

メサ断面形状を制御した  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  テラヘルツ発振素子の作製と評価  
—特性分布を持つ固有ジョセフソン接合列の同期と MSA モデルの検証—

桑野 玄気

2022年2月

筑波大学大学院博士課程

数理物質科学研究科博士論文

博士（工学）

メサ断面形状を制御した  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  テラヘルツ発振素子の作製と評価  
—特性分布を持つ固有ジョセフソン接合列の同期と MSA モデルの検証—

桑野 玄気

物性・分子工学専攻

# 目次

序論	3
<b>第 1 章 研究背景</b>	<b>4</b>
1-1 ジョセフソン接合	4
1-1-1 ジョセフソン効果とジョセフソン接合の電流電圧特性	4
1-1-2 RCSJ モデル	4
1-1-3 ジョセフソンプラズマ波の分散関係	5
1-2 銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$	8
1-2-1 固有ジョセフソン接合	8
1-2-2 層間相互作用	8
1-2-3 磁場侵入長の温度依存性	8
1-3 Bi-2212 テラヘルツ発振素子	10
1-3-1 固有接合列の位相同期	10
1-3-2 典型的な発振特性	10
1-3-3 高バイアス域の特徴	12
1-3-4 低バイアス域の周波数可変性とメサ断面形状が位相同期に与える影響	14
1-3-5 排熱効率改善による周波数可変域の拡大と最大出力の向上	18
1-3-6 Bi-2212 テラヘルツ発振素子からの円偏波発生	20
1-3-7 特殊な電磁定在モード	21
<b>第 2 章 研究目的</b>	<b>23</b>
2-1 固有接合列の特性分布幅に対する出力変化の検証	23
2-2 メサ断面形状が周波数可変性能に与える影響調査	23
2-3 メサ内部の電磁定在波の性質調査	24
<b>第 3 章 素子作製手法及び特性分布パラメータの導入</b>	<b>25</b>
3-1 メサ作製技術	25
3-1-1 UV リソグラフィとアルゴンイオンミリング法	25
3-1-2 メタルマスクとアルゴンイオンミリング法	25
3-1-3 集束イオンビーム法	25
3-1-4 UV リソグラフィと反応性イオンエッチング法	25
3-2 メサ断面形状制御手法	26
3-2-1 ノボラック型レジストの焦点深度依存性	26
3-2-2 化学増幅型レジスト	26
3-2-3 ノボラック型レジストと化学増幅型レジストの併用	27
3-3 電極作製方法	27
3-4 特性分布パラメータ	28
<b>第 4 章 測定系</b>	<b>32</b>
4-1 素子の冷却方法	32
4-2 シリコンボロメータ	34
4-3 スプリットミラー型干渉計	34
4-4 出力感度の校正	34

<b>第 5 章 特性分布幅をもつ固有接合列の同期の検証①</b> .....	39
5-1 テラヘルツ波放射の促進と抑制 .....	39
5-1-1 素子 1 と 1S の断面形状パラメータと超伝導転移温度 .....	39
5-1-2 素子 1 と 1S の放射特性 .....	39
5-2 $\gamma \sim 10\%$ のメサからの高バイアス域放射 .....	43
5-2-1 素子 2 の断面形状パラメータと超伝導転移温度 .....	43
5-2-2 素子 2 の放射特性 .....	43
5-3 素子 3 : $\gamma = 6.9\%$ のメサからの低バイアス域放射 .....	46
5-3-1 素子 3 の断面形状パラメータと超伝導転移温度 .....	46
5-3-2 素子 3 の放射特性 .....	46
<b>第 6 章 特性分布幅をもつ固有接合列の同期の検証②</b> .....	49
6-1 高熱伝導エポキシ樹脂の導入 .....	49
6-1-1 高熱伝導エポキシ樹脂の効果 .....	49
6-2 低バイアス域の放射閾値 .....	53
6-2-1 素子 4 の断面形状パラメータと超伝導転移温度 .....	53
6-2-2 素子 4 の放射特性 .....	53
6-3 特性分布幅に対する最大出力の変化量 .....	56
6-3-1 素子 5 の断面形状パラメータと超伝導転移温度 .....	56
6-3-2 素子 5 の放射特性 .....	56
6-3-3 素子 4 と素子 5 の最大出力 .....	56
6-4 特性分布幅と周波数可変性 .....	60
6-4-1 素子 5 の周波数可変範囲 .....	60
6-4-2 素子 6 の断面形状パラメータと超伝導転移温度 .....	63
6-4-3 素子 6 の出力特性 .....	63
6-4-4 素子 6 の周波数可変性 .....	63
6-5 発振周波数の熱浴温度依存性 .....	70
6-6 蔵本モデルを使った考察 .....	73
6-6-1 蔵本モデル .....	73
6-6-2 秩序パラメータの計算 .....	73
6-6-3 実験結果と計算結果の比較 .....	74
<b>第 7 章 MSA モデルの検証</b> .....	77
7-1 検証方法：メサ側壁金属パッチによる境界制御 .....	77
7-2 金属パッチによる周波数への影響 .....	77
7-3 金属パッチによる電磁遮蔽効果 .....	81
7-4 金属パッチの影響を受けない頑健な発振状態の実現 .....	84
<b>第 8 章 まとめ</b> .....	85
8-1 本研究で新規に導入した手法及び得られた実験結果 .....	85
8-2 結論 .....	86
<b>謝辞</b> .....	87
<b>参考文献</b> .....	89

## 序論

近年、マイクロ波と赤外線の中間の周波数に位置するテラヘルツ波（0.1–10 THz の電磁波）を使った技術が注目されている。テラヘルツ波は適度な物質透過性を持つことから、X 線よりもコントラストを明確に区別したイメージングへの利用が期待されている。また、Beyond 5G の実現に向けて、0.3 THz 以上の帯域を用いた高速無線通信も想定されている。さらに、最近では単一分子テラヘルツ分光[1]なども実現できるようになっている。テラヘルツ技術の成熟は様々な分野の技術発展を促進すると期待できるため、小型で利便性の高いテラヘルツ光源の開発が進められている。

代表的な半導体テラヘルツ光源として、量子カスケードレーザー（QCL）が挙げられる。QCL は冷却することにより、実用指標とされる 1 mW の出力を 2 THz 以上の周波数で達成できる。近年では、室温で高強度な放射を実現するため、差周波発生 QCL[2]の開発が進められている。QCL の他に、共鳴トンネルダイオード（RTD）発振器[3]が挙げられる。RTD 発振器は 1 THz 以下の周波数領域で、サブミリワットの出力を室温で達成できる。このように、半導体を主とするテラヘルツ光源の発展により、比較的自由にテラヘルツ波を取りまわせるようになってきた。しかしながら、1 THz 近傍で高強度な放射を達成することが困難であることや、周波数可変領域を拡大する必要があるなど、半導体光源が不得意とする周波数領域や性能がある。そこで著者は、半導体光源とは異なる切り口として、銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ （Bi-2212）テラヘルツ発振素子の基礎研究に取り組んでいる。超伝導体テラヘルツ光源の高性能化・安定化に貢献することで、半導体光源と相補的にテラヘルツ技術の発展に寄与することが目標である。

著者は、Bi-2212 テラヘルツ発振素子の限界性能を知るために、基礎的な性質を深掘することが重要と考えている。そこで本研究では Bi-2212 単結晶が内包する固有ジョセフソン接合列の特性分布を意図的に制御することで、強力なテラヘルツ波放射の引き金と理解されている固有ジョセフソン接合列の同期現象について調べた。また、固有ジョセフソン接合列に励起される電磁定在波の性質を調査することで、Bi-2212 テラヘルツ発振素子と、それを最も単純化したモデルとして知られるマイクロストリップアンテナ（Microstrip Antenna: MSA）との比較を行った。

本論文は全 8 章で構成されている。第 1 章で研究背景となる Bi-2212 テラヘルツ発振素子の特性について記述する。第 2 章で著者の研究目的とその意義について述べる。第 3 章では素子の作製方法について示す。第 4 章では測定系について記述する。第 5 章と 6 章で、固有ジョセフソン接合列の特性分布幅がテラヘルツ波放射特性に与える効果について示す。第 7 章で Bi-2212 テラヘルツ発振素子と MSA を比較した結果について述べる。最後に第 8 章で全体のまとめを記述する。

## 第1章 研究背景

### 1-1 ジョセフソン接合

#### 1-1-1 ジョセフソン効果とジョセフソン接合の電流電圧特性

図 1-1(a)に示すように、2つの超伝導体を薄い（数 nm 程度の）絶縁層を介して結合させると、超伝導体の巨視的波動関数の位相差に応じて超伝導トンネル電流 $I_s$ が流れる。この現象はジョセフソン効果[4]と呼ばれ、次式で表される。

$$I_s = I_c \sin \phi \quad (1)$$

$$V = \frac{\hbar}{2e} \frac{d\phi}{dt} \quad (2)$$

ここで、 $I_c$ は超伝導体の臨界電流、 $\phi$ は2つの超伝導体の巨視的波動関数の位相差、 $V$ は超伝導体間の電位差、 $\hbar$ はディラック定数、 $e$ は素電荷である。ジョセフソン効果が生じる接合系はジョセフソン接合と呼ばれ、ニオブを使った接合（Nb/AlOx/Nb）などがよく知られている。

ジョセフソン接合は、図 1-1(b)の①–⑤に示すように、ヒステリシスを伴う非線形な電流電圧特性（ $I$ - $V$ 特性）を示す。ヒステリシスの大きさは次節で説明するダンピング特性に依存する。以下に履歴特性を順に説明する。

- ① 式(1)で臨界電流 $I_c$ （位相差が $\phi/2$ ）に至るまで接合に直流電圧は発生しない（ゼロ電圧状態）。
- ② 臨界電流に達すると突如有限の電圧状態にスイッチする（有限電圧状態）。これは、超伝導ギャップエネルギー（ $\Delta$ ）以上のエネルギーを獲得した超伝導電子対が2つの準粒子に分離し、絶縁層をトンネルすることを意味する。 $dI/dV$ が大きいことは、 $\Delta$ 近傍で準粒子の状態密度が発散することを反映している。
- ③ 準粒子の状態密度が減るため、 $dI/dV$ は②と比べて小さくなる。
- ④ 有限電圧状態から電流を減少させると、 $\Delta$ に対応する電圧付近で熱励起された準粒子の一部がトンネルする（準粒子のリトラッピング）。
- ⑤ ゼロ電圧状態へ戻る際に生じる電流は、熱励起された準粒子の寄与に相当する。

式(1)と(2)から分かるように、有限電圧状態では電圧 $V$ に比例した電子対の交流電流が発生する。その周波数は次式で表される。

$$f_J = \left(\frac{2e}{h}\right)V \quad (3)$$

ここで $h$ はプランク定数である。交流電流の発生は電磁波を誘発するため、ジョセフソン接合は電磁波発生源として使うことができる。

#### 1-1-2 RCSJ モデル

ジョセフソン接合の非線形な $I$ - $V$ 特性を記述するモデルとして RCSJ（Resistively and Capacitively Shunted Junction）モデルが知られている。このモデルでは、図 1-1(c)に示すように、超伝導トンネル電流成分に加えて、静電容量 $C$ のキャパシタンス、抵抗 $R$ の抵抗器が並列接続した回路とみなす。ここで回路の電流保存則は次式で表される。

$$I = I_c \sin \phi + \frac{V}{R} + C \frac{dV}{dt} \quad (4)$$

式(4)に式(2)を代入すれば次式が得られる.

$$\left(\frac{h}{2e}\right)^2 C \frac{d^2\phi}{dt^2} + \left(\frac{h}{2e}\right)^2 \frac{1}{R} \frac{d\phi}{dt} = -\frac{hI_c}{2e} \left(\sin\phi - \frac{I}{I_c}\right) \quad (5)$$

式(5)の右辺を変形すると次式となる.

$$\left(\frac{h}{2e}\right)^2 C \frac{d^2\phi}{dt^2} + \left(\frac{h}{2e}\right)^2 \frac{1}{R} \frac{d\phi}{dt} = \frac{d}{d\phi} \frac{hI_c}{2e} \left(\cos\phi + \frac{I}{I_c}\phi\right) \quad (6)$$

式(6)は, 式(7)に示すようにダンピング $r$ を受けながらポテンシャル中を運動する質量 $M$ の粒子の運動方程式と等価である.

$$M \frac{d^2x}{dt^2} + r \frac{dx}{dt} = -\frac{d}{dx} U(x) \quad (7)$$

式(6)と式(7)を比較すると次の対応関係が得られる.

$$M = \left(\frac{h}{2e}\right)^2 C \quad (8)$$

$$r = \left(\frac{h}{2e}\right)^2 \frac{1}{R} \quad (9)$$

$$U = -\frac{hI_c}{2e} \left(\cos\phi + \frac{I}{I_c}\phi\right) \quad (10)$$

式(10)は, 図 1-1(d)に示す洗濯板ポテンシャル (washboard potential) を意味し, 電流 $I$ はポテンシャルの傾きに相当する. ここで $r$ が小さく $M$ が大きい場合, 粒子がポテンシャル中を脱出した後, ポテンシャルの傾きを小さくしても, 慣性によって粒子の運動は止まらない. これが有限電圧状態へのスイッチング後, ヒステリシスを描くことに対応する.  $I$ - $V$ 特性にヒステリシスが生じる接合は, 粒子の運動との類推から不足減衰 (アンダーダンプト) の接合と呼ばれる.

### 1-1-3 ジョセフソンプラズマ波の分散関係

ジョセフソン接合では, 超伝導トンネル電流 (ジョセフソン電流) と電磁波の結合波であるジョセフソンプラズマ波が絶縁層を伝搬する. その分散関係は, ジョセフソンの関係式とマクスウェル方程式から求められる. 図 1-2 に示すように直流電圧 $V_0$ , 磁場 $B = (0, B_y(x, t), 0)$ が接合に存在する場合を考える. このとき位相差 $\phi$ は次式で表される.

$$\frac{d\phi(x, t)}{dx} = \frac{2e}{\hbar} (2\lambda_L + d) B_y(x, t) \quad (11)$$

ここで $\lambda_L$ は磁場侵入長,  $d$ は絶縁層の厚さである. 一方,  $E_z$ を絶縁層間の電場とすれば, 磁場 $B_y$ はマクスウェル方程式より以下の式で表現できる.

$$\frac{dB_y(x, t)}{dt} = \frac{4\pi}{c} J_z(x, t) + \frac{\varepsilon}{c} \frac{dE_z(x, t)}{dt} \quad (12)$$

ここで $c$ は光速,  $\varepsilon$ は絶縁層の誘電率,  $J_z(x, t)$ は接合を流れる電流である. 準粒子電気伝導率を $\sigma$ とすれば,  $J_z(x, t)$ は次式で表される.

$$J_z(x, t) = J_c \sin\phi(x, t) + \sigma \frac{V_0}{d} \quad (13)$$

式(2), (11), (12), (13)より以下の位相方程式が得られる.

$$\frac{d^2\phi(x, t)}{dx^2} - \frac{1}{\bar{c}^2} \frac{d^2\phi(x, t)}{dt^2} - \frac{\beta}{\bar{c}^2} \frac{d\phi(x, t)}{dx} = \frac{1}{\lambda_J^2} \sin\phi(x, t) \quad (14)$$

ここで  $\lambda_J = \sqrt{\hbar c / 8\pi^2 e(d + 2\lambda_L) J_c}$ ,  $\bar{c} = c / \sqrt{\varepsilon(1 + 2\lambda_L/d)}$ ,  $\beta = 4\pi\sigma/\varepsilon$  である。式(14)の表式はサイン・ゴールドン方程式と同じ形を持つ。次に分散関係を得るために、電磁波とは関係のない準粒子の項を消去する。また位相差が微小振動しているとすれば式(14)は次の方程式に帰着する。

$$\frac{d^2\phi(x, t)}{dx^2} - \frac{1}{\bar{c}^2} \frac{d^2\phi(x, t)}{dt^2} - \frac{1}{\lambda_J^2} \phi(x, t) = 0 \quad (15)$$

方程式の解を  $\phi(x, t) = \exp(-i[kx - \omega t])$  として式(15)代入すると分散関係  $\omega^2 = \bar{c}^2 k^2 + \omega_J^2$  が得られる。ここで、 $\omega_J^2 = 4\pi^2 \bar{c}^2 / \lambda_J^2$  である。 $\omega_J$  はジョセフソンプラズマ振動と呼ばれる。



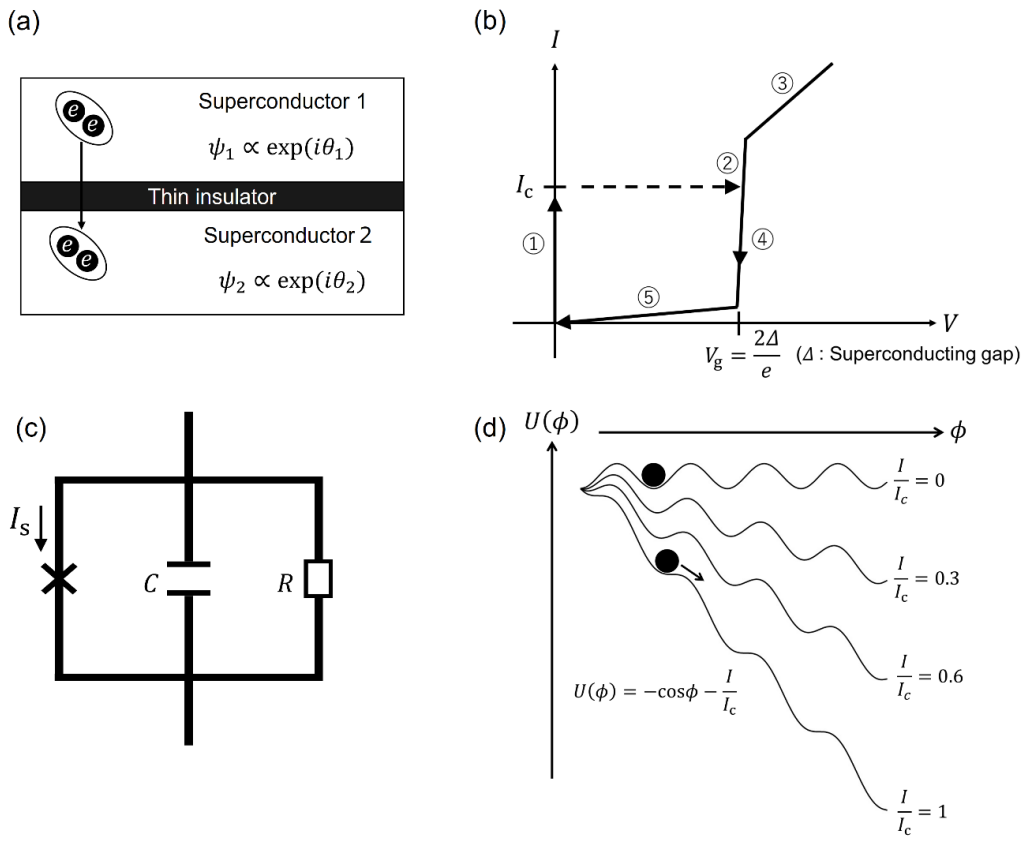


図 1-1 : (a)ジョセフソン接合. (b)  $I$ - $V$ 特性. (c) RCSJモデル. (d)洗濯板ポテンシャル.

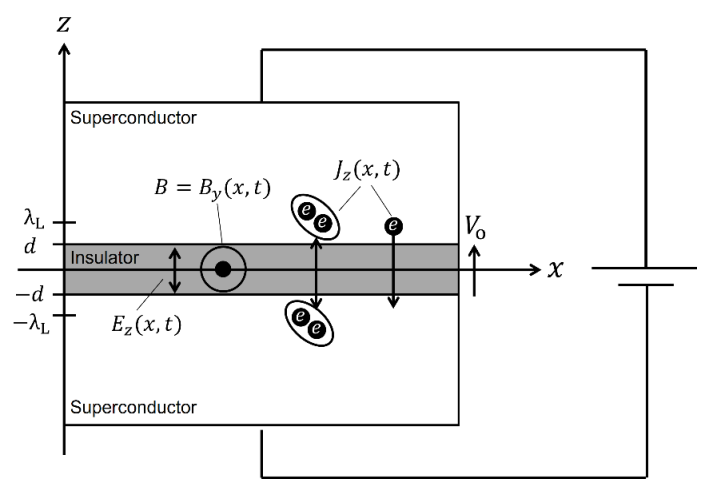


図 1-2 : ジョセフソン接合内のパラメータ定義.

## 1-2 銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$

### 1-2-1 固有ジョセフソン接合

銅酸化物高温超伝導体 Bi-2212 は 1986 年に発見された物質で、最大 93 K の高い超伝導転移温度を持つことから、高温超伝導の発現機構の解明や線材への利用を目指した研究が積極的に行われている。図 1-3(a)は Bi-2212 の結晶構造を示す。結晶構造は VESTA[5]で描画した。Bi-2212 は超伝導層と絶縁層が交互に積み重なった積層構造を有する。これはすべての銅酸化物高温超伝導体に共通して見られる特徴である。驚くべきことに、Bi-2212 の場合、結晶構造そのものを多重積層したジョセフソン接合列とみなすことができる[6]。この接合は、ニオブなどを使った金属系ジョセフソン接合と区別され、固有ジョセフソン接合と呼ばれる。以降、固有ジョセフソン接合のことを固有接合と呼ぶことにする。固有接合の数は結晶の格子定数から求めることができ、厚さ  $1\ \mu\text{m}$  あたり 667 枚に及ぶ。固有接合列の特徴として図 1-3(b)に示す多重ブランチ構造が知られている[6]。最も外側の曲線は全接合が有限電圧状態となっている。一方、内部領域では、固有接合列の一部が有限電圧状態でそれ以外がゼロ電圧状態である。

### 1-2-2 層間相互作用

固有接合の超伝導層の厚みは電荷遮蔽長  $\mu$  と同程度のため、図 1-4(a)に示すように、超伝導電子対の移動によって電荷中性則が動的に破れうるということが理論研究で示されている[7]。さらに、面内磁場侵入長  $\lambda_{ab}$  が超伝導層に比べて大きいと、図 1-4(b)に示すように、面内電流によって発生する磁場が隣接する絶縁層まで影響を及ぼすことも予測されている[8]。これらの層間結合はそれぞれキャパシティブ結合、インダクティブ結合と呼ばれる。固有接合列では層間相互作用を取り入れた以下の位相方程式が提案されている[8]。

$$(1 - \alpha\Delta_d) \frac{d^2\phi_l(x, t)}{dx^2} = \frac{1}{\lambda_c} (1 - \zeta\Delta_d) \left[ (1 - \alpha\Delta_d) \sin\phi_l(x, t) + \frac{\lambda_c^2 \varepsilon}{c_0^2} \frac{d^2\phi_l(x, t)}{dt^2} - \frac{4\pi\lambda_c^2}{c_0^2} \frac{d\phi(x, t)}{dt} \right] \quad (16)$$

$$\alpha = \frac{\varepsilon\mu^2}{s^2} \quad (17)$$

$$\zeta = \frac{\lambda_{ab}^2}{s^2} \quad (18)$$

$$\Delta_d\phi_l = \phi_{l+1} + \phi_{l-1} - 2\phi_l \quad (19)$$

ここで、 $\alpha$  がキャパシティブ結合、 $\zeta$  がインダクティブ結合に対応する。相互作用の項が無い場合、式(16)は式(14)と同じになる。また、固有接合列には、【1-1-3】で示したジョセフソンプラズマ波（横ジョセフソンプラズマ波）に加えて、 $c$  軸方向へ伝搬する電荷密度波（縦ジョセフソンプラズマ波）が存在する[8]。

### 1-2-3 磁場侵入長の温度依存性

面内の磁場侵入長  $\lambda_{ab}$  は温度によって変化する。詳細を割愛するが、高温超伝導の発現機構を調べるため、磁場侵入長の温度依存性が精力的に調べられたことがある。図 1-5 は Lee らによる実験結果[9]を示す。図から分かるように、 $\lambda_{ab}$  は低温で直線的に温度変化し、超伝導転移温度に近づくと指数関数的に大きくなる。 $\lambda_{ab}$  の超伝導転移温度（キャリア濃度）依存性は第 6 章【6-5】で示す。

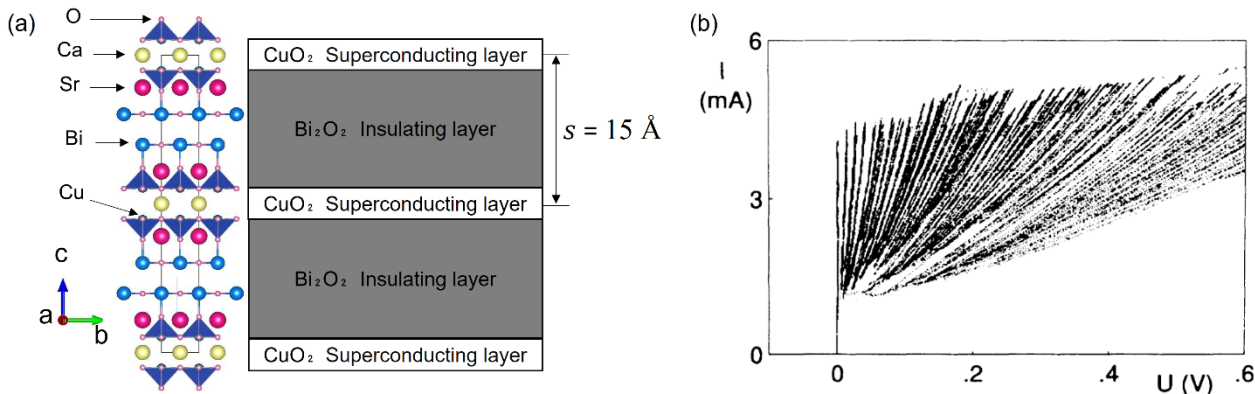


図 1-3 : (a) Bi-2212 の結晶構造. (b) c 軸の  $I$ - $V$  特性. 文献[6]から転載.

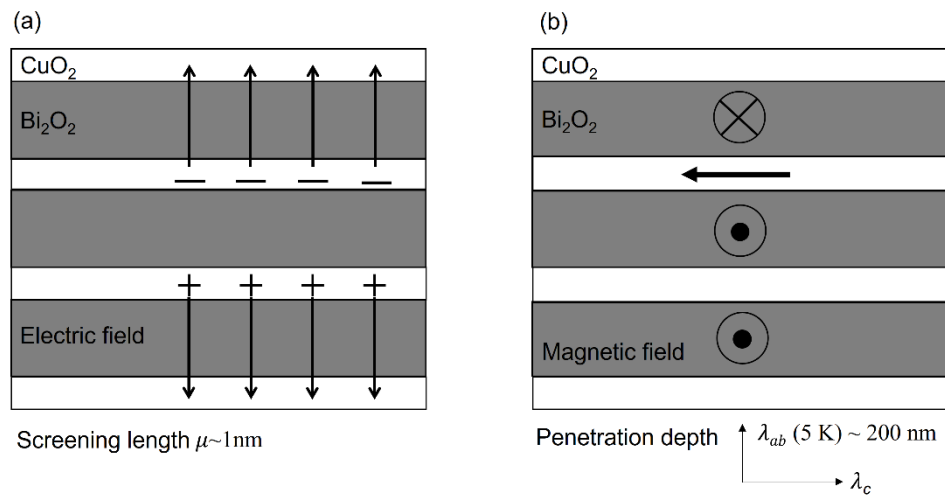


図 1-4 : (a) キャパシティブ結合. 電荷偏極により生じた電場が遮蔽されずに隣接層に侵入する.  
 (b) インダクティブ結合. 面内電流によって発生した磁場が隣接層に侵入する.

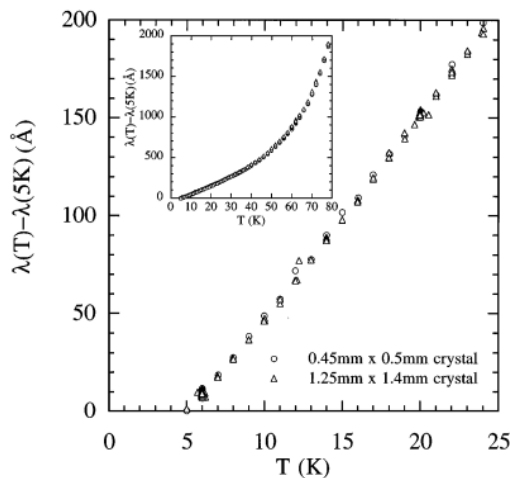


図 1-5 :  $\lambda_{ab}$  の温度依存性. 文献[9]より転載.

## 1-3 Bi-2212 テラヘルツ発振素子

### 1-3-1 固有接合列の位相同期

Bi-2212 は固有接合を原子スケールで内包するため、大多数かつ均一な特性の固有接合を比較的容易に入手できる。また、超伝導転移温度が比較的大きいため、原理的にはテラヘルツ帯の発振が可能である。しかしながら、各接合に励起される振動電流の位相が異なるため、強力なテラヘルツ波の放射を得るためには、振動電流の位相同期を達成する必要がある。一般に放射される電磁波の出力を $P$ 、位相同期した接合の数を $N_s$ とすると以下の関係が知られている。

$$P \propto N_s^2 \quad (20)$$

従来の金属系ジョセフソン接合単層の出力はおおよそ数ピコワットと推定されているため、例えばマイクロワット級の出力を得るためには、700枚の完全な位相同期が必要となる。この位相同期の実現が困難であったため、1994年に固有接合が発見されてから2006年に至るまで、数ピコワットの出力が報告されるのみであった[10]。

そのような中、図1-6(a)に示すBi-2212メサ構造を、テラヘルツ波の波長サイズにすることで、推定積分強度 $\sim 0.5 \mu\text{W}$ の出力が達成された[11]。文献[10]と比較して、4-5桁の出力向上が見られたことや、出力が電圧状態の接合数の二乗に比例したことから、位相同期が達成されたと理解されている。重要な特徴として、図1-6(b)に示すように、放射されるテラヘルツ波の周波数はメサ幅 $w$ に反比例する。これはメサ側面が共振器として機能していることを意味する。現状、共振効果が位相同期を促進したと理解されている[11][12]。

### 1-3-2 典型的な発振特性

Bi-2212 テラヘルツ発振素子の典型的な特性を文献[13]の実験結果をもとに説明する。図1-7(a)と(b)は熱浴温度20 K及び45 Kにおいて、 $80 \times 400 \times 1.1 \mu\text{m}^3$ のメサから得られた $I$ - $V$ 特性と検出器の応答を示す。図1-7(a)から分かるように、有限電圧状態への移行後、おおきな負性抵抗を示す。これはBi-2212の低い熱伝導率に起因した素子の実効的な温度上昇を反映している[14][15]。また、熱浴温度の増加に伴って超伝導ギャップエネルギー $\Delta$ が減少するため、図1-7(b)に示すように最大到達電圧が減少する。

図1-7(a)を見ると、 $I = 44\text{--}52 \text{ mA}$ で放射が起こっていることが分かる。このバイアス域は高バイアス域と呼ばれ、メサの局所温度が超伝導転移温度 $T_c$ を越えていることが多く[16][17][18]、 $T_c$ 以上の領域はホットスポットと呼ばれる。一方で、図1-7(b)は $I = 10\text{--}20 \text{ mA}$ で放射が起こっていることを示す。このバイアス域は低バイアス域と呼ばれ、メサの温度分布が比較的均一に近いバイアス域として知られている。

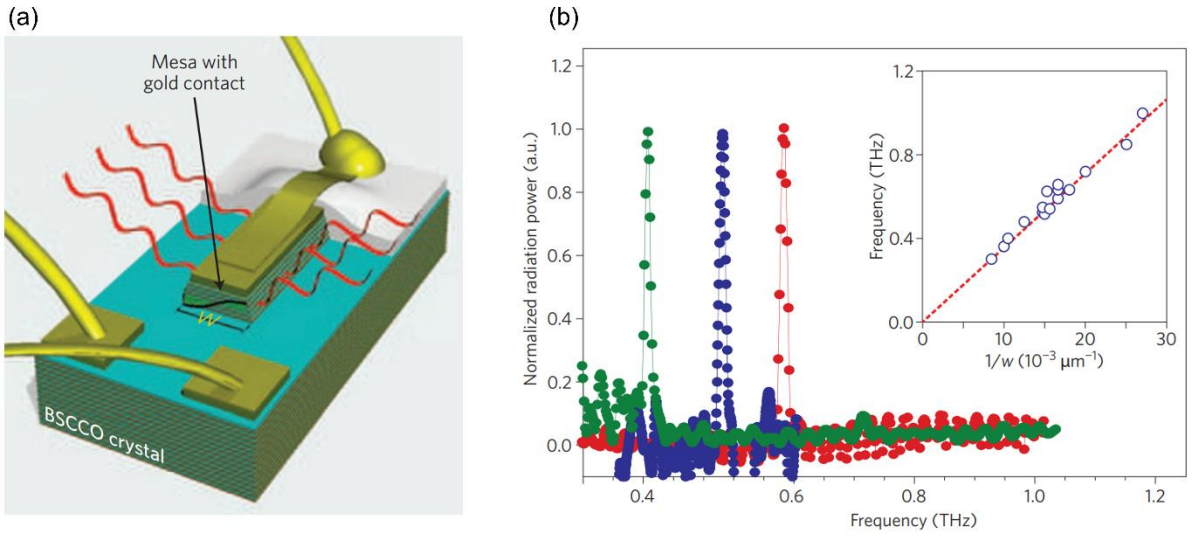


図 1-6 : (a) Bi-2212 メサ. (b)異なる幅のメサから得られたスペクトル. 文献[12]から転載.

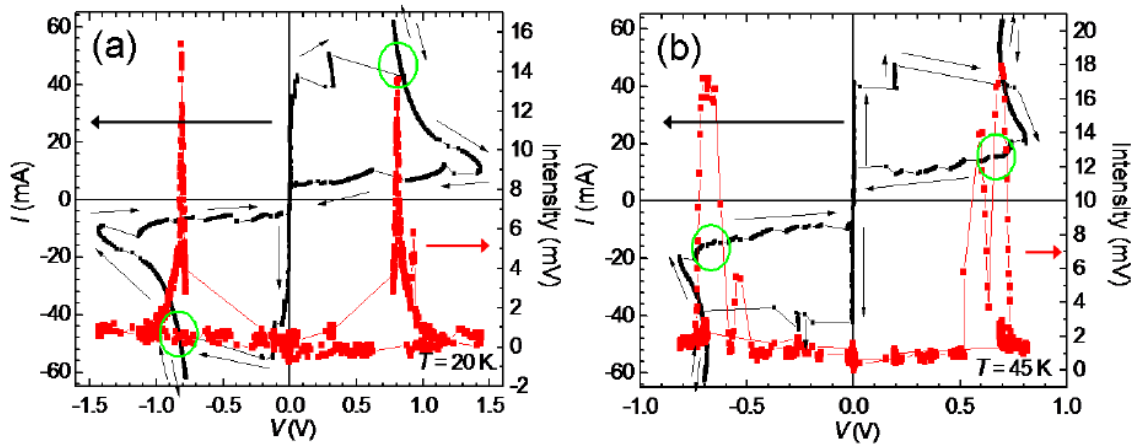


図 1-7 :  $I$ - $V$ 特性と検出器の応答. (a) 熱浴温度 20 K, (b) 45 K. 文献[13]から転載.

### 1-3-3 高バイアス域の特徴

高バイアス域では、メサの一部の温度が $T_c$ 以上となる場合が多い。そのため、放射特性に対して負の影響を与えると考えられる。しかしながら、素子の性能を向上させる可能性も指摘されている。ここでは高バイアス域の特徴について Wang らの実験結果[19]をもとに説明する。

#### 1-3-3-1 高バイアス域の周波数可変性

図 1-8 は  $330 \times 50 \times 0.7 \mu\text{m}^3$  のメサの高バイアス域における発振周波数の熱浴温度依存性を示す。挿入図には発振周波数と電圧の関係が示されている。図 1-8 は電圧と熱浴温度  $T_b$  の変化によってメサから 450–700 GHz の放射が起こることを意味する。

Wang らは周波数可変性の起源を探るため、低温走査レーザー顕微鏡法 (LTSLM) で電磁定在波の可視化を試みた。LTSLM はメサにレーザーを照射することで、数 K の局所温度上昇を引き起こし、 $Q$  値の変化を電圧の変化  $\Delta V$  として検出する手法である。端的に云うと、電磁定在波の振幅最大となっている場所にレーザーが照射されると、 $\Delta V$  は大きくなる。局所温度上昇による面内の物性変化が大きい場合、 $\Delta V$  は磁場の応答に対応する。文献では磁場応答を観測しているとして解析を進めている。

図 1-9(a) は  $330 \times 50 \times 1 \mu\text{m}^3$  のメサの  $I$ - $V$  特性を示す。青は物質・材料研究機構 (NIMS)、赤は独チュービンゲン大学で測定したデータに対応する。Wang らは NIMS で放射実験を行い、チュービンゲン大学で LTSLM を実施した。図 1-9(a) の青と赤の  $I$ - $V$  特性は測定環境を変えても特性がほぼ変化していないことを意味する。図 1-9(b) と (c) は電流と電圧に対する出力特性をそれぞれ示す。黒のデータ点は  $I > 10 \text{ mA}$ 、オレンジのデータ点は  $I < 7 \text{ mA}$  で得られた特性に対応する。図 1-9(d) は  $I > 10 \text{ mA}$  のバイアス域で得られたスペクトルを示す。図 1-9(d) はバイアス点に応じて発振周波数が 669 GHz から 753 GHz まで変化することを示す。

図 1-9(e) は LTSLM で得られた  $\Delta V$  の結果を示す。測定は図 1-9(b) の (1)-(5) に示すバイアス点で実施された。図 1-9(e) で最も強い応答が得られた円形部はホットスポットと考えられている。ホットスポットの端部にレーザーが照射されるとスポットが広がり、その結果  $\Delta V$  が最大になると解釈されている。図 1-9(f) は図 1-9(e) の白い破線上で測定した  $\Delta V$  を示し、メサ長辺方向に周期的な応答が得られていることを意味する。さらに図 1-9(e) を見ると、メサ幅方向に腹が 1 つあることが分かる。これらの結果はメサ幅方向と長辺方向の両方に定在波が励起されていることを示唆する。また、図 1-9(e) でホットスポットとされている円形部が電流の増加によって大きくなり、メサの半分以上を覆うことも確認されている。

以上の結果から、周波数可変性の起源がメサ長辺方向の共振にあることが指摘されている。つまり、ホットスポットのサイズ変化に伴って、メサ長辺方向の共振条件が変わり、発振周波数が変化すると解釈された。加えて、メサの実効的な温度上昇によるモード速度の変化が発振周波数の変化を引き起こしたとも指摘されている。この効果については後ほど説明する。

#### 1-3-3-2 高バイアス域と固有接合列の位相同期

Wang らは合計 7 つのメサからの放射を確認した。その内 2 つのメサは、高・低バイアス域の両方で放射が起こる。一方、残り 5 つのメサは高バイアス域のみで放射が生じる。これらの実験結果から、ホットスポットはテラヘルツ波の放射条件ではないが、ホットスポットが RC または RLC シャント成分として働き、固有接合列の同期を促進する可能性があるとして指摘された。後の Yurgens による数値シミュレーション[14]によ

て、ホットスポットによるシャント成分が系の安定性を向上させることが示されている。Watanabe らはレーザー照射によってホットスポットの位置を制御し、メサの端にホットスポットを寄せると出力が数倍向上することを示した[20]。一方で、Tsujimoto らはメサの上に 2 つの電極を作製し、注入電流を制御することでホットスポットの大きさを制御した。この結果では、ホットスポットのサイズが小さくなると、その分出力が増大している[17]。このように、ホットスポットは素子に対して正の影響を与える場合もあれば、負の影響を与える場合もある。

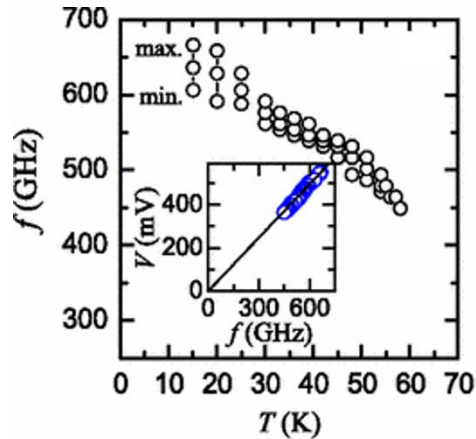


図 1-8： $330 \times 50 \times 0.7 \mu\text{m}^3$  のメサの高バイアス域の放射特性。発振周波数の熱浴温度依存性を示す。挿入図は発振周波数と電圧の関係。文献[19]から転載。

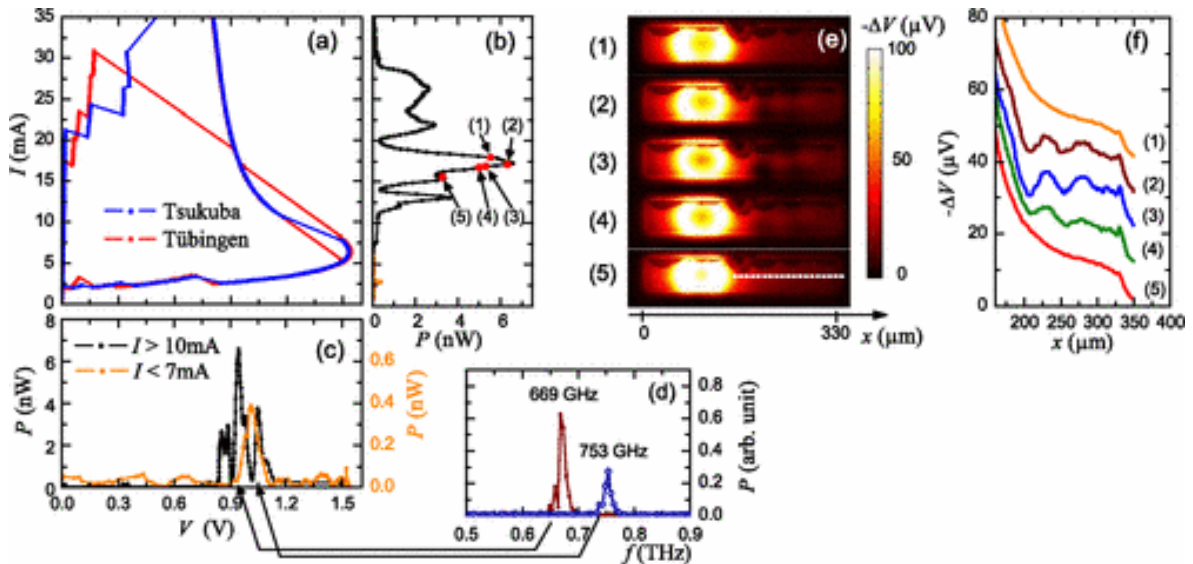


図 1-9： $330 \times 50 \times 1 \mu\text{m}^3$  のメサの特性。(a)熱浴温度 20 K の  $I$ - $V$  特性。(b)電流に対する出力特性。(c)電圧に対する出力特性。(d)高バイアス域で測定したスペクトル。(e) LTSLM で得られた応答。(f)メサの長辺方向に沿った  $\Delta V$  の変化。文献[19]から転載。

## 1-3-4 低バイアス域の周波数可変性とメサ断面形状が位相同期に与える影響

### 1-3-4-1 発振周波数の熱浴温度依存性

Benseman らは  $300 \times 80 \times 1 \mu\text{m}^3$  のメサを作製し、低バイアス域で 429–472 GHz の可変範囲が得られたことを報告した[21]. 図 1-10(a)は  $T_b = 30 \text{ K}$  の  $I$ - $V$ 特性と出力特性を示す. 図 1-10(b)は 20 K と 30 K の特性を拡大したものであり、 $T_b$  の上昇に伴って 0.73 V の放射強度が低下することを示す. 図中  $\Delta I$  は過剰電流 (Excess current) を示唆する. これは共振時に直流の超伝導電流が固有接合に流れることを意味する[11].

