

2020年度 TIA 連携プログラム探索推進事業「かけはし」

調査研究報告書(公開版)

【研究題目】

高温超伝導テラヘルツ波発振器の高出力化と分光利用のための調査研究

【整理番号】

TK20-050

【代表機関】

筑波大学

【調査研究代表者(氏名)】

筑波大学 数理物質系 : 柏木隆成

【TIA 内連携機関：連携機関代表者】

産総研 電子光技術研究部門	:	永崎 洋
NIMS 先端材料解析研究拠点	:	茂筑 高士
KEK 物質構造科学研究所	:	中尾 裕則
東京大学 物性研究所	:	長谷川 幸雄
東北大学 金属材料研究所	:	木村尚次郎

【TIA 外連携機関】

【報告書作成者】

柏木 隆成

【報告書作成年月日】

2021年3月29日

【連携推進(具体的な連携推進活動内容とその活動の効果等)】

・共同実験, ディスカッション

- KEK の共同利用施設等を用いた実験を継続的に実施 (KEK, 筑波大)。
- 高温超伝導体単結晶の育成及びその調整を産総研にて継続的に実施(産総研, 筑波大学)。
- 超伝導体単結晶育成に関する技術及び情報の交換を定期的実施(産総研, NIMS, 筑波大)。
- 実験結果に対する議論を, グループ全体及び個別の研究機関で複数回実施。
(筑波大, KEK, 産総研, NIMS, 東大, 東北大)

・学会, 研究会, ワークショップ等

- 本課題では, 高温超伝導体の単結晶を用いたテラヘルツ波発振素子の高出力化とその分光利用を目指したものである。本研究成果及びデバイスの開発現状を伝えるために, 以下の学会等で成果を報告した。
 - ・ Workshop on Superconducting THz devices 2020 (STD20) (オンライン 2020年8月21日)
 - ・ 第81回応用物理学会秋季学術講演会 (オンライン 2020年9月8日~11日)
 - ・ 日本物理学会 2020年秋季大会 (オンライン 2020年9月8日~11日)
 - ・ 一般社団法人レーザー学会学術講演会第41回年次大会(オンライン 2021年1月18日~20日)
 - ・ 第68回応用物理学会春季学術講演会 (オンライン 2021年3月16日~19日)

・かけはしプロジェクトの出口戦略に向けた活動

- 2019年度までの TIA かけはし「高温超伝導体のセントラルドグマの理解とその応用利用に向けた調査研究(筑波大, 産総研, NIMS, KEK, 東大)」の成果を基盤にし, 2020年度科研費基盤 B を獲得。
- 特許出願: 1件。
- 「高温超伝導体テラヘルツ波発振器技術」をイノベーションジャパン 2020に出展。

- 戦略的創造研究推進事業（さきがけ）へ応募(2020年6月)。
- 本技術の事業化の一環として、筑波大学-産総研-富士電機(株)と「研究成果展開事業 研究成果最適展開支援プログラム A-STEP トライアウト」へ応募(2020年6月)。
- 2020 創発的研究支援事業への応募(2020年7月)。
- 産総研-筑波大-理科大の共同研究テーマで科研費（基盤 B「銅酸化物高温超伝導体の電子相図に着目した臨界電流密度制御因子の解明」）へ応募(2020年10月)。
- 令和2年度イノベーション多摩支援事業 産学連携合同 WEB 面談会に参加(2021年2月)
- 調査会社を利用したテラヘルツ波アプリケーション利用先の探索(2021年2~3月)。
- 村田製作所との共同研究契約の締結(東北大)。
- キャベンディッシュ研究所との共同研究契約締結手続き中(産総研)。
- 富士電機株式会社との共同研究契約手続き中調整中(筑波大)。

【調査研究内容（実験等中心に背景・課題と実行された課題解決の内容と結果）】

テラヘルツ(THz)波は、電波と光波の性質を合わせもち、新たな学術・産業分野を切り開く次世代の電波技術として期待されている。しかし、マイクロ波や可視光に比べ、THz波の技術開発は途上にある。THz波を用いた産業の現状を鑑みると、この分野の更なる活性化には、「1mWを超える高強度・小型・簡便かつ安価な固体発振器の開発」が欠かせない。さらに、高性能かつ安価なTHzデバイスが不足しているため「THz波を用いたキラーアプリケーションの創出」が遅れているといった課題がある。本連携プログラムでは、①物質開発、②デバイス開発、③分光計測、を得意とする研究機関でチームを組み、上記課題の解決を目指した。具体的には、高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) 単結晶を用いたテラヘルツ波発振器 (Bi2212-THz 発振器) の結晶材料の最適化を行い、素子性能の飛躍的向上とともに、THz波を用いた微視的分光測定技術の開発を目指した。

