

■ 巨大量子化磁束は存在するか？

— 走査型 SQUID 顕微鏡を用いた超伝導マイクロディスクの観察 —

ナノセンシング磁気顕微鏡研究グループ ■ 門脇 和男, 畑 慶明, 鈴木 淳市 ■

Does a Giant Vortex Exist?

— Scanning SQUID Microscope Observation of Vortex Arrangements in
Micro-scale Superconductors with Geometrical Constraints —

Kazuo KADOWAKI, Yoshiaki HATA and Jun-ichi SUZUKI

Research Group for Nanosensing SQUID Microscopy

Recently, vortices confined into a micro-scale superconductor with a shape of disk, triangle, square, etc., have attracted much attention because of a quantum phase transition of the self-organized vortex arrangement occurring with such geometrical constraints. Such a transition can be observed using a scanning SQUID microscope with a spatial resolution of the $1\mu\text{m}$ order. We have successfully achieved such a spatial resolution by developing a sensing coil with $2\mu\text{m}$ in diameter. With this microscope we have studied vortex arrangements in disks made of superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ and Nb films, and an oscillation in magnetization corresponding to the particular state of the vortices.

1. はじめに

SQUID を用いた「磁気顕微鏡による極微磁気構造の研究」は、平成 12 年度の先端基礎研究センター新規計画として開始された研究課題であり、これまでに 2 年半が経過した。この研究の意義は、プロジェクトの開始直後に基礎科学ノートとして書いたが [1]、一貫して主張してきたことは、新しい技術革新が新現象の発見につながり、それが新分野を開拓して行くことは、どんなに時代が変わろうと変わらない真理であるということである。この研究の核心は、極微領域の磁場測定技術の基礎開発にあり、新しい物理現象の発見は、この開発の過程から生まれてくると筆者は考えてい

る。

そこで、本稿では、まず、この 2 年間でどのような技術的な進展があったかを簡潔に述べ、次に、最近の興味ある話題の一つとして、超伝導マイクロディスクに捕捉された量子化磁束について、我々の実験結果を基に述べることにする。これは、まだ途中結果である。

2. 走査型 SQUID 顕微鏡の高空間分解能化

SQUID (Superconducting QUantum Interference Devices: 超伝導量子干渉計) は、超伝導体に特有の量子効果を用いた磁場に変化に大変敏感な素子で、高感度な磁場検出器として様々な用途に用いられている¹。磁場の

¹ 例えば、直径 1 cm の超伝導コイルを貫く磁場が $5 \times 10^{10} \text{G}$ だけ変化すれば、その変動を SQUID は容易に検出できる。磁場の単位 G はガウスで、SI 単位系では $1 \text{G} = 10^{-4} \text{T}$ (テスラ) である。地球磁場が約 0.3G であることを考えると SQUID は驚くべき感度を持つ素子であることが分かる。このため、通常の磁場環境下で SQUID を正常に動作させること自体が大変困難であり、実験家にとっては逆に皮肉な素子でもある。通常の磁場検出器の場合、直径が数 mm から 1cm 程度のピックアップコイルが用いられる。

検出には、SQUID 自身を被検出体に直接接近させる方法もあるが、むしろこの SQUID をピックアップコイルと結合させ、ピックアップコイルを経由して磁場を検出する方が、SQUID を安定に動作させるという点では得策である。しかし、この方法では、SQUID だけでなくピックアップコイルも作成する必要があるため、電子回路はより複雑になる。実は両者の兼ね合いが様々な側面で重要になるが、我々は後者のピックアップコイルを用いる方法を採用した。

この研究の技術目標は、高空間分解能の走査型 SQUID 顕微鏡を開発することである。従来の走査型 SQUID 顕微鏡のピックアップコイルの直径は $10\ \mu\text{m}$ であったので²、我々は、これを改良の出発点とした(図 1 (b))。問題は、どのようなピックアップコイルを作成すれば感度を落とすことなく高い空間分解能を達成できるかという点にあった。空間分解能を高める

