

11 Superconductivity Poster presentation : 11 Superconductivity (Poster)
--

[7p-P07-1~27] 11 Superconductivity (Poster)

[7p-P07-1]

Searching for binary compounds in which incipient bands manifest using databases

○Sora Matsumoto¹, Hirofumi Sakakibara^{1,2} (1.Tottori Univ., 2.AMES, Tottori Univ.)

[7p-P07-2]

Development and Benchmarking of a Computational Simulation System for Unconventional Superconductivity Coded in Julia

○Naotaka Tanaka¹, Kensei Ushio¹, Daiki Nakaoka¹, Yuto Hoshi¹, Hirofumi Sakakibara^{1,2}, Masataka Kakoi³ (1.Faculty of Eng., Tottori Univ., 2.AMES., Tottori Univ., 3.Dept. of Phys., Osaka Univ.)

[7p-P07-3]

First-Principles Calculations for Dynamical Stability of Infinite-Layer Transition Metal Oxide Thin Films

○Reo Kono¹, Daiki Nakaoka¹, Hirofumi Sakakibara^{1,2} (1.Faculty of Eng., Tottori Univ., 2.AMES, Tottori Univ.)

[7p-P07-4]

Study aimed for realization of low-pressure superconductivity in pressure-induced nickelate superconductors through controlling ion radius

○Tomohiko Hamada¹, Ushio Kensei¹, Sakakibara Hirofumi^{1,2} (1.Tottori Univ, 2.AMES, Tottori Univ)

[7p-P07-5]

Growth of bulk $\text{La}_{0.9}\text{Eu}_{0.1}\text{NiO}_3$ crystals using pressurized optical floating zone method○(M1)So Omura¹, Sangtae Kim¹, Isamu Shindo², Shinji Kimura², Takashi Watanabe², Ryoto Yanagisawa¹, Nobuaki Miyakawa¹ (1.Tokyo Univ. of Sci, 2.Crystal Systems Corp.)

[7p-P07-6]

Synthesis and grain orientation control of Er-doped Bi-based cuprate superconductor

○Yasuaki Takeda¹, Takanobu Hiroto¹ (1.NIMS)

[7p-P07-7]

Local electrical characterization of BSCCO/semiconductor heterojunctions prepared via MOD method

○Yasuyuki Yamada¹, Masato Nobushima¹, Shu Ikura¹, Hiromu Kasai¹ (1.NIT, Oyama College)

[7p-P07-8]

Impedance analysis of bias circuits of Bi2212 Josephson plasma emitters

○Keitarou Sugimoto¹, Masashi Miyamoto, Ryota Kobayashi¹, Manabu Tsujimoto², Itsuhiro Kakeya¹ (1.Graduate School of Engineering, Kyoto Univ., 2.AIST)

[7p-P07-9]

Evaluation of time-reversal symmetry of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ single crystals by optical measurement using the generalized-high accuracy universal polarimeter

○(M1)Komei Okano¹, Akiko Kikkawa³, Kun Zhang¹, Takuya Nakanishi², Keigo Tokita^{1,4}, Masaki Fujita⁴, Yasujiro Taguchi³, Toru Asahi^{1,2}, Kenta Nakagawa² (1.Faculty of Adv. Sci. & Eng., Waseda Univ., 2.Comprehensive Research Organization, Waseda Univ., 3.RIKEN center for Emergent Matter Science, 4.Institute for Materials Research, Tohoku Univ.)

[7p-P07-10]

Triaxial Magnetic Alignment of REBa₂Cu₄O₈ using Different MRF Methods

○(B)AHMED Muhammad Afq¹, K.G.P.P. Kahagalla¹, F. Fukuyama¹, S. Adachi¹, F. Kimura¹, S. Horii¹ (1.Kyoto Univ. Adv. Sci)

[7p-P07-11]

Local structure and superconducting anisotropy of NdFeAs(O,F)/CaF₂ thin films

○(M2)Koki Miyamoto¹, Hiroto Hibino¹, Atsuro Yoshikawa¹, Shunya Tomioka¹, Ibuki Washitani¹, Takafumi Hatano¹, Hiroshi Ikuta^{1,2} (1.Nagoya Univ., 2.Nagoya Univ RCCME)

[7p-P07-12]

Effect of Elemental Substitution on the Physical Properties of the Misfit Layered Compound (BiSe)_n(TaSe₂)_m

○Ryonosuke Nakata¹, Shogo Kuwahara¹, Tadataka Watanabe¹, Satoshi Demura¹ (1.CST Nihon Univ.)

[7p-P07-13]

NV⁻ Diamond Film Deposition for Quantum Sensing under High Pressure

○Kenta Kato^{1,2}, Tomohisa Aita^{1,2}, Ryo Matsumoto¹, Yoshihiko Takano^{1,2} (1.NIMS, 2.Tsukuba Univ.)

[7p-P07-14]

Evaluation of kinetic inductance in coplanar transmission lines using YBCO thin films

○Masaru Furukawa¹, Ibuki Takahashi¹, Hisashi Shimakage¹ (1.Ibaraki Univ.)

[7p-P07-15]

Dependence of gain on film thickness in kinetic-inductance traveling-wave parametric amplifiers

○Hayato Kondo¹, Masanori Takeda¹ (1.Shizuoka Univ.)

