

高温超伝導体固有ジョセフソン接合におけるプラズマ励起
Josephson Plasma Excitations in Intrinsic Josephson Junctions of High- T_c
Superconductors

掛谷一弘

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻

Itsuhiro Kakeya

Graduate School of Engineering, Kyoto University

Studies on excitations of electromagnetic waves inside $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ intrinsic Josephson junctions are described. Josephson vortices introduced between their superconductive CuO_2 layers severely couple with the excited Josephson plasma modes and result in the dominant factor for their propagating vector. Emission of the Josephson plasma was confirmed in the absence of applied magnetic field. This stimulates developments of compact superconducting THz sources in future.

1. はじめに

高温超伝導体はその発見から20余年の間、固体物理学に様々な難問を投げかけてきた。その問題の多くはそれらの物質が c 軸に長い層状の結晶構造を示しており、キャリアドーピングされた CuO_2 層という共通する構造を内包していることと強く関係があるといえる。このような物質では電気伝導特性は極めて異方的である。高温超伝導体を代表する物質のひとつである $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212)は特に異方的で、常伝導状態における c 軸方向の電気抵抗率は ab 面方向のその1000倍以上にも達する。また、超伝導状態で c 軸方向の伝導特性に、人工的に作製されたジョセフソン接合で見られるものと概ね同様の現象が観測されることから、超伝導性の強い(秩序パラメタの絶対値が大きい) CuO_2 層から成る原子スケールのジョセフソン接合が積層した系として記述されている[1]。このように物質固有の特徴である結晶構造に由来するジョセフソン接合の積層系を固有ジョセフソン接合 (Intrinsic Josephson Junction) と呼び、超伝導体の酸化膜やポイントコンタクト、粒界 (ツインバウンダリも含む) などのように人工的に障壁を作ったジョセフソン接合と区別する。

固有ジョセフソン接合系における層間 (c 軸) 伝導については、これまでに本誌では芝内氏[2]や松田氏[3]によって高温超伝導体の電子物性ならびに磁束状態のプロブとしての観点からのアプローチが紹介されている。本稿では超伝導電子の集団励起モードであるジョセフソンプラズマ自身の物理と直流電流による励起と試料外への発振についての研究を紹介したい。

2. ジョセフソンプラズマ

後にノーベル賞を受賞したB. D. Josephsonが弱冠21才の時に予言したジョセフソン効果[4]は、絶縁体を挟んだ超伝導体の間に流れる電流がそれぞれの巨視的波動関数である秩序パラメタの位相差 ϕ によって決まる、ということから超伝導の本質を照らしていると言っても過言ではないといえる。彼はその超伝導体間に現れる電圧 V は位相差 ϕ の時間変化に比例し、比例係数はPlanck定数 h と素電荷 e

で与えられる、とも指摘した。すなわち、 $V = h/2e \cdot d\phi/dt$ であり、現在ではこの交流ジョセフソン効果がPlanck定数 h を最も高精度に求める手段とされていることから、その発見の偉大さ感じられる。逆にジョセフソン接合に電圧を加えると、交流の電流が励起されることもわかる。ジョセフソン接合の交流電流を一方の超伝導体における超伝導電子数の振動だと考えると、固有振動数が与えられる。これをジョセフソンプラズマ振動数 ω_p とよび、P. W. Anderson[5]によって初めて指摘された[5]。ここから予測されることは、ジョセフソン接合に電圧を加えることによって励起される交流電流の周波数が $\omega_p = 2\pi/\phi_0 \sqrt{E_J/C}$ を超えたとき、有限の波数を持つ電磁波がジョセフソン接合内部に励起される、ということである。ここで、 ϕ_0 は磁束量子、 E_J および C はそれぞれジョセフソン接合の結合エネルギー、静電容量であり、 E_J/C により接合の面積は相殺されるので、 ω_p は超伝導電子のジョセフソントンネリングを特徴づける量である。ジョセフソンプラズマを励起して外部に取り出す目的で様々な実験が1970年代にかけて行われ、電流電圧特性に励起の間接的な証拠は得られたが、電磁波の吸収・発振を直接示す明瞭な成果は得られなかった。その理由は金属超伝導体からなるジョセフソン接合における ω_p は超伝導ギャップに近く、励起モードが準粒子へ減衰してしまうためであると考えられている。

