

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 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の単独メサ構造による
テラヘルツ波発振現象に関する研究

北村 健郎

物性・分子工学専攻

目次

| | | |
|-------|--|----|
| 第1章 | 序論 | 1 |
| 第2章 | 研究背景 | 3 |
| 2.1 | ジョセフソン接合 | 3 |
| 2.1.1 | ジョセフソン効果 | 3 |
| 2.1.2 | 電流 – 電圧特性 | 7 |
| 2.1.3 | 電磁波の発振 | 10 |
| 2.2 | 高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ | 11 |
| 2.2.1 | 結晶構造 | 11 |
| 2.2.2 | 物質パラメータ | 13 |
| 2.3 | $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ による THz 波発振現象 | 15 |
| 2.3.1 | 従来型ジョセフソン接合による高周波発振素子との比較 | 15 |
| 2.3.2 | 高温超伝導体によるコヒーレントな THz 帯電磁波発振の発見 | 16 |
| 2.3.3 | THz 波発振機構 | 19 |
| 2.3.4 | 放射分布特性 | 22 |
| 2.3.5 | ブランチ構造 | 23 |
| 2.3.6 | メサ構造の温度分布 | 25 |
| 2.3.7 | 高出力化の試み | 30 |
| 第3章 | 実験方法 | 33 |
| 3.1 | 単独メサ構造の作製方法 | 33 |
| 3.1.1 | 単独メサ構造作製の全体像 | 33 |
| 3.1.2 | 各種電極材料における特性 | 36 |
| 3.2 | 測定方法 | 40 |
| 3.2.1 | 電流 – 電圧特性と発振特性 | 40 |
| 3.2.2 | 放射分布 | 41 |
| 第4章 | 単独メサ構造によるテラヘルツ波発振 | 42 |
| 4.1 | 抵抗 – 温度特性、電流 – 電圧特性 | 42 |
| 4.2 | 発振特性 | 45 |
| 4.2.1 | 発振周波数特性 | 52 |
| 4.2.2 | 発振出力の見積り | 53 |
| 4.3 | 結論 | 56 |
| 第5章 | 単独メサ構造のサイズ効果 | 57 |
| 5.1 | 幅方向の影響 | 58 |

| | | |
|-------|-------------------|----|
| 5.2 | 長さ方向の影響 | 61 |
| 5.3 | 結論 | 70 |
| 第 6 章 | まとめ | 71 |

第1章 序論

テラヘルツ (THz) 波とは、厳密な定義は存在しないが電波と赤外線の間のおよそ 0.1 GHz-10 THz の周波数帯域の電磁波である。THz 帯の電磁波は多くの原子や分子の振動モードが存在する周波数帯であるため、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ている。しかし、近年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、THz 帯域の電磁波応用は未開拓のまま残されていた。

最近では半導体を使った THz 波発振器の開発が盛んに行われている。その一方で、高温超伝導体をうまく活用した全く新しい THz 帯域の電磁波発生法が 2007 年に筑波大学とアルゴンヌ国立研究所の共同研究により提案、実証された。すなわち、超伝導性の CuO_2 層と絶縁性の Bi_2O_2 層が交互に積層した結晶構造をもつ高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) の高品質単結晶をメサとよばれる台地状の形に加工し、積層構造に垂直に直流電圧を印加することにより、THz 波を発振させることができたのである。この THz 波発振器の特徴はコヒーレントかつ連続発振が可能である点にあり、また、一つの素子から得られる周波数が大きな周波数幅で可変であること、さらに素子が安定で小型であることから、冷却を要するデメリットを抱えながらも今後、広範な応用が期待されている。

これまでの実験事実として、発振現象の基本的な原理は交流ジョセフソン効果とメサの形状をつくることによって得られた空洞共振効果によって説明される。第一の原理として交流ジョセフソン効果によって接合内に交流超伝導電流が発生し、第二の原理としてメサ構造の空洞共振効果によって増幅効果が得られるのである。この二つの効果を考慮することにより多くの現象を説明することができる。しかし現状では、周波数の上限は本研究以前は 1.0 THz 未満に留まり、1.0 THz を超えることはできていなかった。周波数の上限を決定しているものは、技術的な問題であるのか、あるいは原理的な問題があるのか実験的な検証が必要とされていた。また、発振出力の上限についても未だに不明点が多く、3つの素子をアレイ化することによって 2013 年に $610\ \mu\text{W}$ もの出力に到達したものの、単一素子では $\sim 30\ \mu\text{W}$ に留まっている。発振出力 P を決定する機構は、接合数を N とすると $P \propto N^2$ のみが知られているが、接合数以外のパラメータはわかっていない。発振線幅に関しても、実験報告が 2012 年からあるものの発振機構との関係は未だに不明である。この THz 波発振器の高性能化は急務であることから、これまでに理論、実験の双方から活発に研究が行われ一定の成果が生み出されてきたが、応用のために一層の高周波化、高出力化が強く必要とされている。

本研究では、以下に示す 2 つのテーマに取り組んだ。第一の研究テーマは、先行研究で高出力発振素子として提案され、数件の実験的報告があった単独メサ構造を改めて作製し評価することである。第二のテーマは、その単独メサ構造を使用して発振特性に対する素子形状の影響を調べることである。

第二章に研究背景として、高温超伝導体による THz 波発振の基本的な原理、発振現象の

発見以前の取り組み、さらに本研究に強く関係する最近の重要な研究成果を振り返る。第三章には実験方法として、本研究で採用した単独メサ構造の作製方法と測定方法を述べる。

第四章の内容は以下の通りである。第一の研究では初めに、素子の作製工程から見直し、再現性の高い単独メサ構造を作製する手法を確立することを目指した。単独メサ構造と呼ばれる素子構造においては高い発振出力が得られるとされ、また高い排熱効果が期待できることから高周波発振が可能になると考えられる。本研究では先行研究を上回る高出力発振と高周波発振を目指し、矩形単独メサ構造を作製し、評価を行った。その結果として、単一素子に印加できる電圧としては非常に大きい 5 V を超える電圧がかかり、世界で初めて 1 THz を超える発振周波数を観測した。観測できた周波数範囲は 0.29-1.08 THz であり、 $\pm 58\%$ と過去最大範囲で周波数可変であることがわかった。さらに発振出力は最大で $\sim 20\ \mu\text{W}$ と先行研究と同程度であったが、73 K の温度まで観測可能でこれも最高記録であった。このように、少なくとも発振周波数と発振が起こる温度に関しては、排熱効果を高めることで大きく改善することができた。一方で、発振出力については従来記録を更新することはできなかった。これらの内容は、論文 [T. Kitamura *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 202603 (2014).] にまとめられている。

単独メサ構造によって素子特性を改善することができたものの、発振周波数と出力の決定因子については不明な点が多く残っていた。基本的な発振原理は、交流ジョセフソン効果と空洞共振効果によって発振が起こると説明されるが、それでは周波数の上限は何で決まっているのか、出力は接合数以外のどのようなパラメータで決まるのかなど、本質的に重要と考えられる事柄であっても有意な考察や実証がなされてこなかった。そこで第二の研究として、基本的なパラメータであるメサの大きさが発振周波数と発振出力にどのように影響しているかを調べた。

第五章の内容は以下の通りである。第二の研究ではまず、異なる大きさの矩形単独メサ構造を作製し、詳しく周波数測定を行った。これによって、従来型メサ構造で得られていた結果と同じように、高出力発振は素子の幅のみに依存する TM(1,0) モードで起こることを明らかにした。

次に、集束イオンビーム (FIB) 加工によって単独メサ構造の長さ l (面積 S) を小さくしていった場合の発振特性の変化を FT-IR 分光器による詳細な周波数測定によって調べた。結果として、アンテナ理論の関係式を考慮することで、最も発振出力が高くなる TM(1,0) モードにおける発振出力は $P \propto IN^2l^2$ と表されることがわかった。ここで、 I は印加電流、 N は発振に寄与する接合数である。しかし他の周波数については不明であり、発振出力を規定するパラメータを調べるためには追加実験が必要である。

本研究では、メサの長さ l を FIB によって逐次的に加工し、各サイズにおいて THz 波発振を検出し、逐次的な THz 波発振特性の変化を調べることに成功した。単独メサ構造が十分に発振出力が大きいことと、FIB によって加工可能な素子構造であることで初めて実験的に調べることが可能になった。第五章の内容については 2016 年 2 月現在、論文を執筆中である。

第 6 章として、本論文のまとめを記述する。

本論文中で先行研究から引用した図は、全て使用許可 (著作権) を取った上で転載した。また、本論文に剽窃がないことは、筑波大学指定の剽窃チェックソフトによって確認された。

第2章 研究背景

2.1 ジョセフソン接合

高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) はジョセフソン接合が積層した結晶構造をもつ。従って、Bi2212 によるテラヘルツ (THz) 波発振現象について考察を深めるためには、初めに単一ジョセフソン接合の振る舞いを理解する必要がある。本節では、1960 年代から現在まで長期間に渡って行われてきた研究の中から、単一ジョセフソン接合に関する重要な知見を概観する。

2.1.1 ジョセフソン効果

図 2.1 のように薄い絶縁体を 2 つの超伝導体 S_1 、 S_2 で挟んだ接合構造をジョセフソン接合という。1962 年、B. D. Josephson は図 2.1 のように絶縁体で微小間隔をあけた二つの超伝導体 S_1 、 S_2 の間を、電子対が電圧を発生することなくトンネルする可能性を指摘した [1]。P. W. Anderson と J. M. Rowell は 1963 年にこの効果を実験的に観測した [2]。

超伝導状態の電子系は量子状態として単一の波動関数で記述される。いま、互いに隔絶された二つの超伝導体を想定する。簡単のために、それらは同じ超伝導物質であるとする。それらを記述する超伝導波動関数 $\Psi = |\Psi|e^{i\theta}$ の振幅 $|\Psi|$ は同じであるが、位相 θ は独立である。これらの二つの超伝導体を完全に接合させた場合、超伝導体は一体とみなせるので、位相 θ は全体で一つに揃う。一方、二つの超伝導体が絶縁体を挟んでわずかに (10 \AA 程度) 離れている場合、超伝導体-絶縁体接合面において、超伝導波動関数は滑らかに接続されるため、わずかに絶縁体の中にしみ出ることになる。このようにして、一方の超伝導体から他方の超伝導体へ電子対のトンネルが可能になる。このような 2 つの超伝導体間の結合はジョセフソン弱接合と呼ばれ、様々な興味深い振る舞いが見られる。

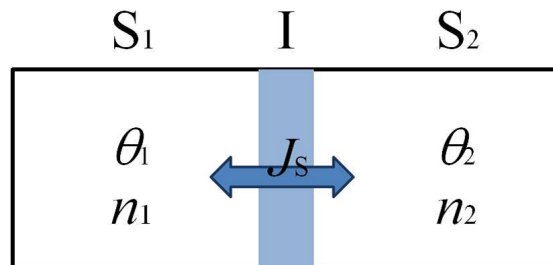


図 2.1: ジョセフソン接合。二つの超伝導体 S_1 、 S_2 の間に薄い絶縁体 I が挟まれている時、電圧を印加することなく直流超伝導電流が生じる。

直流ジョセフソン効果とは、図 2.1 のように絶縁体によってわずかに隔てられた 2 つの超伝導体間を、電圧を生じることなく電子対の直流トンネル電流が流れる現象である。超伝導体間の位相差を $\theta = \theta_2 - \theta_1$ とすると、電子対の電流密度 J_s は、

$$J_s = J_c \sin \theta \quad (2.1)$$

と表される。ここで、 J_c はジョセフソン臨界電流密度である。式 (2.1) は、接合電圧の有無に関らず成立する。すなわち、接合間に電圧がなくても、薄い絶縁体を透過して直流の超伝導電流が発生する時、常に両超伝導体の間で位相差が存在する。このような電子対の巨視的なトンネル現象を直流ジョセフソン効果と呼ぶ。接合面の面積を A 、超伝導電流を $I_s = AJ_s$ と置き、同様に $I_c = AJ_c$ とすると、

$$I_s = I_c \sin \theta \quad (2.2)$$

となる。この超伝導電流 I_s はジョセフソン接合に特徴的な電流であることから、しばしばジョセフソン電流と呼ばれる。臨界電流は $I_c = AJ_c = A \frac{2K}{\hbar} n$ と表され、接合の面積 A 、超伝導体 S_1 と S_2 の超伝導電子密度 $n_1 = n_2 = n$ 、および相互作用の大きさを表す係数 K に依存する。

次に、ジョセフソン接合の両端に直流電圧 V が印加されている場合を考える。このとき接合内には、 V に比例する周波数の電子対の交流電流が流れる。この現象は交流ジョセフソン効果と呼ばれ、

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{2eV}{\hbar} \quad (2.3)$$

と表される。すなわち、接合間に直流電圧が印加されている時、両超伝導体の波動関数の位相差 $\theta = \theta_2 - \theta_1$ は式 (2.3) に従って時間変化する。

ジョセフソン効果は式 (2.2)、(2.3) で表され、しばしばジョセフソン関係式と呼ばれる。以下に、R. P. Feynman による、ジョセフソン関係式の簡単な導出を行う [3]。

ジョセフソン接合の両側の超伝導体の波動関数は、時間に依存したシュレディンガー方程式に従い、次式のように時間変化をする。

$$\begin{cases} i\hbar \frac{\partial \Psi_1}{\partial t} = U_1 \Psi_1 + K \Psi_2 \\ i\hbar \frac{\partial \Psi_2}{\partial t} = U_2 \Psi_2 + K \Psi_1 \end{cases} \quad (2.4)$$

$$\quad (2.5)$$

U_1 、 U_2 は両超伝導体の波動関数のエネルギーで、 K はそれらの相互作用を示す結合係数である。接合に電圧 V を加えると、両側に $e^*(V_2 - V_1) = e^*V$ のエネルギー差が生じる。ここで、 e^* は超伝導電子の電荷である。すなわち、

$$U_2 - U_1 = e^*V$$

である。エネルギー原点を U_1 、 U_2 の中間にとると、式 (2.4) と式 (2.5) は、

$$\begin{cases} i\hbar \frac{\partial \Psi_1}{\partial t} = -\frac{e^*V}{2} \Psi_1 + K \Psi_2 \\ i\hbar \frac{\partial \Psi_2}{\partial t} = \frac{e^*V}{2} \Psi_2 + K \Psi_1 \end{cases} \quad (2.6)$$

$$\quad (2.7)$$

と表すことができる。両波動関数 $\Psi_l = |\Psi_l|e^{i\theta_l}$ ($l = 1, 2$) を、 $\Psi^*\Psi$ が電子対密度 n_l と等しいという条件のもとで規格化すると、

$$\Psi_l = \sqrt{n_l}e^{i\theta_l} \quad (l = 1, 2) \quad (2.8)$$

式 (2.8) を式 (2.6)、(2.7) に代入し、実部と虚部の項をそれぞれ比較することで次式を得る。

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial n_1}{\partial t} = \frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_1 n_2} \sin \theta \\ \frac{\partial n_2}{\partial t} = -\frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_1 n_2} \sin \theta \end{array} \right. \quad (2.9)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \theta_1}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_2}{n_1}} \cos \theta + \frac{e^* V}{2\hbar} \\ \frac{\partial \theta_2}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_1}{n_2}} \cos \theta - \frac{e^* V}{2\hbar} \end{array} \right. \quad (2.10)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \theta_1}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_2}{n_1}} \cos \theta + \frac{e^* V}{2\hbar} \\ \frac{\partial \theta_2}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_1}{n_2}} \cos \theta - \frac{e^* V}{2\hbar} \end{array} \right. \quad (2.11)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \theta_1}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_2}{n_1}} \cos \theta + \frac{e^* V}{2\hbar} \\ \frac{\partial \theta_2}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_1}{n_2}} \cos \theta - \frac{e^* V}{2\hbar} \end{array} \right. \quad (2.12)$$

ここで、超伝導体間の位相差 $\theta = \theta_2 - \theta_1$ とした。電子対の電流密度 J_s は、

$$J_s = \frac{\partial n_1}{\partial t} = -\frac{\partial n_2}{\partial t}$$

と表される。したがって、式 (2.9)、式 (2.10) より次式 (2.1) が得られる。

$$J_s = \frac{2K}{\hbar} \sqrt{n_1 n_2} \sin \theta = J_c \sin \theta$$

式 (2.1) は、方程式 (2.6)、(2.7) の虚部から導かれた式であり、接合電圧の有無に関らず成立する。

次に、ジョセフソン接合の両端に直流電圧 V が印加されている場合を考える。両超伝導体が同質であり $n_1 = n_2$ であると仮定し、超伝導電子は対として存在するので $e^* = -2e$ とする。式 (2.11) と式 (2.12) の差をとって整理すると、式 (2.3)

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = -\frac{e^* V}{\hbar} = \frac{2eV}{\hbar}$$

を得る。すなわち、接合間に直流電圧が印加されている時、両超伝導体の波動関数の位相差 θ は式 (2.3) に従って時間変化することを意味している。式 (2.3) を得るために超伝導電子は対になっていることを仮定したが、この仮定が正しいことの証明にもなっていることは大変興味深い。式 (2.3) を t に関して積分し、積分定数を θ_0 と置けば、

$$\theta = \frac{2e}{\hbar} V t + \theta_0 \quad (2.13)$$

これを式 (2.1) に代入すると電流密度として、

$$\begin{aligned} J_s &= J_c \sin\left(\frac{2eV}{\hbar} t + \theta_0\right) \\ &= J_c \sin(\omega_J t + \theta_0) \end{aligned} \quad (2.14)$$

で表される交流の超伝導電流が生じる。ここで $\omega_J = \frac{2e}{\hbar} V$ はジョセフソン角周波数であり、式 (2.14) は角周波数 ω_J の交流電流が生じることを示している。このように、接合電圧が有

限のときには位相差が時間変化するため、式 (2.1) で記述される直流の超伝導電流は変更を受け、接合間には交流の超伝導電流が生じるのである。式 (2.3) または式 (2.14) で表されるこの現象が交流ジョセフソン効果である。

交流ジョセフソン効果は非常に興味深く、自然現象の根本原理と深く結びついている。ジョセフソン接合において2つの超伝導体に電位差 V があるということは、両超伝導体間に $2eV$ のポテンシャルエネルギーの違いがあることを意味しており、電荷を持つ粒子はこのエネルギー差に比例した電磁波を放出してエネルギーの高い状態から低い状態へ遷移するのである。これは原子の発光と同じメカニズムである。すなわち、電子の軌道エネルギーの差 $E_1 - E_2$ に比例した (等しい) エネルギーの光 $h\nu$ が放出されるのが原子の発光現象である (Bohr の量子仮説)。このようにジョセフソン効果は原子の発光現象と同等であるので、交流ジョセフソン効果は取りも直さず人工的に原子を作ることができるということを意味している。しかもこの場合、発振周波数 f_J は印加する電圧 V で任意に連続的に変えることができるという際立った特徴を持っている。原子の発光は軌道エネルギーによって決まっているので、離散的な値しかとれない。(輝線スペクトルといわれる。)

また、ジョセフソン周波数 f_J は、 $f_J = \frac{\omega}{2\pi}$ の関係から、 $V = 1$ [mV] の電圧を印加した場合に

$$f_J = \frac{2e}{h}V = 483.59789 \text{ [GHz]} \quad (2.15)$$

となる。ここで、ジョセフソン定数 $K_J = \frac{2e}{h}$ は基礎物理定数 e と h のみで表されるため、 K_J を基礎物理定数として考えることもできる。つまり、ジョセフソン接合に直流電圧を印加すると、接合の種類や形状によらず、THz 領域の高い周波数をもつ交流電流が得られる。本研究で取り扱う高温超伝導体 Bi2212 を含めて、ジョセフソン接合を使用したあらゆる発振器はこの原理を利用している。

2.1.2 電流 – 電圧特性

ジョセフソン接合は人工的な原子であることを説明したが、実は原子にはない多様な性質がある。それは超伝導体は多数の超伝導粒子が集団から成り立っているためであり、原子のように基本的に1個の電子の現象ではないためである。

エネルギーバンド図による理解

ジョセフソン接合ではある臨界電流 I_c までは電圧を生じることなく直流超伝導電流が流れる。ジョセフソン接合の電流 – 電圧 (I - V) 特性は、電子対のトンネルによるゼロ電圧の超伝導電流に準粒子トンネル電流による I - V 特性を加えたものになる。

図 2.2 はジョセフソン接合のエネルギー状態密度を表している。図 2.1 の 2 つの超伝導体 S_1 と S_2 が異なる場合を想定しており、図 2.2(a) 中の Δ_1 、 Δ_2 はそれぞれの超伝導体の超伝導エネルギーギャップを表す。1 個の超伝導電子対を壊して 2 個の準粒子をつくるためには、ある有限エネルギー 2Δ を必要とする。この Δ を超伝導エネルギーギャップ (または超伝導ギャップ) と呼ぶ。図 2.2(a) の温度 $T = 0$ 、電圧 $V = 0$ の状態では、両超伝導体のフェルミエネルギーは揃っており、電子は全て電子対として存在する。有限電圧 $V \neq 0$ を印加すると両超伝導体のフェルミエネルギーがずれるが、 $eV = \Delta_1 + \Delta_2$ 以上の電圧が印加されたときに一方から他方への準粒子電流が流れる。ここで、 e は素電荷である。これが、図 2.3(a) で有限電圧 $V = (\Delta_1 + \Delta_2)/e$ へのジャンプとして観測される。 $T \neq 0$ では電子対の一部は熱的に破壊されて準粒子として励起され、かつ接合に電圧が印加された場合は図 2.2(b) のようなエネルギー状態密度となる。

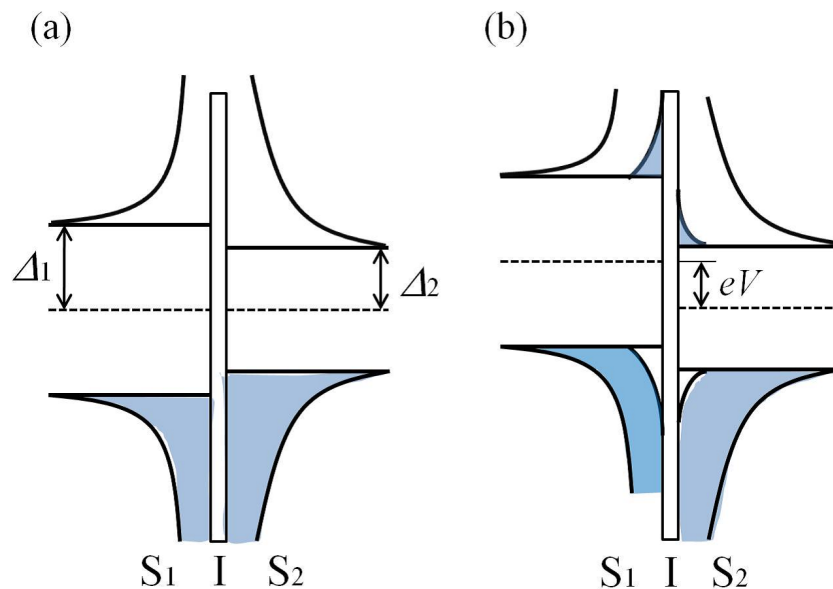


図 2.2: ジョセフソン接合のエネルギー状態密度。 Δ_1 、 Δ_2 はそれぞれ超伝導体 S_1 、 S_2 の超伝導エネルギーギャップである。(a) $T=0$ 、 $V=0$ の場合。両超伝導体でフェルミエネルギーは揃っている。準粒子は励起されておらず、全ての電子は電子対として凝縮している。(b) $T \neq 0$ 、 $V \neq 0$ の場合。有限な温度により電子対は破壊されて準粒子が励起され、電圧が印加されることにより両超伝導体のフェルミエネルギーがずれる。

図 2.3(a) は図 2.2(a) に対応する $T = 0$ K における I - V 特性である。ゼロ電圧で直流超伝導電流が I_c に達し、さらに印加電流を増加させる場合、接合は I_c 以上の超伝導電流を流すことはできず、接合電流には常伝導成分も生ずる。したがって、接合内部に有限の電場が存在するようになる。そのため、電流値が I_c のところでゼロ電圧状態から有限電圧状態へのジャンプが起こる。ジャンプした後も引き続き印加電流を増加させると、点線で示したオーミックな常伝導状態の特性に移る。この有限電圧状態から電流値を下げていくと I_c 以下になっても電圧は消失せず、ギャップ電圧 $V = (\Delta_1 + \Delta_2)/e$ 上の電圧で電流のみが変化する。この電圧を下回った時には準粒子励起がなくなり、電圧もゼロになる。このように、有限電圧状態における急激な電流低下は超伝導体の電子状態密度にエネルギーギャップが存在することに起因しており、 I - V 特性は大きなヒステリシスを描く。

図 2.3(b) は有限温度 $T \neq 0$ による準粒子励起がある場合の I - V 特性で、図 2.2(b) に対応する。バイアス電圧を下げていくとき $T = 0$ では $eV \geq \Delta_1 + \Delta_2$ でなければ電流は流れないが、 $T \neq 0$ では電子対は温度によるエネルギーを得るため準粒子として励起しやすくなり、外部から電圧として接合に与えるエネルギーが $\Delta_1 + \Delta_2$ に達していなくても電流が流れる。すなわち、ギャップ電圧 $V = (\Delta_1 + \Delta_2)/e$ において I - V 特性は緩やかな変化を示す。さらに、準粒子の熱励起によって $V = (\Delta_1 - \Delta_2)/e$ において電流値が増加する。それ以外の振る舞いは、図 2.3(a) と同じように理解できる。図 2.3(c) は $T \neq 0$ で、 $\Delta_1 = \Delta_2 = \Delta$ の場合の I - V 特性であり、実験的によく観測されている。このように、有限温度によって準粒子励起が起こるため、 I - V 特性はギャップ電圧付近で緩やかな変化を示すが、温度の影響はこれだけではない。温度を上昇させると、熱励起される準粒子は多くなるため、同じバイアス電圧下であっても、温度が高いほど流れる電流は大きくなる。さらに温度上昇によって、超伝導エネルギーギャップ Δ が小さくなりギャップ電圧が低下するため、 I - V 特性のヒステリシスも小さくなる。

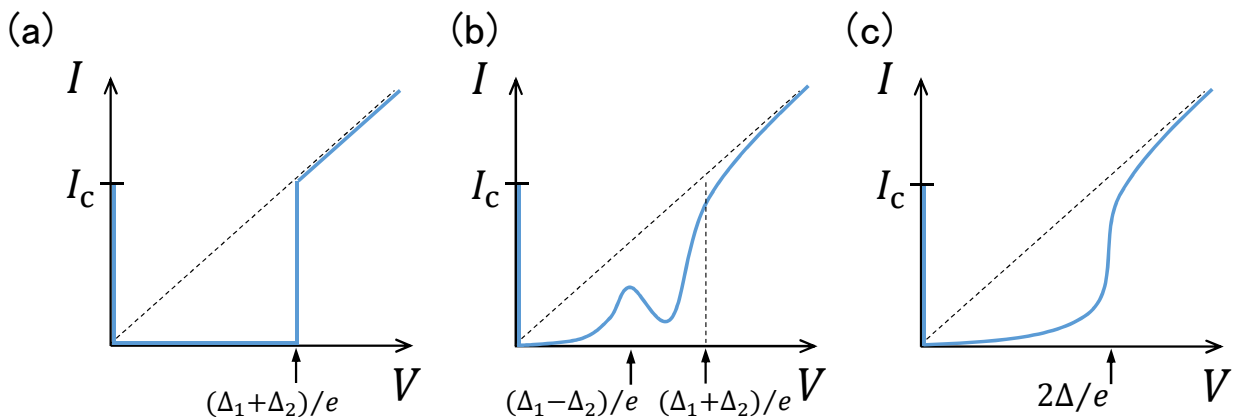


図 2.3: (a) $T = 0$ の場合の I - V 特性。(b) $T \neq 0$ の場合の I - V 特性。(c) $T \neq 0$ であり、かつ両超伝導体のエネルギーギャップが等しい場合。低温になるほど (b) では $V = (\Delta_1 + \Delta_2)/e$ で、(c) では $V = 2\Delta/e$ で急激に電流は減少し、 $T = 0$ では (a) のようにこの電圧で $I = 0$ に達する。

RCSJ モデルによる理解

Stewart [4] と McCumber [5] は 1968 年、ジョセフソン接合を電気回路的に扱うモデルとして、図 2.4(a) のように準粒子抵抗 (シャント抵抗) R とジョセフソン接合の電荷容量 C を

導入し、ジョセフソン電流 $I_J = I_c \sin \theta$ が流れる素子と並列回路として組み込まれるモデルを提案した。このモデルは RCSIJ (Resistively and Capacitively Shunted Junction) モデルと呼ばれ、ジョセフソン接合の I - V 特性を表現する等価回路モデルとして現在も広く使用されている。

このモデルではジョセフソン接合を流れる電流 I は、図 2.4(a) から、

$$I = I_c \sin \theta + \frac{V}{R} + C \frac{dV}{dt} \quad (2.16)$$

と表される。これを式 (2.3) を用いて変形すると、

$$\frac{I}{I_c} = \sin \theta + \beta \frac{d\theta}{d\tau_J} + \frac{d^2\theta}{d^2\tau_J} \quad (2.17)$$

となる。ここで、

$$\tau_J = \omega_J t, \quad \beta = \sqrt{\frac{\hbar}{2e}} \cdot \frac{C}{I_c} \frac{1}{RC} \quad (2.18)$$

である。 β はマッカumber (McCumber) パラメータと呼ばれ、このパラメータによって I - V 特性は図 2.4(b) のように変化する。すなわち、 $\beta \gg 1$ のとき不足減衰 (under-damped) となり、 I - V 特性にヒステリシスを生じる。一方、 $\beta \ll 1$ のときは過減衰 (over-damped) となり、 I - V 特性はヒステリシスを持たない。また、ジョセフソン接合内には、周波数

$$f_J = 2\pi\omega_J = \frac{2e}{h} V \quad (2.19)$$

で表される交流超伝導電流が発生する。図 2.4(a) 内のシャント抵抗 R は接合に流れる準粒子電流による抵抗を表し、接合にはジュール発熱が発生するが、シャント抵抗 R は外付け回路の抵抗としても考えることができる。すなわち、 I - V 特性の詳細はシャント抵抗やコンデンサーなどの外付け回路に依存する。

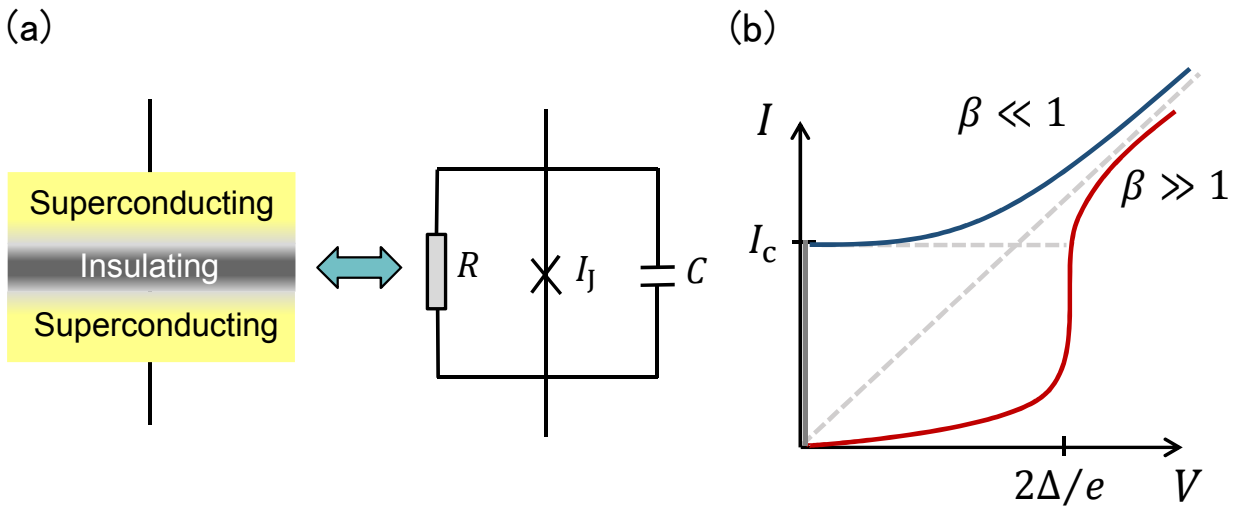


図 2.4: (a)RCSIJ モデルにおいて、ジョセフソン接合はこのような等価回路として扱われる。(b) マッカumberパラメータ β による I - V 特性の変化。ジョセフソン接合の材料や形状を制御することで β を変化させ、 I - V を制御することができる。

2.1.3 電磁波の発振

ジョセフソン接合に定電圧を印加した場合、電圧に比例した周波数をもつ交流超伝導電流が誘起される交流ジョセフソン効果 $f = 2eV/h$ が現れることを前述した。物理定数 $2e/h = 483.6 \text{ GHz/mV}$ からわかるように、1 mV あたり 483.6 GHz の高周波電流が得られる。この現象を利用して、ジョセフソン接合を電圧と周波数の変換器、すなわち電磁波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 年代に始まった。これまでに実験・理論ともに数多くの研究があり、(高温超伝導体ではない) 従来型超伝導体から作られる単一ジョセフソン接合やジョセフソン接合の多重アレイなどで、電磁波の発振は実証されてきた。最初に電磁波の検出に成功したのは、Langenberg ら [6] と Yanson ら [7] である。Langenberg らの実験では、長さ $L = 0.16 \text{ cm}$ の Sn/Sn-oxide/Sn 薄膜の長方形ジョセフソン接合を使用し、数 Oe の直流磁場を接合面に平行に印加した。一様なジョセフソン接合を作ることは容易ではなく、また、磁場を接合面に正確に平行に印加することも難しいため、しばしば点接触型 (Point contact) のジョセフソン接合もマイクロ波発振実験に使用された [8,9]。また、他にもいくつかのマイクロ波発振の実験が行われている [10,11]。

しかし、これらの単一ジョセフソン接合から発振される電磁波の出力は pW~nW と微弱である [7,12,13]。そこで、単一接合を集積化してアレイ構造を作ることによって協調動作を可能にし、高出力発振を実現しようとする試みがあり、Barbara らにより出力は $0.4 \mu\text{W}$ 程度まで向上した [14–16]。彼らは Nb/AlO/Nb の単一ジョセフソン接合により 3×131 のアレイ構造を作り、この多数の単一接合を Nb の接地面と共鳴させることで、素子の構造や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した。これらの実験により、コヒーレントな発振が実現した場合には発振出力 P は層数 N の 2 乗に比例し、 $P \propto N^2$ となる [12–16]。ただし、集積化により発振出力を増大させるためには、各ジョセフソン接合の特性を制御する必要がある。各ジョセフソン接合が均一の特性をもたなければ、協調動作による高出力の発振は実現不可能である。しかしジョセフソン素子の特性は、Å から nm のオーダーで積層される絶縁層と超伝導層の特性に依存するため、均一な特性をもつジョセフソン接合アレイを作製することは難しく、現在まで実用化には至っていない。

これとは別に、高出力化と広い周波数帯域幅、さらには周波数チューニング等を期待して、flux-flow 発振器が提案された [17,18]。flux-flow 発振器¹は最高で 700 GHz 程度までの高周波発振ができ、例えば天文学の研究ではサブミリ波受信機の局在発振器 (Local Oscillator) として使用されてきた。しかし、発振出力は様々な実用化に必要なレベルには到達していない。

¹flux-flow 発振器とは、ジョセフソン磁束の運動を利用して電磁波を取り出す発振器のことである。磁場を接合面に平行に印加することでジョセフソン磁束を接合面内に導入し、外部電流を流すことでジョセフソン磁束はローレンツ力を受けて一方向に運動する。このようにして接合内をジョセフソン磁束が流れているため、この現象は flux-flow と呼ばれ、この原理を利用した発振器は flux-flow 発振器と呼ばれる。

