

「新機能創出に向けた光・光量子科学技術」
平成 19 年度採択研究代表者

門脇 和男

筑波大学数理物質科学研究科・教授

超伝導による連続 THz 波の発振と応用

1. 研究実施の概要

テラヘルツ(10^{12} Hz)帯の電磁波は、周波数がちょうど電波と光波の狭間に位置し、分子の振動数とほぼ等しいことから、基礎科学としてのみならず、化学分析、分光、医療や診断、環境、通信、薬物や爆発物の検査、製薬、食品管理など極めて広い応用が期待されている。しかしながら、古くからその重要性が認識されているにもかかわらず、今日に於いてもこの THz 帯の電磁波は簡便な発振器や高感度の検出器が無く、未開拓の研究領域として残されている(テラヘルツギャップと呼ばれる)。

平成 18 年 6 月に、高温超伝導体の固有ジョセフソン接合により作製されたメサ構造から最初に THz 発振が確認されて以来、この新現象に対する研究機運が一気に高まり、世界的な関心と呼んでいる。特に、1. その発振強度がマイクロワットの水準であり、従来の超伝導ジョセフソン接合による発振強度がピコワットのレベルであったことと比較すると約 6 桁以上強いこと、2. 連続発振(CW)であり、少なくとも数時間程度は連続で発振すること、3. スペクトル幅が極めて狭く、通常分光器の測定限界(0.25 cm^{-1})を超えていること、4. 電磁波は強い直線偏光していること、などがその後の我々の研究で直ちに明らかにされた。また、発振の周波数を規定する二つの条件を明らかにした。すなわち、①直方体型のメサ構造では短い辺の長さ(w)が丁度発振波長(λ)の $1/2$ ($w=\lambda/2$) であること、②発振周波数は交流ジョセフソンの関係式、 $h\nu=2eV$ を満たすこと(ただし、 ν は発振周波数、 V は接合両端の電圧、 e は電子の素電荷、 h はプランク定数)である(平成18年度の主な成果で、文献1)。

平成19年度はこの様な発振が何故起こるのかを解明するため、実験と理論の両面から検討を進めた。即ち、実験的にはサイズや形状の異なる矩形や円筒形のメサを作製し、形状による放射パターン(強度分布)と偏光方向の違い、サイズ依存性などを精密に測定し、メサ内部での電磁波モードの特定を行った。理論的には、微視的なジョセフソンプラズマの理論によって、矩形と円筒メサの場合の計算機による数値シミュレーションを行い、実験結果を説明することを試みた(文献 6-10)。微視的理論によればメサ内部にジョセフソン磁束がダイナミカルに進入する反対象プラズマモードが強い発振を示すが、実験的にはそのモードは実現されていないように見える。また、高調波についても理論的には $\nu/2$ の周波数のサブハーモニクスが強く出ること

を示唆するが、その強度は実験的には基本波の 10^{-4} 程度以下の強度である。このように、実験的にも、また理論的にも現時点では十分な理解が得られていないので今後の問題として残されている。

発振強度に関しては、それを支配する要因が未だ明らかでなく、手探りの状態である。オーバードープ領域に試料を移行させ、臨界電流を上昇させれば投入電力は増やせるが、発振が観測できない。しかしながら、作成条件によって昨年度よりさらに1桁以上強い強度(概算であるが 0.1 mW 程度)が得られる場合が不安定ながら見つかっており、今後、強度の大幅な改善が期待される。

今後、さらに詳細な放射パターンの実験を基本波だけでなく、高調波も含めて行い、メサ形状と周波数、放射強度の関係、メサの温度が T_c 近傍まで上昇していることから、メサ内部での温度分布の測定により発振機構を明らかにする。また、スペクトル幅が装置により 0.25 cm^{-1} と制約されているため、より正確に求める実験の行う。理論的にはこれらの実験結果を説明するモデルの特定と、これまで無視してきた試料の温度効果を取り入れ、どのような実験条件を設定したなら最も効率の高い発振が得られるのか、等の具体的なシミュレーションを行い、理論・実験両面の密着したチームワークによりこの新現象の解明を行う。