図 1-10(c)は  $T_b = 20 \text{ K}$  で測定したスペクトルを示し、電圧掃引によって発振周波数が 20 GHz 変化することを意味する. 図 1-10(d)は  $T_b = 30 \text{ K}$  で測定したスペクトルを示し、 $T_b$  の変化に伴ってスペクトル全体が低周波側へシフトすることを意味する. 図 1-11 は発振周波数の  $T_b$  依存性を示す. 図中の赤のシンボルは、図 1-10(c)の黒の矢印で指す発振周波数に対応する. また、エラーバーは電圧掃引による発振周波数の変化を表している.

Benseman らは、数値シミュレーションを解くことで、電圧掃引による周波数可変性の起源がメサ台形の断面にあると指摘している. メサが台形となることは共振周波数の分布を生むため、直感的だと考えられる. また、彼らはメサ上底と下底が非対称な境界を持つため、発振周波数が  $T_b$  に依存すると解釈している. 以下では発振周波数の温度依存性について記述する.

議論の出発点としてジョセフソンプラズマ波のモード速度について考える. 固有接合列では横プラズマと縦プラズマモードが共存し得るため、横モードの波数を  $k$ 、縦モードの波数を  $q$ 、ジョセフソンプラズマ周波数を  $\omega_{pl}$  とし、式(16)の位相方程式の解を  $\phi_l(x, t) = \exp(iqsl) \exp(i[kx - \omega t])$  とする. ここで、インダクティブ結合の影響が支配的であるとし、キャパシティブ結合の項をゼロとすると、分散関係は以下の式で記述できる.

$$\omega^2 = \omega_{pl}^2 + c^2 k^2 \quad (21)$$

$$c^2 = \frac{c_0^2}{n^2 \left[ \frac{2(1 - \cos(qs))\lambda_{ab}^2}{s^2} + 1 \right]} \quad (22)$$

ここで縦モードの波数  $q$  がとり得る値は、メサ上底と下底の境界条件によって決定する. Benseman らは超伝導基板への電磁波の漏れが存在するとして、メサ下底で電場ゼロの境界条件を課した. この場合、縦モードの波数  $q$  は以下の式で記述できる.

$$q = \frac{\pi m}{2t} \quad (m = 1, 3, \dots) \quad (23)$$

ここで  $t$  はメサの厚さである.  $qs \ll 1$  より、式(22)の  $\cos(qs)$  をテイラー展開すれば以下のモード速度が得られる.

$$c^2 = \frac{c_0^2}{n^2 \left[ 1 + \left( \frac{m\pi\lambda_{ab}}{2t} \right)^2 \right]} \quad (24)$$

【1-2-3】で示したように、 $\lambda_{ab}$  が温度依存性を持つため、モード速度が温度によって変化する. その結果、共振周波数  $f_c = c/2w$  が温度依存性を持つ. 図 1-11 に示すオレンジの線は  $m = 0$ 、つまり  $c = c_0/n$  とした場合の共振周波数を示す. 図 1-11 に示す青の線は  $m = 1$  の共振周波数を示し、 $m = 1$  の曲線が実験結果と上手く整合することを意味する. ここで、 $\lambda_{ab}$  の値は文献[22]の結果を用いている.



### 1-3-4-2 メサ断面形状と固有接合列の同期現象：数値シミュレーション

Benseman らはメサ台形の断面が放射出力を低下させる可能性について、固有接合列の位相同期の観点から議論した[21]。以下に数値シミュレーション結果について記述する。

彼らはメサが台形であることを考慮するため、メサ上底の接合の幅を $L$ 、接合数を $N$ として、 $n$ 番目の接合の幅を $L_n = L(1 - \alpha n/N)$ と表現した。ここで $\alpha$ はメサ上底幅と下底幅の相対比を表し、 $\alpha$ が大きいほど接合幅の分布が大きいことを意味する。次に接合に流れる電流を $I$ とし、 $n$ 番目の接合の臨界電流密度を $j_n$ とすれば $I = j_n L_n$ となる。ここで、簡単化のためメサ幅方向のみを考えた表記・単位変換を行っている。そして、 $v_c$ を $c$ 軸の準粒子電気伝導率とすれば、 $n$ 番目の接合電圧 $v_n$ は $I$ と $L_n v_c$ で決定するため、 $n$ 番目の接合のジョセフソン振動数は $\omega_n = I/L_n v_c$ とかける。ここで、対象としているバイアス域から、準粒子トンネル電流と電圧は線形関係にあるとしている。

上記の内容は、メサ台形の断面は固有接合列の準粒子抵抗に分布をつくるため、メサ上底と下底に電位差が生じると仮定し、接合幅に応じて従ってジョセフソン振動数が分布することを意味している。この仮定の下、Benseman らはジョセフソン振動数分布の平均値がメサ中央幅で決まる共振周波数に近づいた場合を想定し、その際の固有接合列の $I$ - $V$ 特性と電圧分布を次の位相方程式を解くことで調べた。

$$\frac{\partial e_n}{\partial \tau} = -v_c e_n - g(u) \sin \theta_n + \frac{\partial h_n}{\partial u} \quad (25)$$

$$\frac{\partial \theta_n}{\partial \tau} = e_n \quad (26)$$

$$v_{ab} \frac{\partial k_n}{\partial \tau} = -[k_n + h_n - h_{n-1}] \quad (27)$$

$$h_n = l^2 \left( \frac{\partial \theta_n}{\partial u} - k_{n+1} + k_n \right) \quad (28)$$

ここで、 $e_n$ は $c$ 軸方向の電場、 $\tau$ は時間、 $u$ はメサ短辺方向の座標、 $g(u)$ は臨界電流に空間依存性を与える関数、 $\theta_n$ は接合の位相差、 $h_n$ は磁場、 $k_n$ は面内の位相差を、 $h_n$ は磁場、 $k_n$ は面内の位相差、 $l = \lambda_{ab}/s$ はインダクティブ結合を示す。 $g(u)$ の項など独特な部分もあるが、基本的にはインダクティブ結合が支配的とする位相方程式である。数値シミュレーションは、メサ長辺方向に対するパラメータを一様とし、メサエッジでは非放射境界条件(nonradiative boundary condition)を課して実施された。また、固有接合数 $N = 50$ で数値シミュレーションが行われた。

図 1-12(a)は $\alpha = 0.10$ における固有接合列の $I$ - $V$ 特性と電圧分布を示す。 $I$ - $V$ 特性上の白抜きの四角のバイアス点で電圧分布が計算されている。図 1-12(a)は $\alpha = 0.10$ において分布した電圧が収束しないことを示している。一方で、 $\alpha = 0.08$ になると分布した電圧が部分的に収束する(図 1-12(b))。そして $\alpha = 0.0625$ で分布したすべての電圧が一定値に収束する(図 1-12(c))。また図 1-12(b)と(c)に示される $I$ - $V$ 特性は過剰電流が励起されていることを意味する。すなわち電圧分布が収束する時、 $n$ 番目の固有接合を流れる電流 $I$ は、準粒子トンネル電流を $I_{rn}$ 、超伝導電流を $I_{sn}$ としたとき、 $I = I_{rn} + I_{sn}$ となる。以上のように、数値シミュレーション結果は、メサ上底幅と下底幅の相対比に応じて同期接合数が変化することを示す。

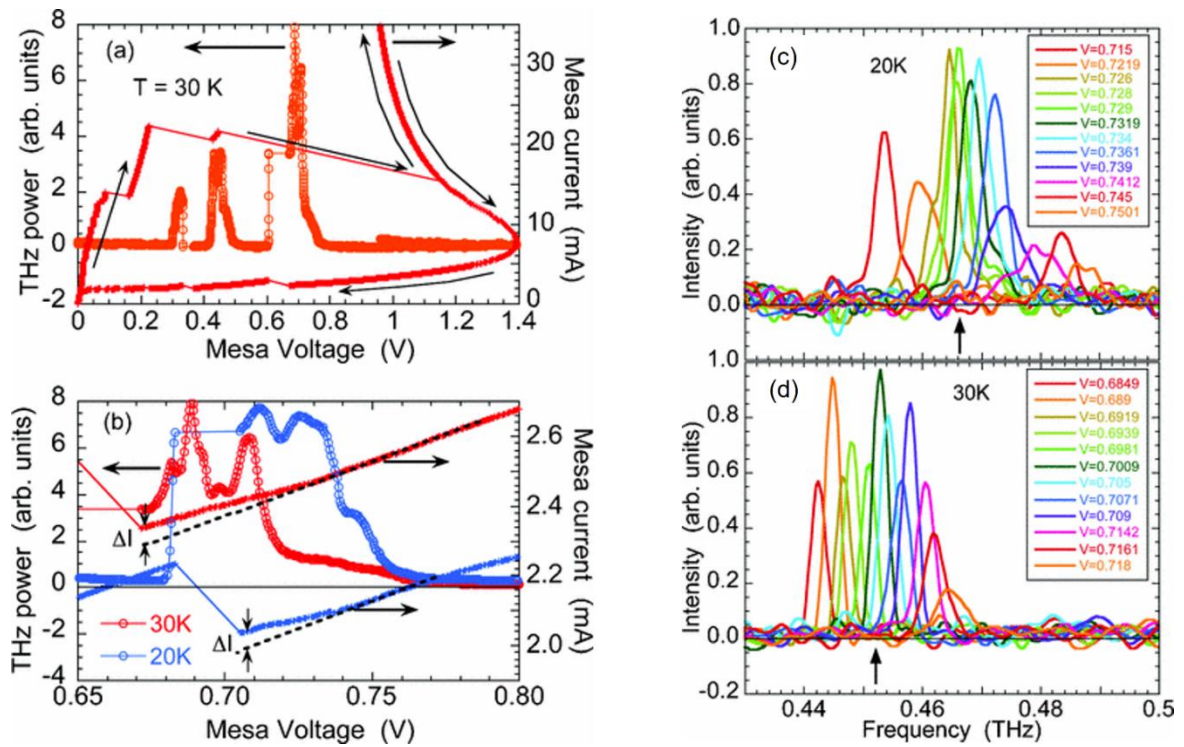


図1-10 : (a)  $T_b = 30$  K の  $I$ - $V$  特性と出力特性. (b)  $T_b = 20, 30$  K の  $I$ - $V$  特性と出力特性の拡大図. (c)  $T_b = 20$  K のスペクトル. (d)  $T_b = 30$  K のスペクトル. 文献[21]から転載.

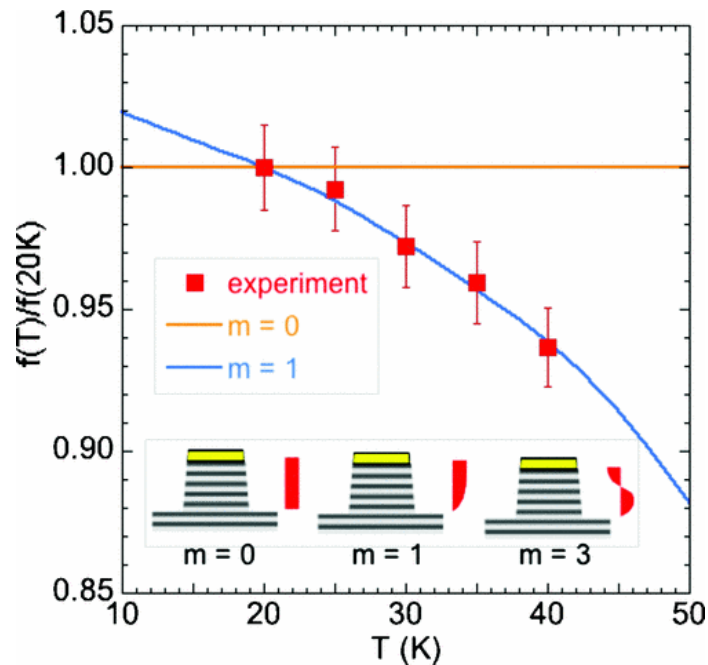


図 1-11 : 発振周波数の  $T_b$  依存性. 実線は  $m=0$  と  $m=1$  のモードにおける共振周波数. 文献[21]から転載.

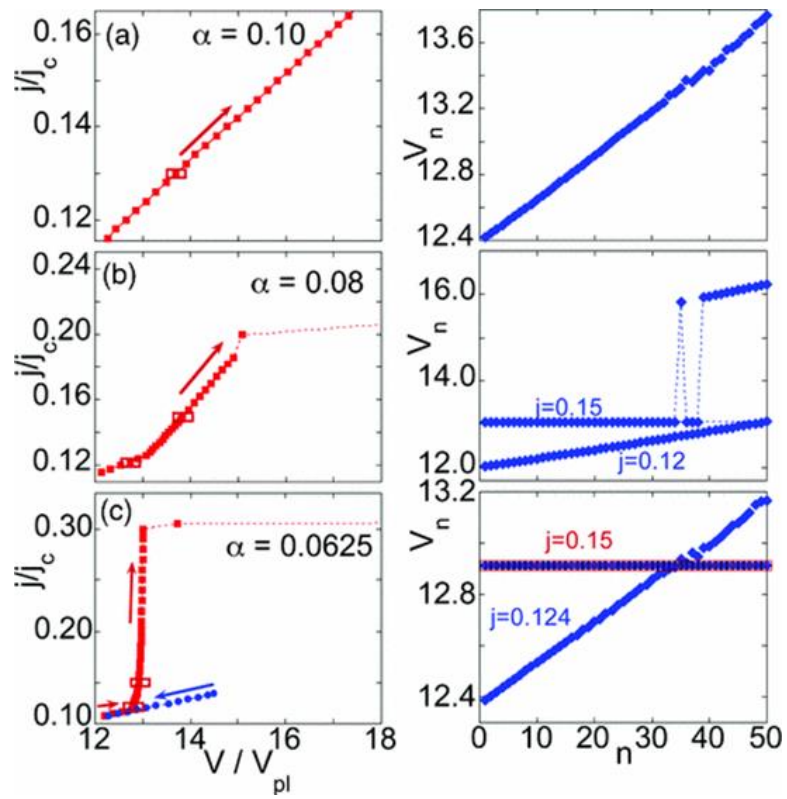


図 1-12 :  $N = 50$  のシミュレーション結果. 共振条件近傍の  $I$ - $V$  特性 (左) と固有接合列の電圧分布 (右). (a)  $\alpha = 0.10$ , (b)  $\alpha = 0.08$ , (c)  $\alpha = 0.0625$  の特性. 文献[21]から転載.

### 1-3-5 排熱効率改善による周波数可変域の拡大と最大出力の向上

ここでは高い排熱効率を有する素子特性の一例として、Jiらの実験結果を紹介する[23]。図1-13(a)はGold-Bi-2212-Gold (GBG) 構造の模式図を示す。Bi-2212のサイズは $230 \times 50 \times 1 \mu\text{m}^3$ である。GBG構造は超伝導基板がないため、図1-6に示すメサ型素子と比較して排熱効率が高い。図1-13(b)はSandwich Structure (SWS)の模式図を示す。SWSはその名前の通り2枚のMgO基板でBi-2212を挟み込んだものである。

図1-14(a)は $T_b = 30 \text{ K}$ におけるGBG構造とSWSの $I$ - $V$ 特性を示す。数値シミュレーションによる結果も同時プロットされている。 $I$ - $V$ 特性の差から分かるように、GBG構造からSWSへと変化させることにより、素子の排熱効率が改善されている。図1-14(b)はGBG構造とSWSの高バイアス域の出力特性を示す。図1-14(c)は図1-14(a)と(b)の白抜きのシンボルのバイアス点で測定したスペクトルを示し、到達電圧の増加に伴って発振周波数が高くなっていることを意味する。

図1-15は発振周波数の $T_b$ 依存性を示す。挿入図にはSWSの $T_b = 20 \text{ K}$ ,  $V = 1.933 \text{ V}$ ,  $I = 3.037 \text{ mA}$ で得られたスペクトルが示されている。図1-15から分かるように、GBG構造は高バイアス域のみで放射する一方、SWSは低・高バイアス域の両方で放射が起こる。GBG構造は $T_b = 20\text{--}65 \text{ K}$ の高バイアス域で $0.43\text{--}0.82 \text{ THz}$ の放射を起こす。一方で、SWSは $T_b = 20\text{--}80 \text{ K}$ の低バイアス域で $0.34\text{--}1.05 \text{ THz}$ の放射を起こす。これは従来の低バイアス域の周波数可変性と比較して、その性能が改善されていることを意味する。似たような結果はKashiwagi, Minamiらによっても確認されている[24][25]。

排熱効率の改善は出力向上も引き起こしている。図1-15(b)は発振周波数と出力の関係を示す。GBG構造の最大出力は $500 \text{ GHz}$ で得られ、その値は $\sim 180 \text{ nW}$ である。一方でSWSの最大出力は $700 \text{ GHz}$ で得られ、その値は $\sim 700 \text{ nW}$ である。GBG構造の $700 \text{ GHz}$ で得られた出力は $\sim 100 \text{ nW}$ のため、SWSの $700 \text{ GHz}$ の出力はGBG構造の出力よりも7倍大きい。

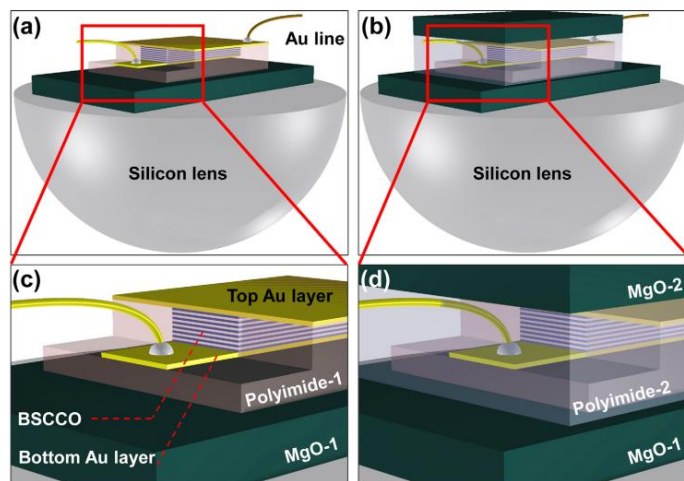


図1-13：(a)GBG構造の模式図。(b)SWSの模式図。(c),(d)GBG構造とSWSの模式図の拡大図。文献[23]から転載。

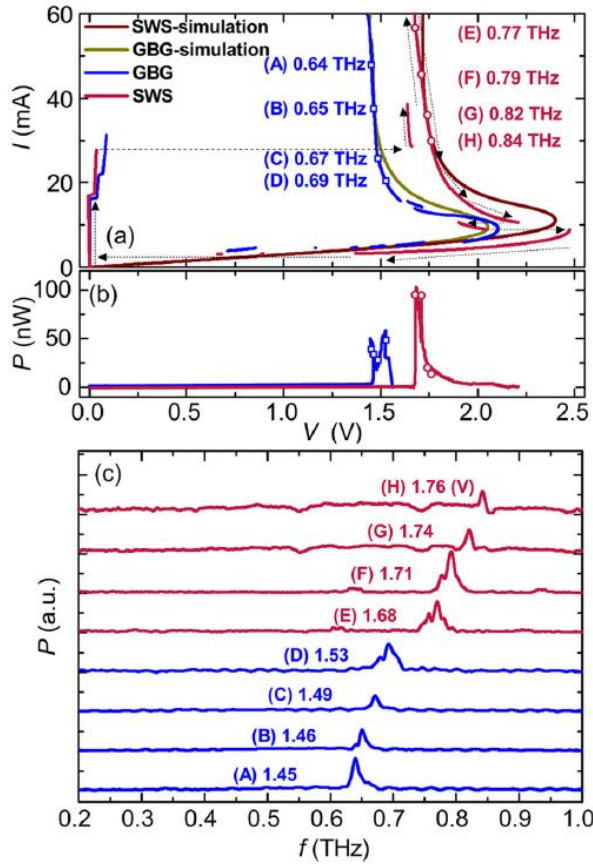


図 1-14 : (a)GBG 構造と SWS の  $I$ - $V$ 特性. (b)出力特性. (c)スペクトル. 文献[23]から転載.

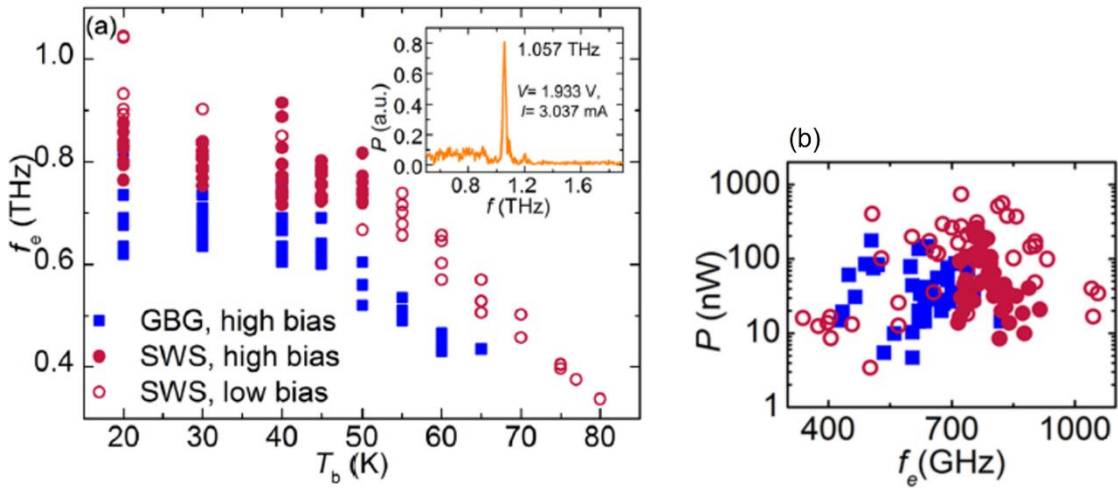


図 1-15 : GBG 構造と SWS の放射特性. (a)発振周波数の熱浴温度依存性. (b)発振周波数と出力の関係. 文献[23]から転載.

### 1-3-6 Bi-2212 テラヘルツ発振素子からの円偏波発生

Bi-2212 テラヘルツ発振素子は、熱浴温度と電圧の調整によって幅広い周波数可変性能を実現できる。これは半導体光源にはない独特な性質といえる。さらに、Elarabi らは、Bi-2212 メサを最も単純化したモデルが MSA であることに着眼し、MSA の技術を取り入れることで、超伝導素子から最大 99.7% の円偏波を発生させた[26]。この円偏光度は既存のテラヘルツ光源の中で最も高い。

図 1-16(a)と(b)は素子の模式図と光学顕微鏡像を示す。正方形メサの対角を部分的に除いたメサを作製することで、図 1-16(c)に示すように、円偏光の発生条件である 2つの直交モードを励起することができる。MSA では、発振周波数が共振周波数から 2-3 GHz ずれるだけで円偏光を発生させることができない[27]。一方で、Bi-2212 メサは数 10 GHz の範囲に渡って円偏光を保持できることが示唆されている。図 1-16(d)は軸比 (Axial Ratio: AR) の電流依存性を示す。AR < 3 dB で円偏光とみなすことができる。図 1-16(d)には式(3)から推定した発振周波数も示されている。発振周波数 0.46-0.50 THz の範囲内で AR < 3 dB が示唆される。これは、メサの形状が台形のため共振周波数が分布することに起因すると指摘されている。つまり、固有接合列に励起した振動電流の周波数が、分布したいずれかの共振周波数へと引き込まれるため、円偏光の周波数範囲が拡大したと考えられている。

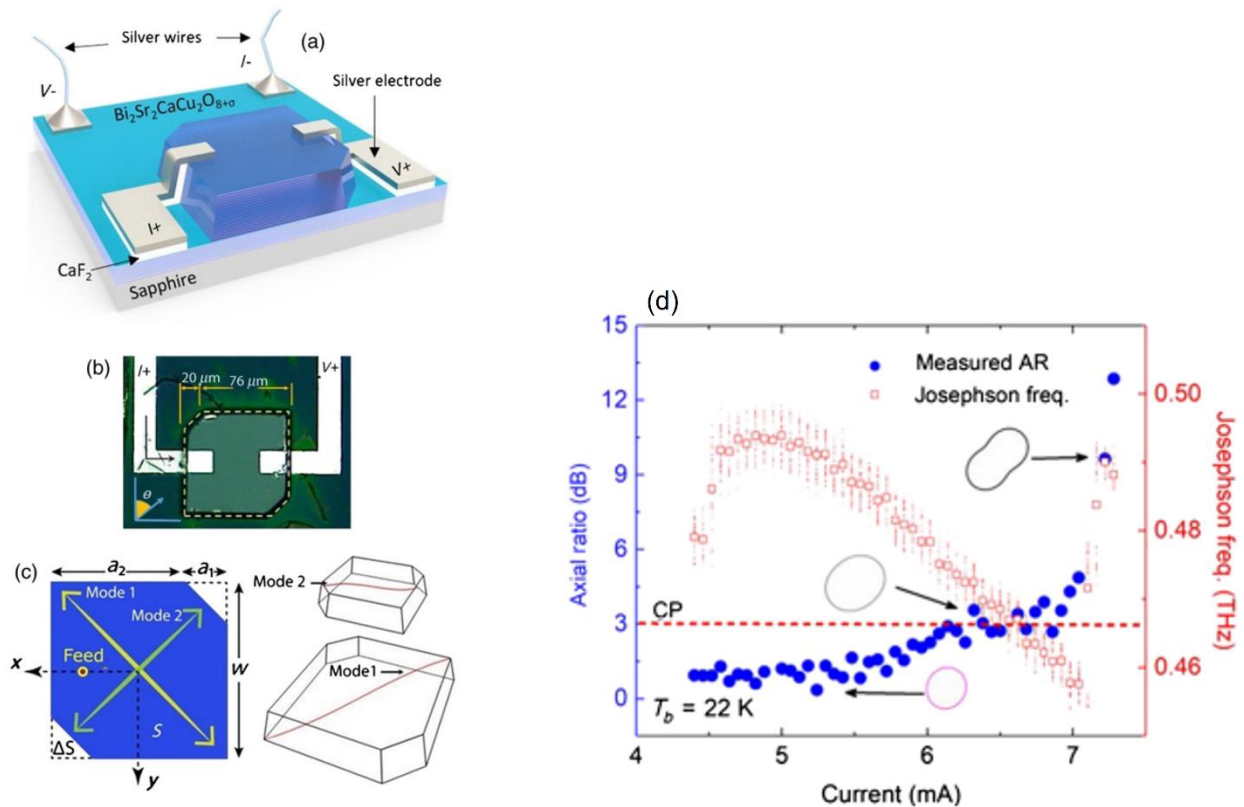


図 1-16 : (a) 円偏光発生素子の模式図. (b)光学顕微鏡像. (c)長軸と短軸の励起モード. (d)軸比の電流依存性. 文献[26]より転載.

### 1-3-7 特殊な電磁定在モード

【1-3-6】で示したように、Bi-2212 メサ内部の電磁波の振る舞いは MSA と類似している。一方で、MSA では励起されない電磁定在波が Benseman らによって報告されている[28]。以下ではその結果について示す。

図 1-17 は実験で用いられた素子の模式図を示す。メサのサイズは  $60 \times 360 \times 0.992 \mu\text{m}^3$  である。特徴として Bi-2212 単結晶がスズ鉛はんだで銅プレートに接着されていることに加え、超伝導基板が 100 nm と極めて薄い。図 1-17 の赤線は縦プラズマモードを表している。超伝導基板が薄いため、メサ下底の境界で電場振幅は腹としている。また、メサ上面の金属膜は部分的に薄いため、その部分での電場振幅は節とみなされている。図 1-17 に示すメサは  $T_b = 63\text{--}77 \text{ K}$  でテラヘルツ波を放射し、 $T_b = 75 \text{ K}$  で強度最大となる。そして、 $T_b = 75 \text{ K}$  における発振周波数は 396 GHz のため、メサ幅から計算できる共振周波数と大きく異なる。Benseman らはこの原因を調べるため、LTSLM を実施することに加え、メサ表面の温度分布測定も行った。

図 1-18(a)は c 軸抵抗の温度依存性を示す。青のデータ点は挿入図の  $I$ - $V$  特性のサブギャップ電圧から見積もった準粒子抵抗の値を示す。図 1-18(b)は  $T_b = 75 \text{ K}$  の  $I$ - $V$  特性と出力特性の拡大図を示す。  $V = 0.55\text{--}0.60 \text{ V}$  で見られる  $I$ - $V$  曲線のうねりは過剰電流と指摘されている。図 1-18(c)は LTSLM の応答を示し、メサ幅方向と長辺方向に  $\Delta V$  の周期的な変化が得られていることを意味する。図 1-18(d)はメサ表面の温度分布測定の結果を示し、LTSLM が実施されたバイアス点のメサ表面温度は  $\pm 0.1 \text{ K}$  の範囲で均一であることを表す。したがって、LTSLM で見られた周期的な応答はメサ幅方向と長辺方向における定在波の励起を示す。しかしながら、図 1-18(c)の定在波は理論計算から予測される定在波(図 1-19)と一致しない。実験結果と整合する共振モードは、 $(0, m_y)$ モードと $(1, m_y)$ モードの混在モードとなる。また、2つのモードの位相は  $\pi/2$  異なる。この結果は、Bi-2212 テラヘルツ発振素子における共振モードの自由度の高さを示している。

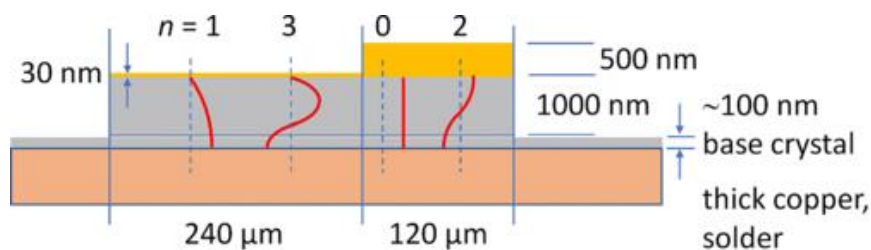


図 1-17：素子の模式図。文献[28]から転載。

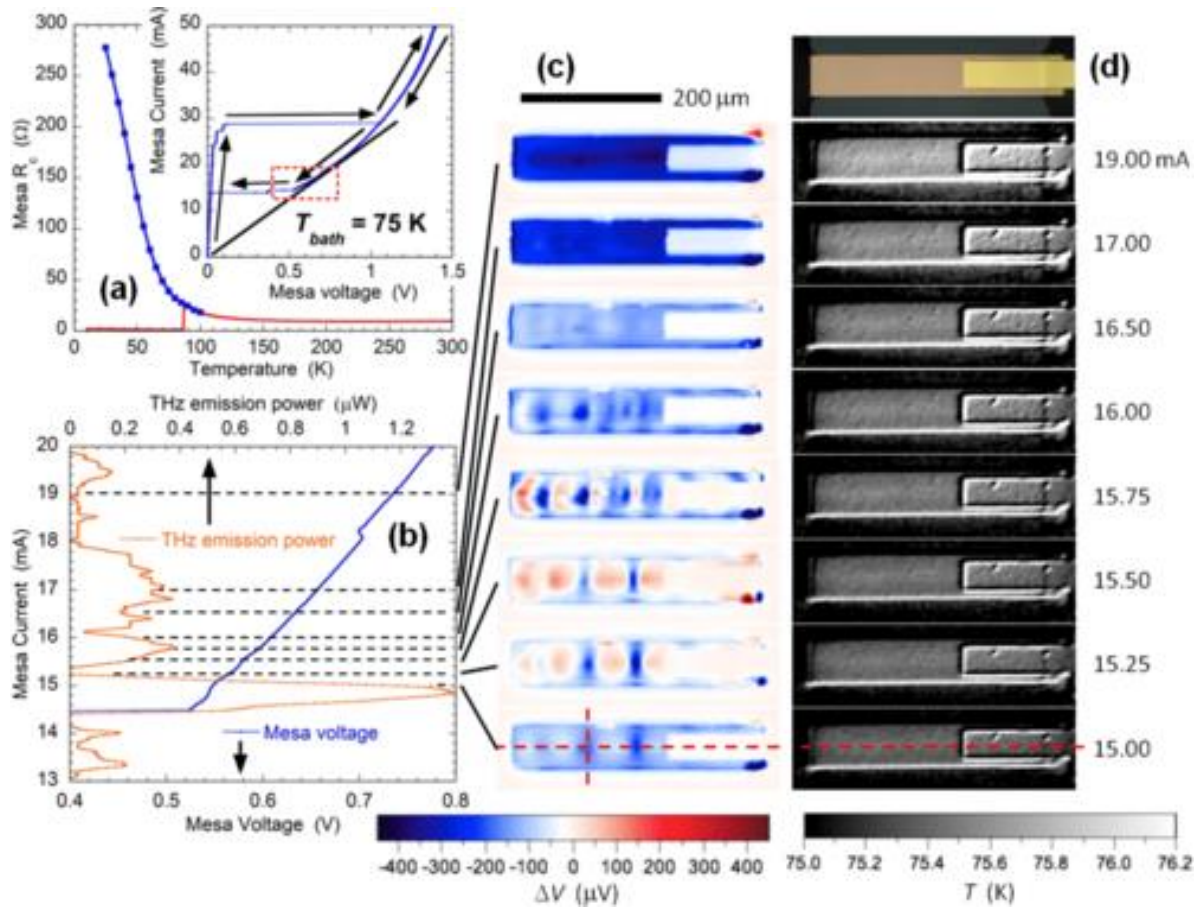


図 1-18 : (a) c 軸抵抗の温度依存性. 挿入図は  $T_b = 75$  K の  $I$ - $V$  特性. (b)  $I$ - $V$  特性と出力特性の拡大図. (c) LTSLM で得られた応答. (d) メサ表面温度分布. 文献[28]から転載.

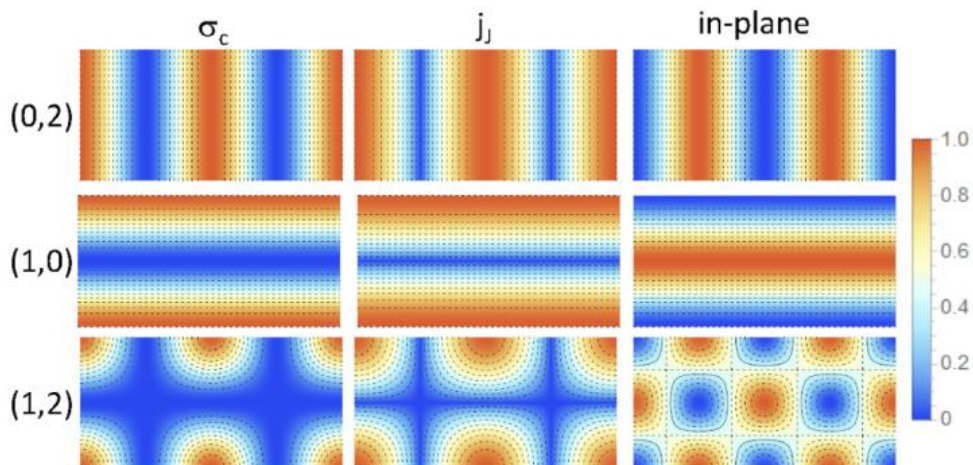


図 1-19 : 数値計算で得られた電磁定在波の振幅の絶対値.  $c$  軸 ( $\sigma_c$  と  $j_j$ ) は電場, 面内 (in-plane) は磁場応答に対応する. 文献[28]から転載.



