

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2009～2011
 課題番号：21560024
 研究課題名（和文）人工アンチドット格子を持つ高温超伝導体の渦糸状態
 研究課題名（英文）vortex states in high- T_c superconductors with artificial antidot lattice
 研究代表者
 大井 修一（001 SHUUCHI）
 独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導物性ユニット・主任研究員
 研究者番号：10354292

研究成果の概要（和文）：

人工的に制御された微細孔を、高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ （Bi2212）の高品質単結晶薄膜および Bi2212 固有ジョセフソン接合に導入することで、人工孔格子が渦糸系に与える影響を ab 面内・面間輸送特性を通して系統的に調べた。結果として、人工孔格子をもつ Bi2212 の渦糸相図をおよそ明らかにした他、渦糸状態と孔格子の幾何学パラメータとの関係、マッチング効果における c 軸渦糸相関の変化を解明できた。

研究成果の概要（英文）：

We have systematically investigated the influence of artificial micro-holes on the vortex system using high-quality single-crystal thin films and the intrinsic Josephson junction of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$. As a result, several interesting properties are revealed: the vortex phase diagram with the micro-holes array, relation between the geometrical parameters of micro-holes array and the vortex states, and change of the c-axis coupling of vortices in the matching effect.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2010 年度	500,000	150,000	650,000
2011 年度	300,000	90,000	390,000
年度			
年度			
総計	3,900,000	1,170,000	5,070,000

研究分野：応用物理学・工学基礎

科研費の分科・細目：応用物性・結晶工学

キーワード：銅酸化物超伝導体、アンチドット格子、磁束量子、マッチング効果、渦糸フロー

1. 研究開始当初の背景

磁場中の第 2 種超伝導体の物性は主に渦糸（量子化磁束）の集団的な振る舞いにより理解される。渦糸は一次元的なひも状の物体であるため、渦糸の集団が作り出す多体系は、原子・電子を基本とした通常の固体物理とは大きく異なる系として興味を持たれて

いる。特に、高温超伝導体においては、層状の結晶構造に起因する異方性、短いコヒーレンス長、大きい熱揺らぎといった要因により、渦糸物理に新たな概念・理解がもたらされ、パンケーキ渦糸・ジョセフソン渦糸といった特有の形状や、渦糸液体・渦糸ガラスなど多様な渦糸相の存在が明らかにされてきた。

1990年代後半頃から、微細加工技術を用いてアンチドットや磁性体ドットを超伝導体上に作り込むことで、人工ピン止め中心による渦糸状態の変化が、盛んに調べられるようになってきた。2000年代に入ってから、人工的な渦糸ダイナミックスの制御を目的として、空間的に非対称な形状を持つピン止め中心の導入により、渦糸の運動の向きを整流する渦糸ラチェットといった研究へ発展している。これらの研究ではNbやPb、Al等の良質薄膜が容易に作製可能な従来超伝導体を用いられたが、高温超伝導体では、単結晶薄膜の作製が容易でないことや、通常半導体の加工で用いられるような微細加工プロセスでの試料劣化といった問題があり、微細加工による人工ピン止めの研究は数えるほどしかない。一方、微細加工以外的高温超伝導体単結晶への良質な人工ピン止め導入法としては、重イオン照射・電子線照射などの高エネルギー粒子の照射による欠陥生成がある。この方法では、高エネルギー粒子の照射量によって欠陥量を、また重イオンの場合にはイオン種・エネルギーによって欠陥（この場合は円柱状）のサイズ（数nm-数10nm）を制御することが可能である。特に柱状欠陥が存在する系では、ボースグラスと呼ばれる新たな渦糸状態が理論的に示唆され、多くの研究がなされた。ただ、照射による欠陥導入では、欠陥位置がランダムで制御することができないことが弱点であった。

そこで、ここ数年来、我々は人為的に微細な構造を制御して導入し、渦糸物質に及ぼす影響を調べてきた。良質な高温超伝導薄膜を準備するために、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ (Bi2212) に注目し、単結晶劈開により高品質薄膜を作製した。高温超伝導体に制御性よく欠陥を導入するために、FIBなどの微細加工装置を用いて試料を準備した。これまでに、渦糸液体相におけるマッチング効果、渦糸の整流効果、高温超伝導体で初の分数マッチング効果といった結果を得ている。