2.2 高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$

1911 年に Kamerlingh Onnes によって水銀の 4.19 K における超伝導転移が発見されて以来 [19]、新超伝導物質の探索により最高の超伝導転移温度 T_c は緩やかに上昇したが、1973 年の Gavalier による Nb_3Ge における $T_c=22.3$ K の発見 [20] の後、転移温度は上昇しなかった。この停滞した状況は、1986 年、Bednorz と Müller によって見事に破られた。彼らは 30 K を超える転移温度を持つ LBCO (La、Ba、Cu の混晶酸化物) を発見した [21]。BCS 理論で予想された最高転移温度を超えたことに加え、絶縁体であることが多い酸化物が超伝導物質であるという事実は大きな驚きであった。これを契機に転移温度の最高値は瞬く間に上昇し、YBCO で液体窒素の沸点 77 K を超える 93 K の転移温度に達し、BSCCO で 110 K、TBCCO で 125 K、HBCCO で 135 K の転移温度を常圧下で記録している²。

高温超伝導体は金属や金属間化合物、合金などの早くから知られていた超伝導体とは異なり、銅を含む酸化物セラミックスである。高温超伝導体の母物質がもつ反強磁性は、銅原子の持つ電子スピン間の強い反強磁性相互作用に起因している。原子価の異なる元素で構成元素を置換したり、酸素の不定比性を利用したキャリアドーピングを行うことで、はじめて超伝導を示す。超伝導相は、およそ 5~25 % のドーピング領域で現れ、このとき反強磁性は消失する。このように、高温超伝導体は反強磁性絶縁体にキャリアを導入することによってはじめて超伝導が現れる極めて特異な物質であり、その超伝導機構は未だに完全には解明されていない。また、高温超伝導体は共通してペロブスカイト構造を基本とする結晶構造をもち、異方性が強く 2 次元性が顕著である。このため、高温超伝導に特有の現象が多く観測されており、現在でも盛んに研究が進められている。

高温超伝導体に関する研究の中で、最も脚光を浴びる分野は高温超伝導の発現機構に関する研究であるだろう。世界中の人々が関心を抱き、数多くの研究がなされてきた。この節では本筋から外れるためこの話題に触れず、これまでに明らかになっている $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ の高温超伝導体としての基本的な性質をを概観したい。

2.2.1 結晶構造

元素周期表第 6 周期の重元素 Hg、Tl、Pb、Bi によりブロック層が形成される銅酸化物高温超伝導体は高い T_c を示し、興味深い物性のみならず実用材料への応用という点で、非常に重要な物質群である。

Bi 系銅酸化物には、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ (Bi2201)、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212)、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ (Bi2223) の 3 種類があり、いずれも Bi_2O_2 の 2 重層をブロック層に含み、それぞれの CuO_2 層の枚数は 1 枚、2 枚、3 枚の層状構造を備えるペロブスカイト構造となっている。この Bi_2O_2 層は強い絶縁性を示し、 CuO_2 層は超伝導を担っている。Bi2212 の結晶構造を図 2.5 に示す。 Bi_2O_2 層は互いにファンデルワールス力で弱く結合しており、層間距離は 3.3 Å と Bi-O 結合距離に比べて著しく離れている。このため、*ab* 面に平行な面で非常に劈開性が良く、劈開した表面には Bi_2O_2 層が現れる。 CuO_2 超伝導層と Bi_2O_2 絶縁層とが結晶の *c* 軸方向に交互に積み重なった層状構造を持ち、ジョセフソン接合が積層した構造と見なすことができる。このジョセフソン接合は結晶構造として自然に備わっているため、人工的に作られる通常のジョセフソン接合と区別して特に固有ジョセフソン接合と呼ばれる。Bi2212

²BSCCO は Bi、Sr、Ca、Cu、TBCCO は Tl、Ba、Ca、Cu、HBCCO は Hg、Ba、Ca、Cu の混晶酸化物である。

のみならず、高温超伝導体は一般に、 CuO_2 層とブロック層が c 軸方向に交互に積み重なった特徴的な結晶構造をもつ。このブロック層の長さや絶縁性は物質によって異なり、磁場侵入長やコヒーレンス長のような物質固有のパラメータの大きさを左右している。

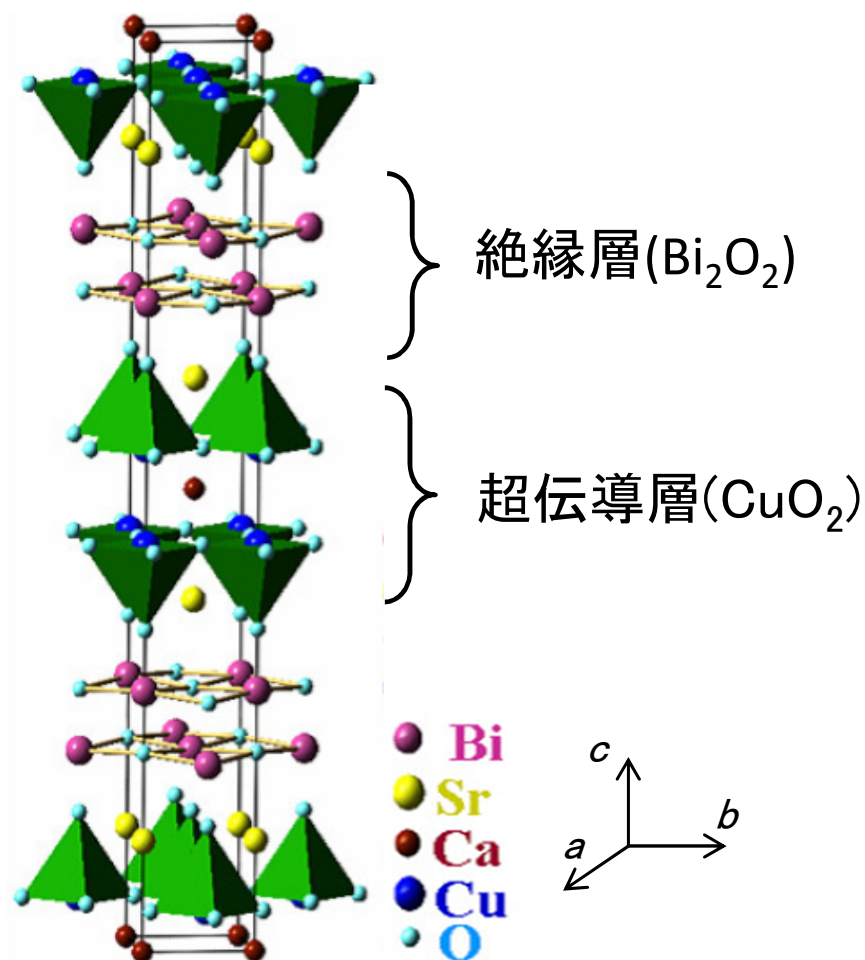


図 2.5: Bi2212 の結晶構造。Bi2212 は図のように超伝導相と絶縁層が c 軸方向に交互に積層している。このように結晶構造内に含まれるジョセフソン接合を、特に固有ジョセフソン接合と呼ぶ。 CuO_2 層は一層あたり 3 \AA 、 Bi_2O_2 層は一層あたり 12 \AA である。

2.2.2 物質パラメータ

Bi 系銅酸化物は当初、CuO₂ 層が 1 層の Bi2201 が知られていたが、 T_c は ~ 8 K と低かった。しかし、Ca を構成元素として加えることにより CuO₂ 層が 2 層および 3 層の化合物が合成され、それぞれ T_c が 70 K および 110 K が 1988 年に実現した [22]。現在までに確かめられた最高の T_c は、それぞれおよそ 40 K、90 K、110 K である。Bi 系銅酸化物には酸素の不定比性 δ があり、この δ を変えることで T_c を制御することができる。酸素含有量が最適値 ($\delta \sim 0.15$) のときに最高の T_c となる。図 2.6 のように、高温超伝導体の超伝導は超伝導キャリアをドーピングすることで現れ、そのキャリアがホールである場合 (図 2.6 右側) と電子である場合 (図 2.6 左側) がある [23]。前者をホールドーピング型、後者を電子ドーピング型の超伝導体と呼ぶ。Bi 系銅酸化物はホールドーピング型の高温超伝導体である。現在の高温超伝導体の理解では、電子ドーピング型は材料合成上の問題で存在しないとする実験結果が提唱されている。即ちキャリアに対して電子・ホールの対称性があるとするのが従来の高温超伝導体の特徴であったが、それが存在しないことを示唆しており、高温超伝導の発現機構を考える上で重大な問題として取り上げられているが、現在も決着は付いていない³。

酸素含有量 δ が最適値 (オプティマムドーピング) よりも少ない試料をアンダードーピングの試料、多い試料をオーバードーピングの試料といい、一般にアンダードーピングになるほど試料の異方性は強くなる。結晶の異方性の度合いは異方性パラメータ γ で表わされる。 γ は結晶の c 軸方向および ab 面方向のコヒーレンス長 ξ 、または磁場侵入長 λ の比によって決定され、

$$\gamma = \frac{\xi_{ab}}{\xi_c} = \frac{\lambda_c}{\lambda_{ab}} \quad (2.20)$$

と定義される⁴。Bi2212 の場合、 $\xi_{ab} = 17\text{-}24$ Å、 $\xi_c = 0.15\text{-}0.2$ Å であるので [24]、 $\gamma = \xi_{ab}/\xi_c = 85\text{-}160$ となる⁵。この値は、異方性の大きい他の銅酸化物高温超伝導体と比較しても非常に大きく、2 次元性が強いことを表している。酸素含有量 δ を変えることによって、 c 軸抵抗率の温度変化が図 2.7 のようになり、 δ が小さいほど半導体的な抵抗率の上昇を示す [26]。ただし、このような振る舞いのメカニズムは未だに明らかになっていない。また、 λ_{ab} と λ_c はジョセフソン侵入長 λ_J と次の関係にある [25]。

$$\lambda_c = \left[\frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0(t+d)j_c} \right]^{1/2} \quad (2.21)$$

$$\lambda_J = \left[\frac{\Phi_0 d}{2\pi\mu_0\lambda_{ab}^2 j_c} \right]^{1/2} = \frac{\lambda_c}{\lambda_{ab}} \sqrt{(t+d)d} \quad (2.22)$$

ここで、 $\Phi_0 = 2.07 \times 10^{-15}$ [Wb] は磁束量子、 μ_0 は真空の透磁率、 $t = 12$ Å、 $d = 3$ Å はそれぞれ絶縁層、超伝導層の厚さ、 j_c は臨界電流密度を表している。式 (2.21) や式 (2.22) の関係は、磁場侵入長が超伝導 CuO₂ 層の長さ 3 Å よりも非常に長く、隣り合う超伝導層が電流を通して結びついている状況に基づいて導出されており、従来型の超伝導体では通常は実現せず、高温超伝導体が発見される以前はほとんど考慮されなかった。Bi2212 においては、 $\lambda_{ab} \sim 0.2$ μm、 $\lambda_c = 50 \sim 200$ μm、 $\lambda_J \sim 0.5$ μm となる。

³実は高温超伝導物質をよく見ると、同一物質では決してホールドーピングと電子ドーピングを実現できないこと、電子ドーピングは La214 系の特別な物質のみで発現することなど、従来から問題点が指摘されていた。特に最近、La214 系での電子ドーピングは存在しないとする強い実験的証拠が見つかった。

⁴磁場侵入長 λ の下付き文字 c は、 c 軸方向の遮蔽電流が ab 面方向に減衰する長さの目安を与える。下付き文字が ab の場合にはこの逆である。

⁵また、格子定数は $a = b = 3.83$ [Å]、 $c = 30.7$ [Å]、密度は $\rho = 6.55$ g/cm³ である。

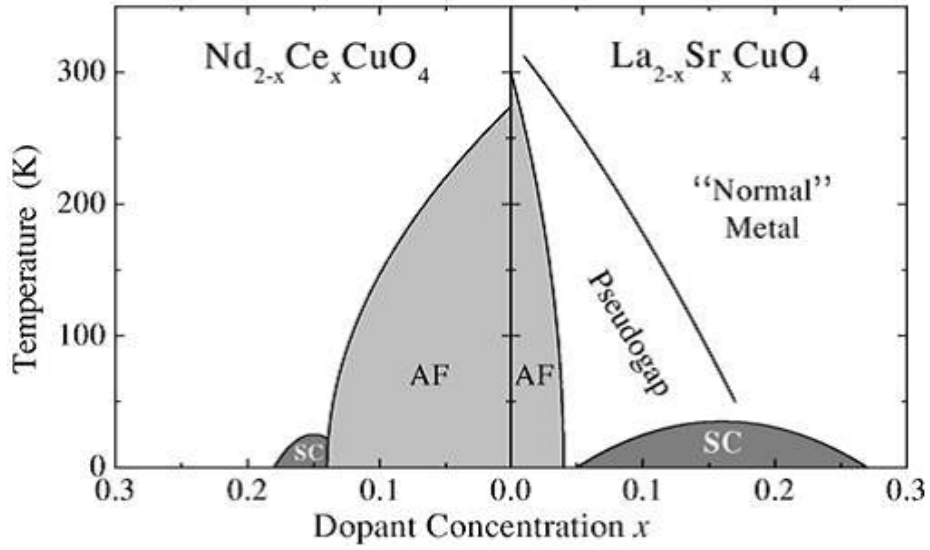


図 2.6: 高温超伝導体の電子相図。左側が電子ドーピング型 (n -type)、右側がホールドーピング型 (p -type)。AF は反強磁性、SC は超伝導を表し、擬ギャップ (Pseudogap) 領域と通常金属 (Normal metal) 領域も書かれている [23]。擬ギャップ状態は最近、Charge Density Wave (CDW) 相として理解が進んでいる。

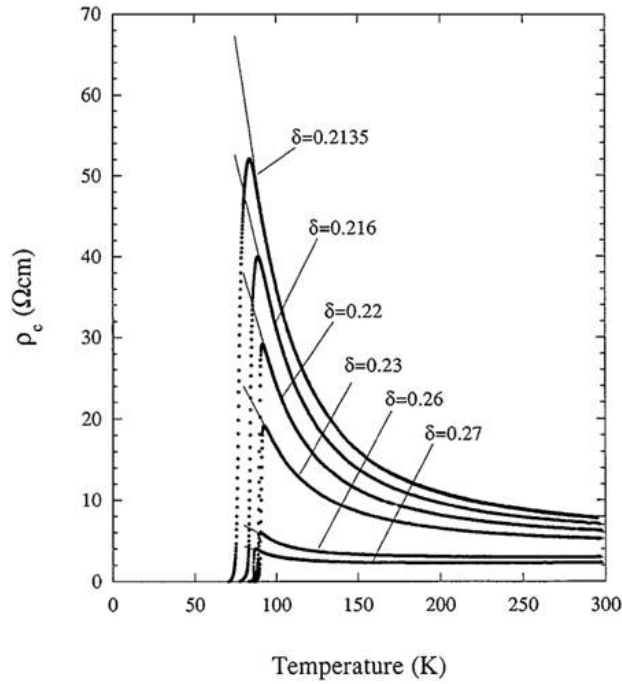


図 2.7: 各酸素不定比性 δ における、Bi2212 の c 軸抵抗率 ρ_c の温度変化 [26]。

2.3 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} による THz 波発振現象

2.3.1 従来型ジョセフソン接合による高周波発振素子との比較

金属系超伝導体とその酸化物による従来型ジョセフソン接合を使用した高周波発振素子と、本研究で使用する高温超伝導体 Bi2212 の固有ジョセフソン接合を使用した THz 波発振素子を比較すると、簡単には図 2.8 のようになる。まず、従来型ジョセフソン接合は超伝導転移温度 T_c は数 K であり、他方で Bi2212 は最適ドーピングで $T_c \sim 90$ K である。このため、従来型ジョセフソン接合は液体 He を使用した素子の冷却が必須であるが、Bi2212 の場合には必ずしも必要ではなく液体窒素 (沸点 77 K) を用いた冷却も考えられる。

次に、ジョセフソン接合は一般に、絶縁層と超伝導層の特性により電子対のトンネル特性が大きく変わり、素子依存性が高い。しかし、固有ジョセフソン接合においては、ジョセフソン接合が結晶構造として自然に備わっていることから、 c 軸方向に数 μm の厚さがあっても、原子レベルで均質なジョセフソン接合が得られる。

1992 年、Bi2212 系が固有ジョセフソン接合から成り立っていることを、Kleiner らは結晶の c 軸方向の電流 – 電圧 (I - V) 特性の測定により初めて実証した [27]。図 2.9(a) はジョセフソン接合が直列に積層していることに対応し、 I - V 特性に多数のブランチ構造が現れている。厳密にはこの I - V 特性のブランチの数は接合に含まれるジョセフソン接合の数に対応している。

結晶内のジョセフソン接合は単位胞に二層含まれており、一層の長さは 15.3 \AA である。従って $1 \mu\text{m}$ の厚さの Bi2212 には、654 層ものジョセフソン接合が含まれることになる。原子レベルで均質なジョセフソン接合を数千層にわたって直列に含むような系は従来の超伝導接合では作することは不可能であり、固有ジョセフソン接合系で初めて可能になった。この積層構造の位相のコヒーレンスを制御し、全体にわたって位相を揃えることができれば、発振出力 P と層数 N の関係式 $P \propto N^2$ から、 $1 \mu\text{m}$ の固有ジョセフソン接合の場合には単一接合の約 4×10^5 倍の出力を得られるため、様々な応用が提案されている 1 mW レベルの出力は現実的な課題と考えられるのである。

従来型超伝導体から作られるジョセフソン接合を使用した電磁波の発振は、1965 年当初、数 GHz の発振周波数に限られていた [6, 7]。比較的最近になって 100 GHz 程度の発振が観測され、後に Barbara らによってジョセフソン接合を集積化することで 400 GHz 程度の発振が確認されたが、発振出力は単一接合で pW-nW 、集積化をしても数百 nW オーダーと弱かった [14–16]。また、発振周波数の上限 f_{max} は超伝導エネルギーギャップ $\Delta \sim \text{meV}$ により、

| | 従来型ジョセフソン接合 | 固有ジョセフソン接合 |
|------------------|-----------------------|-------------------------------------|
| 超伝導転移温度 T_c | 低い (数 K) | 高い ($\sim 90 \text{ K}$) |
| 素子依存性 | 大きい | 小さい |
| 超伝導ギャップ Δ | 小さい (数 meV) | 大きい ($30\text{--}40 \text{ meV}$) |

図 2.8: 従来型ジョセフソン接合を使用した電磁波発振素子と、Bi2212 固有ジョセフソン接合による THz 波発振素子の比較。

$$f_{\max} = \frac{2eV}{h} = \frac{2e}{h} \cdot \frac{2\Delta}{e} = \frac{4}{h}\Delta \lesssim 800 \text{ GHz} \quad (2.23)$$

であり、これを超えることは原理的に不可能である。一方、高温超伝導体では超伝導ギャップ Δ が大きく、より高周波の発振が期待できる。特に Bi2212 では $\Delta \sim 30 - 40 \text{ meV}$ と金属系超伝導体に比べて非常に大きいため、数十 THz 程度までの発振が原理的には可能である [28–30]。ただし、高温超伝導体の場合、超伝導ギャップは等方的ではなく異方的であることが知られている。Bi2212 は *d*-波超伝導体の典型例と考えられているが、 Δ は 0-30 meV の間の値を取る。このような超伝導ギャップの異方性の発振周波数に対する影響については、大変興味ある問題として残されている。

一般的に高温超伝導体は、結晶内に均質な多重ジョセフソン接合系を形成していることに起因して、系内の超伝導粒子の集団的励起現象としてジョセフソンプラズマが存在することが知られている。Tamasaku らはこれを La214 系で初めて実験的に検証した [31]。中でも Bi2212 は、層状構造に由来する大きな異方性のため、THz 領域における電磁波発振現象を調べる上で理想的な系となっている。この異方性のため、*c* 軸方向へ伝搬するジョセフソンプラズマ周波数 f_p は大きく下がり数百 GHz 程度となる。従って、マイクロ波領域で吸収を観測することが可能となり高温超伝導に関連する多くの興味深い現象が調べられた [32–35]。

電磁波の吸収が起こるのならば、逆過程の発振も起こるはずである。Bi2212 を用いて電磁波発振を観測しようとする試みは、固有ジョセフソン接合の発見当初からあった。Bi2212 の固有ジョセフソン接合系を使えば、単一接合を遥かに凌ぐ出力と高周波数領域の電磁波発振が期待できるからである。このような理由と高温超伝導体を使用することの物理的な魅力から、理論面 [36–52] 及び実験面 [53–65] から数多くの研究が行われた。

しかし単純に電圧を印加しても発振出力は pW-nW 程度と極めて小さく、発振周波数は数 GHz と、単一接合と大差がなかった。図 2.9(b) は、Bi2212 を用いた初期の電磁波発振観測の報告例である [27]。発振周波数は 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、出力は pW オーダーである。後に、Wang らは Bi2212 にボウタイアンテナを付加し、2.5 THz 程度までの電磁波に対する応答を Shapiro ステップで確認しているが、放射された電磁波を直接的に検出した訳ではない [58]。Batov らは、500 GHz の発振を Bi2212 から検出したものの、その出力は極めて小さかった [59]。結晶中のたくさんのジョセフソン接合をいかにして協調動作させるか、そして外部に電磁波として取り出すかという点が大きな課題であった。

このような状況の中、初期の実験から 15 年ほど経過した 2007 年、高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ を使い、世界で初めて強力かつコヒーレントな THz 波発振に成功した [66]。

2.3.2 高温超伝導体によるコヒーレントな THz 帯電磁波発振の発見

2007 年 6 月、Ozyuzer らは Bi2212 を加工してメサ構造(台地状構造)をつくり、メサの *c* 軸方向に電流を流すことで世界で初めて強力かつコヒーレントな THz 帯の電磁波を観測することに成功した [66]。この研究は筑波大学の Kadowaki 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行われた。彼らの実験では、Bi2212 単結晶を矩形(長さ 300 μm 、幅 40-100 μm 、高さ 1 μm 程度)に微細加工し、結晶の *c* 軸方向に直流電流を流した。図 2.10(a) は、THz 波発振の観測に使用されたメサ構造である [66]。フォトリソグラフィとアルゴ

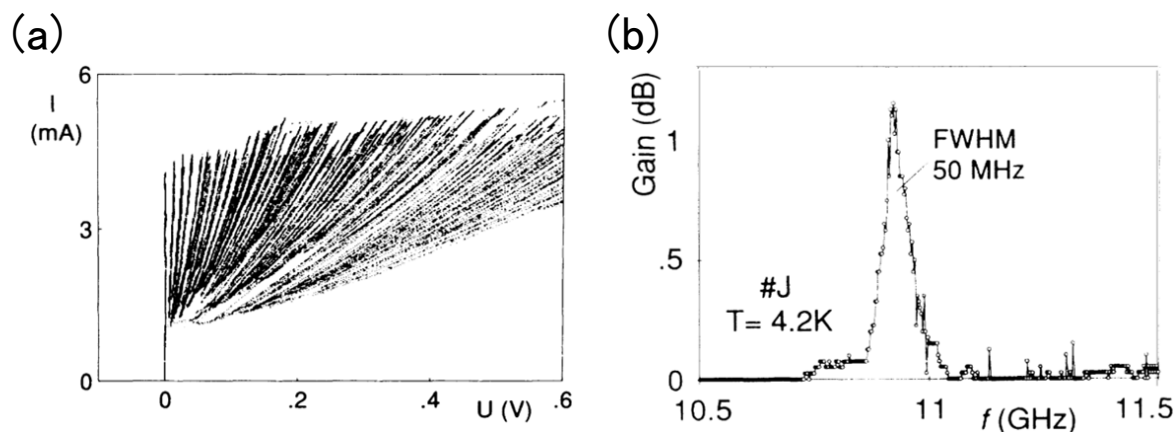


図 2.9: 固有ジョセフソン接合系 Bi2212 により得られた (a) I - V 特性と (b) 電磁波発振 [27]。 (a) 接合に含まれる層数に対応してブランチが現れる。ジョセフソン接合が直列接続にあることを表している。(b) 電磁波はスーパーヘテロダイン方式で検出された。周波数は 10.9 GHz、スペクトルの半値幅は 50 MHz、出力は pW 程度である。

ンイオンミリング装置によって加工し、電極を取り付けたメサ構造が THz 波を発振している様子を示す概念図で、図 2.10(b) はメサの走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真である。1 μm の厚さに含まれる約 660 層の固有ジョセフソン接合を電圧状態にすると、交流ジョセフソン効果と空洞共振効果を同時に満たす周波数で 0.5 μW 程度、帯域幅が 0.36~0.85 THz の電磁波を観測することができた。観測した電磁波はフーリエ変換型赤外 (FT-IR) 分光器を使った分光実験により、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、さらに $P \propto N^2$ が実験的に観測されたためコヒーレントな電磁波が発振していると考えられた。しかもこの THz 波は連続 (continuous wave, CW) であるため、テラヘルツギャップを埋める新しい発振素子として注目を浴びた。このように、コヒーレント、かつ強力な THz 波の連続発振を可能にしたのは、メサと呼ばれる台地状の構造を作ることによって得られた空洞共振効果であった。

我々のグループでは、2013 年までに周波数が 300 GHz~1.0 THz 程度、出力が単一素子で数十 μW 、アレイ化によって 610 μW の発振に成功し、現在も高出力化及び高周波化のための様々な取り組みは継続して行われている [67–69]。

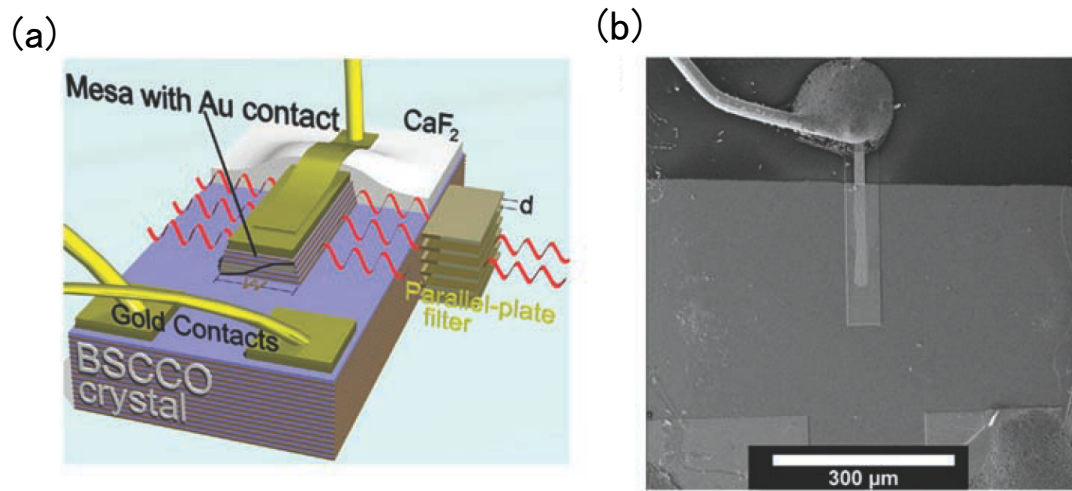


図 2.10: (a)Bi2212 単結晶から作られたメサ構造から THz 波が発振している様子。メサの幅 (短辺) 方向に電場の定在波がたち、メサの幅が半波長に対応している。(b) メサの電子顕微鏡写真 [66]。

2.3.3 THz 波発振機構

Ozyuzer らの実験で使用されたメサは長さ $l = 300 \mu\text{m}$ 、幅 $w = 40, 60, 80, 100 \mu\text{m}$ 、厚さ $t = 1 \mu\text{m}$ であり、以前に用いられてきた THz 波発振実験の試料と比べて非常に大きなサイズである [66]。図 2.11(a) に試料の電流-電圧 (I - V) 特性と Si-ボロメータによって検出された発振出力が示されている。ジョセフソン接合に特徴的な I - V 特性の大きなヒステリシスが確認できる。ジョセフソン接合の I - V 特性において、電圧は $2\Delta/e$ であるが、実際に図 2.11(a) からギャップ電圧を算出すると、 $V_g \sim 2.3 \text{ mV}$ となり、この値は Bi2212 が本来 $T = 25 \text{ K}$ の温度において示すギャップ電圧より 1 桁以上小さい。この理由として、ジュール発熱によって温度上昇したことで、Bi2212 の超伝導ギャップ Δ が小さくなった結果、 I - V 特性における電圧が小さくなることが考えられる。図 2.11(a) の高電流領域においては I - V 曲線は大きく負抵抗側に反り返っており、電流が増えるにもかかわらず電圧が小さくなっている。このことから、電流の増大とともに大きな発熱が生じ、その発熱が印加電圧を抑制していることがわかる。Ozyuzer らの報告では図 2.11(a) のように、電圧状態から超伝導状態に戻るリトラッピング (retrapping) 領域⁶ において明瞭な発振が確認された。

図 2.11(b) には周波数測定により得られた発振のスペクトルと、挿入図に周波数とメサの幅との関係が示されている。図 2.11(b) において、発振周波数の線幅は FT-IR 分光器の分解能 (7.5 GHz) で決まっていることから、本来の線幅はより狭く単色であると考えられた。

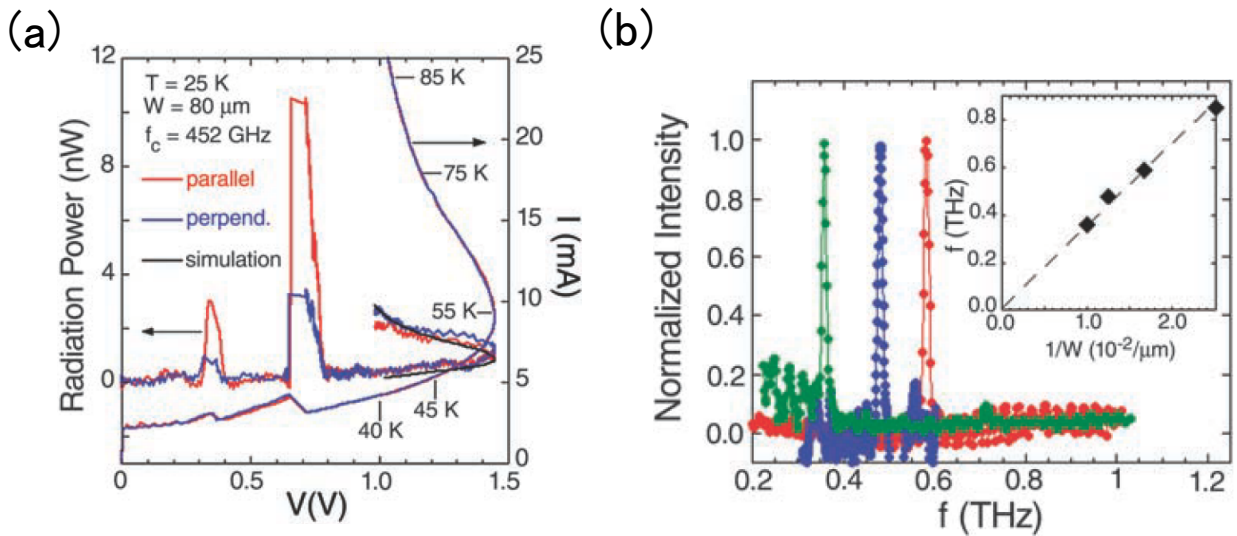


図 2.11: (a) I - V 特性と発振出力。0.7 V 付近と 0.35 V 付近のリトラッピング領域で発振が見られる。(b) 分光測定により得られた規格化した周波数スペクトル。線幅は装置の分解能 (7.5 GHz) で制限されているため、厳密には知ることができないが、この結果からは少なくとも単色の発振と考えられる。挿入図は、周波数とメサの幅の関係を示しており、メサそのものが空洞共振器として働いていることがわかる [66]。

⁶ I - V 特性の電圧状態はリターンブランチとも呼ばれ、系の電圧はゼロ電圧の超伝導状態へ戻ろうとしている。超伝導状態に戻る直前の領域をリトラッピング領域と呼び、電圧降下が不可逆に起こる。リトラッピング領域においては、印加電圧を増大させると直ちに内部ブランチに入る (図 2.15 参照)。リトラッピング領域はこのように不可逆な状態をとる領域という意味で Irreversible 領域とも呼ばれ、この領域で発振が観測される場合、IR 型と称する場合がある。

また、挿入図から

$$f \propto 1/w$$

という関係が満たされていることがわかる。 f 、 w はそれぞれ周波数、メサの幅(短辺の長さ)である。この実験結果から、発振周波数はメサの幅により規定され、

$$f = \frac{c_0}{2nw} \quad (2.24)$$

の関係式が成り立つと考えられる。これはメサの幅方向に、半波長の定在波となる空洞共振モードが実現していることを意味している。ここで、 n (~ 4.2)は遠赤外領域におけるBi2212の屈折率、 c_0 は真空中の光速である。この発振周波数は当然、交流ジョセフソン効果

$$f = \frac{2eV}{hN} \quad (2.25)$$

によっても規定されているはずであり、両者が同時に満足される必要がある。ここで、 e は素電荷、 h はプランク定数、 V は印加電圧であり、式(2.25)は単一ジョセフソン接合の場合の式(2.19)から接合数が N 層あるとして導かれたものである。メサ内部の $\sim 10^3$ 層のジョセフソン接合が協調動作し、位相が揃った場合に高出力な電磁波発振が実現できると考えられている。式(2.24)からわかるように、メサの幅により発振周波数を制御することができ、2013年までに最高で1.0 THz程度の周波数が確認されている[69]。図2.12(a)は、印加電圧と発振出力の関係、(b)は接合数と発振出力の関係を示しており、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。この図から接合数 N の2乗に比例して出力が上昇しており、コヒーレントな発振を示唆している。

式(2.24)と式(2.25)を連立し、周波数を消去すると印加電圧に対して

$$\begin{aligned} V &= \frac{hN}{2e} \cdot \frac{c_0}{2nw} \\ &= \frac{hc_0}{4en} \cdot \frac{N}{w} \end{aligned} \quad (2.26)$$

を得る。これは試料の幅 w と層数 N のみによって発振が起こる電圧が決定することを示している。実際に定数の値を代入してみると、電圧は $V = 74.1 \times N/w$ [mV]となる。Bi2212に含まれるジョセフソン接合1層が $\sim 15.3 \text{ \AA}$ であることから $t = 15.3 \times 10^{-4} N \mu\text{m}$ と表現できる。この関係式と定数の値を式(2.26)に代入すると、

$$\begin{aligned} V &= \frac{hc_0}{4en} \cdot \frac{N}{w} \\ &= 48.2 \cdot \frac{t}{w} \end{aligned} \quad (2.27)$$

を得る[70]。式(2.27)は発振に必要とされる電圧が、メサの形状のみに依存していることを示している。ただし式(2.27)では、図2.13に示されるようなリバーシブル領域、すなわちメサ内の全接合が発振に関わっている場合について成り立つ。発振に関わる層数が変化するリトラッピング領域においては注意しなければならない。