## 第2章 研究目的

### 2-1 固有接合列の特性分布幅に対する出力変化の検証

$i$ 番目の固有接合の準粒子抵抗 $r_i$ は固有接合の面積に反比例するため、メサが台形であることは固有接合列の準粒子抵抗に分布をつくる。【1-3-4】で示した先行研究の数値シミュレーション[21]では、固有接合列に流れる電流を $I$ とした時に、 $i$ 番目の固有接合の電圧を $v_i = I/r_i$ と仮定した。ここで、対象としているバイアス域から、準粒子トンネル電流と電圧は比例関係にあるとしている。つまり、メサ上底幅と下底幅の相対比に応じて電圧（ジョセフソン振動数）が分布することになる。その結果、同期する固有接合の数はメサ上底幅と下底幅の相対比によって変化することが、数値シミュレーションで示されている。一般に、相互作用のある結合振動子集団系では、振動数の分布が大きすぎると位相同期が達成できないため[29]、先行研究の結果は直感的と考えられる。しかしながら、同期接合数はメサ上底幅と下底幅の相対比に応じてゆるやかに変わるのか、または急激に変化するのか疑問である。前者の場合、素子の出力を最大化する上で精密な加工技術が必要となることを意味する。そのため、メサ上底幅と下底幅の相対比に対する同期接合数の変化量を実験的に求めることは、高性能な素子の設計において重要な知見になると考えられる。

一方、固有接合列の電圧分布を実験的に観測したわけではない点に注意したい。RCSJモデルを考えると、 $v_i = I/r_i$ とした場合、分布した電圧が一定の値に収束するためにシャント電流 $I_s$ が必要となる。先行研究のシミュレーションでは共振時に励起される超伝導過剰電流が $I_s$ に対応する。しかしながら、過剰電流を示唆する $I$ - $V$ 特性が常に報告されているわけではない。また、過剰電流でない $I_s$ 成分が固有接合に存在する場合、固有接合列の電圧分布はメサ上底幅と下底幅の相対比と直接的に結びつかないことになる。つまり、メサ上底幅と下底幅の相対比で電圧分布が決定するということは自明ではないため、予想とは全く異なる実験結果が得られる可能性もある。以上の観点からも、メサ断面形状効果を実験的に調べることは重要な意味を持つと考えられる。そこで、本研究ではメサ断面形状を制御する手法を確立し、メサから放射されるテラヘルツ波の出力を調べることで、固有接合列の特性分布と同期現象の関係を明らかにする。

### 2-2 メサ断面形状が周波数可変性能に与える影響調査

【2-1】の議論では、簡単化のため、固有接合列の電圧分布の平均値がメサ中央幅の共振周波数と一致した場合を考えている。しかしながら、実際にはメサが台形であることにより共振周波数は分布する。そのため、メサ台形の断面形状は、電圧掃引による周波数可変性に影響を与えられられる。低バイアス域の周波数可変性を調べた先行研究では、 $T_b = 20\text{--}50\text{ K}$ の温度変化と電圧の調整によって429–472 GHzの放射が報告されている[21]。周波数可変性の起源として、メサ台形の断面形状と磁場侵入長の温度依存性が指摘された。低バイアス域の周波数可変範囲はそれほど広いわけではなかったが、素子の排熱性が改善されるに伴って、非常に幅広い周波数での放射が観測されるようになった。例えば Ji らは低バイアス域で0.34–1.05 THzの放射を報告した[23]。Kashiwagi らの報告では0.29–1.15 THzの放射が報告されている[24]。極めて広い周波数範囲だと考えられるが、その中でメサ台形の断面形状がどの程度影響しているのか明確ではない。周波数可変性が磁場侵入長の温度変化とメサ上底と下底の相対比で決定するとすれば[21]、相対比の大きなメサでは周波数可変範囲の上限と下限が広くなると期待できる。

そこで本研究では、【2-1】で述べたメサ断面形状と放射出力の関係を調べると共に、発振周波数特性を精査することで、固有接合列の特性分布と周波数可変範囲の関係を明らかにする。

### 2-3 メサ内部の電磁定在波の性質調査

Bi-2212 メサ内部の電磁波の性質を理解する 1 つ手法として、メサを最も単純化したモデルとして知られる MSA との差を検証することが有効と考えられる。先行研究の例として、Elarabi らは MSA の偏光技術に着眼し、切頂正方形メサから最大 99.7% の円偏光の発生に成功している[26]。興味深いことに、MSA では発振周波数が共振周波数から 2-3 GHz 変化すると円偏光を発生できない一方[27]、Bi-2212 メサは数 10 GHz の範囲に渡って円偏光を保持できる可能性が示唆されている。また、Benseman らは Bi-2212 メサ内部に特殊な電磁定在波が励起されていることを報告した[28]。具体的には、メサ幅と長辺方向のモード指数を  $n, m_y$  とした時に、 $(1, m_y)$  モードと  $(0, m_y)$  モードの混在モードの励起が報告された。さらに、それらのモードが  $\pi/2$  の位相差を持つということも示唆されている。このような自由度の高い共振モードの励起は、MSA では生じない現象である。

MSA では誘電体に振動電流が直接励起されることはないが、固有接合列では誘電体層にトンネル振動電流が発生することに加え、振動電流の同期効果が存在すると考えられる。これらの性質の差が Bi-2212 テラヘルツ発振素子と MSA の電磁定在波の性質に違いをもたらすと予想できる。したがって、超伝導素子と MSA の電磁定在波の性質を比較することは、固有接合列の同期現象の理解につながると期待できる。さらに、Bi-2212 テラヘルツ発振素子の電磁場の振る舞いを理解することは、MSA 技術の適用限界を知ることになるため、素子の高性能化の観点からも重要である。そこで著者は Bi-2212 テラヘルツ発振素子と MSA の電磁定在波の性質を比較する実験手法を考案し、その手法を用いることで超伝導素子と MSA の対応関係を明確にする。

## 第3章 素子作製手法及び特性分布パラメータの導入

### 3-1 メサ作製技術

2007年から現在にかけて様々なメサ作製手法が確立されてきた。どの加工法を使うかは、最終的に製作したい素子構造や実験の目的に応じて変わる。典型的にはドライエッチング法がよく用いられているが、最近ではウェットエッチング法も導入され[30][31]、加工自由度は増している。ここではドライエッチング法の紹介に絞り、メサ側壁角度の観点から作製方法を概観する。

#### 3-1-1 UVリソグラフィとアルゴンイオンミリング法

アルゴン国立研究所では、UVリソグラフィとアルゴンイオンによるエッチングでBi-2212メサが作製され、そのメサの側壁角度は20–30度と推定されている[32]。筑波大学でも同様の手法でメサが作製され、テラヘルツ波の放射が検出されている。公表された断面プロファイルからメサ側壁角度は13–15度と分かる[33]。Ozyuzerらが2011年に公表した論文では、同じ手法でメサ側壁角度45度が達成されている[34]。同時に電子ビームリソグラフィや、Tiマスク使った加工が試されているが、メサ側壁角度45度を超えてはいない[34]。Jiらによって報告されたGBG構造もUVリソグラフィとアルゴンイオンによるエッチングで作製されている[23]。

#### 3-1-2 メタルマスクとアルゴンイオンミリング法

レジストマスクの代わりにメタルマスクを使った方法がMinamiらによって導入されている。この手法では、メタルマスクを手動で単結晶と密着させるため、加工精度は作製者によってばらつくが、およそ30度のメサ側壁角度を達成できる[35]。この手法は厚いメサを作製できることに利点がある。メタルマスクは単独メサ（メサ下部の超伝導基板を熱伝導率の高い基板に置き換えたもの）の作製にも利用されている。Kashiwagiらが導入したメタルマスクを使った作製手法ではおよそ50度のメサ側壁角度が達成されている[36]。

#### 3-1-3 集束イオンビーム法

集束イオンビーム（FIB）によってBi-2212単結晶に溝を掘ることで、簡便にメサを作製する手法がTsuji motoらによって導入されている。この手法ではメサ側壁角度33度が達成されている[37]。Kitamuraらが導入したFIBによる単独メサを作製手法では、メサ側壁角度がおよそ20度となる[38]。

#### 3-1-4 UVリソグラフィと反応性イオンエッチング法

KoseogluらはBi-2212単結晶上にレジストマスクとタンタルマスクを組み合わせた多層マスクをパターンニングし、反応性イオンエッチングを用いることで、メサ片側の側壁角度75度、もう一方の側壁角度35度を実現している[39]。精度的には最も高いが、反応物が付着しているせいか、メサ側壁が非常に粗い等の特徴がある。

## 3-2 メサ断面形状制御手法

【3-1】で述べたように、これまでにおよそ13-50度のメサ側壁角度が実現されてきた。同じメサ側壁角度でも、固有接合列の特性分布幅はメサ幅に応じて変化する。従来、メサ幅40-100  $\mu\text{m}$ の素子が作製されてきたため、様々な特性分布幅を持つ素子の放射特性が評価されてきたことになる。つまり、既存のデータから特性分布幅の効果を見出すことが可能であると考えられるが、それは容易でない。素子の放射特性は熱的状況やキャリア密度に敏感であるため、メサの厚さ、超伝導基板の厚さ、放射が起こるバイアス域、超伝導転移温度が異なる素子同士の比較から、特性分布幅の効果を見出すことは困難である。

そこで著者は、同一結晶基板上に断面形状が異なるメサを作製することに着手した。同一結晶上であれば排熱効率や超伝導転移温度は原理的に均一となる。ここでは2種類のフォトレジストを併用する形状制御手法について記述する。

### 3-2-1 ノボラック型レジストの焦点深度依存性

著者は第一にノボラック型レジスト（OFPR-800 LB 29cp, 東京応化工業）の露光条件を調整することで、レジストマスクの形状制御を試みた。具体的には、筑波大学微細加工プラットフォームが保有するレーザー描画装置（upg501, Heidelberg社）を用いて、露光する際の焦点深度（Def.）を調整した。また、Bi-2212単結晶は筑波大学超伝導物性工学研究室より提供頂いた。以降、ノボラック型レジストをOFPRと呼ぶ。

図2-1(a)はOFPRマスクの光学顕微鏡像を示す。Def. 0は露光時のレンズの焦点がレジスト表面に一致していることを意味する。Def. 10は焦点位置からレンズが10  $\mu\text{m}$  サンプルに近づくことを示す。Def. -10はその逆を意味する。図2-1(a)の光学顕微鏡像を見ると、Def. 10のマスクには黒い縁が鮮明に表れていることが分かる。これはマスクの断面形状が比較的なだらかなであることを意味する。図2-1(b)は原子間力顕微鏡（Keyence, VN-8010）で測定したOFPRマスクの断面プロファイルを示す。Def. 0のマスクと比べてDef. 10のマスクはなだらかな断面を形成している。

図2-2(a)はOFPRマスクの焦点深度依存性を利用して作製したメサの光学顕微鏡像を示す。メサAとメサBの作製にはDef. 0とDef. 10のマスクを使用した。エッチングはイオンシャワー装置（EIS-200ER, エリオニクス社）で行った。イオンシャワー装置の加速電圧は500 Vとした。作製手法の詳細は後ほど示す。図2-2(b)はメサAとBの断面プロファイルを示す。断面プロファイルから分かるように、メサの厚さ $t \sim 1 \mu\text{m}$ に対して、メサ上底幅と下底幅の差 $\Delta w$ は10  $\mu\text{m}$ と16  $\mu\text{m}$ である。

### 3-2-2 化学増幅型レジスト

著者は $\Delta w$ の制御範囲を拡張するため、化学増幅型レジスト（TCIR-ZR8800 PB 96cp, 東京応化工業）を導入した。TCIR-ZR8800 PBシリーズは、別名Si深堀用レジストと呼ばれ、マスクの垂直性が高い。ただし、化学増幅型レジストは、露光後ベークすることによって感光反応が進むため、マスクの形状は露光条件にさほど依存しない。以降化学増幅型レジストをTCIRと呼ぶことにする。

図2-3(a)にTCIRマスクの光学顕微鏡像、図2-3(b)に断面プロファイルを示す。比較のため図2-3(b)ではOFPRマスクの断面プロファイルもプロットした。図2-3(b)から分かるように、OFPRマスクとTCIRマスクの垂直性が異なる。TCIRマスクを使って作製したメサの断面プロファイルは後ほど示すが、メサの厚さ $t \sim 1 \mu\text{m}$ に対して、 $\Delta w = 2-3 \mu\text{m}$ を実現できる。

### 3-2-3 ノボラック型レジストと化学増幅型レジストの併用

著者は【3-2-1】【3-2-2】の結果を踏まえ、OFPR と TCIR を併用することにより、同一結晶基板上に $\Delta w$ の異なるメサを作製した。以下に作製手順を示す。

- ① 銀ペースト（CR-3520， 化研テック株式会社）を用いてサファイア基板に Bi-2212 単結晶片を接着する。接着後、メンディングテープ（810-1-12C， スリーエムジャパン株式会社）を使用して単結晶片のへき開を大気中で行い、真空蒸着装置を使って銀（Ag）を 50 nm 蒸着する。Ag 蒸着後、レーザー描画装置を使って TCIR をパターンニングする。FIB を使った作製手法のように、単結晶に溝を掘ってメサを作製する場合、図 2-4(a)に示すように TCIR をパターンニングする。一方で、最終的に放射部となるメサ構造のみを残す場合、図 2-5(a)に示すようにマスクを形成する。
- ② イオンシャワー装置によってアルゴンイオンミリングを行う。その後、アセトンを用いてレジストを剥離し、放射部となるメサを 1 つ作製する。図 2-4(b)と図 2-5(b)はアルゴンイオンミリング後、レジスト剥離した後の模式図を示す。
- ③ 空いている Ag 面上に図 2-4(c)または図 2-5(c)に示すように OFPR でパターンニングを行う。この時、露光時の焦点深度を Def. 10 または Def. 0 とする。TCIR を Bi-2212 と直接接触させると化学反応が起こり、Bi-2212 表面が黒く変色するので、TCIR を先にパターンニングする必要があることに注意したい。
- ④ ②と同様にアルゴンイオンミリングとレジスト剥離を行うことで放射部となる 2 つ目のメサを作製する。この時、エッチングレートを②のものと完全に一致させることはできないので、2 つのメサの厚さは若干異なる。重要な点として、経験則ではあるが、レジストの物理エッチング耐性が、エッチングレート（加速電圧）によって変化することが分かっている。これは、エッチング中のレジストの熱的状況の変化によってマスク硬度が変わったことに起因すると考えられる。つまり、加速電圧の調整により $\Delta w$ がある程度調整することができる。

図 2-6(a)と(b)は図 2-4 に示す手順で作製した 2 つのメサの光学顕微鏡像とその拡大図を示す。OFPR マスクは Def. 10 で形成した。図 2-6(c)は 2 つのメサの断面プロファイルを示す。同一結晶基板上に $\Delta w = 2.3 \mu\text{m}$ 、 $\Delta w = 15.7 \mu\text{m}$ のメサを作製できていることが分かる。図 2-7(a)と(b)は図 2-5 に示す方法で作製した 2 つのメサの光学顕微鏡像とその拡大図を示す。OFPR マスクは Def. 0 で形成した。さらに、イオンシャワー装置の加速電圧を 500 V から 640 V に変更して作製した。図 2-7(c)に示す断面プロファイルから、同一結晶基板上に $\Delta w = 2.6 \mu\text{m}$ 、 $\Delta w = 7.4 \mu\text{m}$ のメサを作製できていることが分かる。

### 3-3 電極作製方法

メサを作製した後は、図 2-8(a)-(d)に示す手順で電極を作製する。第一に STYCAST 1266 をメサエッジに塗り、Ag を 100 nm 真空蒸着する（図 2-8(b)）。次に OFPR を用いて電極パターンニングを行う（図 2-8(c)）。最後に、不要な Ag 部分をアルゴンイオンでエッチングし、アセトンでレジスト剥離を行う（図 2-8(d)）。このプロセスでは、薄いメサ構造が電極の下にできる。加工プロセスは増えるが、Bi-2212 メサ表面を真空に露出させない素子も作製できる。図 2-9(a)-(c)は追加される手順を示す。メサを作製した後、リフトオフ用のネガティブレジスト（TLOR-N001， 東京応化工業）をパターンニングする（図 2-9(b)）。次にレジストの厚み以下のフッ化カルシウム（CaF<sub>2</sub>）を蒸着し、アセトンでレジスト剥離を行う（図 2-9(c)）。その後の手順は図 2-8(b)-(d)に示す手順と同様である。CaF<sub>2</sub>の物理エッチング耐性は Ag よりも高いため、メサ上面の金属膜は

残る.

### 3-4 特性分布パラメータ

【3-3】で示した形状制御手法により，メサの厚さ $t \sim 1 \mu\text{m}$ に対し， $\Delta w = 2\text{--}3 \mu\text{m}$ ， $\Delta w = 7\text{--}16 \mu\text{m}$ を達成できる．メサ上底幅と下底幅の相対比はメサ幅に応じて変わるため，特性分布幅の指標として $\Delta w$ を用いると都合が悪い．そこで以下の特性分布パラメータ $\gamma$ を導入する．

$$\gamma = \frac{1 - w_t/w_b}{1 + w_t/w_b} \quad (29)$$

ここで $w_t$ はメサ上底幅， $w_b$ はメサ下底幅をそれぞれ示す．メサの中央幅を $w_m$ とすると， $w_t = w_m(1 - \gamma)$ ， $w_b = w_m(1 + \gamma)$ と書ける．

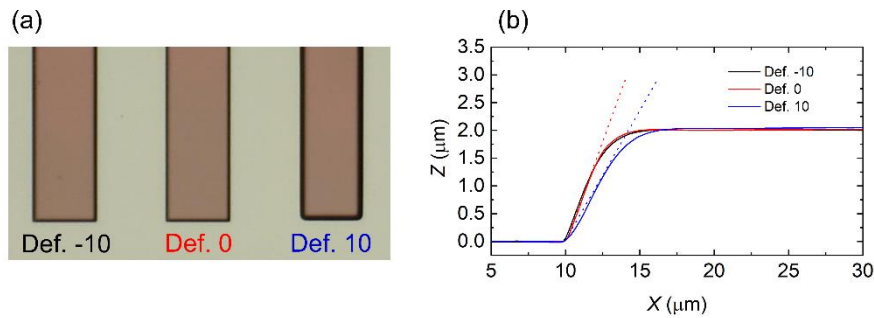


図 2-1：ノブラック型レジストの焦点深度依存性．(a)光学顕微鏡像．(b)断面プロファイル．

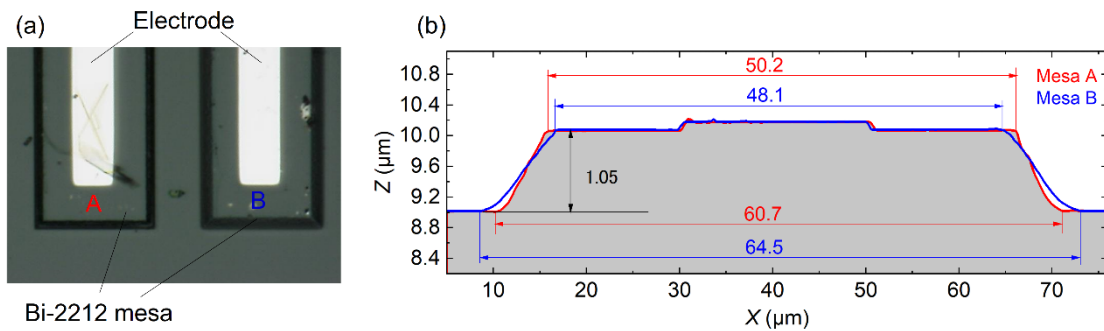


図 2-2：(a) ノブラック型レジストを使って作製した Bi-2212 メサの光学顕微鏡像．メサ A は Def. 0，メサ B は Def. 10 のマスクを使って作製．(b) メサの断面プロファイル．

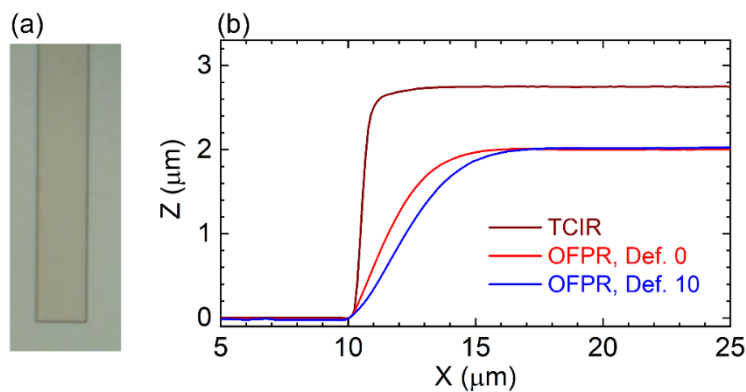


図 2-3：(a)化学増幅型レジストの光学顕微鏡像．(b)断面プロファイル．図 2-1(b)の結果と共に表示．

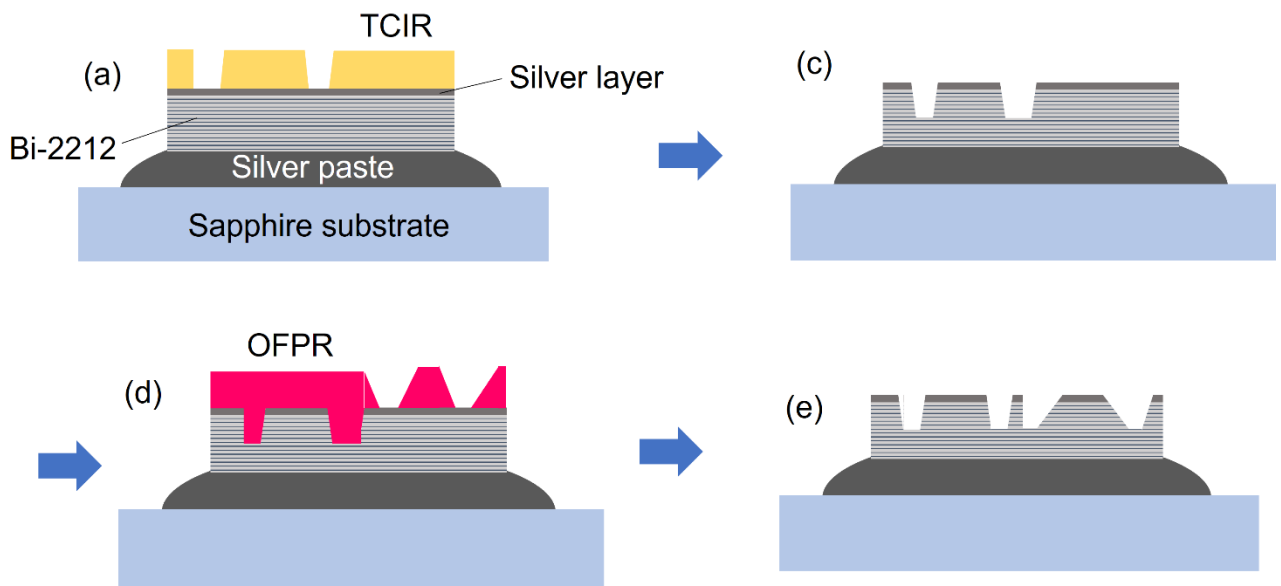


図 2-4：メサ断面形状制御手法。単結晶の一部をエッチングする場合。

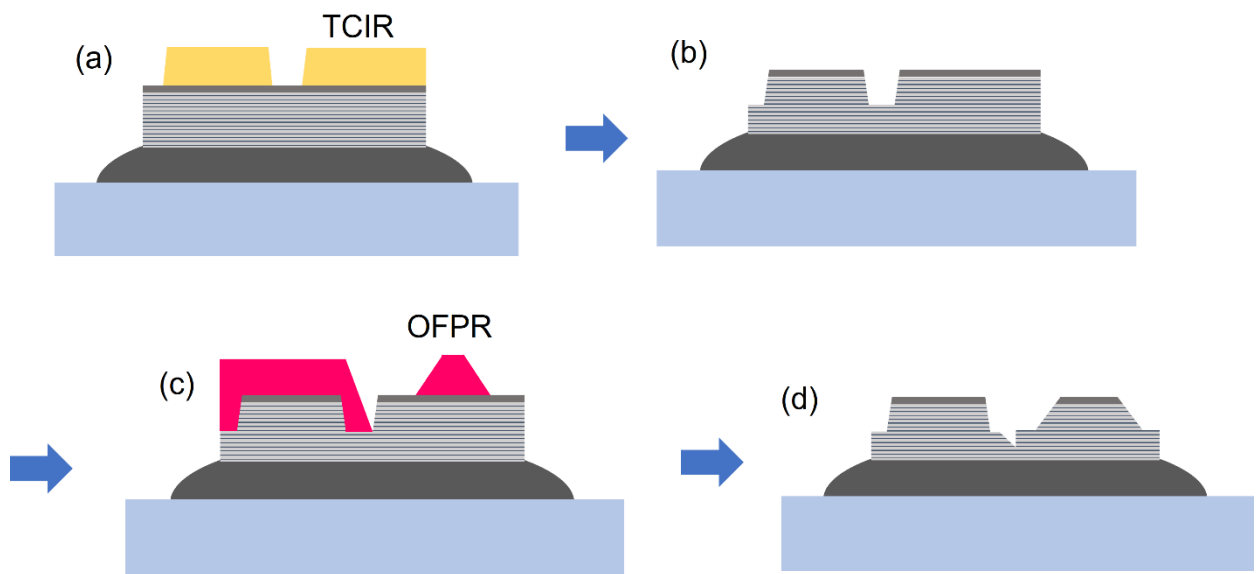


図 2-5：メサ断面形状制御手法。放射部となるメサ構造のみ残す場合。

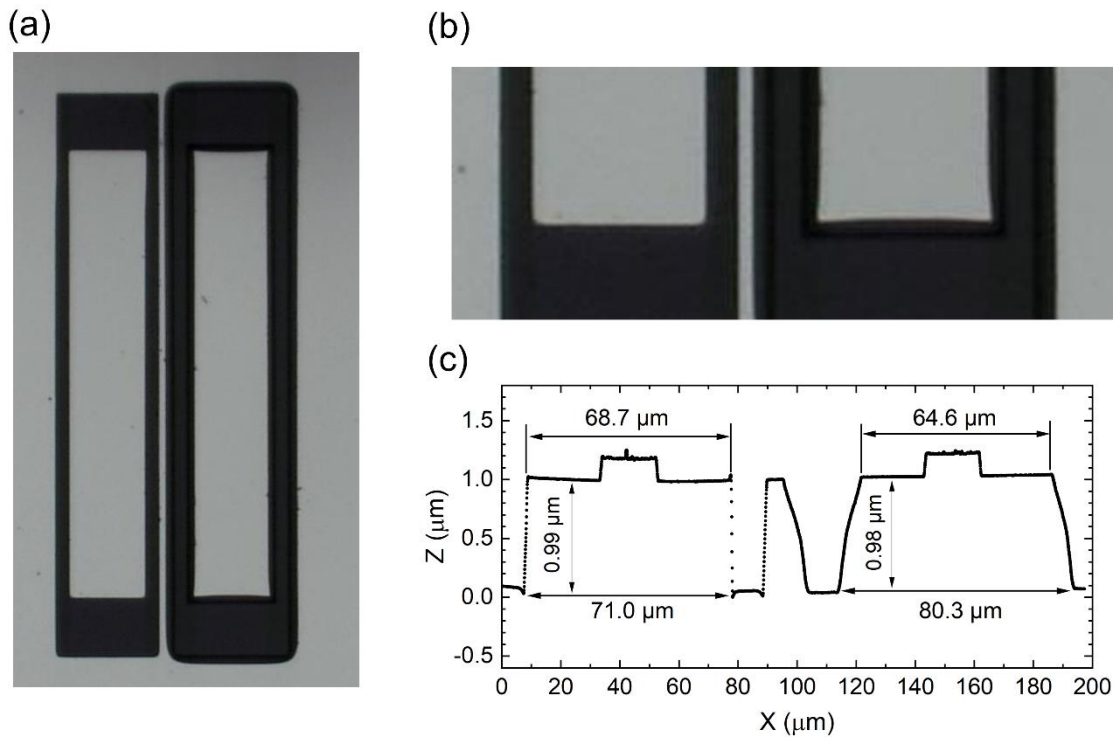


図 2-6：図 2-4 に示す手順作製した 2 つのメサ. (a)光学顕微鏡像. (b)拡大図. (c)断面プロファイル.

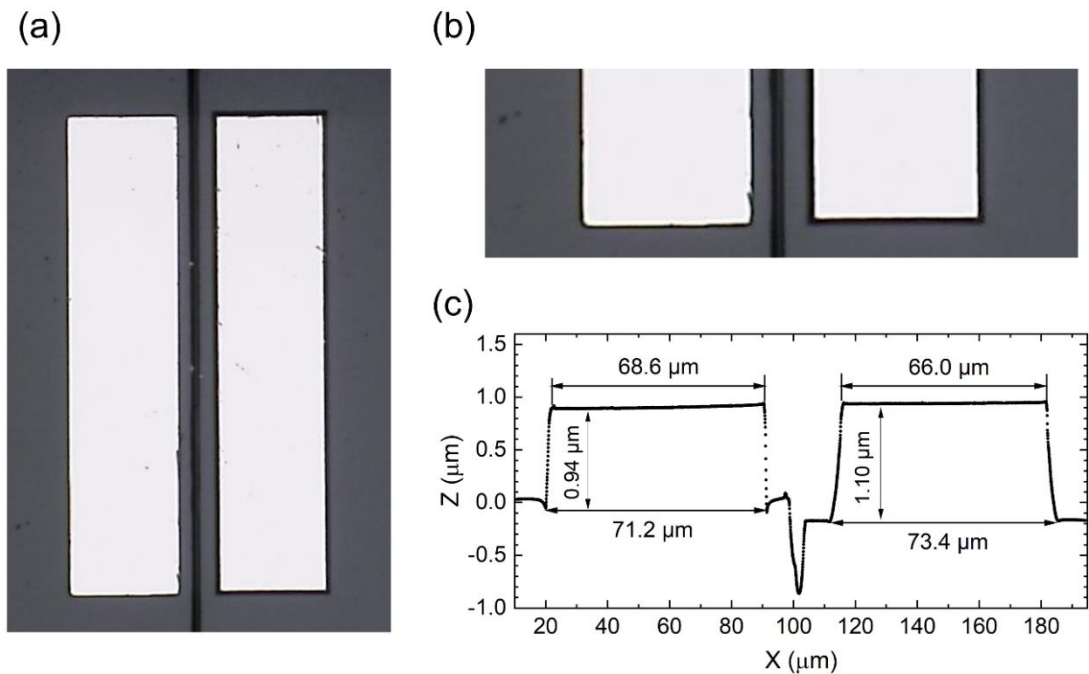


図 2-7：図 2-5 に示す手順で作製した 2 つのメサ. (a)光学顕微鏡像. (b)拡大図. (c)断面プロファイル.



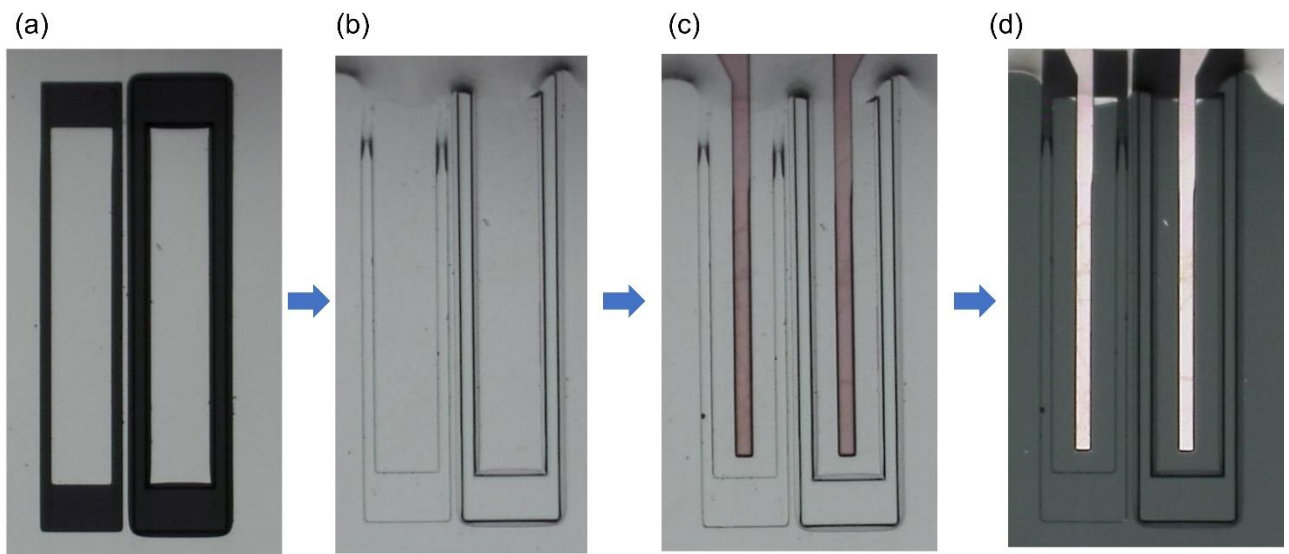


図 2-8：電極作製プロセス中の光学顕微鏡像.

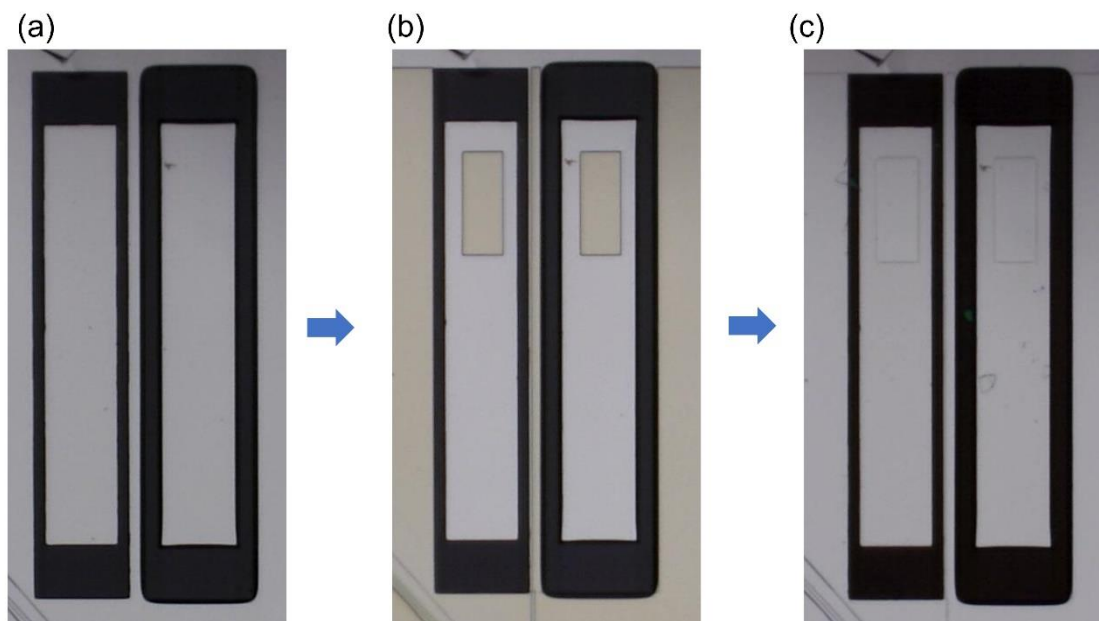


図 2-9：リフトオフプロセス中の光学顕微鏡像.

## 第4章 測定系

### 4-1 素子の冷却方法

試料の冷却にはヘリウムガスの断熱膨張を利用したヘリウムフリーの Gifford-McMahon 式冷凍機クライオスタットを用いる。図 4-1 に GM 冷凍機の構造と現物の写真を示す。構成要素として高圧のヘリウムガスを供給する空冷式コンプレッサー（住友重機械工業株式会社製，モデル CNA-11B）と冷凍機の部分に分かれる。冷凍機の内部には蓄冷剤が封入された 2 段式ディスプレイサーピストンが内包されている。2 段目のディスプレイサーの蓄冷剤として低温比熱が大きい物質を用いることで，3 K 付近の極低温環境を実現できる。ディスプレイサーはモーターによって可動し，ヘリウムガスが溜まる膨張空間を調節する仕組みになっている。試料は図 4-1(c)に示すコールドフィンガー部に後述するサンプルパッケージを介して取り付ける。構成部品の周りは外部からの熱輻射を遮断するためシールドが施されており，試料空間は断熱のためターボ分子ポンプ排気システムによって真空である。シリコンダイオードを使った温度センサーは 2 段目冷却部とコールドフィンガー上部の二箇所に取り付けた。以降では，コールドフィンガーの温度を熱浴温度とする。測定した温度を温度コントローラー（Cryogenic Control Systems 社製，モデル Cryocon22C）にフィードバックさせ，2 段目冷却部に取り付けられたヒーターを使った PI 制御によって温度調整行う。

コールドフィンガーへの試料の取り付けは，サンプルパッケージ部品を使用する。図 4-2 にサンプルパッケージ部品の概略図と実物の写真を示す。試料は銀ペーストを使って銅ブロックに貼り付けた。パッケージ背面の穴は背面からのテラヘルツ波の放射に使用することが出来る。デバイスの上面および背面には半径 3.1 mm の高抵抗シリコン半球レンズを取り付けた。半球レンズの半径を  $R$  とすると，半球レンズの焦点距離  $F$  は次式で求められる

$$F = \frac{R}{n_r - 1} \quad (30)$$

ここで  $n_r$  は高抵抗シリコンの屈折率である。テラヘルツ帯の屈折率をレンズの仕様書から  $n_r = 3.41$  とすると， $F = 3.1 / (3.41 - 1) \approx 1.3$  と求まる。レンズと試料の距離は焦点距離に一致している。

高抵抗シリコンの 295 K の屈折率は  $3.417 \pm 0.0034$ ，4 K の屈折率は  $3.389 \pm 0.03$  と報告されている[40]。ここで，屈折率は 4.2–7.7 THz の平均値を示す。この結果から，本研究で取り扱う周波数領域で，高抵抗シリコンの屈折率の温度変化は小さいものと推測できる。

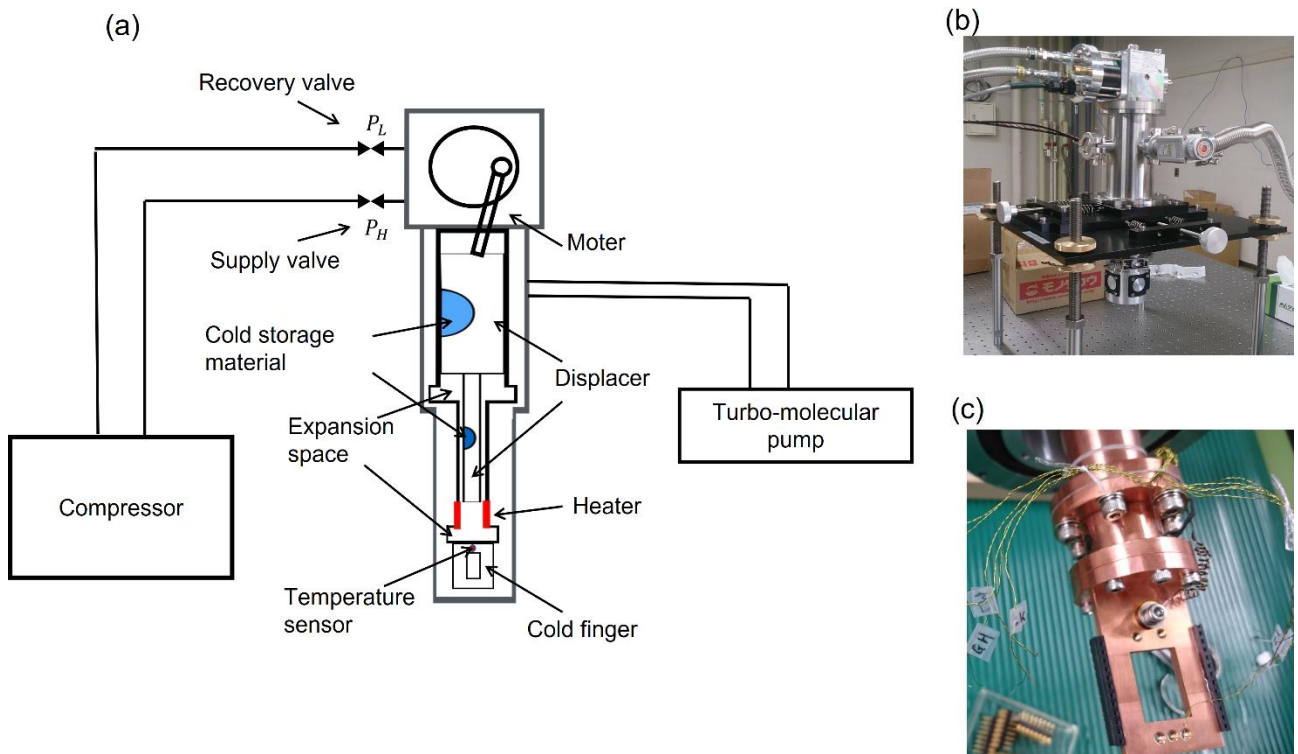


図 4-1 : GM 冷凍機の内部構造と実物写真.  $P_H$ は高圧力,  $P_L$ は低圧力をそれぞれ表している.  
 (a)内部構造と全体の概略図, (b)GM 冷凍機クライオスタット, (c)コールドフィンガー.

