

## 極低温実験室と私達の研究

青峰, 隆文  
九州大学大学院理学研究院物理学部門

<https://doi.org/10.15017/11046>

---

出版情報 : 九州大学極低温実験室だより. 1, pp.5-10, 2000-10. Cryogenic Laboratory, Faculty of Science, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

# 極低温実験室と私達の研究

大学院理学研究院物理学部門 青峰 隆文

Takafumi Aomine, Department of Physics, Faculty of Sciences

## 要旨

まず極低温実験室が理学部にできた頃と最近の極低温実験室の状況について寒剤の供給量とヘリウム液化機の故障を例に述べる。次に筆者の研究を述べるが、ここでは、その題目だけを古いものから列挙する。超伝導不純物効果。超伝導秩序パラメーターの揺動による  $T > T_c$  または  $H > H_{c2}$  における電気伝導度。超伝導輸送臨界電流。ジョセフソン素子の新しい作製方法の開発と特性。ジョセフソン回路網。超伝導体における反平行磁束の発生消滅。d波超伝導体と金属間のトンネル効果。

## Abstract

The Cryogenic Laboratory was founded in the Faculty of Sciences in order to supply liquid helium and nitrogen, and to offer an experimental space. The situations of the Cryogenic Laboratory at that time are described. As the recent situations in the Cryogenic Laboratory, the example of trouble in the helium liquefier is described. Next study of the author is described. Here their titles only are enumerated in turn from old one. Impurity effect on superconductors. Electrical conductivity due to fluctuations of the superconducting order parameters above  $T > T_c$  or  $H > H_{c2}$ . The situations of transport critical current in superconductors. Development of new fabrication method and character of Josephson junction. Josephson network, Nucleation and annihilation of anti-parallel fluxoids in superconducting thin films. Tunnel effect between d-wave superconductors and metals.

「九州大学極低温実験室だより」の創刊号が発刊されることになり、執筆依頼が極低温実験室運営委員長の網代芳民教授よりあった。筆者はこの実験室の誕生の時から、外国に滞在した時を除いてずっと九大の極低温実験室を利用させていただいている。記憶がまだある内に書き留めておいた方がよからうと思って引き受けた。

## 1. 九州大学理学部極低温実験室

### (1) 開設の頃

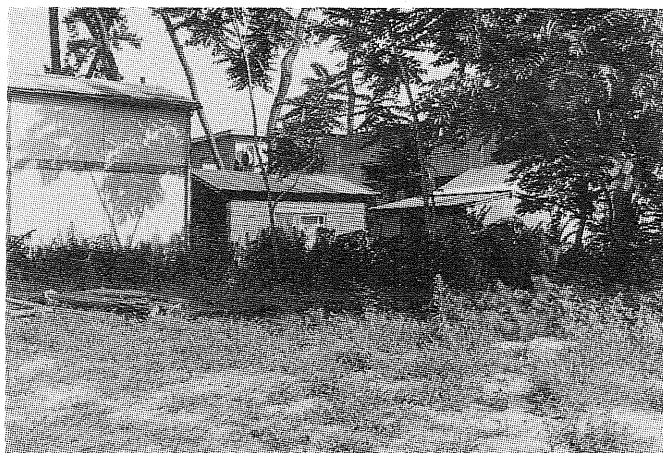
九大として極低温研究を行なうため昭和35年11月に東北大学金属材料研究所の渋谷喜夫教授を迎えた。また、昭和37年1月には、同じく東北大より相沢辰男助手を迎えた。二人は昭和26年に東北大学金属材料研究所で日本で始めて液体ヘリウムを得た当時、立ち合った人である。九大の極低温実験室は運動場の片隅の松が何本があるところに建てられ、完成したのは昭和37年3月であった。ヘリウム液化機は同

年3月19日に搬入された。液化機はアメリカ製で昭和37年4月20日にアメリカより技術者が来て液化機の試運転を行なった。このことは新聞にも報道され渋谷教授が液化機と並んでいる写真が掲載された。国立大学としては4番目に液体ヘリウムが使用可能になった。その当時理学部は現在の本館の4階建の建物と平屋と2階建の数棟の木造の建物だけで、工学部にはまだ現在の冶金系の建物はなかった。ヘリウム液化機は最初の頃は、週1回金曜日に運転された。現在のように、いつでも液体ヘリウムを使った実験ができなく、実験を金曜日に合わせる必要があった。