2. 研究実施内容(文中にある参照番号は 4.(1)に対応する)

平成20年度はこれまでに明らかにされた実験事実を基に、矩形メサから円柱状メサに拡張し、THz 波の放射パターンのサイズおよび形状効果、放射強度の温度依存性、高調波成分、偏光方向など精密に測定した。また、理論的に現実のメサ構造を数値的にシミュレーションを行い実験結果を予測した。この様に THz 発振に関する実験と理論が互いに密接に協力し合い、研究成果を互いにフィードバックしながら進められている。

(I) 実験研究の実施状況とその主な成果

高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の単結晶を基板とし、その上にイオンエッチング、或いは FIB 加工により周囲に溝を作るなどし、高さ 1~数 mm 程度のメサを形成する。このメサ内のジョセフソン接合に通電し電圧状態を発生させ、その電圧による交流ジョセフソン周波数に対応する電磁波の波長が試料のサイズにより規定される電磁波の固有モードに一致するとき発振が起こる(文献1)。メサはこの発振の発振源と同時に共振器の役割を果たしている。また、メサは電磁波の放射という観点からするとアンテナの役割も果たしており、形状としては放射という観点からは必ずしも適当ではない。高効率の電磁放射を得るためには発振強度を向上させるとともに、放射効率を最適化することが最も重要な課題である。

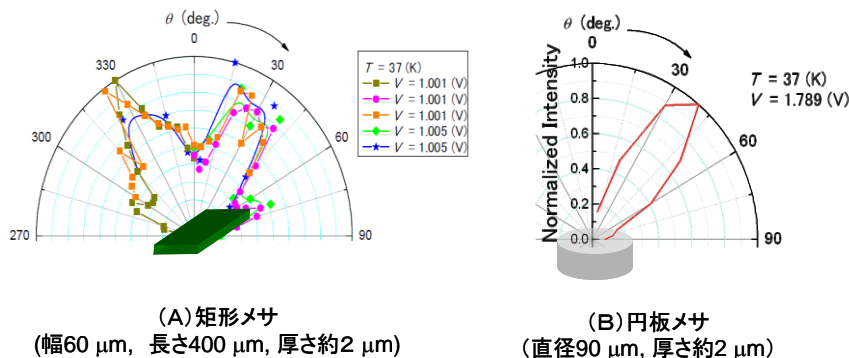


図1. 矩形メサと円板メサの場合の THz 波の放射の空間分布 (角度依存性) 固有周波数はそれぞれ $\nu=648.3 \text{ GHz}$, 480.0 GHz である。

この様な観点から、まず、電磁波モードを特定するため、放射される電磁波の放射パターンを精密に測定した。矩形メサおよび円柱メサの場合を図1に示す。円柱メサの場合はまだ予備的であるが、矩形、円柱メサ両者に共通の特徴があることがわかる。それらは、①放射は異方的であり、矩形メサの場合も円板メサの場合もほぼ天頂から $30^\circ \sim 40^\circ$ 付近で極大を示すこと、②真上は極大ではなく、矩形の場合極大値の $40 \sim 60\%$ 程度、円板の場合、 $20 \sim 30\%$ であること、③ 90° 方向はほぼゼロであること、④矩形の場合、長辺方向が短辺方向より強度が圧倒的に強いこと、⑤放射は接合面に垂直に強く直線偏光していること、等があげられる。これらの結果は矩形の場合も円板の場合もジョセフソン電流が発振源であり、メサ内部でほぼ様なジョセフソン電流の振動が THz 波放射の起源となっていることを強く示唆している。この様なモデルを用いて遠方場における THz 波の放射分布は単純な双極子放射とほぼ一致し、矩形、円板両者の場合、 $\theta=0^\circ$ でゼロ、 90° で極大をとるはずであるが、これは明らかに実験とは一致しない。その理由は、メサは巨大な超伝導体の上に乗る高さの低いテラスのようなものであるから、放射される THz 波はこの超伝導体により上方に反射されること、超伝導体による近接場領域に於ける遮蔽効果が強いことを考慮するとたいへんよく実験事実を記述できることが R. Klemm 等の解析の結果わかった。また、 $\theta=90^\circ$ 付近では遮蔽効果のため強度がゼロになるが、この解析によれば 0° 付近のみならず、全体の強度が大幅に減少していることが分かり、超伝導体の基板を取り去ることで強度が2桁程度上昇することが示されている。この計算では基板は周波数によらない完全な超伝導体を仮定しているが、実際は高周波領域での損失があり、この見積りがなされていない点は不完全であるが、いずれにしろこの効果は大変興味深く、早急に実験で確認する必要がある。

