研究速報

高温超伝導体を用いた光検出

NTT 電子応用研究所 田辺 圭一, 榎本 陽一, 山路 昭彦

Keiichi Tanabe, Youichi Enomoto, Akihiko Yamaji: Optical Detection in High-Tc Superconducting Thin Films.

The electrical responses to infrared radiation of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_y$ (100) and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (103) epitaxial films with various kinds of crystal orientation are studied using modulated laser light.

These films show apparently nonbolometric responses at temperatures below the transition regions which are strongly dependent on the bias current. The difference in the observed responsivity between these high-Tc materials and $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ can be explained on the basis of nonequilibrium superconductivity.

(Received June 12, 1990)

1. はじめに

酸化物超伝導材料の光応答の研究は、 $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ (BPBO) を用いて榎本等¹⁾によって最初に行われた。このデバイスは、準粒子の生成・蓄積によるオーダパラメータの変化、すなわち、非平衡現象を利用しており、低キャリア密度、粒界ジョセフソン接合といった酸化物超伝導体の特徴と相まって、半導体センサの限界に近い高い検出感度、と高速応答性、非常に広い応答波長領域といった、優れた特徴を示した。しかし、BPBOのTcが低いため、動作温度が6Kと低い難点があった。銅系的高温超伝導酸化物の発見以来、より動作温度の高い超伝導光センサの実現を目指し、主としてTcの高いYBCO膜について光応答に関する多くの検討結果が報告されている。初期の報告では、Tc近傍の抵抗の温度変化の大きい領域でのみ、薄膜のヒーティングに起因する(ボロメトリックな)大きな感度が観測されるという結果が殆どだった。

しかしながら、最近Frenkel等はパルス応答の実験、一方Zeldov等は強磁場中での電流-電圧特性の精密測定から、明確な粒界を含まない薄膜においても、ボロメトリック以外の応答が存在する事を示唆した。特にZeldovらはこの応答が光照射によるフラックススクリープの増大という新たな機構に基づくものとしている。また、Culbertson等によってKosterlitz-Thouless(KT)転移点以下に於けるボルテックス対の光照射による破壊による光検出の可能性を報告している。表1にYBCO薄膜を用いておこなわれたこれまでの研究例をまとめた。このように、高温超伝導体薄膜における光応答の機構は大きな論争的であり、この解明が高性能光検出素子実現への指針を得るためにも不可欠な状況となっている。我々のグループがこの光応答機構の解明のために行った検討結果を報告する。

2 実験方法

我々は光応答機構解明のために次のようなアプローチを取った。まず、材料による違いを明確にするため、YBCO以外に $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) 薄膜の応答も調べた。BPBOの類推からは、グラニュー薄膜(配向性の弱い多結晶薄膜の場合が多い)の方が高い感度が得られると予想されるが、特性の制御が容易という観点から、結晶方位の揃ったエピタキシャル薄膜を用いた。YBCO薄膜では、表2に示すような種々の配向膜の応答を調べた。配向膜のJcは $\text{YBCO}(113) < \text{YBCO}(103) (j \parallel c) < \text{YBCO}(103) (j \perp c) \sim \text{EBCO} (\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y) (001)$ の順に大きくなっている。薄膜は、焼結体ターゲットを用いたマグネトロンスパッタ及び反応性蒸着により堆積し、基板の種類及び温度、ガス圧等の条件により配向の制御を行った。⁸⁻¹⁰⁾ また、膜厚は光の侵入深さ(LSCO(100)の場合500 nm、その他の薄膜では約100 nm)と同等以下にした。

図1には、光応答の実験の配置を模式的に示す。上記の薄膜を用い、一般的なフォト工程とArイオンミリングにより13 x 13 μmのサイズのくびれ構造を作製した。この部分に、クライオスタット内に導入した単一モード光ファイバを用い、半導体レーザー光($\lambda = 1.3 \mu\text{m}$)が垂直入射するようにした。薄膜には一定のバイアス電流を流しておき、正弦波(波長100 - 500 kHz)で振幅変調した赤外光(強度 ~ 20 μW)を照射した際に生じる電圧シフトをロックインアンプ等を用い観測した。

*平2年5月本協会春季大会にて一部発表

**NTT電子応用研究所, 〒319-11茨城県那珂郡東海村白方白根162

Table 1 Reported results on optical response of YBCO thin films.

