

令和元年6月20日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04022

研究課題名(和文)メソスコピック高温超伝導体中の少数渦糸状態

研究課題名(英文)Small-number vortex state in mesoscopic high-Tc superconductors

研究代表者

大井 修一(Ooi, Shuichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：10354292

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：高温超伝導体中の量子渦糸状態は、大きな熱揺らぎと異方性のために、従来超伝導体と異なる独特の相状態や相転移を持つことが知られている。この渦糸状態が、微小単結晶中に閉じ込めた場合どのような変更を受けるか調べるため、集束イオンビーム装置を用いた両面加工プロセスにより、試料のサイズや形状を制御した微小固有ジョセフソン接合単結晶試料を準備し、広い温度磁場範囲において渦糸状態を探った。結果として、サブミクロンサイズ試料での渦糸状態観測や低温固体相でのフロー抵抗測定に成功した他、渦糸配置シミュレーションとの比較の結果、渦糸結晶融解温度の磁気振動現象のメカニズムをおよそ明らかにできた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

互いに相互作用する多粒子から成る系の自己組織化とそのエネルギー的な安定性は、解析的な解が得難いがゆえに、様々な物理系において観測がなされている他、数値計算による解明が進んでいる。超伝導渦糸系でも渦糸殻構造などに注目した同様の研究が行われた。今回、メソスコピックサイズの高温超伝導体を用いることで、自己組織化した渦糸結晶状態の融解転移を観測でき、その転移温度からエネルギー的な安定性を調べることが可能であることを示した。また、サブミクロンサイズまでの微小化を進める上で得られた微細加工の技術的知見や微小試料中の渦糸物性の理解は、未来の高温超伝導単結晶デバイス応用につながることを期待される。

研究成果の概要(英文)：High-Tc superconductors exhibit unique vortex states, e.g., vortex solid to liquid phase transition and vortex glass transition, because of their large thermal fluctuation and highly-anisotropic layered structure. To investigate how the vortex states are modified by reducing the lateral size of crystals, we have performed c-axis transport measurements in a wide range of temperature and magnetic field using various shapes (equilateral triangle, square, pentagon, hexagon, etc.) and dimensions (from sub to 10 micron) of samples fabricated by a focused ion beam. As a result, we succeeded to explore the vortex state down to 5K and to reveal vortex states even in a sub-micron sample. Furthermore, in comparison with numerical simulations of the configuration of vortices in various shapes, we could understand the reason of the oscillating behavior of the melting transition temperature, which is specific in mesoscopic samples.

研究分野：超伝導物性

キーワード：高温超伝導 渦糸 メソスコピック 正多角形

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

(1) 銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ (Bi2212) の CuO_2 超伝導面に垂直な磁場中の渦糸（磁束量子）は、超伝導層間の結合が弱いために、パンケーキ渦糸が緩く結合し積層した構造をとる。層状構造に起因する大きな異方性や、短いコヒーレンス長、高い超伝導転移温度のために、熱揺らぎの影響を大きく受け、独特の相状態をもつことが理論・実験の両面からの精力的な研究により明らかにされてきた。特に Bi2212 においては、高温高磁場の広い渦糸液体領域の存在と、Bragg グラス相と呼ばれる結晶相から液体相への融解転移が明瞭な一次相転移として観察できることが特徴的である。

(2) 一方で、一般に微小な超伝導体中の渦糸は、試料端を流れる遮蔽電流により試料境界からの影響を大きく受ける。実際 90 年代後半から、従来超伝導体薄膜試料を用いた多くの実験がなされ、 $2\Phi_0$ 以上の磁束を持つ巨大渦糸の存在や渦糸殻構造などの新規な渦糸状態が明らかにされた。高温超伝導体においても、磁場侵入長程度まで微小化すると、閉じ込めの影響が渦糸状態に反映されると予想される。大きな熱揺らぎ・内在する無数のピン止め・2 形態の渦糸（パンケーキ渦糸、ジョセフソン渦糸）という高温超伝導体ならではの性質の上に、試料サイズ・形状という人工的に制御可能な要因が加わった際に、渦糸系の相状態やダイナミクスがどのように変化するかは非常に興味深い。

