

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05256

研究課題名(和文)メソスコピック高温超伝導体中に誘起されたジョセフソン磁束量子のダイナミクスと制御

研究課題名(英文) Dynamics of Josephson vortex induced in mesoscopic high-Tc superconductors and the artificial control

研究代表者

大井 修一 (001, Shuichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・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) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：銅酸化物高温超伝導体Bi2212単結晶は原子層ジョセフソン接合(固有ジョセフソン接合)を内蔵する。接合抵抗は、パンケーキ磁束侵入に誘起されたジョセフソン磁束量子のダイナミクスと関係すると考えられるため、様々な形状に加工された微小Bi2212単結晶の面直磁気抵抗を測定し、磁束量子の配置や一本一本の侵入過程などの静的・動的情報を得ること、及び単一孔を導入することで現れる磁気量子振動現象について調べた。試料加工方法の探索のほか、磁気光学イメージングを用いた磁束状態の可視化や制御にも取り組み、異種超伝導体中の磁束量子によるBi2212磁束量子の制御の可能性を示すなどの成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

狭い領域に閉じ込められた相互作用する粒子系の普遍的性質を調べる上で、微小Bi2212におけるパンケーキ磁束およびジョセフソン磁束系は、固有ジョセフソン接合の電気特性を通してその状態を知ることができる独特な研究対象の一つである。様々な形状に加工されたBi2212単結晶の固有ジョセフソン接合特性を通して、2種類の磁束量子によって生み出される静的・動的な磁束の振る舞いについて理解を深めることができた。さらに、直接磁束状態を可視化する試みにより、磁束量子制御につながる成果を得ることができた。

研究成果の概要(英文)： The copper oxide high-Tc superconductor Bi2212 single crystal incorporates an atomic layer Josephson junction (intrinsic Josephson junction). Since junction resistance is considered to be related to the dynamics of Josephson vortex induced by pancake vortex penetration, we measured the in-plane magnetoresistance of micro Bi2212 single crystals fabricated in various shapes to obtain static and dynamic information on the vortex arrangement and respective penetration processes. We also studied the magnetic quantum oscillation phenomenon that appears when a single hole is introduced. Furthermore, along with the study of sample fabrication methods, we also worked on visualization and control of vortex states by magneto-optical imaging and obtained certain results, such as showing the possibility of vortex control in Bi2212 by vortices in different superconductors.

研究分野：超伝導

キーワード：固有ジョセフソン接合 ジョセフソン磁束 パンケーキ磁束 磁気量子振動 磁気光学イメージング

## 1. 研究開始当初の背景

(1)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-y}$  (Bi2212) は、超伝導層 (CuO<sub>2</sub> 面) と絶縁層 (ブロック層) が交互に積層した結晶構造をもつ銅酸化物高温超伝導体である。2次元性が強く超伝導層間がジョセフソン結合しており結晶そのものが天然の原子スケール積層ジョセフソン接合 (固有ジョセフソン接合) である。90年代初頭にこの特性が発見されて以降、固有ジョセフソン効果を用いた THz 電磁波励起・放射や単一クーパー対トンネル現象、巨視的量子トンネル現象など、応用面でも興味深い現象が起こりうる事が指摘、確認され、多くの関心が寄せられている。このような超伝導体に磁場を印加すると、超伝導層に局限した面直 (c 軸) 方向のパンケーキ磁束と超伝導面間に入るジョセフソン磁束から成る磁束状態が生じる。例えば、c 軸磁場中では、パンケーキ磁束が層間で緩く結合し連なった構造となる。Bi2212 では大きな熱揺らぎのために、パンケーキ磁束系は、低磁場・低温側で三角格子磁束固体相から、一次融解転移を経て磁束液体相へと相転移することが知られているが、このような磁束系をメゾスコピックスケールの領域に閉じ込めると磁束状態が静的・動的にどのような影響を受けるか調べた研究はほとんどなかった。

