

「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

筑波大学大学院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

周波数がテラヘルツ帯の電磁波は、基礎科学はもとより、応用上特に重要であることが古くから認識されているにもかかわらず、簡便な発振手段や検出器が無く、ほとんど未開の状態である(テラヘルツギャップ)。超伝導は交流ジョセフソン効果を用いれば $\nu=2eV/h$ ($=483.5979$ GHz/mV, ν は発振周波数、 V はジョセフソン接合両端の電圧、 e は電子の電荷、 h はプランク定数)の関係式より、比較的容易にマイクロ波帯域の電磁波を得ることができることからマイクロ波領域からサブテラヘルツ領域の高周波デバイスや高感度検出器として有望視され、多くの研究がこれまで成されてきた。しかしながら、従来の金属系超伝導体では超伝導転移温度 T_c が低く、動作周波数の限界が数 100 GHz とテラヘルツ帯域をカバーすることはできない。

これに対し、高温超伝導体では従来の金属系超伝導体よりギャップエネルギーが 10 倍以上高く、しかも $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 系ではジョセフソン接合が結晶の単位胞内に内在していることが知られており(固有ジョセフソン接合)、これを利用すればテラヘルツ帯域の発振素子や検出器の作成が可能であることから、研究されてきたがこれまで実現に至らなかった。2007年6月、マイクロワット級の電磁波放射現象が単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の大型メサを直流駆動することによって実現できることがわかった。この発振は連続であり、発振強度は単一ジョセフソン接合の場合より 6 桁程度強度が強く、直線偏光した鋭い輝線スペクトルを持つ電磁波であることがその後明らかにされた。この2年あまりの間、この発振の機構などの解明を中心に電磁波の物理特性を実験的に明らかにしつつ、理論の協力を得て次第に THz 帯の電磁波の特徴が明らかになりつつある^{2),3),5),7-12)}。

このような理解を基にしてさらに強力で安定な発振をどのように実現するか足のかりをつかみ、最終的には出力 1 mW 級の THz 波の発振を実現したい。これが実現できれば、THz 帯域の応用が大きく進展し、21 世紀前半の科学技術の発展と、さらには産業として社会的、経済的に大きな貢献が十分期待できる。

§ 2. 研究実施体制

(1)「筑波大」グループ

① 研究分担グループ長:門脇 和男(筑波大学、教授)

② 研究項目

(1) メサの幾何学的形状効果の研究(門脇、立木、南、柏木、山本、八巻、辻本)

様々な形状(矩形、円柱形、正方形などの形状で、幅、長さや高さなどが異なる複数の)メサを作成し、メサ抵抗の温度依存性、形状依存性、 $I-V$ 特性とその温度依存性、発振特性、発振強度の角度依存性、偏光特性、発振スペクトルとその線幅などの測定からメサ内部における電磁波モードを明らかにした。発振の駆動力は交流ジョセフソン効果であり、一様モードを励起する。これに対し、発生する電磁波はメサの幾何学的効果によって共鳴モードがたち、この二つのモードが共存していることがわかった。これは、メサのサイズがちょうど電磁波の波長程度にあることが原因で、波長が十分長ければ空洞によるモードが主体と成り、波長が短ければ一様モードが主体と成るといふ、当然の結果を意味している。

(2) 発振条件の確立(門脇、南、柏木、服部、山本、八巻、辻本、小池、折田、)

メサが発振する条件はこれまでのところ、交流ジョセフソン効果とメサの形状による定在波の条件のみであった。しかしながら、これ以外に、そもそもなぜ発振するメサと発振しないメサがあるのか理解できなかつた。この点に関して、新たに電気抵抗と接合電圧 V との間に $V=48.2(d/w)$ (volt)(矩形メサの場合で d は厚さ、 w は幅)の条件が少なくとも満たされねばならないことがわかった。これは電圧状態でこの式を満たすだけの十分な電圧が発生することが必要条件であることを意味しているが、現実には電圧が小さ過ぎ、発振条件を満たさないメサがあることがわかった。そのほか、 $I-V$ 特性がディップ構造を持つと強力な発振が期待できるなど、発振条件が次第に明らかになっている。

(3) 発熱と非平衡状態の研究(門脇、立木、南、柏木、福屋、橋本、出口、Das)

