

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：32670

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390046

研究課題名(和文) 微小カイラル超伝導体のエッジ電流による磁化のSQUID測定

研究課題名(英文) Anomalous Magnetization induced Chiral edge currents of a Mesoscopic Chiral Superconducting Sr₂RuO₄ on Micro-dc-SQUIDs

研究代表者

石黒 亮輔 (ISHIGURO, Ryosuke)

日本女子大学・理学部・准教授

研究者番号：40433312

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)：本研究では超伝導の磁束量子などの微小磁区構造検出可能なマイクロ～ナノSQUIDによる局所磁場観測システムの開発と、開発した局所磁場観測システムを用いたSr₂RuO₄のカイラルエッジ電流の検出等によるカイラルP波スピン三重項超伝導体の実験的な証明の二点を主な目的とした。

本研究ではアルミ、ニオブ、集束イオンビームアシスト蒸着法によるタンゲステン超伝導薄膜を用いたSQUIDによる局所磁場観測システムを開発した。開発した局所磁場観測法によりマイクロメートルサイズのSr₂RuO₄試料、穴あき試料、Ru-Sr₂RuO₄共晶試料の磁気異常について調べたが、カイラルエッジ電流は観測されなかった。

研究成果の概要(英文)：We have developed new local magnetic field measurement system using SQUIDs (Al tunnel junction, Nb weak link, and FIB-CVD W type) in this study. We have tried to observe the chiral edge currents, using this system, to prove experimentally that Sr₂RuO₄ is a chiral P wave spin triplet superconductor.

However, chiral edge currents, etc., phenomenons that show clearly chiral superconductivity has not been observed.

研究分野：低温物理学

キーワード：SQUID 超伝導 FIB 磁束量子 メゾスコピック 局所磁場計測 カイラル超伝導 ルテニウム酸化物

1. 研究開始当初の背景

(1) SQUIDによる局所磁場観測：
超伝導量子干渉計 (SQUID) は最も高感度な磁束計の一つとして知られている。超伝導ループと超伝導接合によって構成される SQUID はそのループサイズを小さくすることで、局所的磁場の計測が可能になり、また外来ノイズに対する耐性も高くなる。本研究代表者 (また分担者) は科研費基盤研究 (S) 「究極のナノスクイッド」 (代表 高柳英明；平成 20 年から 24 年度) に連携研究者 (および分担者) として参加し、マイクロメーターからナノメーターサイズの SQUID を開発し、微小試料の局所的磁化検出のために微小試料を SQUID 上に配置する高精度位置合わせ技術も確立していた。局所磁場測定の手段としては走査型プローブ顕微鏡のプローブに SQUID やホール素子を用いたものが開発されているが、プローブサイズが大きいため試料までの距離が $10\mu\text{m}$ 程度と離れてしまっており、空間変化が急な局所磁場は平均化され、分解能は制限される。本研究ではナノ SQUID に微小試料を直接高精度に配置するため、センサーと試料との距離がほとんどないため、空間変化が急な局所磁場測定も可能である。先の基盤研究 (S) の研究ではこれらの利点を生かしカイラル超伝導体として考えられている Sr₂RuO₄ 微小片の帯磁率測定を行っていた。またこの SQUID を配列状に並べることで量子渦の動きなど時間変化の情報を得ることが考えられていた。

(2) 微小カイラル超伝導体 Sr₂RuO₄：
Sr₂RuO₄ は 1994 年に京大の前野らが発見し、カイラル超伝導体の有力な候補として精力的に研究されている。カイラル超伝導体ではカイラルエッジ電流が存在すると考えられている。超伝導の性質のほとんどはフェルミ面近傍の準粒子励起などで説明され、フェルミ球の底にある電子がクーパー対になっているかどうかは問題とならないが、カイラルエッジ電流はクーパー対の数に比例するため、カイラルエッジ電流の大きさを調べることはフェルミ球内部の状態のプローブとなりえる。カイラルエッジ電流の大きさを調べることは超伝導体とは何かという問題にも繋がり重要であると考えられた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、①微小磁区構造の検出可能なマイクロ～ナノ SQUID による局所磁場観測システムの開発と、②開発した局所磁場観測システムを用いた Sr₂RuO₄ のカイラルエッジ電流の検出し、Sr₂RuO₄ がカイラル P 波スピン三重項超伝導体であることのさらなる実験的な証明の二点を主な目的とした。