[7p-P07-16]

NbN Fluxonium Qubit

○Tomoko Fuse¹, Fumiki Yoshihara², Hirotaka Terai¹ (1.NICT, 2.Tokyo Sci. Univ.)

[7p-P07-17]

Unusual enhancement curves of self-field critical-current in ion-irradiated YBCO films

○Hiroaki Matsui¹, Iwao Yamaguchi¹, Norito Ishikawa² (1.AIST, 2.JAEA)

[7p-P07-18]

Exploration of Optimal Conditions for HoBCO Thin Films Using Definitive Screening Designs

○Takumi Takamura¹, Kota Shimodaira¹, Iori Nishimura¹, Noriyuki Taoka¹, Yoshiyuki Seike¹, Tatsuo Mori¹, Yusuke Ichino^{1,5}, Keiichi Horio^{2,5}, Ataru Ichinose^{3,5}, Tomoya Horide^{4,5}, Kaname Matsumoto^{4,5}, Yutaka Yoshida^{4,5} (1.Aichi Inst. of Technol., 2.Kyushu Inst. of Technol., 3.CRIEPI, 4.Nagoya Univ., 5.JST-CREST)

[7p-P07-19]

Fabrication of freestanding $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin films by water-soluble sacrificial layers

○Kouse Morinaga¹, Kai Walter², Jens Haenisch², Kazumasa Iida¹ (1.Nihon Univ., 2.ITEP-KIT.)

[7p-P07-20]

Study on the fabrication of La_2CuO_4 thin films by pulsed laser deposition method

○Taiki Kenjo¹, Yusuke Ichino², Shuhei Funaki³, Toshinori Ozaki¹ (1.Kwansei Gakuin Univ., 2.Aichi Inst. of Technol., 3.Shimane Univ.)

[7p-P07-21]

Investigation of low-temperature synthesis of Y123 films via KOH flux method by controlling dissolved oxygen in solution

○Haruki Shigenobu¹, Shuhei Funaki¹, Yasuji Yamada¹ (1.Shimane Univ.)

[7p-P07-22]

I-V Characteristics of $\text{LaO}_x\text{F}_{1-x}\text{Bi}(\text{S},\text{Se})_2$ -Metal Junction

○Kazuki Okada¹, Saito Mitsufumi¹ (1.Tokyo Metro Univ.)

[7p-P07-23]

Optimization of AE-Cu-O Thin Film Composition Using Combinatorial PLD Method

○(M1)Haruto Uchida¹, Kazuya Ogasawara¹, Shinkuro Suzuki¹, Noriyuki Taoka¹, Yoshiyuki Seike¹, Tatsuo Mori¹, Toshinori Ozaki², Shuhei Funaki³, Yusuke Ichino¹ (1.Aichi Inst. of Technol., 2.Kwansei Gakuin Univ., 3.Shimane Univ.)

[7p-P07-24]

Quantitative Analysis of the Plume in YBCO Thin Film Deposition by PLD and Its Influence on Film Properties

○Ryotaro Matsuda¹, Iori Kadota¹, Yuto Tanaka¹, Noriyuki Taoka¹, Yoshiyuki Seike¹, Tatsuo Mori¹, Yusuke Ichino^{1,5}, Keiichi Horio^{2,5}, Ataru Ichinose^{3,5}, Tomoya Horide^{4,5}, Kaname Matsumoto^{4,5}, Yutaka Yoshida^{4,5} (1.Aichi Inst. of Technol., 2.Kyushu Inst. of Technol., 3.CRIEPI, 4.Nagoya Univ., 5.JST-CREST)

[7p-P07-25]

Deposition of YBCO thin films by Eclipse Nd:YAG-PLD Method for droplet suppression and optimization of experimental conditions using definitive screening design

○Eijiro Okumura¹, Gen Ieda¹, Sota Tarumi¹, Tsuyoshi Ogawa¹, Noriyuki Taoka¹, Yoshiyuki Seike¹, Tatsuo Mori¹, Yusuke Ichino^{1,5}, Keiichi Horio^{2,5}, Ataru Ichinose^{3,5}, Tomoya Horide^{4,5}, Kaname Matsumoto^{4,5}, Yutaka Yoshida^{4,5} (1.Aichi Inst. of Tech., 2.Kyushu Inst. of Tech., 3.CRIEPI, 4.Nagoya Univ., 5.JST-CREST)

[7p-P07-26]

Attempt for growth of $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ film with high- T_c superconductivity at ambient pressure

○Ryo Matsumoto¹, Eiji Hitsuda^{1,2}, Soma Kodani³, Hiromi Tanaka³, Yoshihiko Takano^{1,2} (1.NIMS, 2.Univ. of Tsukuba, 3.NITYC)

[7p-P07-27]

Preparation of Sr-Cu-O Superconducting Films using the KOH Flux Method

○Shuhei Funaki¹, Koichiro Kawata¹, Yasuji Yamada¹, Yusuke Ichino², Toshinori Ozaki³ (1.Shimane Univ., 2.Aichi Inst. of Technol., 3.Kwansei Gakuin Univ.)

