

高温超伝導固有ジョセフソン接合からの 広帯域周波数変調テラヘルツ波放射

Wide-band frequency modulated terahertz wave radiation from intrinsic Josephson junction of a high-temperature superconductor

掛谷一弘¹, 宮本将志¹, 小林亮太¹, 柳生望光¹, 桑野玄気^{2,3}, 辻本 学^{2,3}

¹ 京都大学 大学院工学研究科, ² 筑波大学理工情報生命学術院,

³ 産業技術総合研究所 (AIST)

Itsuhiro Kakeya¹, Masashi Miyamoto¹, Ryota Kobayashi¹, Nozomi Yagyu¹,
Genki Kuwano^{2,3} and Manabu Tsujimoto^{2,3}

¹ Graduate School of Engineering, Kyoto University,

² Graduate School of Science and Technology, University of Tsukuba,

³ National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

Radiation of frequency-modulated terahertz electromagnetic waves from a device made of a high-temperature superconductor is demonstrated. This is uniquely attributed to a stack of Josephson junctions included in the superconductor. The achievement stimulates implementation of superconducting terahertz technologies for low-temperature communication systems.

1. はじめに

テラヘルツ領域の電磁波の発生・検出技術に関する研究は、この 20 年間、精力的に行われてきた。中でも、サブテラヘルツ領域の電磁波を用いた通信に使えるコヒーレント発振・検出技術は、次世代超高速通信網の実現に不可欠な要素技術として、最近特に注目されている。通信技術として実装するためには、情報を重畳する高度な変調技術が必須である。しかしながら、変調原理は安定した単色性、コヒーレンスとトレードオフになる場合があるため、その研究はあまり進んでいない。テラヘルツ通信として現在最も進んだ実証実験が行われている共鳴トンネルダイオードでは、振幅シフト符号化 (ASK) を用いた 1 ビットデジタル通信が採用されており、現在実用移動体通信で重用されている周波数及び位相を含む角度変調を用いたアナログまたはデジタル通信の研究はほとんど行われていない。角度変調通信は振幅変調通信に比べて復調時の高い SN 比や周波数資源の高効率利用の点で、圧倒的に有利であるだけでなく、ミリ波領域で移動体通信に利用されている周波数変調連続波レーダーの高精度化を目指す理由からも、テラヘルツ領域における周波数および位相変調の技術は極めて重要である。

一方、高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) 単結晶からなるメサ構造デバイスにおいて 2007 年に実証されたジョセフソンプラズマ放射 (JPE) は、Bi2212 単結晶内部で積層する多数の固有ジョセフソン接合 (IJJ) におけるジョセフソン電流の振動がテラヘルツ領域の周波数で同相同期し、巨視的な表面電流が外部へのコヒーレント電磁波放射をもたらす [1]。発振される電磁波の周波数は交流ジョセフソン効果に従い、バイアス電圧に比例する [2,3]。現在までに、バイアス

電圧の変化に対応する広い周波数範囲で JPE が観測されており，単一デバイスについて 0.5–2.4 THz のクライオスタット外への放射検出 [4]，1–11 THz の同一クライオスタット内でのモノクロマティック発振検出 [5] が報告されている．JPE の独自性のひとつと知られているこの周波数チューニングが純粋に交流ジョセフソン効果に従うとすると，JPE のバイアス電圧を変調することで，FM テラヘルツ光源となり，さらには櫛の歯の間隔が変調周波数により与えられる周波数コム光源をモノリシックデバイスとして創成することにつながる．これは，既存の半導体テラヘルツ光源では原理的に不可能な，さらに画期的な JPE の独自性としてテラヘルツ技術に貢献できる．しかしながら，上記の周波数チューニングは交流ジョセフソン効果だけでなく，デバイスの実効温度の変化を経由した超伝導物質パラメータの温度変化が起源であるという指摘もあり [6]，JPE に高速バイアス変調した場合の周波数変調テラヘルツ波の生成は原理的にも自明ではない．実際に，振幅変調による高感度発振検出を目的とした 500 kHz までのバイアス変調が試みられているが，スペクトルについては報告されていない．一方で，低温超伝導体の人工ジョセフソン接合からなる SQUID 発振器では，5.6 GHz を中心とするバンド幅 4 kHz のコム状スペクトルがレーザー発振を伴って観測されたことが報告されている [7]．

