



平成 19 年 11 月 20 日  
筑波大学

## 銅酸化物高温超伝導体でテラヘルツ波の連続発振に成功

筑波大学(学長 岩崎洋一)大学院数理物質科学研究科の門脇和男教授らのグループは、高温超伝導体の固有ジョセフソン接合<sup>注1)</sup>を用いて、コヒーレント(位相が揃った)で強力な THz (テラヘルツ) 波を連続発振することに成功しました。

THz (テラヘルツ) 波は、電波と光(遠赤外)の中間領域の波長を持つ電磁波で、周波数が多い原子や分子の振動数とほぼ等しいことから、原子はもちろんのこと、有機物、高分子化合物、酵素やタンパク質、細胞、生体物質の構造や同定、医療診断、イメージング、気象観測、環境モニター、宇宙通信、天文学など、極めて幅広い応用が可能です。そのため、近年脚光を浴び、THz 波発振の技術開発が活発になされていますが、THz 波の発生は技術的に非常に難しく、これまで強力で有効な光源がありませんでした(「THz ギャップ」と呼ばれている)。固有ジョセフソン接合を用いた THz 波の発振は、この THz ギャップを埋める最良の手段であると考えられています。この方法は従来の電磁波の発生法とは原理的に異なることから、その発振機構の解明は学術的に重要です。また、それを用いた応用研究の開拓は経済や産業にも極めて大きな影響があり、その基礎をなす本研究結果はインパクトの高い研究成果であると考えられます。

本成果は、日本学術振興会先端研究拠点事業(コーディネーター: 門脇和男、V. Moshchalkov、Wai Kwok)「超伝導ナノサイエンスと応用」、文部科学省科学研究費の支援のもとで、筑波大学とアルゴンヌ国立研究所の国際共同研究により得られた成果であり、今後 JST(理事長 北澤宏一)の戦略的創造研究推進事業チーム型研究(CREST)における研究課題「超伝導による連続 THz 波の発振と応用」(研究代表者: 門脇和男 筑波大学大学院数理物質科学研究科 教授)として基礎研究と実用に向けた研究を行います。

また本成果は、2007 年 11 月 23 日(米国東部時間)発行の米国科学雑誌「Science (サイエンス)」に掲載されます。

## <研究の背景>

テラヘルツ ( $10^{12}$  cycle/sec) 帯の電磁波は電波と光波の狭間にあり、周波数が分子の振動数とほぼ等しいことから、基礎科学としてのみならず化学分析、分光、医療や診断、環境、通信、薬物や爆発物の検査など、極めて幅広い応用が期待されています。

しかし、この THz 帯の電磁波は簡便な発振器や検出器がなく、古くからその重要性が認識されているにも拘わらず、今日まで未開の領域として残されており、THz ギャップと呼ばれています (図 1)。

銅酸化物高温超伝導体は、超伝導を担う 2 次元的層状配列をした  $\text{CuO}_2$  面が、半導体的、または絶縁体的性質を持つ他の層と交互に多重に積層した構造を持ち、その結果、層間の伝導が強く抑制され、超伝導状態は強い異方性を示します。 $\text{CuO}_2$  層間距離は物質により異なりますが、本研究に用いた  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  は  $\text{CuO}_2$  層間距離が 1.5 nm と原子間隔と同じ程度のレベルであり、 $\text{CuO}_2$  面間はジョセフソン接合を形成していると考えられています。そのため、この物質は原子レベルで存在するジョセフソン接合が、多数、高密度に積層した層状物質であると考えられます (図 2)。

このような強い異方性を持つ層状超伝導体では、層に垂直方向の超伝導電子の運動は大きく抑制され、それは微弱なジョセフソン電流として流れます。このジョセフソン電流は電荷を運ぶので、この電荷の移動と、非常に狭い超伝導層間に存在する大きな静電容量 (コンデンサーとして働く) による復元力と、ある周波数で共鳴条件を満たし、共鳴します。このエネルギーは高温超伝導体の場合、異方性が大きいため極めて小さな値となり、超伝導ギャップエネルギーよりはるかに小さくなっています。このため、共鳴振動の減衰が起こりにくく、安定な超伝導電流の振動が持続します。これがジョセフソンプラズマ現象<sup>注2)</sup>であり、1995 年、マイクロ波周波数領域で電磁波の共鳴吸収として、高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  において初めて観測されました。