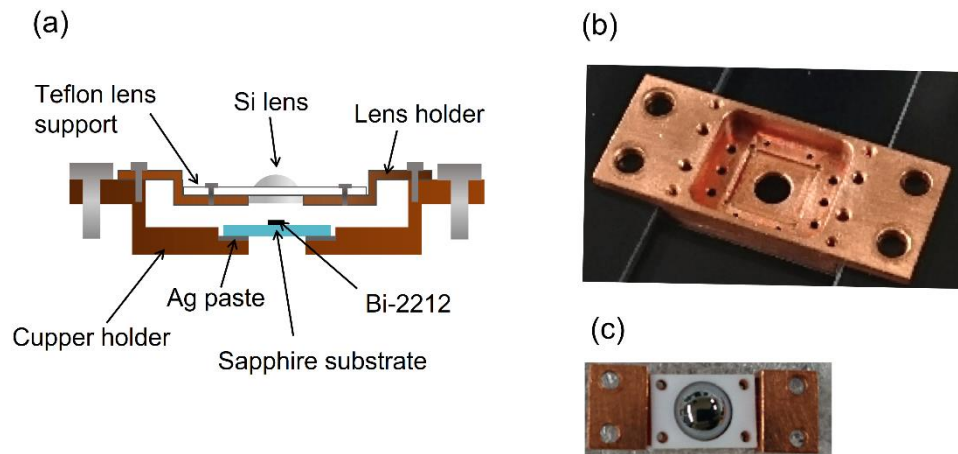


図 4-2 : サンプルパッケージ(a)概念図. (b)実物. (c)レンズホルダー

## 4-2 シリコンボロメータ

テラヘルツ波の検出は図 4-3 に示す Infrared Laboratories 社製のシリコンボロメータを用いる。シリコンボロメータはテラヘルツ波の同型検出器の中でもっとも高感度である。構成としては、高密度ポリエチレン (HDPE) 窓、ローパスフィルター、集光用のウィンストンコーン、外部熱輻射を遮蔽するクライオスタット、および熱的信号を電気信号へ変換するセンサー部からなる。検出原理ではシリコン系化合物の抵抗の温度依存性を利用している。ウィンストンコーンで集めたテラヘルツ波がセンサーに照射されたとき、センサーの温度がわずかに上昇するため電気抵抗が変化する。この変化量を増幅してテラヘルツ波のエネルギーを熱的に測定する。シリコンボロメータの動作速度はセンサー部の熱的な緩和時間によって決まり、典型的には 100 Hz 程度である。本研究で検出するテラヘルツ波のエネルギーは微小であるため、光学チョッパーを用いて 80 Hz に変調してロックイン検出を行っている。

## 4-3 スプリットミラー型干渉計

テラヘルツ波の分光を行うために、先行研究[41]を参考にしてスプリットミラー型干渉計を構築した。この干渉計の写真を図 4-4 に示す。スプリットミラー型干渉計の動作原理について説明する。図 4-5(a)にスプリットミラーの写真を示す。ミラーは光学定盤上の固定鏡と 1 軸走査ステージに搭載した可動鏡からなる。図 4-45(b)に上方から見た概念図を示す。固定鏡と可動鏡で反射した 2 つのテラヘルツ波には次式で表される光路差が生じる。

$$\Delta x = d(1 + \cos\theta) = 2d\cos^2\frac{\theta}{2} \quad (31)$$

ここで  $d$  は可動鏡の位置、 $\theta$  は入射角である。光波の性質から、光路差が半波長の整数倍に一致するごとに検出強度が極大を示す。このインターフェログラムをフーリエ変換で波長分解すれば、テラヘルツ波の分光スペクトルが得られる。赤外領域の分光法でより用いられるこの手法は、フーリエ変換赤外分光法 (FT-IR : Fourier transform infrared spectroscopy) と呼ばれる。FT-IR の周波数分解能は

$$\Delta f = \frac{c}{\Delta x} = \frac{c}{2d_{\max}\cos^2\frac{\theta}{2}} \quad (32)$$

であり、ミラーの最大可動距離  $d_{\max}$  に反比例する。本研究では  $\Delta f = 12$  GHz となる。ここで  $d_{\max} = 12.3$  mm、 $\theta = 15^\circ$  として計算した。

## 4-4 出力感度の校正

出力感度の校正は、図 4-6(a)と(b)に示す乾熱量形式パワーメータ (Erickson Power Meters PM4, VDI 社) で実施した。図 4-7(a)はシリコンボロメータで検出したメサの出力特性を示す。プリアンプのゲインを 50 倍とした。また図 4-7(a)の挿入図に  $I$ - $V$  特性を示した。図 4-7(b)は  $I$ - $V$  スキャン中の時間に対する出力応答を表す。ここで、最大出力が得られたバイアス点の発振周波数は 0.67 THz であった。図 4-8(a)はパワーメータの応答を示す。図 4-8(b)にドリフト成分を差し引きした応答を示した。図 4-7(b)と図 4-8(b)の比較から 7.5 nW/1 mV が得られる。図 4-9 に室温における HDPE 窓/ローパスフィルターの透過率と波長の関係を示す。ローパスフィルターはポリエチレンフィルムと 5-10  $\mu\text{m}$  のダイヤモンド粒子で構成されている。波長 200-350  $\mu\text{m}$  (周波数 0.86-1.50 THz) における HDPE 窓/ローパスフィルターの透過率を見ると、透過率がほぼ一定であることが分かる。センサー部の感度が波長 200  $\mu\text{m}$  以上で変わらないと仮定すれば、検出器の感度はその波長域で一定とみなすことができる。

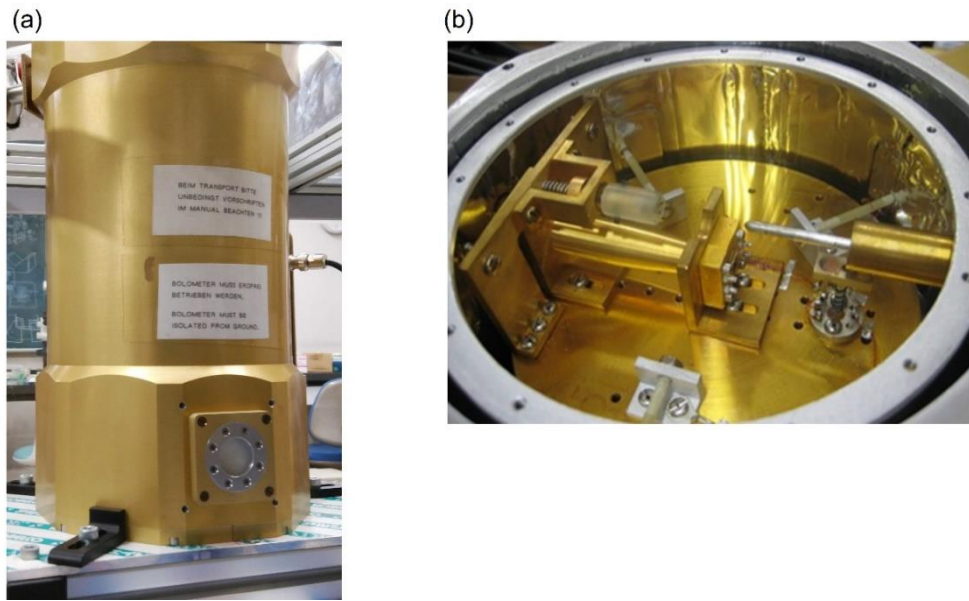


図 4-3 : (a)シリコンボロメータの外観。 (b)内部構造。

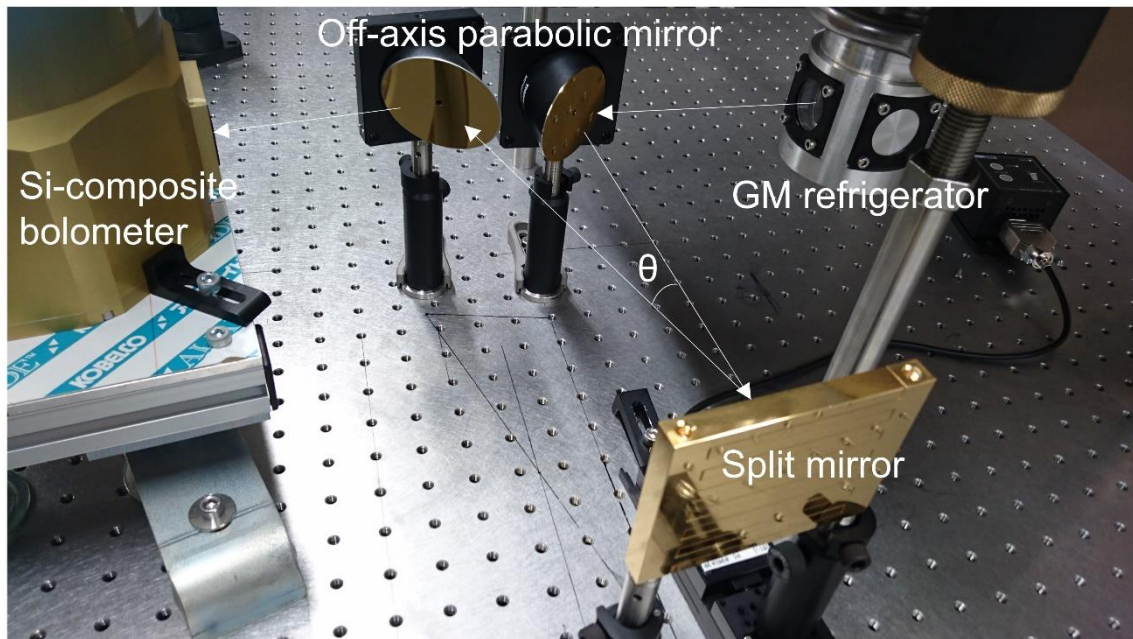


図 4-4 : スプリットミラー型干渉計。

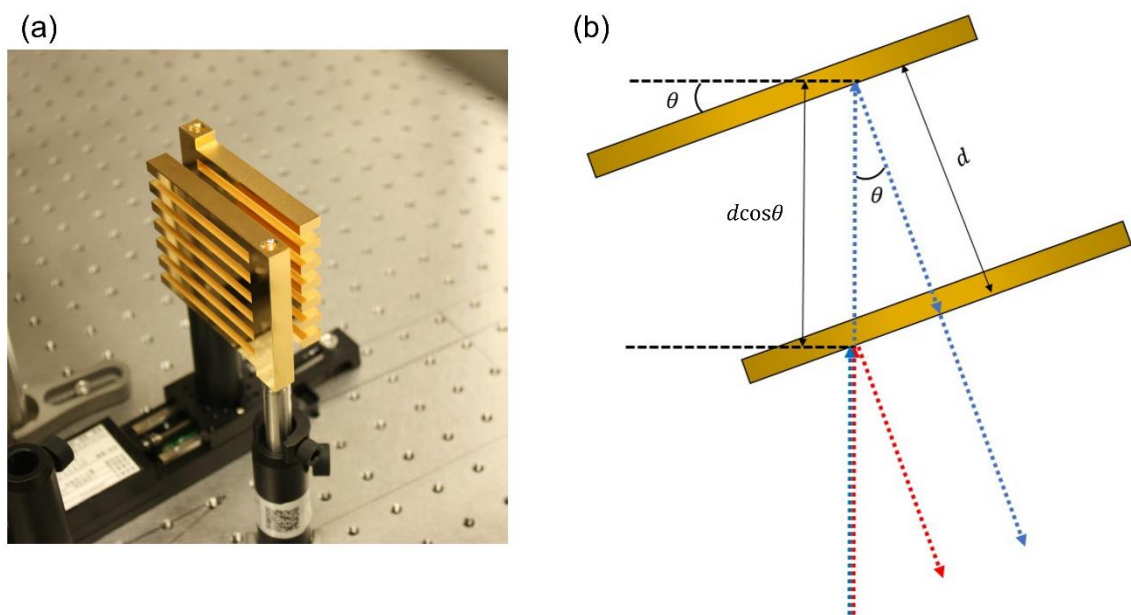


図 4-5 : (a)スプリットミラー. (b)上方から見たスプリットミラーの模式図.

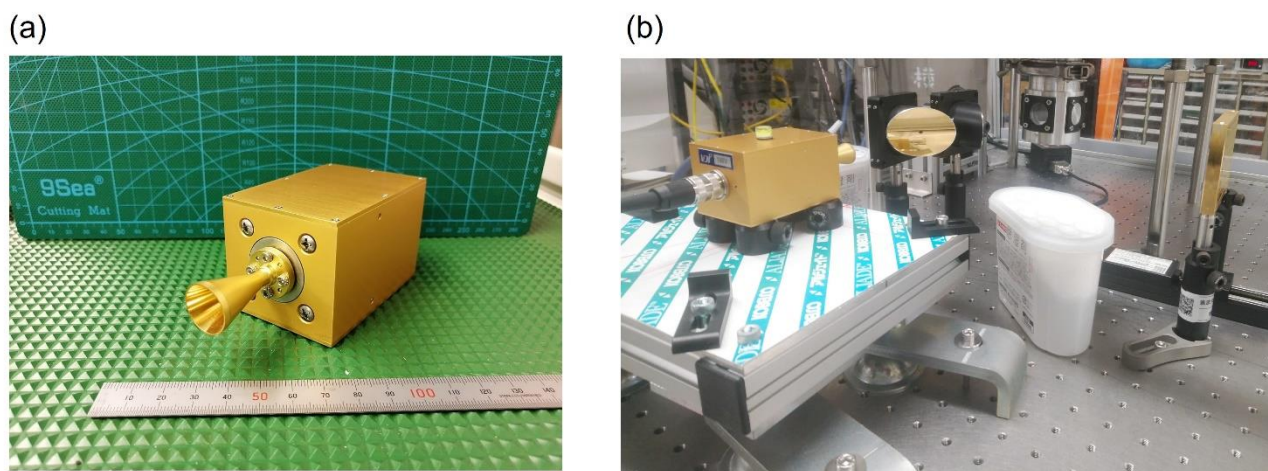


図 4-6 : (a)乾熱量形式パワーメータ. (b)校正時のパワーメータの位置.

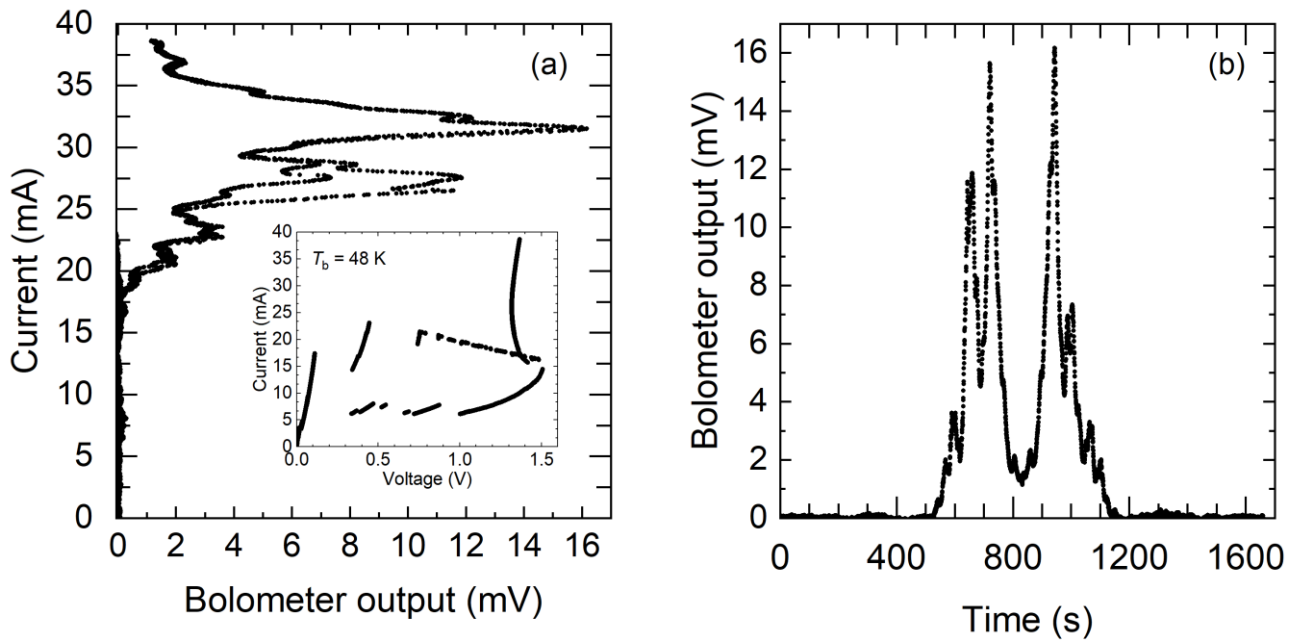


図 4-7：シリコンボロメータの応答. (a)電流に対する応答. 挿入図は $I$ - $V$ 特性. (b)時間に対する応答.

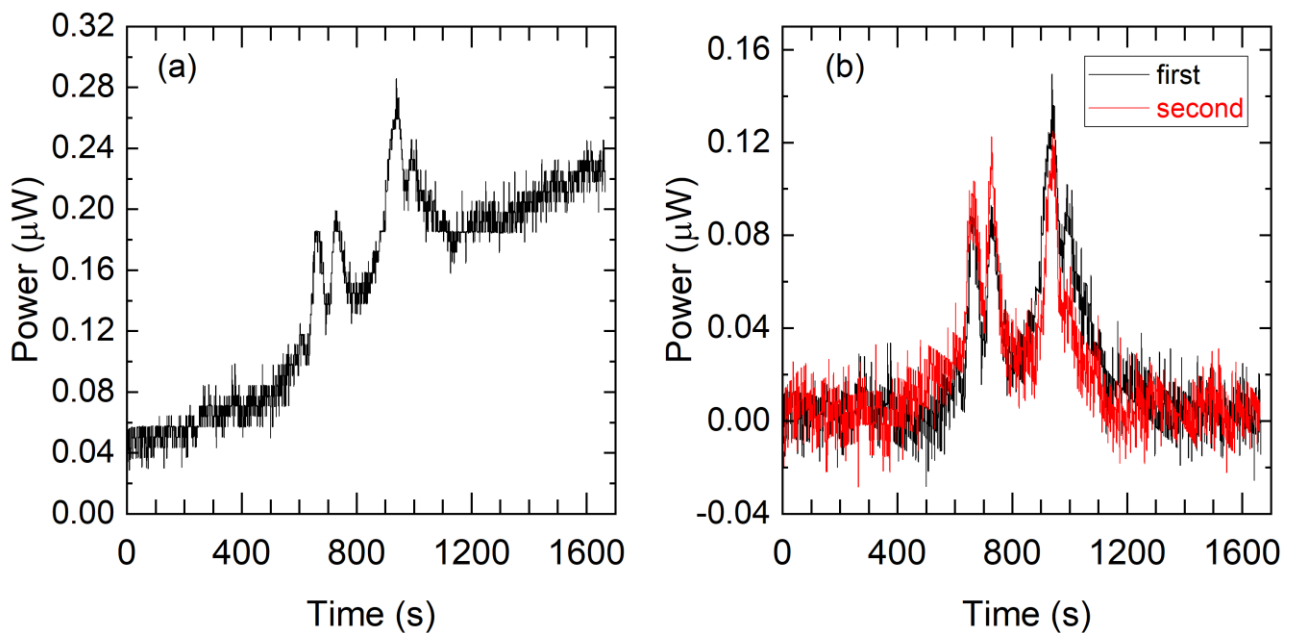


図 4-8：時間に対するパワーメータの応答. (a)ドリフト差し引き前. (b)ドリフト差し引き後. 黒は 1 回目, 赤は 2 回目の $I$ - $V$ スキャン中の応答.

1 MM HI DENSITY POLYETHYLENE W/DIAMOND (5-10 $\mu$ ) ONE SIDE, 300°K

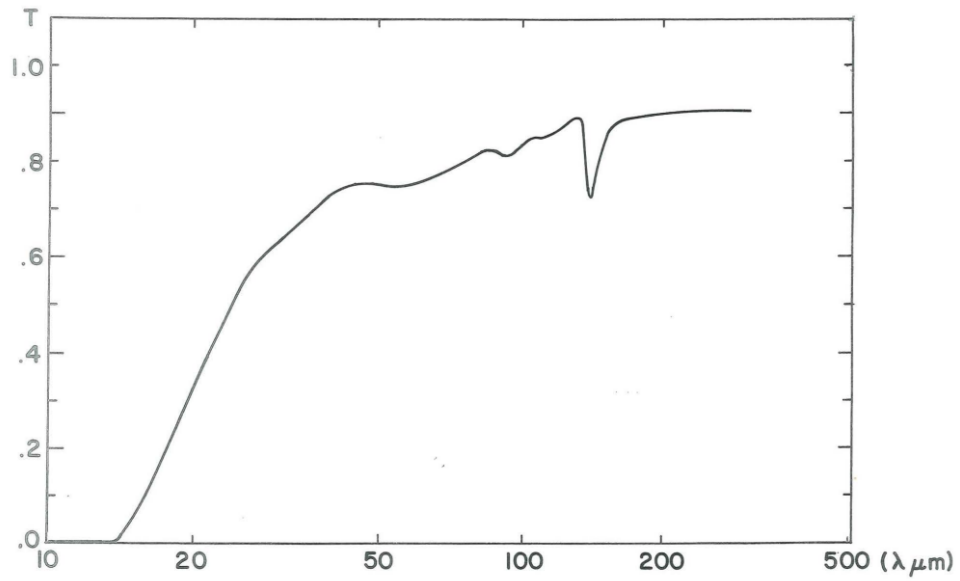


図 4-9：高密度ポリエチレン窓／ローパスフィルターにおける透過率の波長依存性. シリコンボロメータの取扱説明書より転載.



## 第5章 特性分布幅をもつ固有接合列の同期の検証①

第4章では、性質の異なるフォトレジストを使い分けることで、同一結晶基板上に $\gamma$ が異なるメサを意図的に作製する手法を示した。ここではその手法で作製した3つの素子の実験結果を示し、特性分布幅の効果を議論する。

### 5-1 テラヘルツ波放射の促進と抑制

#### 5-1-1 素子1と1Sの断面形状パラメータと超伝導転移温度

著者は第一に、 $\gamma$ が大きく異なる2つのメサの放射特性を比較した。図5-1(a)は素子1のSEM像、図5-1(b)はメサ1Aと1Bの断面プロファイル、図5-1(c)はc軸抵抗の温度依存性を示す。また、素子1と同時並行して作製した素子1SのSEM像、断面プロファイル、c軸抵抗の温度依存性を図5-2(a), (b), (c)にそれぞれ示す。メサ断面形状パラメータと超伝導転移温度は表5-1にまとめた。メサ1Aと1Bの $\gamma$ はそれぞれ1.6%と10.8%である。表5-1から分かるように、メサ1SAと1SBの $\gamma$ は素子1とほぼ同じである。本研究では超伝導転移の終端温度 $T_{c,end}$ を超伝導転移温度とした。表5-1が示すように、素子1と1Sの転移温度は若干異なるが、同じ結晶基板上のメサに関しては、期待通り転移温度のバラつきはない。

#### 5-1-2 素子1と1Sの放射特性

図5-3(a)と(b)は $T_b = 40.0$  Kにおける素子1のI-V特性と出力特性を示し、メサ1Aが高バイアス域(33.7–42.7 mA)で放射していることを意味する。図5-3(b)の挿入図はメサ1Aから得られたスペクトルを示す。最大出力のバイアス点で分光した結果、発振周波数は0.51 THzであった。一方で、 $T_b$ を変えてもメサ1Bからの放射は得られなかった。図5-4(a)-(d)は $T_b = 25.0$ – $50.0$  Kにおける素子1のI-V特性と出力特性を示す。図5-4から分かるように、メサ1Aから常に放射が確認できる一方、メサ1Bからの放射は生じていない。

図5-5(a)はメサ1Aの発振周波数の $T_b$ 依存性を示す。メサ1Aはバイアス点の調整と $T_b$ の変化で0.49–0.53 THzの放射を起こす。図5-5(b)ではスペクトルピーク高さを発振周波数に対してプロットした。メサ1Aの最大ピーク高さは0.50 THzで得られる。Bi-2212の屈折率を $n = 4.2$ とし、表5-1に示すメサ1Aの上底幅と下底幅を用いて共振周波数 $f_c$ を計算すると0.50–0.52 THzとなる。発振周波数は $f_c$ と良い一致を示すため、メサ1Aはメサ幅で共振していると考えられる。

図5-6(a)と(b)は $T_b = 55.0$  Kにおける素子1SのI-V特性と出力特性を示し、メサ1SAのみ放射が生じていることを意味する。挿入図は最大出力のバイアス点で測定したスペクトルを示す。発振周波数は0.486 THzのため、メサ幅方向で共振していると考えられる。メサ1SAは $T_b = 50.0$ – $60.0$  Kの狭い温度範囲で放射するため、細かな特性はメサ1Aと異なる。一方で、メサ1SBからの放射が得られないことは、素子1と同じである。以上の結果は、 $\gamma$ とテラヘルツ波放射機構が密接に関連することを端的に示す[42]。位相同期の観点から考察すると、 $\gamma$ の大きなメサ1Bと1SBは位相同期が達成できず、各接合に励起された振動電磁場が互いに打ち消し合ったため、メサ1Bと1SBからの放射が起こらなかったと考えられる。

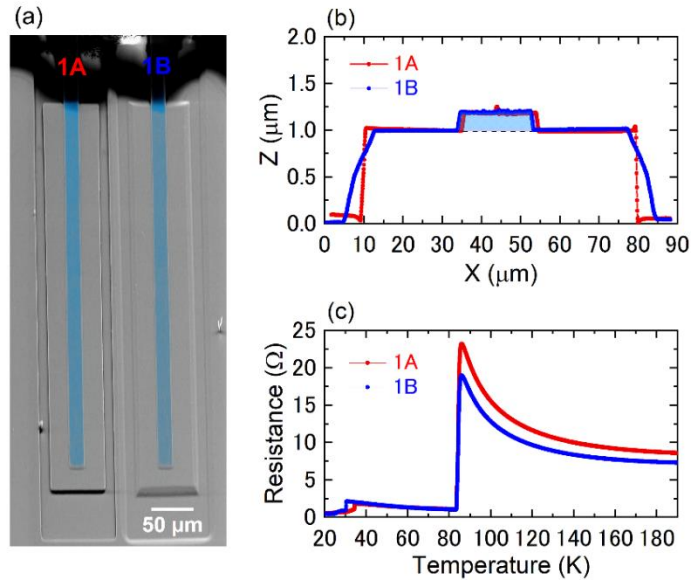


図 5-1 : (a)素子 1 の SEM 像. (b)メサ断面プロファイル. (c)c 軸抵抗の温度依存性.

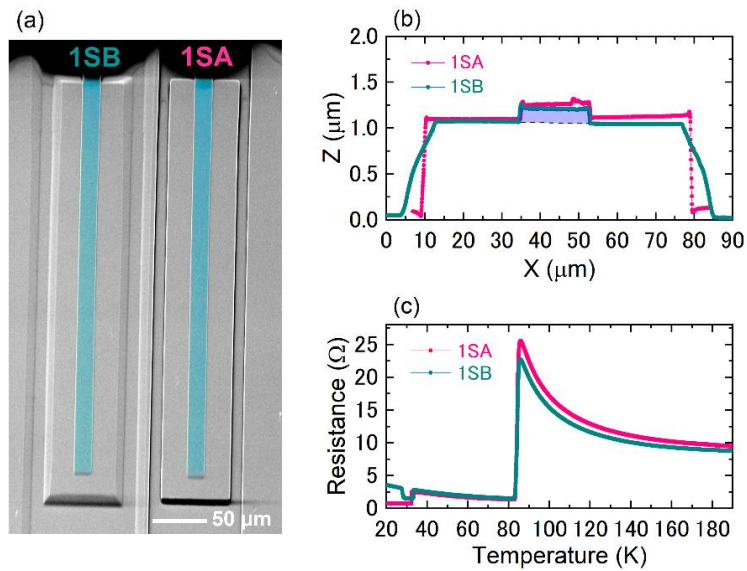


図 5-2 : (a)素子 1S の SEM 像. (b)メサ断面プロファイル. (c)c 軸抵抗の温度依存性.

表 5-1 : 素子 1 と素子 1S の断面形状パラメータと超伝導転移温度

Parameter	1A	1B	1SA	1SB
$w_t$ ( $\mu\text{m}$ )	68.7	64.6	68.3	64.0
$w_b$ ( $\mu\text{m}$ )	71.0	80.3	70.6	81.4
$t$ ( $\mu\text{m}$ )	0.99	0.98	1.06	1.02
$\gamma$ (%)	1.6	10.8	1.7	10.8
$T_{c\_end}$ (K)	83.5	83.5	83.0	83.0

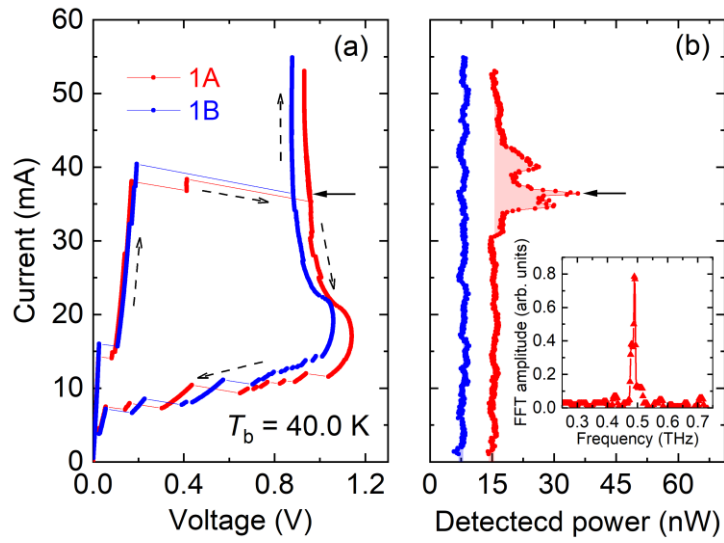


図 5-3 : 素子 1 の特性. (a)  $T_b = 40.0$  K の  $I$ - $V$  特性. (b) 出力特性. 挿入図は  
 図中矢印のバイアス点で測定したスペクトル.

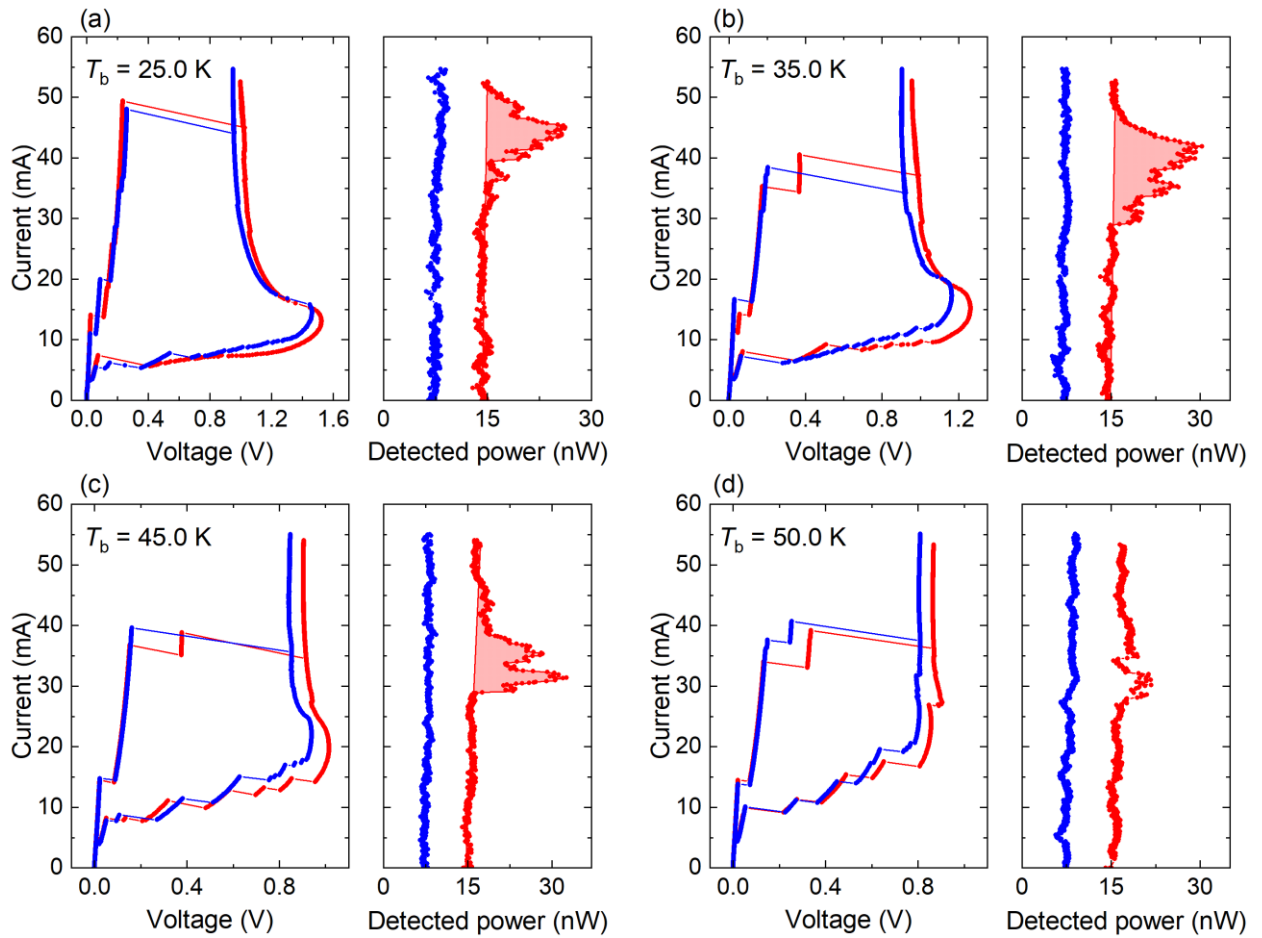


図 5-4 : 素子 1 の  $I$ - $V$  特性及び出力特性の熱浴温度依存性. (a)  $T_b = 25.0$  K, (b)  $T_b = 35.0$  K,  
 (c)  $T_b = 45.0$  K, (d)  $T_b = 55.0$  K.

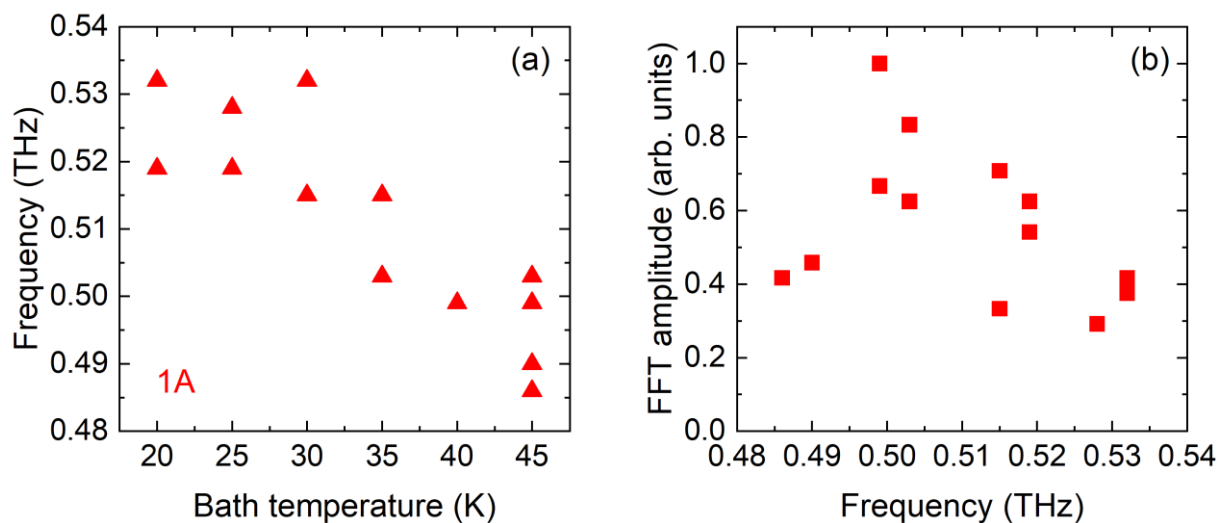


図 5-5 : (a) メサ 1A の発振周波数の熱浴温度依存性. (b) 発振周波数とスペクトルピーク高さの関係.

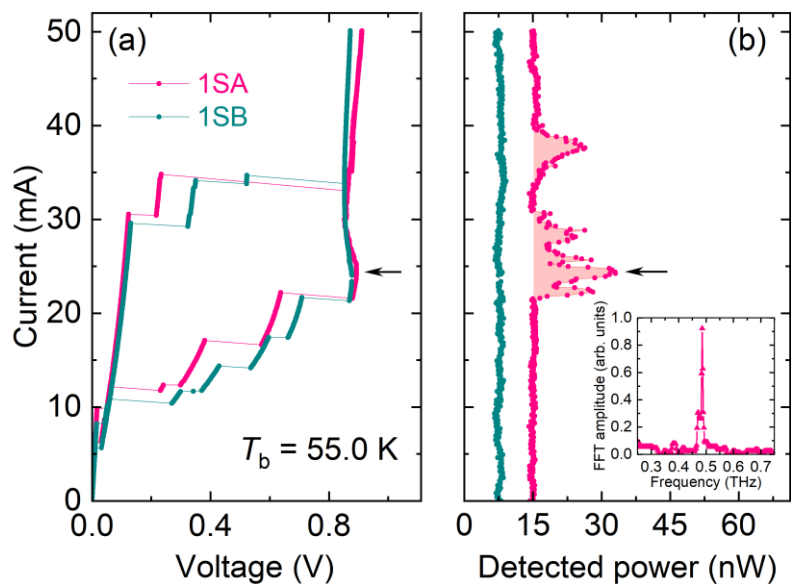


図 5-6 : 素子 1S の特性. (a)  $T_b = 55.0$  K の  $I$ - $V$ 特性, (b)出力特性. 挿入図は  
図中矢印のバイアス点で測定したスペクトル.