(2) 最近我々は、数  $\mu\text{m}$  以下まで微小化した正方形 Bi2212 単結晶において c 軸磁気抵抗測定により、磁束量子 (パンケーキ磁束の連なり) が一本一本侵入するのを検知できることを利用して、少数磁束系の相転移を調べることが可能なことを見出した。これまでに様々な幾何学的形状において磁束配置の安定性や磁束格子融解転移への影響などについて研究を行ったが、観測手段である c 軸電気抵抗という動的な物理量が、パンケーキおよびジョセフソン磁束のダイナミクスとどのように結び付いているのかについては不明な点が多い。単純には、パンケーキ磁束侵入に誘起されたジョセフソン磁束量子フローが抵抗発生の原因であると考えられるが、抵抗変化を定量的に理解しようとする問題がある。上記の解釈では、磁束量子の逐次侵入に対して方形波的磁場依存性が予想されるが、実際には、高温高磁場での正弦波的振動から、低温でのステップもしくはノコギリ刃状や、スパイク状抵抗変化まで観察される。誘起されるジョセフソン磁束の本数やフロー状態なども未解明である。そのため、この磁気振動を真に理解するには、パンケーキ磁束やそれによって誘起されるジョセフソン磁束の静的状態・ダイナミクスと、磁気抵抗変化の間の関係を明らかにする必要がある。

## 2. 研究の目的

(1) メゾスコピックサイズ Bi2212 高温超伝導体における c 軸磁場下での c 軸電気抵抗は、パンケーキ磁束侵入に誘起されたジョセフソン磁束量子のダイナミクスと関係すると考えられる。第一段階として、閉じ込められた磁束量子系の静的・動的な特性について基礎的な知見をより深めるため、実験・計算機シミュレーションの両面から様々な 2 次元形状 (特に正多角形) をもつ固有ジョセフソン接合スタックへの磁束量子の侵入や配置について調べる。その上で、単一孔をもつ固有ジョセフソン接合試料においては、パンケーキ磁束の逐次侵入によると思われる磁気抵抗振動と、誘起されたジョセフソン磁束のフロー状態といったダイナミクスやその制御性について理解を深め、新規な超伝導磁束量子デバイスへとつなげる。

(2) パンケーキ磁束侵入や磁束配置についてより直接的な観察を行うことができると磁束量子の制御に向けて格段に理解が進むと考えられるが、Bi2212 単結晶単体での単一磁束量子観察は非常に難易度が高いことが予想される。そのため、より磁場侵入長が短く可視化に適したニオブ単結晶と Bi2212 とのハイブリッド構造において磁束集団の動きの可視化を試みる。特に、高純度ニオブ結晶では磁束量子間の引力相互作用のために、磁束量子がクラスターを形成する。この磁束クラスターは通常の偏光顕微鏡を用いた磁気光学イメージング法によって観察可能であるため、Bi2212 単結晶の劈開薄膜と組み合わせると、Bi2212 中の磁束量子制御の可能性を探る。

## 3. 研究の方法

(1) 数  $\mu\text{m}$  程度の微小試料に関しては、FIB のみを使用したこれまでの作製プロセスを踏襲し、多角形試料のほか、単一孔をあけた試料やより大きなループ形状試料など、様々な形状の試料を準備した。ただし、これまでの経験では、明瞭な融解転移ジャンプと単一磁束量子侵入ステップが見える試料の歩留まりは低かった。そのため、元となる Bi2212 単結晶試料のマクロなスケールの不均質性を評価するため、磁気光学イメージング法を用いた Bi2212 の観察も実施した。観測結果との比較のため、有限要素法や分子動力学法によるシミュレーションを合わせて行い、微小超伝導体中の磁束量子配置とその周期律について調べた。一方、測定においては、両面微細加工により 3 次元的に試料形状を工夫することや、市販の高精度電圧電流源や独自の低ノイズ電流源などを組み合わせてノイズ低減を図った。磁束量子侵入による磁気抵抗振動の交流測定では、1kHz 程度の低周波磁場に対する応答を測定した。高周波応答としては、10GHz 程度のマイクロ波印加による c 軸抵抗の変化を調べた。