メサが抵抗状態では直流バイアス電流のために極めて大きな発熱がある(数 kW/cm^3)。このためメサの温度が大きく上昇し、容易に T_c 近傍まで上昇してしまう。また、この温度上昇はメサ内部で一様ではないと考えられ、大きな温度勾配があるとも言われている。このような非平衡、不均一状態、かつ非線形状態は発振に大きな影響を与えていると考えられる。これを理論的、かつ実験的に解明する研究を開始した。

(2)「物質・材料研究機構」グループ

① 研究分担グループ長:胡 暁(物質・材料研究機構、主任研究者・グループディレクター)

② 研究項目

(1) 銅酸化物高温超伝導固有ジョセフソン接合系の超伝導位相ダイナミクス の 解 明、

状態安定性の研究

(2) シリンダーメサ内部のジョセフソンプラズマ波形の解明

(3) 銅酸化物高温超伝導高品質の単結晶の育成

§ 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する)

平成 21 年度はメサ作成技術も向上し、発振するメサの作成条件の理解とともに発振するメサ作成の歩留まりが高くなり、実験事実も蓄積されてきて理論と実験の対応ができるようになって大きく理解が深まった。

特に、実験的には平成 21 年度においては、これまでの実験的研究が矩形メサのみであったことから、円盤状メサや正方形メサなど、様々な形状とサイズ(同じ形状でも異なったサイズという意味)のメサを作成し(図1参照)、その放射強度角度依存性や放射スペクトルの測定を行った(図2参照)。その結果から、メサ内部に発現する電磁波モードの特定を行い、形状と発振周波数やモードがどのような関係にあるのかなどを明らかにした¹¹⁾⁻¹⁴⁾。その結果、メサ自体はそれ自身で電磁波の共振器として動作し、電磁波は定在波を形成し、増幅を受け、かつ強度は超伝導接合数 N の2乗倍となることがわかった。この原動力は直流電流によって発生する静電電位差が交流電流に変換される交流ジョセフソン効果そのものにあり、特段新しいことではないが、各固有接合は同等であるから、ちょうど原子のような働きをし、すべてが位相をそろえ、集団励起モード(ジョセフソンプラズマ)を形成し、その振幅が空洞共振器効果によって増大することが明らかにされた。これが本年度の機構に関する最大の成果である¹¹⁾⁻¹⁴⁾。この結果は共振器モードのみで取り扱ってきたこれまでの理論では不十分であり、むしろ、一様なジョセフソン電流による放射効果が主要な発振源であることを示しており、改善が望まれる。

図 2 は円盤型メサの場合、発振モードが $TM(1,1)$ モードであり、このモードは周波数 $\nu = \chi_{11} c_0 / 2\pi n a$ (ここで $\chi_{11} = 1.841$, c_0 は真空中の光速, n は屈折率, a は円盤の半径) が共鳴周波数を規定しているが、原動力を担っているのは交流ジョセフソン効果そのものであることを直接実験的に実証するものである。すなわち、実験的には円盤メサの場合でも高調波は基本波の整数倍に現れ、Bessel 関数による高次モードやサブハーモニクスなど実験感度範囲内で観測できないからである。もし、空洞モードのみが THz 放射の機構であれば、基本波の整数倍の高調波しか観測でき

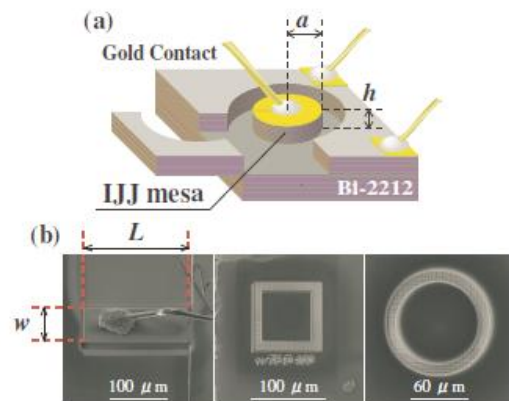


図 1. (a): 円盤状メサの模式図。(b)各種メサの SEM 写真: 矩形メサ(左)、正方形メサ(中央)、円盤状メサ(右)。

ない事実は説明できない。これは図2(b)の電磁波強度の角度分布の結果とも一致する。すなわち、空洞モードのみの機構であれば $\theta=0^\circ$ で強度は最強であることが期待されるが、実験結果は局所的な極小値をとり、最大値は $\theta=30^\circ$ 付近にある。これは、交流ジョセフソン効果による一様モードが重畳している、空洞モードと共存していることを示している。その強度の割合はメサによって異なるが、多くの場合空洞モードは交流ジョセフソン効果の半分以下である。

