

高温超伝導体単結晶 Bi2212 の矩形型
メサ構造から発振するテラヘルツ波の強度と
磁場効果に関する研究

八巻 和宏

2010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）

高温超伝導体単結晶 Bi2212 の矩形型
メサ構造から発振するテラヘルツ波の強度と
磁場効果に関する研究

八巻和宏

（物性・分子工学専攻）

概要

本研究は、2007年に新たに発見された高温超伝導体 Bi2212 結晶構造中に内在している固有ジョセフソン接合を利用した電磁波発振現象に関するものであり、特に矩形型メサ構造の場合のテラヘルツ電磁波の発振強度とその磁場効果を実験的に詳細に調べたものである。

弱く結合した2つの超伝導体はジョセフソン効果と呼ばれる量子現象を発現する。ジョセフソン効果には、直流ジョセフソン効果と交流ジョセフソン効果の2種類があり、そのうち交流ジョセフソン効果は、素子に定電圧を印加した場合、電圧に比例した周波数を持つ交流電流が誘起される現象である。この交流電流を利用し、ジョセフソン接合を電圧-周波数の変換器、即ち、発振器として利用しようとする試みは、ジョセフソン効果が見出された1960年代初頭から進められた。実験・理論双方から既に多くの研究があり、従来型超伝導体から作られる単一接合や多重アレイなどで既に実証されている。しかしながら、これらの結果は実験室レベルでの検証であり、一般に使用される程の実用化レベルには達していない。その理由として、1. 従来超伝導体では、素子をヘリウム温度に冷却する必要があること、2. 均一な接合を作ることが難しく、同等の特性が得られないこと、3. 動作速度は半導体素子と比較し2桁程速いが、製作コストが極めて高く、また、メンテナンス経費も高いこと、などが挙げられる。しかしながらこのような不都合にも係らず、超伝導ジョセフソン接合は量子力学的な実態としての固有の優れた特性を持つことから、この特徴を生かした方面では応用が既に実用化されている。即ち、微弱な高周波電磁波を量子極限の感度で検出できることから、電波天文学、宇宙通信などの受信素子として欠かせない存在となっている。

1986年における高温超伝導体の発見は、このような状況を一変した。即ち、高温超伝導体は超伝導転移温度が従来超伝導体と比べ1桁以上高く、従って超伝導ギャップエネルギーも1桁以上大きい(20~30 mV)。これによって、発振周波数領域も1桁以上拡大し、素子としての可能性をTHz領域へ拡大した。一方、THz帯域での発振受信の困難さ(THzギャップ)が従来技術の最大の弱点であったことから、高温超伝導ジョセフソン接合は、この問題の解決に有意であると考えられるようになった。このことから、高温超伝導体発見直後から、従来超伝導の欠点を克服し、夢の超伝導デバイスを作製しようとする努力が全世界中で行われてきた。しかしながら1/4世紀に及ぶ熾烈な研究にも係らず、高温超伝導体を用いたTHz帯域をカバーできる応用デバイスは現在に至っても実現されていないのが実情である。この最大の理由は、高温超伝導体が酸化物であり、あらゆる超伝導特性はこの酸素の持つ不定比的な振る舞いにより大きく変動することが原因で、性質の均一な試料を作製できない点にある。即ち、高温超伝導体の酸素の持つ特殊性をうまく制御出来ていないことに由来する。

筑波大学門脇研究グループでは、20年以上にわたり高温超伝導体の高品質単結晶育成に、努力を払ってきた。その結果、現在では世界最高品質の大型単結晶の育成が可能であり、この大型単結晶を用いて多くの物性研究がなされてきた。また、このような物性研究の結果は結晶の質の評価につながり、結晶育成技術の向上へフィードバックされ相補的に進歩してきた。高温超伝導体は、このような高品質の単結晶を用いなければ、超伝導デバイスとしての応用は不可能であると考えられている。

1992年、Kleinerらは、高温超伝導の発現には、2次元的に配列したCuO₂面が根源的に重要であり、本質的であると主張し、CuO₂面間の結合の強弱によって、超伝導異方性が大きく変化することを実験的に示した。特に異方性の大きな高温超伝導体、例えば、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}などでは、CuO₂面はほとんど独立しており、他のCuO₂面との相互作用は極めて弱い。このような状況はCuO₂面間がジョセフソン接合的であることを示唆しており、これを彼らは固有ジョセフソン接合(intrinsic Josephson junction)と名付け

た．この物質の場合、 CuO_2 面間は 15 \AA しか離れておらず、原子層からなるジョセフソン接合が事実上物質の単位胞内に実現していることになる．この結果は、その後の超伝導の理解に計り知れない影響を与えた．即ち、このような高温超伝導体の磁場中の振る舞いは、パンケーキ磁束が発生し、磁束線はパンケーキの集団の連結状態を成すことから、これが固体-液体相転移を示すこと、転移点付近の幅広い温度-磁場領域は、磁束液体状態が形成され超伝導揺らぎの状態にあることなど、超伝導の理解に関し、従来の第 2 次超伝導体の概念に革命的変革をもたらした．

高品質大型単結晶の存在と、 CuO_2 面の 2 次元性が強く、弱結合状態にあることの認識によって高温超伝導体の超伝導状態に関する概念は一変した．即ち、高温超伝導体単結晶自体を一つの同等な固有ジョセフソン接合が多数直列に接続した多重ジョセフソン接合系とみなすことを可能にしたのである．このような多重ジョセフソン接合系が予想通り動作させられれば、従来超伝導体の単一接合では得られなかった THz 帯域に及び、かつ、強力でコヒーレントな電磁波の発振受信が可能となる．このような考えに基づいて多くの研究者が過去 15 年以上にわたり努力してきたが、実現出来なかった．ところが 2007 年 6 月、筑波大門脇教授のグループと米国アルゴンヌ国立研究所の共同研究により、大型の単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ のメサ(台地)構造を、直流電流駆動することで、強力な THz 帯の電磁波を初めて観測することに成功した．この重大な発見により、問題の突破口が切り開かれたのである．彼らの実験によれば、単結晶を矩形(長さ $300 \mu\text{m}$ 、幅 $40 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度、高さ $1 \mu\text{m}$ 程度)に微細加工し、 c 軸方向に直流電流を流し、 $1 \mu\text{m}$ の厚さに含まれる約 700 層の固有ジョセフソン接合を電圧状態にすることで、交流ジョセフソン接合を満たす周波数で $0.5 \mu\text{W}$ 程度の THz 帯 ($300 \sim 850 \text{ GHz}$) の電磁波を観測したのである．電磁波はフーリエ型分光器 (FT-IR スペクトロメータ) により分光され、線幅は、装置の分解能 (7.5 GHz) 以下の鋭い輝線スペクトルを示し、コヒーレントな発振現象が実現していることを伺わせた．また、発振周波数は矩形メサの幅と逆数の関係にあり、矩形メサの短辺が発振波長の半分 ($\lambda/2$) に対応していることなどが明らかにされた．このように高品質の大型単結晶メサを用いることで、従来実現出来なかった強力でコヒーレントな、しかも連続発振する THz 帯域の電磁波発振デバイスが実験室レベルではあるが、実現された．

本研究は、この Bi2212 からの多様な発振現象のうち、高強度・高効率化と発振現象の磁場効果に関して調べたものである．単結晶試料の酸素量、メサの幅や高さといった形状パラメータ、加工法の制御により、100 を超える試料を試作し、高強度発振の実現条件を見い出した．放射分布の測定から素子全体からの発振強度を見積もると、 $\sim 30 \mu\text{W}$ となり、2007 年の報告に比べ、60 倍という進展が見られた．高強度化の要因は、加工プロセスの改善による試料へのダメージの低減に加え、発振条件での印加電流の増大により実現された．本研究で用いた試料の発振領域での印加電流値は $10 \sim 60 \text{ mA}$ であり、そのうち最大の発振強度が得られた $15 \sim 20 \text{ mA}$ は、2007 年の報告に比べ 3 倍程度大きい．また、発振領域における印加電流の変位は、 2 mA と 20 倍近く大きくなっており、強度の増強が電流-電圧特性の振る舞いからも確認されている．同様の加工プロセスを辿ることで、高強度発振は高頻度で、再現可能である．また、本研究で得られた高強度発振の線幅は、FT-IR 分光測定から最大で 0.85 cm^{-1} と見積もられ、従来の報告に比べ、2 倍以上広い．この原因はまだ明らかでないが、交流ジョセフソン効果の非線形性に起因する高調波の振る舞いから、複数のモードの共存も考えられる．

印加電流、印加電圧、発振周波数、抵抗、メサの形状などを考慮に入れ、発振強度を詳細に検討した．その結果、発振強度を決定する最も大きな要因は、試料形状と、発振周波数と印加電圧のマッチングの要素であることを明らかにした．また、従来型発振の高強度化に加え、試料の電流-電圧特性を一点一点丹念に測定する過程で、投入電力にほとんど差がないにも係らず、高強度・高効率に発振する新奇励起状態が存在す

ることを実験的に初めて明らかにした．この高強度の発振は、今のところ非常に不安定であるものの、同一の電流-電圧状態を再現することで、再現良く得られる．従来の発振周波数が主としてメサの頂部で規定されるのに対し、高効率発振の発振周波数は低周波側へのシフトがみられ、空洞共振器のモデルから、メサの底部を節とした発振が生じていると理解される．スペクトルの線幅が 0.3 cm^{-1} と狭いことも特徴である．同一の試料を用いているにも係らず、線幅に変化が見られ、これが高効率、高強度の発振に繋がっている可能性がある．

多様な磁束状態との関連から、電磁波発振現象に対する高温超伝導体への磁場の効果は非常に興味深い．本研究では、 $H < 230 \text{ Oe}$ の範囲で、発振強度、周波数の磁場依存性を評価した．発振強度は、 c 軸方向に磁場を印加した場合に強く抑制され、 ab 面内では強度変化は小さく、寧ろ磁場の領域によっては発振強度が強まる傾向がみられた．この磁場効果の異方性は 2 次元性の強い結晶構造や、パンケーキ磁束、ジョセフソン磁束といった磁束状態と、発振との間に強い相関があることを示唆している．印加磁場の増加と共に発振は抑制される傾向にあり、特に c 軸に平行に磁場を印加すると 20 Oe 程度の低磁場で発振は抑制された．一方で ab 面に関しては、磁場印加により、 50 Oe 程度の低磁場領域で 20% 程度の発振強度の増大を示したが、その後、 150 Oe 以上で発振は抑制された．発振周波数は、磁場に拠らず、ほぼ一定であった．発振強度が印加磁場強度に大きく依存することから、磁場印加により、発振強度を時間スケールで動的に制御可能であることが初めて示された．

目次

第 1 章	緒論	1
第 2 章	研究の背景	3
2.1	テラヘルツギャップ	3
2.2	ジョセフソン効果	3
2.2.1	RSJ モデル	5
2.2.2	シャピローステップ	7
2.3	単一接合からの電磁波発振現象	7
2.4	高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212)	9
2.5	Bi2212 におけるジョセフソンプラズマ：磁束状態とジョセフソン侵入長	12
2.6	高温超伝導体固有ジョセフソン接合からの電磁波発振現象	15
2.6.1	ジョセフソン磁束の運動による電磁波発振現象	15
2.6.2	フェムト秒レーザー照射による電磁波発振現象	16
2.6.3	空洞共振による電磁波発振現象	17
2.6.4	高温超伝導体 Bi2212 からの電磁波発振現象の最近の進展	20
第 3 章	実験方法	23
3.1	試料作製	23
3.2	メサの作製工程の詳細	24
3.3	測定系	27
3.3.1	装置	27
3.3.2	電流-電圧測定	27
3.3.3	ボロメータによる電磁波の検出	28
3.3.4	分光計による発振周波数の同定	28
3.3.5	磁場の印加方法	28
3.3.6	放射強度分布の測定	29
第 4 章	高温超伝導体 Bi2212 単結晶矩形型メサ構造からの電磁波発振現象	30
4.1	抵抗の温度依存性	30
4.2	電流-電圧特性と電磁波発振強度	31
4.2.1	# 081219 の電流-電圧特性と電磁波発振強度	31
4.2.2	# 091222 の電流-電圧特性と電磁波発振強度	35

4.3	電流-電圧特性と分光測定結果	39
4.3.1	# 081219 の電流-電圧特性と発振スペクトル	39
4.3.2	# 091222 の単独バイアスによる電流-電圧特性と発振スペクトル	45
4.3.3	# 091222 の同時バイアスによる電流-電圧特性と発振スペクトル	47
4.3.4	電流-電圧特性とスペクトルから導かれる高強度発振の条件	49
4.4	R 型、IR 型の発振強度	52
4.5	素子全体からの発振強度の見積もりと高効率の発振現象	54
4.5.1	矩形メサ試料からの電磁波発振の放射強度分布	54
4.5.2	発振強度の見積もり	54
4.5.3	新奇高効率高強度発振現象の発見と発振スペクトル	56
4.6	発振強度、周波数の磁場依存性	58
4.6.1	印加磁場角度による発振強度変化	59
4.6.2	発振強度の印加磁場強度依存性	60
4.6.3	発振周波数の印加磁場強度依存性	62
4.6.4	磁場印加による発振強度の時間スケールでの動的な制御	64
第 5 章	結論	66
付録 A	R 型、IR 型発振と熱浴との関係	68
参考文献		70
謝辞		75

第 1 章

緒論

弱く結合した 2 つの超伝導体から成るジョセフソン接合と呼ばれる構造に、層間に垂直に電圧を印加した場合、印加電圧に比例した周波数の交流電流が励起される。これを交流ジョセフソン効果という。ここから、ジョセフソン接合の電圧-電磁波変換器としての応用が生まれてくる。

交流ジョセフソン効果を利用したジョセフソン接合の電磁波発振器としての特性は 1960 年台以降、世界中で研究されてきた。しかしながら、ジョセフソン素子を発振器として考えた場合、発振強度がピコワット (10^{-12} W) からナノワット (10^{-9} W) 程度と非常に小さい。一方で、電圧標準として、照射された電磁波の周波数から誘起された直流電圧を求める実験は世界中で進められ、現在、ジョセフソン接合はその照射された電磁波と電圧の比例関係から、最も精度の良い電圧標準として知られている。

ジョセフソン接合からの電磁波発振に関して、最近、大きな進展が見られた。2007 年にアルゴンヌ国立研究所の Kwok 博士のグループと筑波大門脇教授のグループとの共同研究により行われた、高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) からのマイクロワット (10^{-6} W) 程度の強力な発振現象の発見である。この発見はこれまでの常識を覆すものであり、発振周波数も丁度 1 THz 付近であることから、この周波数帯における電磁波応用という観点から大変注目されている。本研究は、この高温超伝導体 Bi2212 からの強力な電磁波発振現象に関し、発振電磁波の高強度化を目指すものである。即ち、様々な形状、大きさの多数の素子を作製し加工プロセスの最適化を行うことによって、発振の条件を探し出す実験的研究を行った。

一方で高温超伝導体 Bi2212 は、磁場中において強い 2 次元性に起因する特異な渦糸構造が発現し、磁束状態に多様な現象が生じることが指摘されている。例えば、高周波電磁場中では Bi2212 中にジョセフソンプラズマという励起状態が発生する。従来の金属型超伝導体の場合、ジョセフソンプラズマ励起エネルギーは \sim eV 程度であり、その一方で、超伝導ギャップは \sim meV 程度であるため、励起されたプラズマは直ちに準粒子へと変換される。クーパー対が対破壊されるため、ジョセフソンプラズマは安定に存在しない。一方、強い 2 次元性を持つ銅酸化物超伝導体の場合、超伝導ギャップエネルギーが従来超伝導体より 1 桁以上大きく、20 \sim 30 meV あり、一方、 c 軸方向のプラズマ励起エネルギーは逆に異方性に従い小さくなる。このため、異方性の大きな超伝導体では、ジョセフソンプラズマ励起が超伝導ギャップ内にある状況が実現する。このような状態は励起されても減衰出来ないため安定に存在することが出来る。このようなジョセフソンプラズマを逆に何らかの方法で励起することで、この励起エネルギーに対応する電磁波が得られるのではないかと発想がジョセフソンプラズマ現象の研究の中から生まれ、多くの実験が為されてきた。特に、従来超伝導弱接合でも行われたようにジョセフソン磁束の運動を利用するアイデアが盛んに研究されたものの、成功には至らなかった。しかしながら、電磁波の発振現象と磁束状態は極めて密

接に関係しており、発振の強度と磁場の関係は大変重要であると考えられている。発振と磁束の存在の関係を本研究では明らかにすることを目的とした。

高温超伝導体 Bi2212 を用いたテラヘルツ波発振器は、連続発振、固体（小型）素子、周波数制御可能といった工学的な応用を考える上で他の発生法に比べ、幾つかの優位性を持っている。更に、各固有ジョセフソン接合がそれぞれ 1 つの量子力学的な実体として動作することから、強く相互作用する多粒子系とみなすことができる。しかも相互作用が非線形であることから、非線形な量子多体系として、理学、工学の両面から大いに興味を持たれている。固有ジョセフソン接合系からの電磁波発振現象は、この非線形性によるものと考えられ、発振現象の解明は理・工学の大変重要な課題と考えられ、また同時に、その研究の進展は、今後の超伝導デバイス発展への大きな寄与が期待される。

本稿では、研究の背景である、テラヘルツギャップ、ジョセフソン接合、高温超伝導体、銅酸化物からの電磁波発振の諸特性に関して述べた後に、測定系、試料の加工法、実験結果とそれに関する考察を順に行う。

第 2 章

研究の背景

この章では、テラヘルツ帯の電磁波と物質の相互作用の観点から自然現象を概観し、発振器がなぜ必要なのか、また、発振機構の根幹を成す、ジョセフソン接合、対象物質である Bi2212 の特性と従来型超伝導体単一接合と高温超伝導体固有ジョセフソン接合を用いたこれまでの電磁波発振の歴史を順を追って述べる。

2.1 テラヘルツギャップ

電磁波はその周波数により、電波、赤外線、可視光、紫外線、エックス線、ガンマ線などと区別され、それぞれの特性を活かした産業応用は我々の文明を支える基盤技術の一つである。このうち電波と赤外線の狭間の領域をテラヘルツ (10^{12} Hz) 帯と呼び、これまで小型で汎用性の高い有用な発振器、検出器が存在しなかったことから、この周波数帯域の電磁波応用は、未開拓のままになっていた (図 2.1、2.2 参照)[1, 2]。この帯域は麻薬などの禁止薬物の摘発、非破壊検査、DNA 検査の高度化、がんの診断、高速情報通信など、多くの産業応用が期待され、半導体を始めとするエレクトロニクス、光学結晶を基礎とするフォトリソグラフィの双方の分野から、この電磁波領域を活用するための基盤技術の創出を巡る研究競争が世界的に進行中である。その一例として、図 2.3 にテラヘルツ波の代表的な応用例の一つである薬物の同定結果を示す [3]。テラヘルツ帯の電磁波は原子や分子の振動モードが存在する周波数帯であり、物質固有の振動モードである「指紋スペクトル」と呼ばれる吸収スペクトルを有する。こうした特性を活かし、空港での薬物の水際検査など、既に実用されている技術もある。今後、更に広範なこの周波数帯の応用が期待され、新産業の創出も叫ばれている。

2.2 ジョセフソン効果

超伝導はマクロスコピックに電子の位相の揃った量子状態であり、このような量子状態にある 2 つの超伝導体を近接させると超伝導体間のゲージ不変な位相差に応じたトンネル電流が流れる。この現象は、1962 年に Josephson により指摘された [4]。Giaever の超伝導体トンネル接合の実験 [5] と Anderson による講義がその着想の契機となったのは、有名な話である。この現象は、翌 1963 年に Anderson と Rowell によって確認された [6]。その後、ジョセフソン接合に定電圧を印加した場合に印加電圧に比例した周波数を持つ交流電流が生じることが Josephson により予言され [7]、こちらも Shapiro、Giaever によって実証されている [8, 9]。これら 2 つの超伝導体の近接効果はそれぞれ、「直流ジョセフソン効果」、「交流ジョセフソン効果」として知られ、現在でも様々な観点から盛んに研究されている。超伝導体の近接効果の学問を拓いた

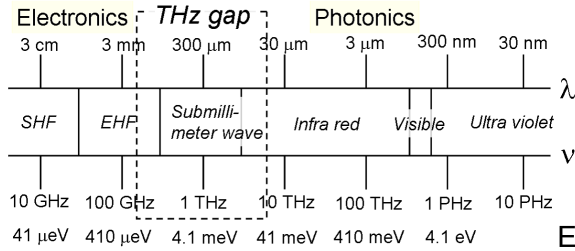


図 2.1 電磁波の種類と波長、周波数、エネルギーの関係。点線で囲んだ領域はテラヘルツギャップと呼ばれ、簡便な発振器、検出器などが存在しないため、未開拓の領域である [1]。

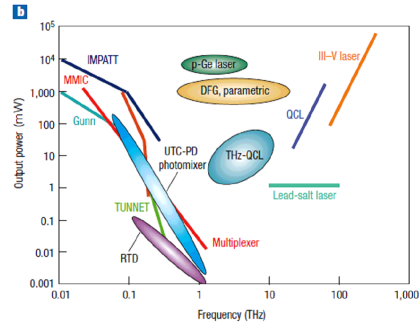


図 2.2 各種発振法による発振周波数と強度の関係 [2]。線が連続発振、丸で囲まれた部分がパルス発振を示す。固体、小型の汎用性の高い連続発振器の開発は未だ十分とは言えない。

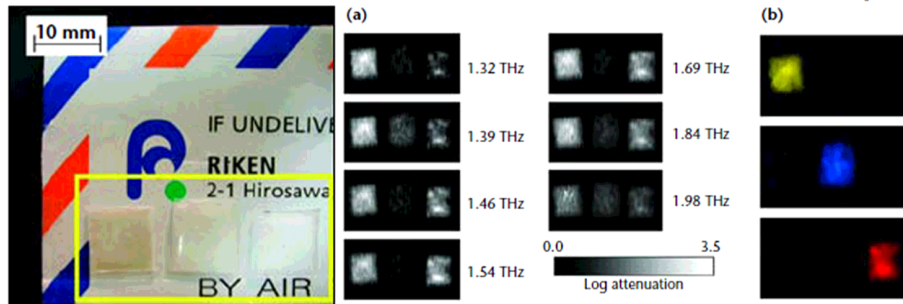


図 2.3 テラヘルツ波による物質の同定。テラヘルツ波は電波と光波の両方の特徴を併せ持ち、物質固有の吸収スペクトルを持つ。よって、空港などでの禁止薬物の摘発に有用である [3]。

として Josephson は 1972 年に江崎玲於奈博士、Giaever 博士と共にノーベル物理学賞を受賞した。

絶縁体を 2 つの超伝導体で挟んだ構造をジョセフソン接合という (図 2.4 参照)。広義にはジョセフソン接合はクーパー対がトンネルする弱く結合した接合一般を指し、トンネル接合以外にも接合部のくびれたマイクロブリッジ素子や点接触素子、接合に常伝導体を用いた超伝導-常伝導-超伝導 SNS トンネル接合もジョセフソン接合として挙げられる。この時、2 つの近接した超伝導体に散逸なしに超伝導電流が流れる。これを直流ジョセフソン効果と呼ぶ。また、この電流は 2 つの超伝導体のゲージ不変な位相差と関連付けられる (式 2.1)。また、一方で、ジョセフソン接合に定電圧を印加した際、印加電圧に比例した周波数を持つ交流電流が生じることが知られている (483.5979 GHz / 1 mV)。これを交流ジョセフソン効果と呼ぶ (式 2.2)。また、ジョセフソン接合の層に平行に磁場を印加すると 2 つの超伝導体の位相差が空間変化する (式 2.3)。

$$I = I_c \sin \delta \theta \tag{2.1}$$

$$\frac{d\delta \theta(t)}{dt} = \frac{2e}{\hbar} V \tag{2.2}$$

$$\nabla \delta \theta = \frac{2ed}{\hbar} \mu_0 \vec{H} \times \vec{n} \tag{2.3}$$

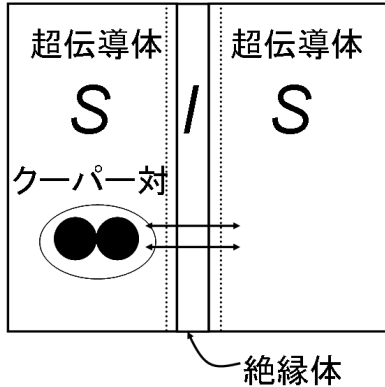


図 2.4 ジョセフソン接合の模式図．広義には弱く結合した 2 つの超伝導体一般を指すが、簡単のため、ここでは超伝導体に挟まれた薄い絶縁体の構造を考える．

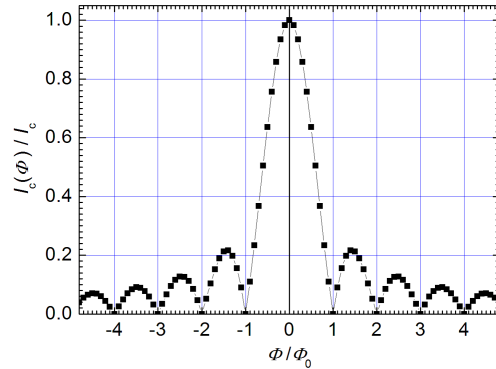


図 2.5 ジョセフソン接合による臨界電流の磁束依存性．ジョセフソン接合に平行に磁束が一つ入る磁束 Φ_0 で接合面内の電流が互いに打ち消しあい、素子全体としての臨界電流値が 0 になる．

ここで $\delta\theta(t)$ はジョセフソン接合を形成する 2 つの超伝導体のゲージ不変な位相差、 e は素電荷、 \hbar はプランク定数を 2π で除した数、 d はジョセフソン接合をなす 2 つの超伝導体の磁場侵入長に絶縁層の厚みを加えたトンネル接合を特徴付ける量、 μ_0 は真空の透磁率、 \vec{H} は接合面に平行な印加磁場、 \vec{n} は接合平面に垂直な方向の単位ベクトルである．式 2.3 はジョセフソン接合の磁場特性を特徴付け、ここから磁場中でジョセフソン電流は空間変化することが導かれる．例えば、超伝導電流がゼロ磁場では均一に流れる理想的な接合では、素子全体を流れる最大電流 (臨界電流) は磁場中では磁束依存性が発生し、フラウンホーファパターンを描く．これは $H = \Phi_0/d$ となるような磁場でジョセフソン接合内部の電流分布が互いに打ち消しあい、素子全体からのマクロスコピックな電流が 0 になるためである．このとき、ジョセフソン素子の臨界電流は、接合層に平行に導入される磁束 Φ の関数として

$$I_c(\Phi) = I_c(0) \left| \frac{\sin \frac{\pi \Phi}{\Phi_0}}{\frac{\pi \Phi}{\Phi_0}} \right| \quad (2.4)$$

と表される．ここで Φ_0 は量子化された磁束であり、 $Hd = \Phi_0$ はジョセフソン磁束が接合中に 1 つ侵入する条件に対応する．図 2.5 に、ジョセフソン素子に外部磁場を接合に平行に印加した場合の臨界電流の磁束依存性の計算結果を示す．Rowell により、Pb-I-Pb ジョセフソン接合に磁場を印加することで、臨界電流が Φ_0 に対応する磁束で極小を示すことが実験的に示された [10]．その後の Pb-PbO_x-Pb 接合の実験などで、ゼロ磁場で電流が均一に流れるジョセフソン接合では、印加磁場のアライメントが十分な条件では、磁場の関数として臨界電流が 0 になることが確認されている [11]．

2.2.1 RSJ モデル

図 2.6 にジョセフソン接合における典型的な電流-電圧特性を示す．印加電圧の上昇に従い、電流は増大し臨界電流 I_c に到達した時点で準粒子抵抗に起因する電圧状態にジャンプする．また電圧状態から電流を下げる過程で、接合のキャパシタ成分に起因するリトラッピング電流が流れ、ヒステリシスを生じる．こ

の回路に流れる電流は直流ジョセフソン電流を $I\sin(\delta\theta(t))$ としたときに

$$I = I_c \sin(\delta\theta(t)) + \frac{V}{R} + C \frac{dV}{dt} \tag{2.5}$$

として、定性的に理解できる。このときジョセフソン接合は図 2.7 に示すようなシャント抵抗、抵抗、キャパシタからなる等価回路によって書き表される。電流-電圧特性上のヒステリシスは主に超伝導体弱接合中のキャパシタ成分に因っている。この時、ジョセフソン角運動量 ω_c とマッカンバーパラメーター β_c を導入し、 $\tau = \omega_c t$ として、 t を τ で変数変換することにより、式 2.2、2.5 より、次の方程式を得る。

$$\beta_c \frac{d^2\delta\theta(\tau)}{d\tau^2} + \frac{d\delta\theta(\tau)}{d\tau} + \sin\delta\theta(\tau) = \frac{I}{I_c} \tag{2.6}$$

$$\tau \equiv \omega_c t = \frac{2e}{\hbar} I_c R t \tag{2.7}$$

$$\beta_c = \omega_c R C = \frac{2e}{\hbar} I_c R C \tag{2.8}$$

このような抵抗値 R が電圧に依存しない系を *RSJ* モデルと言い、ジョセフソン接合系の電流-電圧特性はここから洗濯板ポテンシャルと呼ばれる、位相に対して一次の項と cosine の項の和で現されるポテンシャル中をキャパシタンス C に対応する質量を持つ粒子の運動に例えた古典力学的な描像に帰着しうる。ヒステリシスを持つのは質量 C の粒子の慣性力に因っており、キャパシタ成分の結合の強さが超伝導状態にリトラッピングされる際の電流、即ち I_r を決めている。ここで定性的と断ったのは、今回の試料の様に試料サイズが数十から数百マイクロメートル、厚さ 1 マイクロメートルを超える巨大な接合の系においては、試料自身の自己発熱の効果により、試料自身の温度が上昇し、熱による温度変化の効果に起因する特性の変化が無視できない場合があるからである。即ち、臨界電流の減少、準粒子抵抗状態での自己発熱による温度変化、温度の不均一性などである。

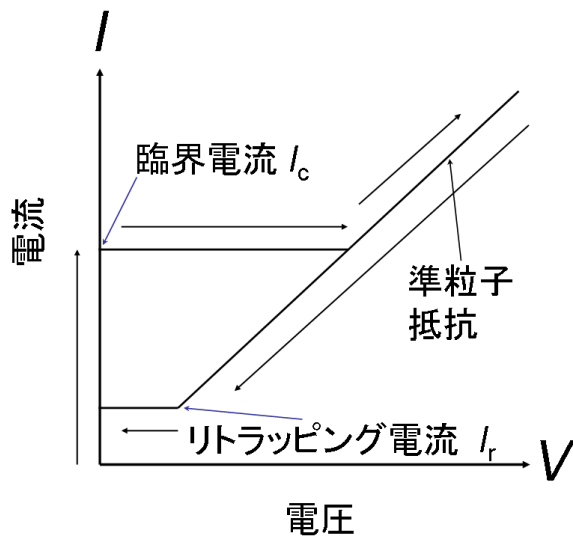


図 2.6 単一接合系における電流-電圧特性の模式図。電流の印加に対してヒステリシスを持つ。

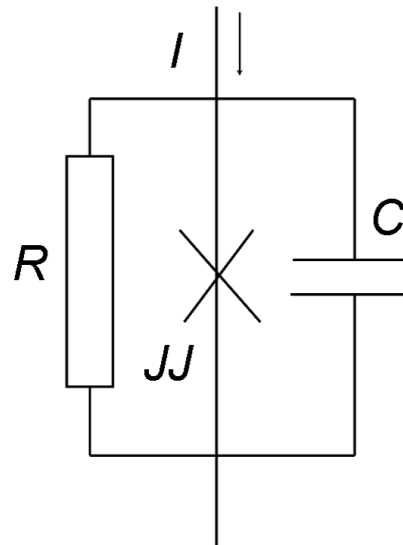


図 2.7 RSJ モデル。抵抗とキャパシタ、それにシャント抵抗が並列に結合した系になる。

2.2.2 シャピローステップ

ジョセフソン接合の特性を最も特徴づける実験の一つに 1963 年の Shapiro によるシャピローステップの発見が挙げられる [8]。ジョセフソン接合にマイクロ波を照射すると、照射した電磁波の周波数に従う、特定の電圧で、ステップ状の電流の飛びが観測される。この照射電磁波と共鳴電圧は交流ジョセフソンの式 2.2 に従い、

$$V_n = \frac{h\nu_0}{2e}n(n = \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (2.9)$$

と示される。式 2.9 の分母にある $2e$ は電子がクーパー対を成していることを示しており、常伝導電子ではなく、ボーズ凝縮したクーパー対がトンネルしていることを示す重要な証拠である。また、この関係から物理定数 h/e をジョセフソン素子の周波数-電圧特性から求める研究が進められた [12]。一般には照射するマイクロ波の周波数を変化させ、各周波数での電流-電圧測定との比較から比例係数、 h/e を導出する。これにより、高精度の物理定数の決定が可能である。

2.3 単一接合からの電磁波発振現象

こうした検出器としての効能とは逆に、ジョセフソン素子を電磁波発振器として利用しようとする試みは、1960 年代より広く推進された。ジョセフソン接合から発振された電磁波の検出を図 2.8(A) に示す [13]。検出はスーパーヘテロダイン方式による。発振実験に用いたジョセフソン接合は Sn-SnO-Sn 薄膜、発振周波数は 9.2 GHz とマイクロ波の領域であり、強度も 10^{-12} W 程度と非常に微弱である。

ジョセフソン接合を複数個バイアスし、コヒーレントに協調動作を行うことで、強力な発振を実現するという提案は 1970 年に Tilly によってなされた [14]。2 つの単一接合それぞれの発振強度を P_A 、 P_B 、同時バイアスによって得られた発振強度を P_T とし、 $P_A = P_B$ のときに、2 つの素子がコヒーレントに協調した場合、 P_T は

$$P_T = (P_A^{1/2} + P_B^{1/2})^2 = 4P_A \quad (2.10)$$

となる。これは、単一接合に比べ 4 倍という強力な発振現象が実現することを意味する。このとき、系全体のコヒーレンスを表す尺度としてパラメータ H を導入する。

$$H = [P_T - \frac{P_A + P_B}{2(P_A P_B)^{1/2}}] \quad (2.11)$$

コヒーレントな発振が実現されている場合、 $H = 1$ となる。実際には、

$$P_T > (P_A + P_B) \quad (2.12)$$

のとき、 $H > 0$ となり、発振器 A、B の間には何らかのコヒーレンスがあるといえる。実験的には、1970 年代の Finnegan ら [15] や、Varmazis ら [16] が、2 つのジョセフソン接合の協調動作に成功している。図 2.8(B) に Varmazis らによる 2 つの In のマイクロブリッジからの協調動作を示す。破線はブリッジ間の電圧差が $1 \mu\text{V}$ になるように調整されている。黒線は 2 つのマイクロブリッジに等しい電圧が印加された場合である。挿入図は積分強度を表し、印加電圧に $1 \mu\text{V}$ の差がある場合に発振強度が単一接合の 2 倍に止まっているのに対し、等しい電圧を印加した場合は、強度が約 4 倍になっている。この実験においては、個々のジョセフソン接合への印加電圧の差を 5% 以内に抑えた場合にコヒーレンスが確認できるとした [16]。単

一接合から放射される電磁波は、印加電圧を制御し発振周波数を同調させることにより、コヒーレントに協調動作することは、実験的にも明らかである。しかしながら、ジョセフソン接合は絶縁層の特性による素子依存性が大きく、また、5%程度の印加電圧変化、接合間の距離といったパラメータによって協調動作に大きな影響があるため、単一接合を集積化し、そのコヒーレンスにより、高強度の発振を実現することは、技術的に極めて難しい。

単一接合を集積化し、高強度の発振を実現する試みは多くのグループで精力的に研究されているが、ここでは最近の Berbara らによる研究を紹介する [17, 18, 19]。彼らは、図 2.9 に示すような、Nb/AlO/Nb 単一接合ジョセフソン素子を 3×131 のアレイとして積層した。この多数の単一接合を Nb の接地面と共鳴させることで、素子の構造、インピーダンスのマッチングなどの問題を負荷抵抗の最適化などで可能な限り克服することで、強度を $0.4 \mu\text{W}$ 程度にまで向上させることに成功している [19]。しかしながら、集積化による発振強度の増強を目指す上で、ジョセフソン素子の特性制御の難しさは回避できない問題である。ジョセフソン素子の特性は絶縁層に強く依存する。そのため、均一な特性を持つ素子を作製することは、非常に難しく、現在まで、実用化に至っていない由縁となっている。

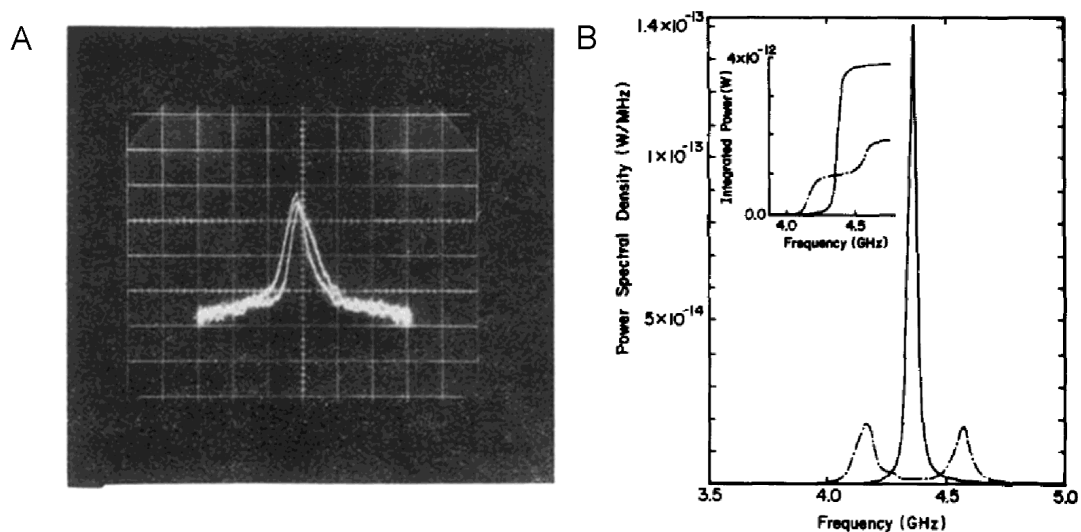


図 2.8 (A) Sn-SnO-Sn 単一ジョセフソン接合から発振された電磁波の検出 [13]。発振周波数は 9.2 GHz で強度は 10^{-12} W 程度である。(B) 2つの In マイクロブリッジによる電磁波のコヒーレントな発振の検出 [16]。破線が 2つの素子間の印加電圧差が $1 \mu\text{V}$ の場合。黒線が等しい電圧を印加した場合。このとき、等しい電圧を印加した場合の積分強度が単一接合からの発振の約 4 倍となっている。

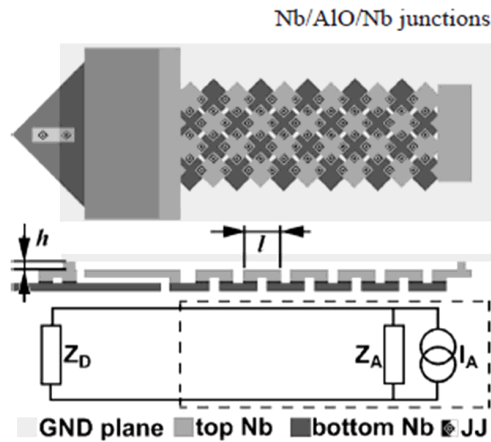


図 2.9 単一接合をアレイ化した Nb/AIO/Nb ジョセフソン素子 [19] . アレイの直上に Nb の接地面があり、これにより共鳴する .