(2) 従来の収束イオンビーム (FIB) 装置のみを利用した試料加工では、大面積加工と試料

ダメージ低減を両立させるのは困難であったため、より効率的な試料作製プロセス開発を目指して、初年度に Bi2212 単結晶加工のためのプロジェクト方式のマスキング露光装置を導入した。固有接合部分や配線に必要な部分以外の Bi2212 を完全に取り除き、余計な Bi2212 からの磁化の影響を減らすため、当初、光リソグラフィと Ar イオンミリングによる大面積の粗加工と FIB による仕上げ加工とを組み合わせることでダメージと加工時間を抑えることを目論んだ。しかしながら、Ar イオンミリング装置に故障が発生し結果として未達であった。打開策として、イオンミリング以外の加工方式として、様々なエッチャントによる湿式プロセスの条件出しを進めた。近年、劈開により単結晶の質を保った原子層薄膜が得られるようになり、2次元超伝導研究においても新たな発見が相次いでいる。Bi2212 では劈開によりすでに原子層超薄膜が得られ詳細な研究がなされているが、我々は希塩酸をエッチャントとした時に Bi2212 が BiClO に変換される現象に注目し、この方法での超薄膜化が可能か調べ、大面積固有ジョセフソン接合への適用可能性を探った。

(3) 磁束配置などの静的な状態や比較的遅い磁束の運動状態については、直接可視化できると非常に理解しやすくなる。そのため、開発を進めている磁気光学イメージング装置を用いて磁束量子や磁場分布の可視化を試みた。特に、低温のピン止め効果が非常に強くなる領域でのパンケーキ磁束侵入の制御のために、高純度 Nb 単結晶/Bi2212 薄膜ヘテロ構造での観察を行った。

#### 4. 研究成果

(1) 系の熱的な安定性と密接に関係する磁束格子融解転移について、これまでに引き続き磁束量子本数依存性や形状依存性を調べた。正 3 角形状では三角数において融解温度が極大値をとり、その磁束数が実現する磁場範囲 ( $\Delta H$ ) も広くなる一方、三角数以外では融解温度が抑制される[1]。この周期性は、三角数の場合磁束がピラミッド状に無理なく配置され、2次元幾何学的なマッチングにより安定性が高いことから定性的に理解でき、元素周期律表の「希ガス」と類似性がある。GL 方程式に基づいた有限要素法シミュレーションとの比較から、多くの非マッチング状態において、単一の刃状転位が磁束クラスター(磁束固体)内に発生すること、特に、希ガスの一つ手前の「ハロゲン」状態では、刃状転位が磁束クラスターのエッジに移動することを見出した。このため、ハロゲン状態では刃状転位がクラスター外へ排出され易く不安定であることが予想される。実際に、三角数の直前の磁束数においては  $\Delta H$  がより小さくなることが実験的にも観察された[1]。

図 1 (左) に示すような正 6 角形状での周期律はさらに興味深い。シミュレーション結果からは、図 1 (右) に示すような周期律が予想される。中心つき六角数(左端列)での 2次元幾何学マッチングは容易に予想できるが、それ以外に若干対称性が低い状態でも刃状転位が生じない配置がありえる。実験においては、この低対称性マッチングも完全マッチング同様に観測された。さらに、刃状転位が中心に位置するような配置でも磁束クラスターの安定性が観測された。以上のように、狭い領域に閉じ込められた磁束クラスターにおける融解転移温度の抑制現象は、試料形状と磁束三角格子の不整合のために磁束クラスター中に誘起される刃状転位の安定性が関係すると考えられる。

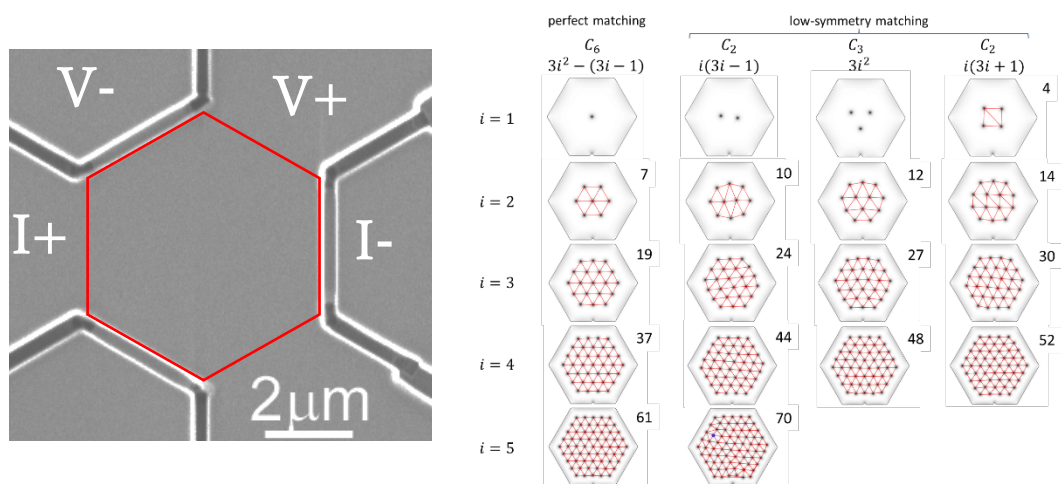


図 1 : (左) FIB により加工されたメゾスコピック正 6 角形 Bi2212 固有ジョセフソン接合試料。(右) 正 6 角形試料で予想される周期律 (シミュレーション)。