ジョセフソンプラズマ波は、超伝導体を伝搬する電磁波と超伝導電流の振動が混合したものです。ジョセフソンプラズマ共鳴は外部からマイクロ波を照射し、強制的に共鳴させる現象ですが、逆に内部で何らかの方法で共鳴条件を実現できるなら、ジョセフソンプラズマ波を超伝導体中に励起し、その一部を試料の外へ取り出すことで電磁波を発生できる可能性があります。

この考えに基づき、数年前からさまざまな実験が世界で行われてきましたが、放射された電磁波の周波数を明確に特定し、かつ試料と空間的に隔てられた検出器で検出された決定的な検証結果はこれまで得られていませんでした。

我々は高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  の高品質単結晶を用いて、大型のメサ構造<sup>注3)</sup>を作製、超伝導層間に直流電流を流し、ジョセフソン効果<sup>注4)</sup>を利用して、コヒーレントで強力な THz 領域の電磁波を連続発振させることに成功しました。外部磁場はなく、電磁波の検出器と試料は約 14 cm 離れており、周波数は遠赤外分光器により測定しました。

## <成果の具体的な説明>

図3は、用いた高温超伝導体単結晶  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  のメサ構造の模式図（左）、および電子顕微鏡（SEM）写真です。メサの長さは  $300\ \mu\text{m}$ 、厚さは  $1\ \mu\text{m}$  に固定し、幅  $w$  を  $40\ \mu\text{m}$  から  $100\ \mu\text{m}$  まで変化させた4種類の試料を作製しました。

これらのメサの典型的な電流電圧 ( $I$ - $V$ ) 特性と電磁波の検出状況を、横軸をメサに印加された電圧を用いて図4に示します。 $I$ - $V$ 特性は電流の復路側であり、往路側は示していません。電流が高くなると電圧値も高くなりますが、途中から電流を増加しても電圧値は増えず、逆に減少する様子が見られます。これは負性抵抗と呼ばれ、メサの温度が発熱により測定温度から大きく上昇することによって起こると考えられています。メサの温度はこの場合、 $25\ \text{K}$  に設定されていますが、電流値が増すにつれ上昇し、電流値が十分大きくなると超伝導が破壊されてしまう温度にまで達することが分かります。図4には電気抵抗の温度依存性から推定したメサの温度を  $I$ - $V$ 曲線と共に示しました。

一方、電磁波の検出器の信号はある特定の接合電圧になると、突然大きなピークとして現れ、電圧が減少すると再び信号は消失します。すなわち、 $I$ - $V$ 特性のある特定の電圧領域でのみ発振することが分かります。発振出力は試料の作製時の状態や温度によって異なりますが、検出器の位置で約  $1\ \mu\text{W}$  程度です。供給電力は約数十～数百  $\text{mW}$  なので、発振効率は数%です。

発振周波数は、図5Aのようにフィルターによって限定することもできますが、直接、遠赤外分光法によっても得られます(図5B)。図5Bのように、発振周波数はメサの幅  $w$  に反比例し、サイズが小さいほど周波数は高いことが分かります。これはメサが共振器として動作していることを意味しており、電磁波の波長のちょうど半波長と等しいと仮定するとよく説明できます。すなわち、超伝導体内の電磁波の屈折率を  $n$  とすれば

$$f = c_0 / 2nw$$

が成り立ちます。ここで  $c_0$  は真空の光速 ( $2.9979 \times 10^8\ \text{m/sec.}$ ) です。従って、周波数  $f$  とメサの幅  $w$  の逆数の直線の傾きから、屈折率  $n$  は約  $3.5 \sim 4.2$  と求められます。

