

「高度情報処理・通信の実現に向けたナノ構造体材料の制御と利用」  
平成 14 年度採択研究代表者

石田 武和

(大阪府立大学大学院工学研究科 教授)

「超伝導ナノファブリケーションによる新奇物性と応用」

## 1. 研究実施の概要

本プロジェクトは、ナノファブリケーション微細加工技法を生かして新奇物性発現、 $MgB_2$  中性子検出器としての応用展開、超伝導ナノ構造体の総括理論の構築を目指している。第 1 (H14) 年度は CREST チーム体制を整え、原子炉での中性子検出予備実験、 $MgB_2$  薄膜の作製と微細加工の予備実験、理論チームの目標設定を行った。第 2 (H15) 年度は、プロジェクトの基盤設備の整備、国際ワークショップ (京都) の開催、超伝導微細構造や  $MgB_2$  検出器のプロセス開発、地球シミュレータの利用採択、研究組織の見直しを行った。d-ドットや中性子検出器の大規模計算、原研研究炉で中性子検出実験と問題点の整理、20ps パルスレーザー照射装置による予備実験を可能とした。第 3 (H16) 年度は、中間的な研究機器の充実、国際ナノファブワークショップ (大阪) の開催、 $MgB_2$ -AlN-NbN ジョセフソン接合の高品質化、世界初の全  $MgB_2$ -AlN- $MgB_2$  接合など成果があった。 $MgB_2$  検出器のパルスレーザー実験に成功した。 $MgB_2$  検出器ダイナミクスの大規模解析、d-ドット半整数磁束のマニピレーションの理論の進展があった。第 4 (H17) 年度は、領域横断ナノバーチャルラボ超伝導ワークショップ (淡路島) を開催した。実験では、 $MgB_2$  素子のメンブレン化に成功した。理論では、SQUID 顕微鏡の画像解析分解能向上手法を開発した。d-ドットの量子ダイナミクス理論が進展し、Qu ビットとしての応用可能性を拓いた。第 5 (H18) 年度は、ナノファブリケーションで重要な役割を果たすイオンエッチング装置を整備した。 $MgB_2$  中性子検出器は、遂にその実証実験に成功し大きな成果を挙げた。国際ワークショップ (京都) を開催した。最終 (H19) 年度は、研究を更に高度化し、研究を取りまとめる。

## 2. 研究実施内容

情報通信研究機構グループでは、エレクトロニクス応用のための薄膜作製に向けては、能動素子としてのジョセフソン接合作製を行っている。 $MgB_2$  によるジョセフソン接合作製を目指して、低温成長による高品質  $MgB_2$  薄膜作製方法の確立と、積層型ジョセフソン接合の作製を行った。一般的な共蒸着法においては、Mg の再蒸発が高温で顕著となり、高基板温度では  $MgB_2$  として基板上で合成されない。そこで、Mg の蒸発レートを上昇させるように成膜装置に改良を施し、基

板温度 330°Cでの成膜が可能となり、 $T_{C, \text{onset}}=35.7\text{K}$ 、 $T_{C, \text{offset}}=35.4\text{K}$ の結果が得られた。また、接合作製においては、全  $\text{MgB}_2$  接合の特性改善のため、種々の絶縁材料による接合作製を試みており、 $\text{MgB}_2/\text{SiC}/\text{MgB}_2$ の接合の試作を行い、ギャップ構造のある電流電圧特性の観測に成功した。

大阪府立大学グループでは、パルスレーザー照射装置の予備実験のあと、原子力研究機構の研究炉 JRR-3M での実証試験を行い、中性子検出器は、動作時間 2 ナノ秒以上の高速で実際に動作することを初めて確認した。信号は、大規模数値計算による予想と良い一致を示した。素子の大きさは、 $50\ \mu\text{m}$ 、あるいは、 $200\ \mu\text{m}$ の正形状と、小さいため、従来の検出器と比べると格段に優れた空間分解能を実現できる。また、J-PARC における中性子検出には飛行時間法が用いられることから、中性子のエネルギー分解能の優れた検出器や小型の検出装置が可能となる。この検出器の動作範囲は、超伝導転移温度近傍でのみであることを確認できた。

原子力機構東海地区実験グループでは、関西グループで作製した  $\text{MgB}_2$  薄膜素子を用いて超伝導中性子センサーを開発している。 $\text{MgB}_2$  細線を用いた素子センサーを使い、測定系のノイズ低減に努力し、超伝導転移温度での  $5\text{MeV}-\alpha$  線による信号を検出に始めて成功した。このことは、中性子検出のための予備実験としては、大きなブレイクスルーであった。同じ測定システムを用いて中性子を検出する試みは成功までには至らなかった。

原子力機構システム計算科学センターグループは、H18 年度、大阪府立大学グループにより遂に検出された中性子シグナルを計算物理の立場から再現すべく、時間依存ギンツブルク・ランダウ方程式と熱伝導方程式を連立させ、地球シミュレータ等を利用し、再シミュレーションを行った。その計算結果と実験結果と良い一致を示すことを見いだした。両者のシグナルの時間スケールはほぼ一致することを確認し、シグナルの温度変化等についても、シグナルが検出されない温度範囲がシミュレーションでシグナルがノイズに埋もれて区別できなくなる温度範囲とほぼ一致することも分った。精細なシミュレーションを通して実験結果を評価できる枠組みは、超伝導検出器の研究全体でも初めてである。

大阪府立大学グループは、3.7 テスラパルスマグネットを用い、さまざまな高品質の  $\text{MgB}_2$  薄膜の上部臨界磁場の直接測定を系統的に行い、Gurevich の 2 バンド理論による解析を系統的に行った。実験値と理論による良い一致を得ており、 $\text{MgB}_2$  薄膜の開発に有益な指針を与える手法を確立した。

大阪府立産業技術総合研究所グループでは、微細な超伝導体ネットワークの形成には lift-off プロセスを使用し、レジスト EP520A の膜厚を厚くすることを試みた。現像後のレジストパターンは大変きれいであり、Pb 薄膜 200nm~250nm の膜厚で、超伝導ネットワークパターンを六方格子、円、正方格子など様々なパターンを作製した。微細構造が作製できるよう高精度、微細電極パターンのマスクを作製した。設計とマスクの誤差は全て  $0.2\ \mu\text{m}$  以下であり、高精度のマスクが作製された。

大阪府立大学理論グループでは、正方形 d-dot を配置して、論理回路を構成するデザインを考えた。時間依存の Ginzburg-Landau 方程式を有限要素法により数値的に解き、例えば、二つの d-dot の内、一方の d-dot の状態を外部電流により駆動反転したとき、もう一方の d-dot の状態も反転するという情報の伝達ができることを示した。異方的ナノ超伝導体を tight-binding モ

デルで超伝導対称性の空間変化を取り入れた Bogoliubov-de Gennes 方程式を数値的に解き、超伝導対称性の形状に依る変化を調べ、菱形の d-波超伝導体においては、サイズがコヒーレンス長の 10 倍程度の大きさになると、s+id という時間反転対称性を破った状態が生じる結果を得た。

東北大学金研理論グループでは、s 波超伝導体薄膜内に埋め込んだ正方形の形状を持つ微小な d 波超伝導体系 (d ドット) は、閉じた  $0 - \pi$  接合系とみなすことができることを明らかにしてきた。この系は、電流の向きを反転した状態も可能であり、古典的には 2 重縮退した系となっている。2 つの状態間に巨視的量子トンネル効果が生じれば、量子論的 2 準位系を形成する。本年度は、複数の d ドットが存在する系が、量子ビットとしてのどのような動作をするかを明らかにする目的で、2 つの d ドット間の相互作用を考察した。平行に配置したインダクティブに結合した 2 d ドット系に対する有効ハミルトニアンを導出し、この系が、結合した量子 2 準位系とみなせることを明らかにした。

東北大学情報科学グループは、細い線が超伝導体であるような網目構造における超伝導特性 (磁束分布など) を解明するため巨視的基本方程式、Ginzburg-Landau 方程式の非線形項を含めて解き、低温でも信頼できる結果を得た。1 格子あたり 0.5 本の磁束量子が存在する状態を中心として、磁束量子本数が多い場合と少ない場合での対称性を考察した。SQUID 顕微鏡の画像は、ピックアップコイルが多くのピクセルを覆うため、観測データから各ピクセルの真の磁場値が得られるアルゴリズムを提案した。この際に、観測の際に紛れ込むノイズのために逆変換の特異点で起こる大きな誤差を除く工夫をした。この逆変換の特徴は、このアルゴリズムによる処理前の画像と処理後の画像であり、処理後の画像では、磁束量子の識別がより明確になった。

### 3. 研究実施体制

#### (1) 「関西地区実験」グループ

##### ①研究者名

石田 武和 (大阪府立大学大学院工学研究科 教授)

四谷 任 (大阪府立産業技術総合研究所情報電子部 部長)

王 鎮 (情報通信研究機構・未来 ICT 研究センター グループリーダー)

##### ②研究項目

- ・超伝導ナノファブリケーションによる超伝導微細系の設計・製作と評価 (大阪府立大学サブグループ)
- ・電子ビーム露光装置を用いた超伝導体のナノ加工技術 (大阪府立産総研サブグループ)
- ・高品質 MgB<sub>2</sub> 薄膜の作製および中性子検出器開発 (情報通信研究機構サブグループ)

#### (2) 「原子力機構東海地区実験」グループ

##### ①研究者名

岡安 悟 ((独) 日本原子力研究開発機構中性子利用研究センター 副主任研究員)

②研究項目

- ・ MgB<sub>2</sub> 薄膜を用いた超伝導中性子センサーの開発

(3) 「超伝導理論」グループ

①研究者名

加藤 勝 (大阪府立大学大学院工学研究科 助教授)

②研究項目

- ・ 超伝導ナノ構造体の理論の構築と応用分野の開拓

#### 4. 研究成果の発表等

##### (1) 論文発表(原著論文)

- S. Miki, D. Fujiwara, H. Shimakage, Z. Wang, K. Satoh, T. Yotsuya, and T. Ishida; Superconducting characteristics of a MgB<sub>2</sub> neutron detector fabricated on SiN membrane; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Vol. 559 (2), pp. 763-765 (2006); 20060414; 160101230
- Takekazu Ishida, Daisuke Fujiwara, Shigehito Miki, Hisashi Shimakage, Zhen Wang, Kazuo Satoh, Tsutomu Yotsuya, Masahiko Machida and Masaru Kato; Thermal transient response of membrane-structured-superconducting MgB<sub>2</sub> detector by using 20-ps pulse laser; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Vol. 559 (2), pp. 582-584 (2006); 20060415; 160101229
- Takekazu Ishida, Daisuke Fujiwara, Masatoshi Nishikawa, Shigehito Miki, Hisashi Shimakage, Zhen Wang, Kazuo Satoh, Tsutomu Yotsuya, Masahiko Machida, and Masaru Kato; Superconducting MgB<sub>2</sub> Film As Radiation Detectors ; Journal of the Korean Physical Society, Vol. 48 no. 5, pp. 1026-1031 (2006); 20060501; 160101227
- Takekazu Ishida, Masaki Fujii, Taiji Abe, Masuo Yamamoto, Shigehito Miki, Shuichi Kawamata, Kazuo Satoh, Tsutomu Yotsuya, Masaru Kato, Masahiko Machida, Tomio Koyama, Takahito Terashima, Shigeki Tsukui, and Motoaki Adachi; Experimental and theoretical studies of d-dot; Physica C, Vol. 437-438, pp. 104-110 (2006); 20060515; 160101228
- Hideki Fujiwara, Toshiki Hayashi, Toyonari Sugimoto, Hiroyuki Nakazumi, Satoru Noguchi, Lin Li, Keiichi Yokogawa, Syuma Yasuzuka, Keizo Murata, and Takehiko Mori; Magnetoresistance effects evidencing the  $\pi$ -d interaction in metallic organic conductors, (EDT-DSDTFVO)<sub>2</sub>·MX<sub>4</sub> (M = Fe, Ga; X = Cl, Br); Inorganic Chemistry, Vol. 45, pp. 5712-5714 (2006); 20060724; 160101233
- S. Noguchi, T. Kosaka, M. Wang, H. Fujiwara, T. Sugimoto, and T. Ishida; A New Ferromagnetic Organic Semiconductor (EDT-TTF-EDTVS)·FeBr<sub>4</sub>; AIP Conference Proceedings,

Vol. 850, p. 1189–1190 (2006); 20060901; 160101236

- Takekazu Ishida, Hiroshi Noda, Osamu Sato, Masaru Kato, Kazuo Satoh, and Tsutomu Yotsuya; Finite-sized square network of superconducting Pb; AIP Conference Proceedings (LOW TEMPERATURE PHYSICS), Vol. 850, P. 861–862 (2006); 20060901; 160101266
- Takekazu Ishida, Daisuke Fujiwara, Shigehito Miki, Kazuo Satoh, Tsutomu Yotsuya, Hisashi Shimakage, Zhen Wang, Masahiko Machida, and Masaru Kato ; Nonequilibrium Response of Superconducting MgB<sub>2</sub> Meander Line against Pulse Laser Irradiation; AIP Conference Proceedings (LOW TEMPERATURE PHYSICS), Vol. 850, P. 593–594 (2006); 20060901; 160101267
- Toshiki Hayashi, Xunwen Xiao, Hideki Fujiwara, Toyonari Sugimoto, Hiroyuki Nakazumi, Satoru Noguchi, Tsutomu Fujimoto, Syuma Yasuzuka, Harukazu Yoshino, Keizo Murata, Takehiko Mori, and Hiroko Aruga-Katori; A metallic (EDT-DSDTVSDS)<sub>2</sub>·FeBr<sub>4</sub> salt: antiferromagnetic ordering of d spins of FeBr<sub>4</sub><sup>-</sup> ions and anomalous magnetoresistance due to preferential  $\pi$ -d interaction ; J. American Chem. Soc., Vol. 128, pp. 11746–11747 (2006); 20060913; 160101235
- Shuichi Kawamata, Toshikazu Kizawa, Takahiro Suzuki, Eiichi Negishi, Hiroshi Matsui, Naoki Toyota and Takekazu Ishida;  $\pi$ -d correlation in  $\lambda$ -(BEDT-TSF)<sub>2</sub>Fe<sub>1-x</sub>GaxCl<sub>4</sub> by ESR measurements; J. Phys. Soc. Jpn., Vol. 75 pp. 104715 (1–4) (2006). (2006); 20061010; 160101226
- Satoru Noguchi, Akihiro Kuribayashi, Takashi Hiraoka, Hideki Fujiwara, Toyonari Sugimoto, Shojiro Kimura, Masayuki Hagiwara, Koichi Kindo and Takekazu Ishida; High Field Magnetization of (Benzo-TTFVS)<sub>2</sub>FeBr<sub>4</sub> and (Benzo-TTFVO)<sub>2</sub>FeBr<sub>4</sub>; J. Phys.: Conference Series, Vol. 51, p. 331–334 (2006); 20061201; 160101237
- Taro Hayakawa, Shuichi Kawamata, Takashi Hiraoka, Hideki Fujiwara, Toyonari Sugimoto, and Takekazu Ishida; ESR study on  $\pi$ -d correlated molecular salt with benzo group; Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 310, P. 1096–1098 (2007); 20070325; 160101272
- Satoru Noguchi, Akihiro Kuribayashi, Mingxing Wang, Hideki Fujiwara, Toyonari Sugimoto, and Takekazu Ishida; Magnetic orderings of Fe<sup>3+</sup> d spins in the 1:1 salts of BEDT-TTFVS(O) with FeX<sub>4</sub><sup>-</sup> (X=Br, Cl) ions; Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 310, P. 1087–1089 (2007); 20070325; 160101273
- T. Oba, P. Sun, Y. Harada, T. Takahashi, H. Iriuda, M. Seki, Y. Nakanishi, S. Noguchi, T. Ishida, M. Yoshizawa; The influence of epitaxial Ti buffer layers for fabricating as-grown MgB<sub>2</sub> films; Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 310, P. e107–e109 (2007); 20070325; 160101274
- Shigeru Koikegami, Takashi Yanagisawa, and Masaru Kato; Metallic State of the Three-band Hubbard Model with Super-lattice Structure; Journal of Physical Society of

Japan, Vol. 75 P. 044712 (1-7) (2006); 20060410; 160102201

- Masahiko Machida, Tomio Koyama, Masaru Kato, and Takekazu Ishida; Direct numerical simulation on non-equilibrium superconducting dynamics after neutron capture in MgB<sub>2</sub> superconductor ; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Vol. 559 (2), pp. 594-596 (2006); 20060415; 160102206
- Masaru Kato, Masaki Hirayama, Hisataka Suematsu, Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Takekazu Ishida; A d-dot As an Element of Superconducting Devices; Journal of the Korean Physical Society, Vol. 48, no. 5, pp. 1074-1079 (2006); 20060501; 160102202
- Masaru Kato, Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Takekazu Ishida; Quasi-particle spectrum of the nano-scaled anisotropic superconducting plate; Physica C, Vol. 437-438, pp. 132-135 (2006); 20060515; 160102195
- Osamu Sato, and Masaru Kato; Non-equilibrium vortex states of superconducting inhomogeneous micro-plate with external current; Physica C, Vol. 437-438, pp. 278-280 (2006); 20060515; 160102196
- Masaru Kat, Hisataka Suematsu, and Kazumi Maki; Self-Consistent Solution of the Bogoliubov-de Gennes Equation for a Single Vortex in f-wave Superconductors: Application to Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>; AIP Conference Proceedings (LOW TEMPERATURE PHYSICS), Vol. 850, P. 579-580 (2006); 20060901; 160102220
- Masaru Kato, Masaki Hirayama, Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Takekazu Ishida; Physical Properties of composite structures of d- and s-wave superconductors (d-dot' s); AIP Conference Proceedings (LOW TEMPERATURE PHYSICS), Vol. 850, P. 579-580 (2006); 20060901; 160102221
- Hisataka Suematsu, Masaru Kato, Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Takekazu Ishida; Quasi-particle Spectrum of Nano-scale Superconductors under External Magnetic Field; AIP Conference Proceedings (LOW TEMPERATURE PHYSICS), Vol. 850, P. 579-580 (2006); 20060901; 160102222
- M. Machida, Y. Ohashi, and T. Koyama; Microscopic Structure of a Quantized Vortex Core in Atomic Fermi Gases; Physical Review A, Vol. 74, p. 023621 (1-5) (2006); 20060915; 160102207
- M. Hayashi, H. Ebisawa, and K. Kuboki; Geometrically frustrated crystals: Elastic theory and dislocations ; Europhysics Letters, Vol. 76, pp. 264-270 (2006); 20060920; 160102190
- Tomio Koyama, Masahiko Machida, Masaru Kato, and Takekazu Ishida; Spontaneous vortex formation in a quench process in superconducting films with small holes ; Physica C, Vol. 445-448, P. 257-259 (2006); 20060920; 160102237
- Masaru Kato, Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Takekazu Ishida; Nano-scaled

anisotropic superconductors; Physica C, Vol. 445-448, pp.270-273 (2006); 20061001; 160102203

- Osamu Sato and Masaru Kato; Non-equilibrium vortex states of superconducting inhomogeneous micro-plate with external current; Physica C, Vol. 445-448, pp.274-276 (2006); 20061001; 160102204
- Masaki Hirayama, Masaru Kato, Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Takekazu Ishida; The interaction between square d-dot's; Physica C, Vol.445-448, pp.264-269 (2006); 20061001; 160102205
- Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Yoji Ohashi; Vortex structure in weak to strong coupling superconductors: Crossover from BCS to BEC; Physica C, Vol. 445-448, pp. 194-197 (2006); 20061001; 160102209
- Masahiko Machida, Susumu Yamada, Yoji Ohashi and Hideki Matsumoto; Novel Pairing in the Hubbard Model with Confinement Potential; Physica C, Vol. 445-448, pp. 90-93 (2006); 20061001; 160102210
- M. Machida, and T. Koyama; Time-Dependent Ginzburg-Landau Theory for Atomic Fermi Gasses near the BCS-BEC Crossover; Physical Review A, Vol. 74, p. 033603 (1-6) (2006); 20061015; 160102208
- Tomio Koyama, Masahiko Machida, Masaru Kato, and Takekazu Ishida; Phase Dynamics of a closed  $0-\pi$  Josephson Junction; AIP Conference Proceedings (LOW TEMPERATURE PHYSICS), Vol. 850, P. 779-780 (2006); 20061020; 160102236
- Masaru Kato, Masaki, Hirayama, Susumu Nakajima, Hisataka Suematsu, Masahiko Machida, Tomio Koyama, and Takekazu Ishida; Artificial spin system using composite structures of d- and s-wave superconductors; Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 310, P. 495-497 (2007); 20070321; 160102246

## (2) 特許出願

平成18年度特許出願：1件（CREST研究期間累積件数：5件）