極低温実験室では、問題点として実験室開設の初期の頃では、液化機関連のインチネジの確保、冷却水の水量と水質の確保であったが、現在は冷却水のタンクは地下に埋っていて冷却水の量の問題は解決した。水質が悪いのは現在でも問題である。

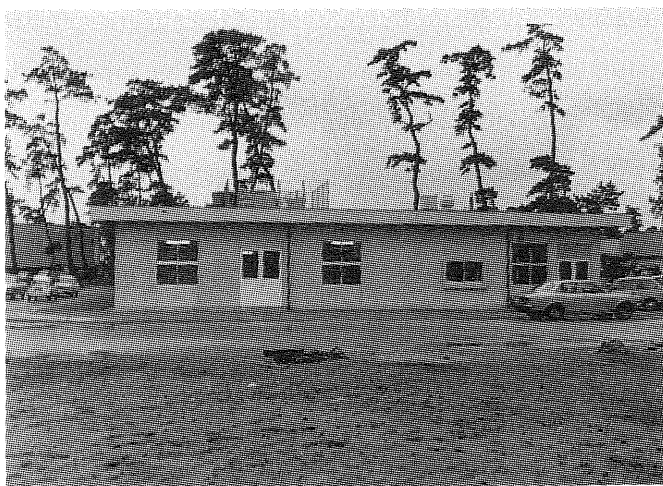
## (2) 実験室の発展(鉛はどこから出てきたか)

昭和46年度に極低温実験室の増築が認められた。右の写真は増築の建物が建てられる直前の敷地である。



次の写真は増築が完成した頃の写真である。

その後、利用者の拡大により、週2回火曜日と金曜日に液化機は運転され、現在は液化機から直接液体ヘリウムをくむ場合とヘリウム貯蔵用の容器から液体ヘリウムをくむ場合がある。学内への液体ヘリウムの供給量は平成10年度と平成11年度ではそれぞれ7,500リットル、11,200リットル、液体窒素の供給量は平成10年度と平成11年度ではそれぞれ198,000リットル、203,000リットルである。



ヘリウム液化機は日頃より保守点検が必要である。ここに紹介するトラブルは滅多に起らないもので、今後のヘリウムの液化にどれほど役に立つのかわからないが、ここで紹介する[1]。

初期症状：ヘリウム液化機真空槽の真空度が上がらなくなった。液化機付属の真空ポンプで一晩(約15時間)で50 $\mu$ Hg前後の真空になる。純ガスによる冷却運転を行ない液化機内部が20Kまで下がったところで不純ガス運転を行なったところ、約5秒後、液化機真空槽の安全弁が作動した。不純ガスラインにリークがあることがわかった。

気密試験後の症状：配管に亀裂が入り、亀裂の部分から微粉末が出てきた。この配管の出口側のフィルター内が微粉末で一杯で、目詰まりしていた。微粉末は灰色で成分分析したところ95%が鉛であること

がわかった。この成分分析は九州大学中央分析センターで行なわれたものである。どこから鉛が出てきたのか。まず、実験者が鉛で汚染された不純なガスを回収したのではないかと思われた。しかし、そのような事実はなかった。そこで、別の原因を探ることになった。液化機メーカーの説明では、内部精製器に使用されている熱交換用フィンチューブの半田が、固化した不純物（水分、空気分等）で削り取られたものであるとのことである。半田の中の鉛が先ほどの検査で検知されたことになる。

## 2. 私達の研究

次に筆者達が行なって来た研究について主なものを紹介しよう。紹介する研究は、年代の古いものから新しいものへの順番に大体なっている。

(1) 超伝導不純物効果 ここで測定したのは電気抵抗より転移温度  $T_c$ 、磁化、電気抵抗による表面超伝導、コイル中に試料を含みコンデンサーと並列に連結したタンク回路の共振周波数である。超伝導体に非磁性不純物が混入すると、 $T_c$  は不純物濃度が低い場合は、電子の平均自由行路の逆数に比例して下がる。更に不純物量が増加すると、溶媒と溶質の原子価の差によって振る舞いが異なる。溶媒の原子価が溶質の原子価より多いときは、 $T_c$  は更に不純物が増えると低下はにぶくなる。一方、溶媒の方が少ないときは、不純物が増えると、 $T_c$  は最小値を取り、更に不純物が多くなると、 $T_c$  は増大する。本研究では超伝導金属に Sn、不純物に In を選び、単結晶試料を研究の対象とした。 $T_c$  は In と共に下がり、In が更に多くなると、 $T_c$  の下がり方はにぶくなる。磁界の増減の下での磁化対磁界の振る舞いを調べた。In が少ないと、第 1 種超伝導体であるが、In が更に多くなると、第 2 種超伝導体になることがわかった。電気抵抗の磁界依存性から試料の磁界  $H$  と平行に  $H_{c2} < H < 1.7H_{c2} = H_{c3}$  まで超伝導が残り表面超伝導の存在が認められた。この研究の新しいことは、一つの試料で電気抵抗測定、磁化測定、タンク回路の共振周波数の測定結果を結び付けたところにある [2], [3]。

