

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：32612

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17708

研究課題名(和文) スピン3重項カイラルp波超伝導中の特異な磁束量子渦の研究

研究課題名(英文) Study of Quantum Vortex States in Spin-triplet Chiral p-wave Superconductor

研究代表者

永合 祐輔 (NAGO, YUSUKE)

慶應義塾大学・理工学部(矢上)・助教

研究者番号：50623435

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>(SRO)におけるスピン3重項カイラルp波超伝導性に起因した特異な磁束渦状態を解明するため、マイクロSQUIDとSRO微小片を用いた磁化測定デバイスを作製し、以下の実験結果を得た。

1. カイラル超伝導性の影響を示唆するような2種類の異なる磁束渦誘起信号を観測。2. 面内磁場印加下で磁化測定を行い、半整数磁束渦の可能性を示唆する信号を観測。3. SRO-Ru共晶微小片における磁化測定から、Ru超伝導転移に伴う誘起磁束分布の変化を観測した。しかし、s波-カイラルp波超伝導位相競合に伴う磁束渦自発生は観測されなかった。

研究成果の概要(英文)：We developed magnetization measurement devices composed of micro dc-SQUIDs and Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>(SRO) microplates for clarification of novel quantum vortex states attributable to spin-triplet chiral p-wave superconductivity, and obtained the experimental results as follows.

1. Two distinct signals of the vortices implying influence of chiral superconductivity were obtained. 2. In the magnetization measurements under the in-plane magnetic field, the vortex signal implying a half-quantum vortex was detected. 3. In the magnetization measurements of SRO-Ru eutectic microplates, spatial distribution change of induced magnetic flux due to the superconducting transition of Ru was observed. However, spontaneous nucleation of vortex attributable to the phase competition between s-wave and chiral p-wave superconductivities was not observed.

研究分野：低温物性

キーワード：カイラル超伝導 磁束量子渦 メゾスコピック系 超伝導量子干渉計

## 1. 研究開始当初の背景

ペロブスカイト型構造を持つ $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  (SRO)の超伝導現象は1994年に発見され、スピン3重項カイラルp波超伝導の最有力候補として関心を集めている。しかし、カイラルエッジ流の有無やカイラルドメイン状態など未解明なテーマがあり、SROの超伝導秩序パラメータについて未だ完全に決着していない。

半整数磁束量子渦もスピン3重項超伝導に特有な量子事象の一つである。SROのような第二種超伝導体中では、磁場を印加するとある臨界磁場以上で磁束渦が侵入する。通常磁束の値は磁束量子 $\Phi_0$  ( $\approx 2.07 \times 10^{-15} \text{Wb}$ )の整数倍に限られる、つまり量子化される。しかし、スピン自由度を持つ超伝導体においては、渦芯周りをスピン位相が回転することによって、半整数磁束の存在が可能となる。SROにおける半整数磁束検出には非常に高精度な実験を要する。これまでにカンチレバーを用いた間接的検出の報告が一件(J. Jang et al, Science 331 186(2011))しかない。したがって様々な方法による多角的な直接検出実験が必要である。

SRO中にRuが析出したSRO-Ru共晶もSRO超伝導性を解明するために重要な研究対象の一つである。なぜなら、s波超伝導体であるRuがカイラルp波超伝導体と考えられているSROに囲まれるトポロジカル接合が実現されるため、界面における超伝導位相不整合の研究が可能となるからである。Kaneyasu-Sigristらの理論(H. Kaneyasu and M. Sigrist, J. Phys. Soc. Jpn. 79 053706(2010))によるとSRO-Ru界面において両超伝導の位相競合により自発的に超伝導電流が流れ、ある温度でRu内に磁束渦状態が自発的に生成すると考えられている。しかし、実験的検出の報告はまだない。

本研究代表者は、SRO超伝導体の秩序パラメータを確定すべく、高感度な磁束計である超伝導量子干渉計(SQUID)を用いた実験研究を進めている。これまでに連携研究者として基盤研究(C)「微小カイラル超伝導体のエッジ電流による磁化のSQUID測定」(代表:石黒亮輔)に参加し、マイクロ/ナノサイズSQUIDの作製と微小試料片をSQUID上に積載したデバイスによる磁化測定技術を確立、習得してきた。この技術は、メゾスコピックサイズの超伝導体における磁束渦など局所的な磁化状態を観測するのに有効である。

## 2. 研究の目的

本研究は、メゾスコピックSRO超伝導体に

おけるスピン3重項カイラルp波超伝導性に起因した特異な磁束渦状態の観測を目的とする。具体的には、磁束渦検出のためのマイクロSQUIDを用いた高感度磁化測定デバイスの作製と、それを用いたSROにおける半整数磁束渦の探索やSRO-Ruにおけるs波カイラルp波競合に伴う磁束渦自発生成の探索を試みた。

## 3. 研究の方法

まず、メゾスコピック超伝導体における磁束渦状態の高感度検出に向けて、これまでに確立した斜め蒸着法により作製したAl/AlOx/Alトンネル接合型ジョセフソン接合を持つSQUIDを用いた磁化測定デバイスの改良を行った。試料は、集束Gaイオンビーム装置を用いて、直方体のSRO微小片、リング型のSRO微小片およびSRO-Ru共晶微小片を準備し、装置内蔵のマニピュレータシステムを用いてSQUID上に直接積載、高精度な位置制御を行った。これらのデバイスを用いて1K以下の低温領域でSQUID磁化測定を行った。リング型試料については、半整数磁束渦検出に向けて、x-z2軸磁場超伝導マグネットを作製し、面内方向磁場による渦安定化を試みた。共晶試料については、中心に円柱型のRuが一個配置されるように微小片加工し、ゼロ磁場における自発渦状態の探索と磁場印加における誘起磁束状態を調べた。また、比較対象として、電子銃蒸着によりAl薄膜試料を作製し、誘起磁束渦観測を行った。

## 4. 研究成果

(1)マイクロSQUIDの改良とSRO微小片を用いた磁化測定デバイスの作製

斜め蒸着法では上層と下層のAl薄膜によって配線の太い部分またはループができてしまうため、これまでのマイクロ/ナノサイズのSQUIDによる磁化測定では、配線上への磁束トラップの影響が見られた。そこで、配線の太さとジョセフソン接合の配置を工夫したところ、

配線への磁束トラップを回避することに成功した。また、FIB装置によるSROのSQUID上への積載時に

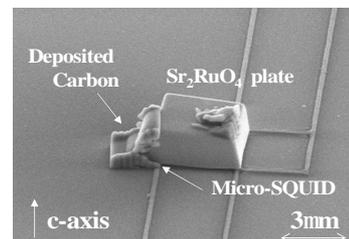


図1. マイクロSQUIDとSRO微小片を用いた磁化測定デバイス

オンビームが SQUID へ与えるダメージを軽減させるため、SQUID 上に厚さ 100nm の SiO<sub>2</sub> マスクをスパッタ蒸着した。微小片試料のサイズは SQUID ループと同サイズに調整し、高精度な位置決めを行った(図 1)。

#### (2) SRO 微小片およびメゾスコピック AI 試料中の磁束渦状態の観測

(1)において改良した SQUID を用いてサイズ 1~3 $\mu$ m 四方の SRO 微小片(図 1)の磁化測定を低温下で行った。磁場印加に伴う磁束渦誘起を観測した。SQUID 変調の位相解析から、2種類の異なる磁束誘起信号があることがわかった。比較のためメゾスコピック AI 超伝導薄膜の磁化測定を行ったところ、渦糸格子形成に伴う SQUID 位相の変化が観測され、位相変化量の比較から、SRO 微小片において高磁場領域で観測された信号が、通常の  $\Phi_0$  磁束渦糸格子形成によるものであることがわかった。低磁場領域で観測されたもう一つ磁束信号は SRO 試料特有であることがわかり、カイラルドメインに誘起される渦シート構造などカイラル超伝導性に起因したものである可能性が考えられる。さらなる検証実験が必要である。

#### (3) 半整数磁束渦の探索

中心に穴をあけたリング型 SRO 微小片を用いて半整数磁束渦探索実験を行った。2 軸磁場マグネットを用いて、面内方向への磁場印加による半整数渦安定化を試み、磁化測定を行った。その結果、~3 $\mu$ m サイズ試料において、半整数渦誘起の可能性を示唆する新たな磁束信号を検出した。しかしこのサイズの試料では臨界磁場が低く、広磁場範囲での測定ができなかったため、得られた情報量が少なく半整数渦の確証にまで至らなかった。そこで、より小さい~2 $\mu$ m サイズの試料を準備し測定を行ったが、半整数渦信号は確認されなかった。SRO ではカイラルドメイン構造が大きく影響し、試料依存性が大きいと、さらなる試料準備と実験を遂行する必要がある。

#### (4) SRO-Ru 共晶中の磁束状態の観測

中心に円柱型の Ru が析出した共晶微小片を準備し、超伝導位相競合下における磁束状態を調べた。ゼロ磁場冷却を行い、Ru 超伝導転移温度 ( $T_c^{Ru} \sim 0.5K$ ) 以下で磁化測定を行ったが、位相競合に伴う磁束渦自発生成は観測されなかった。また、磁場印加状態で冷却を行い、 $T_c^{Ru}$  前後におけるトラップ磁束の振る舞いも調べた。数値シミュレーションを行い、

磁束分布と SQUID 位相変化の関係を調べ、測定結果と比較したところ、Ru 超伝導転移に伴い Ru 内にトラップされた磁束が Ru-SRO 界面上に移動したことが明らかになった。本結果を Kaneyasu-Sigrist 理論モデルを用いて考察した結果、Ru-SRO 界面における s 波-カイラル p 波超伝導結合が非常に弱いことがわかった。SRO-Ru 共晶における界面付近での磁束状態を初めて明らかにすることに成功した。

#### (5) SQUID 配列を用いた磁束分布測定

(2)~(4)の結果を基に、超伝導体中の磁束分布を調べる目的で、反応性イオンエッチングを用いて、マイクロ SQUID を 3 $\times$ 3 配列させたデバイスを作製した(図 2)。個々の SQUID の性能評価実験を行い、磁束分布を調べるにあたって SQUID 間の相互作用が測定に大きく影響はしないことを確認した。この SQUID 配列上に SRO 試料を積載し、予備実験を行い、個々の SQUID で磁束誘起を検出することに成功した。しかし、全ての SQUID が正常に動作するデバイスの完成にはまだ至っていない。超伝導体中の磁束分布解明実験には、さらなる SQUID 配列作製の高精度化、および各 SQUID の同時測定方法の確立が必要である。

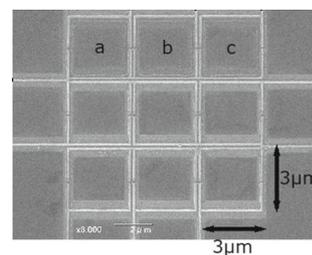


図 2. マイクロ SQUID 配列

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 4 件)

(1) Y.Nago, R.Ishiguro, T.Sakurai, M.Yakabe, T.Nakamura, S.Yonezawa, S.Kashiwaya, H.Takayanagi, and Y.Maeno, “Evolution of Supercurrent Path in Nb/Ru/Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> dc-SQUIDs”, Physical Review B 94, 054501 (2016), DOI:10.1103/PhysRevB.94.054501、査読有

(2) Y.Shibata, S.Nomura, R.Ishiguro, H.Kashiwaya, S.Kashiwaya, Y.Nago and H.Takayanagi, “Current and flux imaging in

tungsten-carbide films by scanning nano-SQUID microscope” Superconductor Science and Technology 29, 104004(2016)、DOI: 10.1088/0953-2048/29/10/104004、査読有

(3) Y. Nago, T. Shinozaki, S. Tsuchiya, R. Ishiguro, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, H. Takayanagi, and Y. Maeno, “Development of magnetization measurement devices using micro-dc-SQUIDs and a  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  micro plate”, Journal of Low Temperature Physics 183, 292(2016)、DOI 10.1007/s10909-016-1530-z、査読有

(4) D. Sakuma, T. Shinozaki, Y. Nago, R. Ishiguro, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, and H. Takayanagi, “Development of a Two-Dimensional Micro-SQUID Array for Investigation of Magnetization Spatial Distribution”, Journal of Low Temperature Physics 183, 300(2016)、DOI 10.1007/s10909-016-1556-2、査読有