全強度はこの様な放射の角度依存性を考慮して半球立体角で積分することで、これまでほぼ $5 \mu\text{W}$ を観測している。しかしながら、ごく最近、不安定ではあるが、さらに1桁程度強い強度の発振が確認されており、この発振の解明が急がれている。これに加え、前述の遮蔽効果を取り除くことで2桁程度、強度の向上が見込まれることから、強度は結局、3桁程度改善することが見込まれ、 5 mW 程度まで上昇できる可能性があることが指摘されている(R. Klemm 等)。現在、全入射エネルギーは $20 \sim 30 \text{ mW}$ であるから、これが実現できるなら放射効率は $16 \sim 25\%$ まで

上昇することが期待されている。

(II) 理論研究の実施状況とその成果

THz 波の発振現象を説明するため、最近、ジョセフソンプラズマの微視的な理論を用いて、実際のメサに相当する有限サイズの計算機シミュレーションが Hu 等 (文献 8-10)、Koshelev 等、小山等 (文献 6)、立木等 (文献 7) を中心として行われている。矩形メサの場合は両者の理論結果はほとんど一致しているが、THz 放射パターンは実験と一致しない。その主な原因は、Hu 等、Koshelev 等、立木等の計算では近接場にある非放射タイプの電磁波を無視していること、さらに①メサが置かれている超伝導基板の効果を考慮していないこと、②モデル計算のサイズが現実より小さいこと(場合によっては二次元計算であること(小山等))、③計算過程で、ある重要な非線形項が存在するが小さいとして単純化のため省略していること、④そのため、それを克服するためジョセフソン電流の空間依存性を人工的に境界条件として導入していることなど、があげられる。これらの問題点をどのように取り扱うかによって結果が微妙に異なっている。これを、実験的な観点から正しくフィードバックし、問題点を改善することを理論、実験双方の緊密な連携により検討中である。これを簡単に解決する方法は、もちろん最初から近似を導入せず計算することであるが、これは現在のスーパーコンピュータでも計算機の能力の限界を超えるため不可能である。上記のどの因子が最も重要かを判定して、最大項から改善することで実験結果にどこまで近づくことができるかが、今後の研究の要点となる。

一方、ジョセフソン接合内の電磁場の分布を実験結果からある程度予測し、それを用いて遠方場の電磁波の放射分布をよく説明することができる(未発表文献)。THz 発振の内部機構を問わなければこのような取り扱いをすることで問題を単純化でき、メサ試料を単にある形状の導体から放射される電磁波の強度分布を計算するという問題に帰着できる。例えば、この場合、超伝導基板の効果を取り入れることは比較的簡単で、放射電磁場への影響の詳細をシミュレーション可能である。とくに、THz 波を効率よく放射し、THz 波を伝搬させる伝送系の設計まで含めた議論が開始されている。これは、将来、様々な応用(例えば医療など)においては極めて現実的に重要な問題であるのこの方面の発展も今後、期待したい。

(III) 高品質単結晶の育成

THz 波の発振現象が我々のグループで観測されて以来、今日まで、我々の試料以外で THz 波の発振現象は確認されていない。この原因は未だ不明であるが、発振には我々の結晶がきわめて重要で、ほかの結晶にない要素を持っているようである。このことから、我々の単結晶の存在が THz 波の発振研究には決定的な重要性を持っている。我々は、結晶の質の問題が最も重要と考えている。