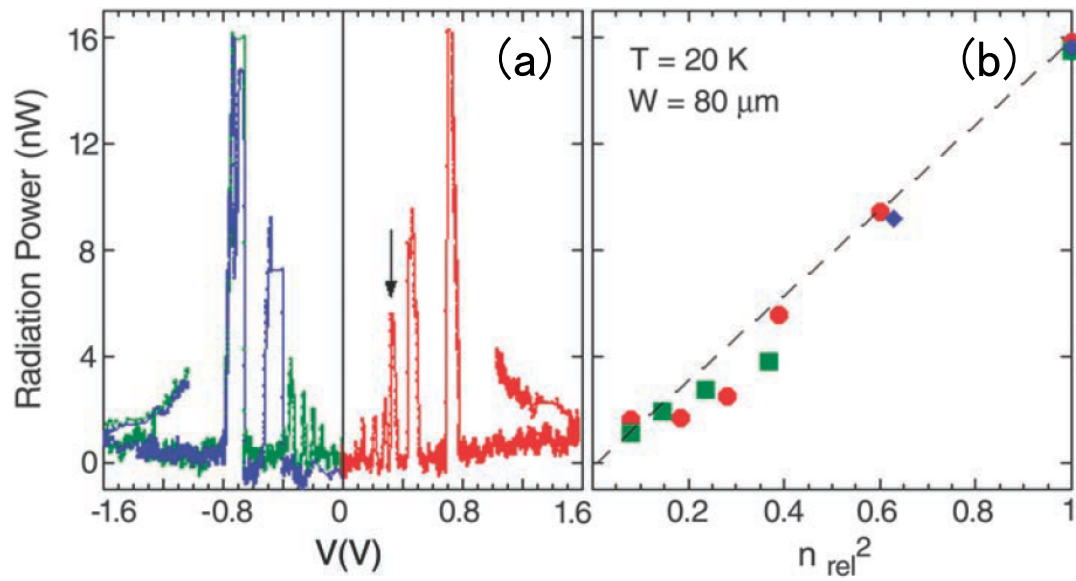


図 2.12: (a) 印加電圧と発振出力の関係。(b) 層数と発振出力の関係 [66]。

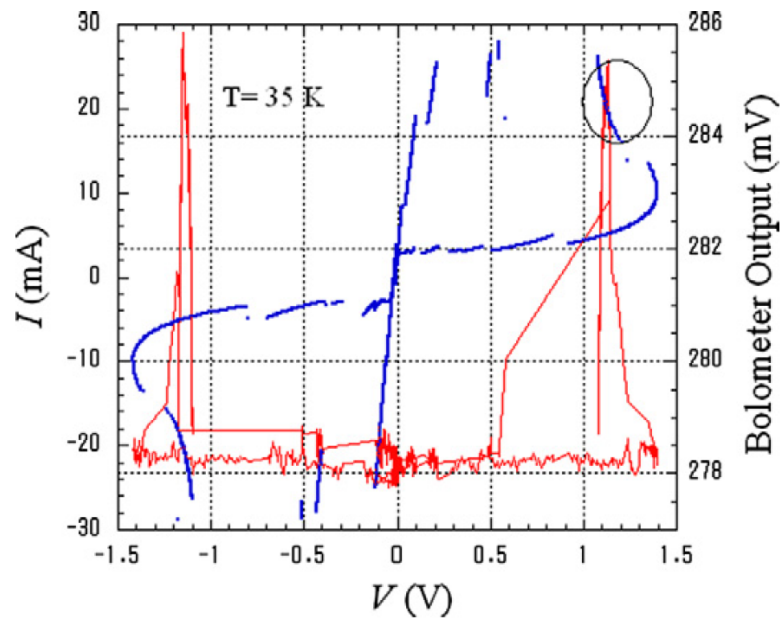


図 2.13: I - V 特性及び発振特性。メサに含まれる全接合に電圧がかかるリバーシブル領域で発振が起こっている。[70]

2.3.4 放射分布特性

以上の内容からは、あたかも交流ジョセフソン効果と空洞共振効果とがどちらも同程度の重要性を持っているかのように思えるかもしれない。しかし、そうではなく、交流ジョセフソン効果が第一の発振原理であることを Tsujimoto 等と Kadowaki 等が実験的に示した [71,72]。彼らは、メサから放射される THz 波の放射分布を測定し、図 2.14(a) のような結果を得た。パッチアンテナの TM(1,1) モード、すなわち空洞共振効果は黒色の点線で描かれているが、これは実験結果とは全く一致しない。一方、橙色の曲線は実験結果を比較的よく再現している。この橙色の曲線は、空洞共振効果の寄与とジョセフソン電流の寄与を適当な比率で組み合わせて得られた曲線である。ジョセフソン電流はダイポールアンテナと同じ電子の運動が想定されるため、ダイポールアンテナと同じ放射分布を仮定している。空洞共振効果のみからの寄与では THz 波発振の放射分布は説明できないため、ジョセフソン電流の寄与が少なからずあるということを確認めた。このように、メサ内部を一様に流れる交流超伝導電流 (ジョセフソン電流) と、メサ内部に励起される TM モードに応じて非一様に流れる電流によって発振特性を考えるモデルは **dual-source** モデルと呼ばれ、この現象を説明する一つの適当なモデルであると考えられている [71–75]。さらに矩形メサの場合、周波数の高調波は、

$$f_{(m,p)} = \frac{c_0}{2n} \sqrt{\left(\frac{m}{w}\right)^2 + \left(\frac{p}{l}\right)^2} \quad (2.28)$$

と表され、このような高次の発振モードの存在も実験的に確認されている [69]。一方、円板型メサでも同様の実験がなされ、興味深い結果が得られている [71]。それは円板型メサの場合、高次の高調波は基本モードの周波数の整数倍にはならないという特徴がある点である。すなわち、

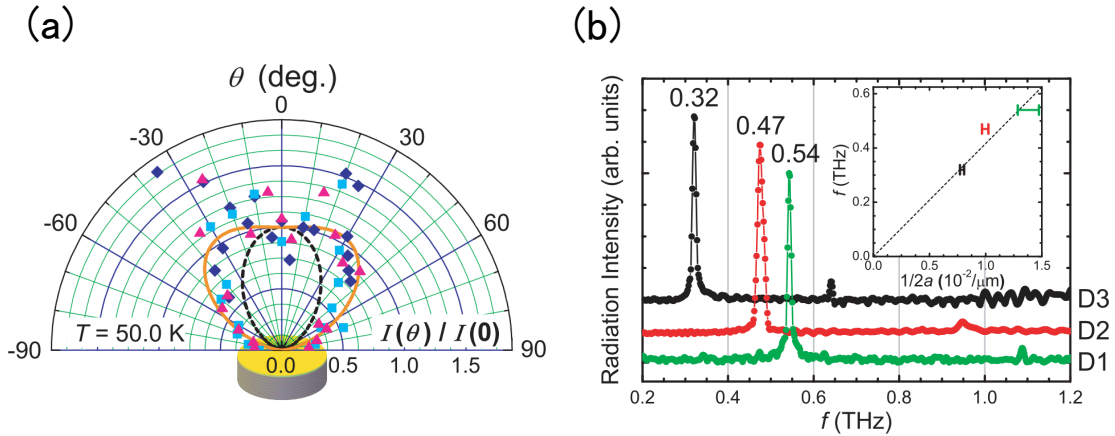


図 2.14: (a) 円板型メサから得られた放射分布の極座標プロット。黒色の点線は空洞共振モードから計算される放射分布で、橙色の実線は空洞共振モードと交流ジョセフソン電流による寄与を組み合わせて最もよく実験結果にフィットするように描いている。空洞共振モードのみでは説明が付かないことがわかる。(b) 3つの半径 a が異なる円板型メサから得られた周波数スペクトル。挿入図の点線は円板型メサにおける最低次の空洞共振モードである TM(1,1) モードを表しており、周波数は空洞共振条件を満たしていることがわかる [71]。

$$f_{(m,p)} = \frac{c_0 \chi_{mp}}{2\pi n a} \quad (2.29)$$

であり、 $\chi_{mp} = k_{mp} a$ は $J'_m(\chi_{mp}) = 0$ を満たす値である。ここで、 k_{mp} は波数、 $J_m(\chi_{mp})$ はベッセル関数である。 χ_{mp} は数値解が与えられていて、基本波 $\chi_{11} = 1.8412 \dots$ 、高次モードは $\chi_{21} = 3.0542 \dots$ 、 $\chi_{01} = 3.8317 \dots$ 、 $\chi_{31} = 4.2012 \dots$ と続く。一方、ジョセフソン効果による高調波は基本周波数の整数倍でなければならないので、高次の発振周波数を見れば、高次モードが空洞共振効果とジョセフソン効果のどちらに由来するものなのか区別することができる。実験結果は図 2.14(b) のように 4 つの円盤型メサで全て基本波の倍の周波数で高次モードが得られている。これは取りも直さずジョセフソン効果による非線形性のため起こる高次モードであることを証明しており、空洞共振の高次モードでは説明できない。すなわち発振は交流ジョセフソン効果が第一原理として働いていることを意味している [71]。

2.3.5 ブランチ構造

Bi2212 の c 軸方向に電流を流した場合、図 2.9(a) のように I - V 特性にブランチ構造が現れる [27]。このブランチの数が、素子に含まれる固有接合の数に対応している。Kleiner 等による実験のおよそ 20 年後、より大きなサイズのメサ構造を使用して、このブランチ構造における THz 波発振が Tsujimoto らにより詳しく調べられた [76,77]。

図 2.15(a)、(b) はそれぞれ、集束イオンビーム (FIB) 加工によって得られた溝形メサ構造と単独メサ構造から得られた結果である。 I - V 特性上のカラーコードのプロットは、その点における周波数を表している。黒い四角は、周波数測定をしたが発振が検出されなかった

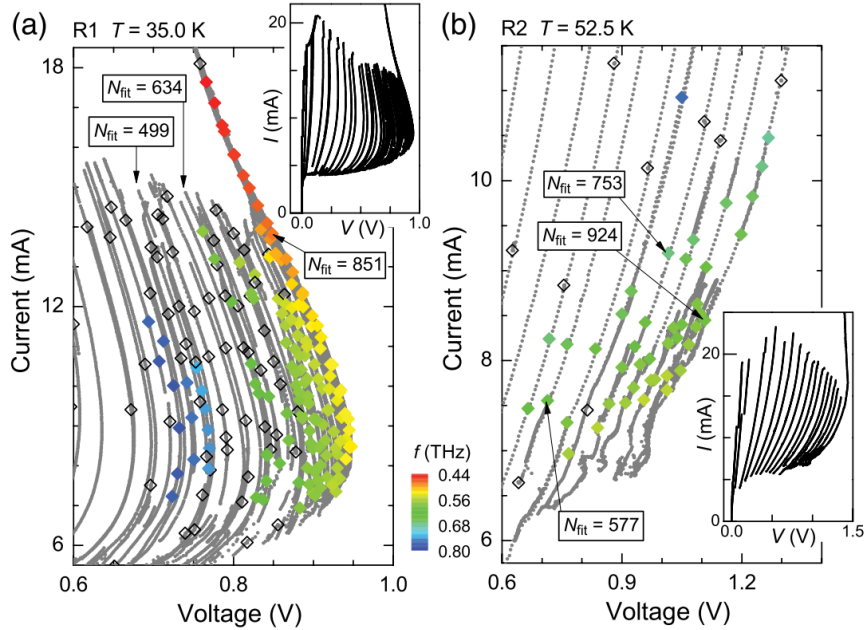


図 2.15: I - V 特性で見られるブランチ構造と発振周波数特性。周波数測定点の色は、カラーコードで示された周波数を意味する。(a) は FIB 加工によって作られた溝形メサ構造、(b) は単独メサ構造から得られた結果である [76]。

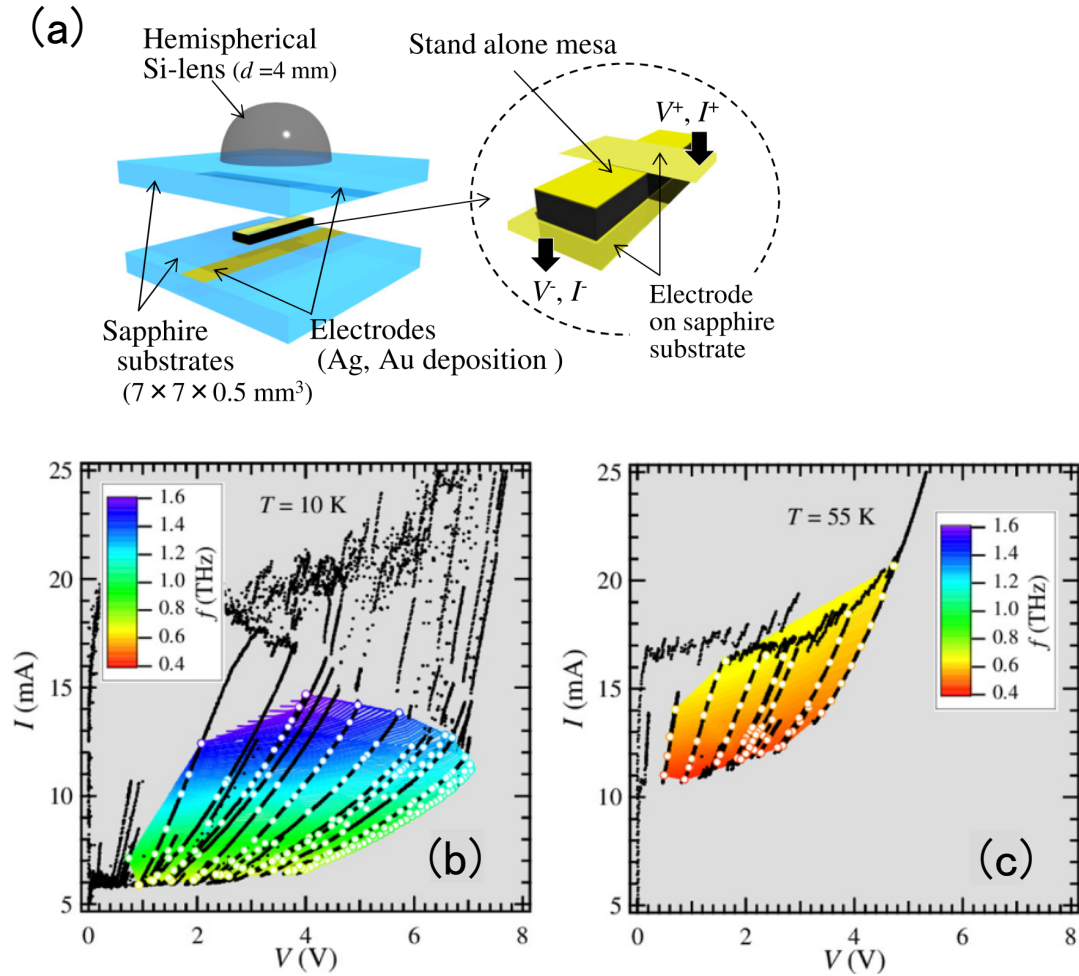


図 2.16: (a) 排熱性を高めた単独メサ構造の一例。 I - V 特性で見られる (b)10 K 及び (c)55 K でのブランチ構造。周波数測定点の色は、カラーコードで示された周波数を意味する [78]。

点である。また、挿入図は各素子の測定されたブランチ構造の全体像である。図 2.15(a) の実験結果から、内部ブランチに入るほど、高い周波数の発振が得られていることがわかる。この原因は、内部ブランチに入ると電圧が印加される接合数が少なくなり、ジュール発熱が小さくなった結果、接合あたりに印加される電圧が大きくなるためである。接合あたりに印加される電圧が大きくなれば、ジョセフソン関係式 (2.19) から高い周波数の発振が期待でき、実際に図 2.15(a) で得られた結果となる。しかしこれは、メサ直下の基板が残った従来型のメサ構造を使用しており、メサの温度上昇が容易に起こる場合の実験結果であることが後に以下のように明らかにされる [78–80]。

単独メサ構造のブランチ構造における発振特性が、最近、Kashiwagi らによって詳しく調べられた [78–80]。単独メサ構造については詳しくは後述するが、これらの報告においては図 2.16(a) のように Bi2212 メサ構造を Ag と Au を線状に蒸着したサファイア基板で挟み込んだ構造が使用された。Si-半球レンズによって集光することで、微弱な発振も検出できる工夫もなされている。このような素子を使用して内部ブランチにおける発振特性を測定した結果が図 2.16(b) 及び図 2.16(c) である。メサ構造の上部、下部の両面にサファイア基板が密着していることで、排熱効果が飛躍的に高まり、10 K においては ~ 7 V もの電圧が

印加されている。また、 I - V 特性に高電流領域において負性抵抗が現れない点が特徴である。ただし、図 2.16(b)、(c) の実験において使用されたメサ構造は、幅が $58 - 66 \mu\text{m}$ 、長さが $350 \mu\text{m}$ であるが、厚さが $4.7 \mu\text{m}$ と通常より厚いため、 10 K の 7 V 付近ではかなり温度が上昇し、素子温度は数十 K 上昇している可能性がある。

図 2.16(b) 及び図 2.16(c) においても内部ブランチにから発振が観測されているが、図 2.15(a) とはかなり様子が異なっており、むしろ図 2.15(b) に近い。従って、 I - V 特性のブランチ構造における周波数特性は、素子構造の排熱効果を反映していることは明らかである。従来型メサ構造のように排熱効果が低く、内部ブランチに入るに従って接合あたりの電圧が大きくなる場合には図 2.15(a) のように周波数は高くなるが、単独メサ構造のように排熱効果が高く、接合あたりの電圧があまり変化しない場合には図 2.16(b) や図 2.16(c) のように周波数はあまり変化しない。

このような素子構造を使用して、2015 年、内部ブランチにおいて 2.4 THz までの発振が検出された [79]。これが 2016 年 2 月現在の最高記録である。本研究では 2014 年、単独メサ構造を使用して初めて 1.0 THz を超える実験結果を得た。

2.3.6 メサ構造の温度分布

THz 波発振素子として使用するメサ構造において、非一様な温度分布が生じることが 2009 年、Wang らによって報告された [81, 82]。この報告では、低温走査レーザー顕微鏡 (low temperature scanning laser microscopy, LTSLM) を使用してメサ表面の電位差を測定することで、図 2.17 のように局所的な温度上昇を観測した。その結果から彼らは、この温度上昇が発振機構に重要な役割をしていると主張した。しかし、メサ表面の実際の温度分布や、図 2.17 の電位差の波状構造 (定在波) がどのような現象を反映しているのかなど、本質的な部分に不明点が多く残っていた。

Yurgens は 2011 年、シミュレーションソフト Comsol を使用して、メサ構造の温度分布

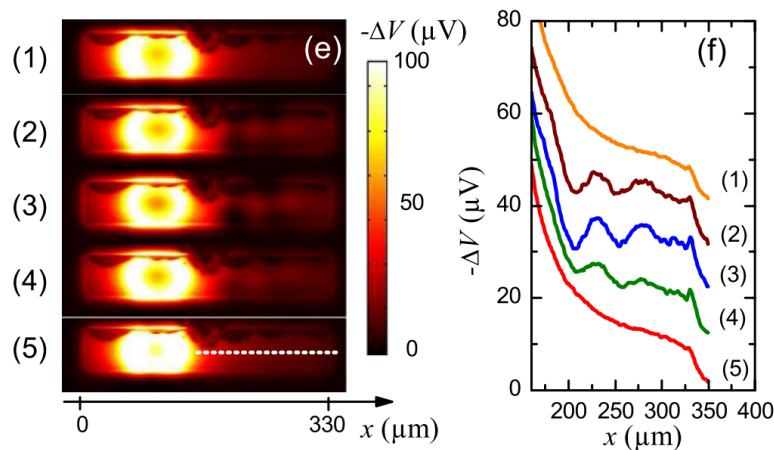


図 2.17: 低温走査レーザー顕微鏡 (LTSLM) によって検出された電位分布 [82]。(a) メサの左側にはスポット上の電位勾配が生じており、右側には波状構造 (定在波) が現れている。(b)(a)(1)-(5) それぞれにおける、(5) の白点線のようにメサを短辺方向に 2 分する直線上の電位分布。

の数値解析を行い、図 2.18 のようにメサの内部では T_c を局所的に超えるような領域が現れることを見出した [83]。メサ構造の温度分布において局所的に T_c を上回る領域は特に、ホットスポット (hot-spot) と呼ばれ、通常金属や金属系超伝導体などにおいて、また応用分野では超伝導線材や半導体デバイスにおいてよく観測される現象である [84]。

ホットスポットの形成機構は定性的には以下のように説明される。まず、準粒子電流によってジュール発熱が起こる。発熱が起こると、メサの構造があるために一様に温度上昇することではなく、非一様な温度分布が生じる。 c 軸電気抵抗率が図 2.19(a) のような負の温度係数を持つため、温度が上昇した領域にさらに準粒子電流が流れ込み、発熱が増々大きくなる。このような正のフィードバック効果が働くことで局所的に極端な温度上昇が生じ、ホットスポットが形成される。図 2.19(b) は Bi2212 の熱伝導率の温度依存性を示すが、このように熱伝導率が ab 面内及び c 軸方向共に低いため、生成された熱を閉じ込める効果が生じ、ホットスポットの形成がさらに助長されている。

ホットスポットと I - V 特性の関係が、Gross らによって理論及び実験の両面から調べられた [85]。図 2.20(a) は、測定された I - V 特性と、有限要素法を用いて、ホットスポットを 3 次元熱拡散方程式によって取り込んで解析した I - V 特性を比較している。3 mA 以上の電流領域において、 I - V 特性はシミュレーションによってよく再現されている。(b) はそのときのメサの長辺方向に対する温度変化を示している。曲線の各番号は、(a) 内の番号付けられたバイアス点に対応している。このように、1.2 V から 1.5 V への電流 - 電圧特性のジャンプより高い電流領域ではホットスポットが現れており、ホットスポットの半径は電流を大きくするに従い大きくなることが、シミュレーションによって再現されている。

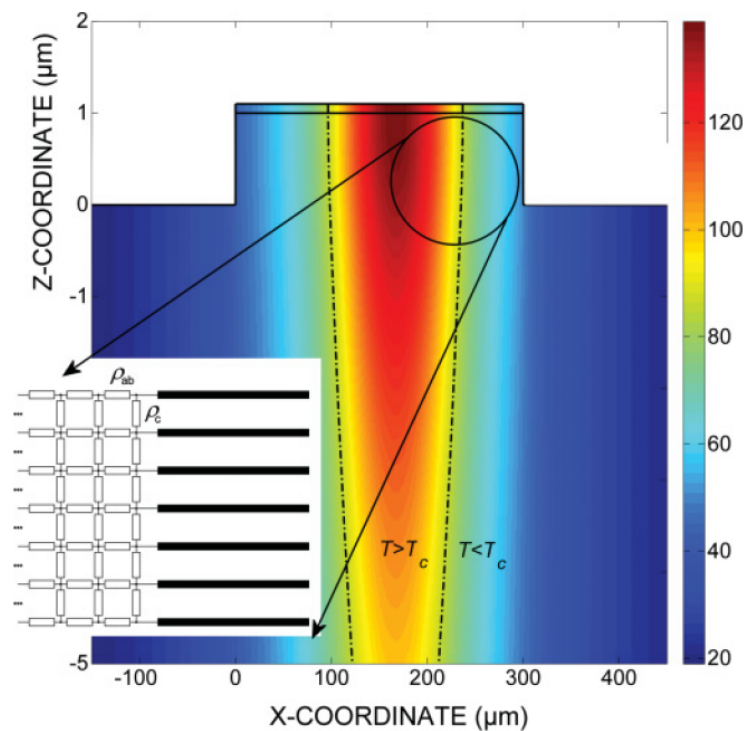


図 2.18: Bi2212 メサと基板の断面の、電流密度 $j = 1.33\text{MA/m}^2$ における温度分布シミュレーション。横軸はメサの長辺方向、縦軸は厚さ方向である。図中の一点鎖線は $T = T_c$ となる温度を示している [83]。

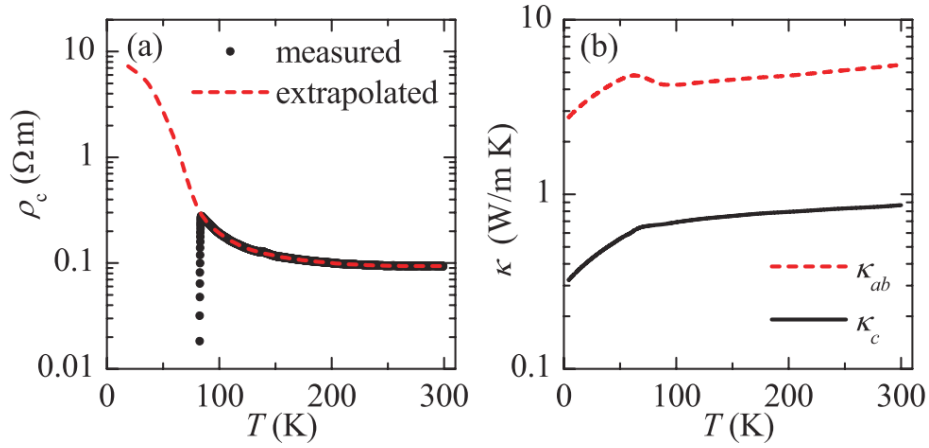


図 2.19: (a)Bi2212 の c 軸電気抵抗率の温度依存性。 T_c 以下の抵抗率は、20 Kにおいて測定された電流 – 電圧特性にフィッティングをすることによって外挿した。(b)Bi2212 結晶の ab 面内及び c 軸方向の熱伝導率 [85]。

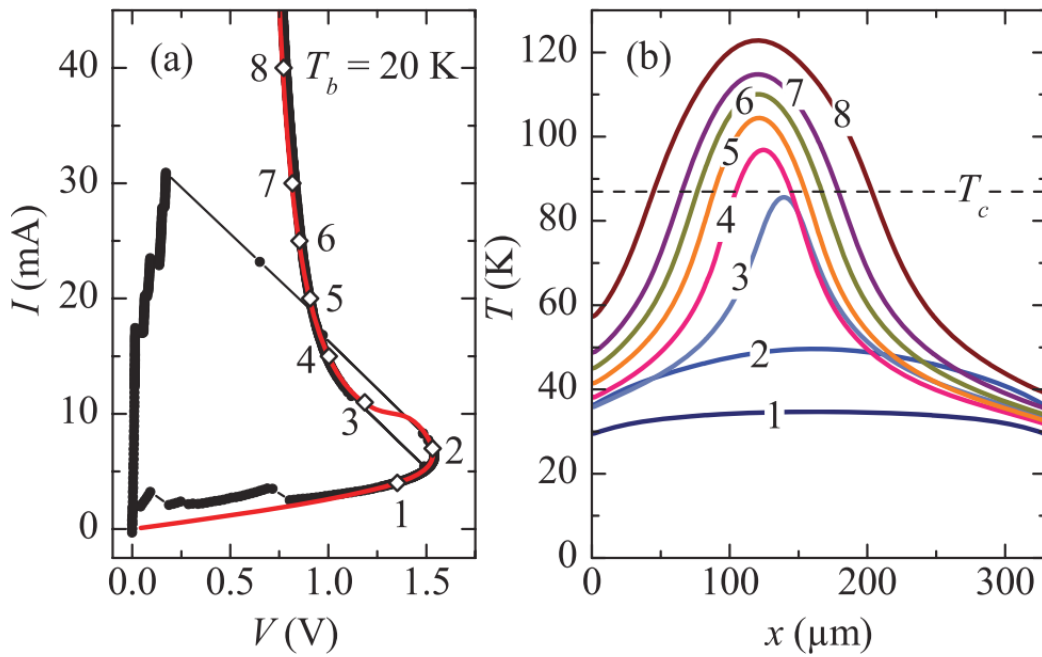


図 2.20: 3次元熱拡散方程式による数値解析と実験データの比較 [85]。(a) 熱浴温度 20 K における測定 (黒) とシミュレーション (赤実線) による電流 – 電圧特性。(b) メサの長辺方向に対する温度変化シミュレーション。図中の番号は、(a)における菱型の番号に対応している。

Minami と Watanabe らは、このようなホットスポットの振る舞いを含めた、メサの温度分布の直接観測に成功した [86,87]。彼らは、矩形メサ (幅 79-89 μm 、長さ 400 μm 、厚さ 2.4 μm) 上に SiC の粉末を一様に塗布し、SiC のフォトルミネッセンスを検出することで実際の温度を高い空間分解能 (数 μm) で測定し、同時に I - V 特性とボロメータによる発振の検出を行った。図 2.21 は、熱浴温度 35 K における (a) I - V 特性と、そのときの (b) 電圧 V に対するボロメータの応答、(c) 電流 I に対するボロメータの応答、(d) 6 点の電流値 (H1-H6) それぞれに対する温度分布のカラーコードによるプロットである。(e) はメサの温度プロファイルを示している。

このように、 T_c を超える局所的な温度上昇が観測されたが、Wang らによって報告された長辺方向の定在波は全く見られず、観測されていた定在波は温度分布とは少なくとも実験誤差内では無関係であることが示された。また、熱浴温度 55 K 付近の高温での測定では、ホットスポットが観測されない領域で高出力な発振が起こることから、ホットスポットが発振機構と密接な関係はなく、むしろホットスポットの存在は発振を阻害する要因であることが結論されたのである。

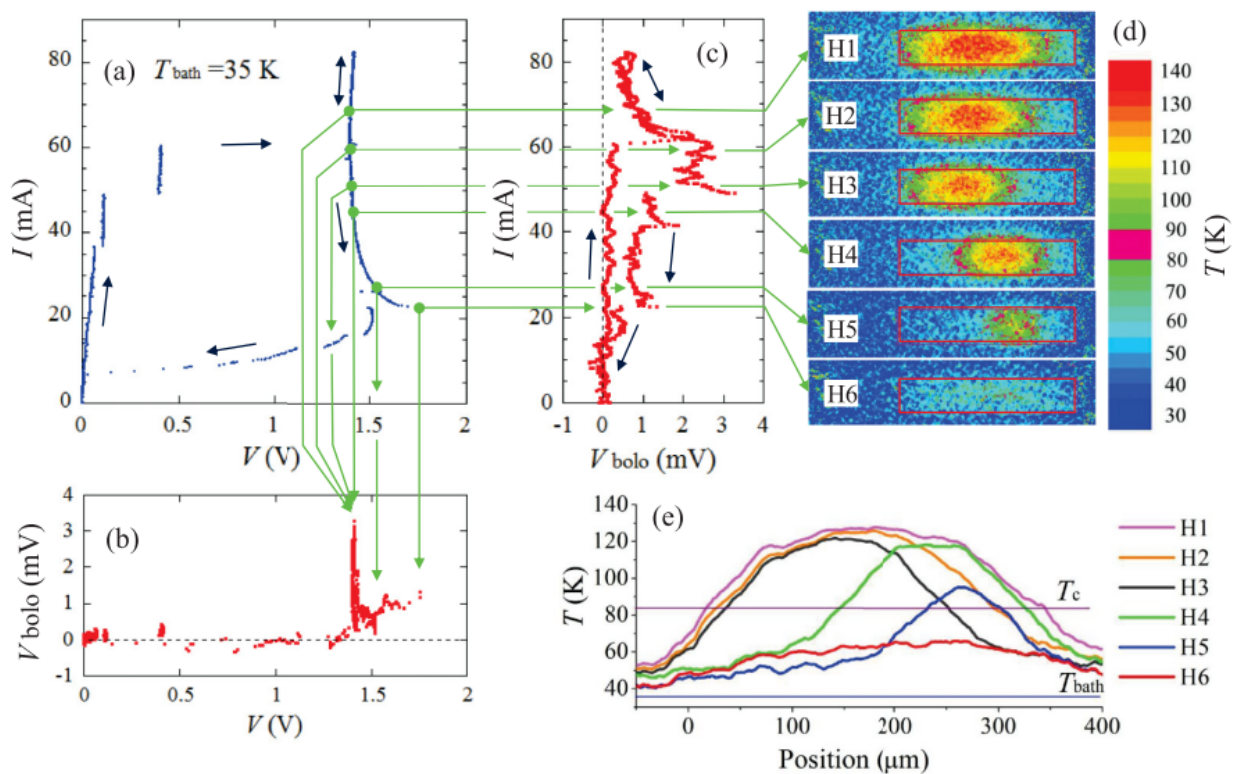


図 2.21: SiC のフォトルミネッセンスを使用した直接的なメサの局所温度分布の観測。(a) 熱浴温度 35 K における I - V 特性。Si-ボロメータの (b) 電圧、(c) 電流に対する出力電圧。(d) 電流値 6 点 (H1-H6) それぞれに対する温度分布のカラーコードによるプロット。(e) メサの長さ方向に対する温度分布。メサをの幅を 2 分する直線上の温度変化に対してスムージングをかけている [87]。

さらに Tsujimoto らは、ホットスポットの大きさを制御したときの発振への影響を観測することで、ホットスポットの効果を調べた [88]。彼らは、図 2.22(a)、(b) のように、2 つの Ag 電極をメサ上に取り付け、それぞれの注入電流を制御し、温度分布と発振出力を観測した。すると、2 つの電極に等電流を注入した場合 (uniform) と一方から電流を注入した場合 (nonuniform) とで、ホットスポットの大きさが異なり、前者は大きい、後者は小さいホットスポットが形成されることがわかった。この様子が、図 2.22(d) の上部に示されている。図 2.22(c) は、2 通りの電流注入方法における電流 – 電圧特性である。点線で囲まれた領域 (d)、(e) の温度分布像と Si-ボロメータの応答がそれぞれ図 2.22(d)、(e) に表されている。ホットスポットのない (e) の領域では、注入電流によって温度分布は変化せず、Si-ボロメータの応答も変化しない。ホットスポットが形成される (d) の領域では、電極の一方から電流を注入するとホットスポットは小さくなり、発振出力は増大する。このように、ホットスポットは発振に対して悪影響を与えていることが改めて実験的に示された。この原因としてはホットスポットが超伝導の体積を小さくしているためであると主張された。

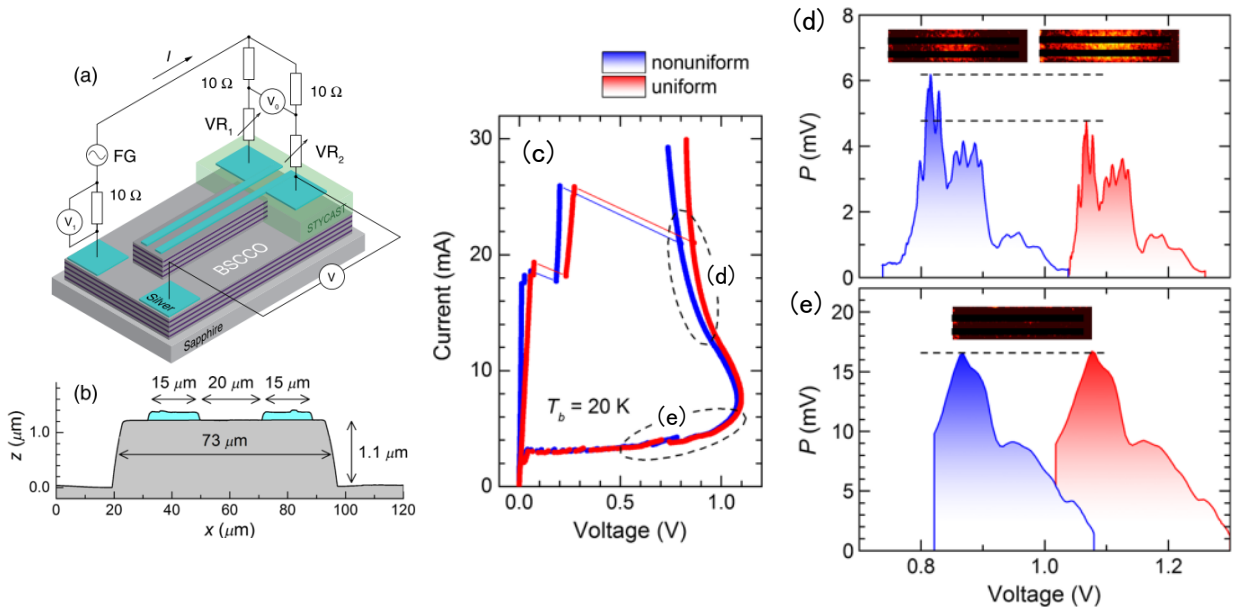


図 2.22: (a) 電流の注入方法を変化させるためのメサへの電極の取り付け方と回路図。(b) 測定したメサと電極の断面図。(c) 2 つの電極から電流を一樣に注入した場合と非一樣に注入した場合の I - V 特性。点線 (d)、(e) で囲まれた領域における Si-ボロメータの応答とそのときの温度分布像を、それぞれ (d)、(e) に示す [88]。

2.3.7 高出力化の試み

高出力化を行うための理論的提案として、メサ内の温度を制御することや磁場を印加することによって臨界電流をメサ内部で変調させる手法がある [89,90]。しかしこれらの方法は技術的に高いレベルを要することから実験的にはほとんど行われていない。本小節では実験的試みがあり、成功した例としてメサ構造のアレイ化と単独メサ構造を取り扱う。