現在、筑波大学を中心に開発を進める Bi2212-THz 発振器では、0.3-2.4 THz の周波数帯域、100 MHz 程度の発振線幅、0.5 THz で 30 マイクロワットの出力の発生が可能である。これは、Bi2212 単結晶の *c* 軸方向に積層する固有ジョセフソン接合を利用した発振素子である。Bi2212 単結晶では、Bi と Sr の組成比や過剰酸素 δ が、超伝導転移温度や臨界電流密度などの材料特性を決定する要因になっている。よってこれらは、デバイス特性に大きく影響すると考えられる。本年度は、Bi2212-THz 発振器の発振出力の向上のために、結晶材料特性とデバイス特性の相関の調査を進めた。具体的には、筑波大及び産総研グループにて、異なる Bi/Sr の組成比の単結晶を複数育成した。そして育成した単結晶を、異なる雰囲気ガス下で熱処理することで結晶中のキャリア濃度を調整した。これらの結晶を用いて、THz波発振器用の単結晶チップを作製し、この単結晶チップの結晶性を KEK グループと連携して評価した。この単結晶チップを用いた Bi2212-THz 発振器の評価は主に筑波大学グループで行った。結晶性の評価方法や新たな物性研究に関して、NIMS、東大、東北大グループと適宜議論を行った。上記の内容で調査を進めた結果、結晶中のキャリア数の減少に伴い、*c* 軸の格子定数が伸びることが明確になった。また、酸素雰囲気下で熱処理した結晶では、窒素下で熱処理した結晶に比べて、*c* 軸の格子定数が分布する傾向があることが分かった。これらは、Bi/Sr 比を調整しても基本的には同じ傾向であることも分かった。これらの単結晶チップを用いて、Bi2212-THz 発振器の評価を行ったところ、*c* 軸の格子定数の分布の小さい窒素下で熱処理した結晶では、*c* 軸接合方向の臨界電流密度は小さく、電流-電圧特性には大きなヒステリシスが観測され、そして明瞭な発振が得られやすい傾向があった。一方、酸素処理をした結晶では、キャリア数の増加、*c* 軸長の短縮、*c* 軸格子定数の分布を反映するように、電流-電圧特性は、大きな臨界電流密度を示すとともに、多段のステップが観測された。またこちらでは、明瞭な発振が得難い傾向にあることが分かった。以上から、結晶の熱処理による影響が、結晶 *c* 軸方向の結晶性を通じてデバイス特性にどのように反映されるかについて明瞭な理解を得るに至った。ただし、現状ではデバイス特性の評価がやや遅れているため、現在はその点を中心に調べている。これらの成果や関連研究は、適宜学会及び論文等にて報告行なった。以下にその代表的なものを示す。

1. T. Kashiwagi, T. Yuasa, G. Kuwano, T. Yamamoto, M. Tsujimoto, H. Minami, and K. Kadowaki, "Study of Radiation Characteristics of Intrinsic Josephson Junction Terahertz Emitters with Different Thickness of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Crystals", *Materials*,14(5), 1135(2021).
2. 中川駿吾, 柏木隆成, 中山繭, 金正赫, 辻本学, 中尾裕則, 石田茂之, 永崎洋, 長谷川幸雄, 木村尚次郎, 茂筑高士, 門脇和男, 「Bi-Sr 比と Pb 置換量を制御した Bi_{2212} 単結晶の超伝導転移温度のホール濃度依存性」, 日本物理学会 2020 年秋季大会, 8aH1-10.
3. 柏木隆成, 桑野玄気, 中川駿吾, 楠瀬慎二, 中山繭, Kim Jeonghyuk, 永山佳苗, 湯原拓也, 山口啄弥, 辻本学, 南英俊, 門脇和男. 「高温超伝導体による連続テラヘルツ波発振器の開発」, 一般社団法人 レーザー学会 学術講演会 第 41 回年次大会.
4. 中山 繭, 柏木 隆成, 中川 駿吾, Kim Jeonghyuk, 桑野 玄気, 楠瀬 慎二, 辻本 学, 南 英俊, 茂筑 高士, 中尾 裕則, 石田 茂之, 永崎 洋, 長谷川 幸雄, 門脇 和男. 「 Bi_{2212} -THz 波発振器の発振特性と材料特性の関係」, 第 81 回 応用物理学会秋季学術講演会
5. 中川 駿吾, 柏木 隆成, 中山 繭, Kim Jeonghyuk, 山口 啄弥, 桑野 玄気, 楠瀬 慎二, 辻本 学, 南 英俊, 中尾 裕則, 茂筑 高士, 石田 茂之, 永崎 洋, 長谷川 幸雄, 木村 尚次郎, 門脇 和男. 「 Bi_{2212} -THz 波発振器におけるデバイス特性の材料組成依存性の研究」, 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会

【今後の活動予定】

本年度の研究活動から、デバイス特性と結晶材料特性の相関に一側面に関して明瞭な理解を得るに至った。今後は、この点を踏まえつつ、特性を調整した材料を用いて、発振出力を中心に Bi_{2212} -THz 波発振器の性能向上を実現させる予定である。そのためには、銅酸化物高温超伝導体の単結晶育成及び物性研究で実績のある「産総研」及び「NIMS」グループとの連携強化を継続するとともに、微視的な材料特性の評価を得意とする「KEK」及び「東大」グループとの連携強化を今後も引き続き実施していく。また、高周波電波を用いた高い分光技術をもつ「東北大」グループと協力して、 Bi_{2212} -THz 波発振器を用いた分光学的なアプリケーションの開発を進める。そして、上記連携をベースにして、直近では、小型の外部予算の獲得を目指すとともに、TIA「つくば応用超電導コンステレーションズ (ASCOT)」などと連携を図ることで、新たな研究グループとの繋がり（研究機関、企業等）を発展させていく。そして新学術領域やCRESTなどへの申請を積極的に目指す。

また、前年度までのTIAかけはしの活動と同様、本年度の調査活動を通じて、各研究機関をまたいだ学生と研究者の交流の場を実現することができた。よって次世代の研究者の育成の点でも本プログラムを十分に活用できたと考えており、引き続きこのような活動を継続していく予定である。

以上