(3) 最近、我々は Bi2212 に内在する固有ジョセフソン接合を利用して、5-10 μm 幅の正方形 Bi2212 試料の渦糸状態について調べ、渦糸結晶と試料形状との整合性を反映して、渦糸固体-液体間の 1 次相転移線が渦糸数により振動する現象を見出した。その振動周期は、高磁場になるに従い長くなり、およそ平方数で表される周期になること明らかにした。これまでの実験が、測定範囲が高温 ($>60\text{K}$)・低磁場 ($<200\text{Oe}$) に限られており、より低温・高磁場領域の固体相や秩序無秩序転移付近について十分な測定がなされておらず、また、より微小な試料、ナノ構造を導入した試料、正方形以外の形状などでの振る舞いなどに関しては、未探索であった。

2. 研究の目的

(1) 背景で述べたように、高温超伝導体中の量子渦糸状態は、大きな熱揺らぎと異方性のために、従来超伝導体と異なる独特の相状態や相転移（固体液体転移、ガラス転移など）を持つことが知られているが、この渦糸系を小さな空間に閉じ込めた場合の状態については、これまでほとんど研究がなかった。また、金属や半導体、コロイド系などにおいては、少数の構成要素からなるナノ結晶（クラスター）の融解転移の研究が多数なされており、渦糸結晶系は他の少数粒子系の融解転移との比較対象として興味深い。高温超伝導体 Bi2212 を用いる方法では、渦糸の本数を容易に制御できる他、明瞭な 1 次相転移として融解転移を観察できること、熱力学量である磁化の直接測定が可能な点など、Bi2212 ならではのメリットも多い。本研究では、純良かつ微小な単結晶試料を準備し、その中に渦糸量子を本数を制御して閉じ込め、固有ジョセフソン接合特性などを利用して、閉じ込められた少数渦糸状態の全容を明らかにすることを第一の目的とした。

(2) これまで、微小ホール素子による局所磁化測定や磁気光学的手法による渦糸の可視化などが試みられてきたが、我々の固有ジョセフソン接合特性をプローブとする方法により、一気に一桁小さいサイズでの渦糸状態が観測できるようになり、閉じ込め効果が顕著化してくる試料スケールが分かってきた。本研究では、劣化のないより微小な試料作製に取り組むとともに、数 μm からより小さいサブ μm までの系統的にサイズを変えた微小試料を準備し、閉じ込められた少数渦糸状態がどのような変更を受けるか調べる。特に、融解転移の他、ガラス転移や欠陥に誘起された秩序無秩序転移などの高温超伝導体の渦糸系ならではの相転移がどのように変更されるか興味深い。さらに、微小試料ではサイズだけでなく形状も重要なファクターである。正方形だけでなく、正 3 角形、5 角形、6 角形、円形など、他の形状での渦糸配置を数値計算も交えて調べ、実験との比較により安定な渦糸配置とその規則性を明らかにする。

(3) 応用に向けた視点から見ると、単一渦糸の本数制御やダイナミクス制御は、渦糸を用いた高温超伝導デバイスを創り出す上で欠かせない技術になると思われる。渦糸の出入りに強く係ってくる形状バリア・表面バリア（Bean-Livingston バリア）のナノ構造による制御や、電磁場との結合、コントロール端子の導入など、高温超伝導体での単一渦糸の基礎的な振る舞いの理解とともにその制御を目指し、色々なアイデアを試みる。

3. 研究の方法

(1) 全ての実験には、溶媒移動型浮遊帯域溶融法（TSFZ 法）により成長した高品質 Bi2212 単結晶を用いた（茂筑高士氏（研究協力者）提供）。Bi2212 ではキャリアドーピング量に応じて異方性が変化し、それに合わせて渦糸相図も変化する。ドーピング量はロッド毎に多少ばらつきがあり、予め Bi2212 結晶のおよそのドーピング量を知るため、各母結晶からサンプルピースを取り出し面内抵抗測定により事前に評価した他、場合によっては酸素分圧と温度を制御した雰囲気中でのアニール処理を施した。得られた単結晶は、テープ劈開により 1 μm 以下まで薄膜化したの