3. 研究の方法

本研究ではまずは微小試料の磁化を観測するために、微小 SQUID 上に直接、制御して

微小試料を置き局所磁化測定を行うシステムを開発し、微小 Sr₂RuO₄ に予測されたカイラルエッジ電流の観測を目指した。カイラルエッジ電流による Sr₂RuO₄ 周りに誘起される微小な磁場測定するためには Sr₂RuO₄ の大きさと SQUID との配置の最適化が必要であり、SQUID 配列の作製や試料の $1\mu\text{m}$ 程度までの微細化等を行った。また、より広い温度範囲が測定できるように、これまでのアルミで作製した SQUID に加え、ニオブの弱結合を用いた SQUID の開発を行った、また、微小 Sr₂RuO₄ 試料は集束イオンビーム (FIB) を用いて作製するため、同じ FIB 装置で *in situ* に SQUID 作製が可能となる FIB アシスト蒸着法によるタングステン超伝導薄膜を用いた接合の開発を行った。また、カイラルエッジ電流があった場合に SQUID に、どのように応答が出るかを数値シミュレーションで検討を行った。また、Sr₂RuO₄ がカイラル P 波スピン三重項超伝導体であることの証明のために、数 μm サイズの微小 Sr₂RuO₄ の中心に穴の開いた試料を作製しエッジ電流の検証やスピン三重項超伝導体に期待される半整数量子渦の検証を行ったほか、Ru-Sr₂RuO₄ 共晶を用いて数 μm サイズの微小片の中心に Ru が一個だけ析出した試料を作製し、カイラル超伝導体と通常の超伝導体との位相の不整合による効果という点からも Sr₂RuO₄ がカイラル性について検証を行った。

4. 研究成果

①マイクロ～ナノ SQUID 配列の作製：
ICP-RIE とななめ蒸着法を用いたトンネル接合型の Al-SQUID 素子によるナノ SQUID の 3×3 の SQUID 配列の作製法を開発した。また SQUID 配列のそれぞれの SQUID 素子を同時に観測するシステムを開発し、 $1\mu\text{m}$ 程度の距離で変化する局所的な磁場変動や、磁束の移動などの観測も可能なシステムを目指し、現在も進めている。

②弱結合型のナノ Nb-SQUID 素子への微小 Sr₂RuO₄ 試料の搭載：
弱結合型の素子に Al-SQUID と同様な手法である、FIB 装置とマイクロプローブによって微小 Sr₂RuO₄ 試料の搭載可能なことを示した。弱結合型の素子は FIB によって Nb 薄膜を削り出して作製するが、当初は微小 Sr₂RuO₄ 試料の搭載時の追加の FIB によるダメージの影響などが懸念されていたが、この問題を避けることが出来ることを示した。この SQUID を用いることで Sr₂RuO₄ の転移温度からの磁化測定に成功した。

③FIB アシスト蒸着法によるタングステン超伝導薄膜による SQUID 作製：
FIB アシスト蒸着法によるタングステンは超伝導転移温度が約 5K とバルクのタングステン単体の場合と比べて大幅に高く超伝導材料としても有用と考えられるが、ジョセフソン接合につい

ては最近まで実現していなかった。本研究と同時期にジョセフソン接合の実現の報告がされているが SNS 型の接合で、本研究では FIB アシスト蒸着法によるタングステン弱接合型のジョセフソン接合を実現し、DC-SQUID 化に成功した。この方法を用いると FIB で加工した微小試料に合わせて *in situ* に SQUID を作製することが出来るために、有用である。この製造法については新技術として特許に出願した。

④カイラルエッジ電流：カイラルエッジ電流によって誘起される自発磁化は本研究の局所磁場測定システムでは観測されず、実際の実験配置などのセットアップをシミュレーションで検討し Matsumoto-Shigrist による理論で予測されるカイラルエッジ電流と比べて少なくとも 2 桁以上小さいことが分かった。これはマルチカイラルドメインの影響も考えられるが、少なくとも $1\mu\text{m}$ 程度の大きさまで試料を小さくしても自発磁化は観測されなかった。つまりマルチカイラルドメインの影響だとするとカイラルドメインサイズはコヒーレンス長程度以下である必要がある。

⑤Sr₂RuO₄ がカイラル P 波スピン三重項超伝導体の検証 (エッジ電流以外)：本研究では半整数量子渦や Ru-SrRuO₄ 共晶の Ru/SrRuO₄ 界面の位相の不整合による磁気異常の観測を試みたが、現在のところカイラル P 波スピン三重項超伝導性に起因すると明確に言える磁気異常は観測されていないが、単なる通常の超伝導体とも言えない現象も観測されている。これらの原因について試料の形状による問題なのかどうかは現在も実験、解析を継続中である。

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 6 件)

- 1) Y. Nago, T. Shinozaki, S. Tsuchiya, R. Ishiguro, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, H. Takayanagi, and Y. Maeno, *Journal of Low Temperature Physics* 183, 292 (2016). 査読有
- 2) D. Sakuma, T. Shinozaki, Y. Nago, R. Ishiguro, S. Kashiwaya, S. Nomura, K. Kono, and H. Takayanagi, *Journal of Low Temperature Physics* 183, 300 (2016). 査読有
- 3) Y. Shibata, S. Nomura, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, R. Ishiguro, and H. Takayanagi, *Scientific Reports* 5, 15097