一方、固有ジョセフソン接合系では大きな異方性と高い超伝導転移温度のためにプラズマ励起は超伝導状態で安定に存在し、磁場中でマイクロ波の鋭い共鳴吸収として観測される[6]。その上、キャリア濃度の比較的小さい高温超伝導体では CuO_2 層の内部で電荷が保存しないため、電荷密度波である縦型のジョセフソンプラズマ励起が独立に観測される[7,8]。結局、固有ジョセフソン系で励起されるジョセフソンプラズマは ab 面方向に伝搬する横モードと c 軸方向に伝搬する縦モードがあり、それらが共存しうることが高温超伝導体におけるプラズマ励起の豊かな現象をもたらしており、以下の文章を理解する上で重要な概念となる。

3. ジョセフソン磁束格子状態におけるプラズマ共鳴

高温超伝導体の ab 面に平行に磁場を加えると、磁束は固有ジョセフソン接合の層間に侵入し、常伝導コアを持たないジョセフソン磁束となる[9]。通常の量子化磁束芯が秩序パラメタの特異点として定義されるのに対して、ジョセフソン磁束芯は層間位相差が π となる点で定義される。ジョセフソン磁束によって層間電流は強い空間変調を受ける

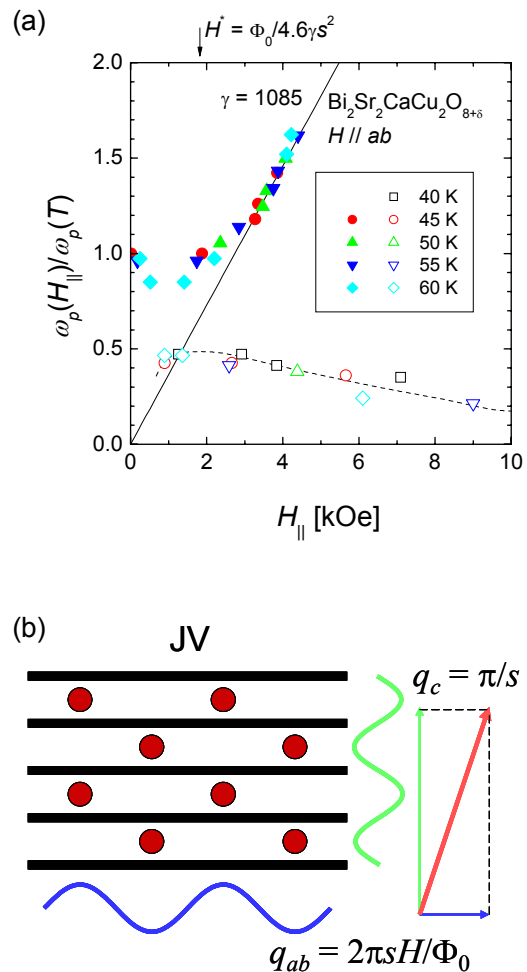


図 1 (a) ジョセフソンプラズマ周波数の ab 面磁場依存性。実シンボルが高周波モード、空シンボルが低周波モード、実線は計算結果。(b) ジョセフソン磁束格子に変調されたプラズマモード。赤い丸はジョセフソン磁束の中心、右側の矢印は検出された共鳴モード(赤)の縦プラズマ成分(緑)、横プラズマ成分(青)のそれぞれ波数を示し、ジョセフソン磁束格子の逆格子に一致する。

ため、プラズマモードもそれに伴って変調を受ける。この様子をマイクロ波領域のジョセフソンプラズマ共鳴によって系統的に調べた結果をまず紹介す[10]。

図 1(a)は $T_c \sim 70$ KのアンダードープBi2212単結晶におけるジョセフソンプラズマモードの面方向での磁場依存性である。温度依存性を繰り返すため、周波数は零磁場におけるプラズマ周波数の温度依存性で規格化している。零磁場で観測されている共鳴（高周波モード）は平行磁場の増加に伴って一旦ソフト化するものの、すべてのブロック層にジョセフソン磁束が侵入すると予想される磁場 H^* 以上では磁場に比例してハード化していく。一方 H^* 程度の磁場下で出現する共鳴（低周波モード）は高周波モードの半分の周波数から次第にソフト化していく。

高周波モードは2次元ジョセフソン磁束格子の周期により変調されたプラズマモードであり、磁場による線形的なハード化はジョセフソン磁束CuO₂層方向の周期が短くなることにより、横モード成分の波数が線形的に増大するためと解釈される

(図 1 (b)を参照のこと)。定性的に同様の現象は単一接合（一次元ジョセフソン磁束アレイ）における電流電圧特性に観測されており[11]、これは2次元の現象を直接共鳴吸収で観測したことになる。また、面内に一様な振動電場を与えるという縦モードを選択的に励起する条件[8]にも拘わらず、横モード成分が励起されていることがわかる。

一方低周波モードと類似した現象は単一接合では観測されておらず、積層性が本質的に重要な現象であると考えられる。小山らは隣接するブロック層のジョセフソン磁束が逆位相で振動したときの層間位相差振動における固有モードが低周波モードの起源であると指摘した[12]。別の起源を主張する理論もあるが、YBCOなど他の物質でも同様の共鳴が観測されており[13]、積層系に固有の現象であるという点では一致している。

4. 微小固有ジョセフソン接合におけるプラズマ励起

前節における高周波モードの解析から、ジョセフソン磁束導入により励起モードの波数を制御することが可能であることがわかった。次なる疑問は直流バイアスによってジョセフソン磁束格子で波数を制御したプラズマを励起できるかどうかである。ここで励起された電磁波を何らかの方法で外部に出力させれば、磁場により周波数制御でき μ Hz領域の発振素子を実現される。高出力を得るためには積層するジョセフソン接合について層間ジョセフソン電流の変調が同位相となる場合が最適である。しかしながら基底状態ではジョセフソン磁束は三角格子を組むので、隣接する接合内に励起された電磁波は逆位相になるため打ち消しあってしまう、外部には出力されない。そこで、ジョセフソン磁束の四角格子を実現し、隣接層間で位相の揃った電磁波を励起することを目論[14]。

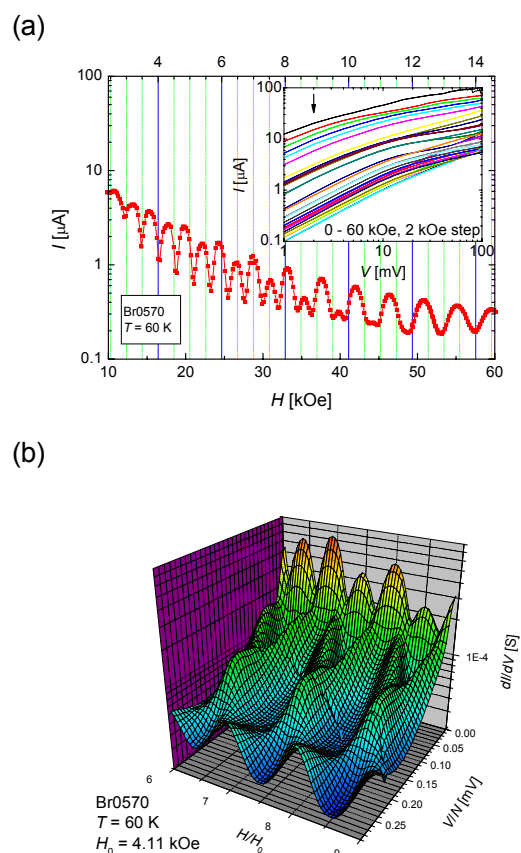


図 2 (a) 2 mV (内挿図矢印) における電流値の磁場依存性。上軸は接合あたりのジョセフソン磁束数に相当する。内挿図は電流電圧特性。(b) 微分導電率の電圧・磁場依存性。低電圧では(a)と同等になる。

ところで超伝導体において量子化磁束の配置は磁束間の電磁気的な斥力相互作用で決定される。第二種超伝導体を予言したA. A. Abrikosov[15]は当初安定な磁束格子は四角格子だとしていたが、後の計算で三角格子の方が安定であることが指摘され[16]、それが実験的にも確認された[17]。ここで興味深いのは三角格子と四角格子のエネルギー差がAbrikosovをして間違えさせるほど小さかった、ということである。実際にある種の高温度超伝導体でドーブ量によっては、四角格子のほうが安定な状態であると中性子小角散乱の実験結果から指摘されており[18]、物質パラメタによって入れ替わってしまうほど両者が微妙なバランスの上に立っているということがわかる。

一方、超伝導体の表面近傍では超伝導電流の境界条件の要請により磁束配置は変調を受ける。磁束芯に対して十分に大きな超伝導体であれば、磁束が試料表面に局在するだけであるが、そうでない場合、磁束配置は大幅な影響を受ける。ジョセフソン磁束の場合は、超伝導層で挟まれているために ab 面方向一次元の自由度しか持たないので、 ab 面方向の幅を小さくしていくと、四角格子を得ることが期待できる。

図 2(a)は幅3.1ミクロンの試料Br0570において超伝導状態から抵抗状態を分ける一定の電圧値2 mVを与える電流の磁場依存性である。概ね臨界電流の磁場依存性だと考えてよい。振動の周期が1接合あたり1/2個の磁束量子に相当する磁場から1接合あたり1磁束量子に相当する磁場に入れ替わっている。このクロスオーバーは接合の幅が小さくなる程低磁場で現れることから、前述の表面エネルギーが支配的になってきているためだと考えられる。三角格子は2周期の振動を与え、四角格子は周期の振動を与えると考えると、四角格子が実現されたと解釈できなくはないが、その逆は真ではない場合もあり得る。

電磁波を励起するには、接合が電圧状態の特性を測定する必要があるので、電流電圧特性の磁場依存性が有力な手がかりとなる。図 2(b)では電圧と磁場に対して周期的な電流のステップに対応する微分導電率 dI/dV のピークが見られる。これはFiskeステップと呼ばれ、接合内に電磁波が励起されていることを示している[19]。ステップが電圧・磁場に対して周期的に現われるのは、ジョセフソン磁束による層間電流の変調によって定在波の条件が選択されるためである。ステップの電圧間隔から試料内を伝搬する電磁波の速度を見積もると、光速の1/100以下となる。この値は隣接する接合で励起された電磁波の位相が π ずれていて、電磁波の波数に強い c 軸成分が含まれているためだとすると説明が付く。つまり、ジョセフソン磁束が静的状態で四角格子を組んでいると考えられる磁場でも、動的状態では三角格子になっていると考えるべきである、というTHz波の放射という目的にとっては残念な結果がわかった。

しかしながら、磁場により周波数を制御できる電磁波を直流バイアスによって励起できるというのは非常に面白い。波数を制御して接合を同期させれば非常に強力な電磁波が放射されるというのは多くの理論が予測するところである。実際のところ、 ab 面に平行に磁場を加えた条件でのTHz波の検出が韓国のグループによって報告された[20]。これは、励起された電磁波の位相が部分的に揃っているためだと解釈されるが、その理由は彼らの間でも定まっていない。

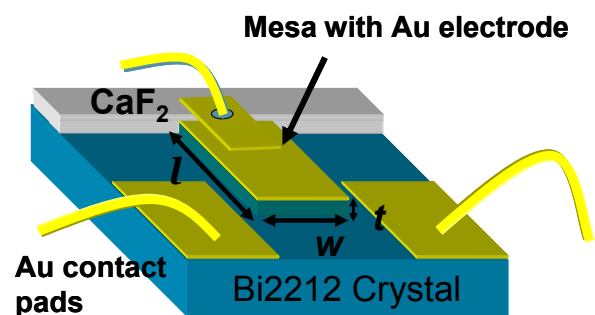


図 3 試料の概念図。TSFZ 法により育成された Bi2212 単結晶を劈開して得た平坦清浄表面の上に金電極を蒸着したのち、フォトリソグラフィーによってメサ構造が作製された。

5. 固有ジョセフソン接合からのTHz波発振

ジョセフソンプラズマによるTHz波の発振をとらえるために、これまでとは少し着想を替えて試料に磁場をかけない条件で検出を試みた。この周波数領域の高感度な検出器は磁場に敏感で、磁場中の実験はTHz波検出にとってそもそも不都合であった。磁場に替わって波数を決める要素として、*ab*面方向の幅100ミクロン程度までを拡げ、敢えて層間電流に空間的な不均一を持たせた。通常、ジョセフソン接合の実験では空間的に均一なジョセフソン電流を得るために、接合の大きさは小さいほど望ましいとされている。その結果、1 THz前後のモノクロマチックかつ比較的強力な電磁波の発振を検出することに成功した[21]。

図 3に示すように、Bi2212単結晶上に*ab*面方向短辺の幅 w が40, 60, 80, 100 μm 、高さ1 μm のメサを作製し、遠赤外の分光器に用いられているSiポロメーターを対向させて*c*軸方向に印加した電圧を掃引したところ、電磁波の検出を示す応答が得られた。 $w = 60 \mu\text{m}$ の試料において電流電圧特性と検出器の応答を同時にプロットしたものを図 4(a)に示す。電圧を増加させていってメサ全体が電圧状態になった後電圧を減少させていく際、メサの電圧が不連続に変化している点で発振が検出されている。これはすべての試料に共通する特徴で、複数の箇所でも発振が確認された試料ではそのすべての箇所でも電圧が不連続に変化している。

では、発振された電磁波の周波数はどうか。発振が検出された電圧に固定してFT-IR分光計で得られたスペクトルを図 4(b)に示す。22 cm^{-1} (0.65 THz) に最も強い発振が観測され、線幅は分光器の分解能で決まっているようである。なお、高調波のようなスペクトルも観測されているが、いわゆる「お化け」である可能性もまだ否定できない。他の試料に関する発振スペクトルを図5(b)に示す。図 5(a)からわかるように、周波数はほぼ $1/w$ に比例することから、メサの空洞共振による発振だと推測される。半波長の定在波がメサの中に閉じこめられているとすると屈折率はおおよそ4と見積もられ、ジョセフソンプラズマ共鳴の結果から得られる値に近い。結局、文献[8]でマイクロ波領域の共鳴を観測していた横プラズマを放出させることができた、と言える。

