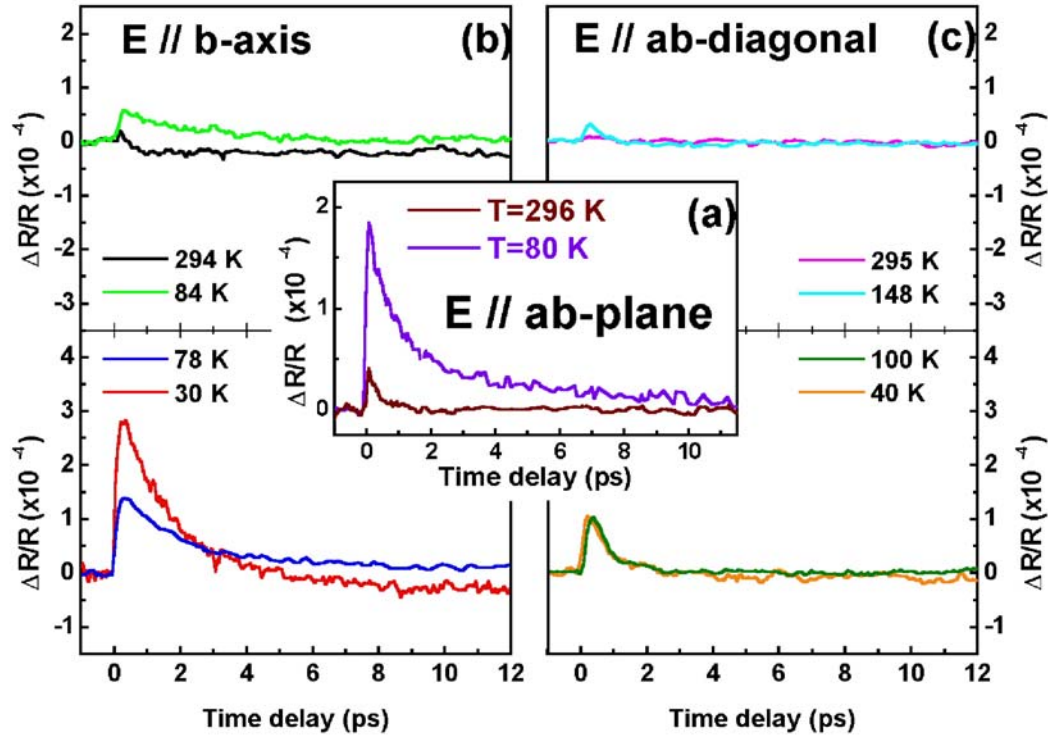


圖 2-10 是(100)和 (110)YBCO 之 $\Delta R/R$ 隨不同軸向檢測、溫度和延遲時間的變化情形



Luo et al.-- Fig. 1

圖 2-11 對(001) (100)和(110)YBCO 薄膜在正常態和超導態之典型 $\Delta R/R$ 變化差異

依據 Kabanov 的理論分析 [52]， $\Delta R/R$ 的大小與光激發準粒子數成正比，且可以分成下列兩個分量之疊加：

$$\frac{\Delta R}{R}(t) = A(T)e^{-t/\tau_A} + B(T)e^{-t/\tau_B} \quad \text{-----} \quad (2-1)$$

(1)式中的 $A(T)$ 對應弛緩時間較慢的分量振幅，且對應與溫度變化有關的能隙，即超導能隙 $\Delta_c(T)$ ：

$$A(T) = \frac{\varepsilon_I / (\Delta_c(T) + k_B T / 2)}{1 + \frac{2\nu}{N(0)\hbar\Omega_c} \left(\sqrt{\frac{2k_B T}{\pi \Delta_c(T)}} \right) e^{-\Delta_c(T)/k_B T}} \quad \text{-----} \quad (2-2)$$

其中 ε_I 是入射的激發雷射脈衝在每單位晶胞之能量密度， ν 是與準粒子作用的聲子模(phonon modes)數目， $N(0)$ 是態密度(density of states)， Ω_c 則是典型的截止頻率。

而(1)式中的 $B(T)$ 對應弛緩時間較快的分量振幅，且對應與溫度變化無關的能隙，即偽能隙 Δ_p ：

$$B(T) = \frac{\varepsilon_I / \Delta_p}{1 + \frac{2\nu}{N(0)\hbar\Omega_c} e^{-\Delta_p/k_B T}} \quad \text{-----} \quad (2-3)$$

若能在不同溫度、對不同超導薄膜，精確量出這兩個弛緩時間常數，利用(1)式即可求出 $\Delta_c(T)$ 、 Δ_p 能隙。另外，由Kabanov的理論，亦可得到弛緩時間 τ_A 和 τ_B 與超導能隙和偽能隙的關係如下：

$$\tau_A(T) = \frac{\hbar\omega^2 \ln \left[\frac{1}{\varepsilon_I / 2N(0)\Delta(0)^2 + \exp(-\Delta(T)/k_B T)} \right]}{12\Gamma_\omega \Delta(T)^2} \quad \text{-----} \quad (2-4)$$

$$\tau_B(T) = \frac{\hbar\omega^2 \ln \left[\frac{1}{\varepsilon_I / 2N(0)\Delta_p^2 + \exp(-\Delta_p/k_B T)} \right]}{12\Gamma_\omega \Delta_p^2} \quad \text{-----} \quad (2-5)$$

$\Gamma_\omega \approx$ Raman phonon linewidth of A_{1g} -symmetry apical $O(4)$ phonon mode

$\varepsilon_I \approx$ the energy density per unit cell deposited by the incident laser pulse,

$N(0) =$ the density of state at E_F

在本計畫中，我們利用控氧技術將(100)和(110)YBCO 薄膜，分別從摻雜不足控制到最佳摻雜，並進行一系列完整而有系統的實驗。如此我們可經由 $\Delta R/R$ 大小隨溫度的變化曲線及載子弛緩時間常數隨溫度的變化曲線，利用(1)式精確求出各種軸向和摻雜量超導薄膜的超導能隙和偽能隙，以便探討鈮系超導薄膜準粒子動力學的二向性行為。

A. 弛緩時間二向性行為 (Dichotomy in Relaxation Time)[16]

針對弛緩時間，我們進一步作詳細分析。由對不同軸向的樣品量測的數據，可以清楚地比較準粒子在三個軸向上弛緩的行為，例如我們將 60K 的 $\Delta R/R$ 曲線換成對數座標，則圖 2-12 中沿 b 軸的 $\Delta R/R$ 會清楚展現兩個遲緩時間(也就是兩個斜率)，而沿 c 軸或 ab 對角線只有一個弛緩時間。這結果強烈顯示準粒子在 YBCO 中的弛緩過程是有方向性的。圖 14(b)清楚的顯示這個現象：當溫度低於 T_c 時，沿 b 軸弛緩的準粒子會比正常態時多出一個較慢的弛緩過程(τ_B 大約數個皮秒，ps)，而且越接近 T_c 時越大。這是由於超導能隙在接近 T_c 時變得比較小，導致準粒子回復成古柏對的效率變差，因此使這個與超導能隙有關的長弛緩時間在接近 T_c 時呈現發散的情形。但不管是沿 c 軸或 ab 對角線皆只有一個較快的弛緩時間(τ_A 大約次皮秒，sub-ps)。

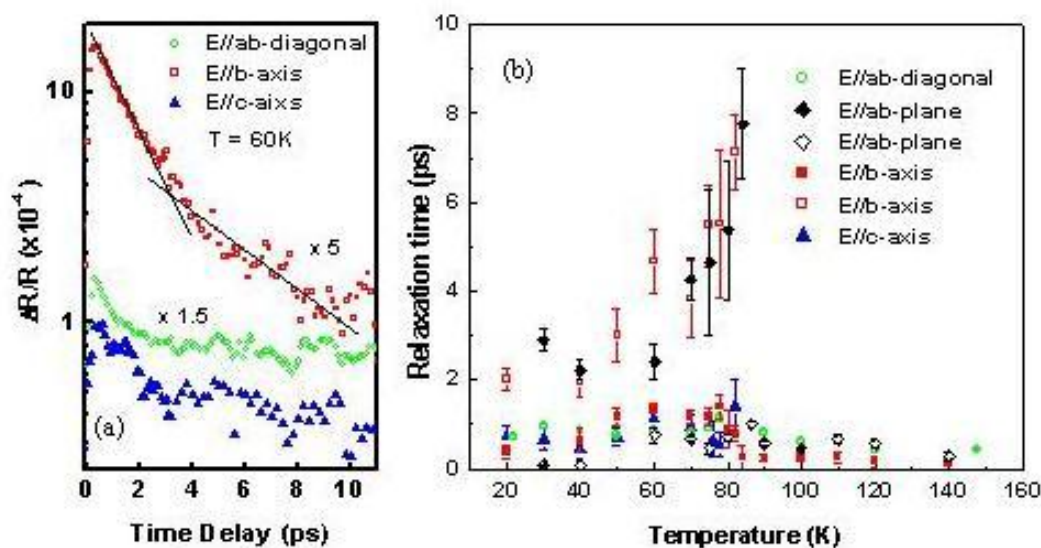


圖 2 -12 (a) 在 60K 時不同軸向的 $\Delta R/R$ 。(b)準粒子在不同軸向之弛緩時間隨溫度的變化，這些弛緩時間是利用公式適配 $\Delta R/R$ 的實驗數據而得。

我們亦分析對(001)YBCO 薄膜的量測結果，在 ab(銅氧)平面上也觀察到類似 b 軸的兩個弛緩時間，因為(001)薄膜的 a、b 軸在平行基板的平面上是隨機排列的，沒有特定的方向性，因此無法解析出各軸向上的準粒子弛緩行為，而只能獲得銅氧平面上各個軸向的平均結果。

另外，我們也對同一片樣品進行控氧的動作，並探討在不同氧含量的情形之下，弛緩時間對溫度的變化情形。對同一片樣品控制不同氧含量來做量測，可以確保弛緩時間變化情形，是因為氧含量的不同所造成，而非其他因素的影響所造成。

在(100) 滿氧樣品的時候，我們將激發探測光束調整平行 b 軸。量測的結果如圖 2 -13 中實心正方形圖示。我們可以清楚看到，當溫度從低溫往 T_c 逼近時，遲緩時間會有發散的趨勢。我們並採用 Kabanov 所提出的理論方程式來做適配，發現量測的結果非常接近適配之結果。

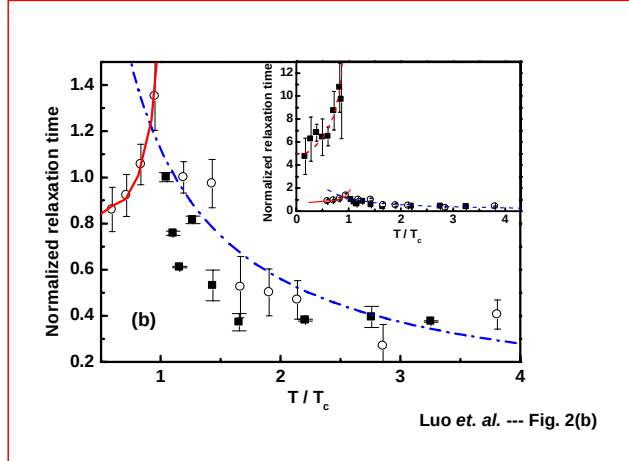
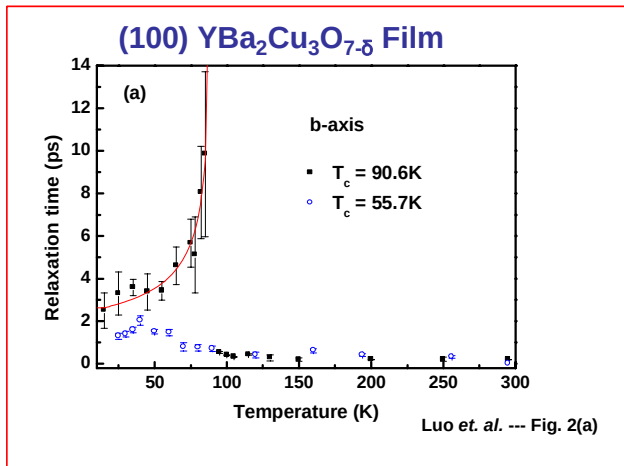


圖 2 -13 (100) YBCO 滿氧(黑色正方形)和缺氧樣品(藍色正方形框)的遲緩時間隨溫度變化情形。我們並採用 Kabanov 所提出的理論方程式來做適配(紅色實線和藍色虛線)，發現量測的結果非常接近適配之結果。

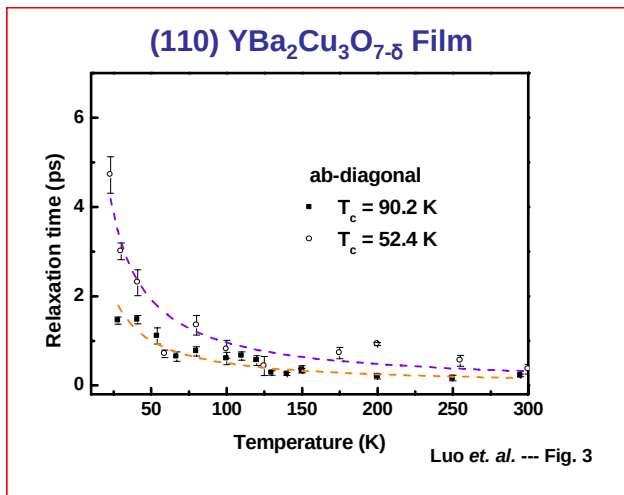


圖 2 -14 (110) YBCO 薄膜樣品，檢測沿 ab 對角線軸向，其遲緩時間隨溫度變化情形。在滿氧時，沿著 ab 對角線軸向的弛緩時間，隨著溫度降低而增加；而缺氧樣品，其增加的趨勢比滿氧樣品來得快。紅色和藍色虛線係與 Kabanov 理論適配。

由以上的結果，我們又再次的証實，在 ab 平面上銅氧化物超導體的各向異性特質。並且知道，這些變化是由一個與溫度有關的超導能隙 $\Delta(T)$ 和一個與溫度無關的偽能隙 Δ_p 所主宰。

當樣品是在缺氧的情形時，參考圖 2-13，沿著 b 軸方向的遲緩時間發散情形，變得比滿氧時來得小，而且整體的遲緩時間也比滿氧樣品來得短。經由適配可以得到 $\Delta(0) \sim 560K$ 。另外，比較特別的是，在 $T > T_c$ 的時候。在滿氧樣品中，沿著 b 軸方向的遲緩時間，在 $T > T_c$ 時是趨近一個定值；但在缺氧樣品當中，當 $T > T_c$ 時的情形，與沿著 ab 對角線軸向的情形類似。所以我們可以看出，準粒子的遲緩行為，是同時受到超導能隙與偽能隙兩者的影響。

現在我們進一步分析沿著 ab 對角線軸向的樣品，在缺氧時的情形。參考圖 2-14，在缺氧時，沿著 ab 對角線軸向的弛緩時間，還是一樣隨著溫度降低而增加，不過比較特別的是，增加的趨勢比滿氧樣品來得快。

綜合從(110)與(100)釷鉕銅氧樣品，分別控制其氧含量，量測不同軸向的激發探測實驗數據，由這些數據，我們得到沿 b 軸方向的遲緩時間—即沿節線方向的準粒子弛緩行為，與沿著 ab 對角線軸向的遲緩時間—即沿反節線方向的準粒子弛緩行為，有很大差異，顯示兩者弛緩過程的二向性行為。我們發現，即使不在極低的光激發功率密度的實驗條件下，沿著 ab 對角線軸向的遲緩時間，仍可得到和參考文獻[49,51]類似行為，如圖 2-15 所示，左圖圓圈和右圖紅色星形和藍色菱形，均是我們的實驗數據。顯示這些結果均對應節線方向或非超導的準粒子弛緩行為。而沿 b 軸方向的準粒子，對應反節線方向的準粒子弛緩行為，即遵行一般超導強聲子瓶頸效應的弛緩行為。

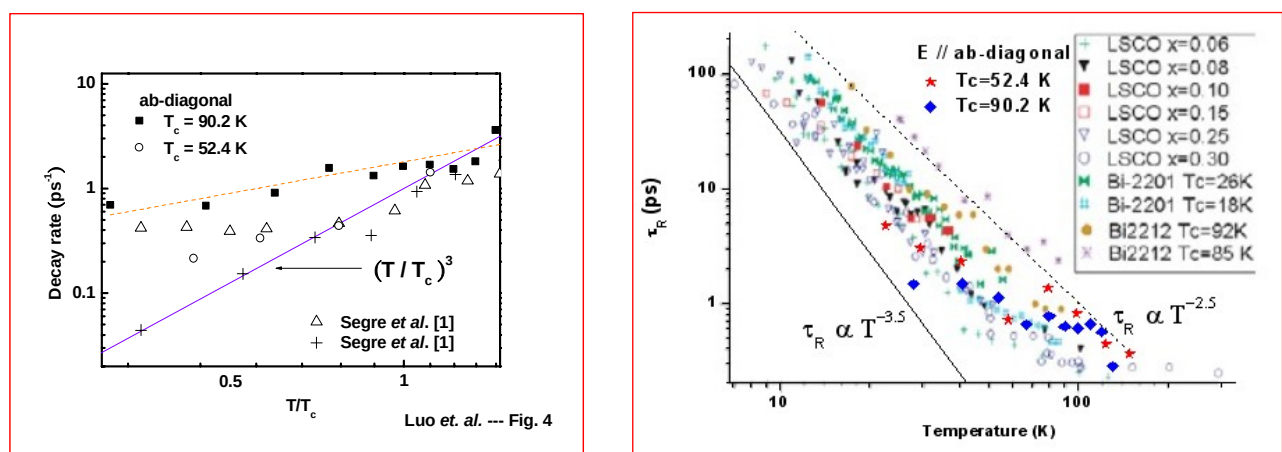


圖2-15 即使不在極低的光激發功率密度的實驗條件下，我們的實驗數據仍可得到和參考文獻[49,51]類似的弛緩行為。

B. 能隙的二向性行為 (Dichotomy in Gap)[10、15]

利用式(2)及式(3)適配 $\Delta R/R$ 振幅大小隨溫度的變化，我們可以求出超導能隙及偽能隙的大小，如圖 2-16 所示。由(001)YBCO 薄膜得到的結果必須結合式(2)及式(3)才能完整適配，而沿 b 軸的變化只需要式(2)即可適配的很好，同樣的沿 ab 對角線的變化只需要式(3)即可適配的很好。上述結果清楚顯示(001)YBCO 薄膜的結果，因為 a、b 軸在平行基板的平面上是隨機排列的，沒有特定的方向性，因此是 b、a 軸及 ab 對角線的合成結果。這是首次利用特定晶軸取向的薄膜，能區分出 ab 平面上不同軸向的超導能隙及偽能隙。

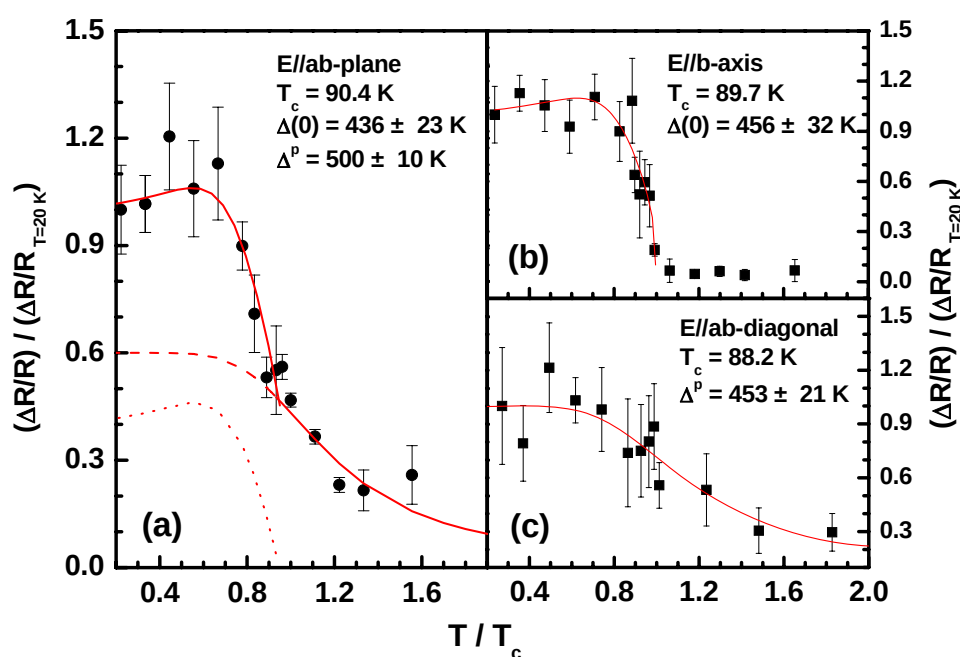


圖 2-16 歸一化的 $\Delta R/R$ 振幅隨溫度的變化。(a) (001) YBCO 薄膜 (b) 沿(100) YBCO 薄膜的 b 軸 (c) 沿(110) YBCO 薄膜的 ab 對角線。圖中實線、虛線及點線分別為式(2)或式(3)的適配結果。

藉由同樣的方法，我們可以求出不同氧含量時的超導能隙及偽能隙。如氧含量為 6.76 時，典型的 $\Delta R/R$ 曲線如圖 2-17 所示，有趣的是，圖中顯示，當我們控氧進入摻雜不足的區域時，對(100) YBCO 薄膜，則即使沿 b 軸的 $\Delta R/R$ 曲線，仍必須結合式(2)及式(3)才能完整適配，顯示缺氧時，沿反節線方向包含超導能隙及偽能隙兩者。而對(110) YBCO 薄膜，沿 ab 對角線的 $\Delta R/R$ 曲線，只需要式(3)即可適配，顯示沿節線方向仍只包含偽能隙。我們改變不同的氧含量，藉由同樣的程序，可以求出不同氧含量時，不同軸向的超導能隙及偽能隙變化，也顯示 YBCO 高溫超導體的能隙二向性行為。

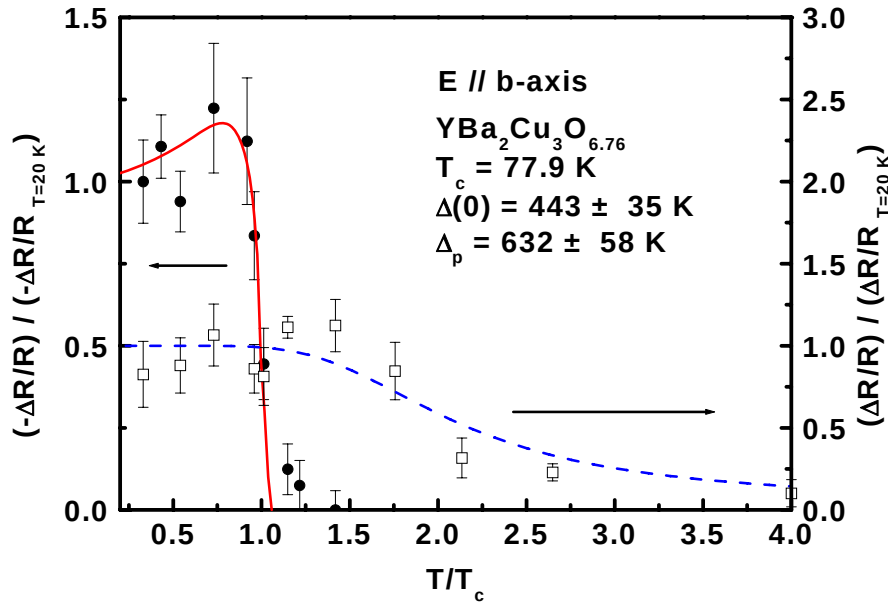


圖 2-17 YBCO 氧含量為 6.76 時的 $\Delta R/R$ 振幅 隨溫度的變化圖，圖中實線及虛線分別為式(2)或式(3)的適配結果。

綜合從(110)與(100)釔鉬銅氧樣品，分別控制其氧含量，量測不同軸向的激發探測實驗數據，並將不同氧含量的超導能隙與偽能隙分別算出，我們可以得到如圖 2-18 的超導能隙與偽能隙，隨著不同的載子濃度之變化情形，圖中十字符號數據部份，為 Demsar 所得到的結果，我們將它列出，以作比較。由這些數據，我們推測釔鉬銅氧載子濃度從最佳摻雜量減少到摻雜不足的情形時，偽能隙 Δ_p 的變化。例如圖 2-18 中從右到左的變化情形，在最佳摻雜時為 d_{xy} 的對稱形式，但隨著載子濃度的變少，漸漸從 d_{xy} 轉向到完全缺氧的 $d_{x^2-y^2}$ 的對稱形式。這是我們目前推測的結果，未來希望有理論模型能夠對這些實驗結果，做更進一步的確認。