Incipient band が実現する 2 元系物質のデータベースを用いた探索

Searching for binary compounds in which incipient bands manifest using databases

鳥取大工¹, 鳥取大 AMES², [○](M2) 松本 流空¹, 榊原 寛史^{1,2}

Faculty of Eng., Tottori Univ.¹, AMES, Tottori Univ.², [○]Sora Matsumoto¹, Hirofumi Sakakibara^{1,2}

E-mail: M24J3055B@edu.tottori-u.ac.jp

2 層ニッケル酸化物超伝導体 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ [1]が最近発見され、これは銅酸化物と同程度に T_c が高く、既に分野内で広く興味を持たれている。一方、北峯らのニッケル酸塩化合物に対する先行研究によれば、2 層構造ではなくても多軌道系で incipient band が実現し、さらに 2 層系と同様のメカニズムで高温超伝導が発現する可能性が予想されていた[2]。本研究では、北峯らの予想が酸化物以外でも実現できるかどうかを検証した。動機としては、酸化物等のセラミックスは展延性が低いいため、線材応用を見据え少しでも展延性を上昇させた物質が有用であると考えられるためである。また、最終的な量産などの可能性も考慮し、今回は 2 元系に集中して物質探索を行った。

Incipient band は図 1 のようにフェルミ準位の上下に band が存在し、その band の一部がフェルミ準位を少し横切るような状況を指す。図 1 は第一原理計算コードである Quantum ESPRESSO [3] を用いて計算した電子の band 構造と Wannier90 パッケージ[4, 5]を用いて計算した鉄の d 軌道によるワニエ関数で内挿された band 構造を重ねて表示したものである。超伝導になる incipient band は d 軌道の結晶場分裂を必要とするため、図 2 のような八面体構造を含んだ物質の他にピラミッド構造、テトラポッド構造を含む物質が候補として考えられる。

探索の方法として COD (Crystallography Open Database) から、ヒ素、セレン、アンチモン、テルルから成り、かつアニオンとして水素、窒素、酸素、フッ素、塩素を含まない 2 元系物質の CIF ファイルを抽出した。これらを描画ソフトである VESTA[6]で開き、八面体構造やピラミッド構造、テトラポッド構造が含まれているかを判定した。これらのプロセスを経て絞り込んだ物質に対し、Quantum ESPRESSO を用いて第一原理計算を行い、incipient band になっているかを確認することで評価した。講演当日は incipient band の条件を満たす物質について解析結果を示す。

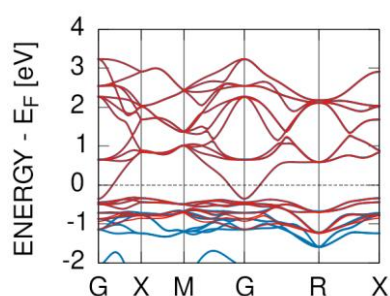


図 1 FeSe₂[7, 8]のフェルミ準位基準の band 図

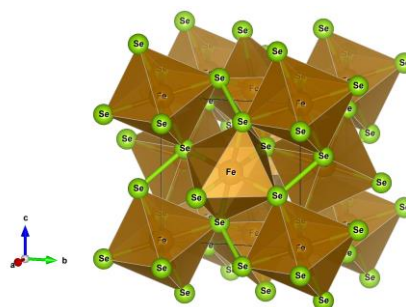


図 2 FeSe₂[7, 8]の構造

参考文献

- [1] H. Sun, et al., *Nature*, **621**, 493–498 (2023).
- [2] N. Kitamine, M. Ochi, and K. Kuroki., *Physical Review Research*, **2**, 042032 (2020).
- [3] P. Giannozzi, et al., *Journal of physics: Condensed matter*, **21**, 395502 (2009).
- [4] N. Marzari and D. Vanderbilt., *Physical review B*, **56**, 12847 (1997).
- [5] A. A. Mostofi, et al., *Journal reference: Comput. Phys. Commun*, **185**, 2309 (2014).
- [6] K. Momma and F. Izumi., *J. Appl. Crystallogr*, **44**, 1272–1276 (2011).
- [7] A. Jain, et al., *APL Materials*, **1**, 011002 (2013).
- [8] T.A. Bither, et al., *Inorganic Chemistry*, **7**, 2208–2220 (1968).

Julia 言語を用いた非従来型超伝導計算システムの開発とベンチマーク

Development and Benchmarking of a Computational Simulation System for

Unconventional Superconductivity Coded in Julia

鳥取大工¹, 鳥取大 AMES², 阪大理³

◦田中 尚岳¹, 牛尾 賢生¹, 中岡 大輝¹, 星 佑人¹, 榊原 寛史¹², 梶 昌孝³

Fac. of Eng., Tottori Univ.¹, AMES, Fac. of Eng., Tottori Univ.², Dept. of Phys., Osaka Univ.³

◦Naotaka Tanaka¹, Kensei Ushio¹, Daiki Nakaoka¹, Yuto Hoshi¹, Hirofumi Sakakibara²,