共振周波数の変化  $\Delta f$  は磁界の侵入の深さ  $\lambda$  と関係があり、その温度依存性には次式の関係がある。

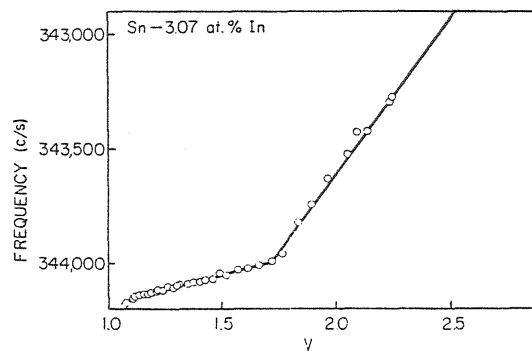
$$\Delta f \propto y$$

ここで、

$$y = \{1 - (T/T_c)^4\}^{-1/2}$$

$\Delta f$  の温度変化の測定より  $\lambda$  が決定できる。

しかし、実験結果の右図より  $\Delta f$  と  $y$  の関係には折れ線がある。図の縦軸は周波数を、横軸は  $y$  を示す。



折れ線がある  $y$  の値を  $y^*$  とすると、 $y < y^*$  と  $y > y^*$  でも  $\Delta f$  は  $y$  に対して直線である。この研究の新しいことは  $y^*$  の存在を指摘したところである [3]。なお、この論文では  $y > y^*$  は eddy current loss が起きているとしている。

(2) 超伝導秩序パラメーターの揺動による  $T > T_c$  または  $H > H_{c2}$  における電気伝導度 この揺動の影響を電気伝導度で調べる。超伝導の次元は結晶のサイズとコヒーレンス長さ  $\xi$  の大小関係で区別する。コヒーレンス長さというのは、超伝導体において秩序パラメーターが変化できる長さをいう。すべてのサイズが  $\xi$  より長い時は 3 次元、一つのサイズが  $\xi$  より短い時は 2 次元、二つのサイズが  $\xi$  より短い時、1 次元と

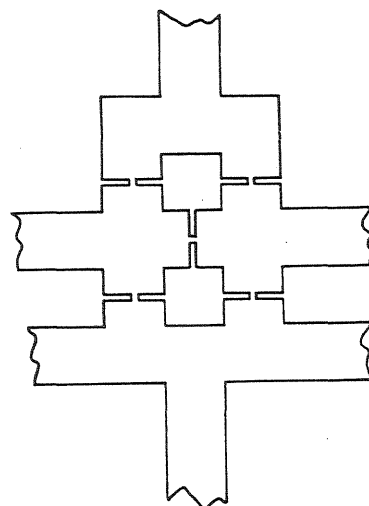
いう。電子の平均自由行路が長い3次元試料では揺動による電気伝導度の温度変化は小さく、揺動を観測するのは困難である。2次元試料で、電子の平均自由行路が短い場合は、揺動を観測するのは可能である。本研究で取り上げた試料は、結晶粒が小さく容易に2次元で電子の平均自由行路が短い薄膜作製可能なAl膜である。この膜は $T_c$ がバルクより高くなり、また、磁束ピン止めによる臨界電流が小さいことが知られている。揺動の電気伝導度の温度および磁界による寄与はAslamazov & Larkinの項ばかりでなく、Maki & Thompsonの項が必要であることがわかった。この研究の新しいことは、電気伝導度の磁界中の転移の拡がりを前述の二つの項で解析したところにある[4], [5]。

(3) 超伝導臨界電流 臨界電流は電流と電圧の関係を電流増加のもとで測定するとき、電圧の出始める電流をいうが、電圧の出現に幾つかの原因がある。(a)磁束ピン止め電流、(b)電子対破壊電流、(c)臨界電流の磁界の増減による履歴、(d)酸化物高温超伝導の次元性と臨界電流

(a)による臨界電流で、超伝導薄膜の両端が磁束ピン止めの役割をしていることを筆者達は独特な方法で実験的に証明した[6]。(b)による臨界電流で、NbN 薄膜の臨界電流の温度依存性が Ginzburg & Landau (GL)理論の臨界電流の計算との比較から、GL 理論の計算値は電子の平均自由行路がコヒーレンス長よりずっと長い場合に相当することがわかった[7]。(c)による臨界電流の履歴は、最初に筆者の研究室では金属系ブリッジで観測された[8], [9]。その後、多結晶の酸化物高温超伝導体でも観測されたが[10], [11]、金属系ブリッジで観測されたものと同じだった。この場合の履歴の原因は、ブリッジを連結している幅広いバンクが磁束を捕まえているために生じると考えている。また、単結晶の酸化物高温超伝導体の  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ でも電気抵抗率が大きい超伝導体の臨界電流は試料表面と磁界の間の角度に依存し、同じ単結晶の電気抵抗率の小さい試料の臨界電流は角度依存はなかった。前者にブリッジ構造があることを暗示している[12], [13]。(d)の対象の臨界電流は、20K~45K 以下の温度では、臨界電流は ab 面に平行な磁界成分によらないことがわかった[14]。

(4) ジョセフソン素子の新しい作製方法の開発と特性 ガラス基板に Cu 膜と Nb 膜をスパッターで重ね、その後、フォトレジストに段差をつけるためマスクを通してフォトレジストにパターンを転写する。次に段差があるフォトレジスト上に SiO 薄膜をスパッタする。SiO が段差のところで陰になるところには他のところに比べて薄く付着する。その後、Nb を陽極酸化することになり、Nb/Cu/Nb のジョセフソン素子ができる。作製された素子の電流対電圧、マイクロ波照射時の電流対電圧、臨界電流の温度依存性、臨界電流の磁界依存性を調べた。いずれの場合も特性は良好であった。ジョセフソン素子のこの作製方法は良好な性能をもつジョセフソン素子を高価な装置を使わずにできる点が新しい[15], [16]。

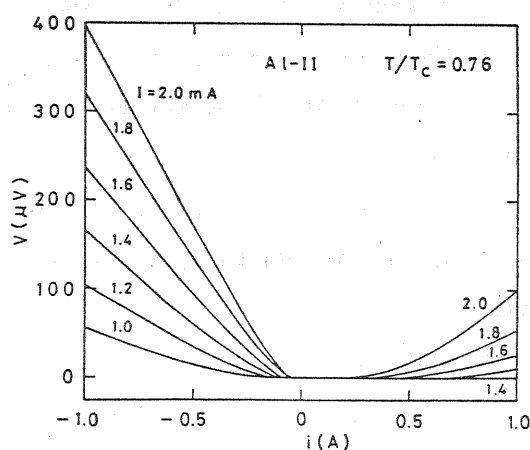
(5) ジョセフソン回路網 1 個のジョセフソン素子が持たない性質をもつ回路網を実現するため、素子数の少ない回路網から調べた。1 個の超伝導ループに 2 個のジョセフソン素子を配置する回路網 (2 素子と呼ぶ) で、2 素子はいわゆる dc-SQUID[17] である。三角形の各辺に素子を 1 個ずつもつ合計 3 個の素子の回路網 (3 素子と呼ぶ) [18]~[21]や二つの穴の連結に 5 個の



素子をもつ回路網（5素子と呼ぶ）の相図を実験と計算で求めた[22]。5素子の図を右に示す。この場合のジョセフソン素子はいくつもの幅の狭いところのブリッジである。

(6) 超伝導体における反平行磁束の発生消滅 超伝導体に一樣な磁界を加えるとある磁界以上では混合状態になり磁束は格子を形成する。この状態に磁束ピン止め電流以上の輸送電流を流すと、磁束は力を受けて動き、その反対方向に粘性力を受ける。定常磁束流れ状態では、磁束は試料の片側から侵入し、一樣な速度で試料を横切り他の片側から出てゆくと考える。輸送電流を平板に流し空間的に1次元の勾配ある磁界を加えると、試料内部で反平行磁束が発生し試料の両端へ動き、そこで消滅する。輸送電流の向きを反対にすると、試料の両側に発生した磁束が試料内部で消滅する。この研究は最初に、1975年