個々の固有ジョセフソン接合が交流ジョセフソン効果で動作すると仮定すると、その周波数  $f$  は個々の固有ジョセフソン接合に印加されている電圧値  $v_j$  と

$$f = \frac{2e}{h} v_j$$

の関係が成り立ちます。今、メサの厚さを  $d$  とすると、固有ジョセフソン接合の数  $N$  は

$$N = \frac{d}{c/2}$$

で表せます。ここで  $c$  は結晶の  $c$ -軸長で 3.06 nm。結局、メサ全体に印加される電圧  $V$  は、個々の固有接合に現れる電圧の和なので

$$V = Nv_j$$

であり、結局、

$$f = \frac{2e V}{h N} = \frac{ec}{hd} V$$

によって周波数は決定されます。この周波数はメサに印加される電圧  $V$  と共に比例して変えることができますが、一方で、発振周波数はメサの幅  $W$  で固定されているので、両者の周波数が一致するところで発振が共鳴的に起こると考えることができます。

このように THz 波の発振現象は理解されつつありますが、発振の機構に関しては未だ諸説が考えられており、確定的ではありません。交流ジョセフソン効果が駆動力となってメサ構造で決定される共振器と共振することにより、発振現象が起こるとすれば、単なる同期現象 (synchronization) と考えられますが、メサ構造の持つ固有振動数と交流ジョセフソン効果による固有の発振周波数という、2つの特徴的な周波数が非線形相互作用によって結合し、パラメトリック発振<sup>注5)</sup> する可能性も否定できません。ジョセフソン効果は本質的に非線形であることから、発振現象にこの非線形性が関与していることは間違いないと考えられます。個々の固有ジョセフソン接合が、ちょうど気体レーザーの気体原子のように振る舞うなら、固有ジョセフソンレーザー (IJJ Laser) を考えることができるかも知れません。

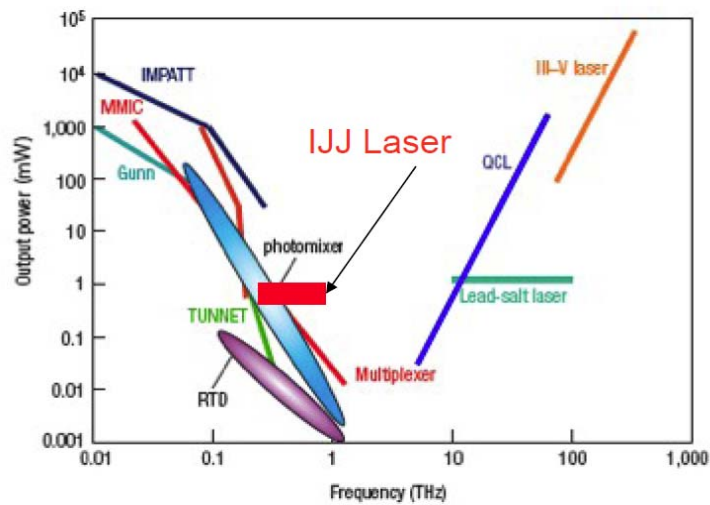
このように、発振機構の解明は今後の重要な研究課題として残されています。実際、メサ構造内でどのような電磁波のモードが発生しているかを直接知ることは、発振機構解明に極めて重要な意味を持つものと考えられます。

図6に予想される超伝導体内の電場の分布を示します。これは励起可能な電磁場の一例ですが、超伝導体内部で固有ジョセフソン接合の位相が一体となったモードが励起されていることは間違いありません。

## <まとめと今後の展開>

今回、高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  の単結晶から作製されたメサ構造を用いて、コヒーレントで連続、かつ強力な THz 波帯の電磁波の発振に成功しました。発振機構の解明や、発振条件の最適化による高効率化は今後の重要な研究課題ですが、この成果は THz 波帯の電磁波の新しい発振方法として極めてユニークなものであり、大変コンパクトで安価な THz 帯域の電磁波の光源として、大いに応用が期待されるものと思われます。

<参考図>



IMPATT: impact ionization avalanche transit-time diode  
 MMIC: microwave monolithic integrated circuit  
 TUNNET: tunnel injection transit-time diode  
 RTD: resonant tunnel diode  
 QCL: quantum cascade laser

after: M. Tonouchi, "Cutting-edge THz technology",  
 Nature Photonics 1, 97 (2007)

