

# 行政院國家科學委員會專題研究計畫 期中進度報告

## 飛秒級雷射光電技術應用於過渡金屬氧化物薄膜物理特性 之研究(1/3)

計畫類別：整合型計畫

計畫編號：NSC92-2112-M-009-031-

執行期間：92年08月01日至94年01月31日

執行單位：國立交通大學電子物理學系

計畫主持人：吳光雄

計畫參與人員：羅志偉，林博瑛，陳美杏，黃雯妃，施伯宗

報告類型：精簡報告

報告附件：出席國際會議研究心得報告及發表論文

處理方式：本計畫可公開查詢

中 華 民 國 93 年 11 月 8 日

# 總計畫：過渡金屬氧化物薄膜物理與元件研究

## 子計畫三：飛秒級雷射光電技術應用於過渡金屬氧化物薄膜物理特性之研究(1/3)

計畫編號: NSC 92-2112-M-009-031

計畫主持人: 吳光雄

執行期限: 2003/8/01-2005/1/31

繳交報告期限: 2004/11/30

本計畫報告分成時間解析的激發-探測研究和泰拉電磁輻射之產生與應用兩部分。

### 一、在時間解析的激發-探測研究方面

在上三年研究計畫中，我們已成功製作出平面高有序度( $> 97\%$ )之不同軸向鈮銅氧高溫超導薄膜，即(100)、(110) 薄膜等。並配合利用飛秒級超快雷射光源和自行研發之極化激發-探測量測技術，來量測分析不同軸向的鈮銅氧高溫超導薄膜，發現塊材之能隙對稱性仍是 d-wave 對稱，這對於研究高溫超導之各向異性物理行為有著重要的幫助。利用我們自行發展之控氧技術，在同一樣品上，改變鈮銅氧薄膜的氧含量和其對應之電洞濃度，並對不同軸向的鈮銅氧超導薄膜，進行超快光學之量測分析，發現在相圖中摻雜不足 (underdoped) 區域之塊材超導能隙及偽能隙的對稱性，有了嶄新、截然不同的結果。

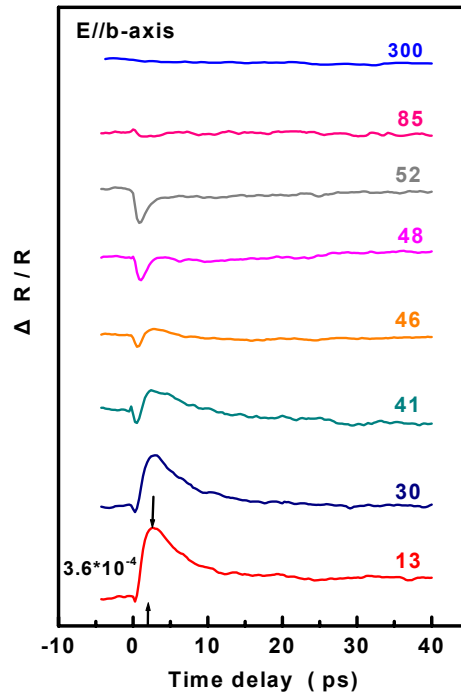
在本年度計畫中，我們亦成功製作出平面高有序度之 a 軸向摻鈣鈮銅氧高溫超導薄膜，利用這些薄膜，我們延伸前面不同摻雜量對

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。另外，我們為了確定實驗的準確性，對(110) YBCO 薄膜，亦重複鍍新的樣品，重新量測，發現幾乎得到相同的結果，顯示出我們量測的可靠性。我們也分析不同軸向以及同一片樣品，在不同氧含量的情形之下，遲緩時間對溫度的變化情形。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。以下是這部分計畫的詳細說明：

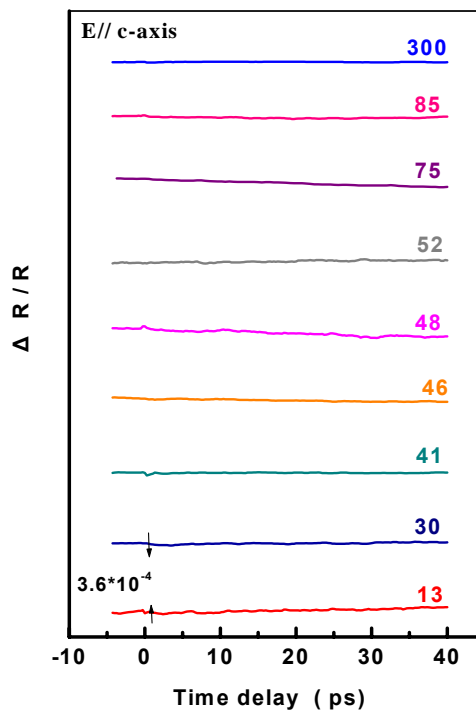
#### A. 過摻雜(overdoped)的鈮系高溫超導薄膜的超導能隙和偽能隙的對稱性問題

我們利用極化激發-探測量測技術，來量測摻鈣 0.3 的 a 軸(100) ( $T_c = 62$  K)及 c 軸(001) ( $T_c = 61$  K)的鈮銀銅氧 ( $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_7$ )超導薄膜，受飛秒級脈衝光激發後，其載子弛緩的行為。

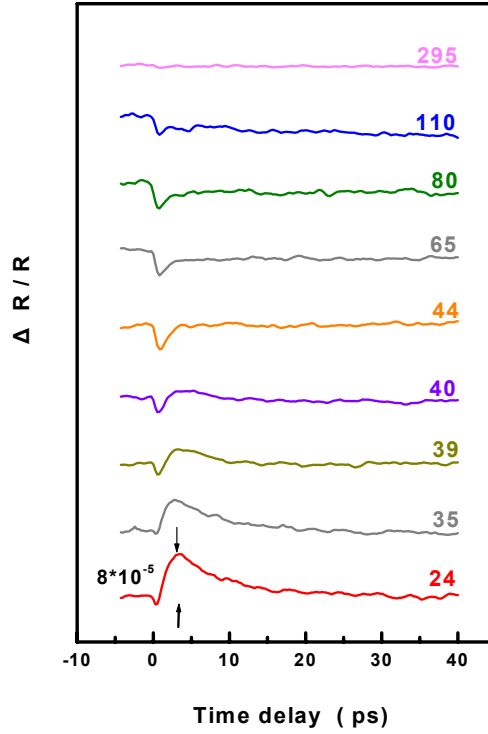
對於平面高有序度的 a 軸薄膜而言，在膜的表面，其 b 軸與 c 軸可明顯區分。再利用激發-探測光的偏振方向可調的特點，我們可以在激發-探測光平行於 b 軸與 c 軸的條件下，量測  $\Delta R / R$  在不同溫度下，隨時間延遲的變化情形，其結果如圖(一)及圖(二)所示。對於 c 軸的薄膜而言，因為薄膜表面無方向性的差別，所以我們選用探測光與激發光之電場互相垂直來入射基板，這樣可以減少激發光與探測光的干涉效應，更利於結果數據的分析。其  $\Delta R / R$  在不同溫度下，隨時間延遲的變化情形，如圖(三)所示。



圖(一)  $(100)Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  薄膜當光電場平行於b軸 (垂直 ac面)時，瞬時反射率變化( $\Delta R/R$ )在不同溫度的變化情形