## 5-2 $\gamma \sim 10\%$ のメサからの高バイアス域放射

素子1と素子1Sでは $\gamma \sim 10\%$ のメサからの放射が起こらなかった。しかしながら、 $\gamma \sim 10\%$ のメサから放射する例もある。その素子は特徴的な*I-V*特性を示し、高バイアス域で放射する。ここではその結果を記述する。

### 5-2-1 素子2の断面形状パラメータと超伝導転移温度

図5-7(a)は素子2の光学顕微鏡像を示す。これらのメサは【3-2-1】で示したOFPRの焦点深度依存性を利用して作製した。図5-7(b)はメサ2A, 2B, 2Cの拡大図を示し、それぞれのメサの断面形状が異なることを表す。図5-7(c)に3つのメサの断面プロファイル、図5-7(d)にc軸抵抗の温度依存性を示す。断面形状パラメータと超伝導転移温度は表5-2にまとめた。メサ2A, 2B, 2Cの $\gamma$ はそれぞれ9.5%, 12.7%, 14.6%である。

### 5-2-2 素子2の放射特性

図5-8(a)は素子2の $T_b = 40.0$  Kにおける*I-V*特性と出力特性を示し、メサ2Aと2Bから放射が生じていることを意味する。また、図5-8(b)に示したは素子2の $T_b = 45.0$  Kにおける特性から分かるように、微弱ではあるがメサ2Cからも放射が生じる。メサ2A, 2B, 2Cの最大強度はそれぞれ16.3 nW, 4.1 nW, 3.7 nWであった。

図5-8(a)と(b)を見ると、*I-V*特性に複雑な電圧ジャンプが生じていることが分かる。図5-9ではメサ2Aの*I-V*特性の拡大図を示すと共に、出力を*I-V*特性上にカラーマップした。図5-9から分かるように、電圧が不連続に変化する領域で放射が生じる。高バイアス域の不連続な電圧変化は、ホットスポットの複雑な移動によって起こると考えられる[43]。メサ2A, 2B, 2Cの $\gamma$ は比較的大きいにも関わらず、放射が起こった理由として、【1-3-3】で示したホットスポットによる位相同期の促進作用が考えられる。Wangらの指摘やYurgensの数値シミュレーションが示すように、ホットスポットはシャント抵抗として機能し、系のコヒーレンスを向上させることがある[19][14]。

以上の結果が示すように、 $\gamma \sim 10\%$ のメサから放射が生じる場合もある。興味深い点は、同一結晶基板上にある3つのメサの内、 $\gamma$ が最も小さいメサ2Aの出力が一番大きいことである。これは素子1, 素子1Sとの共通点である。

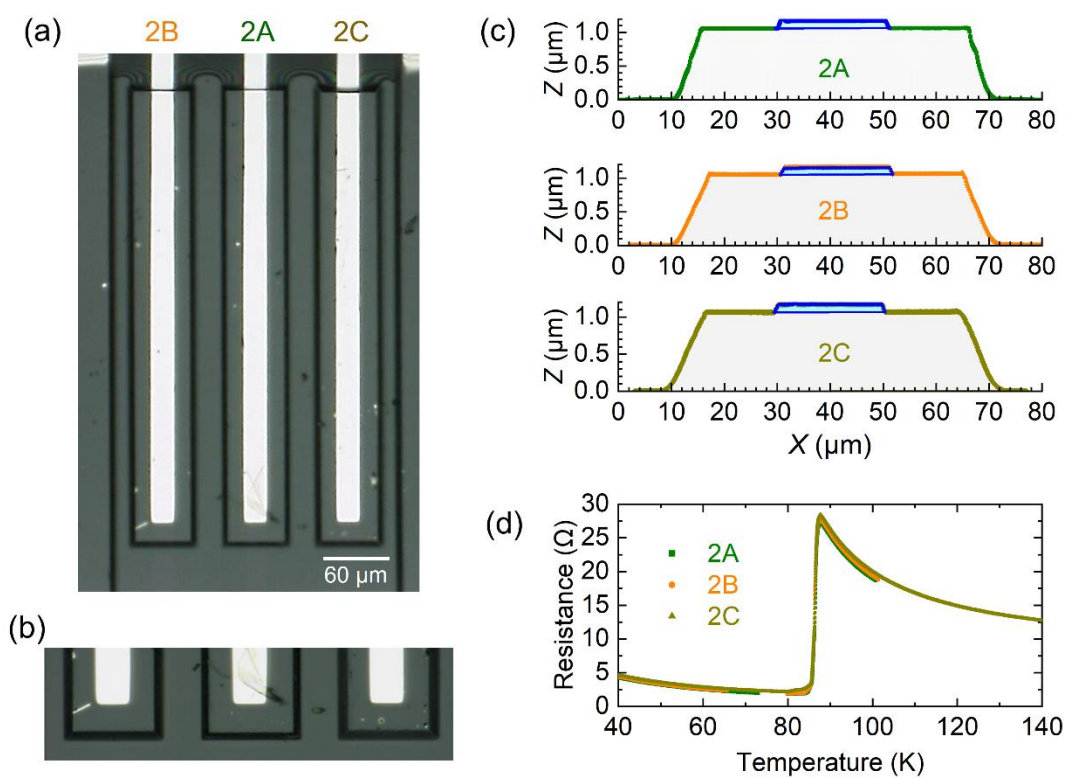


図 5-7 : (a)素子 2 の光学顕微鏡像. (b)拡大図. (c)断面プロファイル. (d) c 軸抵抗の温度依存性.

表 5-2 : 素子 2 の断面形状パラメータと超伝導転移温度

Parameter	2A	2B	2C
$w_t$ (μm)	50.2	48.0	48.1
$w_b$ (μm)	60.7	62.0	64.5
$t$ (μm)	1.05	1.05	1.05
$\gamma$ (%)	9.5	12.7	14.6
$T_{c\_end}$ (K)	84.9	84.9	84.9

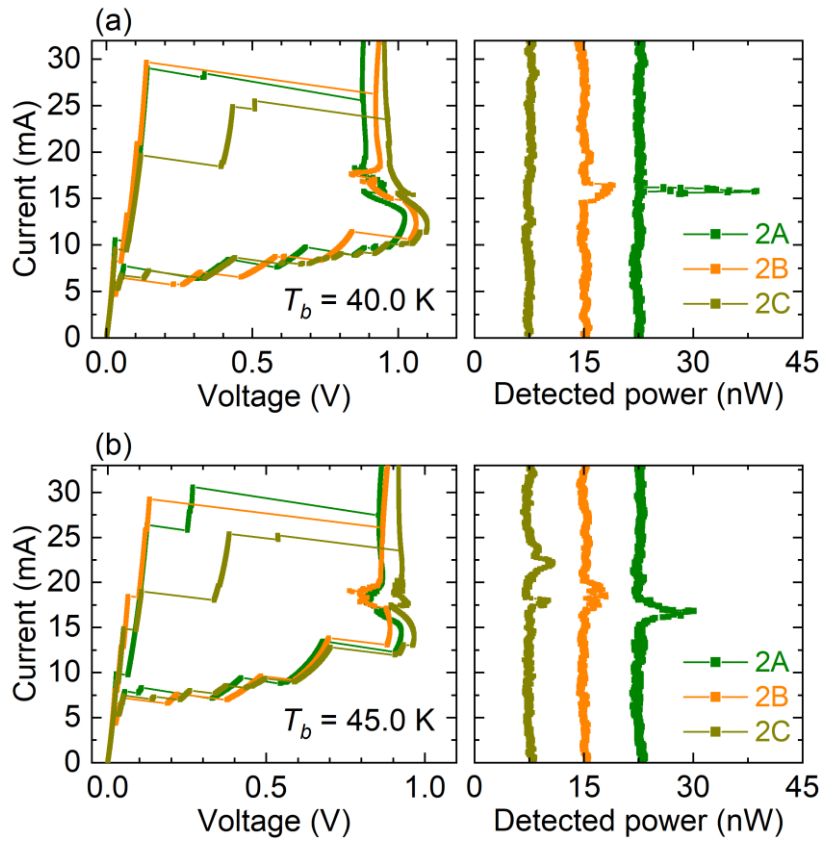


図 5-8 : 素子 2 の  $I$ - $V$ 特性と出力特性. (a)  $T_b = 40.0$  K, (b)  $T_b = 45.0$  K.

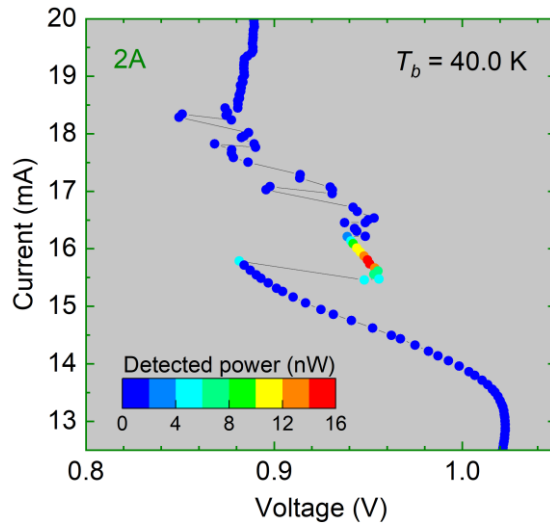


図 5-9 :  $T_b = 40.0$  Kにおけるメサ 2Aの  $I$ - $V$ 特性. 出力特性をカラーマップした.

### 5-3 素子3： $\gamma=6.9\%$ のメサからの低バイアス域放射

#### 5-3-1 素子3の断面形状パラメータと超伝導転移温度

【5-2】に示したように $\gamma\sim 10\%$ のメサから放射する場合もあるが、再現性が低い。そこで著者は $\gamma < 10\%$ のメサを作製し、放射特性を調べた。図 5-10(a)は素子3の光学顕微鏡像を示す。素子3はBi-2212表面を露出させない方法で作製した。素子1と素子2の電極作製方法は、プロセスの少ない簡単な方法であるが、電極の下に薄いメサ構造ができる。電極の下のメサ構造が電圧状態へ移行すると、ジュール熱が発生するため、放射部となるメサの実効温度に影響を与える可能性がある。素子1と素子2の結果から、 $\gamma$ が放射特性に影響を与えることが分かったため、加工プロセスは増えるが、可能な限りジュール発熱の影響を減少させることにした。図 5-10(b)はイオンエッチング後のメサ断面プロファイル、図 5-10(c)はc軸抵抗の温度依存性を示す。断面形状パラメータと超伝導転移温度は表 5-3 に示した。メサ 3A と 3B の $\gamma$ はそれぞれ 1.4% と 6.9%である。

#### 5-3-2 素子3の放射特性

図 5-11(a)は $T_b = 55.0\text{ K}$ ,  $60.0\text{ K}$ におけるメサ 3A の $I$ - $V$ 特性と出力特性を示し、メサ 3A から低・高バイアス域の両方で放射が生じることを意味する。図 5-11(b)にはメサ 3B の $I$ - $V$ 特性と出力特性をプロットした。図 5-11(b)から分かるように、メサ 3B は部分電圧状態で放射が起こる。この結果は、 $\gamma$ の小さなメサは全接合が電圧状態で放射しやすい一方、 $\gamma$ の比較的大きなメサは部分電圧状態での放射が起こりやすいことを示唆する。また、メサ 3A の最大出力はメサ 3B と比較して大きい。この結果は、素子 1、素子 1S、素子 2 と共通である。

図 5-12(a)はメサ 3A の発振周波数の $T_b$ 依存性を示す。メサ 3A からは高バイアス域で 0.53–0.59 THz の放射が起こり、低バイアス域で 0.51 THz の放射が起こる。図 5-12(b)ではスペクトルピーク高さを発振周波数に対してプロットした。メサ 3A は 0.53 THz と 0.57 THz に最大ピーク高さを持つ。0.53 THz の放射はメサ幅方向の共振と考えられる一方で、0.57 THz の放射はメサ幅方向と長さ方向のモード励起の可能性もある[19]。

図 5-13 は $T_b = 65.0\text{ K}$ におけるメサ 3B の $I$ - $V$ 特性と出力特性の拡大図を示す。メサ 3B からは $V = 0.5\text{ V}$ で 0.43 THz、 $V = 0.2\text{ V}$ で 0.50 THz の放射が起こる。表 5-3 に示したメサ 3B の上底幅と下底幅から共振周波数 $f_c$ を計算すると 0.45–0.52 THz となる。発振周波数は $f_c$ と概ね一致するため、メサ 3B はメサ幅方向で共振していると考えられる。



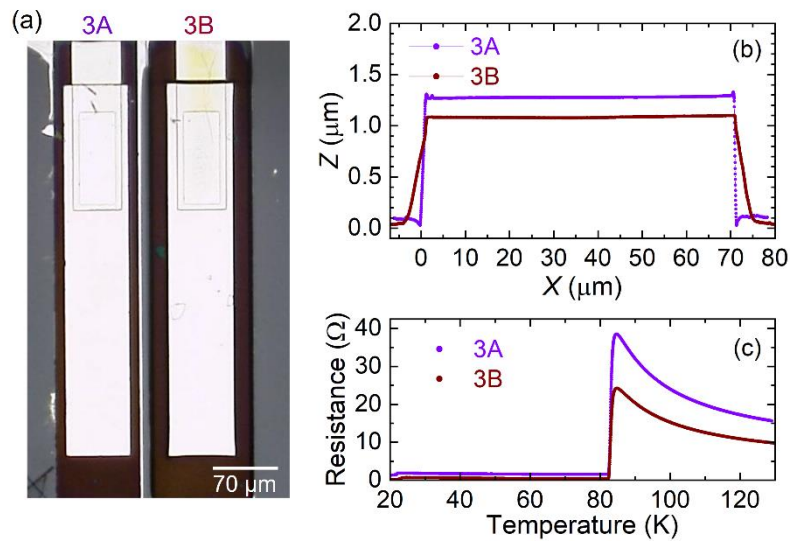


図 5-10 : (a)素子 3 の光学顕微鏡像. (b)断面プロファイル. (c) c 軸抵抗の温度依存性.

表 5-3 : 素子 3 の断面形状パラメータと超伝導転移温度

Parameter	3A	3B
$w_t$ ( $\mu\text{m}$ )	69.3	69.3
$w_b$ ( $\mu\text{m}$ )	71.3	79.6
$t$ ( $\mu\text{m}$ )	1.24	1.03
$\gamma$ (%)	1.4	6.9
$T_{c\_end}$ (K)	82.4	82.4

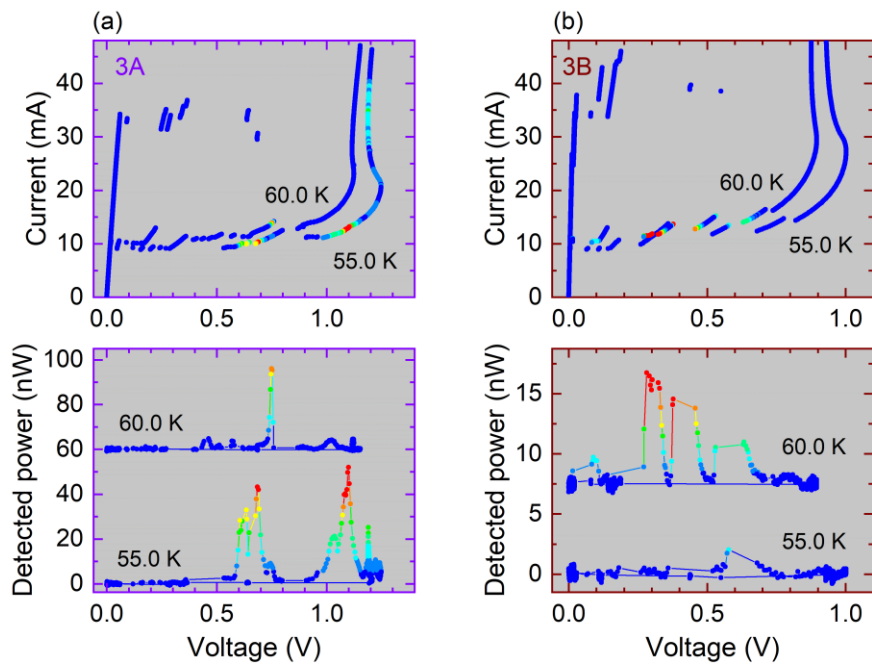


図 5-11 :  $T_b = 55.0, 60.0$  K の  $I$ - $V$ 特性と出力特性. (a)メサ 3A, (b)メサ 3B.

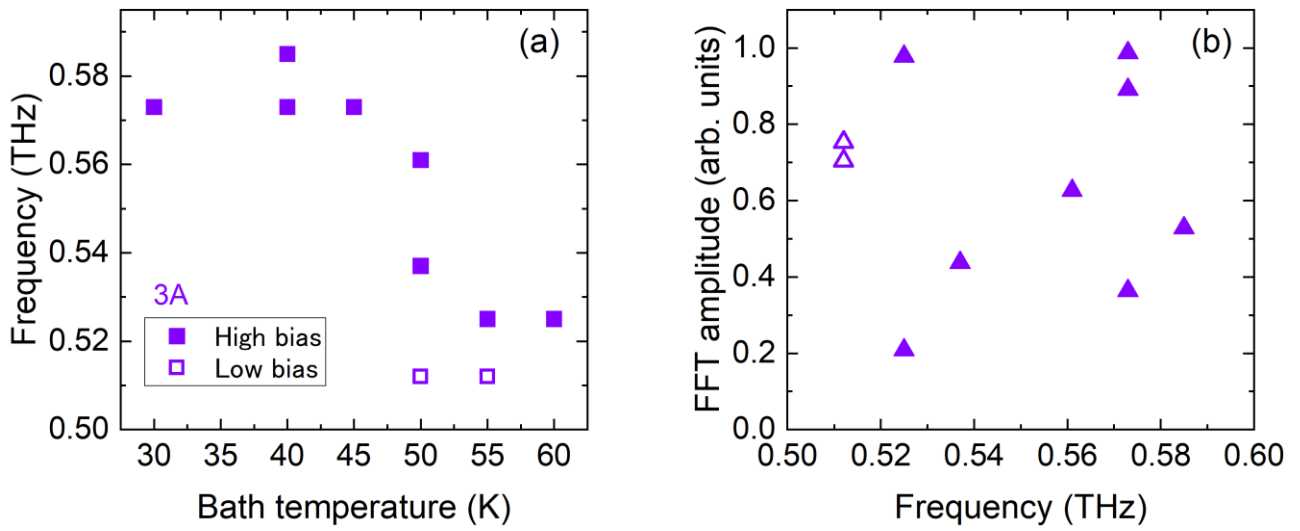


図 5-12 : (a)メサ 3A の発振周波数の熱浴温度依存性. (b)発振周波数とスペクトルピーク高さの関係.

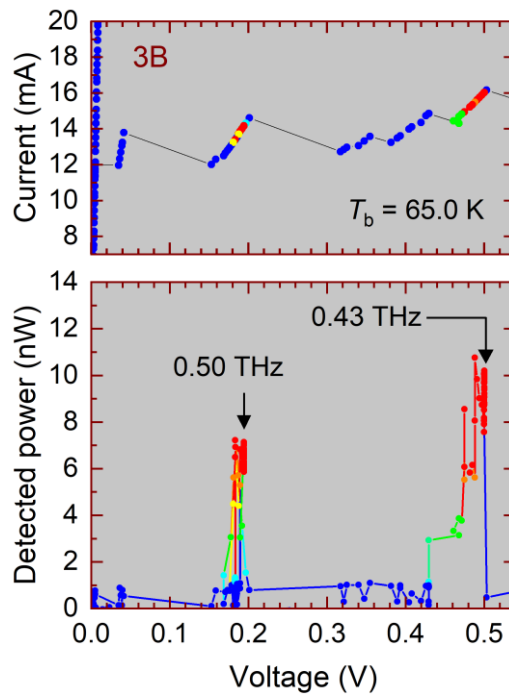


図 5-13 :  $T_b = 65.0$  K におけるメサ 3B の  $I$ - $V$ 特性, 出力特性, 及び発振周波数.

## 第6章 特性分布幅をもつ固有接合列の同期の検証②

同一結晶基板上に $\gamma$ が異なる複数のメサを作製し、それらメサの放射特性を比較することにより、 $\gamma$ の小さなメサはテラヘルツ波の放射を促進することが分かった。ここで、例えば $\gamma=10\%$ ならば共振周波数や準粒子抵抗の分布幅も10%とみなしたいところである。しかしながら、準粒子抵抗の分布が温度勾配の影響を受けることに加え、電圧 $V$ と準粒子トンネル電流 $I_r$ は非線形関係にあるため、準粒子抵抗の分布は $\gamma$ のみで決定しない。 $\gamma$ と準粒子抵抗の分布が一对一に対応するバイアス域は、先行研究の数値シミュレーション[21]で議論されているように、温度分布が均一かつ $V \propto I_r$ と仮定できる低バイアス域である。第5章で示した素子構造では、高バイアス域でのみ放射が起こる場合もあれば、低・高バイアス域の両方で放射することもある。そのため、低バイアス域での放射を再現よく起こす工夫が必要である。さらに、先行研究で報告されているような広い周波数可変範囲[23][24][25]を実現した上で、 $\gamma$ と放射特性を比較することも本研究の目的である。

### 6-1 高熱伝導エポキシ樹脂の導入

低バイアス域放射を意図的に起こすことに加え、幅広い周波数可変範囲を実現するためには、素子の排熱性の向上が重要だと考えられる。Jiらの報告では、高バイアス域でのみ放射していた素子の排熱性を向上させることで、低バイアス域での放射が起こるようになっていく[23]。そして、低バイアス域で0.29–1.15 THzの放射を実現している[23]。素子の排熱性の向上により、素子の最大到達電圧と動作温度が向上するため、周波数可変範囲が拡大すると考えられる。また、ジュール発熱による素子の実効温度の上昇を抑えることは、電圧のリトラッピング確率に変化をもたらすため、低バイアス域での放射を促進すると期待できる。そこで著者は先行技術を取り入れることにより、素子の排熱性を向上させる。

先行研究において、最も排熱効率を向上させた方法は、KashiwagiらやMinamiらが行ったように、メサ上面に熱伝導率の高いサファイア基板を直接圧着する、または非常に薄い熱伝導グリスを介して接触させる手法である[24][25]。一方、図1-13に示すJiらの素子構造のように、エポキシ樹脂を介して放熱板と素子を間接的に接触させることにより、排熱効率を改善する方法もある。著者は、技術的に容易であるJiらの手法を導入すること考えた。しかしながら、一般にエポキシ樹脂の熱伝導率は $\sim 0.3$  W/mKと低いため、Kashiwagiらの直接圧着法のような高い排熱効率は期待できない。そこで著者は、室温での熱伝導率7 W/mKの高熱伝導エポキシ樹脂（リコ・ジーマ・イナス、大阪住友セメント・利昌工業）を導入し、Jiらの手法と組み合わせることで、素子の排熱効率改善を試みた。

#### 6-1-1 高熱伝導エポキシ樹脂の効果

図6-1(a)は素子4の光学顕微鏡像を示す。図6-1(b)に示す断面プロファイルから分かるように、図2-5に示す手順で作製した。断面形状パラメータと超伝導転移温度は表6-1にまとめた。以降、高熱伝導エポキシ樹脂を使って作製した素子のことを埋め込み型素子と呼ぶことにする。図6-2(a)は埋め込み型素子の模式図、図6-2(b)は素子全体の光学顕微鏡像を示す。高熱伝導エポキシ樹脂は120°C、6–12時間加熱することで硬化させた。また放熱板としてサファイア基板を用いた。

図6-3は埋め込み前後におけるメサ4Aのc軸抵抗の変化を示す。埋め込み後の抵抗増加の理由は、120°Cの加熱によってメサと電極の界面状態が変化したためと考えられる。図6-4(a)は $T_b = 55.0$  Kにおける埋め込み前後の $I$ - $V$ 特性の変化を示す。 $I = 40$  mAの到達電圧を比較すると、埋め込み前が1.1 Vに対し、埋め込み後

は 1.8 V へ変化していることが分かる。これは埋め込み後の排熱効率の向上を意味する。埋め込み後の最大スイッチング電流の減少の原因は、c 軸抵抗増加の原因と同様に、加熱によるメサ表面状態の変化によるものと考えられる。

図 6-4(b)は  $T_b = 55.0$  K における埋め込み前後の出力特性の変化を示す。埋め込み前の最大出力が 7.5 nW である一方、埋め込み後の最大出力は 0.18  $\mu$ W であるため、埋め込みにより最大出力が 23 倍向上している。ここで、埋め込み後の最大出力が得られたバイアス点の発振周波数は、図 6-4(b) の挿入図に示すスペクトルから 0.51 THz と分かる。Ji らの先行研究では、【1-3-5】で示したように、GBG 構造から SWS へと変化させることで、7 倍の出力向上が得られている。埋め込む前の素子構造が Ji らのものと異なるが、埋め込みによる一桁以上の出力変化はこれまでに観測されていない。

出力増加の主な起源として、熱的状況の変化が考えられる。埋め込む前のメサ 4A は、 $I$ - $V$ 特性が負性抵抗を示すバイアス域の近傍で放射が生じる。このバイアス域におけるメサの実効温度は、 $T_b$  に対して 10 K 程高いことに加え、温度分布も完全に均一ではない[43]。一方で、埋め込み後のメサ 4A は、 $I$ - $V$ 特性が負性抵抗を示すバイアス域よりもずっと小さなバイアス域で放射が起こる。サブギャップ電圧からメサの実効温度を見積もると[44]、放射が起こるバイアス域でのメサの温度は  $T_b$  と等しいことが分かる。つまり、メサの温度分布が均一となることで、準粒子抵抗等の特性分布が面内と c 軸で一様に近づいたため、埋め込み後の出力が増加したと考えられる。埋め込み型素子の周波数可変範囲については後ほど議論する。

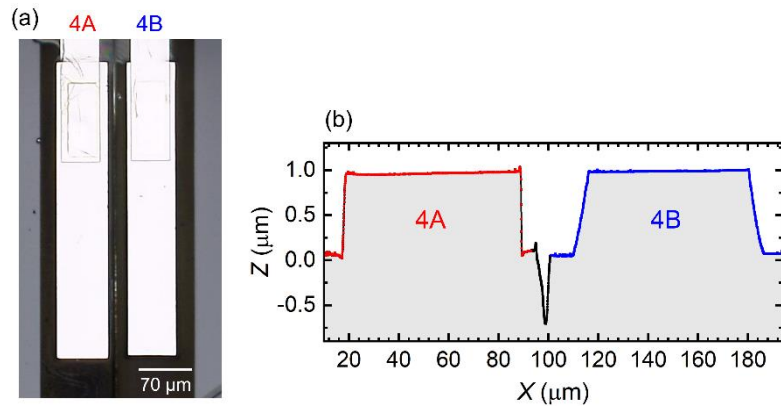


図 6-1 : (a)メサ 4A と 4B の光学顕微鏡像. (b)断面プロファイル.

表 6-1 : 素子 4 の断面形状パラメータと超伝導転移温度

Parameter	4A	4B
$w_t$ (μm)	69.8	64.2
$w_b$ (μm)	72.1	76.7
$t$ (μm)	0.93	0.93
$\gamma$ (%)	1.6	8.9
$T_{c\_end}$ (K)	82.7	82.7

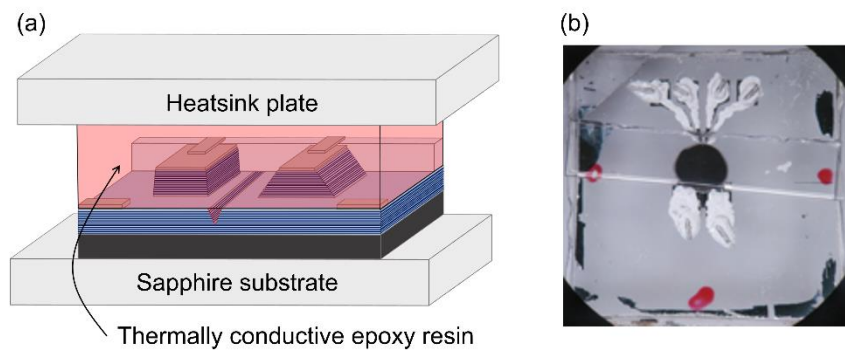


図 6-2 : (a)埋め込み型素子の模式図. (b)埋め込み型素子全体の光学顕微鏡像.

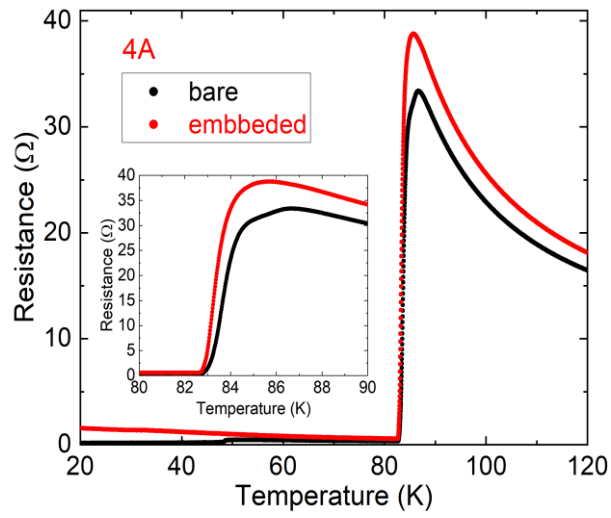


図6-3：メサ4Aの埋め込み前後のc軸抵抗の変化。

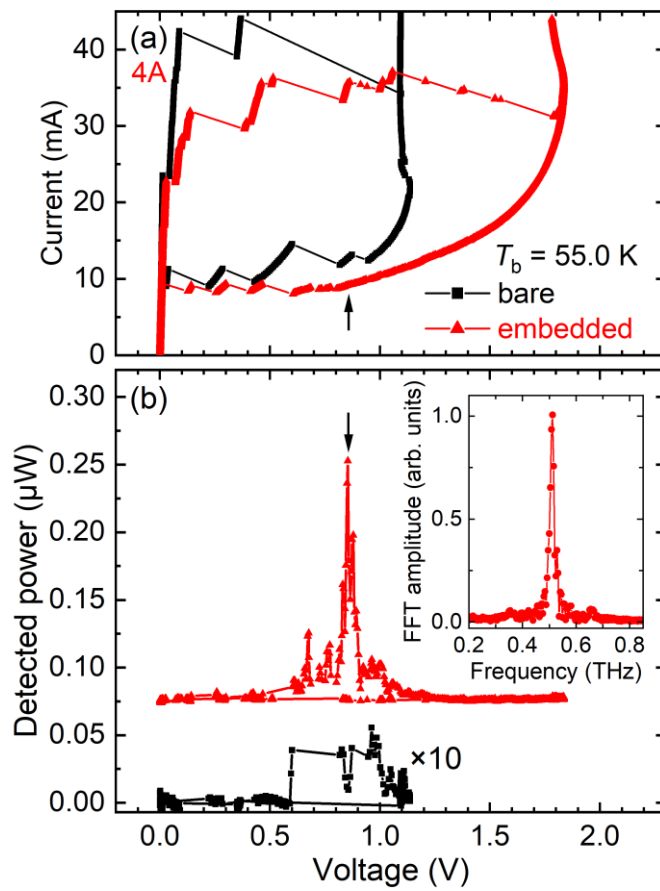


図6-4：(a)メサ4Aの埋め込み前後のI-V特性の変化。(b)出力特性の変化。挿入図は矢印のバイアス点で測定したスペクトル。

## 6-2 低バイアス域の放射閾値

埋め込み型素子を使うことにより，第5章で用いた素子と比べて高出力かつ低バイアス域での放射を実現した．この条件下では， $\gamma \sim 10\%$ のメサからも放射する可能性がある．そこで著者は改めて $\gamma$ の大きなメサの放射特性を調べた．

### 6-2-1 素子4の断面形状パラメータと超伝導転移温度

図6-5に埋め込み型素子4のc軸抵抗の温度依存性を示す．表6-1に示すように，メサ4Aと4Bの $\gamma$ はそれぞれ1.6%と8.9%である．

### 6-2-2 素子4の放射特性

図6-6(a)と(b)にメサ4Aと4Bの*I-V*特性と出力特性をそれぞれ示す．図6-6では $T_b = 45.0\text{--}70.0\text{ K}$ の特性を2.5 K刻みでプロットし，出力7.5 nW（ボロメータの応答電圧1 mV）を下限として，*I-V*特性上に出力特性をカラーマップした．メサ4Aは $T_b = 55.0\text{ K}$ の低バイアス域で最大0.18  $\mu\text{W}$ の放射を起こす． $T_b = 55.0\text{ K}$ のデータは図6-4(a)と(b)に示したものと同一である．一方，図6-6(b)から分かるように，メサ4Bは $T_b$ を広範囲に掃引しても放射しない．

著者は再現性を確認するために素子4Sを作製した．図6-7(a)は素子4Sの光学顕微鏡像，図6-7(b)はメサの断面プロファイル，図6-7(c)はc軸抵抗の温度依存性を示す．図6-7(c)の挿入図から分かるように，メサ4SAと4SBの超伝導転移温度は若干異なる．表6-2に素子4Sの断面形状パラメータと超伝導転移温度をまとめた．メサ4SAと4SBの $\gamma$ はそれぞれ1.1%と8.7%である．

図6-8(a)と(b)にメサ4SAと4SBの*I-V*特性と出力特性を示す．図6-8では $T_b = 50.0\text{--}64.0\text{ K}$ の特性を2 K刻みでプロットした．メサ4SAからは $T_b = 58.0\text{ K}$ の低バイアス域で最大出力0.21  $\mu\text{W}$ の放射が起こる．一方で，図6-8(b)から分かるようにメサ4SBからの放射は起こらない．メサ4Bと4SBが放射しない理由は，【5-1-2】で示したものと同様であると考えられる．以上の結果は，低バイアス域で同期を実現するために必要な条件は $\gamma < 8.7\%$ であることを示唆する．

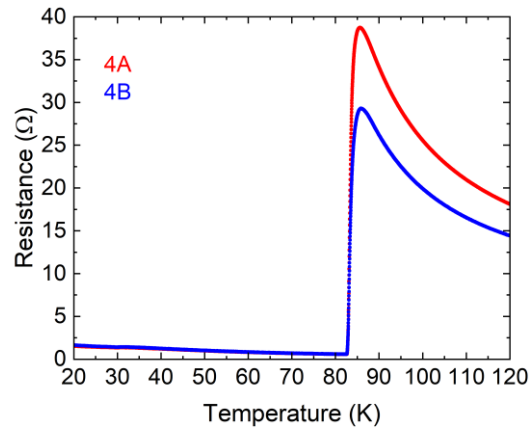


図 6-5 : (a)素子 4 の c 軸抵抗の温度依存性.

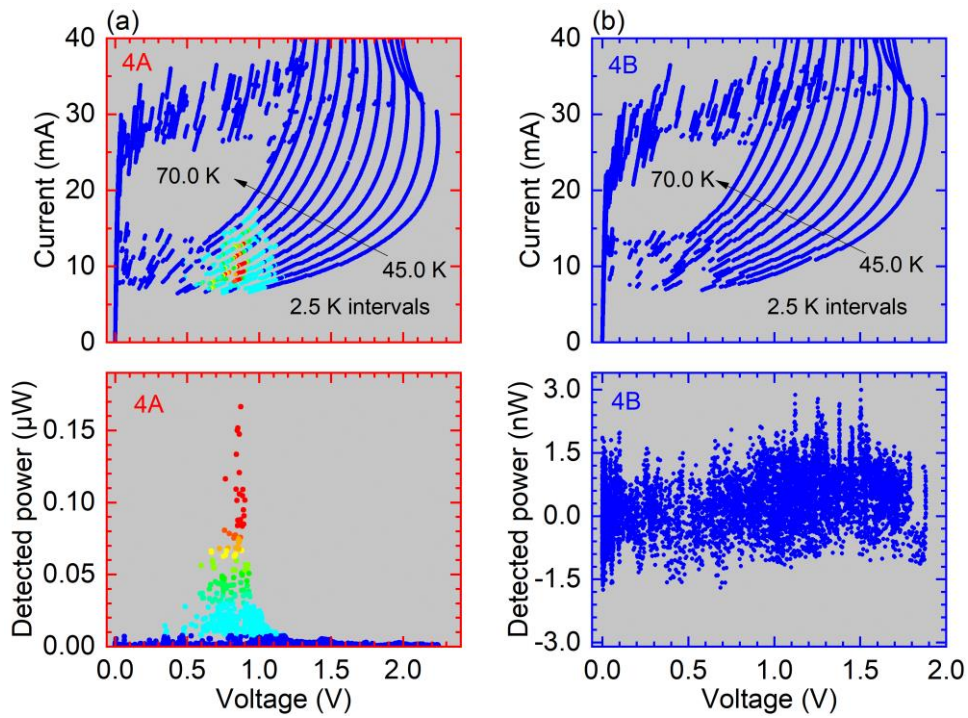


図 6-6 : 素子 4 の  $I$ - $V$ 特性と出力特性. (a) メサ 4A, (b) メサ 4B.



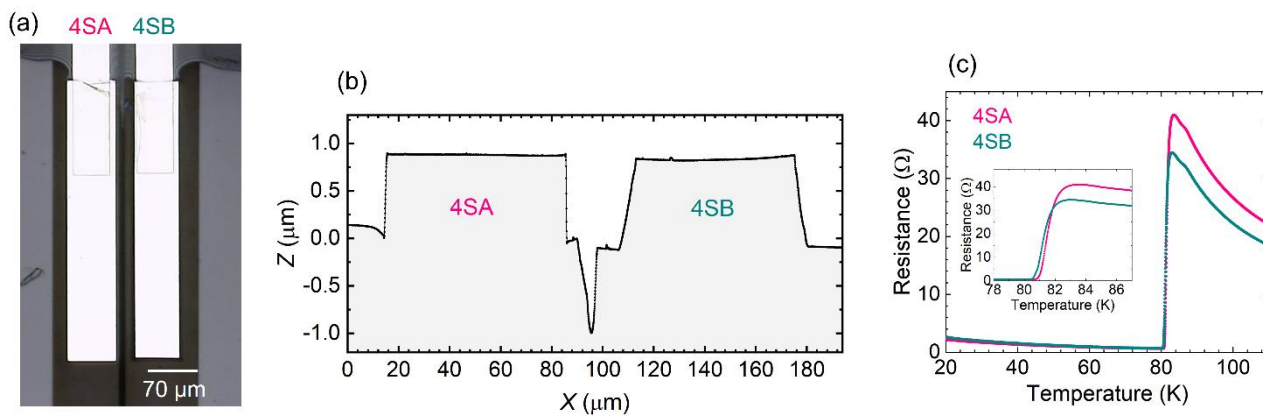


図 6-7 : (a)メサ 4SA と 4SB の光学顕微鏡像. (b)断面プロファイル. (c) c 軸抵抗の温度依存性

表 6-2 : 素子 4S の断面形状パラメータと超伝導転移温度

Parameter	4SA	4SB
$w_t$ ( $\mu\text{m}$ )	69.9	62.1
$w_b$ ( $\mu\text{m}$ )	71.5	73.9
$t$ ( $\mu\text{m}$ )	0.90	0.92
$\gamma$ (%)	1.1	8.7
$T_{c\_end}$ (K)	80.7	80.5

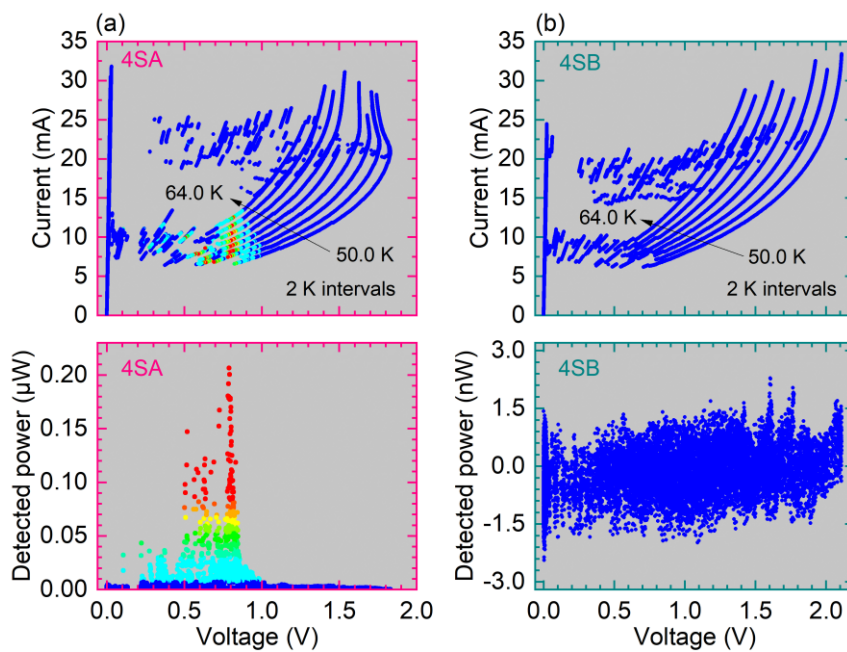


図 6-8 : 素子 4S の  $I$ - $V$  特性と出力特性. (a)メサ 4SA, (b)メサ 4SB.