Masataka Kakoi³

E-mail: m24j3029c@edu.tottori-u.ac.jp

現在、知られている多くの超伝導材料は、超伝導状態への遷移に極低温や高圧といった特殊な環境を必要とする。このような中で、常圧常温で超伝導を示す新奇材料の発見は、世界で注目される重要課題である。材料探索を加速するためには、まず物性の正確な理解が不可欠であり、そのために理論計算に基づく評価が重要な役割を果たす。中でも、第一原理計算に基づく現実的な電子状態解析は物性解明や新物質予測に広く用いられている。たとえば図 1 に示すように、超伝導体の基本方程式である線形化エリアシュベルグ方程式において、電子多体効果を考慮した数値解から得られる固有値 λ と、実験で測定された非従来型(非フォノン)超伝導物質の転移温度 T_c との間には明確な相関が存在する[1]。 λ の計算には実験を必要としないため、 λ を指標とすることで新物質の探索が可能となる。このような大量のデータを得るためには、高速かつ高精度な計算コードの開発が必要である。また、計算機能の高度化に対応し、拡張性を担保する観点からは、柔軟で高性能なコーディングが実現可能な解析環境が求められる。本研究では、こうした要請に応えるべく、物性解析コードの開発方針レベルでの見直しを行っている。

既存の超伝導解析コードは、古くから数値計算分野で利用されてきた Fortran や C といった言語で記述されていることが多い。他の数値計算手法との組み合わせといった拡張性の観点から、今後の開発においては、よりモダンなプログラミング言語を活用することが望ましい。そこで本研究では、高性能の言語である Julia 言語を用いて、超伝導解析コードの開発を進めている。Julia は動的な記述が可能でありながら、C 言語並みの計算速度を実現できる点が特徴であり、数値計算分野での応用が拡大している。特に本研究では、超伝導の理論計算手法の一つである、ゆらぎ交換近似 (FLEX[2]) を用いた計算コードの実装を目指す。

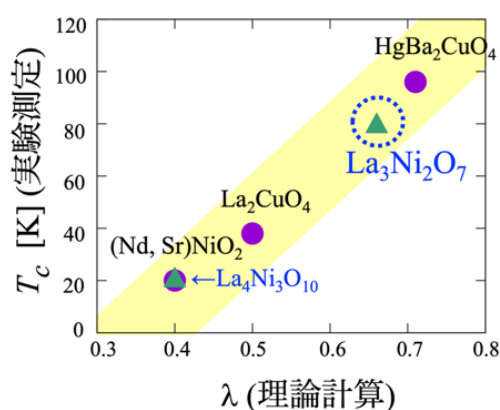


Fig. 1 T_c と λ の相関関係[1]

[1] 黒木和彦, 越智正之, 金子竜也, 榊原寛史, KOTBA 2 60 (11) (2025).

[2] N.E. Bickers, D. J. Scalapino, S. R. White, Phys. Rev. Lett. 62, 961 (1989).

無限層遷移金属酸化物薄膜の動的安定性に対する第一原理計算

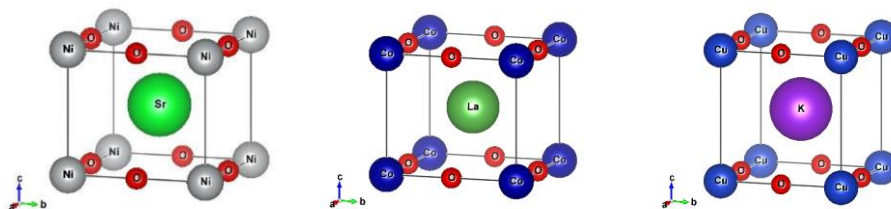
First-Principles Calculations for Dynamical Stability of Infinite-Layer Transition Metal Oxide Thin Films

鳥取大工¹, 鳥取大 AMES² ○(M1)河野怜於¹, 中岡大輝, 榊原寛史^{1,2}Faculty of Eng., Tottori Univ.¹, AMES, Tottori Univ.²○Reo Kono¹, Daiki Nakaoka¹, Hirofumi Sakakibara^{1,2}

E-mail: M25J3027A@edu.tottori-u.ac.jp

理論計算に基づく物質予言は理学的にも工学的にも極めて重要である。本研究では、超伝導にとって有利な電子状態である incipient band に着目し、新超伝導体の予言を目指して研究を行った。具体的な研究対象として無限層構造を持つ遷移金属酸化物薄膜に着目した。ニッケル酸化物薄膜 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ [1]において、 $x \sim 0.2$ の領域では恐らく銅酸化物に似た d 波超伝導が実現していると思われるが、高ドーピング（多量ドーピング）領域では s 波対称性を持つ超伝導が実現する可能性が理論的に提案されていた[2]。この多量ドーピング領域において Ni 原子は d 電子が 8 個存在する状態(d^8 状態)に近いので、 $d_{x^2-y^2}$ 軌道を主成分とするバンドとフェルミ準位のすぐ下にある他の $3d$ バンドの間で生じる電子散乱により超伝導が増強されると考えられている。そこで本研究は、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ そのものではなく、似たような d^8 状態の電子配置をもつ無限層構造を持つに対し、理論計算に基づいて構造の安定性を評価し、さらに incipient band が実現する可能性を検討した。本研究で解析した一連の遷移金属化合物は図 1 の構造をとり、電子ドーピング型の銅酸化物によく見られる、いわゆる頂点酸素がない、無限層の構造を持つ。具体的候補としてコバルト酸化物 LaCoO_2 と銅酸化物 KCuO_2 という可能性を検討した。