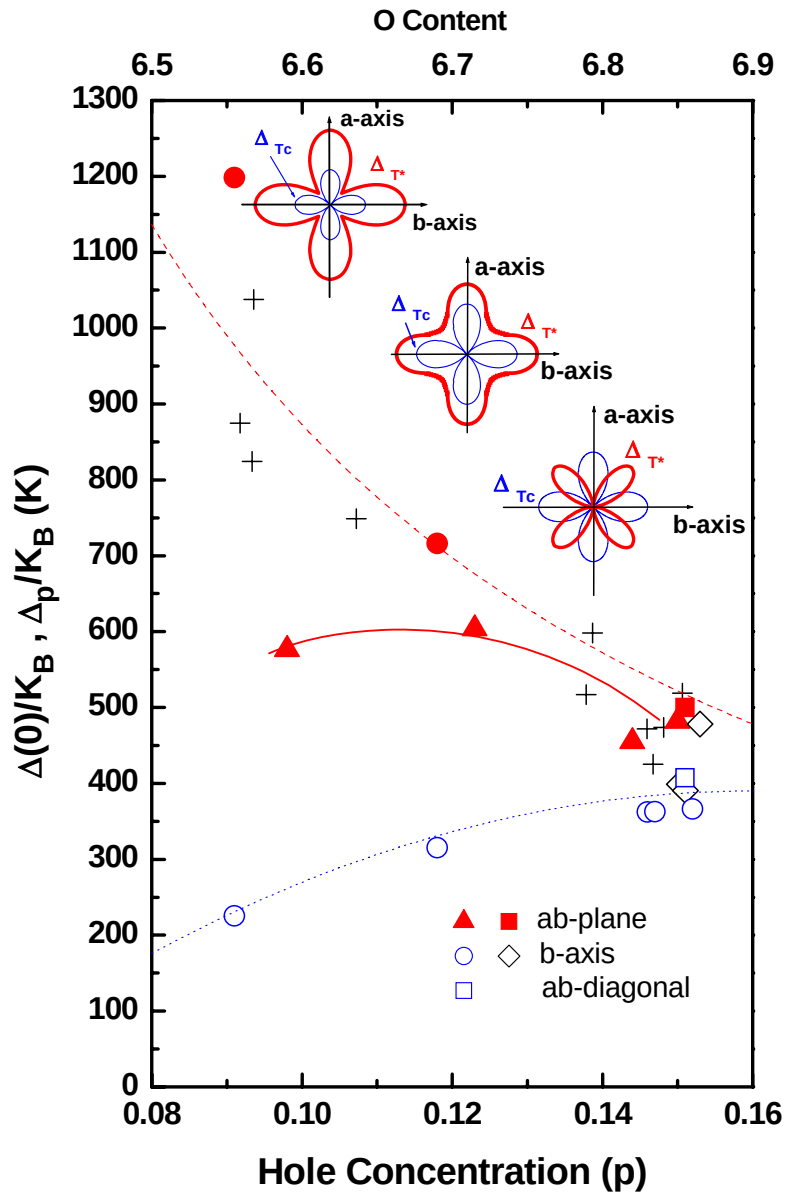


圖 2-18 YBCO 在不同軸向之超導能隙與偽能隙，隨著不同的載子濃度之變化情形，圖中十字符號數據部份，為 Demsar 所得到的結果。

(二) 利用極化可調飛秒級激發-探測光譜技術研究過摻雜的鈮鈣鋇銅氧高溫超導薄膜的超導能隙和偽能隙的對稱性問題

A. 薄膜樣品製備與基本薄膜特性分析

為了觀察過摻雜的鈮鈣鋇銅氧高溫超導薄膜的準粒子在不同軸向上的弛緩行為，我們成長高品質不同摻鈣量(100)與(001) $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, $x = 0.1, 0.2, 0.3$ 之薄膜樣品。由於不同摻鈣量(0.1-0.3)之鈮鈣鋇銅氧靶材成分不易控制，使製備的薄膜品質亦不易控制。而成長(100)薄膜時，為減低晶格不匹配，造成薄膜品質不良，在成長 $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 之前，我們在比較低溫(660°C)的狀態，先鍍一層 PBCO 緩衝層，再以漸進變溫方式鍍製 PBCO 變溫層到成長 YBCO 所需之溫度，如此得到的 PBCO 將仍是(010)軸向，最後再鍍上 YBCO，如此可得到我們所需之(100)樣品。

其 R-T 量測、X-ray 繞射、原子力顯微鏡(Atomic Force Microscope, AFM)等特性之量測結果，如圖 2 -19(a)-(d)所示。

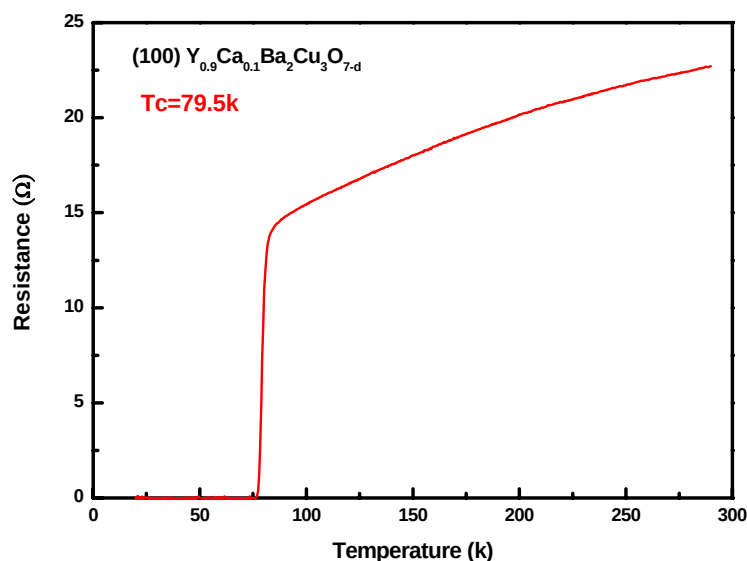


圖 2 -19(a) (100) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜電阻與溫度關係圖

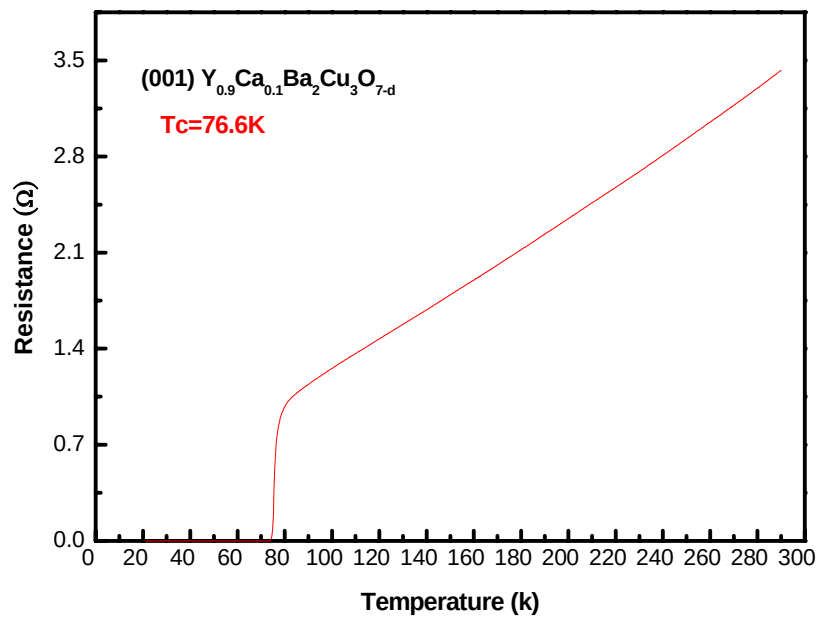


圖 2 -19(b) (001) $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$ 電阻與溫度關係圖

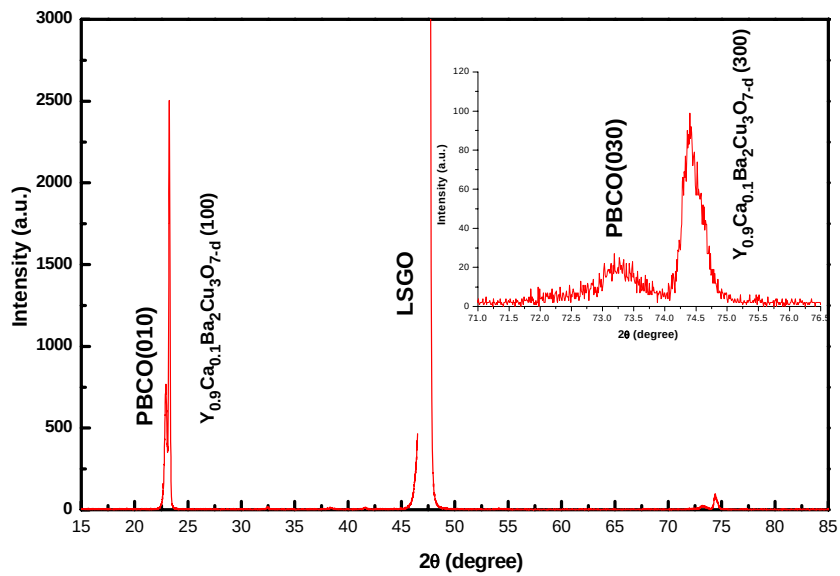


圖 2 -19(c) (100) $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$ 薄膜 XRD 圖

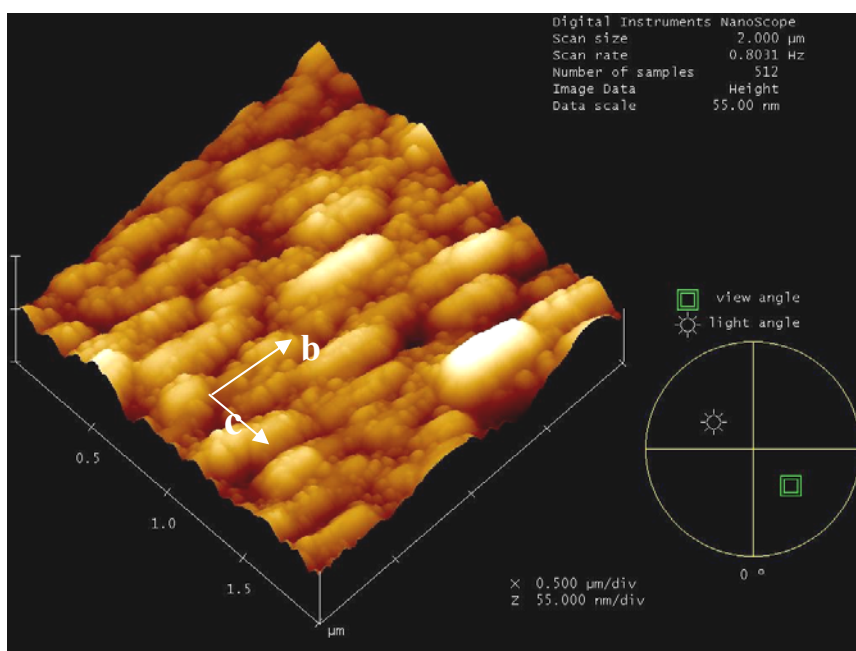


圖 2 -19(d) (100) $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜樣品 AFM 圖

B. 利用時間解析激發-探測量測過摻雜的鈮鈣鋇銅氧薄膜的 $\Delta R / R$ 曲線圖

利用上述製備之薄膜，我們延伸前面不同氧含量對高溫超導能隙影響的研究，進一步研究過摻雜(overdoped)的鈮系高溫超導薄膜的超導能隙和偽能隙的對稱性問題。實驗上，我們利用極化激發-探測量測技術，來量測 $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($x = 0.1, 0.3$) 超導薄膜，受飛秒級脈衝光激發後，其載子弛緩的行為。

對於平面高度有序的 a 軸薄膜而言，在薄膜的表面，其 b 軸與 c 軸可明顯區分；再利用激發-探測光的偏振方向可調的特點，我們可以在激發-探測光平行於 b 軸與 c 軸的條件下，量測 $\Delta R / R$ 在不同溫度下，隨時間延遲的變化情形，其結果如圖 2-20-2-24 所示。對於 c 軸的薄膜而言，因為薄膜表面無方向性的差別，所以我們選用探測光與激發光之電場互相垂直來入射基板，這樣可以減少激發光與探測光的干涉效應，更利於結果數據的分析。其 $\Delta R / R$ 在不同溫度下，隨時間延遲的變化情形。透過分析這些 $\Delta R / R$ 曲線圖，我們得到振幅隨溫度變化；以及弛緩時間隨溫度變化的關係等。進一步分析這些數據，我們將得到不同過摻雜、在不同軸向上的能隙分佈情形。

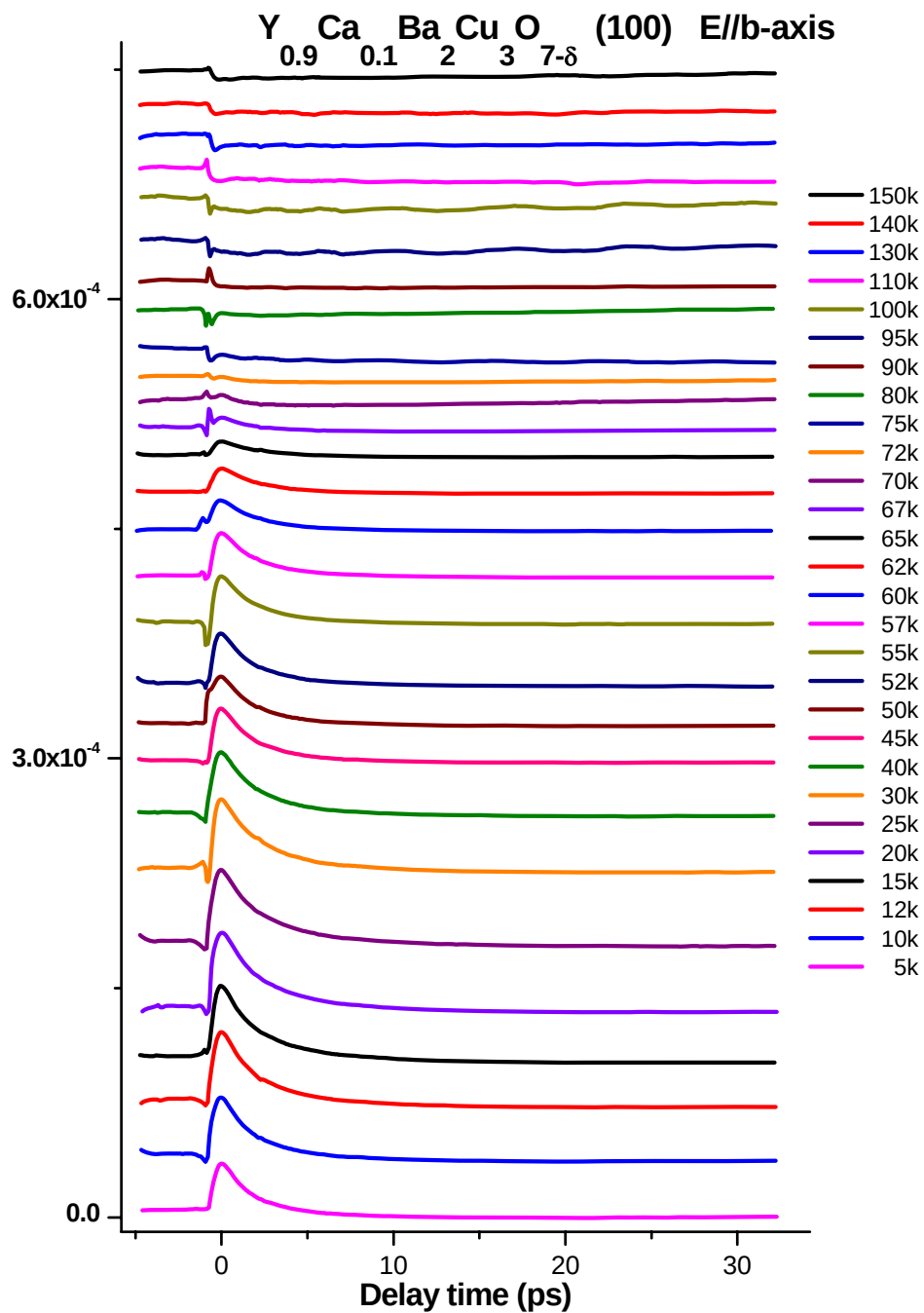


圖 2 -20 不同溫度下，檢測光電場平行(100) $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜(010)軸的

瞬時反射率($\frac{\Delta R}{R}$)變化，(E//b-axis)

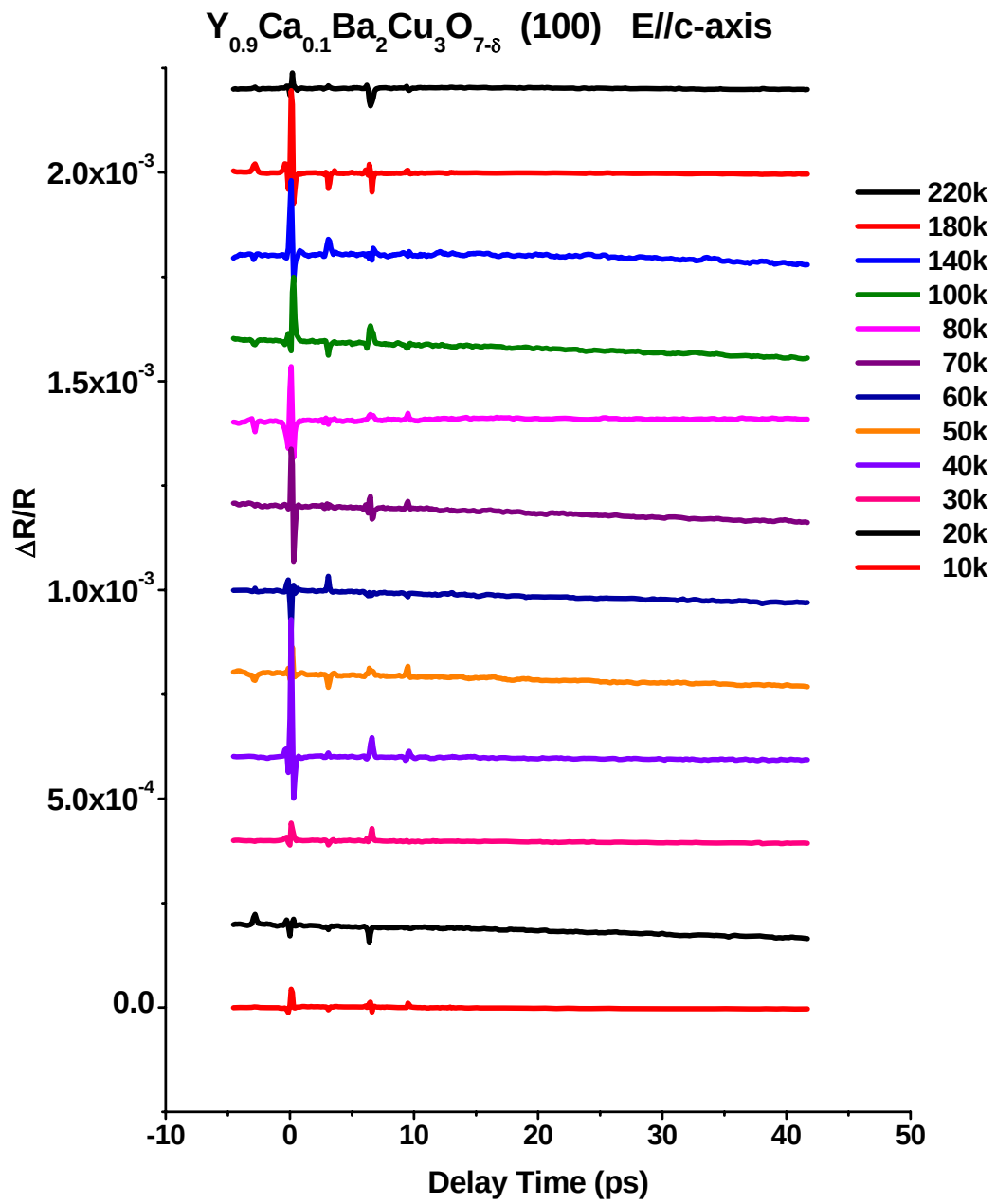


圖 2 -21 不同溫度下，檢測光電場平行(100) $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜(001)軸的瞬時反射率($\frac{\Delta R}{R}$)變化，(E//c-axis)。

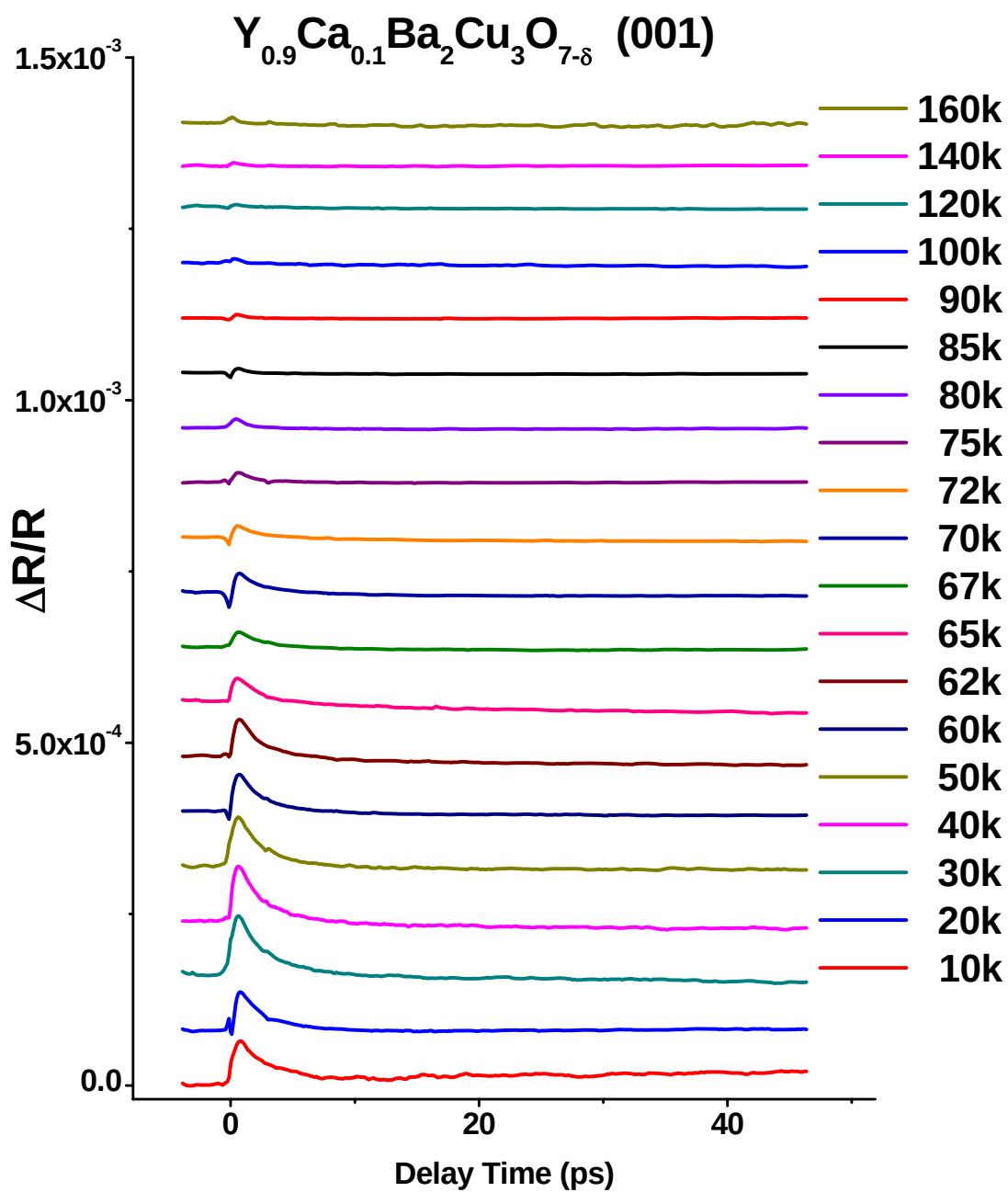


圖 2 -22 不同溫度下，(001) $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 滿氧薄膜的瞬時反射率($\frac{\Delta R}{R}$)變化。