ち、主に Focused Ion Beam (FIB)を用いて微細加工した。H.B.Wang (研究協力者) の協力のもと、FIB のみを用いた両面加工プロセスにより低ダメージで多様な形状を作り出した。例として、様々な正多角形状の固有ジョセフソン接合スタックを図 1 に示す。これらの他、系統的にサイズの異なる正方形スタックや、サブミクロンスタック、電流制御ライン付・磁束ダム付構造、なども作製した。FIB のみのプロセスの利点として、光・電子リソグラフィの工程を含むプロセスと比べ非常に少ない工程で加工できることが挙げられるが、欠点はビームエネルギーが大きく、加工部分周辺がアモルファス化することである。両面加工プロセスでは、スタックが垂直にビームに曝されることがないため比較的良好な接合特性が期待できるが、加工端付近には加工ダメージが残存する。そのため、ナノワイヤ形状の試料に加工した試料を作製することで、超伝導特性の劣化が顕在化しない最小線幅を事前に評価した。

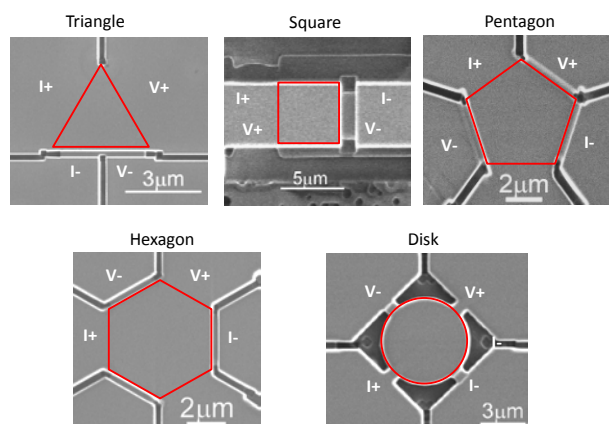


図 1 様々な多角形状の Bi2212 固有ジョセフソン接合スタック

(2) より低温・高磁場での測定を可能とするために、高温超伝導線材を用いたコイルを組み込んだ冷凍機冷却による測定装置を立ち上げた。また、従来からある冷凍機冷却測定装置に 1kG 程度の磁場を印加できるように、新たに水冷銅マグネットも準備し測定に用いた。これらにより、測定可能温度範囲は 3K 程度、磁場は 1kG-2kG 程度を定常的に出せるようになった。数ミクロンサイズのメソスコピック Bi2212 において一本一本の渦糸が試料中へ侵入する様子をプローブできる固有ジョセフソン接合特性測定、主に c 軸方向の磁場中抵抗測定により、渦糸状態を調べた。40-50K 以下の低温側で試料に内在するピン止めの影響が急激に強くなり抵抗観察が困難な場合には、相補的に c 軸臨界電流測定を中心に行った。

(3) 立木実氏 (研究協力者) の協力のもと、GL 方程式に基づいた有限要素法による渦糸配置計算を、2 次元の様々な試料形状にて行った。実験的に得られた形状マッチングによる安定な渦糸数との比較を行うことで、形状マッチングの際の渦糸配置と、マッチングしていない場合の渦糸結晶中の欠陥構造をドロネー三角形分割解析により調べた。