このように、矩形の場合と円盤状メサの場合の実験結果の解析から交流ジョセフソン効果が主要な原動力と成っており、空洞モードはメサの形状に電磁波が丁度収まる形になるための条件に過ぎないことが解明されたのである。

今年度導入したミキサーを使うことによって、発振線幅を決定できるようになった。実験は開始されたばかりでそれほどまだ事例が多くない

が、線幅は大体 1 GHz 程度であり、メサによって異なる。これはメサの形状が定在波を規定していることと矛盾しない。すなわち、メサの形状が台形状になっておりこれが線幅の一つの要因となっていることが考えられる。どこまで線幅を狭くできるかは応用上、大変興味があるところであり、線幅の研究は今後の重要な研究課題である。

隣接する 2 つのメサを同時に動作させる実験も行い(未発表)、同期連動した動作が確認された。これは、多少、異なった周波数でも強制的な引き込み現象が起こることを示しており、事実、強度も引き込み減少後は 2 倍ではなく 3.4 倍程度まで増加することがわかった。この結果は複数動作させることでさらに強力な発振を実現できることを示唆している。強度を大きく改善する一つの手段として従来超伝導体でも行われたように、array が考えられ、今後の重要な研究課題である。

作成されたメサは必ずしもすべてが発振するわけではない。あるいは発振しても、発振強度がどのような条件で決まるのかこれまで不明であった。この理由について、発振は共振器に電磁波エネルギーが蓄積され増大するが、エネルギーがある程度以上に達すると、全体の強調動作に何らかの原因で不安定性が発生し、これが不安定要因となり $I-V$ 特性に飛びが起こり、発振が中断される現象が明らかになった^{3),5),11)}。このことは、逆に何らかの理由で $I-V$ 特性に飛びが起こらない要因があればよいが、幸い、メサによっては $I-V$ 特性にディップ構造をもつ特殊なものがあり、このため、 $I-V$ 特性がジャンプできない構造を持っているものが作れることが明らかになった¹¹⁾。なぜ、このようなディップ構造ができるかについてはまだ十分理解できていないが、固有ジョセフソン接合がブランチ構造をとる領域と、全体が一体となってブランチ構造が見えない領域の境界付近でこ

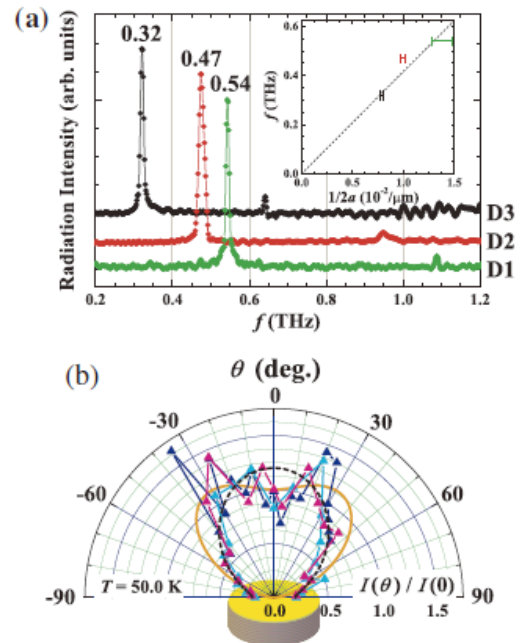


図 2. (a) : 円盤状メサの場合の放射スペクトル(D1, D2, D3はそれぞれ半径 35, 50, 63 μm に対応)。 (b) : メサ D3 の放射強度の角度依存性。

のような現象が起こることが観測されていて、集団モードの励起とそれに対する個別励起がこの現象に深く関与していることが推測されている。いずれにしろ、少なくとも強度の増大効果はこの現象によって大いに期待できる。

このように、高温超伝導体の固有ジョセフソン接合系から発振される THz 波の全貌がこの 2 年間の研究を通して次第に明らかになりつつある。理論研究も大きく進み、現象論的に放射角度依存性などをシミュレーションできるまでになっている。この理論によれば、超伝導基板を取り除けばさらに数 100 倍程度の出力が予想されることから、今後、さらなる発振強度の増大が期待される。ただし、ここで超伝導体を完全導体として扱っており、これがどの程度よい近似か実験的に調べる必要がある。実験的にすでに開始されているが、単独メサを作成する技術がまだ確立しておらず、成功に至っていない。

一方、理論グループでは本年度も引き続き高温超伝導固有ジョセフソン接合系の位相ダイナミクスの理論研究を進めてきた。先ず前年度に理論的に見つかった超伝導位相の π キンク状態の安定性について詳しく検討した。固有ジョセフソン接合系のジョセフソンプラズマを記述するサイン・ゴールドン方程式をベクトル形式に書き直した場合、接合間の相互作用は結合マトリクスで表される。そのサイズはジョセフソン接合の個数に等しいので、固有値、固有ベクトルは数百程度になるため、今までに調べられていなかった。我々は一様なユニットベクトル \mathbf{I} 以外に、 $+1$ と -1 の交互配列によって得られる周期 2 のベクトル \mathbf{I}_2 も結合マトリクスの固有ベクトルであることを新たに見出した(招待講演[12])。ベクトル \mathbf{I}_2 に対応する結合マトリクスの固有値は $-(4\zeta+1)$ であり、ユニットベクトル \mathbf{I} の固有値 1 とは符号が逆であり、定量的にも結合係数 $\zeta=(\lambda_{ab}/s)^2 \sim 10^5$ 倍と大きく異なる。ベクトル \mathbf{I}_2 は前年度見つかった超伝導位相の正・負 π キンクが交互に c 軸方向に配列された状態に対応し、固有値が負の大きな値を持つことが π キンク状態の安定性に関係する。また、固有値 $-(2\zeta+1)$ を持つ周期 4 の固有ベクトル \mathbf{I}_4 も安定な π キンク状態に対応することを確認している。一様な固有ベクトル \mathbf{I} は正の固有値を持ち、対応する安定状態は今までに見つかっていない。

高温超伝導単結晶メサ内のジョセフソンプラズマの波形を決めるもう一つの重要な要素は ab 面での境界条件である。以前の理論研究より、実験に用いられる薄いメサの場合にはノイマン型境界条件が正しいとされている。しかし、最初の実験に用いられた長方形メサでは、ディリクレ型境界条件もノイマン型境界条件と同じ周波数のメササイズ依存を与えるので、周波数の実験観測によるジョセフソンプラズマ波形の決定は不可能である。我々はシリンダー型のメサの利用を提案した [X.Hu and S.-Z. Lin, Phys. Rev. **B78**, 134510 (2008), 原著論文[9], 招待講演(1)]。ベッセル関数のゼロ点(ディリクレ型境界条件に対応)とその微分のゼロ点(ノイマン型境界条件に対応)の違いを利用すれば、周波数の半径依存性の実験観測からノイマン型境界条件及びジョセフソンプラズマの波形を確定できる。門脇グループによるシリンダー形状メサを用いた最近の実験結果はノイマン型境界条件を明白に示した。また、実験では我々が昨年度の論文に示したモードよりも低い周波数を持つ別のモードが励起されていることも判明している⁹⁾。この一連の研究は高温超伝導固有ジョセフソン接合系を利用したテラヘルツ発振の機構解明に大きく寄与している。