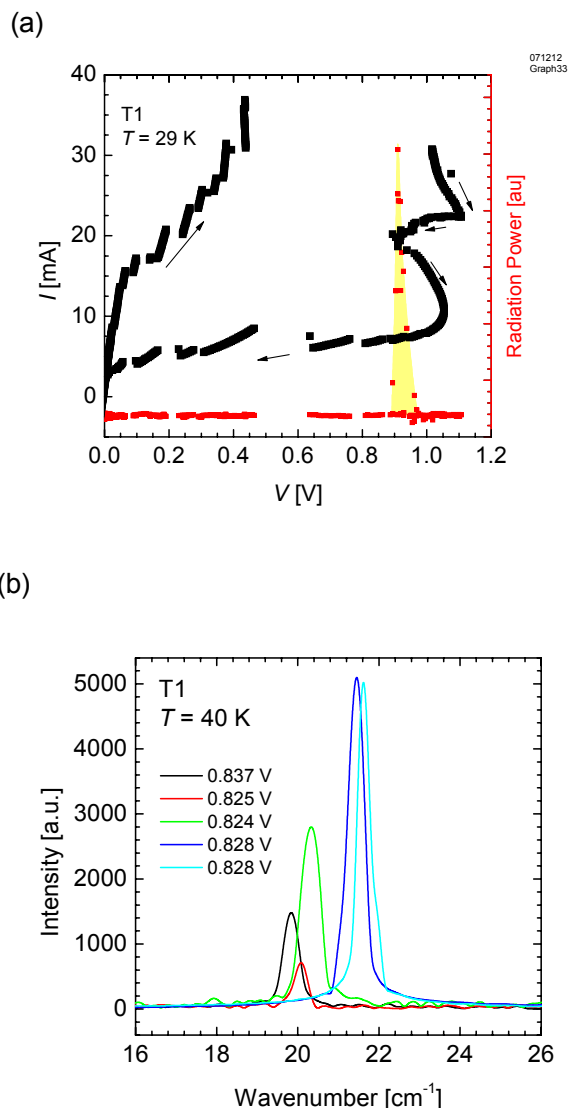


図 4 (a) 電流電圧特性 (黒) と発振の検出 (赤). 矢印は電圧の変化方向, うす黄色の領域は THz 波検出によるポロメーターの応答を示している. (b) 発振スペクトル. 発振範囲の複数の電圧に固定して分光を行った結果であるが, 電流電圧特性の複雑さから系統的な変化は見られない. 分光器の分解能は 0.25cm^{-1} である.

発振の前後で電圧が不連続的に減少するのは、電圧状態だった幾つかの接合が超伝導状態に戻るためだと考えられる。この考えを基に、発振に寄与する電圧状態の接合数と発振強度の関係を調べると、発振強度は接合数の2乗に比例する。従って、固有接合を構成する数多のジョセフソン接合が独立に発振しているのではなく、協力してコヒーレントに発振していると解釈される。

温度を変えて検出を行うと、強度は非単調な温度依存性を示し、試料によって異なるが20 Kから50 Kの間で最適値が得られ、10 Kよりも低温で発振が検出された例はない。このような結果から、発振の機構を典型的なジョセフソン接合に求めるのは非常に困難であることが予想される。電圧が不連続になるのも、層間位相差の時間変化が非線形な振動から微小振動に転移するため、温度依存性と併せて準粒子注入による非平衡状態や自己磁場による効果を検討する必要があると思われる。

最後に、放射された電磁波の出力を見積もる。図3に示した試料において、放射強度の方位依存性を測定したところ、強い指向性が観測され、メサの長さ w の辺に平行な ab 面方向よりも c 軸方向において数倍の強さでTHz波が検出された。最も強い方向では、試料と検出器間の距離が17 cmのとき1 nWの強度が得られた。このような指向性を考慮し、窓損などを大まかに仮定して見積もると全出力は5 μ W程度と推定される。既報[21]では全出力を0.5 μ Wと見積もっているので、一桁向上したことになる。チャンピオンデータを持つ半導体素子[22]に比べると、全出力では足元にも及ばないが、効率・密度ではそれほど遜色なく、今後の技術開発によって大きな進歩を遂げることを期待している。

以上の研究は著者が筑波大学数理物質科学研究科在職時の成果であり、門脇和男、山本卓、南英俊との共同研究です。実験結果は八巻和宏、山口勇人をはじめとする大学院生の努力と才能がもたらした成果です。5節の内容は米国Argonne国立研究所のU. Welp, A. Koshelev, C. Kurter, K. Gray, およびW.-K. Kwok, Izmir工科大学（トルコ）のL. Ozyuzerとの共同研究です。在職時にさまざまな形でお世話になった数多くの方々、とりわけ寒剤供給に関して数多の我が儘を聞いて頂いた筑波大学研究基盤総合センター低温部門職員各位、にこの場を借りて感謝申し上げます。つくばで研究生活を送って経験した数多くのことは著者にとってかけがえのない財産だと思っています。また、科学研究費補助金若手(B)研究, 21世紀COEプログラム, 先端研究拠点事業などの支援を受けています。

京大では、おもに桂キャンパスでの寒剤供給に関して低温物質科学研究センター関係者各位にお世話になると思います。よろしくお願い致します。最後に、本稿を執筆する機会を与えて頂いた本誌編集委員会にお礼を申し上げます。