(1) エピタキシャル薄膜

研究者・機関	波長	感度	温度領域	応答速度	検出機構他
Forrester et al. (WESTINGHOUSE) 2)	0.63 μm 10.6 μm	4×10^3 V/W	$T \sim T_c$ (50–60 K)	$\mu\text{s} - 0.1\text{s}$	Bolometric $d \sim 350$ nm
Brocklesby et al. (ATT Bell) 3)	0.63 μm 1.06 μm	0.1 V/W	$T \sim T_c$ (80 K)	10–100 ns ("ON")	Bolometric $d \sim 280$ nm
Frenkel et al. (Bellcore) 4)	1.06 μm	0.03 V/W	$T \sim 0.5 T_c$ (40–60 K)	~ 1 ns	Nonequilibrium? $d \sim 40$ nm
Zeldov et al. (IBM Yorktown) 5)	0.63 μm	~ 0.25 V/W	$T < T_c$ (80–85 K)	< 0.1 ms ?	Optically induced flux-creep

(2) グラニューラ薄膜

Wilson et al. (Hughes) 6)	800 K BBDY	3×10^3 V/W	$T < T_c$ (60, 10 K)	< 0.1 ms	Bolometric + Nonequilibrium?
Culbertson et al. (NRL) 7)	900 K BBDY 0.58 μm	~ 10 V/W	$T \ll T_c$ (~ 10 K)	~ 10 ns	Nonequilibrium? (KT Transition)

3 実験結果及び考察

図2には、LSCO(100) 薄膜において観測された、光照射による電圧シフト量(応答電圧)のバイアス電流値依存性を示す。検出電圧は、薄膜のくびれ構造部の臨界電流値を越えるあたりから急激に立ち上がり、ピークを示した後、緩やかに減少する。特に低温側ではこの傾向が顕著に見える。このようなバイアス電流依存性は、BPBO 薄膜で観測されたものと非常に似通っている。一方、ボロメトリック応答の場合は、応答電圧がピークを示さず、バイアス電流に対して単調に増大する場合が多い。

図3は、同じくLSCO(100) 薄膜の応答電圧を、バイアス電流をパラメータとし、測定温度に対してプロットしたものである。応答電圧は T_c 以下の温度でピークを示す。低バイアス電流では、ピークは低く T_c に近い位置に存在するが、バイアス電流の増大と共にピークは低温側にシフトし、かつ大きくなる。測定温度5 K付近における最高の感度値は約20 V/Wである。この値はBPBO薄膜検出素子で観測された値に比べ2桁程度小さい。図中には、

最大のバイアス電流値における電気抵抗の温度微分係数 dR/dT の変化を破線で示してある。ボロメトリック応答を仮定した場合、応答電圧 δV は $\delta V = I_B (dR/dT) \delta T$ (I_B はバイアス電流、 δT は薄膜の温度上昇量)と表され、 δT が一定であれば dR/dT と同じ温度依存性を示すはずである。実際には、 dR/dT が非常に小さくなる低温において大きな応答電圧が観測されており、この結果は、応答が非ボロメトリックな機構によることを強く示している。図4には、比較的高い J_c を示すYBCO(103) 配向薄膜で観測された応答電圧の温度依存性を示す。2 mAのバイアス電流に対しては、一点鎖線で示した直流電圧(すなわち電気抵抗)の遷移領域付近に応答電圧のピークが存在し、応答は一見ボロメトリックであるかのように見える。しかしながら、注意深く見ると、抵抗遷移の裾の領域においても大きな応答が存在することがわかる。これをさらに見やすくするため、応答電圧を dV/dT で規格化した値で示したのが図5である。応答がボロメトリックであれば、この値は薄膜の温度上昇量に相当する。

Table 2 Characteristics of measured thin films.

	LSCO(100)	EBSCO(001)	YBCO(103) //[010]	YBCO(113) //[301]
Substrate	SrTiO ₃ (100)	MgO(100)	SrTiO ₃ (110)	SrTiO ₃ (111)
thickness(nm)	400	110	100	100
T_c (K)	18	82	81	79
$J_c(0\text{ K})$ (A/cm ²)	3×10^5	1.0×10^7	1.2×10^7	3×10^5
				8×10^5

Fig.1 Schematic view of arrangement for optical response measurement.

実際に、 T_c 以上の領域においては、この値は一定であり、応答がポロメトリックであることがわかる。一方、 T_c 以下の温度領域では、規格化された応答は温度の低下と共に増大し、非ポロメトリックな応答が次第に支配的になっていくことがわかる。配向や J_c 値の異なる他の薄膜に対しても、全く類似の傾向が観測された。YBCO系薄膜における感度の値は1 - 5 V/W程度と、LSCO薄膜に比べさらに小さい。

図6には、LSCO(100) 薄膜に対する感度の変調周波数依存性を示す。500kHz までの変調に対し感度は一定であり、応答時間は μs より短いことがわかる。他の薄膜に対しても、この周波数範囲では感度はほとんど変化しないという結果が得られているが、コンタクト部の寄生容量や接触抵抗の問題を解決し、パルス光を用いた高速応答の測定を行うことが今後の課題の一つである。

以上述べてきたように、LSCO、YBCO薄膜共に、 T_c 以下の温度領域においては非ポロメトリックな応答が支配的になる。この応答の機構としては、BPBOの場合と同様な非平衡現象が第一に考えられる。非平衡現象に基づく感度は、

$$\tau_{NE} = \frac{\partial V}{\partial I_c} \bigg|_{I_B} \frac{\partial I_c}{\partial \Delta} \bigg|_T \frac{\partial \Delta}{\partial n_{qp}} \bigg|_T \frac{\delta n_{qp}}{P}$$