には、より小さなピックアップコイルを作れば良いのであるが、技術的には幾つかのハードルが存在する。

まず、ピックアップコイルのサイズを小さくする必要がある。これまでに、内径が $2\ \mu\text{m}$ の円形ピックアップコイルの実用化に成功し(図 1 (c))、さらに、長さが $5\ \mu\text{m}$ で、幅を 500nm まで絞ったピックアップコイルの動作試験に成功している。この段階で約 $1\ \mu\text{m}$ の空間分解能は達成されたといえるが、後者の場合、ピックアップコイルの形状に非対称性があるので使いにくい。現在、内径が $1\ \mu\text{m}$ 以下の円形ピックアップコイルの作成を進めている。しかし、このような空間スケールになると、一般的に行われているコンタクトプリンティングのフォトリソグラフィとドライエッチングプロセスという方法では、加工分解能が不足する。そこで、より微細な加工ができる FIB (Focused Ion Beam: 集束イオンビーム) を併用してピックアップコイルを作成している。FIB は非常に自由度の高い加工技術であるため、更なる高分解能化が進むと期待している。

次に、線幅の問題がある。ピックアップコイルの内径を幾ら小さくしても、線幅が太ければ高い空間分解能を達成することはできない。線幅をピックアップコイル内径の $1/5 \sim 1/10$ 程度にするのが理想的である。例えば、内径が $1\ \mu\text{m}$ のピックアップコイルでは、 $100 \sim 200\text{nm}$ の配線幅にするのが望ましい。この加工分解能は、Al や Cu を用いる半導体プロセスでは達成されているが、ピックアップコイルの材料である Nb の微細加工に関しては未知の領域である。しかし、これもフォトリソグラフィと FIB を併用することで達成できると考えている。

ところが、このようにピックアップコイルを小型化しただけでは、空間分解能はまだ上がらない。ピックアップコイルと観測対象との距離の問題があるからである。勿論、この距離は近ければ近いほど良いが、最低でもピックアップコイルの直径の数分の一であることが望ましい。例えば、ピックアップコイルの直径が $1\ \mu\text{m}$ であるとする、数百 nm 以下が適当な距離となる。しかし、シリコン基板表面に作成したピックアップコイルを観測対象に押し付け、その距離を数百

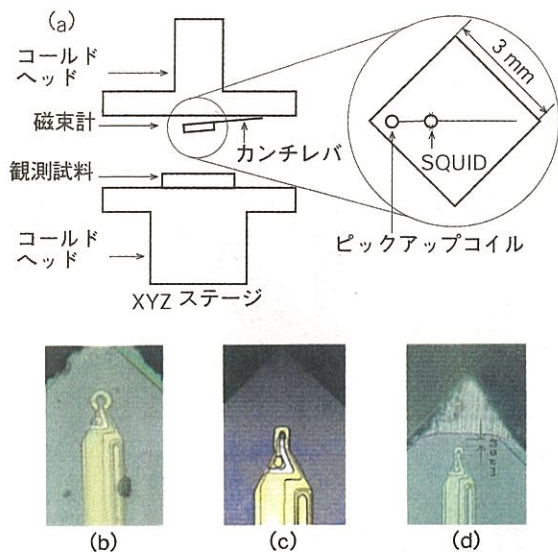


図 1 シリコン基板上に作成された Nb 製ピックアップコイル。(a) 走査型 SQUID 顕微鏡の模式図、(b) 微小化の原型となった直径 $10\ \mu\text{m}$ のピックアップコイル、(c) 内径 $2\ \mu\text{m}$ のピックアップコイル、(d) シリコン基板の角が研磨された内径 $2\ \mu\text{m}$ のピックアップコイル。

² 既に、日本ではセイコーインスツルメンツ社で、アメリカでは IBM 社の Thomas J. Watson 研究センターで、 $10\ \mu\text{m}$ 径のピックアップコイルは開発されていた。IBM 社では高分解能化は行っておらず、現在でも $10\ \mu\text{m}$ 径のものを使っている。

nm 以下で制御することはなかなか難しい。我々は、ピックアップコイルが配置されたシリコン基板の角を機械的に研磨することで、両者の距離を近付ける工夫を行っている (図 1 (d))。

結論を言えば、空間分解能の高分解能化において、この 2 年半で既に約 $1 \mu\text{m}$ の分解能を達成することができた。これは世界最高であることは言うまでもない。この分解能を更に 500nm 程度まで上げることが今後の重要な課題となっている。

3. 超伝導量子化磁束の自己組織化に伴う相転移現象と巨大量子化磁束状態

このような高感度、かつ、高空間分解能の走査型 SQUID 顕微鏡を用いて微小超伝導体に侵入する量子化磁束を詳細に調べた結果、幾何学的な拘束条件のある微小超伝導体で磁束の自己秩序化に伴う相転移が起こり、それに対応した磁化の跳びが明瞭に観測された。どのような幾何学的条件のときに、どのような空間分

布で量子化磁束が自己組織化するのかを明らかにしたのはこれが初めてである。

図 2 は、高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ マイクロディスク (直径 = $50 \mu\text{m}$ 、膜厚 $d = 480\text{nm}$ 、転移温度 $T_c = 90.73\text{K}$ 、転移幅 $\Delta T_c = 0.6\text{K}$) に捕捉された量子化磁束の SQUID 顕微鏡像を印加磁場の低い順に並べたものである。磁場の増加とともに、磁束線が一本ずつある規則性を持って超伝導マイクロディスクに侵入していく様子が分かる [2]。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ の場合、低温でピン止め力が強くなるため、磁束線は局所的にピン止め力が強い場所を選択的に捕捉されるのではないかとの懸念が当初あったが、再三の実験によりピン止め効果だけが原因ではないことが確認された。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ の磁場侵入長 $\lambda(0)$ は約 180nm であるので、 $50 \mu\text{m}$ という値は、磁束線間の相互作用が磁束配列に効果的に寄与するマイクロディスクの直径として、少々大きいようにも思われるが、Al の場合、 $\lambda(0) = 70\text{nm}$ に対し、数 μm の直径のマイクロディスクの磁化測定で振動現象が観測されている [3] ことを考えると、それほど

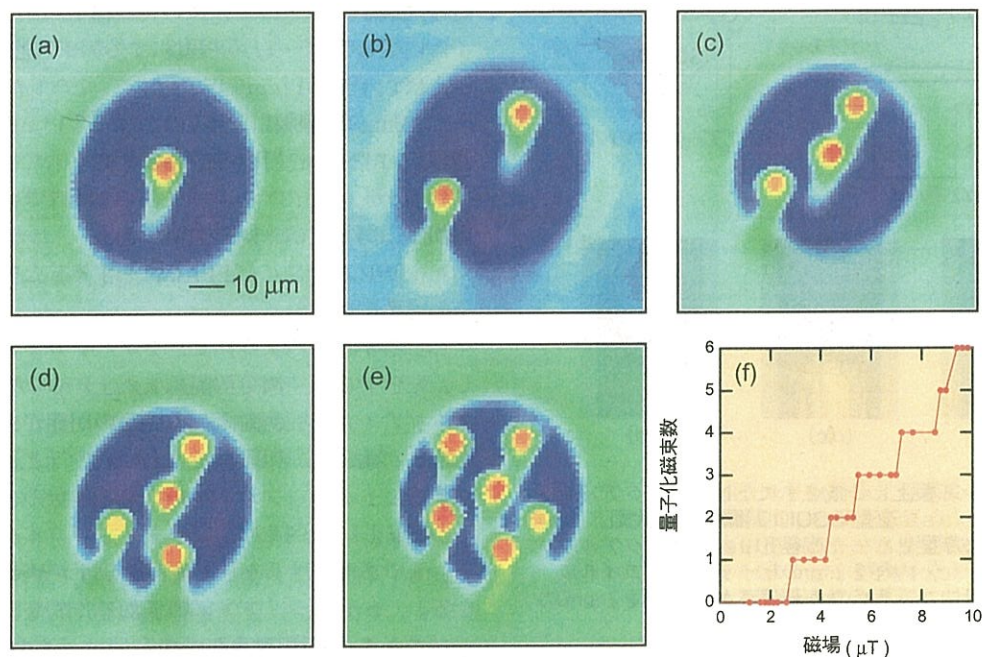


図 2 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ マイクロディスクに侵入した量子化磁束の走査型 SQUID 顕微鏡像。印加磁場はディスク面に垂直であり、それぞれ、(a) $4.2 \mu\text{T}$ 、(b) $4.5 \mu\text{T}$ 、(c) $5.5 \mu\text{T}$ 、(d) $8.5 \mu\text{T}$ 、(e) $9.4 \mu\text{T}$ である。(f) 印加磁場と量子化磁束数との関係。

不思議でもないように思われる。ただし、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ の場合、コヒーレンス長 ξ が極端に短く、特に、 c 軸方向には $\xi_c \sim 0.1\text{nm} \ll d$ であるため、マイクロディスクは2次元系と見なすことができないことに注意して頂きたい。具体的に我々の実験結果と比較できる理論計算は今のところない。

このように磁束線が幾何学的条件によって拘束されているとき、高い磁場中で多数の磁束線が一体化した巨大量子化磁束 (giant vortex) が形成されることが理論的に予想されている [4]。この様子を単純な Al で実験的に観測したとする Geim 等の最近の磁化測定の記事 [5] があるが、どのような磁束配列をしているのか、本当に一体化しているのかなどの磁束の構造情報は全く得られていない。Geim 等の実験手段では、磁束線の配列を直接観測できないので判断ができないのである。磁束線の配列を直接観測できるのが走査型 SQUID 顕微鏡の特徴である。しかし、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ の場合、ギンズブルク-ランダウパラメータ κ が約 95 と非常に大きく、従って、上部臨界磁場 $H_{c2}(0)$ は約 100T と極めて高いと考えられ、その結果、複数量子化磁束状態 (multi-vortex state) から巨大量子化磁束状態 (giant vortex state) への転移磁場 H_t も極めて高いことが予想され (H_t は、 $H_{c2}(0)$ の数分の一と考えられている)、巨大量子化磁束の観測は現実的でない。我々の走査型 SQUID 顕微鏡では、印加できる最大磁場が 5mT 程度であり、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ に関しては巨大量子化磁束の観測は絶望的である。

現在、臨界磁場の低い Nb や Pb のマイクロディスクの量子化磁束の観測を進めているところであるが、今のところ巨大量子化磁束は観測されていない。図 3 に Nb マイクロディスク (直径 = 30 μm 、膜厚 $d = 600\text{nm}$) の走査型 SQUID 顕微鏡像とその観測データから求められた磁化を示す。理論的に予想されるように、印加磁場の増大に伴って振動する磁化の振舞いが明瞭に観測されている。空間的な磁束配列を直接観測し、それに基づいて磁化の振動現象まで帰結した実験は、これが初めてである。図 3 では、磁化の振動の最初の部分が観測されているが、まだ巨大量子化磁束状態へは至っていない。より高い磁場では巨大量子化磁束状態へ移行すると予想されている。我々の走査型 SQUID 顕微

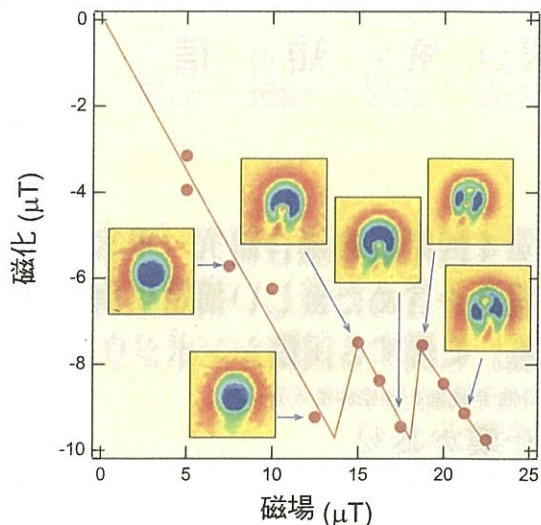


図 3 直径 30 μm の Nb マイクロディスクの走査型 SQUID 顕微鏡観測。(赤丸) 観測データから求められた磁化過程、(挿入図) 対応する磁場下での走査型 SQUID 顕微鏡像。

鏡では、印加できる磁場に制約があるが、コヒーレンス長 ξ のより大きな In や Sn のマイクロディスクでも、今後さらに実験を行う必要があると思われる³。

謝辞

この研究は、日本原子力研究所とセイコーインスツルメンツとの共同研究として進められている。共同研究者であるセイコーインスツルメンツの小田原成計、永田篤士、中山哲、茅根一夫の 4 氏に謝意を表します。

参考文献

- 1) 門脇和男、基礎科学ノート、7-2 (2000) 31.
- 2) Y. Hata, J. Suzuki, I. Kakeya, K. Kadowaki, A. Odawara, A. Nagata, S. Nakayama and K. Chinone, Proc. LT23, Hiroshima, Japan, to be published in Physica C.
- 3) A. K. Geim, S. V. Dubonos, J. G. S. Lok, M. Henini and J. C. Maan, Nature, 396 (1998) 144.
- 4) V. A. Schweigert, F. M. Peeters and P. Singha Deo, Phys. Rev. Lett., 81 (1998) 2783.
- 5) A. K. Geim, S. V. Dubonos, J. J. Palacios, I. V. Grigorieva, M. Henini and J. J. Schermer, Phys. Rev. Lett., 85 (2000) 1528.

³ Cd と Al のコヒーレンス長 ξ は In や Sn よりも大きい、 T_c が 2K 以下と我々の装置で実験可能な温度範囲外なので、当面、観測対象外である。