図 1 . THz ギャップの概念図

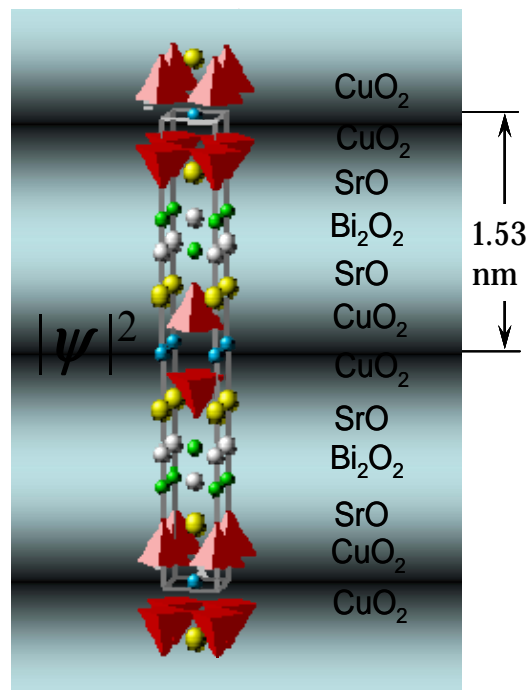


図 2 . 高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  の結晶構造

超伝導を担う  $\text{CuO}_2$  面と絶縁体的性質を持つ  $\text{Bi}_2\text{O}_2$  層が交互に積層した構造である。

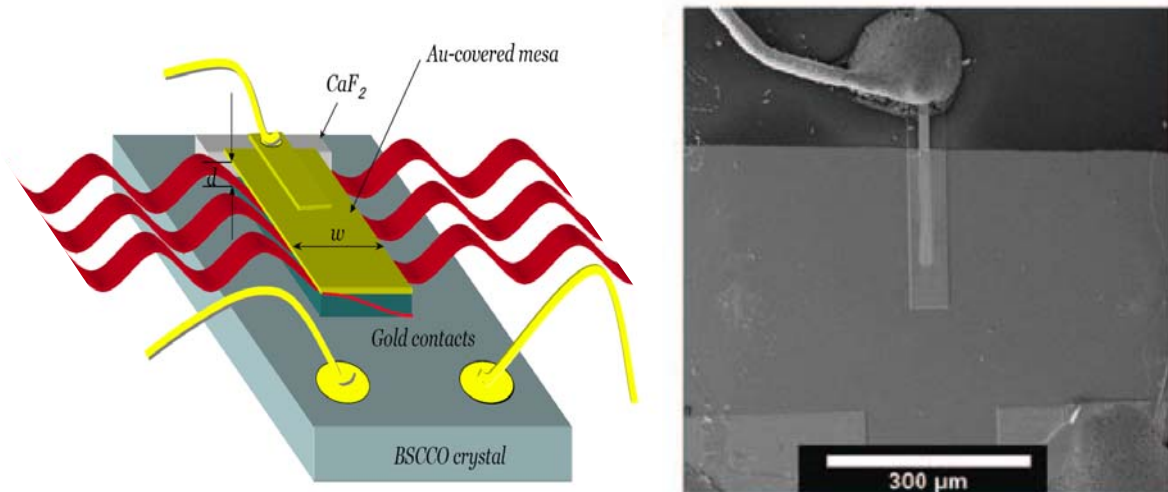


図3. 試料のメサ構造（左図）とメサ構造のSEM写真（右図）

高品質単結晶  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  を劈開（へきかい）し、微細加工技術を用いて長さ  $300\ \mu\text{m}$ 、幅  $40$ 、 $60$ 、 $80$ 、 $100\ \mu\text{m}$ 、厚さ  $1\ \mu\text{m}$  のメサ構造を作製した。メサの上端に金を蒸着し、一方、メサの底面をもう一方の電極とする。

