

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2014

課題番号：23540422

研究課題名(和文) 酸化物高温超伝導体BSCCO単結晶を用いたdドットの作製と論理回路の構築

研究課題名(英文) Fabrication of d-dot by using high temperature oxide superconductor BSCCO single crystal and creation of logic circuit

研究代表者

川又 修一 (Kawamata, Shuichi)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50211868

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：dドットは、d波超伝導体がs波超伝導体に囲まれた超伝導複合構造である。本研究ではd波超伝導体として銅酸化物高温超伝導体BSCCO単結晶、s波超伝導体として鉛を用い、フォトリソグラフィおよびイオンミリング加工等の微細加工技術によりdドットを作製した。走査型SQUID顕微鏡を用いて磁束分布観測を行い、d波およびs波超伝導体における超伝導秩序パラメータ間の位相干渉により、dドットのコーナーに自発的に発生する半磁束量子を検証した。これにより、銅酸化物高温超伝導体BSCCOの超伝導波動関数対称性がd波であることに関して決定的な証明を与えることができた。

研究成果の概要(英文)：The d-dot is a composite structure where a d-wave superconductor is embedded in an s-wave superconductor. In this research, we used a high temperature cuprate superconductor BSCCO single crystal as the d-wave superconductor and Pb as the s-wave superconductor. The d-dot was fabricated by using photolithography technique and ion-milling method and so on. Magnetic flux distribution was measured by using a scanning SQUID magnetometer. The spontaneous half flux quantum due to the interference between the d- and s-wave superconductors has been observed at the corners of the d-dot. This observation crucially proves that the superconducting order parameter of the BSCCO has the d-wave symmetry.

研究分野：物性物理学(超伝導・磁性に関する実験)

キーワード：超伝導ナノ構造 超伝導接合 超伝導論理デバイス 超伝導磁束量子 銅酸化物超伝導体

1. 研究開始当初の背景

(1) dドットと半磁束量子の発生

超伝導体を用いた微細構造における新奇物性を目指して、s波超伝導体に囲まれたd波超伝導体の島という超伝導複合構造であるdドットが提案されていた。d波超伝導体では、 k_x 方向と k_y 方向で秩序パラメーター(超伝導電子対波動関数)に π の位相差がある。正方形のd波超伝導体をs波超伝導体で取り囲むと、d波超伝導体とs波超伝導体の秩序パラメーターが接触することにより位相干渉が起こり、自発的にd波超伝導体のコーナーを巡る電流が流れる。すなわち外部磁場がゼロであっても、正方形d波超伝導体、すなわちdドットの4角に磁束量子 Φ_0 の半分の大きさをもつ半磁束量子 $\Phi_0/2$ が自発的に発生する[1]。

(2) dドット周辺における磁束分布の計算

2成分 Ginzburg-Landau(GL) 方程式によりdドット周辺の磁束分布が計算されていた。その計算による磁束分布を図1に示す。図1 a), b)いずれにおいても実線枠よりも内側がd波超伝導体、外側がs波超伝導体である。図において濃度は、それぞれ+方向(赤:紙面に垂直上向き)、および-方向(青:紙面に垂直下向き)の磁束強度を表している。このようにdドットの4つのコーナーに自発的に発生する半磁束量子 $\Phi_0/2$ が、計算シミュレーションにより示されていた[2]。

ここで図1 a)のように右上と左下に+、左上と右下に-の磁束が発生する場合(状態0)と、図1 b)のように右上と左下に-、左上と右下に+の磁束が発生する場合(状態1)とではエネルギーが等しく、これら二つの状態は縮退している。