2. 研究の目的

本研究では、これまでの成果を発展させるべく、アンチドットの微小化・高精度化とともに、渦糸の面間相関の測定など新たな知見を得るための試料加工を試み、人工微細構造をもつ高温超伝導体の渦糸相の解明に取り組んだ。将来的には渦糸の相状態を人工的に変化させることや、そのダイナミックスの制御を通じ、新規機能デバイス応用へとつなげたい。

3. 研究の方法

(1) 高品質単結晶薄膜 Bi2212 の作製と微細孔導入

Bi2212がもつ劈開性を生かして、粘着テー

プなどによる繰り返し劈開により、単結晶薄膜を作製した。MgOやSi基板への固定方法やBi2212への電極形成方法を工夫し、低接触抵抗電極をもつ良質な薄膜を準備する。特に、高真空中での劈開作業と電極金属蒸着をin-situで行うための装置を開発した。人工的な微細孔導入には、FIB装置を利用した。

(2) 微細孔格子導入と渦糸相図

面内渦糸フロー抵抗測定により、渦糸液体相・ピン止め固体相の相境界を特定し、渦糸相図を明らかにするため、様々な人工孔配置パターン、孔直径、孔密度などのパラメータを変化させた試料を準備し、系統的に渦糸状態の変化を追う。また、利用可能な装置で、可能な限り微小な孔作製を試みる。

(3) 固有ジョセフソン接合を用いた微細孔格子をもつBi2212における渦糸c軸相関の測定

Bi2212単結晶は、超伝導を担う CuO_2 面がc軸方向に重なった、いわゆる固有ジョセフソン接合を内蔵する。ジョセフソン臨界電流がパンケーキ渦糸のc軸方向の相関を反映することに着目し、固有ジョセフソン接合特性をプローブとして、微細孔格子をもつBi2212の渦糸状態について調べた。試料作製プロセスを図1に示す。

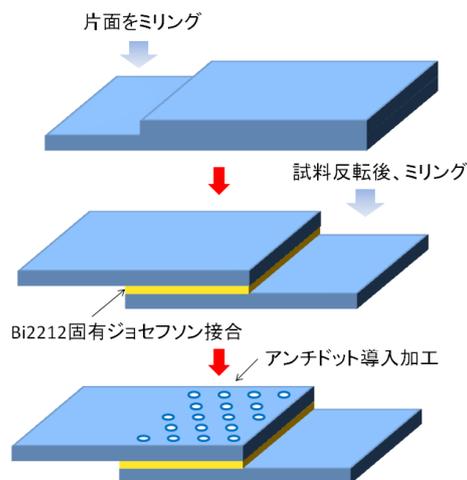


図 1. 微細孔格子をもつ固有ジョセフソン接合の作製手順.

4. 研究成果

(1) 微細孔格子による渦糸格子融解転移の変化

微細孔格子の導入による渦糸相図の変化をみるために、まず未導入試料での渦糸格子融解転移の観測を目指した。薄膜試料での融解転移観測のためには、ノイズ低減のために良好な電極端子形成が不可欠と考え、in-situでの試料劈開による薄膜作製と真空蒸着を可能とする装置を開発した。また、データ積算を増やし測定した結果、図2に示す

ように膜厚約 360nm の薄膜試料において融解転移に伴う抵抗ジャンプを観測することができた。図 2 の挿入図には、融解転移温度の引加電流依存性を示す。転移温度はほとんど電流に依存しないことが分かる。

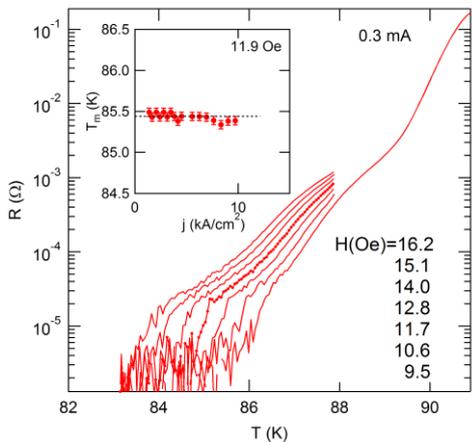


図 2. 微細孔未導入試料での渦糸格子融解転移。

一方、正三角格子や正方格子状の対称性の高い微細孔格子がある場合には、より大きな抵抗ジャンプが相転移温度において明瞭に観察される。この時、融解転移は引加電流が大きくなるにつれて、低下することが分かった。これは、電流により渦糸にかかるローレンツ力が大きくなることで、実効的に微細孔のピン止めポテンシャルが減少し、より低い温度で渦糸固体が液化したためと考えられる。