研究手法として第一原理計算パッケージである Quantum Espresso [3]を使用し、常圧の結晶構造の構造最適化を行った。その後 phonopy[4][5]を用いてフォノン計算を行い、構造安定性を評価した。また、最適化構造を用いてバンド構造を計算し、最局在ワニエ軌道法[6][7]及び制限乱雑位相近似[8]を用いて、有効モデルの構築を行った。当日はこれらの結果を 3 つの物質について系統的に比較し、新たな超伝導物質の可能性を吟味する。

図 1 無限層構造を持つ SrNiO_2 と LaCoO_2 と銅酸化物 KCuO_2 の結晶構造

- [1] D. Li *et al.*, Nature **572**, 624–627(2019)
- [2] H. Sakakibara, R. Mizuno, M. Ochi, H. Usui, K. Kuroki, arXiv:2407.21461 (2024)
- [3] P. Giannozzi *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 395502 (2009).
- [4] A. Togo *et al.*, J. Phys. Condens. Matter **35**, 353001-1-22 (2023)
- [5] A Togo, J. Phys. Soc. Jpn., **92**, 012001-1-21 (2023).
- [6] N. Marzari and D. Vanderbilt, Phys. Rev. B **56**, 12847 (1997).
- [7] A. A. Mostofi *et al.*, Comput. Phys. Commun. **185**, 2309 (2014).
- [8] F. Aryasetiawan *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 195104 (2004).

イオン半径制御による圧力誘起ニッケル酸化物超伝導の低圧化の研究

Study aimed for realization of low-pressure superconductivity in pressure-induced nickelate superconductors through controlling ion radius

鳥取大工¹、鳥取大学 AMES² (M1) 濱田智彦¹、牛尾賢生¹、榊原寛史^{1,2}

Fac. of Eng., Tottori Univ.¹, AMES, Tottori Univ.² Tomohiko Hamada¹, Kensei Ushio¹ and

Hirofumi Sakakibara^{1,2}

E-mail: m25j3049b@edu.tottori-u.ac.jp

先行の研究で発見された超伝導体の一つに Bilayer ニッケル酸化物超伝導体 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ がある。この物質は転移温度 $T_c=80\text{K}$ を実現しているが、超伝導転移に高压印加による構造相転移が必須という欠点を抱えている[1]。超伝導転移を阻害する要因の一つの可能性として、2層を繋いでいる Ni-O-Ni 結合のゆがみ(図1)が挙げられる。実験的な先行研究から知られた経験則として、この結合角 α が 180 度でなければ、超伝導に不利となるとされている。

また、Ochi らによって $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ の欠陥を解消する目的で $\text{Sr}_3\text{Ni}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ が提唱されている[2]。これは、La や酸素原子をよりイオン半径が大きい Sr 及び Cl 原子へ置換することにより、結晶を構築する原子間の隙間(トレランス)を少なくし、面間で結合している酸素の位置の自由を低下させることで、結合角を矯正する狙いがあった。実際、 $\text{Sr}_3\text{Ni}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ は常圧下で $\alpha=180$ 度であることが観測されている [3]。しかし、この物質は超伝導を示さない。考えられる原因として、stacking fault 等の結晶の乱れが超伝導に不利に働いた可能性が挙げられる。

本研究では、上記 2 物質を基に $\alpha=180$ 度と乱れの少ない結晶構造が両立した物質を探索し、常圧または低圧での超伝導実現を目指す。そのために、希土類サイトのイオン半径と結合角 α の関係を考察する。研究方法として、第一原理バンド計算を用いた構造最適化により圧力条件ごとの結合角 α を計算した。さらに、 $\alpha=180$ 度に近い領域では、 $\alpha=180$ 度を仮定し、フォノン計算によって動的安定性を評価した。当日のポスター講演では構造安定性から候補物質を評価し、その結果を示す。

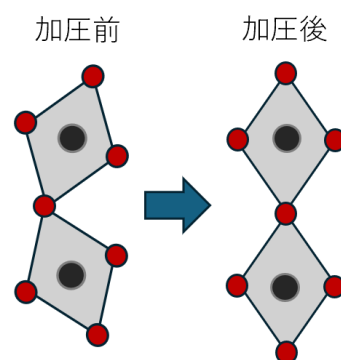


図1 構造相転移のイメージ

[1] H. Sun et al., Nature **621**, 7979 (2023)

[2] M. Ochi et al., Phys. Rev. B **111**, 064511 (2025)

[3] K. Yamane et al., Acta Cryst. C **81**, 259-263 (2025)

加圧式Optical Floating Zone法を用いたバルク

La_{0.9}Eu_{0.1}NiO₃結晶の育成

Growth of bulk La_{0.9}Eu_{0.1}NiO₃ crystals using pressurized optical floating zone method

東理大先進工¹, (株)クリスタルシステム^{2,○}(M1)大村蒼¹, 金祥泰¹, 進藤勇², 木村伸二²,
渡辺崇司², 柳澤亮人¹, 宮川宣明¹

Tokyo Univ. of Sci¹, Crystal Systems Corp.², [○]S. Omura¹, S. Kim¹, I. Shindo², S. Kimura²,
T. Watanabe², R. Yanagisawa¹, N. Miyakawa¹

E-mail: 8425506@ed.tus.ac.jp

【背景・目的】銅酸化物超伝導体は常圧において最も高い転移温度を示す。しかし、高温超伝導の発源機構は未解明な部分が多く、類似物との比較によって新たな知見が得られる可能性がある。ペロブスカイト構造 RNiO₃ を CaH₂ などでトポタクティク還元することで得られる無限層ニッケル酸化物 RNiO₂ は、銅酸化物超伝導体の類似物として注目されており、磁化や比熱などを測定するためにバルク単結晶の作製が求められている。