と一般的に表される。ここで、 I_c は臨界電流値、 δn_{qp} は過剰準粒子密度、 P は入射光のパワーである。第一項はバイアス電流依存性を表している。この項が最適化されたと仮定すると、感度の大きさは、第3項及び第4項

Fig.2 Dependence of radiation-induced voltage shift on bias current observed in LSCO(100) thin film. ($f=300\text{kHz}$, $P=20\mu\text{W}$)

で支配される。第4項の過剰準粒子密度は、 $h\nu$ のエネルギーのフォトンにより理想的に $h\nu/\Delta$ 個の準粒子が生成されるとすると、 τ_{err}/Δ に比例する。 τ_{err} は有効再結合時間である。高温超伝導材料においては準粒子の再結合時間はフォノンの基板への逃げだし時間 τ_{es} に比べはるかに短いため、 τ_{es} が τ_{err} を支配すると考えられる。また、厚さ 100 nm 程度の酸化物超伝導体に対する τ_{es} は、材料に対する依存性が小さく、1 ns 前後の値になると予想される。一方、第3項は近似的には $1/2N(0)$ ($N(0)$: 状態密度) に等しい。最終的に、感度は、 $2N(0)\Delta$ 、すなわちペア電子密度に反比例する、あるいは量子効率が高エネルギーのフォトンに対して低下するとした場合、 $N(0)$ に反比例するという結論が導かれる。

表3には、BPBO、LSCO、YBCOに対する物性値と観測された応答感度をまとめる。Cu系超伝導材料のキャリア数はBPBOの値と非常に似通っているが、電子比熱係数 γ から計算される状態密度の値は、LSCOで約15倍、YBCOで50倍と、BPBOに比べ1、2桁大きな値になっている。^{11,12)} 両者のこの違いは、超伝導発現機構と密接に絡んでいるものと考えられる。観測された応答感度の大きさは、BPBO > LSCO > YBCOの順になっており、上の理論的な予測とはほぼ一致している。さらに最近、我々は、30 K程度の T_c をもつにもかかわらず $N(0)$ がBPBOの約2倍程度と予想される $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{BiO}_3$ (BKBO) 薄膜の応答を測定し、Cu系高温超伝導体に比べ1.2桁大きな感度を得ている。¹⁾

3) このように応答感度と状態密度の間に強い相関が存在することから、LSCO、YBCOで観測された非ポロメトリック応答は非平衡現象に基づくものであると結論付けられる。

4. 結び

高 T_c 薄膜を用いて行った光応答実験より、これらの材料は赤外領域の光に対して非ボロメトリックな強い応答を行うことが明かになった。この非ボロメトリックな応答は、応答感度と状態密度の間に強い相関が存在することから、BPB材料で観測されたと同じ準粒子の非平衡分布によるものと結論付けられる。

Fig. 3 Temperature dependence of voltage shift and dR/dT for LSCO(100) thin film. (dotted line shows dR/dT)

Fig. 4 Temperature dependence of voltage shift and dc voltage for YBCO(103) thin film with high J_c . The direction of the current is parallel to the a-b plane.

Table 3 Physical parameters of oxide superconductors and optical responsivity.

material	BPBO	LSCO	YBCO
T_c (K)	12	38	92
n (10^{21} cm^{-3}) ³¹⁾	4	2	5
$N(0)$ ($10^{21} \text{ states/eV cm}^3$) ³²⁾	1.9	27	102
r (V/W)	$10^3 - 10^4$	10 - 20	1 - 5
τ_N (mK)		10^2	10

n : carrier density

τ_N : normalized response = $\delta V / (dV/dT)$

Fig. 5 Temperature dependence of normalized photo-response for YBCO(103) film.

Fig. 6 Dependence of responsivity on modulation frequency for YBCO(110) thin film.

文 献

- 1) Y. Enomoto et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **23**(1984)L333.
Y. Enomoto et al.: J. Appl. Phys. **59**(1986)3807.
- 2) M. Forrester et al.: Appl. Phys. Lett. **53**(1988)1332.
- 3) W. Brocklesby et al.: Appl. Phys. Lett. **54**(1989)1175.
- 4) A. Frenkel et al.: Appl. Phys. Lett. **54**(1989)1594.
- 5) E. Zeldov et al.: Phys. Rev. Lett. **62**(1989)3093.
- 6) J. Wilson et al.: paper A2, presented Mtg. IRIS Specialty Group on Infrared Detectors, Baltimore, August 1988.
- 7) J. Culbertson et al.: Phys. Rev. B **39**(1989)12359.
- 8) M. Suzuki et al.: Phase Transitions **15**(1989) 201.
- 9) H. Asano et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **28**(1989)L981.
- 10) 久保ほか: 平成2年春期応物講演会予稿 p. 123.
- 11) 北沢、岸尾: 応用物理 **57** (1988) 1644.
- 12) B. Batlogg: Mechanism of High Temperature Superconductivity, ed. H. Kamimura and A. Oshiyama (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1989) p. 326.
- 13) 田辺ほか: (投稿中) .