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

- [1]. “Scaling Behavior of the Crossover to Short-Stack Regimes of Josephson vortex lattices In $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ ”, I. Kakeya, Y. Kubo, M. Kohri, M. Iwase, T. Yamamoto and K. Kadowaki, Phys. Rev. **B79** (2009) 212503(1-4).
- [2]. “Thermal Management in Large Bi2212 Mesas Used for Terahertz Sources”, C. Kurter, K. E. Gray, J. F. Zasadzinski, L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, Q. Li, T. Yamamoto, K. Kadowaki, W. -K. Kwok, M. Tachiki and U. Welp, IEEE Trans. Appl. Superconductivity, **19** (June 2009) 428-431 (“the proceedings of the ASC (Applied Superconductivity Conference) 2008”, August 17-22, 2008, held at Chicago, USA).
- [3]. “Emission of Terahertz Waves from Stacks of Intrinsic Josephson Junctions”, K. E. Gray, L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, C. Kurter, K. Kadowaki, T. Yamamoto, H. Minami, H. Yamaguchi, M. Tachiki, W. -K. Kwok and U. Welp, IEEE Trans. Appl. Superconductivity, **19** (June 2009) 886, (this is given at the ASC (Applied Superconductivity Conference) 2008, August 17-22, 2008, held at Chicago, USA but not the proceedings).
- [4]. “Vortex States in Mesoscopic Single Crystals $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ in High Magnetic Fields”, J. Mirković, Y. Kubo, T. Saitou, I. Kakeya, T. Yamamoto, A. Oral and K. Kadowaki, Physica **C469** (Aug.-Oct. 2009) 1119-1121 (the proceedings of the “21st International Symposium on Superconductivity (ISS 2008)”, October 27-29, 2008, Tsukuba, Japan).
- [5]. “Terahertz Wave Emission from Intrinsic Josephson Junctions in High- T_c Superconductors”, L. Ozyuzer, Y. Simsek, H. Koseoglu, F. Turkoglu, C. Kurter, U. Welp, A. E. Koshelev, K. E. Gray, W. K. Kwok, T. Yamamoto, K. Kadowaki, Y. Koval, H. B. Wang and P. Muller, Supercond. Sci. Technol. **22** (Nov. 2009) 114009 (Special Issue for the Selected Papers from the “International Superconductive Electronics Conference (ISEC)”, June 16-19 2009, Fukuoka, Japan).
- [6]. “Observation of a d-Wave Nodal Liquid in Highly Underdoped $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ ”, U. Chatterjee, M. Shi, D. Ai, J. Zhao, A. Kanigel, S. Rosenkranz, H. Raffy, Z. Z. Li, K. Kadowaki, D. G. Hinks, Z. J. Xu, J. S. Wen, G. Gu, C. T. Lin, H. Claus, M. R. Norman, M. Randeria and J. C. Campuzano, Nature Physics Letters, doi:10.1038/nphys1456 (November 22, 2009).
- [7]. “Characteristics of Terahertz Radiation Emitted from the Intrinsic Josephson Junctions in High- T_c Superconductor $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ ”, H. Minami, I. Kakeya, H. Yamaguchi, T. Yamamoto, K. Kadowaki, Appl. Phys. Lett. **95** (December 7, 2009) 232511.
- [8]. “The Radio-Frequency Impedance of Individual Intrinsic Josephson Junctions”, Johannes Leiner, Sajid Saleem, J. C. Fenton, Takashi Yamamoto, Kazuo Kadowaki and P. A. Warburton,