圖(二)  $(100)Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  薄膜當光電場平行於 c軸時，瞬時反射率變化( $\Delta R/R$ ) 在不同溫度的變化情形



圖(三) (001)Y<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>薄膜，其瞬時反射率變化(ΔR / R)在不同溫度的變化情形

由圖中每一條曲線，可分析出 ΔR / R 隨時間的變化，在超導態下對應兩個弛緩時間的項，即

$$\Delta R / R(T, t) = A_1(T) \exp(-t / \tau_A) + A_2(T) \exp(-t / \tau_B) \quad (1)$$

反之，在正常態時，僅存在弛緩時間較短( $\tau_A$ )的項。將不同溫度時， $A_1(T)$ 和 $A_2(T)$ 的變化曲線畫出，並依據V. V. Kabanov *et al.*的理論， $A_1(T)$ 中含不隨溫度而變的未知數 $\Delta_p$ ，即為我們所要求的偽能隙之值，而 $A_2(T)$ 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。所以我們由電腦函數適配(fitting)，就可分別求得偽能隙 $\Delta_p$ 與超導能隙 $\Delta(T)$ 的值。

$$A_1(T) = \frac{\varepsilon_i / \Delta_p}{1 + \frac{2\nu}{N(0)\hbar\Omega_c} \exp(-\Delta_p / k_B T)} \quad (2)$$

$$A_2(T) = \frac{\varepsilon_i / (\Delta(T) + k_B T / 2)}{1 + \frac{2\nu}{N(0)\hbar\Omega_c} \sqrt{\frac{2k_B T}{\pi\Delta(T)}} \exp(-\Delta(T) / k_B T)} \quad (3)$$

其中

$N(0) = 2.5 \sim 5 \text{eV}^{-1} \text{cell}^{-1} \text{spin}^{-1}$  為態密度(density of states)。

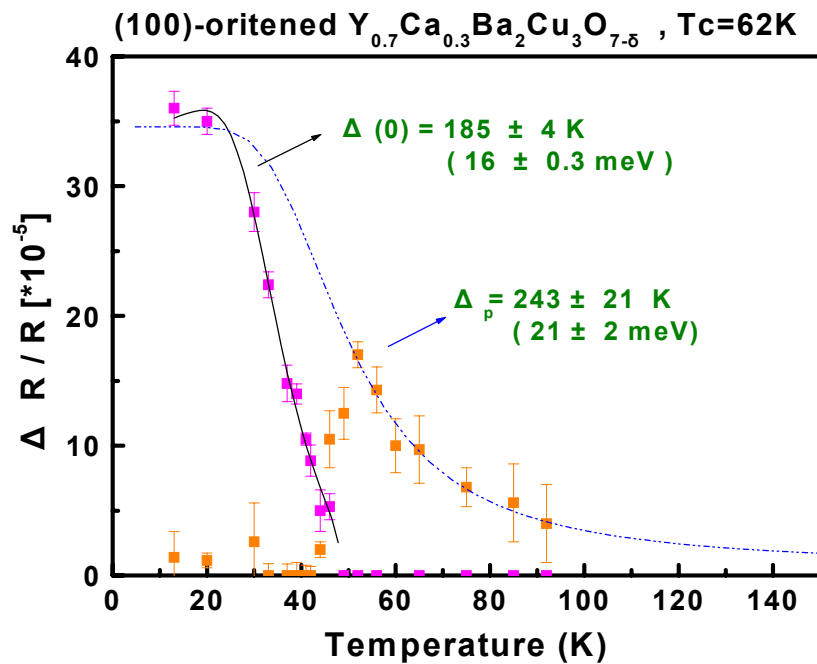
$\nu = 10 \sim 36$  為可影響準粒子之聲子的模數。

$\Omega_c = 0.1 \text{eV}$  為傳統聲子的截止頻率。

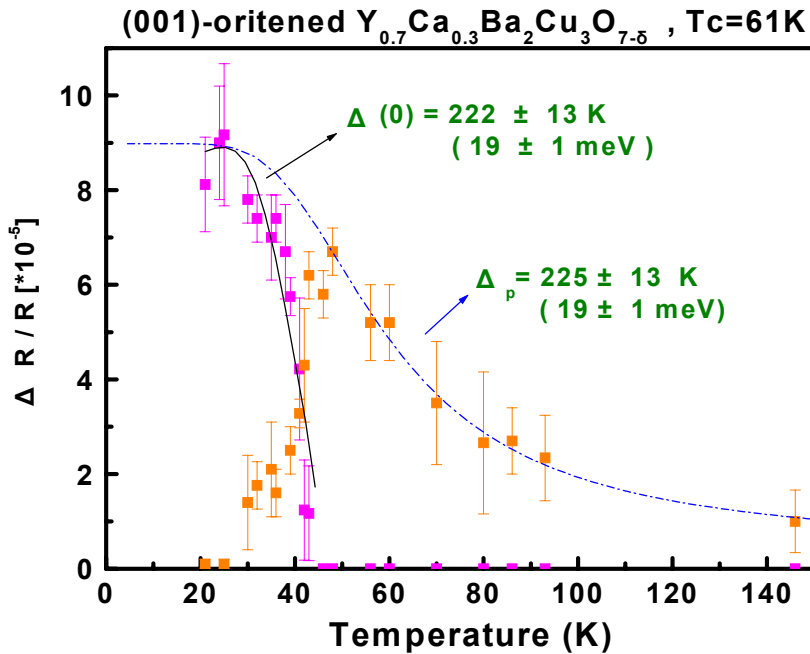
$A_1(T)$  與  $A_2(T)$  為溫度的函數， $A_1(T) = 0$  當  $T > T_c$ 。

$\Delta_p$ ：不隨溫度改變的偽能隙，為未知數。

$\Delta(T)$ ：隨溫度改變的超導能隙，為未知數。



圖(四) (100) $\text{Y}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.5}$ 薄膜， $|\Delta R / R|$ 隨溫度變化圖



圖(五) (001) $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜， $|\Delta R/R|$ 隨溫度變化圖

圖四和圖五分別是(100)和(001) $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 薄膜樣品，其 $\Delta R/R$ 的兩個分量  $A_1(T)$ 和 $A_2(T)$ 隨溫度的變化情形，再經由公式(2)和(3)的適配，我們可以得到其對應的偽能隙 $\Delta_p$ 與超導能隙 $\Delta(T)$ 。經由分析計算，我們得到