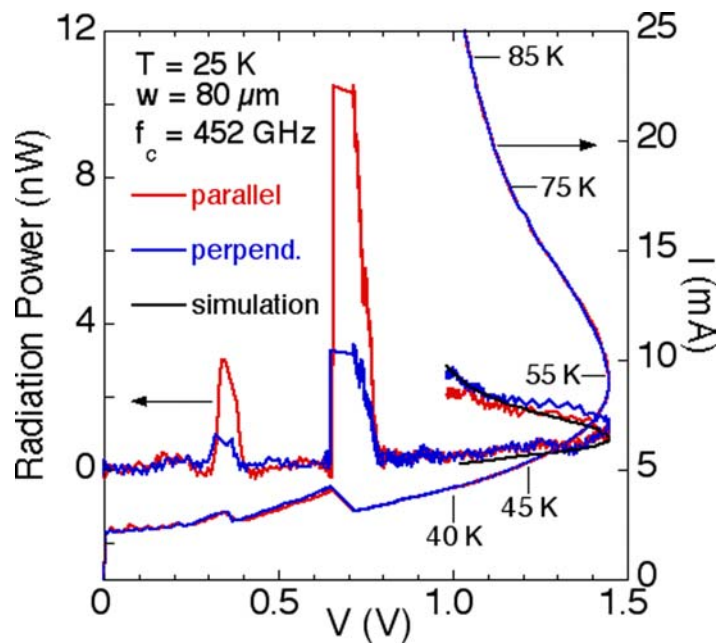


図4. 幅  $w=80\ \mu\text{m}$  のメサ構造の電流電圧 ( $I$ - $V$ ) 特性（右のスケール）と検出器で検出された電磁波の電力（左のスケール）

横軸はメサに印加された電圧値。  $I$ - $V$  特性は電流電圧が正の部分のみ示されている。 Parallel は電磁波のフィルターが試料に平行の場合で、 Perpendicular は垂直の場合を意味する。 黒の実線は試料の発熱から算出された電磁波の熱放射を表す。



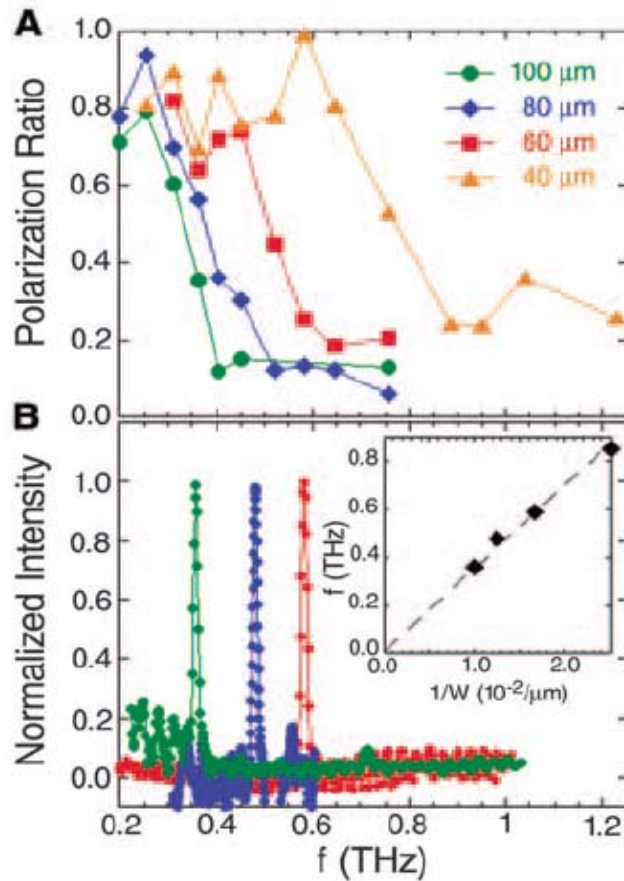


図5. メサ構造から放射される電磁波の周波数の同定

メサから放射される電磁波を、フィルターを Parallel と Perpendicular とした場合の透過波の強度比を表す (A)。遠赤外フーリエ分光器を用いて測定したスペクトル (B)。強度は任意単位で規格化してある。

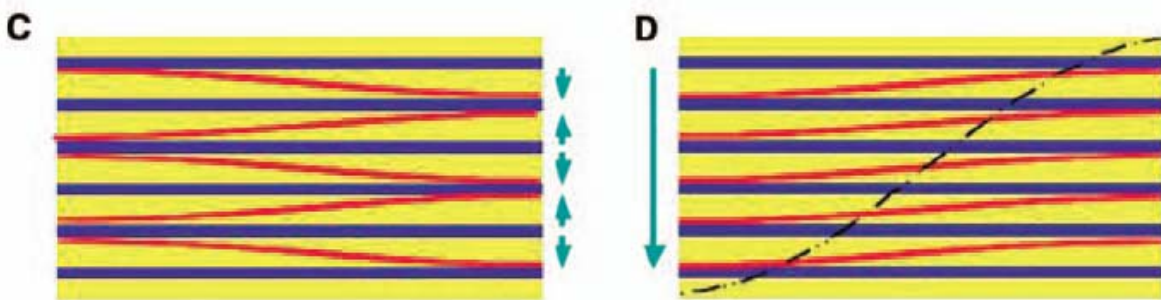
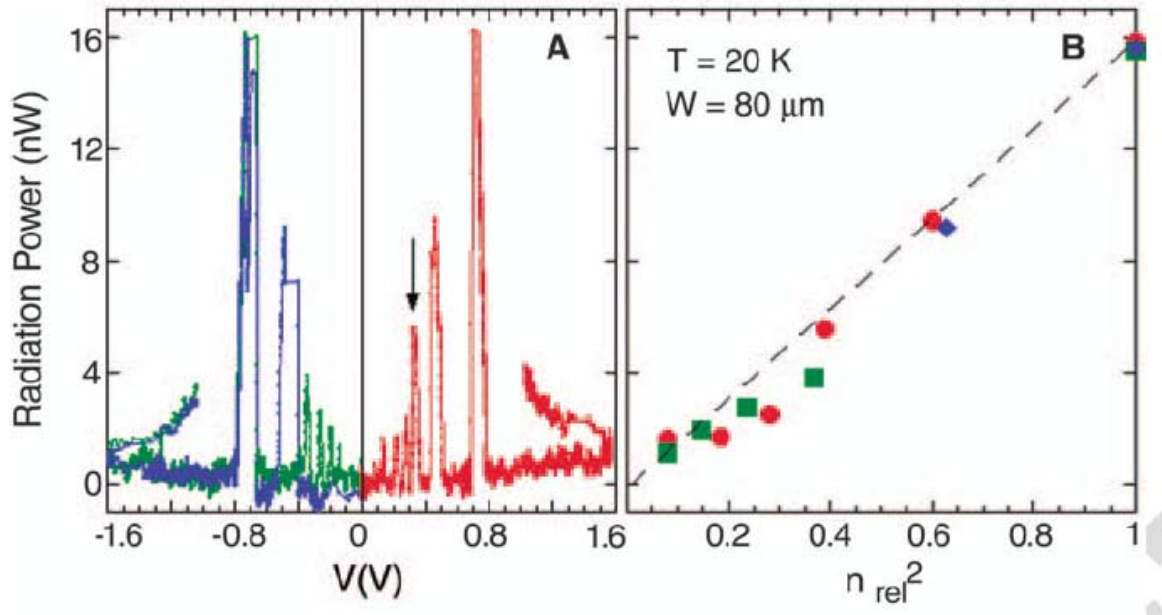


図6. 単結晶  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  のメサ構造内部の電磁波の励起モードの模式図

青色は超伝導性の強い  $\text{CuO}_2$  面を表し、 $\text{CuO}_2$  層間を黄色で表す。赤線は各超伝導層間での電磁波の電場の強度を表す。(c)は電場の各位相が各層で反対向きに励起されるモードを表し、(d)は全層が同一位相で励起される励起モードを表す。



参考図. 放射電力と固有ジョセフソン接合の積層数との関係

多数の発振が観測される場合の検出された電磁波の出力とメサ構造へ印加される電圧の関係（左）。発振出力は印加電圧が下がると減少するが、どの発振においても発振周波数は同じである。発振出力と固有ジョセフソン接合数  $n$  の 2 乗との関係（右図）。この直線性は、発振に関与している固有ジョセフソン接合の位相がすべて同期していることを意味している。