激發與探測光束偏振方向互相垂直。

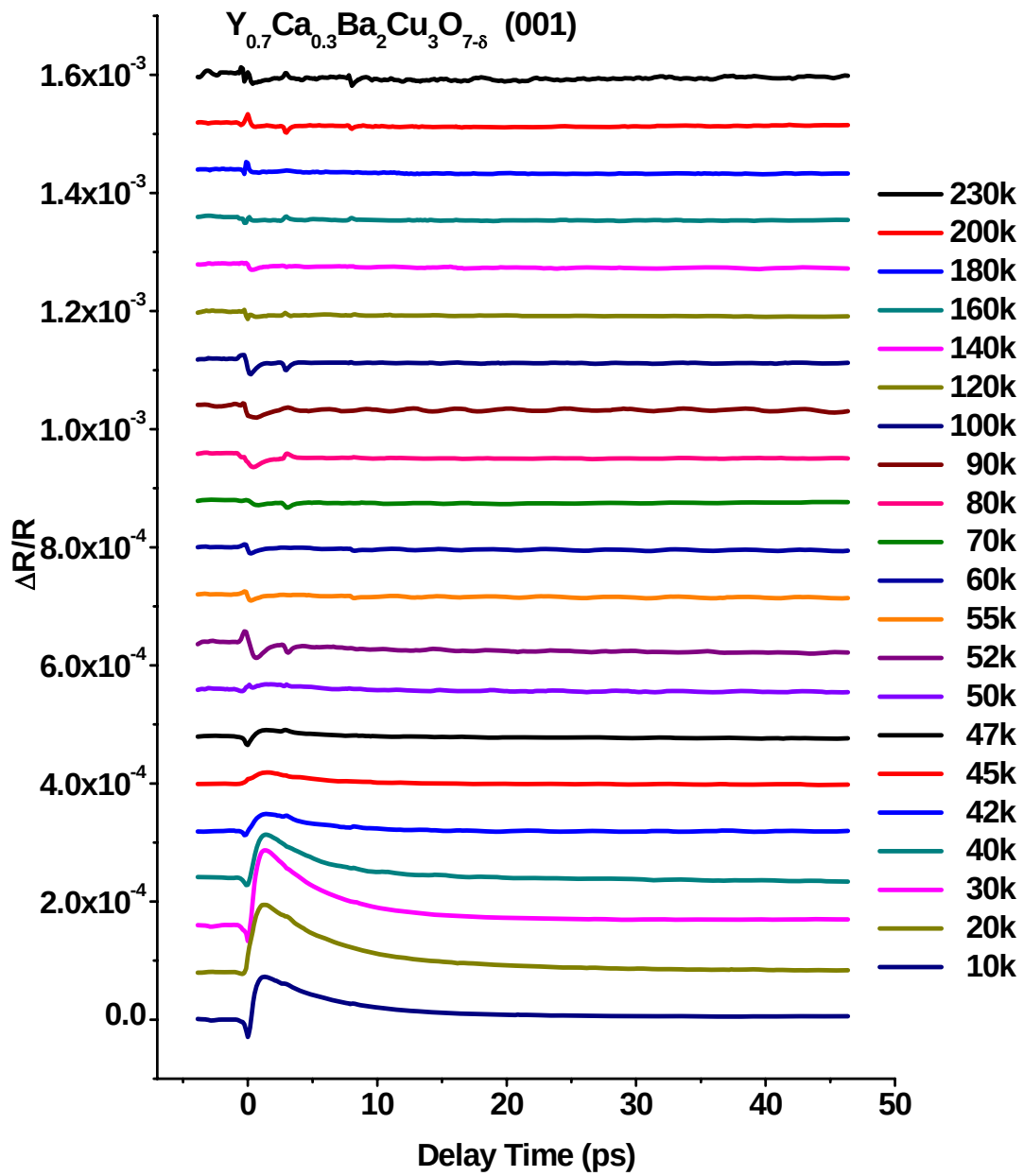


圖 2-23 不同溫度下，(001) $\text{Y}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 滿氧薄膜的瞬時反射率($\frac{\Delta R}{R}$)變化。
 激發與探測光束偏振方向互相垂直。

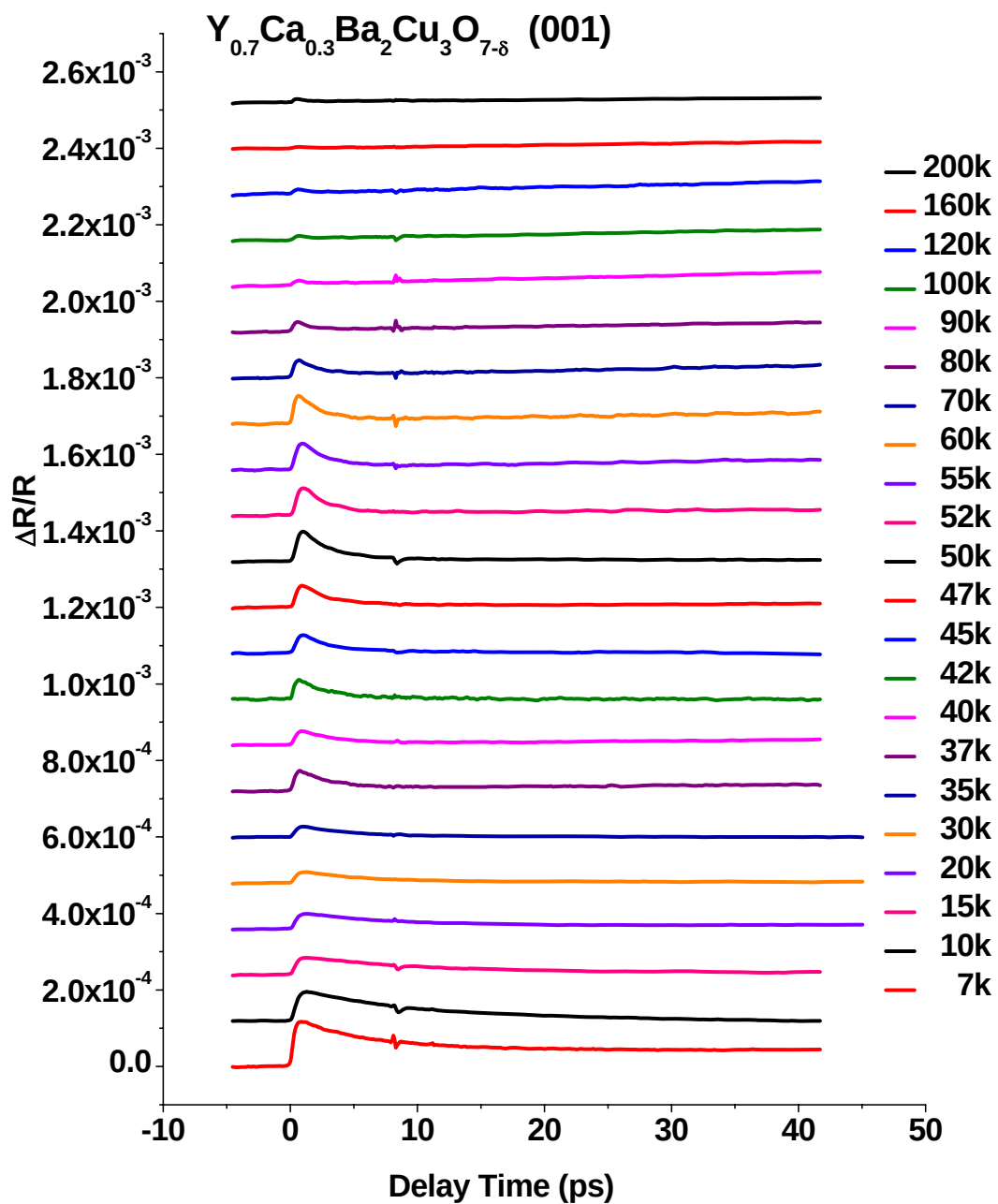


圖 2 -24 不同溫度下，(001) $\text{Y}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 缺氧薄膜的瞬時反射率($\frac{\Delta R}{R}$)變化。
 激發與探測光束偏振方向互相垂直。

C. 分析過摻雜的鈣鈣鋇銅氧薄膜的超導能隙和偽能隙

由圖 2-20-2-24 中每一條曲線，可分析出 $\Delta R / R$ 隨時間的變化，在超導態下對應兩個弛緩時間的項，即 $\Delta R / R(T, t) = A(T) \exp(-t / \tau_A) + B(T) \exp(-t / \tau_B)$ ，依據 Kabanov *et al.* 的理論， $A(T)$ 中含隨溫度而變的未知數 $\Delta(T)$ ，即為我們所要求的超導能隙之值，而 $B(T)$ 中含不隨溫度而變的未知數 Δ_p ，即為我們所要求的偽能隙之值。所以我們經由電腦函數適配，就可分別求得偽能隙 Δ_p 與超導能隙 $\Delta(T)$ 的值。

圖 2-25 顯示 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ (001) 樣品 $\Delta R / R$ 大小與溫度變化的關係。從圖中我們可以明顯看到，溫度在 T_c 以上有一個隨溫度升高，而逐漸變小之信號。在溫度小於 T_c 時， $\Delta R / R$ 有一個急遽變大之趨勢。在 T_c 以上隨溫度緩慢變化之信號，我們推測為偽能隙所造成；而在 T_c 以下急遽變化之信號則為超導能隙所造成的弛緩信號。

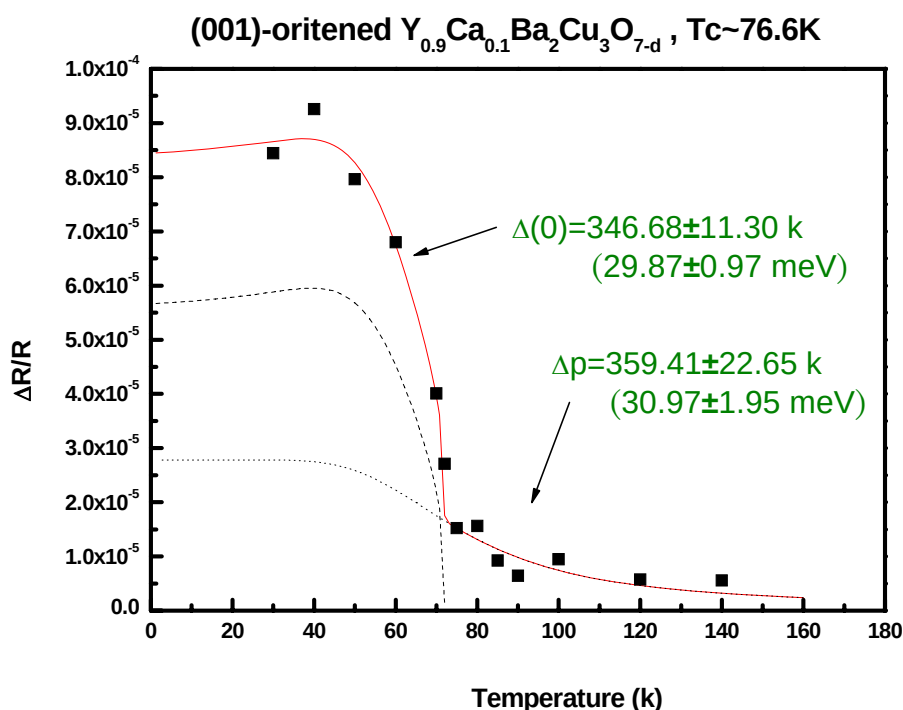


圖 2-25 (001) $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜， $\frac{\Delta R}{R}$ 振幅大小與溫度關係

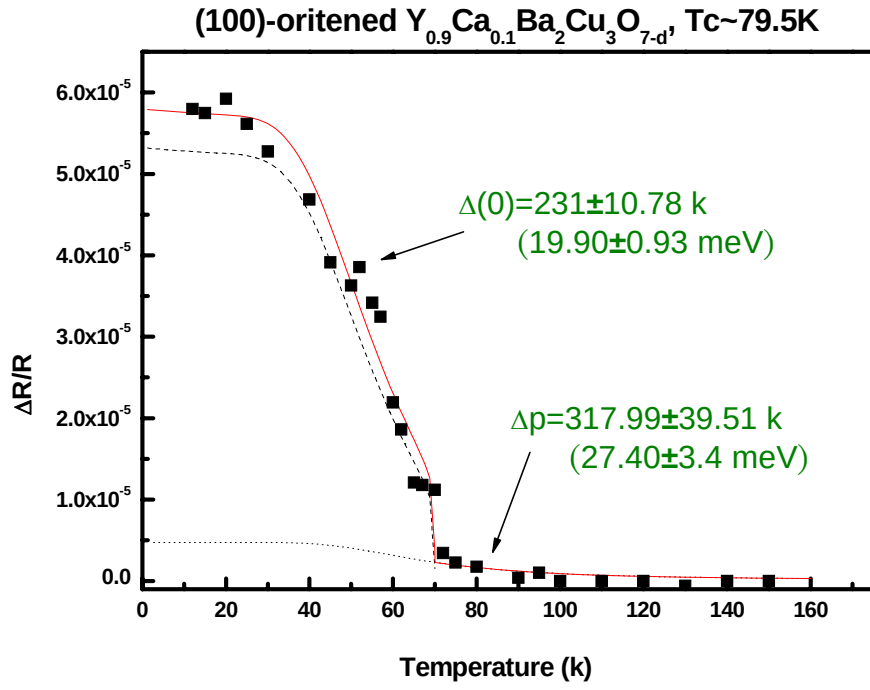


圖 2-26 (100) $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜， $\frac{\Delta R}{R}$ 大小與溫度關係

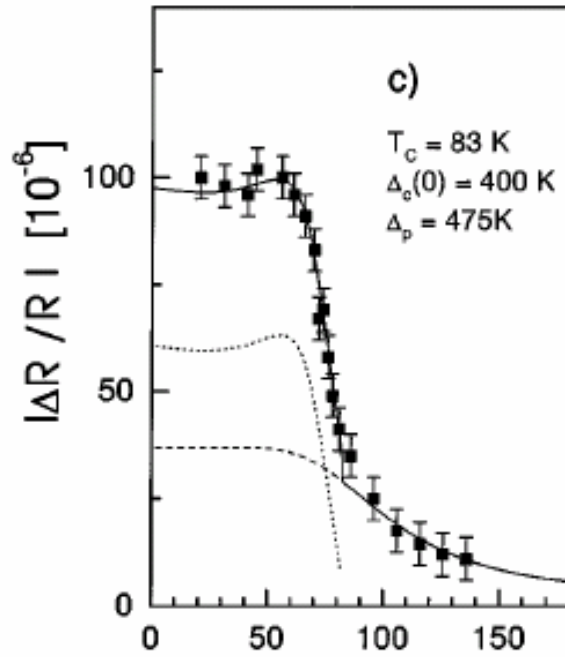


圖 2-27 $\text{Y}_{0.899}\text{Ca}_{0.101}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ， $\frac{\Delta R}{R}$ 大小與溫度關係[53]

$\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}(001)$ 樣品 $\frac{\Delta R}{R}$ 變化行為與 J. Demsar 所發表之結果極為類似(圖 2-27)。另外在 $\text{Y}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 樣品，我們同樣看到在 T_c 以上對應偽能隙的變化與 T_c 以下對應超導能隙急遽的變化。

由 $\Delta R / R$ 的大小與溫度變化的關係數據，配合 Kabanov 的理論，我們可以得到在 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}(001)$ 上，超導能隙 (Superconducting gap) 大小為 $346.68 \pm 11.3k$ (29.87 ± 0.97 meV)；偽能隙 (Pseudogap) 大小為 $359.41 \pm 22.65k$ (30.97 ± 1.95 meV)。

在 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}(100)$ 樣品的部分，當探測光與激發光偏振方向同時平行於樣品的 b 軸，即 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}(010)$ 軸向時，我們可以觀察到與在 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}(001)$ 樣品上觀察到的 $\Delta R / R$ ，有著類似的遲緩行為；但是，若激發光與探測光偏振方向同時平行樣品的 c 軸，即 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}(010)$ 軸向時，除了激發與探測光造成的干涉信號之外，並沒有顯著的弛緩現象。由此我們可以推論，在 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}(100)$ 樣品當中，偽能隙與超導能隙，皆不出現在 (001) 軸向上。

另外，從電場沿著 b 軸方向的 $\Delta R / R$ 信號，同樣的將信號的振幅隨溫度變化的情形，配合公式 (2) 與 (3) 做適配，我們一樣可以得到在 $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}(100)$ 樣品當中，沿著 (010) 方向上的能隙大小。其中，超導能隙大小為 $231 \pm 10.78k$ (19.90 ± 0.93 meV)；偽能隙大小為 $317.99 \pm 39.51k$ (27.40 ± 3.4 meV)。

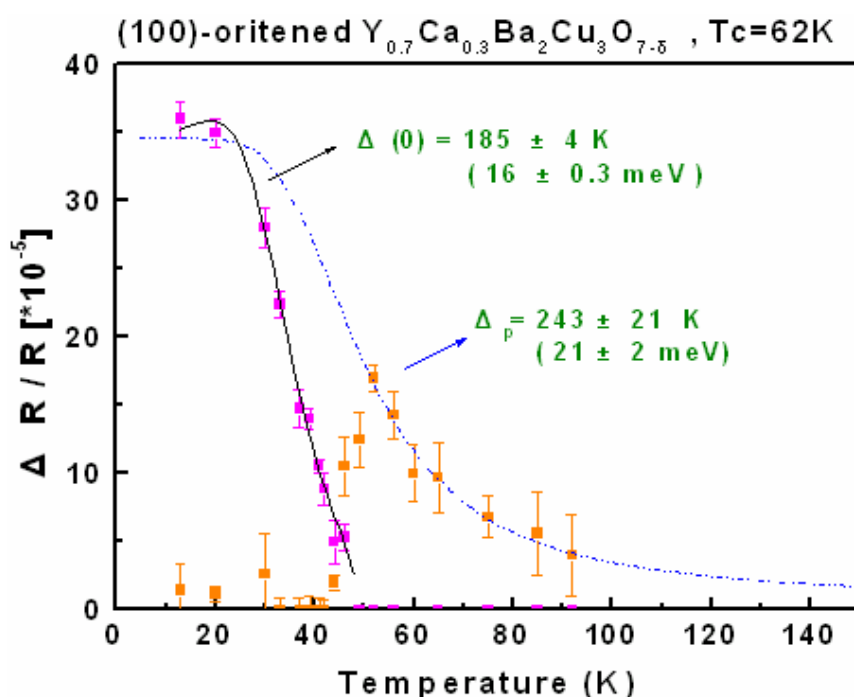


圖 2-28 $(100)Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜， $\frac{\Delta R}{R}$ 大小與溫度關係

圖 2-28 是 $(100)Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜樣品的適配，其 $\Delta R / R$ 的兩個分量 $A(T)$ 和 $B(T)$ 隨溫度的變化情形，我們可以得到其對應的偽能隙 Δ_p 與超導能隙 $\Delta(T)$ 。經由分析計算，我們得到

(1) a 軸薄膜((100)Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba₂Cu₃O_{7-δ}) :

超導能隙 $\Delta(T)$ 為 185 ± 4 K (即 16 ± 0.3 meV) 與不溫度而變的偽能隙 (pseudo gap, Δ_p) 為 243 ± 21 K (即 21 ± 2 meV)。

(2) c 軸薄膜((001)Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba₂Cu₃O_{7-δ}) :

超導能隙 $\Delta(T)$ 為 222 ± 13 K (即 19 ± 1 meV) 與不溫度而變的偽能隙 Δ_p 為 225 ± 13 K (即 19 ± 1 meV)。

由摻鈣量 0.3 對超導能隙與偽能隙的影響，加入先前不足摻雜和最佳摻雜的結果，以電洞濃度表示，我們得到如圖 2-29 之超導能隙($\Delta(T)$)與偽能隙(Δ_p)的相圖。其中我們已經將橫座標，依照公式(2-6)轉換為電洞濃度[54]。

$$\frac{T_c(p)}{T_c(p_{opt})} = 1 - 82.6(p - p_{opt})^2 \quad (2-6)$$

其中 $T_c(p_{opt})$ 是滿氧 YBCO 的 T_c ， p_{opt} 是滿氧 YBCO 時電洞的濃度。

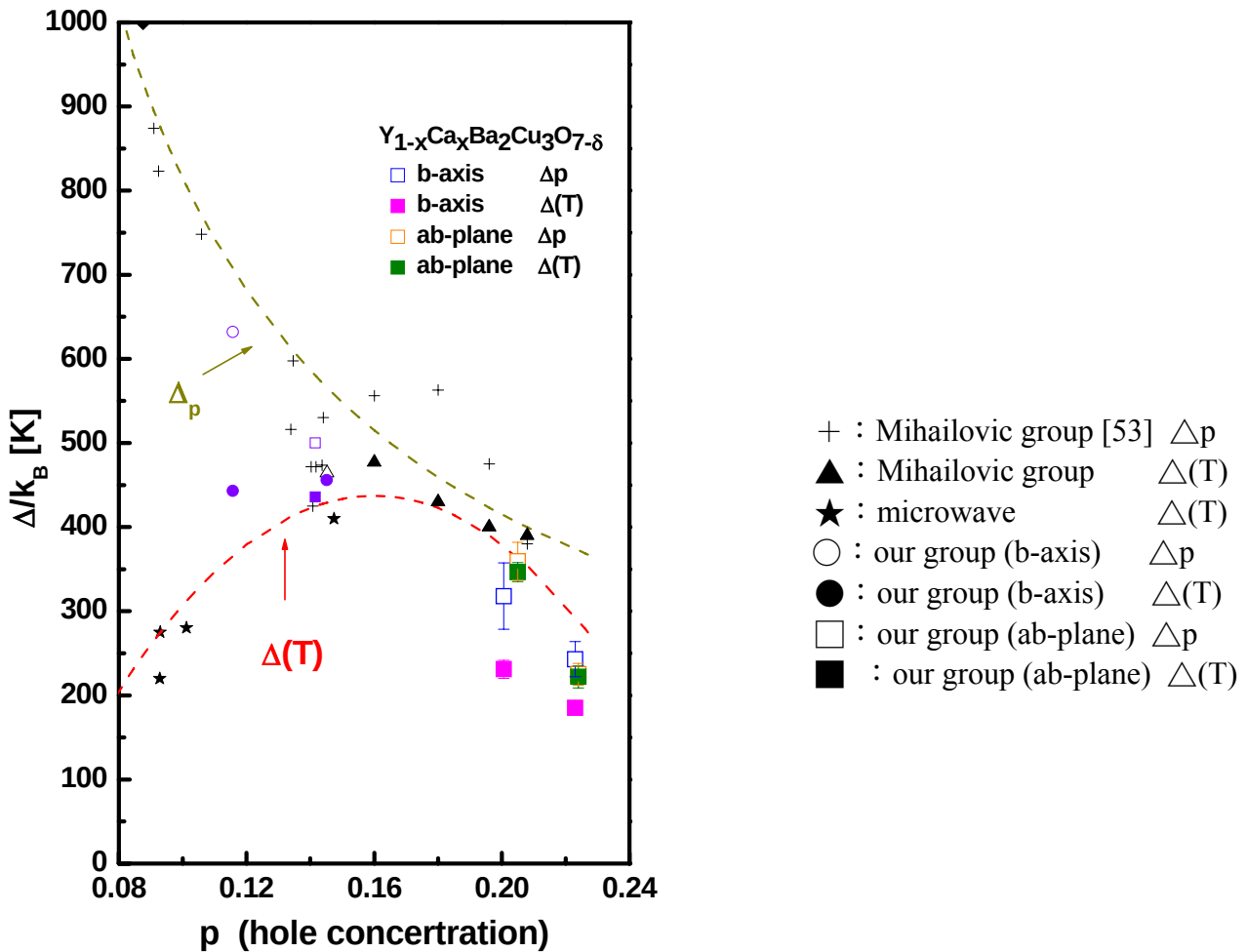


圖 2-29 超導能隙($\Delta(T)$)與偽能隙(Δ_p)之實驗所得的相圖，黃鶴色虛線反比於 p (載子濃度)[54]；紅色虛線為目視

三、研究龐磁阻(CMR)薄膜的時間解析激發-探測光譜量測

A. 錳氧鈣鈦礦化合物磁性材料簡介

具有鈣鈦礦結構的混合共價錳氧化合物($R_{1-x}A_x$)MnO₃ (R 是三價的稀土族元素, A 是二價的鹼土族離子)材料被發現到具有龐磁阻(CMR)的現象[55], 引發了學術界與產業界極大的注意。所謂的磁阻是外加磁場導致樣品電阻改變; 錳氧化物在接近相變溫度(T_C)時, 外加磁場會讓其電阻劇烈地下降, 故稱之為龐磁阻。鈣鈦礦結構錳氧化物(perovskite-type manganites)的研究早在 1950 年已被 Jonker 和 Van Santen [56-57] 所發表。其中, 就以 $La_{1-x}A_x$ MnO₃ (A: Ca, Sr, Ba; $0 \leq x \leq 1$) 做了一系列磁性與電性的量測。為了解釋在居禮溫度(Curie temperature; T_C)發生的順磁-鐵磁相變(paramagnetic-ferromagnetic transition)以及在 T_{IM} ($\sim T_C$)發生的絕緣-金屬相變(insulator-metal transition), Zener 提出了雙自旋交換機制 (double exchange mechanism; DE) [58-59], 如圖 3-1 所示。在龐磁阻錳氧化物中, 以二價的鹼土族元素如 Ca^{2+} 、 Sr^{2+} 或 Ba^{2+} 來取代三價的稀土族元素如 La^{3+} 時, 則錳以 Mn^{3+} 及 Mn^{4+} 同時存在, 這時在 Mn^{3+} 的 3d 軌域上的 $e_g \uparrow$ 電子, 會跳到中間氧的 2p 軌域上, 而在氧 2p 軌域上的電子會再跳至另一邊 Mn^{4+} 的 $e_g \uparrow$ 軌域上, 這就是 Double Exchange。