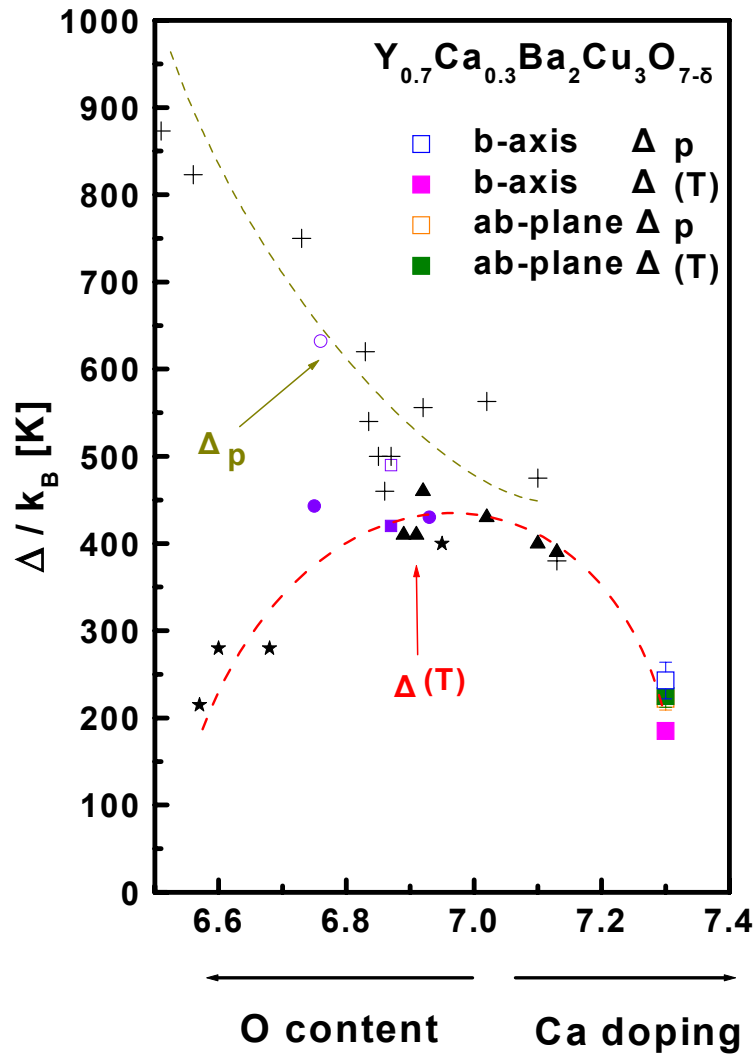
(1) a軸薄膜((100) $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ )：

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

(2) c軸薄膜((001) $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ )：

超導能隙 $\Delta(T)$ 為  $222 \pm 13$  K (即  $19 \pm 1$  meV)與不溫度而變的偽能隙 $\Delta_p$ 為  $225 \pm 13$  K (即  $19 \pm 1$  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，我們得到如圖(六)之超導能隙( $\Delta(T)$ )與偽能隙( $\Delta_p$ )的相圖。



圖(六) 超導能隙( $\Delta(T)$ )與偽能隙( $\Delta_p$ )之實驗所得的相圖(vs. doping)

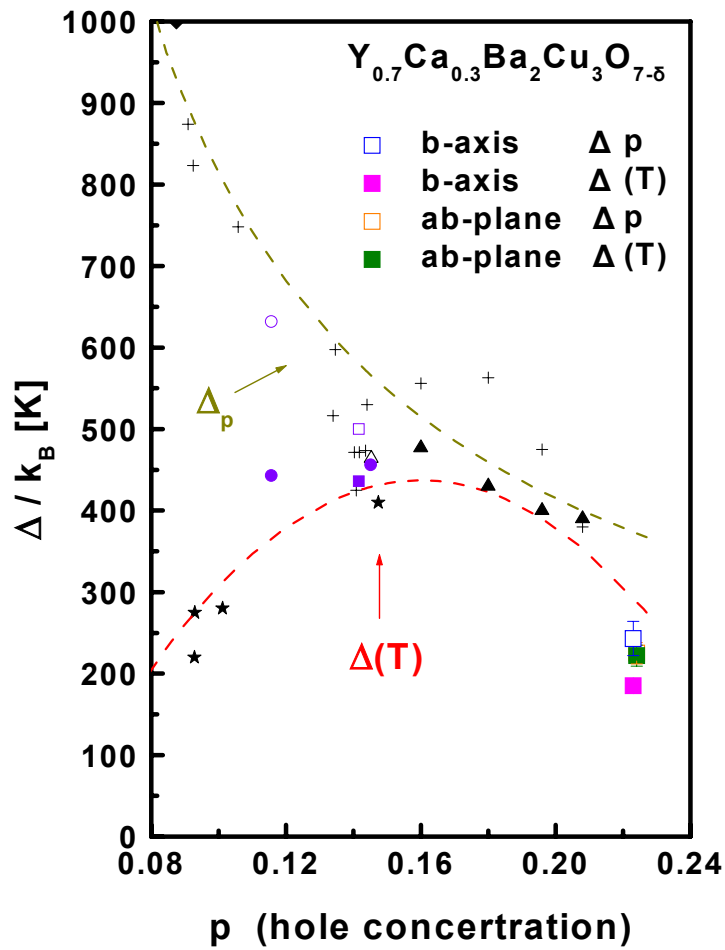
黃鶴色虛線與紅色虛線僅為示意曲線

- { + : Mihailovic group  $\Delta_p$
- { ▲ : Mihailovic group  $\Delta(T)$
- { ★ : microwave  $\Delta(T)$

- { ○ : our group (b-axis) $\Delta_p$
- { ● : our group (b-axis) $\Delta(T)$
- { □ : our group (ab-plane) $\Delta_p$
- { ■ : our group (ab-plane) $\Delta(T)$



或者，以電洞濃度表示，則如圖(七)所示：



圖(七) 超導能隙( $\Delta(T)$ )與偽能隙( $\Delta_p$ )之實驗所得的相圖(vs. p)

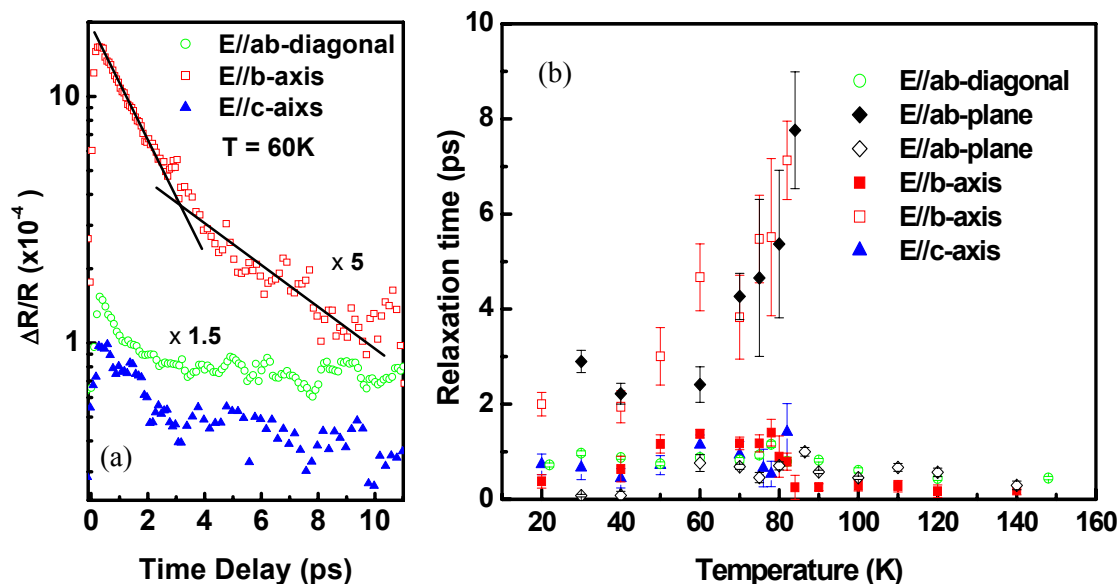
黃鶴色虛線與紅色虛線僅為示意曲線

- + : Mihailovic group  $\Delta_p$
  - ▲ : Mihailovic group  $\Delta(T)$
  - ★ : microwave  $\Delta(T)$
- 
- : our group (b-axis) $\Delta_p$
  - : our group (b-axis) $\Delta(T)$
  - : our group (ab-plane) $\Delta_p$
  - : our group (ab-plane) $\Delta(T)$

未來，我們更將對不同摻鈣量(0.1-0.3)之鈮鋇銅氧高溫超導薄膜，作更進一步更完整的量測。

## B. 不同軸向、不同氧含量的鈮鉕銅氧薄膜，其遲緩時間對溫度的變化

針對遲緩時間，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。圖八(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( $\tau_B$  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，導致準粒子回覆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( $\tau_A$  大約次皮秒, sub-ps)。



圖(八)(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式 1 適配  $\Delta R/R$  的實驗數據而得。

另外我們亦分析對(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，因此無法解析出各個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。

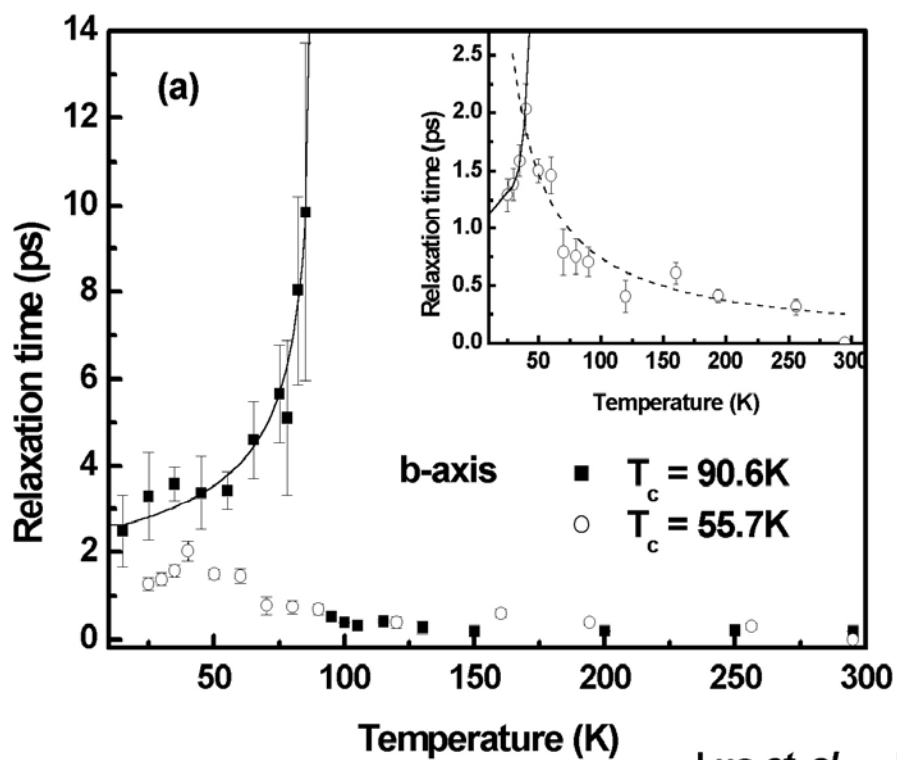
在(100) 滿氧樣品的時候，我們將激發探測光束調整平行 b 軸。量測的結果如圖(九)中實心正方形圖示。我們可以清楚看到，當溫度從低溫往  $T_c$  逼近時，遲緩時間會有一發散的趨勢。我們並採用 Kabanov 所提出的理論方程式(4)來做適配，發現量測的結果非常接近適配之結果。

**慢速弛緩分量:**

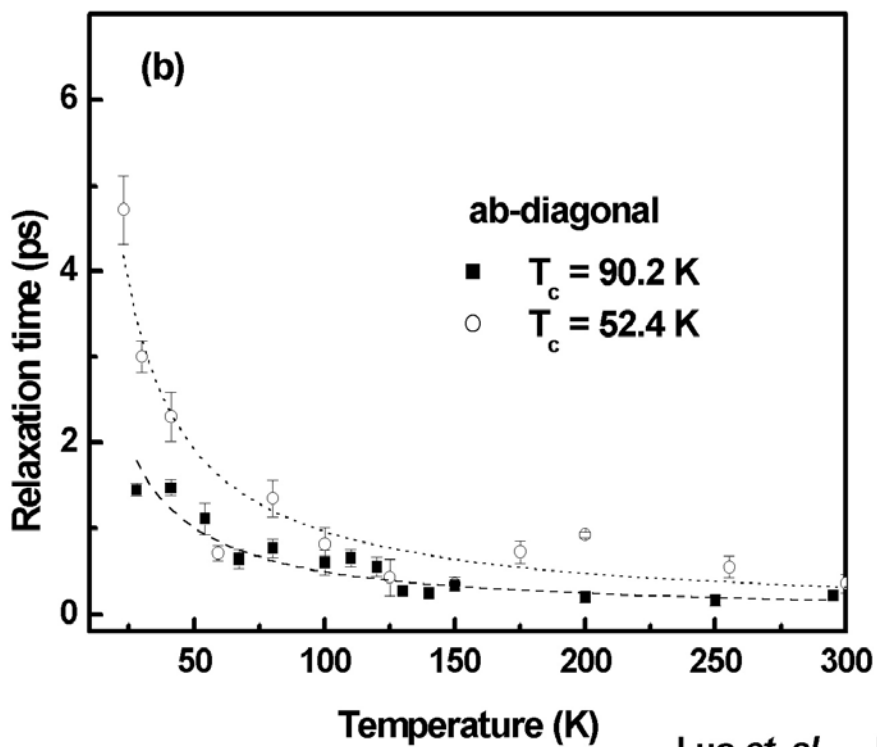
$$\tau(T) = \frac{\hbar\omega^2 \ln \left[ \frac{1}{\varepsilon_I / 2N(0)\Delta(0)^2 + \exp(-\Delta(T)/k_B T)} \right]}{12\Gamma_\omega \Delta(T)^2} \quad (4)$$

**快速弛緩分量:**

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



Luo et. al. --- Fig. 2(a)



Luo et. al. --- Fig. 2(b)

圖(九)

其中  $\Delta(T)$  為一與溫度有關的值，我們稱之為超導能隙， $\Delta(0) \sim 454K$ 。

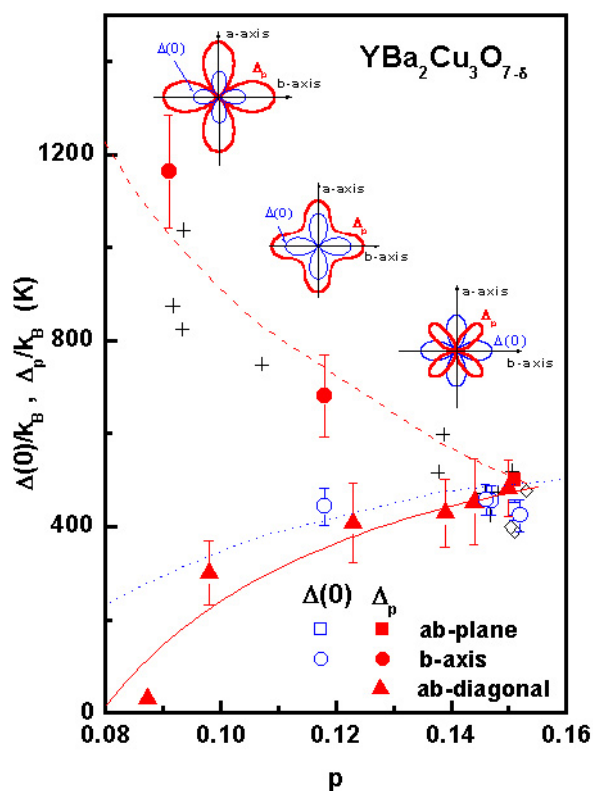
如果，我們改對滿氧(110)樣品之 ab 對角線軸向做量測的時候，其結果就必須以方程式(5)來做適配才能符合所量測的數據(參考圖(九)(b)實心正方形的圖示)， $\Delta_p$  是一個與溫度無關的值，我們稱之為偽能隙。在這裡，求得  $\Delta_p \sim 315K$ 。