- Appl. Phys. Lett. 95 (December 23, 2009) 252505(1-3).
- [9]. “Cavity phenomena in mesas of cuprate high- T_c superconductors under voltage bias”, X. Hu and S.-Z. Lin: Phys. Rev. B80, 064516 (2009).
- [10]. “Stationary phase-kink state controlled by surface impedance in terahertz wave emission from intrinsic Josephson junctions”, Y. Nonomura, Phys. Rev. B80 140506R (2009).
- [11]. “Scanning SQUID Microscopy of Vortex Clusters in Multiband Superconductors”, Taichiro, Nishio, Vu Hung Dao, Qinghua Chen, Liviu F. Chibotaru, Kazuo Kadowaki, and Victor V. Moshchalkov, Phys. Rev. **B81** (19 January 2010) 020506(R).
- [12]. “Evidence for a Dual-Source Mechanism of Terahertz Radiation from Rectangular Mesas of Single Crystalline $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Intrinsic Josephson Junctions”, Kazuo Kadowaki, Manabu Tsujimoto, Kazuhiro Yamaki, Takashi Yamamoto, Takanari Kashiwagi, Hidetoshi Minami, Masashi Tachiki and Richard A. Klemm, J. Phys. Soc. Jpn. **79** No.2 (February 2010) 023703.
- [13]. “The Effect of Ru Substitution on the Thermal, Structural and Magnetic Properties of $\text{Bi}_3\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_d$ Superconducting System”, M. A. Aksan, M. E. Yakinci and K. Kadowaki, J. Supercond. Nov. Magn. **23** No. 3 (March 2010, online October 29 2009) 371-380, (DOI 10.1007/s10948-009-0587-1).
- [14]. “Angular Dependence of the Radiation Power of a Josephson STAR-Emitter”, Richard Klemm and K. Kadowaki, in press in J. Supercond. Magn., (published on line: 29th January 2010) (proceedings of the “International Conference on New Theories, Discoveries and Applications of Superconductors and Related Materials (New3SC-7)”, held in Beijing, China, May 13-15, 2009).
- [15]. “Radiation from a Josephson STAR Emitter”, Richard A. Klemm and Kazuo Kadowaki, to be Published in Phys. Rev. B.
- [16]. “Geometrical Resonance Conditions of THz Radiation from Intrinsic Josephson Junction of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, Manabu Tsujimoto, Kazuhiro Yamaki, Kota Deguchi, Takashi Yamamoto, Takanari Kashiwagi, Hidetoshi Minami, Masashi Tachiki and Kazuo Kadowaki, to be published in Phys. Rev. Lett.
- [17]. “Kink State in a Stack of Intrinsic Josephson Junctions in Layered High- T_c Superconductors and Terahertz Radiation”, S.-Z. Lin and Xiao Hu, J. of Supercond. Novel Magn., in press
- [18]. “Stability of the kink state in a stack of intrinsic Josephson junctions”, S.-Z. Lin and X. Hu, Physica C, in press
- [19]. “Local electronic structures of electron-doped cuprates with coexisting order”, B. Liu and X. Hu, Physica C, in press
- [20]. “Phase dynamics in a stack of inductively coupled intrinsic Josephson junctions and terahertz electromagnetic radiation”, X. Hu and S.-Z. Lin, Supercond. Sci. Technol., in press
- [21]. “Terahertz amplifier and detector using intrinsic Josephson junctions of layered high- T_c superconductor”, S.-Z. Lin and X. Hu, to be published in Phys. Rev. B.

- [22]. “*Properties of Ca-Doped $\text{Bi}_{2+x}\text{Sr}_{2-x}\text{CuO}_{6+\delta}$* ”, R. Yoshizaki, H. Ikeda and K. Kadowaki, *Physica C* (in press) (doi: 10.1016/j.physc.2009.10.048) (proceedings of the “*9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity, M2S-IX*”, held at Keio Plaza Hotel, Tokyo, Japan, September 7-12, 2009).
- [23]. “*Inhomogeneity of Initial Flux Penetration in MgB2 Single Crystals*”, T. Nishio, R. B. G. Kramer, V. H. Dao, L. F. Chibotaru, N. D. Zhigadlo, J. Karpinski, K. Kadowaki and V. V. Moshchalkov, *Physica C* (in press) (doi: 10.1016/j.physc.2009.10.091) (proceedings of the “*9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity, M2S-IX*”, held at Keio Plaza Hotel, Tokyo, Japan, September 7-12, 2009).
- [24]. “*Terahertz Radiation generated from cylindrical mesas of Bi2212*”, M. Tsujimoto, K. Yamaki, T. Yamamoto, H. Minami and K. Kadowaki, *Physica C* (in press) (doi: 10.1016/j.physc.2009.10.035) (proceedings of the “*9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity, M2S-IX*”, held at Keio Plaza Hotel, Tokyo, Japan, September 7-12, 2009).
- [25]. “*Synchronized Operatio of Two Serially Connected Bi2212 THz Emitters*”, Naoki Orita, Hidetoshi Minami, Takashi Koike, Takashi Yamamoto and K. Kadowaki, *Physica C* (in press) (doi: 10.1016/j.physc.2010.01.051) (proceedings of the “*9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity, M2S-IX*”, held at Keio Plaza Hotel, Tokyo, Japan, September 7-12, 2009).
- [26]. “*Continuous and Reversible Operation of Bi2212 Based THz Emitters just below T_c* ”, Hidetoshi Minami, Naoki Orita, Takashi Koike, Takashi Yamamoto and Kazuo Kadowaki, *Physica C* (in press) (doi: 10.1016/j.physc.2010.01.016) (proceedings of the “*9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity, M2S-IX*”, held at Keio Plaza Hotel, Tokyo, Japan, September 7-12, 2009).

(4-2) 知財出願

CREST 研究期間累積件数(国内 3 件)