

氏名	たち き たかし 立木 隆
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成 12 年 3 月 23 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 1 項
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程)電気・通信工学専攻
学位論文題目	銅酸化物超電導単結晶の磁束量子ダイナミックスの研究
指導教官	東北大学教授 山下 努
論文審査委員	主査 東北大学教授 山下 努 東北大学教授 杉田 恒 東北大学助教授 中島 康治 東北大学助教授 中島 健介

## 論文内容要旨

銅酸化物超電導体は層状結晶構造に由来して物性が特異であるため、デバイス応用上、重要な性質を示す。その一つに、 $\text{CuO}_2$ 層と呼ばれる超電導層の層間がジョセフソン効果により結合していることに起因して生じるジョセフソンプラズマ波がある。銅酸化物超電導体の一つである  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ではプラズマ周波数がテラヘルツ帯に位置するので、この帯域での電磁波発振器としてこの材料が利用できると考えられる。また、隣接する  $\text{CuO}_2$  層はジョセフソン接合のように振る舞うため、接合中の磁束量子(以降ボルテックスと呼ぶ)と同様に、層間に導入されたボルテックスは層と平行に高速運動する。そのため、この性質を活かした高速スイッチ素子や磁束フロー増幅器などの実現が期待される。

しかしながら、層間のボルテックスが高速運動するといつても、その上限速度を決める条件や、材料、形状による影響が系統的に調べられたことはないため、本研究ではそれらを詳細に調べた。その研究成果をまとめたのが本論文であり、全文 6 章よりなる。

第 1 章では、研究の目的を浮き彫りにするために、そのモチベーションを概観し、研究分野の現状を物性物理学的立場とデバイス応用的立場から説明した。そして、銅酸化物超電導体のボルテックスダイナミックスを議論する本研究において目的が次の 3 点にあることを述べた。まず、ボルテックスを駆動するための電流の分布を均一にするために素子の微細化を実現することである。ボルテックスの動特性は銅酸化物超電導体の結晶性に最も影響を受けるもの一つであるから、試料は良質なバルクの単結晶を用いるほかはなく、その中に磁界侵入長(数十  $\mu\text{m}$ )以下の構造を作る必要がある。第 2 に高精度な測定を通して  $\text{CuO}_2$  層の層間に導入されたボルテックスがジョセフソン接合中のものと同様の振る舞いを示すかを調べることである。その際、ボルテックス運動が極度に阻害されている場合には、その原因である磁束ピンニングの機構を解明し、ピンニングを低減する指針を与えなければならない。第 3 にピンニングの影響が無視できるような場合にボルテックス運動が何に律速されるかを見出すことである。

第 2 章では、次の章以降に述べられる実験、解析および考察等、本研究で行われてきたことを理解するために、ボルテックスの内部構造、動的振る舞い等について説明を施した。具体的には、銅酸化物超電導体のボルテックスは、第 2 種超電導体としてのボルテックスと、ジョセフソン接合中のものと類似したボルテックスに分けられ、後者の方が高速運動を行い得ることを述べた。さらにボルテックスの運動形態とその理論的記述、及び銅酸化物超電導体の代表的なピンニング機構について説明した。

第 3 章では、銅酸化物超電導単結晶の育成から単結晶素子の作製までをまとめて述べた。銅酸化物超電導単結晶には、溶媒移動浮遊帯域溶融法により比較的良質で大きな結晶が得られる  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO)を使用した。単結晶素子としては

特性評価の際に LSCO の *c* 軸方向 ( $\text{CuO}_2$  層に垂直な方向) にバイアス電流を容易に導入できるマイクロブリッジ型を採用し、その作製には、加工レートの大きな微細放電加工法と集束イオンビーム(FIB)加工法を使用した。微細放電加工を施す試料には *c* 軸が面内に含まれるような厚さ 40  $\mu\text{m}$  の LSCO ウェーハを用いて、数 V の微小な放電電圧による微細加工により、ウェーハ中に *c* 軸と平行なマイクロブリッジを作製した。ブリッジの長さは 60~70  $\mu\text{m}$ 、断面積は 1600~2200  $\mu\text{m}^2$  である。

FIB 加工法は、微細放電加工法に比べて加工レートが低いので、被加工対象の寸法が小さくなるように LSCO を極細の短冊状に切断してから、その中央に 30kV の Ga イオンによる FIB により、長さ 1~5  $\mu\text{m}$ 、断面積 20~300  $\mu\text{m}^2$  のマイクロブリッジを作製した。ブリッジ作製により、微細放電加工法の場合、超電導転移温度の低下と転移幅の増加が若干見られたが、FIB 加工法の場合、ブリッジサイズが 1 衍以上小さいにもかかわらず加工による超電導性の劣化が見られないという結果を得た。