に行なわれた[23]が、磁界勾配をつけるため銅線に電流を流すと、銅線からのジュール熱のため温度制御する必要があった。また、小さい幅の試料を作るためにはフォトリソグラフィを使う必要があった。銅線は試料の長さ方向に平行に置く必要があったが、目測には限度があった。そこで、磁界勾配を作る線は超伝導線であつ試料と平行に置くため、小さい幅の試料を作るためフォトリソグラフィ技術を使用した。このように実験条件が改善されたもとの勾配ある磁界を加えたまま、輸送電流と電圧の関



係を現在測定している。上図は1975年に行なわれた実験結果[23]を示し、縦軸は電圧を示し、横軸は磁界勾配を作る線に流す電流値を示す。その正の電流値は反平行磁束が試料中に発生する場合を示し、その負の電流値は反平行磁束が試料中で消滅する場合を示す。上図から非対称性があることがわかる。

(7) d波超伝導体のトンネル効果 d波超伝導体と金属の間のトンネル接合として、前者は $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-x}$ 単結晶を、後者はAgを選んだ。実験結果より(001)接合にはV字型キャップ構造が観測され、酸化物高温超伝導体はd波超伝導体であることがわかる。(100)と(110)接合の両方でゼロ・バイアス・コンダクタンス・ピークは観測された[24]が、この結果は界面の乱れによるものと考えられる。

## 参考文献

- [1] ヘリウム液化機点検修理報告書 大阪酸素工業株式会社、エーテック株式会社 1995年6月
- [2] T. Aomine & Y. Shibuya, J. Phys. Soc. Jpn. 25, 1289 (1968)
- [3] T. Aomine, J. Phys. Soc. Jpn. 25, 1585 (1968)
- [4] T. Aomine & L. Rinderer, J. Low Temp. Phys. 6, 323 (1972)
- [5] T. Aomine & L. Rinderer, J. Low Temp. Phys. 10, 527 (1973)
- [6] T. Aomine, K. Mizuno & S. Yamasaki, J. Low Temp. Phys. 33, 145 (1978)
- [7] T. Aomine, E. Tanaka, S. Yamasaki, K. Tani & A. Yonekura, J. Low Temp. Phys. 74, 263 (1989)
- [8] K. Mizuno & T. Aomine, J. Phys. Soc. Jpn. 52, 4316 (1983)
- [9] T. Aomine & A. Yonekura, Phys. Lett. 114A, 16 (1986)

- [10] T. Aomine & K. Tsuru, Jpn. J. Appl. Phys. 26, L2013 (1987)
- [11] T. Yamamoto & T. Aomine, Jpn. J. Appl. Phys. 27, L1917 (1988)
- [12] T. Aomine, T. Nishizaki, I. Fujii, T. Terashima, K. Iijima, K. Hirata, K. Hayashi, K. Yamamoto & Y. Bando, Jpn. J. Appl. Phys. 30, L103 (1991)
- [13] T. Aomine, T. Nishizaki, I. Fujii, T. Terashima, K. Iijima, K. Hirata, K. Hayashi, K. Yamamoto & Y. Bando, Supercond. Sci. Technol. 4, 373 (1991)
- [14] T. Aomine, T. Nishizaki, F. Ichikawa, T. Fukami, T. Terashima & Y. Bando, Physica B 194-196, 1613 (1994)
- [15] H. Nakano & T. Aomine, Jpn. J. Appl. Phys. 25, L601 (1986)
- [16] H. Nakano & T. Aomine, Jpn. J. Appl. Phys. 26, 304 (1987)
- [17] T. Aomine, K. Mizuno, K. Miyake, K. Matsuo, S. Kusunoki & M. Hidaka, Jpn. J. Appl. Phys. 20, 1311 (1981)
- [18] S. Hosogi & T. Aomine, LT-17, CD2 (1984)
- [19] T. Aomine, M. Hidaka, K. Matsuo & T. Kitagawa, Bull. Informatics and Cybernetics 21, 85 (1984)
- [20] F. Ichikawa, T. Aomine & S. Hosogi, J. Appl. Phys. 63, 1636 (1988)
- [21] F. Ichikawa & T. Aomine, J. Appl. Phys. 66, 3399 (1989)
- [22] T. Aomine, M. Hidaka, S. Kusunoki, K. Miyake, K. Matsuo, T. Kitagawa & C. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys. 21, 490 (1982)
- [23] T. Aomine & K. Yamafuji, J. Phys. Soc. Jpn. 38, 408 (1975)
- [24] I. Shigeta, T. Uchida, Y. Tominari, T. Arai, F. Ichikawa, T. Fukami, T. Aomine & V. M. Svistunov, J. Phys. Soc. Jpn. 69, 2201 (2000)