〔学会発表〕(計 13 件)

(1) 佐久間大輔, 永合祐輔、石黒亮輔, 柏谷聡, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明, “ $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ -Ru 共晶における磁束量子渦状態”、日本物理学会第 72 年次大会、2017 年 3 月 17 日、大阪大学 豊中キャンパス(大阪府豊中市)

(2) 永合祐輔、篠崎智也、佐藤太一, 石黒亮輔, 柏谷聡, 柏谷裕美、野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明, “マイクロ SQUID による  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  中の磁束量子渦状態の観測”、第 2 回「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」領域研究会(TMS2016)、2016 年 12 月 17 日、東北大学 片平キャンパス(宮城県仙台市)

(3) 佐久間大輔, 永合祐輔、石黒亮輔, 柏谷聡, 柏谷裕美、野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明, “マイクロ SQUID による  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ -Ru 共晶中磁束量子渦状態の観測”、第 2 回「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンテ

ィア」領域研究会(TMS2016)、2016 年 12 月 17 日、東北大学 片平キャンパス(宮城県仙台市)

(4) 永合祐輔, 佐藤太一, 篠崎智也, 佐久間大輔, 石黒亮輔, 柏谷聡, 柏谷裕美, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明, “マイクロ SQUID を用いた超伝導  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  に誘起される磁束量子渦の観測”、日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 9 月 15 日、金沢大学 角間キャンパス(石川県金沢市)

(5) 佐藤太一, 濱崎拓也, 永合祐輔, 篠崎智也, 石黒亮輔, 柏谷聡, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明, “マイクロ dc-SQUID を用いたメゾスコピック超伝導  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  における半整数磁束量子渦の探索”、日本物理学会第 71 回年次大会、2016 年 3 月 22 日、東北学院大学 泉キャンパス(宮城県仙台市)

(6) 佐久間大輔, 篠崎智也, 永合祐輔, 石黒亮輔, 柏谷聡, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明, “ $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ -Ru 共晶中に誘起される磁束量子渦の観測 II”、日本物理学会第 71 回年次大会、2016 年 3 月 22 日、東北学院大学 泉キャンパス(宮城県仙台市)

(7) 佐久間大輔, 篠崎智也, 永合祐輔, 石黒亮輔, 柏谷聡, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明, “ $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ -Ru 共晶中に誘起される磁束量子渦の観測”、日本物理学会 2014 年秋季大会、2015 年 9 月 16 日、関西大学 千里山キャンパス(大阪府吹田市)

(8) 谷下 智紀, 永合祐輔、石黒亮輔、渡辺 英一郎、大里 啓孝、津谷 大樹、柏谷 聡、柏谷 裕美、野村 晋太郎、河野 公俊、Muhammad Shahbaz ANWAR、前野 悦輝、高柳 英明, “電子ビーム描画装置を用いて  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ -Ru 共晶中に作製した Nb/Ru/ $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  微小接合を持つ dc-SQUID の開発”、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年 9 月 13 日、名古屋国際会議場(愛知県名古屋市)

(9) Y. Nago, T. Shinozaki, T. Sato, D.

Sakuma, R. Ishiguro, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, Y. Maeno, and H. Takayanagi, “ Development of Magnetization Measurement Device using Micro-SQUIDs and a Mesoscopic  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  Superconductor ”、2015 International Symposium on Quantum Fluids and Solids(QFS2015)、2015年8月10日~11日、Conference Event Center, Niagara Falls, NY USA

(10) D. Sakuma, T. Shinozaki, Y. Nago, R. Ishiguro, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, Y. Maeno, and H. Takayanagi, “ Development of Micro-SQUID Array for Simultaneous Measurements of Magnetization Spatial Distribution ”、2015 International Symposium on Quantum Fluids and Solids(QFS2015)、2015年8月10日~11日、Conference Event Center, Niagara Falls, NY USA

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

永合 祐輔 (NAGO Yusuke)  
慶應義塾大学・理工学部・助教  
研究者番号 : 50623435

### (2) 研究協力者

佐久間大輔 (SAKUMA Daisuke)  
篠崎智也 (SHINOZAKI Tomoya)  
佐藤太一 (SATO Taichi)