第 4 章では、微細放電加工法で作製したマイクロブリッジを用いて、 $\text{CuO}_2$  層の層間に導入されたボルテックスの運動について調べた結果を述べた。測定する際、層間にボルテックスを導入するように磁界を印加しなければならないが、これは  $\text{CuO}_2$  層に対する磁界のずれ角が、ある閾値よりも小さくなると、ボルテックスが層間に閉じ込められるロックイン転移という現象を観測することにより確かめられる。ロックインした層間のボルテックスは、駆動電流により急速に磁束フローに発達するため、具体的な測定はブリッジに一定電流を流し、静磁界中で試料を微小回転させながら、ボルテックス運動による発生電圧を記録することにより行われた。

測定したマイクロブリッジの発生電圧の角度依存性（図 1(a)）上に、 $\text{CuO}_2$  層と磁界が平行になる付近で急峻な電圧ピークが現れることを観測した。しかし、生じた電界と印加磁界からボルテックス速度を見積もると、高々数十 m/s であり、他の銅酸化物超電導単結晶中のものに比べて非常に小さい。この場合の電圧ピークは、磁束フローというよりも、むしろ磁束クリープに起因すると考えられたため、磁束クリープ理論に基づいて、発生電圧の角度依存性の解析を試みた。まず、試料に点状の弱いピン止め中心が数多く存在し、その総体がピンポテンシャルとして働くと仮定する。この集合的磁束クリープモデルにより、角度依存性を持つクリープ電圧の式を得た。これらの式から計算された発生電圧の角度依存性（図 1(b)）はピークの高さ及び幅等、測定結果を非常に良く再現し、これらのマイクロブリッジで観測した電圧ピークが当初予想したロックイン転移に起因したものではないことを解明した。このモデルはピン力の弱い点欠陥が多数あることが前提になっているため、LSCO 中に酸素欠損や Sr 置換の組成不均一性による点状ピン止め中心が存在することが示唆された。また、計算より得られたピンポテンシャルは非常に小さいため、クリープからフローへボルテックスの運動形態を移

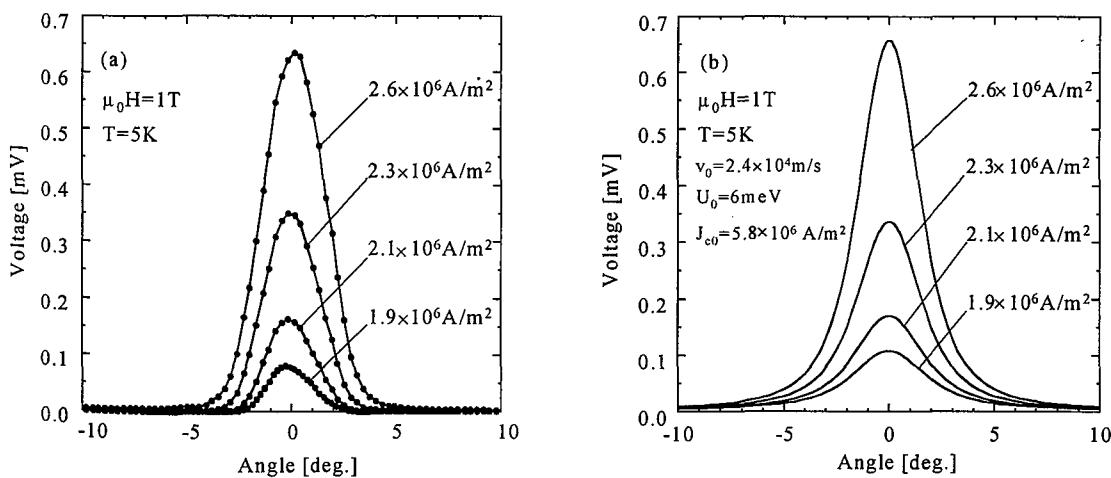


図 1. Experimental (a) and theoretical (b) results of angular dependence of the voltage across the micro-bridge for several bias currents.

行させることができることが予想された。これより、ブリッジサイズの更なる縮小化によりボルテックスの駆動電流を均一高密度化するという指針が得られた。

第5章では、ブリッジサイズが微細放電加工法で作製されたものよりも小さい、FIB加工法による単結晶素子を用いて、その内部のボルテックス運動を調べた結果について述べた。微細放電加工法によるマイクロブリッジと同様に発生電圧の角度依存性上に電圧ピークを観測したが、非常に高いピーク電圧（ボルテックス速度）と、ピーク幅の磁界依存性から、これらの素子ではボルテックスのロックイン転移が明確に起こることが示された。これより、LSCOの微小な素子では層間に導入されたボルテックスが、ジョセフソン接合中のものと同様にジョセフソンボルテックスという描像で表されるのが妥当であることを確認した。つまり、このようなマイクロブリッジはc軸に対して単に異方性を持つだけではなく、層状構造を強く反映した固有ジョセフソン接合の直列スタックとして振る舞うといえる。