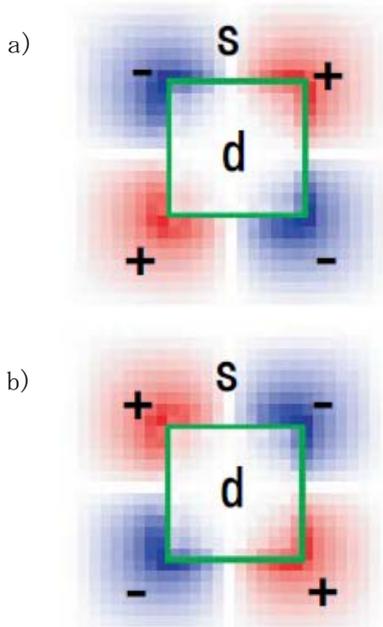


図1 dドットにおける磁束分布計算。
a) 状態0、b) 状態1。

dドットのサイズをジョセフソン接合の磁場侵入長よりも小さくすると、これら2つの状態間に量子ゆらぎが生じ、状態0と状態1の間に結合状態と反結合状態が生じることが示されている。すなわちdドットを用いた自発的に発生する超伝導半磁束量子系を用いて、全く新しい量子二準位系を創生できることが期待されている[3]。

(3) dドットを用いた論理回路の計算

2個のdドットを斜め対角方向に並べたときの、dドット間の相互作用について計算シミュレーションにより示されていた。dドットのサイズおよびdドット間距離を調整すると、2成分GL方程式による計算により、2つのdドットがどちらも状態0または状態1をとるような強磁性的な結合を安定化できることが示されている。これは最も近い2つの半磁束量子が融合し磁束量子 Φ_0 になったものである。図2にその磁束分布を示す。実線の内部がd波超伝導体、濃度が磁束強度を表している[4]。

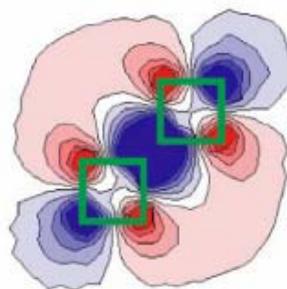


図2 2個のdドットが強磁性結合した磁束分布の計算。

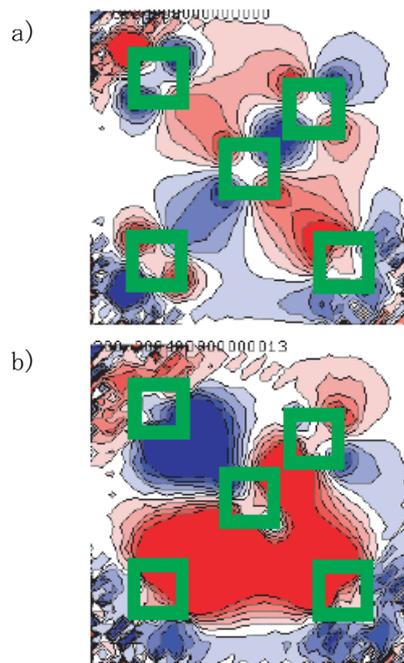


図3 dドットを用いた論理回路の計算例。
多数決回路、a) 初期状態、b) 終状態。

このような隣接する d ドット間の相互作用を用いて論理回路を構築できる。図 3 に時間に依存する 2 成分 GL 方程式を用いた、多数決回路における磁束分布の計算例を示す。図 7 a), b) にそれぞれ 5 個ずつ存在する四角い枠の内側が d 波超伝導体である。左上、左下、右下が入力用、中央が演算用、右上が出力用 d ドットである。図 7 a) に示す初期状態では入力が全て状態 1 となっている。ここで左上と左下を状態 0 にスイッチすると、図 3 b) に示すように、出力も状態 0 に変化する。この例のように、d ドットを用いて論理回路を構築できることが計算シミュレーションにより示されていた[5]。

2. 研究の目的

(1) d ドット作製と半磁束量子の検証

超伝導複合素子 d ドット、すなわち従来型金属 s 波超伝導体に囲まれた d 波超伝導体である酸化物高温超伝導体を作製し、超伝導波動関数の位相干渉により、d ドットのコーナーに自発的に発生する半磁束量子を検証する。

d 波超伝導体として銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (BSCCO) 単結晶を、s 波超伝導体として鉛を用いる。作製した d ドットについて、走査型 SQUID 顕微鏡を用いて磁場分布を観測することにより、ゼロ磁場において自発的に発生する半磁束量子 $\pm \Phi_0/2$ を検証する。

