

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：21560344
 研究課題名（和文） 磁束量子の整流効果の実空間における直接観察
 研究課題名（英文） Direct observation of rectification effect of quantized magnetic flux
 研究代表者
 有沢 俊一（ARISAWA SHUNICHI）
 独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導物性ユニット・主幹研究員
 研究者番号：00354340

研究成果の概要（和文）：

超伝導体内部では磁束が量子化され、この磁束は電流との相互作用により移動することが知られている。この移動は特定条件下で整流作用を発現するが、個々の磁束量子の挙動は明らかではない。本研究では走査 SQUID 顕微鏡(SSM)を用いることにより、酸化物超伝導体の粒界接合近傍における磁束の実空間での挙動の観察を行った。また、SSM を用いた薄膜中の電流観測手法を確立するとともに、材料となる薄膜の高品質化を試みた。

研究成果の概要（英文）：

The objective of this study is to reveal the behavior of the quantized flux (fluxon) in superconducting thin films with respect to fluxon rectification effect. Grain boundary in an oxide superconducting thin film works as a weak link. In this study, fluxons in superconducting thin films were observed by scanning SQUID (superconducting quantum interference device) microscopy (SSM). By using SSM, fluxons can be observed one by one. Further, measurement of method of pin-point current flow in a superconducting film by using SSM was established. Behavior of fluxons in films can be investigated with pin-point current vector monitored. Fabrication of thin films of Bi-based superconductor based on quasi-equilibrium was also investigated.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2011 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：電気・電子材料（半導体、誘電体、磁性体、超誘電体、有機物、絶縁体、超伝導体など）

1. 研究開始当初の背景

近年、磁束量子エレクトロニクスという新たな分野が切り開かれつつある。これは、超伝導体に特徴的に見いだされる、量子化され

た磁束を用いることにより、電子デバイスの新たな動作原理としようとするものである。SFQ デバイス、テラヘルツ発振、量子コンピュータ等への応用が期待されており、特に立

木らの予測による、異方性の高い層状構造の高温超伝導体にみられる、結晶構造に内包される固有ジョセフソン構造からの発振について多くの研究がなされてきている。こういった流れの中で近年、Silva らにより磁束量子磁束量子の整流効果が発見された。これは、磁束量子の移動する方向を制御する物質・構造の特定の磁場および温度領域において、特定の方向への磁束量子の移動方向が容易で、逆方向には移動しにくい、という磁束量子の整流作用を示すものである。この整流作用の本質を明らかにして制御することにより、磁束量子エレクトロニクスの要素技術となる。

しかしながら、その挙動の素特性はまだ十分に明らかではなく、材料、形状、サイズ、磁場、温度、超伝導ギャップの対称性（高温超伝導体では d 波、金属系では s 波）など様々な要素の組み合わせに応じて、実際にどのように磁束が運動しているのか、その静的、動的な挙動を詳細に、実空間においてその挙動を詳細に調べることが不可欠である。これまで行われてきた研究は、ミクロな加工や構造を持つ試料を使用しながらも、測定自体はマクロな視点で行われてきており、個々の磁束量子を直接観察し、その挙動を明らかにするには至っておらず、推測の域を出ていない。これらの解明は喫緊の課題である。

一方、我々はこれまで異方性の強い酸化物高温超伝導体の SSM による磁束の観察を行ってきた。高温超伝導体は c 軸方向に超伝導層と絶縁層が積層するいわゆるジョセフソン磁束が現れるものがある。ジョセフソン磁束の核は絶縁層に存在するが、 c 軸方向に電流を流すことによりローレンツ力を受け、移動する。最近我々は、図 1 に示すように、磁束量子が一本ずつ観測され、しかも異方性のために楕円状に 1 つ 1 つの磁束が広がり、試料に電流を流すことによりジョセフソン磁束がローレンツ力を受け、移動する様子を直接的に観察することに成功した。電流値に依存して、磁束の動く状態が大きく変わっていく様子が観察された。SSM により、ジョセフソン磁束とそのローレンツ力による移動を直接的に観察したのは初めてのことである。この固有ジョセフソン接合内では、磁束の移動によりテラヘルツ帯の電磁波が発振することが予測されており、この結果はその挙動解明に大きく役立つ結果である。のみならず、磁束量子がローレンツ力によって移動するという、理論的に予想された現象を可視化するという成果は、これらを現象を直接的に解明していく上で強力な手段となる。