メサ構造のアレイ化

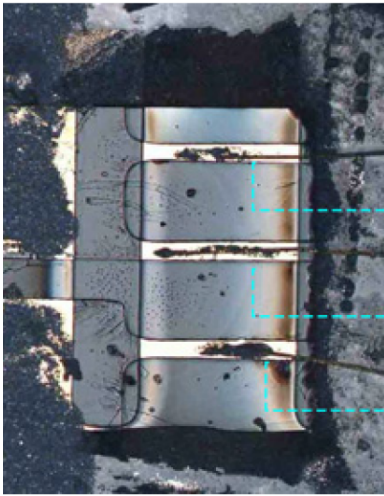
Bi2212 を使用した THz 波発振器にとって、応用上の最も大きな課題の一つは THz 波発振の高出力化である。Barbara らは従来型超伝導体を使用したジョセフソン接合のアレイ構造により、電磁波発振の高出力化を図った [14]。彼らの実験結果から、発振出力 P はジョセフソン接合の枚数 N の 2 乗に比例し、 $P \propto N^2$ と表されることが確かめられた。この原理を利用すれば、Bi2212 の固有ジョセフソン接合においても、アレイ化により更なる高出力の発振が見込める。Bi2212 の場合、メサを厚くすることでジョセフソン接合の接合数を多くできるが、発熱が厚さに比例して増大し THz 波発振に深刻な悪影響を及ぼす。従って、アレイ化することで発熱の問題を避けながら接合数の増大による高出力化が考えられる。Bi2212 のメサを使用して、二つのメサの協調動作を実験的に確認したのは Orita 等が最初である [91]。彼らは $200\ \mu\text{m}$ 離れた、 $50 \times 400 \times 1.3\ \mu\text{m}^3$ 程度の大きさの二つのメサの間で、同時に電圧を印加することで、発振出力が約 3.2 倍になる実験結果を得た (図 2.23)。 $P \propto N^2$ の関係式からは、発振出力は 4 倍になることが期待される。アレイ化による放射分布の変化等、詳細な実験データは報告されていないが、二つのスペクトル出力は単純な和とはなっておらず、周波数の引き込みが起こり、協調動作していると考えられる。この実験は、メサのアレイ化による高出力化が、条件が整えば可能であることを示した。

2013 年、Benseman らによって、3 つのメサの同時バイアスによって、最高出力が 0.61 mW に到達したとする報告がなされた [68]。図 2.24(a) は測定されたメサ構造、(b) はメサが 1 個、2 個、3 個それぞれの場合に観測された最大出力である。熱浴温度はそれぞれの場合において最適化されており、1 個、2 個、3 個のときの熱浴温度はそれぞれ 55 K、50 K、40 K である。このように最適な熱浴温度が変化してしまう原因は、メサのジュール発熱による温度上昇である。この温度上昇によって各メサの I - V 特性は変更を受け、これに伴い発振出力も変化するため、最高発振出力が得られる熱浴温度が同時バイアスするメサの個数によって変化するのである。図 2.24(c) はアレイ化したメサにおける振動電場の c 軸成分の数値解析であり、Bi2212 基板があることによって、隣接したメサの間の協調動作が促進されることを示している。この論文 [68] 中では再現性が議論されており、3 つのメサの組み合わせが異なる場合には 0.61 mW の出力は得られないものの、0.1 mW オーダーの出力は得られることが報告されている。しかし、高出力発振が得られるときのメサの実際の温度や電流、電圧の条件、隣接するメサ間の距離の最適値、放射分布等、詳細な実験データが不足しており、更なる追加実験が必要とされている。

単独メサ構造

従来のメサ構造では作製プロセスの都合上、図 2.25(a) のようにメサの直下に Bi2212 基板が残っていた。Klemm らは、アンテナ理論に基づく計算から、図 2.25(b) のように Bi2212

(a)



(b)

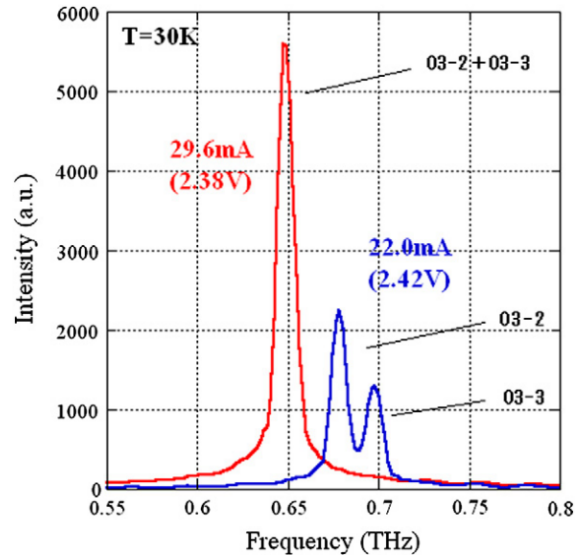


図 2.23: 2つのメサの協調動作による高出力化 [91]。(a)Bi2212 基板上に形成された3個のメサを示す。メサの大きさは、 $50\text{-}60 \times 400 \times 1.3 \mu\text{m}^3$ である。(b) 一つの定電圧源を使用して二つのメサを同時に直列バイアスすることで、 I - V 特性のリバーシブル領域において観測された発振の様子。バイアス電圧 2.42 V、バイアス電流 22.0 mA では2個のメサは独立に発振しているが、2.38 V, 29.6 mA では引き込み現象が起こり1本のスペクトルとして現れている。出力はピーク値で3.2倍に増加している。

基板を取り除き Au や Cu のような金属をメサの上部と下部の両側の電極に使用することで、THz 波発振の飛躍的な高出力化が期待できるとする理論を発表した [73]。このようなメサは単独メサ (stand-alone mesa) 構造と呼ばれ、彼らの計算によると理想的な条件下では 5 mW もの発振出力に到達することができる。さらに、この構造を使えば排熱効果が高くなるため、より高い電圧まで到達することでより高い周波数の発振が期待できる。

この理論に基づいた実験結果は2012年に初めて報告され、Yamamotoによって作製された単独メサを使用して積分出力で $10 \mu\text{W}$ オーダーの発振を実現した [69]。2007年の時点で従来型のメサから得られていた発振出力は $0.5 \mu\text{W}$ であったので [66]、1桁以上の出力の向上を実現したことになる。

2013年、関本らは Bi2212 基板を薄くした単独メサに近い構造を作製し、 $82\text{-}92 \times 400 \times 2.8 \mu\text{m}^3$ の大きさの単一のメサ構造から $30 \mu\text{W}$ の高出力発振を得た [67]。単一のメサ構造からの出力としては過去最高であり、2016年2月現在も最高出力の記録として残っている。

関本らによる単独メサに近い構造からの高出力発振は、Bi2212 の THz 波発振器において更なる高出力化が実現可能であることを示しており、単独メサ構造においてメサの大きさや排熱効果を制御することで、彼らの結果を上回る可能性が高い。最近になって単独メサ構造の利点が認識されてきたことで、国内外の研究機関において単独メサ構造を作製する取り組みが徐々に活発になってきている [78–80, 92–96]。

本研究では、単独メサ構造の作製方法の改良による高出力かつ高周波数の発振を得ること、及び高出力発振を得るための発振機構の解明を目指して研究を行った。

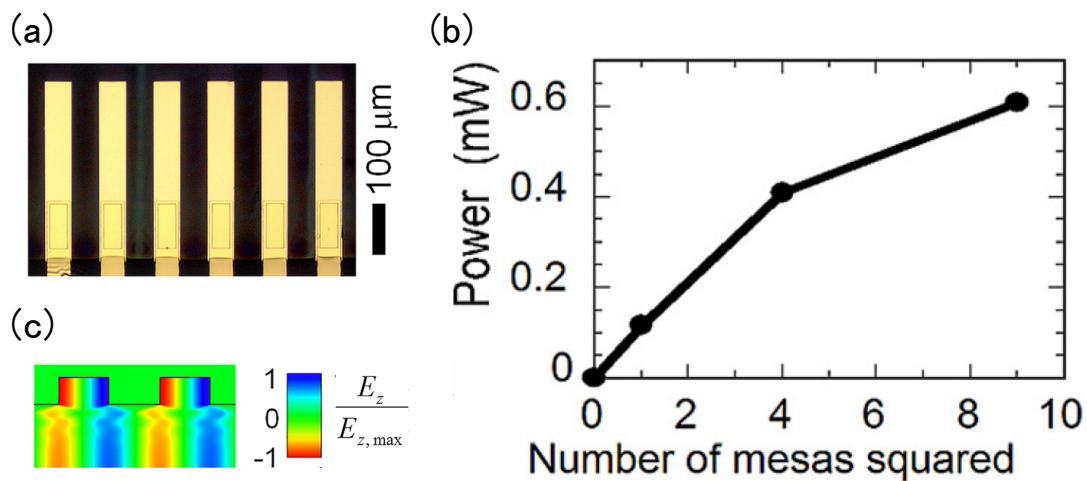


図 2.24: 3 つのメサの協調動作による高出力化 [68]。 (a) 測定に使用されたメサ構造。一つのメサの大きさは、 $60 \times 350 \times 0.75 \mu\text{m}^3$ である。 (b) 同時バイアスするメサの個数に対する最大発振出力の関係。 (c) アレイ化したメサにおける電場の c 軸成分の数値解析。このように複数のメサ間で電磁場の結合 (electromagnetic coupling) が起こりうることを示している。

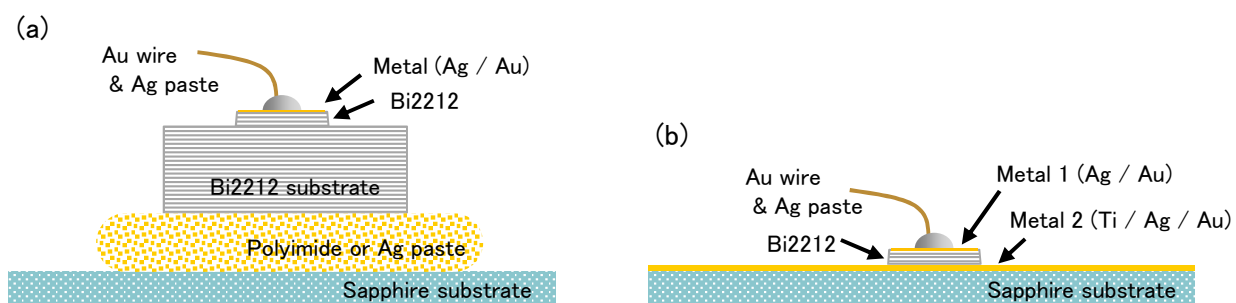


図 2.25: (a) 従来型メサ構造と (b) 単独メサ構造の断面の概念図。

第3章 実験方法

本研究で使用した山本卓博士提供の $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) は、TS-FZ 法 (浮遊帯域溶融法) により育成された高品質単結晶である [97, 98]。本研究の全ての測定には、この単結晶から作製した単独メサ構造を使用した。以下に、単独メサ構造の作製方法と測定方法を述べる。

3.1 単独メサ構造の作製方法

図 2.25(b) に、単独メサ構造の断面を概念的に示した。単独メサ構造はメサ構造とサファイア基板の間の下部電極が、熱伝導の観点から非常に重要である。この下部電極とメサとの接着の良し悪しが排熱効率に影響し、発振素子としての特性を大きく左右する。以下に、単独メサ構造の作製工程の全体像を述べた後、下部電極として使用した 3 種類の金属についてそれぞれ説明する。

3.1.1 単独メサ構造作製の全体像

単独メサ構造は従来型メサ構造と比べると高度な作製技術を要するものの、構造がシンプルであるため、作製工程はそれほど複雑ではない。作製工程の全体像を図 3.1 にフローチャートで示す。

以下に、各工程における詳しい方法や、作製条件とその理由を述べる。尚、本研究では正確に測定できるような素子を作製することを第一の目標としたため、作製条件は最適化されておらず、多くの改善点を含んでいる。以下の作製工程を参考にして、今後さらに特性の良いメサ構造を作製することが望まれる。

1. Bi2212 結晶の両面を劈開、Ag、Au の蒸着

結晶表面を保護し、電極を取るために行う。結晶の両面に対して劈開、蒸着を行う方法は複数考えられる。室温硬化型銀ペースト (Dupont、型番: 4922N) のような可溶性の接着剤を用いる方法や、リバアルファ (日東電工) のような熱剥離シートを用いる方法等である。例えば銀ペーストを用いる場合には、結晶をサファイア基板に固定し、劈開、蒸着をした後、アセトンのような溶剤で基板から結晶を剥がし、結晶の裏面に対しても同様にへき開し、蒸着を施す。

劈開した直後に蒸着を行うことで、結晶表面の劣化を防ぐ。本研究では蒸着膜の厚さは Ag が $\sim 90 \text{ nm}$ 、Au が $\sim 10 \text{ nm}$ とした。蒸着膜をこのように十分に厚くすることで、 $\sim 1 \mu\text{m}$ の薄いメサに金属の弾性を与えて屈曲を防ぐことができ、取り扱いが容易になる。さらに、圧着をした際に Bi2212 の側面とサファイア基板側の電極が触れる可能性を排除することができる。また、蒸着膜の厚さを $\sim 0.1 \mu\text{m}$ とすることで、接合数

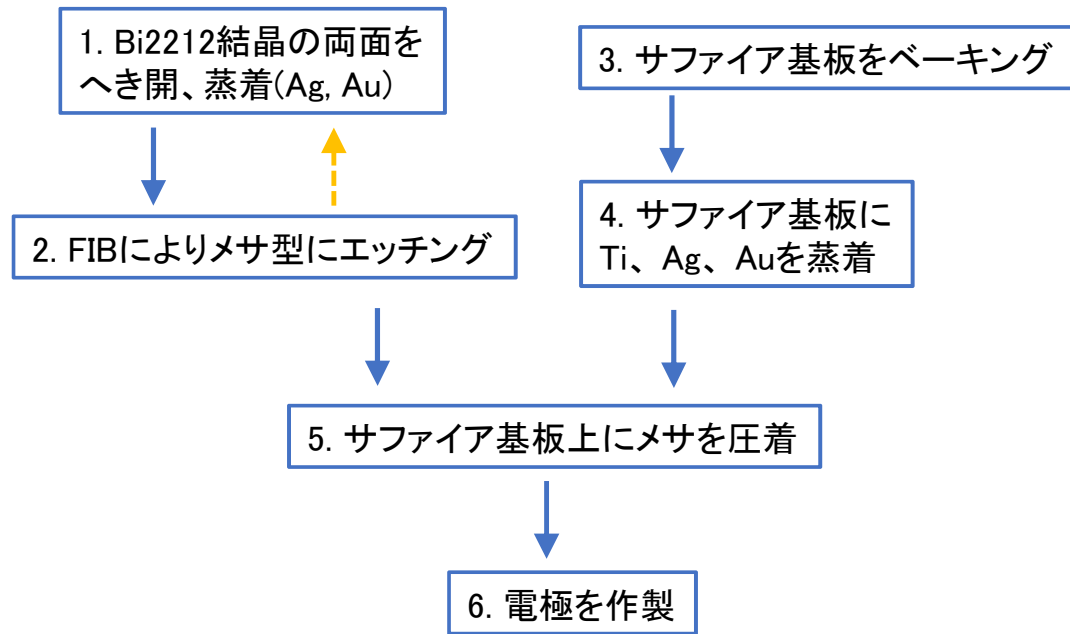


図 3.1: 単独メサ構造の作製工程。

の見積りが簡単になる。経済的な事情により Ag を厚くし、表面の酸化を防ぐ目的で Au を使用している。

尚、目標とする厚さまで劈開するのだが、感覚に頼らなければならず正確に厚さを決定できないことは問題点である。

2. FIB によりメサ型にエッチング

1. で作製した試料を、ガラス基板またはサファイア基板の上に Ag ペーストを使用して固定する。集束イオンビーム装置 (Focused Ion Beam machine、FIB、セイコーインスツルメンツ、型番:SMI2050) を使用するため、金属ペーストが望ましい。このとき Ag ペーストは、試料の全面に塗布するのではなく、試料にわずかに触れる程度にする。FIB のエッチングによりメサ構造を基板上に落下させ、それを静電気を利用して回収するためである。FIB によって任意の形状のメサ構造を作製することができる。試料が厚すぎる場合には、劈開と蒸着をやり直す。

3. サファイア基板をベーキング

250℃で30分間、ベーキングを行うことで、サファイア基板の表面に含まれるガスを抜く。基板内のガスが十分に抜けていないと、圧着の工程で加熱する際に基板から気泡が生じ、蒸着膜に凹凸が発生してしまう。

4. サファイア基板に Ti、Ag、Au を蒸着

サファイア基板に Ti を 10–20 nm、Ag を ~90 nm、Au を ~10 nm、この順に蒸着する。Ti はサファイア基板から Ag と Au の蒸着膜が剥がれにくくする効果がある。また、Ag と Au の蒸着膜の厚さは、発熱がほとんど影響しない程度の電気抵抗率とな

れば十分であるが、工程 1 と同時に Ag、Au の蒸着を行うことで、蒸着の回数を減らしている。

5. サファイア基板上にメサを圧着

工程 2 で得たメサを、工程 4 で作製した基板上に置く。その上から厚さ 0.5 mm のガラス板を乗せ、試料(サファイア基板/メサ/ガラス板)をヒーター上に置く。ヒーターの温度を 200 °C まで、 ~ 10 °C/min. で上昇させる。昇温させる目的は Au 同士の接着を良くすることであるが、Bi2212 結晶の性質が変化しないよう、200 °C に設定した。200 °C に到達したら、ガラス板の上からピンセットを使用して圧力 ($1\text{--}3 \times 10^8$ Pa) を印加し、接着する。10 秒程度、圧力を印加すれば接着する。ここで、圧力を印加する際には、メサの直上から鉛直に力が加わるように注意する。

6. 電極を作製

メサの下面は既に基板から電極を取っているため、上面のみ、電極の取り方を考えればよい。本研究では、熱硬化型 Ag ペースト (Dupont、型番:6838) を使用して Au 線をメサの上面に取り付け電極を作製した。繰り返し実験を行うと Au 線が外れてしまう恐れがあるが、作製者の技術さえあれば確実に電極を作製することができる。一方、Au の蒸着によって電極を取る場合には、電極が外れる恐れがない上、他の物質を塗布したり、複数の電極を取り付けたりと、様々な実験に使用できるメリットがある。しかし、電気的特性(例えば、電流 – 電圧特性)が正確に測定できなかった場合に、メサの上面と下面の電極のどちらに問題があるのか特定できない。そのため、本研究では上面の電極を確実に取ることができる Ag ペーストと Au 線を使用して、電極を作製した。

以上の作製方法により、表 3.1 の 3 つのサンプルを作製した。サンプルの大きさは原子間力顕微鏡 (AFM) で計測した。短辺の長さについてはメサの上部 (w_t) と下部 (w_b) を示した。発振特性に関する測定結果は、第 4 章以降に示す。

表 3.1: 本研究で作製した単独メサ構造の大きさ。

| | 短辺 ($w_b\text{--}w_t$) [μm] | 長辺 (l) [μm] | 厚さ (t) [μm] |
|------------|--|------------------------------|------------------------------|
| Sample # 1 | 74-84 | 280 | 1.9 |
| Sample # 2 | 75-88 | 290 | 2.0 |
| Sample # 3 | 81-98 | 400 | 2.5 |

3.1.2 各種電極材料における特性

第4章以降、本論文で取り扱う実験データは、全て Au 電極を介した接着を行った。前述した Au による接着方法に辿り着くまでに、大きく分けて2つの試みを行ってきた。以下に紹介する2つの試みはどちらも失敗に終わった内容であるが、これらの取り組みがあったため、Au を用いた接着方法に集中して取り組むことができた。

Ag ペーストを用いた場合

まず、図 2.25(b) の Metal 2 の部分に Ag ペーストを用いた場合の実験結果を示す。素子の作製方法は以下の通りである。両面に Ag と Au の蒸着を施した Bi2212 を、Ag ペーストを使用してサファイア基板に貼り付ける。このとき、サファイア基板に塗る Ag ペーストはできるだけ薄くなるようにする。その後、FIB によってメサの形状になるよう打ち抜き、電極を取り付ける。

このように圧着の工程がないため、簡単に単独メサ構造を作製することができ、作製方法にやや違いがあるものの他の研究グループでもこの構造を使用した実験が行われてきた。この方法で作られた単独メサ構造の光学顕微鏡像を図 3.2(a) に、抵抗－温度特性を図 3.2(b) に示す。

Sample A の大きさは $80 \times 400 \times 2.0 \mu\text{m}^3$ であり、Sample B は $80 \times 400 \times 2.3 \mu\text{m}^3$ である。ほぼ同じ大きさの2つの素子について I - V 特性及び発振特性を測定をすることができ、その結果は図 3.3、図 3.4 に示す。

図 3.3(a) と図 3.4(a) を比較すると、まず、 I - V 特性の最大印加電圧が大きく異なり、2倍程度の差がある。これは主に、メサ直下の Ag ペーストの厚さが異なることに起因して、排熱効果に差があるためと考えられる。ボロメータの応答を比較すると、図 3.3(b)、(c) では 40 K において高出力な発振を検出しているが、図 3.4(b)、(c) では 10 K と 30 K において高出力発振が観測されている。このように、発振特性の再現性を確認するためには、 I - V 特性がまず再現できなければならないが、Ag ペーストを単純に塗布する方法では作製した素子ごとに排熱効率が変わるために、 I - V 特性の再現を得ることは困難である。

Ag ペーストを使用した素子作製であっても、より工夫した方法を採用することで、再現性は得られる可能性はある。しかし Ag ペーストより Au 薄膜のほうが熱伝導率が高いため排熱効果が高く、再現性も良いことが予想される。

Pb、Sn を用いた場合

図 2.25(b) の Metal 2 の部分に使用する材料として、Ag ペーストの次に試みたのは、ハンダの材料として使用される Pb、Sn それぞれの単体や合金である。これらによってサファイア基板上に蒸着膜を作製し、素子との接着を試みた。電子部品の接着で使用されるこれらの材料であれば電氣的に問題はなく、融点も低いため Bi2212 の物性変化を避けられる。しかしこれらの材料は、接着後に酸化が進行するため接触抵抗が経時変化することがわかった。接触抵抗が $\text{k}\Omega$ オーダーになることもあり、接触抵抗は再現しなかった。この接触抵抗はわずかに異なる場合でも、 I - V 特性上をスweepすると高電圧高電流の領域では接触抵抗における発熱量の違いが大きくなることから I - V 特性に再現が得られない。接触抵抗

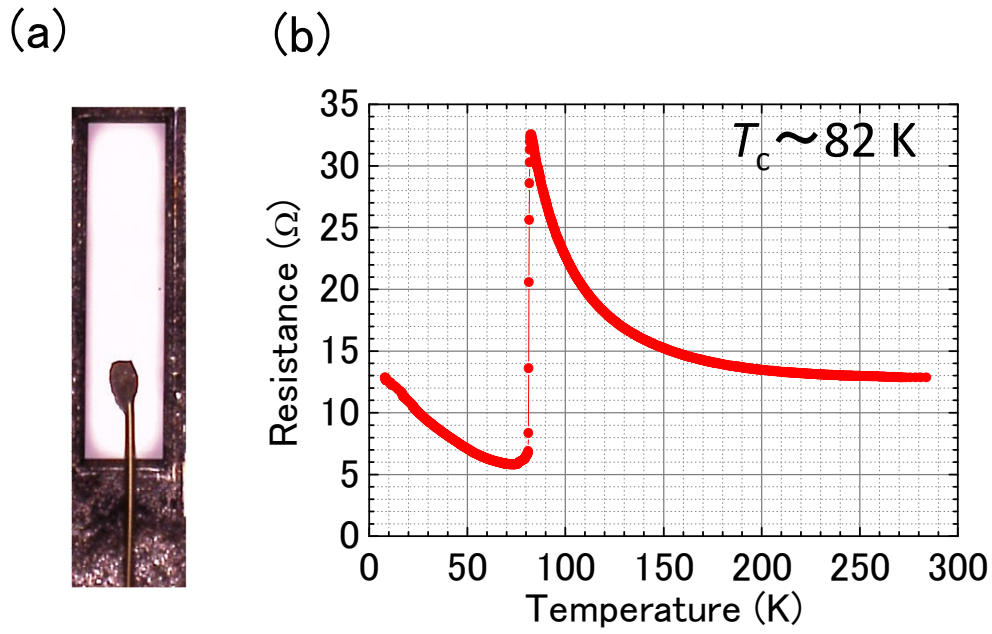


図 3.2: (a)Sample A の光学顕微鏡像。(b)Sample A の c 軸電気抵抗の温度依存性。 $T_c \sim 82 \text{ K}$ である。

の違いが 10Ω 程度であればまだ良いが、その範囲内には到底収まらず、いずれの電極物質においても有意な測定を行うことはできなかった。

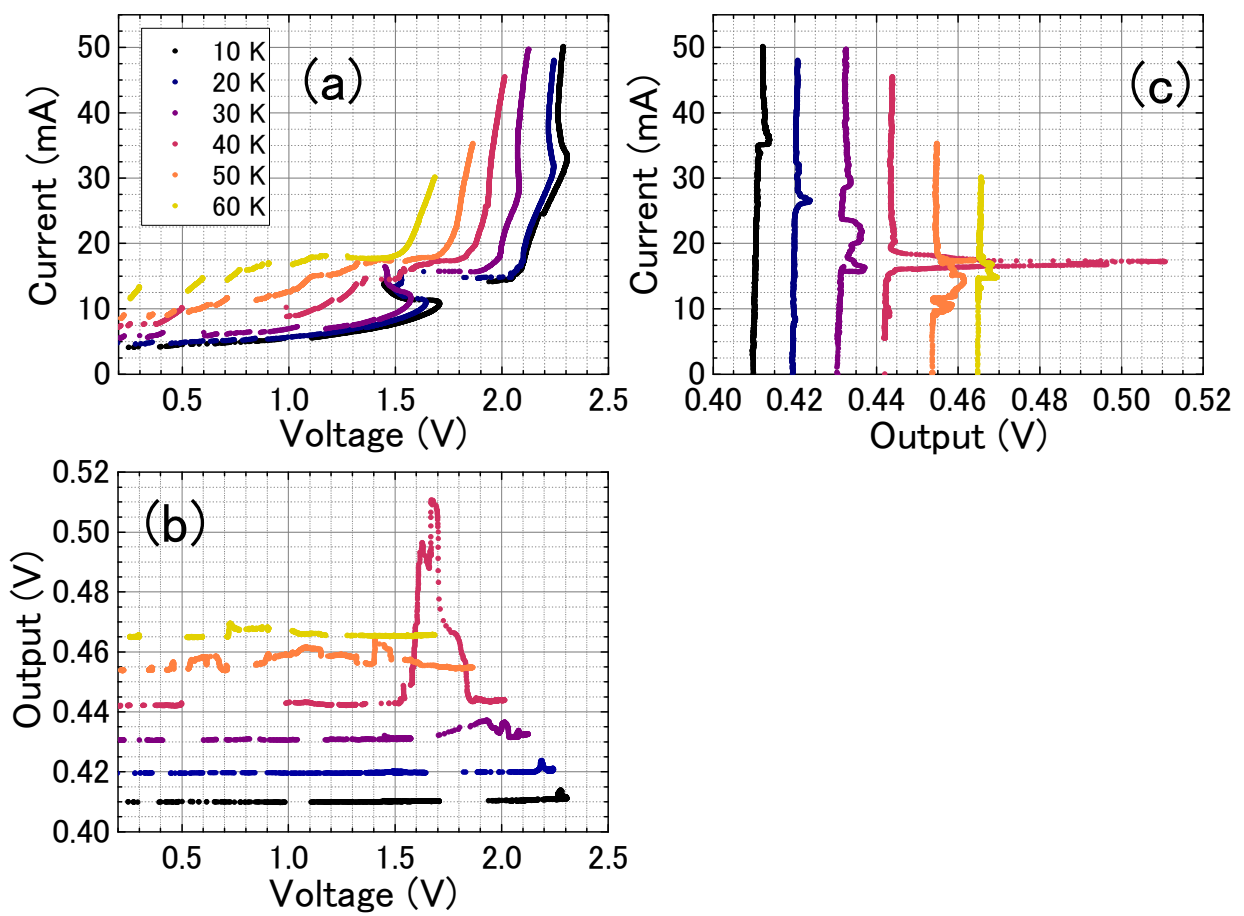


図 3.3: (a)Sample A の 10 K から 60 K における I - V 特性。(b) 電圧に対するボロメータの応答。(c) 電流に対するボロメータの応答。

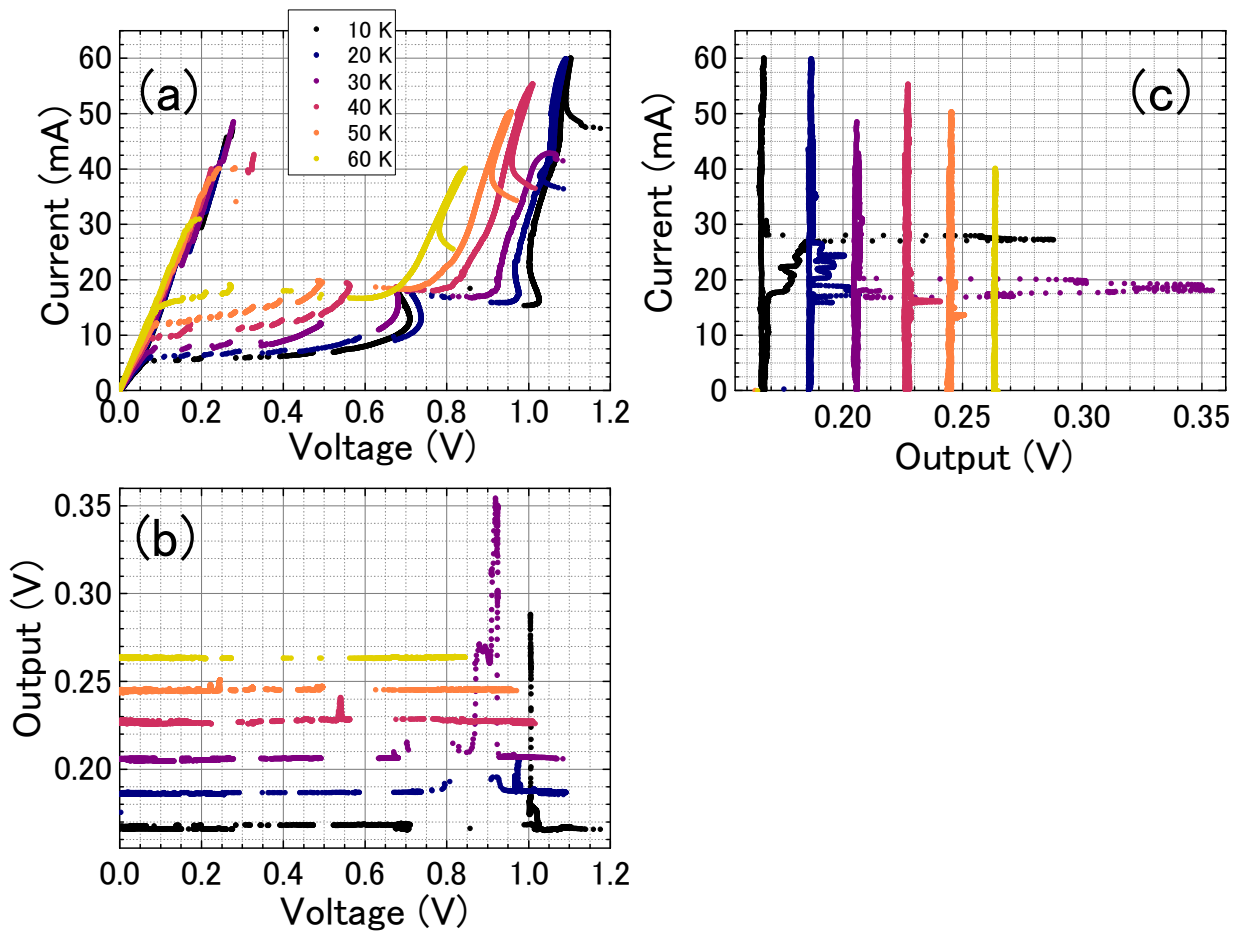


図 3.4: (a) Sample B の 10 K から 60 K における I - V 特性。(b) 電圧に対するボロメータの応答。(c) 電流に対するボロメータの応答。

3.2 測定方法

作製した素子は ^4He フロー型クライオスタット (Oxford Instruments、CF1104) 付属のサンプルホルダーに室温硬化型銀ペースト (Dupont、4922N) を用いて取り付け、熱伝導により冷却される。

まず、 c 軸抵抗を測定しながら冷却することで、 c 軸抵抗の温度依存性を測定する。このとき、印加した直流電流値は 0.1 mA である。低温まで冷却されたら、各温度において I - V 特性及び発振特性を測定する。十分な発振出力が得られる場合、FT-IR 分光器の光軸を発振電磁波そのもので合わせることができ、周波数の測定を行う。

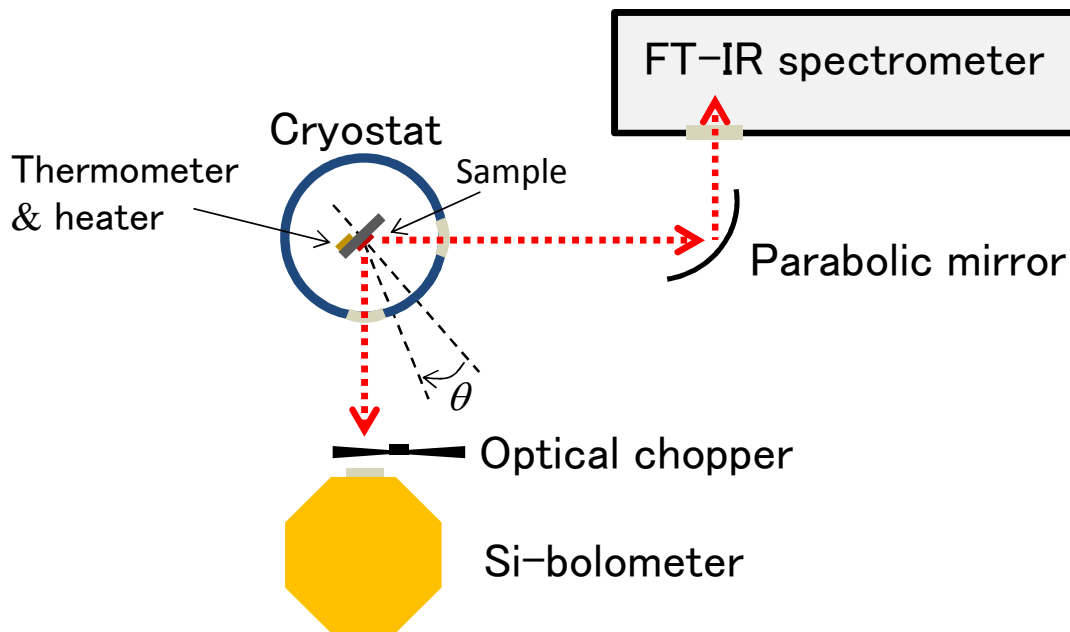


図 3.5: 測定に使用した光学系。

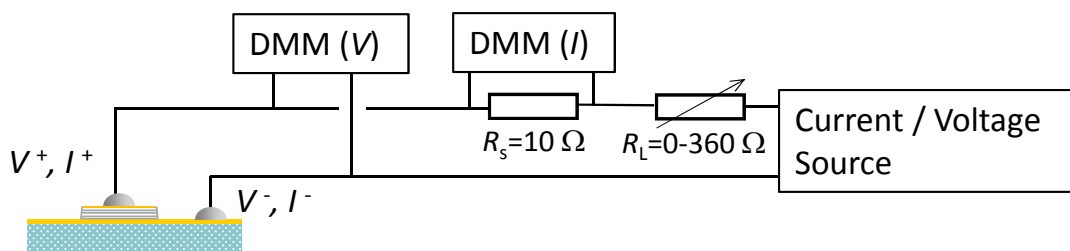


図 3.6: 測定回路図。

3.2.1 電流 – 電圧特性と発振特性

図 3.5 は Bi2212 の THz 波発振素子から発振される THz 波を検出するための光学系である。 ^4He フロー型クライオスタットには 4 つのポリエチレン窓が付いており、この窓から THz 波をクライオスタット外に取り出す。発振出力はまず、Si-ボロメータ (IR Laboratory Co., Ltd.) を使用して測定される。このボロメータは $15\text{-}2000\ \mu\text{m}$ の波長、すなわち $0.15\text{-}20$