このように、THz 発振現象を支えている最も重要な部分は高品質の単結晶の存在である。厚さ 1~2 ミクロン程度のメサ試料内に不純物層があると位相のコヒーレンスが破れ、発振しないことは容易に想像できる。これには不純物層の混入率が約 0.1%以下でなければならない事を意味する。Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}(Bi2212)系の場合、極めて似ているが異なった構造をもつ Bi₂Sr₂CuO_{4+δ}(Bi2201)と Bi₂Sr₂Ca₂Cu₃O_{10+δ}(Bi2223)という相が存在し、通常の結晶では数%レベルの異相の混入は普通である。これが我々の結晶の場合、0.1%レベル以下であることがわ

かつており、これが THz 発振が可能となった理由の1つと考えている。このような高品質の単結晶育成技術を着実に継承し、次のあたらしい現象の開拓の原動力となる良質の単結晶育成技術の開発に、これまで以上に本研究で力を注ぎたい。また、高温超伝導体は同様の層状性の強い結晶構造を持つため、他の物質で同様に質の高い単結晶の育成が可能となれば、異なった周波数領域での THz 発振が期待される新しい物質を開発することができることから、このような新物質の単結晶育成も視野に入れた高品質単結晶育成技術の開拓を行う。

(IV)メサ構造の作成と微細加工技術の開拓、関連する超伝導基礎物性の研究

THz 発振には微細加工技術によるメサ構造の作成が必要不可欠である。加工法としては FIB 法やイオンミリング法により行われているが、現実のメサ加工の際、形状の精密な制御が難しく、通常は台形上のメサしかできない。現状では上底部と下底部では 10～20%も幅が異なり、この幅は厚さによって決まるから、試料幅が狭くなればなるほど平均幅に対する相対的な幅の不均一性が悪くなる。幅が 40 ミクロン以下になると発振が極めて困難であるのはこの点が原因と考えられている。この問題を解決する為、今後、新しい加工技術の開発が必要不可欠である。

この問題に加え、もっとも重要で、解決すべき問題は試料の経時変化、すなわち寿命である。これは、低温へ冷却する際の熱膨張係数の違いによる歪みがかもっとも大きい要因と考えているが、加工の際受ける試料の損傷効果も無視できないのではないかと考えている。このような問題は様々な試料作成の試みを繰り返してみなければ道が開けないので、系統的に作成方法を変えて実験する以外に良策はないと思われる。

そのほか、リソグラフィ技術の改良、電極の配置、形状、付け方、試料の位置、絶縁物の付け方、試料の冷却法など、極めて多くのパラメーターの最適化が必要であるが、今後も継続して行う必要がある。これによって、最終的には素子当たり～mW 級のメサを実現したい。

このような加工後術の開発と同時に、平行して微細加工された超伝導体の超伝導特性の測定を行っている。これは加工技術のテストと同時に、加工そのものが超伝導特性どの様な影響を与えるかを調べることができ、一挙両得である。このような、周辺技術と物理特性に与える影響も、他の物性をしらべながら同時進行的に研究を進めていく（文献 2-5）。

3. 研究実施体制

(1)「門脇」グループ

①研究分担グループ長:門脇 和男(筑波大学大学院、教授)

②研究項目

良質の高温超伝導体単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ をメサ加工し、実験パラメータ(メサの厚さ、形状、電極構造など)を変えた実験を行い、より強力な THz 発振が起こる条件を見いだす。また、放射される電磁波の空間強度分布の測定を、さらに詳しく行い、発振の際の電磁波モードを確定する。このことによって発振機構を解明する。これらの実験的研究は、理論的な解析結

果と照合しながら進める。また、このような実験に耐えうる高品質の単結晶育成を継続して行う。これと連動して同種の新しい単結晶物質の開拓を行う。(門脇、服部、Markovic、山本、八巻、橋本、山口、辻本)

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 単結晶から加工されたメサに電流を流したとき、そのメサからテラヘルツ電磁波が発振されることが観測されているが、この発振機構を解明するための理論的研究を解析的手法および大規模数値計算で行う。それに基づいて、発振強度の強いコヒーレントなテラヘルツ波の発振素子の設計を行う。また、効率よいアンテナや伝送回路の設計も行う。(立木、福屋、Ivanovic)