本稿では，JPE デバイスのバイアス電圧として数ボルトの直流に周波数が 10 kHz から 3 GHz までの正弦波を重畳した信号を用いて得られた電磁波の放射を高分解能フーリエ変換分光装置で分光を行った結果を議論する [8]．変調周波数が分光器分解能を上回る場合，ベッセル関数で記述される FM スペクトルが得られ，その櫛の歯の間隔は変調周波数に一致した．スペクトルの中心電圧依存性について，変調周波数による違いを比較した結果からは，積層 IJJ 間の同相同期が非常に短時間で確立されていると解釈できる．周波数チューニングは交流ジョセフソン効果で決定され，素子形状により決定される共振周波数に拘わらずコヒーレントなテラヘルツ波が放射されている証拠ともいえる．さらに，無変調時の発振周波数範囲を超えて発振スペクトルが観測されるなど，レーザー動作における周波数コムでみられるような，媒質増幅率と共振モードの積から与えられるものとは，本質的に異なる．本成果は，モードロックパルスレーザーなどの複雑な光学系を用いずとも，高温超伝導体単結晶に比較的簡単な微細加工を加えたデバイスとマイクロ波源などから広帯域 (> 10 GHz) 周波数変調された連続テラヘルツ波が得られることを示しており，既存の変調方式から飛躍的に向上した SN 比の実現により，テラヘルツ通信技術の革新をもたらす．また，デバイス形状やバイアス変調を最適化することにより，バンド幅が 1 オクターブに達するテラヘルツ周波数コムを実証する可能性を与える，テラヘルツ技術のマイルストーンとなる．

2. 固有ジョセフソンスタックにおける周波数変調ジョセフソン振動

IJJ 積層構造に変調電圧を重畳することでジョセフソン電流の振動数が変調される．ゲージ不変位相差 θ を有するジョセフソン接合において，超伝導電極間の電圧 V とトンネル電流 I には以下の関係が成り立つ．

$$I = I_c \sin \theta, \quad (1)$$

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

ここで，IJJ が N 積層する構造に電圧 $V(t) = V_0 + V_m \cos \omega_m t$ の電圧を加える場合を考える． V_0 は

直流電圧, V_m は変調電圧の振幅, ω_m は変調電圧の角周波数である. このとき積層を構成する単一 IJJ における瞬時ゲージ不変位相差 $\theta(t)$ は印加電圧の積分値になるので,

$$\theta(t) = \frac{2e}{\hbar} \int \frac{V(t)}{N} dt = \frac{2eV_0}{N\hbar} t + \frac{2eV_m}{N\hbar\omega_m} \sin \omega_m t \quad (3)$$

となる.

式 (3) は中心周波数 $\omega_c = \frac{2eV_0}{N\hbar}$, 変調指数 $m_f = \frac{2eV_m}{N\hbar\omega_m}$, 変調周波数 ω_m の FM 電磁波の瞬時角度と等価であり, 交流ジョセフソン電流がそのまま電磁波として放射された場合, 信号 $m_f \sin \omega_m t$ を伝搬することができる. 搬送波の振幅を A_c とすると, FM 電磁波の電力スペクトルは以下のベッセル級数和で表現できる.

$$P_{\text{FM}}(\omega_n) = \frac{1}{2} A_c^2 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n^2(m_f) \quad (5)$$

ここで, $J_n(x)$ は n 次の第一種ベッセル関数であり, n は整数である. このことから, FM 信号の強度スペクトルは, $\omega_n = \omega_c + n\omega_m$ の角周波数に高さ $J_n^2(m_f)$ を持つ. $\omega_c \pm (m_f + 1)\omega_m$ 付近に最大強度のピークを持ち, その包絡線は ω_c に向かう側で緩やかに減少し, ω_c から遠ざかる側で急激に減少する. すなわち, 式 (5) に対応するスペクトルが得られるとき, $f_c = \omega_c/2\pi$ の搬送信号で周波数 $\omega_m/2\pi$ の信号を送信できる可能性を実証することになる.