THz の周波数を測定できる。熱浴の温度は、素子付近に取り付けられた RhFe 温度計により測定する。図 3.5 内の検出角 θ は試料ホルダーを独立に回転させることによって変えることができる。発振した THz 波は Si-ボロメータによってロックイン検出をする。そのためにボロメータとクライオスタットの間に光学チョッパーを置き、70-80 Hz の周波数で通過する THz 波を変調する。周波数スペクトルは Fourier transform infrared (FT-IR) 分光器 (JASCO Co., FARIS-1) によって測定した。

I - V 特性の測定回路は図 3.6 のようになっている。負荷抵抗 R_L と標準抵抗 $R_s = 10 \Omega$ は、THz 波発振素子と直列に接続されている。電圧と電流は図 3.6 のようにデジタルマルチメータによって測定される。素子に流れる電流は、 R_s の電圧降下から見積もられる。

3.2.2 放射分布

放射分布の測定には、図 3.7 のような光学系を用いた。この測定に用いた自家製のクライオスタットは、測定素子周辺の全周にポリエチレン窓が使用されている。Si-ボロメータは回転台の上にあり、クライオスタットとは独立に回転させることができる。この回転台を回すことで検出角 θ を変化させ、角度依存性を測定した。

単独メサ構造は発振出力が強いため、図 3.5 のようなクライオスタットでは反射光を検出する恐れがある。それを避けるために、全周が窓のクライオスタットを使用した。

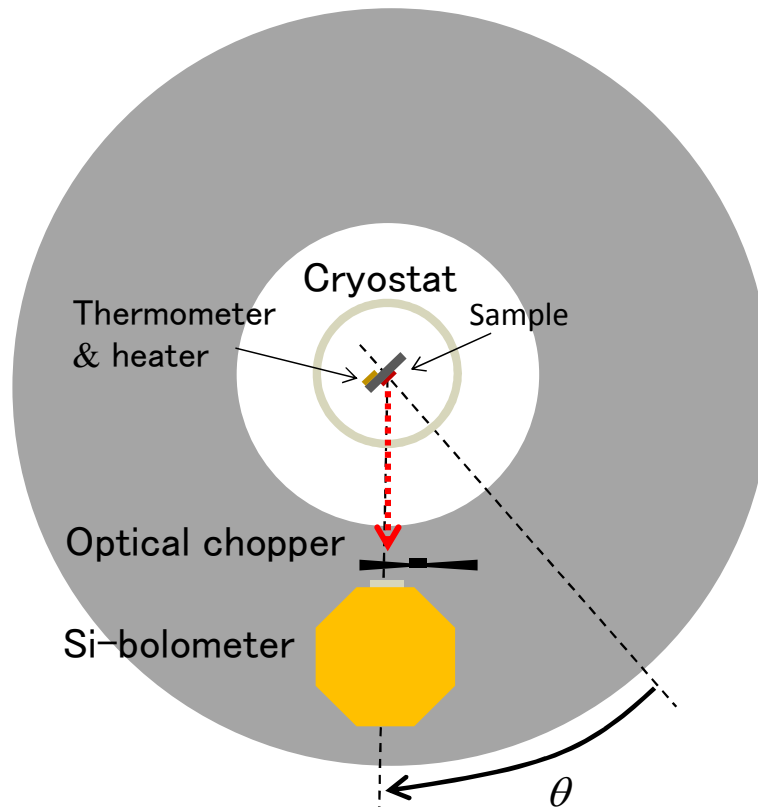


図 3.7: 放射分布測定のための光学系。

第4章 単独メサ構造によるテラヘルツ波発振

単独メサ構造を使用すると、アンテナ理論の結果から高出力発振が期待される [73]。さらに排熱効果の高い構造であることに起因して大電圧を印加できることから高周波発振が期待できる。様々な理論的及び実験的研究が行われてきたが発振出力や周波数の上限は自明ではない。これらを規定する発振機構を理解するために、また応用を考える上でも、構造が非常にシンプルな単独メサ構造を使用して発振特性を調べる実験は非常に重要である。ここ数年の間に、単独メサ構造により比較的高出力の発振が報告されてきたが、電流－電圧 (I - V) 特性は従来型メサ構造とそれほど変わらず、負性抵抗が高電流領域で見られ、排熱効果が十分とは言えないものがほとんどであった。その結果、発振周波数範囲は従来型メサ構造とほぼ同じであった。本研究では、排熱効果が高く、従って I - V 特性にも負性抵抗が現れない(または小さい)単独メサ構造を作製し、基本的な特性を詳しく調べた。結果として、世界で初めて 1 THz を超える発振を観測した。本章の内容は一部、論文として既出版されている [93]。

4.1 抵抗－温度特性、電流－電圧特性

図 4.1(a) に、作製した単独メサ構造 (Sample #1) の c 軸電気抵抗の温度変化 (R - T) を示す。挿入図は測定した単独メサ構造の光学顕微鏡像である。室温から温度が降下するに従い半導体的な抵抗の上昇が見られ、 ~ 78 K において超伝導転移を観測した。さらに低温においては抵抗の温度変化はほとんどなく一定 (接触抵抗) となる。このような振る舞いは従来型メサ構造とは変わらない。この R - T からは結晶の性質には問題ないと判断できる。

図 4.1 (b) は、Sample #1 の 10 K における I - V 特性である。電圧を掃引することで、矢印の向きに従う履歴曲線が得られる。このメサは c 軸方向の厚さが $1.9\ \mu\text{m}$ であり、過去に測定が行われてきた従来型メサ構造とほとんど変わらない。それにも関わらず 5 V を超える電圧を印加できたことは本実験が初めてであり、高電流領域においてやや負性抵抗が見られるものの、単独メサ構造の高い排熱効果を示している。4.8 V から 5.6 V への電圧のジャンプは、温度分布を実測した先行研究 [86,87] から、ホットスポットが形成されたためと推測される。5 V の電圧は、1 接合あたり 3.9 mV の電圧に相当し、ジョセフソン関係式から 1.9 THz の周波数に対応する。従来は発熱の影響を受けて印加電圧が制限され、これによって高周波発振が妨げられていた問題に対して、技術的に排熱効果を高めることで最大印加電圧を引き上げ、高周波発振の可能性を示した。

図 4.2(a) は 10 K から 75 K までの 5 K 毎の I - V 特性であり、同時に測定された Si-ボロメータの応答を、45 K から 75 K までを (b) に、10 K から 45 K までを (c) に示す。 I - V 特性の高電圧領域でのジャンプは 45 K まで観測される。図 4.2(c) から、10 K から 30 K 程度までは

発振特性はほとんど変わらないことがわかる。温度が上がるに従い発振が起こる電圧は小さくなっていく。55 Kにおいて最も高出力な発振が起こっているが、後述する周波数測定の結果(図 4.9)から、55 K から 65 K 程度までの高出力発振は $TM(1,0)$ モードに対応していることがわかった。

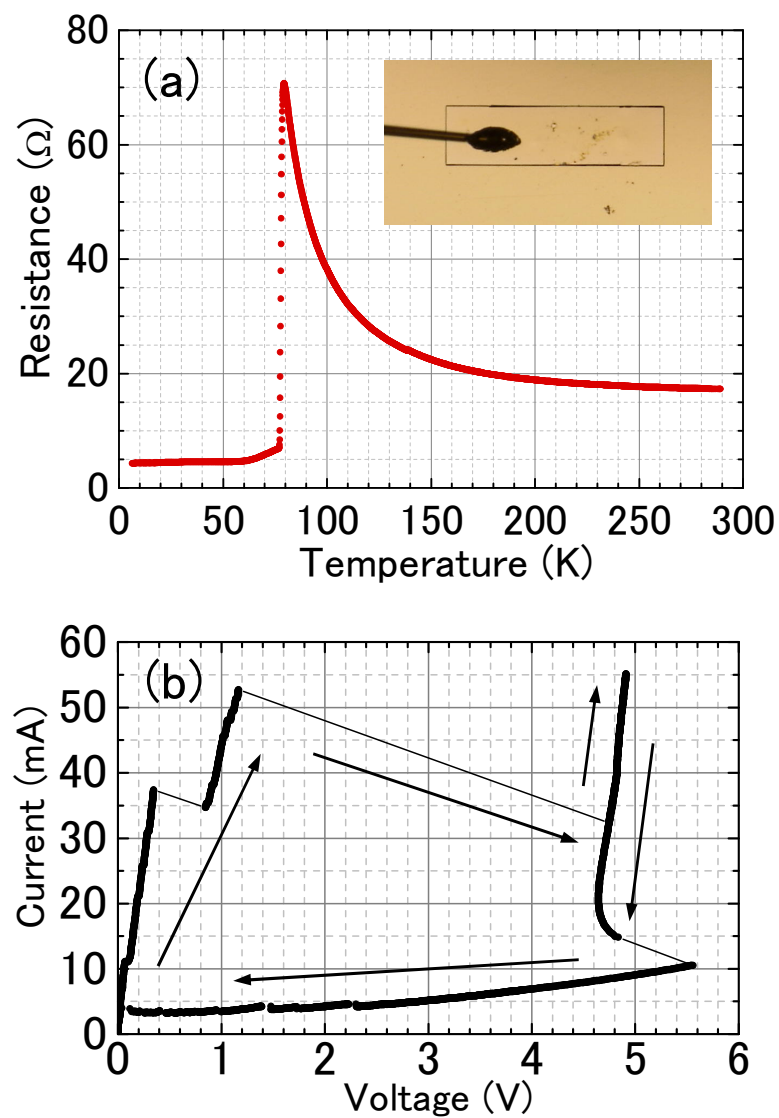


図 4.1: (a) c 軸電気抵抗の温度変化。超伝導転移が ~ 78 K で観測される。挿入図は、測定に使用した単独メサ構造の光学顕微鏡像である。(b) 10 K における電流 – 電圧特性。電圧を掃引することで、矢印の向きに従う履歴曲線が得られる。従来と比べて 2 倍程度の電圧が印加できる [93]。

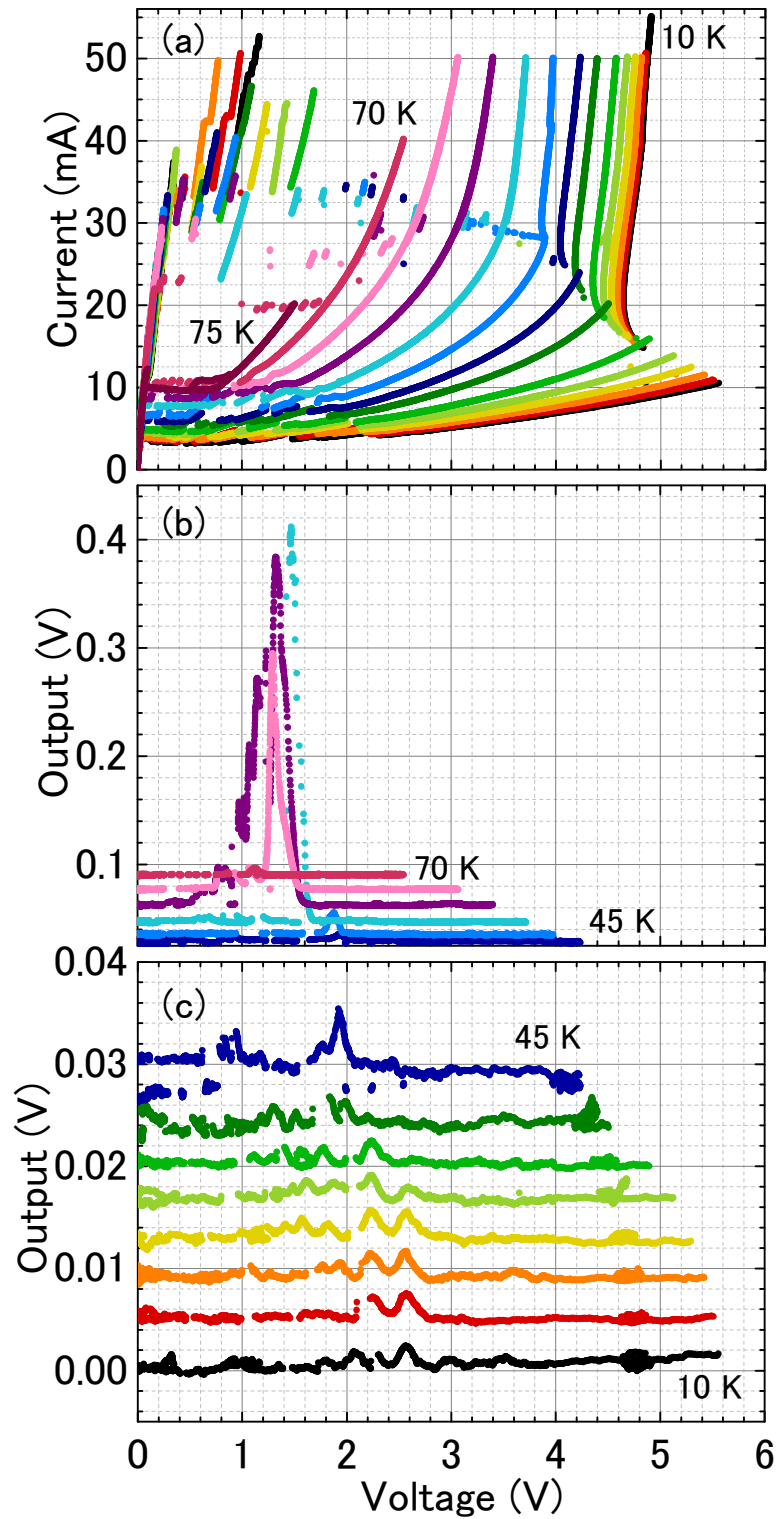


図 4.2: (a)10 K から 75 K までの 5 K 毎の I - V 特性。(b)45 K から 75 K までの Si-ボロメータの応答。(c)10 K から 45 K までの Si-ボロメータの応答。

4.2 発振特性

図4.3は10 Kから70 Kまでの、5 K 毎の I - V 特性である。同時に測定した Si-ボロメータによる出力電圧をカラースケールで示している。青い点線で囲まれた領域で発振が起こり、赤い点線で囲まれた領域では、 I - V 特性のステップ構造を伴った高出力発振が観測される。

高出力発振が起こる領域を詳しく調べる目的で、45 K から 75 K の温度範囲で I - V 特性を 1 K 毎に測定した。その結果を図4.4に示す。図4.4(a)は I - V 特性の全体像、(b)は(a)内の赤い点線で囲まれた領域の拡大図である。45 K 周辺の温度では、 I - V 特性のジャンプのために接合あたりの電圧が増大し、TM(1,0) モードの高出力発振が起こらないが、温度が上昇するにつれて接合あたりの電圧は小さくなり、TM(1,0) モードの高出力発振が可能になる。

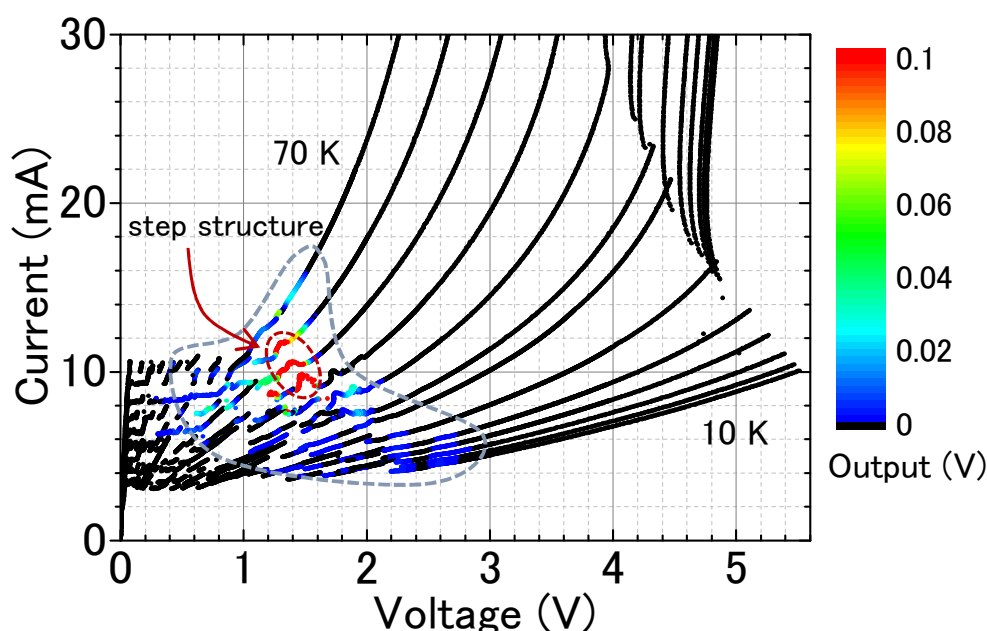


図 4.3: 10 K から 70 K までの 5 K 毎の I - V 特性の温度変化について、リターンブランチのみを示す [93]。Si-ボロメータによる出力電圧をカラースケールで示している。青い点線で囲まれた領域で発振が起こり、赤い点線で囲まれた領域では、 I - V 特性のステップ構造を伴った高出力発振が観測される。

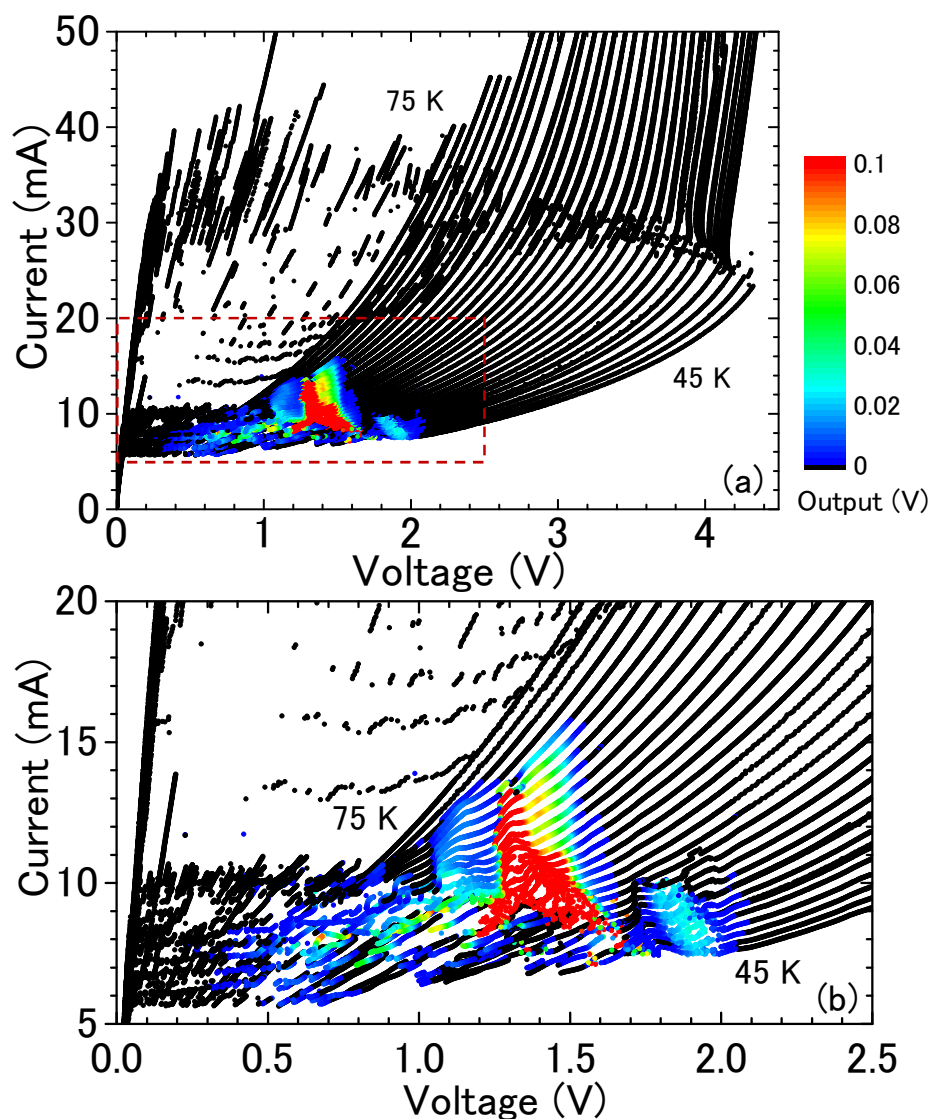


図 4.4: (a)45 K から 75 K までの、1 K 毎の I - V 特性の温度変化。Si-ボロメータによる出力電圧をカラースケールで示している。(b)(a) 内の赤線で囲んだ領域の拡大図。55-70 K 付近の 1.3–1.4 V で観測される TM(1,0) モードの高出力発振は、より温度が低い場合には、 I - V 特性のジャンプのために接合あたりの電圧が増大し、TM(1,0) モードの強力な発振が起こらないことがわかる。

再現性について

再現性を確かめるために、Sample #1 とほぼ同じサイズの Sample #2 を作製し、測定を行った結果が図 4.5 である。臨界電流や I - V 特性の形状にやや違いがあるものの、5 V を超える大きな電圧が印加される点、ホットスポットの形成による I - V 特性のジャンプが起こる点、発振する領域やステップを伴った高出力発振など、単独メサ構造の特徴が同じように得られた。従って、本研究で採用した方法で作製された単独メサ構造は、従来型メサ構造と比較して、より良い再現性が得られると考えられる。

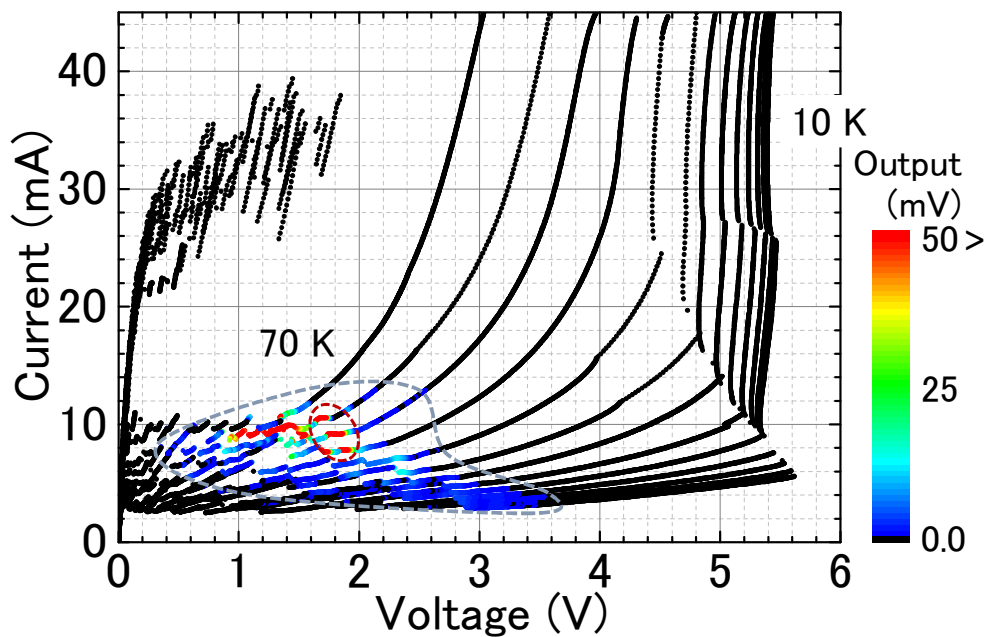


図 4.5: Sample #2 の 10 K から 70 K における 5 K 毎の I - V 特性の温度変化。Si-ボロメータによる出力電圧をカラースケールで示している。青い点線で囲まれた領域で発振が起こり、赤い点線で囲まれた領域では、 I - V 特性のステップ構造を伴った高出力発振が観測される。

ステップ構造における発振現象

前述したように、 I - V 特性のステップ構造を伴って、高出力発振が観測される。このステップ構造が I - V 特性の内部ブランチ構造ではどのようなになるか、また、発振出力はステップ構造とどのような関係があるのかを調べた。図 4.6(a) に 65 K における内部ブランチ構造を調べた結果を示す。挿入図は I - V 特性の全体像である。この図を見ると、同じ電流領域においてステップ構造が現れ、ステップ構造に伴う高出力発振が内部ブランチにおいても起こっていることがわかる。図 4.6(b)、(c) は、図 4.6(a) における最外ブランチと 7 本の内部ブランチの I - V 特性と Si-ボロメータの応答をそれぞれ示している。接合数が少なくなるに従い I - V 特性のステップは小さくなり、それに伴い発振出力は減少する。従って、単独メサ構造に現れた顕著なステップ構造は、発振出力の向上に寄与していると考えられる。

図 4.7 は、ステップ構造において I - V 特性と Si-ボロメータで検出した発振特性の可逆不可逆特性を調べた結果である。図 4.7(a)–(d) はそれぞれ点線矢印方向に印加電圧をスイープした場合であり、図 4.7(e) は (a)–(d) を一つのグラフにプロットした場合の I - V 特性及び Si-ボロメータの応答を示す。図 4.7(e) において I - V 特性及び Si-ボロメータの応答が一本の曲線になることから、可逆であると言える。これは、発振素子の応用を考える上で重要な特性である。

図 4.8 は、ステップ構造周辺における詳しい周波数測定の結果である。図 4.8(a) は周波数測定を行った範囲における I - V 特性と Si-ボロメータの応答を示している。図 4.8(b)、(c) はそれぞれ、FT-IR 分光器による周波数測定結果の交流ジョセフソン効果との関係、空洞共振効果との関係を示している。図 4.8(b) において、発振に寄与する接合数を N として、 $N = 1100, 1200, 1300, 1400$ の場合のジョセフソン関係式をプロットしている。周波数は概ね $N = 1300$ の直線に乗っており、素子の厚さ $t = 1.9 \mu\text{m}$ と $1 \mu\text{m}$ あたりの接合数 667 から計算される接合数 $N = 1300$ とほぼ一致している (有効数字 2 桁)。しかし出力が大きくなる 1.25 V 付近で直線から乖離し、1.20 V 以下ではスペクトルが 2 本に分裂している。(c) には測定した周波数と空洞共振モードとの関係を調べるために、 $(m, p) = (0, 3), (1, 0), (1, 1), (0, 4), (1, 2), (1, 3)$ に対応する各周波数を示した。ここで、 (m, p) は、 $\text{TM}(m, p)$ モードの指数である。1.25 V 付近で周波数がジョセフソン関係式から乖離するとき、 $(m, p) = (1, 0)$ の直線には直線に沿うように周波数が変化している。1.23 V をピークにして出力が落ちていくとき、同時に周波数は $(m, p) = (1, 0)$ からは外れていく。その後、出力が大きく落ち込むと周波数が 2 つに分裂する振る舞いが観測された。図 4.8(d) と (e) には、(c) に矢印で示した電圧における周波数スペクトルを示す。図 4.8(d) と (e) において、どちらも高電圧側の結果を上から順にプロットしているが、分光器のカウント数が大きく違うため縦軸のスケールが異なっている。尚、1.192 V の結果は図 4.8(d) と (e) の両方にプロットしている。(e) を見てわかるように、分解能が 7.5 GHz の FT-IR による測定結果では周波数スペクトルははっきりと 2 つに分裂している。これが本当に 2 つかどうか、また実際の線幅がどのようなになっているかという議論については、より高分解能の FT-IR を使用するか、あるいはミキシングの技術を使用して測定を行い評価する必要がある。

周波数スペクトルが 2 つに分裂しているということは、メサの内部で 2 つ以上の領域に分かれ、それぞれが別の周波数で発振したり、あるいは発振しないといった現象が起こっていると推察される。少なくとも、メサ内部の接合間で位相が一樣には揃っていないということを表しており、このような周波数の振る舞いがなぜ起こるのか、現状では十分な理解に達していない。

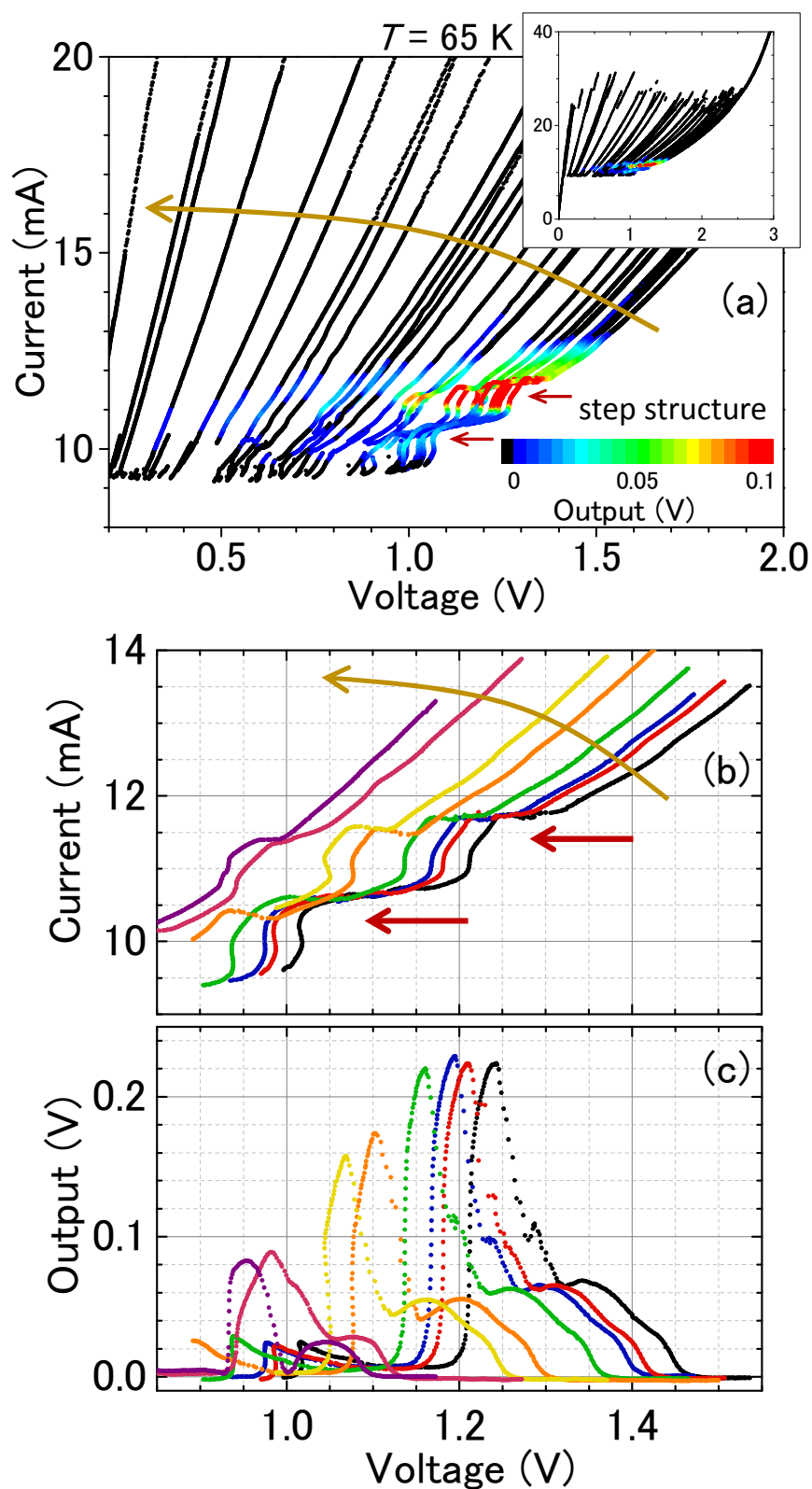


図 4.6: (a)65 K における I - V 特性のブランチ構造の拡大図。挿入図には I - V 特性の全体像を示す。(a) における最外ブランチと 7 本の内部ブランチの (b) I - V 特性及び (c)Si-ボロメータの応答。接合数が少なくなるに従い I - V 特性のステップは小さくなり、それに伴い発振出力は減少する [93]。

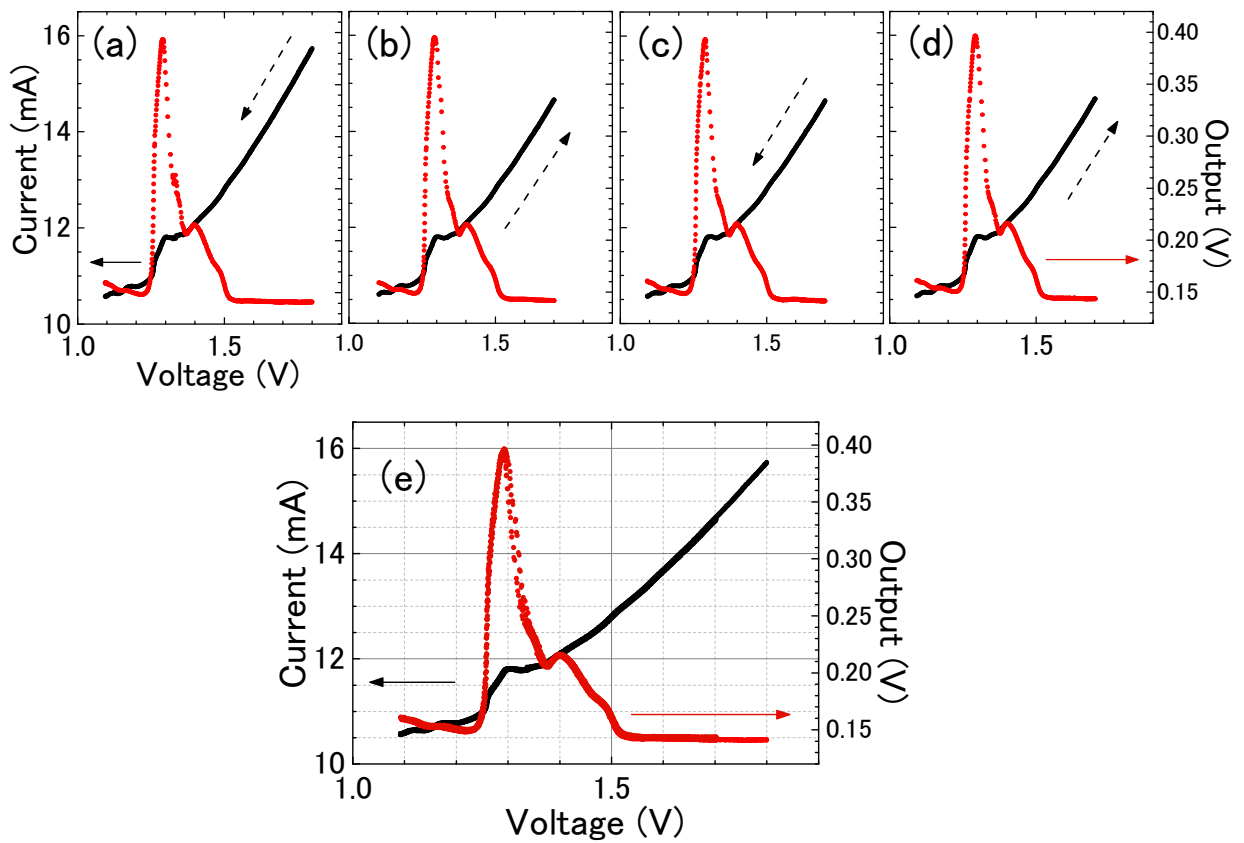


図 4.7: 高出力発振が起こる領域では、 I - V 特性は可逆的に振る舞うことを示している。測定温度は 65 K。(a)–(d) 点線矢印方向に電圧をスイープした場合、(e)(a)–(d) を一つのグラフにプロットした場合の I - V 特性及び Si-ボロメータの応答。

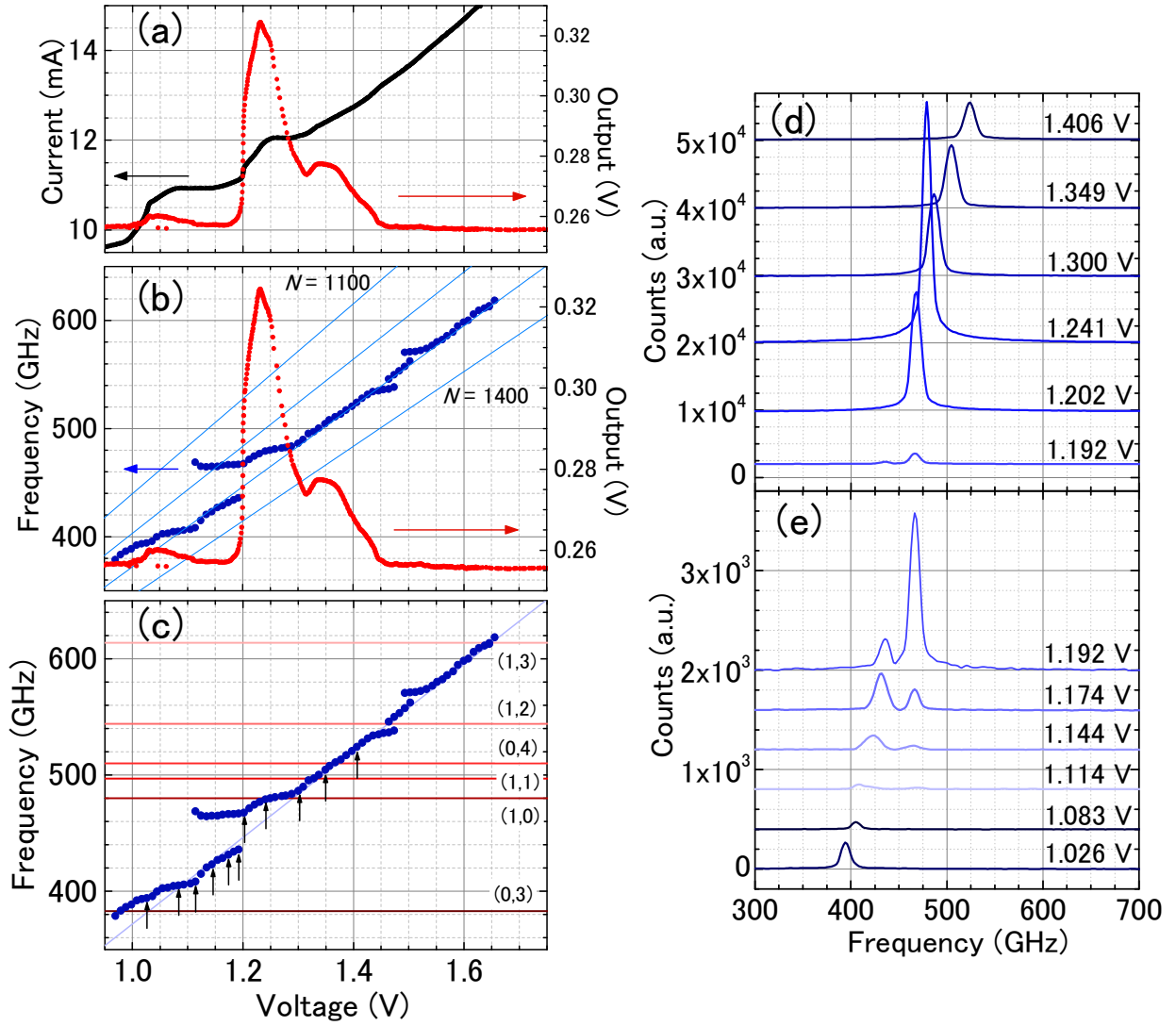


図 4.8: 高出力発振が起こる電圧範囲での (a) I - V 特性及び Si-ボロメータの応答。 (b) 発振周波数及び Si-ボロメータの応答。青い直線は、接合数 N を $N = 1100, 1200, 1300, 1400$ と 100 層ずつ変えた場合のジョセフソン関係式を表し、発振周波数との関係性を示す。 (c) 空洞共振モードの指数で示した各直線は、各空洞共振モードにおける周波数を表し、発振周波数との関係性を示している。 $N = 1300$ の場合のジョセフソン関係式の直線を補助的に引いた。 (d)、(e) (c) に矢印で示した測定点における周波数スペクトル。

4.2.1 発振周波数特性

図 4.9 には、FT-IR 分光器で測定した 10 K から 73 K までの発振周波数の温度変化を示す。挿入図は、低温で測定された 1 THz を超える発振周波数スペクトルの測定例である。挿入図の中の矢印で示された周波数とそのときのカウント数を図 4.9 にプロットしている。このように、最高で 1.08 THz の周波数を 10 K において観測し、世界で初めて 1 THz を超える観測結果となった (2014 年当時)。低温ではおよそ 0.7-1.1 THz の間に周波数が分布している。低温においてこれより低周波数の発振が起こらない理由は I - V 特性において接合あたりの電圧が大きい状態しか現れないためであるが、一方、十分に電圧が印加されているにも関わらずより高周波数の発振が起こらない理由は不明である。また、図 4.3 から、60 K 程度の温度においても 3 V の電圧が印加されているため、低温で観測される 1 THz 付近の発振が起こってもよいと考えられるが、実際には発振は起こらず、周波数領域は 0.4-0.6 THz 程度である。この原因もまた不明であり、今後の研究に託す課題である。ただし、図 4.3 の青い点線の高電圧かつ高電流の部分は、 $I \times V = \text{const.}$ となる曲線を想起させる。すなわち、ジュール発熱 $W = I \times V$ が一定か、あるいは素子の温度が一定となるような曲線である。つまり、例えば超伝導転移温度のようなある温度を超えてしまうと発振が起きなくなる現象が起こっている可能性がある。これは実際に温度分布を観測して確かめるべきであるが、本研究においては温度分布測定は行っていない。

また、73 K の温度においても発振が観測され、最低周波数が 0.29 THz であった。0.29-1.08 THz 間の周波数は、出力が変化するものの、ほぼ連続的に周波数を変化させることができる。この出力の変化については、TM(1,0) モードに対応する 0.48 THz で最も高出力な発振が起こるということ以外、わかっていない。周波数に対する出力の変化は基本的に重要な特性であるため、この詳細は今後の研究で明らかにされるべき課題である。

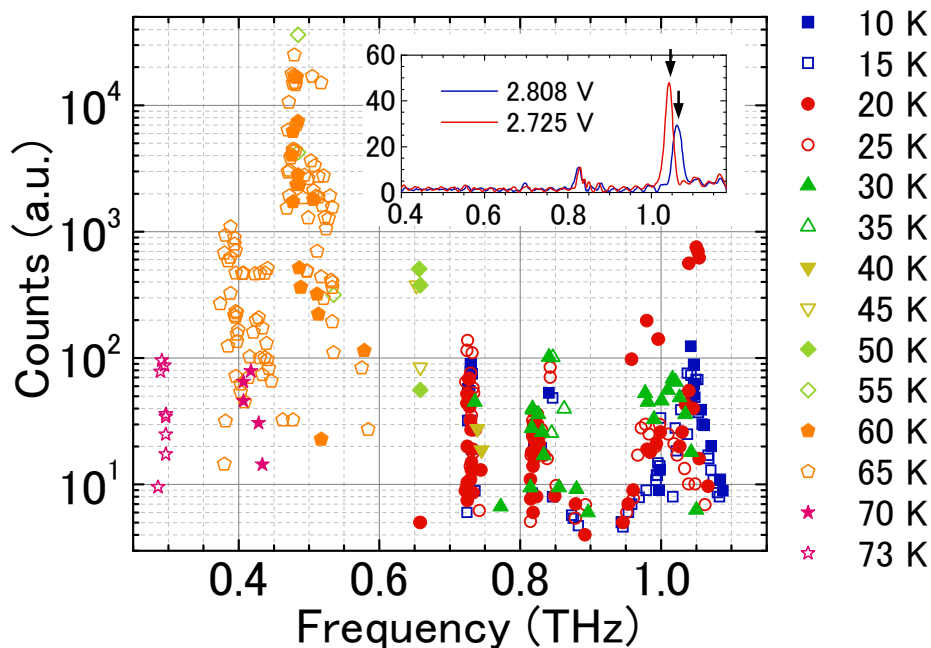


図 4.9: 10 K から 73 K までの各温度における、FT-IR 分光器によって検出された発振周波数 [93]。挿入図は、1 THz を超える発振スペクトルの測定例で、そのときの印加電圧も示している。挿入図の矢印で示された周波数とそのときのカウント数をプロットしている。

4.2.2 発振出力の見積り

図4.10は、温度に対するSi-ボロメータで検出された発振出力の変化を示している。(a)Sample #1 と (b)Sample #2 の結果は、 I - V 特性の測定結果から予想される通り、同じような出力の変化をする。Sample #1 の最大発振出力を見積もるが、図4.10(a) から 56 K での最大発振出力は 65 K の2倍となっているため、65 K での放射分布の測定結果を使用して放射出力を見積り、その2倍をすることで最大発振出力とする。ここまでの結果から 56 K と 65 K で発振出力が最大になるときの周波数は同じであるため、放射分布も変わらない。従って、このような見積り方は妥当と考えられる。

図4.11は放射分布の測定結果である。(a)、(b)はそれぞれ $0^\circ \leq \theta \leq 95^\circ$ 、 $-95^\circ \leq \theta \leq 0^\circ$ の角度領域の 5° 毎の各角度において、 I - V 特性を測定し、その測定電圧に対して、同時に測定した Si-ボロメータの出力電圧をカラープロットで表示している。(c)、(d)は(a)、(b)と同じデータだが、カラープロットのスケールを変えて、発振の弱い領域の変化をより見やすくしている。これらのデータから、図4.12のように、ある電圧における Si-ボロメータの出力電圧をプロットすることで、放射分布を表現した。図4.12(a)は 1.30 V、1.40 V における放射分布を示し、(b)には 1.40 V における放射分布のみを示した。(a)は 480 GHz、(b)は 500 GHz に対応するが、放射分布にほとんど変化は見られず、また、図4.11からも電圧によって、すなわち周波数によって放射分布が変化する振る舞いは、1.1 V 付近を除いてほとんど見られない。1.1 V 付近の放射分布については、このときの周波数は 400 GHz に対応するが、発振出力が弱いため議論を行うことは難しい。周波数に対する放射分布の変化を調べるためには、共振モードによる放射分布の変化を考慮すると ϕ 方向の放射分布の測定も不可欠であるため、ここでは議論しない。

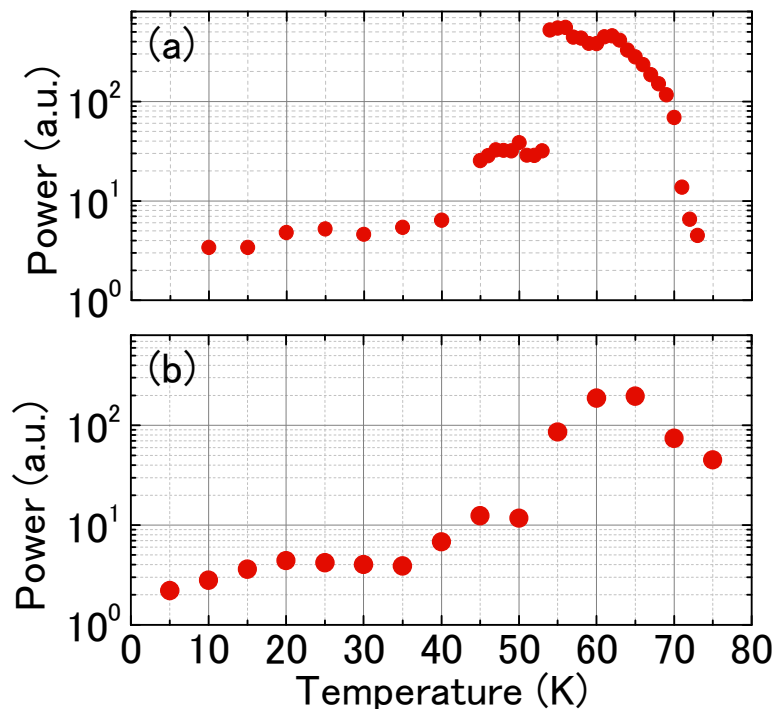


図 4.10: (a)Sample #1、(b)Sample #2 の温度に対する発振出力。

以下に、発振出力の見積りに関する計算を記述する。検出立体角 Ω は、素子の位置を頂点とした半頂角を θ とすると、 $\Omega = 2\pi(1 - \cos \theta)$ と定義される。ここで、発振素子とクライオスタットの窓の間の距離は 4 cm、クライオスタットの窓と Si-ボロメータの窓の間の距離は 11.5 cm、Si ボロメータの窓とボロメータ内部の検出素子の間の距離は 2 cm である。また、Si-ボロメータの検出半径が 0.625 cm であることから、 $\cos \theta$ を見積もることができる。

本研究で使用した Si-ボロメータは、ボロメータ内部及びボロメータの窓での減衰因子を 0.25、クライオスタットの窓での減衰因子を 0.8 とすると、検出した電磁波の出力に対する応答電圧の係数 α が $\alpha = 11 \text{ mV/nW}$ と見積もられる。検出した (ある立体角の) 電磁波の出力を P_{det} 、応答電圧を V_{det} とすると、 $P_{\text{det}} = \frac{2\sqrt{2}V_{\text{det}}}{\alpha}$ と表される。

また、検出立体角 Ω に対して、メサ構造は金属板に貼り付けられた構造をしているため、メサ構造から半球の立体角に対して放射が起こると考えると、 $\frac{2\pi}{\Omega}$ を P_{det} に掛けることで積分放射出力が求まると考えられる。実際には θ 方向だけでなく ϕ 方向における放射分布を考慮しなければならないが、本研究では ϕ 方向についての放射分布測定は行わなかったため、先行研究を参考にすると、半球の $\frac{1}{4}$ の方向だけに放射が起こると考えればよい。

結局、積分放射出力 P_{tot} は、 $P_{\text{tot}} = \frac{2\sqrt{2}V_{\text{det}}}{\alpha} \times \frac{2\pi}{\Omega} \times \frac{1}{4}$ と表され、計算の結果、 $P_{\text{tot}} = 10.2 \mu\text{W}$ となる。これは放射分布を測定した 65 K の温度での結果である。出力が最大となる 56 K では、この 2 倍程度の出力が得られるので、 $P_{\text{tot}} = 20.4 \mu\text{W}$ となる。

これらの計算には空気による減衰が含まれていないため、実際にはより高出力な発振が起こっていると考えられる。

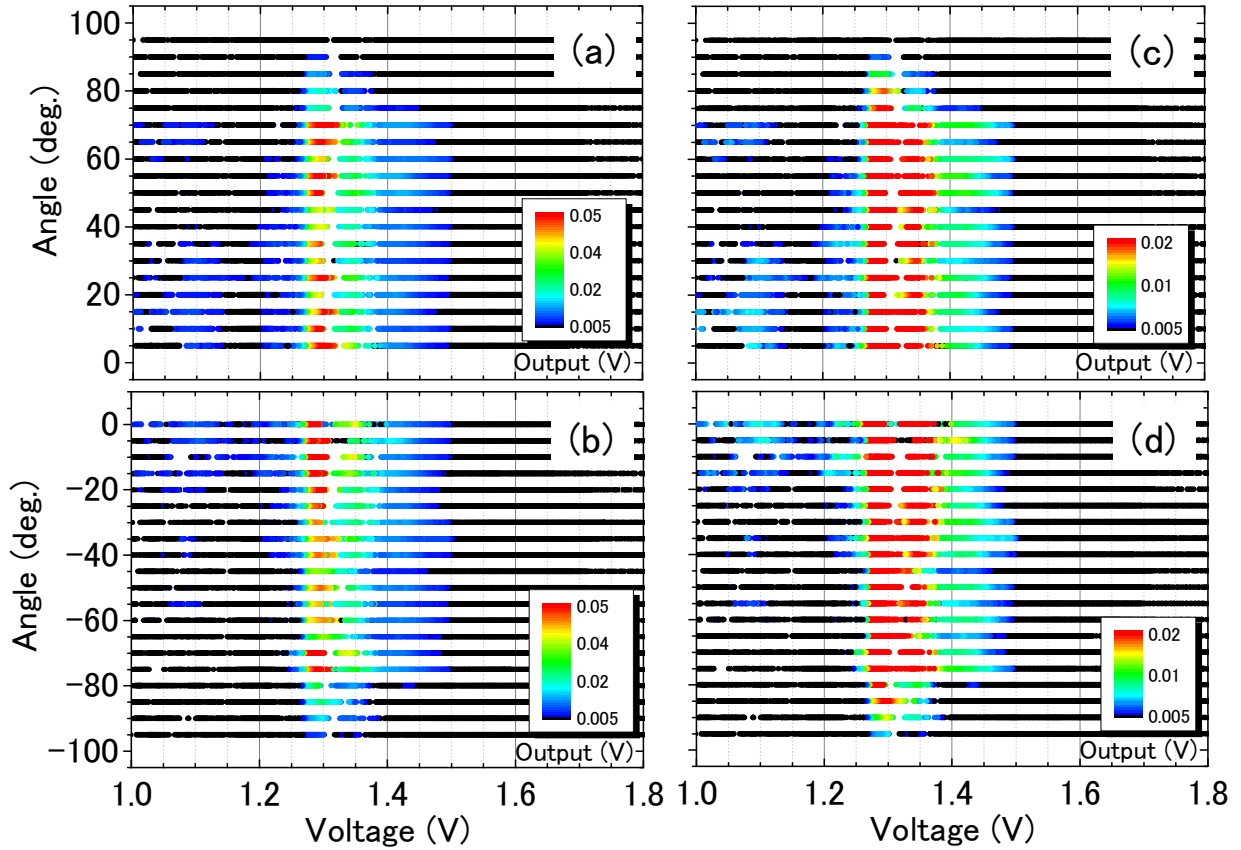


図 4.11: Sample #1 の放射分布の測定結果。各検出角度において I - V 特性を測定し、その測定電圧に対して、同時に測定した Si-ボロメータの出力電圧をカラープロットで表示している。(a)、(b) はそれぞれ、 $0^\circ \leq \theta \leq 95^\circ$ 、 $-95^\circ \leq \theta \leq 0^\circ$ 。(c)、(d) は (a)、(b) と同じデータだが、カラープロットのスケールを変えて、発振の弱い領域の変化をより見やすくした。

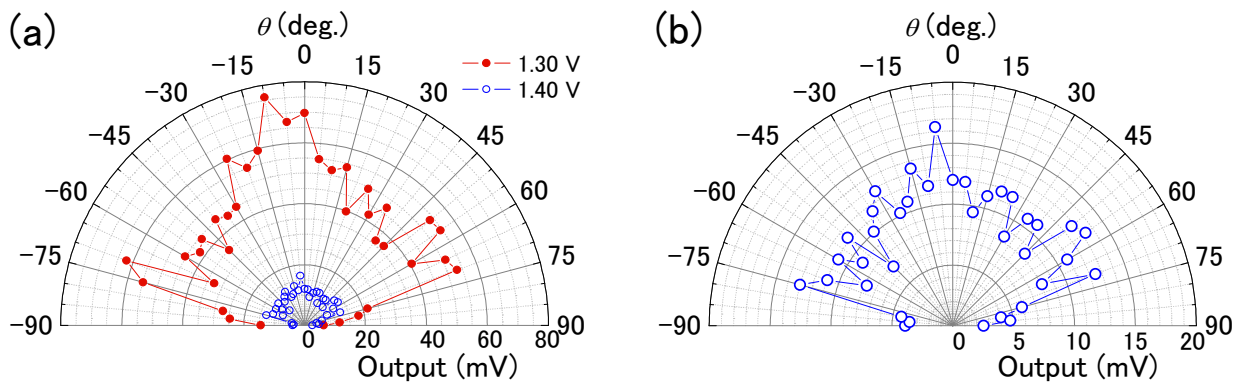


図 4.12: Sample #1 の放射分布の測定結果。(a) 図 4.11 の 1.30 V, 1.40 V における Si-ボロメータの出力電圧。(b) 1.40 V における Si-ボロメータの出力電圧。

4.3 結論

単独メサ構造を作製する上で技術的な問題を克服し、再現よく作製する工程を確立した。この再現性については、2つのほぼ同じサイズの単独メサ構造を測定することで確認した。本研究で確立した工程は、人の手による作業が多いため、効率という点では初歩的な段階にある。今後、発振素子の量産という段階に移行するためには、多くの改善点が残されている。また、様々な用途に対応するために、実験的な必要性に応じて素子構造を変える工夫も今後、重要になってくる。

単独メサ構造の高い排熱効果により、5 V を超える、従来に比べて約2倍の電圧を印加することができるようになった。ジョセフソン関係式によると、5 V の電圧は 1.9 THz の周波数に対応しており、従来は実現不可能であった周波数領域に到達可能であることを示唆している。

実際に FT-IR 分光器を使用して周波数を測定することで、0.29-1.08 THz の広帯域の発振を観測し、世界で初めて 1 THz を超える周波数の発振が起こることを明らかにした。周波数の上限が 1.08 THz に留まる理由は現在不明であるが、未到達の高周波数領域での発振の可能性を強く示唆する結果である。さらに、10 K から 73 K の広い温度範囲において発振が検出できたことは、応用を考える上で重要であり、今後の研究において液体窒素のみによる冷却で発振が可能になることが期待できる¹。

また、56 K において最高の発振出力として $\sim 20 \mu\text{W}$ を観測した。これは先行研究の、一つの素子における最大の発振出力と同程度である。現在のところ発振出力の上限については制限が知られていないことから、何らかの方法によって更なる高出力化が望まれる。

¹2015 年に、液体窒素のみを冷媒として用いて THz 波発振を検出したとする報告がなされた [99, 100]

第5章 単独メサ構造のサイズ効果

単独メサ構造を使用することによって、1 THzを超える高周波発振が可能になり、TM(1,0)モードにおいては数十 μW と高出力な発振が可能になった。交流ジョセフソン効果に起因する交流超伝導電流により発振現象が起こり、空洞共振のTM(1,0)モードが励起されるときに最も高出力の発振が得られるとする解釈は従来型メサ構造と同じである。

高周波化と高出力化の課題に対して、これまで数多くの試みが行われてきた。高周波化は排熱効果の高い単独メサ構造によってある程度達成されたが、発振周波数の上限は自明ではない。高出力化の問題については、アレイ化することによって最大で610 μW に到達したが、単一素子では30 μW 程度にとどまっている。

メサ構造の長さ、幅、高さが発振出力と発振周波数に与える影響については、詳細な研究はなされていない。発振出力に関してはこれまでに $P \propto N^2$ 、すなわち接合数の2乗に比例することが確認されてきたが、それ以外に明解な説明はない。これまでの研究により、発振周波数や放射分布はメサの構造体そのものがアンテナのような役割を果たしているものとして解釈されているので、発振出力がメサのサイズや形状に依存することは当然想定できる。矩形メサの幅方向で共鳴現象が起こり、発振出力が増大する現象は、この一つの例である。幅方向以外の大きさ(長さ、厚さ)の役目については現状、理解されていない。

そこで、メサ構造の幅と長さの発振特性に対する影響を調べるために、以下の様な実験を行った。まず、サイズの異なるメサを作製し、周波数測定を詳しく行った。この結果として、メサの幅に依存するTM(1,0)モードが最も高出力で、TM(2,0)モードが次に高出力なモードとして励起されることがわかった。さらに、長さや厚さによっては発振周波数は変化しないことが明らかになった。次に、長さ方向の影響を調べる方法として、同一のメサの長辺をFIBにより逐次加工し、各素子において発振周波数を詳しく調べた。この実験により、やはり、どのメサにおいてもTM(1,0)モードが最も高出力であることがわかった。また、0.3-1.1 THzの広帯域の発振は加工によって変化しないことや、TM(1,0)モードの発振は長辺が短くなるに従い出力は低下することが明らかになった。この出力の変化はこれまで十分考察されていない問題であったので、アンテナ理論を参考にした考察を、本章で取り上げる。

尚、発振特性はメサ以外の外部構造の影響を受ける可能性がある。可能な限りメサ以外の条件は変更しないように実験を行っているが、微妙な点は考察されていない。これらの実験は、単独メサ構造から高い発振出力が得られることと、調べる素子に関して工夫を施したことによって、初めて行うことができた。その工夫とは、長さ方向の影響を調べるために、あらかじめ十分に長いメサを準備しておき、少しずつFIBによる切断加工をすることで同一メサで長さのみがパラメータとなるようにしたことである。

5.1 幅方向の影響

メサの大きさの発振に対する影響を調べるために、大きさの異なる2つの素子 Sample #1 と Sample #3 を作製した。Sample #1 の大きさは $w_t = 74$ 、 $w_b = 84$ 、 $l = 280$ 、 $t = 1.9 \mu\text{m}$ であり、Sample #3 の大きさは $w_t = 81$ 、 $w_b = 98$ 、 $l = 400$ 、 $t = 2.5 \mu\text{m}$ である。

図 5.1(a)、(b) はそれぞれ、Sample #3 の電気抵抗の温度変化 (R - T 特性)、 I - V 特性の温度変化を示している。超伝導転移温度 T_c は $\sim 78 \text{ K}$ である。図 5.1 (b) を見ると、Sample #3 は Sample #1 と比べて印加電圧が 2 V 程度小さいことがわかる。この実験後、長さ方向について FIB を使って切断加工をし、再度測定を行ってみたところ接触抵抗が数十 Ω 増加したことから、メサと基板との接触が不完全であることが判明した。Sample #3 は Sample #1 と比較して小さい印加電圧になってしまうことは、メサの面積が大きく準粒子抵抗が小さいことと、恐らくメサとサファイア基板との接触が悪いためであると考えられる。

図 5.2(a)、(b) はそれぞれ Sample #1、Sample #3 から得られた、FT-IR 分光器によって測定した発振周波数とピーク出力である。図上部の指数付きのバーは、メサの幅 w_t 、 w_b から見積もられる TM(1,0) モードと TM(2,0) モードの周波数範囲である。また、橙色の網掛けは、 I - V 特性及び周波数測定の実験データから TM(1,0) モードと考えられる領域を示し、赤色の網掛けは橙色の領域を2倍した TM(2,0) モードと推測される領域を示している。また、FT-IR 分光器に取り付けられた Si-ボロメータのアンプのゲインが (a) は 200、(b) は 1000 で測定しているため、実際には Sample #3 から得られる発振出力は Sample #1 の5分の1程度である。このように幅広い周波数帯域での発振が観測される時、FT-IR 分光器によって観測された周波数からモード同定や発振出力の変化に関する議論を行う場合には、厳密には電磁波の偏光面と FT-IR 分光器内のワイヤグリッドとの関係を考慮しなければならない。本実験では Si-ボロメータの応答と FT-IR 分光器のカウント数を同時に測定することで、これらがおおよそ比例関係にあることを、TM(1,0) モードと TM(2,0) モードにおいて確認している。励起モードが変わり偏光面が変化した場合には、ボロメータの応答と分光器のカウント数の関係が変わるため、注意が必要である。

図 5.2(a)、(b) はどちらも、メサの幅から見積もられる周波数より高い周波数において発

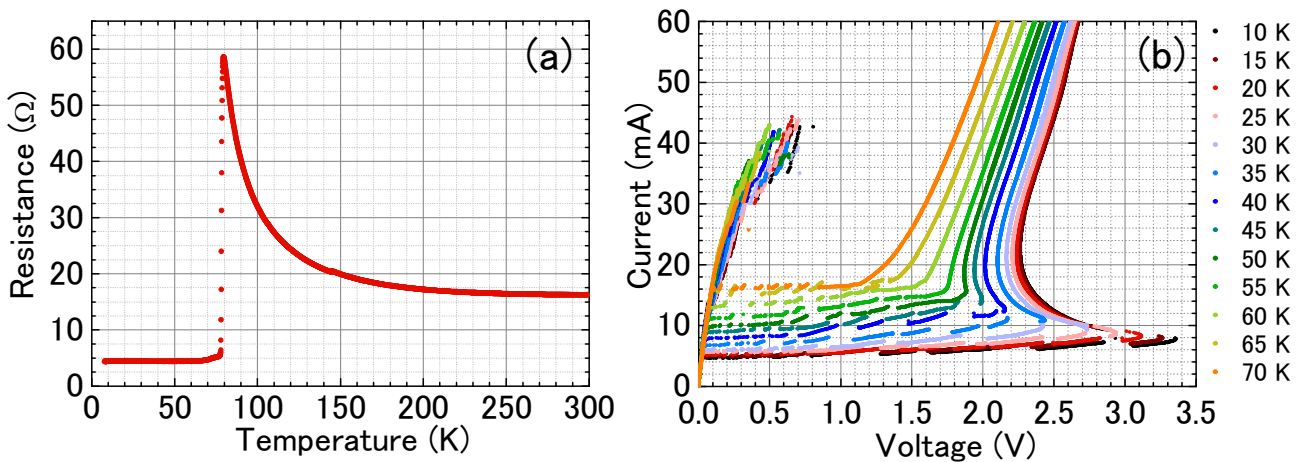


図 5.1: Sample #3 の (a) 電気抵抗の温度変化と、(b) 10 K から 70 K までの、5 K 毎の I - V 特性の温度変化。

振が起こる傾向があることがわかる。過去の実験データと比較してみると、メサの幅から見積もられる周波数より高周波側にずれる場合もあれば、低周波側にずれる場合もあり、未だに十分な理解がなされていない部分である。また、Sample #3 の 0.6-0.8 THz の領域ではほとんど発振が起こらないが、この原因が発熱かあるいはメサの形状(長さ)にあるのか不明である。これらの点については原因は明らかではないため、さらにサイズを変化させて発振周波数の変化を追跡することで、本質的な現象であるのかを明らかにすべきである。本研究では実験が不足しているため、この点にはこれ以上は触れない。

図 5.2 (a) と (b) について、網掛けをした周波数領域を比較すると、10 % 程度異なる。Sample #1 と #3 の大きさを比較した場合、10% 程度異なる量は幅のみである。従って、従来の理解と同じように、単独メサ構造においてはメサの幅方向に電場の定在波が励起される TM(1,0) モードが起こり、その周波数において最も高出力な発振が得られる。さらに図 5.2 (a)、(b) の 1 THz 近傍には TM(2,0) モードに起因するピークも見られた [101]。1 THz 近傍の発振は TM(1,0) モードにおける電圧の 2 倍程度の電圧を印加した時に得られることから、TM(2,0) モードであると考えられる。このような詳しい周波数測定による TM(2,0) モードの同定は、排熱効果の高い単独メサ構造によって初めて可能になった。

また、Sample #1 と Sample #3 の TM(1,0) モードにおける発振周波数の測定結果とメサの幅 w から、屈折率 n を見積もった。TM(1,0) モードの発振周波数は $f = c_0/2nw$ と表されるので、図 5.3 のように幅の逆数 $1/w$ に対して周波数をプロットし、フィッティングをした直線の傾きから屈折率を求めることができる。この結果、 $n \sim 4.1$ となり、従来からよく使われている結果 $n \sim 4.2$ とほぼ一致した。ただし、本研究においては図 5.3 の測定点が 2 点しかなく、精度が高いとは言えない。より高精度に n を求めるためには、多くの幅の異なるメサを使用して測定を行う必要がある。

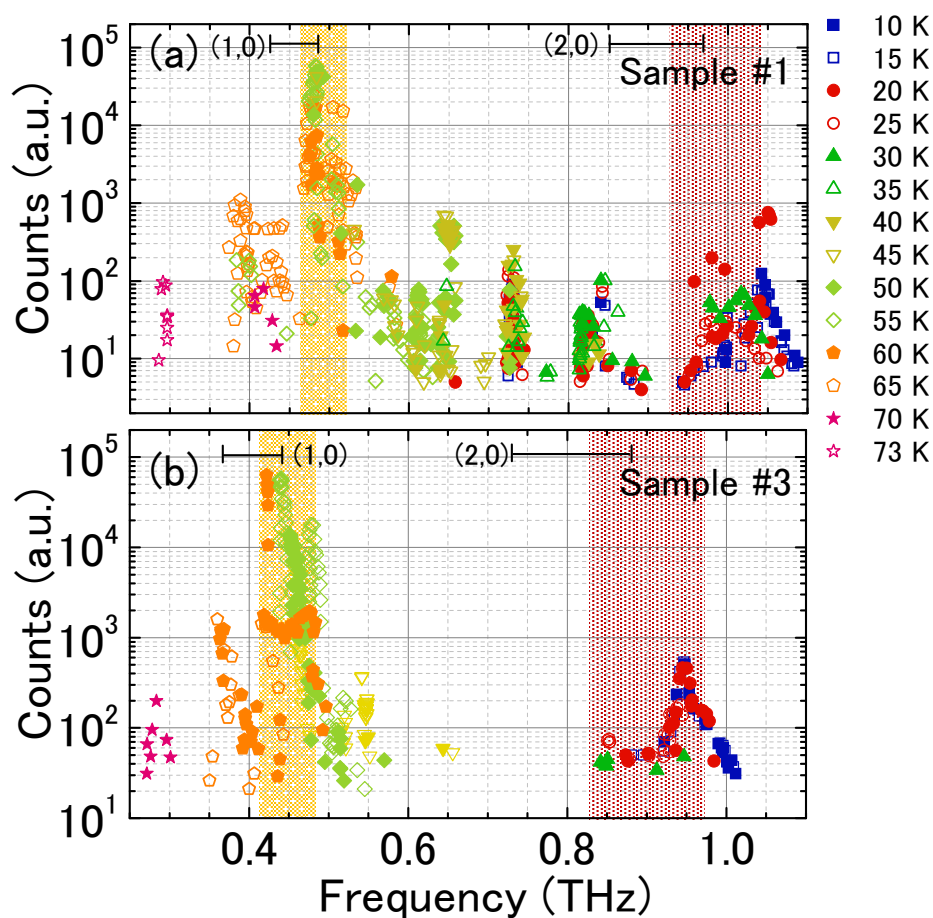


図 5.2: 10 K から 70 K までの 5 K 毎と、73 K の温度における、FT-IR 分光器によって検出された発振周波数。(a)、(b) はそれぞれ、Sample #1、Sample #3 かれ得られた結果である。FT-IR 分光器に取り付けられた Si-ボロメータのアンプのゲインが (a) は 200、(b) は 1000 で測定している。

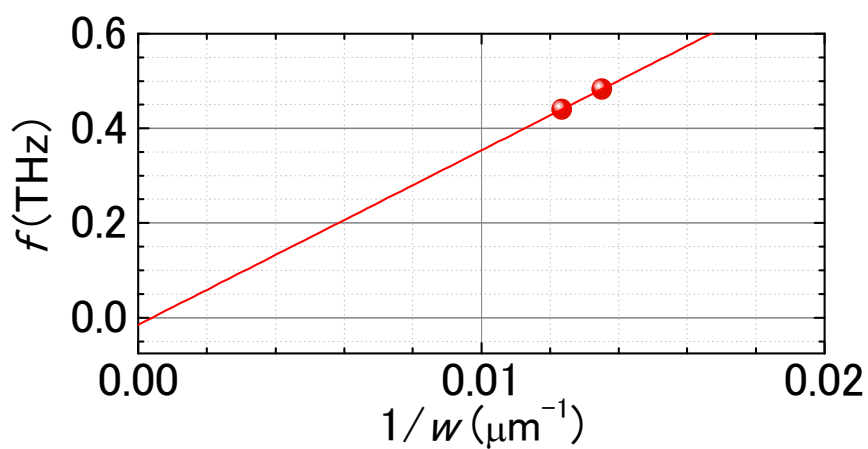


図 5.3: Sample #1 と Sample #3 の幅の逆数に対する周波数。フィッティング直線はほぼ原点を通り、屈折率 n を見積もると $n \sim 4.1$ となった。

5.2 長さ方向の影響

発振機構とメサの長さの関係を調べるために、Sample #1 の長辺方向を FIB によって逐次加工し、各サイズにおいてメサの R - T 特性、 I - V 特性、及び周波数特性を測定した。

図 5.4(a) は FIB による 4 回の逐次加工をした後のメサの光学顕微鏡像である。図 5.4(b) は、長さ $l = 280\ \mu\text{m}$ 、 $240\ \mu\text{m}$ 、 $200\ \mu\text{m}$ 、 $160\ \mu\text{m}$ 、 $120\ \mu\text{m}$ の各素子における c 軸電気抵抗の温度変化である。挿入図には電気抵抗率の温度変化を示す。加工を繰り返す毎に抵抗が大きくなるが、それが図 5.4(a) の R - T 特性に現れている。これは加工によってメサの面積が小さくなっていることに対応している。この電気抵抗を絶対値 (抵抗率) に直した挿入図では、全ての ρ (抵抗率)- T 特性が同一曲線上にあることから、FIB 加工は正確に行われ、また FIB 加工によって結晶の性質は変化していないと考えられる。長さ $l = 120\ \mu\text{m}$ の素子については、他の曲線からわずかにずれているが、メサに Au 線を取り付け直したために接触抵抗が増大したことに由来している。

図 5.5(a)、(b)、(c) はそれぞれ、長さが異なる各素子の、 $20\ \text{K}$ 、 $40\ \text{K}$ 、 $60\ \text{K}$ における I - V 特性を示している。長さが短くなるに従い、臨界電流 I_c は小さくなり、印加電圧 V は大きくなるといった系統的な振る舞いが、概ね観測されている。 $240\ \mu\text{m}$ のメサは、低電流領域では顕著ではないものの、高電流領域において系統的でない振る舞いを見せる。これは、高電流を流すとショートしてしまう部分が素子に含まれていることを示唆しており、加工のミスであると考えられる。しかしながら、発振は全て低電流領域で観測されるため、以下の実験結果にはほとんど影響しない。

長さを短くすることによって印加電圧が大きくなる振る舞いは、従来型の素子では発熱の問題のために明確には認識されていなかった。この振る舞いは単独メサ構造の高い排熱効果を示しており、メサの大きさを変えることによって印加電圧を制御できることは、よ

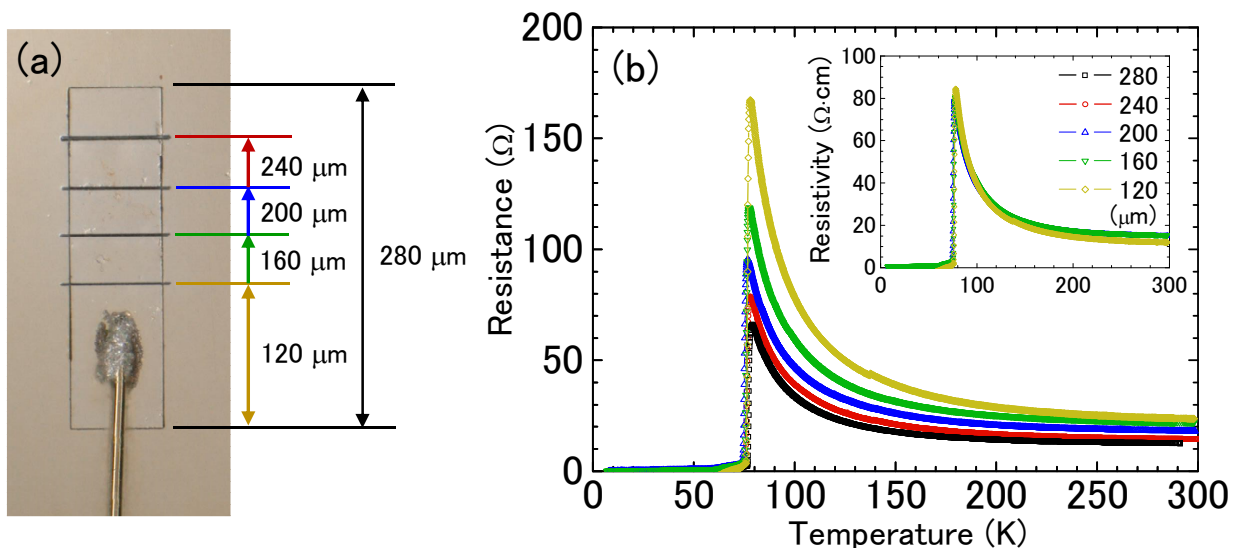


図 5.4: (a) FIB によるエッチングを全て終えた後の素子の光学顕微鏡像。(b) 長さ $l = 280\ \mu\text{m}$ 、 $240\ \mu\text{m}$ 、 $200\ \mu\text{m}$ 、 $160\ \mu\text{m}$ 、 $120\ \mu\text{m}$ の各素子における電気抵抗の温度依存性。縦軸を電気抵抗率に換算し、FIB 加工による結晶の性質の変化が見られないことを挿入図に示した。接触抵抗は差し引いている。

り高周波の発振も可能であることを示唆している。120 μm の素子で 20 K で到達した 7 V の電圧は、ジョセフソン関係式で周波数に換算すると、2.7 THz になる。この程度の高周波数での高出力発振は現在のところ観測されていないが、高電圧が印加できることは、今後、単独メサ構造で高周波発振が可能になることを強く示唆している。

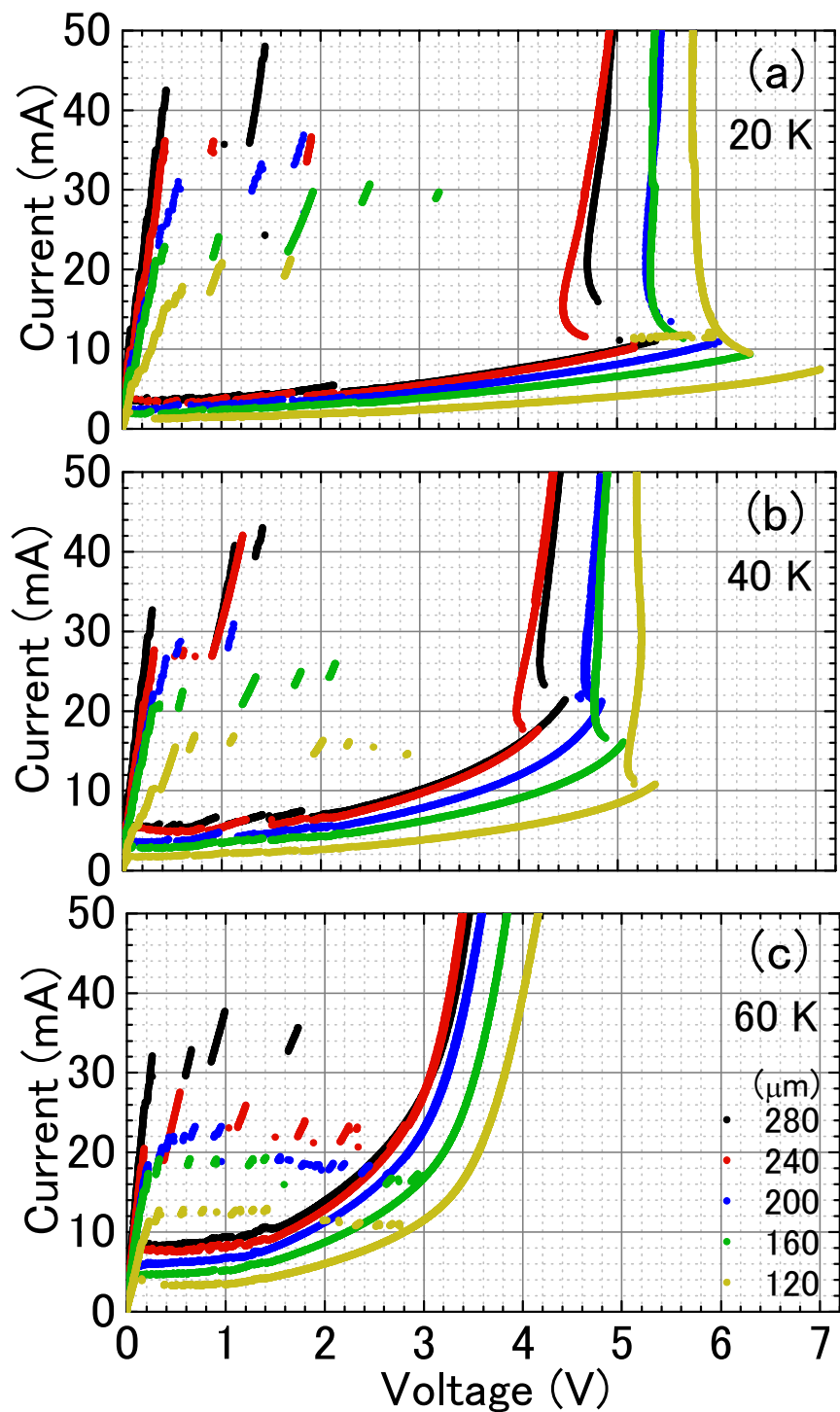


図 5.5: 長さの異なる各素子の、温度 (a)20 K、(b)40 K、(c)60 K における I - V 特性。

内部ブランチにおける発振現象

長さ l を $280\ \mu\text{m}$ から $240\ \mu\text{m}$ に変化させたとき、TM(1,0) モードでの発振出力が 1 桁以上小さくなる現象が観測された。この理由を探るため、内部ブランチを含めた詳しい測定を行った。60 K の温度で得られた測定結果を図 5.6 に示す。灰色の曲線は I - V 特性を示し、(a)、(b) においてカラープロットは FT-IR 分光器によって検出された周波数、出力をそれぞれ表している。黒の四角は、測定を行ったが検出できなかった点を表す。図 5.6(a)、(b) を見てわかるように、内部ブランチにおいて高出力発振が起こり、そのときの周波数は $\sim 0.48\ \text{THz}$ 、すなわち TM(1,0) モードと一致している。つまり、最外ブランチ (outer-most branch) では接合あたりの電圧が十分小さくならないために TM(1,0) モードの高出力な発振が起こらないが、内部ブランチであれば、その条件を満たしているということである。内部ブランチであるほど接合あたりの電圧が大きくなり、発振周波数が高くなるということが、従来型メサ構造を使用した先行研究の結果である。しかし単独メサ構造の場合、排熱効果が高いために内部ブランチにおいても接合あたりの電圧は従来型メサ構造ほどは変化せず、素子によっては接合あたりの電圧が内部ブランチに入ったほうが低くなりうるということを示している。

図 5.7、図 5.8 には、それぞれ 40 K、20 K における内部ブランチでの周波数測定の結果を示す。低温になるほど発振出力は弱く、内部ブランチでも発振が検出されなくなる。この原因は明らかではないが、本研究で測定したどの素子においても低温ほど発振出力が低下するという問題は、発振機構に関係していると考えられ、重要である。

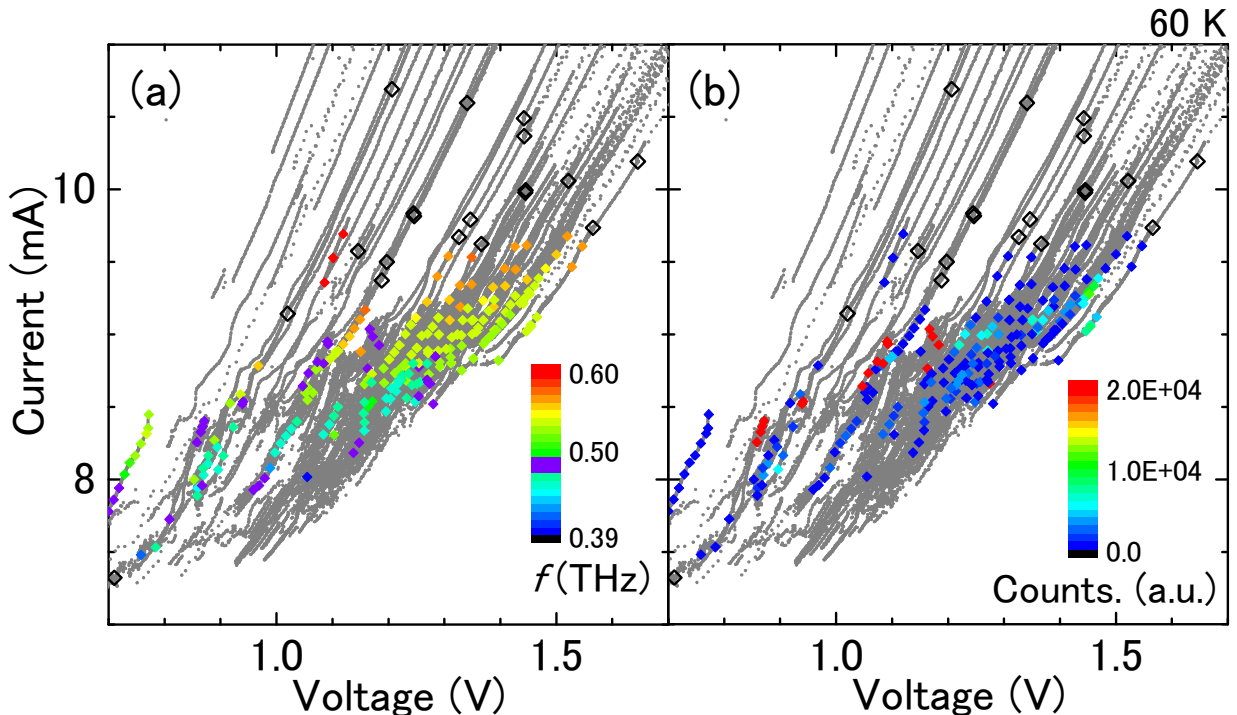


図 5.6: 60 K での内部ブランチにおける FT-IR 分光器によって得られた (a) 発振周波数と (b) ピーク出力。灰色の曲線は I - V 特性を表す。TM(1,0) モードに対応する周波数 (0.47-0.49 THz) を紫色にしてカラープロットをし、発振が観測できなかった測定点を黒の四角でプロットしている。

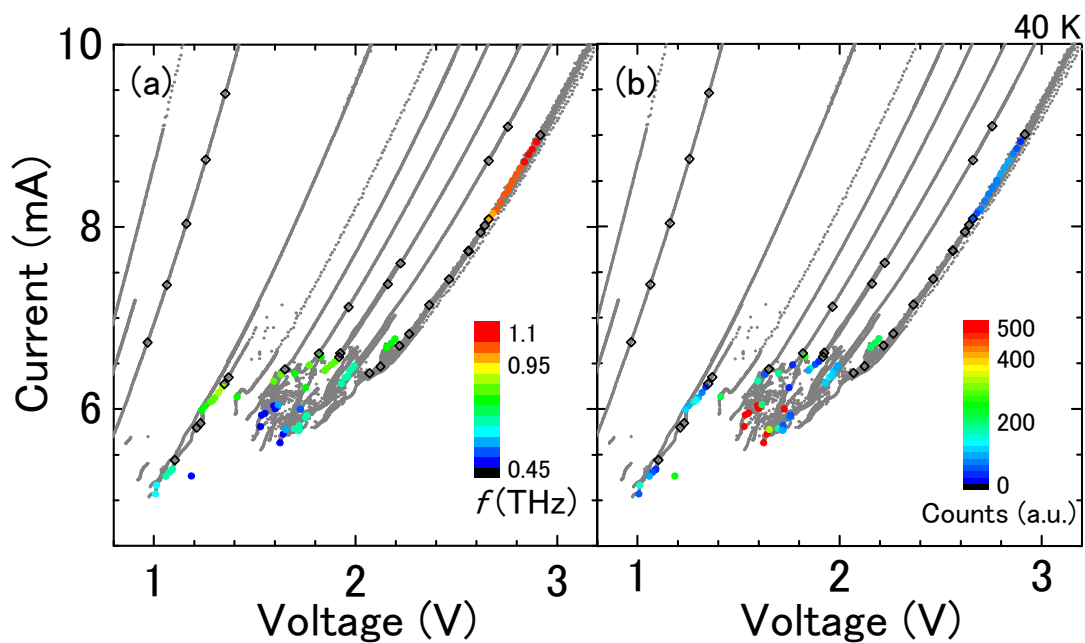


図 5.7: 40 K における内部ブランチの (a) 発振周波数と (b) ピーク出力。灰色の曲線は I - V 特性を表す。発振が観測できなかった測定点を黒の四角でプロットしている。

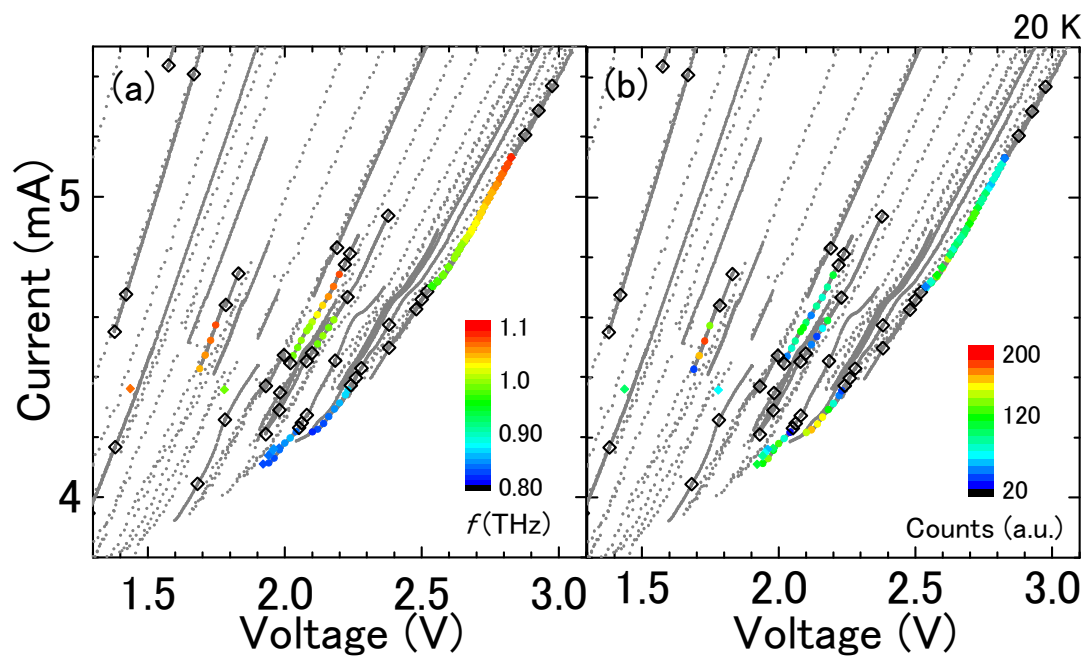


図 5.8: 20 K における内部ブランチの (a) 発振周波数と (b) ピーク出力。灰色の曲線は I - V 特性を表す。発振が観測できなかった測定点を黒の四角でプロットしている。

発振出力の長さ依存性

図 5.9(a)–(e) は、長さの異なる各素子における、FT-IR 分光器で測定された発振周波数を示しており、それぞれ長さ $l = 280\ \mu\text{m}$ 、 $240\ \mu\text{m}$ 、 $200\ \mu\text{m}$ 、 $160\ \mu\text{m}$ 、 $120\ \mu\text{m}$ の測定結果である。図 5.9(b)–(e) の長さ $l = 240\ \mu\text{m}$ 以下の結果については、主に 20 K、40 K、60 K の温度における内部ブランチの測定結果を含んでいる。図 5.9(a) の指数の付いたバーは、メサの大きさ (幅) から計算される $\text{TM}(m, p)$ モードの周波数を表しており、赤色、青色の網掛けはそれぞれ、実際に観測された $\text{TM}(1,0)$ 、 $\text{TM}(2,0)$ モードと考えられる周波数領域を表している。図 5.2 に関して説明したように、メサの大きさから見積もった周波数は FT-IR 分光器による実測よりやや低い、この原因は自明ではない。

図 5.9 を見てまずわかることは、0.3-1.1 THz の周波数帯域は長さによって変化しないということである。FIB 加工をすることでメサの面積が小さくなり印加電圧は大きくなったが (図 5.5)、加工以前 ($l = 280\ \mu\text{m}$) に 5 V 以上の電圧が印加されて 2.4-2.8 V において 1 THz 近傍の発振が観測されていた。このような場合には、印加電圧が大きくなることは周波数領域を拡大することには結びつかず、また縮小させることもなく、周波数領域は変化しない。

図 5.9 の $\text{TM}(1,0)$ モードの周波数について、長さ $l = 240\ \mu\text{m}$ 以下では最大出力は系統的に下がっている。ここで、長さ $l = 280\ \mu\text{m}$ の素子については内部ブランチの測定が不十分であると判断し、考慮しない。また、他の周波数領域については、1 THz 近傍の $\text{TM}(2,0)$ モードは系統的に下がっているものの、それ以外の周波数領域に系統性を見出すことは難しい。励起モードによらず、面積が小さくなるに従い出力が弱くなると定性的には考えられるが、実験結果はそうにはなっていない。したがって、メサそのもの以外の部分、すなわちメサ外部の構造が発振に影響している可能性を示唆していると考えられる。本研究では系統性が見出された $\text{TM}(1,0)$ モードと、参考のために $\text{TM}(2,0)$ モードについて、以下に考察する。

図 5.10 は長さの 2 乗に対する、各長さにおける最大出力を示している。 $\text{TM}(1,0)$ モードの出力は図 5.9 の 0.5 THz 付近の赤色の網掛けから、 $\text{TM}(2,0)$ モードの出力は青色の網掛けからプロットしている。このように、メサが長くなるに従い発振出力が増大していることがわかる。しかしこれでは、長さが具体的にどのように出力に影響しているのか、また、それ以外にパラメータが存在するのか不明である。そこで出力に対して比例するパラメータを様々に変えて、フィッティングしてみると、図 5.10 の挿入図のように $P \propto IN^2l^2$ の関係に従うことがわかった。ここで、 I は印加電流、 N は発振に寄与している接合数、 l はメサの長さである。 $\text{TM}(1,0)$ モードに関しては、直線フィッティングの結果として原点を通る直線となったため、想定する比例関係は正しいと考えられる。一方で $\text{TM}(2,0)$ モードについてはばらつきが大きく、フィッティングできない。この原因には以下の様な実験上の問題が考えられる。第一に、 $\text{TM}(2,0)$ モードの出力が小さいために誤差が大きいことである。第二に、大きさを变えることによって長さ方向のモードが入ってしまっている可能性があることである。すなわち、図 5.9 に $\text{TM}(2,0)$ モードと考えてプロットしたデータは、実際には $\text{TM}(2,0)$ モードではない可能性がある。 $\text{TM}(2,0)$ モードを分離して出力の変化を調べることは難しく、更なる実験的な工夫を要する。

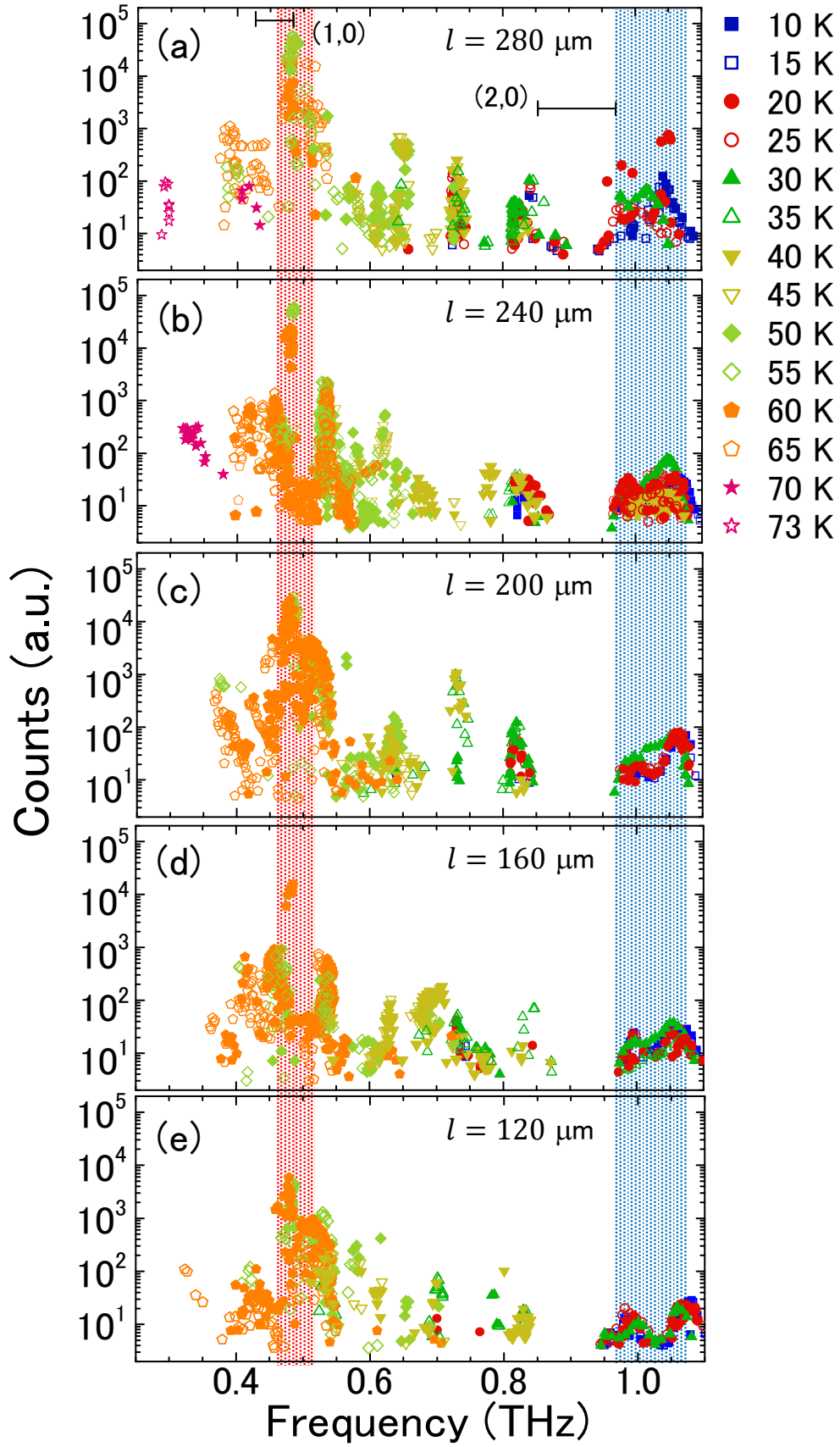


図 5.9: 長さの異なる各素子における、FT-IR 分光器で測定された発振周波数とその周波数におけるピーク出力。10 K から 70 K の 5 K 毎と 73 K の温度で測定を行った。(a) $l = 280 \mu\text{m}$ 、(b) $l = 240 \mu\text{m}$ 、(c) $l = 200 \mu\text{m}$ 、(d) $l = 160 \mu\text{m}$ 、(e) $l = 120 \mu\text{m}$ 。

図 5.10 において、 $P \propto IN^2l^2$ となった理由を考察する。まず、接合数 N については、先行研究において $P \propto N^2$ は既に知られている。次に、メサの長さ l については、アンテナ理論によると、発振出力が $P \propto l^2$ となる。パッチアンテナの出力は具体的には、

$$\begin{aligned} P_{\max} &= \frac{V_0^2}{2\eta_0\pi^2} \left(\frac{\pi l}{\lambda_0} \right)^2 \\ &= \frac{N^2 v^2}{2\eta_0\pi^2} \left(\frac{\pi l}{\lambda_0} \right)^2 \end{aligned} \quad (5.1)$$

と記述される [102]。ここで、 V_0 はアンテナに印加される交流電圧、 η_0 は空間のインピーダンス、 λ_0 は空間における波長、 v は Bi2212 の THz 波発振素子における接合あたりの電圧である。ここで、アンテナ理論による式 (5.1) の電圧 V_0 が Bi2212 の発振素子に適用できるかどうかについては自明ではない。RCSJ モデルによると、交流ジョセフソン効果によって生じる電圧と準粒子電流によって生じる電圧は等しく、式 (5.1) の V_0 をメサの印加電圧 V と見なすことができる。したがって、 $P \propto V^2$ であり、 $V = Nv$ を考慮すると $P \propto N^2l^2$ と表される。

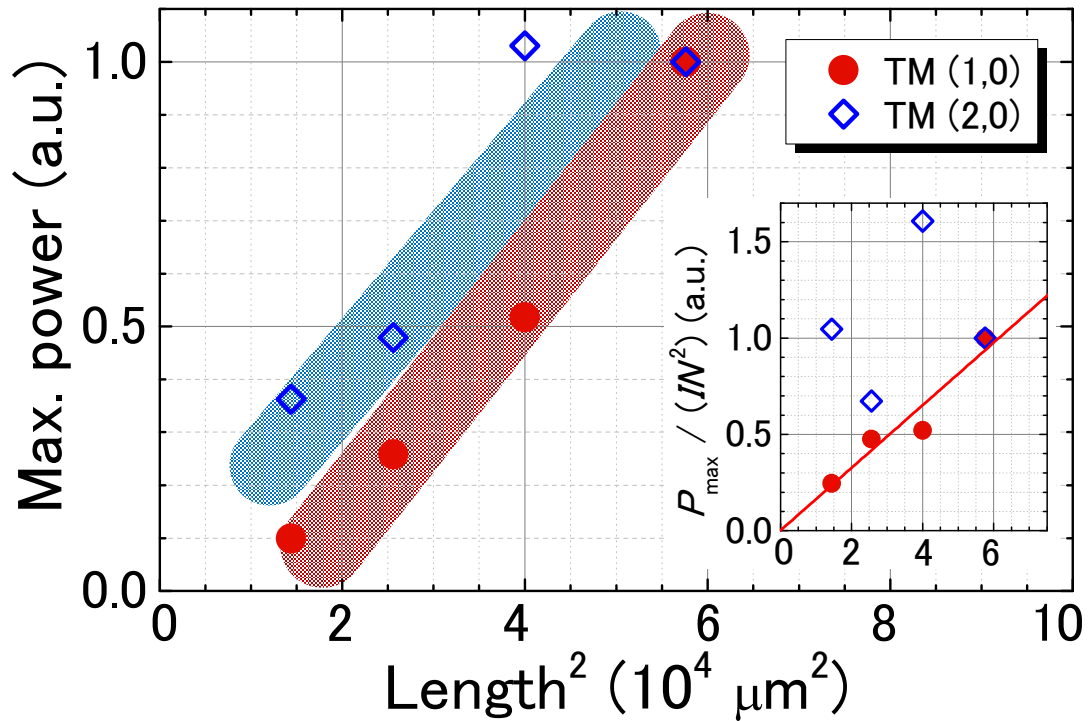


図 5.10: 長さに対する TM(1,0) モード、TM(2,0) モードにおける最大発振出力の変化。データは図 5.9 を使用している。図中に、 $P \propto IN^2l^2$ を想定した図を示す。TM(1,0) モードは原点を通過する直線となったが、TM(2,0) モードについてはばらつきが大きくフィッティングできない。

次に、超伝導電流 I_s の寄与を考える。この電流 I_s は、素子内を一様に流れる超伝導交流電流である。この電流の流れ方は、ダイポールアンテナと同様である。ただし、ダイポールアンテナは直線上を電子が移動するが、現在考えている素子はある体積をもつメサの中で電子対が移動していることに注意したい。アンテナ理論によると、交流電流 I が流れるダイポールアンテナの発振出力は $P \propto I$ となる。メサ内における超伝導電流密度を j_s とすると、 $I_s = j_s S = j_s l w$ となるが、 ρ が加工によって変化せず物質定数は変化しないため j_s も変化しないと考えると、発振出力は $P \propto I_s$ と表される。印加電流 I はメサ内を流れる準粒子電流 I_n と超伝導電流 I_s の和で表されるため、その比については不明であるが、 $P \propto I$ と表すことができる。したがって、 $P \propto I n^2 \rho$ となる。

図 5.11 は $l = 280 \mu\text{m}$ 、 $l = 120 \mu\text{m}$ の素子の規格化した放射分布で、図中の座標の xz -面 ($\phi = 0^\circ$, $-90^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$) について 5° おきに 60 K において測定した結果である。ここで、 $l = 280 \mu\text{m}$ 、 $l = 120 \mu\text{m}$ のメサの発振出力は 1 桁以上異なり、図 5.11 ではそれぞれの結果を規格化していることに注意したい。図 5.11 を見ると、 $\theta = 0^\circ$ 方向に最も大きく異なっていることがわかる。 $\theta = 0^\circ$ 方向においては $l = 280 \mu\text{m}$ のメサの放射分布は大きく飛び出ており、 $l = 120 \mu\text{m}$ のメサは凹んでいることが特徴である。一方、 $\theta = +60^\circ$ 方向にもやや異なっているが、この方向の差異は比較的小さく、 $\theta = -60^\circ$ を合わせて考慮すると $l = 280 \mu\text{m}$ と $l = 120 \mu\text{m}$ のメサで放射分布の傾向は同様であると考えられる。

この原因を考察する際に、前提として考慮されるべき物理的なモデルに、dual-source model がある [71,72]。dual-source model とは、THz 波の発振源として、ジョセフソン電流による素子内を一様に流れる交流電流と、メサ構造を作ることによって得られる励起モードに応じた非一様な交流電流の 2 つが、THz 波の出力に寄与しており、これらの比が素子によって変化するという考え方である。ジョセフソン電流の寄与としてダイポールアンテナ、励起モードとしてパッチアンテナの TM(1,0) モードを考慮すると、それぞれの放射分布は図 5.12 のようになる。ダイポールアンテナの放射分布は、電場成分

$$|E_\theta| \propto \cos(kt \cos \theta) \sin \theta \quad (5.2)$$

から図 5.12 内の紫色の点線で表され、パッチアンテナの TM(1,0) モードの放射分布は

$$|E_\theta| \propto \cos(kw \sin \theta) \quad (5.3)$$

から、橙色の実線で表される [102]。ここで、 k は空間中での波数、 t はメサの厚さ、 w はメサの幅、 θ は図 5.10 中で定義される角度であり、 $|E_\theta|^2$ をプロットした。また、ここでは簡単のためにダイポールアンテナとパッチアンテナは無限に大きい導体板上にあるものとし、放射分布に影響する角度成分のみを書き表した。

$l = 280 \mu\text{m}$ の素子ではパッチアンテナ (TM(1,0) モード) の寄与が大きいため、放射分布は $\theta = 0^\circ$ 方向に飛び出ており、同時に $\theta = 60^\circ$ 方向にはジョセフソン電流の寄与が現れている。一方で $l = 120 \mu\text{m}$ の素子では、 $\theta = 0^\circ$ 方向には凹んでいることから、パッチアンテナの寄与がかなり小さくなっていることがわかる。そして、 $\theta = 60^\circ$ 方向にはやはりジョセフソン電流の寄与が現れている。つまり、ジョセフソン電流の寄与は素子形状によらず現れるが、パッチアンテナの寄与は形状に依存して変化し、長さ l が大きいほどアンテナの成分が大きくなり、得られる発振出力も増大する。図 5.10 ではパッチアンテナ成分のみに関して考察し、励起される TM モードのみが出力に影響していると考えたが、図 5.11 の放射分布においても同様にパッチアンテナの寄与の変化を見て取ることができ、ジョセフソ

ン電流の寄与はどちらの素子にも現れていることがわかる。したがって、第一の放射源となっているのはジョセフソン電流であるが、発振出力を決めているのはメサ構造の形状であるということがわかった。この考え方そのものは従来と変わらないが、メサ形状に対する出力の変化の仕方、すなわち $P \propto IN^2l^2$ となることを本実験で初めて明らかにした。

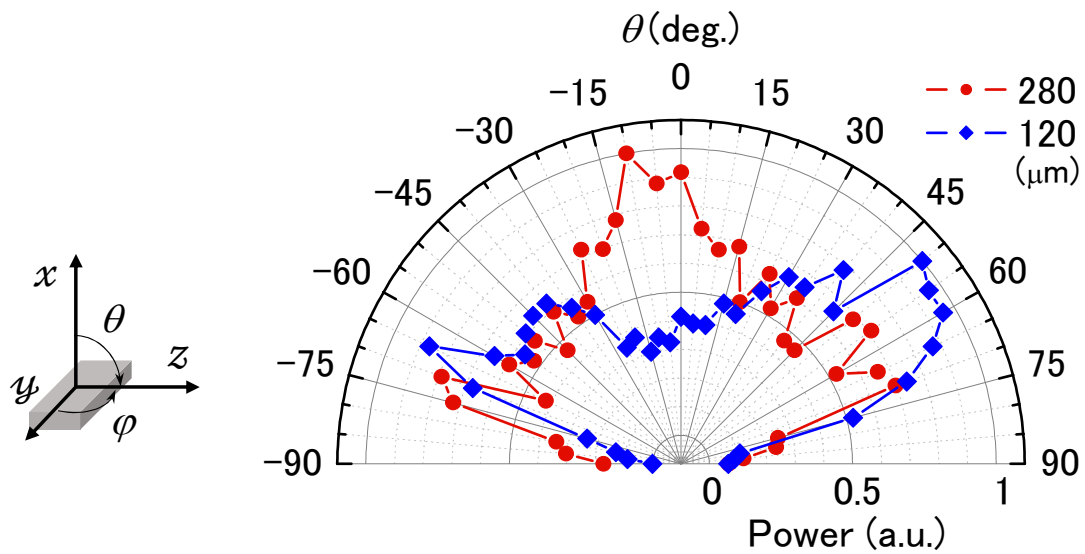


図 5.11: メサの長さ $l = 280 \mu\text{m}$ 、 $240 \mu\text{m}$ の 65 K における xz -面に関する放射分布。座標系は図中に示す。放射分布は $\theta = 0^\circ$ 近傍で大きく異っている。

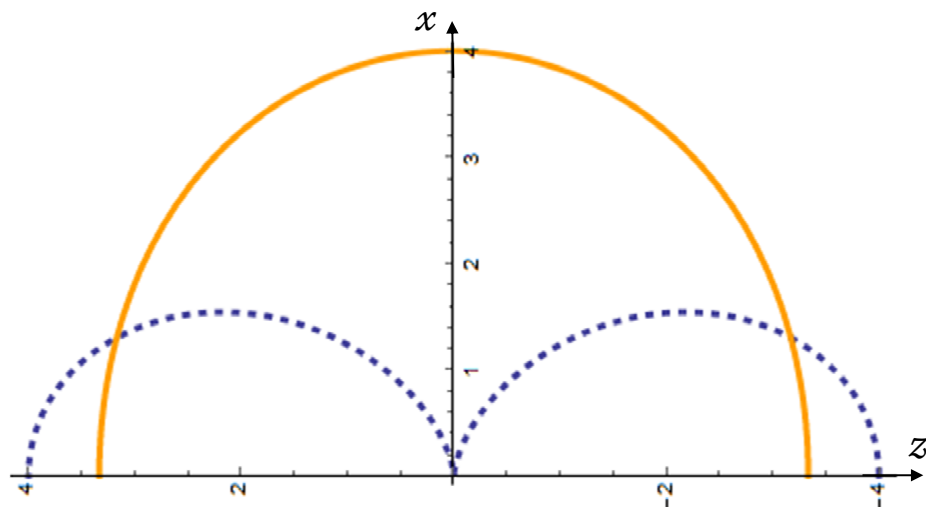


図 5.12: 無限に大きい導体板上にある、パッチアンテナの $\text{TM}(1,0)$ モード (橙色の実線) とダイポールアンテナ (紫色の点線) の xz -面における放射分布。

5.3 結論

異なる大きさの単独メサ構造を作製し、詳しく周波数測定を行うことによって、従来の説明の通り高出力発振はメサの幅のみに依存する **TM(1,0)** モードで起こることを明らかにした。また、高電圧が印加できる場合には、**TM(2,0)** モードが観測されることを確認した。

FIB 加工によって単独メサ構造の長さ l (面積 S) を小さくするほど (準粒子) 抵抗が大きくなり、より大きな電圧 V が印加できるようになることを確認した。これは従来型メサ構造では、ジュール発熱による温度上昇のために観測できなかった振る舞いであり、単独メサ構造の高い排熱効果の結果である。このため、単独メサ構造においては、単純に形状を制御するだけで、より高い周波数での発振が可能になることを示唆している。本実験では素子に 7 V まで電圧を印加することができ、ジョセフソン関係式によって周波数に換算すると、 2.7 THz の発振が期待される。

加工前の素子で確認された $0.3\text{--}1.1\text{ THz}$ の広帯域の発振は、加工後もほとんど変化しないことを確認した。このことから、長さ方向は発振周波数を決定する機構には関係ないことがわかった。また、どの素子においても **TM(1,0)** モードで最も出力の高い発振が観測されたが、長さ l を短くするにしたがって出力が小さくなった。この結果から、**TM(1,0)** モードについてアンテナ理論の関係式を考慮することで、 $P \propto IN^2l^2$ となることがわかった。しかし他の周波数については不明であり、追加実験が必要である。

放射分布については、**dual-source model** を考慮することで矛盾なく説明される。つまり、第一の放射源はジョセフソン電流であるが、発振出力を大きく変更するのはメサ内に励起される **TM** モードによる非一様な電流である。これは従来の考え方と変わらないが、素子形状に対する発振出力の変化、すなわち $P \propto IN^2l^2$ となることを初めて観測し、**dual-source model** を考慮することで放射分布を含めて矛盾なく説明できることを示した。

本研究では、メサの長さ l を **FIB** によって逐次的に加工し、各サイズにおいて **THz** 波発振を検出し、逐次的な **THz** 波発振特性の変化を調べることに成功した。これは単独メサ構造が十分に発振出力が大きいことと、**FIB** によって加工可能な素子構造であることで初めて可能になった。

これらの結果は今後、高出力 **THz** 波発振素子を設計し実用化する際には、大変重要な情報である。

第6章 まとめ

Bi2212 を使った THz 波発振素子の高周波化及び高出力化を目指し、本研究は行われた。第一に、過去に高出力発振素子として提案されたが、これまで数件の実験的報告しかなく系統的な研究がなされてこなかった単独メサ構造を改めて作製し、詳細な実験を行って評価した。第二に、その単独メサ構造を使用して発振特性に対する素子形状の影響を調べた。

第一の研究では、素子の作製工程から見直し、条件を様々に変えることによって、再現よく単独メサ構造を作製する手法を確立した。単独メサ構造では本来、その構造から考えると、従来型メサ構造と比べて高い排熱効果を有しているはずであるが、先行研究においてはその特徴は観測されなかった。本研究では高い排熱効果を備えた単独メサ構造を作製することに成功し、5 V を超える大きな印加電圧を実現した結果、世界で初めて 1 THz を超える発振周波数を観測した。観測できた周波数範囲は 0.29 - 1.08 THz であり、 $\pm 58\%$ と過去最大の周波数可変幅が得られた。さらに発振出力は最大で $\sim 20 \mu\text{W}$ と先行研究と同程度であったが、73 K の温度まで観測可能でこれも最高記録であった。このように、少なくとも発振周波数と発振が起こる温度に関しては、排熱効果を高めることで大きく改善することができた。一方で、発振出力については従来記録を更新することはできなかった。

尚、本研究で確立した作製工程は、いくつかの工程において最適化の余地を残している。素子の量産を目的とする場合、本論文に記した作製条件を参考にして、更なる改善をすることが必要である。

このように発振素子の特性を改善することができたものの、発振周波数と出力の決定因子については不明な点が多い。基本的な発振原理は、交流ジョセフソン効果と空洞共振効果によって発振が起こると説明されるが、では周波数の上限は何で決まっているのか、出力は接合数以外のどのようなパラメータで決まるのかなど、本質的に重要と考えられる事柄であってもほとんど考察や詳細な実験がなされてこなかった。そこで第二の研究として、基本的なパラメータであるメサの大きさが発振周波数と発振出力にどのように影響しているかを調べた。

第二の研究ではまず、異なる大きさの単独メサ構造を作製し、詳しく周波数測定を行うことによって、従来と同じように高出力発振はメサの幅のみに依存する TM(1,0) モードで起こることを明らかにした。また、大きな電圧が印加できる場合には、TM(2,0) モードが観測されることを確認した。

次に、FIB 加工によって単独メサ構造の長さ l (面積 S) を小さくするほど (準粒子) 抵抗が大きくなり、より大きな電圧 V が印加できるようになることを確認した。これは従来型メサ構造では、ジュール発熱による温度上昇のために観測できなかった振る舞いであり、単独メサ構造の高い排熱効果の結果である。このため、単独メサ構造においては、単純に形状を制御するだけで、より高い周波数での発振が可能になることを示唆している。本実験ではメサに 7 V まで電圧を印加することができ、ジョセフソン関係式によって周波数に換算すると、2.7 THz に達する。

加工前の素子で確認された広帯域の発振は、加工後でもほとんど変わらず、0.3-1.1 THzにおいて検出された。このことから、長さ方向は発振周波数を決定する機構には関係ないことがわかった。また、どの素子においても **TM(1,0)** モードで最も出力の高い発振が観測されたが、長さ l を短くするにしたがって出力が小さくなった。この結果から、**TM(1,0)** モードについてアンテナ理論の関係式を考慮することで、 $P \propto IN^2l^2$ となることがわかった。しかし他の周波数については不明であり、追加実験が必要である。

これらの振る舞いは、放射分布を測定し、**dual-source model** を考慮することで矛盾なく説明される。つまり、第一の放射源はジョセフソン電流であるが、発振出力を最終的に決定するのはメサ内に励起される **TM** モードによる非一様な電流である。これは従来の考え方と変わらないが、素子形状に対する発振出力の変化を初めて観測し、アンテナ理論を考慮することで矛盾なく説明することができた。

本研究では、メサの長さ l を **FIB** によって逐次的に加工し、各サイズにおいて **THz** 波発振を検出し、逐次的な **THz** 波発振特性の変化を調べることに成功した。これは単独メサ構造が十分に発振出力が大きいことと、**FIB** によって加工可能な素子構造であることで初めて可能になった。

謝辞

本研究でお世話になった方々に、ここに御礼を申し上げます。

指導教員である門脇和男教授には、学類の卒業研究から6年間の長きにわたり、熱心なご指導を頂きました。自由闊達な雰囲気の研究環境のおかげで、実験に限度なく打ち込むことができました。門脇教授は学生の研究テーマを決める際には、決して押し付けることなく、私たち学生の意見や考えを尊重し、暖かく見守って下さいました。私が主体的に研究に取り組もうとする中で、多くの場合には壁にぶつかり、研究の難しさを学びました。時には実験が成功し、世界で自分しか出せないデータを出し、自分しか知らない実験事実を掴むことの喜びを感じることができました。門脇研究室には、私自身の成長にとってたくさんの良い部分と、逆に悪い部分もあったのかもしれませんが、その全てが今の自分にとってかけがえのない経験です。

柏木隆成先生には、日常的に研究に関して議論をしていただき、とても勉強になりました。学会前には先生自身の準備があるにも関わらず、親身に相談にのっていただきました。論文を執筆する際には、初稿を最初に柏木先生に見ていただきました。実験道具の不足や実験設備の不具合など、実験の現場での様々な問題に直ちに対応し解決する姿や、素早く研究成果を出していく姿は、私が目指す研究者像と重なり大変勉強になりました。また、進路のことを含めてたくさんの雑談をしていただき、先生のお陰で日々の研究に集中することができました。

南英俊先生は研究発表の度に、本質的な指摘をしていただきました。先生の見解には助けられることも悩まされることもありましたが、いずれにしても重要な意見ばかりで、実験の手法から実験データの解釈まで自分の研究について幾度となく考えさせられました。また、質問をしに伺った時には気さくに応じてくださり、自分の考えが定まったことをよく覚えております。論文の添削を依頼した時には、大変丁寧なご指導をいただきました。先生には、自分の実験データを客観的に捉え、考える機会をたくさん作っていただいたと感じております。

門脇研究室の多くの素晴らしい先輩方のご支援を賜り、研究熱心な同期に刺激を受け、元気で活発な後輩たちに支えられ、現在まで研究を遂行することができました。本研究に関わっていただいた全ての人に、心から感謝申し上げます。

業績リスト (原著論文)

1. Takanari Kashiwagi, Manabu Tsujimoto, Takashi Yamamoto, Hidetoshi Minami, Kazuhiro Yamaki, Kaveh Delfanazari, Kota Deguchi, Naoki Orita, Takashi Koike, Ryo Nakayama, Takeo Kitamura, Masashi Sawamura, Shota Hagino, Kazuya Ishida, Krsto Ivanovic, Hidehiro Asai, Masashi Tachiki, and Kazuo Kadowaki, “High Temperature Superconductor Terahertz Emitters: Fundamental Physics and Its Applications,” Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 010113 (2012).
2. Manabu Tsujimoto, Takashi Yamamoto, Kaveh Delfanazari, Ryo Nakayama, Takeo Kitamura, Masashi Sawamura, Takanari Kashiwagi, Hidetoshi Minami, Masashi Tachiki, Kazuo Kadowaki, and Richard A. Klemm, “Broadly tunable subterahertz emission from internal branches of the current-voltage characteristics of superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ single crystals,” Phys. Rev. Lett. **108**, 107006 (2012).
3. M. Tsujimoto, H. Minami, K. Delfanazari, M. Sawamura, R. Nakayama, T. Kitamura, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, T. Hattori and K. Kadowaki, “Terahertz imaging system using high-Tc superconducting oscillation devices,” J. Appl. Phys. **111**, 123111 (2012).
4. K. Delfanazari, H. Asai, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Kitamura, T. Yamamoto, M. Sawamura, K. Ishida, C. Watanabe, S. Sekimoto, H. Minami, M. Tachiki, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, “Tunable terahertz emission from the intrinsic Josephson junctions in acute isosceles triangular $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ mesas,” Opt. Express **21**, 2171 (2013).
5. T. Kashiwagi, K. Nakade, B. Markovi, Y. Saiwai, H. Minami, T. Kitamura, C. Watanabe, K. Ishida, S. Sekimoto, K. Asanuma, T. Yasui, Y. Shibano, M. Tsujimoto, T. Yamamoto, J. Mirković and K. Kadowaki, “Reflection type of terahertz imaging system using a high-Tc superconducting oscillator,” Appl. Phys. Lett. **104**, 022601 (2014).
6. T. Kashiwagi, K. Nakade, Y. Saiwai, H. Minami, T. Kitamura, C. Watanabe, K. Ishida, S. Sekimoto, K. Asanuma, T. Yasui, Y. Shibano, M. Tsujimoto, T. Yamamoto, B. Marković, J. Mirković, R. A. Klemm and K. Kadowaki, “Computed tomography image using sub-terahertz waves generated from a high-Tc superconducting intrinsic Josephson junction oscillator,” Appl. Phys. Lett. **104**, 082603 (2014).
7. Kaveh Delfanazari, Hidehiro Asai, Manabu Tsujimoto, Takanari Kashiwagi, Takeo Kitamura, Kazuya Ishida, Chiharu Watanabe, Shunsuke Sekimoto, Takashi Yamamoto, Hidetoshi Minami, Masashi Tachiki, Richard A. Klemm, Toshiaki Hattori, Kazuo Kadowaki, “Terahertz

Oscillating Devices Based Upon the Intrinsic Josephson Junctions in a High Temperature Superconductor,” J. Infrared Millim. Terahertz Waves **35**, 131 (2014).

8. T. Kitamura, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, M. Tsujimoto, C. Watanabe, K. Ishida, S. Sekimoto, K. Asanuma, T. Yasui, K. Nakade, Y. Shibano, Y. Saiwai, H. Minami, R. A. Klemm, “Broadly tunable, high-power terahertz radiation up to 73 K from a stand-alone $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ mesa,” Appl. Phys. Lett. **105**, 202603 (2014).
9. Takanari Kashiwagi, Takashi Yamamoto, Takeo Kitamura, Kentaro Asanuma, Chiharu Watanabe, Kurama Nakade, Takaki Yasui, Yoshihiko Saiwai, Yuuki Shibano, Hiroyuki Kubo, Kazuki Sakamoto, Takuya Katsuragawa, Manabu Tsujimoto, Kaveh Delfanazari, Ryoza Yoshizaki, Hidetoshi Minami, Richard A. Klemm and Kazuo Kadowaki, “Generation of electromagnetic waves from 0.3 to 1.6 terahertz with a high-T_c superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ intrinsic Josephson junction emitter,” Appl. Phys. Lett. **106**, 092601 (2015).
10. Takanari Kashiwagi, Kazuki Sakamoto, Hiroyuki Kubo, Yuuki Shibano, Takuma Enomoto, Takeo Kitamura, Kentaro Asanuma, Takaki Yasui, Chiharu Watanabe, Kurama Nakade, Yoshihiko Saiwai, Takuya Katsuragawa, Manabu Tsujimoto, Ryoza Yoshizaki, Takashi Yamamoto, Hidetoshi Minami, Richard A. Klemm and Kazuo Kadowaki, “A high-T_c intrinsic Josephson junction emitter tunable from 0.5 to 2.4 terahertz,” Appl. Phys. Lett. **107**, 082601 (2015).
11. T. Kashiwagi, T. Yamamoto, H. Minami, M. Tsujimoto, R. Yoshizaki, K. Delfanazari, T. Kitamura, C. Watanabe, K. Nakade, T. Yasui, K. Asanuma, Y. Saiwai, Y. Shibano, T. Enomoto, H. Kubo, K. Sakamoto, T. Katsuragawa, B. Marković, J. Mirković, R. A. Klemm, and K. Kadowaki, “Efficient Fabrication of Intrinsic-Josephson-Junction Terahertz Oscillators with Greatly Reduced Self-Heating Effects,” Phys. Rev. Appl. **4**, 054018 (2015).
12. Kaveh Delfanazari, Hidehiro Asai, Manabu Tsujimoto, Takanari Kashiwagi, Takeo Kitamura, Takashi Yamamoto, Wade Wilson, Richard Klemm, Toshiaki Hattori, Kazuo Kadowaki, “Tunable terahertz emission from the intrinsic Josephson junctions in acute isosceles triangular $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ mesas,” IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol. **5**, 505 (2015).
13. C. Watanabe, H. Minami, T. Kitamura, K. Asanuma, K. Nakade, T. Yasui, Y. Saiwai, Y. Shibano, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, R. A. Klemm and K. Kadowaki, “Influence of the local heating position on the terahertz emission power from high-T_c superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ mesas,” Appl. Phys. Lett., **106**, 042603 (2015).
14. Chiharu Watanabe, Hidetoshi Minami, Takeo Kitamura, Yoshihiko Saiwai, Yuki Shibano, Takuya Katsuragawa, Hiroyuki Kubo, Kazuki Sakamoto, Takanari Kashiwagi, Richard A. Klemm, and Kazuo Kadowaki, “The Electrical Potential Distribution in Terahertz-Emitting Rectangular Mesa Devices of High-T_c Superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$,” submitted to Supercond. Sci. Technol.

15. Takeo Kitamura, Takanari Kashiwagi, Manabu Tsujimoto, Chiharu Watanabe, Yuki Shibano, Yoshihiko Saiwai, Hiroyuki Kubo, Kazuki Sakamoto, Takashi Yamamoto, Hidetoshi Minami, Richard A. Klemm, and Kazuo Kadowaki, “ Electromagnetic Radiation Power at Terahertz Frequencies from a Superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Stand-alone Mesa,” to be submitted to Phys. Rev. Lett.

参考文献

- [1] B. D. Josephson, Phys. Lett. **1**, 251 (1962).
- [2] P. W. Anderson and J. M. Rowell, Phys. Rev. Lett. **10**, 230 (1963).
- [3] Richard P. Feynman, Robert B. Leighton, Matthew Sands, “The Feynman Lectures on Physics vol. III 2nd edn.,” Addison Wesley (2005).
- [4] W. C. Stewart, Appl. Phys. Lett. **12**, 277 (1968).
- [5] D. E. McCumber, J. Appl. Phys. **39**, 3113 (1968).
- [6] D. N. Langenberg, D. J. Scalapino, B. N. Taylor, and R. E. Eck, Phys. Rev. Lett. **15**, 294 (1965).
- [7] I. K. Yanson, V. M. Svistunov, and I. M. Dmitrenko, Sov. Phys. JETP **21**, 650 (1965).
- [8] A. H. Dayem and C. C. Grimes, Appl. Phys. Lett. **9**, 47 (1966).
- [9] J. E. Zimmerman, J. A. Cowen, and A. H. Silver, Appl. Phys. Lett. **9**, 353 (1966).
- [10] D. D. Coon and M. D. Fiske, Phys. Rev. **138**, A744 (1965).
- [11] R. E. Eck, D. J. Scalapino, and B. N. Taylor, Phys. Rev. Lett. **13**, 15 (1964).
- [12] T. F. Finnegan and S. Wahlsten, Appl. Phys. Lett. **21**, 541 (1972).
- [13] C. Varmazis, R. D. Sandell, A. K. Jain, and J. E. Lukens, Appl. Phys. Lett. **33**, 357 (1978).
- [14] P. Barbara, A. B. Cawthorne, S. V. Shitov, and C. J. Lobb, Phys. Rev. Lett. **82**, 1963 (1999).
- [15] G. Filatrella, B. Staughn, and P. Barbara, J. Appl. Phys. **90**, 5675 (2001).
- [16] B. Vasilić, S. V. Shitov, C. J. Lobb, and P. Barbara, Appl. Phys. Lett. **78**, 1137 (2001).
- [17] T. Nagatsuma, K. Enpuku, F. Irie and K. Yoshida, J. Appl. Phys. **54**, 3302 (1983); T. Nagatsuma, K. Enpuku, F. Irie and K. Yoshida, *ibid.* **56**, 3284 (1984); T. Nagatsuma, K. Enpuku, F. Irie and K. Yoshida, *ibid.* **58**, 44 (1985); T. Nagatsuma, K. Enpuku, F. Irie and K. Yoshida, *ibid.* **63**, 1130 (1988).
- [18] V. P. Koshelets and S. V. Shitov, Supercond. Sci. Technol. **13**, R53 (2000).
- [19] H. Kamerlingh Onnes, Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden, **120b**, **122b**, **124c** (1911).

- [20] J. R. Gavaler, Appl. Phys. Lett. **23**, 480 (1973).
- [21] J. G. Bednorz and K. A. Müller, Z. Phys. B **64**, 189 (1986).
- [22] H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutomi and T. Asano, Jpn. J. Appl. Phys. **27**, L209 (1988).
- [23] A. Damascelli, Z. Hussain, Z.-X. Shen, Rev. Mod. Phys. **75**, 473 (2003).
- [24] J. W. Loram, J. L. Tallon and W. Y. Liang, Phys. Rev. B **69**, 060502 (2004).
- [25] R. Kleiner and P. Müller, Phys. Rev. B **49**, 1327 (1994).
- [26] T. Watanabe, T. Fujii, A. Matsuda, Phys. Rev. Lett. **79**, 2113 (1997).
- [27] R. Kleiner, F. Steinmeyer, G. Kunkel, and P. Müller, Phys. Rev. Lett. **68**, 2394 (1992).
- [28] J. Liu, Y. Li, C. M. Lieber, Phys. Rev. B **49** (1994) 6234; Ch. Renner and Ø. Fischer, *ibid.* **51**, 9208 (1995).
- [29] A. Yurgens, D. Winker, N. V. Zavaritsky, T. Claeson, Phys. Rev. B **53**, R8887 (1996).
- [30] A. A. Yurgens, Supercond. Sci. Technol. **13**, R85 (2000).
- [31] K. Tamasaku, Y. Nakamura, and S. Uchida, Phys. Rev. Lett. **69**, 1455 (1992).
- [32] Y. Matsuda, M. B. Gaifullin, K. Kumagai, K. Kadowaki and T. Mochiku, Phys. Rev. Lett. **75**, 4512 (1995); Y. Matsuda, M. B. Gaifullin, K. Kumagai, K. Kadowaki, T. Mochiku, and K. Hirata, Phys. Rev. B **55**, R8685 (1997).
- [33] O. K. C. Tsui, N. P. Ong, Y. Matsuda, Y. F. Yang and J. B. Peterson, Phys. Rev. Lett. **73**, 724 (1994); O. K. C. Tsui, N. P. Ong, J. B. Peterson, *ibid.* **76**, 819 (1996).
- [34] M. Tachiki, T. Koyama, and S. Takahashi, "Coherence in Superconductors" edited by G.Dentscher and A.Revcodevski, (World Scientific)**371** (1996).
- [35] K. Kadowaki, I. Kakeya, M. B. Gaifullin, T. Mochiku, Y. Matsuda, K. Kumagai, S. Takahashi, and M. Tachiki, Phys. Rev. B **56**, 5617 (1997).
- [36] S. Sakai, P. Bodin, and N. F. Pederson, J. Appl. Phys. **73**, 2411 (1993).
- [37] T. Koyama and M. Tachiki, Solid State Commun. **96**, 367 (1995).
- [38] M. Tachiki, M. Iizuka, K. Minami, S. Tejima, and H. Nakamura, Phys. Rev. B **71**, 134515 (2005).
- [39] L. N. Bulaevskii, A. E. Koshelev, J. Supercond. Novel Magnetism **19**, 349 (2006).
- [40] A. V. Ustinov and S. Sakai, Appl. Phys. Lett. **73**, 686 (1998).
- [41] M. Machida, T. Koyama, M. Tachiki, Phys. Rev. Lett. **83**, 4618 (1999).
- [42] M. Machida, T. Koyama, A. Tanaka, and M. Tachiki, Physica C **330**, 85 (2000).

- [43] H. Matsumoto, *Physica C* **437-438**, 199 (2006).
- [44] L. N. Bulaevskii and A. E. Koshelev, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 057002 (2007).
- [45] S. Lin and X. Hu, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 247006 (2008).
- [46] X. Hu and S. Lin, *Phys. Rev. B* **78**, 134510 (2008).
- [47] A. E. Koshelev and L. N. Bulaevskii, *Phys. Rev. B* **77**, 014530 (2008).
- [48] A. E. Koshelev, *Phys. Rev. B* **78**, 174509 (2008).
- [49] M. Tachiki, S. Fukuya, and T. Koyama, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 127002 (2009).
- [50] A. E. Koshelev and L. N. Bulaevskii, *J. Phys.: Conf. Ser.* **150**, 052124 (2009).
- [51] M. Machida, Y. Ota, N. Sasa, T. Koyama, and H. Matsumoto, *J. Phys.: Conf. Ser.* **248**, 012037 (2010).
- [52] M. Tachiki, K. Ivanovic, K. Kadowaki, and T. Koyama, *Phys. Rev. B* **83**, 014508 (2011).
- [53] A. Irie, Y. Hirai, and G. Oya, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2159 (1998).
- [54] V. M. Krasnov, N. Mros, A. Yurgens, and D. Winkler, *Phys. Rev. B* **59**, 8463 (1999).
- [55] S. M. Kim, H. B. Wang, T. Hatano, S. Urayama, S. Kawakami, M. Nagao, Y. Takano, T. Yamashita, and K. Lee, *Phys. Rev. B* **72**, 140504 (2005)
- [56] K. Kadowaki, I. Takeya, T. Yamamoto, T. Yamazaki, M. Kohri, Y. Kubo, *Physica C* **437**, 111 (2006).
- [57] S. Madsen, G. Fillard, and N. F. Pedersen, *Eur. Phys. J. B* **40**, 209 (2004).
- [58] H. B. Wang, P. H. Wu, T. Yamashita, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 107002 (2001).
- [59] I. E. Batov, X. Y. Jin, S. V. Shitov, Y. Koval, P. Müller, and A. V. Ustinov, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 262504 (2006).
- [60] G. Hechtfischer, R. Kleiner, A. V. Ustinov, and P. Müller, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1365 (1997).
- [61] K. Lee, W. Wang, I. Iguchi, M. Tachiki, K. Hirata, and T. Mochiku, *Phys. Rev. B* **61**, 3616 (2000).
- [62] T. Clauss, T. Uchida, M. Mößle, D. Koelle, and R. Kleiner, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3166 (2004).
- [63] M. H. Bae, H. J. Lee, and J. H. Choi, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 027002 (2007).
- [64] V. M. Krasnov, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 257003 (2006).
- [65] H. B. Wang, S. Urayama, S. M. Kim, S. Arisawa, T. Hatano, and B. Y. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 252506 (2006).

- [66] 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, U. Welp, *Science* **318**, 1291 (2007).
- [67] S. Sekimoto, C. Watanabe, H. Minami, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, Richard A. Klemm, and K. Kadowaki, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 182601 (2013).
- [68] T. M. Benseman, K. E. Gray, A. E. Koshelev, W.-K. Kwok, U. Welp, H. Minami, K. Kadowaki, and T. Yamamoto, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 022602 (2013).
- [69] Takanari Kashiwagi, Manabu Tsujimoto, Takashi Yamamoto, Hidetoshi Minami, Kazuhiro Yamaki, Kaveh Delfanazari, Kota Deguchi, Naoki Orita, Takashi Koike, Ryo Nakayama, Takeo Kitamura, Masashi Sawamura, Shota Hagino, Kazuya Ishida, Krsto Ivanovic, Hidehiro Asai, Masashi Tachiki, and Kazuo Kadowaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 010113 (2012).
- [70] H. Minami, N. Orita, T. koike, T. Yamamoto, K. Kadowaki, *Physica C* **470**, S822 (2010).
- [71] M. Tsujimoto, K. Yamaki, K. Deguchi, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, H. Minami, M. Tachiki, and K. Kadowaki, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 037005 (2010).
- [72] K. Kadowaki, M. Tsujimoto, K. Yamaki, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, H. Minami, M. Tachiki, and R. A. Klemm, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 023703 (2010).
- [73] Richard A. Klemm and Kazuo Kadowaki, *J. Supercond. Novel Magn.* **23**, 613 (2010).
- [74] Richard A. Klemm and Kazuo Kadowaki, *J. Phys.: Condens. Matter* **22**, 375701 (2010).
- [75] Richard A. Klemm, Erica R. Laberge, Dustin R. Morley, Takanari Kashiwagi, Manabu Tsujimoto and Kazuo Kadowaki, *J. Phys.: Condens. Matter* **23**, 025701 (2011).
- [76] M. Tsujimoto, T. Yamamoto, K. Delfanazari, R. Nakayama, T. Kitamura, M. Sawamura, T. Kashiwagi, H. Minami, M. Tachiki, K. Kadowaki, and R. A. Klemm, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107006 (2012).
- [77] M. Tsujimoto, “Fundamental Mechanism of THz Radiation from High-Temperature Superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ and its Device Applications,” Doctor thesis (2013).
- [78] Takanari Kashiwagi, Takashi Yamamoto, Takeo Kitamura, Kentaro Asanuma, Chiharu Watanabe, Kurama Nakade, Takaki Yasui, Yoshihiko Saiwai, Yuuki Shibano, Hiroyuki Kubo, Kazuki Sakamoto, Takuya Katsuragawa, Manabu Tsujimoto, Kaveh Delfanazari, Ryo-ozo Yoshizaki, Hidetoshi Minami, Richard A. Klemm, and Kazuo Kadowaki, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 192601 (2015).
- [79] Takanari Kashiwagi, Kazuki Sakamoto, Hiroyuki Kubo, Yuuki Shibano, Takuma Enomoto, Takeo Kitamura, Kentaro Asanuma, Takaki Yasui, Chiharu Watanabe, Kurama Nakade, Yoshihiko Saiwai, Takuya Katsuragawa, Manabu Tsujimoto, Ryo-ozo Yoshizaki, Takashi Yamamoto, Hidetoshi Minami, Richard A. Klemm, and Kazuo Kadowaki, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 092601 (2016).

- [80] T. Kashiwagi, T. Yamamoto, H. Minami, M. Tsujimoto, R. Yoshizaki, K. Delfanazari, T. Kitamura, C. Watanabe, K. Nakade, T. Yasui, K. Asanuma, Y. Saiwai, Y. Shibano, T. Enomoto, H. Kubo, K. Sakamoto, T. Katsuragawa, B. Marković, J. Mirković, R. A. Klemm, and K. Kadowaki, *Phys. Rev. Applied* **4**, 054018 (2015).
- [81] H. B. Wang, S. Guénon, J. Yuan, A. Iishi, S. Arisawa, T. Hatano, T. Yamashita, D. Koelle, and R. Kleiner, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 017006 (2009).
- [82] H. B. Wang, S. Guénon, B. Gross, J. Yuan, Z. G. Jiang, Y. Y. Zhong, M. Grünzweig, A. Iishi, P. H. Wu, T. Hatano, D. Koelle, and R. Kleiner, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 057002 (2010).
- [83] A. Yurgens, *Phys. Rev. B* **83**, 184501 (2011).
- [84] A. V. Gurevich and R. G. Mints, *Rev. Mod. Phys.* **59**, 941 (1987).
- [85] B. Gross, S. Guénon, J. Yuan, M. Y. Li, J. Li, A. Ishii, R. G. Mints, T. Hatano, P. H. Wu, D. Koelle, H. B. Wang, and R. Kleiner, *Phys. Rev. B* **86**, 094524 (2012).
- [86] C. Watanabe, H. Minami, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, R. A. Klemm and K. Kadowaki, *J. Phys.:Condens. Matter* **26**, 172201 (2014).
- [87] Hidetoshi Minami, Chiharu Watanabe, Kota Sato, Shunsuke Sekimoto, Takashi Yamamoto, Takanari Kashiwagi, Richard A. Klemm, and Kazuo Kadowaki, *Phys. Rev. B* **89**, 054503 (2014).
- [88] M. Tsujimoto, H. Kambara, Y. Maeda, Y. Yoshioka, Y. Nakagawa, and I. Kakeya, *Phys. Rev. Applied* **2**, 044016 (2014).
- [89] A. L. Rakhmanov, S. E. Savel'ev, and Franco Nori, *Phys. Rev. B* **79**, 184504 (2009).
- [90] Hidehiro Asai and Shiro Kawabata, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 112601 (2014).
- [91] N. Orita, H. Minami, T. Koike, T. Yamamoto, K. Kadowaki, *Physica C* **470**, 5786 (2010).
- [92] Kazuo Kadowaki, Manabu Tsujimoto, Kaveh Delfanazari, Takeo Kitamura, Masashi Sawamura, Hidehiro Asai, Takashi Yamamoto, Kazuya Ishida, Chiharu Watanabe, Shunsuke Sekimoto, Kurama Nakade, Takaki Yasui, Kentaro Asanuma, Takanari Kashiwagi, Hidetoshi Minami, Masashi Tachiki, Toshiaki Hattori, Richard A. Klemm, *Physica C* **491**, 2 (2013).
- [93] T. Kitamura, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, M. Tsujimoto, C. Watanabe, K. Ishida, S. Sekimoto, K. Asanuma, T. Yasui, K. Nakade, Y. Shibano, Y. Saiwai, H. Minami, R. A. Klemm and K. Kadowaki, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 202603 (2014).
- [94] D. Y. An, J. Yuan, N. Kinev, M. Y. Li, Y. Huang, M. Ji, H. Zhang, Z. L. Sun, L. Kang, B. B. Jin, J. Chen, J. Li, B. Gross, A. Ishii, K. Hirata, T. Hatano, V. P. Koshelets, D. Koelle, R. Kleiner, H. B. Wang, W. W. Xu, and P. H. Wu, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 092601 (2013).

- [95] M. Ji, J. Yuan, B. Gross, F. Rudau, D. Y. An, M. Y. Li, X. J. Zhou, Y. Huang, H. C. Sun, Q. Zhu, J. Li, N. Kinev, T. Hatano, V. P. Koshelets, D. Koelle, R. Kleiner, W. W. Xu, B. B. Jin, H. B. Wang, and P. H. Wu, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 122602 (2014).
- [96] Xianjing Zhou, Qiang Zhu, Min Ji, Deyue An, Luyao Hao, Hancong Sun, Shigeyuki Ishida, Fabian Rudau, Raphael Wieland, Jun Li, Dieter Koelle, Hiroshi Eisaki, Yoshiyuki Yoshida, Takeshi Hatano, Reinhold Kleiner, Huabing Wang and Peiheng Wu, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 122602 (2015).
- [97] T. Mochiku and K. Kadowaki, *Physica C* **235**, 523 (1994).
- [98] T. Mochiku, K. Hirata, K. Kadowaki, *Physica C* **282**, 475 (1997).
- [99] L. Y. Hao, M. Ji, J. Yuan, D. Y. An, M. Y. Li, X. J. Zhou, Y. Huang, H. C. Sun, Q. Zhu, F. Rudau, R. Wieland, N. Kinev, J. Li, W. W. Xu, B. B. Jin, J. Chen, T. Hatano, V. P. Koshelets, D. Koelle, R. Kleiner, H. B. Wang, and P. H. Wu, *Phys. Rev. Applied* **3**, 024006 (2015).
- [100] H. Minami, C. Watanabe, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, K. Kadowaki and R. A. Klemm, *J. Phys: Condens. Matter* **28**, 025701 (2016).
- [101] Takanari Kashiwagi, Kazuhiro Yamaki, Manabu Tsujimoto, Kouta Deguchi, Naoki Orita, Takashi Koike, Ryo Nakayama, Hidetoshi Minami, Takashi Yamamoto, Richard A. Klemm, Masashi Tachiki, and Kazuo Kadowaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 094709 (2011).
- [102] Constantine A. Balanis, “ Antenna Theory, Analysis and Design 3rd edn.,” John Wiley and Sons (2005).