ニッケル酸化物 LaNiO₃ において、Ni³⁺ は高酸化状態を取るため バルク結晶を作製するには 3 MPa 以上の高圧・高酸化条件が必要とされている。またこれまでに、Sr²⁺ によるホールドーピングでは Sr 置換が 8 % を超えると成長過程において相分離が観察されており [1]、Sr²⁺ 以外の最適な置換材料を見つける必要がある。そこで本研究では置換材料として Eu に注目し、高圧酸素圧下 Floating Zone (FZ) 法を用いて LaNiO₂ の育成に試みた結果について報告する。

【結果】10 MPa まで加圧可能な高酸素圧下 FZ 装置を用いて、LaNiO₃ 及び La_{0.9}Eu_{0.1}NiO₃ のバルク単結晶作製を行った。酸素圧を 5 MPa と 10 MPa に変化させて育成した LaNiO₃ と 5 MPa で育成し La_{0.9}Eu_{0.1}NiO₃ の結晶写真と XRD 測定結果を図 1 に示す。当日はそれぞれの試料の電気特性についても発表する。

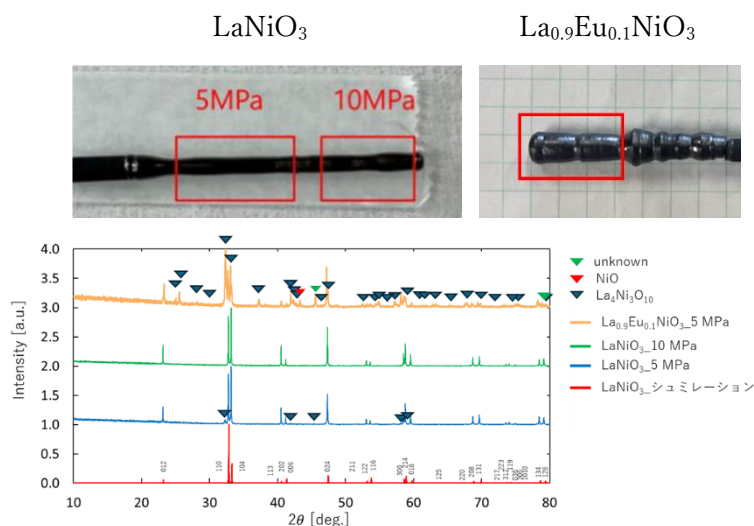


図 1 (上) LaNiO₃ 及び La_{0.9}Eu_{0.1}NiO₃ の結晶棒
(下) LaNiO₃ 及び La_{0.9}Eu_{0.1}NiO₃ の XRD

【参考文献】

[1] Puphal, P., et al. *APL Materials* 11.8 (2023).

Er ドープ Bi 系銅酸化物超伝導体の合成と配向制御

Synthesis and grain orientation control of Er-doped Bi-based cuprate superconductor

NIMS¹ ○武田 泰明¹, 廣戸 孝信¹

NIMS¹ ○Yasuaki Takeda¹, Takanobu Hiroto¹

E-mail: TAKEDA.Yasuaki@nims.go.jp

1. はじめに

銅酸化物超伝導線材で高い臨界電流密度 (J_c) を達成するためには、 a, b 軸と c 軸両方の結晶配向が必要である。量産性に優れる Powder-In-Tube (PIT) 線材において、これらの結晶配向を高度かつ同時に達成する手法は確立されていない。Bi 系超伝導体の PIT 線材では、一軸プレスやロール圧延など一軸圧を伴う機械的な手法によって高度な c 軸配向が達成されてきた[1]。PIT 線材にも適用できる a, b 軸の配向では、一部の希土類(RE)で見られる磁気的異方性を利用した磁場配向が候補として考えられる。先行研究では RE 系や Er をドープした Bi 系の超伝導体において高度な a, b 軸の磁場配向が達成されている[2,3]。これらの先行研究では配向後の焼結が難しいという課題があったが、これまでに我々は焼結によって高い J_c が実現できる磁場配向手法を提案してきた[4]。

機械的な手法での c 軸配向と磁場による a 軸配向を組み合わせることで、高度に三軸配向した PIT 線材が実現する可能性がある。そこで今回は、これら両方の配向に適すると思われる Er ドープ Bi 系銅酸化物超伝導体である、 $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2(\text{Ca,Er})\text{Cu}_2\text{O}_y$ (Bi(Er)-2212) の合成と配向制御について報告する。

2. 実験方法

仕込組成 Bi: Pb: Sr: Ca: Er: Cu = $2.05-x : x : 2.0 : 1.0-z : z : 2.0$ で、 SrCO_3 や Er_2O_3 などの酸化物または炭酸塩の原料粉末を秤量、混合し、空气中で仮焼成を行った後に粉碎することで仮焼粉末を得た。これを Pb 置換促進が期待できる $1-3\% \text{O}_2/\text{Ar}$ 気流中 ($P_{\text{O}_2} = 1-3 \text{ kPa}$) で熱処理、粉碎して、Bi(Er)-2212 粉末を作製した。粉末 XRD により構成相を調べ、SEM により結晶粒を観察した。