(2015). 査読有

- 4) S. Tsuchiya, M. Matsuno, R. Ishiguro, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, S. Nomura, H. Takayanagi, and Y. Maeno, *J. Phys. Soc. Jpn.* 83, 094715 1 (2014). 査読有
- 5) Y. Nago, R. Ishiguro, H. Sakurai, M. Yakabe, T. Nakamura, S. Yonezawa, S. Kashiwaya, H. Takayanagi, and Y. Maeno, *J. Phys.: Conf. Ser.* 568, 022031 (2014). 査読有
- 6) R. Ishiguro, E. Watanabe, D. Sakuma, T. Shinozaki, S. Tsuchiya, Y. Nago, H. Osato, D. Tsuya, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, S. Nomura, H. Takayanagi, and Y. Maeno, *J. Phys.: Conf. Ser.* 568, 022019 (2014). 査読有

[学会発表等] (計 18 件)

- 1) 佐藤太一, 濱崎拓也, 永合祐輔, 篠崎智也, 石黒亮輔, 柏谷聡, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明." マイクロ dc-SQUID を用いたメゾスコピック超伝導 Sr₂RuO₄ における半整数磁束量子渦の探索." 日本物理学会 第 71 回年次大会 2016/3/22; 東北学院大学 (宮城県仙台市) .
- 2) 佐久間大輔, 篠崎智也, 永合祐輔, 石黒亮輔, 柏谷聡, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳英明." Sr₂RuO₄-Ru 共晶中に誘起される磁束量子渦の観測 II." 日本物理学会 第 71 回年次大会 2016/3/22; 東北学院大学 (宮城県仙台市) .
- 3) 石黒亮輔." 集束イオンビームによる直接描画による超伝導量子干渉素子およびその製造法." JST「理化学研究所 新技術説明会」2015/9/11; 東京都 (千代田区) .
- 4) 柴田祐輔, 野村晋太郎, 柏谷裕美, 柏谷聡, 石黒亮輔, 永合祐輔, 高柳英明." 集束イオンビームにより堆積されたタングステンカーバイド膜まわりの磁束イメージング " 日本物理学会 2015 年秋季大会

2015/9/17; 関西大学 (大阪府吹田市) .

5) 柏谷 聡, 柏谷 裕美, 馬渡康徳, 小柳正男, 齋藤広大, 田中由喜夫, 浅野泰康, 前野悦輝." Sr₂RuO₄/Nb ジョセフソン接合の磁場応答" 日本物理学会 2015 年秋季大会

2015/9/16; 関西大学 (大阪府吹田市) .

6) 柴田 祐輔, 大嶋 勇輝, 柏谷 裕美, 石黒亮輔, 柏谷 聡, 廣瀬 峻啓, 笹川 崇男, 高柳 英明, 野村 晋太郎." 走査型 Nb-SQUID 顕微鏡を用いた 4He 無冷媒冷凍機中での局所磁束観察 II." 日本物理学会 第 70 回年次大会 2015/03/22 (2015); 早稲田大学(東京都新宿区).

7) 篠崎 智也, 佐藤 太一, 永合 祐輔, 石黒亮輔, 柏谷 聡, 柏谷 裕美, 野村 晋太郎, 前野 悦輝, 高柳 英明 " マイクロ SQUID を用いた Sr₂RuO₄ 微小片の磁場侵入特性の研究." 日本物理学会 第 70 回年次大会 2015/03/21 (2015) 早稲田大学(東京都新宿区).

8) 佐久間大輔, 篠崎智也, 永合祐輔, 石黒亮輔, 柏谷聡, 野村晋太郎, 河野公俊, 前野悦輝, 高柳 英明." Sr₂RuO₄-Ru 共晶中に誘起される磁束量子渦の観測." 日本物理学会 2015 年秋季大会 2015/9/16; 関西大学 (大阪府吹田市) .

9) 柏谷 裕美, 齋藤 広大, 柏谷 聡, 小柳正男, 馬渡 康徳, 石黒 亮輔, 土屋 翔吾, 篠崎 智也, 吉野 智彦, 高柳 英明, 田仲 由喜夫, 前野 悦輝." SQUID を用いた Sr₂RuO₄ の自発磁化の検証と面内磁場応答" 日本物理学会 2014 年秋季大会 2014/09/09 (2014); 中部大学.