4. 研究成果

(1) サイズ依存性と低温渦糸状態

試料サイズの減少に伴い、最初の渦糸が試料中に侵入する磁場 (第一渦糸侵入磁場) は大きくなるが、その温度依存性は図 2 に示すように超伝導転移温度近傍で急激に減少する上に凸の曲線を描くことを見出し、これはパンケーキ渦糸が連なった 1 本の渦糸として微小試料中に安定に存在できる磁場と一致することを確かめた。また、磁場掃引に対して可逆な振る舞いをする約 60K 以上の高温側と対照的に低温では大きなヒステリシスが見られる。これは、低温での第一渦糸侵入磁場の温度依存性から、低温側で急激に増大することが予想される表面バリアによるものであると考えられる。試料サイズが 1 μm まで小さくなると、そもそもの渦糸数が測定領域で数本程度しかなく、融解転移やピーク効果と呼ばれる低温側の秩序無秩序転移を観察することはできなかった。通常、ピン止めが増大しパンケーキ渦糸のフローは発生しないと予想される十分低温でも、磁場掃引過程では、c 軸抵抗が発生することを見出した。例えば、図 2 では 30K 付近まで渦糸侵入に伴う抵抗を確認できる。これは、パンケーキスタックがジグザグ構造をとることにより生成されたジョセフソン渦糸のフローが原因であると考えている。試料によっては 5K においても大きなフロー抵抗が発生した。

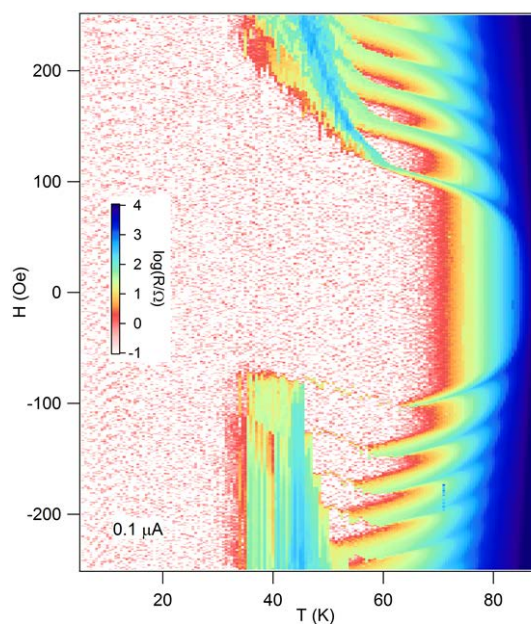


図 2 1 μm 角正方形試料における低温を含めた渦糸状態. $\log R_c$ の磁場温度に対するカラーマップ.

(2) 渦糸融解転移振動における温度振幅のサイズ依存性

融解転移線の磁気振動現象を明瞭に確認できたのは現状一辺のサイズで $5\mu\text{m}$ までである。振動の温度振幅のサイズ依存性を図 3 に示す。およそべき関数で表される直線でフィッティング可能であった。試料形状と渦糸結晶が整合した形状マッチング状態に比べ、マッチングしていない場合に強制的に生成される刃状転位のエネルギー分だけ自由エネルギーが増大するというモデルを考え、予想される融解転移温度の減少を見積もった (黒破線)。その結果、定量的にもおよそ一致することを見出した。

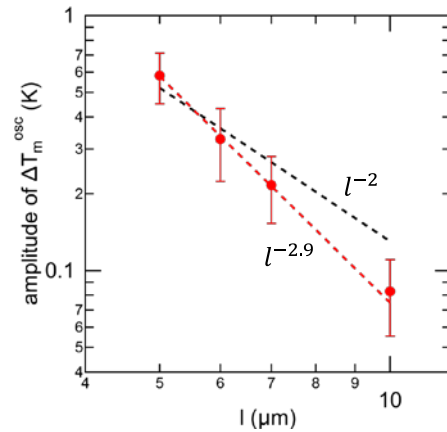


図 3 融解転移振動における温度振幅のスタックサイズ依存性 [雑誌論文 2].