次に、これらの固有ジョセフソン接合の接合面（ $\text{CuO}_2$ 層）と平行に磁界を印加してジョセフソンボルテックスを導入した際の電流-電圧（I-V）特性を図1に示す。印加磁界に対する各々のI-Vカーブが高バイアスに向かって上向きになる特性は、従来超電導体の長い単一ジョセフソン接合で得られた速度整合ステップと酷似した特性である。単一接合の場合、ボルテックスと速度整合する接合内の電磁波は单一であるが、原子層スケールの超電導層を持つ多接合スタックの場合、接合数と同数のジョセフソンプラズマ波もしくは電磁波のモードがあり、各モード毎に特性速度が存在する。測定で得た各I-Vカーブの最大電圧の磁界依存性を解析することにより、それらの上向き特性は、ジョセフソンボルテックスが、磁界と共にモードが変化する電磁波と速度整合することを示すものと理解された。整合したときのボルテックス速度は最高値で $1.6 \times 10^5 \text{ m/s}$ にまで達することを評価した。

第6章は、これまでの章の総括を記述した。

以上のように、本研究では銅酸化物超電導単結晶中のボルテックス運動を調べて、幾つかの現象を解明した。重要な成果の一つは、超電導層に導入されたボルテックスの速度が素子のダウンサイ징に伴って大幅に向上することである。そして、LSCO中のジョセフソンボルテックスの速度が、モードに分かれた電磁波（ジョセフソンプラズマ波）の速度に至るまで上昇するという結果が得られ、このことは磁束フローによるLSCOからの電磁波放射の可能性を示すものといえる。これらの成果は、銅酸化物超電導体の層状構造に由来する性質を利用した高性能デバイスの実現に寄与するものと考えられる。

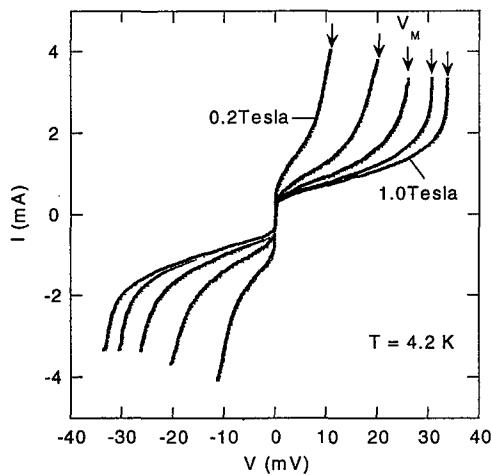


図2.  $I$ - $V$  characteristics of the intrinsic Josephson junction stack fabricated from LSCO for magnetic fields applied parallel to the  $\text{CuO}_2$  layers ( $\mu_0 H = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ , and  $1.0$  Tesla). The arrows indicate the maximum flux flow voltage  $V_M$ .

## 審査結果の要旨

銅酸化物超電導体で構成される高性能なスイッチ素子や電磁波発振器を実現するには、その内部を伝搬する磁束量子の限界速度と制御方法を知る必要がある。筆者は、銅酸化物超電導体の単結晶を用いて、その層状結晶構造と磁束ピンニングが磁束量子ダイナミックスに及ぼす影響を調べ、銅酸化物超電導体の磁束量子運動の機構を解明した。さらに、これらの運動には試料のサイズ効果が大きく関わり、運動の律速される原因を明確に示した。このような研究成果をまとめた本論文は、全文6章より構成されている。

第1章では、本研究の歴史的背景と関連する分野の現状を基礎方面と応用面に分けて述べて、本研究の目的を明示している。

第2章では、広範に及ぶ銅酸化物超電導体の磁束量子運動に関する理論を簡潔に記述している。

第3章では、銅酸化物超電導単結晶の育成から単結晶素子の作製までが述べられている。特に集束イオンビーム法により、超電導性の劣化を伴わずにミクロンオーダーの銅酸化物超電導単結晶のマイクロブリッジが作製され得ることを示している。

第4章では、銅酸化物超電導体の層状結晶構造に対する磁束量子運動の変化を調べるために、外部磁界に対するマイクロブリッジの発生電圧の角度依存性を測定し、特性を磁束クリープモデルで解析することにより、銅酸化物超電導体内の磁束ピンニングの低減に関する方針が見出されている。これは、銅酸化物超電導体の磁束量子デバイスの材料評価を示す成果である。

第5章では、集束イオンビーム加工法で作製された単結晶素子の磁束フロー特性の実験結果により、内部の磁束量子がジョセフソン接合中のものと同程度の高速運動を示すことが見出されている。これらは層状構造に基づく理論による解析により結晶中を伝搬する電磁波の速度の上限があることが示され、単結晶素子の高速性と、電磁波発振器としての適性を示唆する重要な成果である。

第6章は、本研究の総括である。

以上を要するに本論文は、銅酸化物超電導体の高速磁束量子デバイスを実現するために必要不可欠な磁束量子運動と層状結晶構造及び磁束ピンニングとの関わり合いを明確に示し、高速な磁束量子運動を生じさせるための指針を得ることに成功したもので、超電導エレクトロニクスの発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。