(2) d ドットを用いた論理回路の構築

複数個の d ドットを配列することにより、論理回路の構築を目指す。まず電流により図 1 a) の状態 0 と図 1 b) の状態 1 を切り替え制御できるようにする。s 波超伝導体の領域が d ドットの 1 つのコーナーの周囲のみ狭くなるように加工し、ここに電流を流すことにより 1 つの半磁束量子の方向を反転する。これにより d ドット状態 0 と状態 1 の間のスイッチングできるようになる。さらに、複数個の d ドットを配列作製し、d ドット間の相関を利用して、論理回路を構築する。これらについて、走査型 SQUID 顕微鏡を用いた磁束分布観測により動作を確認する。

3. 研究の方法

(1) d ドット作製

d 波超伝導体として FZ 法により作製した銅酸化物高温超伝導体 BSCCO 単結晶を、従来型 s 波超伝導体として鉛 Pb を用いた d ドットの作製手順は以下のとおりである。Si 基板にポリイミドを用いて接着した単結晶を剥離劈開により厚さ $2 \mu\text{m}$ 程度にし、レジストを用いてフォトリソグラフィした後、イオンミリング装置を用いて $40 \mu\text{m}$ 角程度に加工する。加工した BSCCO 単結晶試料の一例として、試料 #8L のレーザー顕微鏡による 3 次元画像、および断面プロファイルを図 4 に示す。BSCCO 単結晶の上面サイズは $38 \times 38 \mu\text{m}$ 、

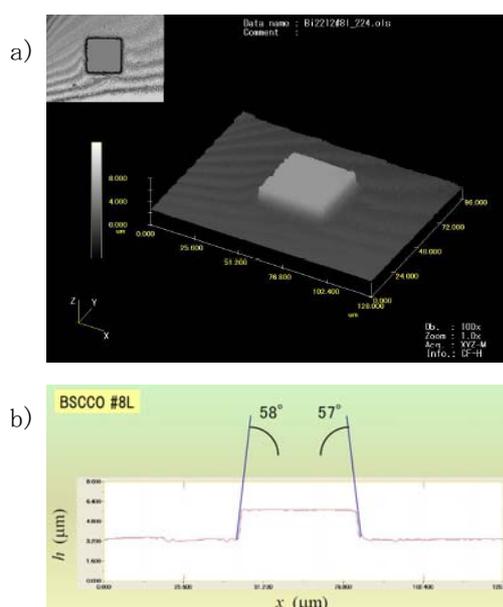


図 4 イオンミリング加工した BSCCO 単結晶 #8L、a) 3 次元画像、b) 断面プロファイル。

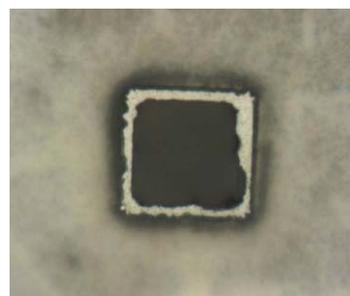


図 5 Pb に囲まれた BSCCO 単結晶 d ドット #8L。

基板表面からの高さは、ポリイミド接着剤の厚さを含め $2.5 \mu\text{m}$ である。d ドットでは、d 波超伝導体 BSCCO と s 波超伝導体 Pb との界面形状が大変重要である。加工した BSCCO 単結晶側壁部の傾き角は約 60° となっており、十分な接合面が得られることがわかる。BSCCO 単結晶と Pb との反応を防止するため、BSCCO 単結晶に Au を 6 nm スパッタし、再度フォトリソグラフィした後、Pb を $0.3 \mu\text{m}$ 程度蒸着しリフトオフする。以上により作製した d ドットの一例として試料 #8L の光学顕微鏡写真を図 5 に示す。中央が BSCCO 単結晶、周囲が Pb である。