但現在我們瞭解單用雙自旋交換模型, 已無法解釋 CMR 現象, 例如, 在順磁相的電阻率大小比自旋散射預測的還要大。所以必須加入考慮 Jahn-Teller 畸變的因素[60-62]。同調晶格效應, 如 MnO₆ octahedron 的 Jahn-Teller 畸變, 在未摻雜之化合物, 如 LaMnO₃(LMO), 為靜態的; 而在電洞摻雜時轉變成動態, 且會影響錳氧化合物的電荷傳輸性質。其簡單的圖像為: 在順磁相時, 晶格畸變能遵循載子自一位置移至另一位置, 因為自旋失序, 而減少載子的動能, 此將導致極化子傳輸(polaronic transport)。而鐵磁有序增加載子動能, 且自錳離子跳至錳離子太快, 以致於晶格畸變無法跟上, 雖然許多的研究指出, 極化子傳輸的特徵仍可持續到 T_c 以下。

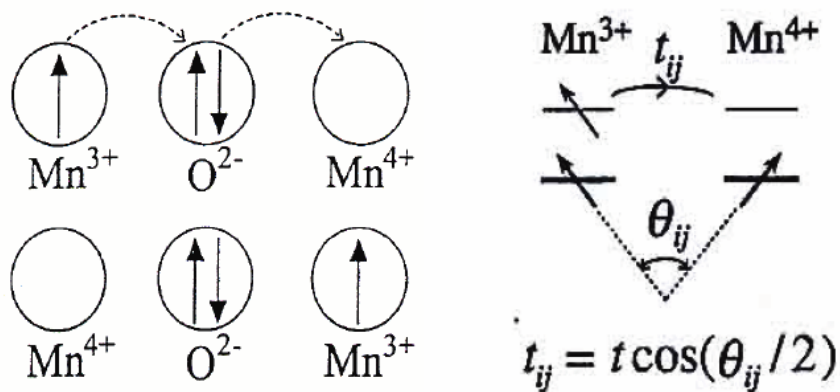


圖 3-1: Double-exchange 示意圖[22]

錳氧鈣鈦礦化合物的物理性質，隨摻雜和溫度變化的研究是很熱門的，其目的是要完全瞭解自旋、電荷、軌道、晶格間的強關聯作用，與這些材料具有複雜的相圖和存在各種形式的有序(ordering)的關聯。

利用超快時間解析光激發-光探測量測錳氧鈣鈦礦化合物，主要是希望能瞭解這些材料之晶格、自旋、電荷、軌道自由度之間如何相互作用，而決定這些材料的基態特性(ground-state properties)。就其本身而論，建立實驗的技術能拆散不同交互作用的過程，進而闡明這些相互競爭自由度的貢獻程度，是很重要的[14, 63-68]。在本計畫中，我們初步利用超快時間解析光激發-光探測量測 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 、 $\text{La}_{0.48}\text{Ca}_{0.52}\text{MnO}_3$ 和 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ 等樣品的準粒子動力學，這些結果顯示，當溫度高於居理溫度時，僅對應一快弛緩分量(數 ps)，即 Jahn-Teller 畸變小極化子之弛緩行為；而當溫度低於居理溫度時，另存在一慢弛緩分量(數十至數百 ps)，即對應自旋晶格弛緩行為。我們亦注意到 $\Delta R/R$ 隨時間的變化，有振盪衰減的現象。

B. 薄膜樣品基本特性分析

圖 3-2-3-4 分別為磁性薄膜 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 、 $\text{La}_{0.48}\text{Ca}_{0.52}\text{MnO}_3$ 和 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ [69-70] 之溫度對電阻的關係圖與 X-ray 繞射圖，由圖中可得知磁性樣品的相轉變溫度分別為 260K、220K 和 240K 以及了解薄膜晶格結構以判定薄膜品質的好壞。

a. $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

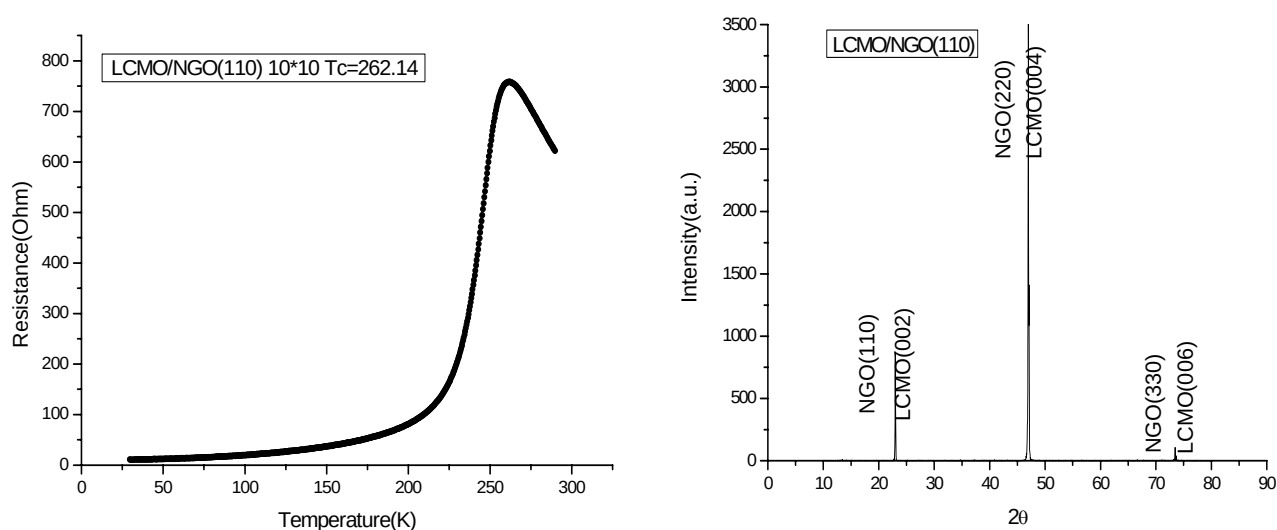


圖 3-2 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 之溫度對電阻的關係圖與 X-ray 繞射圖

b. $\text{La}_{0.42}\text{Ca}_{0.58}\text{MnO}_3$

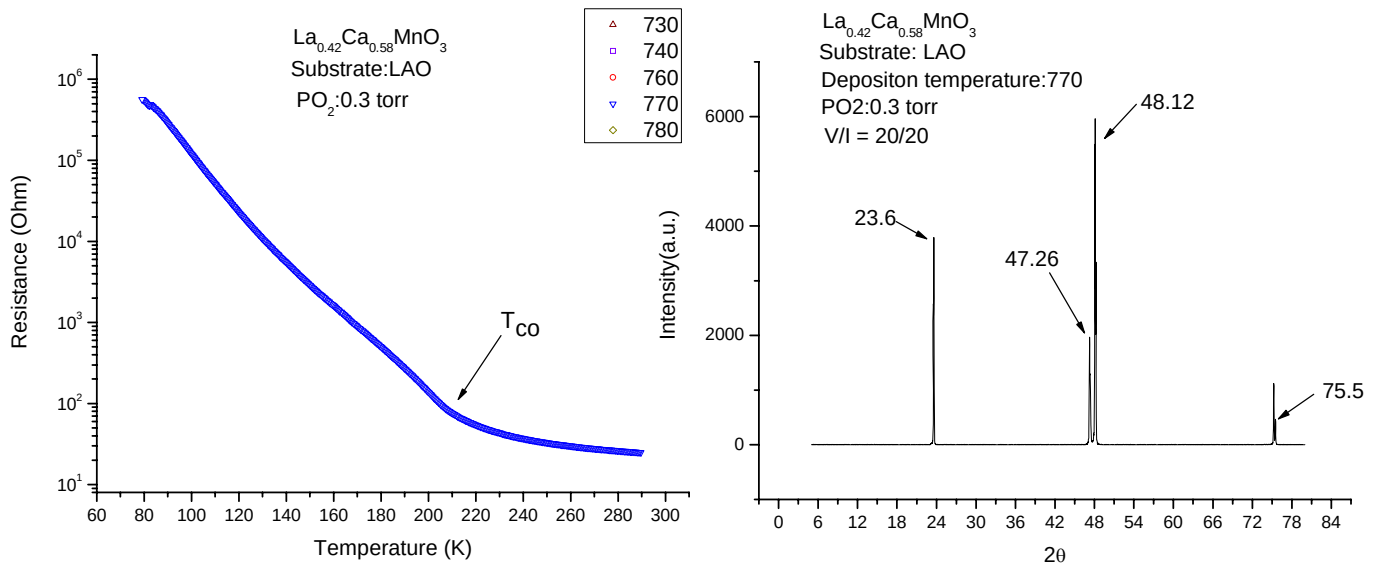


圖 3-3 $\text{La}_{0.42}\text{Ca}_{0.58}\text{MnO}_3$ 之溫度對電阻的關係圖與 X-ray 繞射圖

c. $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$

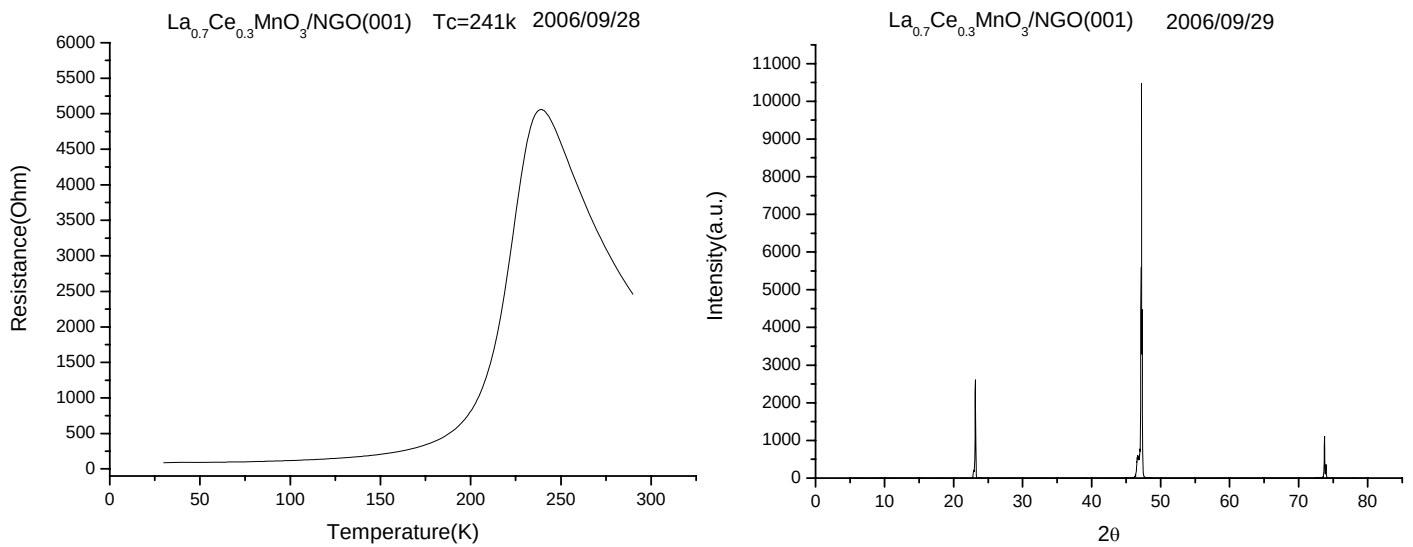


圖 3-4 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ 之溫度對電阻的關係圖與 X-ray 繞射圖

C. 超快時間解析光激發-光探測量測錳氧鈣鈦礦化合物結果

圖 3-5-3-7 分別為磁性薄膜 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 、 $\text{La}_{0.48}\text{Ca}_{0.52}\text{MnO}_3$ 和 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ 的典型 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形。

a. $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

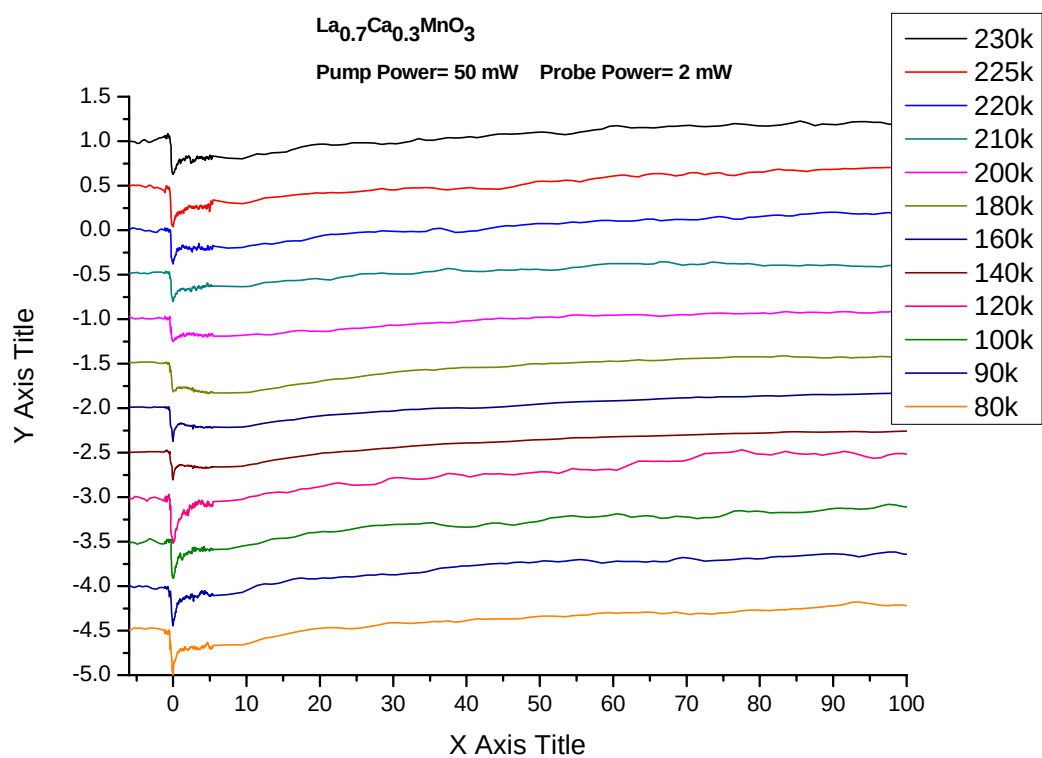
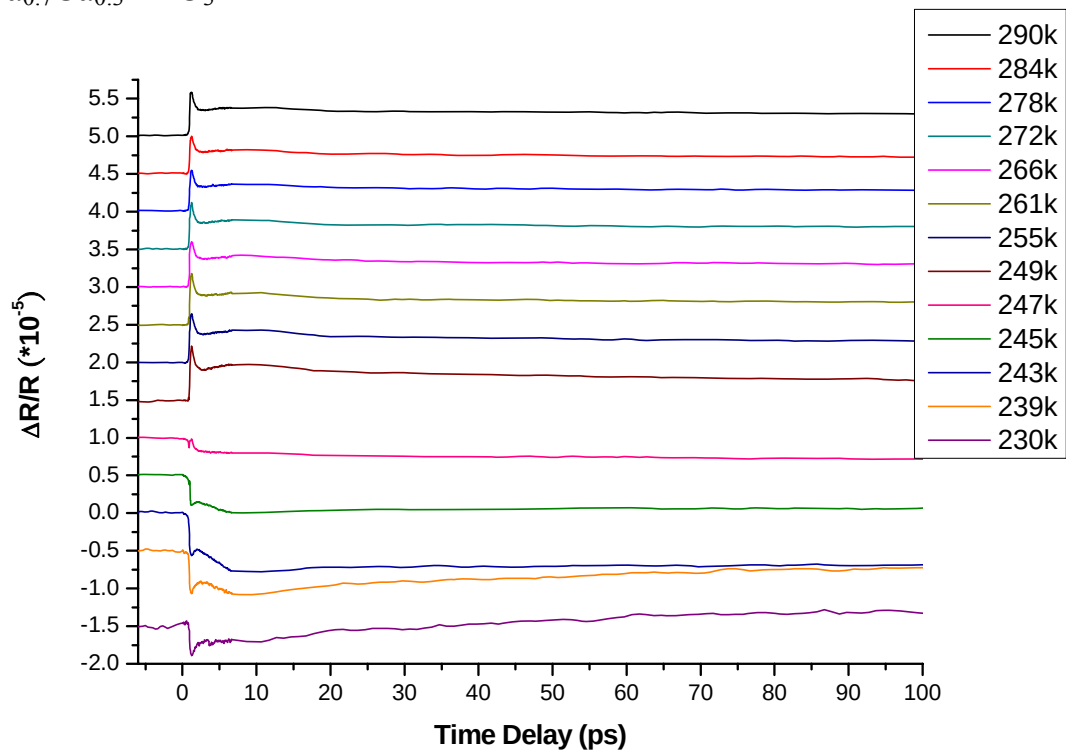


圖 3-5 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 在不同溫度下的 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形

b. $\text{La}_{0.42}\text{Ca}_{0.58}\text{MnO}_3$

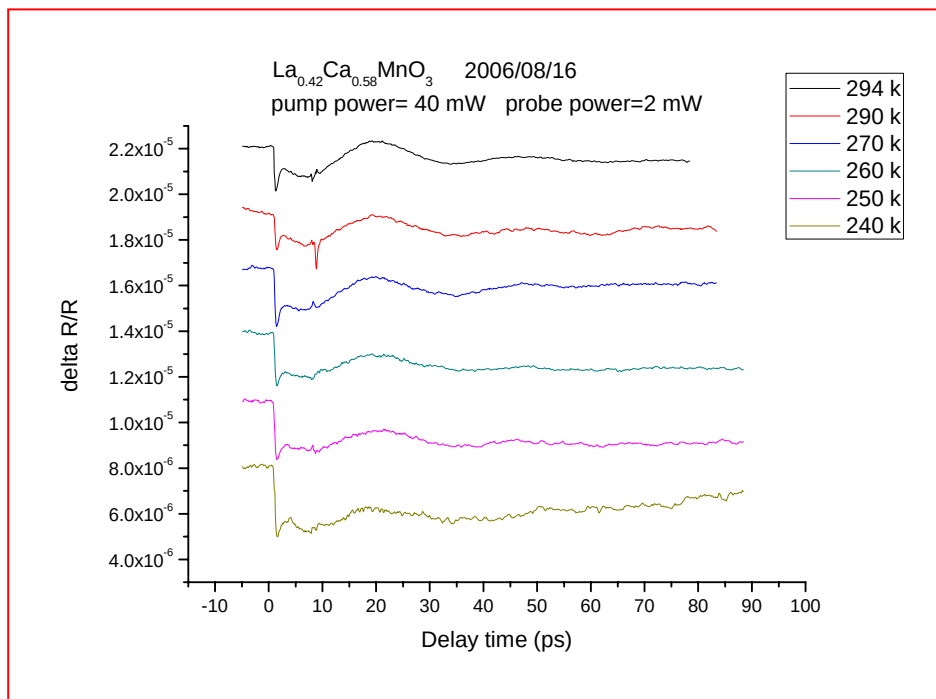
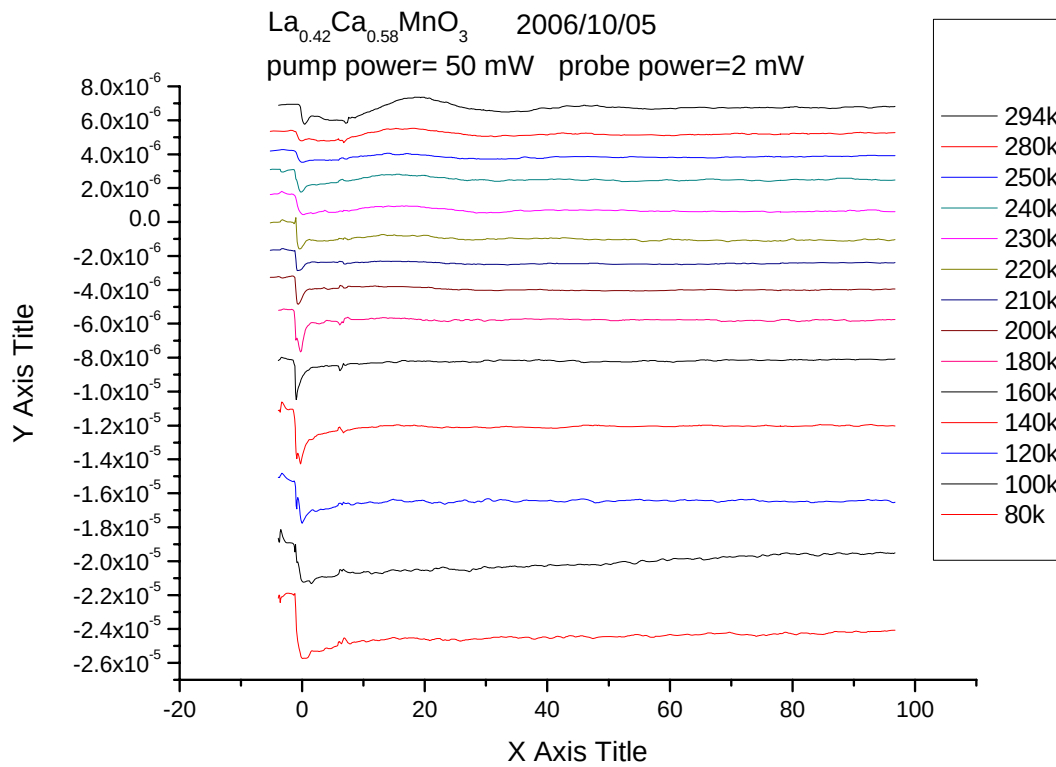


圖 3-6 $\text{La}_{0.42}\text{Ca}_{0.58}\text{MnO}_3$ 在不同溫度下的 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形，注意在溫度大於居理溫度時的振盪衰減情形。

c. $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$

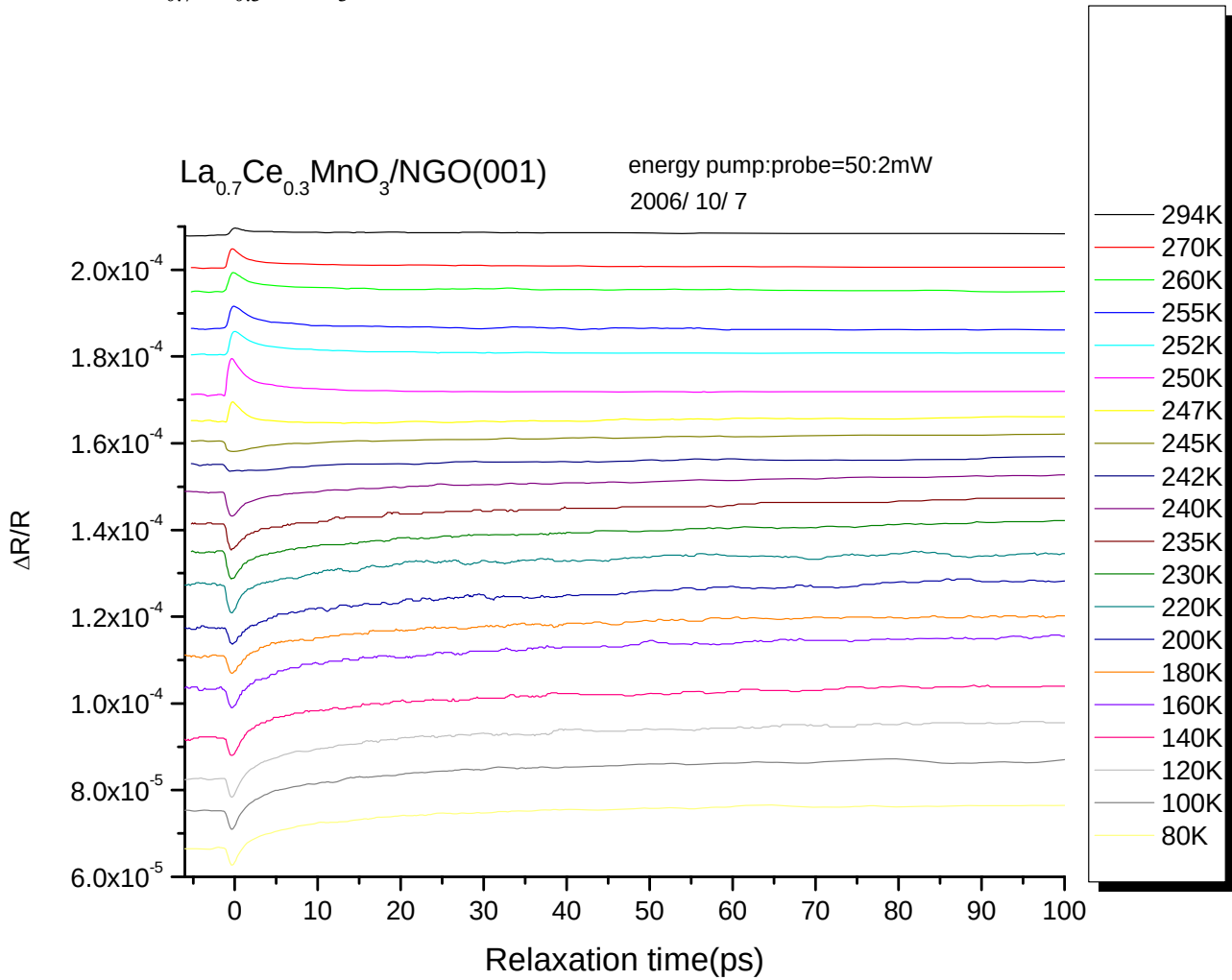


圖 3-7 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ 在不同溫度下的 $\Delta R/R$ 隨延遲時間的變化情形