## <用語解説>

### 注1) ジョセフソン接合 (Josephson junctions)

2つの超伝導体が非常に薄い絶縁膜を介して接合されているとき、超伝導電子はこの絶縁膜を透過することができる。これは、純粹に量子力学的な効果であり、トンネル効果と呼ばれる。トンネル効果は通常の導体（金属や半導体など伝導性のある物質）でも起こるが、超伝導体の場合、超伝導電子がペアを作り、2個が1組となり、絶縁膜を透過するため、通常のトンネル効果とは区別して、これをジョセフソン効果という。このような接合体をジョセフソン接合と呼ぶ。これは、このペアトンネリング現象を1962年に予言したジョセフソン（Brian David Josephson）にちなんだ名称である。ジョセフソンは1973年、江崎（Reo Esaki）とギエバー（Ivar Giaever）ともにノーベル物理学賞を受賞した。

### 注2) ジョセフソンプラズマ (Josephson Plasma) 現象

超伝導電流が外部から与えられた電磁波により励起され、共鳴振動する現象を超伝導プラズマ現象という。超伝導プラズマは超伝導電子と電磁波が混じり合った波動状態であり、横波と縦波が存在する。横波は超伝導電子を引きずった電磁波の性格を持ち、一方、縦波は超伝導電子の電荷が振動する電荷密度波である。真空中の電磁波では縦波は電荷がないので（完全に相殺し合っ）その存在が分からないが（自由度としては存在しているが観測されない）、電荷の存在する空間ではそれが復活する。超伝導体内で復活した縦プラズマには必ずエネルギーギャップが存在することが知られており、このエネルギーギャップの発生と超伝導の相転移に伴う対称性の破れの重要な関係を最初に指摘したのは、アンダーソン（P. W. Anderson）である（アンダーソン、ヒッグス、キップル機構）。

ジョセフソンプラズマとは、ジョセフソン接合内を流れる超伝導電流が電磁波により励起されたプラズマ状態である。高温超伝導体では異方性が強いため、この超伝導プラズマの長波長励起のエネルギーは超伝導ギャップ内に存在し、従って、超伝導電子の減衰効果がないので、ジョセフソン接合の特徴によって決まるジョセフソンプラズマ周波数と電磁波の周波数が一致すれば鋭い共鳴を起こす。これがジョセフソンプラズマ共鳴である。このような超伝導電子によるジョセフソンプラズマ共鳴現象は、その存在は早くから指摘されてはいたものの、1995年、我々が発見するまで観測されたという報告はなかった。

### 注3) メサ構造

メサ構造とは、平面的な基板に作られた大地状（メサ）の構造をいう。メサとはテーブルと言う意味である。

#### 注4) 直流、交流ジョセフソン効果

ジョセフソンによって1962年に予言された現象で、直流ジョセフソン効果と交流ジョセフソン効果がある。直流ジョセフソン効果は、ジョセフソン接合を流れる直流電流は臨界電流値を  $I_c$  とし、

$$I = I_c \sin \varphi$$

により記述され、非線形性を持つことが特徴である。 $\varphi$ は、接合された2つの超伝導体の波動関数の位相差である。

一方、交流ジョセフソン効果はジョセフソン接合を電圧状態にすると、その電圧  $V$  に比例した特定の周波数  $f$  の交流超伝導電流が励起されることを表し、

$$\eta \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \eta \omega = 2eV$$

$$f = \frac{2e}{h} V$$

の関係がある。 $f/V=0.4835940$  THz/mV である。

#### 注5) パラメトリック発振

系がそれ自身、ある特徴的な固有振動数を持つとき、外部から与えられた振動により非線形な相互作用によって周期的に変調され、励起状態となることを言う。励起波が電磁場の場合、このようなパラメトリック発振は外部への電磁場の放出を助長することになる。たとえば、ブランコの揺れの振幅を次第に大きくするためには、ブランコを漕ぐ人の体重移動はブランコの振動周期の2倍で行うことで実現できる。この場合、励起モードの周波数は系の振動モードの2倍となる。

#### 〈掲載論文名〉

Emission of Coherent THz Radiation from Superconductors

(超伝導体からのコヒーレントな THz 電磁波の放射)

**【発表者】**

門脇 和男（カドワキ カズオ）

筑波大学 大学院数理物質科学研究科 物性・分子工学専攻 教授

**【取材等に関する窓口】**

筑波大学総務・企画部広報課