4. 研究成果

(1) d ドット周辺の磁束分布観測

作製した d ドットについて走査型 SQUID 顕微鏡による磁束分布測定を行った。使用した装置では、内径 $7.5 \mu\text{m}$ のピックアップ・コイルを試料基板の直上でスキャンすることにより、磁束分布が測定される。図 6 に d ドット試料 #8d 周辺 $128 \times 128 \mu\text{m}$ の領域において $2 \mu\text{m}$ ステップでスキャンした磁束分布の観測結果を示す。四角い赤線の内側が BSCCO

単結晶、外側が Pb である。図 6 a) は BSCCO、Pb とも超伝導である温度 $T = 4.0$ K、図 6 b) は Pb の転移温度 $T_c = 7.2$ K よりも高い温度 $T = 12$ K での測定結果である。 $T = 4.0$ K では d ドット左上付近にプラス方向（紙面に垂直上向き）の磁束が観測され、これが $T = 12$ K では消滅しているのがわかる。 $T = 4.0$ K において左上付近に観測された磁束分布を積分すると $0.53 \Phi_0$ となり、半磁束量子であることがわかった。また $T = 4.0$ K では右下にもマイナス方向（紙面に垂直下向き）の磁束が観測されているが、 $T = 12$ K では見られない。したがって観測された磁束は、d 波および s 波超伝導体間における超伝導位相干渉により発生したものであることがわかった。

図 6 a) に示した $T = 4.0$ K における測定結果について、秋田大学 林正彦博士により、画像処理が行われた。使用した走査型 SQUID 顕微鏡の生データにおける空間精度は、ピックアップ・コイルの内径 $7.5 \mu\text{m}$ によって制限される。ここで実際の測定は、ピックアップ・コイルを $2 \mu\text{m}$ 間隔でステップ・スキャンしているため、本来 $2 \mu\text{m}$ の精度を有するデータを抽出できるはずである。フーリエ空間においてデコンボリューションし、実空間に再変換することにより得られた処理画像を図 7 に示す。d ドット左上コーナー付近にみられるプラス方向の磁束と右下付近におけるマイナスの磁束がより鮮明にわかる。