(3) SQUID 構造の試作と磁気抵抗振動

固有ジョセフソン接合 2 個を並列に接続することで SQUID としての動作が期待できる。すでに幾つかの報告があるが、必ずしも綺麗な SQUID 振動ではなく、再現性にも乏しい。追試もかねて SQUID 構造の試作を行い、評価した。作製した試料写真を図 4 に示す。結果として、磁気振動現象を観測したが、これはループ面積に対応した磁場周期の SQUID 振動ではなく、各々の固有ジョセフソン接合スタックへの渦糸侵入による二つの振動が重ね合わさったものであることを明らかにした。

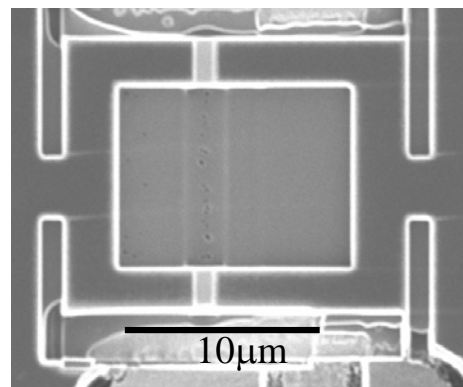


図 4 Bi2212 のみで作製した SQUID 構造の例 (並列接続した 2 つの固有接合) [雑誌論文 3].

(4) サブミクロン試料中の渦糸状態

試料の微細化を進めた結果、最小で $0.75\mu\text{m}$ 角までのスタック作製に成功した [雑誌論文 1]。偶然にもスタック中の接合が抵抗でシャントされたと思われる IV 特性で、そのために良好な抵抗測定が可能であったと考えられる。意図的なシャント抵抗の挿入が、より微小な試料の測定に有効であることを示唆する結果であった。渦糸の振る舞いとしては、図 2 に示した $1.0\mu\text{m}$ スタックのものと同様の結果であった。

(5) 様々な正多角形中の渦糸配置と融解転移振動

形状に関しては、正三角形、正方形、正五角形、正六角形、円形といった対称性の良い試料形状を重点的に作製評価した。試料面積は約 $25\mu\text{m}^2$ に固定した。正三角形・正六角形においては、以下に述べるシミュレーションとも整合する良好な結果を得、振動のメカニズム解明に非常に有用であった。一方で、正五角形、円形試料は FIB ミリングの加工数や加工時間が増加したためか、明瞭な融解転移を観測することができなかった。特に円形では、渦糸殻構造においてマジック数と呼ばれる特別な渦糸数の存在が示唆されており、今後も測定を継続する。

(6) GL 方程式を用いた有限要素法シミュレーション

パラメトリックに磁場を掃引することで渦糸数を 1 つずつ増加させながら、様々な形状での渦糸配置を GL 方程式に基づいた有限要素法により計算した。その結果、試料形状に応じて無欠陥配置の現れ方に周期性があることが分かった。正三角形試料での特徴的渦糸数は、いわゆる三角数 ($1, 3, 6, 10, \dots, n(n+1)/2$) となり、正方形では平方数 ($1, 4, 9, \dots, n^2$)、正六角形では中心付六角数 ($1, 7, 19, \dots, n^3 - (n-1)^3$) を含む独特の周期性が見出された。正方形では、平方数の時、形状マッチングが実現すると思われるが、磁気振動はブロードである。シミュレーション結果からは、平方数における渦糸配置は完全な正方格子配置ではなく、一軸方向に互い違いに列がずれた歪んだ正方格子として、整合性を保つという結果を得た。正五角形では、欠陥構造を含まないマッチング配置は渦糸数 10 以上では見出されず、必ず何らかの欠陥が入り、渦糸数によってはペンローズ配置のような複雑な欠陥すら発生することが分かった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

1. Shuichi Ooi, Minoru Tachiki, Takashi Mochiku, H.B. Wang, Shunich Arisawa, Kazunori Komori,

Kazuto Hirata. "Vortex states in a submicron Bi2212 crystal probed by intrinsic Josephson junctions", Journal of Physics: Conference Series **969** (2018) 012034-1-012034-5, DOI: 10.1088/1742-6596/969/1/012034. 査読有

2. Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Minoru Tachiki, Kazuto Hirata. "Vortex states in micron-sized $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ crystals", Journal of Physics: Conference Series **871** (2017) 012019-1-012019-8, DOI:10.1088/1742-6596/871/1/012019. 査読有
3. Shuuichi Ooi, Takashi Mochiku, Minoru Tachiki, Kazuto Hirata. "Vortex Penetrations in Parallel-connected two Stacks of Intrinsic Josephson Junctions", Physics Procedia. **81** (2016) 85-88. DOI:10.1016/j.phpro.2016.04.033. 査読有

[学会発表] (計 14 件)

1. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 平田 和人, 小森 和範, 有沢 俊一. "Geometrical matching of vortex clusters in micron-sized superconducting regular polygons", The 31st International symposium on superconductivity. 2018
2. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 小森 和範, 平田 和人, 有沢 俊一. 「微小 Bi2212 単結晶中の渦糸状態」つくば-柏-本郷 超伝導かけはしプロジェクト ワークショップ. 2018
3. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 小森 和範, 平田 和人, 有沢 俊一. 「様々な形状の微小 Bi2212 における渦糸微結晶融解転移」日本物理学会 第 73 回年次大会 (2018 年). 2018
4. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 小森 和範, 平田 和人, 有沢 俊一. 「微小 Bi2212 単結晶の渦糸相図」新規超伝導体・ナノ構造超伝導体における渦糸物理. 2018
5. Ooi, Shuuichi, TACHIKI, Minoru, MOCHIKU, Takashi, HIRATA, Kazuto, KOMORI, Kazunori, ARISAWA, Shunichi. "Control of a single vortex in a stack of intrinsic Josephson junctions", 30th International Symposium on Superconductivity (ISS2017). 2017
6. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 小森 和範, 平田 和人, 有沢 俊一. 「単一孔をもつ微小 Bi2212 単結晶中の渦糸」日本物理学会 2017 年秋季大会. 2017
7. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 王華兵, 小森 和範, 平田 和人, 有沢 俊一. "Vortex penetration into a sub-micron stack of intrinsic Josephson junctions of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ ", 28th international conference on low temperature physics. 2017
8. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 王華兵, 平田 和人, 有沢 俊一. 「サブミクロン固有ジョセフソン接合中の渦糸」日本物理学会 第 72 回年次大会 (2017 年). 2017
9. 立木 実, 大井 修一, 平田 和人, 有沢 俊一. 「超伝導磁束量子研究のための数値シミュレーション」COMSOL Conference Tokyo 2016.
10. Ooi, Shuuichi, MOCHIKU, Takashi, TACHIKI, Minoru, HIRATA, Kazuto. "Vortex states confined in triangle-shaped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ ", Plasma+ 2016. 2016
11. 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 平田 和人. 「微小 Bi2212 単結晶における低温渦糸固体相」日本物理学会 2016 年秋季大会. 2016
12. 石井 究, 立木 実, 大井 修一. 「ナノ構造高温超伝導体薄膜におけるラチェット効果」日本物理学会春季大会 2016. 2016
13. 大井 修一, 茂筑 高士, 立木 実, 平田 和人. 「正三角形微小 Bi2212 単結晶中の渦糸状態」日本物理学会 第 71 回年次大会 (2016 年). 2016
14. 大井 修一, 茂筑 高士, 立木 実, 平田 和人. 「固有ジョセフソン接合でみる渦糸状態」日本物理学会 第 71 回年次大会. 2016

[図書] (計 2 件)

大井 修一, 平田 和人. 「ジョセフソン磁束フロー抵抗振動」, 超伝導磁束状態の物理. (2017) 540-545

大井 修一. 「周期的ナノ欠損構造をもつ超伝導体」, 超伝導磁束状態の物理. (2017) 215-220

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

https://samurai.nims.go.jp/profiles/ooi_shuuichi

6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

氏名：茂筑高士

ローマ字氏名：Mochiku Takashi

氏名：立木実

ローマ字氏名：Tachiki Minoru

氏名：有沢俊一

ローマ字氏名：Arisawa Shunichi

氏名：王華兵 (2016-17 年度のみ)

ローマ字氏名：Wang Hua-bing