2. 研究の目的

(1) 概要

超伝導体中では磁束が量子化され、その磁束量子は電流を流すことによりローレンツ力を受けて、移動することが知られている (Kim et al. Rev. Mod. Phys. **36**(1964)43)。近年、その磁束量子の移動が整流作用を示す効果が発見された (Silva et al. Nature **440**(2006)651)。本研究はくさび形の試料を用い、SSM によって実空間で一本一本の磁束

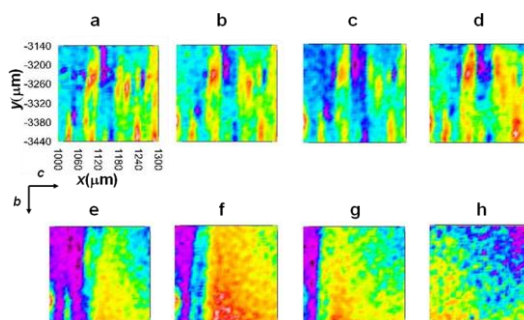


図 1 LSCO 結晶への電流印可とその磁束の様子。a - h はそれぞれ試料電流 0mA, 0.2mA, 0.5mA, 0.7mA, 0.9mA, 1.0mA, 1.06mA, 1.15mA である。電流の増加に従って、磁束が b 軸方向に伸びてゆき、さらに増加すると流れる領域が徐々に広がる。

(Appl. Phys. Lett., **91**(2008)202511-1-3)

量子を実空間で直接観察することにより、この効果による磁束量子の整流作用の起源を明らかにしようとするものである。

(2) 明らかにしようとする事

これまで申請者らのグループでは、1) 微小な SQUID を利用した SSM 装置による低温・磁場中における磁束の直接観察(図 1)、2) 準平衡下での薄膜作製、3) 固有ジョセフソン素子、粒界接合ジョセフソン素子、などの分野の研究を重ねてきており、磁束量子の挙動の研究を行ってきた。

これらの蓄積を利用し、本研究では人工的に作製した弱結合を利用した構造を作製し、SSM による観察を行う。具体的には両端に非対称なくさび形構造を作製する。磁束の「通り道」となる部分には、人工的に作製された超伝導状態が弱くなった部分、いわゆる「弱結合」のラインなどを用いる。超伝導性の強い部分ではマイスナー効果により磁束が掃き出され、超伝導性が弱い弱結合部分に磁束が入りやすくなる。なお弱結合の部分も絶縁性ではないので、電流は流れることができる。この弱結合ラインで区切られた 2 つの超伝

導体の端の部分に非対称形状を持つ試料を作製し、弱結合ラインに垂直に電流を流す。すると電流に比例して、弱結合部分に存在する磁束量子が、その電流によりローレンツ力を受け、弱結合のラインに沿って移動する。本研究は、様々な条件下での整流作用とその試料内での磁束の挙動を詳細に明らかにし、この現象の発現の本質を解明することを目的とする。

3. 研究の方法

(1)概要

超伝導体の薄膜や単結晶薄片に、磁束の通り道となる弱結合部分を設け、その通り道の両端などに非対称な部分を作製することにより、磁束の動きやすさに方向依存性が生じるようにする。この状態で試料に電流を流し、磁束に駆動力を与える。この際の磁束の挙動を走査 SQUID 顕微鏡により観察し、これまでマクロな現象の観察では不明であった個々の磁束の挙動を詳細にする。弱結合ライン両端での形状とミクロな磁束の関係を明らかにする。その後は、対称性や磁場侵入長の異なる物質系に展開し、形状と磁束の挙動の関係が、物質によってどのように変化するか、また弱結合部分の構造にどのように依存するかを調べる。これらにより、磁束整流作用に本質的に必要な要素を明らかにし、磁束量子デバイスの実現に資する。併せて薄膜品質の向上を目指した実験を行う。