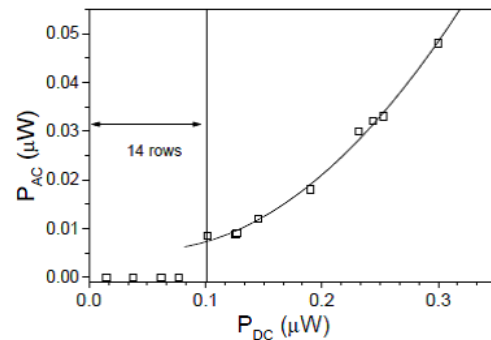


図 2.10 3 × 36 の Nb/AIO/Nb の単一接合アレイの投入電力と発振強度の関係 [17] . レーザのようにある閾値以上の入力電力で発振が得られ、強度は入力電力の 2 乗に従う .

2.4 高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212)

銅酸化物高温超伝導体は 1986 年に Bednorz と Müller によって発見された [20] . 母物質である反強磁性酸化物にキャリアをドープすることで、超伝導を発現する . その超伝導発現特性は Ln123 系 (例えば、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$)、214 系 (例えば、 $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CaCuO}_4$ 、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CaCuO}_4$)、Tl 系 ($\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_n\text{Cu}_{n+1}\text{O}_{2n+6+x}$ 、 $n = 0, 1, 2$)、Bi 系 ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_n\text{Cu}_{n+1}\text{O}_{2n+6+x}$ 、 $n = 0, 1, 2$)、Hg 系 ($\text{HgBa}_2\text{Ca}_n\text{Cu}_{n+1}\text{O}_{2n+6+x}$ 、 $n = 0, 1, 2$) などの種々の物質に依らず、 CuO_2 当り、キャリアを約 0.15 ドープすることで、その物質の最高の超伝導転移温度を示すことが知られている . 図 2.11 に一般的な銅酸化物超伝導体の電子相図を示す [21, 22] . x 軸がキャリア濃度、 y 軸が温度である . 図の左側が電子ドープの系、右側がホールドープの系であるが、モット絶縁体にキャリアを導入することで超伝導が発現するという考え方は同じである . 銅酸化物高温超伝導体は、正常状態で伝導が温度の一次の関数に従う異常金属相、反強磁性と超伝導が共存するのか、擬ギャップと呼ばれる常伝導状態でみられるギャップ構造など、多くの興味深い物性を示し、強相関電子系を代表する研究対象物質である .

伝導は Cu の $3d$ 軌道と O の $2p$ 軌道が担っており、超伝導波動関数は d 波の対称性を持っていると言われている . 従来型超伝導体に比べ、超伝導転移温度が高く、クーパー対が準粒子に対破壊を生じるエネルギーである超伝導エネルギーギャップも 20 - 30 meV 程度と従来型超伝導体に比べ約 1 桁大きい . 超伝導転移温度が、あるものでは液体窒素の沸点を超えることから、散逸のない送電線などの工学的応用への期待が大きく、現在に至るまで世界各国で熾烈な研究開発競争が繰り広げられている . しかしながら、その超伝導の発現機構に関しては、詳細は未だ未解明の状態である . 代表的な高温超伝導体の一つであり、また今回の研究対象物質でもある、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) の結晶構造図を図 2.12 に示す [23, 24] .

Bi 系銅酸化物高温超伝導体は絶縁層間に含まれる CuO_2 層の枚数から Bi2201、Bi2212、Bi2223 の 3 つに分類される . Bi 酸化物の超伝導は 1987 年にフランスと日本でそれぞれ独立に発見され、当時の超伝導転移温度は 6 K 程度であった [25, 26] . その後、1988 年に当時、金属材料技術研究所の前田博士が Bi 系化合物の超伝導転移温度が 105 K まで上昇することを報告した [27] . Bi2212 は高温超伝導体の中でも特に異

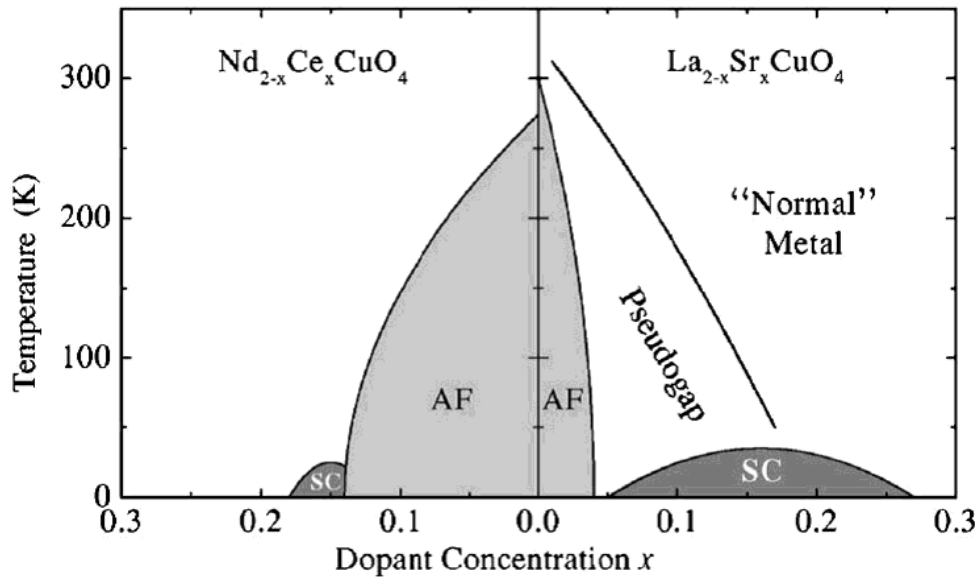


図 2.11 銅酸化物高温超伝導体の電子相図 [21]．反強磁性絶縁体酸化物にキャリアをドーブすることで、超伝導相が現れる．一般に超伝導転移温度 T_c は、 CuO_2 一層に対してキャリア 0.15 程度が最も高く、このキャリア濃度を超伝導に最も適したキャリア密度という意味でオプティマムドーブと呼ぶ．それに対して、オプティマムドーブよりもキャリアの少ない領域をアンダードーブ領域、キャリアの多い領域をオーバードーブ領域と呼ぶ．

方が大きく、またその異方性パラメータは結晶構造中の Bi_2O_2 絶縁層間の酸素量をコントロールすることにより、80 から 1000 程度まで非常に広い領域で制御可能である．図 2.13 に Bi2212 単結晶の酸素欠陥を制御した単結晶試料による c 軸抵抗の温度依存性の結果を示す [28]．熱処理により、 Bi_2O_2 絶縁層間の酸素量が少ないアンダードーブ領域の試料は、温度の減少に従い、抵抗が半導体的に超伝導転移温度まで上昇する．その後、超伝導転移し、抵抗は 0 になる．一方でオプティマムドーブ領域の試料は、正常状態の半導体的な抵抗率の上昇は抑制される．Bi2212 の場合 ab 面内抵抗は c 軸抵抗に比べ因子 10^{-3} 程度の比率で小さく、異方性が強い．これは超伝導性の強い CuO_2 層と絶縁性の強い Bi_2O_2 層が交互に積層していることに起因する．オーバードーブ領域でキャリアが増えることで層間の伝導が上昇し、異方性が減少する．

Bi2212 は超伝導-絶縁-超伝導の SIS 結合を結晶構造中に内在しており、原子レベルで均質なジョセフソン接合が得られる．ここから、これらの系は、酸化膜などによって作製された人工のジョセフソン接合と区別して「固有ジョセフソン接合系」と呼ばれる [29]．高温超伝導体が直列に接続したジョセフソン接合として振舞うか否かは、主に物質の異方性パラメータに因る．即ち、異方性の小さな物質である YBCO は、Bi 系、Tl 系などに比べ、ジョセフソン素子としての特性はなく、多重ブランチ構造といった固有接合系特有の現象の観測は困難である（極端にアンダードーブ領域の試料ではジョセフソン接合としての特性を持つことが知られている）[30]．図 2.14 に Kleiner らの報告した典型的な Bi2212 の電流-電圧特性を示す．結晶中の個々のジョセフソン接合が超伝導状態から準粒子抵抗状態に束縛され、単一のジョセフソン接合が直列に繋がった特性を示す．一般にジョセフソン接合は、絶縁層の特性により、そのトンネル特性が大きく変わり、素子依存性が大きい．しかしながら固有ジョセフソン接合においては、同一の特性を持つジョセフソン接合が結晶構造中に内在することから、原子レベルで均一なジョセフソン接合が数百～数千のオーダで直列に接続している点は、従来の超伝導接合では実現不可能であり注目に値する．

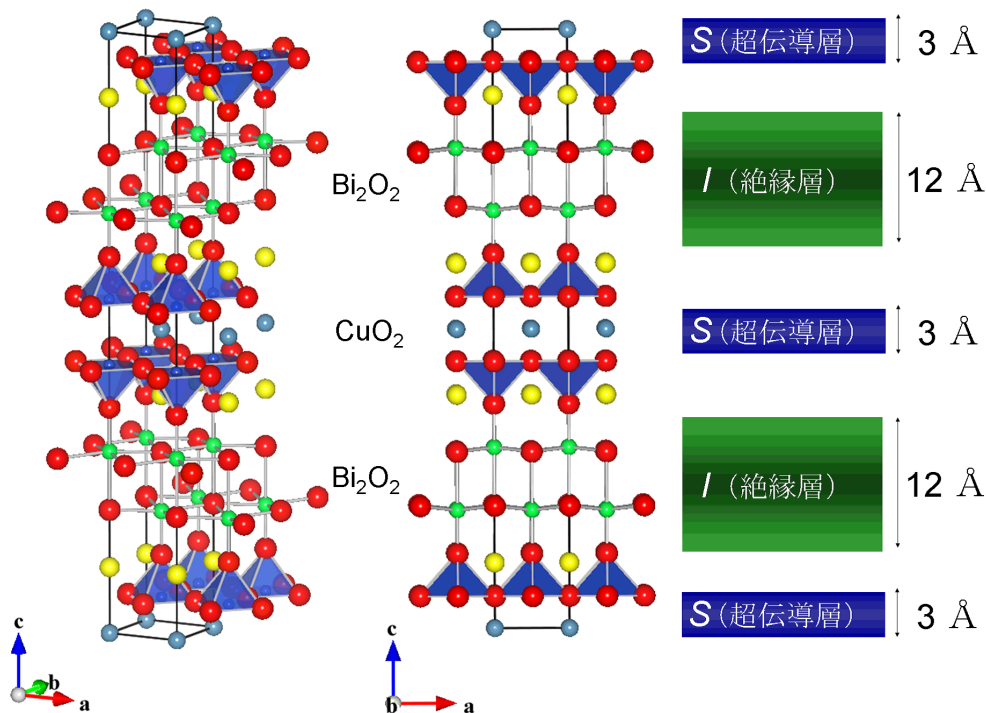


図 2.12 Bi2212 の結晶構造図．絶縁性の強い Bi_2O_2 層を超伝導性の強い CuO_2 層が挟んだ積層構造を有しており、結晶構造内部にジョセフソン接合を内在することから固有ジョセフソン接合系と呼ばれる．層間はファンデルワールス力による結合であり、剃刀などで容易に劈開可能で取り回しの容易さから異方性の強い高温超伝導体を研究する上での代表物質である．

高温超伝導体を用いて弱接合を作製してジョセフソン接合を作る研究は、従来の超伝導体と同様、活発になされてきた．高温超伝導体を用いて単一弱接合を作製し、GHz 帯の発振が得られたとする報告もある．しかしながら検出された電力は従来超伝導体と同じように極めて小さく、作製上は、コヒーレンス長の短さにより従来超伝導体よりも更に困難であり、高温超伝導体を使うメリットはあまり見えてこない．

一方、固有接合系において、交流ジョセフソン効果から電圧を印加することで電磁波発振を観測する試みは、その発見当時からあったが、単純な電圧印加による発振は単一接合同様の以下の問題があった．

- 発振周波数が数 GHz と非常に低い．
- 発振強度が ($10^{-12} \sim 10^{-9}$ W) と極めて小さい．

一例として、Bi2212 を用いた初期の発振電磁波の検出を図 2.15 に示す [29]．発振周波数が 10.9 GHz と低く、彼らは 10 層のジョセフソン接合がコヒーレントに動作していると主張しているものの、強度はピコワットのオーダーである．また、Wang らは高温超伝導体固有接合が 2.5 THz 程度まで、電磁場に対して応答するのを確認したが、発振は得られず [31]、Batov らは 500 GHz の発振を Bi2212 から検出したものの、その強度は極めて小さい [32]．結晶中に内在する個々のジョセフソン接合を如何にして協調動作させ、外部に取り出すかという点が課題であった．

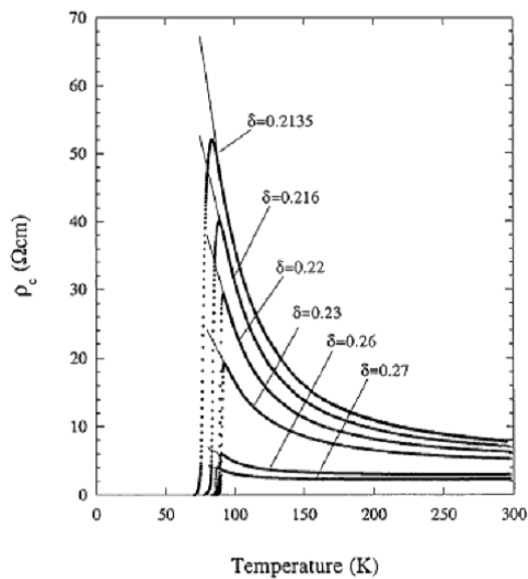


図 2.13 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 単結晶試料における c 軸電気抵抗率の温度依存性 [28]。 Bi_2O_2 層間の酸素量の変化により、超伝導転移温度や正常状態での振る舞いが大きく変化する。 δ が小さければ小さいほど、アンダードープ領域を示す。

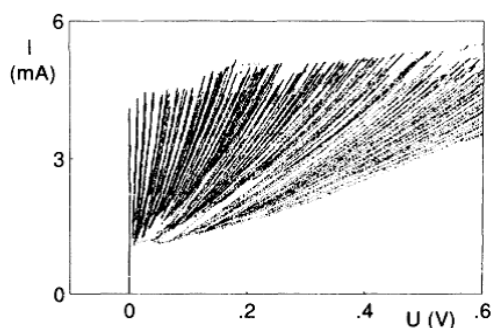


図 2.14 Bi2212 の電流電圧特性。結晶構造内部の $\text{CuO}_2\text{-Bi}_2\text{SrCaO}_4\text{-CuO}_2$ 接合がジョセフソン接合として働き、電流-電圧特性において、多重ブランチ構造が観察される [29]。

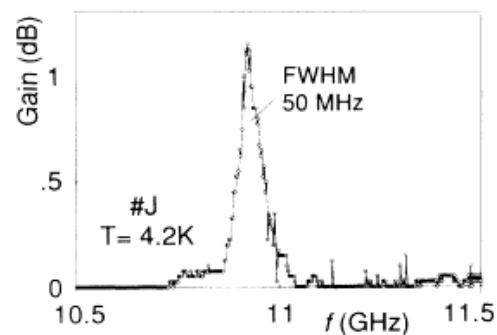


図 2.15 高温超伝導体 Bi2212 からの電磁波発振 [29]。スーパーヘテロダイン方式で検出している。発振周波数は 10.9 GHz、スペクトルの半値幅は 50 MHz、強度はピコワット程度である。

2.5 Bi2212 におけるジョセフソンプラズマ：磁束状態とジョセフソン侵入長

超伝導体内部では磁束は量子化され、渦電流を伴う量子化磁束 (磁束量子などとも呼ばれる) となって侵入する。量子化磁束は全体として一定の量子化磁束 $\phi_0 = 2.07 \times 10^{-15}$ Wb を持つので、通常、量子化磁束は磁束同士の斥力相互作用により、三角格子と呼ばれる渦糸状態が実現する。ところが、2次元性の極めて強い銅酸化物高温超伝導体 Bi2212 は、異方的な結晶構造を反映して磁場中で特異な渦糸状態を取ること

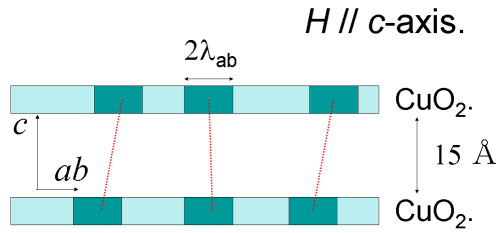


図 2.16 パンケーキ磁束の概念図．固有ジョセフソン接合の界面に垂直 ($H // c$) の場合．超伝導性の強い CuO_2 層に λ_{ab} 程度の広がりを持って磁束が侵入する．

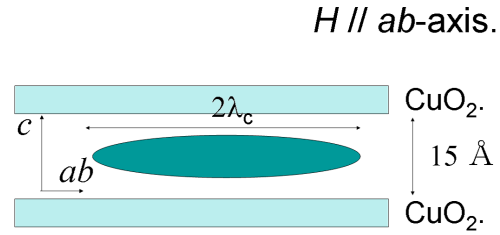


図 2.17 ジョセフソン磁束の概念図．固有ジョセフソン接合の界面に平行 ($H // ab$) の場合．磁束は絶縁性の強い Bi_2O_2 層に偏在する．絶縁層のため、パンケーキ磁束のような常伝導コアは持たない．

が知られている [33, 34]．この固有接合系のジョセフソン接合の層に垂直に磁場を印加した場合、磁束は超伝導層である CuO_2 層に主に存在し、 CuO_2 層間はほとんど磁束が切れた状態になっている (図 2.16 参照)．このような磁束をパンケーキ磁束という．磁束の広がりには磁場侵入長 λ_{ab} により規定され、 Bi2212 の場合、その大きさは 200 nm 程度である．

一方、 CuO_2 層に平行に磁場を印加した場合 ($H // ab$)、磁束は超伝導性の強い CuO_2 層を避け、超伝導性の弱い絶縁層的な Bi_2O_2 層に侵入する．その様子を図 2.17 に示す．異方性パラメータからも分かる通り、 Bi2212 の λ_{ab} は 200 nm 程度であり、一方 λ_c は 30 ~ 400 μm 程度と、磁束そのものが非常に異方的な形状をしている．今回の測定試料は $l = 2\lambda_c$ 程度である．

高温超伝導体は超伝導ギャップエネルギーが従来の金属超伝導体に比べ 1 桁程度大きい．更に層状異方性のために c 軸方向の臨界電流 j_c が極めて弱く、 c -軸方向のプラズマ波の励起エネルギーも異方性パラメータ分小さい．従って異方性が極端に大きい場合、プラズマ励起エネルギーは超伝導ギャップ内に入り込み、このプラズマは緩和できないため、安定に存在できる．これをジョセフソンプラズマと呼んでいる [35, 36]．このジョセフソンプラズマは、超伝導電子と電磁場が結合した集団運動であり、分散関係は横プラズマと縦プラズマのそれぞれに対して、

$$f_{trans} = \frac{c}{\sqrt{\epsilon}\lambda_c} \sqrt{1 + \lambda_c^2 k_x^2} \quad (2.13)$$

$$f_{longi} = \frac{c}{\sqrt{\epsilon}\lambda_c} \sqrt{1 + \epsilon\mu^2 k_z^2} \quad (2.14)$$

と表すことができる [35]．ジョセフソンプラズマそのものは、従来の金属型超伝導体においてもその存在は指摘されていたが、超伝導ギャップより遥かに高エネルギーであり、一旦励起されると、超伝導状態は破壊され、またプラズマはただちに散乱され、減衰してしまうため、明確な発振吸収は確認されない．しかしながら、高温超伝導体の場合、ジョセフソンプラズマ励起は遠赤外光の c 軸反射スペクトルの測定により、多結晶体の $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ などで、幅は広いが明瞭なピークとして確認された [37]．その後、 Bi2212 などで、ジョセフソンプラズマ励起はマイクロ波領域で観測され、詳細な研究がなされた [38]．電磁波は横波であるので、横プラズマモードを試料外部に取り出すことで電磁波発振を実現しようとする試みが世界中で進められた．

2.2 節で述べたように、通常、ジョセフソン接合の層に平行に磁場を印加した場合、臨界電流の磁場依存

性は、フラウンホーファ型の回折パターンを描く。これは、電流が試料内部を均一に流れる均一なジョセフソン接合の場合に成り立ち、その大きさは、ジョセフソン侵入長 λ_J によって規定される。人工のジョセフソン接合の場合、超伝導電極はトンネルする絶縁層に比べ大きいため、ジョセフソン侵入長は磁場侵入長に比べ大きくなる。しかしながら、高温超伝導体 Bi2212 の場合、超伝導を担う CuO_2 層は 3 \AA であり、絶縁層である $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaO}_4$ 層の 12 \AA に比べ、超伝導電極が絶縁層よりも小さいことになる。このような場合には磁場侵入長 λ_c とジョセフソン侵入長 λ_J は、量子化磁束 Φ_0 、真空の透磁率 μ_0 、絶縁層の厚さ t 、超伝導層への磁場侵入長 d 、臨界電流密度 j_c を用いて、下記のように表される [30]。

$$\lambda_c = \left[\frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0(t+d)j_c} \right]^{1/2} \tag{2.15}$$

$$\lambda_J = \left[\frac{\Phi_0 d}{2\pi\mu_0\lambda_{ab}j_c} \right]^{1/2} = \frac{\lambda_c}{\lambda_{ab}} \sqrt{(t+d)d} \tag{2.16}$$

このとき、Bi2212 の磁場侵入長 λ_c とジョセフソン侵入長 λ_J はそれぞれ、 $200 \mu\text{m}$ 、 $0.5 \mu\text{m}$ 程度となる。そのため、Bi2212 の微小接合を用いた研究が進められた。例えば、針状結晶である Bi2212 ウィスカー試料を FIB で加工した、接合サイズがジョセフソン侵入長 λ_J 程度の試料では、臨界電流密度 j_c はドーピングに依存するが、大体 $\sim 1000 \text{ A/cm}^2$ 程度 (オプティマムドープの場合) であり、若干アンダードープの試料では、臨界電流密度 $j_c \sim 500 \text{ A/cm}^2$ が得られている [39]。

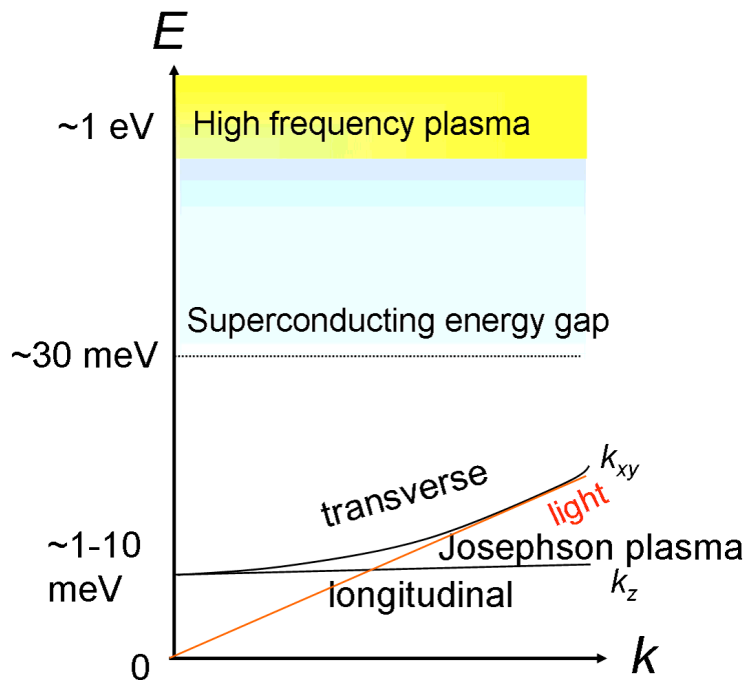


図 2.18 高温超伝導体の励起状態。Bi2212 の場合、プラズマ励起エネルギーが $\sim \text{meV}$ であり、超伝導ギャップエネルギーが $20 \sim 30 \text{ meV}$ 程度と銅酸化物以外の超伝導体に比べ大きく超伝導ギャップ内にプラズマ励起があるので、安定にジョセフソンプラズマが励起される。

2.6 高温超伝導体固有ジョセフソン接合からの電磁波発振現象

高温超伝導体を用いた電磁波発振の手法を以下の3つに分け、それぞれの概略を示す。

2.6.1 ジョセフソン磁束の運動による電磁波発振現象

前述の様に、単一接合を用いた発振素子の研究は1960年代から行われており、その発振強度はせいぜい pW から nW 程度である。高温超伝導体は結晶内部に原子レベルで均一なジョセフソン接合を内在するため、個々のジョセフソン接合をコヒーレントに協調動作させることが出来れば、強力な電磁波発振が期待できる。問題は如何にコヒーレンスを取るかである。固有接合にジョセフソン磁束を導入し、ジョセフソンプラズマ励起する方法が立木、小山らによって提唱された [35, 36, 40]。この方法は単一接合の場合、フラックスフローオシレーターとして知られており、これを多重固有ジョセフソン接合系へと拡張したものである。この方法によるコヒーレントな電磁波発振の実験研究は世界中で進められたが、結晶中にジョセフソンプラズマの励起を示す吸収ピークは観測されるものの、試料と外界とのインピーダンスのミスマッチングのためか、強力な電磁波発振は実現しなかった。Bae らは図 2.19 に示したようなオンチップ上に用意した発振器と検出器とからなる2つの固有接合系において図 2.20 のような閾値を持つコヒーレントな発振を確認したと報告しているが、周波数は高周波と推論できるものの、強度は 15 nW と小さい [41]。

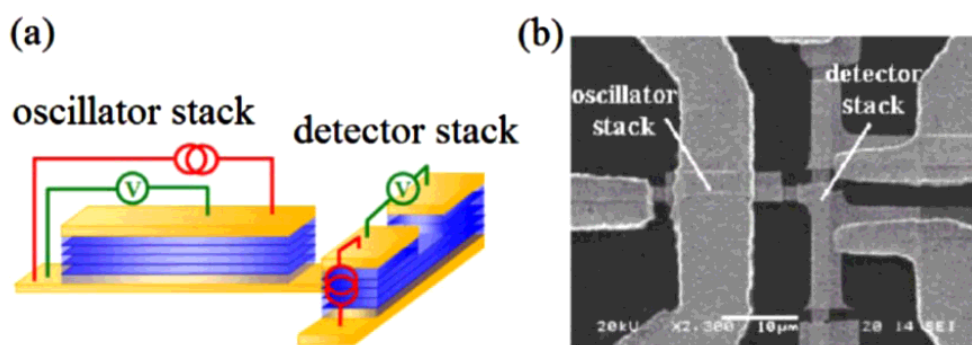


図 2.19 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 単結晶固有接合を用いたオンチップ発振-検出器の (a) 模式図と (b) 電子顕微鏡写真。発振器と検出器の両方に高温超伝導体固有接合を用いている。発振器と検出器が同一 Bi2212 基板上にあり、独立な検出器として動作するか疑念がないわけではない [41]。

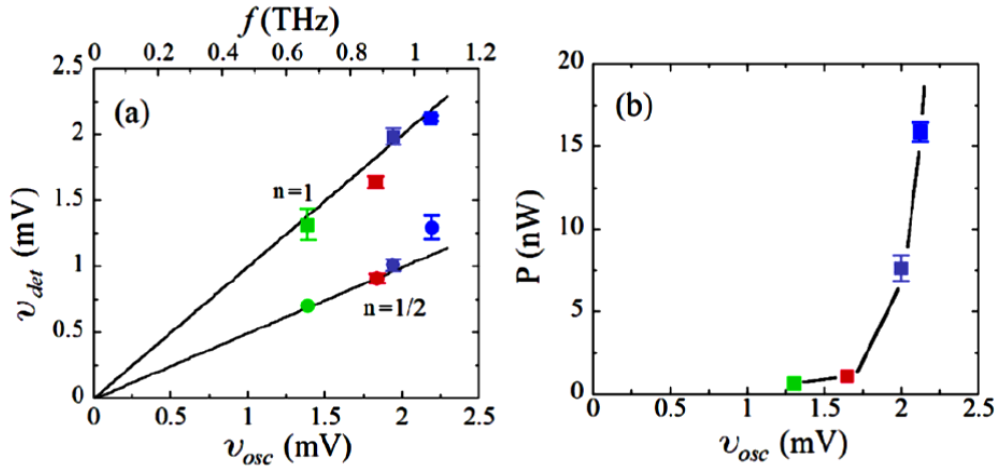


図 2.20 (a) 検出器である固有接合においてシャピローステップが確認された電圧・交流ジョセフソンの関係から、0.6 ~ 1.0 THz の発振が得られたとしている。(b) 印加電圧と発振強度の関係。コヒーレントな発振には特定の閾電圧(層数)が必要であるとし、その電圧以上の領域では層数の二乗に比例して強度が増加するとした。発振器に含まれるジョセフソン接合は 28 層程度であり、検出された電磁波強度は最高で 15 nW 程度である [41]。

2.6.2 フェムト秒レーザー照射による電磁波発振現象

光伝導アンテナとして良く知られるように、一般に微小ダイポールアンテナによる電磁波の放射強度は波長から十分離れた領域で電気双極子の 2 次微分、即ち、電流の時間微分に比例する。同様の手法により、ボウタイアンテナ状に加工した高温超伝導体への、フェムト秒レーザーの照射による、超伝導電流の高速変調を用いた電磁波発振が報告されている。高強度レーザーによる準粒子からの再結合を利用するため、パルス発振器である。放射電場ベクトルを \vec{E} 、超伝導電流密度を \vec{J}_s 、クーパ対の密度と速度を n_s 、 \vec{v}_s とそれぞれしたとき、放射強度は定性的に、

$$\vec{E} \propto \frac{d\vec{J}_s}{dt} = 2e\vec{v}_s \frac{\partial n_s}{\partial t} + 2en_s \frac{\partial \vec{v}_s}{\partial t} \quad (2.17)$$

と書き表せる [42]。このようなフェムト秒レーザーを用いた電磁波発振の概略図を図 2.21 に示す。薄膜は c 軸方向に成長しており、定電流を印加した状態でフェムト秒レーザーを照射することにより、超伝導電流の高速変調を引き起こしてテラヘルツパルス波を発振する。時間領域分光で得られた強度変化をフーリエ変換したスペクトルを図 2.22 に示すが、フェムト秒レーザーによる高温超伝導体 Bi2212 からの発振周波数は最大で 0.5 THz 程度である [43]。YBCO の場合、約 1 THz 以上まで発振する。これらの周波数は Bi2212 や、YBCO のプラズマ周波数の値に対応していると考えられるが、その相関関係に関しては現状では確固たる結論は得られていない。

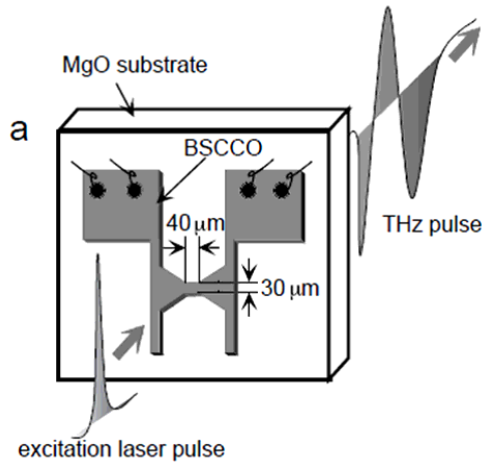


図 2.21 フェムト秒レーザーによる超伝導電流の高速変調による電磁波発振 [42]．電流の過渡的な応答を利用してパルス発振する．

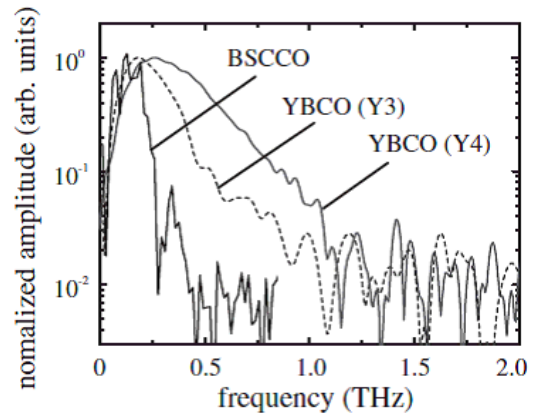


図 2.22 時間領域分光のフーリエ変換による高温超伝導体光伝導アンテナからの電磁波スペクトル．Bi2212 の場合、0.2 THz 近傍にピークを持つ [43]．