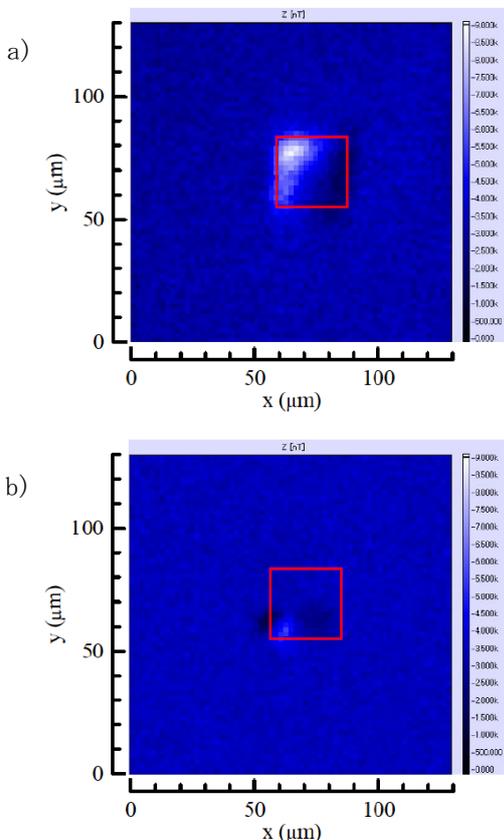


図 6 走査型 SQUID 顕微鏡による d ドット #8d 周辺の磁束分布、a) $T = 4.0$ K、b) $T = 12$ K。

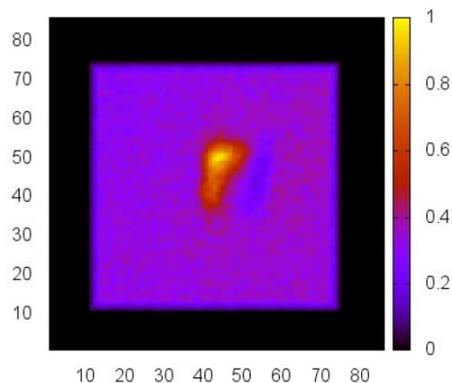


図 7 d ドット #8d 周辺の磁束分布 ($T = 4.0$ K)、画像処理後。

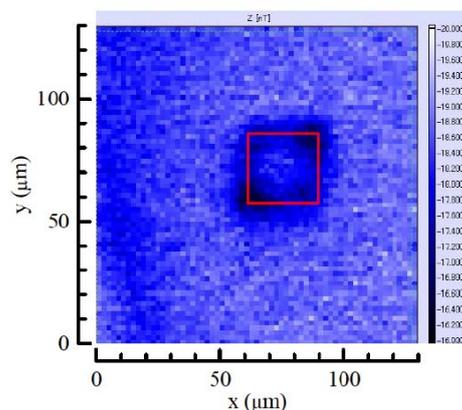


図 8 走査型 SQUID 顕微鏡による d ドット #8f 周辺の磁束分布 ($T = 3.2$ K)。

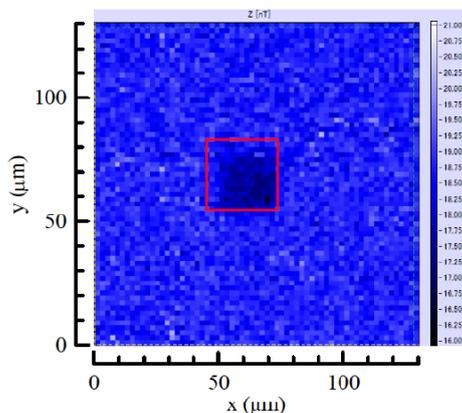


図 9 走査型 SQUID 顕微鏡による d ドット #8L 周辺の磁束分布 ($T = 3.1$ K)。

(2) d ドット半磁束量子発生再現性の検証

引き続き d ドット試料 #8f および #8L について、同様に走査型 SQUID 顕微鏡を用いて d ドット周辺 $128 \times 128 \mu\text{m}$ の領域において $2 \mu\text{m}$ ステップでスキャンすることにより磁束分布観測を行った。それぞれ図 8 および図 9 に、いずれも d 波超伝導体 BSCCO と s 波超伝導体 Pb の両方が超伝導状態である温度での測定結果を示す。四角い赤線の内側が BSCCO 単結晶、外側が Pb である。試料 #8f では左下と右上のコーナーに、試料 #8L では

右下のコーナーにマイナスの磁束が発生している。いずれの試料においても、鉛が常伝導となる $T=12\text{ K}$ では、これらの磁束は観測されなかった。したがって、観測された磁束は d 波および s 波超伝導秩序パラメーター間における位相干渉により発生したものであることがわかった。これらの d ドットにおける自発的半磁束量子発生を検証により、銅酸化物高温超伝導体 BSCCO の超伝導秩序パラメーター対称性が d 波であることに関して決定的な証明を与えることができた。

(3) 論理回路構築への作製方法改良

d ドットにおける自発的半磁束量子は、4 つのコーナーに発生するはずであるが、3 つの d ドット試料#8d, #8f, #8L いずれにおいても、1 つから 3 つのコーナーにおいてのみ観測され、4 つすべてのコーナーでは観測されなかった。これは自発的磁束の発生が見られなかったコーナーにおいて、加工精度が不十分であったためであると考えられる。d ドットを用いた論理回路構築においては、4 つのコーナーにおける自発的磁束発生が不可欠である。そのため集束イオンビーム加工 (FIB) 装置を用いて、d 波超伝導体 BSCCO 単結晶の加工精度向上を目指した。

図 10 に、これまで同様にイオンミリング加工した BSCCO 単結晶試料#7e の光学顕微鏡写真を示す。中央の四角い部分が加工された台状の部位 ($38 \times 38\ \mu\text{m}$) である。白線で示したガイドラインのように、コーナーが面取りされた形になっている。d ドットにおいては、コーナーがきちんとした直角になっているかどうかが大変重要となる。また各辺も完全な直線ではなく、加工精度数 μm 程度のギザギザになっている。そこで周囲を FIB 装置により切削し、 $35 \times 32\ \mu\text{m}$ とした。図 11 に FIB 加工後のレーザー顕微鏡による 3 次元画像と光学顕微鏡写真を示す。図 11 a) と比較すると、図 11 b) で中央の四角い加工された結晶周囲の黄色に見える部分が、切削された領域であることがわかる。白線のガイドラインで示すように、コーナーの面取りは無くなり、各辺の加工精度も $0.1\ \mu\text{m}$ 程度に改善されている。

d ドットでは、d 波超伝導体 BSCCO と s 波超伝導体 Pb との界面形状が大変重要である。図 12 にレーザー顕微鏡画像から得られた断面プロファイルを示す。FIB 加工により BSCCO 結晶の断面がより急角度で切り立った状態になることが懸念された。実際には加工後の BSCCO 単結晶側壁部の傾き角は約 40° となっており、十分な接合面が得られることがわかった。イオン加速電圧 $40\ \text{kV}$ の FIB 加工によりダメージを受ける結晶表面部位は、再度イオン加速電圧 $100\ \text{V}$ 程度の弱いビームで様にイオンミリング加工することにより取り除くことができる。今後、FIB 加工を取り入れることで加工精度の向上をはかり、論理回路構築に至ることができると考える。

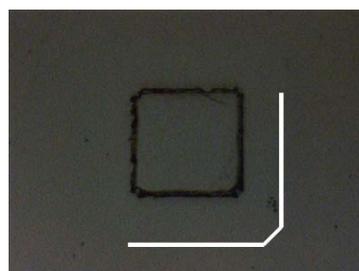


図 10 イオンミリング加工した BSCCO 単結晶 #7e (FIB 加工前)。

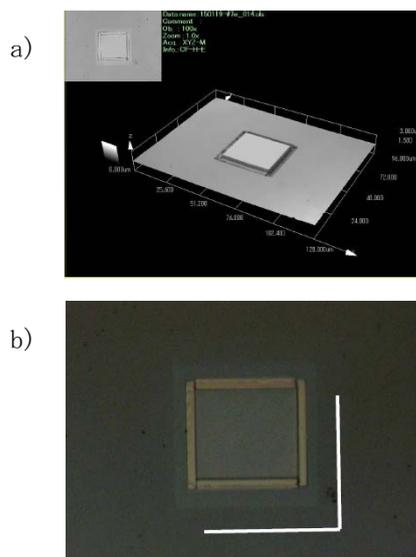


図 11 FIB 加工した BSCCO 単結晶#7e、a) 3次元画像、b) 光学顕微鏡写真。

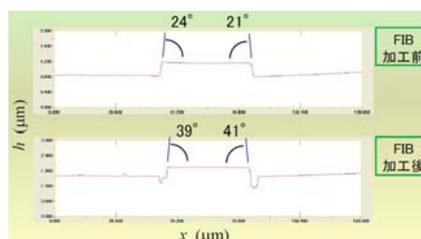


図 12 FIB 加工した BSCCO 単結晶#7e の断面プロファイル、上：加工前、下：加工後。

<引用文献>

- ① T. Ishida, M. Fujii, T. Abe, M. Yamamoto, S. Miki, S. Kawamata, K. Satoh, T. Yotsuya, M. Kato, M. Machida, T. Koyama, T. Terashima, S. Tsukui, and M. Adachi, *Physica C*, 437-438 (2006), 104-110.
- ② M. Kato, M. Ako, M. Machida, T. Koyama, and T. Ishida, *Physica C* 412-414 (2004), 352-357.
- ③ T. Koyama, M. Machida, M. Kato, and T. Ishida, *Physica C*, 426-431 (2005), 1561-1565.
- ④ M. Hirayama, M. Kato, M. Machida, T. Koyama, and T. Ishida, *Physica C*, 445-448 (2006), 264-269.

- ⑤ S. Nakajima, M. Kato, T. Koyama, M. Machida, T. Ishida, and F. Nori, *Physica C*, 468 (2008), 769-772.
 ⑥ 林正彦, 日本物理学会第 65 回年次大会 (2010), 21aHX-3.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① 川又修一, 河村裕一, 加藤勝, 石田武和,
 超伝導複合構造 d ドットの作製と SQUID 顕微鏡を用いた磁束分布測定,
 低温工学・超電導の新展開、査読無、pp. 194-195 (2013).