(2)具体的な実施手順

①試料作製

使用する材料に求められる条件としては、微細加工を精密に行うことができる必要がある。かつ弱結合部分において、磁束量子が動きやすい、つまりピン止め力が比較的弱いことが必要である。市販の材料およびこれまで我々が手がけてきた材料を中心として使用する。Bi 系酸化物超伝導体に関しては、CVD 法による 2212/2223 系を用いる。CVD 法による薄膜の作製は、研究分担者となる金沢工大の遠藤和弘教授らのグループが担当する。粒界接合は、結晶方位の異なる基板を接合させた、いわゆるバイクリスタル基板を用いて、その上に薄膜成長させることにより形成させる。この手法で、我々は粒界接合ジョセフソン接合の作製を、他の粒界の存在しない単結晶薄膜において行ってきた。(Physica C, 412-414(2004)1391-1395)。

試料の弱結合をまたいだ上下方向に電流を流す。電流を矢印方向に流した場合、磁束はローレンツ力を受けて、左方向に力を受け

る。弱結合部分にあるは、形状効果により整流効果を示すと考えられる。くさび部分の大きさは、超伝導体の磁場侵入長を基準に、その数倍～数十倍程度の範囲が適切であると考えられ、高温超伝導体を使用した場合には数十～数百 μm のオーダーとなる。

また、結晶粒が大きい、もしくは単結晶の Bi 系超伝導体薄膜を作製することを企図し、KCl フラックスを用いたフラックス法による準平衡状態での Bi 系超伝導体の薄膜作製を試みた。

②測定

観察には走査 SQUID 顕微鏡(SSM)を用いる。試料は 3K 以下まで冷却可能である。磁束の検出は $10\mu\text{m}$ の検出リングにより行い、最大 $100\mu\text{T}$ 程度の磁場下で XY 方向に試料を走査することにより、磁束量子の観察を行うことができる。SQUID は、このリング内を通過する磁場の Z 軸成分を検出し、磁場分布のマッピングを行う。測定は弱磁場下となり、磁束量子 1 本単位 ($\Phi_0=2.07\times 10^{-15}\text{Wb}$) レベルの極めて微小なものである。弱磁場下における測定であるため、磁束量子が一つ一つ個々に観察可能である。このため、外部から試料に電流を流すことにより、電流に対する応答を in-situ で観察できる。外磁場下で試料を冷却することにより、超伝導体の地部分及び弱結合部分にトラップされた磁束量子が観測される。弱結合部分の付近で観測される磁束の積分強度の、電流の方向に対する依存性が直接的に磁束整流効果の表現形となる。さらに、磁場や温度に対する依存性、時間依存性などから、試料の素特性を明らかにすることができる。

4. 研究成果

(1)粒界近傍での磁束

粒界のある薄膜に磁場を与えた状態で冷却(磁場中冷却=Field Cool: FC)すると、その磁束は冷却に伴い量子化される。これまで行われてきた研究はマクロな視点で行われてきており、個々の磁束量子を直接観察し、その挙動を明らかにするには至っておらず、推測の域を出ていない。本研究では、走査 SQUID 顕微鏡(SSM)によって実空間で一本一本の磁束量子を実空間で直接観察を行った。我々は結晶性の優れた単結晶薄膜を用いた粒界接合を作製し、SSM を用いて観察を行った。これにより、粒界接合付近に存在する磁束量子の観察も行い、粒界接合近傍に存在する磁束量子の分布等が明らかとなった。また、磁場印加時に発生する超伝導遮蔽電流に