10) 柏谷 裕美, 柏谷 聡, 齋藤 広大, 馬渡康徳, 石黒 亮輔, 土屋 翔吾, 篠崎 智也, 永合 祐輔, 高柳 英明, 田仲 由喜夫, 前野悦輝 " SQUID を用いた Sr₂RuO₄ の自発磁化観測 " 日本物理学会 第 69 回年次大会 2014/03/30 (2014); 東海大学.

11) 石黒 亮輔, 田野 佑典, 永合 祐輔, 高

柳 英明, 河野 公俊 " 微小試料の磁化測定のための集束イオンビームアシスト蒸着による直接描画 SQUID の開発." 第 75 回 応用物理学会秋季学術講演会 2014/09/19 (2014); 北海道大学札幌キャンパス.

12) 柴田 祐輔, 大嶋 勇輝, 柏谷 裕美, 石黒亮輔, 柏谷 聡, 高柳 英明, 野村 晋太郎." 走査型 Nb-SQUID 顕微鏡を用いた 4He 無冷媒冷凍機中での局所磁束観察." 日本物理学会 2014 年秋季大会 2014/09/08 (2014); 中部大学.

13) Ishiguro R., Tano Y., Nago Y., Takayanagi H., Kono K. " Direct writing of tungsten based nano and micro superconducting quantum interference devices using focused-ion-beam chemical vapor deposition." 2015 International Symposium on Quantum Fluids And Solids (QFS2015)2015); Niagara Falls, NY USA.

14) Sakuma Daisuke, Shinozaki Tomoya, Nago Yusuke, Ishiguro Ryosuke, Kashiwaya Satoshi, Nomura Shintaro, Kono Kimitoshi, Takayanagi Hideaki. " Development of a Two-Dimensional Micro-SQUID Array for Investigation of Magnetization Spatial Distribution " 2015 International Symposium on Quantum Fluids And Solids (QFS2015)2015); Niagara Falls, NY USA.

15) Nago Y., Shinozaki T., Tsuchiya S., Ishiguro R., Kashiwaya H., Kashiwaya S., Nomura S., Kono K., Takayanagi H., Maeno Y. " Development of Magnetization Measurement Devices Using Micro-dcSQUIDs and a Sr₂RuO₄ Microplate." 2015 International Symposium on Quantum Fluids And Solids (QFS2015)2015); Niagara Falls, NY USA.

16) Nago Y., Tsuchiya S., Shinozaki T., Ishiguro R., Kashiwaya H., Kashiwaya S., Nomura S., Takayanagi H., Maeno Y. " DEVELOPMENT OF MEASUREMENT SYSTEM USING MICRO-SQUIDS FOR INVESTIGATION OF HALF-QUANTUM VORTEX IN SR₂RUO₄." 27th International Conference on Low Temperature Physics(LT27) 8/6-13 (2014); Palais Rouge, Buenos Aires, Argentina.

17) Nago Y., Ishiguro R., Sakurai T., Yakabe M., Nakamura T., Yonezawa S., Kashiwaya S., Takayanagi H., Maeno Y. " SUPERCONDUCTING TRANSITION OF RU IN SQUIDS WITH NB/RU/SR₂RUO₄ JUNCTIONS." 27th International Conference on Low Temperature Physics(LT27) 8/6-13 (2014); Palais Rouge, Buenos Aires, Argentina.

18) Ishiguro R., Watanabe E., Sakuma D.,

Tsuchiya S., Shinozaki T., Nago Y., Oosato H., Tsuya D., Kashiwaya H., Kashiwaya S., Nomura S., Takayanagi H., Maeno Y." DEVELOPMENT NANO AND MICRO SQUIDS BASED ON AL TUNNEL JUNCTIONS AND VORTEX FORMATION OF MESOSCOPIC SUPERCONDUCTING SR2RUO4." 27th International Conference on Low Temperature Physics(LT27) 8/6-13 (2014); Palais Rouge, Buenos Aires, Argentina.

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称：超伝導量子干渉素子及びその製造法
発明者：石黒亮輔
権利者：研究開発法人 理化学研究所
種類：特許
番号：特願 2015-025842
出願年月日：2015年2月12日
国内外の別：国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石黒 亮輔 (ISHIGURO Ryosuke)
日本女子大学・理学部・准教授
研究者番号：40433312

(2) 研究分担者

柏谷 裕美 (KASHIWAYA Hiromi)
産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・主任研究員
研究者番号：60443181

柏谷 聡 (KASHIWAYA Satoshi)
産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・首席研究員
研究者番号：40356770

(3) 連携研究者

永合 祐輔 (NAGO Yusuke)
東京理科大学・理学部・助教
研究者番号：50623435

(4) 研究協力者

佐久間 大輔 (SAKUMA Daisuke)
田野 佑典 (TANO Yusuke)
篠崎 智也 (SHINOZAKI Tomoya)