$N=1000$ の積層 IJJ 系の場合, $\omega_c/2\pi = 800$ GHz かつ $\omega_m/2\pi = 3$ GHz, スペクトル幅 $B = 40$ GHz の FM 信号を生成するためには, $V_0 = 1.6$ V に $\omega_m/2\pi = 3$ GHz, $V_m = 1.17$ V を重畳した電圧を IJJ 積層デバイスに印加すればよいことがわかる. この時の復調時の SN 比は AM の場合と比較して $3m_f^2 = 3(2\pi B/2\omega_m)^2 \cong 130$ 倍となり, 実用通信に極めて高い能力を示す.

3. 実験方法

FZ 法によって育成された Bi2212 単結晶をサファイア基板に固定し, フォトリソグラフィとアルゴンイオンミリングを用いて, 劈開直後の Bi2212 単結晶上にメサ構造を形成し, バイアス印加のための電極と平面パッチアンテナを銀薄膜から形成した. このようにして作成したデバイスを窓付き小型クライオスタットで 25 K 前後まで冷却し, 窓を通して外部に放射される電磁波を Infrared laboratory 社のシリコンボロメータで検出した. 放射された電磁波のスペクトルはマーチンパレット型分光計により得られ, その最大分解能は可動鏡の移動距離で決まる 0.75 GHz である. 実験の詳細は文献 [8] の Methods に記されているが, 本誌の読者が気になる可能性のある超絶マニアックな情報を以下に追加する.

サファイア基板上の電極パッドとクライオスタット RC 102 (Cryo Industries of America INC) 内の配線とは銀ペースト Dupont 4922 で接続されている. 銀ペーストが高周波変調時の損失となり, 変調周波数の上限を決めていると推測される. 高周波変調用にクライオスタット内部にセミリジッド同軸ケーブル SUCOFORM_86_FEP (Huber+Suhner INC) および低温用フレキシブル同軸ケーブル CC-SS (LakeShore Cryotronics) を配線した. クライオスタット内の同軸ケーブル同士の接続には SMP コネクタを用い, クライオスタット外部へのフィードスルーには SMA-SMA ハーメチックアダプタ 34_SMA-50-0-3/111_NE (Huber+Suhner INC) を使用した. マイクロ波変調を重畳する際, 再現性のためにはクライオスタット外部のケーブルやコネクタの選択および接続には細心の注意が必要である.

本研究では、連続ヘリウムフロークライオスタットにベッセル側を加圧してトランスファーチューブから液体ヘリウムを流すプッシュフローで温度制御を行った。加圧は回収側に可変逆止弁 B-4CPA2-3 (Swagelok) を挿入し、0.01–0.03 MPa の範囲でゆっくり変化するようにして（一定にできなかった）、0.01 K の精度での長時間の温度制御を可能にした。なお、連続測定時間は上記プッシュ圧力の範囲と検出用シリコンボロメータの液体ヘリウム維持時間で決まり、概ね 24 時間程度である。

4. 結果と考察

マイクロ波変調と振幅依存性

バイアス電圧として直流 1.24 V にシンセサイザーによって周波数 3 GHz で $P = 25$ dBm の変調信号を重畳したときの典型的なスペクトルを Figure 1(a) に示す。また, Figure 1(b) にそのインターフェログラムを示す。中心の 856 GHz に変調周波数 3 GHz の $n = 0, \pm 1, \dots, \pm 7$ 倍を加えた 15 周波数に周波数分解能 (0.8 GHz) 程度の線幅のほぼ等しいピークがみられる。図には式 (5) で表される理想的な FM スペクトルを加えている。ここで変調指数 $m_f = 5.7$ は実験で得られたピーク強度比を再現するように選ばれ、スペクトル高さを与える因子 A_c は実験データに合わせている。 P を 25 dBm から -5 dBm まで変化させて得られたスペクトルを Figure 2(a,b) に示す。 P の減少に伴い、ピークが観測されている周波数幅 (バンド幅) は減少し、-5 dBm では見慣れたユニモーダルスペクトルになっている。試料に加わっているマイクロ波信号の電力を直接測定することはできないが、同一の周波数では伝送系などでのロスが同一だと考えて良いので、変調指数は $\sqrt{P}$ に比例すると考えて良い。そこで、Figure 1(a) で用いた変調指数から、各 P での変調指数を用いた理想的 FM スペクトルを実験データに重ねると、驚くほど一致していることがわかる。