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  $\Delta(T)$  跟一個與溫度無關的偽能隙  $\Delta_p$  所主宰。

當樣品是在缺氧的情形時，參考圖(九)(a)，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，我們利用方程式(5)可以得到一個很好的適配，參考圖(十一)(a)中的插圖，適配所得到的  $\Delta_p \sim 301K$ 。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(九)(b)，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。我們也可以用方程式(5)對所得數據做適配，得到的偽能隙大小  $\Delta_p \sim 170K$ ，明顯比滿氧樣品的  $\sim 315K$  來得小。遲緩時間的增加，可以由偽能隙  $\Delta_p$  在沿著 ab 對角線方向有萎縮的情形，得到圓滿的解釋。

綜合從(110)與(100)鈮鈹銅氧樣品，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(九)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，我們推測鈮鈹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 $\Delta_p$ 的變化。例如圖(十)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，未來希望能夠對這個模型，做更進一步的確認。



C.W.L.\_fig 4

圖(十)

時間解析的激發-探測研究方面發表的論文:

- [1] 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 Letter accepted (2004).
- [2] 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  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  Obatined from Femtosecond Spectroscopy*” , Physical Review B 68, 220508(R) (2003).
- [3] 碩士論文: “以極化飛秒光譜研究  $\text{Y}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  之各向異性超快動力學” , 研究生:陳美杏,指導教授:吳光雄 教授 2003 Nov..
- [4] 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 and Pseudogap in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  Obtained from Polarized Femtosecond Spectroscopy*” , 中華民國物理學會年會 , 2004 February.
- [5] K. H. Wu . , C. W. Lou , M. H. Chen , J. Y. Juang , T. M. Uen , Y. S. Gou : “*Anisotropic Characterization of In-plane Aligned (100)  $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  Thin Films*” , Bulletin of The American Physical Society , March 2004.
- [6] C. W. Lou , M. H. Chen , S. P. Chen , K. H. Wu , J. Y. Juang , T. M. Uen , Y. S. Gou : “*Spatial Symmetry of Superconducting Gap and Pseudogap in Oxygen-Deficient YBCO Obtained from Femtosecond Spectroscopy*” , Bulletin of The American Physical Society , March 2004.
- [7] C. W. Lou , M. H. Chen , S. J. Liu , K. H. Wu , J. Y. Juang , T. M.

- Uen, J. -Y. Lin, J. -M. Chen, Y. S. Gou : *“Anisotropic Electric Structure of In-plane Aligned a-axis  $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  Thin Films”* J. Appl. Phys. 94, 3648 (2003).
- [8] C. W. Lou, 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).
- [9] C. W. Lou, 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  $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  thin films”*, J. Low Temp. Phys. ,131, 545 (2003).
- [10] C. W. Lou, S. J. Liu, M. H. Chen, K. H. Wu, J. -Y. Lin, J. -M. Chen, J. Y. Juang, T. M. Uen, and Y. S. Gou : *“Polarization-dependent x-ray absorption spectroscopy of in-plane aligned (100)  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  thin films”*, Physica C 388-389, 435 (2003).
- [11] C. W. Lou, M. H. Chen, K. H. Wu, J. -Y. Lin, J. Y. Juang, T. M. Uen, and Y. S. Gou : *“Photoexcited carrier relaxation in a-axis oriented  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  thin films measured by femtosecond time-resolved spectroscopy”*, Physica C 388-389, 477(2003).



## 二、在兆赫電磁輻射之產生與應用方面

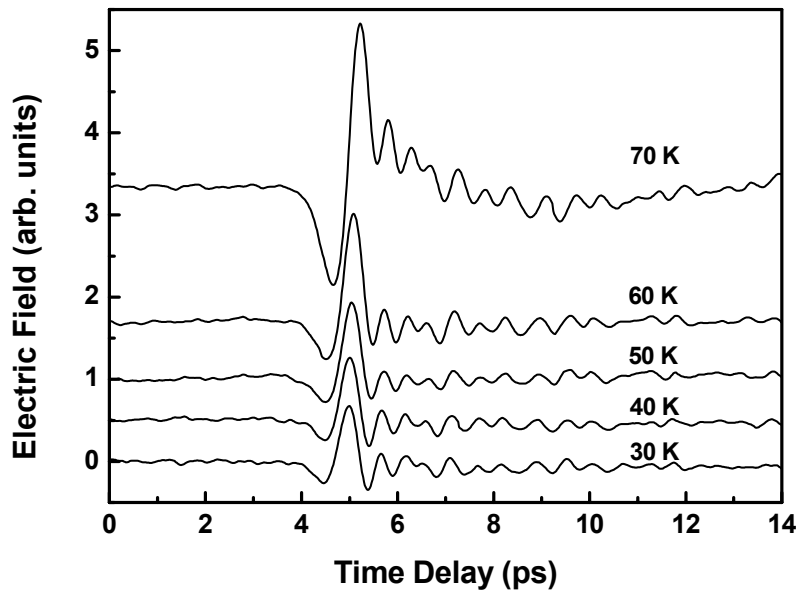
在上三年研究計畫中，我們已初步完成鈮鉕銅氧(YBCO)高溫超導薄膜元件的兆赫波(THz)輻射量測，包括改變不同雷射光能量、不同外加偏電流及不同量測溫度下之THz時域瞬變波形。我們亦發現時域暫態波形的振幅大小與相位關係有非常明顯的不同：當量測溫度處於較低溫狀態時( $T < T_c$ )，波形與相位沒有明顯的差異；當量測溫度接近於臨界溫度時( $T \sim T_c$ )，波形有不同的變化。而且量測溫度處於較低溫狀態時，輻射的電場時域波形變化無法與Rothwarf-Taylor方程式適配，而得到合理的準粒子的回復時間。所以我們提出THz輻射波經過薄膜本身時，會有再成形(pulse reshaping)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。另外，我們亦利用半導體材料(SI-GaAs)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最佳摻雜的鈮鉕銅氧高溫超導樣品，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。以下是這部分計畫的詳細說明：