(2) 図 2 (左) に示すような単一孔を開けた微小試料においては、磁束量子侵入に伴う綺麗な磁気量子振動が広い磁場範囲で現れることが分かってきた。FIB のみを使用して加工した試料においては、100Hz 程度の比較的low周波数の交流磁場による単一孔をもつ固有ジョセフソン接合の応答を調べた。図 2 (右) のように、Bi2212 の c 軸磁場下の磁束相図のいわゆるデピニング転移ライン付近である 70K 辺りを境に、低温側でヒステリシスが顕著であったが、高温側ではきれ

いな正弦波的応答を得ることができた。よりサイズの大きな  $10\ \mu\text{m}$  方形ループ形状で線幅  $2\ \mu\text{m}$  の試料で  $1\text{kHz}$  付近までの磁場変調に辛うじて抵抗変化が追従したが、掃引方向によるヒステリシスと非対称な応答は残存した。さらに低温まで測定温度範囲を広げ、ピン止めの影響がかなり強くなる  $10\text{K}$  以下の低温領域でもパンケーキ磁束侵入に伴い誘起されたとされるジョセフソン磁束フローによる抵抗の発生が観測されたが、フロー抵抗が発生するタイミングは不規則であった。また、マイクロ波照射によるパンケーキ磁束誘起ジョセフソン磁束フローへの影響を調べた。周期的な回転フローとマイクロ波周波数の一致によるシャピロステップ様の共鳴現象を期待したが、これは観測できなかった。パンケーキ磁束侵入に誘起されたジョセフソン磁束の振舞いに関して本研究で得られた知見は、学会にて発表された[2]。

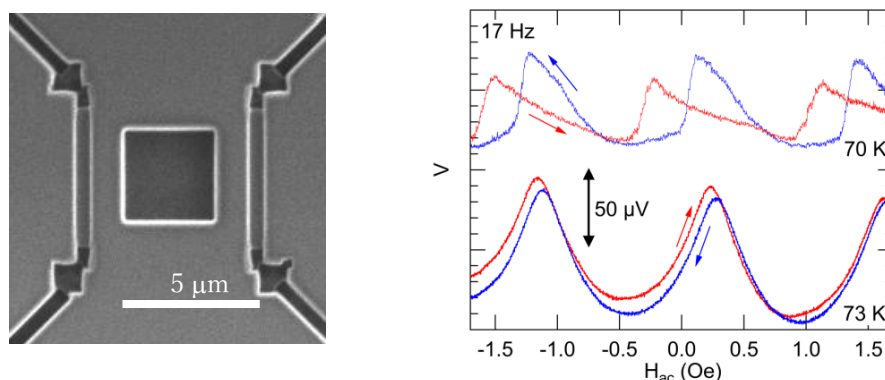


図 2： 単一孔をもつ Bi2212 の固有ジョセフソン接合 (左) と、その交流磁場応答 (右)

(3) イオンミリング以外のエッチング方式として、様々なエッチャントによる湿式プロセスの条件出しを進めた。特に希塩酸を用いた BiClO への物質変換プロセス法で比較的良好な加工条件を見出した。多くの場合に、横方向のエッチング速度が速く、レジストマスク下部への回り込みの影響で試料サイズのコントロールが困難であったのに対し、希塩酸を用いた BiClO への物質変換法ではこの影響が十分小さく抑えられた。図 3 に示すように、接合作製の前段階として、この方法による薄膜化と同時に面抵抗測定を行うことで、どこまで超薄膜化可能か調べた所、ハーフユニットセル単位で 4-5 層程度までの薄さまで Bi2212 が薄膜化され、かつ表面には BC10 保護膜が形成されたと考えられる試料を得ることができた。今後の大面積接合作製において、簡便な加工プロセスとなり得る。