メサデバイスの作製とテラヘルツ発振特性の分光手法による評価(発振周波数、パワー、偏光特性、放射分布、時間安定性、レンズによる集光 等)をおこなう。(南、掛谷)

(2)「古月」グループ

①研究分担グループ長:古月 暁((独)物質・材料研究機構、主任研究者)

②研究項目

計算機シミュレーションにより、層状高温超伝導体の面内磁場印加下でのプラズマ共鳴現象を解析する。バイアス電流によって駆動されるジョセフソン渦糸がジョセフソンプラズマを励起し、高温超伝導単結晶が作る共振器固有モードとのマッチングを通じてそれが増幅され、テラヘルツ電磁波を放出する機構の解明をおこなう(古月)。

固有ジョセフソン接合のテラヘルツ波発振の数値的研究、特に接合サイズや印可磁場の変化が及ぼす影響の系統的研究(野々村)。

高品質単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の育成と新物質開拓、および評価(茂筑)。

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表 (原著論文)

1. K. Kadowaki, H. Yamaguchi, K. Kawamata, T. Yamamoto, H. Minami, I. Kakeya, U. Welp, L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, C. Kurter, K. E. Gray and W. -K. Kwok, "*Direct Observation of Terahertz Electromagnetic Waves Emitted from Intrinsic Josephson Junctions in Single Crystalline $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$* ", *Physica* **C468** (April, 1st, 2008) 634-639.
2. I. Kakeya, K. Fukui, K. Kawamata, T. Yamamoto and K. Kadowaki, "*Quantum Oscillation of the c-Axis Resistivity due to Entrance of Pancake Vortices into Micro-Fabricated $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Intrinsic Josephson Junctions*", *Physica* **C468** (April 1st, 2008) 669-673.
3. L. X. You, T. Bauch, D. Winkler, I. Kakeya and K. Kadowaki, "*Small-Number Arrays of Intrinsic Josephson Junctions*", A. Yurgens, M. Torstensson, *Physica* **C468** (April 1st, 2008) 674-678.
4. T. Sato, K. Terashima, K. Nakayama, S. Souma, T. Takahashi, T. Yamamoto, and K. Kadowaki, "*Fermi arc in the superconducting state of impurity-doped high-temperature superconductors*", *Phys. Rev.* **B78** (No. 10), 100502 (4 Sept., 2008).
5. A. Kanigel, U. Chatterjee, M. Randeria, M. R. Norman, G. Koren, K. Kadowaki, and J. C.

- Campuzano, "Evidence for Pairing above the Transition Temperature of Cuprate Superconductors from the Electronic Dispersion in the Pseudogap Phase", Phys. Rev. Lett. **101**, 137002 (26 Sept., 2008).
6. T. Koyama, H. Matsumoto, M. Machida and K. Kadowaki, "In-Phase Electrodynamics and Terahertz Wave Emission in Extended Intrinsic Josephson Junctions", Phys. Rev. **B79** (March 31st, 2009) 104522(1-12).
 7. M. Tachiki, S. Fukuya and T. Koyama, "Mechanism of Terahertz Electromagnetic Wave Emission from Intrinsic Josephson Junctions", Phys. Rev. Lett. **102** (March 25th, 2009) 127002.
 8. S.-Z. Lin and X. Hu: "Possible Dynamic States in Inductively Coupled Intrinsic Josephson Junctions of Layered High- T_c Superconductors", Phys. Rev. Lett. **100** (June 20th, 2008) 247006.
 9. X. Hu and S. -Z. Lin: "Three-Dimensional Phase-Kink State in Thick Stack of Josephson Junctions and THz Radiation", Phys. Rev. B **78** (October 9th, 2008) 134510.
 10. S.-Z. Lin and X. Hu: "Phase Dynamics in Intrinsic Josephson Junctions and its Electrodynamics", Phys. Rev. B **79** (March 11th, 2009) 104507.

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数 : 1 件 (CREST 研究期間累積件数 : 3 件)