### A. 鈮鉕銅氧超導薄膜產生兆赫波之時域波形再成形現象

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：

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

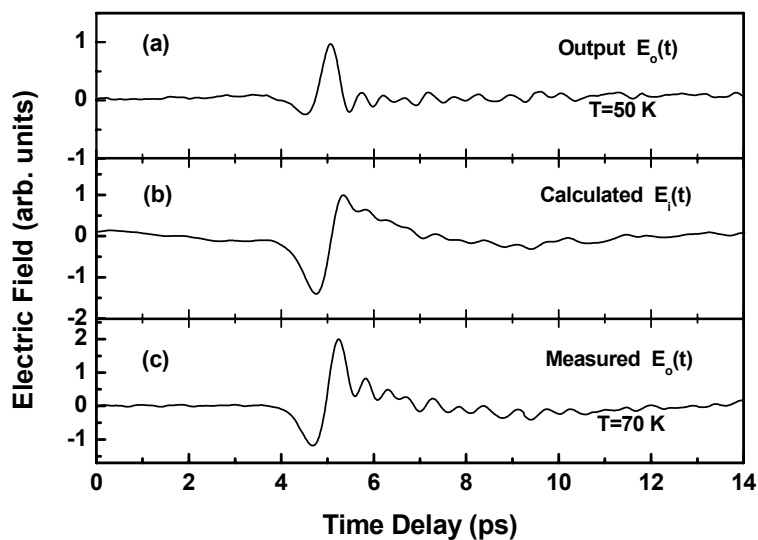
因此，可以假設超導體產生兆赫茲電磁輻射是由於光致超導電流密度的瞬變(輻射電場強度對時間的一次積分可視為電流密度的變化)。圖(十一)為兆赫茲輻射時域暫態波形對不同量測溫度的變化關係。除了量測溫度為 70 K 時的輻射波形其主訊號中之波峰部分隨時間變化存在有一 2.5 ps 長的輻射電場強度衰減，其餘量測溫度所得到之輻射時域暫態波形皆有相同的變化(主訊號中之波峰部分隨時間衰減變化較短)。



圖(十一)

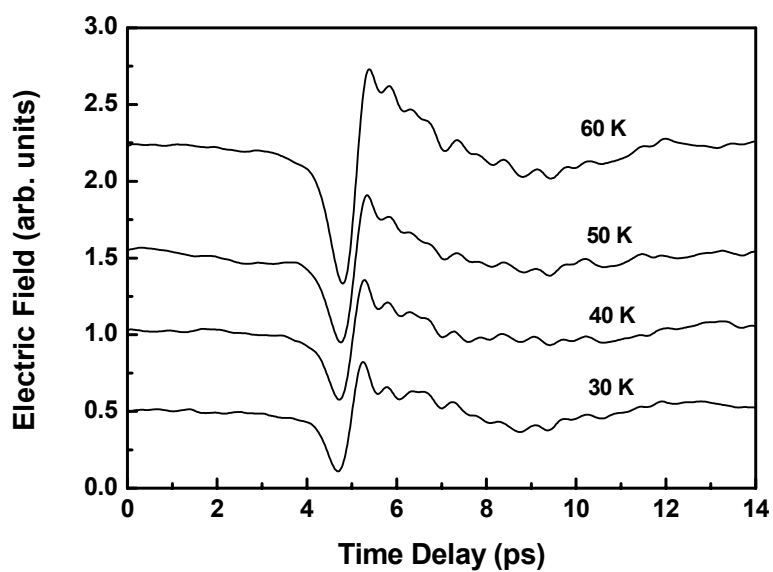
由於薄膜在超導態時，超導載子會因外受輻射光下，引起薄膜本身動態電感的變化(kinetic inductance)，使得原來入射之輻射時域波形會有再成形(pulse reshaping)的現象。藉由適當的轉換函數 $T(\omega)$ ，可模擬出輻射時域波形的變化，並與實驗數據結果(圖十二)相符合。

$$T(\omega) = \frac{E_o(\omega)}{E_i(\omega)} = \frac{2}{2 + Z_o/Z} \propto (-i\omega) \quad (7)$$



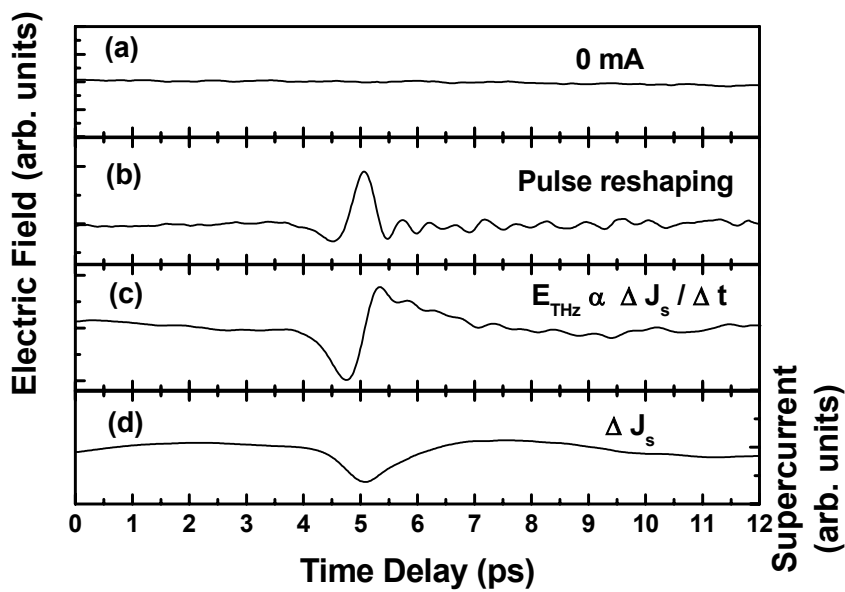
圖(十二)

圖十三為經由轉換函數  $T(\omega)$  轉換後，其不同溫度時之原始輻射電場時域波形：



圖(十三)

由結果顯示(圖十四)，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(十四)

## B. 時域泰拉赫茲頻譜量測—鈮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：

$$T^*(\omega) = \frac{E^*(\omega)}{E_{ref}^*(\omega)} = \frac{2n_s(1+n_{MgO})}{(1+n_s)(n_s+n_{MgO})e^{-in_s\omega d/c} + (1-n_s)(n_s-n_{MgO})e^{in_s\omega d/c}} \quad (8)$$

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  $\epsilon(n_s^2 = \epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2)$  和光導電率  $\sigma$ 。其關係表示式如下：

$$\begin{aligned} \epsilon_1 &= n^2 - k^2 \\ \epsilon_2 &= 2nk \\ \sigma &= \sigma_1 + i\sigma_2 = i\omega\epsilon_0\epsilon \end{aligned} \quad (9)$$

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

$$R_s(\omega, T) = \sqrt{\frac{\mu_0\omega}{2} \frac{|\sigma(\omega, T)| - \sigma''(\omega, T)}{|\sigma(\omega, T)|^2}} \quad (10)$$

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  $\sigma_{full}$  來自於正常態  $\sigma_n$  與超導態  $\sigma_s$  的貢獻：

$$\sigma_{full}(\omega) = \sigma_n(\omega) + \sigma_s(\omega) = \frac{n_n e^2 \tau / m^*}{1 - i\omega\tau} + i \frac{1}{\mu_0 \omega \lambda_L} \quad (11)$$

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：

$$\sigma''_{Drude}(\omega) = \frac{\sigma_0 \omega \tau}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (12)$$

因此我們可以得到超導載子貢獻的導電率大小為：

$$\sigma_{sc}(\omega) = \sigma''_{full}(\omega) - \sigma''_{Drude}(\omega) = \frac{1}{\mu_0 \lambda_L^2 f} \quad (13)$$