3. 結果と考察

合成した Bi(Er)-2212 ($z = 0.5$) 粉末に対する XRD パターンの一例を Fig. 1 に示す。比較のため、Pb と Er をドープしていない Bi-2212 ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$) の結果も示した。Pb 置換量 $x = 0.6$ では Bi(Er)-2201 が不純物として見られたが、Pb 置換量を増加させた $x = 1.0$ では Bi(Er)-2201 はほぼ生成しなかった。さらに、未特定のピークはあるものの、高温かつ還元雰囲気気の適切な熱処理 (880°C , $P_{\text{O}_2} = 1 \text{ kPa}$) によって Bi(Er)-2212 ($x = 1.0$) が主相で得られた。また、ノンドープ試料では重なっていた 200, 020 ピークは明確に分裂しており、Pb と Er の共ドープによって格子定数が変化したことがわかる。同様の格子定数の変化は Pb と Y を共ドープした先行研究[5]でも報告されている。Fig. 2 にこの粉末の二次電子像を示す。ほとんどの結晶粒が平板状であった。Bi 系超伝導体で知られている結晶のへき開性も考慮すると、 c 軸の機械配向に適した粉末であると推測される。

当日は、他の仕込組成での合成結果や、焼結が可能な磁場配向手法[4]による Bi(Er)-2212 粉末の配向制御についても報告する。

謝辞 本研究は、科研費 25K17830 の支援を受けたものです。

参考文献 [1] K. Sato *et al.*, *JJAP* **51** (2012) 010006. [2] S. Horii *et al.*, *SuST* **24** (2011) 055001. [3] S. Horii *et al.*, *APEX* **6** (2013) 093102. [4] Y. Takeda *et al.*, *Physica C* **584** (2021) 1353873. [5] V. Manivannan *et al.*, *PRB* **43** (1991) 8686–8689.

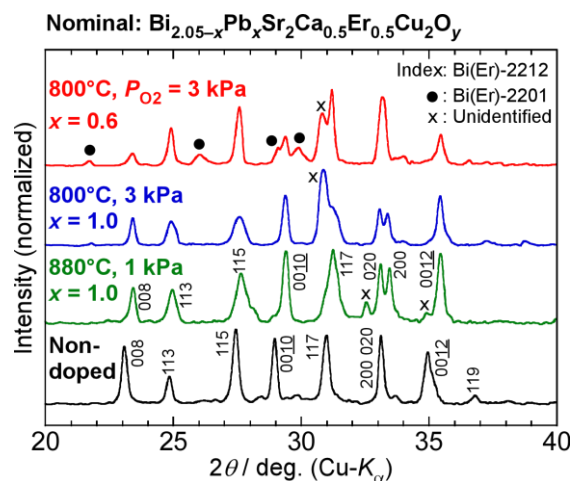


Fig. 1 Powder XRD pattern for Bi(Er)-2212 samples.

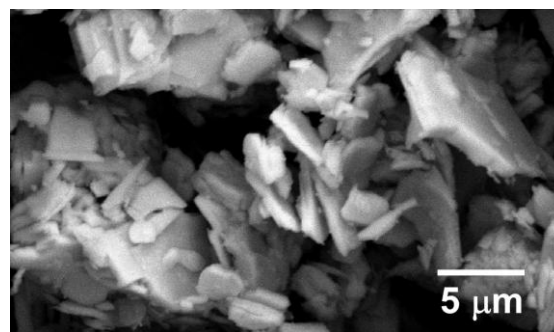


Fig. 2 Secondary electron image for synthesized Bi(Er)-2212 ($\text{Bi}_{1.05}\text{PbSr}_2\text{Ca}_{0.5}\text{Er}_{0.5}\text{Cu}_2\text{O}_y$) powder. Heat treatment condition is at 880°C and $P_{\text{O}_2} = 1 \text{ kPa}$.

MOD 法により作製した BSCCO/半導体ヘテロ接合の局所電気特性評価

Local electrical characterization of

BSCCO/semiconductor heterojunctions prepared via MOD method

小山高専¹ ○山田 靖幸¹, 延島 聖人¹, 伊倉 秀羽¹, 笠井 大夢¹

NIT, Oyama College¹, °Yasuyuki Yamada¹, Masato Nobushima¹, Shu Ikura¹, Hiromu Kasai¹

E-mail: yyamada@oyama.kosen-ac.jp, yyamada@oyama-ct.ac.jp

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (BSCCO) は、固有ジョセフソン接合に起因するジョセフソンプラズマモード (JP モード) を示し、これを用いたテラヘルツデバイスや量子ビットの実現が期待されている。従来、JP モードの励起には直流電流によるキャリア注入[1]やテラヘルツ波照射[2]が用いられてきたが、ジュール熱に起因する熱管理の課題や空間分解能の課題が残されている。我々は、JP モードの新規励起法として、可視光線や紫外線を用いた光励起を提案している。この手法では、BSCCO/半導体ヘテロ接合や BSCCO/pn 接合を作製し、光起電力効果を利用して BSCCO にキャリアを注入することで、局所的かつ高効率な JP モード励起が可能になると考えられる。