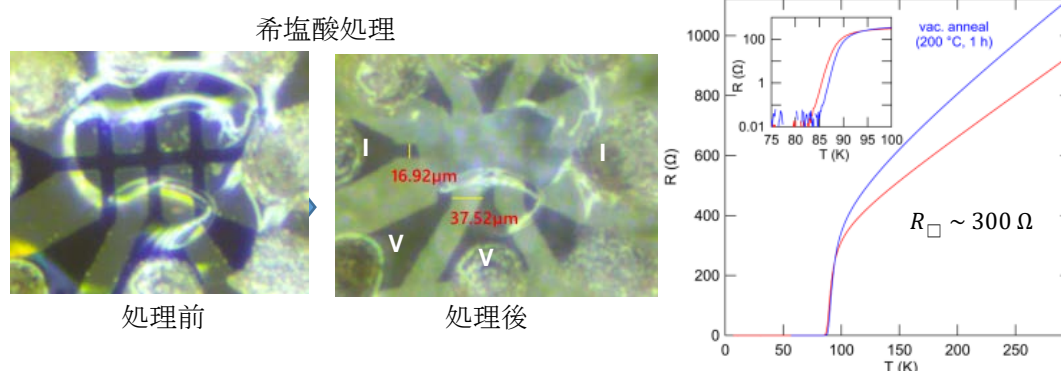


図 3： (左) 希塩酸処理による Bi2212 試料の変化。(右) 希塩酸処理による超薄膜化後の電気抵抗の温度依存性。得られた面抵抗値は、厚さ 4-5 層 (half unit cell) に相当。

(4) 静的な磁束量子配置や磁場分布を調べるために、磁気光学イメージングによる直接観測実験を行った。高純度ニオブを用いた観察では、磁束量子が凝集した磁束クラスター状態 (中間磁束状態) を確認した[3]。現状、磁気光学イメージング装置の性能は単一磁束量子分解能が視野に入ってきており、高純度ニオブで観察される磁束クラスターのサイズを小さくし Bi2212 の磁束量子制御できないかという着想で、地磁気程度の弱磁場での磁束クラスター観測実験を行い、10 本程度のクラスター観察に成功した (図 4 (左))。

さらに、高純度ニオブ上に Bi2212 薄膜を貼りつけた試料を準備し、ニオブ中の磁束クラスターによる Bi2212 中の磁束量子の操作を試みた。その結果、ニオブ内に形成されるクラスターの磁場により Bi2212 中でも磁束クラスターが観察された。また、 $100\text{nm}$  より薄い試料ではニオブ中の磁束クラスターに引きずられて Bi2212 中のクラスターが運動する様子を可視化できた。こ

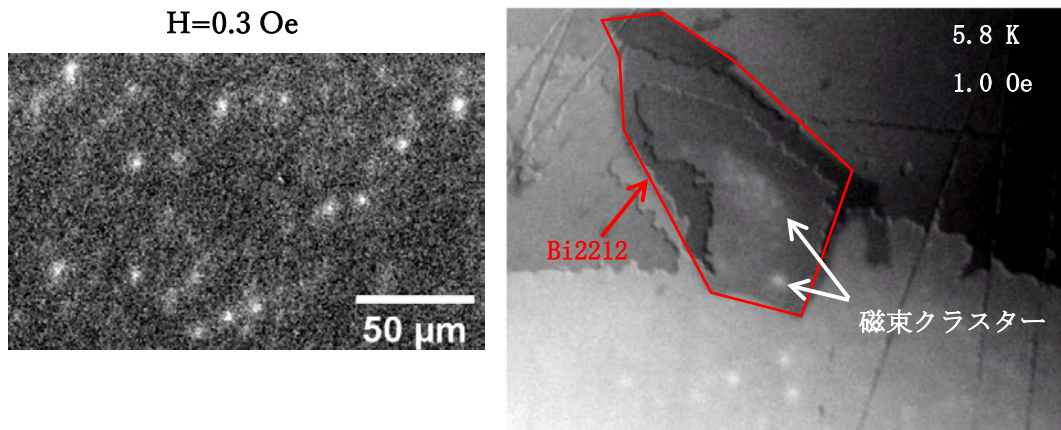


図4：(左) 高純度ニオブ単結晶における弱磁場で形成された磁束クラスター。クラスターの個数から1個のクラスターに磁束量子10数本が含まれると推測。(右) 高純度ニオブ上に貼り付けたBi2212中に生じた磁束クラスター。