綜觀這些初步的量測結果，有幾個特性：

1. 當溫度高於居理溫度時，僅對應一快弛緩分量(數 ps)，即 Jahn-Teller 畸變小極化子(small polaron)之弛緩行為，而對此分量， $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ 的弛緩時間較長。另外，此快弛緩分量的振幅與弛緩時間，隨溫度有顯著變化。
2. 而當溫度低於居理溫度時，另存在一慢弛緩分量(數十至數百 ps)，即對應自旋晶格弛緩行為。此慢弛緩分量的振幅與弛緩時間常數，亦隨溫度有顯著變化。
3. 對 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 或 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ ，在接近居禮溫度 T_C ，發生順磁-鐵磁相變時， $\Delta R/R$ 會有變號的現象。反之，對 $\text{La}_{0.48}\text{Ca}_{0.52}\text{MnO}_3$ 樣品，則 $\Delta R/R$ 均為負號。
4. 我們亦注意到，對 $\text{La}_{0.48}\text{Ca}_{0.52}\text{MnO}_3$ 樣品， $\Delta R/R$ 隨時間的變化，有振盪衰減的現象。

5. 當溫度低於居理溫度時， $\Delta R/R$ 亦含有一項弛緩時間很長的分量，即 $\Delta R/R$ 近乎定值。此定值亦隨溫度而變。

這些結果，如快弛緩分量與慢弛緩分量之振幅與弛緩時間常數時間，隨溫度變化之物理機制；變號對應之物理機制；同調聲子振盪之特性和對應之物理機制；不同摻雜的超快動力行為與材料之晶格、自旋、電荷、軌道自由度之間相互作用的關連等，有待在下三年度計畫中，重複量測這些樣品的超快特性，和量測光激發-兆赫波探測數據後，再提出圓滿的解釋。

四、利用各種材料產生兆赫電磁輻射之研究

A. 利用鈮鉬銅氧高溫超導薄膜產生兆赫電磁輻射及時域波形再成形現象之研究[13,17]

在上三年研究計畫中，我們已初步完成鈮鉬銅氧(YBCO)高溫超導薄膜元件的兆赫波(THz)輻射量測，包括改變不同雷射光能量、不同外加偏電流及不同量測溫度下之 THz 時域瞬變波形。我們亦發現時域暫態波形的振幅大小與相位關係有非常明顯的不同：當量測溫度處於較低溫狀態時($T < T_c$)，波形與相位沒有明顯的差異；當量測溫度接近於臨界溫度時($T \sim T_c$)，波形有不同的變化。而且量測溫度處於較低溫狀態時，輻射的電場時域波形變化無法與 Rothwarf-Taylor 方程式適配，而得到合理的準粒子的回復時間。所以我們提出 THz 輻射波經過薄膜本身時，會有再成形(pulse reshaping)的現象。藉由適當的轉換函數，可模擬出原始 THz 輻射時域波形的變化，進而得到合理的準粒子回復時間，與利用激發-探測量測之結果相吻合。

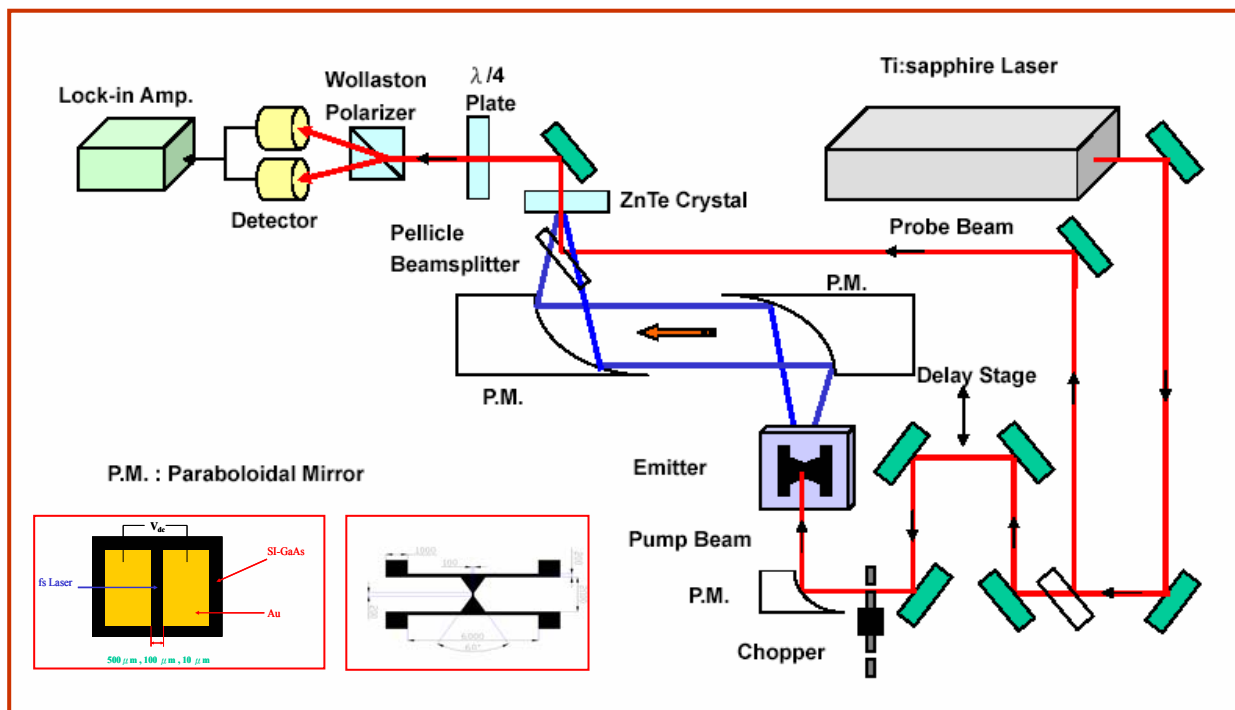


圖 4-1 利用飛秒級雷射脈衝產生兆赫電磁輻射的實驗裝置圖

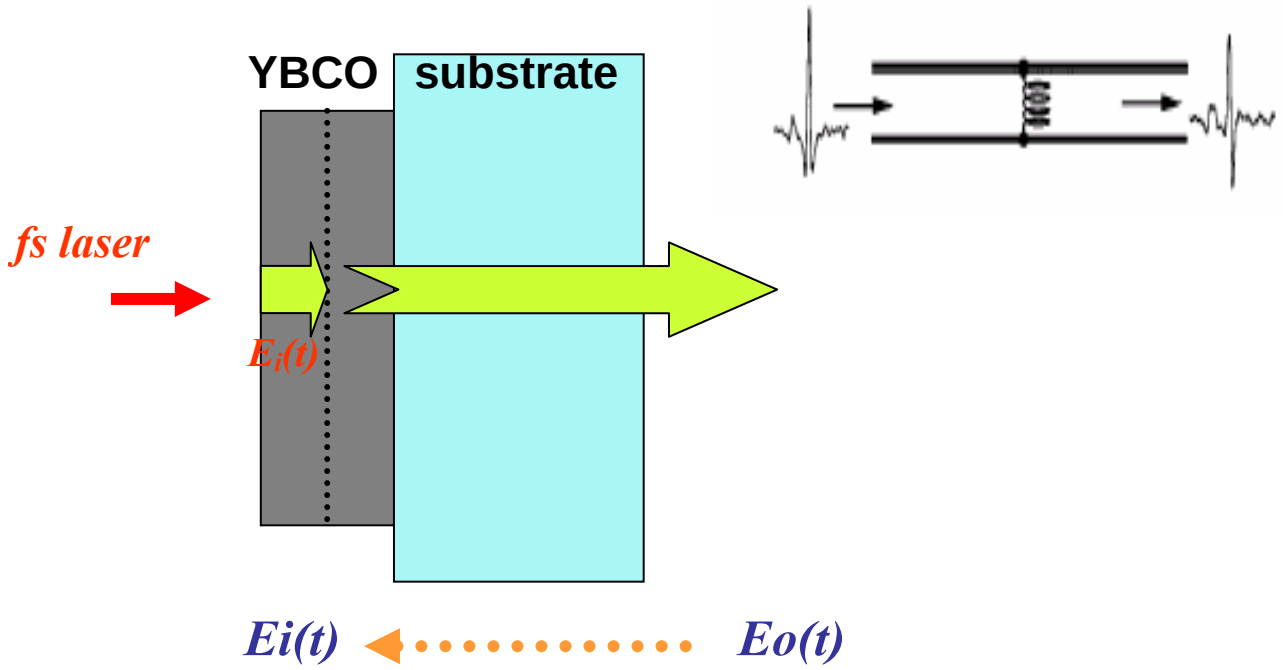


圖 4-2 由於 YBCO 薄膜在超導態時，超導載子會因外受輻射光下，引起薄膜本身動態電感的變化(kinetic inductance)，使得原來入射之輻射時域波形會有再成形(pulse reshaping)的現象。

我們以鈮鉕銅氧高溫超導薄膜製作成兆赫波微型輻射元件。當溫度低於臨界溫度(T_c)時，外加直流電流於輻射元件上將形成超導電流。這時將一短脈衝雷射光入射於此輻射元件，將使元件上的超導載子密度瞬間大量改變，此載子密度隨時間的變化將會產生高頻的電磁輻射波，其光反應時間在次皮秒與皮秒範圍之間。利用自由空間電光取樣量測方式，可將空間中傳遞之輻射電場的時域暫態波形取出；藉由傅立葉轉換後可求得頻譜分佈，得一寬頻輻射。根據電磁輻射理論可知，偶極輻射的輻射電場與電流的瞬變為正比的關係：

$$E_{THz} \propto \frac{\partial J}{\partial t} \quad (6)$$

因此，可以假設超導體產生兆赫茲電磁輻射是由於光致超導電流密度的瞬變(輻射電場強度對時間的一次積分可視為電流密度的變化)。圖 4-3 為兆赫茲輻射時域暫態波形對不同量測溫度的變化關係。我們發現當量測溫度處於較低溫狀態時($T < T_c$)，波形與相位沒有明顯的差異；當量測溫度接近於臨界溫度時($T \sim T_c$)，波形有不同的變化。而且量測溫度處於較低溫狀態時，輻射的電場時域波形變化無法與 Rothwarf-Taylor 方程式適配，而得到合理的準粒子的回復時間。所以我們提出兆赫波經過薄膜本身時，會有再成形(pulse reshaping)的現象。藉由適當的轉換函數，可模擬出原始兆赫波時域波形的變化，進而得到合理的

準粒子回復時間，與利用激發-探測量測之結果相吻合。

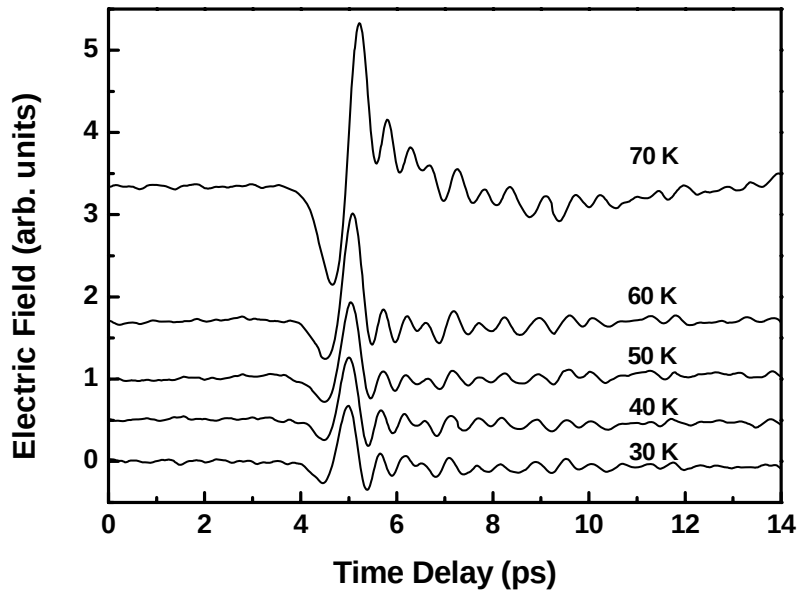


圖 4-3 兆赫茲輻射時域暫態波形對不同量測溫度的變化關係。

由於薄膜在超導態時，超導載子會因外受輻射光下，引起薄膜本身動態電感的變化(kinetic inductance)，使得原來入射之輻射時域波形會有再成形(pulse reshaping)的現象。藉由適當的轉換函數 $T(\omega)$ ，可模擬出輻射時域波形的變化，並與實驗數據結果(圖 4-4)相符合。

$$T(\omega) = \frac{E_o(\omega)}{E_i(\omega)} = \frac{2}{2 + Z_0 / Z} \propto (-i\omega) \quad (4-1)$$

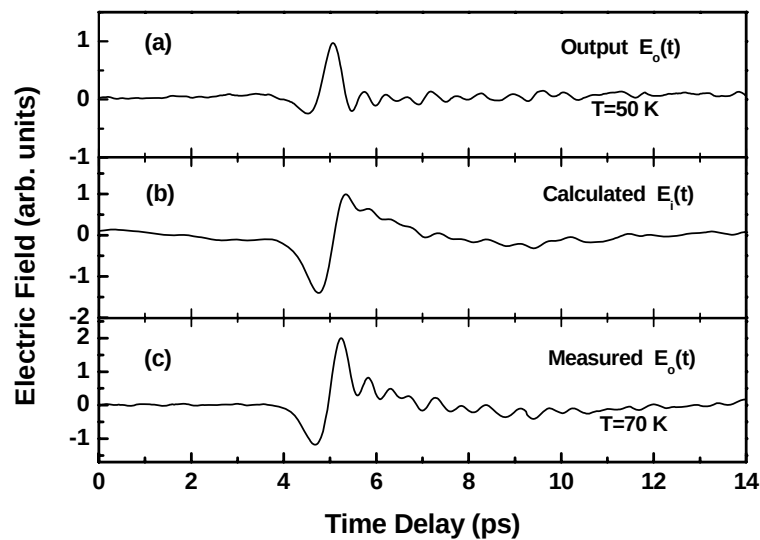


圖 4-4 藉由適當的轉換函數 $T(\omega)$ ，可模擬出輻射時域波形的變化，並與實驗數據結果相符合。

圖 4-5 為經由轉換函數 $T(\omega)$ 轉換後，其不同溫度時之原始輻射電場時域波形：

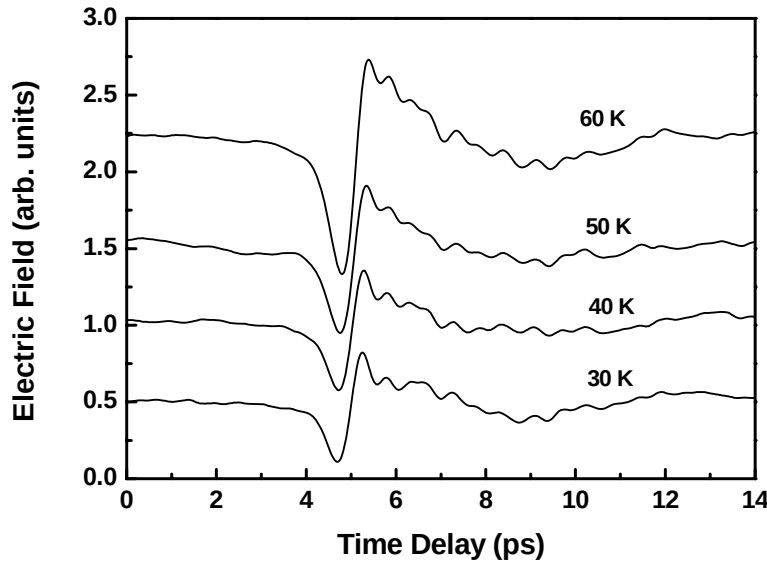


圖 4-5 經由轉換函數 $T(\omega)$ 轉換後，其不同溫度時之原始輻射電場時域波形

由結果顯示(圖 4-6)，光致超導體兆赫茲輻射的源由是來自於超導電流密度隨時間的調變(supercurrent modulation)，從這些時間解析量測所獲得的兆赫茲瞬間電場輻射波形，可以得到載子在非平衡狀態下的動力行為。在超快雷射光激發下，超導電流密度變化量會先減少，持續時間約為 1.0 ps；接著，超導電流密度變化量開始回升，持續時間約為 2.5 ps，此回復時間大小和超導能隙是相關的。

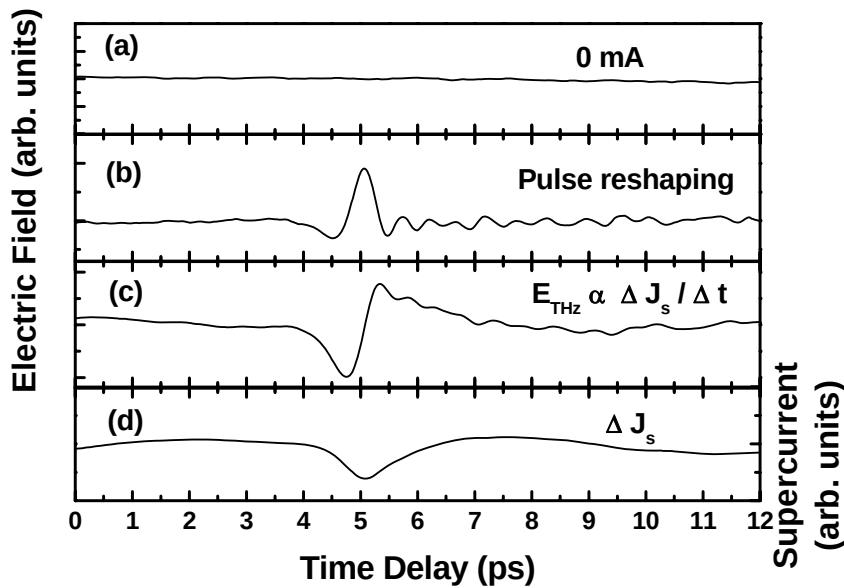


圖 4-6 光激發超導體產生兆赫輻射的源由是來自於超導電流密度隨時間的調變，從這些時間解析量測所獲得的兆赫瞬間電場輻射波形，可以得到載子在非平衡狀態下的動力行為。

B. 利用各種半導體材料產生兆赫電磁輻射及其輻射效率之研究

在時域兆赫電磁頻譜量測釔鋁銅氧超導薄膜的實驗中，發現在超導態時，穿透的兆赫電磁波振幅衰減極快，致使後續處理數據的誤差加大，故增加兆赫波振幅是首要之務，由於我們的雷射系統最高輸出功率僅 400 mW，故只好嘗試改用其它半導體材料和增加偏壓等來增加兆赫波振幅，並順便研究兆赫波源的最佳操作條件，包括外加偏壓、激發光光點聚焦與位置、激發光能量、溫度控制、激發光偏振方向、大孔徑光導天線形狀、平行板電極間隙、激發光入射角等等，以下介紹半絕緣砷化鎵和磷化銦的實驗結果。

將半絕緣性之砷化鎵半導體微影蝕刻，鍍金後成為光導開關，在外加偏壓下此光導開關受雷射光激發後，由於光電流隨時間的瞬變，將產生高頻之兆赫輻射波，利用自由空間電光取樣量測技術來量取空間上傳遞的高頻電磁波，其波段位於兆赫波段。

我們比較 SI-GaAs 與 SI-InP 之兆赫波發射源[71-72]，發現 SI-InP THz emitter 能承受較高的外加偏壓，較符合我們的需求(圖 4-7)；且針對外加偏壓、激發光能量大小、激發光點聚焦與位置等參數，與其激發出的兆赫波輻射大小作一比較；於系統上加裝一溫度控制系統，提供兆赫波發射源在一更穩定的環境下運作；比較不同電極形狀與平行板電極間隙大小對兆赫波的影響；利用 THz-TDS 的技術得到 SI-InP 在兆赫波波段的頻率響應和利用光激發-光探測量測其弛緩行為等；另外我們亦發現在激發光入射角接近布魯斯特角時，有最強之兆赫波訊號。

將目前的兆赫輻射系統和量測結果與上年度完成之系統和量測結果作比較，後者採用之兆赫波發射源為 SI-GaAs 平行板電極，電極間隙 500 μ m，外加偏壓 200V 時的訊號最穩定，其兆赫波電場分布如圖 4-7 所示。目前最佳的結果，使用的兆赫波發射源為 SI-InP 平行板電極，電極間隙 500 μ m，外加偏壓達 400V 時、其兆赫電場分布如圖 4-8 所示，後者的兆赫波電場約增加 7.5 倍，兆赫波功率強度增加 $(7.5)^2$ 倍。且訊雜比提高約 100 倍（圖 4-9、圖 4-10）。

