

# 第8回低温工学・超伝導若手合同講演会 予稿集

主催：低温工学協会関西支部

日本学術振興会超伝導エレクトロニクス第146委員会 通信・情報処理分科会

日本物理学会大阪支部

協賛：応用物理学会関西支部

日時：2009年12月11日(金) 10時15分～16時30分

場所：大阪市立大学文化交流センター 大セミナー室

## 第8回低温工学・超伝導若手合同講演会プログラム

主催：低温工学協会関西支部

日本学術振興会超伝導エレクトロニクス第146委員会 通信・情報処理分科会

日本物理学会大阪支部

協賛：応用物理学会関西支部

日時：2009年12月11日(金) 10時15分～16時30分

場所：大阪市立大学文化交流センター 大セミナー室

担当幹事：横山 彰一(三菱電機株)、鈴木 実(京都大学)、笈 芳治(大阪府立産技研)

### [プログラム]

10:15-10:20 開会 大阪市立大学 畑 徹

10:20-10:45 「d-波スピン密度波と d-波超伝導との共存状態における磁束構造」

<sup>a</sup>大阪府立大学大学院工学研究科、<sup>b</sup>CREST-JST、<sup>c</sup>USC

<sup>a,b</sup>富田 聡(M2)、<sup>a,b</sup>加藤 勝、<sup>c</sup>真木 和美

.....1

10:45-11:10 「トリプレット超伝導体中の一対の半整数量子磁束周りの準粒子構造」

<sup>a</sup>大阪府立大学大学院工学研究科、<sup>b</sup>CREST-JST、<sup>c</sup>USC

<sup>a,b</sup>丹羽 祐平(M2)、<sup>a,b</sup>加藤 勝、<sup>c</sup>真木 和美

.....3

11:10-11:35 「ドーピング量を制御したPb-Bi2201 単結晶における混合状態のホール効果」

京都大学大学院工学研究科

品田 真二郎(M2)、高丸 泰、山田 義春、掛谷 一弘、鈴木 実

.....5

11:35-12:00 「FeAs系超伝導体における磁気トルクの理論と実験」

<sup>a</sup>大阪府立大学大学院工学研究科、<sup>b</sup>大阪府立大学ナノ科学・材料研究センター、

<sup>c</sup>大阪府立大学ナノファブリケーション研究所、<sup>d</sup>日本原子力研究開発機構、

<sup>e</sup>産業技術総合研究所

<sup>a</sup>久保田 大地(D2)、<sup>b</sup>林 伸彦、<sup>a,c</sup>石田 武和、<sup>d</sup>石角 元志、<sup>d</sup>社本 真一、

<sup>e</sup>永崎 洋、<sup>e</sup>鬼頭 聖、<sup>e</sup>伊豫 彰

.....7

12:00-13:00 昼食休憩

13:00-13:25 「Bi系高温超伝導体固有ジョセフソン接合の微小メサ構造における

巨視的量子トンネル現象」

<sup>a</sup>京都大学大学院工学研究科、<sup>b</sup>弘前大学理工学部

<sup>a</sup>立木 孝典(M2)、<sup>a</sup>濱田 憲治、<sup>b</sup>渡辺 孝夫、<sup>a</sup>掛谷 一弘、<sup>a</sup>鈴木 実

.....9

- 13:25-13:50 「YBCOバイクリスタル結晶粒界接合の欠陥と電気特性評価」  
<sup>a</sup>大阪大学大学院基礎工学研究科、<sup>b</sup>大阪大学大学院工学研究科  
<sup>a</sup>牧 哲朗、<sup>a</sup>中谷 悦啓、<sup>a</sup>関 天放、<sup>a</sup>孔 祥燕、<sup>b</sup>久保 等、<sup>b</sup>阿部 真之、  
<sup>a</sup>糸崎 秀夫 .....11
- 13:50-14:15 「バイクリスタル基板を用いたRF-SQUIDの製作及び評価」  
大阪大学大学院基礎工学研究科  
関 天放(M2)、孔 祥燕、糸崎 秀夫 .....13
- 14:15-14:25 休憩
- 14:25-14:50 「レーザー走査型磁気光学顕微鏡による超伝導体中の磁場観察」  
大阪大学レーザーエネルギー学研究センター  
高橋 圭司(M1)、村上 博成、斗内 政吉 .....15
- 14:50-15:15 「薄膜高温超電導線材の開発」  
住友電気工業(株) 電力・エネルギー研究所  
山口 高史、新海 優樹、太田 肇、大松 一也 .....17
- 15:15-15:40 「ナノ超伝導板の数値シミュレーションと実験への展望」  
<sup>a</sup>大阪府立大学大学院工学研究科、<sup>b</sup>大阪府立大学ナノ科学・材料研究センター、  
<sup>c</sup>大阪府立大学ナノアプリケーション研究所、<sup>d</sup>JST-CREST  
<sup>a,b</sup>末松 久孝(PD)、<sup>a,c,d</sup>加藤 勝、<sup>a</sup>宮成 光則、<sup>a</sup>南 裕亮、<sup>a,b,c,d</sup>石田 武和  
.....19
- 15:40-16:05 「格子歪みを持ったSrTiO<sub>3</sub>薄膜の誘電特性の温度依存性」  
<sup>a</sup>大阪大学レーザーエネルギー学研究センター、<sup>b</sup>PRESTO-JST、  
<sup>c</sup>大阪大学大学院工学研究科  
<sup>a</sup>金城 隆平(D1)、<sup>a</sup>竹本 良章、<sup>a,b</sup>川山 巖、<sup>a</sup>村上 博成、<sup>c</sup>松川 健、  
<sup>c</sup>高橋 義典、<sup>c</sup>吉村 政志、<sup>c</sup>北岡 康夫、<sup>c</sup>森 勇介、<sup>c</sup>佐々木 孝友、<sup>a</sup>斗内 政吉  
.....21
- 16:05-16:10 閉会 低温工学協会関西支部長 斗内 政吉
- 16:10-16:30 審査・表彰

## d-波スピン密度波とd-波超伝導との共存状態における磁束構造

阪府大工<sup>A</sup>, JST-CREST<sup>B</sup>, USC<sup>C</sup> 富田聡<sup>A,B</sup>, 加藤勝<sup>A,B</sup>, 真木和美<sup>C</sup>  
E-mail: [tomita@ms.osakafu-u.ac.jp](mailto:tomita@ms.osakafu-u.ac.jp), [kato@ms.osakafu-u.ac.jp](mailto:kato@ms.osakafu-u.ac.jp)

銅酸化物系の高温超伝導体の発見以来、高温超伝導の発現機構に関して膨大な研究が行われてきましたが、今なお未解決の状態です。現在のところ、高い臨界温度 $T_c$ をもたらす強い引力の性質を直接的に反映するオーダーパラメータの対称性に関しては、引力が反強磁性相互作用に起因する場合に期待される「d-波」ということで決着がついています。しかし近年、単純にd-波超伝導であると考えただけでは理解できない渦糸芯まわりの準粒子状態(チェッカーボード型状態密度と呼ばれる)が $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ において観測されており([1], 図1)、これを説明する研究はまだありません。

また、オーダーパラメータ問題の解決に続いて、常伝導相( $T > T_c$ )の電子励起スペクトルにギャップ様構造が現れ、温度を下げていくとそのギャップ様構造が $T_c$ 以下で超伝導状態のギャップに連続的に移行することが発見されました(図2)。常伝導相で現れるこのギャップ様構造は擬ギャップと呼ばれ、その発現機構の解明は高温超伝導の発現機構の解明に直結すると期待されています。

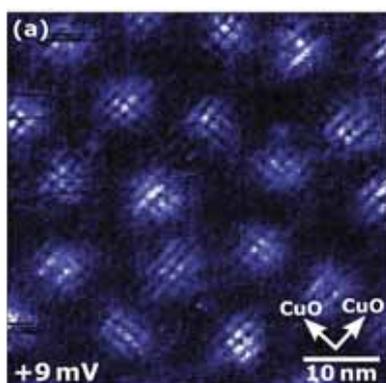


図1 チェッカーボード型状態密度

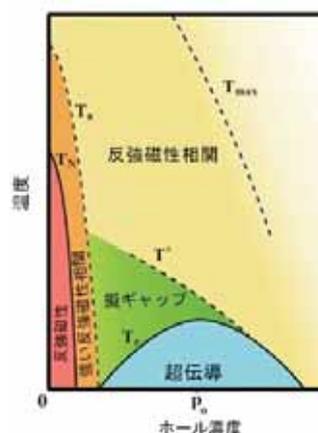


図2 (d-波) 高温超伝導体の相図

( 図1 : K. Matsuba et. al. , J. Phys. Soc. Jpn. 75 (2007), 063704 )

( 図2 : [http://www.sci.hokudai.ac.jp/science/science/H14\\_02/buturi/Science-T2.html](http://www.sci.hokudai.ac.jp/science/science/H14_02/buturi/Science-T2.html) )

我々は、チェッカーボード型状態密度に対して(d-波)高温超伝導体の擬ギャップ状態が及ぼす効果を考察することにより、d-波超伝導、擬ギャップ、及び渦糸芯内部の構造を統一的に理解することを狙いとして研究を行っています。擬ギャップ状態に対してd-波スピン密度波(d-SDW)理論を考え[2]、対応するBogoliubov-de Gennes方程式を導出し、数値的に解いたところ、より大きいd-SDWオーダーパラメータでチェッカーボード型変調構造(図3)や反強磁性構造(図4)を見出すことができました。よって、d-波超伝導とd-SDWとの競合はチェッカーボード構造を説明する有力なシナリオの一つと言えます。これは、擬ギャップの発現機構、ひいては高温超伝導の発現機構に一石を投じることにつながると考えます。

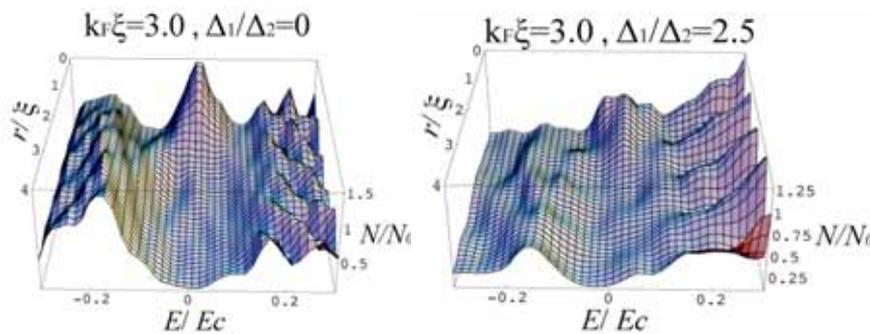


図3 局所状態密度

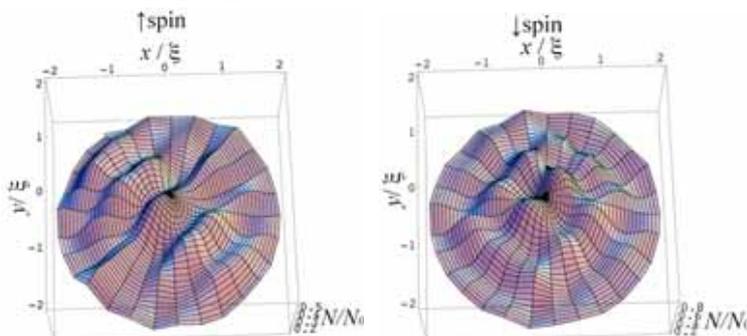


図4 局所状態密度の空間分布

[1] K. Matsuba et al., J. Phys. Soc. Jpn. 75 (2007), 063704

[2] H. Won et al., Phys. Stat. Sol. (b) 244 (2007) 240

## トリプレット超伝導体中の一对の半整数量子磁束周りの準粒子構造

阪府大工<sup>A</sup>、JST-CREST<sup>B</sup>、USCC<sup>C</sup>、丹羽祐平<sup>A,B</sup>、加藤勝<sup>A,B</sup>、真木和美<sup>C</sup>

E-mail address: [yuhei@ms.osakafu-u.ac.jp](mailto:yuhei@ms.osakafu-u.ac.jp), [kato@ms.osakafu-u.ac.jp](mailto:kato@ms.osakafu-u.ac.jp)

<sup>3</sup>He の超流動では <sup>3</sup>He がスピンの揃ったクーパー対を作って、スピンの向きが  $|\uparrow\uparrow\rangle, |\downarrow\downarrow\rangle, \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$  の三重項の超流動となっている。ここでは、オーダーパラメータにスピンの自由度が現れ、これを **d-vector** で以下のように表す。

$$\Delta(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} \Delta_{\uparrow\uparrow} & \Delta_{\uparrow\downarrow} \\ \Delta_{\downarrow\uparrow} & \Delta_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix} = \Delta_0 f(\mathbf{k}) \begin{pmatrix} -d_x + id_y & d_z \\ d_z & d_x + id \end{pmatrix}$$

ここで添字の矢印はスピンの向きで、 $\Delta_0$  は複素振幅であり、 $f$  は波数  $\mathbf{k}$  の関数である。<sup>4</sup>He や多くの超伝導ではスピンを打ち消し合うクーパー対、又は <sup>4</sup>He のみが超流動、超伝導を作っているので、 $\Delta_{\uparrow\uparrow} = \Delta_{\downarrow\downarrow} = 0$  且つ、 $\Delta_{\uparrow\downarrow} = \Delta_{\downarrow\uparrow}$  でスピンの自由度が無かった。しかし、<sup>3</sup>He ではスピンの自由度があるため新奇な現象、半整数の量子化渦が起こりうる。超流動では超伝導と同じように渦が量子化され、そこでオーダーパラメータの位相が  $2\pi$  回っている。しかし、<sup>3</sup>He では **d-vector** と位相が半回転ずつすることによって半整数の量子化渦があることが予言されており<sup>1)</sup>、<sup>3</sup>He-A 相で整数の量子化渦よりも半整数の量子化渦の方が安定な場合があるとわかっている<sup>2)</sup>。

最近、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  や  $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$  等の電子のスピンの自由度を持つトリプレット p-波又は f-波超伝導体が発見されている。また、 $\mu\text{SR}$  の実験によって、 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  に自発的磁化が存在することが確認された。それに対して、<sup>3</sup>He の超流動と同様にスピンの自由度があるため、スピン分極を起こす **d-soliton** (**d-vector** がある方向に平行と反平行になっている領域壁) でつながっている一对の半整数量子磁束がモデルの一つとして考えられた。最も安定な状態では **d-vector** は一様に同じ方向を向いているが、熱や磁場で励起されて **d-vector** が半回転すると以下の図のような領域壁を作る。小さな矢印が **d-vector**、太線が **d-soliton** を表している。図 1 の **d-soliton** の両端で **d-vector** が半回転しており、位相も半回転しなければオーダーパラメータが元に戻らず、一価の波動関数にならない。そのため、**d-soliton** の両端で半整数量子磁束ができる。**d-soliton** が長い程エネルギーは高くなるが、一对の半整数量子磁束のエネルギーの低さを

差し引いて整数量子磁束よりも安定になる  $d$ -soliton の距離が決まる温度領域があることが分かっている<sup>3)</sup>。

この研究においては、整数量子磁束と半整数量子磁束の定性的な違いを走査トンネル分光法実験で見つける為に数値シミュレーションを行った。これまで半整数量子磁束が一つだけの場合を計算してきたが、本来は対となっているので二つの特異点を持つ計算が必要となった。しかし、これまで理論計算は、主に一つの特異点を中心とする計算方法を利用してきた為、我々は、二つの特異点を持つ楕円座標を用いて波動方程式を Mathieu 関数によって解く方法を開発した。我々は、その計算方法によって Bogoliubov-de Gennes 方程式を解いて、二つの量子磁束の準粒子励起を確かめた。

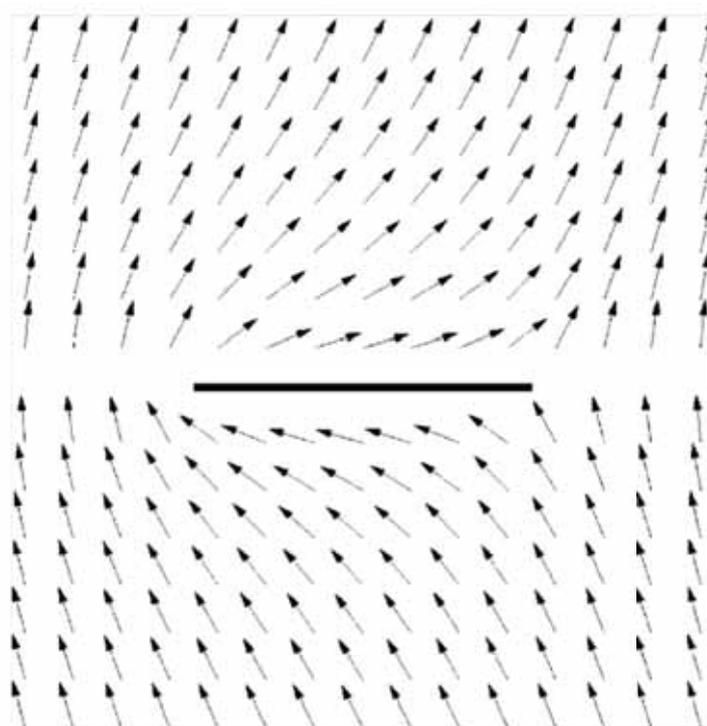


図 1 : 一对の半整数量子磁束周りの  $d$ -vector の分布と  $d$ -soliton (実線)

H.-Y.Kee and K.Maki, *Phy.Rev.B62*, R9275,2000

- 1)M.M.Slomaa and G.E.Volovik ,*Phys.Rev.Lett.55*, 1184(1985)
- 2)H.-Y.Kee and K.Maki, *cond-mat.0702344v2*(2007)
- 3)H.-Y.Kee and K.Maki, *Phy.Rev.B62*, R9275(2000)

# ドーピング量を制御した Pb-Bi2201 単結晶における混合状態のホール効果

品田 真二郎, 高丸 泰, 山田義春, 掛谷 一弘, 鈴木 実

京都大学大学院工学研究科

E-Mail: Shinada@sk.kuee.kyoto-u.ac.jp

## 1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体は反強磁性絶縁体にキャリアをドーピングすることにより発現することが知られている。このキャリアドーピング量は元素置換や酸素量によって変化し、銅酸化物高温超伝導体の  $T_c$  はキャリアドーピング量に強く依存することから、高温超伝導の発現機構を知るためにこれまで輸送特性など種々の物理量のドーピング量依存性を調べ系統的なふるまいを抽出する研究が行われてきた [1]。その中でも  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  (Bi2201) 系は他の Bi 系高温超伝導体と異なり  $\text{CuO}_2$  面が一枚の単純な構造であるにも関わらず、必ずしも統一的なふるまいを示さず興味深い物質である [2][3]。

本研究室においても  $\text{Bi}_{2-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{CuO}_{6+\delta}$  (Pb-Bi2201) の単結晶を育成し、これを用いて両面劈開法と微細化工法により単結晶薄膜試料を作製し、広範囲でドーピング量制御を行う実験を行ってきた。これまで得られた結果では、最適ドーピングにおけるキャリア濃度が他の物質系と若干異なる値となった。そこで本研究ではより広範囲でドーピング量制御を行うことで、Pb-Bi2201 の低温における  $ab$  面内輸送特性の抵抗率、ホール係数のドーピング量依存性を調べた。特に、 $T_c$  以下の混合状態において、ホール抵抗率  $\rho_{xy}$  の符号が反転するホール異常の有無とそのドーピング量依存性を調べ、本系における電子状態について検討した。

## 2. 実験

単結晶は  $\text{BaZrO}_3$  るつぼを用いて  $x = 0.3, y = 0.04$  の仕込み組成の原料からセルフフラックスによる静置除冷法により育成された。まず広範囲のドーピング量制御を行うため、単結晶薄膜試料の作製を行った。サファイア基板の上に固定した Pb-Bi2201 単結晶上にフォトリソグラフィとイオンミリングを用いて  $300 \times 100 \times 0.1 \mu\text{m}^3$  の長方形ペDESTAL を形成した。その上からポリイミドを塗布し、さらに両面研磨サファイア基板を上に乗せ加熱圧着することによりペDESTAL 部分の単結晶薄膜を劈開した。その後フォトリソグラフィと Ar イオンミリングを行い図 1 の測定用素子構造を形成した。測定部分は幅  $8 \mu\text{m}$ 、長さ  $100 \mu\text{m}$ 、厚さ  $90 \text{nm}$  の単結晶であり、試料が十

分薄いために過剰酸素の増減を  $200 \sim 300^\circ\text{C}$  程度の低温熱処理により容易に行うことができる。

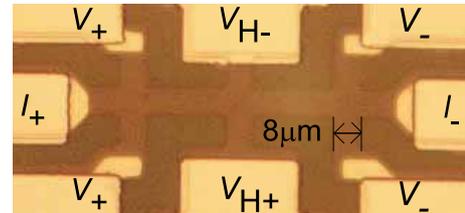


図 1: 完成した試料の光学顕微鏡写真。

これらの試料を用いて面内抵抗率  $\rho_{ab}$  とホール係数  $R_H$  を測定した。 $R_H$  は  $+1\text{T} \sim -1\text{T}$  までの磁場スweepによって得られたホール抵抗  $R_{xy}$  より求めた。測定後 Ar 雰囲気中において熱処理して試料を還元することによりドーピング量を減少させて、輸送特性のドーピング量依存性を得た。

## 3. 結果及び考察

図 2 に測定した  $\rho_{ab}$  およびホール係数  $R_H$  の温度依存性の変化を示す。図 2 で A, B 等は異なる試料であり、B1, B2, B3 は試料 B の逐次還元処理後の特性を示している。複数の試料と還元処理により広範囲にわたって  $\rho_{ab}$  が変化していることがわかる。一方で、図 2 における  $300 \text{K}$  のホール係数の値から Cu イオン 1 個あたりのホール濃度  $V/eR_HN$  を算出しそれを LSCO 系のデータ [4] と比較して、キャリアドーピング量  $p$  を求めた。as-grown の試料 B1 では  $p = 0.16$  となり、Ar 中で熱処理を行った試料はそれぞれ  $p = 0.14, p = 0.13$  となっていることから、Ar 中の熱処理による明確なドーピング量の減少量がわかる。さらに図 3 にキャリアドーピング量  $p$  を横軸に、 $T_c$  を縦軸にプロットした。今回の実験結果は、Tallon の generic な相図とほぼ一致し、他の超伝導体と同じ理解が成り立つことが示唆されるが、Ando ら [3] の測定した Bi2201 系とは明確に異なるふるまいが観察された。

図 4 は試料 B における  $T_c$  以下でのホール抵抗率  $\rho_{xy}$  の磁場依存性である。B1 において  $\sim 3\text{T}$  の領域でホール抵抗の符号反転が観察された。この試料に還元熱処理を施しドーピング量を減少させると符号反転が

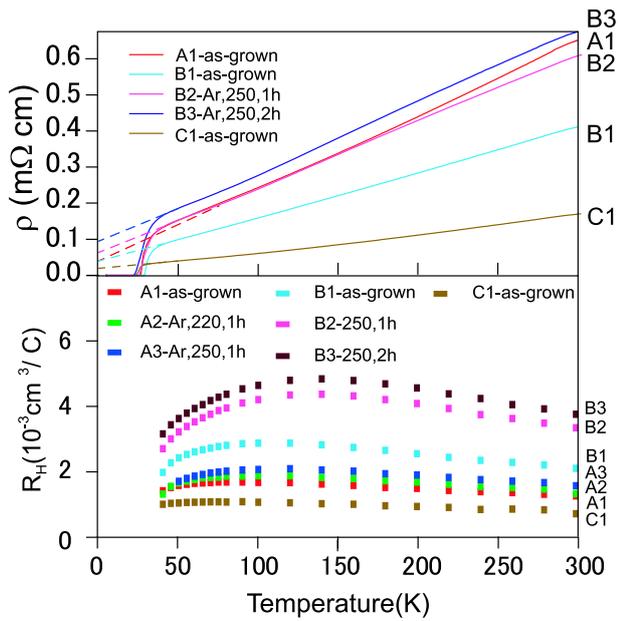


図 2: 逐次還元処理してドーパ量を変化させた Pb-Bi2201 劈開薄膜単結晶の  $\rho_{ab}-T$  特性および同じ試料でのホール係数の温度依存性。

消失した。ホール異常と呼ばれるこの符号反転は、YBCO 系などの他の超伝導体においても見られる現象である [5]。これは、磁束量子が負に帯電していることによると説明できる [6]。超伝導体内の準粒子状態密度がエネルギーに強く依存する関数であることから、超伝導体内の磁束コアにおいてフェルミ準位  $E_F$  の低下が生じる。超伝導領域ではギャップが存在していることから  $E_F$  の低下は磁束コアよりも小さくなり、その結果化学ポテンシャル  $\mu$  が一致するようにボルテックス中の磁束コアに外側から電子が入り込み平衡に達する。これにより磁束量子が負の電荷を帯びて、 $\rho_{xy}$  の符号反転が生じると考えら

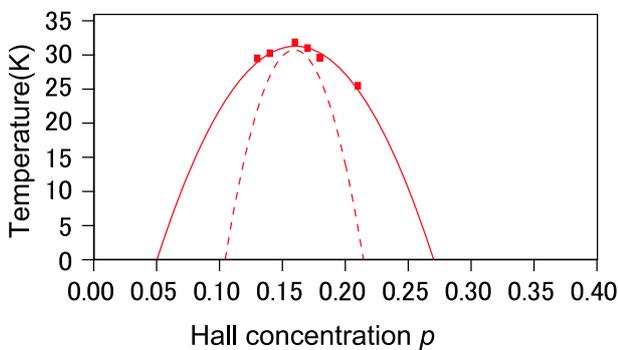


図 3: Pb-Bi2201 における  $T_c$  のキャリアドーパ量依存性。実シンボルは実験データ、実線は文献 [1] に基づいたフィッティング結果、破線は文献 [3] の結果。

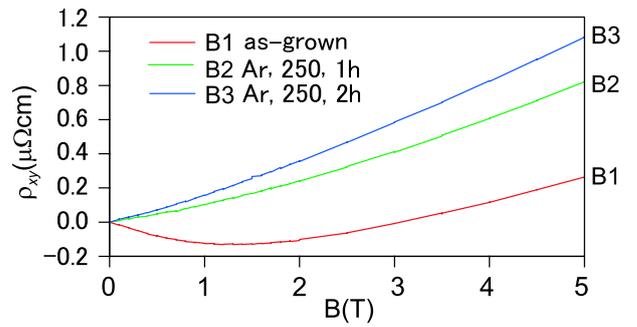


図 4: 試料 B の混合状態における  $\rho_{xy}$  の磁場依存性 (26 K)。

れている [7]。これまで、不足ドーパ領域でホール異常が観察され、過剰ドーパ領域では観察されないことが知られている [6]。今回の試料ではこの傾向に反した結果が得られた。この結果は、Pb-Bi2201 において準粒子の状態密度関数が他の超伝導体と異なっていることを示唆している。

#### 4. まとめ

薄膜単結晶試料を作製し、Ar 中で逐次還元を行いながら輸送特性を測定することで、系統的にドーパ量を制御できることを確認した。また、Pb-Bi2201 においてドーパ量を減少させるとホール抵抗における符号反転が消失するというこれまでの報告と異なる傾向を見出した。

#### 参考文献

- [1] J. L. Tallon *et al.*, Phys. Rev. B **51**, 12 911 (1995).
- [2] T. Amano *et al.*, Physica C **412**, 230 (2007).
- [3] Y. Ando *et al.*, Phys. Rev. B **61**, R14956 (2000).
- [4] Y. Ando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 197001 (2004).
- [5] M. Galffy *et al.*, Solid State Commu. **68**, 929 (1988).
- [6] T. Nagaoka *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3594 (1998).
- [7] K. Kumagai *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 144502 (2001).

# FeAs 系超伝導体における磁気トルクの理論と実験

久保田 大地<sup>a</sup>, 林 伸彦<sup>b</sup>, 石田 武和<sup>a,c</sup>

<sup>a</sup> 大阪府立大学大学院工学研究科 大阪府堺市中区学園町 1-1

<sup>b</sup> 大阪府立大学大学ナノ科学・材料研究センター 大阪府堺市中区学園町 1-1

<sup>c</sup> 大阪府立大学ナノファブリケーション研究所 大阪府堺市中区学園町 1-1

石角 元志<sup>d</sup>, 社本 真一<sup>d</sup>

<sup>d</sup> 日本原子力研究開発機構 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

永崎 洋<sup>e</sup>, 鬼頭 聖<sup>e</sup>, 伊豫 彰<sup>e</sup>

<sup>e</sup> 産業技術総合研究所 東京都千代田区霞ヶ関 1-3-1

## 1. はじめに

最近発見された鉄ヒ素化合物系の超伝導体 [1] は、金属系や銅酸化物系とは分類上異なった超伝導発現機構をもっている。鉄ヒ素化合物系は鉄原子のもつ 3d 軌道起源の磁性によって超伝導が起こりにくくなるという予測に反して、高い超伝導転移温度を実現している。この系では、超伝導キャリアは電子注入された Fe-As 層内に存在している。鉄原子の 5 つの d 電子軌道があり (マルチバンド性)、このマルチバンド超伝導が高い  $T_c$  を与えていることが発見時から示唆されており、2 バンド超伝導体である MgB<sub>2</sub> との関連性が採り上げられマルチバンドの研究も盛んに行われている。応用の面においても原材料も安価であり、銅酸化物系ではボトルネックになっていた高  $J_c$  化、低異方性化の問題を克服できるポテンシャルがあれば、産業的な魅力もある。本研究では、磁気トルクにより新しい FeAs 系超伝導体の異方性評価を目的とした。

## 2. PrFeAsO<sub>1-δ</sub> の磁気トルク解析

PrFeAsO<sub>1-δ</sub> は最適ドーピング時で  $T_c = 51$  K で、1111 型と呼ばれる構造は希土類サイトによる磁性の影響が大きく、内部の超伝導性を評価する測定する際には、磁性の影響を取り除く必要がある。磁気トルク測定は超伝導体の結晶方位異方性を良く説明する評価手法の一つである。トルク測定に用いた PrFeAsO<sub>1-δ</sub> 単結晶 (#4) は、560 μm × 400 μm × 19 μm の大きさで、 $T_c = 44$  K あった。トルク実験でのトルクシグナルの角度依存性を調べ、その可逆成分から Kogan [2] のトルク理論によって磁場侵入

長に関する超伝導異方性  $\gamma_\lambda$ 、コヒーレンス長に関する超伝導異方性  $\gamma_\xi$  を評価することができる。

## 2. 新しい解析モデル

多バンド超伝導性においてコア渦の振る舞いを精確に評価することが極めて重要である。しかし Kogan の多バンドトルク理論は、渦糸の逆格子空間上のカットオフを意図的に定数として与えているために未だ不自然な点を含んでいる [2]。我々は Yaouanc ら [3] の異方的超伝導体中の内部磁場モデルによるカットオフ関数を導入し、超伝導トルク理論を再評価した。また実際に数値計算によって PrFeAsO<sub>1-δ</sub> 単結晶の超伝導トルクカーブに多バンド超伝導性を考察した。

$$\tau(\theta_c) = -V \frac{\partial F(\theta_c)}{\partial \theta_c} \\ = -\frac{HV}{8\pi} \sum_{(p,q) \neq (0,0)} \frac{\partial}{\partial \theta_c} \frac{B_0(1-b^4)v_{pq}K_1(v_{pq})}{p^2 - pq + q^2}, \quad (1)$$

但し、 $V$  は試料体積、 $\epsilon_{\xi,\lambda}(\theta_c) = \sqrt{\sin^2 \theta_c + \gamma_{\xi,\lambda}^2 \cos^2 \theta_c}$ 、逆渦糸格子に関する整数  $p, q$ 、第 2 種変形 Bessel 関数  $K_1(v_{pq})$ 、磁束量子  $\Phi_0$ 、 $B_0 = \sqrt{3}\Phi_0\epsilon_\lambda(\theta_c)/8\pi^2\lambda^2\gamma_\lambda^{1/3}$ 、 $b = H\epsilon_\xi(\theta_c)/H_{c2}^{\perp c}$ 、 $v_{pq}^2 = 4\pi b(1+b^4)[1-2b(1-b)^2][\beta_{\xi\lambda}(\theta_c)(q-p/2)^2 + p^2/\beta_{\xi\lambda}(\theta_c)]$ 、そして  $\beta_{\xi\lambda}(\theta_c) = 2\gamma_\xi\epsilon_\lambda(\theta_c)/\sqrt{3}\gamma_\lambda\epsilon_\xi(\theta_c)$  である。この式 (1) は、Kogan 理論と比較して、逆渦糸格子空間におけるカットオフと渦糸コア芯の大きさの曖昧さを示すパラメータ  $\eta$  を取り

除いた理論である。超伝導異方性解析への有用性については、図 1 に今回の  $\text{PrFeAsO}_{1-\delta}$  単結晶の可逆成分の 1 つを示した。

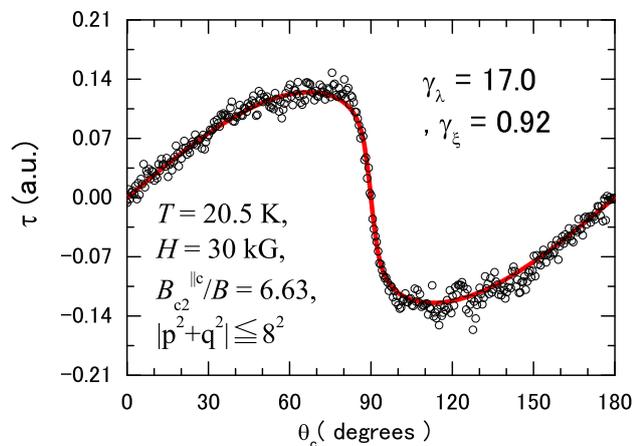


図 1: 30 kG、20.5 K の磁場中での  $\text{PrFeAsO}_{1-\delta}$  単結晶の磁気トルク可逆成分. 実線は式 (1) を用いて最小自乗法による解析をおこなったものを示す.

磁場 30 kG での 15 K から 32.5 K までの温度範囲の可逆成分を式 (1) を用いて解析した。この新しい解析モデルと Kogan のモデルとを比較し、 $\gamma_\lambda$  は依存性も定量的な値も同じ結果を得たが、 $\gamma_\xi$  については図 2 に示すように、温度依存の傾向はほとんど変化しないが、定量的には違いのあることが分かった。このことは、 $\eta$  を取り除いたことで、渦糸コアが異方性に与える影響を正しく取り込めたということを示している。

### 3. 小さな異方性に関して

異方性  $\gamma_\xi$  は温度を下げていくと全く当局的な  $\gamma = 1$  をよりも低くなっているように見える。このことは現段階で理論的には簡単に説明できていない。ただ、FeAs 系の超伝導性は 3 次元的な超伝導キャリアの運動が重要な役割を果たしていることが指摘されている。それは Fe-As の  $c$  軸方向の原子間距離と  $T_c$  が密接に強い相関があることでも明らかである。密度汎関数理論では、2 次元的な  $d_{x^2-y^2}$  電子の寄与よりも 3 次元的な  $d_{xz}, d_{yz}$  電子がフェルミレベル近傍に存在しているために、超伝導キャリ

アの層間の飛び移り作用が大きくなる機構が提案されている [4]。この事実は、従来の 2 次元的な層状構造が超伝導転移温度を上昇させる重要な役割を果たしているという描像とは相反することも指摘しておかないといけない。

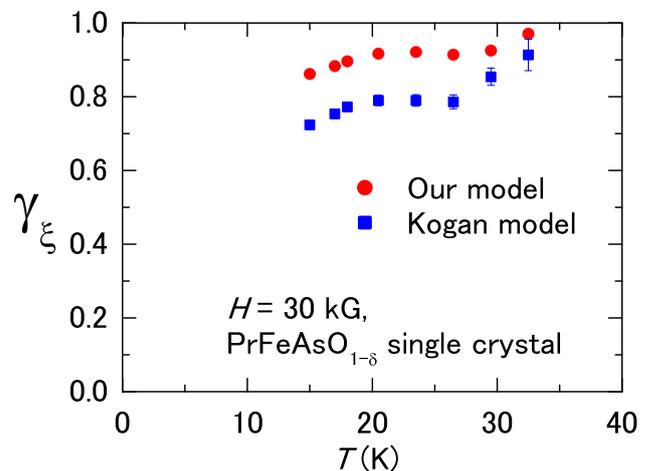


図 2: 磁場 30 kG での  $\text{PrFeAsO}_{1-\delta}$  単結晶の異方性パラメータ  $\gamma_\xi$  の温度依存性

### 4. まとめ

新物質が層状物質であるので、大きな異方性があるという予想に反して小さかった。極端な小さな異方性を持つ系であることから、従来の Nb 系金属超伝導体と同じように、銅酸化物が抱えていた様々な問題を解決できる重要なインパクトを持つ可能性がある。今後は、実験と理論との双方で、マルチバンド超伝導性と超伝導トルクとの関係性をさらに議論して、磁束相の解明やボルテックス状態の観測などへ展開していく予定である。

### 参考文献

- [1] Y. Kamihara *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **130** (2008) 3296.
- [2] V. G. Kogan, Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 237005.
- [3] A. Yaouanc *et al.*, Phys. Rev. B **55** (1997) 11107.
- [4] L. Boeri *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 026403.

# Bi系高温超伝導体固有ジョセフソン接合の 微小メサ構造における巨視的量子トンネル現象

<sup>a</sup>立木 孝典, <sup>a</sup>濱田 憲治, <sup>b</sup>渡辺 孝夫, <sup>a</sup>掛谷 一弘, <sup>a</sup>鈴木 実  
<sup>a</sup>京都大学大学院 工学研究科, <sup>b</sup>弘前大学 理工学部

E-mail: tachiki @ sk.kuee.kyoto-u.ac.jp

はじめに

現在、世に広く普及しているノイマン型コンピュータが素子の微細化による性能の限界を見せ始める中で、それに代わる新たなコンピュータの開発が急がれている。候補の1つとして量子コンピュータが挙げられる。その量子コンピュータの基本素子となる量子ビットを実現するための可能性の1つに超伝導体のジョセフソン接合 (Josephson Junction: JJ) における巨視的量子トンネル効果 (Macroscopic Quantum Tunneling: MQT) を用いることが考えられている。

JJにおけるMQTの観測は様々な超伝導体で行われているが、その中でも実際に使用する上でMQTによるポテンシャルのトンネル確率と熱励起による脱出確率が等しくなるクロスオーバー温度  $T^*$  は出来る限り高いことが望ましいと考えられる。従来の金属系JJにおける  $T^*$  は 100 mK 程度であるのに対し [1]、Bi系高温超伝導体の固有ジョセフソン接合 (Intrinsic Josephson Junction: IJJ) における  $T^*$  が約 1 K であることが最近になって確認された [2]。現在もその優位性から Bi系高温超伝導体のMQT観測に関する研究は数多く行われている [3][4]。

IJJのMQTを観測するには、ゼロ電圧状態から有限電圧状態へのスイッチング電流を測定し、そのヒストグラムの温度依存性を見る必要がある。そのため素子構造として主にクランク構造とメサ構造が挙げられる。後者は前者に対して物理的強度、層数制御性、放熱性の観点から有利であると考えられる。

これまで本研究室では高い転移温度と結晶性などの観点から  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi2212) を採用し、そのメサ構造のスイッチング確率分布を測定してきた。メサ構造では最表面接合直上に常伝導金属が存在するため、超伝導近接効果によって最表面接合の臨界電流密度  $J_{c1}$  が大きく抑制された結果、クランク構造素子より低い温度の 0.4 K でMQTが観測された [5]。しかし、Bi2212におけるBiサイトをPbで部分的に

置換することにより、臨界電流密度が改善されるという報告をもとに [6]、 $\text{Bi}_{2-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Pb-Bi2212) のメサ構造を作製したところ、昨年度の本講演会でも報告したとおり、 $J_{c1}$  を含めた  $J_c$  の改善に成功した (図1)。この試料の 5 K までのスイッチング確率分布を測定したところ、約 1.4 K という高温におけるMQT観測の可能性が予測された。一方で接合幅がジョセフソン侵入長  $\lambda_J$  よりも大きい場合は、 $\lambda_J$  の影響を受けることが示唆される結果となった。

以上の背景より、我々はPb-Bi2212を用いて  $\lambda_J$  の影響をより小さくするために面積の微小化を図ったメサ構造を作製した。それを用いて ~0.4 K までのスイッチング確率分布を測定したところ、MQT観測と解釈される結果が得られたため報告する。また高温におけるMQT観測のためにBi2212と比較して、 $J_c$  が高くなる可能性がある  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  (Bi2223) を用いて同様にメサ構造を作製し、5 K までのスイッチング確率分布を測定したのでその結果もあわせて報告する。

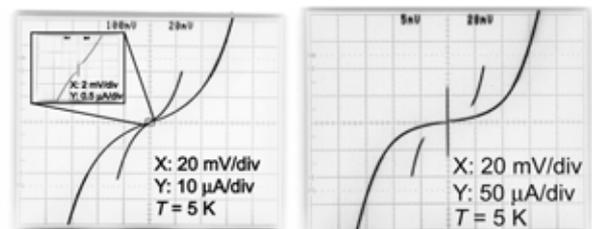


図1: IJJの  $I$ - $V$  特性 (左: Bi2212, 右: Pb-Bi2212)  
※接合面積、層数は共に  $4 \mu\text{m}^2$ 、2層であり、 $J_c$  はそれぞれ Bi2212:  $0.02 \text{ kA/cm}^2$ 、Pb-Bi2212:  $2 \text{ kA/cm}^2$

## Pb-Bi2212 および Bi2223 のメサ構造作製

flux法で育成したPb-Bi2212(仕込み組成  $x=0.2$ ) とTSFZ法で育成したBi2223の単結晶を用いてメサ構造を作製した。ただしプロセス中の過剰酸素放出による  $J_c$  の低下を防ぐため、Bi2223に関しては結晶から劈開した結晶の酸素雰囲気中での高温・長時間ア

ニールによる過剰酸素の補償を行った。アニール条件は 800 °C 100 時間、酸素 1 L/min である。

それぞれ単結晶をインジウムにて sapphire 基板に固定し、接触抵抗低減を目的として真空中で結晶劈開を行っただちに保護電極として Ag を蒸着した。続いて電子ビーム露光により接合サイズを 1  $\mu\text{m}^2$  まで微小化し、Ar イオンミリングを用いて ~5 層の IJJ を抽出した。さらにセルフアライン法で SiO<sub>2</sub> 絶縁膜を形成し、最後にリフトオフ法により上部電極を形成した。

## 結果および考察

### (1) $I$ - $V$ 特性の評価

Pb-Bi2212 および Bi2223 のメサ試料の 5 K における  $I$ - $V$  特性を図 2 に示す。どちらの試料も従来の試料のような  $J_{c1}$  の極端な減少が抑えられていることがわかる。また Bi2223 のメサ構造に関しては Bi2212 を含まない Bi2223 のみを抽出することに成功した。Bi2223 では Bi2212 の層間析出が高い割合でおきるので、これまでに Bi2223 のみの  $c$  軸  $I$ - $V$  特性は報告されていなかった [7]。

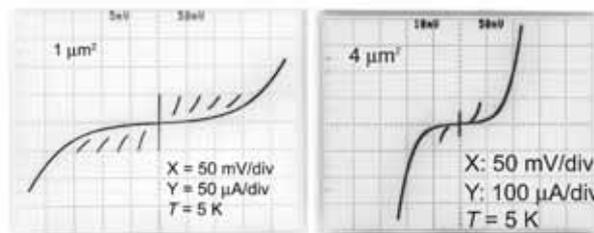


図 2: IJJ の  $I$ - $V$  特性 (左:Pb-Bi2212、右:Bi2223)

※接合面積は Pb-Bi2212 は 1  $\mu\text{m}^2$ 、Bi2223 は 4  $\mu\text{m}^2$  であり、 $J_c$  はそれぞれ Pb-Bi2212: 5 kA/cm<sup>2</sup>、Bi2223: 1.5 kA/cm<sup>2</sup> である。

### (2) スイッチング確率分布特性

上記の 2 つの試料に対してスイッチング確率分布測定を行った。また測定結果から Kramers の熱励起モデル [8][9] を用いたフィッティングにより得られた実効温度  $T_{\text{esc}}$  の温度依存性を求めた。Pb-Bi2212 と Bi2223 の結果をそれぞれ図 3、4 に示す。どちらの試料も 5 K - 30 K においては熱励起モデルに従い、30 K 以上では分布幅の減少が確認できた。また 0.4 K まで測定した Pb-Bi2212 に関しては 4.5 K 以下で分布幅の飽和が確認できた。これはこの温度領域において MQT によるトンネル確率が支配的になったためと解釈できる。5 K まで測定した Bi2223 についても低温において熱励起モデルからの乖離が見られ、1 K 以上で MQT 観測が期待される。極低温における Bi2223 のスイッチング確率分布の測定や、Pb-Bi2212 にお

る分布幅の飽和が MQT であるかを確認するためのマイクロ波照射による量子化単位の確認が今後の課題である。

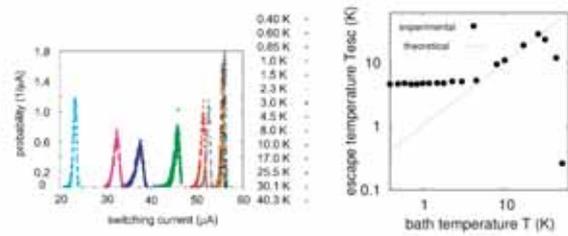


図 3: スイッチング確率分布測定結果と  $T_{\text{esc}}$  の温度依存性 (Pb-Bi2212)

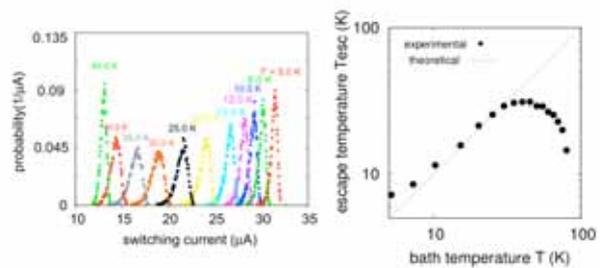


図 4: スイッチング確率分布測定結果と  $T_{\text{esc}}$  の温度依存性 (Bi2223)

## まとめ

Pb-Bi2212 および Bi2223 の単結晶を用いてメサ構造を作製した。Pb-Bi2212 は 0.4 K までの極低温で測定したところ 4.5 K にて分布幅の飽和が確認できた。これはこの温度領域において MQT によるトンネル確率が支配的になったことが示唆される。また Bi2223 に関しては Bi2223 のみの IJJ を抽出することに成功し、そのスイッチング確率分布は極低温にて MQT 観測の可能性を強く示唆するものである。

## 参考文献

- [1] A. O. Caldeira *et al.*, Phys. Rev. Lett. **46** (1981) 221.
- [2] K. Inomata *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 107005.
- [3] H. Kashiwaya *et al.*, Physica C **469**(2009) 1593.
- [4] S. Li *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 037002.
- [5] K. Ota *et al.*, Phys. Rev. B **79** (2009) 134505.
- [6] 下山淳一, 応用物理 **67** (1998) 1171.
- [7] Y. Yamada *et al.*, Phys. Rev. B **68** (2003) 054533.
- [8] H. Kramers, Physica **7** (1940) 284.
- [9] T. A. Fluton *et al.*, Phys. Rev. B **9** (1974) 4760.

# YBCO バイクリスタル結晶粒界接合の欠陥と電気特性評価

牧 哲朗<sup>1</sup>, 中谷 悦啓<sup>1</sup>, 関 天放<sup>1</sup>, 孔 祥燕<sup>1</sup>, 久保 等<sup>2</sup>, 阿部 真之<sup>2</sup>, 糸崎 秀夫<sup>1</sup>

<sup>1</sup>大阪大学 大学院基礎工学研究科 〒560-8531 豊中市待兼山町 1-3

<sup>2</sup>大阪大学 大学院工学研究科 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

E-mail: [maki@ee.es.osaka-u.ac.jp](mailto:maki@ee.es.osaka-u.ac.jp)

**Abstract** YBCO 薄膜接合アレイを(100) STO バイクリスタル基板上に作製し、電気特性を評価した。同時に対応する YBCO 薄膜接合部、ならびに STO 基板表面を FE-SEM により観察した。YBCO 薄膜接合の R-T 特性は、接合により異なる特性を示し、FE-SEM 観察から、結晶粒界上に異なる欠陥形状が観察された。STO 基板結晶粒界上に観察された欠陥は、YBCO 薄膜結晶粒界に欠陥を引き起こし、接合特性のばらつきに影響を与えている可能性がある。

## はじめに

バイクリスタル結晶粒界を用いた高温超伝導薄膜によるジョセフソン接合の作製は、有用な作製方法のひとつである。本方法は、作製プロセス工程を軽減し、良好な接合特性が得られることが特徴であるが、一方、同一基板上における接合特性にばらつきがみられ、この原因の究明ならびに特性の改善が求められている。

本報告では、YBCO 薄膜結晶粒界で観察された欠陥が、電気特性にどのような影響を与えるかを評価するために、STO バイクリスタル基板結晶上に YBCO 薄膜接合アレイを形成し、接合部に存在する欠陥と電気特性との関連について検討を行ったので報告する。

## 1. 実験

10×10 mm<sup>2</sup> (100) STO バイクリスタル基板（接合角 30°）上に、PLD 法により、YBCO 薄膜を約 100-200 nm 堆積した。その後、図 1 に示す接合アレイをフォトリソグラフィによりパターンニングし、Ar<sup>+</sup> イオンミリングにより、YBCO 薄膜をエッチングし、YBCO 薄膜接合アレイを作製した。

2 種の STO 基板上に作製した YBCO 薄膜接合アレイ（サンプル#01, #02）の R-T 特性を計測し、対応する接合部のモフォロジーを FE-SEM により観察した。

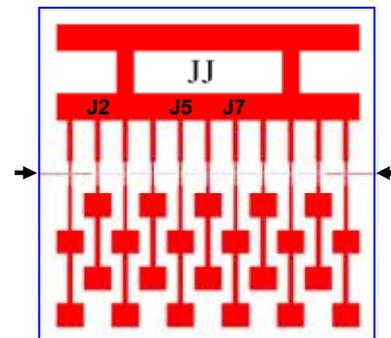


図 1: YBCO 薄膜接合アレイパターン

## 2. 結果と考察

作製した YBCO 薄膜接合アレイ（サンプル#01）の R-T 特性結果を図 3 に示す。J2, J5, J7 のアレイ上の接合は、図 1 に示す通りである。R-T 計測を行った接合部の結晶粒界近傍の FE-SEM 像を図 4 に示す。接合幅は、5 μm（マスクのサイズ）である。

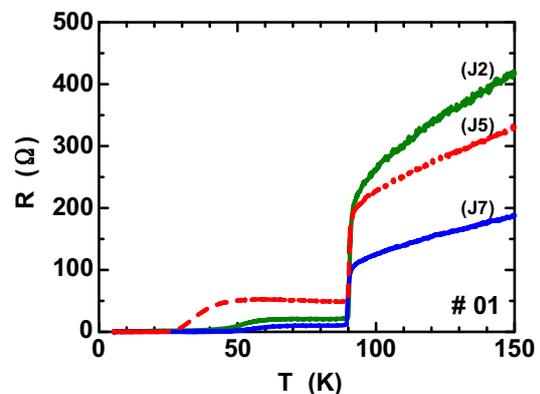


図 3: YBCO 薄膜接合アレイ(サンプル#01)の R-T 特性.

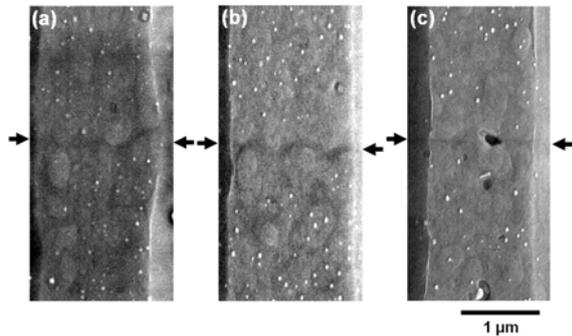


図 4: YBCO 薄膜接合部 (サンプル#01) 結晶粒界近傍の FE-SEM 像. (a): J2, (b): J5, (c): J7 (矢印はバイクリスタル結晶粒界を示す.)

FE-SEM 像から、図 4 (b)に観察されるように、接合部(J5)は結晶粒界に沿って、欠陥の深さは浅いが、明瞭に蛇行している接合境界が観察された。一方、図 4 (c)に観察される接合部(J7)は、接合境界は直線状に観察され、境界上には、接合角を反映した数 100nm 程度の小さな欠陥が観察された。図 4 (a)に観察される接合部(J2)は、直線状の境界は観察されず、多少蛇行しかかった境界が観察された。R-T 特性結果からは、接合(J5)は、薄膜が超伝導状態に転移した後も大きく抵抗値を残しており、この三種の中では、特性が最も劣化した結果を示した。

一方、サンプル#02 の YBCO 薄膜接合アレイの R-T 特性結果を図 5 に、該当する接合部の結晶粒界接合部の FE-SEM 像を図 6 に示す。

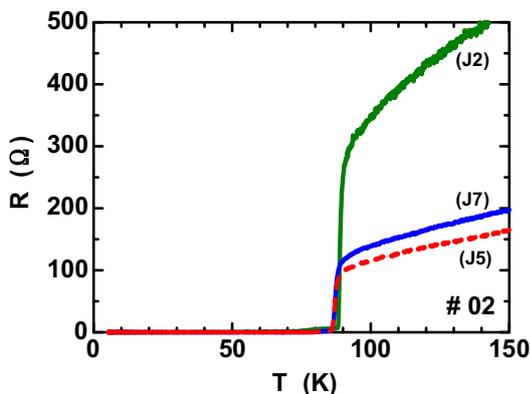


図 5: YBCO 薄膜接合アレイ(サンプル#02)の R-T 特性.

図 6 に示す FE-SEM 像からは、結晶粒界近傍には、欠陥が観察されず、また、対応する R-T 特性も、超伝導転移後の抵抗値も低く抑えられており、J2 を除き、

常伝導状態での抵抗値のばらつきも低く抑えられていた。

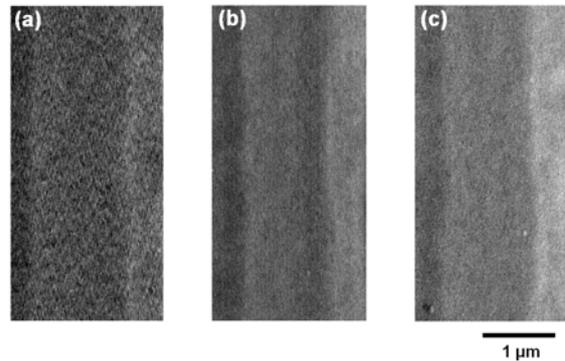


図 6: YBCO 薄膜接合部 (サンプル#02) 結晶粒界近傍の FE-SEM 像. (a): J2, (b): J5, (c): J7

また、YBCO 薄膜エッチング後の STO 基板表面を FE-SEM により観察したところ、サンプル#01 において、STO バイクリスタル結晶粒界上に、100 nm~400 nm 程度の欠陥が、数 100nm 程度の間隔で密集して観察されたのに対し、サンプル#02 においては、ほとんど欠陥が観察されなかった。以上のことから、STO 基板結晶粒界上に存在する欠陥が、その上に堆積する YBCO 薄膜に欠陥を引き起こし、接合特性に影響を与えると推測できる。なお、サンプル#01, #02 ともに、接合 J2 の常伝導抵抗が高く出ているが、これは、接合箇所がエッジ部近傍に存在することによるプロセス上の影響が支配的に影響していると考えられる。

### 3. まとめ

YBCO 薄膜接合アレイ (サンプル#01, #02) の R-T 特性、接合部の FE-SEM 観察から、STO 基板結晶粒界に存在する欠陥が YBCO 薄膜に欠陥を引き起こしていると推測でき、これらの欠陥が、接合特性のばらつきに影響を与えている可能性がある。

### 謝 辞

本研究の一部は大阪大学グローバル COE プログラム「次世代電子デバイス教育研究開発拠点」の補助を受けて行った。

# バイクリスタル基板を用いた RF-SQUID の製作及び評価

関 天放, 孔 祥燕, 糸崎 秀夫

大阪大学大学院 基礎工学研究科

豊中市待兼山町 1-3

E-mail: [guan@sup.ee.es.osaka-u.ac.jp](mailto:guan@sup.ee.es.osaka-u.ac.jp)

**Abstract** RF-SQUID は高い感度と広い帯域幅を持つ。これまではステップエッジ接合を用いて RF-SQUID の作製が一般的に行われている。本研究ではバイクリスタルを用いた RF-SQUID を作製し評価した。結晶方位差が  $30^\circ$  の SrTiO<sub>3</sub> バイクリスタル基板に YBCO をレーザー蒸着して RF-SQUID を作製し、YBCO 膜で形成した resonator と組合せて動作させた。本発表では、RF-SQUID の作製から特性評価までを総括して報告する。

## 1. はじめに

高温超伝導素子 SQUID は動作原理と構造によって、DC-SQUID と RF-SQUID に分けられる。両方ともバイクリスタル接合、ステップエッジ接合を用いて製作することができる。現在 RF-SQUID を研究しているグループの中でステップエッジ接合を用いて、RF-SQUID が多く製作されている。我々はこれまでバイクリスタル接合を用いて、良好な DC-SQUID の製作を行ってきた。今回バイクリスタル接合を用いて RF-SQUID の製作を行ったので報告する。

## 2. RF-SQUID と Resonator の製作プロセス

10×10×0.5 mm<sup>3</sup> STO [001]バイクリスタル基板の上に、PLD法により、YBCO薄膜を堆積した。成膜条件は、酸素分圧15 Pa、レーザー周波数10 Hz、レーザーパワー152 mJ、基板温度推定値は768 °Cであった。

今回製作したRF-SQUIDのマスクパターン形状を図1に示す。まずPLD法により2分間約120 nmのYBCO薄膜を堆積した。フォトリソグラフィによりレジストをパターニング後、ArイオンビームエッチングによりYBCO薄膜に微細加工を施した。微細加工したRF-SQUIDを図2に示す。接合の部分拡大した光学顕微鏡像を図3に示す。SQUIDループは100×100 μm<sup>2</sup>、接合のサイズは4×10 μm<sup>2</sup>、インダクタンスは150 pHであった。左右に横切る線（矢印に示す）が、バイクリスタル基板の結晶粒界である。

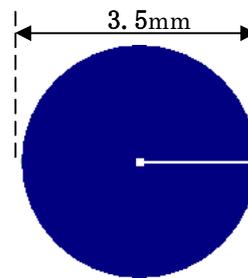


図 1 : RF-SQUID  
マスクパターン

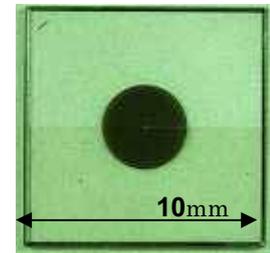


図 2 : RF-SQUID

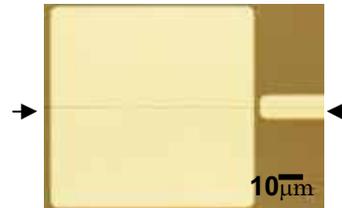


図 3 : SQUID ループ、接合部分の拡大像  
(矢印は結晶粒界を示す)

Resonator は PLD 法により 25 分間で約 1 μm の YBCO 薄膜を堆積した。フォトリソグラフィによりレジストをパターニング後、wet etching を行った。完成した Resonator を図 4 に示す。中心のホールは直径 3.5 mm の円形である。

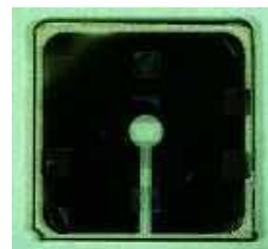


図 4 : Resonator

### 3. RF-SQUIDの評価

JSQ Automatic SQUID Electronics V4.0回路を用いてRF-SQUIDの評価を行った。図5に測定システムを示す。RF-SQUIDとResonatorをflip-chip状態にし、カップリングを行った。Read out loopで信号を取得したところ、RF-SQUIDとresonatorは安定に動作することが確認できた。図6にRF-SQUIDとResonatorホルダの外観を示す。

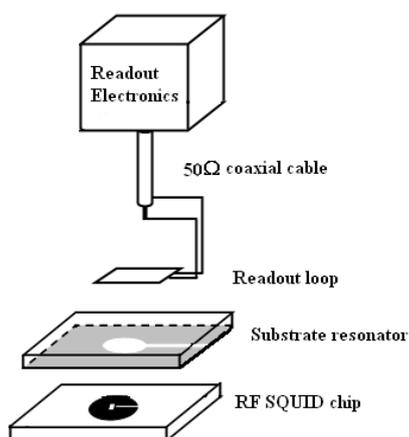


図5：測定システム



図6：RF-SQUIDとResonatorホルダ

Resonatorの評価としてQ値を測定した。その結果、高いQ値（～3000）が得られた。Resonatorの基板の厚さは0.5mmであり、その厚さの影響を調べるため、別途、0.5mmのSTO単結晶基板をresonatorとread out loopの間に挿入したものも評価した。

測定した磁場感度の分布を図7に示す。高周波数領域でレベルは約0.8 pT/rtHzであった。Resonatorの厚さの影響がほとんど観察されなかった。

図7に得られたRF-SQUIDの感度特性はまだ十分高いものではなく、改善の余地を残している。その理由は以下の2点に考えられる。

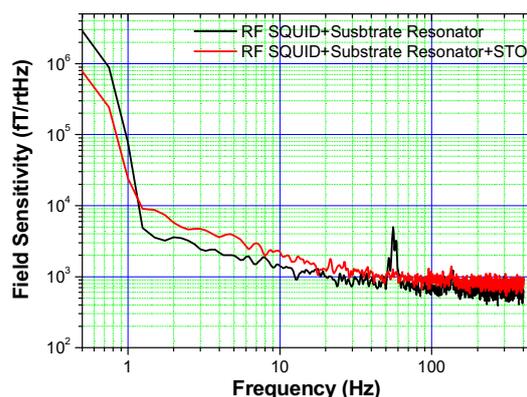


図7：RF-SQUIDの磁場感度分布

①バイクリスタル接合は結晶粒界に欠陥を含むため、ノイズの発生の原因となりうる。

②RF-SQUIDは $\beta_{rf}$ パラメータが、 $\beta_{rf} = \frac{2\pi LI_c}{\phi_0} < 1$ の

条件を満たすのが最適値であるが[1]、今回デザインしたRF-SQUIDのパラメータはこの条件に対して、 $I_c$ が高い可能性がある。

### 4. まとめ

本研究では、バイクリスタル基板を用いて、RF-SQUIDを製作し、高いQ値を持つresonatorを製作した。RF-SQUIDとresonatorは安定に動作することが確認できた。今後の課題としては、RF-SQUIDのパラメータを最適化し、感度を改善することである。

### 謝辞

本研究の一部は大阪大学グローバルCOEプログラム「次世代電子デバイス教育研究開発拠点」の補助を受けて行った。

### 参考文献

- [1] Y. Zhang, J. Schubert, N. Wolters, M. Banzet, W. Zander, H.-J. Krause, Physica C 372-376 (2002) 282-286

# レーザー走査型磁気光学顕微鏡による超伝導体中の磁場観察

高橋圭司、村上博成、斗内政吉

大阪大学レーザーエネルギー学研究中心

〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-6

takahashi-k@ile.osaka-u.ac.jp

**Abstract** 超伝導の磁束量子を利用したデバイス応用や、超伝導ケーブルなどのパワー応用の開発において、磁束量子の状態や分布を直接観察することは非常に有益である。我々はこれまで高速・高分解能で磁束量子状態を評価することが可能であるレーザー走査型磁気光学顕微鏡の開発を行ってきた。今回、これまでに開発したレーザーMO顕微鏡の有用性を調べるために、超伝導体薄膜上にアンチドット構造を有するストリップラインを作製し、磁場分布観察を行った。

## 1. はじめに

液体窒素温度以上の臨界温度  $T_c$  を持つ高温超伝導体は、従来よりも高出力が可能な超伝導線材や超伝導マグネットなど、その電気・磁気的特性を活かしたパワー応用が期待されている。これらのパワー応用においては超伝導線材が不可欠であるが、この線材開発において最も問題となるのは、超伝導体中に侵入した磁束が動くことで超伝導状態から常伝導状態に転移させてしまうことである。よって、磁束のピンニングに有効な人工欠陥の導入など、超伝導線材の臨界電流向上に向けた数多くの研究が行われている。

優れた臨界電流特性を有する超伝導線材を開発する上で、磁束量子の状態や分布を直接観察することが出来れば、有効な評価手段となり得る。超伝導体中の磁場分布観察を行う方法はいくつか存在するが[1][2]、我々は光源にレーザーを用いることで高速・高分解能な磁束量子状態の評価が可能なレーザー磁気光学(MO)顕微鏡の開発を行ってきた。今回、超伝導体のパワー応用に不可欠な高温超伝導体のテープ線材などの評価方法を念頭に置いて、電流印加及び磁場印加の下でアンチドット構造を有する高温超伝導体薄膜ストリップライン中の磁束分布の観察を行い、構造の違いによる磁束の侵入の違いを考察した。

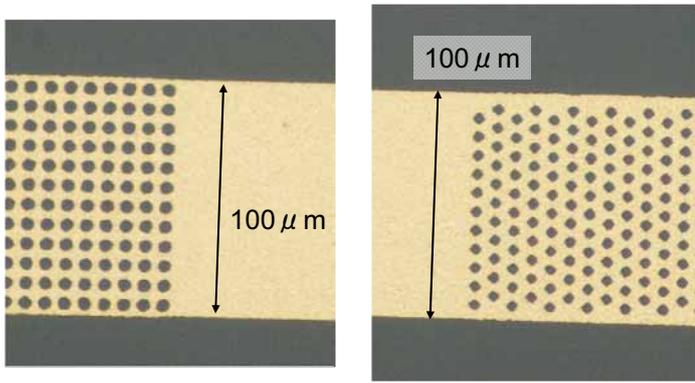
## 2. 実験方法

測定用試料として、MgO(100)基板上に 3000 Å 堆積させた c 軸配向 YBCO 薄膜を用いて図 1(a)(b)のようにアンチドットを欠陥部分に見立てた構造の異なる 2 種類のストリップライン(以下アンチドットライン a, b とする)を作製した。アンチドットライン a では幅 100 $\mu\text{m}$  のストリップラインに直径 4  $\mu\text{m}$  のアンチドットを正方格子状に 4 $\mu\text{m}$  の間隔で一様に配置した構造になっており、ラインの縁から最近接アンチドット中心間の距離は

4 $\mu\text{m}$  である。アンチドットライン b では幅 100 $\mu\text{m}$  のストリップラインに 3 $\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$  の正方形のアンチドットを 5 $\mu\text{m}$  の間隔で三角格子状に配置した構造になっており、ラインの縁から最近接アンチドット中心間の距離は 7 $\mu\text{m}$  と 11 $\mu\text{m}$  になっている。このような大きさ、配置が異なるアンチドットラインを用いて、以下のような 2 通りの条件下での磁場侵入をレーザーMO 顕微鏡で観察した。1 つは、外部磁場として永久磁石を用いて最大 41.5mT をアンチドットラインに印加した場合の磁場侵入の観察である。もう 1 つは、電流源を用いてアンチドットラインに電流を印加したときの磁場侵入を観察した。このとき電流は 0A から 3.7A まで段階的に増加させ、3.7 A 到達後、段階的に 0A まで減少させた。

## 3. 結果

まず、観察結果として 41.5mT の外部磁場を印加したときのアンチドットライン a の MO 像を図 2 に示す。また、線上のアンチドット領域の磁場分布とアンチドットのない超伝導体領域のみの線上の磁場分布を図 3 に示す。図 2 の MO 像からわかるように、アンチドットを有する領域では、磁束がラインの縁から中心付近まで侵入していることがわかる。図 3 からアンチドットによって磁場が超伝導体内部にまで侵入していることがわかる。一方、アンチドットのない線上ではラインエッジから 20 $\mu\text{m}$  ほどしか磁場は侵入しておらず、アンチドット構造が超伝導体内への磁場侵入を容易にしていることが確認できる。次に、3.7A の電流を印加したときのアンチドットライン b の MO 像を図 4 に示す。図 5 の隣接する 2 つのアンチドットラインに沿った磁場侵入からアンチドットに侵入している磁束の方向が交互に反対方向に列をなしている様子がわかる。すなわち、赤線上のアンチドットでは負の方向(下向き)の磁束が優先的に侵入し、青線上のアンチドットでは正の方向



(a)アンチドットライン a (b)アンチドットライン b

図 1 測定試料の光学像

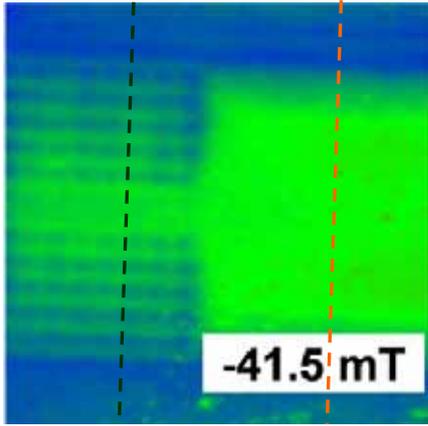


図 2 外部磁場印加時のアンチドットライン a の MO 像

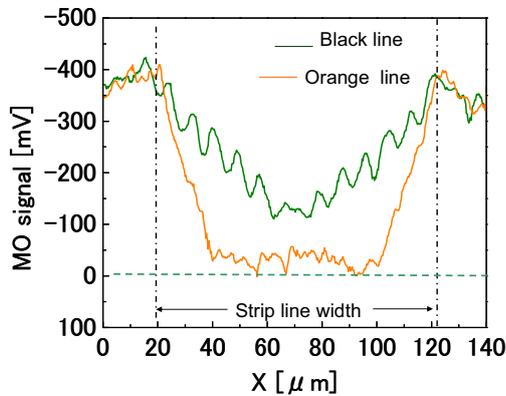


図 3 黒線・橙線上の磁場分布図

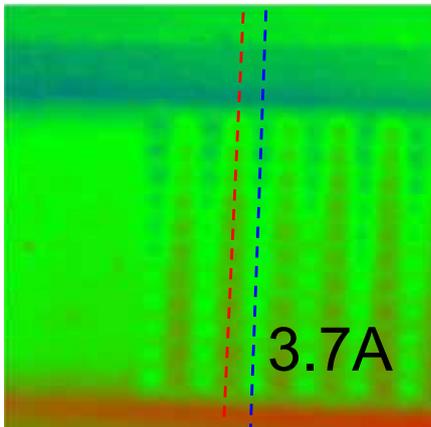


図 4 電流印加時のアンチドットライン a の MO 像

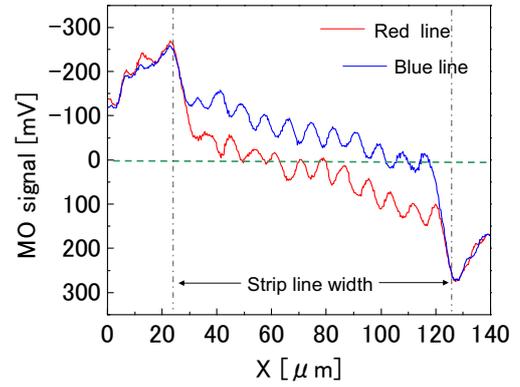


図 5 赤線・青線上の磁場分布図

(上向き)の磁束が優先的に侵入しており、いずれも反対側に近づくにつれ磁束密度が弱まっていることがわかる。この結果から、超伝導体へ磁束が侵入際には、この侵入を防ぐ抗力のより小さな、すなわちラインエッジからの距離がより短いアンチドットへ優先的に磁束が侵入し、一旦エッジ付近のアンチドットに入った磁束は電流との相互作用であるローレンツ力によって、このような規則的に配列したアンチドットラインでは中心方向さらには反対側までも押し流されていくことがわかる。

#### 4. まとめ

YBCO 薄膜に作製したアンチドット構造を有する形状の異なる 2 種類のストリップラインに、外部磁場を印加した場合と電流を印加したことによるストリップラインに侵入する磁束分布をレーザーMO顕微鏡で観察した。観察結果から、2 種類のアンチドットの形状の違い及び、アンチドットの有無により磁束分布の侵入が異なることを確認することができた。またこれらの結果からレーザーMO顕微鏡が超伝導テープ線材の評価装置として期待できることがわかった。

#### 謝辞

本研究は科学研究費補助金「基盤研究 B」No. 20360159 の支援を受けて行われた

#### 文献

- [1] A. Moser, H. J. Hug, I. Parashikov, B. Stiefel, O. Fritz, H. Thomas, A. Bratoff and H-J. Guntherodt, Phys. Lett. **74** (1995) 1847.
- [2] K. Harada, T. Matsuda, J. Bonerich, M. Igarashi, S. Kondo, G. Pozzi, U. Kawabe and A. Tonomura, Nature **360** (1992) 51.

# 薄膜高温超電導線材の開発

山口 高史、新海 優樹、太田 肇、大松 一也

住友電気工業株式会社 電力・エネルギー研究所 大阪市此花区島屋 1-1-3

## 1. はじめに

我々は、薄膜高温超電導線材の開発を行っている。近年、薄膜高温超電導線材は実用化に近付いており、製造コスト低減のための高スループット化が求められている。我々は、超電導ケーブル用に製造している線材幅を 10 mm 幅から 30 mm 幅へと幅広化することによる高スループット化に成功した。本研究では、30 mm 幅線材における中間層及び超電導層の特性について報告する。

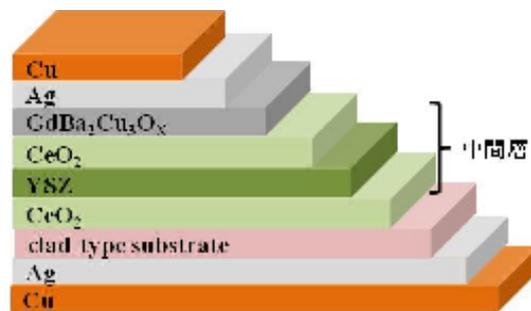


図1 超電導線材の構造

## 2. 製造条件

我々が作製している線材の構造を図1に示す。二軸配向した配向金属と強度の強い材料とを張り合わせたクラッドタイプ基板の上に、中間層、超電導層を積層させた構造をしている。

中間層は、CeO<sub>2</sub>種膜、YSZ層、CeO<sub>2</sub>キャップ層の3層で構成されており、スパッタ法を用いて作製した。各層の厚みは、それぞれ 140 nm、250 nm、50 nm である。

超電導層は、GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub>(Gd-123)を用いており、PLD法により作製される。レーザー出力は 1000 mJ/pulse、周波数は 180 Hz、圧力を 10 Pa の酸素雰囲気中に制御し作製した[1]。

作製した膜は、配向性を XRD、表面状態を SEM、I<sub>c</sub> を 4 端子法により評価した。

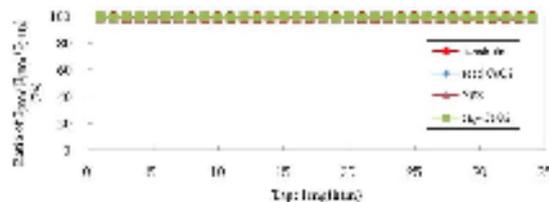
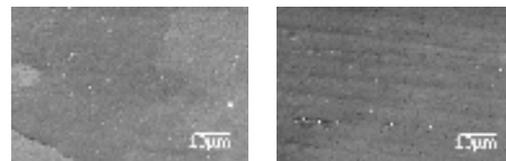


図2 中間層(100)配向率の長手方向分布



(a) (b)

図3 SEM像(a)成膜開始端 (b)成膜終了端

### 3. 中間層特性

図2に、中間層の(100)配向率の長手方向分布を示す。全長にわたり、98%以上の配向率を示した。図3(a)に成膜開始端、図3(b)に終了端におけるSEM像を示す。両端において、平滑な面が観察される。図4に、キャップ層の(100)配向率幅方向分布を示す。幅方向の分布もなく、全長にわたり良好で均一な特性を持つ中間層の製造に成功していることが分かる。

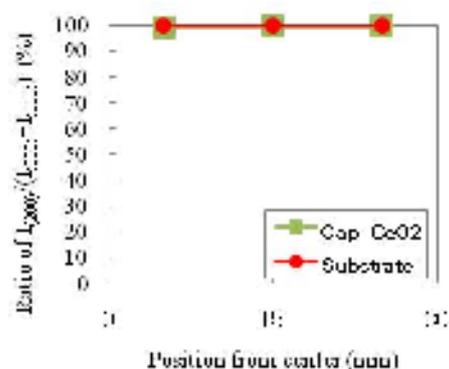


図4 中間層(100)配向率の幅方向分布

### 4. 超電導特性

図4に、30 mm幅線材上に作製したGd-123における $I_c$ 及び膜厚の幅方向分布を示す。両端より5 mm部分では $I_c = 150$  A/cm程度であるが、中心から20 mm幅までは $I_c = 200$  A/cm程度と、ケーブルに利用できる特性を有していることが示された[2]。

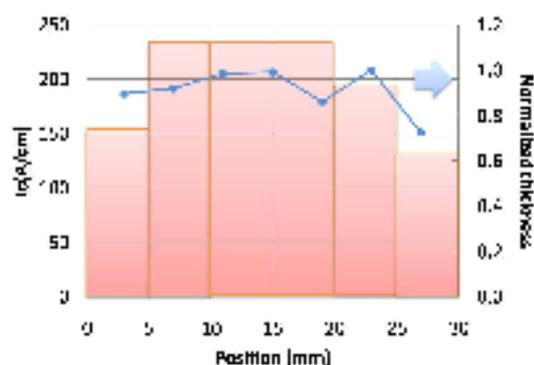


図5 Gd-123の $I_c$ 及び膜厚の幅方向分布

### 5. まとめ

我々は、低コスト化のために、線材の幅広化を行った。中間層においては、全長にわたり均一で良好な特性を得ることができた。超電導層では、中心部20 mm幅において良好な $I_c$ 特性が得られた。今後、更なる高スループット化、及び30 mm幅において良好な特性が得られる条件の探索を行う予定である。

### 謝辞

本研究は、イットリウム系超電導電力機器技術開発業務の一環として、新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託により実施したものである。

### 参考文献

- [1] T. Nagaishi et al., Physica C 469 (2009) 1311
- [2] N. Amemiya, et al., Physica C 468 (2008) 1718

## ナノ超伝導板の数値シミュレーションと実験への展望

末松久孝<sup>A,B</sup> (*mail:suematsu@pe.osakafu-u.ac.jp*),

加藤勝<sup>A,C,D</sup>, 宮成光則<sup>A</sup>, 南裕亮<sup>A</sup>, 石田武和<sup>A,B,C,D</sup>

<sup>A</sup> 大阪府立大学大学院工学研究科 大阪府堺市中区学園町 1-1

<sup>B</sup> 大阪府立大学ナノ科学・材料研究センター 大阪府堺市中区学園町 1-1

<sup>C</sup> 大阪府立大学ナノファブリケーション研究所 大阪府堺市中区学園町 1-1

<sup>D</sup> JST-CREST 東京都千代田区三番町 5

一般に、メソスコピックやナノスコピックと呼ばれる非常に小さい系では、電子の波動関数は系の対称性の影響を強く受ける。超伝導状態では、その効果は特に渦糸状態として反映される。この講演では、渦糸状態のミクロスコピックな面からの研究結果を紹介する。

渦糸状態を扱う一般的な理論手法は、Ginzburg-Landau 理論に従う方法である。超伝導状態におけるメソスコピックな系についての研究も、当初より、この理論により行われている [1]。この理論の欠点として、超伝導転移温度近傍より離れると成立しない、電子状態の寄与が考慮されていないことが挙げられる。また、この温度領域は系の対称性の影響が非常に強く、それ以外の微小サイズの効果が発見されづらいことがある。それに対し、我々は超伝導状態において、電子状態を考慮し、温度領域に制限のないミクロスコピックな Bogoliubov-de Gennes (BdG) 方程式を数値的に解き、新奇な渦糸状態について研究を行ってきた。

考える系は、一辺  $L = 5\xi_0$  の正方形の  $s$ -超伝導対称性ともつ超伝導板で、 $k_F\xi_0 = 3.0$ ,  $\kappa = 3.0$  のパラメータの系と、このとき、BdG 方程式は、

$$\begin{aligned} & \left[ \frac{1}{2m} \left( \frac{\hbar}{i} \nabla + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 - \mu \right] u_n(\mathbf{r}) + \Delta(\mathbf{r})v_n(\mathbf{r}) = E_n u_n(\mathbf{r}), \\ & - \left[ \frac{1}{2m} \left( \frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 - \mu \right] v_n(\mathbf{r}) + \Delta^*(\mathbf{r})u_n(\mathbf{r}) = E_n v_n(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (1)$$

となる。これを有限要素法を用い、離散化することで、数値計算を行った。渦糸を形成する準粒子電流は一般的には、それぞれの渦糸まわりを流れながら距離が近くなると反発しながら、どんどん重なりあっていくと考える。しかし、この数値計算結果から、原子が分子を形成するときのように、渦糸の周囲の準粒子電流は複数の渦糸間で共有するように流れる。これを我々は渦糸分子と呼んでいる。この講演では、(1). 渦糸の分布状態と (2).  $\Phi = 2\Phi_0$  の渦糸状態の変化の 2 点を中心にして発表する。

(1). 図 1 は渦糸が 7 つ、8 つの場合のオーダーパラメータ (超伝導ギャップ) の振幅の分布を示している。より外部磁場を増加させると、渦糸の本数は 9, 10, 12 と増えていく (11 本は収束せず)。このように多くの渦糸ができると、渦糸の周囲に流れる準粒子電流がより複雑になる。本講演では、この複雑になる準粒子の寄与とそれらによってつくられる特徴的な渦糸状態について発表する。

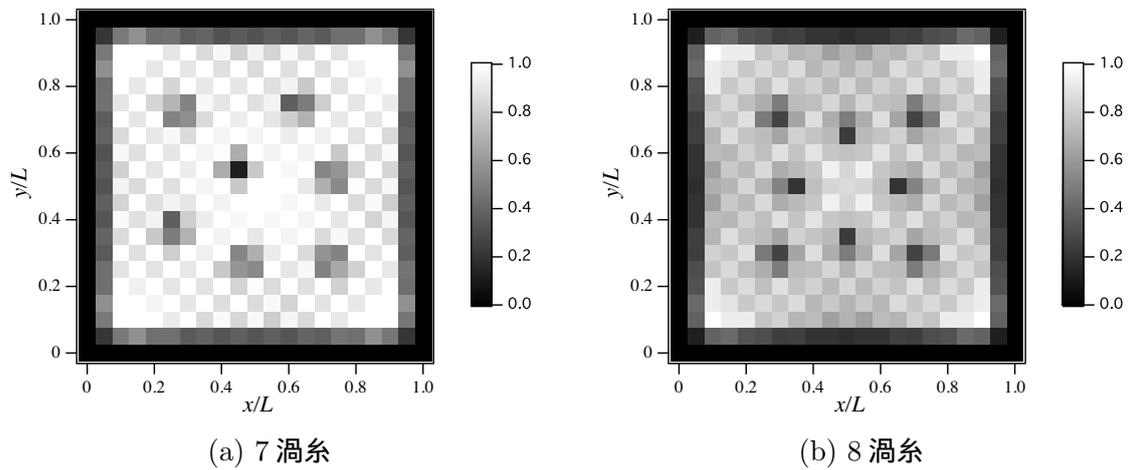


図 1: 高次の渦糸状態のオーダーパラメータ分布

(2).2つの渦糸がある場合、渦糸分子の形成は、単純な二原子分子の形成に例えることができる。磁場を遮蔽するために流れる準粒子電流は、準粒子波動関数の束縛状態から形成されるが、この束縛状態が、水素原子が水素分子をつくる時のように、結合軌道と反結合軌道をつくり、前者がより安定なことで渦糸分子が安定となる。この場合、図 2 の 2 つの候補があるが、斥力からの予想とは異なり、(a) の方が安定となる。この 2 状態について、Ginzburg-Landau 理論とは異なる安

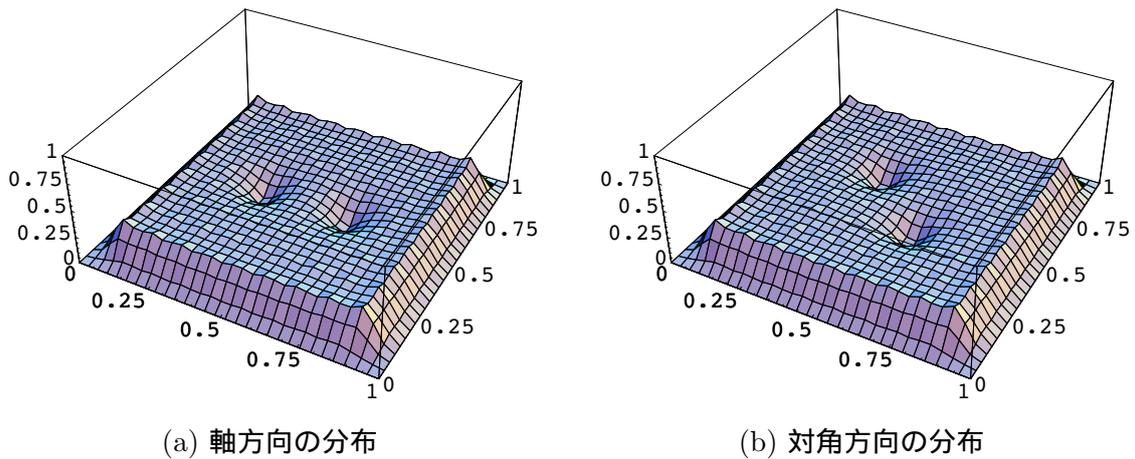


図 2: 2 渦糸状態のオーダーパラメータ分布

定性について温度変化の面から議論する。

最後に、微小系へ向けての観測手段についての展望を行う。

## Reference

- [1] L. F. Chibotaru, A. Ceulemans, V. Bruyndoncx, and V. V. Moshchalkov, Nature **408** (2000) 83; Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 1323.

# 格子歪みを持った SrTiO<sub>3</sub> 薄膜の誘電特性の温度依存性

金城 隆平<sup>a</sup>, 竹本 良章<sup>a</sup>, 川山 巖<sup>a,b</sup>, 村上 博成<sup>a</sup>, 松川 健<sup>c</sup>,  
高橋 義典<sup>c</sup>, 吉村 政志<sup>c</sup>, 北岡 康夫<sup>c</sup>, 森 勇介<sup>c</sup>, 佐々木 孝友<sup>c</sup>, 斗内 政吉<sup>a</sup>

<sup>a</sup>大阪大学レーザーエネルギー学研究中心, <sup>b</sup>PRESTO-JST,

<sup>c</sup>大阪大学大学院工学研究科

〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-6

E-mail: rkinjo@ile.osaka-u.ac.jp

**Abstract** 有機非線形光学結晶4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate(DAST)をテラヘルツ(THz)波放射源として用いた広帯域なTHz時間領域分光法(THz-TDS)により、異なる基板の上に作成したSrTiO<sub>3</sub>(STO)薄膜の歪み効果の観察を行った。特にMgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>基板上に作成されたSTO薄膜に関しては誘電特性の温度変化の観察を行い、その結果から170K付近における強誘電性の発現を確認した。

## 1. はじめに

近年になり、テラヘルツ(THz)領域で動作するようなデバイスの開発の必要性が高まってきている。強誘電体は特にTHz波の強度/位相変調デバイスの材料として期待されているが[1]、THz領域には変位型と呼ばれる強誘電体に特徴的なソフトモードと呼ばれるフォノンモードが存在し、その振る舞いを調べることでデバイス開発に際して重要となる。

SrTiO<sub>3</sub>(STO)は、低温領域で大きな誘電率を示すものの、0K付近においても強誘電性を発現しない量子常誘電体として知られている。しかし格子歪みによってその誘電特性が変化し、強誘電性を示すようになる。今回、我々は格子定数の異なる複数の基板の上にSTO薄膜を作成し、THz領域における物性計測の有力な手段として広く使われているTHz-TDSによって歪みがSTO薄膜の誘電特性に与える影響を観察した[2]。また、従来の方法では観察が難しかったSTO薄膜のソフトモードの全体像を観察するために、THz波発生源として高出力かつ広帯域なTHz波の発生が可能な有機非線形光学結晶

4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate(DAST)を用いて広帯域な測定を行った[3]。

## 2. 実験

パルスレーザー蒸着法によりMgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(MAO)(100)、MgO(100)、(La<sub>0.3</sub>Sr<sub>0.7</sub>)(Al<sub>0.65</sub>Ta<sub>0.35</sub>)O<sub>3</sub>(LSAT)(100)基板上にそれぞれ厚さ360nm前後のSTO薄膜を作成し、X線回折により良質なc軸配向膜が得られていることを確認した。また、純粋なSTOバルクの格子定数は0.3905nmであるが、MAO、MgO、LSAT上のSTO薄膜について面内の格子定数はそれぞれ0.3899nm、0.3916nm、0.3936nmであり、STOと基板の格子ミスマッチによりSTO薄膜に引張/圧縮性の歪みが存在することを確認した。

室温におけるそれぞれのSTO薄膜のTHz領域における誘電特性はDASTを用いた広帯域THz-TDSシステムによって測定された。また、MAO上のSTO薄膜については、室温から65Kまでの誘電特性の温度依存性を測定した。

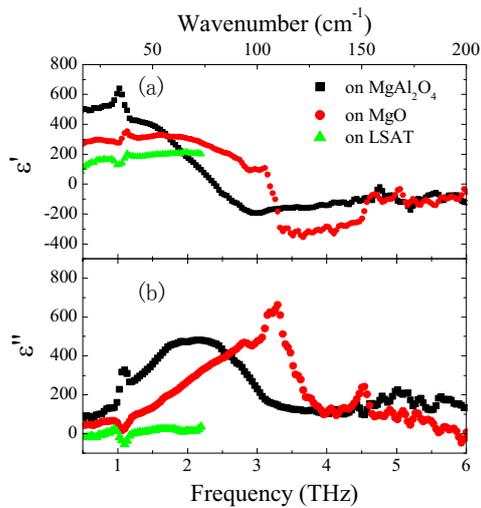


図1  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{LSAT}$  上に作成された  $\text{SrTiO}_3$  薄膜の複素誘電率の(a)実部と(b)虚部

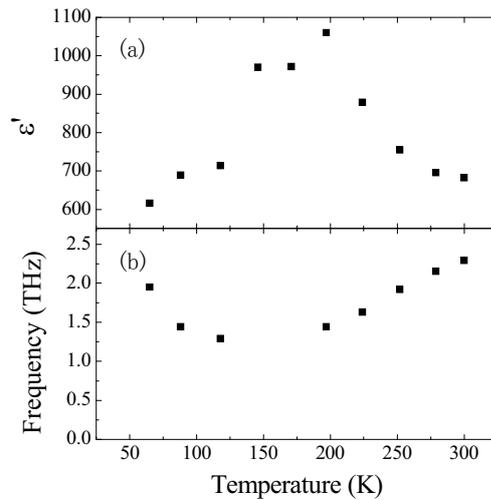


図2  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  上に作成された  $\text{SrTiO}_3$  薄膜の(a)複素誘電率の実部と(b)ソフトモード周波数の温度依存性

### 3. 結果と考察

図1に3種類の基板上に作成された $\text{STO}$ 薄膜の室温における誘電分散を示す。 $\text{MAO}$ 、 $\text{MgO}$ 上の $\text{STO}$ 薄膜の誘電率は $6.0\text{THz}$ まで測定することができ、これまで観察が難しかったソフトモードによるローレンツ型の分散の全体像を確認することができた。図1(b)から $\text{MAO}$ 上の $\text{STO}$ 薄膜のソフトモード周波数は $2.1\text{THz}$ であることが分かるが、これは純粋な $\text{STO}$ のバルクの値より明らかに低周波側にシフトしている[4]。これは面内の引張歪みによって強誘電性揺らぎが増大しているためである。

図2に $\text{MAO}$ 上の $\text{STO}$ 薄膜の複素誘電率実部とソフトモード周波数の温度依存性を示す。図2(a)、(b)より、誘電率実部とソフトモード周波数の温度依存性はそれぞれ、明らかに正/負のピークを持っていることが分かる。これは強誘電性揺らぎの変化によって説明ができ、 $\text{MAO}$ 上の $\text{STO}$ 薄膜は $170\text{K}$ 付近で強誘電相転移をしていることが確認できる。

### 4. まとめ

$\text{MAO}$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{LSAT}$ 基板上にそれぞれ歪みを

持った格子定数の異なる $\text{STO}$ 薄膜を作製し、 $\text{DAST}$ を用いた広帯域 $\text{THz-TDS}$ を用いて誘電特性を観察した。特に $\text{MAO}$ 上に作成された $\text{STO}$ 薄膜に関しては引張歪みによるソフトモードのソフトニングの様子を明瞭に観察することができ、加えて複素誘電率実部とソフトモード周波数の温度依存性の両方から、 $170\text{K}$ 付近における強誘電相転移を確認することができた。

### 謝辞

本研究の一部は文部科学省グローバル COE プログラム「次世代電子デバイス教育研究開発拠点」の補助により行われた。

### 参考文献

- [1] P. Kužel, F. Kadlec, J. Petzelt, J. Schubert, and G. Panaitov, *Appl. Phys. Lett.* 91 (2007) 232911
- [2] M. Misra, K. Kotani, I. Kawayama, H. Murakami, and M. Tonouchi, *Appl. Phys. Lett.* 87 (2005) 182909
- [3] S. R. Marder, J. W. Perry, and W. P. Schaefer, *Science* 245 (1989) 626
- [4] R. A. Cowley, *Phys. Rev. Lett.* 9 (1962) 159

低温工学協会関西支部の活動は、以下の維持会員の皆様からご支援を頂いています。

(五十音順)

アイシン精機(株)、岩谷瓦斯(株)、岩谷産業(株)、エア・ウォーター(株)、(株)エリオニクス、川崎重工業(株)、  
関西電力(株)、共栄バルブ工業(株)、(株)クライオバック、(株)神戸製鋼所、(株)鈴木商館、スマック(株)、  
住友電気工業(株)、大宝産業(株)、太陽日酸(株)、(株)東陽テクニカ、ナガセ電子機器サービス(株)、  
仁木工芸(株)、日本エア・リキード(株)、日本化学機械製造(株)、(株)パスカル、三菱電機(株)