[学会発表] (計 10 件)

- ① 川又修一,
 Pb に囲まれた BSCCO 単結晶 d ドットの作製,
 ワークショップ「ナノ構造超伝導体における渦糸物理」, 2015 年 1 月 23 日, 東京大学 (東京都) .
- ② 川又修一, 元持祐輝, 瀬川将弘, 二神敦, 河村裕一, 加藤勝, 石田武和,
 BSCCO 単結晶 d ドットの作製と磁束分布観測 (招待講演),
 東北大学金属材料研究所共同利用研究会「超伝導ナノ構造の転移温度上昇と磁束構造」, 2014 年 2 月 8 日, 東北大学 (宮城県・仙台市) .
- ③ S. Kawamata, Y. Kawamura, M. Kato, T. Ishida,
 Fabrication and Magnetic Flux Distribution of BSCCO d-dot Embedded in Pb,
 International Symposium on Frontiers in Materials Science, November 18, 2013, Hanoi (Vietnam).
- ④ 川又修一, 河村裕一, 元持祐輝, 加藤勝, 石田武和,
 BSCCO 単結晶による d ドットの作製と磁束分布観測 (招待講演) ,
 東北大学金属材料研究所共同利用研究会「ナノ構造超伝導体の磁束構造」, 2013 年 1 月 31 日, 東北大学 (宮城県・仙台市).
- ⑤ S. Kawamata, M. Yamamoto, T. Yamashita, T. Yotsuya, M. Kato, Y. Kawamura and T. Ishida,
 Fabrication and Magnetic Flux Distribution of BSCCO Single Crystal d-dot,
 International workshop on Pathbreaking Phase Sciences in Superconductivity 2012 (PPSS2012), January 14, 2012, Osaka Museum of History (Osaka, Japan) (大阪歴史博物館 (大阪府・大阪市)).

- ⑥ 川又修一, 河村裕一, 山下剛, 石田武和, 加藤勝, 四谷任,
 BSCCO 単結晶 d ドットの作製と磁束分布観測 (招待講演),
 東北大学金属材料研究所共同利用研究会「ナノ構造超伝導体」, 2011 年 12 月 26 日, 東北大学 (宮城県・仙台市).

- ⑦ 加藤勝, 石田武和, 川又修一, 町田昌彦, 小山富男,
 超伝導複合体 d-dot の磁束構造,
 第 19 回渦糸物理国内会議, 2011 年 12 月 8 日, 物質・材料研究機構 (茨城県・つくば市) .

- ⑧ 川又修一, 河村裕一, 山下剛, 石田武和, 加藤勝, 四谷任,
 イオンミリング法を用いた超伝導複合構造 d ドットの作製,
 大阪府立大学地域連携研究機構・放射線研究センター平成 22 年度共同利用報告会, 2011 年 11 月 28 日, 大阪府立大学 (大阪府・堺市).

- ⑨ S. Kawamata,
 Fabrication and Magnetic Flux Distribution of BSCCO d-dot Embedded in s-wave Superconductor,
 BIT's 1st Annual World Congress of Nano Science and Technology, October 24, 2011, Dalian (China).

- ⑩ 山下剛, 川又修一, 四谷任, 加藤勝, 石田武和,
 $\text{Bi}_{2.16}\text{Sr}_{1.85}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+6}$ を用いた s-dot の作製と磁束分布,
 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 22 日, 富山大学 (富山県・富山市).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川又 修一 (KAWAMATA, Shuichi)
 大阪府立大学・大学院工学研究科・准教授
 研究者番号: 50211868

(2) 連携研究者

加藤 勝 (KATO, Masaru)
 大阪府立大学・大学院工学研究科・准教授
 研究者番号: 90204495

石田 武和 (ISHIDA, Takekazu)
 大阪府立大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号: 00159732

河村 裕一 (KAWAMURA, Yuichi)
 大阪府立大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号: 80275289