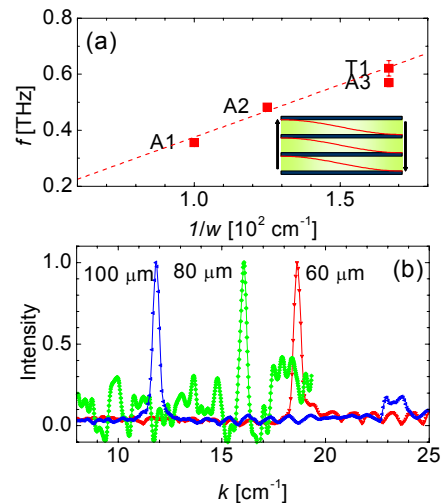


図5 発振スペクトルの試料幅依存性. (a)における誤差棒は同一の試料における電圧条件による周波数の広がり、破線は屈折率を4とした場合の半波長空洞共振モード（内挿図）. (b)のスペクトルはA1, A2, A3として、図4(b)のスペクトルはT1として、(a)にプロットされている

参考文献

- [1] R. Kleiner and P. Müller, Phys. Rev. B, **49**, 1327 (1994), A. A. Yurgens, Supercond. Sci. Technol., **13**, 85 (2000).
- [2] 芝内孝禎, 本誌4号18頁 (2004).
- [3] 松田祐司, 本誌7号12頁 (2005).
- [4] B. D. Josephson, Phys. Lett. **1**, 251 (1962).
- [5] P. W. Anderson, *Lectures on Many-Body Problem* (Academic Press, New York, 1964), Vol. 2, p113.
- [6] Y. Matsuda *et al.*, Phys. Rev. Lett., **75**, 4512 (1995).
- [7] T. Koyama, and M. Tachiki, Phys. Rev. B **54**, 16183 (1996).
- [8] I. Kakeya *et al.*, Phys. Rev. B **57**, 3108 (1998).
- [9] J. R. Clem and M. W. Coffey, Phys. Rev. B **42**, 6209 (1990).
- [10] I. Kakeya *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 014540 (2005).
- [11] R. E. Eck *et al.*, Phys. Rev. Lett. **13**, 15 (1964).
- [12] T. Koyama, Phys. Rev. B **68**, 224505 (2003), T. Koyama, J. Phys. Soc. Jpn., **73**, 2505 (2004).
- [13] K. M. Kojima *et al.*, Phys. Rev. Lett., **89**, 247001 (2002).
- [14] I. Kakeya *et al.*, Physica C **437-438**, 118 (2006), I. Kakeya *et al.*, in preparation.
- [15] A. A. Abrikosov, Zh. Eksperim. i Theor. Fiz. **32**, 1442 (1957)..
- [16] W. H. Kleiner *et al.*, Phys. Rev. **133** A1226 (1964).
- [17] U. Essmann and H. Träuble, Phys. Lett. **24A**, 526 (1967).
- [18] R. Gilardi, *et al.*, Phys. Rev. Lett., **88** 217003 (2002).
- [19] M. D. Fiske, Rev. Mod. Phys., **36**, 221 (1964).
- [20] M. -H. Bae Phys. Rev. Lett. **98**, 027002 (2007)
- [21] L. Ozyuzer *et al.*, Science, **318**, 1291 (2007), K. Kadowaki *et al.*, in preparation.
- [22] THz波発振源に関する最近のレビューとしてM. Tonouchi, Nature Photonics, **1** 97 (2007)が挙げられる。

著者略歴



掛谷 一弘 (Itsuhiro KAKEYA)

京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 集積機能工学講座 (鈴木研究室) 准教授

1971年 広島生まれ

1994年 大阪大学理学部物理学科卒業

1998年 大阪大学大学院理学研究科博士後期課程修了, 博士 (理学)

1998年 筑波大学物質工学系助手

2002年 同講師 (2004年大学院数理物質科学研究科に所属変更)

2008年4月より現職