のような異種超伝導体の組み合わせによって、より制御性の良いニオブなどにおける単一磁束量子を用いて、磁気結合したBi2212中の磁束量子を制御できる可能性を示すことができた。

<引用文献>

- [1] S. Ooi, M. Tachiki, T. Mochiku, K. Komori, K. Hirata, S. Arisawa. “Geometrical matching and its influence on the melting transition of confined vortices in a mesoscopic triangle of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  superconductor”, *Phys. Rev. B* **100** (2019) 144509.
- [2] 大井 修一、「固有ジョセフソン接合で探るBi2212の磁束状態」, 電子情報通信学会2022年総合大会チュートリアル講演.
- [3] S. Ooi, M. Tachiki, T. Konomi, T. Kubo, A. Kikuchi, S. Arisawa, H. Ito, K. Umemori, “Observation of intermediate mixed state in high-purity cavity-grade Nb by magneto-optical imaging”, *Phys. Rev. B* **104** (2021) 064504.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ooi S., Tachiki M., Mochiku T., Komori K., Hirata K., Arisawa S.	4. 巻 100
2. 論文標題 Geometrical matching and its influence on the melting transition of confined vortices in a mesoscopic triangle of Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> CaCu <sub>2</sub> O <sub>8+y</sub> superconductor	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144509
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.100.144509	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ooi S., Tachiki M., Konomi T., Kubo T., Kikuchi A., Arisawa S., Ito H., Umemori K.	4. 巻 104
2. 論文標題 Observation of intermediate mixed state in high-purity cavity-grade Nb by magneto-optical imaging	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 64504
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.104.064504	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 大井修一、立木実、菊池章弘、有沢俊一、許斐太郎、井藤隼人、加古永治、阪井 寛志、梅森健成
2. 発表標題 高純度ニオブにおける vortex bundle の磁気光学観察
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shuuichi Ooi, Minoru Tachiki, Akihiro Kikuchi, Shunichi Arisawa, Taro Konomi, Hayato Ito, Eiji Kako, Hiroshi Sakai, Kensei Umemori
2. 発表標題 Observation of Vortex Bundles in Type-II/1 Superconductor Niobium by Magneto-optical Imaging
3. 学会等名 The 33rd International Symposium on Superconductivity (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 小森 和範, 平田 和人, 有沢 俊一
2. 発表標題 正六角形Bi2212中に閉じ込められた渦糸の周期律
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大井修一
2. 発表標題 固有ジョセフソン接合で探るBi2212の磁束状態
3. 学会等名 電子情報通信学会2022年総合大会(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大井 修一, 立木 実, 茂筑 高士, 有沢 俊一
2. 発表標題 希塩酸処理によるBi2212超薄膜化
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 001, Shuuichi, TACHIKI, Minoru, KIKUCHI, Akihiro, ARISAWA, Shunichi, T. Konomi, T. Kubo, H. Ito, E. Kako, H. Sakai, K. Umemori
2. 発表標題 Observation of intermediate mixed state in high-purity cavity grade Nb by MO imaging and its implication to flux trapping mechanism
3. 学会等名 TTC 2022, TESLA Technology Collaboration (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 OOI, Shuuichi, TACHIKI, Minoru, KIKUCHI, Akihiro, ARISAWA, Shunichi, T. Konomi, T. Kubo, H. Ito, E. Kako, H. Sakai, K. Umemori
2. 発表標題 Magneto-optical imaging of vortex bundles in high purity Nb
3. 学会等名 34th International Symposium on Superconductivity (ISS2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大井 修一, 立木 実, 菊池 章弘, 有沢 俊一, 許斐太郎, 井藤隼人, 久保毅幸, 加古永治, 阪井寛志, 梅森健成
2. 発表標題 磁気光学イメージング法による超高純度ニオブの磁束状態観測
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

物質・材料研究機構 研究者総覧 <a href="https://samurai.nims.go.jp/profiles/ooi_shuuichi?locale=ja">https://samurai.nims.go.jp/profiles/ooi_shuuichi?locale=ja</a>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	立木 実  (TACHIKI Minoru)	物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員  (82108)	



6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	茂筑 高士  (MOCHIKU Takashi)	物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・主幹研究員  (82108)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関