## 6-3 特性分布幅に対する最大出力の変化量

### 6-3-1 素子5の断面形状パラメータと超伝導転移温度

素子4と素子4Sの結果に加え、【5-3】で述べた素子3の結果を踏まえると、低バイアス域での放射に必要な条件が $\gamma < 6.9\%$ であると予想できる。そこで著者は、図6-9(a)に示す素子5を作製した。単結晶片の大きさが $500 \times 500 \mu\text{m}^2$ 程度であったため、作製の都合上メサの長さは $\sim 300 \mu\text{m}$ とした。図6-9(b)はメサの断面プロフィール、図6-10はc軸抵抗の温度依存性を示す。素子5の断面形状パラメータと超伝導転移温度は表6-3にまとめた。メサ4Aと4Bの $\gamma$ はそれぞれ1.9%と5.3%である。

### 6-3-2 素子5の放射特性

図6-11(a)と(b)にメサ5Aと5BのI-V特性と出力特性を示す。図6-11では $T_b = 54.0\text{--}72.0 \text{ K}$ の特性を2 K刻みでプロットした。メサ5Aからは $T_b = 66.0 \text{ K}$ の低バイアス域で最大 $0.15 \mu\text{W}$ の放射が起こる。さらに、メサ5Bからも $T_b = 62.0 \text{ K}$ で最大 $0.10 \mu\text{W}$ の放射が起こる。図6-12は $T_b = 62.0 \text{ K}$ におけるメサ5BのI-V特性と出力特性の拡大図を示し、部分電圧状態と全電圧状態で同じ出力が得られていることを意味する。ただし、電圧ジャンプ後の電圧値はI-Vスキャンごとに異なるため、部分電圧状態の出力特性は再現性が低い。発振周波数については後に示すが、 $V = 0.80 \text{ V}$ で $0.53 \text{ THz}$ の放射が得られる。 $V = 0.53 \text{ V}$ の周波数を $0.53 \text{ THz}$ と仮定すると、電圧状態にある接合数は510枚となる。メサ6Bの全接合数は730枚のため、電圧状態にある接合数と出力は二乗の関係にないことが分かる。

### 6-3-3 素子4と素子5の最大出力

図6-13に素子4と素子5の最大出力を $\gamma$ に対してプロットした。素子4と素子5の超伝導転移温度は同じである一方、メサの長さが1.3倍異なることに加え、図6-5と図6-10から分かるように接触抵抗に差がある。したがって、素子4と素子5の特性を厳密に比較することはできないが、両素子の結果から $\gamma$ に対する出力変化の程度を調べることはできる。図6-13では、メサ1Bからテラヘルツ波を検出できなかったため、メサ1Bの出力を検出器の限界感度 $\sim 1 \text{ nW}$ とした。図6-13が示すように、 $\gamma = 8.9\%$ から $\gamma = 5.3\%$ に近づくと出力が100倍以上増加する一方で、 $\gamma = 5.3\%$ から $\gamma = 1.9\%$ に変化すると出力の増加は数倍に収まる。 $\gamma$ に応じた急激な出力増加現象は、位相同期状態の変化に起因すると考えられる。すなわち、 $\gamma = 8.9\%$ では特性分布幅が大きすぎるため、固有接合列の相互作用が系をコヒーレント状態へと移行させるに至らず、テラヘルツ波が放射されない。一方で $\gamma = 5.3\%$ に達すると固有接合列の相互作用の強さが特性分布幅を上回り、固有接合列の位相同期が開始する。この時、テラヘルツ波の出力は同期接合数の二乗に比例するため、放射出力が急増すると考えられる。

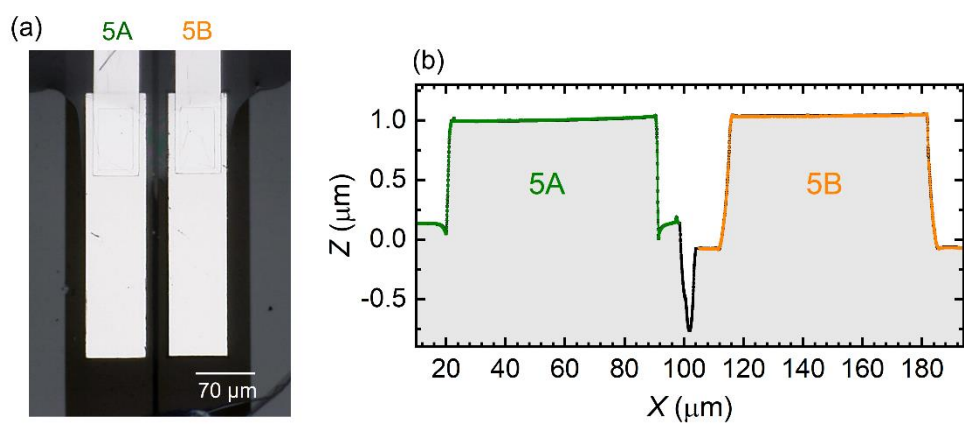


図 6-9 : (a)メサ 5A と 5B の光学顕微鏡像. (b)断面プロファイル.

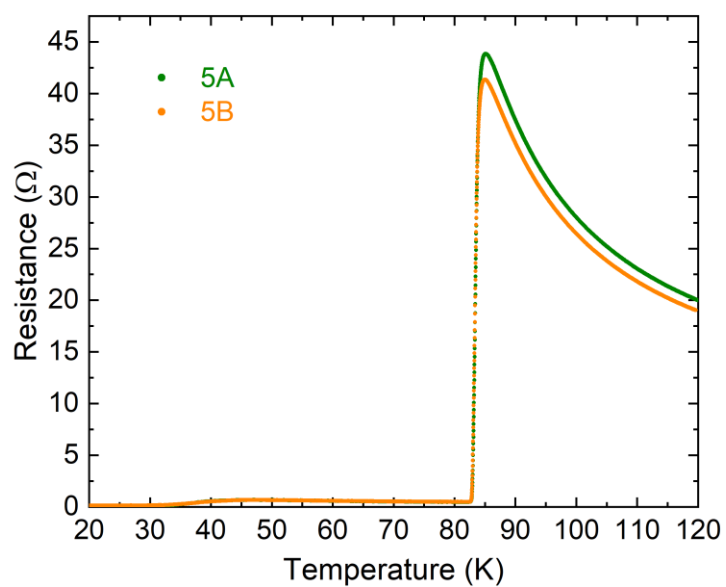


図 6-10 : メサ 5A と 5B の c 軸抵抗の温度依存性.

表 6-3：素子 5 の断面形状パラメータと超伝導転移温度

Parameter	5A	5B
$w_t$ ( $\mu\text{m}$ )	68.6	66.0
$w_b$ ( $\mu\text{m}$ )	71.2	73.4
$t$ ( $\mu\text{m}$ )	0.94	1.10
$\gamma$ (%)	1.9	5.3
$T_{c\_end}$ (K)	82.7	82.7

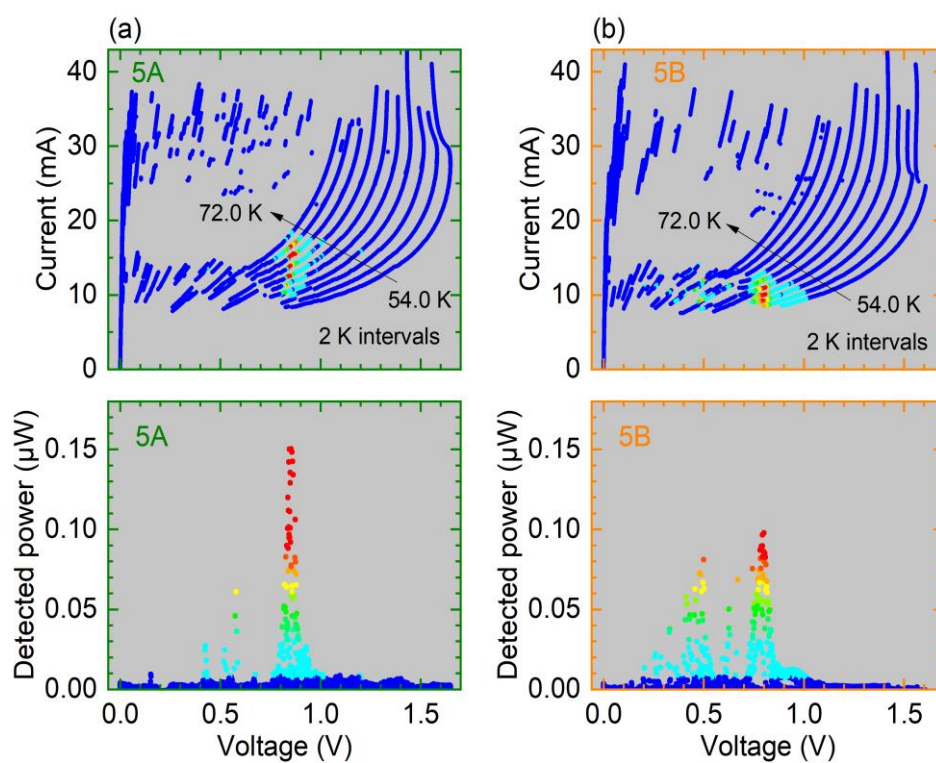


図 6-11：素子 5 の  $I$ - $V$  特性と出力特性. (a) メサ 5A, (b) メサ 5B.

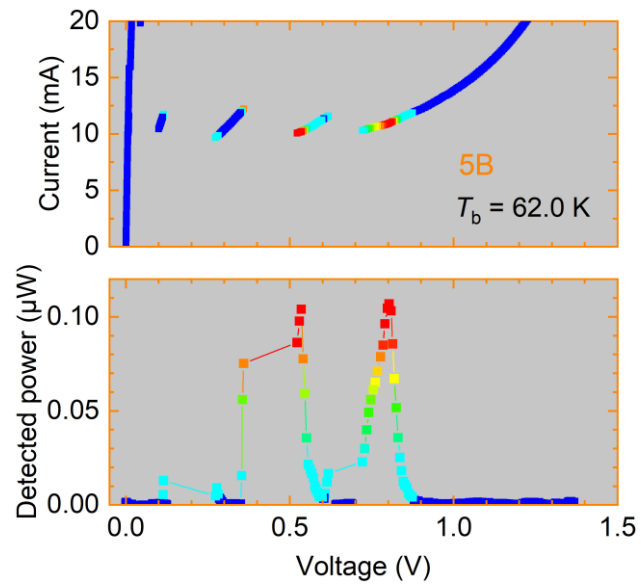


図6-12： $T_b = 62.0 \text{ K}$ におけるメサ5BのI-V特性と出力特性.

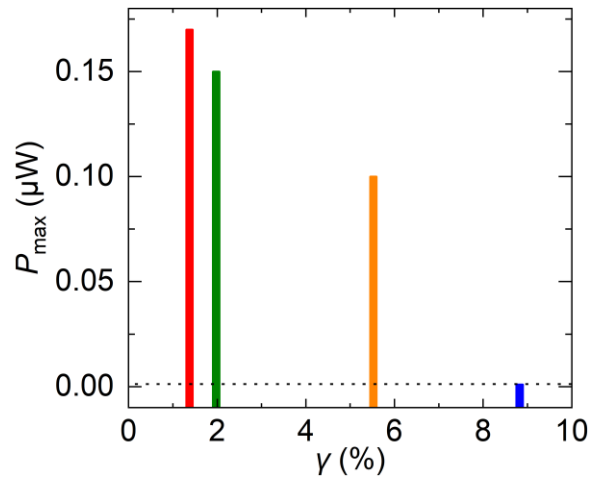


図6-13：素子4と素子5の最大出力と特性分布幅の関係.

## 6-4 特性分布幅と周波数可変性

### 6-4-1 素子5の周波数可変範囲

図 6-14(a)はメサ 5A と 5B の発振周波数の  $T_b$  依存性を示し、メサ 5A の周波数可変範囲が 0.43–0.93 THz である一方、メサ 5B の周波数可変範囲が 0.51–0.72 THz であることを意味する。図 6-14(b)ではスペクトルピーク高さを周波数に対してプロットした。メサ 5A と 5B は共に 0.53 THz で最大ピーク高さを持つ。発振周波数測定は全接合が電圧状態とみなせるバイアス域で行った。以下に放射特性の詳細を記述する。

図 6-15(a)-(f)は  $T_b = 50.0\text{--}72.0\text{ K}$  におけるメサ 5A の  $I$ - $V$ 特性と出力特性を示す。メサ 5A からの 0.93 THz の放射は  $T_b = 50.0\text{ K}$  で起こる (図 6-15(a))。そして、 $T_b$  を上昇させると共に 0.93 THz の放射出力が低下し、発振周波数が低周波側へシフトする (図 6-15(b)と(c))。図 6-15(d)と(e)から分かるように、電圧の掃引によって最大 180 GHz 以上の周波数変化が生じ、放射出力は 0.53 THz に近づくと大きくなる。図 6-15(f)が示すように、 $T_b = 72.0\text{ K}$  まで放射が起こる。

図 6-16(a)-(f)は  $T_b = 50.0\text{--}72.0\text{ K}$  におけるメサ 5B の  $I$ - $V$ 特性と出力特性を示す。メサ 5B の最も高い発振周波数は  $T_b = 50.0\text{ K}$  での 0.72 THz であった (図 6-16(a))。一方、メサ 5A の最も高い発振周波数は 0.94 THz である。メサ 5B から 0.94 THz の放射が生じるために必要な電圧は式(3)より 1.4 V と計算できる。しかしながら、 $V = 1.4\text{ V}$  での放射はどの熱浴温度でも観測されなかった。図 6-14(c)と(d)に示すように、メサ 5B では電圧の掃引で 70 GHz の周波数変化が生じ、放射出力は 0.53 THz に近づくと大きくなる。図 6-16(f)から分かるように、 $T_b = 72.0\text{ K}$  まで放射が起こるが、部分電圧状態での放射である。

以上の結果から分かるように、 $\gamma$  の小さなメサ 5A の方が電圧と  $T_b$  の変化による周波数可変範囲が広い。図 6-14(b)で示すように、メサ 5A のスペクトルピークの高さの最大値はメサ 5B よりも 2.7 倍大きいことを踏まえると、 $\gamma$  の小さなメサ 5A は位相同期をより促進し、テラヘルツ波を放射しやすくなった結果、検出可能な発振周波数範囲の拡大をもたらしたと考えられる。

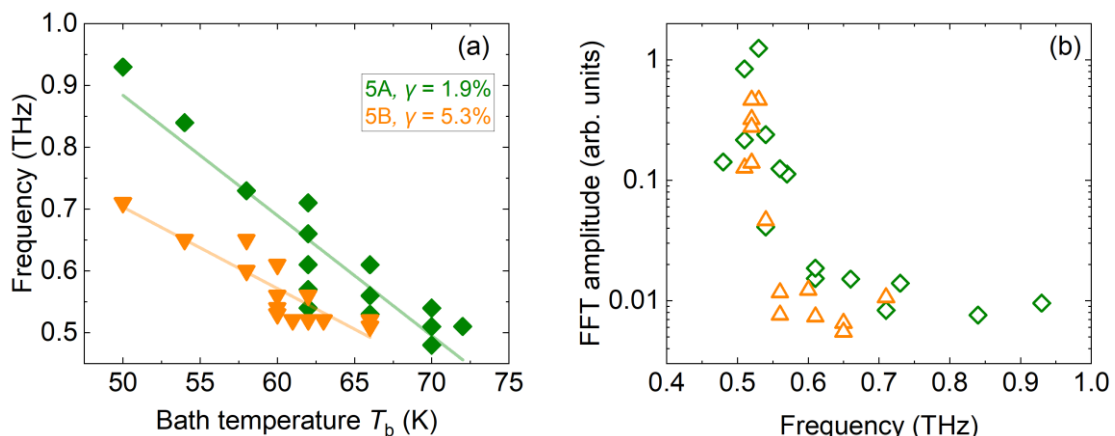


図 6-14：素子 5 の放射特性。(a)発振周波数の熱浴温度依存性。実線は参考直線を示す。(b)発振周波数とスペクトルピーク高さの関係。

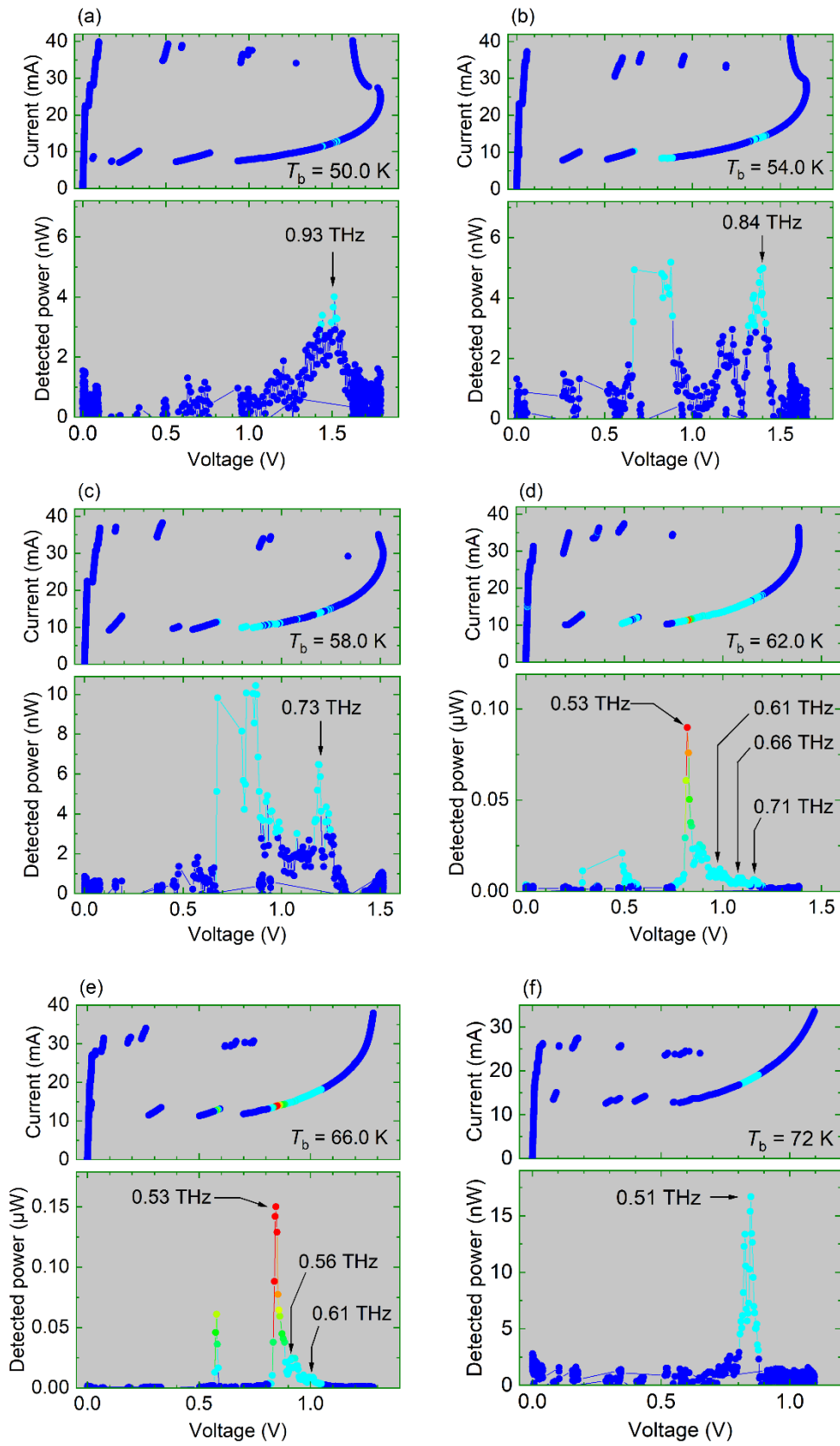


図 6-15：メサ 5A の  $I$ - $V$ 特性と出力特性の熱浴温度依存性。

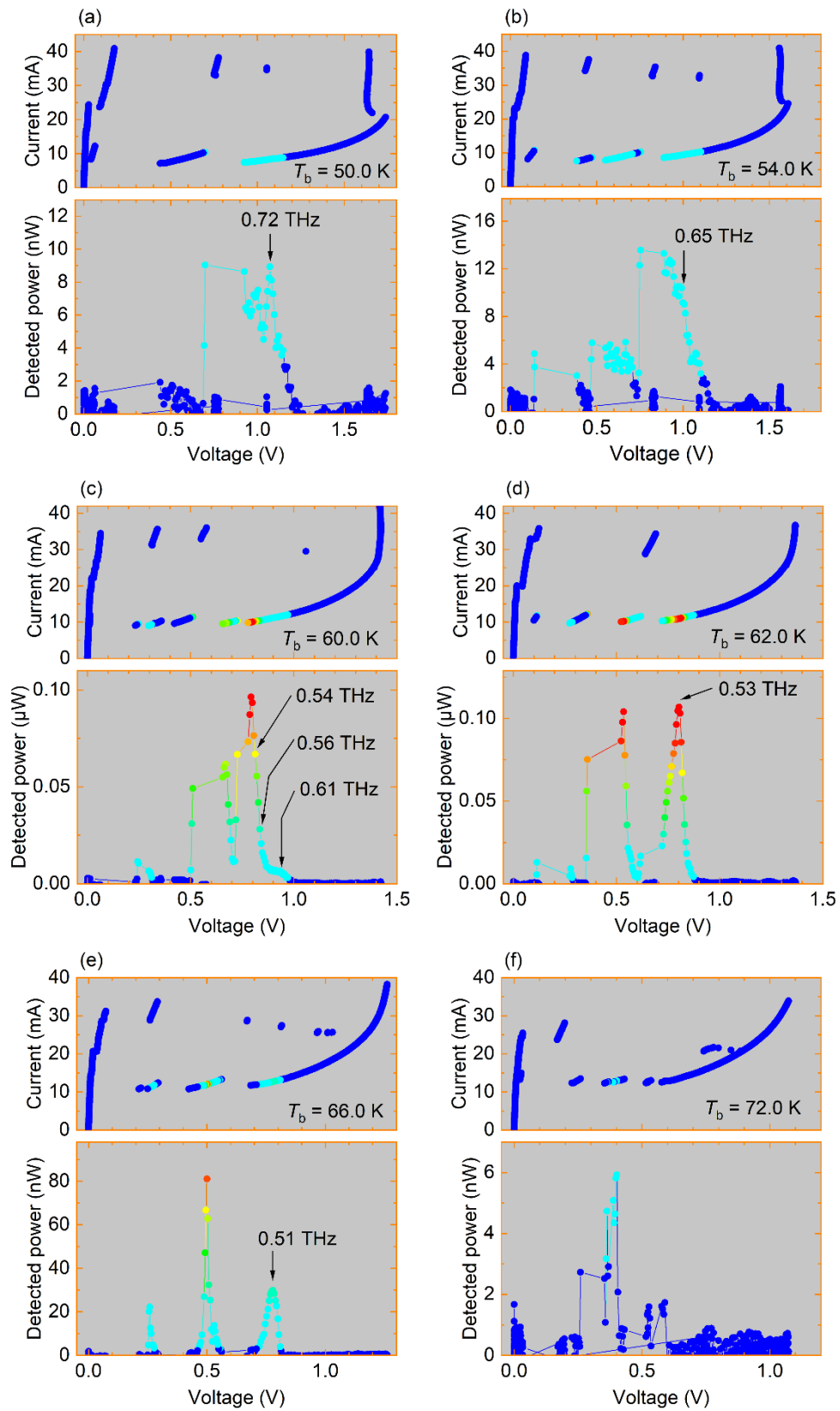


図 6-16：メサ 5B の  $I$ - $V$  特性と出力特性の熱浴温度依存性.



#### 6-4-2 素子6の断面形状パラメータと超伝導転移温度

著者は【6-4-1】で示した周波数可変性の再現性を確認するため、 $\gamma < 6.9\%$ のメサを再度作製し、その放射特性を調べた。図6-17(a)と(b)は素子6の光学顕微鏡像と断面プロファイル、図6-18は素子6のc軸抵抗の温度依存性を示す。素子6の断面形状パラメータと超伝導転移温度は表6-4にまとめた。メサ6Aと6Bの $\gamma$ はそれぞれ2.4%と6.6%である。素子5と比較すると、メサの厚みが増えているため、 $\gamma$ がその分大きくなっている。

#### 6-4-3 素子6の出力特性

図6-19(a)は $T_b = 63.0$  Kにおけるメサ6AのI-V特性と出力特性を示す。メサ6Aからは低バイアス域で最大 $1.7 \mu\text{W}$ の放射が起こる。これまでの素子と比べると出力が一桁向上している。図6-19(b)はメサ6Bに対するI-V特性と出力特性を示す。メサ6Bは部分電圧状態で最大強度 $0.65 \mu\text{W}$ の放射を起こす。 $V = 0.60$  Vの発振周波数は $0.51$  THzのため、式(3)より電圧状態にある接合数を推定すると570枚である。一方、全電圧状態で得られた出力は $0.12 \mu\text{W}$ で、電圧状態にある接合数は850枚である。素子5と同様に、電圧状態にある接合数と出力は二乗の関係にないことが分かる。

素子6はI-V特性上に顕著なバンプ構造が現れる。図6-20(a)と(b)はメサ6Aと6BのI-V特性と出力特性の拡大図を示す。図6-20(a)のメサ6AのI-V特性から分かるように、 $V = 1.07\text{--}1.15$  Vで過剰電流を示唆する電圧ステップが現れる。このような顕著なステップ構造はKitamuraらが作製した単独メサで報告されている[38]。図6-20(b)のメサ6BのI-V特性から分かるように、 $V = 0.65$  Vの電圧ジャンプの傾きは負荷直線の傾きと異なるため、過剰電流の励起が示唆される。

素子6のその他の特徴として大きなスイッチング電流を持つことが挙げられる。図6-21にメサ4A、4SA、5A、6Aの最大スイッチング電流を $T_b$ に対してプロットした。図6-21と式(1)を踏まえると、メサ6Aに励起されているジョセフソン振動電流の振幅はメサ4A、4SA、5Aと比べて大きいと考えられる。その結果として、系がコヒーレント状態へと移行した際の共鳴モードの振幅が大きくなり、素子の出力向上を引き起こしたと推察できる。また、ジョセフソン振動電流の振幅が大きくなることで、接合間の電磁結合が強くなり、メサ4A、4SA、5Aと比較してメサ6Aの位相同期がさらに促進されたため、出力が向上したとも考えられる。

#### 6-4-4 素子6の周波数可変性

図6-22(a)は素子6の発振周波数の $T_b$ 依存性を示す。図6-22(b)ではスペクトルピーク高さを発振周波数に対してプロットした。発振周波数測定は全接合が電圧状態とみなせるバイアス点で行った。ただし、メサ6Bに関しては、図6-19(b)に示すように部分電圧状態で放射出力が最大となるため、そのバイアス点で測定した発振周波数を白抜きのシンボルとして図6-22(a)と(b)にプロットしている。図6-22(a)と(b)はメサ6Aと6Bの周波数可変範囲がそれぞれ $0.41\text{--}1.02$  THzと $0.50\text{--}0.85$  THzであることを示す。

図6-23(a)-(d)はメサ6AのI-V特性と出力特性の $T_b$ 依存性を示す。図6-23(a)に示すように、メサ6Aからの $1.02$  THzの放射は $T_b = 5.0$  Kで起こる。そして、 $T_b$ の上昇に伴って $1.02$  THzの放射出力が低下し、発振周波数が低周波側へシフトする。また、図6-23(b)から分かるように、 $T_b = 40.0$  Kでは電圧掃引によって $150$  GHz

の周波数変化が生じる。図 6-23(c)と(d)が示すように、放射出力は  $T_b = 61.0 \text{ K}$  から数  $\mu\text{W}$  へと変化し、 $T_b = 66.0 \text{ K}$  で出力が低下する。そして、 $T_b = 72.0 \text{ K}$  まで放射が起こり、その発振周波数は  $0.41 \text{ THz}$  である。

図 6-24(a)-(d)はメサ 6B の  $I$ - $V$ 特性と出力特性の  $T_b$ 依存性を示す。図 6-24(a)から分かるように、 $T_b = 5.0 \text{ K}$  から放射が起こっていると考えられるが、分光してもスペクトルは得られなかった。メサ 6B の最も高い発振周波数は  $T_b = 25.0 \text{ K}$  での  $0.85 \text{ THz}$  であった。メサ 6A の最も高い発振周波数は  $1.02 \text{ THz}$  である。メサ 5B から  $1.02 \text{ THz}$  の放射が生じるために必要な電圧は、式(3)より  $V = 1.8 \text{ V}$  と見積もることができる。しかしながら、どの熱浴温度でも  $V = 1.8 \text{ V}$  での放射は起こらなかった。図 6-24(b)に示すように、 $T_b = 50.0 \text{ K}$  では電圧掃引によって  $80 \text{ GHz}$  の周波数変化が生じる。メサ図 6-23(c)と(d)から分かるように、 $T_b = 61.0 \text{ K}$  の部分電圧状態で  $1 \mu\text{W}$  に近い放射が起こり、 $T_b = 66.0 \text{ K}$  でその出力は低下する。また、 $T_b = 72.0 \text{ K}$  まで放射が起こるが、部分電圧状態での放射である。

以上の結果から分かるように、 $\gamma$ の小さなメサ 6A の方が電圧と  $T_b$ の変化による周波数可変範囲が広い。これは【6-4-1】で示した素子 5 の結果と整合する。

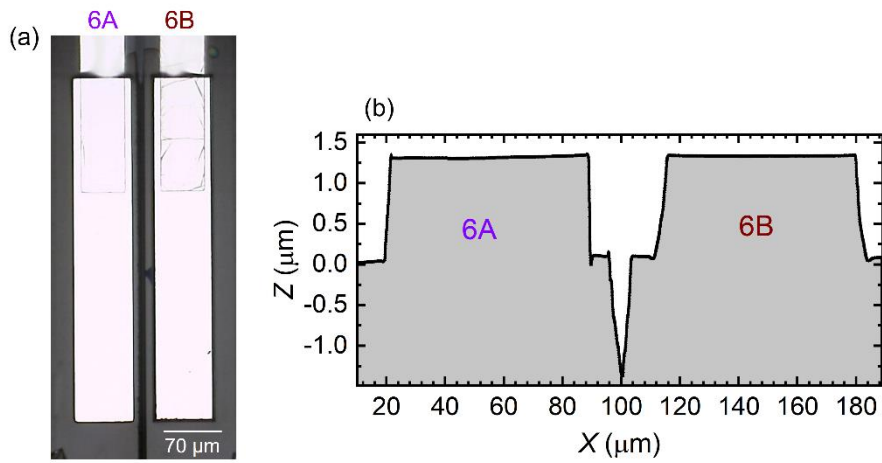


図 6-17 : (a)素子 6 の光学顕微鏡像. (b)断面プロフィール.

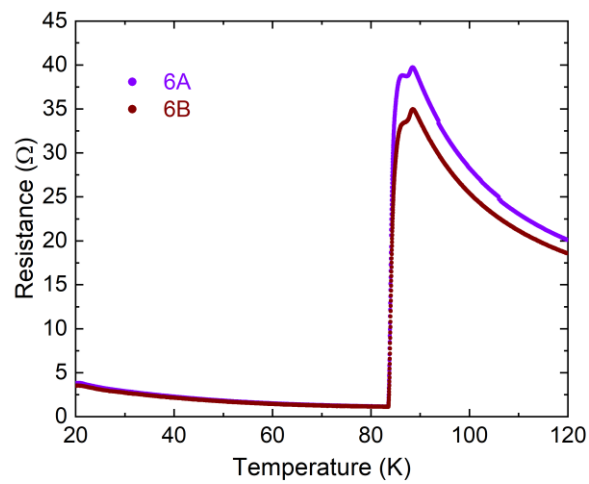


図 6-18 : 素子 6 の c 軸抵抗の温度依存

表 6-4 : 素子 6 の断面形状パラメータと超伝導転移温度

Parameter	6A	6B
$w_t$ ( $\mu\text{m}$ )	67.3	63.8
$w_b$ ( $\mu\text{m}$ )	70.6	72.8
$t$ ( $\mu\text{m}$ )	1.27	1.27
$\gamma$ (%)	2.4	6.6
$T_{c\_end}$ (K)	83.5	83.5

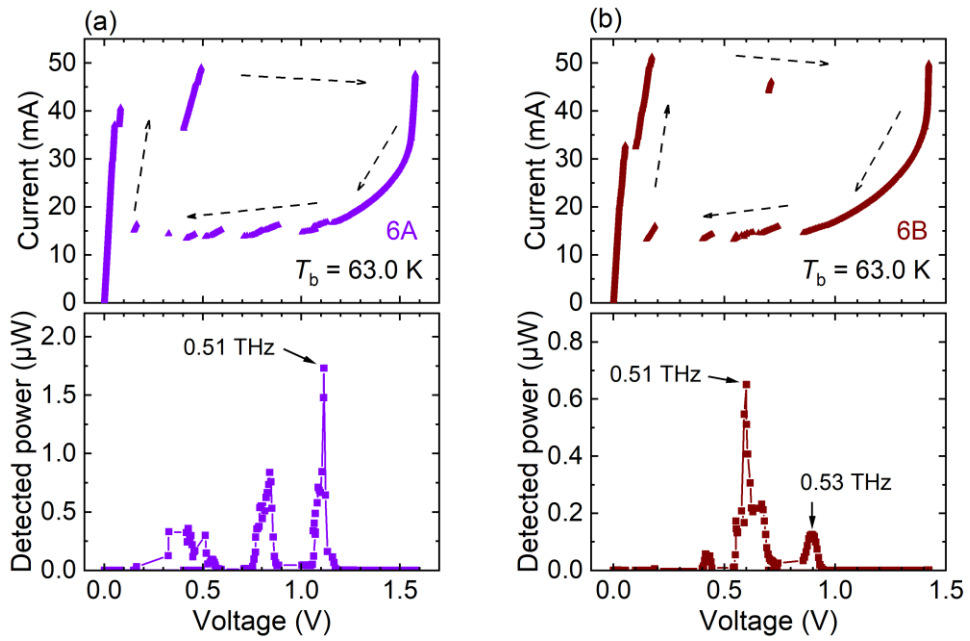


図 6-19 :  $T_b = 63.0$  K の  $I$ - $V$ 特性と出力特性. (a)メサ 6A, (b)メサ 6B.

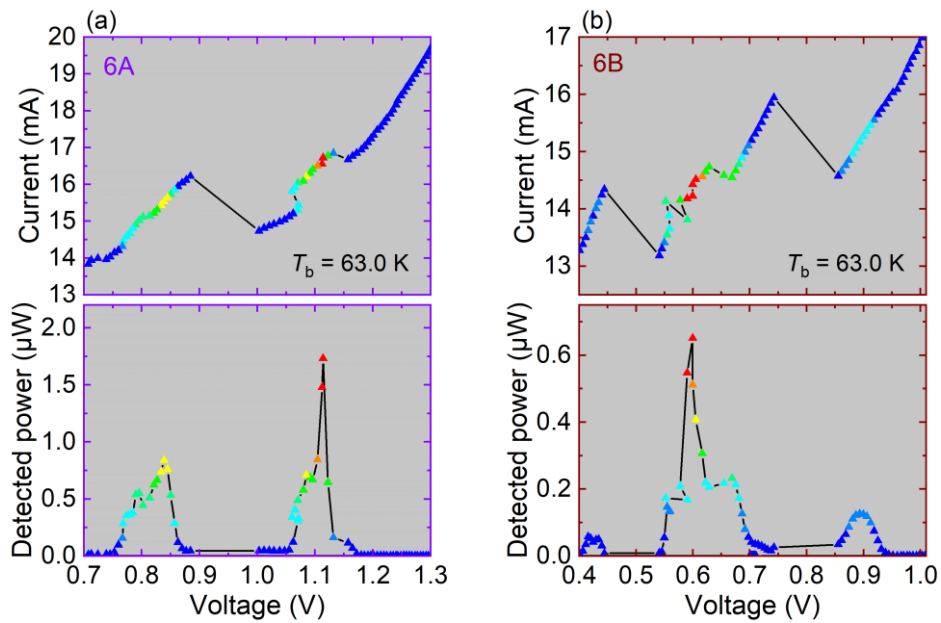


図 6-20 :  $T_b = 63.0$  K の  $I$ - $V$ 特性と出力特性の拡大図. (a)メサ 6A, (b)メサ 6B.

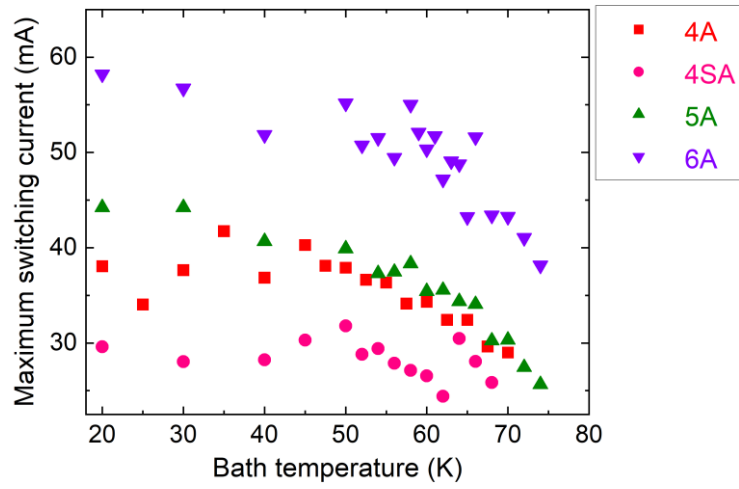


図 6-21：メサ 4A, 4SA, 5A, 6A の最大スイッチング電流の比較.

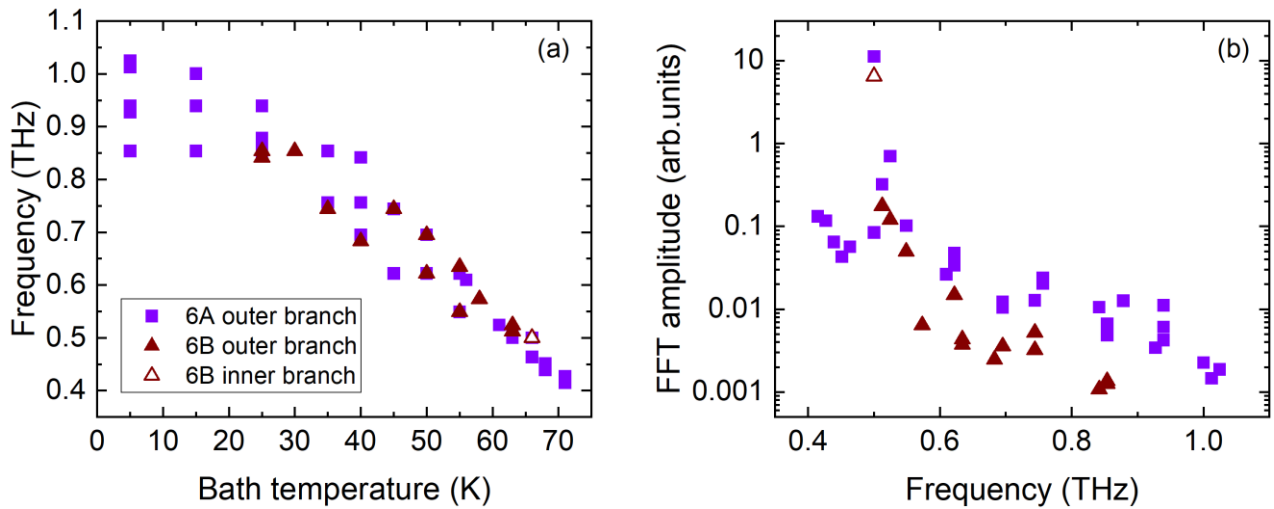


図 6-22：素子 6 の放射特性. (a)発振周波数の熱浴温度依存性, (b)発振周波数とスペクトルピーク高さの関係.

