

平成 21 年 6 月 20 日現在

研究種目：基盤研究（A）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18204031
 研究課題名（和文） 超伝導固有ジョセフソン接合によるテラヘルツ波の発振と応用
 研究課題名（英文） THz Wave Generation by Means of Superconducting Intrinsic Josephson Junctions and Its Application
 研究代表者
 門脇 和男（KADOWAKI KAZUO）
 筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授
 研究者番号：00272170

研究成果の概要：

高温超伝導体は超伝導を担う平面的に配列した CuO_2 層が積層した結晶構造を持ち、面間は超伝導の結合が弱く、原子レベルで高密度に積層した多重ジョセフソン接合系を形成している。高品質単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ を育成し、 CuO_2 面に垂直に直流電流を流すことにより、強力で連続かつコヒーレントなテラヘルツ帯の電磁波を発生することに成功した。これはレーザー発振と同等であり、今後、基礎研究はもとより医療診断、セキュリティなど幅広い応用が期待される。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	28,700,000	8,610,000	37,310,000
2007年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
2008年度	2,300,000	690,000	2,990,000
年度			
年度			
総計	38,400,000	11,520,000	49,920,000

研究分野：超伝導実験

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：高温超伝導、固有ジョセフソン接合、テラヘルツ波、交流ジョセフソン効果、ジョセフソンレーザー、非線形発振

1. 研究開始当初の背景

高温超伝導体は2次元的に配列した CuO_2 原子面が超伝導を担い、それが多数積層した構造を持つが、 CuO_2 面間は伝導性が悪いため、超伝導弱接合の多重接合系を形成する。1992年、Kleiner等(R. Kleiner, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 2394)はこの超伝導 CuO_2 面間が原子層レベルで高密度に積層したジョセフソン接合として機能することを初めて明らかにして以来、原子レベルで形成された固有ジョセフソン接合の多重接合系の研究

が急速に進展し、大きな研究分野として大きく発展してきた。我が国においてもこの発見には若干の遅れはあったものの、直ちに重要性が認識された。1995年に至り、我々はこの様な固有ジョセフソン接合系で特有の超伝導プラズマ励起現象がマイクロ波領域の共鳴現象として観測できることを実験的に示した(Y. Matsuda, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 4512)、高温超伝導体の磁束状態の研究に利用することで磁場中の高温超伝導体の磁束液体状態や磁束固体状態などの

多様な磁束状態の解明を行ってきた(たとえば、Y. Matsuda, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 4512)。

このジョセフソンプラズマのエネルギーは層間結合が極めて弱いことを反映し、マイクロ波領域(1 meV=242 GHz)にある。一方、超伝導ギャップは高い超伝導転移温度を反映し $\sim 40\text{--}60$ meV と高く(通常の超伝導体の約10倍高い)、超伝導プラズマエネルギーは超伝導ギャップ内の底にあることになる。このため、エネルギー損失の機構が無いことから、安定に励起することができるので、鋭い共鳴として観測できるのである。このような超伝導プラズマ励起は通常の超伝導体では観測できない。なぜなら、この場合、超伝導プラズマエネルギーは $\sim eV$ 領域にあり、一方、超伝導エネルギーギャップは $\sim meV$ 程度であるので、従って、このような高エネルギー状態では超伝導電子は常伝導電子と同様に振る舞うから、ランダウ減衰などのエネルギー損失機構が強く働き、結局、励起幅が広がり、共鳴のような鋭い現象は観測できないことになる。高温超伝導体の場合とはエネルギーレベルが逆転しているのである。

超伝導ギャップはアンダーソン・ヒッグス・キップル(AHK)機構によるもので、その縦波は超伝導の南部・ゴールドストーンモードに対応している。元来、いかなる物質も相転移(今、2次の相転移を仮定する)に伴いその系が持つ対称性は破れる(あるいは復活する)。系の秩序がより高い状態は対称性が低く、秩序のより乱れた層は対称性が高い。この対称性が高い状態から低い状態へ移行すると、この相転移に伴いその系を特徴付ける秩序パラメーターがゼロから有限の値へ発達するが、その励起状態は基底状態にギャップが存在しない。これをゴールドストーンの定理という。この定理は相転移を引き起こす相互作用が電磁場である場合、クーロン相互作用が長距離相互作用であるという理由で例外的に起こり、励起状態は基底状態から不連続でギャップを伴う。南部・ゴールドストーンモードはこのギャップに相当する不連続性を持ち、これはジョセフソンプラズマの縦モード(ジョセフソンプラズマにはもう一つ、横モードが存在する)に他ならない。この縦モードに存在するギャップをジョセフソンプラズマ共鳴を用いて、縦モードと横モードを実験的に分離することで我々は初めて検証した(K. Kadowaki, *et al.*, Phys. Rev. **B56** (1997) 7617, I. Kakeya, *et al.*, Phys. Rev. **B57** (1998) 3108, K. Kadowaki, *et al.*, Europhys. Lett. **42** (1998) 203)。

このようなAHK機構によるギャップの発生は見方を変えれば超伝導体内では電磁場(フォトン場)は対称性の破れに伴い質量を獲得したことと同等であり、従って超伝導体内部

では電磁場は存在できないことになる。これがマクスナー効果の本質である。更に付け加えるなら、これは一般的に素粒子が質量を獲得する最も基本的な機構のモデルである。

高温超伝導体のジョセフソンプラズマ吸収現象はこの様な高周波マイクロ波領域での研究を通して鋭い共鳴現象として観測されるが、このことは一方で、超伝導プラズマ波を外部から与える電磁波で強制的に集団励起していることを意味している。もし、逆にこのような集団励起状態を何らかの方法で励起できるならその逆過程としてマイクロ波を発生できないだろうか?という着想に至った。従来の超伝導体のジョセフソン接合においては、単一接合であるが、これは交流ジョセフソン効果によって直流電流でマイクロ波を発生する技術が確立しているが、このような現象が固有ジョセフソン接合でも可能では無いだろうか。しかも、固有ジョセフソン接合の場合、超伝導層が原子レベルで多数接合しているから量子力学的な相乗効果が期待できる。この場合、放出される電磁波は層数 N の2乗に比例するはずであるから相当の出力が得られると考えられる。

このような着想で、多くの理論計算や実験が行われてたが成功しなかった(成功したと報告された例もある。たとえば、Bae *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 027002)。本研究の開始時点ではこの着想を磁場中でジョセフソン磁束を駆動することで発振させる計画を立案し、申請が採択された。

2. 研究の目的

研究開始直後から磁場中でのTHz波の検出のための装置開発に着手したが、装置の構造のデザインに問題が発生し、予定より半年ほど遅れた。この間に予備的実験の最中、2007年6月、我々はアンダードープの良質の高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の単結晶メサ構造に直流電流を流すことで強力なTHz帯域の電磁波を発振させることに成功した(L. Ozyuzer, *et al.*, Science **318** (2007) 11291, Kadowaki *et al.*, Physica **C468** (2008) 634)。完成間近の装置はこの実験に特化するよう再度、大幅に改造した。尚、この研究はアルゴンヌ国立研究所との共同研究である。

本研究の主題はこの強いTHz波の発振現象がどのような性質であるのかをまず明らかにし、その発振機構を解明し、さらにそれを応用するための基礎研究を行うことである。

3. 研究の方法

まず、実験方法について述べる。図2に測定系の概略と実験装置の写真を示す。測定系はヘリウムフロックライオスタットを中心に一方に直接、発振を検出するための検出器(Si ボロメーター)と、もう一方には THz

帯域の解析に特化した特殊分光器を用いて分光する方法をとった。この2系統を使い分けることで冷却過程での電気抵抗の温度依存性の測定から、電流-電圧測定、クライオスタットを回転させることによって放射強度の角度依存性など、迅速な実験が可能となる。

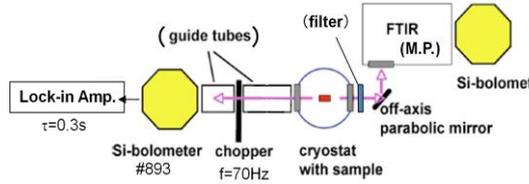


図2. 実験装置の配置図(上)と装置の写真(下)。

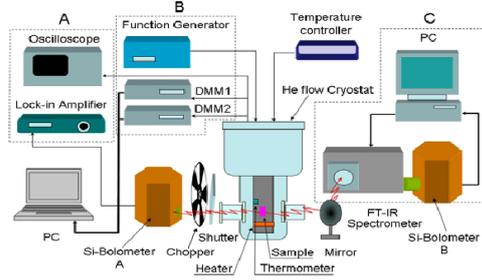


図3. 測定系のブロックダイアグラム



図4. 単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ から作成されたメサの写真。矩形メサ(左図:大きさは長さ $400\ \mu\text{m}$ 、幅 $80\ \mu\text{m}$ 、厚さ $1.14\ \mu\text{m}$)と円柱状メサ(右図:大きさは直径 $70\ \mu\text{m}$ 、厚さ $1.4\ \mu\text{m}$)

図3に測定系のブロックダイアグラムを(Kadowaki, *et al.*, Physica **C468** (2008) 634)、図4に代表的なメサ試料の写真を示す。

4. 研究成果

(1) THz波の特性

この様な超伝導固有ジョセフソン接合メサから放射されるTHz波の物理的な特の詳細を調べた。実験の結果、発振周波数 f がメサの幾何学的な形状(具体的には矩形メサの場合、狭い方の幅 w) により

$$f = \frac{c_0}{n\lambda} = \frac{c_0}{2nw}$$

で規定されていることが分かった。ここで c_0 は真空中での光速、 λ は波長、 n は媒質の屈折率である。この実験事実より、メサ自体が空洞共振器として動作していることがわかる。多くの矩形試料で測定した結果を図5に示す。この図で直線の傾きは超伝導媒質の屈折率を表し、約4.1~4.2であることが分かる。

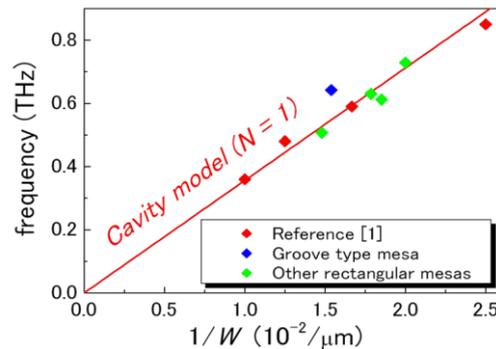


図5. 単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の矩形メサの場合発振周波数とメサ幅(狭い方)の関係

つぎに、メサの典型的な電流・電圧特性を図6に示す。この様に、臨界電流に達した後、一気に抵抗状態へ飛び、その後、強い負性抵抗を示す。これは過電流による接合の発熱が主な原因と考えられる。更にその状態から電流を下げると、大きなヒステリシス現象が見られる。このヒステリシス曲線上で電圧 V と周波数 f が条件

$$f = \frac{2eV}{h} = \frac{2e}{h} Nv$$

を満たすとき発振が起こる。ここで N は接合の総数、 v は各接合の電圧で $V=Nv$ 、 h はプランク定数である。

場合によっては同一メサで複数の発振が観測されることがあるが、周波数はどれも一定である。このことは周波数はメサの幅だけで決まり、積層数には依らないことを意味している。また、放射電磁波の出力は電圧が低いほど小さく、それはおよそ電圧の2乗に比例している。このことは放射強度は固有ジョセフソン接合の積層数の2乗に比例することを意味している。即ち、

$$P \propto n_{rel}^2$$

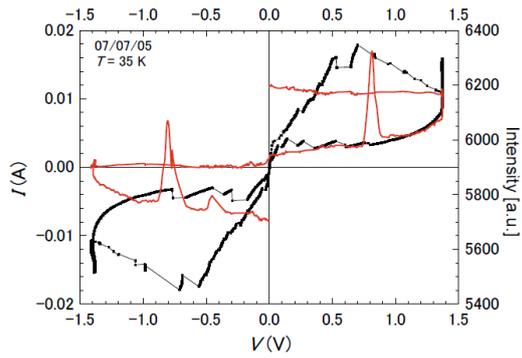


図6. 典型的な固有ジョセフソン接合のメサの電流-電圧特性（黒線）とSiボロメーターの出力（赤線）

が成り立つことを示している。このことは各超伝導層が量子力学的に共鳴同期し、コヒーレントに動作していることを暗示している。その例を図7に示す。

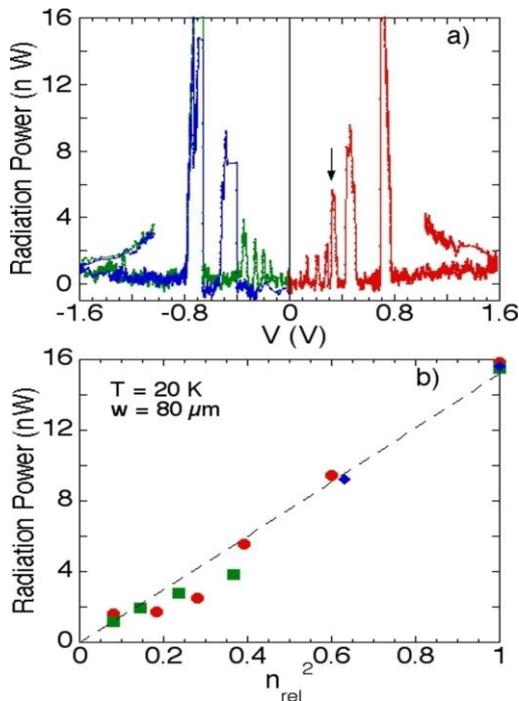


図7. 発振強度（Siボロメーターの出力）と印可電圧の関係（上）。発振出力と規格化されたジョセフソン接合数 n_{rel} の関係。

この様に、発振は上記の2つの条件が同時に成立した場合に限り起こる現象であることが理解できるが、どのような機構で発振が起こるのであろうか？これを解明するため、まず、メサ内部にどのような電磁波モードが発生しているかを実験的に調べるため、放射強度の異方性（指向性）を測定した。

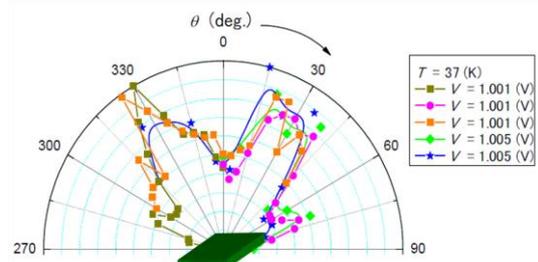


図8. 幅 $54.6 \mu\text{m}$ 、長さ $400 \mu\text{m}$ 、厚さ $1,7 \mu\text{m}$ の矩形メサの放射強度の角度 θ 依存性 (ϕ は 90° に固定)

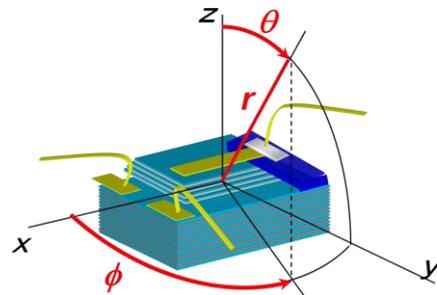


図9. 矩形メサの場合の座標軸の設定。

図8に、矩形メサの場合の測定例を示す。またその際の座標軸の取り方を図9に示す。これらの結果をまとめると次のような特徴が挙げられる（すべてを列挙できないが、詳細の一部は、K. Kadowaki, *et al*, *Physica C468* (2008) 634 を参照）。

- ①放射は主に yz 面内で起こり、天頂から約 $\pm 30^\circ$ 程度 xy 面方向へ傾いた方向で極大を示す（図5を参照せよ）。
- ②天頂方向 ($\theta=0^\circ$) では放射強度は極小となる（極大ではない）（図8を参照せよ）。
- ③ xy 面方向 ($\theta=90^\circ$) 方向は強度はほとんどゼロである（図8を参照せよ）。
- ④放射電磁波の電場は強く偏光しており、偏光方向は z 方向である。
- ⑤発振スペクトルはきわめて鋭く、分光器の分解能の限界ぎりぎりかそれを超えている。分光器の分解能は最大 0.25 cm^{-1} （周波数で 7.5 GHz ）であるから、スペクトル幅 $\Delta k/k = \Delta \nu/\nu$ は相対的に 10^{-2} 程度かそれより狭い。
- ⑥基本波 f_0 に対して高調波 (harmonics) nf_0 (n は整数) が観測される。分数低調波 (subharmonics) は観測されていない。

これらのことから、メサそれ自体は空洞共振器として機能し、内部の電磁波は特定の電磁波モードを形成しているように見える。そこでこれを確かめるため、ジョセフソン電流は一樣と仮定し電磁波放射のモデル計算を行った。その結果、矩形メサの場合、基本波

は短い方向の幅 w を基礎として $w=2\lambda$ であるような半波長モードで、電場が対称であるモードが主であると考えられる。ただし、この場合、 $\theta=0^\circ$ で放射強度がゼロにならないといけないが、実験結果は相当の強度が残っている。これを説明するためには対称モード以外に反対称モードを取り入れる必要がある。あるいは、非一様なジョセフソン電流を仮定しても良いかもしれない。いずれにしろ単純なモードではないことが分かる。

この様な測定を多くの違うサイズのメサで行い、更に詳細な検討を現在行っているところである。ごく最近、矩形以外の形状のメサでも発振が観測できるようになってきた。たとえば、円柱状メサ (図4を参照) や正方形メサなどである。更に、リング状メサも作成を検討している。

この様な実験を通してこの新しい現象である超伝導体からのコヒーレントな電磁波放射現象を解明しているところである。

(2) 高品質単結晶の重要性

最後に、高品質単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の育成の重要性について言及したい。

固有ジョセフソン接合を用いた THz 波の発振現象は発見されてからほぼ2年、論文が発表されてから1年半経過したが、我々と Wai -K. Kwok 博士のグループ (アルゴンヌ国立研究所) 以外の他の研究機関で発振が未だ実現できていない。知る限りでは世界的に、ドイツの Paul Müller 教授グループ (Nürnberg-Erlangen 大学)、ドイツの Reinhold Kleiner 教授グループ (Tübingen 大学)、スウェーデンの August Yurgens 教授グループ (Chalmers 工科大学)、英国の Paul Warburton 博士のグループ (University College of London)、英国の Marat Gaifullin 博士グループ (Loughborough 大学)、韓国の Hu Jong Lee 教授グループ (Pohang 工科大学)、国内では Haubing Wang 博士のグループ (物質・材料研究機構)、中嶋健介教授グループ (山形大学) などが精力的に研究を実施しているが、直接 THz の発振を検出できていない。この理由は現状では明らかではないが、Wai -K. Kwok 博士のグループは我々の単結晶を用いて発振していることを考えると、発振の有無は我々の結晶に原因がある可能性が高い。我々の結晶のどのような点が発振につながるのか明らかではないが、結晶の不完全性、たとえば欠陥層などがあれば発振は阻害されると考えられるので、おそらく、この様な欠陥が我々の結晶の場合、含まれていないのではないかと想像できる。この様な推測の根拠は、我々の単結晶育成技術で作成した場合、欠陥層の含まれる確率は $10^{-3}\sim 10^{-4}$ 程度であることが多数の高分解能電子顕微鏡観察によって知られている。即ち、メサの厚さが約

1 μm 強であれば、約 700~1000 層の CuO_2 層 (2重層) が含まれ、確率的ではあるが全く欠陥を含まないメサが十分確保できることになる。一方、多少、質の悪い結晶では容易に1桁から2桁欠陥数が増加することも高分解能電子顕微鏡の観察から知られている。もし、欠陥の含有率が1%レベルであれば約1000層に渡って欠陥を含まないメサを確保することは極めて困難となることは容易に予想できることである。

このように、本研究は高品質単結晶の存在が新しい現象の発見に繋がり、新しい材料研究を創造する基礎となっていることを実証した好例となっていると考えられる。このように、材料科学では常に「新しい材料」が新しい分野の突破口となる。今後、THz 波の応用が盛んになることは確実であり、その際、デバイスなどの開発にはどうしても薄膜が必要不可欠となるから、高品質の薄膜成長技術の開発も視野に研究を進める必要がある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計31件) 全て査読有

1. 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).
2. H. Matsumoto, T. Koyama, M. Machida and K. Kadowaki, "THz Wave Emission from the Intrinsic Josephson Junctions of High- T_c Superconductors", "Proceedings of the 25th International Conference on Low Temperature Conference", held in Amsterdam, The Netherlands, August 6th - 13th, 2009, J. Phys. Conf. Ser. **150** (March 31st, 2009) 052156(1-4).
3. 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.
4. 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.
5. A. Yurgens, M. Torstensson, L. X. You, T. Bauch, D. Winkler, I. Kakeya and K. Kadowaki, "Small-Number Arrays of Intrinsic Josephson Junctions", Physica **C468** (April 1st, 2008)

674-678.

6. L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, C. Kurter, N. Gopalsami, Q. Li, M. Tachiki, K. Kadowaki, T. Yamamoto, H. Minami, H. Yamaguchi, T. Tachiki, K. E. Gray, W. -K. Kwok, and U. Welp, "Emission of Coherent THz Radiation from Superconductors", Science **318** (Nov. 23rd, 2007) 1291-1293.

[学会発表] (計52件)

1. 「Bi₂212 固有ジョセフソン接合系のテラヘルツ発振特性」、南 英俊、折田尚樹、小池 隆、門脇和男、日本物理学会第64回年次大会(立教大学、立教池袋中学・高校)、2009年3月30日、領域8(30pTA-1)にて口頭発表、日本物理学会講演概要集第64巻第1号第3分冊、p659。
2. 「Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+x}単結晶メサによるテラヘルツ波発振の形状効果II」、辻本 学、八巻和宏、山口勇人、山本 卓、南 英俊、南 英俊、門脇和男、日本物理学会第64回年次大会(立教大学、立教池袋中学・高校)、2009年3月30日、領域8(30pTA-4)にて口頭発表、日本物理学会講演概要集第64巻第1号第3分冊、p659。
3. "Temperature and Field Dependence of the Emission of Terahertz Waves from Intrinsic Josephson Junctions", Ulrich Welp, Alexei Koshelev, Lutfi Ozyuzer, Cihan Kurter, Masashi Tachiki, Kazuo Kadowaki, Takashi Yamamoto and Wai -K. Kwok, APS(American Physical Society) March Meeting, held at Pittsburgh, USA, March 16-20, 2009, given by oral presentation, Session D34-1, Program & Show Guide, p183.
4. "Angular Dependence of the Radiation Power of a Josephson STAR-emitter", Richard Klemm and K. Kadowaki, APS(American Physical Society) March Meeting, held in Pittsburgh, USA, March 16-20, 2009, given by oral presentation, Session D34-3, Program & Show Guide, p183.
5. "Direct Observation of THz Radiation from Cylindrical Structure of Intrinsic Josephson Junction System of Bi2212", M. Tsujimoto, T. Yamamoto, H. Minami, K. Kadowaki, M. Tachiki, U. Welp and W. -K. Kwok, APS(American Physical Society) March Meeting, held at Pittsburgh, USA, March 16-20, 2009, given by oral presentation, Session D34-6, Program & Show Guide, p183.
6. 「Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+x}単結晶メサによるテラヘルツ波発振の形状効果」、辻本学、八巻和宏、山口勇人、山本卓、南英俊、掛谷一弘、門脇和男、日本物理学会2008年秋季大会(岩手大学上田キャンパス)、2008年9月23日、領域8(23aQE-5)にて口頭発表、日本物理学会講演概要集第63巻第2号第3分冊、p571。

7. 「多層固有ジョセフソン接合系におけるTHz電磁波の放射強度と放射率について」、門脇和男、Richard Klemm、八巻和宏、辻本学、南英俊、日本物理学会2008年秋季大会(岩手大学上田キャンパス)、2008年9月23日、領域8(23aQE-6)にて口頭発表、日本物理学会講演概要集第63巻第2号第3分冊、p571。
8. 「矩形型Bi2212単結晶メサを用いたテラヘルツ波発振の角度依存性」、八巻和宏、辻本学、山口勇人、山本卓、南英俊、掛谷一弘、門脇和男、日本物理学会2008年秋季大会(岩手大学上田キャンパス)、2008年9月20日、領域8(23aQE-3)にて口頭発表、日本物理学会講演概要集第63巻第2号第3分冊、p570。

[産業財産権]

○出願状況(計3件)

1. 出願人：国立大学法人筑波大学
出願番号：特願2008-066110
出願日：平成20年3月14日
発明者：門脇和男、掛谷一弘、南英俊、山本卓、山口勇人
発明の名称：指向性を有するテラヘルツ帯域電磁波発振装置
国内
2. 出願人：国立大学法人筑波大学
出願番号：特願2008-066111
出願日：平成20年3月14日
発明者：門脇和男、掛谷一弘、南英俊、山本卓、山口勇人
発明の名称：高次高調波を利用するテラヘルツ帯域電磁波発信装置
国内
3. 出願人：国立大学法人筑波大学
出願番号：特願2007-204489
出願日：平成19年8月6日
発明者：門脇和男、掛谷一弘、南英俊、
発明の名称：テラヘルツ帯電磁波発信装置
およびその製造方法
国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

門脇和男(KADOWAKI KAZUO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授
研究者番号：00272170

(2)研究分担者

掛谷一弘(KAKEYA ITSUHIRO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師
研究者番号：80302389

小久保 伸人(KOKUBO NOBUHITO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師
研究者番号：80372340