中心周波数依存性

Figure 3 (a) は 3 GHz, 25 dBm の変調を維持してオフセット電圧を変えたときのスペクトルである。Figure 3 (b) に示す変調なしの時のスペクトルと比較すると、変調により周波数領域で対称にスペクトルが広がっており、スペクトルの見られるオフセット電圧領域はほぼ一致している。ここでもやはり、ピーク間隔は変調数波数の整数倍に維持されて、オフセット電圧に応じ

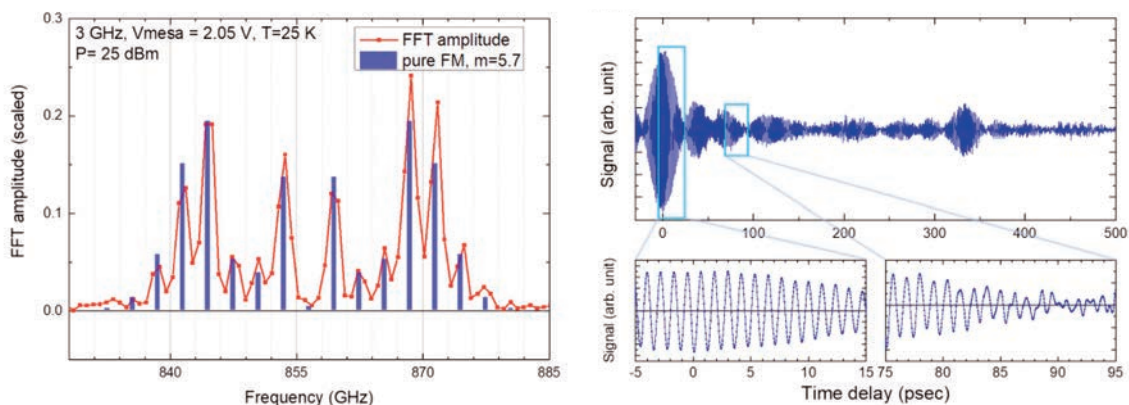


Figure 1: (a) $T = 25$ K, オフセット電圧 2.4 V, 重畳変調周波数 3 GHz, 振幅 25 dBm での発振スペクトル (曲線)。キャリア周波数 865 GHz, 変調周波数 3 GHz, 変調指数 5.7 の理想的 FM スペクトルを棒グラフで示している。(b) 3 GHz, 25 dBm 重畳時のインターフェログラム。上図は概ね 16 cm の反射鏡スキャン長に対応し、下図に一部を拡大したものを示す。[8]

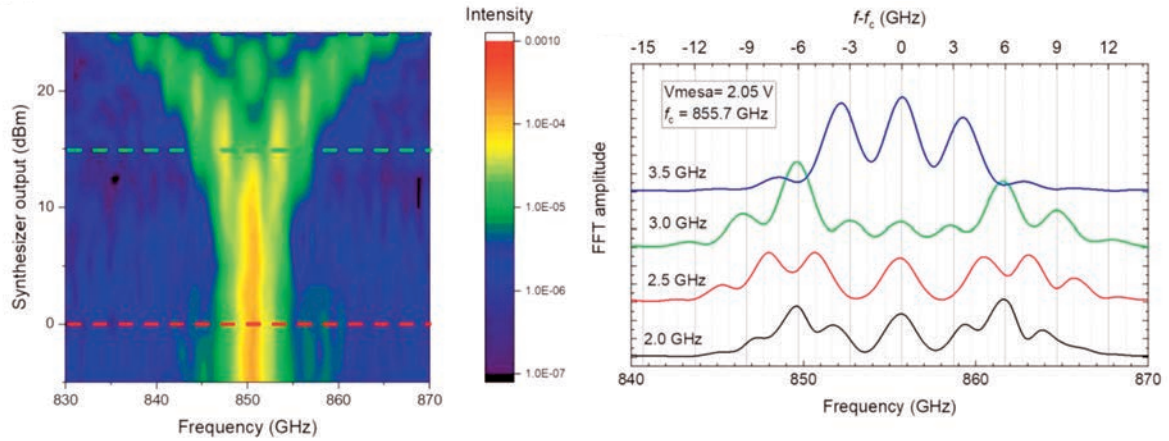


Figure 2: (a) オフセット電圧 2.4 V, 重畳変調周波数 3 GHz において, 変調振幅 P を変化させたときのスペクトルの遷移. P を 25 dBm から -5 dBm まで減少させている. (b) スペクトルの変調周波数依存性. 変調周波数を 2.0, 2.5, 3.0, 3.5 GHz と変え $P=25$ dBm で一定としている. [8]

て平行移動したスペクトルが得られている. 変調スペクトル強度は, 無変調スペクトルのユニモダルピークの高さが最大になる電圧付近で最大になっており, すなわち中心周波数でスペクトル強度が決定される.

低周波数変調との比較

Figure 3 (c) に変調周波数を 10 kHz としたときのスペクトルのオフセット電圧依存性を示す. 無変調の場合と同じ周波数領域での発振が観測されているように見える. しかしながら, 3GHz の変調の場合とは本質的に異なる点がある. 低周波変調の場合, 発振領域の低電圧端付近のオフセット電圧の場合, スペクトル強度が局所的に突出している周波数が見えるほか, スペクトル形状がオフセット電圧に強く依存し, 場合によっては非対称となって 3 GHz 変調の場合とは定性的に異なる. これは以下のように解釈できる. マイクロ波変調された場合は, 交流ジョセフソン効果により誘起された, f_0 (840– 890 GHz) でコヒーレント振動する電流そのものが変調を受け, 理想的な FM に近いスペクトルを示している. 一方, 10 kHz で変調された場合, 瞬時電圧でジョセフソン周波数が決定し, その結果時間領域分布による無変調スペクトル強度の重ね合わせに若干の周波数シフトを加えたものになった.

以上の実験結果をまとめると, 10 kHz 変調の場合, 変調を受けた瞬時電圧が無変調での発振バイアス範囲を超えた場合に中心周波数に拘わらず発振が観測されないのに対して, 3 GHz 変調では中心電圧が無変調での発振範囲にある場合に, 変調幅に拘わらず発振が観測されることが予想される. これを, 無変調バイアスでの発振の消失が急峻である低周波数側で比較した. Figure 4 では, 10 kHz および 3 GHz 変調バイアスでの発振周波数下端のスペクトル拡大図である. 10 kHz 変調では, 836 GHz 以下では強度が現れていないが, 3 GHz 変調では, 825 GHz にピークすら見られる. 注意深く見ると, 最後に観測されたスペクトルの中心周波数は 836 GHz をわずかに上回っているようである. すなわち, 中心バイアス電圧が発振範囲周波数に相当する場合, 変調範囲に拘わらず発振が観測されている. 十分な振幅でさらに高周波の変調を与えた場合, 無変調の発振範囲を大きく上回る周波数範囲のスペクトルを生成することが期待される.

この現象は, 積層する IJJ の同期の緩和時間と変調周期との関係を考察すれば理解できる. すなわち, 緩和時間より周期の十分長い低周波数の変調では, 無変調時の発振範囲そのままに,

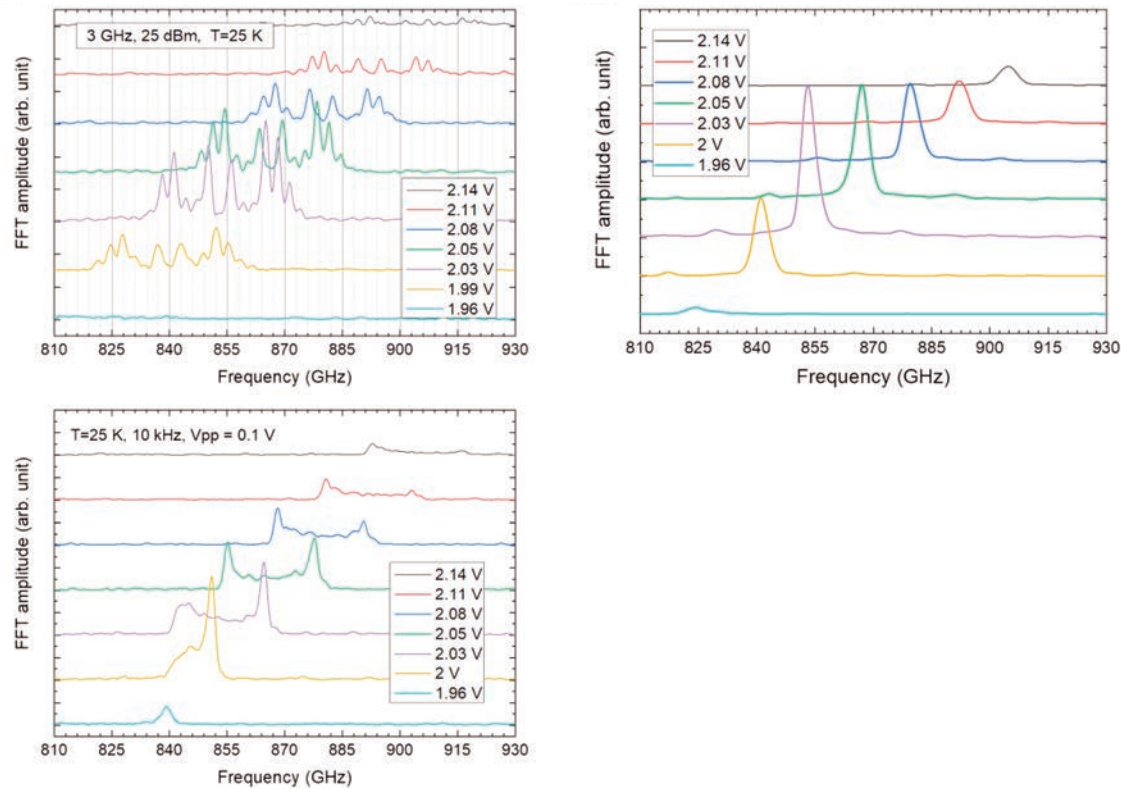


Figure 3: 3 GHz, 25 dBm 重畳時の発振スペクトルのオフセット電圧依存性. 単一のオフセット電圧でピーク高さの不均一性, 非対称性は見られず, 中心周波数の発振強度でスペクトル全体の強度が決まるようである. (b) 無変調時のバイアス電圧依存性. 変調時とは周波数分解能が異なる. (c) 10 kHz, 0.1 V 変調時の発振スペクトルのオフセット電圧依存性. 3 GHz 変調時とは異なり, スペクトルの対称性が中心周波数に依存する. [8]

時間発展による振動子分布がそのままスペクトルに現れているのに対して, 高周波数の変調では, 同期振動している系が無変調では同期しない周波数においても同期が生き延び, 無変調時には得られない周波数範囲にスペクトルが観測されている. これは, 一種の周波数変換であり, ジョセフソンプラズマ放射において非線形的な周波数変換が観測された最初の例である. また, 変調周波数を細かく変えてスペクトルを測定することで同期時間を特定することができ, テラヘルツ光源としての設計という観点だけでなく, 非線形振動子の多体問題に重要な情報を与えるので, 今後の詳細な研究が待たれる.

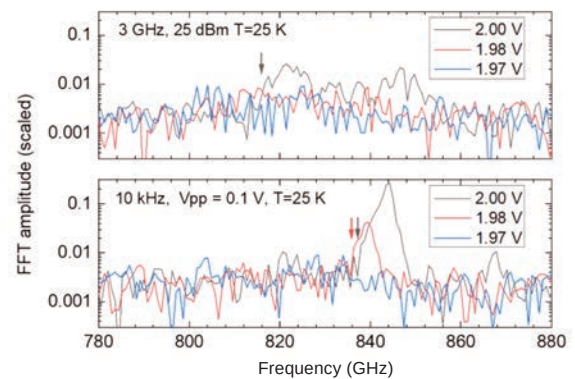


Figure 4: 3 GHz (上) および 10 kHz (下) 変調時の発振領域下限周波数付近のスペクトル. 矢印は最低周波数のピークを指している. [8]

5. プリクエル

以上は文献 [8] に発表した内容に沿っているが、前日譚として研究の着想について触れたい。上記の測定を始める 1 年余り前の 2021 年秋に、別のデバイスの発振測定を行っていた。その時に、今回観測したスペクトルに類似する櫛状のスペクトルが予期せず得られた。責任著者（掛谷）がその実験結果を見た瞬間、2017 年に半年間滞在していた仏 ENS のホスト研究者が半導体量子カスケードレーザーなどで目指していたテラヘルツコム [9] の事を思い出し、色めき立った。しかしながら、データ取得レートなどを変えていくと櫛の歯の間隔が変わっていくことから、アーティファクトの疑いを強めた。実験結果を本稿の著者の一人である小林が定量的に考察した結論としては、不十分な温度制御のためにデバイス温度が振動した結果、データ取得時間に発振周波数が振動して結果的に櫛状のスペクトルが見えていたと結論した。この経験から、温度を安定させてバイアスを振動させれば櫛状のスペクトルが得られるという確信を得て、今回の成果になった。もちろん、テラヘルツ通信への動機は言うまでもない。

あえて教訓的なことを言えば、異分野融合研究とセレンディピティのもたらした果実だと認識しているのであるが、それだけではなくここに至るまでは多くの努力と協力があつたことを付け加えたい。まず 2017 年の科研費・国際共同研究による滞仏では不在により過大な負担を強いられた電子工学専攻をはじめとする当時の教職員・大学院生の皆様に感謝申し上げたい。さらに、見知らぬ極東の一研究者に軒先を貸し、自身の研究を見せてくれ、我々の研究に協力してくれた仏 ENS の J. Tignon, S. Dhillon の包容力に感謝している。後日、同様の立場で日本から海外研究機関に滞在した研究者の JSPS 主催の集まりがあつたのだが、その報告からは、結果的に滞在先主導の研究になってしまった、という方もいる様であつた。なお、そのことを自分自身の機転だとされる方もおられたのはいささか残念に感じた。その中で、時間はかかったが目的の成果が達成でき、それなりに注目を受けたことは少し誇っても良いことかな、と最近思う。

6. 謝辞

常日頃液体ヘリウム供給、回収でお世話になっている環境安全衛生機構低温物質管理部門各位、特に桂極低温施設の西崎修司博士、多田康平博士に感謝申し上げます。また、研究成果に関して常時議論いただいている集積機能工学講座米澤進吾、後藤康仁、池田敦俊ほかメンバー各位に感謝します。本研究は科研費基盤研究 (B) 20H02606 および挑戦的研究 (萌芽) 23K17747 の支援による成果である。

参 考 文 献

- [1] L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, C. Kurter, N. Gopalsami, Q. Li, M. Tachiki, K. Kadowaki, T. Yamamoto, H. Minami, H. Yamaguchi, T. Tachiki, K. E. Gray, W.-K. Kwok, and U. Welp., *Science* **318**, 1291 (2007).
- [2] 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).
- [3] I. Kakeya and H. Wang, *Supercond. Sci. Technol.* **29**, (2016).
- [4] T. Kashiwagi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 082601 (2015).
- [5] E. A. Borodianskyi and V. M. Krasnov, *Nat. Commun.* **8**, 1742 (2017).
- [6] T. M. Benseman, A. E. Koshelev, K. E. Gray, W.-K. Kwok, U. Welp, K. Kadowaki, M. Tachiki, and T. Yamamoto, *Phys. Rev. B* **84**, 064523 (2011).
- [7] M. C. Cassidy, A. Bruno, S. Rubbert, M. Irfan, J. Kammhuber, R. N. Schouten, A. R. Akhmerov, and L. P.

- Kouwenhoven, Science **355**, 939 (2017).
- [8] M. Miyamoto, R. Kobayashi, G. Kuwano, M. Tsujimoto, and I. Kakeya, Nat. Photonics **18**, 267 (2024).
- [9] V. Pistore, H. Nong, P.-B. Vigneron, K. Garrasi, S. Houver, L. Li, A. G. Davies, E. H. Linfield, J. Tignon, J. Mangeney, R. Colombelli, M. S. Vitiello, and S. S. Dhillon, Nat. Commun. **12**, 1427 (2021).

著者略歴



掛谷一弘 (KAKEYA, Itsuhiro)
京都大学工学研究科 電子工学専攻 准教授

1998 年 6 月 大阪大学 博士 (理学) 取得
1998 年 7 月 筑波大学物質工学系 助手
2002 年 4 月 筑波大学物質工学系 講師
2008 年 4 月より現職
その間
2017 年 3-9 月 仏エコールノルマルスペリウール 客員教授
2018 年 10 月 京都大学宇宙学総合ユニット 併任教員



小林亮太 (KOBAYASHI, Ryota)
京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 博士後期課程 2 年生

2021 年 3 月 京都大学工学部電気電子工学科 卒業
2021 年 4 月 京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 修士課程 入学
2023 年 4 月 京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 博士後期課程 進学
現在に至る