起因する磁場信号の界面付近での挙動が観察され、磁気信号による境界が明確に観測された。この結果、粒界接合への磁束量子の侵入の直接観察を行うことができた。

(2)膜面内の電流のSSM観測

無限に広い薄膜中に均一の一定電流が流れている場合、薄膜表面には電流により誘起される磁場の垂直方向の成分はゼロになる。しかし、薄膜にアンチドットが存在するとその均一性に乱れが生じることにより磁場が発生する。逆に、アンチドットが存在する薄膜の磁場を測定することにより、薄膜中の電流密度を測定することが可能となる。この原理を利用すると、SSMで試料を流れる電流の向きと強さ（ベクトル）をピンポイント知ることができる。「電流の方向と密度の測定方法、表示方法及び測定表示装置」として特許出願中である。これは本研究の過程で副次的に解明されたものであるが、SSMで測定することにより、磁束量子とピンポイントでの電流ベクトルが一緒に測定可能となり、磁束量子と電流の相互作用を評価するうえで非常に重要なツールを得ることができた。

(3)薄膜および粒界接合作製

良質な粒界接合作製するためには、高品質な超伝導薄膜の作製が不可欠である。本研究においては、材料となる薄膜の高品質化に関しても研究を行った。研究分担者の遠藤らはCVD法によるBi系超伝導薄膜の作製を行い、高い膜質の薄膜を得ることができた。また物理蒸着法は非平衡であるが、Bi系超伝導体においては、塩化カリウムをフラックスとして用いたフラックス法による準平衡条件下での作製を試みた。塩化カリウムを用いた薄膜作製法は研究途上であり、従来法に比べ膜質はまだ不十分ではあるが、相対的に良好な薄膜を作製するための焼成方法や特性改善のためのアニール条件等が得られた。

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5件)

① “Growth of Complex Epitaxial Multi-Component Oxide Thin Films and Heterostructures with Strong Anisotropy” Proceedings of the Materials Research Society, Kazuhiro Endo, Petre Badica, Hidehito Nanto, Yoshinori Takei, Shunichi Arisawa, Hirofumi Yamasaki, Katherine Develos-Bagarinao and Tamio Endo, MRS

Proceedings (2011), 1368: mrss11-1368-ww11-10., 査読有り

② “Scanning SQUID Microscopy Observation of Grain Boundary Junction in Tri-Phase Epitaxy $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Thin Film.” Shunichi Arisawa, Kyungsung Yun, Kazuya Mochiduki, Ienari Iguchi, Takeshi Hatano, Huabing Wang, and Akira Ishii, *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*. **35**(2010)195-196. Mar., 査読有り

③ 「単結晶レベルの薄膜成長法で酸化物超伝導体のデバイス応用」 有沢 俊一、「工業材料」(日刊工業新聞社) 2010年10月号 Vol.58, Page 27~30, 査読無し

④ “Advanced Growth Method Of High-Quality Oxide Films With Perovskite-Related Structure For Future Electronics,” Kazuhiro ENDO, Petre Badica, Hiroshi Kezuka, Shunichi Arisawa, Tamio Endo. World Journal of Engineering, Vol.7 Supplement 2. (2010) 521-522, 査読有り

⑤酸化物超伝導体の層状構造に起因した物性の電子デバイスへの応用と課題 有沢 俊一、雑誌金属(アグネ) Vol. 79(2009)318-323. 4号 pp. 24-29, 査読無し

[学会発表] (計9件)

① “Observation of Quantized Magnetic Flux under Shielding Current Flow by Scanning SQUID Microscopy” S. Arisawa, I. Iguchi, K.S. YUN, T. Hatano and K. Endo(招待講演) IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012) 23- 28, September 2012, Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan

②Thin Film Composite Heterostructures of Oxide Multicomponent Perovskites for Electronics Kazuhiro Endo, Petre Badica, Shunichi Arisawa, Hiroshi Kezuka, Hidehito Nanto, Noriaki Ikenaga, Masahiro Seto¹, Hiroshi Saito, Tamio Endo Materials Research Society Spring Meeting, San Francisco, 2012/4/9-13.