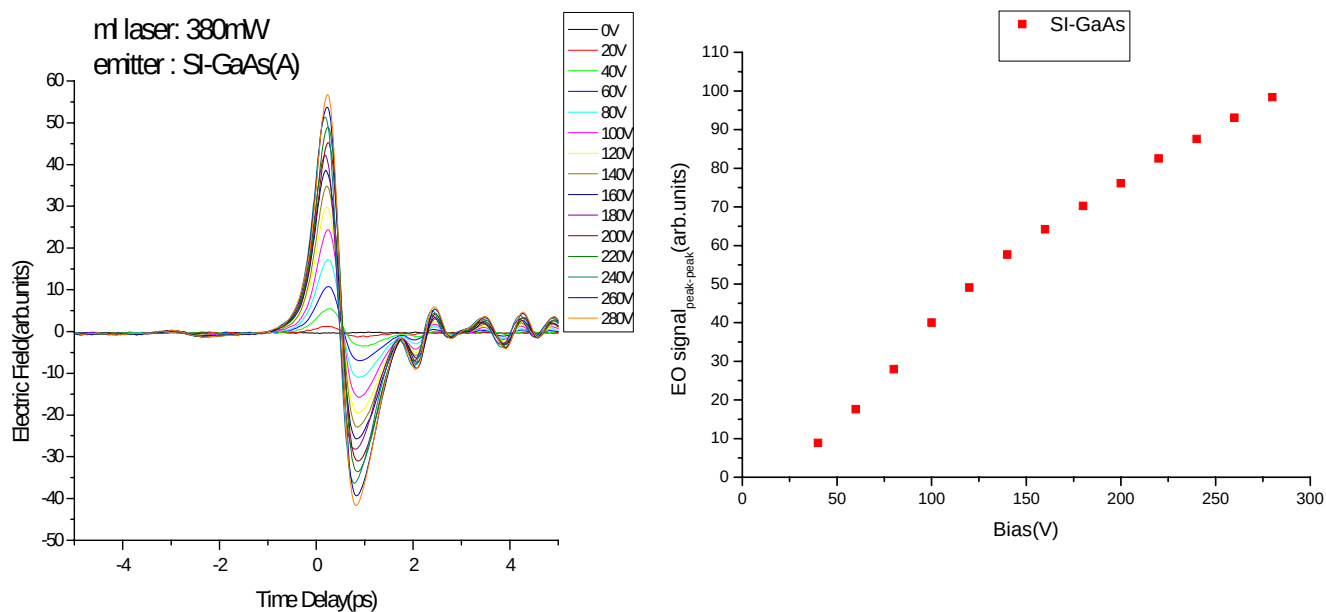


圖 4-7 SI-GaAs THz 輻射時域暫態波形和輻射場振幅與外加偏壓的關係

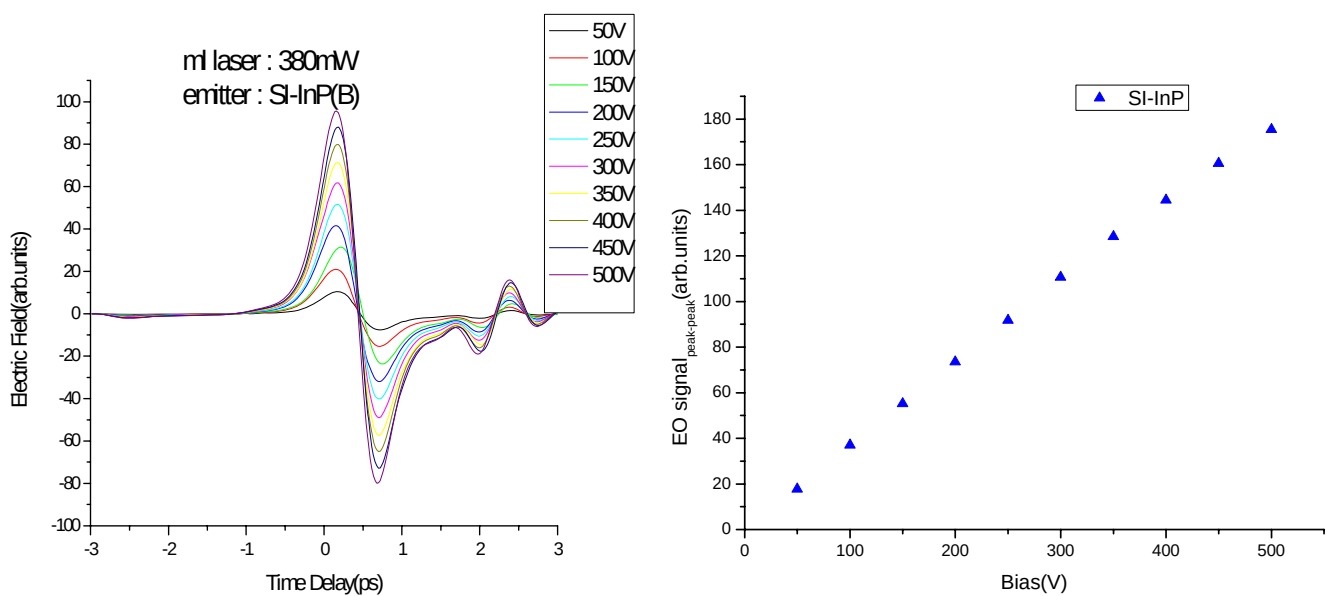


圖 4-8 SI-InP THz 輻射時域暫態波形和輻射場振幅與外加偏壓的關係

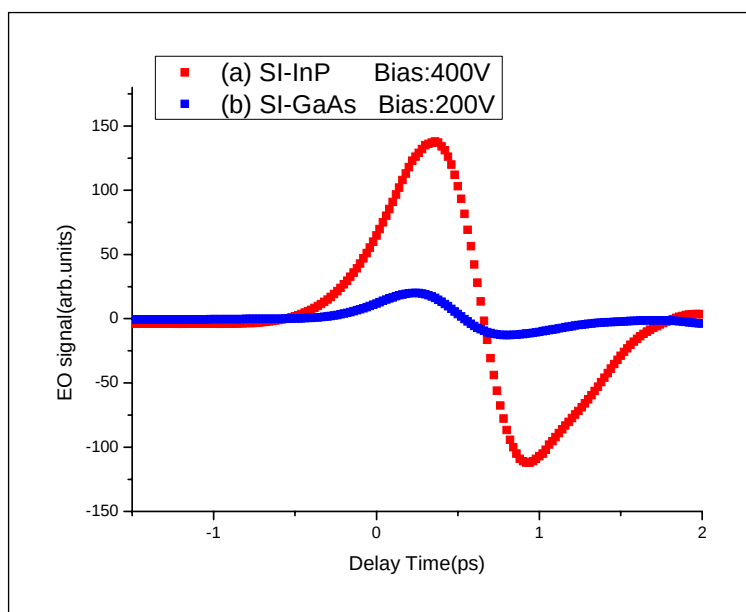


圖 4-9 早期與改進後得到的 THz 訊號比較。

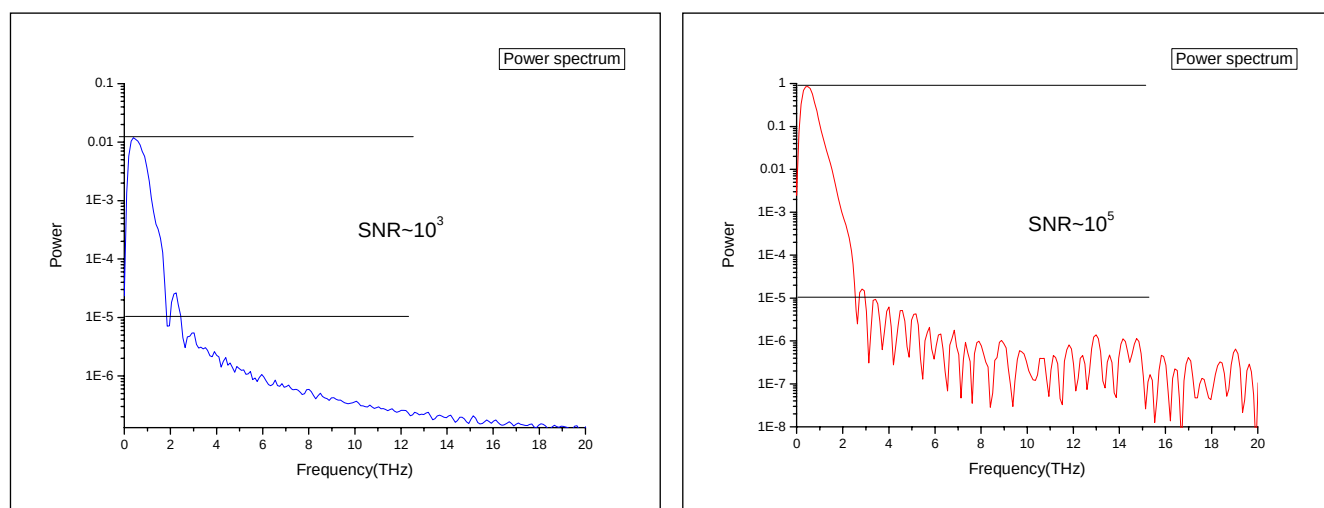


圖 4-10(a)早期系統 THz 訊號的訊雜比；(b)改進後系統 THz 訊號的訊雜比。

我們雖已初步達成目標，使兆赫波輻射輸出更有效率、穩定和作時域兆赫波頻譜量測。然而系統尚有許多改善的空間。在材料的選擇上，低溫成長砷化鎵 (LTG GaAs) 和各種光電晶體，均是目前極熱門的材料，利用分子束磊晶法成長砷化鎵時，控制基板溫度於 200°C 左右 (正常之基板溫度約為 600°C)。利用這方法長出來的砷化鎵含有較多的砷及大量的缺陷，因此它具有高電阻性、短光激發載子生命期及高崩潰電場等特點，非常適合應用於兆赫輻射發射元件；電極形狀的設計相信仍大有可為，也有研究群朝陣列式電極形狀做努力 [73]；選用合適之兆赫波發射元件，產生更短兆赫波脈衝寬度等，這些均是下三年度欲研究之項目。

五、研究時域兆赫波頻譜量測鈇銀銅氧超導薄膜的高頻響應特性[12]

我們亦利用半導體材料(SI-GaAs 和 SI-InP)製成輻射元件以產生兆赫茲輻射源，利用此電磁脈衝波入射高溫超導和龐磁阻樣品，量測其高頻響應特性。利用量測的數據，理論上可以得到樣品之介電係數、光導係數、穿透深度等隨溫度、頻率的變化情形。本節將探討鈇銀銅氧超導薄膜的高頻響應特性。

現以 YBCO 超導薄膜樣品說明量測方法：先量測高頻輻射源穿透氧化鎂(MgO)基板後的訊號(時域暫態波形)，將此訊號當成是參考的訊號 $E_{ref}(t)$ 。另外我們同樣地利用高頻輻射源引入 YBCO/MgO 薄膜以取得另一暫態波形 $E(t)$ 。接著將這兩組時域暫態波形做快速傅立葉轉換(Fast Fourier Transform)可得頻域分佈響應，分別為 $E_{ref}^*(\omega)$ 與 $E^*(\omega)$ 。將此兩組頻域響應相除($E^*(\omega)/E_{ref}^*(\omega)$)即可得到某頻率下的相對複數透射率(Complex Relative Transmittance) $T^*(\omega)$ ，其方程式如下[74-75]：

$$T^*(\omega) = \frac{E^*(\omega)}{E_{ref}^*(\omega)} = \frac{2n_s(1+n_{MgO})}{(1+n_s)(n_s+n_{MgO})e^{-in_s\omega d/c} + (1-n_s)(n_s-n_{MgO})e^{in_s\omega d/c}} \quad (5-1)$$

其中， n_{MgO} 為氧化鎂基板的折射率(Index of Refraction)， $n_{MgO}=3.18$ 。 n_s 為 YBCO 的複數折射率，滿足 $n_s = n + ik$ 。 d 為 YBCO 薄膜的厚度。 $\omega = 2\pi f$ ， f 為頻率。由計算上述式子後可獲得某頻率下 YBCO 薄膜的複數介電係數

$\varepsilon(n_s^2 = \varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2)$ 和光導電率 σ 。其關係表示式如下：

$$\varepsilon_1 = n^2 - k^2$$

$$\varepsilon_2 = 2nk$$

$$\sigma = \sigma_1 + i\sigma_2 = i\omega\varepsilon_0\varepsilon \quad (5-2)$$

繼而可得到表面電阻大小 $R_s(\omega, T)$ (Surface Resistance)，其計算方式如下所示

$$R_s(\omega, T) = \sqrt{\frac{\mu_0\omega}{2} \frac{|\sigma(\omega, T)| - \sigma''(\omega, T)}{|\sigma(\omega, T)|^2}} \quad (5-3)$$

為了決定 YBCO 的穿透深度(Penetration Depth)大小，我們必須先從超導體的二流體模型(Two-Fluid Model)出發。根據超導體的二流體模型指出，當量測溫度低於臨界溫度時，正常態和超導態共存，即材料的導電率 σ_{full} 來自於正常態 σ_n 與超導態 σ_s 的貢獻：

$$\sigma_{full}(\omega) = \sigma_n(\omega) + \sigma_s(\omega) = \frac{n_n e^2 \tau / m^*}{1 - i\omega\tau} + i \frac{1}{\mu_0 \omega \lambda_L} \quad (5-4)$$

其中，導電率的實部為 $\sigma'(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 + (\omega\tau)^2}$ ， $\sigma_0 = n_n e^2 \tau / m^*$ 為直流導電率。又正常態準粒子貢獻於導電率的虛部為：

$$\sigma''_{Drude}(\omega) = \frac{\sigma_0 \omega \tau}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (5-5)$$

因此我們可以得到超導載子貢獻的導電率大小為：

$$\sigma_{sc}(\omega) = \sigma''_{full}(\omega) - \sigma''_{Drude}(\omega) = \frac{1}{\mu_0 \lambda_L^2 f} \quad (5-6)$$

對 $1/f$ 作曲線的適配，可以求出穿透深度大小 (λ_L)。

依據上面描述的方式，我們可以得到材料在高頻響應下的介電係數、光導電率與穿透深度等。接著我們就可以進一步探討改變不同量測溫度、不同頻率時，光導電率與穿透深度大小的響應。

複數折射率：

不考慮多重反射、去水氣下量測分析而得的 YBCO 薄膜複數折射率實部和虛部，如圖 5-1 所示。我們可看出 YBCO 薄膜複數折射率實部 n ，在溫度低於超導臨界溫度 T_c 時，隨著溫度的降低而降低，虛部 k 則隨著溫度的降低而增加，並漸漸趨於平緩，而實部 n 及虛部 k ，在兆赫茲輻射為 0.25 ~ 1.25 THz 間，均隨著頻率的增加而變小。當溫度低於超導臨界溫度 T_c 、兆赫茲輻射頻率在 0.25 ~ 1.25 THz 間時， k 大於 n ， k 值約分佈在 120 ~ 600 間， n 值則約分佈在 0 ~ 120 間。

複數介電常數：

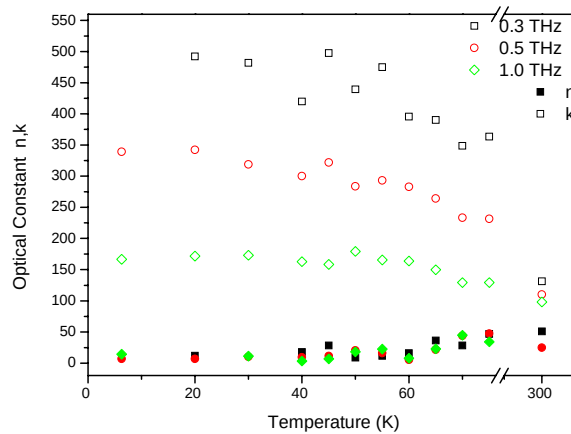


圖 5-1 YBCO 薄膜複數折射率與溫度之關係

由圖 5-2、圖 5-3 可看出 YBCO 薄膜在溫度低於超導臨界溫度 T_c 時，YBCO 薄膜複數介電常數之實部 ϵ_r 隨著溫度的下降而上升，並漸趨穩定，而在兆赫輻射頻率為 0.25~1.25 THz 間； ϵ_r 隨著頻率的上升而下降。另外，由圖 5-3 可看出 YBCO 薄膜複數介電常數之虛部 ϵ_i ，在溫度低於超導臨界溫度 T_c 時，可觀察到一個峰值，當兆赫輻射頻率於 0.25 THz 至 1.25 THz 間時，此峰值隨著頻率的上升而下降，而此峰值所出現的溫度並隨著頻率的上升而上升。

電導率：

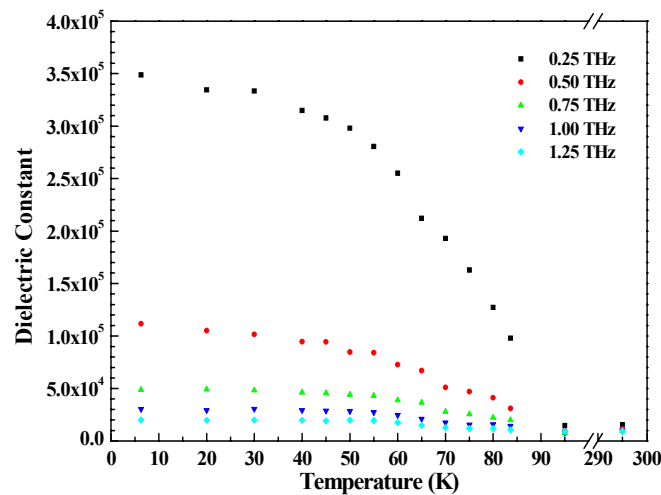


圖 5-2 YBCO 複數介電係數 ϵ^* 實部與溫度之關係

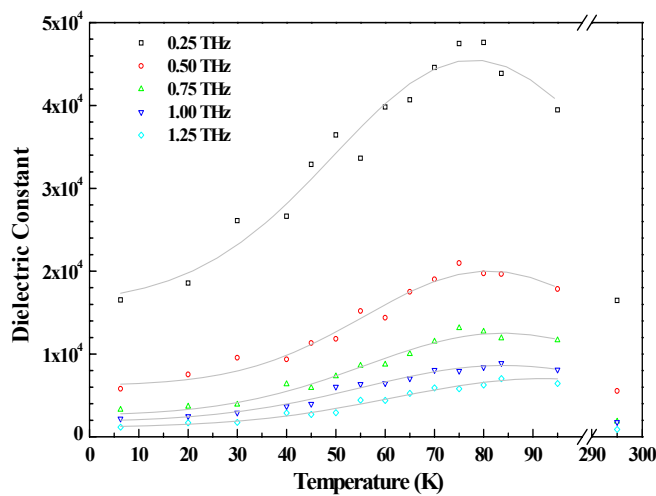


圖 5-3 YBCO 複數介電係數 ϵ^* 虛部與溫度之關係

由圖 5-4 是 YBCO 薄膜複數導電率之實部 σ_r ，在溫度低於超導臨界溫度 T_c 時，可觀察到一個峰值，此峰值之成因是散射時間和正常態載子密度兩者相互競爭的結果；當兆赫輻射頻率於 0.25 THz 至 1.25 THz 間時，此峰值隨著頻率的上升而下降，而此峰值所出現的溫度並隨著頻率的上升而上升。由圖 5-5 可看出 YBCO 薄膜在溫度低於超導臨界溫度 T_c 時，YBCO 薄膜複數導電率之虛部 σ_i 隨著溫度的下降而上升，並漸趨穩定，而在兆赫輻射頻率為 0.25~1.25 THz 間， σ_i 隨著頻率的上升而下降。

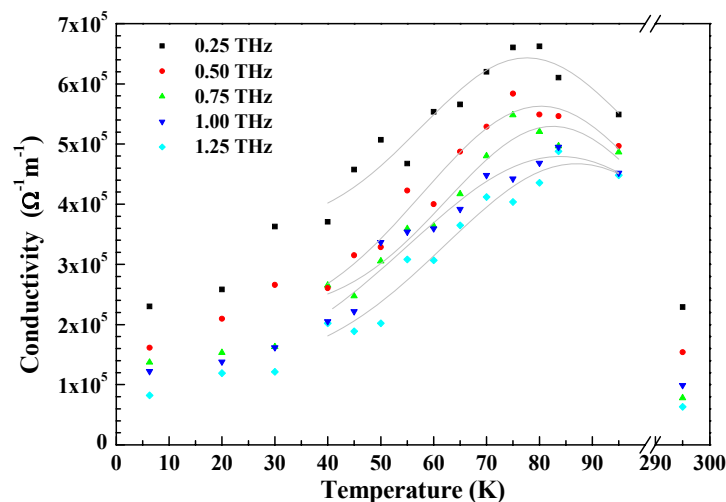


圖5-4 YBCO 薄膜之複數電導率 σ^* 實部與溫度之關係

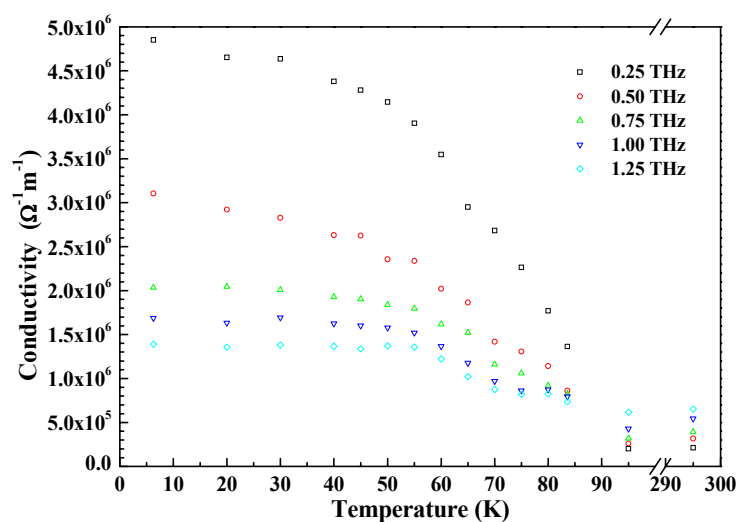


圖 5-5 YBCO 薄膜之複數電導率 σ^* 虛部與溫度之關係

穿透深度(London Penetration Depth):

圖5-6顯示的是YBCO薄膜倫敦穿透深度 λ_L 在不同樣品中隨溫度變化的情形。由圖可知，樣品B其在絕對零度下之倫敦穿透深度 $\lambda_L(0)$ 約為295 nm，此結果比YBCO單晶的穿透深度值(約為145 nm)偏高。另外，我們亦在相同鍍膜條件下製備一片YBCO薄膜(sample A)。量測溫度為70K時，其 λ_L 值約為200 nm，因此預測此樣品之 $\lambda_L(0)$ 將非常接近YBCO單晶之結果，顯示出此樣品(sample A)具有絕佳的品質。由於製備之YBCO薄膜的厚度很薄，約為30 nm大小，即使蒸鍍條件相同，薄膜表面其缺陷程度效應大小的影響，會明顯的造成薄膜倫敦穿透深度的變化。如何蒸鍍品質良好的超薄超導薄膜，是本實驗最基本的須求。

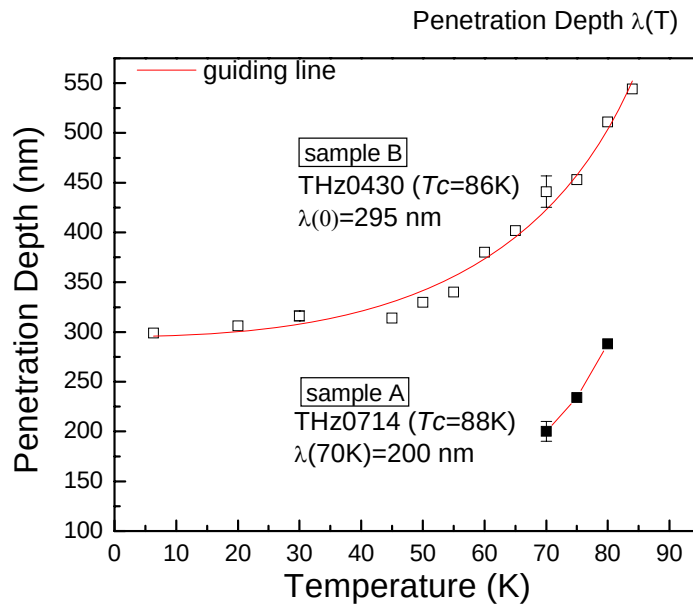


圖 5-6 YBCO 薄膜倫敦穿透深度 λ_L 隨溫度變化的情形。

六、研究時域兆赫波頻譜量測鑷鈣錳氧薄膜的高頻響應特性

我們也研究鈣鈦礦(Perovskite)磁性薄膜與基板材料在兆赫波段之時域頻譜，藉以瞭解材料在此波段下之高頻電磁相關物理特性。利用 THz-TDS 頻譜分析可以直接量取時間相關之輻射波形分布，經由傅立葉轉換後所得之穿透係數比可同時計算實部與虛部之複數頻譜。

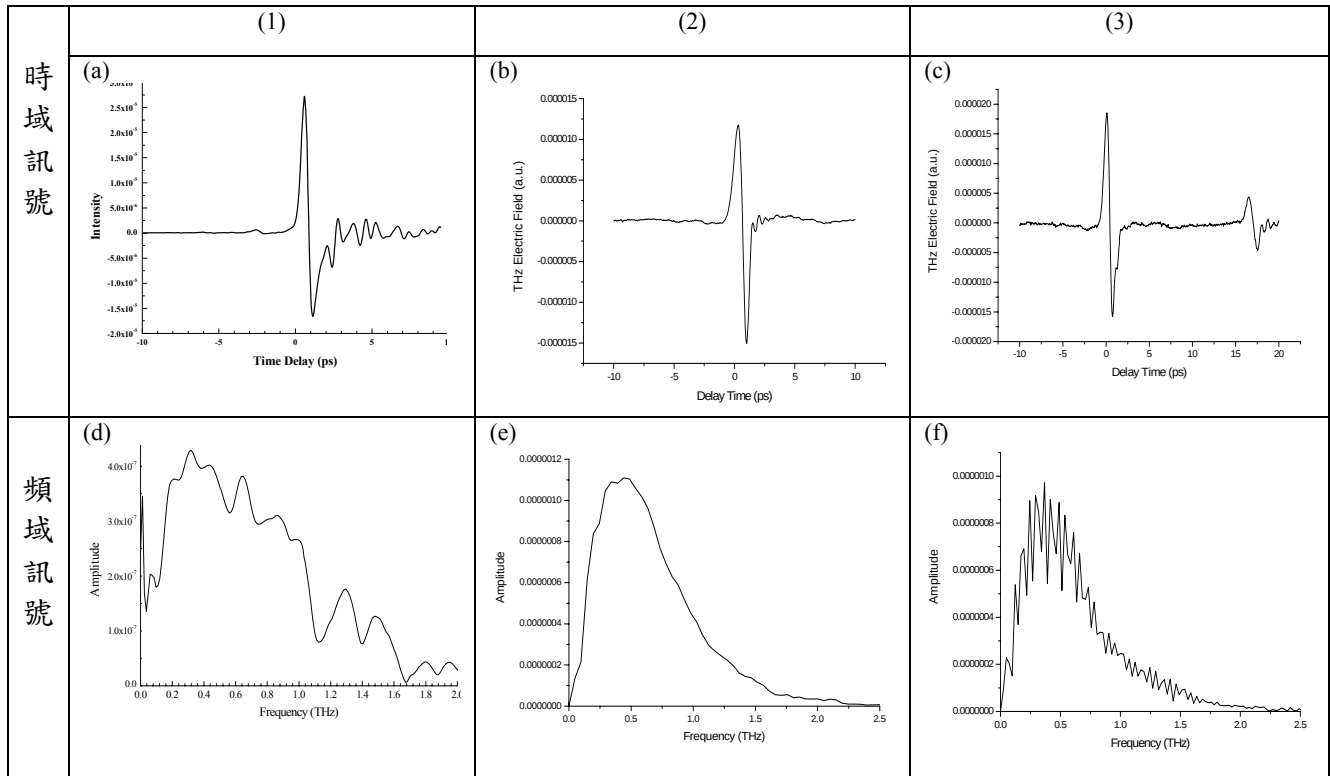


圖 6-1 THz 輻射時域訊號與頻域訊號：(1)室溫沒有去水氣沒有多重反射；
(2)室溫去水氣下且沒有多重反射；(3)室溫去水氣下且有多重反射

圖 6-1 將 THz 時域訊號取傅立葉轉換得到頻域訊號，考慮三種不同情況(1)室溫沒有去水氣沒有多重反射，(2)室溫去水氣下且沒有多重反射，(3)室溫去水氣下且有多重反射，(a)、(b)、(c)分別為三種情況所得量到的時域訊號，(d)、(e)、(f)分別為將三種時域訊號作快速傅立葉轉換，在沒有去水氣的情況下很明顯可以發現水氣對 THz 某些頻率有強烈吸收，圖 6-2 和 6-3 為 THz 經過自由空間的時域訊號以及 THz 輻射波經由鈦鎳氧(NGO)基板及 LCMO 薄膜(以 NGO 為基板)後得到之穿透的輻射波訊號。從結果可知，THz 輻射波經由 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 材料後，訊號有很明顯的變化，從圖中觀察此訊號的改變與訊號的大小及相位有直接的關係，這說明了 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜材料在 THz 波段的透射率與反射率造成的影響。同樣由前述之理論分析與計算，可從輻射波形的透射係數關係直接求得 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜 THz 在波段的複數折射率。

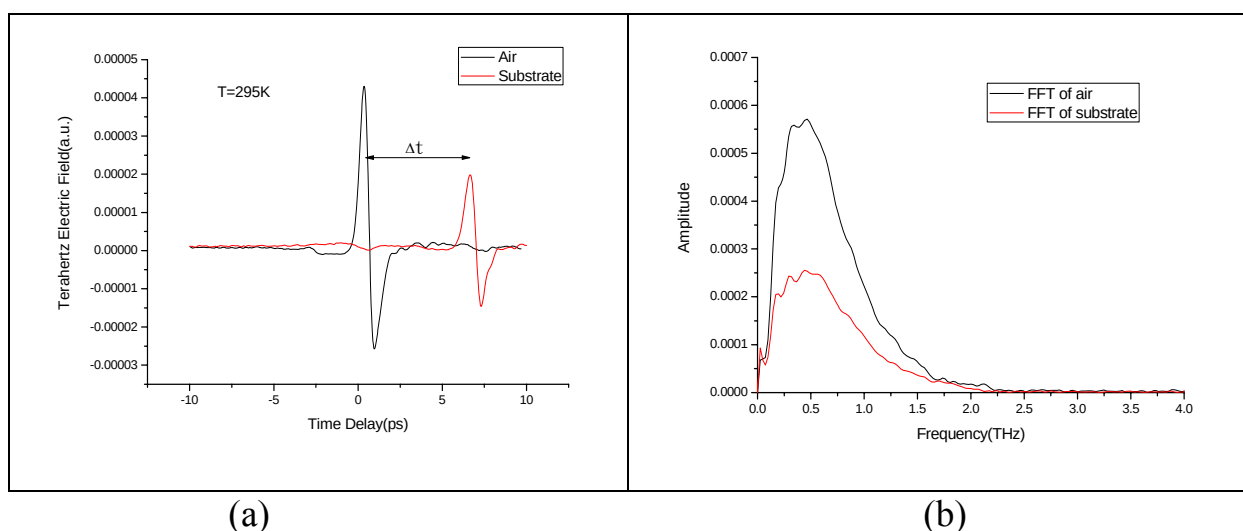


圖 6-2 THz 經過自由空間的時域訊號以及 THz 輻射波經由鈹鎳氧(NGO)基板後得到之(a)穿透的輻射波訊號及(b)頻譜分布。

圖 6-3 是 THz 輻射經過我們成長的薄膜材料 LCMO/NGO，時域訊號在不同溫度之下量測的結果，由於 LCMO 磁性薄膜在不同溫度下其特性有很大的不同，在相變溫度之上為絕緣態，在相變溫度之下逐漸轉變為金屬態，因此觀察我們的時域訊號跟溫度的關係，可以清楚發現在溫度達到相變溫度時訊號強度大幅下降，且隨溫度越低 THz 輻射訊號越小，其波形亦產生些微變化，從時域的訊號隨溫度的變化來看可以大略了解 LCMO 薄膜的複數折射率與溫度有很大的關係，故延伸出的其他介電性質也與溫度有密不可分的關係。如圖 6-3(b)，將時域訊號做傅立葉轉換觀察其相應頻譜的變化。

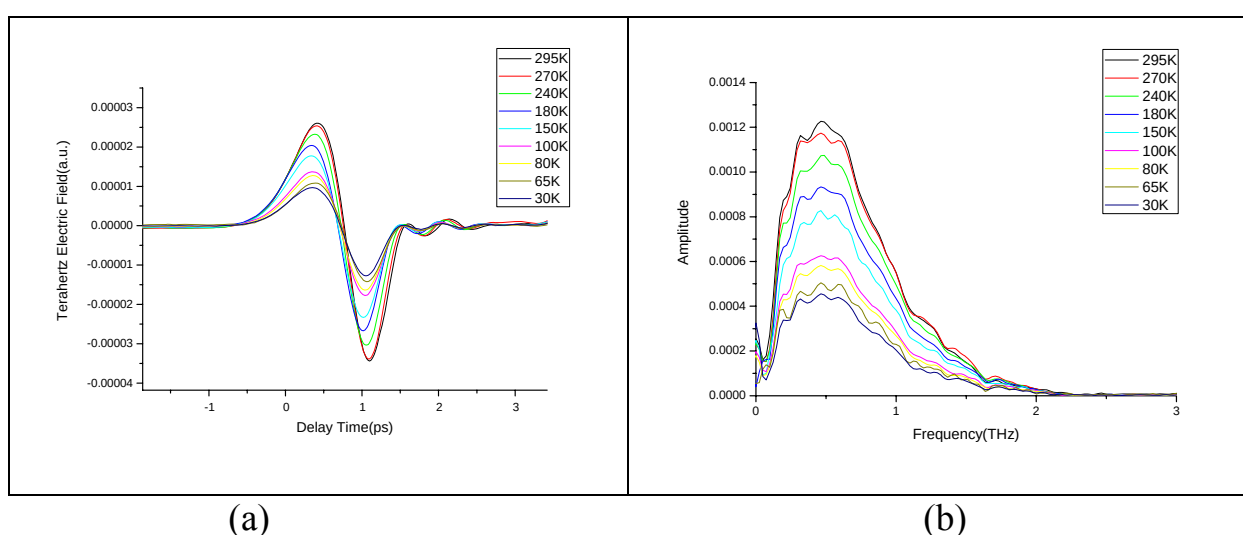


圖 6-3 THz 經過 (NGO)基板及 LCMO 薄膜後得到之(a)穿透的輻射波訊號及(b)對應頻譜分布。

圖 6-4 為在不同溫度之下實驗所得到的複數透射係數比振幅，在不考慮多重反射的情況下且 $|T_{\text{exp}}^*(\omega, n_f^*)| = |E_{\text{film}}^*(\omega, n_f^*)| / |T_{\text{sub}}^*(\omega)|$ ，觀察實驗結果在 LCMO 薄膜到達相變溫度($T_C=260\text{K}$)以下時穿透振幅明顯開始下降，顯見薄膜性質隨溫度變化，所以溫度越低穿透率越小，換句話說 THz 訊號減小了。

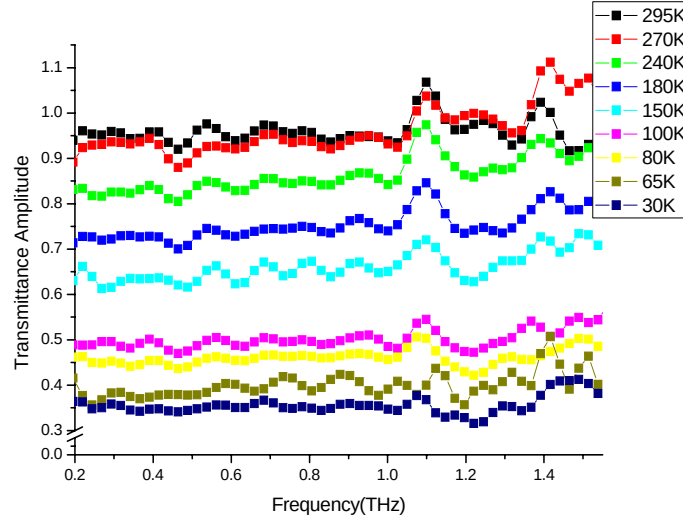


圖 6-4 LCMO/NGO 之實驗透射係數比

由理論計算加上實驗我們可以推算得複數折射率，如圖 6-5 (a)顯示不同溫度之下的複數折射率實部，圖 6-5 (b)為不同溫度之下的複數折射率虛部，仔細觀察實驗結果，我們發現在相同溫度之下複數折射率的實部與虛部值非常接近 $n(\omega) \approx \kappa(\omega)$ ，實部與虛部值隨頻率的變化皆是隨頻率上升(0.1~1.5THz)而減小，且隨溫度下降而減小。以物理圖像來看，實部 $n(\omega)$ 所代表的是材料對光所造成的相位延遲，虛部 $\kappa(\omega)$ 所代表的則是材料對於光的吸收。

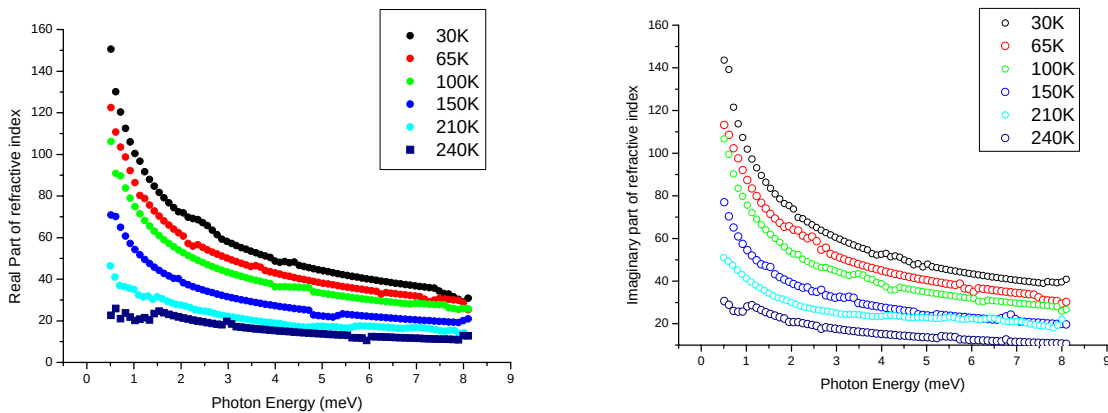


圖 6-5 (a)不同溫度之下的複數折射率實部，(b)不同溫度之下的複數折射率虛部之頻率響應

介電函數 $\varepsilon^*(\omega)$ ，是來描述材料晶體對電磁場所產生的響應，而介電函數與晶體的電子能帶結構有密切的關係，因此使用光學方法來研究介電函數對於晶體能帶結構的決定是非常有用的，現已為重要的實驗工具。介電函數的虛部 $\varepsilon''(\omega) = 2n\kappa$ ，如圖 6-6，將已得到的複數折射率實部虛部計算得到介電函數虛部，圖中為不同溫度得到的介電函數， $\varepsilon''(\omega)$ 介電函數的虛部對應的物理意義代表系統 LCMO 薄膜對 THz 光能量的吸收，對於溫度的變化，溫度越低薄膜吸收能量越多，對於固定溫度而頻率的變化可以看出 LCMO 薄膜吸收光子能量低的部分。

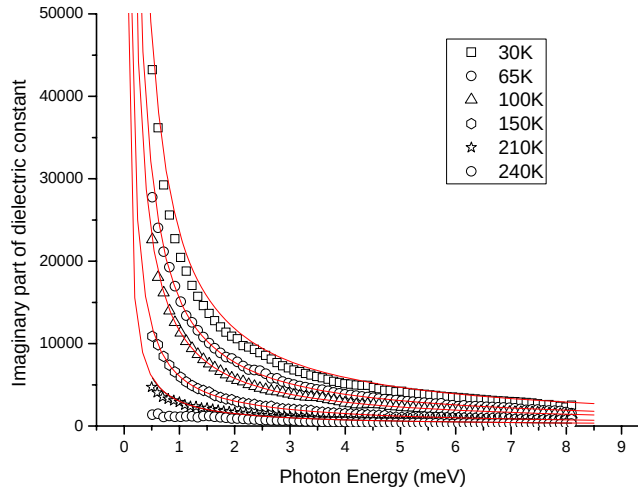
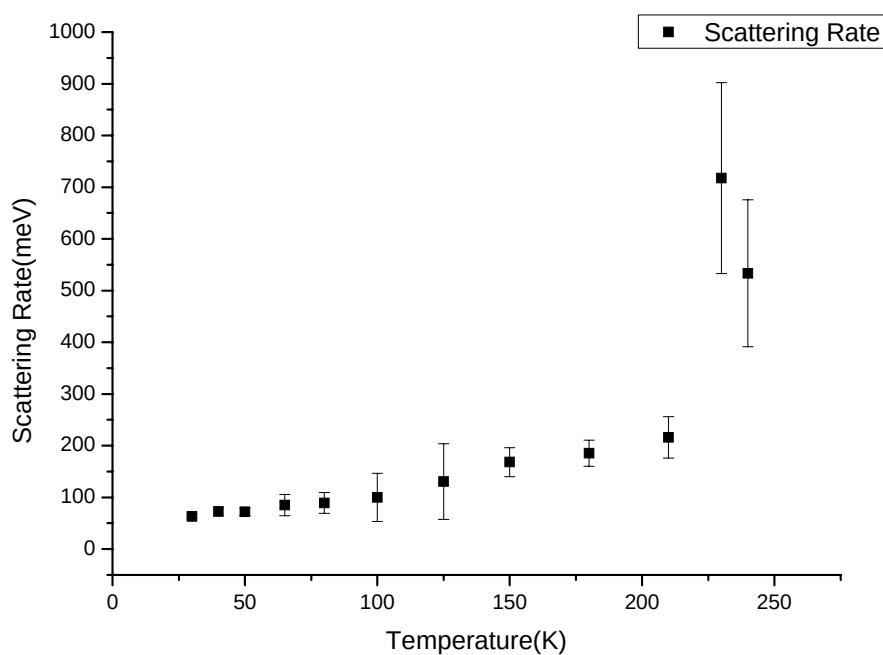


圖 6-6 不同溫度下的複數介電函數虛部之頻率響應

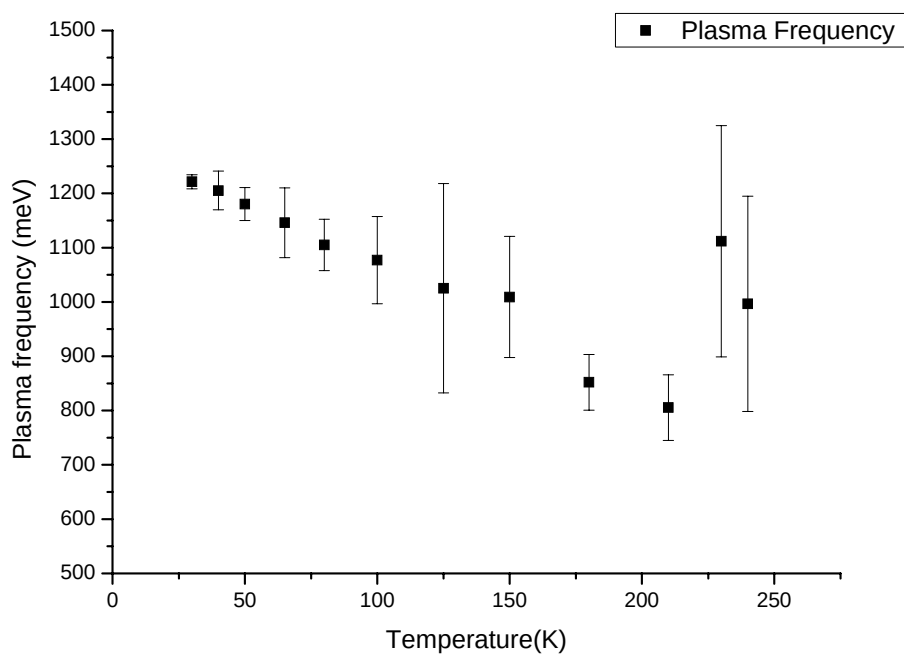
在我們得到介電常數之後，由公式推導可知，介電常數與物理參數電漿頻率(plasma frequency)與散射率(scattering rate)有關係， $\varepsilon''(\omega) = 2n\kappa = \frac{\gamma}{\omega} \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \right)$ ，因為 LCMO 薄膜在低溫的時候屬於金屬相(我們在參數擬合的部分只討論 LCMO 在金屬相的部分)，因為我們試著用 Drude Model 來對此金屬行為做解釋，我們使用數學擬合的方式來獲得以上兩個物理參數，其中擬合的曲線如圖 6-6 中紅色的曲線，我們對於不同溫度都做參數擬合獲得如圖 6-7、6-8 的結果；觀察散射率對溫度的反應，當溫度從低溫慢慢增加溫度，散射率慢慢增加， $\gamma = 1/\tau$ ，也就是 τ (relaxation time) 隨溫度增加而減少，此結果符合 Drude Model 在解釋金屬行為時，一般而言 $\tau_{\text{低溫}} > \tau_{\text{室溫}}$ 的結果，另一方面，隨溫度的增加可以發現電漿頻率慢慢減少，以物理圖像來解釋， $\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi n e^2}{m^*}}$ ，我們認為是因為載子有效質量隨溫度增加而增加，載子濃度隨溫度增加而減少所造成的結果。

除此之外，觀察參數擬合結果當溫度到達 230K 左右的時候，散射率與電漿頻率出現不在預期的結果，有比較大幅度的跳動，可能解釋的原因在於 LCMO

薄膜在溫度低於約 230K 的時候，其才會呈現良好且適用 Drude Model 來解釋的金屬相。



(a)



(b)

圖 6-7 用 Drude Model 解釋 LCMO 薄膜在低溫之金屬行為，並使用數學擬合得(a) 散射率(b)電漿頻率對溫度的關係圖

我們亦可以得到材料在 THz 頻段之下的電導率(Conductivity)，如圖 6-8 所示，是在不同溫度之下所得到的電導率結果，圖 6-9 為頻率在 0.7THz 時，電導率隨溫度變化的情形。

對於磁性材料的 TDS 量測，根據過去的經驗，對於在理論穿透係數比的計算上，由於所量測的樣品皆不屬於磁性材料的範疇，因此會將導磁係數(permeability) μ 視為 μ_0 ，但是 LCMO 在低溫之下屬於鐵磁性物質，應不能將導磁係數再視為 μ_0 ，但根據國外論文的發表[9,76]，可以發現在 THz 的頻段下，仍將磁導係數當成 μ_0 ，未來對於磁性材料要將磁導係數考慮在穿透係數比之中，是一個很重要且是一個值得深入探討的課題。

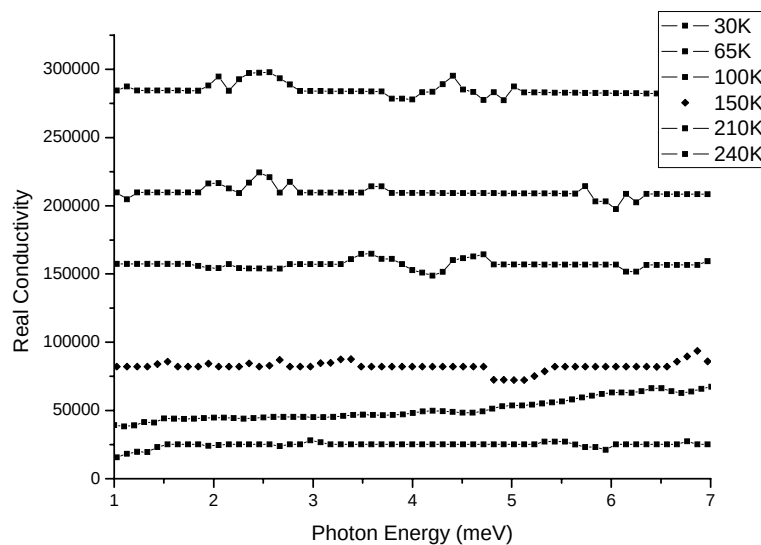


圖 6-8 LCMO 薄膜在不同溫度下的光學電導率實部之頻率響應

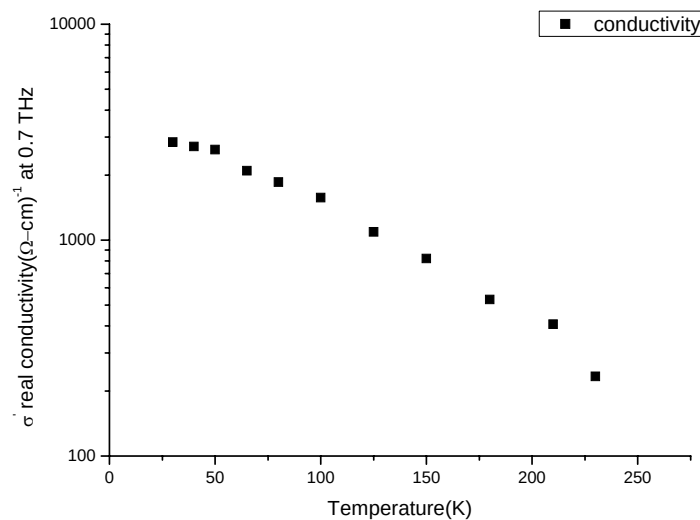


圖 6-9 LCMO 薄膜電導率實部在 0.7THz 隨溫度變化的關係

V、總結與自評

在這三年的計畫中，我們利用改進後之飛秒級超快雷射光源、極化激發-探測量測技術和時域兆赫波頻譜，來量測分析高溫超導薄膜和龐磁阻錳氧化物薄膜的超快動力行為。

在高溫超導薄膜方面，量測不同軸向、不同過摻雜量及不同氧含量的鈮系高溫超導薄膜，在不同極化光激發-探測下的 $\Delta R/R$ 大小、載子弛緩時間常數及超導能隙和偽能隙對稱等。利用極化超快光譜技術和軸向分明的(100)和(110)鈮系超導薄膜，使我們可以很清楚地分離沿節線方向和沿非節線方向的光學反應，進一步得到準粒子弛緩之二向性行為和其能隙之對稱分布。

我們得到沿 b 軸方向的遲緩時間—即沿反節線方向的準粒子弛緩行為，與沿著 ab 對角線軸向的遲緩時間—即沿節線方向的準粒子弛緩行為，有很大差異，顯示兩者弛緩過程的二向性行為。我們發現，沿著 ab 對角線軸向的遲緩時間，均對應節線方向或非超導的準粒子弛緩行為。而沿 b 軸方向的準粒子，對應反節線方向的準粒子弛緩行為，即遵行一般超導強聲子瓶頸效應的弛緩行為。

我們改變不同的氧含量，藉由同樣的程序，可以求出不同氧含量時，不同軸向的超導能隙及偽能隙變化，也顯示 YBCO 高溫超導體的能隙二向性行為。這是首次利用特定晶軸取向的薄膜，能區分出 ab 平面上，不同軸向的超導能隙及偽能隙之對稱分布。

我們亦進一步研究過摻雜(overdoped)的鈮系高溫超導薄膜的超導能隙和偽能隙的對稱性問題。仍可得到(100) $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($x = 0.1, 0.3$) 薄膜沿 b 軸和沿 c 軸的各向異性弛緩行為，並得到不同過摻雜的能隙分佈情形。但摻鈣(100)和(110)薄膜均不易製作，可能是由於薄膜組成不易分布均勻之故，所以常有多相共存的結果，目前(新三年計畫)我們仍持續製作高品質摻鈣之(100)和(110)薄膜，並嚐試使用控氧技術，使我們能用單一(100)和(110)樣品，得到自過摻雜至摻雜不足時，沿節線和沿反節線方向之準粒子弛緩行為和能隙分布的演變情形。

在時間解析激發-探測光譜量測錳氧鈣鈦礦化合物磁性薄膜方面，我們初步利用超快時間解析光激發-光探量測 $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ 、 $La_{0.48}Ca_{0.52}MnO_3$ 和

$\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ 等樣品的準粒子動力學，這些結果顯示，當溫度高於居理溫度時，僅對應一快弛緩分量(數 ps)，即 Jahn-Teller 畸變小極化子之弛緩行為；而當溫度低於居理溫度時，另存在一慢弛緩分量(數十至數百 ps)，即對應自旋晶格弛緩行為。我們亦注意到 $\Delta R/R$ 隨時間的變化，有振盪衰減的現象，不同摻鈣量的鐳鈣錳氧樣品，其振盪頻率和衰減情形不同。這些結果，如快弛緩分量與慢弛緩分量之振幅與弛緩時間常數時間，隨溫度變化之物理機制；變號對應之物理機制；同調聲子振盪之特性和對應之物理機制；不同摻雜的超快動力行為與材料之晶格、自旋、電荷、軌道自由度之間相互作用的關連和磁相變、金屬絕緣相變的關連等，有待在下三年度計畫中，有系統量測不同摻鈣量的鐳鈣錳氧薄膜的超快特性和量測光激發-兆赫波探測數據後，再提出圓滿的解釋。

利用飛秒級雷射脈衝激發超導體和半導體產生兆赫波脈衝方面，我們已完成釔鋁銅氧高溫超導薄膜元件的兆赫波輻射量測，包括改變不同雷射光能量、不同外加偏電流及不同量測溫度下之兆赫波時域瞬變波形。我們亦發現時域暫態波形的振幅大小與相位關係有非常明顯的不同，而提出兆赫波經過薄膜本身時，會有再成形的現象。藉由適當的轉換函數，可模擬出原始兆赫波時域波形的變化，進而得到合理的準粒子回復時間，與利用激發-探測量測之結果相吻合。另外，我們亦研究利用半導體材料(SI-GaAs 和 InP)製成輻射元件，產生兆赫茲輻射源的最佳操作條件，包括外加偏壓、激發光光點聚焦與位置、激發光能量、溫度控制、激發光偏振方向、大孔徑光導天線形狀、平行板電極間隙、激發光入射角等等。目前最佳的結果，是使用 SI-InP 為兆赫波輻射源，平行板電極間隙為 $500\mu\text{m}$ ，外加偏壓達 400V 時，其兆赫電場約增加 7.5 倍，兆赫波功率強度增加 $(7.5)^2$ 倍，且訊雜比提高約 100 倍。

我們雖已初步達成目標，使兆赫波輻射輸出更有效率、穩定和作時域兆赫波頻譜量測之應用，然而系統尚有許多改善的空間。下三年度欲研究之項目，包含選用合適之兆赫波發射元件，如考慮低溫成長砷化鎵 (LT GaAs) 和各種光電晶體等和產生更短兆赫波脈衝寬度等。

我們亦利用半導體材料(SI-GaAs 和 SI-InP)製成之兆赫波輻射源，利用此電磁脈衝波入射高溫超導和龐磁阻樣品，量測其高頻響應特性。在高溫超導體方面，配合二流體模型，進一步得到超導薄膜在不同溫度、不同頻率下的介電係

數、光導電率、高頻阻抗、穿透深度、準粒子散射率等資訊，並探討其高溫超導機制與特性。在龐磁阻錳氧化合物方面，由實驗數據可推出實部、虛部折射率、介電函數、電漿頻率、散射率和導電率隨頻率和溫度的變化情形，以便瞭解巨磁阻錳氧化合物導電率的本質。在下三年度計畫中，我們將有系統量測不同摻鈣量的鏽鈣錳氧薄膜，研究上述特性的變化，以進一步瞭解龐磁阻材料的物理機制。

和本計畫相關，已發表之論文和訓練之研究生及其論文，如第V章所列。本計畫在三年的研究期間，由於本系搬家事宜，相關水電空調等設施，無法配合，故約有六個月時間無法實驗，以致進度時有延誤，尚有些實驗結果待整理發表。本計畫的經費亦大幅被刪，故非常拮据，許多實驗裝置無法裝設，如超快雷射 MBE 真空室等，故這方面的實驗無法進行。未來，若有機會，我們仍想朝超快雷射 MBE 鍍膜方向發展。

VI、參考文獻

1. T.Elsaesser, et al., (ed) Ultrafast Phenomena vol **12** (Berlin:Springer)(2001).
2. J. Shah, Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures (New York: Springer) (1999).
3. D. S. Chemla et al., Nature **411**, 549 (2001).
4. R. Huber, et al., Nature **414**, 286 (2001).
5. Eesley et al., Phys. Rev. Lett. **51**, 2140 (1983).
6. W. S. Fann, et al., Phys. Rev. Lett. **68**, 2834 (1992).
7. R. H. M. Groeneveld, et al., Phys. Rev. B **51**, 11433 (1995).
8. R. W. Schoenlein, et al., Phys. Rev. Lett. **58**, 1680 (1987).
9. R. D. Averitt¹ and A. J. Taylor, J. Phys.: Condens. Matter **14**, R1357–R1390 (2002).
10. C. W. Lou, M. H. Chen, S. P. Chen, K. H. Wu, J. Y. Juang, J. -Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou :“Spatial Dichotomy of Quasiparticle Dynamics in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Superconducting Thin Films by Polarized Femtosecond Spectroscopy “, in press, Physical Review B (2006).
11. C. W. Lou, P. T. Shih, Y. -J. Chen, M. H. Chen, K. H. Wu, J. Y. Juang, J. -Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou :“Spatially-resolved relaxation Dynamics of Photoinduced Quasiparticle in Underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ”, Physical Review B **72**, 092506 (2005).
12. P. I. Lin, K. H. Wu, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou, “Generation of THz Radiation and Its Application in the Studies of Electrodynamics of High-Tc Superconductors in THz Regime”, 2005 Japan-Taiwan Symposium on Superconductive Electronics, Sapporo, Japan, Feb. 2005.
13. P. I. Lin, C.W. Luo, H. S. Liu, S. F. Chen, K. H. Wu, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou: “On the origin of photogenerated terahertz radiation from current-biased superconducting YBCO thin films”, J. Appl. Phys. **95**, 8045 (2004)
14. C.W. Luo, M.H. Chen, K.H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, J.-Y. Lin, and Y.S. Gou, “Photoexcited carrier relaxation in a-axis oriented $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thin films measured by femtosecond time-resolved spectroscopy”, Physica C **388-389**, 477 (2003).
15. C. W. Lou, M. H. Chen, S. P. Chen, K. H. Wu, J. Y. Juang, J. -Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou : “Spatial Symmetry of Superconducting Gap

- in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Obtained from Femtosecond Spectroscopy”, *Physical Review B* **68**, 220508(R) (2003).
16. C.W. Luo, M.H. Chen, C.C. Chiu, S.P. Chen, K.H. Wu, J.-Y. Lin, J.Y. Juang, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Anisotropic photoexcited carrier dynamics in (100)-, (001)-, and (110)-oriented YBCO films by polarized ultrafast optical spectroscopy”, *J. Low Temp. Phys.* **131**, 767 (2003).
 17. P.I. Lin, K.H. Wu, J.Y. Juang, J.-Y. Lin, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Free-space electro-optic sampling of terahertz radiation from optically excited superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thin films”, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **13**, 20(2003).
 18. P.I. Lin, C.W. Luo, H.S. Liu, K.H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Bipolar photogenerated terahertz radiation in biased photoconductive switches”, *Physica B* **329-333**, 1651 (2003).
 19. K. H. Wu, C. W. Luo, S. J. Liu, M. H. Chen, J. Y. Juang, T. M. Uen, J.-Y. Lin, and Y. S. Gou, “Polarization-dependent X-ray absorption spectroscopy on in-plane aligned $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thin films”, *Physica C* **388-389**, 435 (2003).
 20. P.I. Lin, S.F. Chen, K.H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Characteristics of photogenerated bipolar terahertz radiation in biased photoconductive switches”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, L1158 (2002).
 21. K.H. Wu, C.W. Luo, J.Y. Juang, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Femtosecond Spectroscopy Studies of Ultrafast Dynamics in $\text{Pr}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Thin Films at Different Temperatures”, *Chin. J. Phys.* **38**, 279 (2000).
 22. K.H. Wu, C.W. Luo, J.Y. Juang, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Ultrafast dynamics in Pr-doped and oxygen-deficient YBCO films by femtosecond spectroscopy”, *Physica B* **284-288**, 2099 (2000).
 23. G. R. Lin, W. C. Chen, S. C. Chou, C. S. Chang, K. H. Wu, and C. L. Pan, “Characterization and ultrafast Optical Properties of Arsenic-ion-implanted Semi-insulating GaAs”, *IEEE Jour. Quantum Electronics* **34**, pp.1740-1748 (1998).
 24. K. H. Wu, M. C. Hsieh, S. P. Chen, S. C. Chao, J. Y. Juang, T. M. Uen, Y. S. Gou, T. Y. Tseng, C. M. Fu, J. M. Chen, and R. G. Liu, “Preparation and electronic properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ films with controlled oxygen stoichiometries”, *Jpn. J.*

- Appl. Phys. **37**, 4346 (1998).
25. C. W. Luo, M. H. Chen, C. C. Chiu, K. H. Wu, J. Y. Juang, T. M. Uen, J.-Y. Lin, and Y. S. Gou, “Anisotropic characteristics of in-plane aligned a-axis $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin films”, J. Low Temp. Phys., **131**, 545 (2003).
 26. C. W. Luo, M. H. Chen, S. J. Liu, K. H. Wu, J. Y. Juang, T. M. Uen, J.-Y. Lin, J.-M. Chen, and Y. S. Gou, “Anisotropic electronic structure of in-plane aligned a-axis $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin films”, J. Appl. Phys. **94**, 3648 (2003).
 27. K.H. Wu, P.I. Lin, C.C. Hsieh, S.J. Liu, J.Y. Juang, T.M. Uen, J.Y. Lin, and Y.S. Gou, “Superconducting YBCO films grown on TiO_2 buffer layers derived from various processes”, Physica C **363**, 119 (2001).
 28. C.C. Hsieh, K.H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, J.-Y. Lin, and Y.S. Gou, “Monophasic TiO_2 films deposited on $\text{SrTiO}_3(100)$ by pulsed laser ablation”, J. Appl. Phys. **92**, 2518 (2002).
 29. S. J. Liu, J.M. Chen, J.Y. Juang, K.H. Wu, T.M. Uen, Y.S. Gou, and J.Y. Lin, “Soft x-ray absorption spectroscopy studies of (110) YBCO films”, J. Appl. Phys. **93**, 2834 (2003).
 30. S. F. Chen, P.I. Lin, J.Y. Juang, T.M. Uen, K.H. Wu, Y.S. Gou, and J.Y. Lin, “Metallic percolation in $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ thin films”, Appl. Phys. Lett. **82**, 1242 (2003).
 31. S.J. Liu, J.Y. Juang, K.H. Wu, T.M. Uen, Y.S. Gou, and J.Y. Lin, “Transport properties of $\text{CrO}_2(110)$ films grown on TiO_2 buffered Si substrates by chemical vapor deposition”, Appl. Phys. Lett. **80**, 4202 (2002).
 32. P.I. Lin, C.W. Liu, C.C. Hsieh, K.H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, J.Y. Lin, Y.S. Gou, “Characteristics of YBCO thin films deposited on substrates buffered by various TiO_2 layers”, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, L377 (2001).
 33. S. J. Liu, J.M. Chen, J.Y. Juang, K.H. Wu, T.M. Uen, Y.S. Gou, and J.Y. Lin, “Soft x-ray absorption spectroscopy studies of (110) YBCO films”, J. Appl. Phys. **93**, 2834 (2003).
 34. W. J. Chang, J. Y. Tsai, H.-T. Jeng, J.-Y. Lin, Kenneth Y.-J. Zhang, H. L. Liu, J. M. Lee, J. M. Chen, K. H. Wu, T. M. Uen, Y. S. Gou, and J. Y. Juang: ”Electronic structure and transport properties of $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ ”, Physical Review B **72**, 132410 (2005).

35. W.J. Chang, C.C. Hsieh, J.Y. Juang, K. H. Wu, T.M. Uen, Y.S. Gou, C.H. Hsu, and J.-Y. Lin, “Effects of compressive epitaxial strain on the magneto-transport properties of single-phase electron-doped $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ films”, J. Appl. Phys. **96**, 4357 (2004).
36. K.H.Wu, 超快雷射光電技術應用於超導物理與元件之研究, 行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告, NSC 91-2112-M-009-045, (2001/8/1-2003/7/31).
37. A. A. Kordyuk et al., LOW TEMP PHYS **32**, 298, 2006
38. L. S. Lai et al., Physica C **432**, 99 (2005).
39. T. Ohnishi et al., J. Mater. Res. **19**, 977 (2004).
40. A. Kursumovic et al., Supercond. Tech. & Sci. **17**, 1215 (2004)
41. M. Norman, Science **303**, 1985 (2004).]
42. N. Mannella et al., Nature **438**, 474 (2005)
43. K. M. Shen et al., Science **307**, 901 (2005).]
44. X. J. Zhou et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 187001 (2004)
45. T. Yoshida et al., Phys. Rev. Lett. **91**, 027001 (2003).
46. T. Hanaguri, et al., Nature **430**, 1001 (2004).
47. A. Rothwarf, B. N. Taylor, Phys. Rev. Lett. **19**, 27, (1967).
48. V. V. Kabanov et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 147002 (2005).
49. G. P. Segre et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 137001 (2002).
50. N. Gedik et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 117005 (2005).
51. M.L. Schneider et al., Eur. Phys. J. B **36**, 327–334 (2003).
52. V. V. Kabanov, J. Demsar, B. Podobnik, and D. Mihailovic: Phys. Rev. B. **59**, 1497 (1999).
53. J. Demsar et al., Phys. Rev. Lett **82**, 4918 (1999).
54. J. L. Tallon et al., Phys. Rev. B **51**, 12911 (1995).
55. S. Jin et al., Science **264** 413 (1994).
56. G. H. Jonker et al., Physica **16** 337 (1950).
57. J. Volgeret al., Physica **20** 49 (1954).
58. P. W. Anderson et al., Phys. Rev. **100** 67 (1955).
59. K. Kubo et al., J. Phys. Soc. Japan **33** 21 (1972).
60. A. J. Millis et al., Phys. Rev. B **54** 5405 (1996).

- 61.H. Roder et al., Phys. Rev. Lett. **76** 1356 (1996).
- 62.A. J. Millis et al., Nature **392** 147 (1998).
- 63.D. Lim et al., Phys. Rev. B **71**, 134403 (2005).
- 64.Y. H. Ren et al., J. Chem. Phys. **121**, 436 (2004).
- 65.Y. H. Ren et al., Phys. Rev. B **64**, 144401(2001).
- 66.A. I. Lobad et al., Appl. Phys. Lett. **77**, .4025(2000).
- 67.A. I. Lobad et al.,Chem. Phys. **251**, 227 (2000).
- 68.Y. G. Zhao et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 1310 (1998).
- 69.W. J. Chang et al., Phys. Rev. B **72**, 132410 (2005).
- 70.W. J. Chang et al., J. Appl. Phys. **96**, 4357 (2004).
- 71.M. Khazan, Dissertation, Fachbereich Physik der Universität Hamburg, 2002
72. H. N̄emec1 et al., www.lncmp.org/fichiers/IRMMW_2001.pdf.
- 73.H. Yoneda, et al., Conference Proceedings - Lasers and Electro-Optics Society Annual Meeting-LEOS, **2**, 644 (2001).
- 74.M.A. Khazan, “Time-domain terahertz spectroscopy and its application to the study of high-Tc superconductor thin films”, Ph. D. dissertation, Hamburg University, Hamburg, Germany (2002).
- 75.M. Born, and E. Wolf, “Principle of Optics” (MacMillan, New York, 1964).
- 76.N. Kida, et al., Phys. Rev B **62**, R11965 (2000).

V、本計畫相關已發表和即將發表之論文

1. C. W. Lou , M. H. Chen , S. P. Chen , K. H. Wu , J. Y. Juang , J. -Y. Lin , T. M. Uen , and Y. S. Gou : “Spatial Dichotomy of Quasiparticle Dynamics in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Superconducting Thin Films by Polarized Femtosecond Spectroscopy “ , in press, Physical Review B (2006).
2. C. W. Lou , P. T. Shih , Y. -J. Chen , M. H. Chen , K. H. Wu , J. Y. Juang , J. -Y. Lin , T. M. Uen , and Y. S. Gou : “Spatially-resolved relaxation Dynamics of Photoinduced Quasiparticle in Underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ”, Physical Review B **72**, 092506 (2005).
3. W. J. Chang, J. Y. Tsai, H.-T. Jeng, J.-Y. Lin, Kenneth Y.-J. Zhang, H. L. Liu, J. M. Lee, J. M. Chen, K. H. Wu, T. M. Uen, Y. S. Gou, and J. Y. Juang: ” Electronic structure and transport properties of $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ ”, Physical Review B **72**, 132410 (2005).
4. L.-S. Lai, J.-Y. Juang*, K.-H. Wu*, T.-M. Uen*, Y.-S. Gou*, "Temperature dependence of superfluid $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and $\text{Y}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ density in thin films: A doping dependence study of the linear slope", Physica C **432**, 99 (2005).
5. P.I. Lin, C.W. Luo, H.S. Liu, S.F. Chen, K. H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, Y.S. Gou, and J.Y. Lin, “On the origin of photogenerated terahertz radiation from current-biased superconducting YBCO thin films”, J. Appl. Phys. **95**, 8046 (2004).
6. W.J. Chang, C.C. Hsieh, J.Y. Juang, K. H. Wu, T.M. Uen, Y.S. Gou, C.H. Hsu, and J.-Y. Lin, “Effects of compressive epitaxial strain on the magneto-transport properties of single-phase electron-doped $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ films”, J. Appl. Phys. **96**, 4357 (2004).
7. J.Y. Lin, W.J. Chang, J.Y. Juang, T.M. Uen, K. H. Wu, Y.S. Gou, J.M. Lee, and J.M. Chen, “Spectroscopic evidence of electron doping in $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ ”, J. Mag. Mater. **282**, 237 (2004).
8. C.W. Luo, M.H. Chen, S.P. Chen, K. H. Wu, J.Y. Juang, J.-Y. Lin, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Spatial symmetry of the superconducting gap of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ obtained from femtosecond spectroscopy”, Phys. Rev. **B68**, 220508(R) (2003).

9. S. J. Liu, J.M. Chen, J.Y. Juang, K.H. Wu, T.M. Uen, Y.S. Gou, and J.Y. Lin, “Soft x-ray absorption spectroscopy studies of (110) YBa₂Cu₃O_{6.9} thin films”, J. Appl. Phys., **93**, 2834 (2003).
10. S.J. Liu, S.F. Chen, J.Y. Juang, J.Y. Lin, K.H. Wu, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Growth and transport properties of (110)-oriented La_{0.67}Sr_{0.33}MnO₃ thin films on TiO₂-buffered Si(100) substrates”, Jpn. J. Appl. Phys. **42**, L287 (2003).
11. C.W. Luo, M.H. Chen, C.C. Chiu, S.P. Chen, K.H. Wu, J.-Y. Lin, J.Y. Juang, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Anisotropic photoexcited carrier dynamics in (100)-, (001)-, and (110)-oriented YBCO films by polarized ultrafast optical spectroscopy”, J. Low Temp. Phys. **131**, 767 (2003).
12. C.W. Luo, S.J. Liu, M.H. Chen, C.C. Chiu, K. H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, J.-Y. Lin and Y.S. Gou, “Anisotropic characterization of in-plane aligned a-axis YBa₂Cu₃O₇ thin films”, J. Low Temp. Phys. **131**, 545 (2003).
13. S. F. Chen, P.I. Lin, J.Y. Juang, K. H. Wu, T.M. Uen, Y.S. Gou, and J.Y. Lin, “Metallic percolation in La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ thin films”, Appl. Phys. Lett., **82(8)**, 1242 (2003).
14. C.W. Luo, M.H. Chen, K. H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, J.-Y. Lin, and Y.S. Gou, “Photoexcited carrier relaxation in a-axis oriented YBa₂Cu₃O₇ thin films measured by femtosecond time-resolved spectroscopy”, Physica C **388-389**, 477 (2003).
15. K. H. Wu, C.W. Luo, S.J. Liu, M.H. Chen, J.Y. Juang, T.M. Uen, J.-Y. Lin, and Y.S. Gou, “Polarization-dependent X-ray absorption spectroscopy on in-plane aligned YBa₂Cu₃O₇ thin films”, Physica C **388-389**, 435 (2003).
16. P.I. Lin, C.W. Luo, H.S. Liu, K. H. Wu, J.Y. Juang, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Bipolar photogenerated terahertz radiation in biased photoconductive switches”, Physica B **329-333**, 1651 (2003).
17. C. W. Luo, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, K. H. Wu, T. M. Uen and Y. S. Gou, “Comment on “Conductivity of Underdoped YBa₂Cu₃O_{7-δ}: Evidence for Incoherent Pair Correlations in the pseudogap Regime”, Phys. Rev. Lett., **90**, 179703 (2003).
18. P.I. Lin, K. H. Wu, J.Y. Juang, J.-Y. Lin, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Free-space electro-optic sampling of terahertz radiation from optically excited

superconducting YBa₂Cu₃O₇ thin films”, IEEE Trans. Appl. Supercond.**13**, 20 (2003).

19.C.W. Luo, M.H. Chen, S. J. Liu, K. H. Wu, J.Y. Juang, J.-Y. Lin, T.M. Uen, and Y.S. Gou, “Anisotropic electronic structure of in-plane aligned a-axis YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin films”, J. Appl. Phys. **94**, 3648 (2003).

本計畫訓練之研究生及其論文

博士論文

羅志偉 Chih-Wei Luo 九十二年十月

以極化飛秒光譜研究鈮鋇銅氧化物之各向異性超快動力學

Anisotropic Ultrafast Dynamics in YBa₂Cu₃O_{7-δ} Probed by Polarized Femtosecond Spectroscopy

林博瑛 Po Iem Lin 九十三年十月

兆赫輻射波的產生與應用於鈮鋇銅氧超導薄膜特性之研究

Generation and Application of Terahertz Radiation in Superconducting YBa₂Cu₃O_{7-δ} Thin Films

碩士論文

陳美杏 Mei-Hsin Chen 九十二年六月

以極化飛秒光譜研究 Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba₂Cu₃O_{7-δ} 之各向異性超快動力學

Anisotropic Ultrafast Dynamics in Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba₂Cu₃O_{7-δ} Probed by Polarized Femtosecond Spectroscopy

黃雯妃 Wen-Fei Huang 九十三年六月

兆赫輻射時析頻譜於鈮鋇銅氧薄膜及基板之研究

Terahertz Time Domain Spectroscopy of YBa₂Cu₃O_{7-δ} Thin Films and Substrates

施伯宗 Po-Tsung Shih 九十五年六月

以極化飛秒光譜研究 Y_{1-x}Ca_xBa₂Cu₃O_{7-δ} 薄膜之各向異性超快動力學

Anisotropic Ultrafast Dynamics in Y_{1-x}Ca_xBa₂Cu₃O_{7-δ} Thin Films Probed by Polarized Femtosecond Spectroscopy

石訓全 Hsun-Chuan Shih 九十五年六月

鑷鈣錳氧薄膜的兆赫輻射時析頻譜研究

Study of The Electrodynamics Properties of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ Thin Films by Terahertz-Time Domain Spectroscopy

林明炎 Ming-Yen Lin 九十五年八月

光導兆赫輻射發射元件之最佳操作條件研究

Study the Optimization of THz Photoconductive Emitters