微細孔格子がある場合とない場合で固液相境界が相図上でどこに位置するかを比較するために、不可逆線(irreversibility line)を磁場・温度相図上にプロットした(図 3)。約 100 Oe 以上の磁場において両者は一致し、孔格子の影響がなくなることが分かる。孔格子導入により固体相が安定化されるため、100 Oe 以下では孔格子がある場合の不可逆線の方が、高温側にくる。そして、整数マッチング効果によりさらに安定化されることで、不可逆線のピークが矢印で示した箇所に現れる。この不可逆線の変化は、一つの孔に何個の渦糸が入ることが可能かを見積もった量である saturation number ($N_s \approx D/4\xi$: D : 孔直径、 ξ : 超伝導コヒーレンス長) によりおよそフィッティングすることが可能である。

(2) 微細孔格子の幾何学パラメータに依存した渦糸状態

微細孔格子と一口に言っても、格子の対称性や孔径、格子間隔、孔自体の形状など複数のパラメータがある。どのような微細孔格子を導入すれば、渦糸状態をどのように変えることができるかを知ることは、渦糸系を支配する物理の理解を深めることにつながるだけでなく、渦糸を活用したデバイスやピン止

め特性を向上させたい線材応用などの面

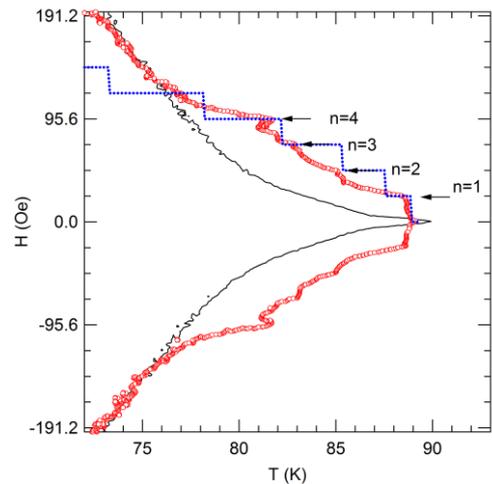


図 3. 微細孔格子導入・未導入試料での固液相境界の比較. 孔格子は正三角格子で、1 μ m 間隔、孔径は約 120nm である. 階段状のラインは saturation number によるフィッティング。

も重要であろう。

正三角格子で、孔の直径を 100 nm に固定し、格子間隔 a_0 を 1 μ m から 2 μ m まで変えた時の不可逆線の変化を図 4 に示す。 $a_0=1\mu$ m では、第 1 マッチング磁場 ($H_1=23.90$ e) での整数マッチング効果によるピーク以外に、それ以下の磁場領域で細かな構造が見られる。これらの構造が現れる磁場はちょうど H_1 の分数倍 (1/4, 1/3, 1/2, 2/3, 3/4) で、分数マッチング効果に対応する。かつ、この磁場領域では、不可逆線を横切るような温度もしくは磁場スweepによる抵抗測定に明瞭な抵抗ジャンプが現れ、相境界は一次相転移的であることがわかる。

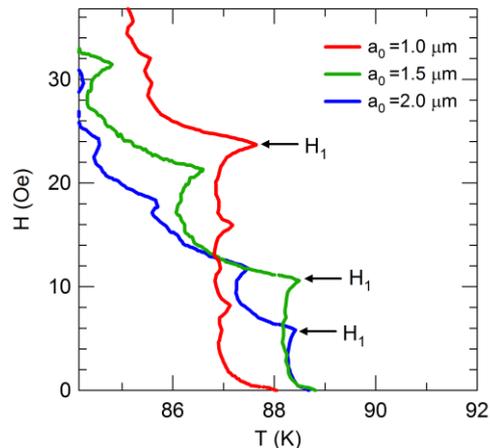


図 4. 孔格子の格子間隔が異なる試料の不可逆線の比較。

一方、 $a_0=1.5\mu$ m 以上の場合には、分数マッチング効果および抵抗ジャンプは弱いもしくは消失し、微細孔格子によるピン止め固体

-液体の一次相転移を引き起こすには、ある程度のピン密度が必要なことが分かる。格子間隔を固定し、孔径を変化させた場合にも、一次相転移的な振る舞いが見られる領域に系統的な違いがでる。図5に、孔直径Dが異なる4つの試料での不可逆磁場を相図上にプロットしたものを示す。一次相転移的な相境界が観察できるのは、図中の矢印で示したところより弱い磁場領域のみで、それ以上ではブロードな転移である。不可逆磁場の形状に現れるピーク状の整数マッチング効果のを見ると、やはり矢印で示した磁場辺りで異常に不可逆線の温度が低下していることが見て取れる。現状で、この異常の原因ははっきりしないが、この異常が現れる磁場が孔径の増加とともに系統的に増加することから、孔の中に入りきれなくなり外にあぶれた *interstitial* な位置にある渦糸が関与した現象であると考えている。