2.6.3 空洞共振による電磁波発振現象

2007 年に米国アルゴンヌ研究所の Kwok 博士のグループと筑波大門脇教授のグループは、長さ $300 \mu\text{m}$ 、幅 $40 \sim 100 \mu\text{m}$ 、高さ $1 \mu\text{m}$ のメサ (台地) 状に加工した試料から強度、 $0.5 \mu\text{W}$ 、発振周波数、 $300 \sim 850 \text{ GHz}$ という単一接合に比べ 5 桁程度、高強度の発振現象を発見した [44]．発振周波数はメサ試料の短辺、即ち、幅に反比例しており、メサ自身が空洞共振器として働いていることが示唆される．図 2.23(A) に加工したメサの概略図を示す．図 2.23(B) はメサの電子顕微鏡写真である． CaF_2 の蒸着により、絶縁が取られている．長さ $300 \mu\text{m}$ 、幅 $40 \sim 100 \mu\text{m}$ 、高さ $1 \mu\text{m}$ であり、固有接合系においては非常に大きなサイズである．図 2.23(C) に試料の電流-電圧特性と発振強度を示す [44]．準粒子抵抗による大きなヒステリシスを持ち、電圧状態から超伝導状態にトラップされるリトラッピング領域において強力な発振が確認された (図 2.23(C))．

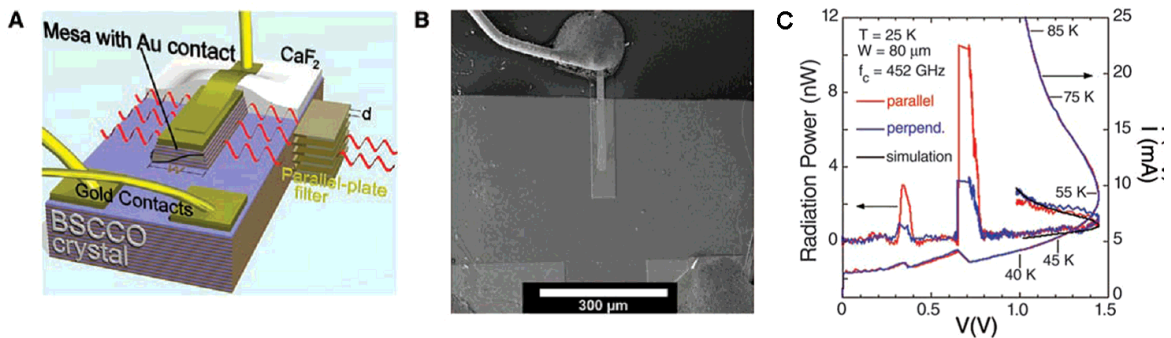


図 2.23 (A) メサの概略図．(B) メサの電子顕微鏡写真．長さ $300 \mu\text{m}$ 、幅 $40 \sim 100 \mu\text{m}$ 、高さ $1 \mu\text{m}$ であり、固有接合系においては非常に大きなサイズである． c 軸方向に電流を印加し、空洞共振と交流ジョセフソン効果の兼ね合いにより、強力な発振が得られる [44]．(C) 試料の電流-電圧特性と発振強度．準粒子抵抗状態から超伝導状態に移る．リトラッピング領域において強力な発振が確認された．

リトラッピング領域では、発振状態にある共鳴層がまとまって超伝導状態にトラップされると考えられ、印加電圧は、共鳴状態にあるジョセフソン接合の接合数をそのまま反映していると理解されている。図 2.24(A) に印加電圧と発振強度の関係を示す。図 2.24(B) は共鳴状態にあるジョセフソン接合数で規格化されている。接合数の 2 乗にほぼ比例して強度が上昇しており、コヒーレントな発振を示唆している。試料の高さは $1\ \mu\text{m}$ なので、ジョセフソン接合はメサ内部に 667 層存在する。ここで、固有接合中の n 番目のジョセフソン接合に励起された電場を $E_n \sin(\omega_n t)$ とする。強力な電磁波発振が起こっている領域では電場の強度 E_n 、角周波数 ω_n が層に依らず一定かつ、層間のコヒーレンスを実現された場合、固有接合全体からの強度は、2.3 節、式 2.10 と同様の考え方により、単一接合の 667^2 倍、即ち、 4.4×10^5 倍である。文献 [13, 29] からの類推から、単一接合からの発振強度を $1.0\ \text{pW}$ とすると、素子全体からの発振強度は $0.4\ \mu\text{W}$ となり、定性的にはこの描像で理解されている。

次に試料から発振する電磁波の周波数が形状によりどの様に決まるか述べる。交流ジョセフソン効果のみを考えた場合、ジョセフソン素子は電圧に対し連続的に働き、超伝導ギャップ以下の電圧領域において、任意の波長の光を発振するはずである。しかし、実験では図 2.25 に示すとおり、単色性の高い発振が得られる。線幅は $0.3\ \text{cm}^{-1}$ 程度であり、これは分光装置の分解能と同程度である。波長純度は極めて高く、発振周波数は試料の短辺(幅)が半波長と一致するような定在波のモードが内部で実現されていると理解されている。この空洞共振効果が、交流ジョセフソン効果と同時に満足されると、位相の揃った電磁波発振現象が発現すると考えられている。実験的には、幅、 $40 \sim 100\ \mu\text{m}$ の範囲で作製された試料の発振周波数が、図 2.25 の挿入図に示される通り、空洞共振のモデルと一致し幅の逆数に比例した周波数が得られている。この発振周波数は、 $350 \sim 950\ \text{GHz}$ 程度であり、試料の形状により、発振周波数を制御できる。空洞共振モデルを考える際、Bi2212 の誘電率は遠赤外での吸収スペクトルの実験から $\epsilon = 13$ としている [45]。図 2.26 は、発振領域での電流-電圧特性であり、電流が高電流へとシフトするくびれ構造が確認出来る。この電流変化が電磁波発振に直接、働く入力であるとするると入力電力は $20\ \mu\text{W}$ となり、発振強度が $0.5\ \mu\text{W}$ であることから、電磁波への変換効率は、 2.5% 程度と見積もれる。以下に、Kwok、門脇らによる高温超伝導体

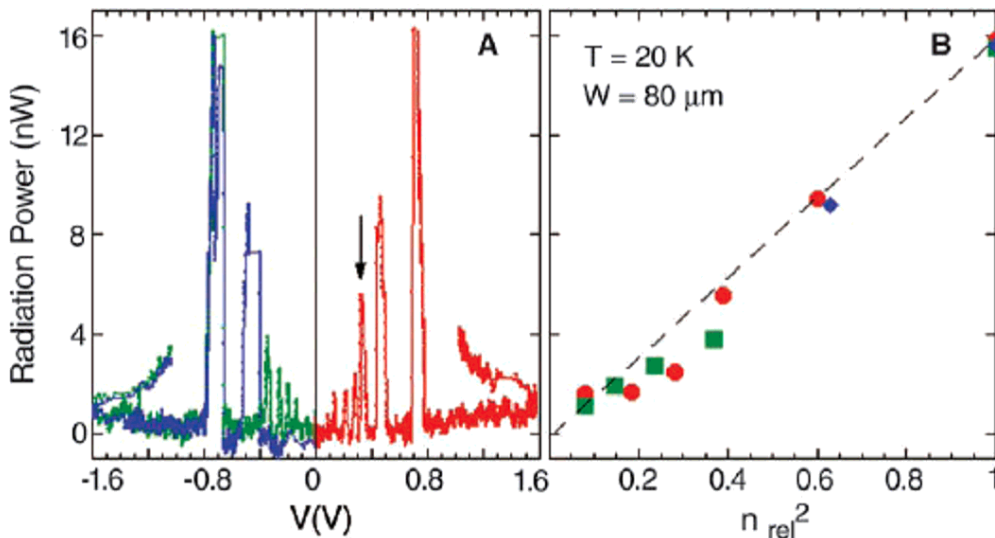


図 2.24 (A) 印加電圧と発振強度。(B) 電圧の 2 乗に従い強度は増大する。これは発振するジョセフソン接合の層数の 2 乗と同等と考えられ、発振のコヒーレンスを示唆する実験事実である。

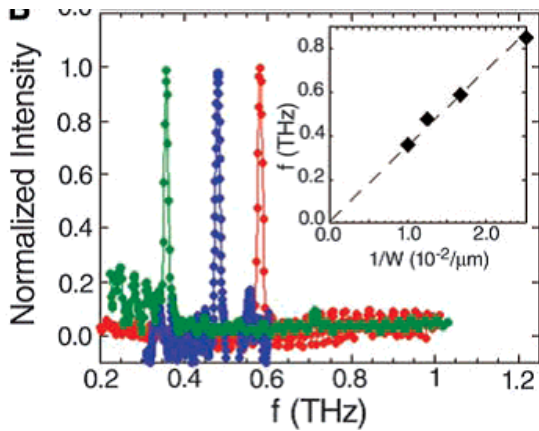


図 2.25 試料の幅と発振周波数の関係 [44] . 試料の幅に反比例した周波数にピークを持つ、単色性の強いスペクトルが観測された . これは、メサそのものが空洞共振器として働き、試料内部に生じた定在波と交流ジョセフソンの条件が一致したときに強力な発振が起きると理解されている .

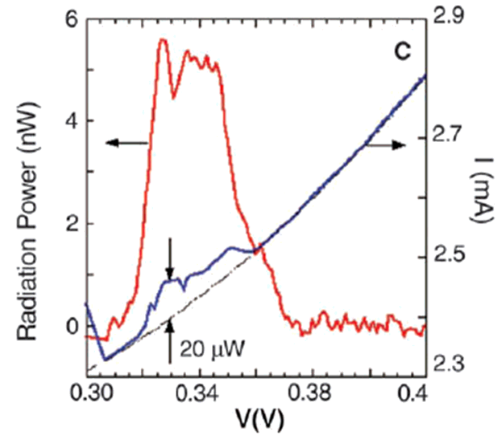


図 2.26 試料の電流-電圧特性と発振強度 [44] . 発振領域において、電圧状態にあるブランチが一定だとすると、電流の増大が確認される . この電流の変化分が発振に変換されるとすると、 $20 \mu\text{W}$ の入力に対して $0.5 \mu\text{W}$ の発振強度が得られており、効率は 2.5% と評価できる .

Bi2212 からの新奇電磁波発振現象の特徴をまとめる .

発振が高強度であり、単一接合に比べ 5 桁発振強度の向上が見られること、また、スペクトルは単色性を持ち、強力な電磁波発振の実現には以下の 2 つの機構が係っていると考えられる . 即ち、

1. 交流ジョセフソン効果により誘起された交流電流 .
2. 試料そのものを共振器とする空洞共振効果 .

それぞれの方程式は

$$\nu = \frac{c_0}{n\lambda} = \frac{c_0}{2nw} \tag{2.18}$$

$$\nu = \frac{2eV}{hN} \tag{2.19}$$

と書き表せる . この時、 ν は試料から放射される電磁波の周波数、 c_0 は真空中の光速、 n は対象物質である Bi2212 の屈折率、 w は矩形試料の短辺、 N はジョセフソン接合の数にそれぞれ対応する . この 2 つを同時に満たしたとき、結晶内部の個々のジョセフソン接合が協調動作し、マイクロワットレベルの強力な発振が実現する .

上の二式を連立し、周波数を消去すると、印加電圧に対して以下の式を得る .

$$V = \frac{c_0}{2nw} \times \frac{hN}{2e} \tag{2.20}$$

$$= \frac{c_0 h}{4en} \times \frac{N}{w} \tag{2.21}$$

即ち、屈折率 n の曖昧さは残るものの、試料の幅 w (単位 : μm) と層数 N のみにより共鳴電圧が決まる . 試料の幅と発振周波数との比例関係から実験的に得られている Bi2212 の屈折率、 4.2 を代入すると、発振

電圧は、 $74.1 \text{ mV} \times N/w$ となる。

高温超伝導体からの強力な電磁波発振は、1994年の立木らによるジョセフソンプラズマ励起による発振提唱以来のこの分野における悲願であり、また、超伝導体からの強力な電磁波発振は交流ジョセフソン効果が発見されて以来の夢でもある。現在までのところ世界中で、同様の手法で試料そのものを空洞共振とする巨大メサ構造からの発振実験が進められている。しかしながら現在までに、日本、アメリカ、ドイツの3グループしか発振は実現していない(2010年1月30日現在)。そのため、以降の進捗については筑波大門脇教授のグループで得られた結果に拠るところが大きい。

2.6.4 高温超伝導体 Bi2212 からの電磁波発振現象の最近の進展

門脇らは、同様のメサ構造を用いて、発振領域をより高電流側にシフトさせることにより、2007年に比べ、1桁強度の強い $\sim 5 \mu\text{W}$ 程度の発振に成功した[46]。その電流-電圧特性を図2.27に示す。で囲んだ、印加電流20 mA程度のディップの見られる領域で強力な発振が確認されている。また、発振領域近傍での電流-電圧特性(黒)と発振強度(赤)の拡大図を図2.28に示す。電流-電圧特性は、発振領域近傍で非常に複雑に振る舞い、測定点の飛びが見られる。また、発振領域の印加電流が文献[44]の3 mAに比べ、20 mAと増大しており、投入電力の上昇がこの結果に繋がったと考えられる。

門脇らはまた、Bi2212から得られる電磁波には基本波の整数倍の高調波が存在し、4次の高調波まで実験的に確認した。アンダードープの試料が発振において重要であることを指摘した。また、南らは、固有接合からの電磁波発振をその特性により2つに分類した[47]。1つは、図2.23(C)に示した通り、電流-電圧特性が準粒子抵抗状態から超伝導状態へと束縛されるリトラッピング過程で生じ、電流の印加に対して不可逆的に応答するため、IR型と呼ぶ。もう1つは超伝導転移直下で発振する新しい現象であり、電流の印加に対して可逆的に応答することから、R型と呼ぶ。図2.29にR型発振の電流-電圧特性と発振強度を

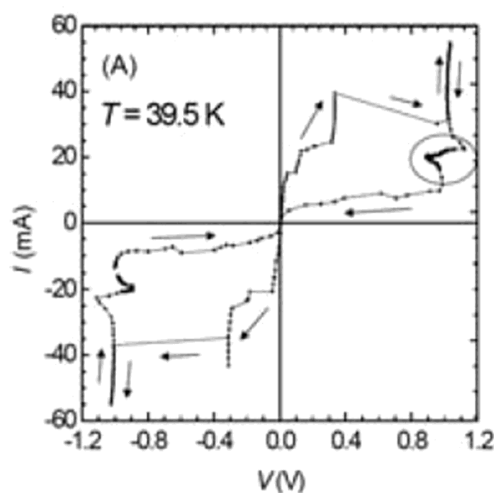


図 2.27 強力な発振を確認した試料の電流-電圧特性 [46]。印の付近で発振している。また、発振領域の印加電流が 20 mA と [44] に比べ増大している。これが出力上昇に繋がったと考えられる。

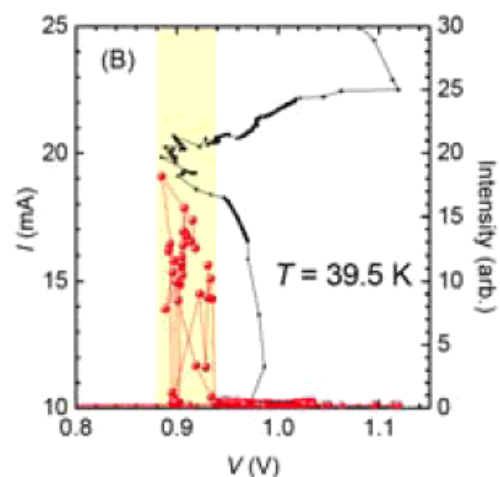


図 2.28 強力な発振を確認した試料の電流-電圧特性(黒)と発振強度(赤)の拡大図 [46]。発振領域はオレンジ色で強調されている。非常に複雑な振る舞いをみせ、特に発振領域近傍でディップ構造がみられることが特徴である。

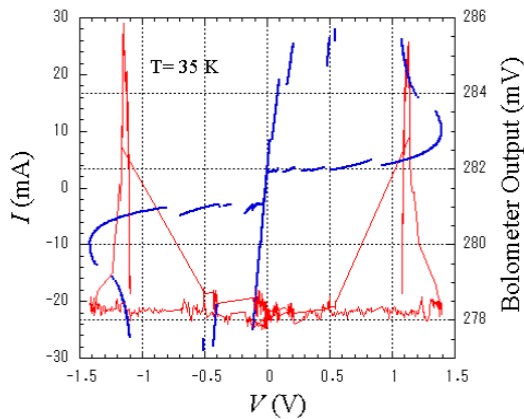


図 2.29 R 型発振の電流-電圧特性 (青) と発振強度 (赤)[47] . 超伝導転移直下の高電流領域で発振しており、発振状態での試料の温度 T_a は、 $T_a \sim T_c$ であることが予想される .

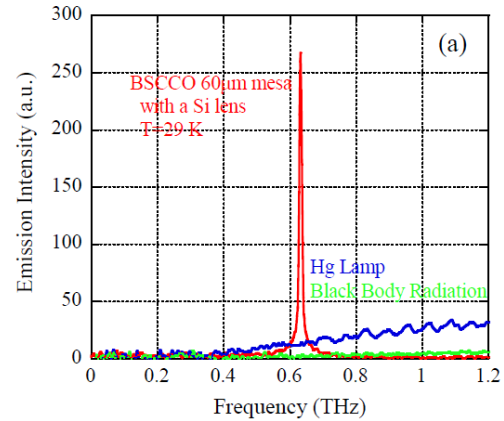


図 2.30 Bi2212 発振スペクトルの水銀などの熱型発振器との比較 [48] . 水銀ランプに比べ、線幅は狭く、波長純度は高い .

示す [47] . R 型発振の特徴として、超伝導転移温度直下での発振のため、投入電流が大きく、高強度の発振が期待できる . また、発振の特性が可逆なため安定している . 発振状態での試料の温度 T_a は、 $T_a \sim T_c$ であることが予想される . 一方で IR 型は R 型との比較から、投入電流が小さい . 発振状態での温度 T_a が $T_a \ll T_c$ であることが予想される . 発振周波数はどちらの場合も空洞共振のモデルで導かれる周波数と一致し、型による発振周波数の差異はない . 試料から発振する電磁波のスペクトルを図 2.30 に示す [48] . 水銀ランプに比べ、非常に単色性が強く、波長純度が高い . 波長当りの強度で考えると用途によっては実用レベルにあるといえる .

折田らは、複数の固有接合系の協調動作による発振強度の増大を狙い、研究した [51] . 図 2.31 に彼らの測定した試料の光学顕微鏡写真を示す . 試料は金属マスクを用いて、アルゴンイオンミリングで加工しており、電極はメサの上部に金線で直接取り付けられている . 3 つのメサ試料が一つの基板の上に作成されているが、全てのメサが発振する . これらに同時にバイアスすることで、コヒーレントな発振を狙った . 2 つのメサを同時バイアスした場合、図 2.32 の青線の発振スペクトルが示す通り、それぞれのメサは通常独立に発振する . この同時バイアス時の印加電流を変化させ、発振周波数が同調すると、図 2.32 の赤線に示す通り、個々のメサが独立に発振している場合に比べ、明らかに強度の大きな 3.2 倍の発振が得られる . これは、2 つの固有接合系が発振器としてコヒーレンスを持っていることを示唆している . しかしながら、同時バイアスによりコヒーレントに動作した場合でも、2 つのメサからの発振強度そのものは、個々のメサからの最大の発振強度と同程度に留まっている .

この他にも高温超伝導体 Bi2212 からの電磁波発振実験に関しては、Wang らの、LTSLM (Low Temperature Scanning Laser Microscope) による試料内の電場分布の観察が挙げられる [52] . 彼らは試料の長さ方向への定在波の存在を主張しており、試料の幅が発振周波数を規定するとする Kwok、門脇グループの主張と一致しない . あるいは、異なる機構により生じた定在波を確認したのかもしれない . また、門脇らは、矩形型試料の放射強度分布から発振モードを解析した [53] .

更なる高強度化に向けた理論からの提言としては、古月らによる π phase kink と呼ばれる新しい励起状

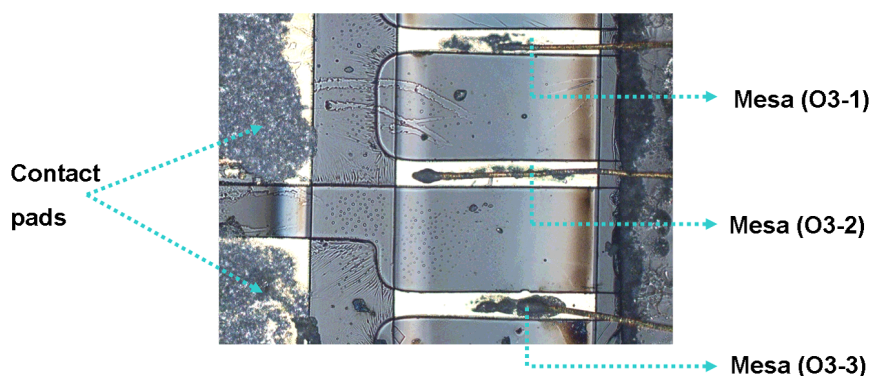


図 2.31 折田らが実験に用いたメサの光学顕微鏡写真．写真の O1 から O3 までの複数個のメサに同時に電圧を印加することで、コヒーレントな発振の引き込み現象を見出した [51]．

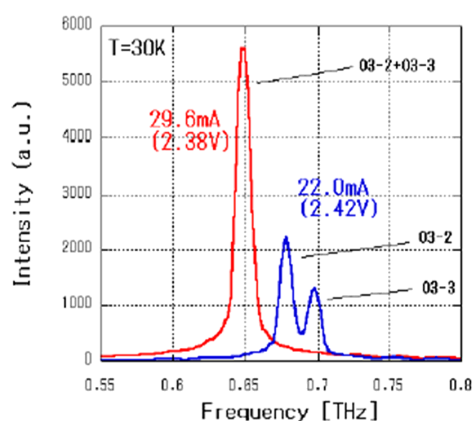


図 2.32 同時バイアスによる発振スペクトルの変化 [51]．発振周波数が一致することで、試料 O2 と O3 のそれぞれの発振の和よりも高強度の発振が実現している．強度は単一周波数の場合が 5500 カウント、2 つに周波数がメサそれぞれで個別に発振している場合は 2200 と 1300 カウント程度である．

態からの発振の可能性が指摘されている [54]．彼らは、 π kink を実現することで試料から発振する電磁波が 4000 倍強くなると主張している．しかしながら、このような励起状態が実現したとする実験事実は今のところない．メサ頂部の電極の影響が大きいとする指摘もある [55]．高温超伝導体からの電磁波発振現象は、多元系である Bi2212 という物質そのものの難しさにより、加工精度を向上しても、発振特性に関しては現時点では素子依存性が非常に大きい．そのため、電極の効果は現状では確立されていない．また、Klemm と門脇がメサ構造中の超伝導基板を除くことで、200 倍の強度の発振が実現すると主張している [56]．これは、超伝導基板に生じる鏡像電流がなくなることに拠っている．今後の研究の進展で、固有ジョセフソン接合を用いた mW レベルの強力な強度を持つ、固体小型の発振素子の開発が期待されている．

第 3 章

実験方法

3.1 試料作製

TS-FZ 法により育成した Bi2212 単結晶試料をフォトリソグラフィーとアルゴンイオンミリングにより、 c 軸方向、即ち固有ジョセフソン接合の接合面に対して垂直に電流が流れる様に、メサ（台地、島）状に成型、加工した。この結晶は Bi 系銅酸化物高温超伝導体の単結晶育成を 20 年以上に渡り手掛けてきた筑波大門脇研究室の世界最高品質のものである。本稿で示すのは、超伝導体基板上にメサが 1 つ載った #081219 と 4 つのメサが載っている #091222 の 2 つの試料の結果である。

図 3.1(A) に実際に作製したメサ（#081219）の光学顕微鏡写真、(B) 原子間力顕微鏡 (AFM) による試料の幅方向の断面プロファイルを示す。Bi2212 は結晶構造そのものが極めて異方的であり、その力学的な強度も ab 面内と c 軸方向により大きく異なる。そのため、実際に加工したメサには裾が見られ、#081219 の場合、長さ、幅（頂部）、幅（底部）、高さは、それぞれ、 $400\ \mu\text{m}$ 、 $72.9\ \mu\text{m}$ 、 $81.9\ \mu\text{m}$ 、 $1.28\ \mu\text{m}$ である。図 3.2、3.3 に #091222 の光学顕微鏡写真と AFM による幅方向の断面プロファイルを示す。#091222 の場合、同一基板上に複数個のメサを作成した。AFM 測定から、加工による形状のばらつきは 1% 以内で、ほぼ同等のメサが得られている。試料のサイズは表 3.1 にまとめた。

また、メサの模式図を図 3.1(C) に示す。メサの直上を 0° として、メサの長辺方向（長さ）と成す角を θ_1 、短辺方向（幅）方向と成す角を θ_2 と定義した。後述の通り、高温超伝導体からの電磁波強度は大きな異方性を持つため、強度の評価は検出角に注意する必要がある。

表 3.1 本研究で用いたメサ試料のサイズ

	l (μm)	w (top) (μm)	w (bottom) (μm)	t (μm)
#081219	400	72.9	81.9	1.2
#091222	400	70.0	80.3	1.5

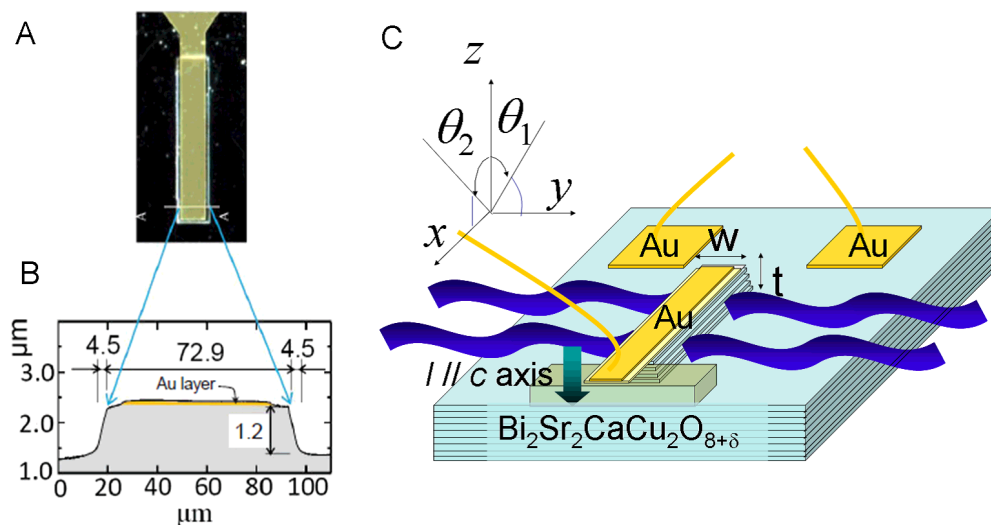


図 3.1 (A) メサ (#081219) の光学顕微鏡写真と (B) AFM による断面プロファイル . (C) フォトリソグラフィとアルゴンイオンミリングにより作製されたメサの模式図 .

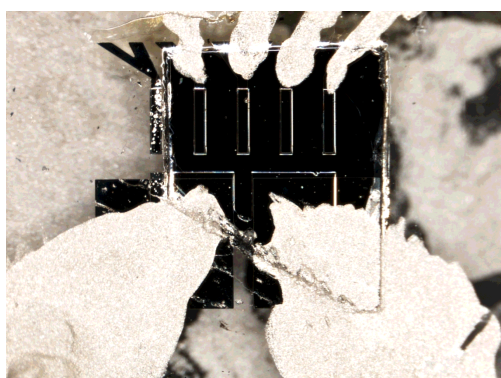


図 3.2 メサ (#091222) の光学顕微鏡写真 . 4 つの独立したメサが 1 つの基板上に作製されている . 個々のメサのサイズのばらつきは 1 % 以内である .

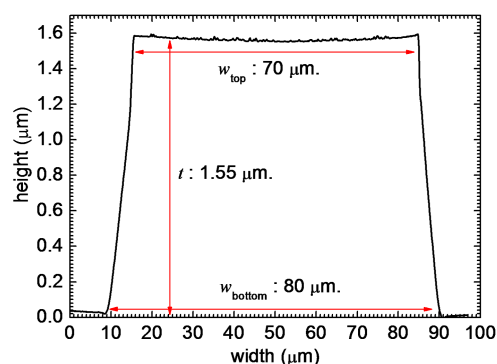


図 3.3 AFM によるメサ (#091222) の幅方向の断面プロファイル . 同様の測定を同一基板上に作製されたメサに対して行うことで個々のメサの間の幅、高さの違いは 1 % 以内であることが分かった .

3.2 メサの作製工程の詳細

試料作製の工程は以下の通りである .

1. 試料の基板への固定

まず、TS-FZ 法により育成された単結晶試料を劈開 (へきかい) し、ポリイミドによりサファイア基板に固定する .

2. 電極の蒸着 : 1

グローブボックス内で銀と金を結晶表面に蒸着する . 厚みは銀が 40 nm、金が 10 nm 程度である .

この厚みは蒸着器に内蔵された膜圧計と AFM (原子間力顕微鏡) の 2 つによって確認している。銀を蒸着するのは Bi₂₂₁₂ の劈開面が Bi₂O₂ 面であり、表面の伝導性を向上させるためである。

3. レジストの塗布 : 1

スピコートを用いてレジストを試料表面に均一に塗布する。スピコートの条件は 500 rpm、5 sec、3000 rpm、20 sec、6000 rpm、0.1 sec である。この条件でレジストを単一の試料に 6 ~ 9 回塗布し、厚さ 0.7 ~ 2.5 μm のメサを作製する。幅、形状はフォトリソグラフィーの際に用いるマスクの形状により、長さ 400 μm 、幅 40 ~ 100 μm の矩形型、直径 100 μm の円柱型と制御した。このマスクは、遮光膜としてクロムが蒸着された合成石英を電子線リソグラフィーにより、微細加工したものである。加工に関しては筑波大学大塚研究室の厚意に拠る。

4. 露光 : 1

マスクアライナを用いて塗布したレジストをメサの形状に露光する。露光の条件としてはレジストの塗布 1 回につき 7 sec 程度で十分である。

5. エッチング : 1

アルゴンイオンミリングにより、メサ状に試料を加工した。ミリングの条件は印加電圧 350 ~ 500 V、入力電力 100 W である。ミリング時間を制御することで、試料の厚みを決定した。この工程により、最終的なメサの高さ、すなわち電圧を印加するジョセフソン接合の層数が決定される。

6. レジストの除去 : 1

アセトンにより試料表面に残留したレジストを除去する。レジストの塗布回数とミリング時間によってはこの工程でレジストが残留する可能性がある。

7. 絶縁層の作製

蒸着により電極を取り付ける前処理としてメサの片側にポリイミドを塗布し、絶縁を取る。ポリイミドが薄いとショートし、塗布量が多いと、直後の電極層が高低差により断線してしまうので、適宜調整する。

8. 電極の蒸着 : 2

試料に再び、銀と金を蒸着する。厚みは 1 回目の蒸着と同様である。

9. レジストの塗布 : 2

スピコートを用いてレジストを試料表面に均一に塗布する。スピコートの条件は 500 rpm、5 sec、3000 rpm、20 sec、6000 rpm、0.1 sec である。この条件でレジストを単一の試料に 1 回塗布する。

10. 露光 : 2

マスクアライナを用いて塗布したレジストを電極の形状に露光する。露光の条件としてはレジストの塗布 1 回につき 7 sec 程度で十分である。

11. エッチング : 2

アルゴンイオンミリングにより、不要な部分の銀と金をエッチングする。ミリングの条件は印加電圧 230 V、入力電力 100 W である。

12. レジストの除去 : 2

アセトンにより試料表面に残留したレジストを除去し、完成である。

メサ完成までの模式図を図 3.4 に示す。

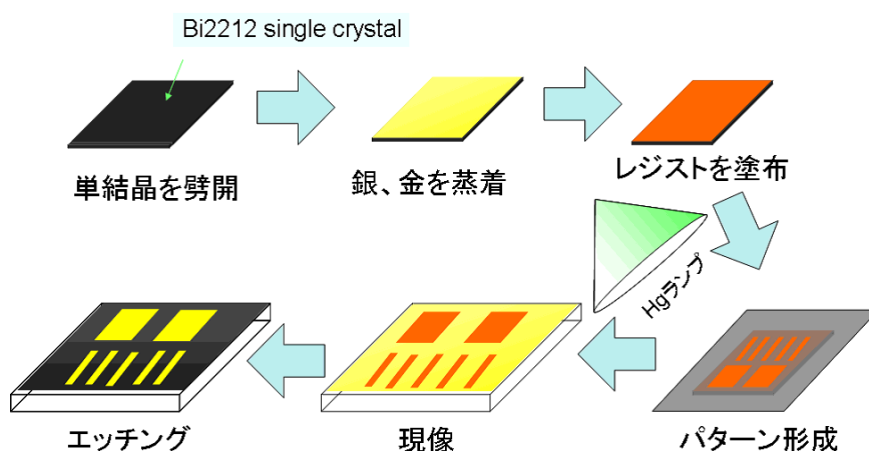


図 3.4 メサ加工の模式図。

また、他の作成方法として

1. レジストの代わりに金属マスクを用いる手法
2. FIB により、溝を掘りメサを作製する手法

が使われており、何れの手法においても電磁波が発振する試料が作製されている。レジストの代わりに加工に用いたマスクと、FIB により溝型に加工したメサの写真をそれぞれ、図 3.5、3.6 に示す。金属マスクを用いた加工により実際に作製されたメサは図 2.31 に示されている。この場合、レジストの塗布や露光などの時間を短縮できるが、長さ方向と幅方向の 2 回ミリングを行う必要がある。FIB を用いた手法は任意の形状に加工可能であることが、最大の利点である。しかし、イオンによるダメージの効果が少なからずあることや、装置が高価、試料の量産が難しいという課題もある。

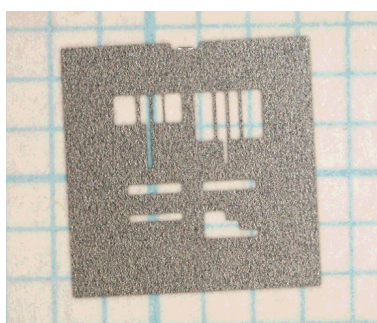


図 3.5 レジストの代わりに用いられる金属マスク。

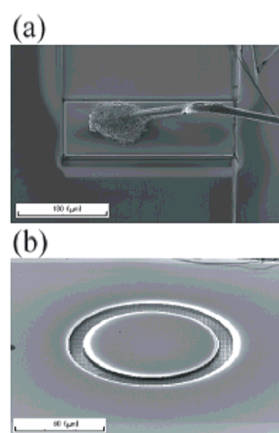


図 3.6 FIB により作製された溝型メサ。(a) 矩形型。(b) 円柱型。

3.3 測定系

3.3.1 装置

電磁波検出実験は主に3つの部分から成っている．この3つを組み合わせることで、試料の輸送特性と発振特性を同時に評価した．

1. 試料の電流-電圧測定及び冷却系．
2. ボロメータによる電磁波検出系．
3. 分光計による発振周波数の分光系．

3.3.2 電流-電圧測定

測定には液体ヘリウムフロー型クライオスタット (Oxford Instruments 社製 CF1104) を用いた．冷却機構を示す模式図を図 3.7 に示すが、このクライオスタットにより、7 K 程度まで試料を冷却することが可能である．抵抗の温度依存性の測定には Keithley 2400 Source Meter、電流-電圧特性の測定時には電圧源として 15MHz Function/Arbitrary waveform generator (Hewlett Packard 社製 33120A)、Programable DC Voltage/Current Generator (Advantest 社製 TR6142) を用いた．測定回路のブロックダイアグラムを図 3.8 に示す．試料には直列に負荷抵抗が接続されており、電流ドライブと電圧ドライブの中間の測定法となっている．試料に直列に接続された $10\ \Omega$ の抵抗に生じる電圧から電流値を、試料前後の電圧を、差動アンプ (TEKTRONIX 社製 AM502 または印加電圧の大きさにより EG& G Instruments 社製モデル 5113) により測定し、印加電圧とした．電流-電圧特性の測定の際は、まず始めにオシロスコープ (KENWOOD 社製 CS-4026) で臨界電流 I_c などの素子固有の情報を得た後、準粒子抵抗状態に遷移する程度の最大電圧を設定し、主として 1 mHz の三角波を印加することで、電流-電圧特性と電磁波検出器であるボロメータの信号を同時に測定した．

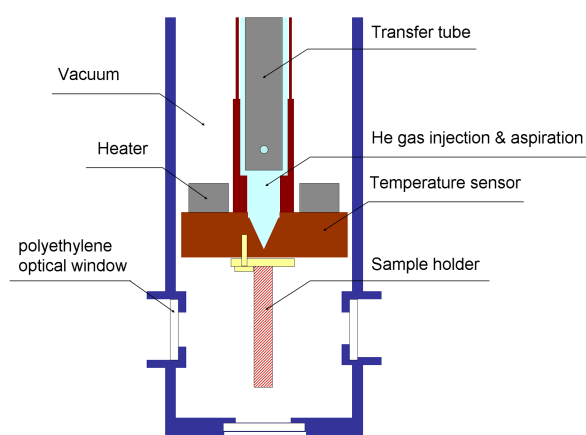


図 3.7 ヘリウムフロー型クライオスタットの概略図．

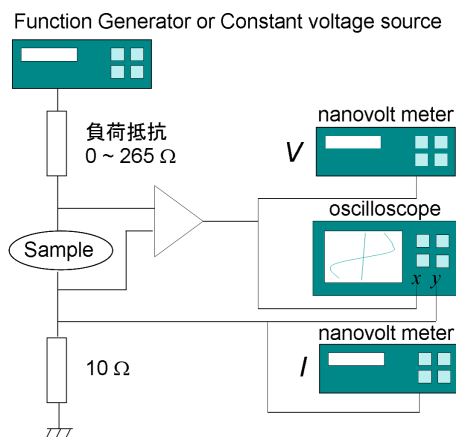


図 3.8 電流-電圧測定のプロックダイアグラム．

3.3.3 ポロメータによる電磁波の検出

電磁波の検出には熱型検出器であるシリコンコンポジットポロメータ (Infrared Laboratories 社製 LN-6/C) を用いた。冷却に用いたヘリウムフロー型クライオスタットとポロメータとの位置関係を図 3.9(A) に示す。後述する放射強度の角度依存性の測定を除き、クライオスタットとポロメータ間の光路は金属ホイルを内側に貼り付けた簡易的な導波管を用いて、散逸を防いだ。測定前にポロメータは液体ヘリウムにより冷却した。

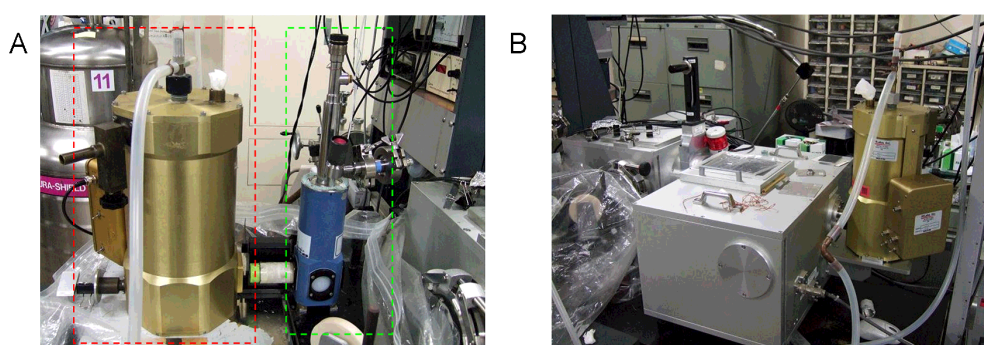


図 3.9 (A) ヘリウム型フロークライオスタット (緑の点線) と Infrared 社製シリコンポロメータ (赤の点線)。(B) 分光測定に用いた日本分光社製フーリエ変換型赤外分光光度計 FARIS-1。

3.3.4 分光計による発振周波数の同定

分光測定にはフーリエ変換型赤外分光光度計 (日本分光社製 FARIS-1) を用いた。その写真を図 3.9(B) に示す。この分光計は低周波数側に感度の良いマーチン・パプレット型干渉計を用いている。基本構造は典型的な分光器であるマイケルソン干渉計と同様であるが、ビームスプリッターとして、1次元のワイヤーグリッドを用いていることが特徴である。この分光計は電磁波の検出器としてポロメータと焦電センサの2つが利用可能である。ポロメータは液体ヘリウムによる冷却を必要とするが、感度は焦電センサに比べ2桁程度高い。一方で焦電センサは冷却は不要なものの、感度が十分でなく、現在の高温超伝導体からの電磁波発振では、精密な測定には不十分である。

3.3.5 磁場の印加方法

光学クライオスタットに磁場を印加するため、回転ステージに、希土類磁石を取り付けた一軸性のステージを対称位置に取り付けることで、簡便な磁場印加装置を作製した。その概略図を図 3.10 に示す。

印加磁場の強度を対称位置に置いた磁石の距離により制御した。また、回転ステージを操作することで印加磁場角度を ab 面内から c 軸方向まで自由に制御可能である。磁場強度は InSb 高感度ホール素子 (旭化成エレクトロニクス株式会社製 HW-302B) により校正し、均一性は試料位置で 150 Oe の印加磁場の場合、磁場に垂直なホルダーの面内で $\pm 0.5 \text{ Oe/cm}^2$ 、磁場に平行なホルダーの移動に対し、 $\pm 3 \text{ Oe/cm}$ であることを確認している。印加可能な磁場強度は、ホール素子による校正から $0 \text{ Oe} \leq H \leq 230 \text{ Oe}$ である。

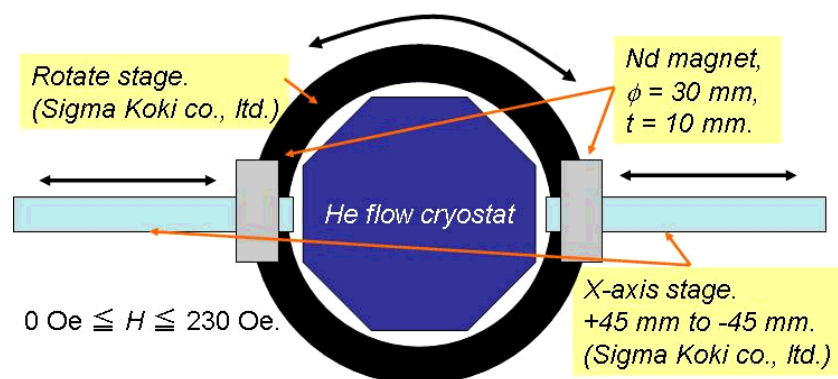


図 3.10 一軸性ステージと回転ステージを用いた希土類磁石による磁場印加の模式図。

3.3.6 放射強度分布の測定

メサ全体からの放射強度を評価するため、発振強度の放射分布を測定する。角度の定義は図 3.1(C) に示すとおり、メサ直上を 0° とする。放射強度分布測定は図 3.11 に示すとおり、インサートに取り付けた試料を回転させ、ポロメータの電圧変化から電磁波強度を評価した。測定系のセットアップを図 3.12 に示すが、クライオスタットに取り付けられたインサートの部分を回転させることで強度の角度変化を測定した。実験の際はポロメータとクライオスタットの間にある導波管を取り外した。これにより、試料とポロメータの検出部の距離と有効面積から、実効的な分解能は 4.6° と求まる。

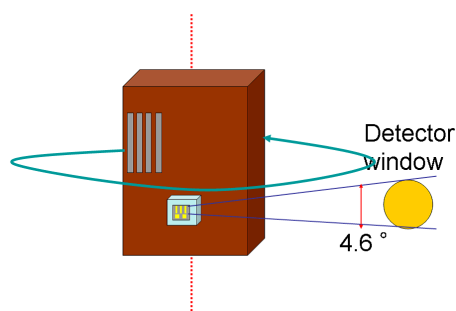


図 3.11 インサートの模式図。サファイア基板に貼り付けられた試料は銀ペーストか GE ワニスによりインサートの銅の部分に接着されている。放射分布はこのインサート部分を回転させることにより測定した。

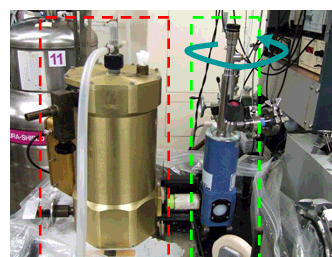


図 3.12 ポロメータによる角度依存性測定時のクライオスタットとポロメータの配置の写真。ヘリウムフロー型クライオスタットに取り付けられたインサート部分を図中の矢印のように回転させることにより、強度の角度変化を測定した。

第 4 章

高温超伝導体 Bi2212 単結晶矩形型メサ構造からの電磁波発振現象

4.1 抵抗の温度依存性

今回の研究に用いたメサ試料(#081219、#091222)の抵抗の温度依存性を、図 4.1-4.4 に示す。#081219 は、典型的なアンダードープ領域の振る舞いを示し、メサの抵抗 (c 軸方向) は温度の減少と共に増大し、超伝導転移温度 $T_c = 80$ K で相転移し、メサ本体の抵抗値は 0Ω になる。実際には 3Ω 程度、有限の抵抗が残留しているが、これは測定に二端子法を用いているためである。図 4.2 は転移点近傍の拡大図であるが、試料内部に酸素量の不均一があるためか、わずかではあるが、 80 K と 78 K で 2 つの相があるように見える。Bi2212 は酸素まで含めると 5 元系であり、陽イオンの不定比性の問題はあるものの文献 [28] との比較から #081219 は酸素量 $\delta \sim 0.23$ 程度と見積もれる。

次に #091222 であるが、図 4.3 に示すとおり $T_c = 88$ K であり、転移温度からはオプティマムドープに近いキャリア濃度が予想される。しかしながら抵抗の温度変化は、温度の減少により半導体的な抵抗率の上昇を示し、アンダードープ的である。また、残留抵抗が 17Ω と高いが、これは電極部分の接触抵抗が高いことに因っていると考えられる。図 4.4 に転移点近傍の拡大図を示すが、転移幅は、 $\Delta T = 2$ K と鋭い。また、#081219 で見られたような、抵抗の 2 段転移は見られない。

試料によっては超伝導転移後も半導体的に低温まで抵抗率の上昇が見られるものがある。こうした試料も発振はするが、強度は弱い。恐らく、試料表面、または金属と試料の界面に何らかの異常があり、このような現象が現れるものと思われるが原因の詳細は不明である。超伝導を示さないわずかな Bi2201 相のインターカレーションがある場合も考えられる。

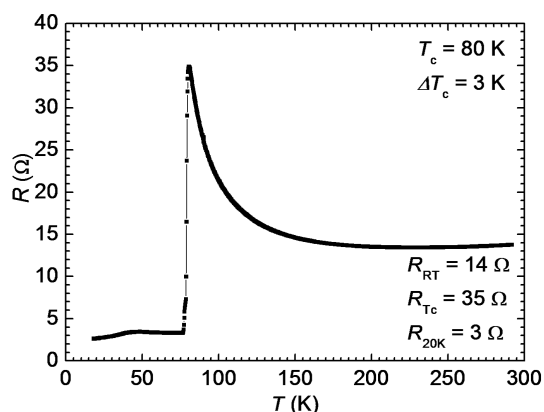


図 4.1 #081219 の c 軸抵抗の温度依存性．典型的なアンダードープ領域の振る舞いを示し、温度の減少と共に抵抗は増大する．

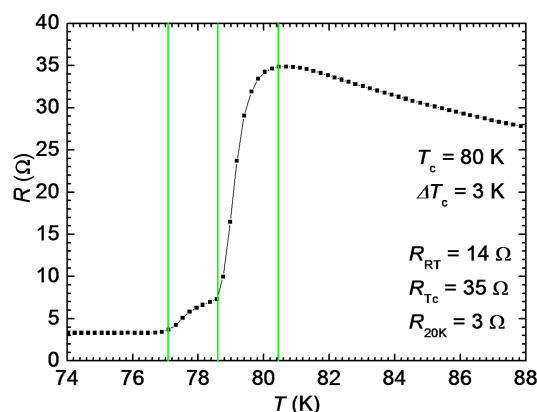


図 4.2 #081219 の c 軸抵抗の温度依存性の超伝導転移近傍の拡大図．超伝導転移温度 T_c は 80 K と若干アンダードープである．

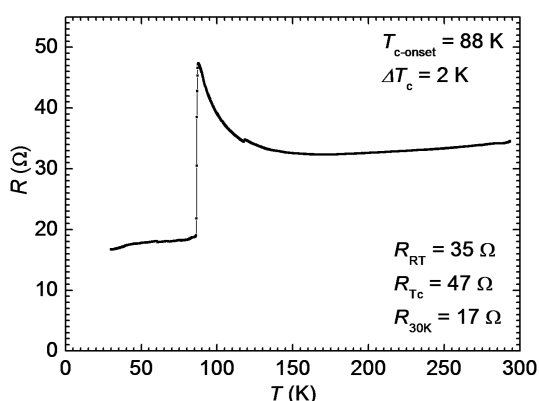


図 4.3 #091222 の c 軸抵抗の温度依存性．超伝導転移温度 T_c は 88 K とオプティマムドープに近いはずであるが、温度依存性はアンダードープ的な c 軸伝導を示す．

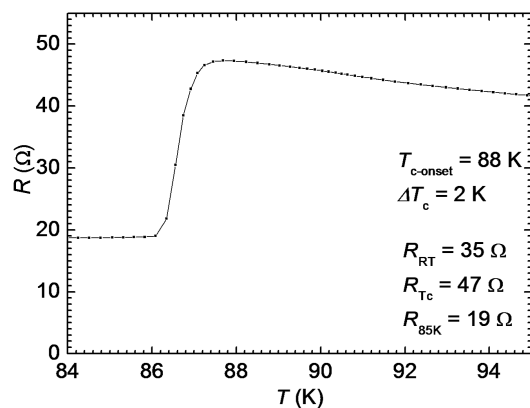


図 4.4 #091222 の c 軸抵抗の温度依存性の超伝導転移近傍の拡大図．残留抵抗が大きいのが電極部分の接触抵抗が高いためと考えられる．

4.2 電流-電圧特性と電磁波発振強度

4.2.1 #081219 の電流-電圧特性と電磁波発振強度

#081219 の典型的な電流-電圧特性（黒）と発振強度（赤）を図 4.5 に示す．典型的なメサ試料の電流-電圧特性は、図 2.6 の単一ジョセフソン接合と定性的には、同様に振舞うが、 c 軸準粒子抵抗の温度依存性のため、大きなヒステリシスを持つ．このヒステリシスが大きいと試料に印加される電圧が増大し、空洞共振と交流ジョセフソンの条件を満たす電圧が、印加可能になる場合がある．そのため、アンダードープの比較的低温で準粒子抵抗の高い試料が発振実験に適する．この時、再結合領域でボロメータの出力（赤線）が示すとおり、0.6 ~ 0.8 V 程度で強力なテラヘルツ波の発振が得られた．ボロメータの電圧変化は検出した

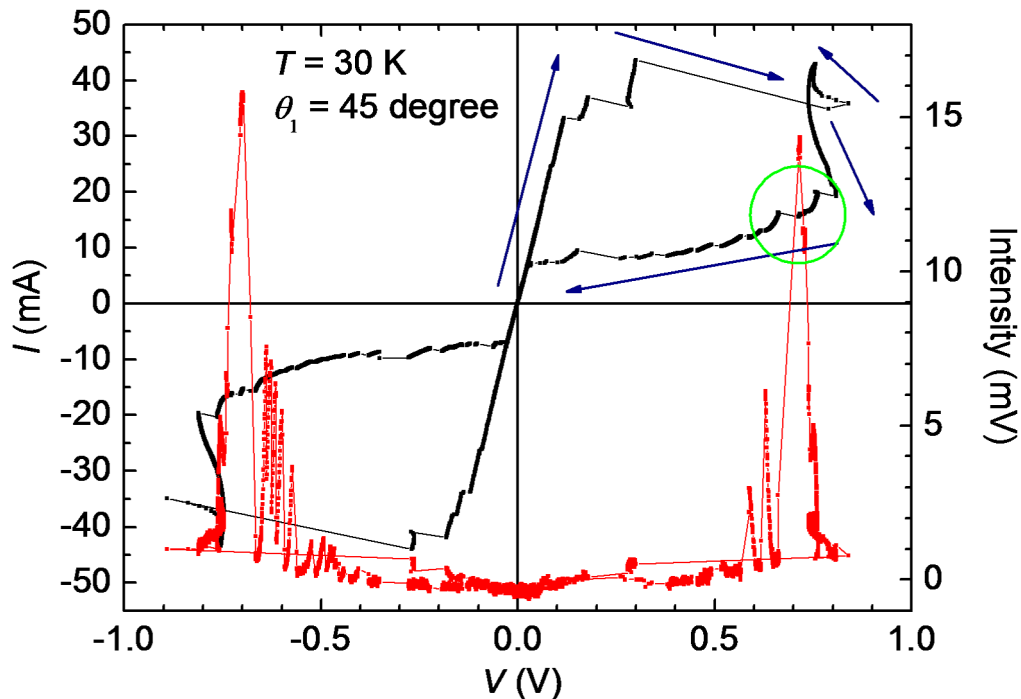


図 4.5 Bi2212 メサ試料 (#081219) の電流-電圧特性 (黒) と電磁波発振強度 (赤) .

電磁波の強度に比例するため、以後、電磁波の強度として「Intensity (mV)」を用いる。発振強度の抵抗状態にあるジョセフソン接合の層数依存性を図 4.6 に示す。図 2.24 のように単純に発振強度が共鳴するジョセフソン接合の層数の 2 乗に比例する [44] というよりはむしろ、[17, 41] と同様に、発振にはある一定の閾値以上のジョセフソン接合が抵抗状態であることが必要にみえる。閾値以上では、発振強度は印加電圧の 2 乗、即ち、共鳴するジョセフソン接合数の 2 乗に従い、電磁波強度は上昇している。これはジョセフソン接合一層毎の発振が、固有接合全体として共鳴して強め合っていることを示しており、単一接合に比べ、5 桁近く強度が強くなっている由縁だと理解される。

次に固有接合系に特有の多重ブランチ構造のそれぞれのブランチでの発振を議論する。ブランチはそれぞれ、印加電圧に合わせて、 $V88 (V \simeq 0.88 \text{ V})$ から順に印加電圧の減少に従い、 $V80$ 、 $V75$ とする。図 4.7 では発振領域の電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) の拡大図を示す。強度が電流の減少に伴い、増大し、ある最適化された値で最大を取り飽和し、その後減少する (ブランチ $V80$ で特に顕著である)。この印加電流の減少に伴い、発振強度が増加する傾向は、この試料の特徴である。また、電流-電圧特性、ポロメータの信号のそれぞれに、飛びが見られるのは個々のジョセフソン接合が準粒子抵抗状態から超伝導状態へ遷移するためである。

#081219 の臨界電流 I_c と、リターンブランチの電圧状態から超伝導状態へとリトラッピングされる電流、 I_r の温度依存性を図 4.8 に示す。本稿では、リターンブランチの $V = 0.6 \text{ V}$ での電流値を便宜的に I_r とした。臨界電流 I_c は低温で 40 mA であり、これは電流密度に換算すると $j = 125 \text{ A/cm}^2$ である。微小接合を用いた系で同様の T_c を持つ試料の j_c は 500 A/cm^2 程度であり [39] 試料サイズの増大により、 I_c が抑制されている。また、 $T > 60 \text{ K}$ で急激に I_c は抑制され、これが発振の動作温度の上限を決定していると考えられる。一方で I_r は温度の上昇と共に増大する。これは昇温により、ジョセフソン接合のキャパシ

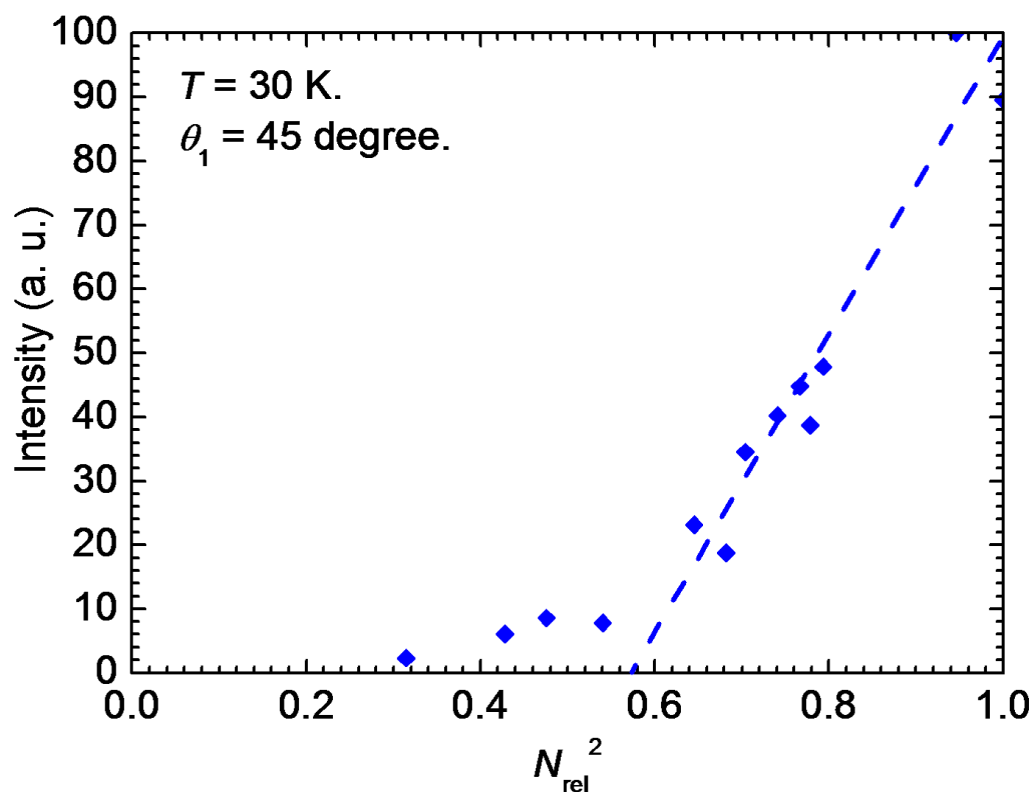


図 4.6 #081219 の抵抗状態の層数と発振強度の関係．図 2.24[44] と異なり、発振にはある一定の層数が抵抗状態にある必要があるように見える．

タイプなカップリング C が減少するためと定性的には理解できる．つまり熱浴の温度によって接合の特性がある程度変化する．低温で I_T が低いと、メサ試料への入力電力が小さくなり、これが先行研究で見られた低温での強度の減少 [44, 46] につながっていると考えられる．

図 4.9 に $T = 60 \sim 130$ K におけるメサの電流-電圧特性を示す． $T \leq 60$ K においては顕著なヒステリシスを示すが、より高温ではヒステリシスは急激に抑制され、 $T = T_c$ でほぼ、潰れる． $T = 80 \sim 110$ K にかけて、電流-電圧特性に非線形的な異常が見られる． $T = 130$ K では、ほぼオーミックな特性がみられる．

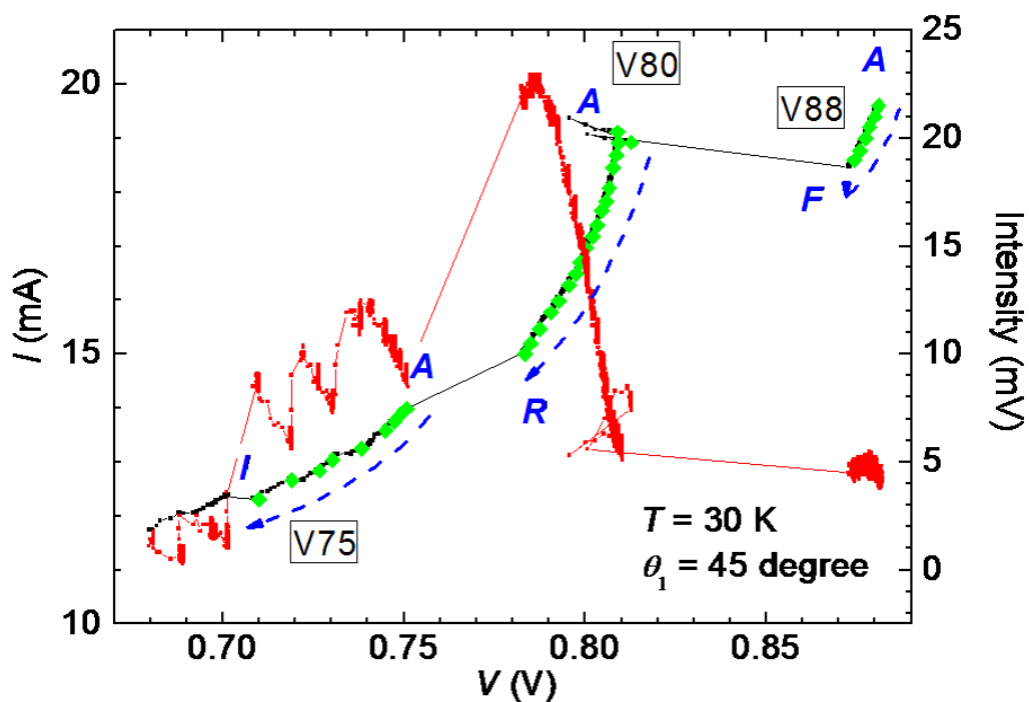


図 4.7 #081219 の電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) の発振領域拡大図 .

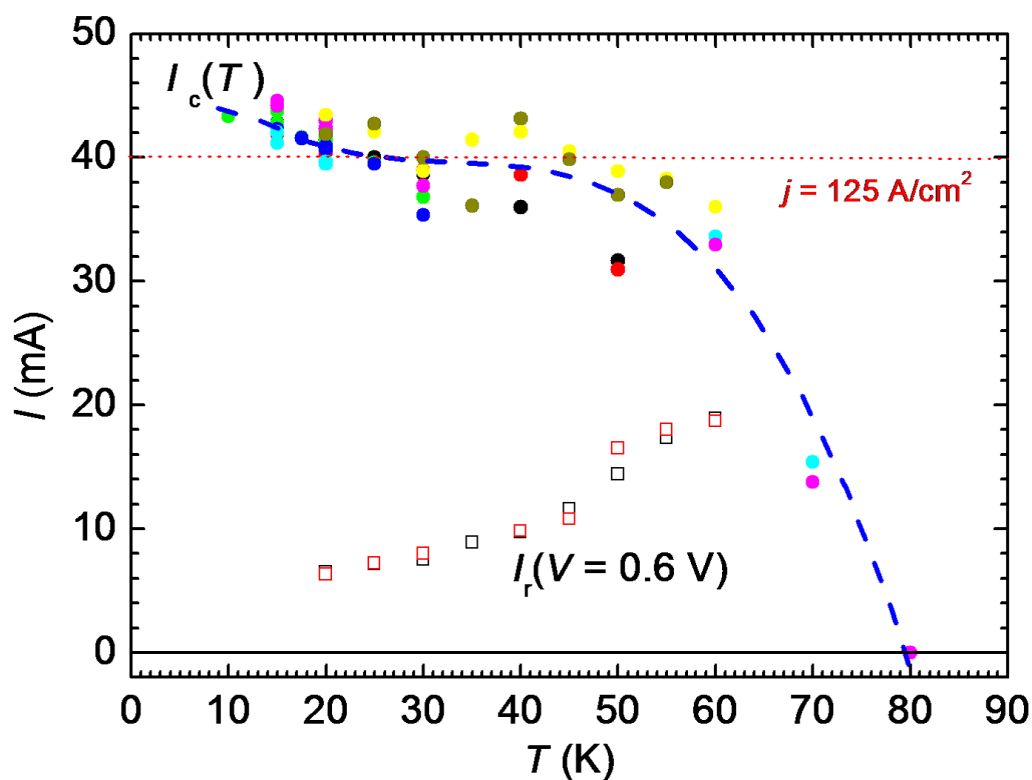


図 4.8 #081219 の臨界電流 I_c とリトラッピング電流 I_r の温度依存性 .

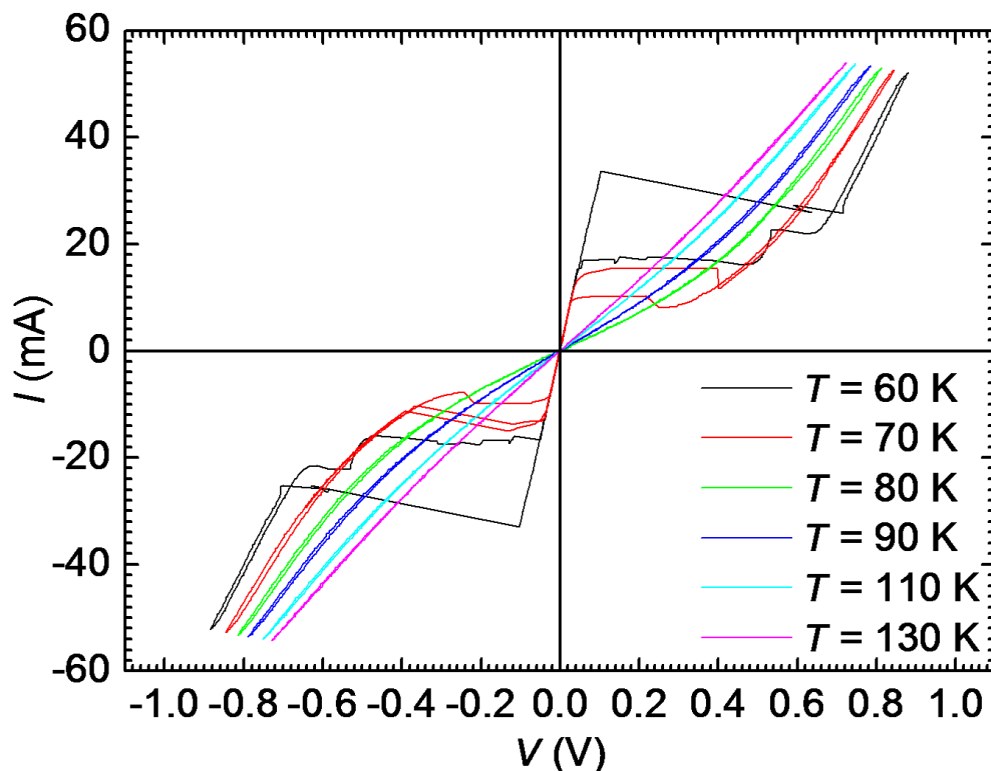


図 4.9 #081219 の $T = 60 \sim 130$ K における電流-電圧特性 .

4.2.2 #091222 の電流-電圧特性と電磁波発振強度

同一基板の上にメサが4つ作製された#091222の特性について述べる．図4.10は、#091222の1つのメサに単独に電圧を印加した場合の電流-電圧特性(黒)と電磁波発振強度(赤)である． $V = 0.9$ V程度の狭い電圧範囲で、60 mVを超える強力な発振が得られた．これは既に報告されている先行研究[46]に比べ3倍程度強度が強く、2007年の初期の報告[44]に比べ、60倍高強度である．また、#081219のような低電圧領域での複数のブランチからの発振は、ほとんど確認できず、 $V = 0.9$ V近傍の数本のブランチに限り発振した．発振領域近傍の電流-電圧特性(黒)と発振強度(赤)を図4.11に示す． $I = 22$ mAで一旦、一部の電圧状態が超伝導状態にリトラッピングされた後、 $V = 0.87 \sim 0.91$ V、 $I = 13 \sim 20$ mAで高強度の発振が実現している．緑の円で囲った部分は、実際に電磁波発振が生じている電圧状態である．青の破線で示した固有接合が通ると予想されるパスに対し、異常な振る舞いをみせた．これは、素子に入力した電流の一部が電磁波として外部に照射されたことによる変化が、静的な直流の電流-電圧特性にも、変化をもたらしたのではないかと考えられる．また、図4.11に示す通り、電磁波発振による印加電流の変化は、2 mA程度と0.1 mA程度の先行研究[44]に比べ大きく、発振の高強度化が電流-電圧特性からも確かに示唆される．

次にこの試料に同時バイアスした結果を述べる．同時バイアスに関しては、既に南、折田らによる周波数の同調による3.2倍の強度増強の報告[51]があるが、IR型、強力な発振を示す素子を用いることで、新奇現象の開拓を狙った．2つのメサはBi2212超伝導体基板を通して直列につながっており、ここに電圧を

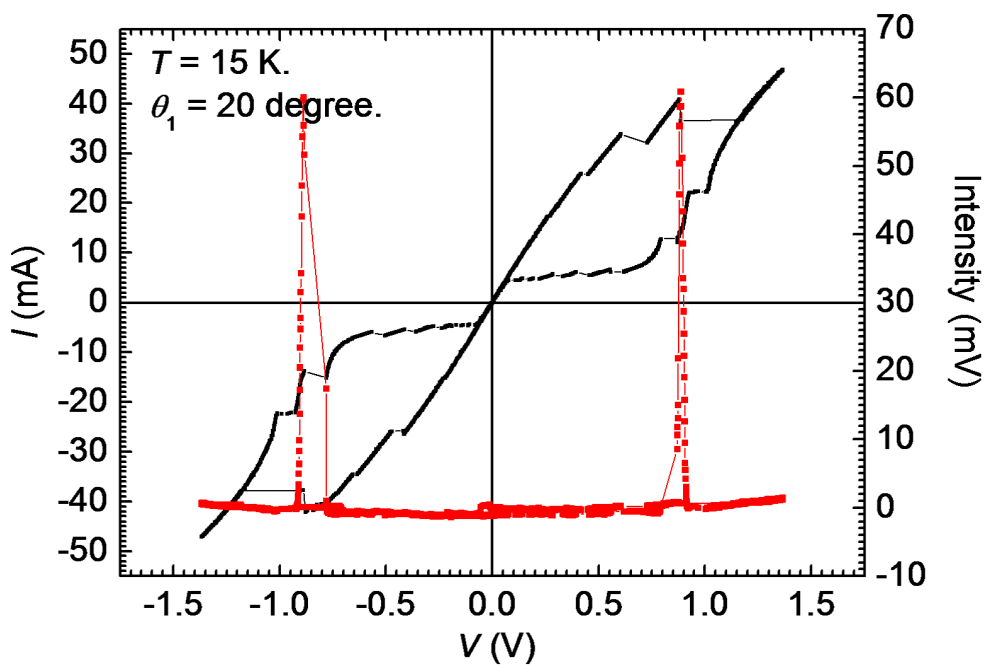


図 4.10 #091222 の電流-電圧特性 (黒) と電磁波発振強度 (赤) .

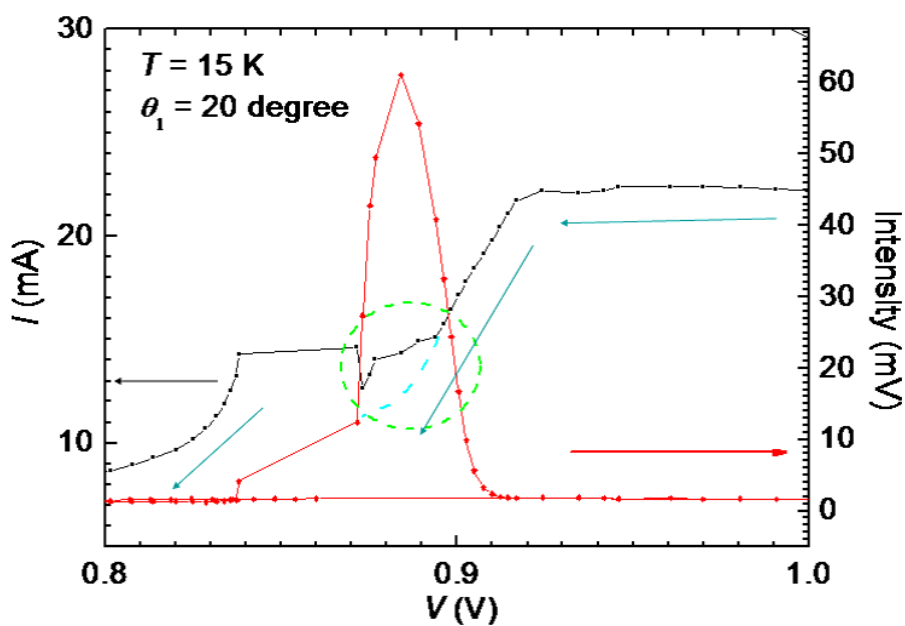


図 4.11 #091222 の電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) の発振領域拡大図．電流-電圧特性に顕著な括れがみられた．

印加することで、上下逆向きの電流がそれぞれのメサに生じる．今回は $T = 10 \text{ K}$ で、それぞれ 55 mV 、 50 mV の最大発振強度を持つメサを用いた．2つのメサの距離は $440 \mu\text{m}$ である．電流-電圧特性(黒)と発振強度(赤)を図 4.12 に示すが、発振強度は 40 mV 程度と単独バイアスの場合に比べ小さい．この発振領域の拡大図を図 4.13 に示すが、単独バイアスの場合と異なり、発振強度が $V = 1.58 \text{ V}$ 、 1.53 V 、 1.48 V 、 1.43 V といった複数の電圧状態でピークを持つ．また発振する電圧範囲も広がっている．

定電圧源を用いて複数回、電流-電圧特性を詳細に走査した結果を図 4.14 に示す．図中に示された青と緑の各点は、各走査において最大の発振強度と、それが得られた電流に対応する． $V = 1.38 \sim 1.59 \text{ V}$ 、 $I = 13 \sim 30 \text{ mA}$ という、非常に広い範囲で発振が確認出来る． $I = 15 \text{ mA}$ 、 $V = 1.42 \text{ V}$ の点は除くとして、 $V = 1.5 \text{ V}$ 近傍の非常に狭い電圧範囲で、強度が 37 mV から 65 mV まで変化しており、大変不安定である．条件によっては、単独バイアスのメサよりも強い発振強度を示す．また、発振強度が印加電圧の走査により、単一のブランチにも係らず、細かく振動する現象が確認された．単一ブランチからのこのような強度の振動現象は単独バイアスの場合には見られず、今回の同時バイアス実験によって、初めて確認された．

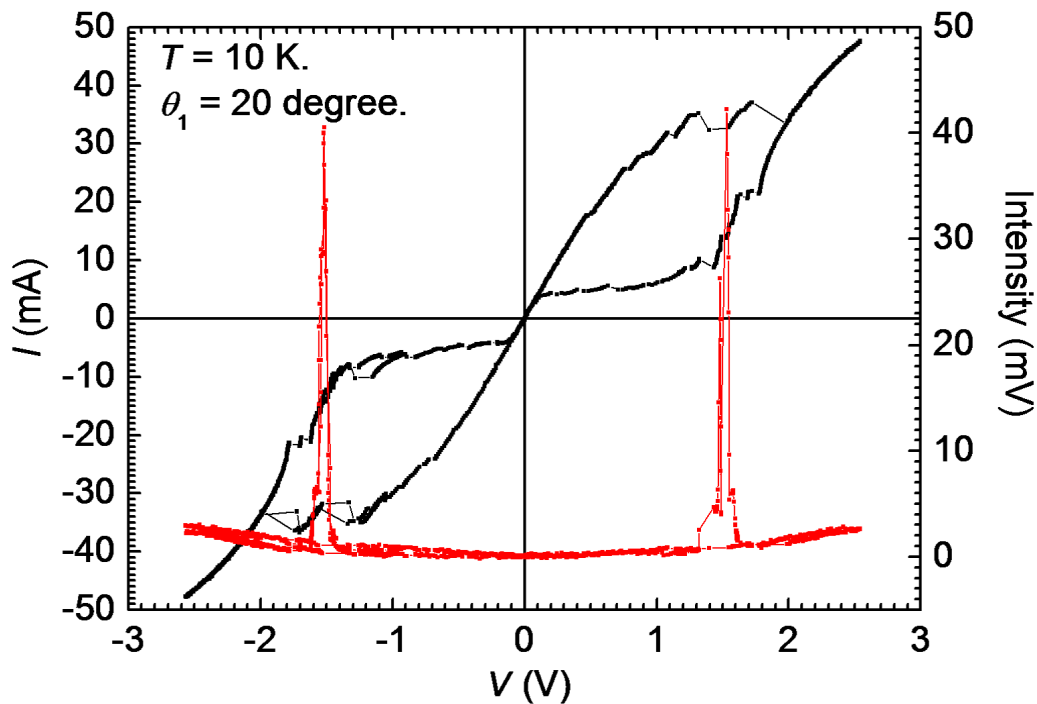


図 4.12 # 091222 の同時直流バイアス時の電流-電圧特性(黒)と電磁波発振強度(赤)．電流を印加した試料はそれぞれ単独で最大 62 mV 、 50 mV の強度を示したが、同時バイアスすると強度は 43 mV と基本的には発振強度は単独のメサよりも弱くなった．

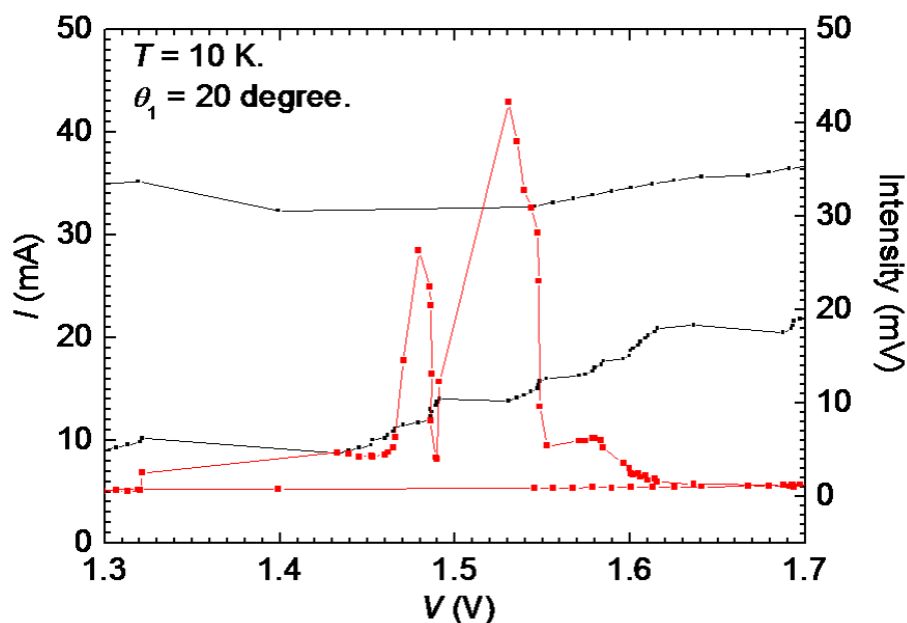


図 4.13 Bi2212 メサ試料 (# 091222) の同時直流バイアス時の電流-電圧特性 (黒) と電磁波発振強度 (赤) . 電流を印加した試料はそれぞれ単独で最大 62 mV、50 mV の強度を示したが、同時バイアスすると基本的には発振強度は単独のメサよりも弱くなった . しかしながら、 $V = 1.43 \sim 1.61$ V に掛けて、複数の発振強度のピークを持つなど、単独バイアスでは見られない複雑な発振特性を示す .

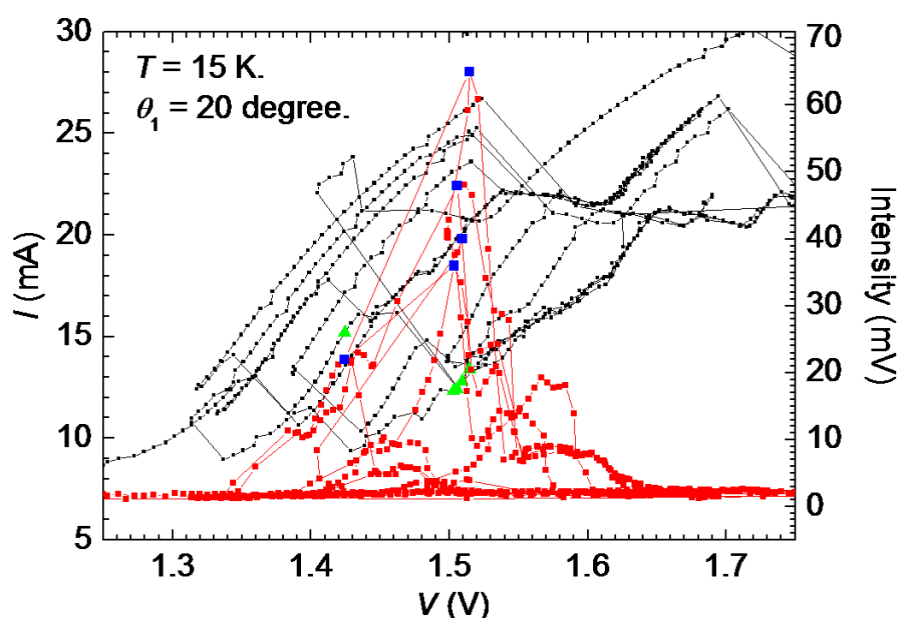


図 4.14 Bi2212 メサ試料 (# 091222) の同時直流バイアス時の電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) の発振領域拡大図 . 印加電圧を超伝導転移近傍から発振領域まで何度も走査することで、固有接合系特有のブランチ構造を得た . コヒーレンスが生じ、発振の顕著な増強が見られる電流-電圧特性を探したものの、そのような状態は確認出来なかった . また、発振そのものが不安定になり、ほぼ同等の印加電流-電圧状態 (緑) においても発振強度 (青) は 37 ~ 65 mV と大きく変化する . 発振強度が印加電圧の走査によって単一のブランチにも係らず細かく振動している場合もある . このような強度の振動現象は、今回の同時バイアス実験において初めて確認された .

4.3 電流-電圧特性と分光測定結果

4.3.1 # 081219 の電流-電圧特性と発振スペクトル

081219 は典型的な IR 型の発振を示し、非常に多くのブランチで発振する．この固有接合系に特有の多重ブランチ構造のそれぞれのブランチでの発振を議論する．ブランチはそれぞれ、印加電圧に合わせて、V88($V \simeq 0.88$ V) から順に印加電圧の減少に従い V85、V82、V82-2、V81、V80、V75、V71($V \simeq 0.71$ V) とする．このそれぞれのブランチでの特性を詳細に確認すると、各々のブランチにおいて、高電流から低電流へとシフトする過程で発振強度が増大していることが確認できる．より詳細にこの現象について議論するため、図 4.15 にブランチ V80 の各電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)、図 4.16 に各電圧状態、A-R(緑) におけるスペクトルを示す．基本周波数は $n = 4.2$ [53]、 $w = 72.9$ μm とした場合の空洞共振から求められる値、490 GHz とほぼ一致する．印加電圧の減少に伴い、発振周波数が微妙に低周波側へと変化していることが分かる．発振スペクトルを対数プロットしたものを図 4.17 に示す．FT-IR スペクトルから 3 次の高調波まで確認した．この 1 次、2 次、3 次のスペクトルを図 4.18、4.19、4.20 に示す．この試料における顕著な特徴として、スペクトルの半値幅が従来試料に比べ、広いことが挙げられる．これまでのフィルタを用いた実験から高次のスペクトルの 7～8 割が、1 次のモードの寄与であることが分かっている．高調波のスペクトルが分裂していることから、近い周波数であるが、複数の周波数のモードが同時に発振に寄与していると考えられる．図 4.18 の分光スペクトルからは、A から R まで、印加電圧の減少に伴い、発振周波数が低周波側のシフトを示している．このシフトは交流ジョセフソン効果によって説明できる．発振周波数は 486 GHz 程度から、507 GHz 程度まで、5 % 程度、印加電圧により発振周波数を制御できる．一方で、電圧がある閾値を下回ると周波数の低周波側へのシフトは抑制される．

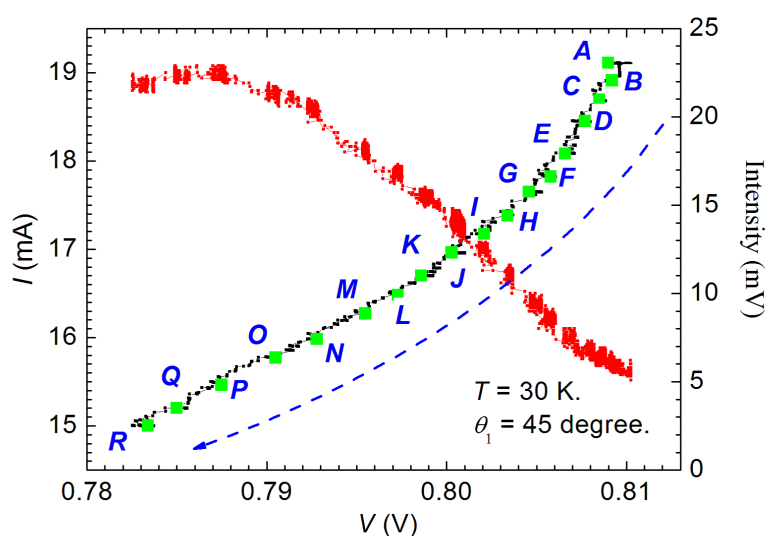


図 4.15 ブランチ V80 における電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)．スペクトル測定を行った各点が A から R(緑) に対応する．

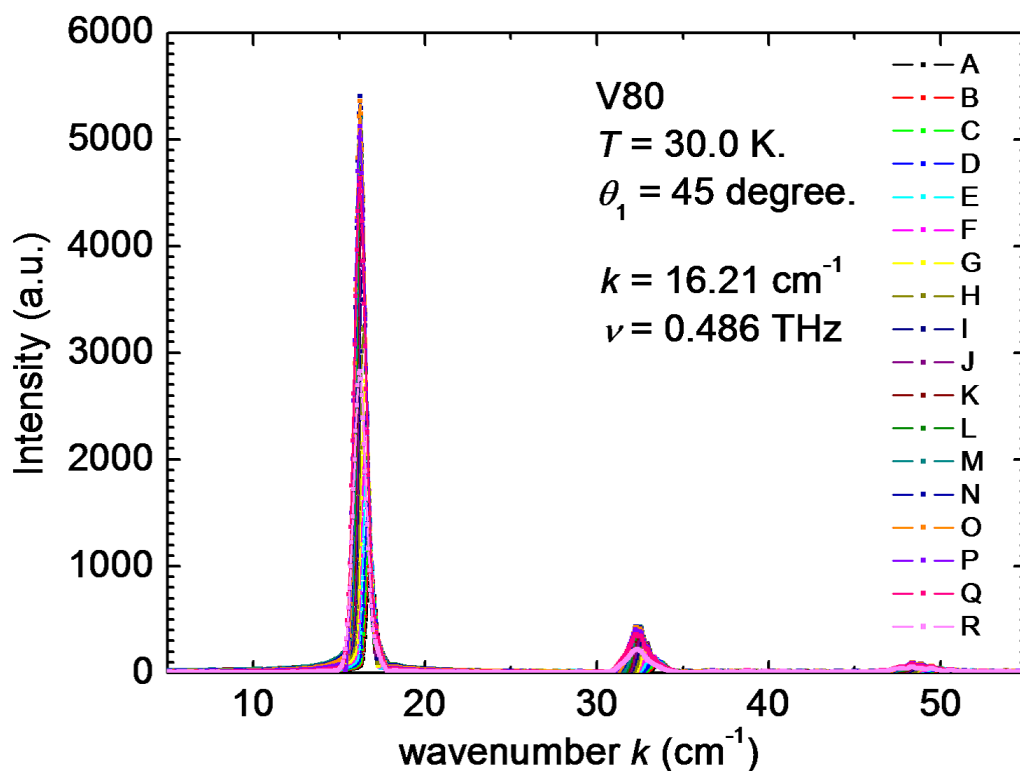


図 4.16 ブランチ V80 における分光スペクトル .

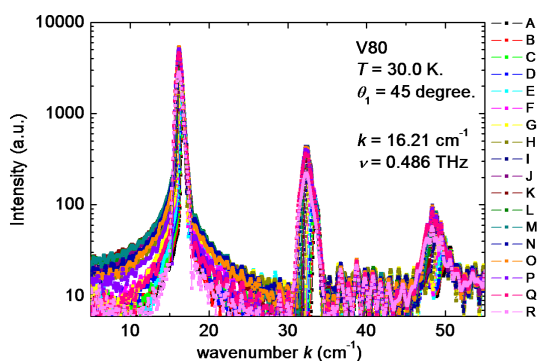


図 4.17 ブランチ V80 での発振強度の対数表記によるスペクトル変化 .

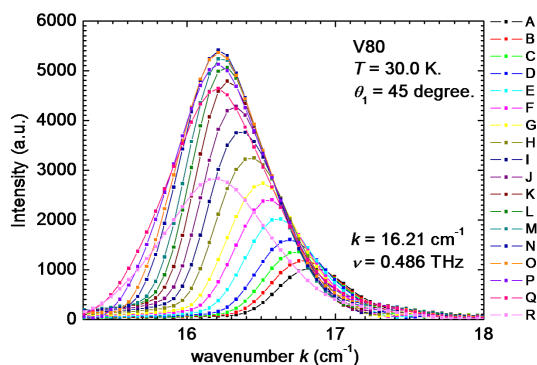


図 4.18 ブランチ V80 での基本周波数近傍の FT-IR 分光測定拡大図 .

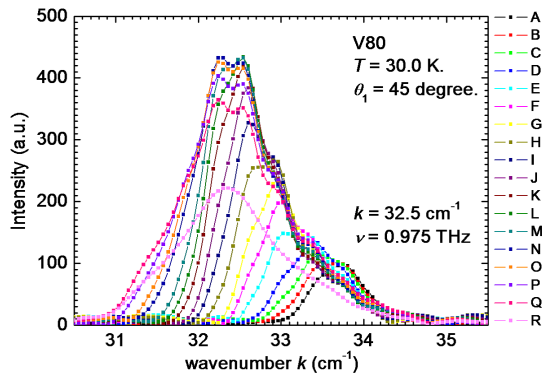


図 4.19 ブランチ V80 での 2 次高調波近傍の FT-IR 分光測定拡大図 .

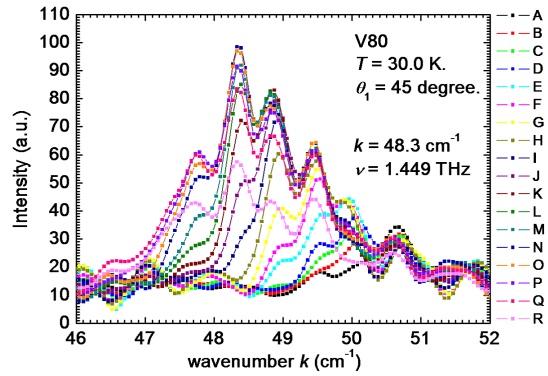


図 4.20 ブランチ V80 での 3 次高調波近傍の FT-IR 分光測定拡大図 .

発振強度と各ブランチでの発振周波数、印加電圧との関係調べるため、同様に各ブランチで電流-電圧状態と発振スペクトルを同時に詳細に測定した . 図 4.21 中の矢印に示した通り、# 081219 は、多重ブランチ構造を示し、その個々のブランチで発振することが確認されている . この各ブランチ V88、V85、V82、V82-2、V81、V75、V71、V70 で詳細に測定した FT-IR 分光測定と電流-電圧特性の対応を図 4.22 - 4.36 に示す .

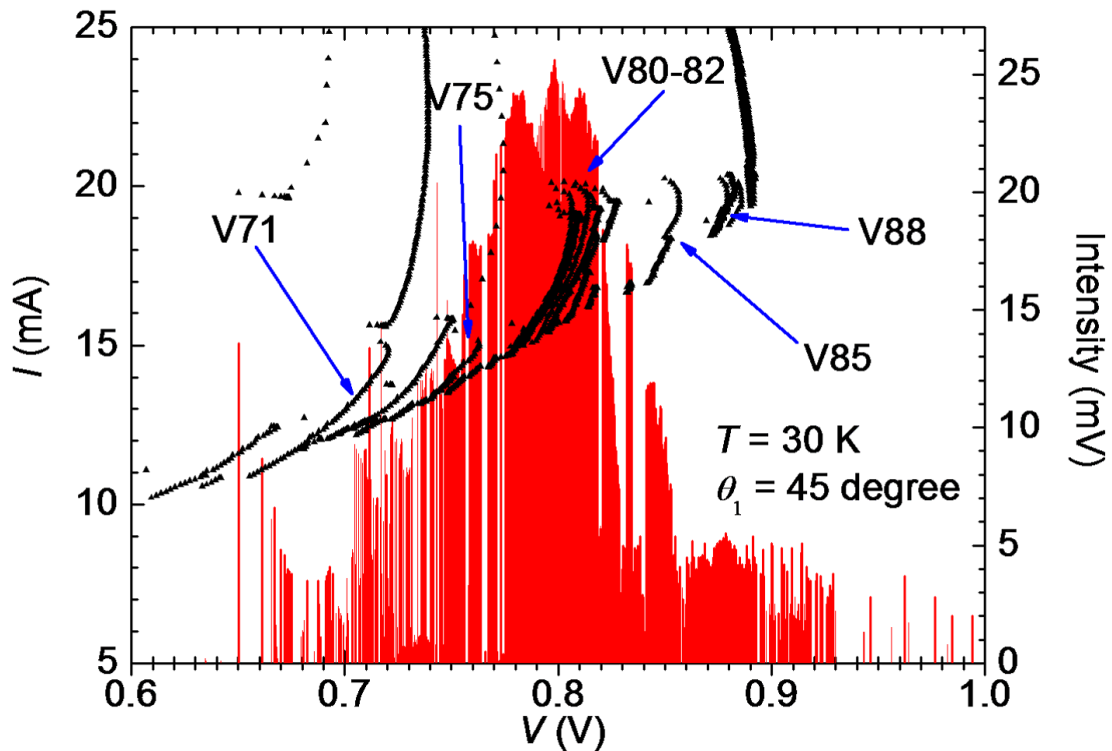


図 4.21 # 081219 の多重ブランチからの発振 . 電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)、各ブランチ毎で詳細に電流-電圧状態と対応させて FT-IR 分光測定を行った .

図 4.22、4.23 にブランチ V88 の発振領域における電流-電圧特性と発振スペクトルを示す。A から F へと印加電圧が減少するにつれ、発振周波数が低周波側へシフトした。また、F から G へと、ブランチが遷移すると同時に強度が大きく変化した。発振周波数は 445 GHz と低いブランチの遷移と同時に高周波側にシフトする。全てのジョセフソン接合がコヒーレントに協調動作すると、高電圧の方が共鳴するジョセフソン接合の層数が増え、高強度になるべきであるが、そのようになっていない。これは、メサの空洞共振モードと、ジョセフソン接合一層当りに印加された電圧との間のミスマッチングによると考えられる。

図 4.24、4.25 にブランチ V85 における電流-電圧特性と分光スペクトル測定の結果を示す。同様に同一ブランチにおいては印加電圧の減少と共に、発振周波数の低周波化、及び発振強度の上昇、ブランチ間の遷移により、発振強度の大幅な上昇が確認された。発振周波数は 463 GHz から 481 GHz へと、ブランチの遷移とともに高周波側へシフトしている。

図 4.26、4.27 にブランチ V82 における電流-電圧特性とスペクトルの相関を示す。同様に同一ブランチにおいては印加電圧の減少と共に、発振周波数の低周波化、及び発振強度の上昇がみられる。ブランチ間の遷移により、K 点において、発振強度が 0 になっていることが分かる。これはブランチの遷移と同時に最早、コヒーレンスが保たれなくなったことを示唆している。発振周波数は 485 GHz である。

図 4.28、4.29 にブランチ V82-2 における電流-電圧特性とスペクトルの相関を示す。# 081219 の場合、 $V = 0.8$ V 程度で、最も安定に強力な発振が見られる。これは、素子の形状と最も一致した周波数が得られるのが、この印加電圧に対応するためと考えられる。同様に同一ブランチにおいては印加電圧の減少と共に、発振周波数の低周波化、及び発振強度の上昇が確認された。発振周波数は 485 GHz と空洞共振によって与えられる周波数 490 GHz と非常に良く一致する。

図 4.30、4.31 にブランチ V81 における電流-電圧特性とスペクトルの相関を示す。E から F でブランチが飛んでいるように見えるが、スペクトルからは、周波数のシフトは確認されない。周波数シフトが観測されない実験事実は、V88、V85、V71、V70 などのブランチでの周波数シフトと一致しない。この周波数近傍が試料の形状に最も適しており、形状効果に因る周波数の引き込み効果の可能性がある。印加電圧の減少と共に、発振周波数の低周波化、及び発振強度の上昇が確認されたという点は、これまでと同様である。発振周波数は 486 GHz と空洞共振によって与えられる周波数 490 GHz と非常に良く一致する。また、その発振強度も # 081219 のほぼ最大である。

図 4.32、4.33 にブランチ V75 における電流-電圧特性とスペクトルの相関を示す。このブランチのように内側のブランチになってくると、印加電流が小さくなっていく。D から E、E から F、G から H の各点で電圧状態の層数に変化が起きているようにも見えるが、発振周波数は変化しない。発振周波数は 494 GHz と、空洞共振によって与えられる周波数 490 GHz よりも若干高い。印加電圧の減少による放射強度の減少が顕著に現れる。

図 4.34、4.35、4.36 にブランチ V71、V70 における電流-電圧特性とスペクトルの相関を示す。発振周波数は 510 GHz、515 GHz と V88 でみられた 445 GHz に比べ、20 % 程度大きい。また、強度は V82-2 などのブランチと比べると 1000 カウント程度と弱い。

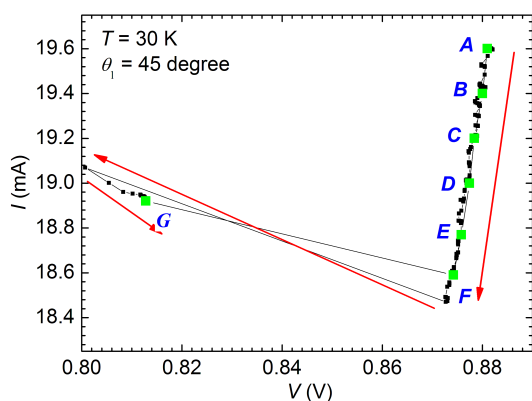


図 4.22 ブランチ V88 で分光測定を行った電流-電圧状態 (黒). 添え字は次図のスペクトルに対応 (緑).

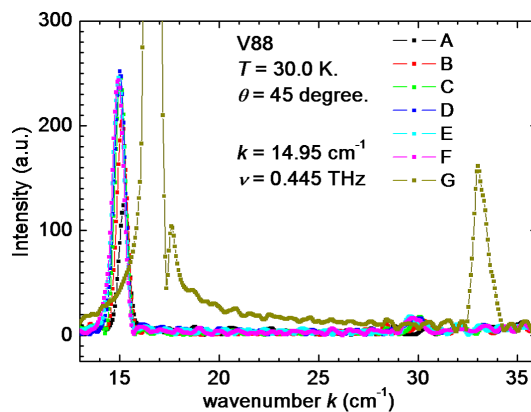


図 4.23 ブランチ V88 での FT-IR 分光測定結果 .

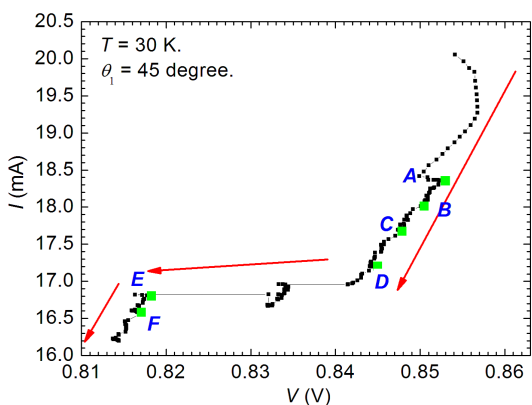


図 4.24 ブランチ V85 で分光測定を行った電流-電圧状態 (黒). 添え字は次図のスペクトルに対応 (緑).

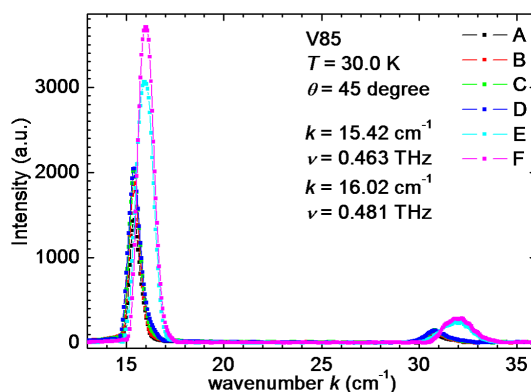


図 4.25 ブランチ V85 での FT-IR 分光測定結果 .

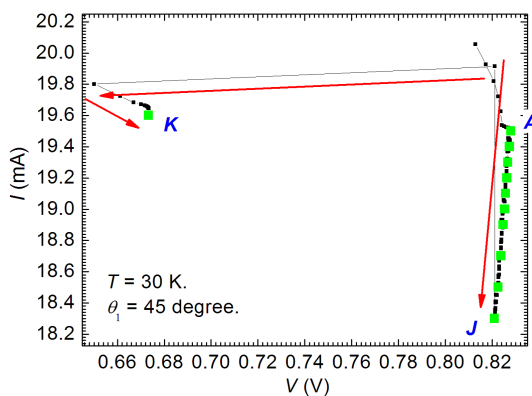


図 4.26 ブランチ V82 で分光測定を行った電流-電圧状態 (黒). 添え字は次図のスペクトルに対応 (緑).

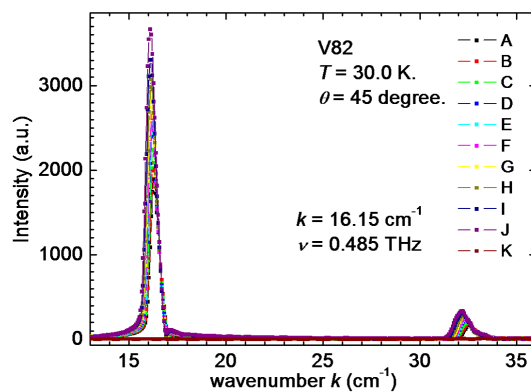


図 4.27 ブランチ V82 での FT-IR 分光測定結果 .

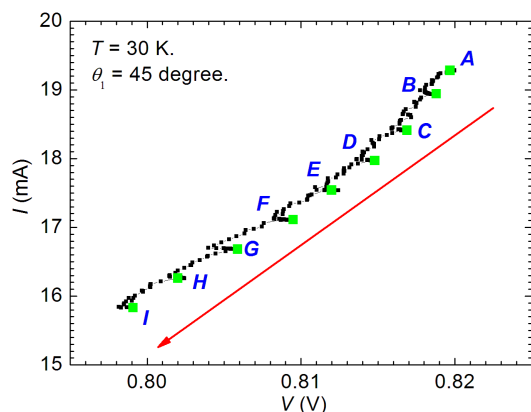


図 4.28 ブランチ V82-2 で分光測定を行った電流-電圧状態 (黒). 添え字は次図のスペクトルの添え字に対応 (緑).

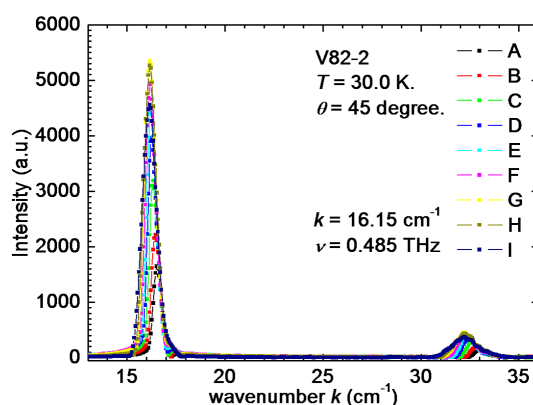


図 4.29 ブランチ V82-2 での FT-IR 分光測定結果 .

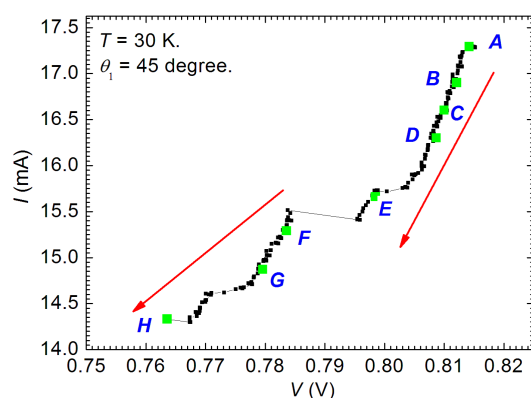


図 4.30 ブランチ V81 で分光測定を行った電流-電圧状態 (黒). 添え字は次図のスペクトルの添え字に対応 (緑).

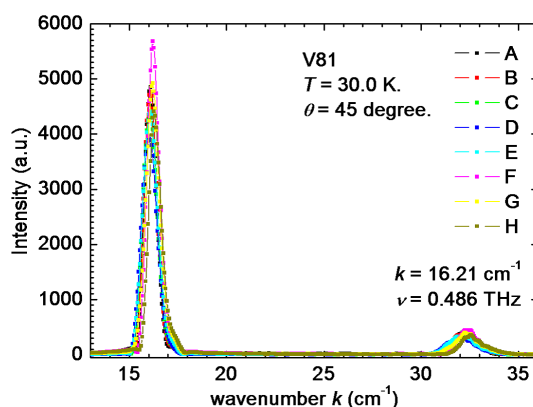


図 4.31 ブランチ V81 での FT-IR 分光測定結果 .

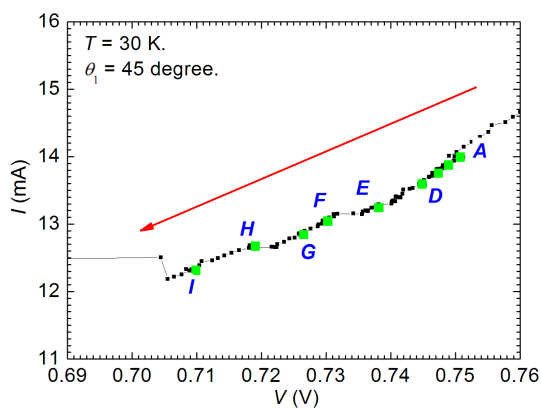


図 4.32 ブランチ V75 で分光測定を行った電流-電圧状態 (黒). 添え字は次図のスペクトルの添え字に対応 (緑).

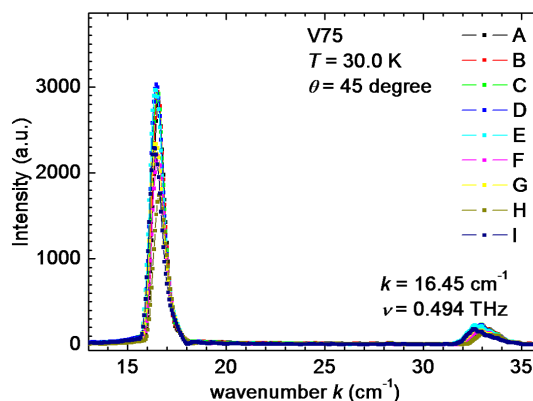


図 4.33 ブランチ V75 での FT-IR 分光測定結果 .

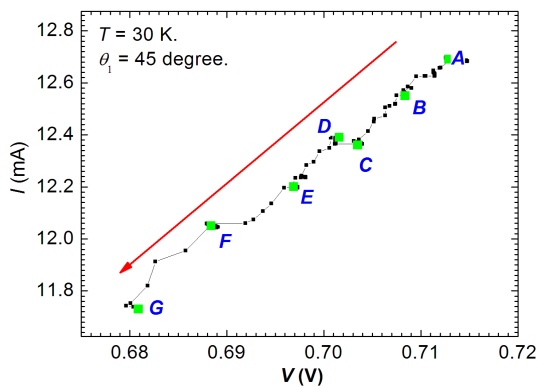


図 4.34 ブランチ V71、V70 で分光測定を行った電流-電圧状態 (黒) . 添え字は次図のスペクトルの添え字に対応 (緑) .

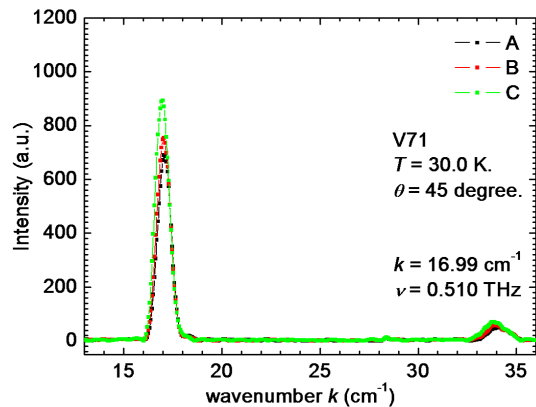


図 4.35 ブランチ V71 での FT-IR 分光測定結果 .

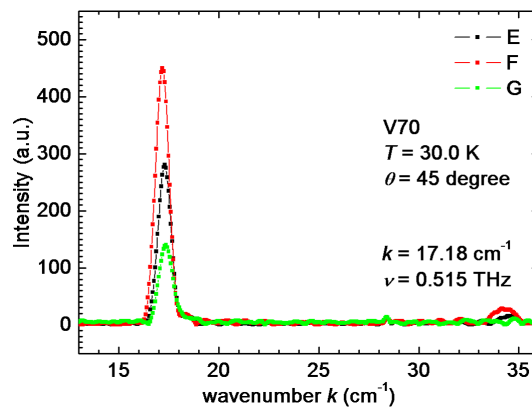


図 4.36 ブランチ V70 での FT-IR 分光測定結果 .

4.3.2 # 091222 の単独バイアスによる電流-電圧特性と発振スペクトル

091222 は単独で 60 mV 程度の強力な電磁波発振を生じる . 図 4.37 に分光測定を行った発振領域での電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) を示す . 結果は、# 091222 の残留抵抗を差し引いたものである . スペクトルを測った電流-電圧状態を緑で示したが、全て単一のブランチからの発振である . 図 4.38 に得られた発振スペクトルを示す . 印加電圧の増大に従って、発振周波数は高周波側へとシフトする . しかしながら、印加電流に関しては、高電流側で発振が強いという# 081219 とは、異なる結果が得られた . 低周波側で強力な発振が生じているとする条件は一致しており、メサから定在波が染み出すような長波長でより強力な発振が得られる傾向にある .

図 4.39 に基本周波数におけるスペクトル変化を示す . 繰り返しになるが、印加電圧の増大に従い、発振周波数が高周波側へとシフトしていく . また、発振周波数は 508 GHz から 524 GHz まで変化し、メサの幅の頂部 ($w = 70 \mu\text{m}$) を節として、 $n = 4.2$ [53] を仮定した空洞共振器モデルから導かれる周波数 510 GHz と良く一致する . 可変幅が 5 % 弱とこれまで同様である . スペクトルの半値幅は 0.8 cm^{-1} 程度とやはり広い .

2次高調波のスペクトルを図4.40に示す。スペクトルAで特に顕著であるが、スペクトル強度に周波数の近い2つのピークを持つ。印加電圧の変化に伴う変化が顕著で、電圧変化の過程でスペクトルのピークが 34 cm^{-1} から 35 cm^{-1} へと、シフトしている。

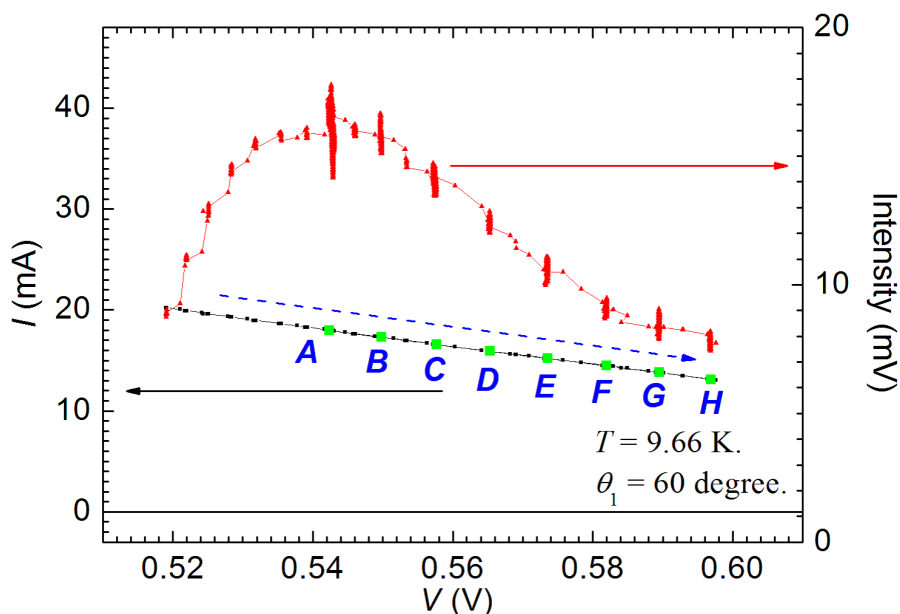


図 4.37 同時バイアス実験に用いた# 091222 の単独バイアス時の分光測定に対応する電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)、分光測定を行った電流-電圧状態 (緑)。

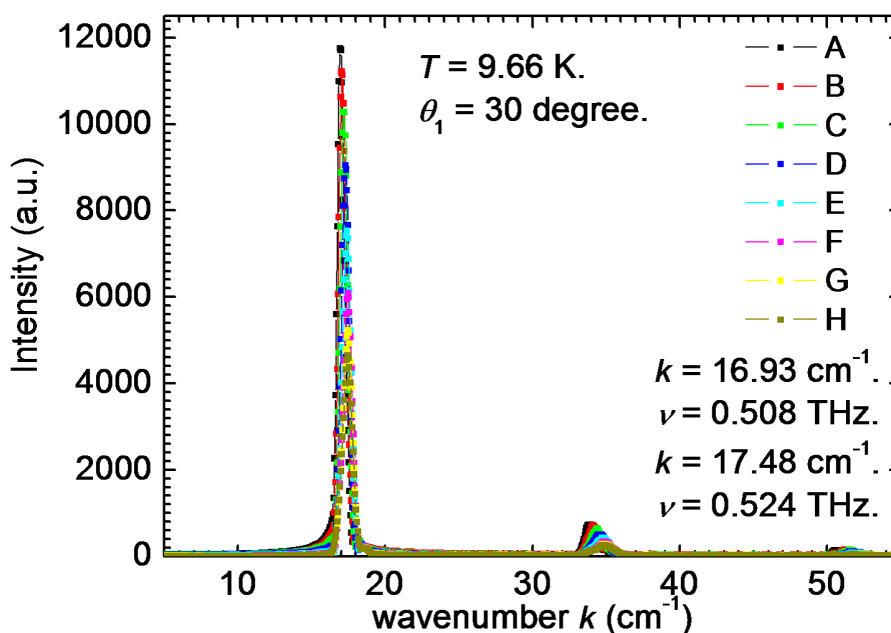


図 4.38 # 091222 単独バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果。

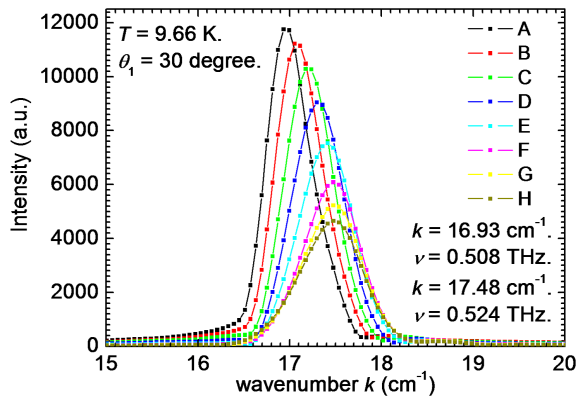


図 4.39 #091222 単独バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果、基本周波数近傍の拡大図。

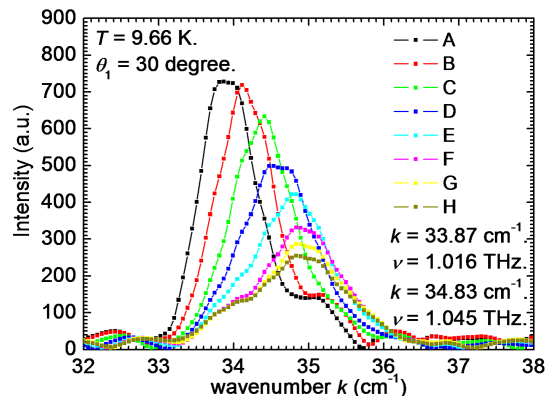


図 4.40 #091222 単独バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果、2 次高調波近傍の拡大図。

4.3.3 #091222 の同時バイアスによる電流-電圧特性と発振スペクトル

既に述べたとおり、2 つのメサに直列に電流を流すと強度は弱くなってしまった。しかしながら、電流-電圧特性と発振強度は、不安定、かつ複雑な振る舞いをみせた。この原因を探るべく、同時バイアス時のスペクトルを測定した。

図 4.41 に同時バイアス時の電流-電圧特性と発振強度を示す。スペクトル測定を行った各点を緑で表した。単一のブランチ A-K までの電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) からは、単一ブランチにも係らず複雑な強度の振動が確認された。一方で、L-N の電流-電圧特性 (紫) と発振強度 (黄) は、印加電圧の増加に伴い、強度も増加する単調な振る舞いが得られた。それぞれの領域でどのようなスペクトルの電磁波発振が生じているか、分光測定を行った。分光測定の結果を図 4.42 に示す。A-K にかけて、周波数 408 GHz、426 GHz の 2 つのメサからの寄与と考えられる 2 本のピークが得られる。この発振周波数は、メサの底部 ($w = 80 \mu\text{m}$) を節として $n = 4.2$ を仮定した空洞共振器モデルから導かれる周波数 446 GHz に近い値を取る。一方で、L-N にかけては、503 GHz の単独バイアス時とほぼ同一の周波数の発振を確認した。この値はメサ頂部の形状による空洞共振モデルから導かれる周波数と一致する。この周波数変化の理由は今のところ明らかでないが、ジョセフソン接合当りの印加電圧の減少によると定性的には考えられる。同時バイアスにより、空洞共振する試料の幅を頂部、底部と選択的に操作できる可能性を示唆する。

また、基本周波数、2 次高調波の低波数側、高波数側でのそれぞれのスペクトルを図 4.43、4.44、4.45、4.46 に示す。一見して、スペクトルの線幅が A-K と L-N で異なっている。また図 4.46 で顕著であるが、印加電圧の増加に伴い、スペクトルのピークが高周波側にシフトしている。この結果は同時バイアスの場合でも、交流ジョセフソンの関係が満たされているという実験的な示唆を与える。また、重要な実験事実として、単一バイアス時、及び、同時バイアス時のブロードなスペクトルと異なり、同時バイアス時に現れた低波数側の 2 本のスペクトルのピークは、半値幅が小さく、波長純度が良い。これは 2 次高調波のスペクトルでより明確であり、低波数側の 2 つのピークは高調波の場合も半値幅が 0.3 cm^{-1} 程度である。一方で、通常メサ頂部の空洞共振から予想される周波数の高調波は半値幅が 1.3 cm^{-1} 程度まで広がりを見せている。これらの結果から、高温超伝導体テラヘルツ波発振による何らかの新しい干渉効果を測定したと考えられる。可能性としてはメサの底部を節とした発振がそれぞれの 2 つのメサで生じていると考えられ

るが、その詳細は不明である．南、折田らの実験との相違点として、素子単体の発振強度が大きく変化する IR 型の発振を用いている点、単独の発振強度そのものが 3 倍程度強い点、リトラッピング領域での発振のため、印加電流が R 型に比べ小さく、試料への発熱の効果が小さい点などが、挙げられるが、どの要素が効いているかは、今のところ明確でない．

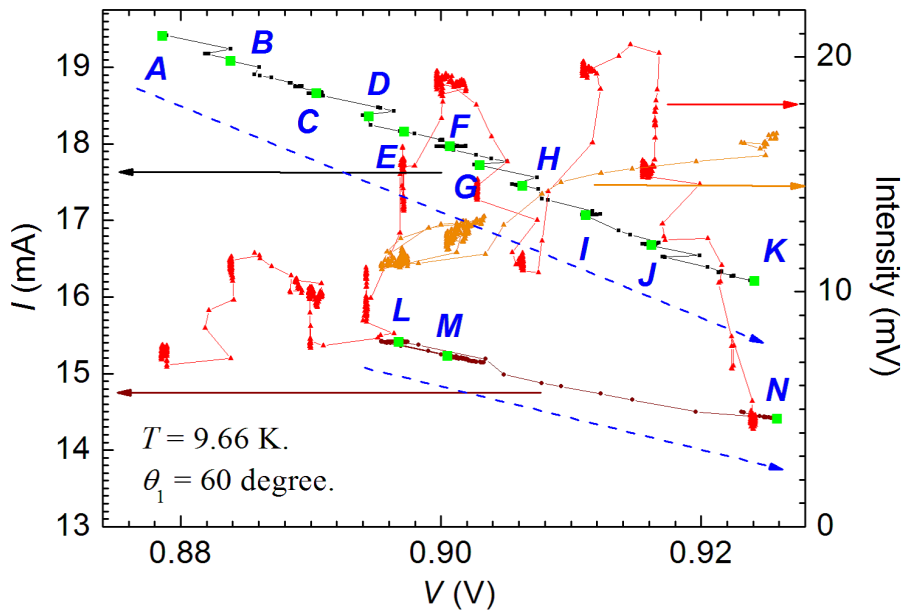


図 4.41 同時バイアス実験の分光測定に対応する電流-電圧特性と発振強度．

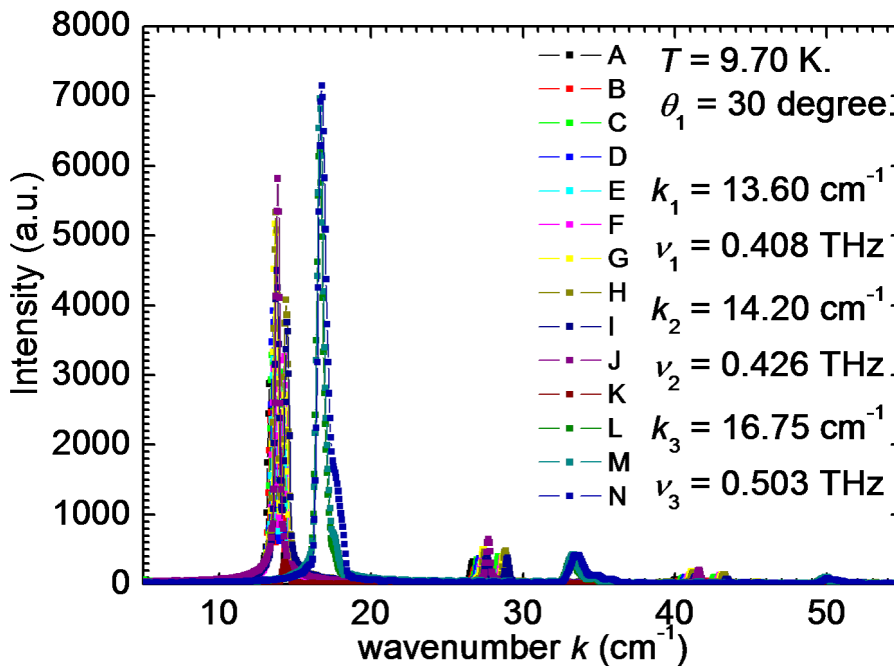


図 4.42 同時バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果．

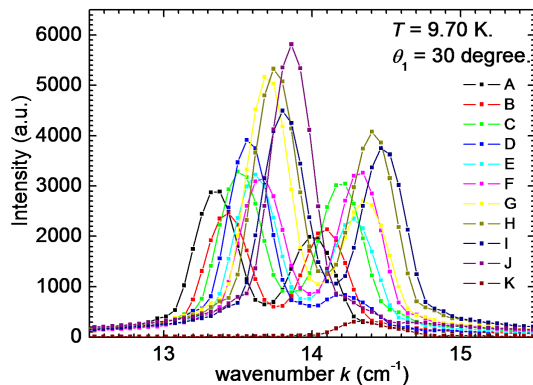


図 4.43 同時バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果、基本周波数近傍の低周波側の拡大図。

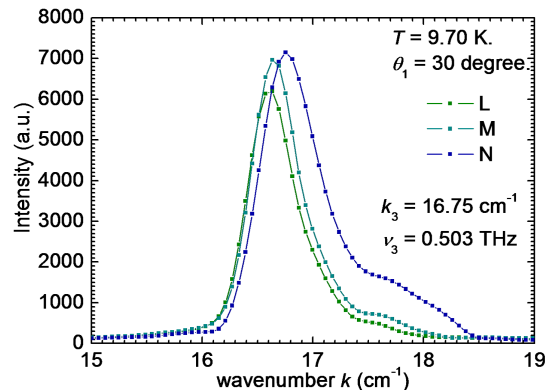


図 4.44 同時バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果、基本周波数近傍の高周波側の拡大図。

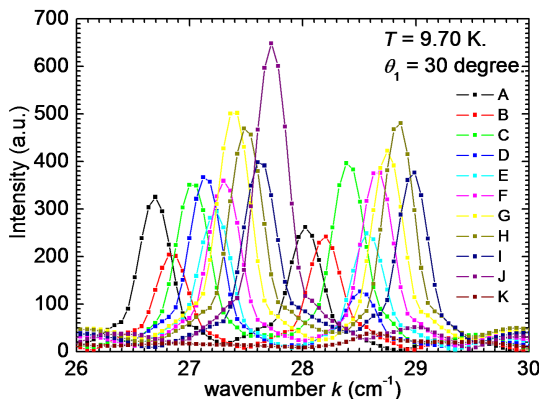


図 4.45 同時バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果、2 次高調波近傍の高周波側の拡大図。

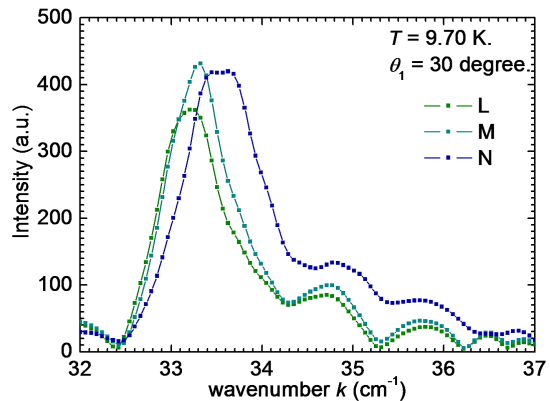


図 4.46 同時バイアスメサからの FT-IR 分光測定結果、2 次高調波近傍の高周波側の拡大図。

4.3.4 電流-電圧特性とスペクトルから導かれる高強度発振の条件

試料# 081219 と# 091222 を用いて、詳細に電流-電圧特性と発振強度、発振周波数の関係を調べた。一般に印加電流が大きいく程、発振強度が大きくなるように感じるが、図 4.47 に示す# 081219 の単一ブランチ V82-2 の発振周波数と発振強度の印加電流依存性は、印加電流の減少と共に発振強度が増加している。一方で、# 091222 の場合、発振強度の印加電流依存性は図 4.48 に示すとおり、高電流側で高強度の発振が起こっている。印加電流が高い方が投入電力が大きくなるため、高強度の発振が起こりやすくなるのだろうが、必ずしも印加電流と発振強度の間に強い相関があるわけではない。次に# 081219 の単一ブランチ V80 の発振周波数と発振強度の印加電流依存性を図 4.49 に示す。こちらに関しても印加電圧が減少する、即ち、投入電力が減ったときに高強度の発振が得られている。# 091222 の結果を図 4.50 に示すが、こちらも印加電圧の減少と共に発振強度が減少するという、一見直感と矛盾する結果が得られた。このとき、2つの試料の発振周波数に注目すると、どちらの場合も発振周波数が低波数側のときに高強度の発振が得られる傾向があることが分かる。

次に、# 081219 の各ブランチの最大発振強度と発振周波数を図 4.51 に示す。発振周波数が 485 GHz 近

傍の場合に高強度の発振が生じており、その条件から外れるに従って、発振強度が減少していく。この発振周波数 485 GHz は屈折率 $n = 4.2$ とした場合の幅 $w = 72.9 \mu\text{m}$ の場合に空洞共振の条件から導かれる周波数、490 GHz に極めて近い値を取っており、メサ頂部を節とする空洞共振機構とマッチングを取ることによって発振の効率を高めることが、高強度の発振において最も重要であるという結果が得られた。

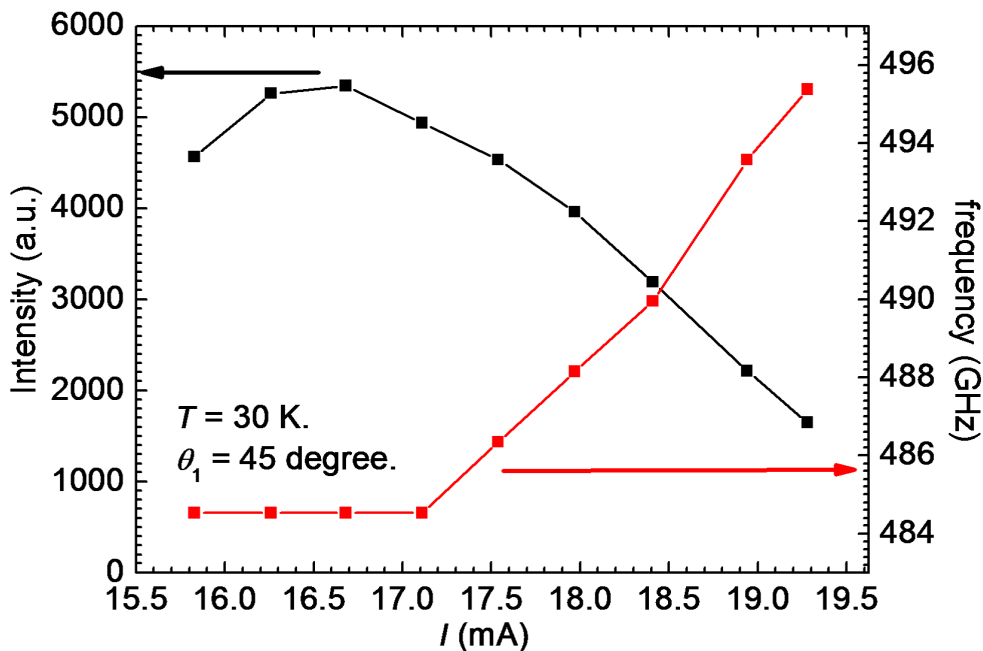


図 4.47 #081219 の単一ブランチ V82-2 における発振周波数と発振強度の印加電流依存性。

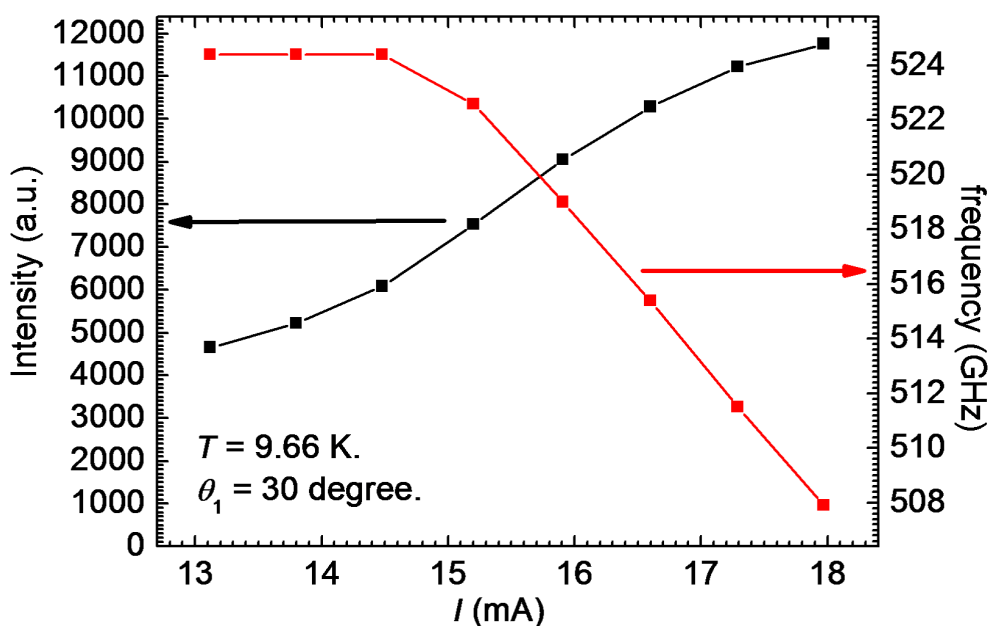


図 4.48 #091222 の単一ブランチにおける発振周波数と発振強度の印加電流依存性。

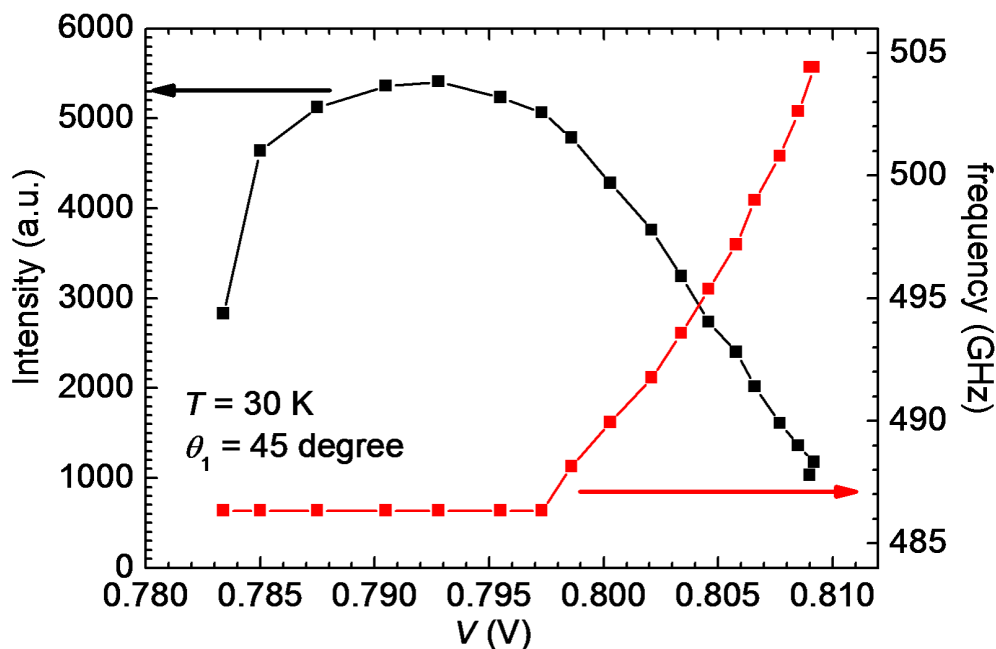


図 4.49 # 081219 の単一ブランチ V80 における発振周波数と発振強度の印加電圧依存性 .

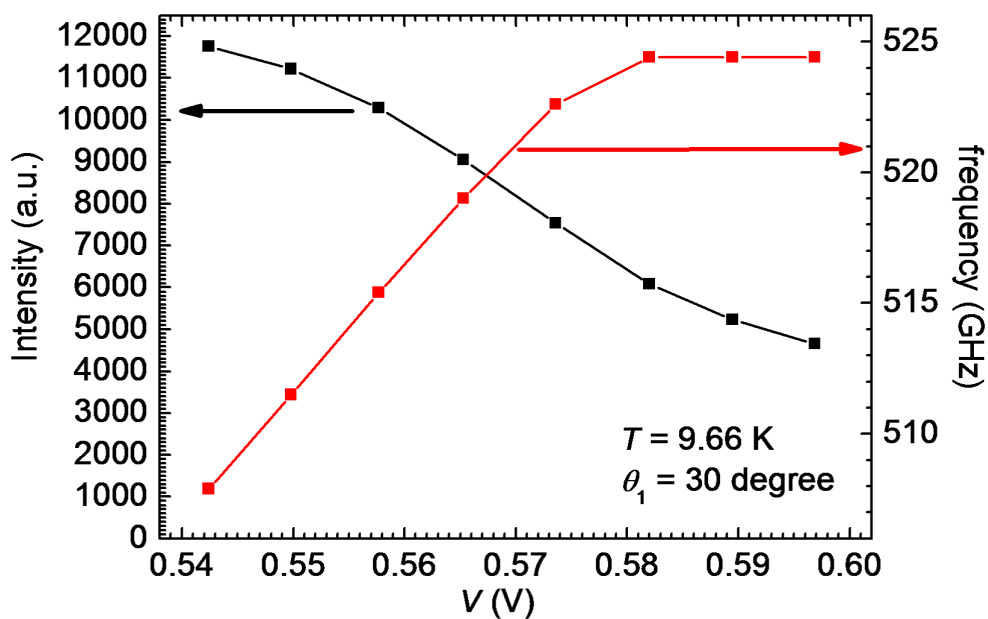


図 4.50 # 091222 の単一ブランチにおける発振周波数と発振強度の印加電流依存性 .

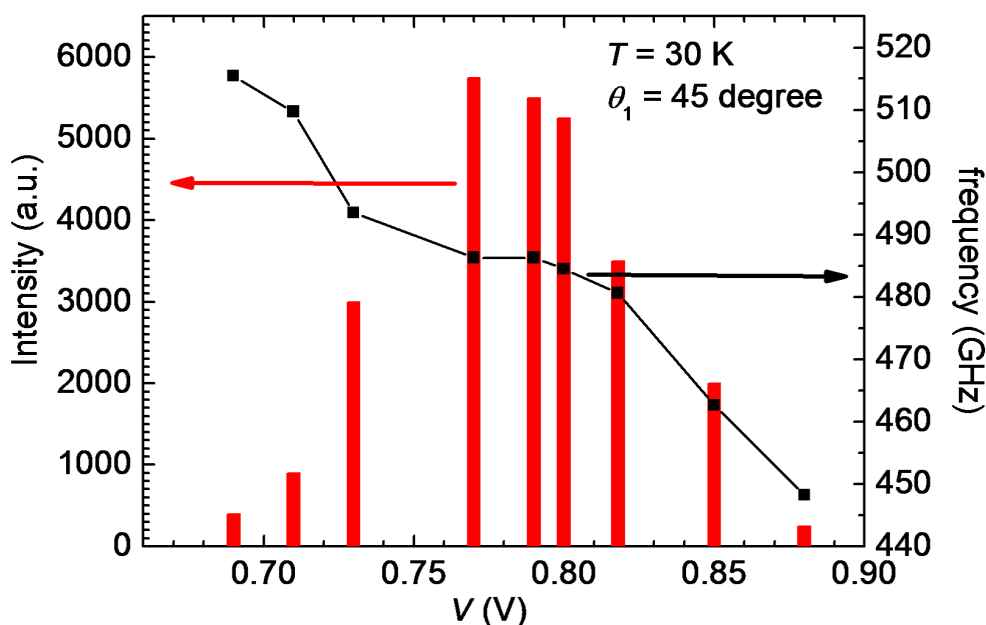


図 4.51 各ブランチの最大発振強度と発振周波数 .

4.4 R 型、IR 型の発振強度

研究背景で述べた通り、リトラッピング領域における発振の他に、超伝導転移点直下で強力な電磁波発振が得られることが南らにより報告された [47] . それぞれの発振を IR 型、R 型と区別するが、今回、IR 型と R 型の両方で発振する試料 (# 081219) を用い、それぞれの発振強度を評価した . 実験手法としては、熱浴の温度により、低温で R 型、高温で IR 型と両方の発振が生じるメサ試料を用いて、強度のバス温度依存性から 2 つの発振特性の最大の発振強度に差があるか否か検証した .

それぞれの典型的な電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) を図 4.52、4.53 に示す . 発振箇所を緑の丸で示すが、南らが既に指摘しているとおり、R 型の発振は超伝導転移直下で生じており、極めて安定性が高い . 一方で IR 型は電圧状態から超伝導状態へのリトラッピング領域で発振が生じており、ジョセフソン素子の幾層かが超伝導状態にリトラッピングされている . このリトラッピングの過程は不可逆であるため、R 型に比べ実験を行う上での再現性に難がある . 図 4.54 に熱浴の温度を変化させた際の最大の発振強度の変化を示す . 低温では R 型の発振が起こり、高温では IR 型の発振が得られる . 発振周波数はどちらの発振の場合も 485 GHz と空洞共振モデルで説明でき一致する . 2 つの発振は素子に投入する電力など、特性が大きく異なるが、各発振状態における最適な熱浴温度を保つことで、最大発振強度はほぼ同程度であることが明らかになった .

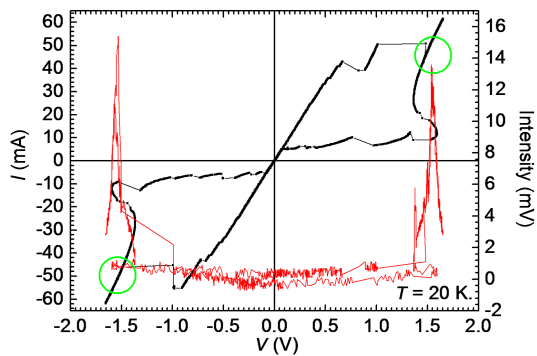


図 4.52 典型的な R 型発振．超伝導転移直下で発振する．

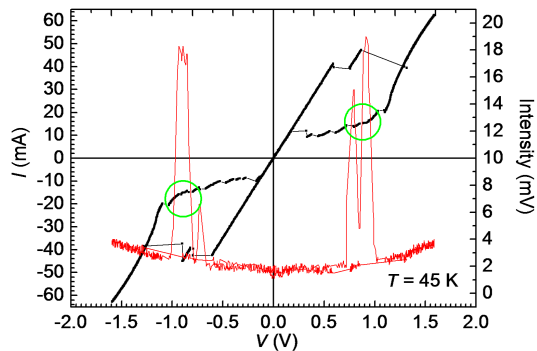


図 4.53 典型的な IR 型発振．リトラッピング領域で発振する．

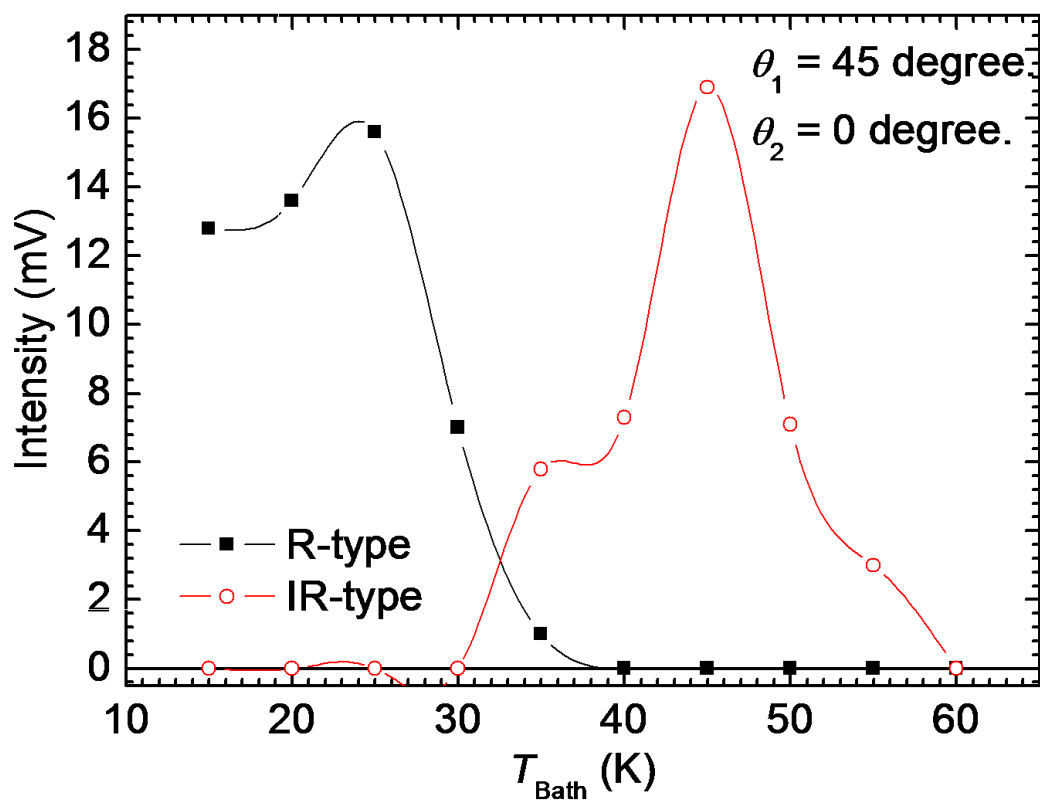


図 4.54 発振強度のバス温度依存性．R 型、IR 型によらず、最大の発振強度は 16 mV とほぼ一致する．発振周波数はどちらの発振の場合も空洞共振モデルから導かれる値に対応する．

4.5 素子全体からの発振強度の見積もりと高効率の発振現象

メサからの放射分布を測定することで、より正確に素子全体からの発振強度を見積もることを試みた。この節では、試料からの放射分布強度の測定と、それを用いた、素子全体からの発振強度の見積もり、最後に発振効率の高い、新奇発振現象を新たに確認した。

4.5.1 矩形メサ試料からの電磁波発振の放射強度分布

これまでに門脇、南らによって指摘されているとおり、高温超伝導体メサ構造からの発振は放射強度に大きな異方性を有する [48, 53]。試料の直上を角度 0° として、メサの長辺 (長さ) 方向への回転を θ_1 、短辺 (幅) 方向への回転を θ_2 として定義した。強度の評価はポロメータを用いて行い、クライオスタット内部の試料の角度を変化させることで、放射分布を評価した。試料は# 081219 を用いた。また、この測定の際には、クライオスタットとポロメータの光路に配置した導波管を取り除き、試料からポロメータに直接入射する電磁波の強度を評価した。ここから算出される放射強度分布測定の分解能は $\pm 2.3^\circ$ 程度である。

θ_1 に対する放射強度分布を図 4.55 a) に示す。放射分布は強い異方性を持ち、メサ試料直上から 20° 傾いた方向に最も高い強度を持つ。また、試料直上 0° の方向にも強い指向性を持つこともこの試料の特徴であり、線幅が広いことと併せて、高強度発振に見られる特徴の一つである。また、 70° 傾いた ab 面内近傍にも、小さなピーク構造を持つ。

図 4.55 b) に θ_2 に対する放射強度分布を示す。 ab 面内での放射強度分布測定から、面内ではこの方向に発振強度が弱いことが既に報告されている [48]。 θ_2 の放射分布は、 θ_1 に比べ、 $\theta_2 \leq \pm 30^\circ$ の、試料直上方向に高い発振強度を有する。 θ_1 でみられた 70° での強度のピークが θ_2 では、みられないことから、 θ_1 のピークは基板からの反射などではなく、本質的なものでないかと考えられる。

4.5.2 発振強度の見積もり

放射強度分布の測定から素子全体からの発振強度を算出した。ポロメータの電圧-電力変換因子は、規定値 $S = 2.2 \times 10^5$ [V/W] を用いる。ポロメータの窓から検出部への導波路となる Winston cone 損、ポロメータ検出部の窓損、フィルタ損の 3 つの因子を減衰率 0.8 と仮定する。前置増幅器の増幅度 200、また、ポロメータの実効値である rms を強度の peak to peak へと変換する因子 $1/2\sqrt{2}$ を用いると、ポロメータの電圧変化 V_{rms} [mV] と検出強度 P [nW] の間には以下の関係が成り立つ。

$$V_{rms}[\text{mV}] = 10^3 \times S \times 200 \times \frac{1}{2\sqrt{2}} \times (0.8)^3 \times 10^{-9} \times P[\text{nW}] \quad (4.1)$$

この式を整理することで、ポロメータの電圧と検出した電磁波強度を示す次式が得られる。

$$V_{rms}[\text{mV}] \approx 8 \times P[\text{nW}] \quad (4.2)$$

このとき、素子からの単位立体角当りの平均強度を $E(P(\theta, \phi))$ とする。 ϕ は、 xy 平面内での角度変化に対応する。また、放射強度の分布の測定からメサ直上の検出強度 $P(0, \phi)$ をポロメータの検出面積当りの平均強度 $E(P_0)$ に換算すると、

$$E(P_0)[\text{nW}] = 0.57 \times P(\theta, \phi)[\text{nW}] \quad (4.3)$$

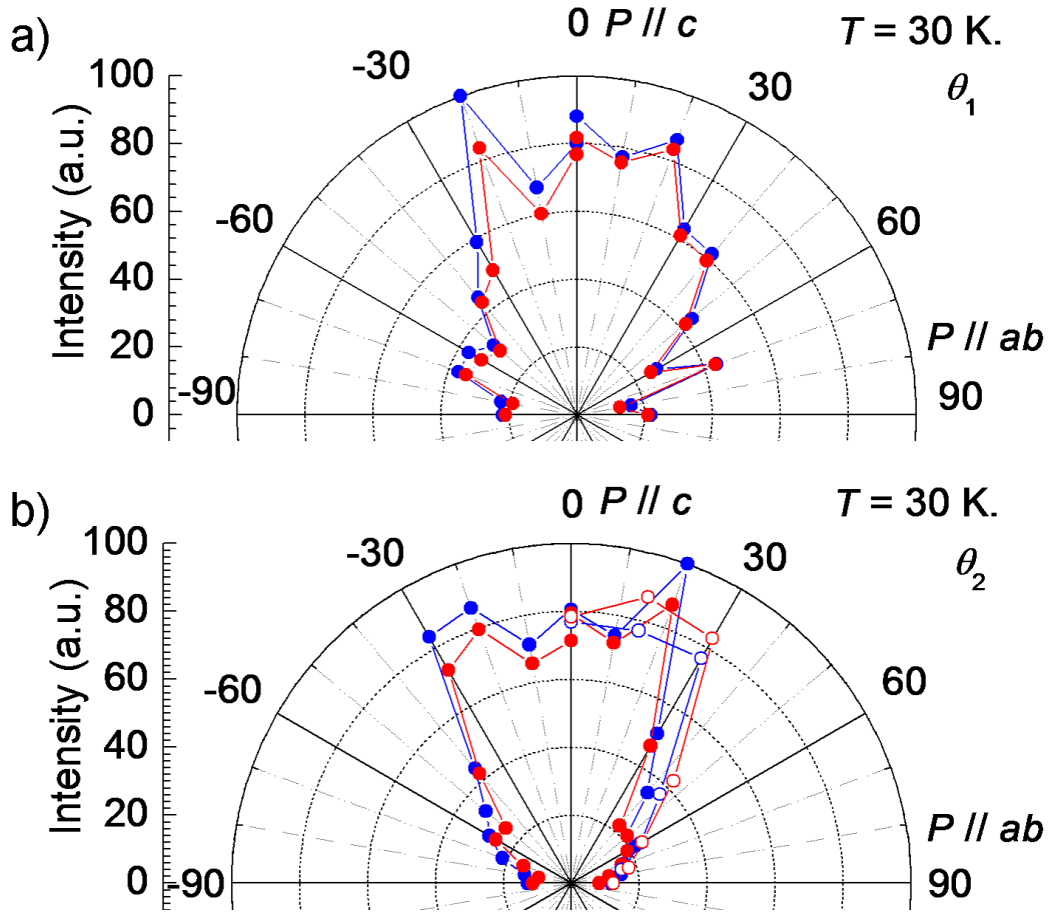


図 4.55 a) θ_1 における放射強度分布 . b) θ_2 における放射強度分布 .

と求まる . ボロメータの平均検出強度 $E(P_0)$ と素子からの放射される平均の電磁波強度 $E(P(\theta, \phi))$ との間は、ボロメータの検出半径 l と試料とボロメータの距離 D によって結び付けられる . このとき、クライオスタットからの放射時の窓損を 0.8、チョッパーによる減衰を 0.5 とした . ここから、下記の式が導ける .

$$E(P_0)[\text{nW}] = E(P(\theta, \phi)) \times 0.8 \times 0.5 \times \frac{\pi l^2}{2\pi D^2} [\text{nW}] \quad (4.4)$$

最終的にこの単位立体角当りの平均強度 $E(P(\theta, \phi))$ を半球の立体角の因子 2π で乗ずることで素子全体からの発振強度 P_{total} が求まる . ボロメータの検出半径 $l = 6.35 \text{ mm}$ 、試料とボロメータの距離 $D = 150 \text{ mm}$ を代入すると最終的に試料直上での検出強度 $V_{rms}(0, \phi)[\text{mV}]$ に対して

$$P_{total}[\mu\text{W}] = 1.26 V_{rms}(0, 0)[\text{mV}] \quad (4.5)$$

と求まる . 通常、 V_{rms} の測定の際には導波管を用いているが、発振強度の算出は、導波管がない場合の発振強度を用いる必要がある . これらの条件を加味し、本研究では $30 \mu\text{W}$ レベルの高強度発振の実現に成功したと見積もることが出来た .

4.5.3 新奇高効率高強度発振現象の発見と発振スペクトル

試料# 081219 の詳細な電流-電圧測定から、非常に発振効率が高く、通常の 6 倍程度高強度の発振に成功した。発振状態での電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) を図 4.56 に示す。リターンブランチの $I = 27$ mA で超伝導状態にリトラッピングされた後、印加電圧が大きく上昇する。その後、リトラッピング領域中の特定の電流-電圧状態に到達することで、非常に高強度の発振が $V = 0.645$ V 近傍に確認された。強度は 80 mV 程度で、強度の検出角が 70° にあることを考えれば、驚異的である。同一の電流-電圧状態を実現することで、この発振は再現する。発振領域の拡大図を図 4.57 に示す。 70° での発振強度は、矩形型試料の場合、通常高強度が得られる試料を用いても、10 ~ 20 mV 程度である。電流-電圧特性と発振強度を通常の発振現象の場合、それぞれ青とオレンジ、新奇高効率励起状態が確認された場合を黒と赤でそれぞれ示す。 $I = 18$ mA で超伝導状態にリトラッピングされ、通常は $V = 0.60$ V まで飛んでしまうが、特定の電流-電圧領域 ($V = 0.633 \sim 0.652$ V, $I = 16.5 \sim 18$ mA) に到達することで高強度高効率発振する。IR 型で、かつ、内側の特定ブランチにおける発振のため、再現するのは極めて難しい。2 つの発振の FT-IR スペクトル測定の結果を図 4.58 に示す。新奇高効率高強度発振からのスペクトルが赤線、通常の発振のスペクトルがオレンジ線にそれぞれ対応する。下記、2 つの特徴が挙げられる。

1. 新奇高効率高強度発振は発振周波数が通常のメサ頂部で規定される発振周波数よりも低い。
2. 新奇高効率高強度発振のスペクトルの線幅は、同一の試料にも係らず、通常より狭くなっている。

高強度発振では、印加電圧が突然、減少しているため、印加電圧の変化が発振周波数を反映している可能性がある。Bi2212 の屈折率を 4.2 として通常の発振周波数が、490 GHz とメサの頂部の幅 ($72.9 \mu\text{m}$) を仮定した場合の周波数 490 GHz と非常に良く一致しているのに対し、新奇高効率高強度発振現象は、メサ底部の幅 ($81.9 \mu\text{m}$) を節とした場合に導かれる周波数 436 GHz と良く一致する。ここからメサ底部の幅を節とした共振モードが励起されることで、強力な発振が得られたと理解できる。同一の試料からの発振にも係らず、線幅が変化したことは、個々のジョセフソン接合の結合を考える上で重要な実験結果である。また、同時バイアスしたメサからの発振スペクトルも今回の高強度発振と同程度の 14 cm^{-1} 程度の発振周波数、狭いスペクトルの線幅を持っている。両者の間に何らかの相関があるとする、その解明がメサ内部での電磁場の発振機構や発振の高効率化に対する重要な示唆を与えている可能性がある。

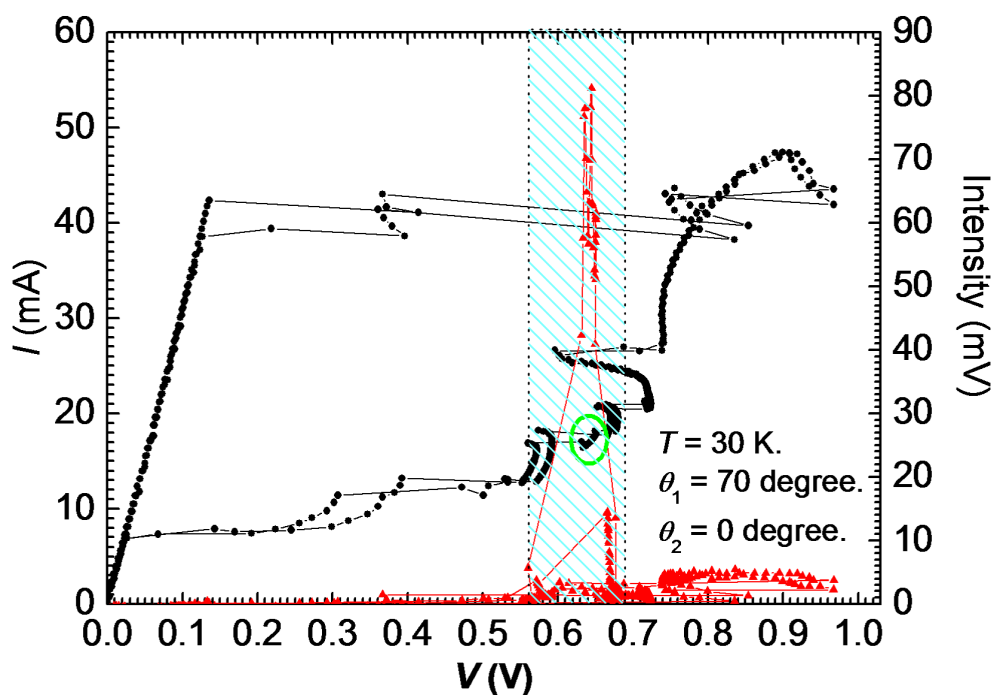


図 4.56 #081219 の電流-電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) .

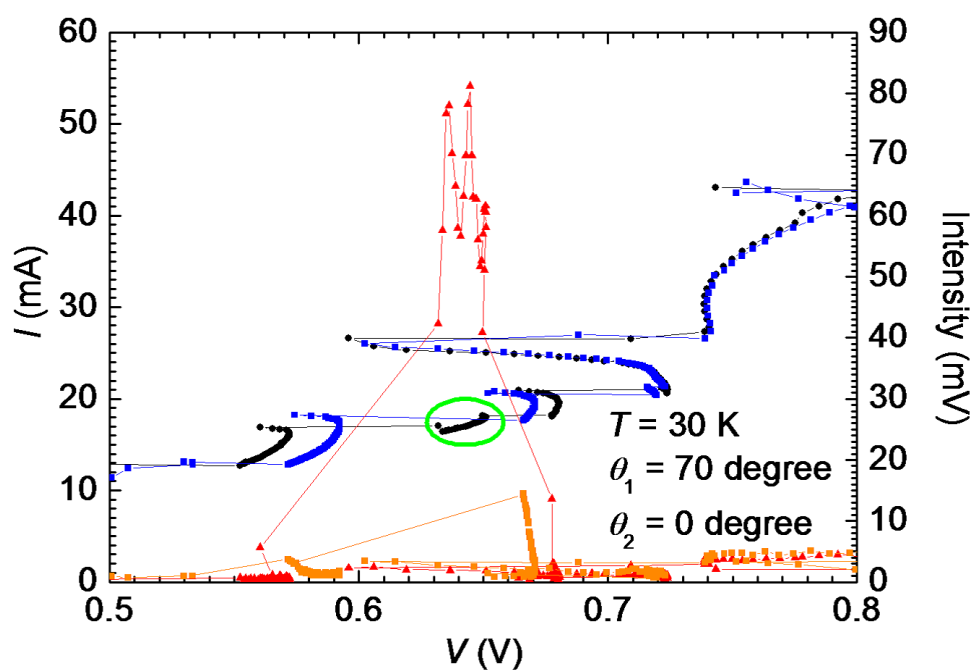


図 4.57 高効率発振領域の電流-電圧特性と発振強度の拡大図．緑の で囲んだ特定のブランチで高効率の発振が生じる．

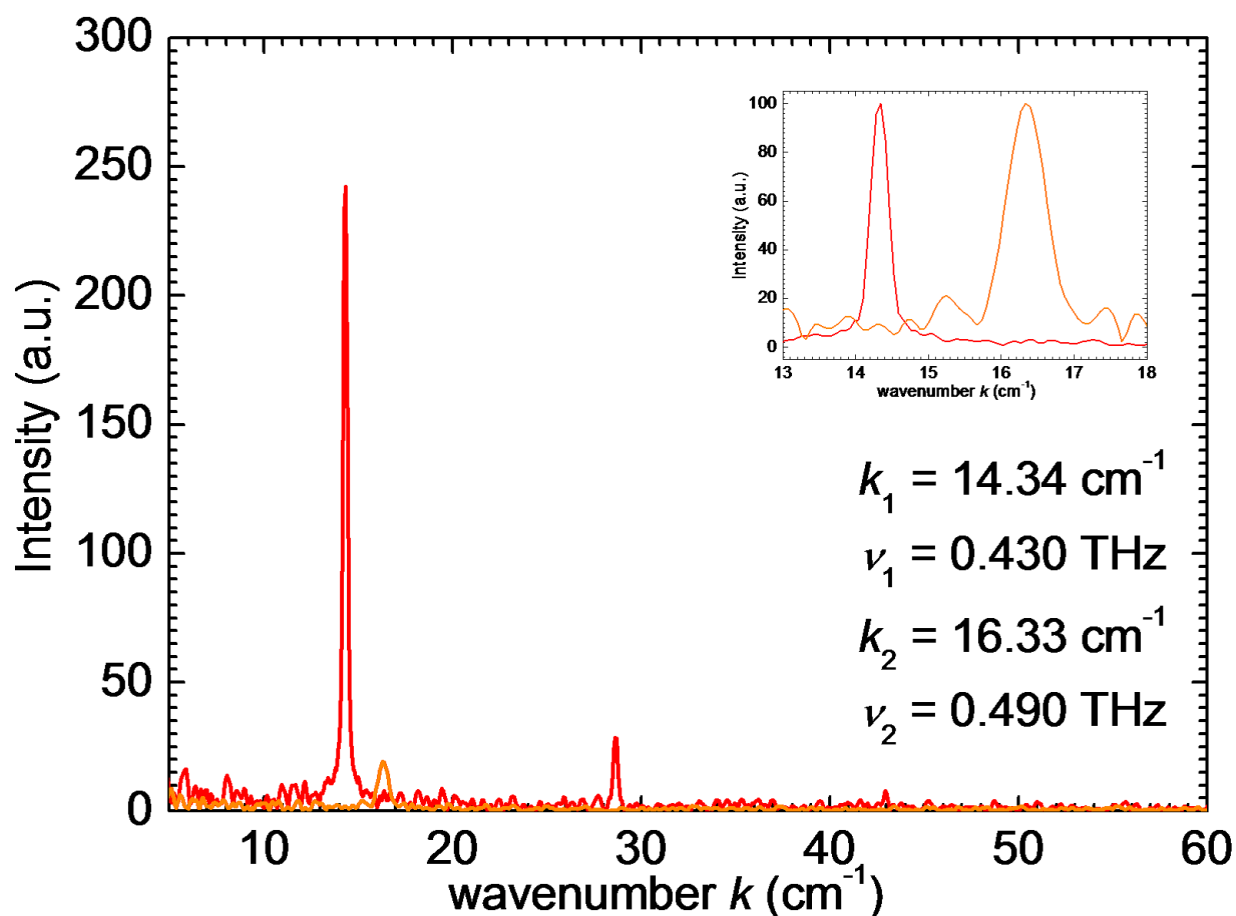


図 4.58 赤は今回初めて得られた高効率発振の分光スペクトル、オレンジは通常の本# 081219 からみられる発振スペクトルを示す。挿入図はピーク強度で規格化しており、2つの発振の線幅が大きく異なることが分かる。

4.6 発振強度、周波数の磁場依存性

次にテラヘルツ発振への磁場効果の測定結果を述べる。現在では、空洞共振との兼ね合いに因る発振実験が主流であるが、電磁波の発振現象と磁束状態は極めて密接に関係しており、発振の強度と磁場の関係は大変重要であると考えられている。Welpらは空洞共振によって発振が生じる試料に磁場を印加し、発振強度が磁場により単調に抑制されることを示した [59]。本研究では、発振強度の増大した試料を用いて、発振と印加磁場の関係を明らかにした。印加磁場角度による強度変化、 c 軸、 ab 面のそれぞれの角度での発振強度の磁場依存性、磁場印加によるスペクトル変化、磁場による発振強度の時間スケールでの動的な制御を順に示す。Welpらの実験に比べ、試料加工技術の進歩などにより、高強度の発振が安定して得られる試料及び、保存法を確立した点が優位であり、高強度発振のため、磁場に対する応答が Welpらの実験に比べより顕著に現れることが期待できる。

4.6.1 印加磁場角度による発振強度変化

Bi2212 は印加磁場の方向によりパンケーキ磁束 ($H//c$) やジョセフソン磁束 ($H//ab$) といった特異な磁束状態を実現することが知られている．空洞共振による高強度発振が得られる試料を用いて、印加磁場角度を変えることで、発振強度がどのように変化するか調べた．

発振強度の印加磁場角度依存性測定の大略を図 4.59 に示す．電磁波検出器であるボロメータの角度を固定し、試料直上からの角度を 0° として、印加磁場角度 θ_H を定義する．このとき、 $\theta_H = 0^\circ$ は、 $H//c$ を、 $\theta_H = 90^\circ$ は、 $H//ab$ となる．マグネットの回転ステージにより磁場の印加角度を調整した．

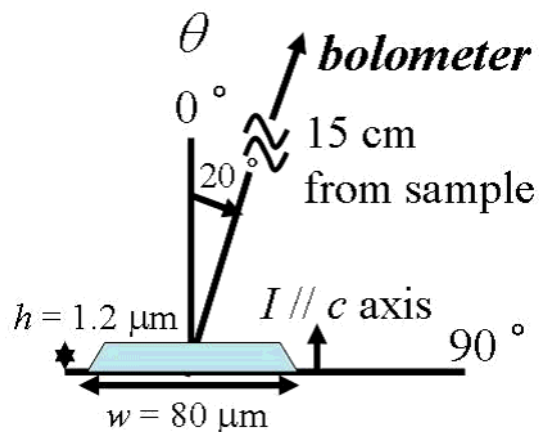


図 4.59 発振強度の印加磁場角度依存性実験の大略図．

印加磁場は $H = 5.6$ Oe と非常に微弱であり、素子全体の電流-電圧特性に大きな違いはみられない．しかし、発振強度には顕著な影響が現れた．図 4.60 に、発振領域の電流-電圧特性と発振強度の拡大図を示す．印加磁場角度が ab 面から c 軸へと変化する過程で発振強度が大きく抑制される．発振強度の印加磁場角度依存性を図 4.61 に示す．黒線は 0 磁場下での発振強度である．磁場印加角度に因る、発振強度の変化を赤線で示す．磁場が ab 面内に印加された際に微弱な発振強度の増強が見られるほかは、発振強度は全般に磁場の印加と共に減少した． c 軸方向に磁場が印加された場合、発振強度抑制の効果は特に顕著である．

このような磁場応答の異方性は初期の Welp らの報告では見られなかった．この理由としては、やはり本研究で用いたメサ試料の発振強度が従来に比べ、強くなったことが重要であったと考えられる．ボロメータはバックグラウンドとして、熱輻射も信号として検出する．背景輻射の揺らぎにより、低強度の発振強度の評価は困難になる．発振の高強度化により、顕著に磁場の印加角度に対する異方性が検出できた．

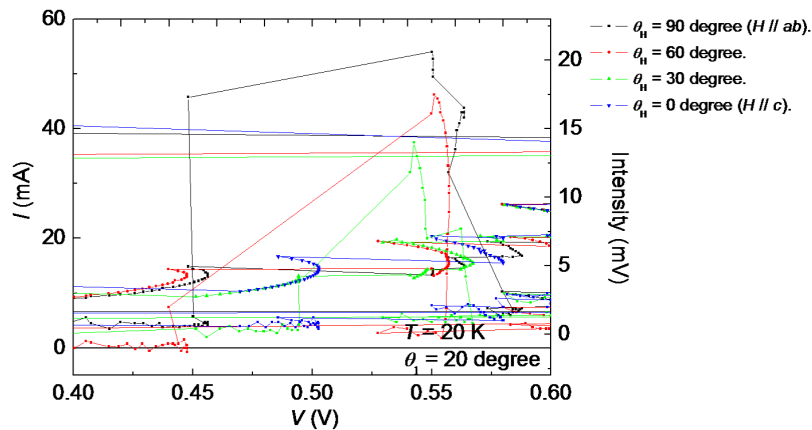


図 4.60 印加磁場角度変化に対する電流-電圧特性の発振領域拡大図 .

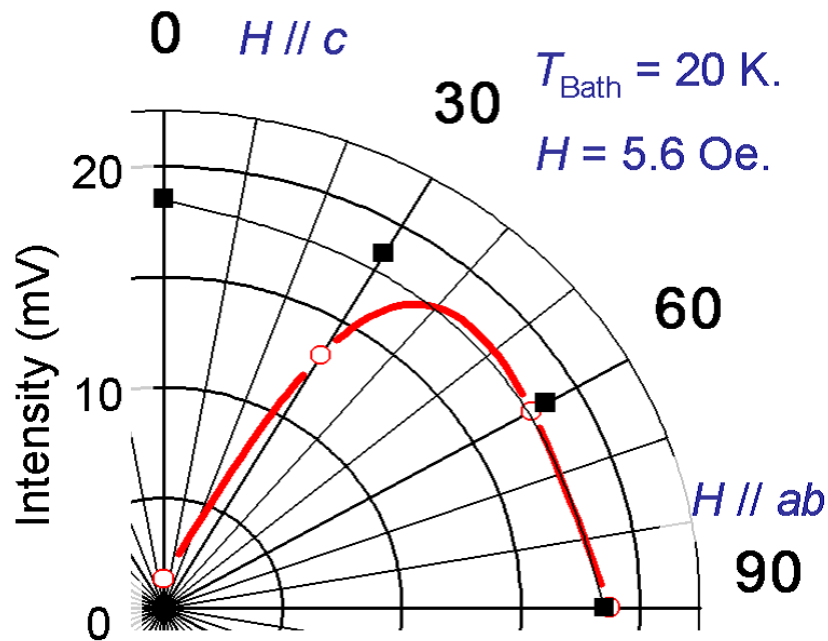


図 4.61 発振強度の印加磁場角度依存性 .

4.6.2 発振強度の印加磁場強度依存性

Bi2212 は結晶構造そのものの巨大な異方性を反映し、渦系の配置に関しても磁場を c 軸に平行に印加した場合と ab 面内に平行に印加した場合で、それぞれパンケーキ磁束、ジョセフソン磁束と異なる渦系状態を取ることが知られている。発振強度の印加磁場角度依存性についても、 ab 面内と c 軸方向で顕著な異方性が確認された。ここでは、 c 軸方向と ab 面方向のそれぞれに平行に磁場を印加した場合の、発振強度の印加磁場強度依存性を測定した。印加磁場強度は $0 \text{ Oe} \leq H \leq 230 \text{ Oe}$ である。

図 4.62、4.63、4.64、4.65、4.66、4.67 に印加磁場、 $H = 3.6 \text{ Oe}$ 、 28.3 Oe 、 35.4 Oe 、 89.7 Oe 、 115.4 Oe 、 151.1 Oe で ab 面内に磁場を印加した場合の電流-電圧特性と発振強度を示す。試料サイズが $l = 400 \mu\text{m}$ で

あることから、 ab 面内に磁場を印加した場合にジョセフソン接合一層当りに 1 つ磁束が侵入する磁場は、 $H_0 = 65 \text{ Oe}$ と求まる。臨界電流のフラウンホーファ型の回折パターンはみられなかった。これは、十分な磁場角度のアライメントが取れていないこと、試料サイズが Kleiner らの近似式による固有接合系のジョセフソン侵入長に比べ長いこと、などが、その理由であると考えられる。印加磁場のアラインメントは、超伝導転移温度直下での磁場中での抵抗の角度依存性から求め、その精度は $\pm 0.5^\circ$ である。

磁場印加がない場合、発振強度は 18 mV 程度であるが、 ab 面に平行に磁場を印加すると、35.4 Oe で 21 mV 程度まで最大発振強度が増大する。この磁場は、 $\Phi_0/2$ に対応する。更に印加磁場を大きくすると、89.7 Oe 程度で一旦 10 mV 程度まで弱くなった発振強度が 115.4 Oe 程度で 16 mV と再び大きくなる。印加磁場が 151 Oe を超えると、発振強度は、ほぼ 0 になる。230 Oe でも強度は 0 である。

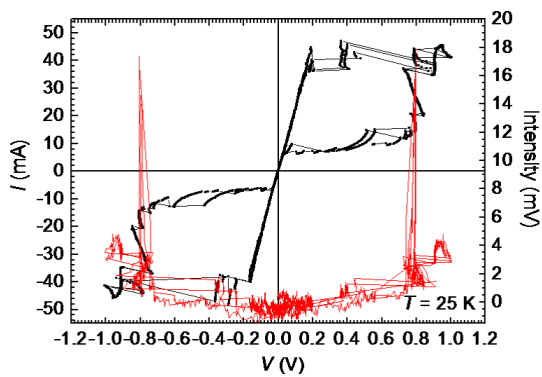


図 4.62 $H_{ab} = 3.6 \text{ Oe}$ における電流電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)。

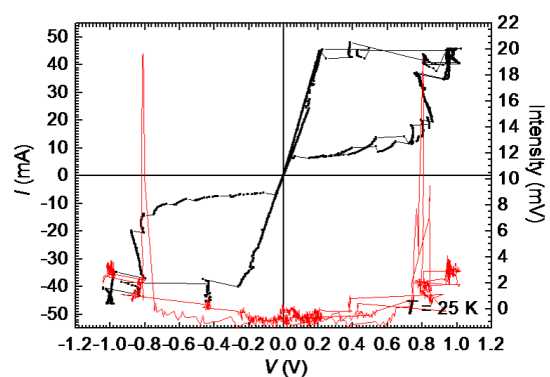


図 4.63 $H_{ab} = 28.3 \text{ Oe}$ における電流電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)。

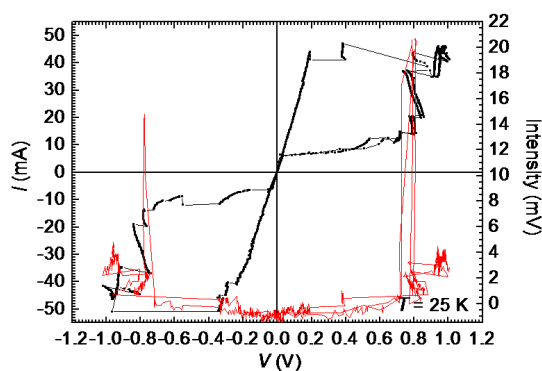


図 4.64 $H_{ab} = 35.4 \text{ Oe}$ における電流電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)。

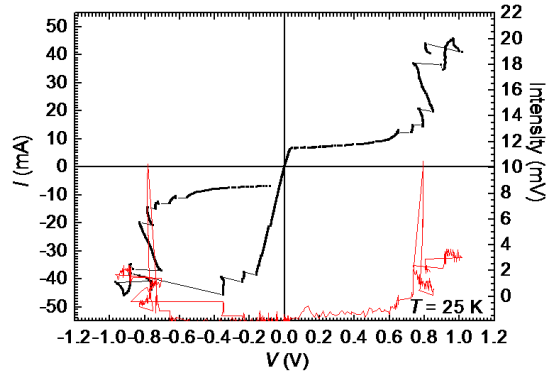


図 4.65 $H_{ab} = 89.7 \text{ Oe}$ における電流電圧特性 (黒) と発振強度 (赤)。

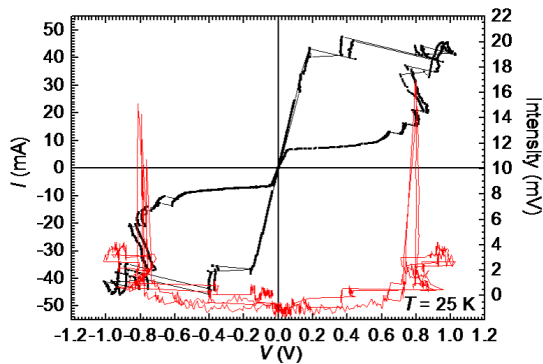


図 4.66 $H_{ab} = 115.4$ Oe における電流電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) .

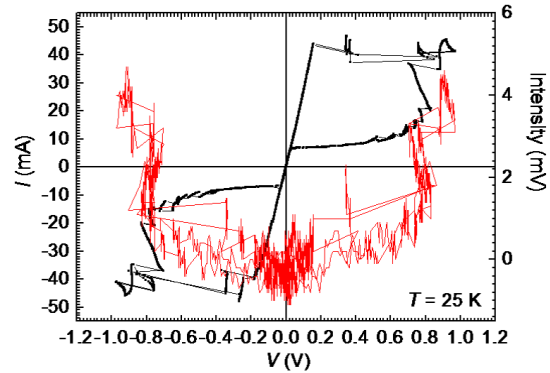


図 4.67 $H_{ab} = 151.1$ Oe における電流電圧特性 (黒) と発振強度 (赤) .

$H // ab$ 及び、 $H // c$ における発振強度の印加磁場強度依存性を図 4.68 に示す．一定磁場中で複数回、試料の電流-電圧特性と発振強度を測定し、各磁場での正負それぞれのブランチの最大強度を実験値としてプロットした．また、応答を比較するため、強度は 0 磁場での強度により規格化した．図 4.68 中に示された角度の表記はボロメータの検出角に相当する．発振強度の印加磁場角度依存性の実験同様、 $H // ab$ と $H // c$ で発振強度は非常に異方的に振舞う．

特に、 ab 面内に磁場を平行に印加した場合、最大で発振強度が 20 % 程度増大した．しかしながら、期待した発振強度の顕著な増大効果は見られなかった．また、115 Oe 程度で強度にピークを持つようにみえるが、印加磁場の強度を磁石の距離によって制御しているため、その近傍での特性の詳細は明らかでない．

$H // c$ で発振強度が非常に強く抑制される．超伝導性の強い CuO_2 層にパンケーキ磁束が侵入することで、メサに誘起される空洞共振のモードが阻害されるのではないかと考えられる．また、磁場を印加すると、試料の電流-電圧特性は高電圧-低電流へと若干のシフトが見られる．この電圧の変化が発振を阻害した可能性もある．

ab 面内の実験においては、印加磁場の角度の精度が非常に重要であるが、今回の実験精度は $\pm 0.5^\circ$ である．この値は超伝導転移近傍における抵抗値の角度依存性の実験より求めた．120 Oe 近傍の発振強度のピークはこの様な磁場角度の精度の下、得られたデータであり、その予備実験として行った磁場のアライメント制御を目視のみで行った実験結果にはこのような強度のピーク効果は現れなかった．

4.6.3 発振周波数の印加磁場強度依存性

次に、発振状態に電流-電圧状態を保持し、その状態で ab 面内に、徐々に磁場を印加することで、発振スペクトルの磁場印加による変化を評価した．図 4.69 にスペクトルの印加磁場強度依存性を示す．発振周波数は磁場の有無に依らずほぼ一定であり、線形も変わらない．その一方で、発振強度は単調に減少した．一定磁場下での結果を考えると、各磁場で最適な電流-電圧状態が変化している可能性もある．

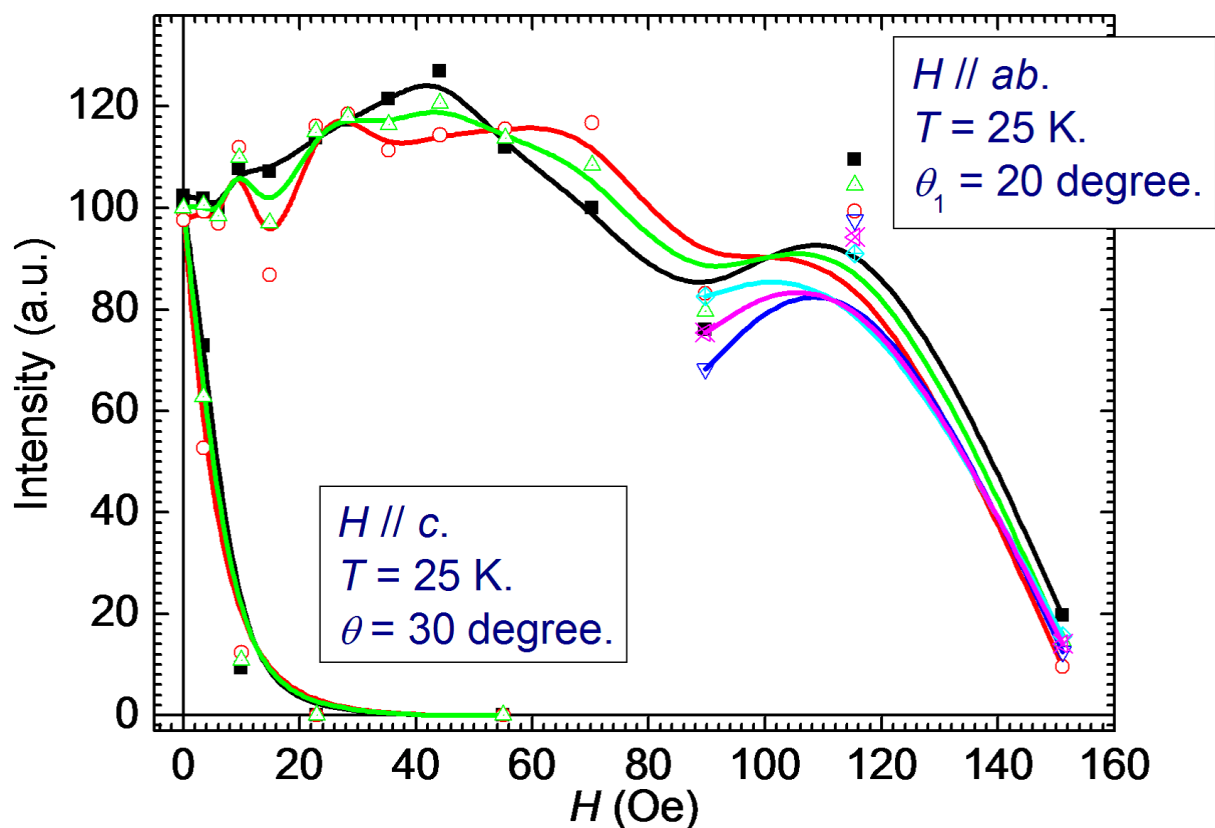


図 4.68 発振強度の磁場依存性 .

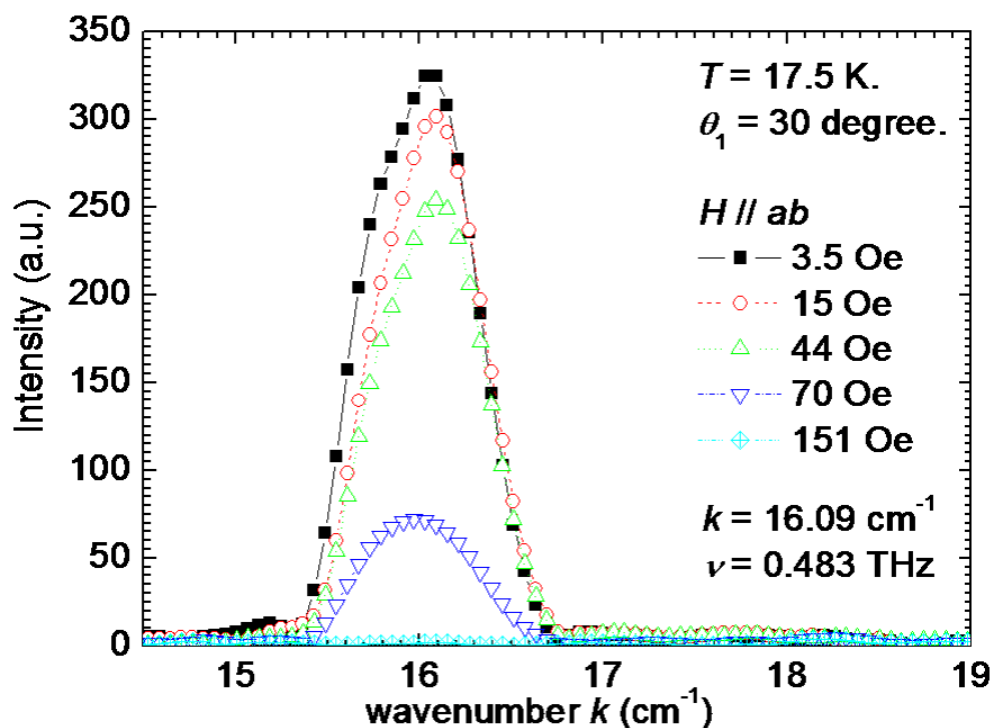


図 4.69 発振スペクトルの磁場依存性 .

4.6.4 磁場印加による発振強度の時間スケールでの動的な制御

これらの結果から、磁場の印加により、発振強度を制御することが可能であると考えた。実験は発振状態に電流-電圧状態を保持し、外部磁場を導入する。発振強度(赤)、印加電流(緑)、印加電圧(青)の時間依存性(単位:秒)を図4.70に示す。磁場の印加を黄色の矢印で示すが、磁場印加に伴い、発振強度が強く抑制される。磁場を取り除くことで、発振強度はほぼ100%回復する。この変化は可逆的であり、磁場印加によりテラヘルツ発振を動的に時間スケールで制御可能であることを示している。また同様に、図4.71は、発振領域近傍で、印加電圧を微小に変化させた際の発振特性の時間変化を調べたものである。縦軸は上から順に、発振強度(赤)、印加電流(緑)、印加電圧(青)を示し、横軸は時間(秒)である。磁場による印加電流変化は0.1 mAと磁場がない場合の安定な発振が得られる電流変化0.25 mAに比べ十分小さい。一方で、磁場印加による電圧の変化は8~20 mVと磁場のない場合の変化5 mVに比べ大きい。ここから発振強度の抑制が磁場による印加電圧の変化に拠っていると考えられる。

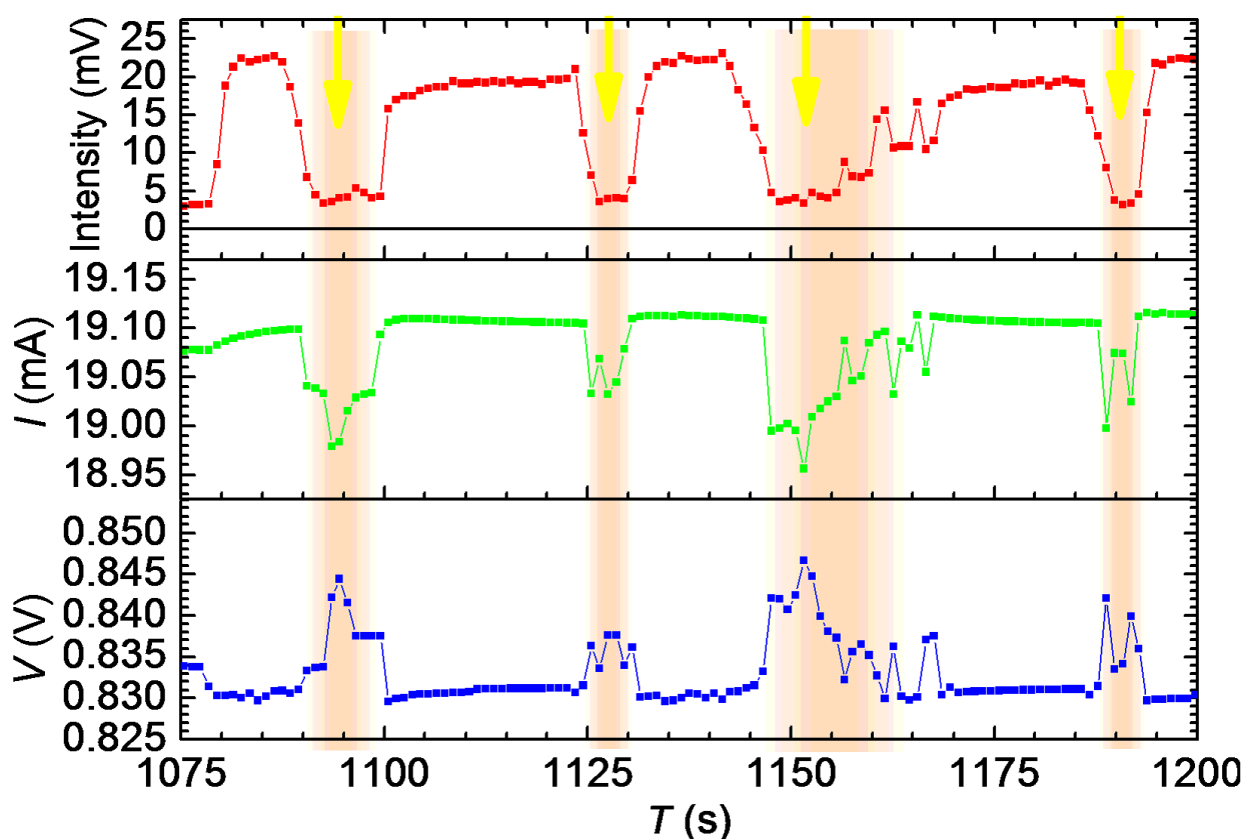


図4.70 磁場による発振の動的制御。磁場の印加を黄色の矢印で示す。

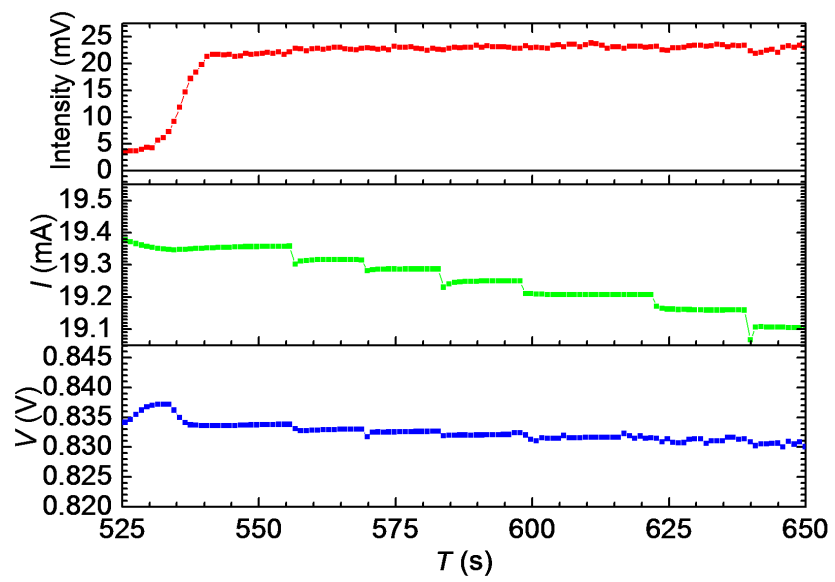


図 4.71 電圧ドライブによる発振の時間変化 .

第 5 章

結論

以下に本研究で得られた結果をまとめる．

1. 素子の加工技術、試料保存技術などの向上により、スペクトルの線幅の広い $30 \mu\text{W}$ レベルの発振を実現した．強度の増大は電流-電圧特性での電流の変位量の増加、ポロメータの電圧変化の熱輻射との比などからも明らかである．これは 2007 年の報告に比べ、60 倍の強度の増強であり、高温超伝導体発振素子として、現在の世界最高強度である (2010 年 1 月 30 日現在)．
2. 発振と磁束の関係を明らかにした．即ち、磁場が c 軸方向成分を持つ場合、弱い磁場で発振は減衰してしまうが、磁場が ab 面内の場合、発振強度は増加する傾向もみられた．磁場の有無で発振周波数に変化は見られなかった．磁場印加で発振強度を秒程度の時間スケールで動的に制御できることを示した．
3. 詳細な電流-電圧特性の測定から、通常の 6 倍程度、高強度の新奇高効率高強度発振現象を初めて実験的に発見した．この発振周波数は、メサ底部を節とする定在波のモードによって理解され、通常メサ頂部を節とする発振に比べ、発振周波数は低周波側へシフトする．

特筆すべき事項としては、従来に比べ 1 桁近く強度の強い発振状態が実現しうることを実験的に初めて実証した点が挙げられる．量子カスケードレーザーや、自由電子ガスレーザーに比べ超伝導固有接合系からの発振は強度が弱いことが大きな問題であった．本研究により、少なくとも数十マイクロワットレベルの発振が実現可能であることを実証した．Klemm、門脇は更なる強度増強の手法を提案しており、今後の研究の進展が期待される．

また、磁場によって発振を動的に制御できる事を示した点も重要である．これは磁場をトリガーに高温超伝導体をテラヘルツスイッチとして利用できることを示しており、また、今後イメージングなどの応用を考える上で、磁場により自在に発振強度を制御できることは有用な技術となる可能性を秘めている．この成果は素子単独の発振強度が強く、かつ安定したため、新しく観測できるようになったと思われる．実験を重ねる過程で高強度の発振素子を、安定に作製する技術を確立したことは、物性測定を行う上で非常に重要である．

超伝導固有接合系は高温超伝導体という対象物質そのものの複雑さによる研究上の困難が付きまとうものの、物理現象として非常に奥が深く、今後の研究の更なる進展が期待される．本研究がその発展に些少なりとも寄与することを望む．

付録 A

R 型、IR 型発振と熱浴との関係

高温超伝導体からの電磁波発振の応用を考える上で、その動作温度の検証は極めて重要である。4.4 節で述べた通り、R 型、IR 型の発振特性と、熱浴の温度との間に顕著な関係があり、この特性制御が、発振の動作可能温度を制御する上で、極めて重要だと考えられる。今回、熱浴との熱伝導の変化が、発振特性に大きく影響するという実験結果が得られたので、報告する。

試料は# 081219 を用いた。メサ試料のクライオスタットへの装着は、接着剤を用いる。図 A.1 に、接着剤の異なる同一試料の電流-電圧特性(黒)と発振強度(赤)を示す。図 A.1(a) は、接着剤として、GE ワニスを用いたものであり、 $T = 12.5 \text{ K}$ での実験結果である。本研究報告のほとんどのデータはクライオスタットへこの GE ワニスを塗布することで固定した試料を用いて得た。準粒子抵抗状態から超伝導状態へトリッピングされる領域で発振する典型的な IR 型であり、 $T < 45 \text{ K}$ で発振する。一方、図 A.1(b) は、銀ペーストによるクライオスタットへの固定の場合であり、 $T = 40 \text{ K}$ で典型的な R 型の発振特性を示す。 $T < 45 \text{ K}$ で R 型発振、 $45 \text{ K} < T < 55 \text{ K}$ で IR 型発振と動作温度範囲が非常に広い。素子そのものに加工を加えることなく、熱浴との接着によって発振特性がある程度変化する。

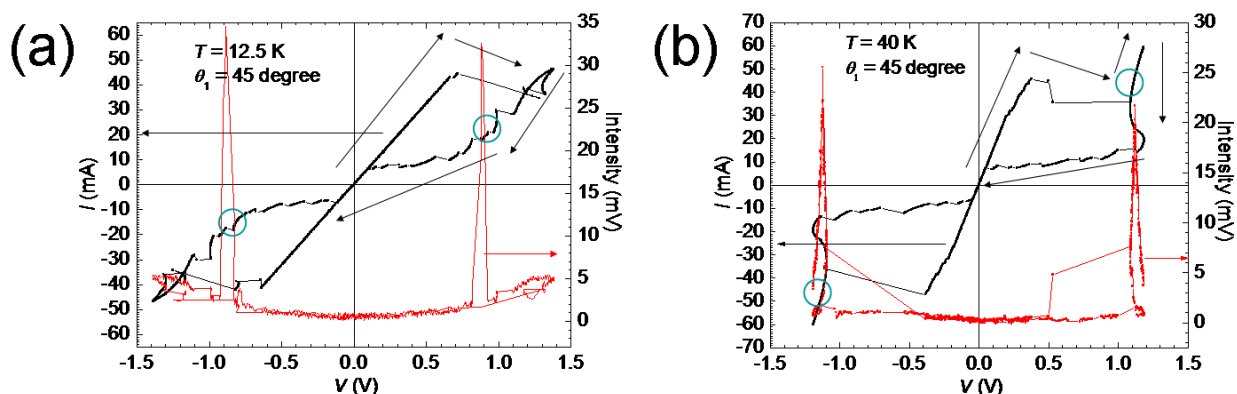


図 A.1 接着剤と発振特性の関係。図は、各条件化での電流-電圧特性(黒)と発振強度(赤)。(a)GE ワニスによるクライオスタットへの固定の場合、典型的な IR 型であり、 $T < 45 \text{ K}$ で発振する。(b)銀ペーストによるクライオスタットへの固定の場合、典型的な R 型の発振特性を示す。 $T < 45 \text{ K}$ で R 型発振、 $45 \text{ K} < T < 55 \text{ K}$ で IR 型発振と動作温度範囲が非常に広い。

参考文献

- [1] B. Ferguson, and X.-C. Zhang, Nat. Mater. **1** (2002) 26, "Materials for terahertz science and technology".
- [2] M. Tonouchi, Nat. Photon. **1** (2007) 97, "Cutting-edge terahertz technology".
- [3] K. Kawase, Opt. Photon. News, **15** (2004) 34, "THz-imaging for drug detection and LSI inspection".
- [4] B. D. Josephson, Phys. Lett. **1** (1962) 251, "Possible new effects in superconductive tunneling".
- [5] I. Giaever, Phys. Rev. Lett. **5** (1960) 464, "Electron tunneling between two superconductors".
- [6] P. W. Anderson, and J. M. Rowell, Phys. Rev. Lett. **10** (1963) 230, "Probable observation of the Josephson superconducting tunneling effect".
- [7] B. D. Josephson, Rev. Mod. Phys. **36** (1964) 216, "Coupled superconductors".
- [8] S. Shapiro, Phys. Rev. Lett. **11** (1963) 80, "Josephson currents in superconducting tunneling: The effect of microwaves and other observations".
- [9] I. Giaever, Phys. Rev. Lett. **14** (1965) 904, "Detection of the ac Josephson effect".
- [10] J. M. Rowell, Phys. Rev. Lett. **11** (1963) 200, "Magnetic field dependence of the Josephson tunnel current".
- [11] K. Schwidtal, and R. D. Finnegan, Phys. Rev. **B 2** (1970) 147, "Maximum dc Josephson current in Pb-PbO_x-Pb junctions".
- [12] W. H. Parker, D. N. Langenberg, A. Denenstein, and B. N. Taylor, Phys. Rev. Lett. **177** (1969) 639, "Determination of e/h , using macroscopic quantum phase coherence in superconductors. I. Experiment".
- [13] D. N. Langenberg, D. J. Scalapino, B. N. Taylor, and R. E. Eck, Phys. Rev. Lett. **15** (1965) 294, "Investigation of microwave radiation emitted by Josephson junctions".
- [14] D. R. Tilly, Phys. Lett. **A 33** (1970) 205, "Superradiance in arrays of superconducting weak links".
- [15] T. F. Finnegan, and S. Wafsten, Appl. Phys. Lett. **21** (1972) 541, "Observation of coherent microwave radiator emitted by coupled Josephson junctions".
- [16] C. Varmazis, R. D. Sandell, A. K. Jain, and J. E. Lukens, Appl. Phys. Lett. **33** (1978) 357, "Generation of coherent tunable Josephson radiation at microwave frequencies".
- [17] P. Barbara, A. B. Cawthorne, S. V. Shitov, and C. J. Lobb, Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 1963, "Stimulated emission and amplification in Josephson junction arrays".
- [18] G. Filatrella, B. Staughn, and P. Barbara, J. Appl. Phys. **90** (2001) 5675, "Emission of radiation from square arrays of stacked Josephson junctions".
- [19] B. Vasilic, S. V. Shitov, C. J. Lobb, and P. Barbara, Appl. Phys. Lett. **78** (2001) 1137, "Josephson-junction arrays as high-efficiency sources of coherent millimeter-wave radiation".
- [20] J. G. Bednorz and K. A. Müller, Z. Physik **B64** (1986) 189, "Possible high T_c superconductivity in the

Ba-La-Cu-O System".

- [21] A. Damascelli, Z. Hussain, and Z.-X. Shen, *Rev. Mod. Phys.* **75** (2003) 473, "Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors".
- [22] P. A. Lee, N. Nagaosa, and X.-G. Wen, *Rev. Mod. Phys.* **78** (2006) 17, "Doping a Mott insulator: Physics of high-temperature superconductivity".
- [23] J. M. Tarascon, Y. L. Page, P. Barboux, B. G. Bagley, L. H. Greene, W. R. McKinnen, G. H. Hull, M. Giroud, and D. M. Hwang, *Phys. Rev.* **B 37** (1988) 9382, "Crystal structure and physical properties of the superconducting phase $\text{Bi}_4(\text{Sr,Ca})_6\text{Cu}_4\text{O}_{16+x}$ ".
- [24] K. Momma, and F. Izumi, *J. Appl. Crystallogr.* **41** (2008) 653, "VESTA: a three-dimensional visualization system for electric and structural analysis".
- [25] C. Michel, M. Hervieu, M. M. Borel, A. Grandin, F. Deslandes, J. Provost, and B. Raveau, *Z. Phys.* **B 68** (1987) 421, "Superconductivity in the Bi-Sr-Cu-O system".
- [26] J. Akimitsu, A. Yamazaki, H. Sawa, and H. Fujiki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L2080, "Superconductivity in the Bi-Sr-Cu-O system".
- [27] H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutomi, and T. Asano, *Jpn. J. Appl. Phys.* **27** (1987) L209, "A new high- T_c oxide superconductor without a rare earth element".
- [28] T. Watanebe, T. Fujii, and A. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 2113, "Anisotropic resistivities of precisely oxygen controlled single-crystal $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$: systematic study on "spin gap" effect".
- [29] R. Kleiner, F. Steinmeyer, G. Kunkel, and P. Müller, *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 2394, "Intrinsic Josephson effects in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ single crystals".
- [30] R. Kleiner, and P. Müller, *Phys. Rev.* **B 49** (1994) 1327, "Intrinsic Josephson effects in high- T_c superconductors".
- [31] H. B. Wang, P. H. Wu, and T. Yamashita, *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 107002, "Terahertz responses of intrinsic Josephson junctions in high T_c superconductors".
- [32] I. E. Batov, X. Y. Jin, S. V. Shitov, Y. Koval, P. Müller, and A. V. Ustinov, *Appl. Phys. Lett.* **88** (2006) 262504, "Detection of 0.5 THz radiation from intrinsic $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ Josephson junctions".
- [33] G. Blatter, M. V. Feigelman, V. B. Geshkembain, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, *Rev. Mod. Phys.* **66** (1994) 1125, "Vortices in high-temperature superconductors".
- [34] G. W. Crabtree, and D. R. Nelson, *Phys. Today* **50** (1997) 38, "Vortex physics in high-temperature superconductors".
- [35] M. Tachiki, T. Koyama, and S. Takahashi, *Phys. Rev. Lett.* **B 50** (1994) 7065, "Electromagnetic phenomena related to a low-frequency plasma in cuprate superconductors".
- [36] T. Koyama, and M. Tachiki, *Solid State Commun.* **96** (1995) 367, "Plasma excitation by vortex flow".
- [37] K. Tamasaku, Y. Nakamura, and S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **69** (1992) 1455, "Charge dynamics across the CuO_2 planes in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ".
- [38] Y. Matsuda, M. B. Gaifullin, K. Kumagai, K. Kadowaki, T. Mochiku, *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 4512, "Collective Josephson plasma resonance in the vortex state of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ".
- [39] K. Inomata, T. Kawase, K. Nakajima, S.-J. Kim, and T. Yamashita, *Appl. Phys. Lett.* **82** (2003) 769, "Junction parameter control of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+z}$ stacked junctions by annealing".

- [40] M. Tachiki, M. Iizuka, K. Minami, S. Tejima, and H. Nakamura, *Phys. Rev.* **B 71**, (2005) 134515, "Emission of continuous coherent terahertz wave with tunable frequency by intrinsic Josephson junctions".
- [41] M.-H. Bae, H.-J. Lee, and J.-H. Choi, *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007) 027002, "Josephson-vortex-flow terahertz emission in layered high- T_c superconducting single crystals".
- [42] H. Murakami, T. Kiwa, M. Miska, M. Tonouchi, T. Uchiyama, I. Iguchi, and Z. Wang, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41** (2002) 1992, "Terahertz pulse radiation properties of a $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ bowtie antenna by optical pulse illumination".
- [43] H. Murakami, Y. Tominari, M. Tonouchi, T. Uchiyama, I. Iguchi, and Z. Wang, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** (2005) 2998, "Investigation of terahertz emission phenomena of high- T_c superconductors".
- [44] L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, C. Kurter, N. Gopalsami, Q. Li, M. Tachiki, K. Kadowaki, T. Yamamoto, H. Minami, H. Yamaguchi, T. Tachiki, K. E. Gray, W. -K. Kwok, and U. Welp, *Science* **318**, (2007) 1291, "Emission of coherent THz radiation from Superconductors".
- [45] S. Tajima, G. D. Gu, S. Miyamoto, A. Odagawa, and N. Koshizuka, *Phys. Rev.* **B 48** (1993) 16164, "Optical evidence for strong anisotropy in the normal and superconducting states in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+z}$ ".
- [46] K. Kadowaki, H. Yamaguchi, K. Kawamata, T. Yamamoto, H. Minami, I. Kakeya, U. Welp, L. Ozyuzer, A. Koshelev, C. Kurter, K. E. Gray, and W. -K. Kwok, *Physica C* **468**, (2008) 634, "Direct observation of terahertz electromagnetic waves emitted from intrinsic Josephson junctions in single crystalline $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ".
- [47] H. Minami, N. Orita, T. Koike, T. Yamamoto, and K. Kadowaki, 2009 年 M2S 国際会議にて発表、"Continuous and reversible operation of Bi2212 based THz emitters just below T_c ".
- [48] H. Minami, I. Kakeya, H. Yamaguchi, T. Yamamoto, and K. Kadowaki, *Appl. Phys. Lett.* **95** (2009) 232511, "Characteristics of terahertz radiation emitted from the intrinsic Josephson junctions in high- T_c superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ".
- [49] 小池隆、南英俊、私信 .
- [50] M. Tsujimoto, K. Yamaki, T. Yamamoto, H. Minami, and K. Kadowaki, 2009 年 M2S 国際会議にて発表、"Terahertz radiation generated from cylindrical mesas of Bi2212".
- [51] N. Orita, H. Minami, T. Koike, T. Yamamoto, and K. Kadowaki, 2009 年 M2S 国際会議にて発表、"Synchronized operation of two serially connected Bi2212 THz emitters".
- [52] H. B. Wang, S. Guenon, J. Yuan, A. Iishi, S. Arisawa, T. Hatano, T. Yamashita, D. Koelle, and R. Kleiner, *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 017006, "Hot spots and waves in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ intrinsic Josephson junction stacks: a study by low temperature scanning laser microscopy".
- [53] K. Kadowaki, M. Tsujimoto, K. Yamaki, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, H. Minami, M. Tachiki, and R. A. Klemm, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 023703, "Evidence for a dual-source mechanism of THz radiation from rectangular mesa of single crystalline $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ intrinsic Josephson junctions".
- [54] S. Z. Lin, and X. Hu, *Phys. Rev. Lett.* **100** (2008) 247006, "Possible dynamic state in inductively coupled intrinsic Josephson junctions of layered high- T_c superconductors".
- [55] T. Koyama, H. Matsumoto, and M. Tachiki, 2009 年 M2S 国際会議にて発表、"Numerical simulations for THz wave emission from high- T_c intrinsic Josephson junctions".
- [56] R. A. Klemm, and K. Kadowaki, arXiv:0908:4104, "Radiation from a Josephson STAR-emitter".

- [57] T. Mochiku and K. Kadowaki, *Physica C* **235-240** (1994) 523, "Growth and properties of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2(\text{Ca}, \text{Y})\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ single crystals "
- [58] K. E. Gray, A. E. Koshelev, C. Kurter, K. Kadowaki, T. Yamamoto, H. Minami, H. Yamaguchi, M. Tachiki, W. -K. Kwok, and U. Welp, arXiv:0901.4290, *IEEE Trans. on Appl. Super.* **19**, (2009) 886, "Emission of terahertz waves from stacks of intrinsic Josephson junctions".
- [59] U. Welp, A. Koshelev, L. Ozyuzer, C. Kurter, M. Tachiki, K. Kadowaki, T. Yamamoto, K. Gray, and W. -K. Kwok, 2009年3月にピッツバーグで開催された米国物理学会会議にて発表(D34 1) "Temperature and field dependence of the emission of terahertz waves from intrinsic Josephson junctions".

謝辞

本研究を遂行する上で、お世話になった方々にこの場を借りて御礼申し上げます。

指導教官である門脇和男教授には、卒業研究から数えて6年間の長きに渡り、研究の全過程において、非常に熱心な指導を頂きました。研究における実験装置などの設備は勿論のこと、研究成果を発表する講演の機会や、会議を通じて増えた知り合いなど、非常に恵まれた環境下で研究に打ち込むことが出来ました。更に、国際会議の運営に関しては、招待講演者の空港から会場までの送迎、会議のエクスクーションのガイドといった貴重な経験を積むことも出来ました。大学院在学の5年間で知り合った方々に、日々、刺激を受けていたように思います。本研究室のみならず、高温超伝導体の渦糸研究の分野においても、常にトップランナーの一人である教授には、本当にお世話になりました。ありがとうございます。

立木昌教授には、ミーティングなどの議論の場で物理現象や実験手法に対して本質的で非常に鋭い質問を頂きました。自らの勉強不足を自覚すると同時に、個人で考えているだけでは、誤った方向に向かってしまいがちな私の物理的なものの考え方を適宜修正して頂きました。ありがとうございます。

2008年に京都大学に転出された掛谷一弘准教授には、メサの作製法などの実験技術は勿論のこと、会議の運営や、学会活動、更には進路の相談まで、大変お世話になりました。この場を借りて御礼申し上げます。

南英俊講師には、測定技術は勿論、実験を行う全過程において、多大な助言、ご指導を頂きました。南講師との議論の中で発振現象に関する理解が深くなることが多々あり、また、研究の進捗が滞った際にも適切な助言を頂きました。不出来な学生でしたが、根気強く指導して頂いたことに深く感謝いたします。

柏木隆成助教には、研究室の運営などでお世話になりました。また、連日徹夜の、その研究姿勢は大変刺激になりました。

山本卓博士には世界最高品質のBi2212単結晶試料を快く研究に使用させて頂きました。高温超伝導体からの電磁波発振は加工に用いる単結晶試料の品質に拠るところが大変大きいです。その意味で、この分野において世界最高の研究環境で研究に取り組めたのは、山本博士の育成した超良質の単結晶の寄与が非常に大きいです。ありがとうございました。

小島誠治教授には、学部在学時に早期卒業の申請に際して適切な指導を頂きました。その後も、貴重な助言を幾度となく頂きました。本当にありがとうございます。

大塚洋一教授、神田晶申請師には、クリーンルームの使用許可を頂き、学会前の多忙な時期にも装置の使用を快く認めていただきました。また、試料加工上、必要不可欠なフォトリソグラフィー用のマスクを電子線リソグラフィーで作製して頂きました。こうした協力がなければ、本研究の進展は困難だったと思います。本当にありがとうございました。

服部利明准教授には、本稿の作成に関して、適切な助言を頂きました。ありがとうございます。

物質材料研究機構の茂筑高士博士には、学士課程から6年間に渡り、物質合成、構造解析に関して指導

して頂きました。また、ティーチングアシスタントの際の丁寧な講義は今後の参考にしたいと思います。

大阪府立大学の林伸彦講師には、学会活動を始め、進路の相談など、公私に渡りお世話になりました。ありがとうございます。

門脇研究室秘書の阿部えみ子さんには、出張、会議運営などの度に尽力頂き、大変お世話になりました。この場を借りて御礼申し上げます。

東京大学の横山正史博士、佐野浩孝博士、大阪府立大の久保田大地さん、東京工業大学の鈴木啓久さん始めとして博士課程で知り合った多くの同年代の方々とは、研究に関する話や、物理に対する熱い思い、将来の進路の話などで盛り上がり、私の研究、人生などのものの捉え方も大きく影響を受けました。本当にありがとうございます。

久保結丸博士、塚田真也博士、津村公平さん、始めとする筑波大数理物質科学研究科の院生には、公私共に、お世話になりました。異なる研究室の博士課程在学者同士、非常に有意義な話が出来ました。

門脇研究室には6年間在籍致しました。D. Hai P. 博士、渡辺学博士、安田潤平さん、中野敦司さん、佐藤浩一さん、山崎拓也さん、朝田高志さん、郡昌志さん、清水夏美さん、村田圭さん、川又晃平さん、鍋本岳史さん、西村武徳さん、福井一樹さん、安永紳也さん、橋本慎也さん、斉藤隆さん、佐藤峻さん、生井瑞穂さん、山口勇人さん、辻本学さん、持地高紘さん、折田尚樹さん、小池隆さん、呉屋朝樹さん、出口幸太さんには大変お世話になりました。特に、同期の橋本慎也さんには、研究室の運営などで、後輩の辻本学さんには、試料作製や研究内容についてお世話になりました。辻本学さんは、次年次以降、博士課程に進学されるとのことですので、一層のご活躍を祈っております。皆さまのお陰で充実した6年間を過ごすことが出来ました。本当にありがとうございます。

2009年4月より、日本学術振興会から特別研究員として支援を頂きました。最後の1年間は金銭面の心配をすることなく、研究に打ち込むことが出来ました。この場を借りて御礼申し上げます。

最後に、博士課程への進学を応援し、金銭的に援助し、また精神的に支えてくださった八巻昭宏さん、八巻夕子さん、八巻富子さんに心から感謝いたします。皆さんの理解がなければ、博士課程への進学は実現しなかったと思います。