③KCl フラックスを用いた Bi 系超伝導体薄膜作製 / Fabrication of Thin Films of Bi-based Oxide Superconductors Using KCl Flux

松尾好章、弓野健太郎、有沢俊一、羽多野毅、
遠藤和弘
日本 MRS 学術シンポジウム 横浜市情報文
化センター、2011/12/19 - 2011/12/21

④ “Growth of Complex Epitaxial
Multi-component Oxide Thin Films and
Heterostructures with Strong Anisotropy”
Kazuhiro Endo, Petre Badica, Hidehito
Nanto, Yoshinori Takei, Shunichi Arisawa,
Hirofumi Yamasaki, Katherine
Develos-Bagarinao, Tamio Endo.
Materials Research Society Spring Meeting,
San Francisco, 2011/4/25-29.

⑤ 4 大学連携シンポジウム
「ナノテクノロジーサミット 2010 - 米国の
ナノテク 10 年 -」有沢俊一、2011 年 1 月 28
日 東京大学先端科学技術研究センター

⑥ Materials Research Society of Japan
Academic Symposium (基調講演)
Dec. 20-23, 2010, Yokohama, Japan.
S. Arisawa, K. Mochiduki, KS Yun, T.
Hatano, and I. Iguchi, K. Endo
“Calculation of Magnetic Fields Generated
on the Surface of Thin Films with Defects.”

⑦ 18th International Conference on
Composites/Nano Engineering (ICCE-18)
(招待講演)
Shunichi Arisawa, Kyungsung Yun*,
Kazuya Mochiduki, Ienari Iguchi, Takeshi
Hatano, Huabing Wang, Akira Ishii,
Kazuhiro Endo¹
“Grain Boundary Junction and Magnetic
Quanta in High Quality NdBa₂Cu₃O_{7-δ}
Thin Film.” July 4-10, 2010, Anchorage,
Alaska, USA.

⑧ JSPS-DST Asia Academic Seminar
2009(招待講演)
Dec. 7-9, 2009, Yokohama, Japan. Shunichi
Arisawa, Kyungsung Yun*, Kazuya
Mochiduki, Ienari Iguchi, Takeshi Hatano,
Huabing Wang, and Akira Ishii.
“Scanning SQUID Microscopy for
Observing Small Currents in Oxide
Superconductor Thin Films”

⑨ Materials Research Society of Japan
Academic Symposium (招待講演)
Dec. 6-8, 2009, Yokohama, Japan.
Shunichi Arisawa, Kyungsung Yun*,
Kazuya Mochiduki, Ienari Iguchi, Takeshi
Hatano, Huabing Wang, and Akira Ishii.

“Shielding Current Observation in Oxide
Superconductors by Scanning SQUID
Microscopy”

[産業財産権]
○出願状況 (計 1 件)

名称：電流の方向と密度の測定方法、表示方
法及び測定表示装置
発明者：有沢俊一/羽多野毅/井口家成/石井明/
王華兵/ユンキョンソン
権利者：物質・材料研究機構
種類：特許
番号：特願 2010-145987
出願年月日：2010 年 6 月 28 日
国内外の別：国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

有沢 俊一 (ARISAWA SHUNICHI)
独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導
物性ユニット・主幹研究員
研究者番号：00354340

(2) 研究分担者

遠藤 和弘 (ENDO KAZUHIRO)
金沢工業大学・ものづくり研究所・教授
研究者番号：50356606

(3) 連携研究者

羽多野 毅 (HATANO TAKESHI)
独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導
物性ユニット・グループリーダー
研究者番号：50354337

石井 明 (ISHII AKIRA)
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：70354339

王 華兵 (WANG HUABING)
独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導
物性ユニット・主幹研究員
研究者番号：70421427

井口 家成 (IGUCHI IENARI)
独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導
物性ユニット・NIMS 特別研究員
研究者番号：10011173