以上のように、微細孔格子の孔密度や孔径をコントロールすることで意図的に渦糸状態・相図を制御することが可能であることが分かった。

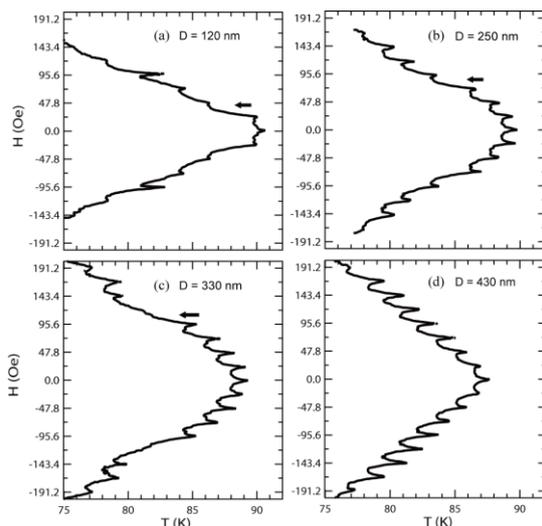


図5. 孔格子の孔径が異なる試料の不可逆磁場の比較。

(3) 微細孔格子をもつ固有ジョセフソン接合を用いた渦糸状態観測

微細孔格子やランダムに配置された人工ピン止めを持つ高温超伝導体中の渦糸状態の、特に渦糸の超伝導面間相関についての知見を得るべく、劈開とFIB加工のみでの、アンチドット格子を導入した固有ジョセフソン接合試料を作製した。

例として、正方格子の場合に得られたc軸抵抗測定とジョセフソン臨界電流測定の結果を磁場温度相図上にマッピングしたものを図6に示す。抵抗データは青色のグラデーションで、臨界電流は等高線で示されて

ある。面内抵抗測定ではアクセスできなかったピン止めされた渦糸固体相内部の様子がc軸ジョセフソン臨界電流により測定可能となった。整数マッチング磁場では、臨界電流が増大することから、パンケーキ渦糸のc軸相関が良く孔に沿って1次元的に並んでいると考えられる。また、固体相の深部ではマッチングによる臨界電流の増強は弱まり、人工ピンの影響が薄れている。

面内渦糸フロー抵抗測定により見出した分数マッチング効果やピン止めされた渦糸固体の融解相転移については、c軸抵抗測定からも同様に観察することに成功した。c軸抵抗測定ではこれらの現象の見え方に大きな電流依存性があり、適当な引加電流では渦糸系の相転移を、より巨大かつ急峻な抵抗転移として増幅して観測可能で、渦糸状態に敏感な測定方法として有用であることが分かった。

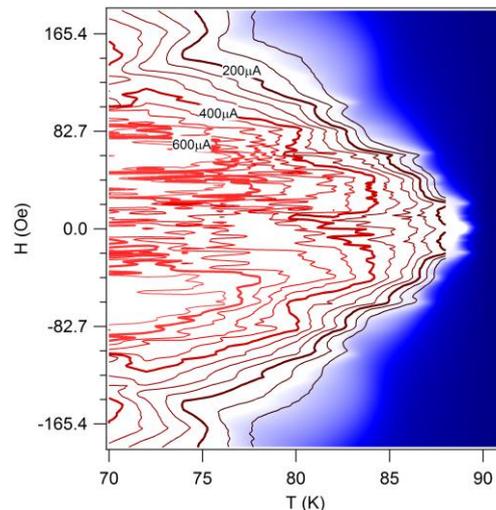


図6. c軸抵抗およびジョセフソン臨界電流をマッピングして得られた磁場温度相図。青白のグラデーションが抵抗測定の結果で、青が薄くなるほど抵抗が小さく、白い分はほぼゼロ抵抗。等高線はジョセフソン臨界電流である。