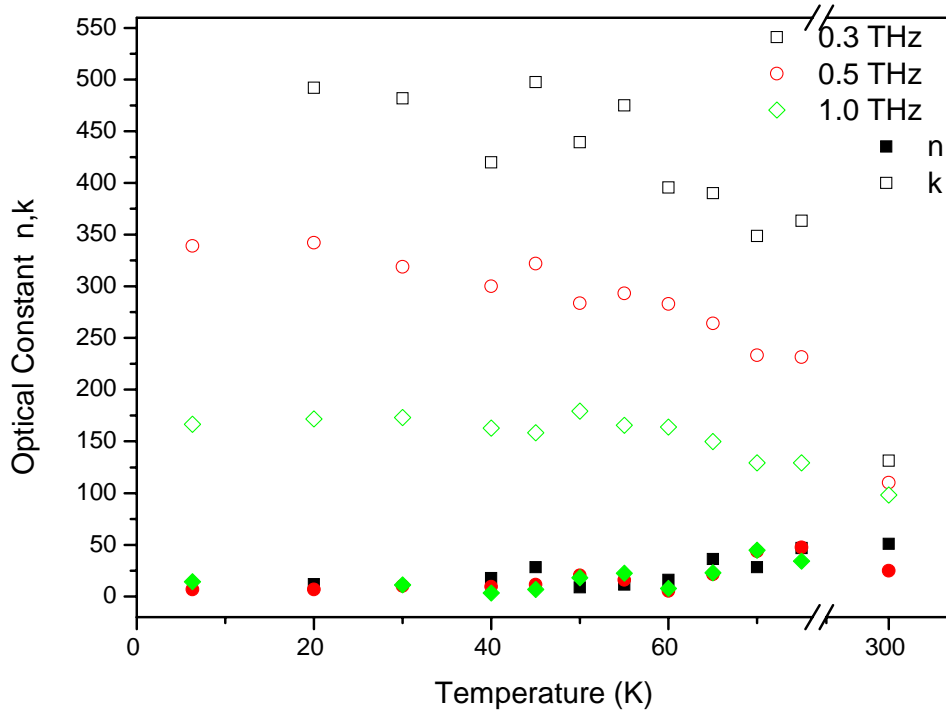
對  $1/f$  作曲線的適配，可以求出穿透深度大小 ( $\lambda_L$ )。

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，如圖十五所示。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，

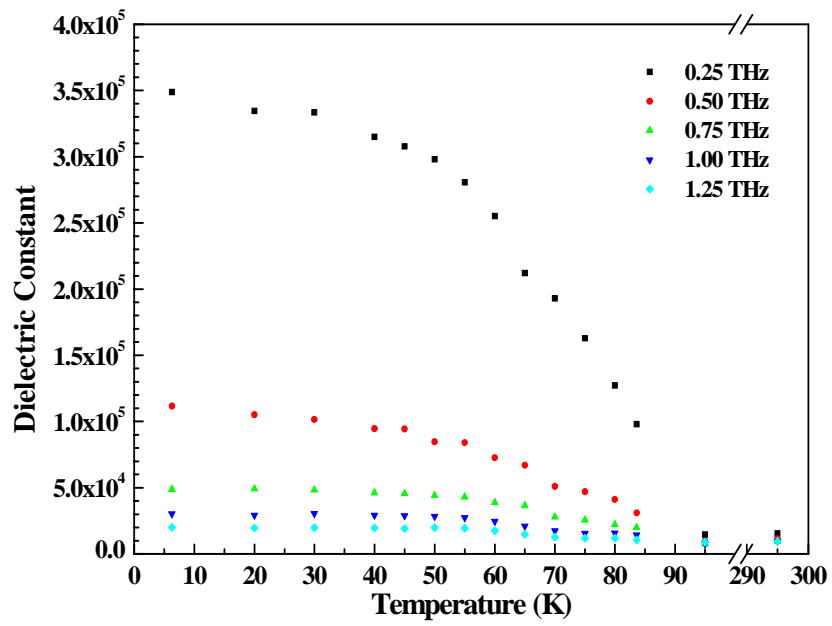
$k$  大於  $n$ ， $k$  值約分佈在 120 ~ 600 間， $n$  值則約分佈在 0 ~ 120 間。



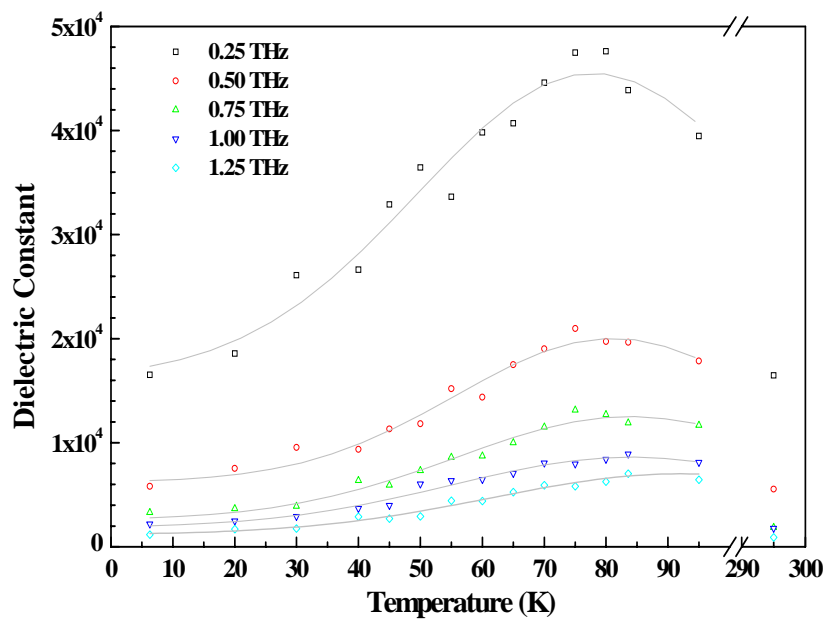
圖(十五): YBCO 薄膜複數折射率

### 複數介電常數:

由圖(十六)、圖(十七)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 $\epsilon_r$ 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； $\epsilon_r$ 隨著頻率的上升而下降。另外，由圖(十七)可看出YBCO薄膜複數介電常數之虛部 $\epsilon_i$ ，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。



(圖十六):YBCO複數介電係數 $\epsilon^*$ 實部

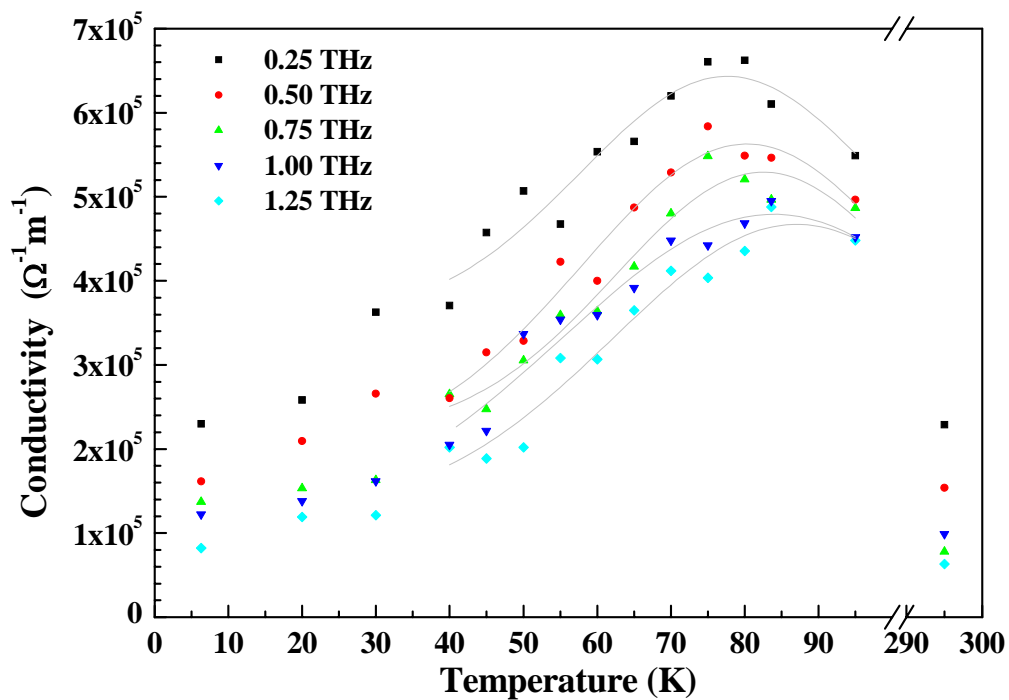


(圖十七):YBCO複數介電係數 $\epsilon^*$ 虛部

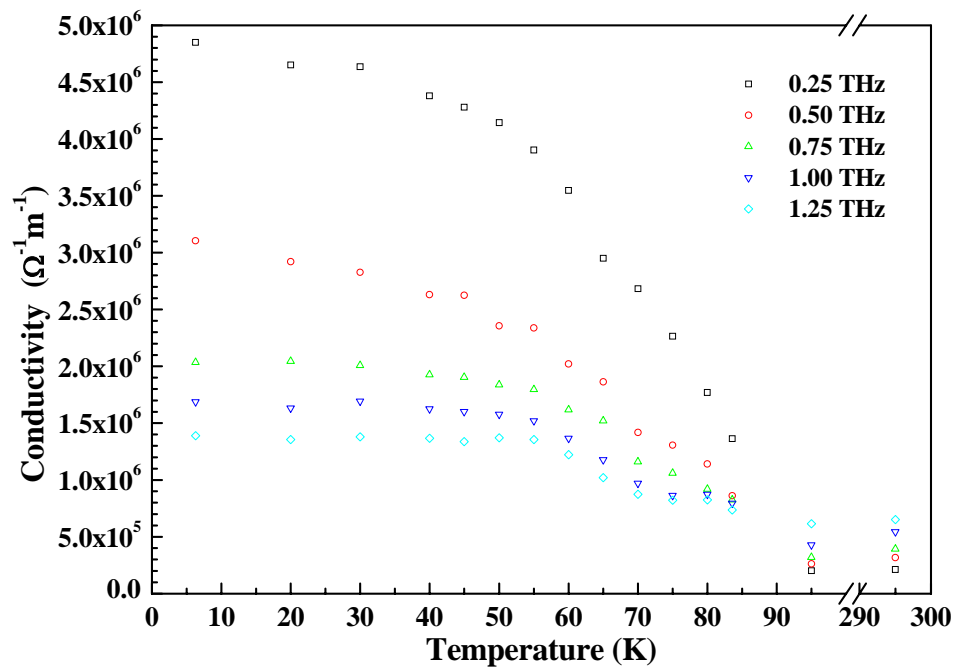


### 電導率:

由圖(十八)是YBCO薄膜複數導電率之實部 $\sigma_r$ ，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(十九) 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 $\sigma_i$ 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， $\sigma_i$ 隨著頻率的上升而下降。



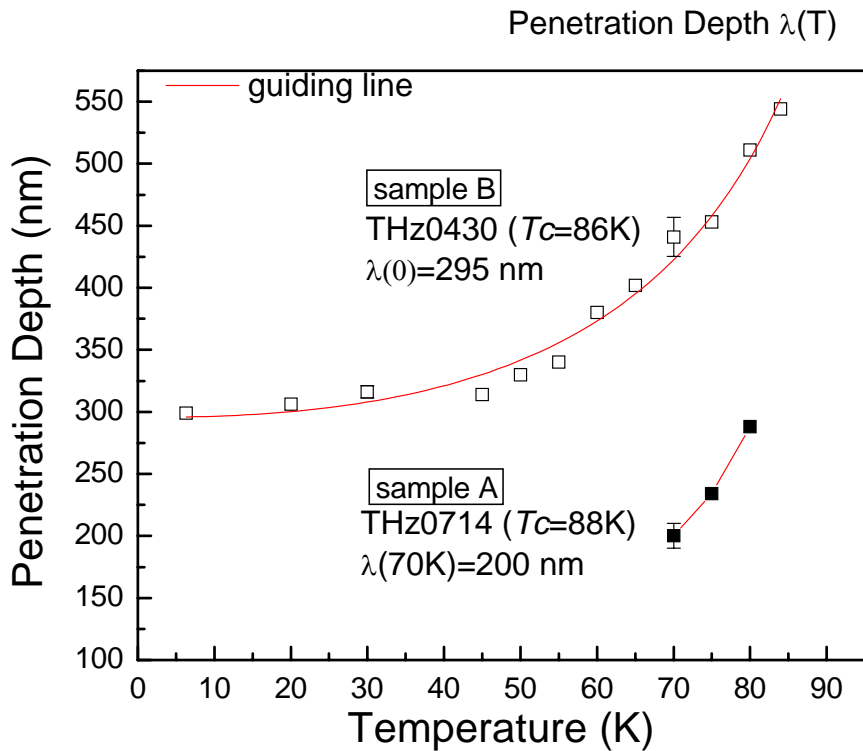
(圖十八)YBCO薄膜之複數電導率 $\sigma^*$ 實部



(圖十九): YBCO 薄膜之複數電導率 $\sigma^*$ 虛部

### 穿透深度(London Penetration Depth)

圖(二十)顯示的是YBCO薄膜倫敦穿透深度 $\lambda_L$ 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 $\lambda_L$ 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。



(圖二十): YBCO 薄膜倫敦穿透深度  $\lambda_L$  隨溫度變化的情形。

**兆赫電磁輻射之產生與應用研究方面發表的論文:**

- [1] 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: J. Appl. Phys. **95**, 8045 (2004)
- [2] P. I. Lin, C. W. Luo, H. S. Liu, 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  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  thin films" Bulletin of The American Physical Society, March 2004.
- [3] P. I. Lin, C. W. Luo, H. S. Liu, 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  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  thin

- films” 2004 年中華民國物理年會, February (2004).
- [4] P. I. Lin, C. W. Luo, H. S. Liu, K. H. Wu, J. Y. Juang, T. M. Uen, Y. S. Gou: *Physica B* **329-333**, 1651 (2003).
- [5] P. I. Lin, K. H. Wu, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou: *IEEE Tran. Appl. Supercond.* **13**, 20 (2003).
- [6] P. I. Lin, K. H. Wu, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou, “Characterization of Photogenerated Terahertz Radiation in High- $T_c$  Superconductors”, 2003 CLEO Pacific Rim in Taiwan, December (2003).
- [7] 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” 2003 年中華民國物理年會, February (2003).