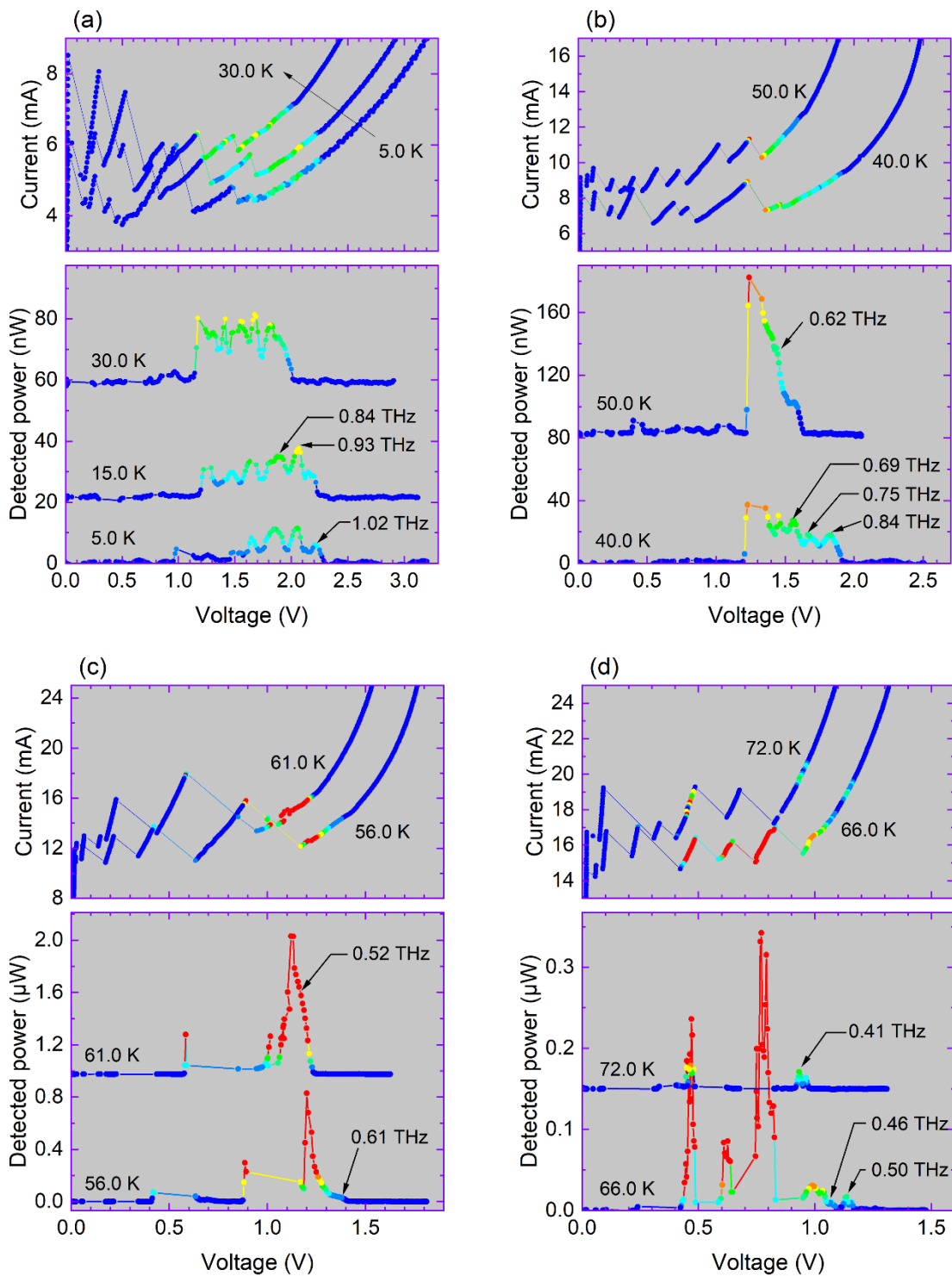


図 6-23：メサ 6A の  $I$ - $V$  特性と出力特性の熱浴温度依存性.

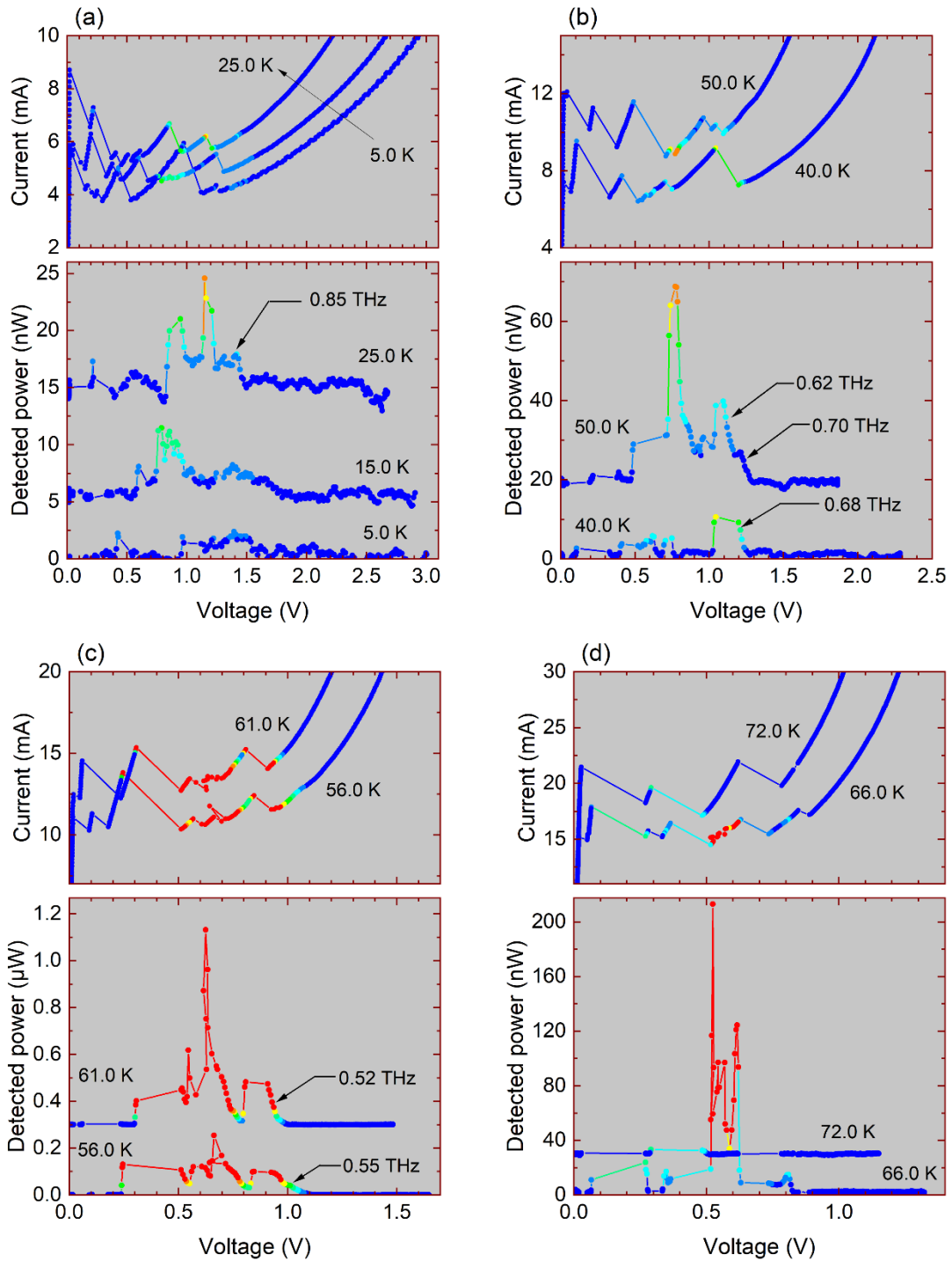


図 6-24：メサ 6B の  $I$ - $V$  特性と出力特性の熱浴温度依存性.

## 6-5 発振周波数の熱浴温度依存性

本研究により、 $\gamma$ の小さなメサはテラヘルツ波の放射をより促進し、その結果として周波数可変範囲の拡大をもたらすことを明らかにした。一方で、発振周波数の熱浴温度依存性の起源については触れずに議論を進めてきた。ここでは、【1-3-4】で記述した Benseman らの提案モデルを使ってメサ 5A と 6A の実験結果を考察する。本研究で取り扱った素子は、メサ上部が銀膜、メサ下部が超伝導基板と接していたため、先行研究と同様にモード速度は式(24)に従うとする。また面内の磁場侵入長 $\lambda_{ab}$ の値として Anukool らの実験値[22]を用いる。本研究で用いた試料はアンダードープのため、その条件に近いキャリア濃度 $p = 0.124, 0.148$ のデータを使用する。ここで超伝導転移温度は  $T_c \sim 78$  K,  $T_c \sim 86$  K にそれぞれ対応する。図 6-25 に $\lambda_{ab}$ の温度依存性を示す。磁場侵入長は温度だけでなく、キャリア濃度にも依存することが分かる。

式(24)を $f_c = c/2w$ へ代入すると、以下の式が得られる。

$$f_c = \frac{c_0}{2wn \sqrt{1 + \left(\frac{m\pi\lambda_{ab}}{2t}\right)^2}} \quad (33)$$

式(33)から求めた共振周波数をメサ 5A の結果と共に図 6-26 に示した。ここで屈折率を $n = 3.5$ 、モード指数 $m = 1$ 、メサ幅 $w = 70 \mu\text{m}$ 、 $t = 0.94 \mu\text{m}$ とした。また、図 6-27 は式(33)から求めた共振周波数とメサ 6A の結果を示す。図 6-27 では $t = 1.27 \mu\text{m}$ を式(33)へ代入した。図 6-26 と図 6-27 から分かるように、温度が $T_c$ に近づくと、磁場侵入長が急激に変化するため、式(33)の共振周波数が 100–200 GHz 変化する。しかしながら、それ以外の温度帯における共振周波数の変化は小さい。そのため、低温側での実験結果を説明できない。

図 6-28 は $1/\lambda_{ab}$ と $1/\lambda_{ab}^2$ の温度依存性をプロットしたものである。式(33)は磁場侵入長の効果を $1/\lambda_{ab}$ として取り入れていることを意味する。一方で、図 6-28 に示す $1/\lambda_{ab}^2$ の温度変化と図 6-27 の実験結果を見比べると、発振周波数の温度依存性は $1/\lambda_{ab}^2$ の温度変化を反映しているように見える。 $1/\lambda_{ab}^2$ は超伝導電子密度と比例関係にあるため、周波数可変性の起源に超伝導電子密度の温度変化が関連する可能性がある。発振周波数の熱浴温度依存性の起源を探っていくことは今後の課題である。



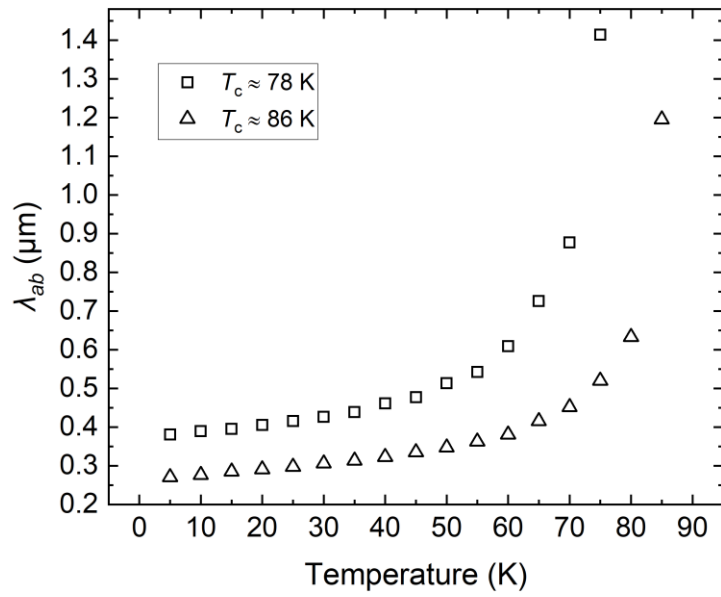


図 6-25：磁場侵入長の温度依存性. 文献[44]のデータを再プロットした.

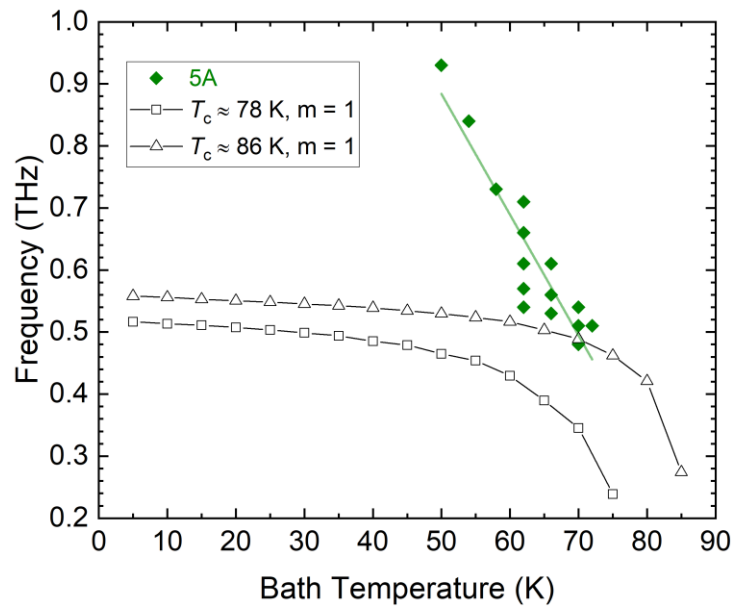


図 6-26：メサ 5A の実験結果 (図 6-14(a)) と式(33)より求めた共振周波数の温度依存性.

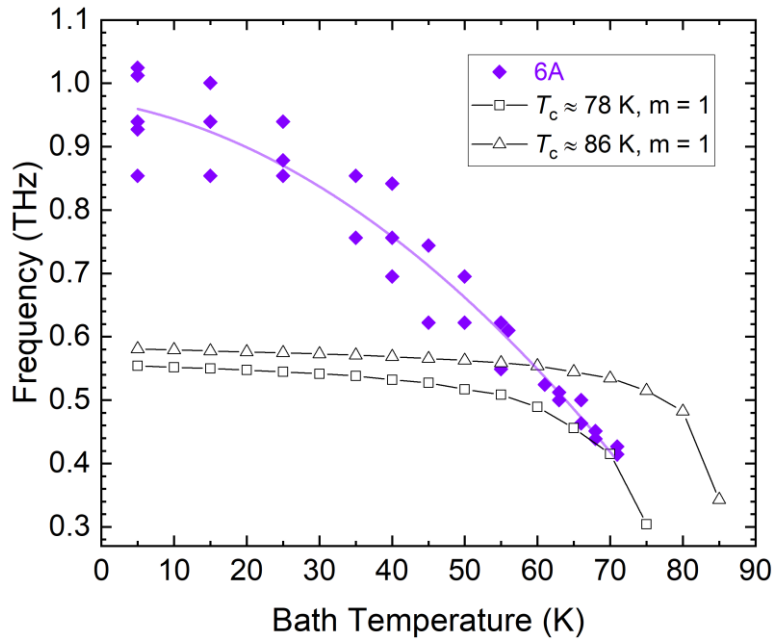


図 6-27：メサ 6A の実験結果（図 6-22(a)）と式(23)より求めた共振周波数の温度依存性。紫の実線は参考曲線を示す。

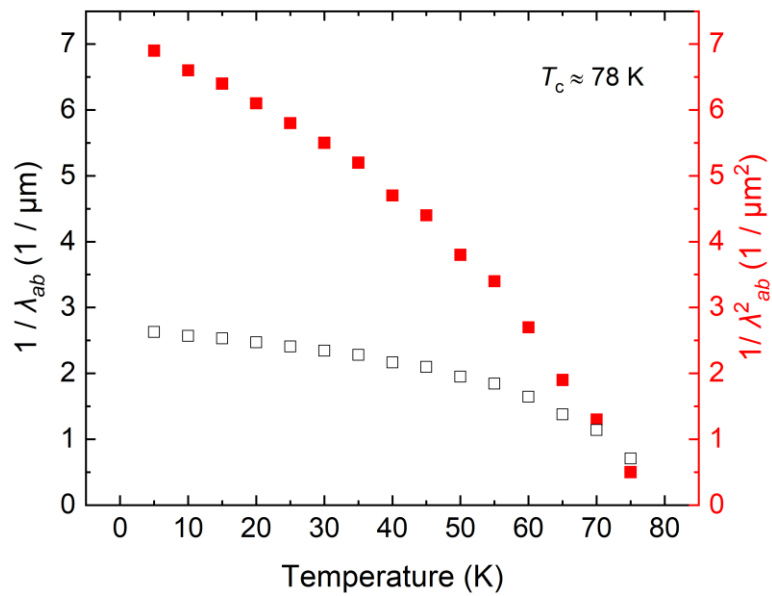


図 6-28： $1/\lambda_{ab}$ と $1/\lambda_{ab}^2$ の温度依存性。文献[44]のデータを再プロットした。

## 6-6 蔵本モデルを使った考察

### 6-6-1 蔵本モデル

固有振動数の分布を持つ結合振動子集団では、系の相互作用の大きさが固有振動数の分布幅を超えたとき、振動子集団の同期が開始する。図 6-13 に示す結果は、結合振動子集団系で生じる同期現象と同じことが固有接合列で起こっていることを示唆する。

結合振動集団の同期現象を解析するモデルとして、最も広く知られているものは蔵本モデルと呼ばれる [29][45]。そのモデルは以下の式で表される。

$$\frac{d\theta_i}{dt} = \omega_i + \frac{K}{N} \sum_{j=1}^N \sin(\theta_j - \theta_i + \alpha) \quad (34)$$

ここで  $\theta_i$  は  $i$  番目の振動子の位相、 $\omega_i$  は  $i$  番目の振動子の固有振動数、 $K$  は結合定数、 $N$  は振動子の数、 $\alpha$  は位相定数を示す。式(34)は個々の振動子の位相の時間発展を記述し、すべての振動子間の相互作用が  $K/N$  で生じていることを意味する。

系のコヒーレンスを示す指標として、以下の秩序パラメータが用いられる。

$$\sigma = \left| \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N e^{i\theta_j} \right| \quad (35)$$

ここで、 $0 \leq \sigma \leq 1$  である。 $\sigma = 0$  は系が非同期状態であることを意味し、 $\sigma = 1$  は系が完全同期状態であることを示す。先行研究においてジョセフソン接合集団の位相同期現象と蔵本モデルを結びつけた例がある。具体的には、RLC 回路を並列接続した直列ジョセフソン接合アレイの位相方程式は、蔵本モデルに帰着することが示されている [46][47]。

【1-3-4】で示したように、固有接合列の同期現象は位相方程式を解くことで解析可能である。しかしながら、相互作用としてインダクティブ結合を仮定する必要があることに加え、性能の高い計算機を使わない限り  $N \sim 100$  の数値シミュレーションが限界となる。一方、蔵本モデルはその方程式が比較的単純であるため、 $N > 1000$  以上の数値シミュレーションを現実的な時間で行うことができる。蔵本モデルによる取り扱いの妥当性に関しては、別途検証が必要であるが、ここでは蔵本モデルを使った解析を進めてみることにする。

### 6-6-2 秩序パラメータの計算

蔵本モデルで解析する場合、固有振動数の分布関数を決める必要がある。図 6-29(a) に示すように、固有振動数の分布は一様分布とし、固有振動数の平均値  $\bar{\omega}$  から  $\bar{\omega} \pm \gamma \bar{\omega}$  の広がりを持つとする。また、次の仮定を行う。

- ①  $\bar{\omega}$  が系のロッキング周波数  $\Omega$  に一致すると仮定する。この仮定では式(34)で  $\alpha = 0$  とすることに対応する。固有接合列で考えると、メサ台形の断面形状（特性分布パラメータ  $\gamma$ ）が固有振動数の広がりに対応し、 $\Omega$  が観測した発振周波数に相当する。
- ②  $\gamma$  の変化に応じて結合定数  $K$  が変わらないものとする。

これらの仮定の下、式(34)と(35)を解くことで、 $\gamma$  の変化に応じた  $\sigma$  の変化を求める。初期条件として、位相  $0 < \theta < 2\pi$  を  $N$  個の振動子に偏りなく均等に割り振り、各振動子の位相は全て異なるものとした。また、簡単化のため図 6-29(b) に示す無次元化した一様分布関数で計算を行った。

図 6-30 は  $\gamma = 1.00\text{--}10.0\%$  における  $\sigma$  の時間発展を示す。  $N = 667$ ，刻み幅  $\Omega\Delta t = 1.0 \times 10^{-3}$ ，  $K/\Omega = 6.7 \times 10^{-2}$  とし，オイラー法を用いて数値シミュレーションを実施した。図 6-30 は  $\gamma \geq 5.00\%$  では  $\sigma \geq 0.86$  である一方，  $\gamma \leq 5.50\%$  では  $\sigma$  が 0.1 近くで時間変動することを示す。これは  $\gamma = 5.00\text{--}5.50\%$  で同期転移が起きていることを意味する。

図 6-31 では  $\sigma$  を  $\gamma$  に対してプロットした。ここで，  $K/\Omega$  が  $6.7 \times 10^{-2}$  と  $1.0 \times 10^{-1}$  の場合のデータを図 6-31 に示した。図中のエラーバーは  $\sigma$  の時間変動に対応する。図 6-31 は  $K/\Omega$  の大きさによって同期転移点が変わることを示す。また，  $\sigma$  が  $\gamma$  に応じて急激に変化していることも図 6-31 から分かる。例えば固有振動数の分布として Lorentz 分布を選択した場合，  $\sigma$  は  $\gamma$  に対して比較的ゆるやかに変化する。Wiesenfeld らは固有振動数の分布として放物線分布 (Parabolic distribution) を仮定し，かつ固有振動数の平均値  $\bar{\omega}$  と系のロッキング周波数  $\Omega$  が異なる場合 (式(34)で  $\alpha \neq 0$ ) で計算した。放物線分布の仮定のみを考えると，  $\sigma$  は図 6-31 と似た変化を起こす。しかしながら，  $\alpha \neq 0$  の条件が加わることにより，  $\sigma$  は  $\gamma$  に応じてゆるやかに変化するようになる。式(34)の  $\alpha$  の値を決定するためには，Wiesenfeld らのようにジョセフソン接合アレイの位相方程式が蔵本モデルへ帰着することを示し，式との対応から  $\alpha$  を求める必要がある。または，実験的に  $\bar{\omega} \neq \Omega$  を観測することで  $\alpha \neq 0$  を示すことができる。

### 6-6-3 実験結果と計算結果の比較

個々の素子特性が類似している素子 4 と素子 5 の実験結果 (図 6-13) と【6-6-2】の計算結果を比較する。比較を行うため，図 6-13 で最大出力の平方根をとったデータを図 6-32 の縦軸左に示した。数値を簡単にするため，最大出力  $P_{max}(\gamma)$  を  $P_{max}(1.6\%)$  で除した。図 6-32 の縦軸右には  $K/\Omega = 6.7 \times 10^{-2}$  として計算した  $\sigma$  をプロットした。1 つの試行として行った計算であったが，興味深いことに，実験結果と数値計算結果が上手く整合しているように見える。

蔵本モデルは系の同期状態を簡単に予測するツールとなる。そのため，蔵本モデルによる取り扱いの妥当性を検証することは，今後の課題であると考えている。妥当性の検証方法として，固有接合列に長距離相互作用が存在することを実験的に調べることが挙げられる。また，図 6-32 から求めた結合定数  $K$  の値の妥当性を調べることも，モデルの検証に有効と考えられる。本研究では  $\Omega/2\pi \sim 5.0 \times 10^{11}$  Hz のため，  $K/\Omega = 6.7 \times 10^{-2}$  より，  $K/2\pi \sim 2.0 \times 10^{11}$  Hz となる。図 6-13 に示す結果を補完していくこともモデル検証に有効である。データを補完できれば蔵本モデルに限らず，例えば式(25)と(27)に示される固有接合列の位相方程式の妥当性も検証することができる。

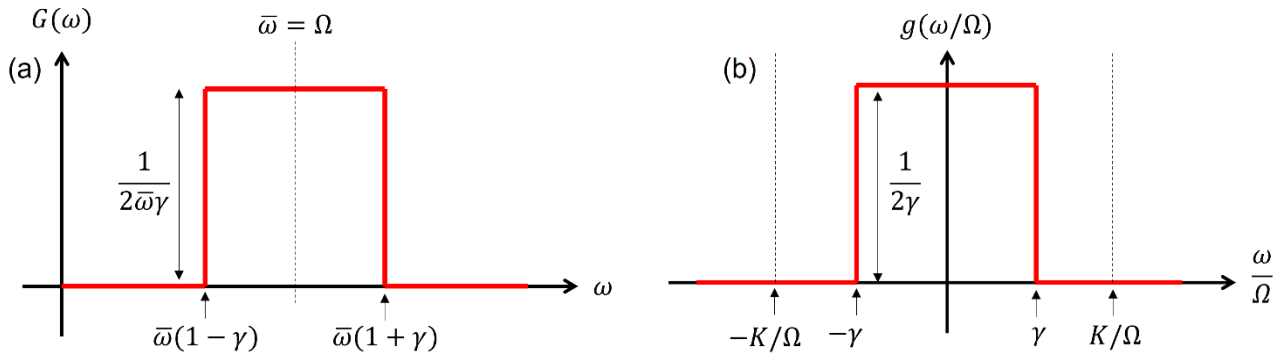


図 6-29: (a)一様分布関数. (b)無次元化した一様分布関数.

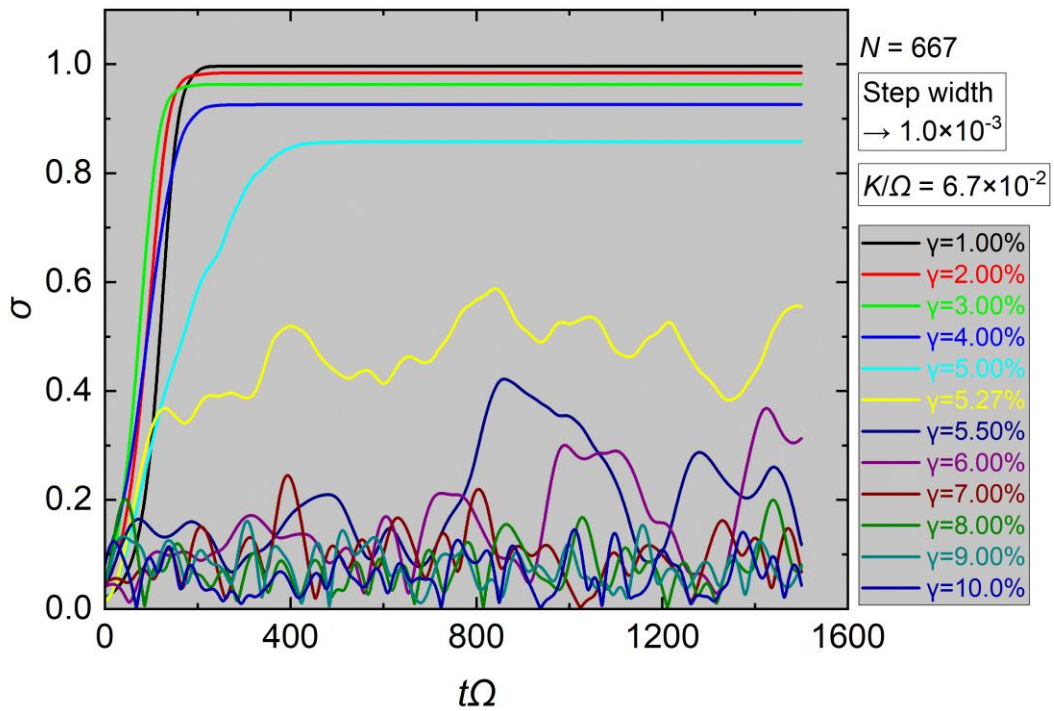


図 6-30: 秩序パラメータの時間発展.

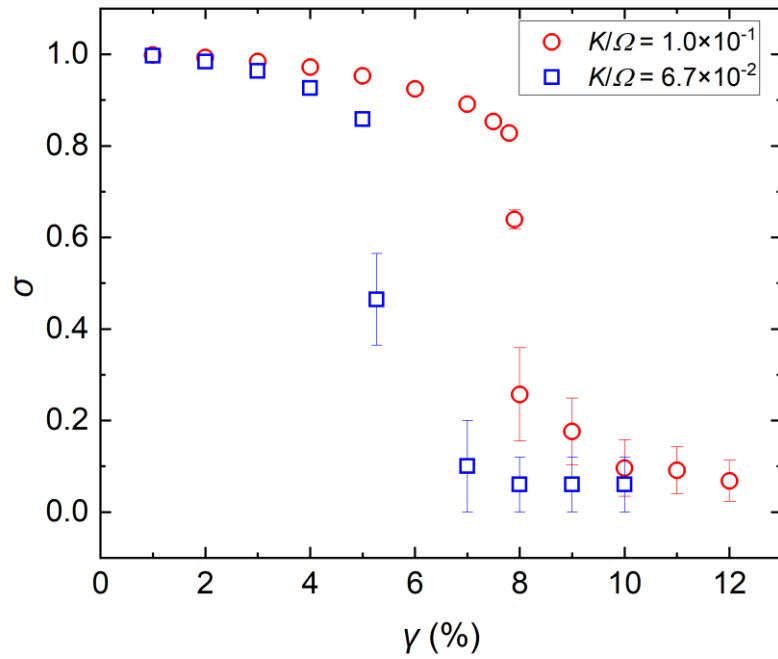


図 6-31:  $K/\Omega$  の変化に対する秩序パラメータの変化.

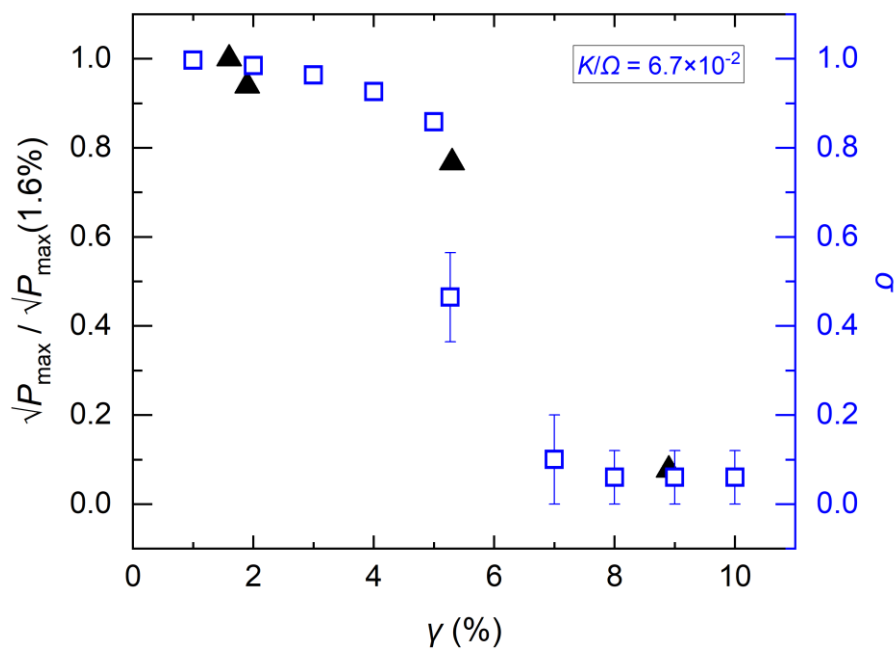


図 6-32: 図 6-13 における最大出力の平方根と秩序パラメータの計算結果.

## 第7章 MSA モデルの検証

第6章までの研究は、メサ台形の断面形状の観点から固有接合列の位相同期現象について調べた。ここでは、メサ内部の電磁定在波と、メサを最も単純化したモデルとして知られる MSA の共振モードを比較することで、固有接合列の位相同期現象に関する理解をさらに進めることを試みる。研究目的の詳細は【2-3】を参照されたい。

### 7-1 検証方法：メサ側壁金属パッチによる境界制御

図 7-1(a)に金属—誘電体 1—金属（地導体板）からなる MSA の断面模式図を示す。図 7-1(b)に示すように MSA の片側に誘電体 2 と金属からなる金属パッチを付与した場合を考える。ここで、誘電体 1 の厚みを  $h$ 、誘電体 2 の横幅を  $d$  とする。MSA では図 7-1(a)に示すように、誘電体 1 の端部で変電流最大となる  $1/2$  波長の定在波が励起される。しかしながら、図 7-1(b)に示すように、誘電体 1 の端部に  $d \ll h$  を満たす金属パッチが存在すると、変位電流は金属パッチによって地導体板に短絡される。そのため、 $1/2$  波長モードは励起されず、共振波長（=放射周波数）に変化が生じ得る。

MSA における共振波長の制御技術として、片側短絡法と金属板近接法がある[48]。片側短絡法は、MSA の金属部と地導体板を金属板などで短絡させる方法である。この手法により、図 7-1(a)に示す誘電体 1 の片側が固定端へと変化するため、 $1/2$  波長モードを  $1/4$  波長モードへと変化させることができる。金属板近接法は、図 7-1(a)に示す誘電体 1 の端部に金属板を近づけることで、シャントキャパシタンスを付与することにより、共振周波数を変化させる手法である。金属板を近づけるほどキャパシタンスが大きくなり共振波長が  $1/4$  波長へ近づく。本研究で提案する手法は金属板近接法において金属板を極限まで近づけたものに相当する。

図 7-2(a)は MSA モデル検証用素子の模式図を示す。著者は、同一結晶基板上に 2 つのメサ（メサ C と D）を作製し、メサ D に金属パッチを付与した。ここで、誘電体としてフッ化カルシウムを 10 nm 蒸着した。また、銀の遮蔽長は 0.5–1.0 THz で  $\sim 10$  nm のため[49]、80 nm の銀を蒸着した。図 7-2(b)と(c)は MSA モデル検証用素子の光学顕微鏡像と断面プロファイルを示す。固有接合列に励振される電磁定在波が MSA と同様に振る舞うならば、金属パッチによる周波数の変化が期待できる。

### 7-2 金属パッチによる周波数への影響

図 7-3(a)と(b)は  $T_b = 40.0$  K におけるメサ C と D の  $I$ - $V$  特性と出力特性を示す。図 7-3(b)から分かるように、金属パッチの有無に関わらず、両メサから高・低バイアス域で放射が起こる。図 7-4 は最大出力のバイアス点で測定したスペクトルを示す。両メサの発振周波数は 0.68 THz と同じであった。図 7-5(a)と(b)はメサ C と D の発振周波数の  $T_b$  依存性を示す。メサ C からは 0.49–0.71 THz の放射が起こる一方、メサ D からは 0.50–0.71 THz の放射が起こる。つまり、両メサの発振周波数範囲はほぼ変わらない。この結果は、金属パッチが共振波長に影響を与えないことを意味する[50]。図 7-6(a)と(b)はメサ C と D から得られたスペクトルピークの高さと発振周波数の関係を示す。両メサ共に発振周波数に対して同様なピーク高さの分布をもつが、0.68 THz と 0.60 THz のピーク高さはメサ C の方が大きい。これは金属パッチによる遮蔽効果と考えられる。

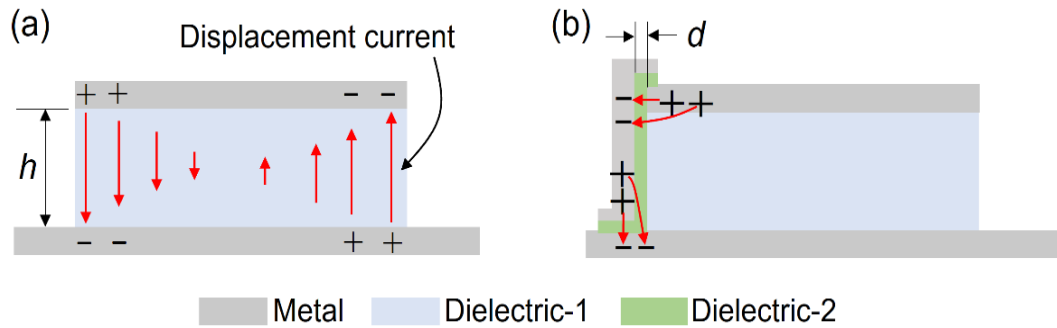


図 7-1: (a)MSA の断面模式図. (b)側面に誘電体と金属を付与した MSA の断面模式図.

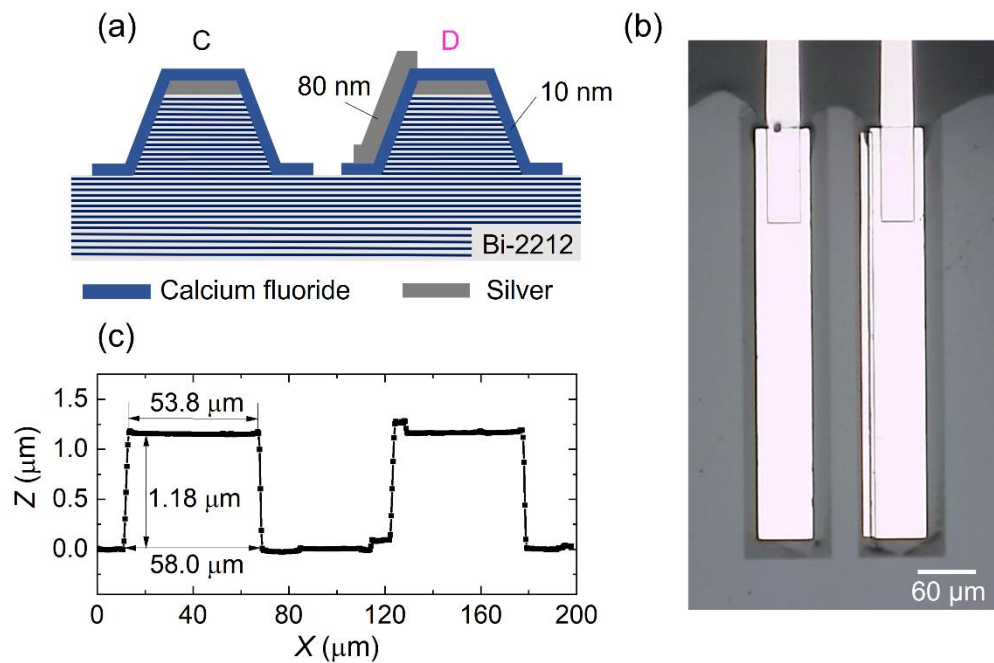


図 7-2: (a)MSA モデル検証用素子の模式図. (b)光学顕微鏡像. (c)断面プロファイル.



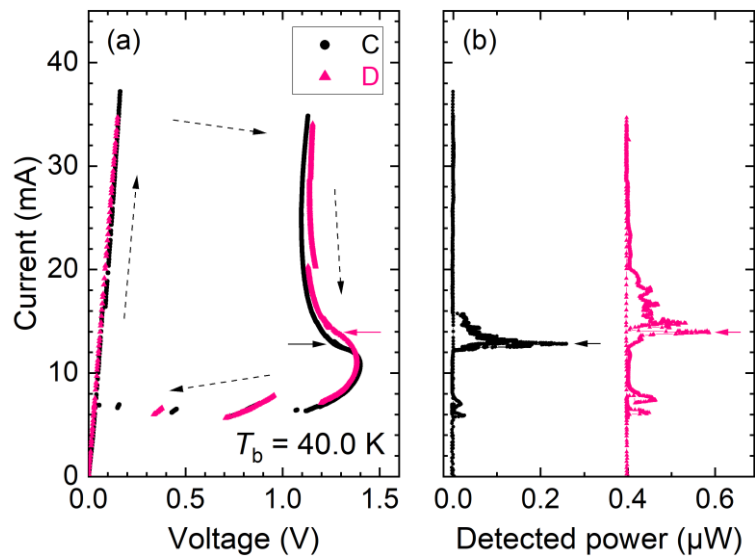


図 7-3: メサ C と D の  $T_b = 40.0 \text{ K}$  における (a)  $I$ - $V$  特性及び (b) 出力特性.

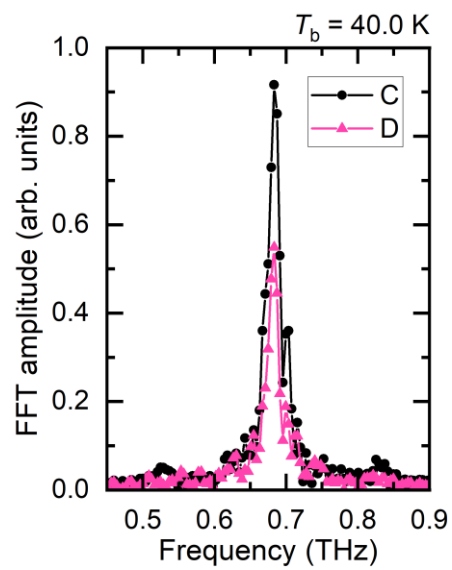


図 7-4: メサ C と D の  $T_b = 40.0 \text{ K}$  におけるスペクトル.  
図 7-3(b)の矢印で示すバイアス点で測定した.

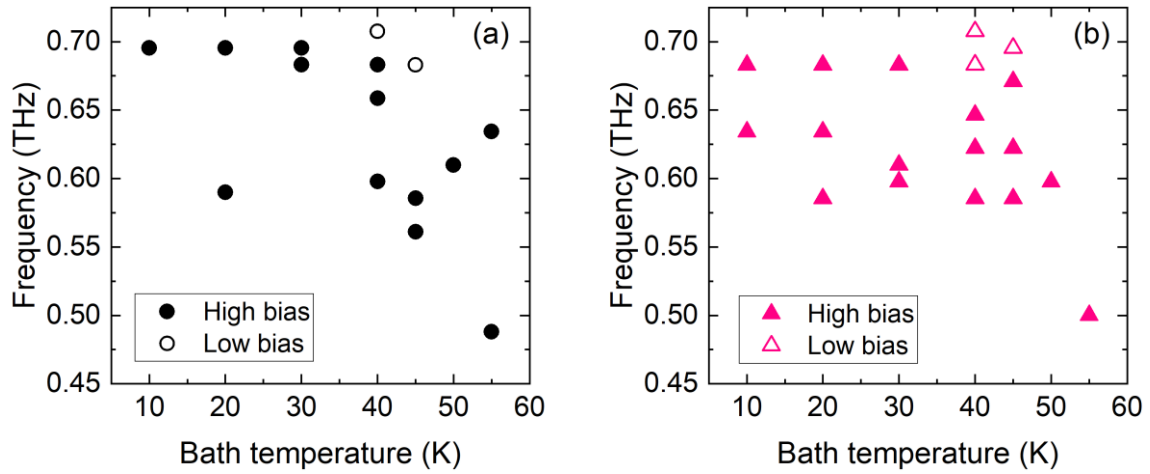


図 7-5: 発振周波数の熱浴温度依存性. (a)メサ C 及び (b)メサ D.

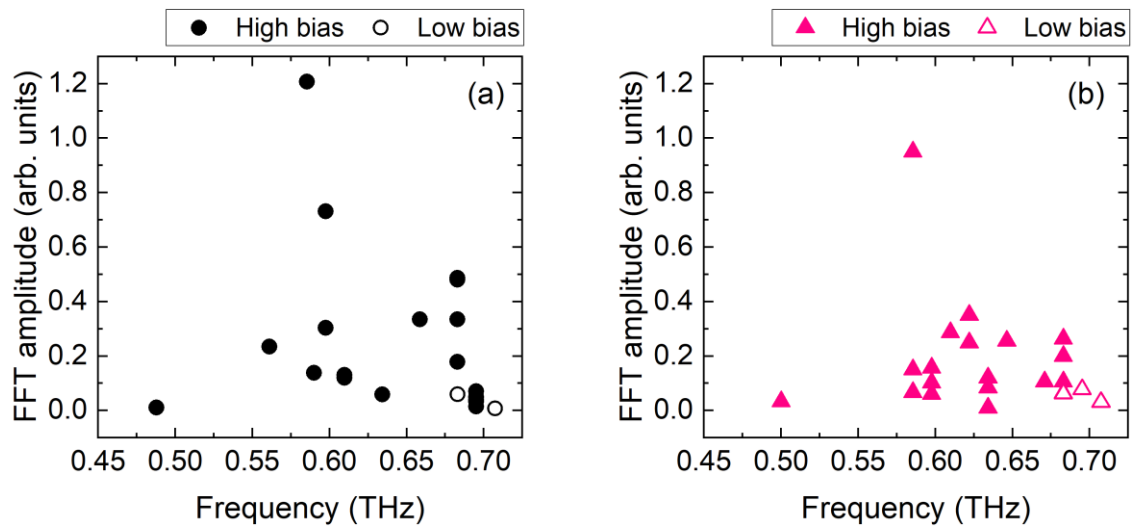


図 7-6: 発振周波数とスペクトルピーク高さの関係. (a)メサ C 及び (b)メサ D.

### 7-3 金属パッチによる電磁遮蔽効果

【7-2】で示したように、金属パッチが共振波長に影響を与えないならば、金属パッチは単なる電磁遮蔽板として機能すると考えられる。そこで、著者は図 7-7 に示す逐次加工素子を用いて金属パッチの電磁遮蔽効果を検証した。具体的には、第一にメサ側壁の両側に金属パッチを付与した素子 P1 を作製する(図 7-7(a))。P1 の特性を調べた後、P1 の上面金属膜をエッチングすることで、Bi-2212 表面が真空に露出した素子 P2 を作製する(図 7-7(b))。P2 の特性評価後に、P2 のメサ側壁にある金属パッチをエッチングし、電磁遮蔽要素を全て取り除いた素子 P3 を作製し(図 7-7(c))、再度特性を評価する。追加工はフォトリソグラフィとアルゴンイオンミリングで行った。P1 からは放射されず、P2 と P3、または P3 のみから放射されることを期待した。

図 7-8(a)と(b)は  $T_b=20.0\text{ K}$  における逐次加工素子の  $I$ - $V$  特性と出力特性を示す。図 7-8(b)から分かるように、P1 と P2 から放射が起こらない一方で、P3 からは 20 mA と 42 mA で放射が起こる。挿入図は P3 の 42 mA で測定したスペクトルを示し、その発振周波数は 0.61 THz であった。図 7-9(a)と(b)では  $T_b=30.0\text{ K}$  の特性を示した。 $T_b=20.0\text{ K}$  の場合と同様に P3 からのみ放射が起こる。P3 において  $T_b$  の上昇に伴い 42 mA の放射出力が低下し、20 mA 近傍の放射出力が増加する。挿入図は 22 mA で測定したスペクトルを示し、その発振周波数は 0.68 THz であった。 $T_b=70.0\text{ K}$  まで特性を調べたが、P1 と P2 からの放射は得られなかった。

図 7-10 では P1, P2, P3 の最大スイッチング電流を  $T_b$  に対してプロットしている。図 7-10 から分かるように、追加工によって最大スイッチング電流が減少している。その起源を調べるために、 $c$  軸抵抗の温度依存性を図 7-11 に示した。超伝導転移温度はほぼ同じであるため、P1 と P2 のスイッチング電流の差は、エッチングによるメサ表面状態の変化に起因すると考えられる。表面エッチングによる影響は図 7-11 の抵抗変化として現れている。一方で、P2 と P3 の差はエッチングによるメサ上部の表面積の変化と考えられる。図 7-10 の挿入図は P3 の断面プロファイルを示す。P3 はメサ側壁の金属パッチをエッチングして作製したため、P2 と比べてメサ上部の表面積が減少する。図 7-10 に示す実線は、最大スイッチング電流  $I_{sw}(T_b) = A\sqrt{1 - (T_b/T_c)^2}$  と定義し[51]、 $A$  をパラメータとした最小二乗フィッティングの結果を示す。P1 の実験値と実線が上手く整合する一方で、追加工した P2 と P3 に関しては、実線と実験値の誤差が大きい。追加工によるメサ表面状態の変化は、 $I$ - $V$  スキャン毎のスイッチング電流のゆらぎの大きさにも影響すると考えられる。

以上の結果を踏まえると、P1, P2 から放射が起こらなかった理由は、メサ側面金属パッチによる遮蔽効果のためと解釈できる。さらに、P3 からのみ放射が起こったことは、遠方放射に寄与する電磁界がメサ側壁周辺に存在することを意味する。

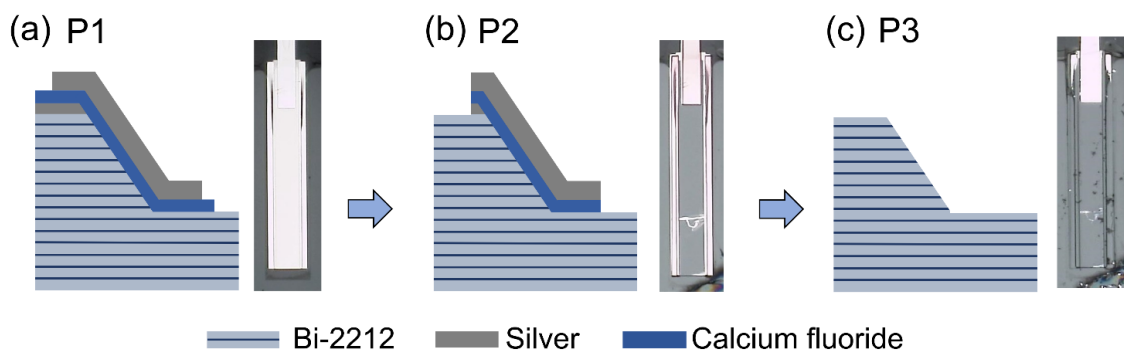


図 7-7: 逐次加工素子の模式図と光学顕微鏡像.

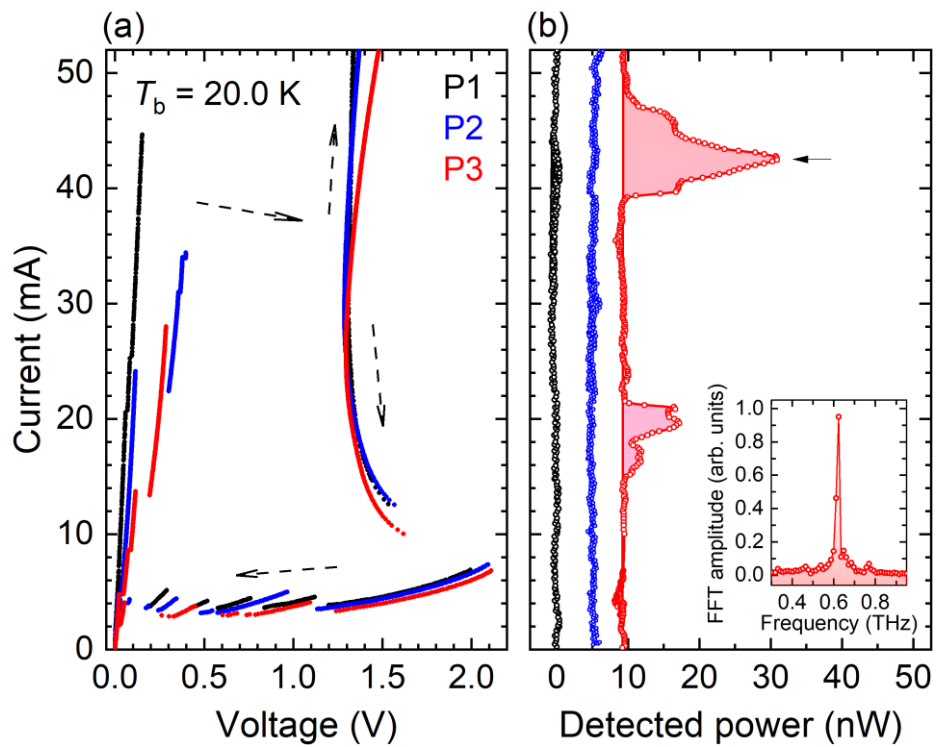


図 7-8:  $T_b = 20.0$  K の(a) $I$ - $V$ 特性. (b)出力特性. 挿入図は図中矢印で示すバイアス点で測定したスペクトル.

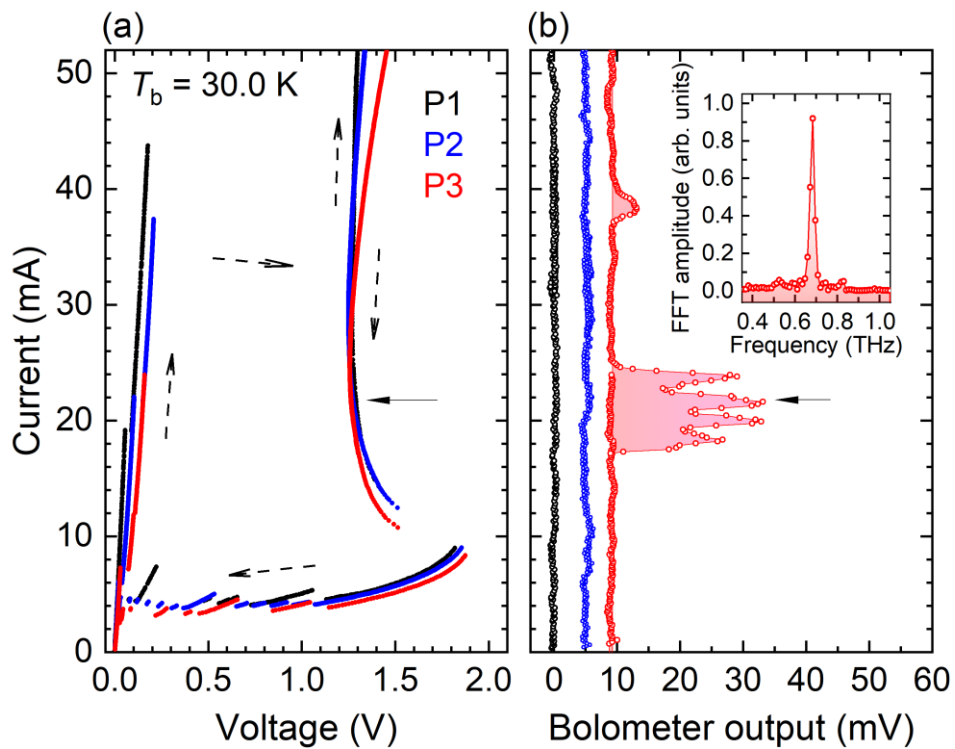


図 7-9:  $T_b = 30.0$  K の(a) $I$ - $V$ 特性. (b)出力特性. 挿入図は図中矢印で示すバイアス点で測定したスペクトル.

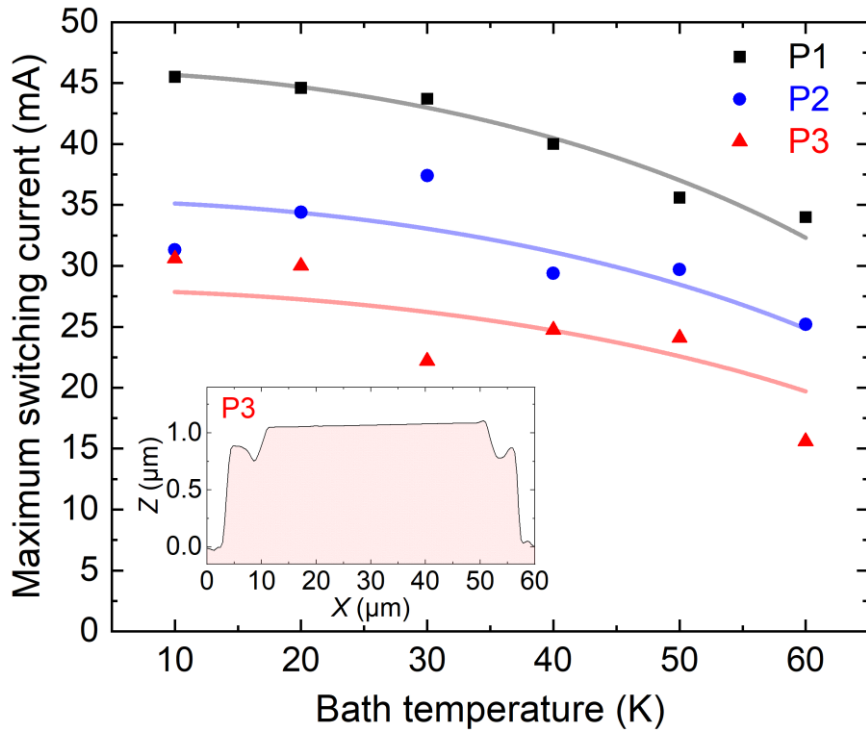


図 7-10: 逐次加工による最大スイッチング電流の変化. 挿入図は P3 の断面プロファイル.

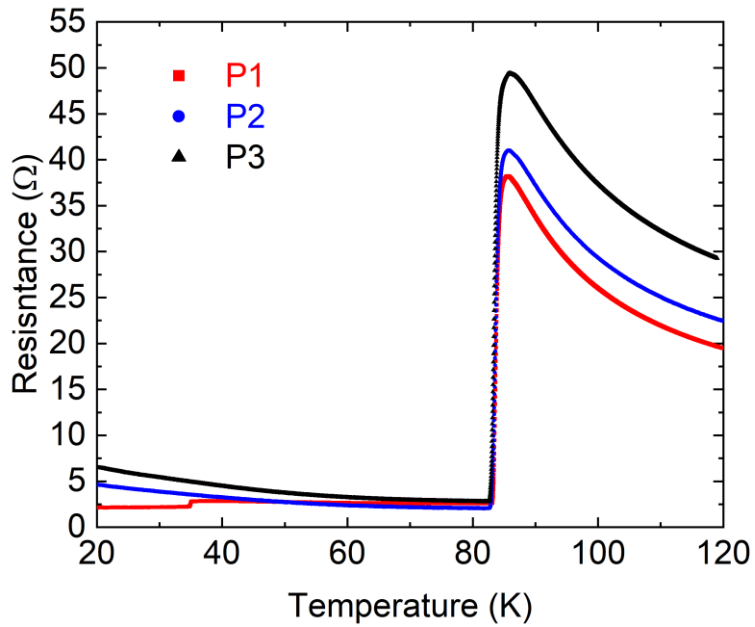


図 7-11: c 軸抵抗の温度依存性.

#### 7-4 金属パッチの影響を受けない頑健な発振状態の実現

【7-2】【7-3】の結果から，Bi-2212 テラヘルツ発振素子に励起される電磁定在波は金属パッチの影響を受けないことが分かった．ここではその理由について考察する．

MSA と Bi-2212 テラヘルツ発振素子の違いについて考える．MSA は外部電源からの供給により高周波発振を起こす．一方で，Bi-2212 テラヘルツ発振素子では，直流電圧の印加によって固有接合列に高周波発振が生じる．さらに，第 6 章の結果より，結合振動子集団系で起こる同期現象と同じことが固有接合列で生じていると考えられる．つまり，各接合に励起された振動電流が，電磁氣的結合によって相互作用し，巨視的な状態となるように同期しようとする．このように，MSA にはない自発的な同期効果が外界の影響を受けない安定な共振モードを励起させたと推測できる．

共振波長が金属パッチの影響を受けない理由を，電磁定在波の波形の観点から考えることもできる．モード波形として考えているものは，Lin, Koshelev らによって提案されている反対称電場モード（図 7-1(a)に示す 1/2 波長モード）である[52][53]．Klemm らが提案した Dual source model は，空間的に均一なジョセフソン電流と，反対称電場モードによる放射を仮定するものである[54][55]．一方で，Koyama らによって，メサ内部で空間的に対称な電場が励起されると計算されたことがある[56]．電場振幅がメサの端で節という意味ではないことに注意したい．Koyama らが指摘する電場波形ならば，電場振幅がメサ中央で最大のため，メサ側面の金属パッチによる変位電流短絡の影響を受けなかったと考えることができる．このような可能性も考えられるが，電場波形の同定にはさらなる検証が必要である．

## 第8章 まとめ

本研究では、メサ台形の断面形状が固有接合列の特性分布に対応することに着眼し、メサ断面形状を意図的に制御することで、固有接合列の特性分布幅が放射特性に与える影響を調べた。また、メサ側壁に金属パッチを付与することで、メサ内部の電磁定在波とメサを最も単純化したモデルである MSA の共振モードとの違いを調べた。以下では、本研究の新規性についてまとめ、最後に結論を述べる。

### 8-1 本研究で新規に導入した手法及び得られた実験結果

- A) ノボラック型レジスト (OFPR) と化学増幅型レジスト (TCIR) を併用し、露光条件とアルゴンイオンエッチングの条件を最適化することで、同一結晶基板上に断面形状が異なるメサを作製する手法を確立した。OFPR を用いることでメサの厚さ  $t \sim 1 \mu\text{m}$  に対し、メサ上底幅と下底幅の差  $\Delta w = 7\text{--}16 \mu\text{m}$  を実現できる。一方、TCIR を使うことで  $\Delta w = 2\text{--}3 \mu\text{m}$  を達成できる。
- B) 同じ  $\Delta w$  を持つメサであっても、例えばメサ幅  $50 \mu\text{m}$  と  $100 \mu\text{m}$  ではメサ上底幅と下底幅の相対比が異なるため、それを考慮したパラメータ  $\gamma = (1 - w_t/w_b)/(1 + w_t/w_b)$  を導入した。
- C) A) で示したメサ断面形状制御手法を用いて、 $t = 0.9\text{--}1.3 \mu\text{m}$  である 4 つの素子 (合計 9 個のメサ) を作製し、 $\gamma$  が放射特性に与える影響を調べた。すべての素子で共通であった結果は、同一結晶基板上で  $\gamma$  が異なるメサの放射特性を比較した場合、 $\gamma$  の小さなメサはより高強度なテラヘルツ波を放射するということであった。この結果は高バイアス域・低バイアス域によらない。
- D) 高バイアス域では  $\gamma \sim 10\%$  のメサから放射することがある。しかしながら、再現性は低い。
- E) 高熱伝導エポキシ樹脂を素子に組み込むことで、温度分布がほぼ均一とみなせる低バイアス域で放射出力が最大となるように素子特性を制御した。高熱伝導エポキシ樹脂を使った 4 つの素子 (合計 8 個のメサ) を作製し、 $\gamma$  と放射特性の関係を低バイアス域で調べた。
- F) 低バイアス域において、 $\gamma > 8.9\%$  のメサからは検出器の限界感度  $\sim 1 \text{ nW}$  以下の応答が得られた。一方で  $\gamma \sim 6\%$  のメサからは、 $100 \text{ nW}$  以上の出力が得られた。そして、 $\gamma \sim 2\%$  のメサの最大出力は  $\gamma \sim 6\%$  のメサと比較して数倍大きかった。
- G) 同一結晶基板上にある  $\gamma \sim 6\%$  と  $\gamma \sim 2\%$  のメサの周波数可変範囲を比較した。素子の一例では、熱浴温度と電圧を変化させることにより、 $\gamma \sim 2\%$  のメサからは  $0.41\text{--}1.02 \text{ THz}$ 、 $\gamma \sim 6\%$  のメサからは  $0.50\text{--}0.85 \text{ THz}$  の放射が観測された。つまり、 $\gamma$  の小さなメサはより広い周波数可変範囲を示した。この傾向は別の素子でも同じであった。
- H) メサ側壁に  $10 \text{ nm}$  のフッ化カルシウムと  $80 \text{ nm}$  の銀からなる金属パッチを付与し、共振波長の制御を試みた。金属—誘電体—金属からなる MSA とは異なり、金属パッチの有無によらず、共振波長は変化しなかった。
- I) 金属パッチによる電磁遮蔽効果を利用して、遠方放射源がメサ側壁近傍の変位電流であることを確かめた。

## 8-2 結論

- 固有振動数の分布を持つ結合振動子集団では、系の相互作用の大きさが固有振動数の分布幅を上回った時、振動子の同期が開始する。そして同期する振動子の数は固有振動数の分布幅に応じて相転移的に変化する。【8-1】で示した (F)の結果を見ると、 $\gamma$ がある値を超すと出力が 100 倍以上向上し、それ以降の出力の増加量は数倍であることが分かる。出力が同期している接合数の二乗に比例することを考えると、結合振動子集団系の同期現象と同様なことが固有接合列で生じていると考えられる。すなわち、Bi-2212 テラヘルツ発振素子は $\gamma$ に応じて同期転移を起こす。
  
- 【8-1】(G)に示すように、同一結晶基板上に $\gamma$ が異なる2つのメサを作製し、両メサの周波数可変範囲を比較すると、 $\gamma$ の小さなメサはより広い可変範囲を示す。つまり、 $\gamma$ の小さなメサは位相同期を促進し、よりテラヘルツ波を放射しやすくなり、その結果として周波数可変範囲の拡大をもたらす。 $\gamma$ はその意味で周波数可変性に影響を与える。
  
- MSA では、誘電体と金属からなる金属パッチを変位電流最大の場所に置くと、金属パッチによる変位電流の短絡によって共振波長が変化し得る。しかしながら【8-1】(H)に示すように、Bi-2212 テラヘルツ発振素子には金属パッチの影響を受けない頑健な発振状態が実現する。固有接合列では各接合に励起されたジョセフソン振動電流が電磁氣的結合によって相互作用し、巨視的な状態となるように系が同期しようとする。このような自発的な同期効果が外界の影響を受けない安定な共振モードを励起させる。



## 謝辞

本研究を実施する上でお世話になった方々にこの場を借りて深くお礼を申し上げます。

まず、学部4年次からの指導教員として研究ご指導を賜りました辻本学先生に感謝申し上げます。先生にご教授いただいたことは多く、そのすべてをここに書き記すことができません。中でも強く心に残っていることはモノづくりの精神です。例えば、実験装置を自作すること、測定システムとプログラムを自ら開発すること、高品質な素子を作製することが挙げられます。そのことを胸に、研究に根気強く取り組むことが良い実験につながると感じております。辻本学先生は、私が興味を持った研究テーマを第一に優先していただき、試行錯誤の様子をそばで温かく見守ってくださいました。助けが必要なときはすぐに駆けつけていただけなので、今日まで存分に研究を推し進めることができたと感じております。今後ともお世話になるかと思いますが、よろしく願いいたします。

門脇和男教授には、私が辻本研究室に配属される以前から個人的にお世話になっておりました。教授の超伝導に関する講義では、カマリ・オンネス教授の至言”Door meten tot weten (実験により知識を)”の精神を熱くご解説いただきました。さらにご自身の研究である銅酸化物高温超伝導体 YBCO 発見の苦労や裏話を、面白いストーリーを織り交ぜてお話くださいました。先生のエピソードを今もときどき思い出し、研究のモチベーション向上に役立てています。研究面では、高品質な Bi-2212 単結晶材料の作製にこだわっている姿勢に強く感銘を受けました。先生を目標として、私も素晴らしいモノづくりができるようこれから努めてまいります。

超伝導物性工学研究室の柏木隆成先生には、私が辻本研究室で研究を開始した直後から今日まで、身近なところで大変お世話になりました。良い特性を示す素子がなかなか完成せず苦しんだ時期に、柏木先生は優しく声をかけてくださり、実験をうまく進めるためのコツやポイントをご教示くださいました。先生と一緒にいった発振線幅測定がうまくいき、応用物理学会にて口頭発表したことはよく覚えています。研究費助成が獲得できず、心が折れそうになったこともありましたが、先生はいつでも温かく励ましてくださいました。ありがとうございました。

南英俊先生からは、3 研究室の合同ミーティングの場で非常に有益なご意見を賜りました。またミーティング以外でも、Bi-2212 テラヘルツ発振素子の出力校正に関するアドバイスや、メサ内部のモード波形についての考察など、興味深いお話を賜りました。論文執筆にあたり、多大なご指導を賜りましたこと感謝しております。共用装置の管理面においてはいつもご協力いただきありがとうございます。

京都大学の掛谷一弘先生から、初めてお会いした日本物理学会の場で貴重なご意見をいただいたこと、今でもよく覚えております。以降、今日までの長いお付き合いの中で個人的にお世話になりました。博士後期課程3年次には、「京大で一緒にテラヘルツ時間領域分光法の実験をやらないか」と声をかけてくださいました。京都滞在中も、研究以外にも含めて温かいサポートを賜りました。実験が夜遅くまで延びたとき、先生と一緒に夜ふかしさせていただいた思い出は私の宝物です。2021年11月の博士論文予備審査会では遠いところ、わざわざ筑波までお越しくささいました。審査会のあとの個別議論では、先生から鋭いご指摘を賜りました。おかげで学びが深まり、研究の意義をあらためて見出すことができました。

博士後期課程の指導教員である松石清人教授は、後期課程で私が困ることがないように、すみずみまで心遣いを賜りました。先生のご支援のおかげで日々充実した研究生活を送ることができています。個別に面談させていただいた折にも、親身になって相談に乗ってくださいました。感謝しております。博士論文予備審査会の日程調整や会場の手配では、お忙しいところご対応いただき誠にありがとうございました。

辻本研究室の永山佳苗さん，鈴木祥平さん，3 研究室の中川駿吾さん，湯原拓也さん，中山繭さん，齋藤佑真さん，辻本研究室卒業生の金子陽太さん，3 研究室卒業生の今井貴之さん，大野雪乃さん，志津友幸さん，大槻祥馬さん，楠瀬慎二さん，京都大学掛谷研究室の中村公大さん，小林亮太さんには公私共にお世話になりました。皆さんの今後ますますのご活躍をお祈りします。

最後に，私の学生生活を温かく見守り，様々なご支援を賜りました父と母に心より感謝いたします。

## 参考文献

- [1] S. Du, K. Yoshida, Y. Zhang, I. Hamada, and K. Hirakawa, Terahertz dynamics of electron–vibron coupling in single molecules with tunable electrostatic potential, *Nat. Photonics* **12**, 608 (2018).
- [2] K. Fujita *et al.*, Recent progress in terahertz difference-frequency quantum cascade laser sources, *Nanophotonics* **7**, 1795 (2018).
- [3] M. Asada and S. Suzuki, Terahertz emitter using resonant-tunneling diode and applications, *Sensors* **21**, 1384 (2021).
- [4] B. D. Josephson, Possible new effects in superconductive tunnelling, *Phys. Lett.* **1**, 251 (1962).
- [5] K. Momma and F. Izumi, VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data, *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272 (2011).
- [6] R. Kleiner, F. Steinmeyer, G. Kunkel, and P. Müller, Intrinsic Josephson effects in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  single crystals, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2394 (1992).
- [7] M. Machida, T. Koyama, and M. Tachiki, Dynamical breaking of charge neutrality in intrinsic Josephson junctions: Common origin for microwave resonant absorptions and multiple-branch structures in the IV, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4618 (1999).
- [8] X. Hu and S.-Z. Lin, Phase dynamics of inductively coupled intrinsic Josephson junctions and terahertz electromagnetic radiation, *Supercond. Sci. Technol.* **23**, 053001 (2009).
- [9] S. F. Lee *et al.*, a-b plane microwave surface impedance of a high-quality  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  single crystal, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 735 (1996).
- [10] I. E. Batov, X. Y. Jin, S. V. Shitov, Y. Koval, P. Müller, and A. V. Ustinov, Detection of 0.5 THz radiation from intrinsic  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  Josephson junctions, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 262504 (2006).
- [11] L. Ozyuzer *et al.*, Emission of coherent THz radiation from superconductors, *Science* **318**, 1291 (2007).
- [12] U. Welp, K. Kadowaki, and R. Kleiner, Superconducting emitters of THz radiation, *Nat. Photonics* **7**, 702 (2013).
- [13] K. Yamaki *et al.*, High-power terahertz electromagnetic wave emission from high- $T_c$  superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesa structures, *Opt. Express* **19**, 3193 (2011).
- [14] A. Yurgens, Temperature distribution in a large  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , *Phys. Rev. B* **83**, 184501 (2011).
- [15] B. Gross *et al.*, Hot-spot formation in stacks of intrinsic Josephson junctions in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ , *Phys. Rev. B* **86**, 094524 (2012).
- [16] H. Minami *et al.*, Local SiC photoluminescence evidence of hot spot formation and sub-THz coherent emission from a rectangular  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesa, *Phys. Rev. B* **89**, 054503 (2014).
- [17] M. Tsujimoto, H. Kambara, Y. Maeda, Y. Yoshioka, Y. Nakagawa, and I. Kakeya, Dynamic control of temperature distributions in stacks of intrinsic Josephson junctions in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  for intense terahertz radiation, *Phys. Rev. Appl.* **2**, 044016 (2014).
- [18] T. M. Benseman *et al.*, Current Filamentation in Large  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  Mesa Devices Observed via Luminescent and Scanning Laser Thermal Microscopy, *Phys. Rev. Appl.* **3**, 044017 (2015).
- [19] H. B. Wang *et al.*, Coherent terahertz emission of intrinsic Josephson junction stacks in the hot spot regime, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 057002 (2010).

- [20] C. Watanabe *et al.*, Influence of the local heating position on the terahertz emission power from high- $T_c$  superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesas, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 042603 (2015).
- [21] T. M. Benseman *et al.*, Tunable terahertz emission from  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesa devices, *Phys. Rev. B* **84**, 064523 (2011).
- [22] W. Anukool, S. Barakat, C. Panagopoulos, and J. R. Cooper, Effect of hole doping on the London penetration depth in  $\text{Bi}_{2.15}\text{Sr}_{1.85}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  and  $\text{Bi}_{2.1}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_{0.85}\text{Y}_{0.15}\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , *Phys. Rev. B* **80**, 024516 (2009).
- [23] M. Ji *et al.*,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  intrinsic Josephson junction stacks with improved cooling: Coherent emission above 1 THz, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 122602 (2014).
- [24] T. Kashiwagi *et al.*, Generation of electromagnetic waves from 0.3 to 1.6 terahertz with a high-  $T_c$  superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  intrinsic Josephson junction emitter, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 092601 (2015).
- [25] H. Minami, C. Watanabe, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, K. Kadowaki, and R. A. Klemm, 0.43 THz emission from high- $T_c$  superconducting emitters optimized at 77 K, *J. Phys. Condens. Matter* **28**, 25701 (2016).
- [26] A. Elarabi, Y. Yoshioka, M. Tsujimoto, and I. Kakeya, Monolithic Superconducting Emitter of Tunable Circularly Polarized Terahertz Radiation, *Phys. Rev. Appl.* **8**, 064034 (2017).
- [27] A. Elarabi, Y. Yoshioka, M. Tsujimoto, Y. Nakagawa, and I. Kakeya, Polarization Enhancement of Terahertz Radiation Generated by Intrinsic Josephson Junctions in a Truncated Edge Square  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  Mesa, *Phys. Procedia* **81**, 133 (2016).
- [28] T. M. Benseman *et al.*, Observation of a two-mode resonant state in a  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesa device for terahertz emission, *Phys. Rev. B* **100**, 144503 (2019).
- [29] Y. Kuramoto, *Chemical oscillations, Waves, and Turbulence*, Springer Series in Synergetics, Vol. 19 (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1984).
- [30] T. Imai *et al.*, Investigation of wet etching solutions and method for thicker stand alone type of mesa structures of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  single crystals, *Jpn. J. Appl. Phys.* **60**, 126501 (2021).
- [31] Y. Shibano *et al.*, High- $T_c$  superconducting THz emitters fabricated by wet etching, *AIP Adv.* **9**, 015116 (2019).
- [32] K. E. Gray *et al.*, Emission of terahertz waves from stacks of intrinsic Josephson junctions, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **19**, 886 (2009).
- [33] H. Minami, I. Kakeya, H. Yamaguchi, T. Yamamoto, and K. Kadowaki, Characteristics of terahertz radiation emitted from the intrinsic Josephson junctions in high- $T_c$  superconductor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , *Appl. Phys. Lett.* **95**, 232511 (2009).
- [34] L. Ozyuzer *et al.*, Terahertz wave emission from intrinsic Josephson junctions in high- $T_c$  superconductors, *Supercond. Sci. Technol.* **22**, 114009 (2009).
- [35] S. Sekimoto *et al.*, Continuous 30  $\mu$  W terahertz source by a high- $T_c$  superconductor mesa structure, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 182601 (2013).
- [36] T. Kashiwagi *et al.*, Efficient Fabrication of Intrinsic-Josephson-Junction Terahertz Oscillators with Greatly Reduced Self-Heating Effects, *Appl. Phys. Lett.* **4**, 054018 (2015).
- [37] M. Tsujimoto *et al.*, Geometrical resonance conditions for THz radiation from the intrinsic Josephson junctions in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , *Phys. Rev. Lett.* **105**, 037005 (2010).

- [38] T. Kitamura *et al.*, Broadly tunable, high-power terahertz radiation up to 73K from a stand-alone  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesa, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 202603 (2014).
- [39] H. Koseoglu, F. Turkoglu, Y. Simsek, and L. Ozyuzer, The fabrication of THz emitting mesas by reactive ion-beam etching of superconducting  $\text{Bi}2212$  with multilayer masks, *J. Supercond. Nov. Magn.* **24**, 1083 (2011).
- [40] M. Naftaly, S. Chick, G. Matmon, and B. Murdin, Refractive indices of Ge and Si at temperatures between 4–296 K in the 4–8 THz region, *Appl. Sci.* **11**, 487 (2021).
- [41] H. Eisele, M. Naftaly, and J. R. Fletcher, A simple interferometer for the characterization of sources at terahertz frequencies, *Meas. Sci. Technol.* **18**, 2623 (2007).
- [42] G. Kuwano *et al.*, Mesa-Sidewall Effect on Coherent Terahertz Radiation via Spontaneous Synchronization of Intrinsic Josephson Junctions in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , *Phys. Rev. Appl.* **13**, 014035 (2020).
- [43] H. Minami *et al.*, Local SiC photoluminescence evidence of hot spot formation and sub-THz coherent emission from a rectangular  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesa, *Phys. Rev. B* **89**, 054503 (2014).
- [44] T. M. Benseman *et al.*, Direct imaging of hot spots in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesa terahertz sources, *J. Appl. Phys.* **113**, 133902 (2013).
- [45] H. Sakaguchi and Y. Kuramoto, A Soluble Active Rotator Model Showing Phase Transitions via Mutual Entertainment, *Prog. Theor. Phys.* **76**, 576 (1986).
- [46] K. Wiesenfeld, P. Colet, and S. H. Strogatz, Synchronization Transitions in a Disorderd Josephson Series Array, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 404 (1996).
- [47] K. Wiesenfeld, P. Colet, and S. H. Strogatz, Frequency locking in Josephson arrays: Connection with the Kuramoto model, *Phys. Rev. E* **57**, 1563 (1998).
- [48] 森下久, 小形アンテナの基礎, コロナ社, 2011年.
- [49] D. R. Smith and F. R. Fickett, Low-Temperature Properties of Silver, *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **100**, 119 (1995).
- [50] G. Kuwano *et al.*, Experimental validation of a microstrip antenna model for high- $T_c$  superconducting terahertz emitters, *J. Appl. Phys.* **129**, 223905 (2021).
- [51] X. Zhou *et al.*, On-Chip Sensing of Hotspots in Superconducting Terahertz Emitters, *Nano Lett.* **20**, 4197 (2020).
- [52] S. Lin and X. Hu, Possible dynamic states in inductively coupled intrinsic josephson junctions of layered high- $T_c$  superconductors, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 247006 (2008).
- [53] A. E. Koshelev and L. N. Bulaevskii, Resonant electromagnetic emission from intrinsic Josephson-junction stacks with laterally modulated Josephson critical current, *Phys. Rev. B* **77**, 014530 (2008).
- [54] R. A. Klemm and K. Kadowaki, Angular dependence of the radiation power of a Josephson STAR-emitter, *J. Supercond. Nov. Magn.* **23**, 613 (2010).
- [55] K. Kadowaki *et al.*, 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, *J. Phys. Soc. Japan* **79**, 023703 (2010).
- [56] T. Koyama, H. Matsumoto, M. Machida, and K. Kadowaki, In-phase electrodynamic & terahertz wave emission in extended intrinsic Josephson junctions, *Phys. Rev. B* **79**, 104522 (2009).