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 Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Kazuto Hirata, “Antidot diameter dependence of matching effect in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with antidot array”, *Physica C* **471** (2011) 804-807, 査読有
- ② Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Kazuto Hirata, “Influence of flat milling on vortex matching effect in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with antidot array”, *Physica C* **470** (2010) 1115~1117, 査読有

- ③ Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Kazuto Hirata, “Fractional matching effect of vortices in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with square lattice of antidots”, *Physica C* **470**, (2010) S 868-S 869, 査読有
- ④ Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Kazuto Hirata, “Fractional matching effect in single-crystal films of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with antidot lattice”, *Physica C* **469** (2009) 1113-1115, 査読有

[学会発表] (計 14 件)

- ① 大井修一、茂筑高士、平田和人、「c 軸輸送特性でみた微細孔格子をもつ $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ の渦糸状態」、日本物理学会第 67 回年次大会、平成 24 年 3 月 27 日、関西学院大学 (兵庫県西宮市)
- ② 大井修一、茂筑高士、平田和人、「c 軸輸送特性でみる微細孔格子をもつ $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ の渦糸状態」、第 19 回超伝導渦糸物理国内会議、平成 23 年 12 月 8 日、物質・材料研究機構 (つくば市)
- ③ 大井修一、茂筑高士、平田和人、「c 軸臨界電流でみた微細孔格子をもつ $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ の渦糸状態」、日本物理学会 2011 年秋季大会、平成 23 年 9 月 24 日、富山大学 (富山市)
- ④ Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Kazuto Hirata, “Vortex phase diagram of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with various antidot lattices”, The 13th international workshop on vortex matter in superconductors, 平成 23 年 8 月 2 日, Millennium Knickerbocker Hotel Chicago (Chicago USA)
- ⑤ 大井修一、茂筑高士、平田和人、「アンチドット格子を持つ $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ 固有ジョセフソン接合」、日本物理学会第 66 回年次大会、平成 23 年 3 月 28 日、東日本大震災のため、予稿集にて代替発表
- ⑥ 大井修一、茂筑高士、平田和人、「様々な微細孔格子を導入した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ における渦糸系の相転移」、第 18 回渦糸国内研究会、平成 22 年 12 月 1 日、日本原子力研究開発機構 (東京都)
- ⑦ 大井修一、茂筑高士、平田和人 「微細孔格子をもつ $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ の渦糸相図における一次相転移の出現条件」、日本物理学会 2010 年秋季大会、平成 22 年 9 月 26 日、大阪府立大学 (大阪府)
- ⑧ 大井修一、「微細孔格子をもつ $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ の渦糸状態 -孔径依存性-」、第 17 回渦糸物理国内会、平成 21 年 12 月 1 日、大阪府立大学 (大阪市)
- ⑨ Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Kazuto Hirata, “Influence of flat milling on vortex matching effect in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with antidot array”, International Symposium on Superconductivity 平成 21 年 11 月 4 日、Epochal Tsukuba (つくば市)
- ⑩ 大井修一、茂筑高士、平田和人、「アンチドット格子導入による $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ における渦糸相図の変化」、日本物理学会 2009 年秋季大会、平成 21 年 9 月 28 日、熊本大学 (熊本市)
- ⑪ Shuuichi Ooi, “Vortex phase diagram of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with antidot lattice”, 12th International Workshop on Vortex Matter in Superconductors, 平成 21 年 9 月 15 日、東京大学山中湖セミナーハウス (山梨県)
- ⑫ Shuuichi Ooi, “Fractional Matching Effect of Vortices in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ with Square Lattice of Antidots”, 9th MMS international conference, 平成 21 年 9 月 10 日、京王プラザホテル (東京都)
- ⑬ 大井修一、「微細孔格子をもつ高温超伝導体の渦糸状態」、日本物理学会第 65 回年次大会シンポジウム、平成 21 年 3 月 21 日、岡山大学 (岡山市)
- ⑭ 大井修一、茂筑高士、平田和人、「微細孔格子を導入した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ における渦糸相図の孔径依存性」、日本物理学会第 65 回年次大会、平成 21 年 3 月 23 日、岡山大学 (岡山市)

[図書] (計 1 件)

- ① 福山秀敏、秋光純、他 45 名、朝倉書店、超伝導ハンドブック (「微細構造超伝導体中の渦糸」セクションを平田和人、大井修一執筆) 2009 279-285

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大井 修一 (OOI SHUICHI)
独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導物性ユニット・主任研究員
研究者番号：10354292

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし