

研究課題名

銅酸化物高温超伝導体の X 線散乱による集団励起の理論

研究代表者名

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・筒井健二

1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体は発見以来理論及び実験両面からその超伝導機構解明に対して様々な研究がなされてきている。この電子状態を調べる手段の一つに不純物置換効果がある。超伝導を担う CuO_2 面の Cu を Zn 等の非磁性元素や Ni 等の磁性元素で置換することによる電子状態の変化を調べるものである。この置換効果においても銅酸化物高温超伝導体は特異な振る舞いを示すことが知られている。特に Ni 置換効果において、キャリアであるホールによって弱められていた反強磁性相関が、Ni 不純物置換により増強することや、ホールが Ni サイトの近傍に強く局在することが中性子散乱、XAFS 等の実験で報告されている。本研究では共鳴非弾性 X 線散乱によって、不純物近傍の電子状態が直接観測可能であるかを考察した。

2. 研究経過

本研究では、Ni イオン近傍のキャリア分布など調べるため、銅の $3d(x^2-y^2)$ 軌道及び酸素 $2p_o$ 軌道からなる d-p 模型に基づいて Ni 磁性不純物置換の電子状態に対する効果を考察した。ここで Ni 不純物サイトに対しては、 $3d(x^2-y^2)$ と $3d(3z^2-r^2)$ 軌道及び頂点酸素の $2p_o$ 軌道も取り入れた。この模型の 8 単位格子程度までのクラスターに対するハミルトニアン行列を直接数値的に対角化する数値的厳密対角化法により基底状態を求め、それぞれの軌道におけるホール濃度の期待値を計算した。

キャリアが注入されていない場合のホール分布と注入された場合のホール分布を比較した結果、現実的なパラメータで、Ni 不純物サイトの最隣接酸素サイトの軌道にキャリアが束縛され、そしてまわりの Cu サイトの反強磁性相関が強くなることが、理論計算として初めて明らかになった。

次に、このキャリアの束縛状態を直接調べる方法として、Ni K 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱の実験手法の有効性を考察した。Ni K 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱は、入射 X 線の吸収により、Ni イオンの $1s$ 軌道の内殻電子が $4p$ 軌道に励起され、再び $1s$ 軌道に戻るにより散乱 X 線が放出される。この過程の中間状態で主に $1s$ 内殻ホールと $3d$ 電子とのクーロン相互作用によりフェルミ準位付近の電子である $3d$ 電子が励起される。この中間状態で生成される $1s$ 内殻ホールは不純物サイトである Ni サイトだけであるため、励起される $3d$ 電子は Ni サイトでのみ生じることになる。その結果 Ni サイト近傍の電子励起を直接観測できることになる。

このような電子・光子相互作用に関して二次の散乱プロセスを、共役勾配法とランチョス法を用いた数値計算的手法によって計算した。その結果、まず、ホールが注入していない場合、ニッケル・酸素間の電荷移動に対応したスペクトル構造が現れることが明らかになった。そして、ホールを注入した場合、ホールが Ni サイト近傍で束縛されていることに起因した励起スペクトルが電荷移動ギャップ内に現れることが明らかになった。以上のようなスペクトルの特徴が将来実験で観測されることが期待される。

3. 研究成果

以上の研究結果は、国際ワークショップ ICC-IMR workshop "Physics on Transition Metal Based Superconductors" で報告し、また、Phys. Rev. B 80, 224519 (2009) に出版された。

4. まとめ

銅酸化物高温超伝導物質の Ni 不純物置換効果に関して、Ni 不純物近傍でキャリアであるホールが束縛されうることを理論的に初めて明らかにした。そしてその束縛の様子を Ni K 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱で直接観測可能であることを明らかにした。

研究課題名

ウラン系磁性超伝導体における磁性と超伝導の相関の研究

研究代表者名

名古屋大学・大学院理学研究科・佐藤 憲昭

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・佐藤 伊佐務、名古屋大学・大学院理学研究科・出口 和彦
 名古屋大学・大学院理学研究科・井村 敬一郎、名古屋大学・大学院理学研究科・田村 暢之
 名古屋大学・大学院理学研究科・尾崎 英祐、名古屋大学・大学院理学研究科・壁谷 典幸

1. はじめに

2000年以降、強磁性と超伝導の共存・競合を示すウラン系化合物がいくつか発見され、関心を集めている。磁束を排除する超伝導の Meissner 効果と、磁束を内部に引き込もうとする磁石の性質は互いに相容れないものであることから、超伝導と強磁性は犬猿の仲と考えられてきた。この排他的相性は、磁石の内部に存在する巨大な分子磁場が超伝導 Cooper 対（シングレット対）を破壊することからも明らかである。しかし、これらの予想に反し、超伝導を示す不思議な強磁性体が現実には存在することは、私たちの知識あるいは理解が十分でないことを物語っている。ウラン系磁性超伝導体において、相対立する2つの長距離秩序が如何に住み分けているかを明らかにすることが、本研究の最終目標である。

2. 研究経過

強磁性と超伝導の共存・競合を示す物質として、 UGe_2 、 $URhGe$ 、および $UCoGe$ の3種が知られている。これまで我々は、 UGe_2 に対し良質の単結晶を育成し種々の物性測定を行ってきたが、高圧下でのみ超伝導が発現することに起因する実験的困難さから、本質を解明するには至っていない。これに対し、オランダのグループによりごく最近発見された $UCoGe$ は、常圧でも超伝導を示すことから、実験的には都合がよい。この理由により、本研究では、 $UCoGe$ に焦点を絞り研究を行った。

3. 研究成果

アルファ放射体実験室に設置されたテトラアーク炉を用い、チョクラスキー引き上げ法により単結晶育成を行った。X線 Laue 写真法により方位を決定後、放電加工機を用い、適当な大きさ・形に切断した。同じインゴット中でも場所により、転移温度などは大きく異なる。物性評価装置（PPMS）により基礎物性をチェック後、適当な単結晶試料を名古屋大学に送付し、高圧下かつ極低温において、電気抵抗、ac 磁化率、および比熱測定を行った。その結果の一部を図1に示す。2.5 K 付近に見られる異常は強磁性転移によるものであり、0.5 K 付近の異常は超伝導転移に対応する。この試料に対し ac および dc 磁化（物性研・榊原研との共同研究）を測定した結果、従来の超伝導体とは異なり、下部臨界磁場が存在しないことを見出した。これは、外部磁場がなくとも磁束状態が存在することを示唆しており、「自己誘導ボルテックス」の存在の可能性を示すものと考えられる。また、京大・石田グループとの共同研究（NQR 実験）により、強磁性と超伝導がマイクロに共存することを示す証拠を得た。⁽¹⁾ さらに、マイクロプローブにおいても、自己誘導ボルテックスの存在をうかがわせる結果を得た。

4. まとめ

$UCoGe$ の単結晶を育成し、極低温下で種々の測定を行い、強磁性超伝導体特有の現象（自己誘導ボルテックスの存在の可能性）を見出した。

[1] T. Ohta, T. Hattori, K. Ishida, Y. Nakai, E. Osaki, K. Deguchi, N.K. Sato, and I. Satoh, "Microscopic Coexistence of Ferromagnetism and Superconductivity in Single-Crystal $UCoGe$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, No.2 (2010) 023707.

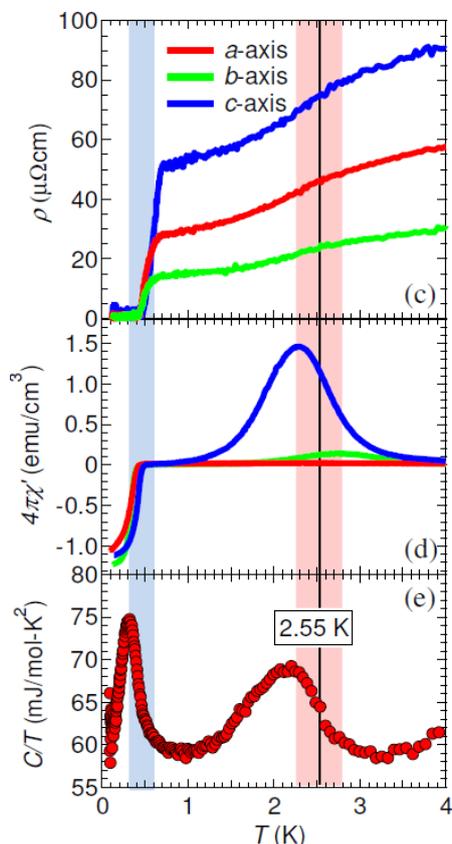


図 1. $UCoGe$ の電気抵抗、磁化率および比熱の温度依存

事前曲げ歪効果の Nb₃Sn, MgB₂ および Y 系複合超伝導線への適用性に関する研究

研究代表者名

岡山大学大学院自然科学研究科 村瀬 暁

研究分担者名

岡山大学大学院自然科学研究科 延原正彦, 中島康希
 東北大学金属材料研究所 淡路 智, 西島 元, 渡辺和雄

1. はじめに

超伝導の応用は、医療、化学分析、搬送、電力、磁場科学、磁気分離などの広い分野に拡大している。これらの応用には超伝導線をコイル状に巻いた超伝導磁石として使用されている。超伝導線は、超伝導体の他に、母材、クエンチしたとき電流のバイパス材と使用される安定化銅、マグネット運転時の電磁力に耐える高強度補強材などから構成される複合材である。超伝導線は一般に高温で超伝導体を生成し、使用される極低温まで冷却されるので、700 から 1,000 K の温度差を経験する。超伝導線を構成する各部材は、ヤング率、降伏応力、線熱膨張率など機械的性質が異なるため冷却時に残留歪が生じ、超伝導体は、圧縮歪を受ける。また、超伝導体は、応力・歪に対して敏感で、残留歪の増減に対して臨界電流などの超伝導特性が変化する[1]。しかし、Nb₃Sn 線において室温で事前曲げ歪を加えることにより、冷却したままの状態の J_cばかりでなく、冷却後引張応力を印加した場合に生じるピークの J_cも向上した。この原因は、3次元歪を実験的かつ解析的に検討することによって、明らかになりつつある。[2-5]。

今年度は、主に外部補強(CuNb) および内部補強 Nb₃Sn 線と銅安定化 Nb₃Sn 線、RRP 法と呼ばれる Nb₃Sn フィラメントがチューブ状になった Nb₃Sn 線、さらに高温超伝導線として市販されている Y 系超伝導テープ線材について解析した。3次元歪解析[6]には、東北大学金属材料研究所計算科学センター・スーパーコンピューティングシステムの有限要素法ソフト ANSYS-Multiphysics version を用いた。

2. 研究経過

解析の対象は、いずれも線径 1 mm で、CuNb 補強材が外部に配置された外部補強 Nb₃Sn 線、内部に補強材が配置された内部補強 Nb₃Sn 線、外部に銅安定化材が配置され補強材のない銅安定化 Nb₃Sn 線の 3種類および Nb₃Sn 超伝導体がチューブ状となった Restacked Rod Process (RRP)線材で、補強なし、CuNb 補強、Ta バリアタイプの 3種類である。FEM で用いた解析モデルの断面を Fig. 1 に示す。また、Y 系超伝導テープの解析モデルを Fig. 2 に示す。Y 系テープは金属基板の Hastelloy、中間層 Y₂O₃, YSZ, CeO₂, 超伝導層 YBa₂Cu₃O_x (YBCO) から成る SuperPower 社から市販されているモデルである。

Nb₃Sn では、Nb₃Sn の生成から室温での事前曲げ、極低温での冷却を模擬して、次の段階ごとに解析を行った。まず、650 °C の Nb₃Sn 生成熱処理温度ですべての歪をゼロとし、室温(300 K)まで冷却し、事前曲げ歪±0.8%を 5 回繰り返して印加した場合を模擬した。次に 4.2 K の極低温まで冷却した後、線材全体にコイル運転中の電磁力を模擬した引張応力を印加した。FEM 解析における境界条件として、熱履歴および引張歪印加時において線材の両端は平面を保つようにした。これは、すべての工程において各構成材の z 軸方向の変位は均等であることを意味する。また、線材の底面での変位はゼロで、底面境界で対称であると設定した。各構成材は等方性、Cu, Cu-Sn, Cu-Nb, Nb, Hastelloy は弾塑性体で、Cu, Cu-Sn, Cu-Nb は降伏応力が温度変化する、Ta, Nb₃Sn, YBa₂Cu₃O_x, Y₂O₃, YSZ, CeO₂ は弾性体と設定した。

Y 系テープでも同様の手法をとったが、冷却温度は使用温度の 77 K とした。

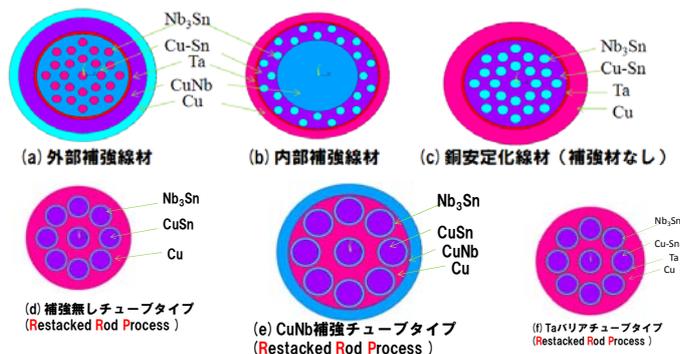


Fig. 1 解析した Nb₃Sn 線のモデルの断面

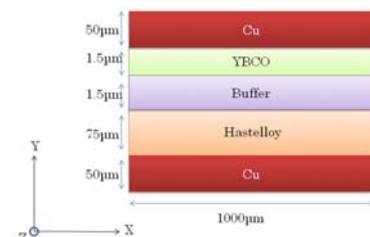


Fig. 2 解析した Y 系テープの断面

3. 研究成果

3.1 Nb₃Sn[7]

ブロンズ法 Nb₃Sn 線のなかでは外部補強線材が最も事前曲げ効果が得られることが分かった。Fig. 3 は外部補強線材における印加歪 - 3次元(von Mises)歪特性である。印加歪 0%(as-cooled)では、事前曲げ歪を加えることによって、0.42%から0.25%に低下した。また、3次元歪は印加歪に対して最小値を示し、事前曲げによって印加歪の最小値が0.45%から0.22%に低下した。事前曲げ前後の各方向歪の値の変化から、印加歪 0%時の3次元歪の低下、3次元(von Mises)歪が最小値をとるときの印加歪の値の低歪側へのシフトは、3方向の歪がすべて低下しているが、z軸方向の歪の寄与が最も大きいことがわかった。外部補強線材が最も大きい事前曲げ効果が得られる原因は、外部にCuNbが配置されているので、事前曲げの際に他のモデルよりCuNbの変位が大きく、塑性変形も多くなったためと考えられる。

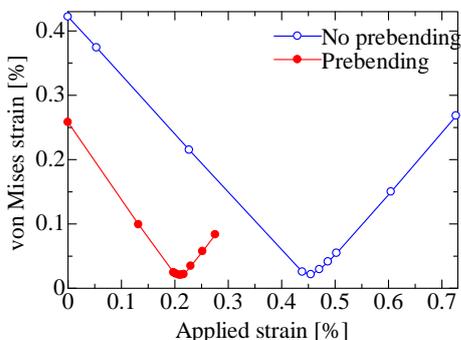


Fig. 3 外部補強 Nb₃Sn 線の事前曲げの有無における印加歪と3次元歪との関係

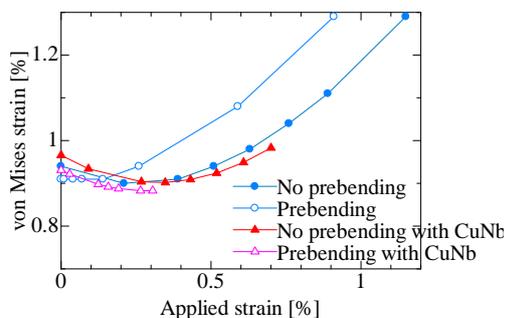


Fig. 4 チューブ型 Nb₃Sn 線の事前曲げの有無における印加歪と3次元歪との関係(CuNb 補強と補強なし)

Fig. 4 はチューブタイプのモデルにCuNbを補強したCuNb補強チューブモデルの印加歪 - von Mises歪特性である。比較のため補強のないチューブモデルの結果も載せた。印加歪 0%(as-cooled)の3次元歪、また、印加歪に対する最小値における3次元歪の値はブロンズ法に比べて高く、また、どのモデルでもほぼ同じ値を示し、ブロンズ法で見られたCuNb補強および事前曲げの影響は、チューブモデルではほとんど得られないことがわかった。

ブロンズ法モデル(外部補強)について、各フィラメントのvon Mises歪および各方向の歪分布を計算し、それぞれTable 1および2に示す。

Table 1 ブロンズ法外部補強 Nb₃Sn 線におけるフィラメント位置の違いによる3

フィラメントの位置				
von Mises歪 (No Prebending)	0.413%	0.421%	0.422%	0.425%
von Mises歪 (Prebending)	0.190%	0.199%	0.200%	0.201%

Table 2 ブロンズ法外部補強 Nb₃Sn 線の外周部フィラメントが受ける各方向の歪

von Mises歪	0.425%	0.426%	0.425%
X方向歪	0.083%	0.115%	0.147%
Y方向歪	0.147%	0.115%	0.083%
Z方向歪	-0.434%	-0.434%	-0.434%

Table 1 から外側のフィラメントで von Mises 歪が最も大きくなり、中心ほど歪が少ないことが分かる。Table 2 からはフィラメントの位置により受けている x, y 方向歪の大きさが異なることが分かる。Table 2 の1の位置では y 方向歪が最も大きく、3の位置では x 方向の歪が最も大きい。x, y 方向歪が正の値、z 方向歪が負の値をとっていることから Nb₃Sn は軸方向に圧縮されており、横方向にはほぼ均等に膨張していることが分かった。

3.2 YBCO 線(Y系テープ)[8]

Fig. 5 に3次元(von Mises)歪の事前曲げ歪依存性を示す。3次元(von Mises)歪の値はブロンズ法 Nb₃Sn 線に比べて高いが、事前曲げ歪の0.1から0.2%にかけて3次元歪の極小値が見られ、この範囲において事前曲げによる3次元歪の緩和があると考えられる。これはCu層による冷却時の圧縮歪の緩和によるものと考えられ、曲げ歪が0.2%より増加するとCuの降伏歪より相当大きくなり緩和に寄与しなくなると考えられる。

3次元歪の緩和が超電導特性のひとつである臨界電流(I_c)にどのように影響するかを調べるため、実際に事前曲げ歪をY系テープ線材に加えて、液体窒素に浸漬してI_cの事前曲げ歪を測定した。その結果をFig.

6に示す。Fig. 6の縦軸は曲げ歪を加えない時の I_{c0} で規格化した。これからわかるように、0.1%近傍で臨界電流のピークがあり、解析によって得られた3次元歪の緩和と対応することがわかった。

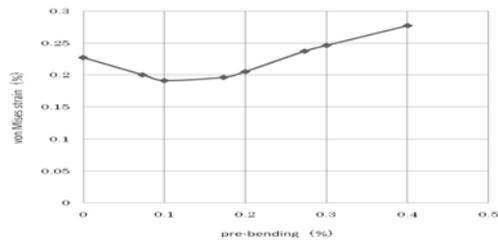


Fig. 5 Y系テープの3次元歪と事前曲げ歪の関係

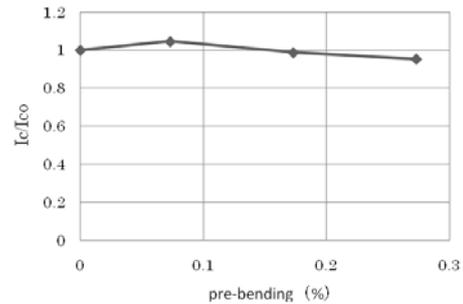


Fig. 6 Y系テープの規格化 I_c と事前曲げ歪の関係 (実験値)

4. まとめ

ブロンズ法, RRP 法による Nb_3Sn 線の各種モデルについて解析を行い, 最適な事前曲げ条件を曲げ比率 0.8%, 曲げ回数 5 回と決定した。補強材の配置は外部に配置することで事前曲げ効果がより得られることが分かった。また, ブロンズ法によるモデルについては分布から Nb_3Sn 部がどのような歪を受けているか明らかにすることができた。RRP 法では, 事前曲げ効果がほとんど得られないことがわかった。

YBCO 線材では, Nb_3Sn に比べ事前曲げ歪処理による効果は小さいが, 事前曲げ歪による 3 次元歪の緩和があり, それに対応した歪に対して I_c の向上がみられた。

謝辞

本研究を遂行するにあたり東北大学金属材料研究所計算材料科学センターの SR11000 スーパーコンピューティングシステムを利用しました。深く感謝申し上げます。

引用文献

- [1] J. W. Ekin, "Strain Scaling Law and the Prediction of Uniaxial and Bending Strain Effects in Multifilamentary Superconductors", Filamentary A15 Superconductors, M. Suenaga and A. F. Clark Ed. New York: Plenum Press, 1980, pp. 187-203.
- [2] S. Awaji, H. Oguro, G. Nishijima, P. Badica, K. Watanabe, S. Harjo, T. Kamiyama and K. Katagiri, "Neutron diffraction Study on prebending effects for bronze route Nb_3Sn wires without reinforcement", IEEE. Trnas. Appl. Supercond., vol. 16, pp. 1228-1231, 2006.
- [3] S. Murase, I. Okada, K. Kiyama, N. Nanato, S.B. Kim, H. Oguro, G. Nishijima, S. Awaji, K. Watanabe and M. Wake, "Three-directional FEM analyses of pre-bending effects for Nb_3Sn composite wires", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 17, pp. 2676 - 2679, 2007.
- [4] S. Murase, H. Okamoto, T. Wakasa, T. Tsukii, and S. Shimamoto, "Three-Directional Analysis of Thermally-Induced Strains for Nb_3Sn and Oxide Composite Superconductors", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 13, pp. 3386-3389, 2003.
- [5] S. Murase and H. Okamoto, "FEM Analysis of Three Directional Strain States Under Applied Tensile Stress for Various Composite Superconductors", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 14, pp. 1130-1132, 2004.
- [6] S. Murase, I. Okada, K. Kiyama, N. Nanato, S.B. Kim, H. Oguro, G. Nishijima, S. Awaji, K. Watanabe and M. Wake, "Three-directional FEM analyses of pre-bending effects for Nb_3Sn composite wires", IEEE Trans. Appl. Supercond., vol. 17, pp. 2676 - 2679, 2007.
- [7] 延原正彦, 村瀬暁, 七戸希, 淡路智, 西島元, 渡辺和雄, "製法の異なる Nb_3Sn 超電導線の事前曲げ効果の 3 次元歪解析" 第 81 回 2009 年度秋季低温工学・超電導学会講演概要集 p.161, 2009
- [8] 中島康希, 村瀬暁, 七戸希, 淡路智, 西島元, 渡辺和雄, "Coated Conductor の事前曲げ効果の有限要素法による 3 次元歪解析" 第 81 回 2009 年度秋季低温工学・超電導学会講演概要集 p.79, 2009

鉄オキシニクタイト超伝導体の電子状態と組成依存性

研究代表者名

京都大学・基礎物理学研究所・遠山 貴巳

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・前川 禎通

東北大学・金属材料研究所・森 道康

1. はじめに

鉄オキシニクタイト超伝導体, $\text{LaFeAs}(\text{O},\text{F})$, の発見以降、鉄を含んだ様々な超伝導体が発見されている。この物質の超伝導臨界温度 T_c は、La を原子半径の小さいランタノイドで置き換えたり、O を F で置換もしくは O 欠損を作ったりすることで上昇する傾向がある。F 置換や O 欠損によって Fe の価数は変わるが、銅酸化物超伝導体のような T_c とキャリア数との明確な相関があるとは言えない。一方、結晶の格子定数には組成依存性があり T_c との相関がある。C.H. Lee 達は、中性子回折法を用いて、組成変化に伴う各原子位置の変化を詳細に調べた。そして、As-Fe のボンド長には組成依存性が無いのに対し、As-Fe-As で作る角度 α は組成と共に変化し、 T_c との明確な相関が見られると報告している。したがって、この物質群の超伝導状態を解明する上で組成依存性を調べるのが重要である。

2. 研究経過

Fe の周りには As が四面体配位している。まず Fe の各 d 軌道レベルの角度 α に関する近似式を見積もり、次に Slater-Koster の表を用いて Fe と As で構成される多軌道の分散関係をタイトバインディング近似で計算した。この方法は、角度 α を極端に変化させて電子状態を調べるのに適している。そして、鉄のオンサイトクーロン相互作用をハートリー・フォック平均場近似で扱い、セルフコンシステントな計算を実行して基底状態を求めた。

砒素系の母物質では磁気秩序が存在する。その磁気秩序は、中性子散乱などによりストライプ状の反強磁性秩序であることが知られている。そして、この磁気秩序に付随したスピン波の分散関係が観測されており、局在スピン模型による解析が報告されている。しかし、スピンモーメントの大きさは、 $0.3\sim 1.0\mu_B$ 程度と局在スピン模型で仮定される値より小さく見積もられているうえ、電気伝導度の温度依存性は金属的である。したがって、局在スピン模型による解析は必ずしも妥当ではなく、本研究のような金属状態に出発点をおく手法が有効であると考えられる。

3. 研究成果

鉄系超伝導体の母物質で、砒素を含んだ系では磁気秩序が観測されているのに対して、リンを含んだ系では明確な磁気秩序は報告されていない。これらの物質依存性についても、 $\text{As}(\text{P})\text{-Fe-As}(\text{P})$ で作る四面体結合角 α が重要であると考えられる。多軌道 Hubbard 模型の平均場近似から、磁気秩序のパターンは、同じ軌道上での斥力 U が 1.0eV 程度より大きいと、第一原理バンド計算の結果と異なり、チェッカーボード型の反強磁性秩序が、角度 α によらず安定になることが分かった[1]。しかし、 U を 0.8eV 程度に小さくすると、ストライプ型が安定になる場合が、角度 α が正四面体に近い領域に存在することが分かった。また、 U を小さくしても、角度 α が正四面体の場合より大きくしていくと、ストライプ型が安定になり、さらに角度 α を大きくしていくと、非磁性状態が安定となった。このことは、リン系で磁気秩序が観測されていない事実と符合する。なお、ストライプ型が安定になる U の大きさは、制限された乱雑位相近似による見積もりに比べてかなり小さい。 U の大きさの見積もりに関しては模型・近似依存性が大きいと考えられる。

4. まとめ

鉄系超伝導物質全体の T_c がたった一つのパラメータ α でスケールされているように見えることは驚くべきことである。なぜ角度 α が電子状態や T_c の決定機構にとって重要なのか理論的に解明することが重要課題となっているが、本研究では母物質の磁性状態もこの角度に大きく依存していることを示した。磁氣的ゆらぎが超伝導の出現機構と密接に関連していると考えられており、本研究の成果は鉄系超伝導研究に対する重要な寄与となるものと期待される。

[1] 森道康、遠山貴巳、前川禎通、日本物理学会 2009 年秋季大会 (熊本大学 2009 年 9 月)

ナノ構造超伝導体における渦糸構造とダイナミクス

研究代表者名

大阪府立大学・工学研究科数理工学分野・加藤 勝

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・小山 富 男、大阪府立大学・工学研究科電子物理工学分野・石 田 武 和、大阪府立大学・工学研究科電子物理工学分野・野 口 悟、大阪府立大学・工学研究科電子物理工学分野・川 又 修 一、大阪府立大学・工学研究科数理工学分野・丹 羽 祐 平、大阪府立大学・工学研究科数理工学分野・富 田 聡、秋田大学・文化教育学部・林 正 彦、東北大学・海 老 澤 丕 道

1. はじめに

大きさがコヒーレンス長や磁場侵入長程度になった超伝導体においては、電子の閉じ込めによる効果とともに、渦糸の閉じ込めによる特異な現象が期待されている。ミクロンサイズの超伝導微小板においては、バルクの超伝導体における単一量子磁束の三角格子構造（アブリコソフ格子）とは異なり、巨大磁束の発生や、反磁束の発生等が理論的に予言され、また間接的な実験によって実証されている。

我々も、d-波超伝導体である酸化物高温超伝導体と従来型 s-波超伝導体との複合体（d-dot）において、半整数磁束の発生とその構造をシミュレーションによって示している。また有限サイズの超伝導ネットワークにおいても、磁束の閉じ込めがおこり、巨大磁束や反磁束が生じることを理論的に示した。

このような特異な磁束構造は、物理学の基礎的な研究であるとともに、その磁束の制御による新しいデバイスがいろいろと提案されている。我々も、d-dot における半整数磁束が発生したときに生じる 2 状態を利用した論理回路を提案し、そのシミュレーションを行い、動作速度が従来の半導体ベースの論理回路より 1 桁以上早くなることを示している。

2. 研究経過

今年度の研究として、まず、有限サイズの超伝導ネットワークにおいて、実験的に磁束を観測することで実証しているが、欠陥のない超伝導ネットワークを作成することは困難であり、磁束構造がシミュレーションとは異なったものになっていた。このため欠陥のある超伝導ネットワークにおいて、完全な対称的なネットワークと比べて、どのような磁束構造が現れるかについてシミュレーションを行った。

また、d-dot の半整数磁束を実証するために実験グループが、酸化物高温超伝導体 YBCO 薄膜と Nb を用いたもの、Bi2212 単結晶と Pb を用いたもの、また d-波超伝導体として CeCoIn₅ を用いたもので、超伝導複合体を作成している。

さらに、その磁束の観察のための SQUID 顕微鏡の精度を向上させるアルゴリズムも開発している。

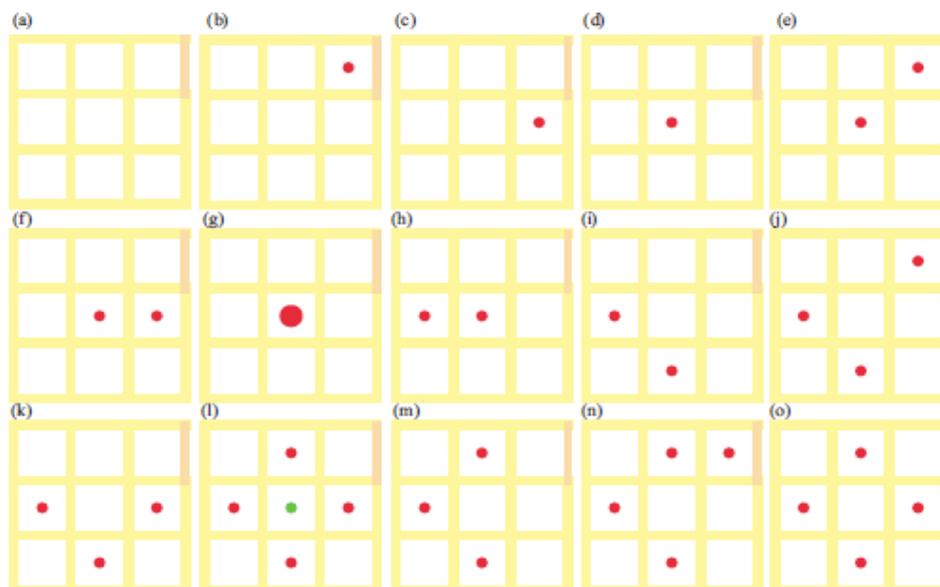


図 1：欠陥のある有限サイズ超伝導ネットワークの磁束構造。(a)から(o)まで磁場を増加

3. 研究成果

欠陥のある有限サイズ超伝導ネットワークのシミュレーションにおいては、欠陥のある場所に磁束が束縛されることが予想されたが、欠陥が遠隔的に磁束構造に影響を与えることが分かった[1]。例えば、図1に示すような欠陥が右上の角にあるネットワークに対して、磁場を増加していったときの磁束構造を調べた。図に示されているように、対称的な磁束構造 (a), (d), (g), (l), (o) が現れる磁場の中間の値で非対称な磁束構造が現れる。その非対称な磁束構造において、磁束が必ずしも欠陥のある部分に束縛されているのではないことが、たとえば、(c), (f), (h)等を見るとわかる。このような結果に基づいて、実験的に得られた磁束構造を解析する必要があると思われる。

また、実験的に作成された **d-dot** の磁束分布の SQUID 顕微鏡による観測では図2のようなものが得られた(川又、石田[2])。図の中心の赤い正方形に **Bi2212** 超伝導体があり、そのまわりを従来型超伝導体である **Pb** が取り囲んでいる。左上の角まわりに現れている磁束の値はほぼ量子磁束の半分になっている。このとき、二つの超伝導体の接合が、左上の角まわり以外が完全ではないため、左上の角以外に磁束が現れていないと思われる。この結果を受けて、接合が完全でない場合の理論計算も行っており、観測された分布に近いものも得ている。また、この SQUID 顕微鏡像を解析して、詳細な磁束分布も得ている (林、海老澤)。

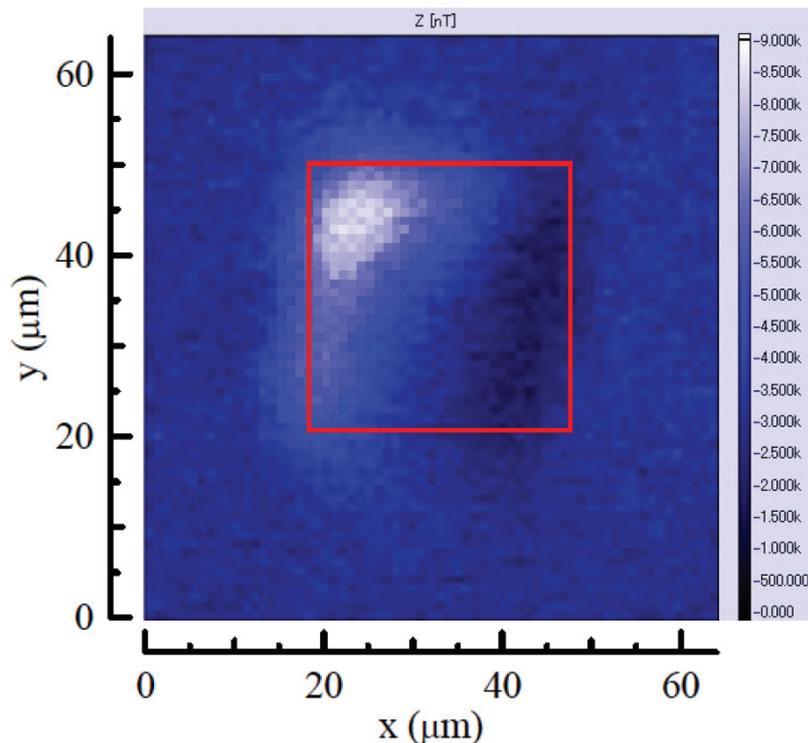


図2 正方形の **Bi2212** を **Pb** で囲んだ **d-dot** の磁束分布。左上の角に生じた磁束の大きさはほぼ $\Phi_0/2$ となっている。

4. まとめ

ナノ構造超伝導体における磁束構造について、欠陥のある有限サイズ超伝導ネットワークにおけるシミュレーション、超伝導複合構造 **d-dot** の作成とその磁束観測によって、興味深い磁束構造が得ることができた。**d-dot** に関しては、

今後の研究の方向に関しては、超伝導ネットワークの結果を利用して、有限サイズの超伝導ネットワークにおける磁束構造を、欠陥を導入することで制御することが挙げられ、また、**d-dot** に関しては、完全な **d-dot** を作成し、シミュレーションによって得られた論理回路の動作を確認し、さらに、安定な2状態間の量子遷移を確認し、量子コンピューターの素子となることを実証することが挙げられる。

[1] M. Kato, Y. Iwamoto, O. Sato, Phys. Rev. B 80, 024510 (2009).

[2] S. Kawamata, M. Yamamoto, M. Uno, K. Satoh, T. Yuki, T. Yotsuya, T. Ishida, to appear in Physica C.

研究課題名 第2種超伝導体の表面臨界磁場に及ぼす境界形状依存性

研究代表者名
鹿児島大学・大学院理工学研究科・加藤龍蔵

1. はじめに

第2種超伝導体を超伝導コイルなどとは異なり磁束量子デバイスのようなナノ構造のデバイスとして応用するためには、超伝導体表面からの磁束の出入りに大きな影響を及ぼすピン止めポテンシャルがどのようなものか明らかにする必要があります。この超伝導体表面でのピン止めポテンシャルは、超伝導体の形状に依存するため、任意形状の超伝導体内外の磁束密度分布を求める必要があります。そのため、任意形状の超伝導体を有限要素に分割し、ギンツブルグ・ランダウ方程式に基づき、シミュレーションが可能となる有限要素法プログラムを開発し、このプログラムにより、様々な形状の超伝導体の磁束密度分布をシミュレーションして、境界形状が表面臨界磁場や表面でのピン止めポテンシャルに及ぼす影響を明らかにすることが本研究の目的である。

2. 研究経過

先行研究のギンツブルグ・ランダウ方程式に基づく3次元有限要素法において、節点要素を用いた計算では結果が収束しなかったため、辺要素を用いたロンドン方程式に基づく3次元有限要素法のプログラムを開発した。球状超伝導体に対して、開発したプログラムにより求めた磁束密度分布の数値計算結果は、解析的な近似解と一致した。ロンドン方程式の解は、ギンツブルグ・ランダウ方程式においてGLパラメータを無限大にした極限の解であることから、外部磁場が非常に小さな場合のマイスナー状態をシミュレーションすることが可能であるが、磁束量子が存在する混合状態の磁束密度分布を調べることはできない。

3. 研究成果

約174万要素に分割した約204万の辺要素を用いたロンドン方程式に基づく3次元有限要素法により、超伝導体内外の磁束密度分布を数値的に求めた結果である。図1は、 z 軸に平行に外部磁場 H_0 を印加した場合の超伝導体表面の磁束密度の大きさをカラーマップで表したものである。節点要素を用いた場合のロンドン方程式に基づく3次元有限要素法による計算結果と比較したところ、節点要素を用いた場合には、超伝導体の頂点や稜線近傍で誤差が大きくなるが、辺要素を用いた場合には精度よく結果が得られることがわかった。

凹部を持つ直方体超伝導体のような複雑な形状でも同様に数値結果を得ることができた。図2は、2つの凹部を持つ直方体超伝導体の表面の磁束密度の大きさのカラーマップである。

4. まとめ

約200万の辺要素を用いたロンドン方程式に基づく3次元有限要素法により、任意形状の超伝導体のマイスナー状態の磁束密度分布を求めることが可能となった。今後、表面臨界磁場や混合状態の磁束密度分布を求めるためには、超伝導状態の秩序変数で記述されるギンツブルグ・ランダウ方程式に基づく3次元有限要素法に拡張する必要がある。

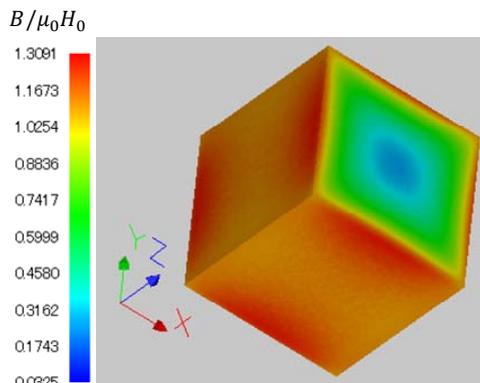


図1 立法体超伝導体表面における磁束密度分布のカラーマップ

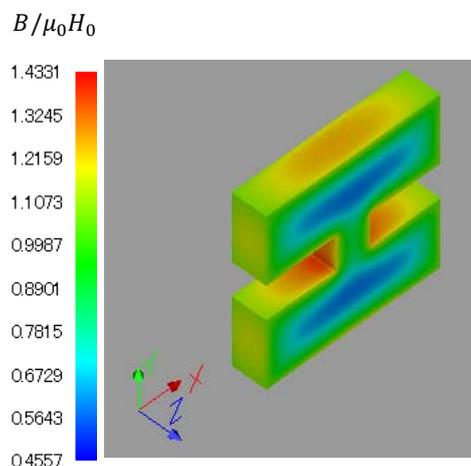


図2 凹部のある超伝導体表面における磁束密度分布のカラーマップ

1. はじめに

パイ電子系ネットワーク物質の超伝導に関する研究は、1990年代の C_{60} 系超伝導体に関する研究 [1]、2006年の CaC_6 超伝導体の発見によって本格化したグラファイト系超伝導体に関する研究が代表的である [2]。一方、BEDT-TTF系などの有機超伝導体に関する研究は、 $T_c = 13$ Kを示す物質が発見されて以降、ほとんど T_c の上昇がみられていない [3]。我々は、炭素と水素だけからなる有機芳香族分子ピセン結晶へのアルカリ金属原子ならびにアルカリ土類金属原子のドーピングより、 $T_c = 18$ Kの新しい超伝導体の開発に成功した。これは、パイ電子系ネットワーク物質の超伝導研究に新たな研究軸を加えたものと言える。

2. 研究経過

図1に示すピセン分子の結晶へのKならびにRbのインターカレーションによって、超伝導が発現することを見いだした。図2に $K_{3.3}$ piceneの磁化率の温度依存性を示す。20 K付近から磁化率の低下がみられ、超伝導率1.2%の超伝導物質が形成されていることが見いだされた ($T_c = 18$ K)。なお、異なる試料であるが、同じ組成の $K_{3.3}$ piceneで7 K付近からの磁化率の低下が観測され、このときの超伝導率は15%であった。このように、 K_3 piceneと化学量論的に表現できる組成において、 $T_c = 18$ Kと $T_c = 7$ Kの二つの超伝導相が実現していることがわかった。Rbをドーピングした場合には、同じく Rb_3 piceneにおいて、7 Kと27 Kの二つの相が存在することがわかっている。本研究課題では、この超伝導体の性質を明らかにするために、挿入された金属原子の位置の決定ならびにラマンシフトによる正確な組成の決定を行った。

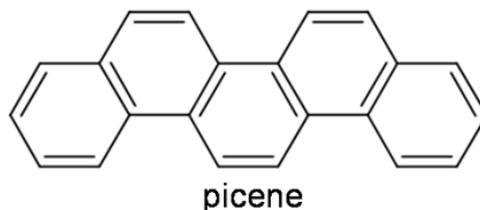
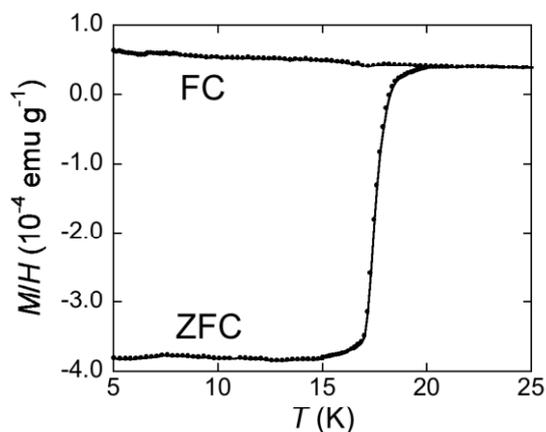
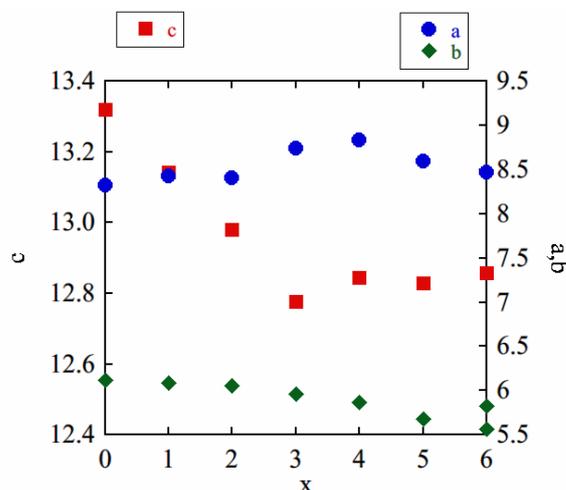


図1. ピセン分子の分子構造。

3. 研究成果

図3に、 K_x piceneの格子定数の組成依存性を示す。金属挿入量 x の増加に伴って、Herringbone型パッキングからなる面間の間隔に対応する c 軸の拡大を期待したが、 c 軸は逆に縮小し面内の格子定数である a の増大が観測された。この結果は、K原子の面内への挿入を示唆するものである。 Rb_x piceneについても同様な結果が得られており、Rb原子も面内に挿入されることが明らかになった。ピセン分子の分子内ラマン振動数の組成依存性を図4に示す。ピセン分子の基準振動解析から理論的に予測されるラマン振動数の組成依存性も図4に示している。この図からわかるように、ピセン分子への電子の付与は、ラマンモードのソフトニングを生み出す。すなわち、ラマン振動数の値から試料の正確な組成を決定

することが可能である。超伝導率の低い K_3 picene試料のラマン振動数は、ピセンに2個の電子を付与したものの振動数と一致している。これは、実際にはこの試料の大部分の相が、 K_2 piceneであることを示唆しており、このため超伝導相が低くなっていることを意味する。したがって、3個の電子が付与されたときに出現するラマン振動数を観測できる試料が得られれば、超伝導率が高くなるものと期待される。このように、ラマンは試料の正確な組成決定に極めて有用である。理論的には、電子-フォノン結合定数は、225 meVであることが予測されており [4]、BCS理論によって、この超伝導が説明できるとすれば、予想されるフェルミ面上の状態密度 $N(\epsilon_F)$ は、2.2 states eV^{-1} picene $^{-1}$ spin $^{-1}$ となる。実験的にESRから得られた $N(\epsilon_F)$ は1.2 states eV^{-1} picene $^{-1}$ spin $^{-1}$ であって両者は良い一致を示している。この物質の超伝導発現機構は未だ明らかではないが、上記の結果はBCS的な機構である可能性を示唆

図2. $K_{3.3}$ piceneの磁化率の温度依存性。図3. K_x piceneの格子定数の組成依存性

している。

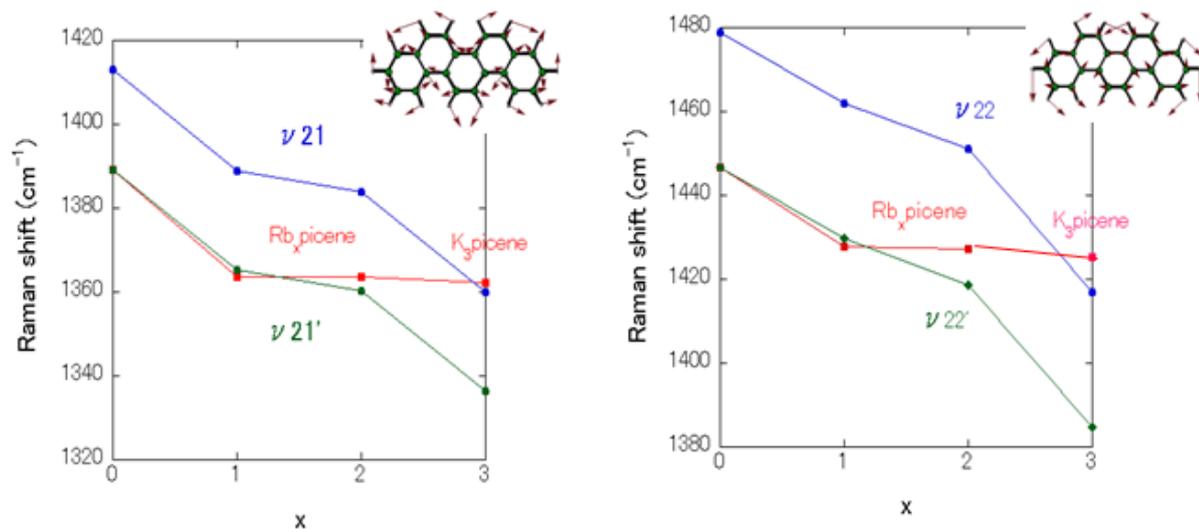


図 4. ラマン振動数の組成依存性. 赤のラインが実験値、青のラインは基準振動計算によって得られた理論値. 緑のラインは、 $x = 0$ の理論値を実験値に合わせてプロットしたもの.

4. まとめ

本研究を通じて、新型の超伝導体である有機芳香族超伝導体の基本的な特性解明に向けての第一歩を記すことができた。有機芳香族超伝導体は今後多様な物質が開発されることが期待されるので、この研究は、有機芳香族超伝導体の基本物性解明と、超伝導機構の解明に向けて重要であると考えられる。

文献

- [1] M. S. Dresselhaus, G. Dresselhaus and P. C. Eklund, Science of Fullerenes and Carbon Nanotubes, Academic Press, San Diego (1996).
- [2] N. Emery *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 95, 087003 (2005).
- [3] J. E. Schirber *et al.* *Phys. Rev. B* 44, 4666-4669 (1991).
- [4] T. Kato *et al.* unpublished data.