我々は、薄膜作製として有機金属分解 (MOD) 法を採用しており、BSCCO/半導体ヘテロ接合の作製を進めている。MOD 法は材料の多様性や組成制御性に優れ、半導体薄膜へのドーパント添加も容易であるが、多層構造作製時の熱処理による下層への影響を考慮したプロセス最適化が不可欠である。これまでに、p 型半導体 Cu_xO および n 型半導体 ZnO とのヘテロ接合において空間的に平均的な電気伝導特性を評価する方法として、図 1 に示すような概形の試料を作製して van der Pauw 法[3]を適用した。その結果、図 2 のように、いずれの半導体とのヘテロ接合においても、下層の BSCCO 層が液体窒素温度以上で超伝導遷移することを確認している[4,5]。

さて、ヘテロ接合の電気伝導特性の空間均一性はデバイス性能や信頼性に大きく影響するため、成膜条件や基板界面状態に起因する局所的ばらつきを可視化するマッピング技術が求められるが、現時点で本研究室においてはマッピング装置が未整備である。そこで、そのような段階でも実施可能な手法として、BSCCO/半導体ヘテロ接合の上層膜上に手動で複数の電極を形成し、各電極間の電気伝導特性を測定することで局所的ばらつきを評価する方法を検討した。

BSCCO, Cu_xO , ZnO の各薄膜の成膜には、これまで同様に、各々(株)高純度化学研究所製の原料溶液 SK-BSCCO008, Cu-03A, Zn-05 を用いた。使用基板には、サイズ $10 \times 10 \times 0.5$ mm の MgO (100) 基板または SrTiO_3 (100) 基板を用いた。溶液のスピコートには、(株)エイブル製のスピコーター (ASC-300) を用いた。熱処理は(株)デンケン製のマッフル炉 (KDF-P70) により行った。1 層目の BSCCO 薄膜を作製したのち、2 層目として各半導体薄膜の作製を行った。2 層目の原料溶液塗布の際にはメンディングテープを用いて簡易的に原料溶液のパターニングを行った。1 層目の BSCCO が露出している領域に銀ペーストにより電極を形成した。また、上層膜上にも、銀ペーストを用いて複数個の電極を手動で形成する。これらの詳細については講演にて報告する予定である。

参考文献

- [1] L. Ozyuzer et al., Science 318, 1291 (2007)
- [2] Singley et al. Phys. Rev. B 69, 092512 (2004)
- [3] L. J. van der Pauw, Philips Res. Rep. 13, 1 (1958)
- [4] 山田 他, 2024 年 第 85 回応用物理学会秋季学術講演会, 16p-P07-19
- [5] Y. Yamada et al., Journal of Physics: Conference Series (to be published)

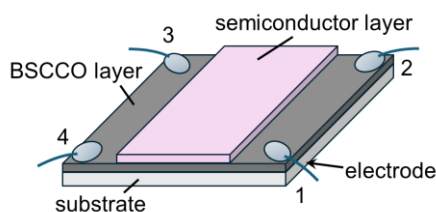


Figure 1. Schematic diagram of BSCCO/Semiconductor junction.

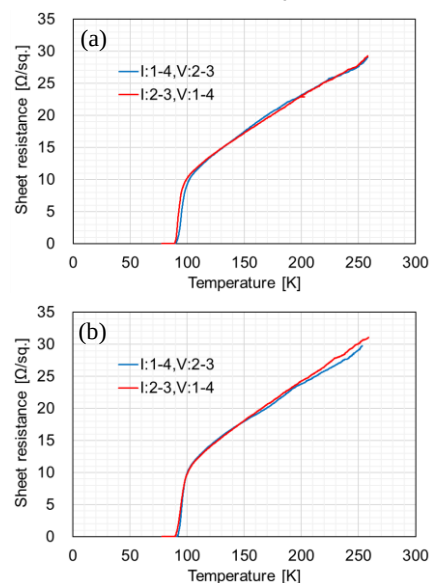


Figure 2. RT properties of the BSCCO layer. (a) BSCCO/ Cu_xO junction (b) BSCCO/ ZnO junction

Bi2212 ジョセフソンプラズマエミッタにおける

バイアス回路のインピーダンス解析

Impedance analysis of bias circuits of Bi2212 Josephson plasma emitters

京大工¹, 産総研² ○(M1)杉本 啓太郎¹, 宮本 将志, (D)小林 亮太¹, 辻本 学², 掛谷 一弘¹

Kyoto Univ.¹, AIST², °Keitaro Sugimoto¹, Masashi Miyamoto, Ryota Kobayashi¹, Manabu Tsujimoto²

Itsuhiro Kakeya¹

E-mail: sugimoto.keitarou.45c@st.kyoto-u.ac.jp

ジョセフソンプラズマエミッタ (JPE) は高温超伝導体 Bi-2212 の単結晶に内在する固有ジョセフソン接合を用いたテラヘルツ領域の光源デバイスである[1]。最近、我々は JPE に印加する電圧に高周波信号を重畳することで、JPE から放射される電磁波を周波数変調 (FM) させることに成功した[2]。FM 通信では、最大周波数偏移 Δf 、重畳周波数 f_m を大きくすることで SN 比や通信速度が向上する。そのため、JPE を用いたテラヘルツ通信を高速化するためには、文献[2]で実証された $f_m = 3$ GHz をさらに増大させることが求められる。

Fig. 1 に $f_m = 3$ GHz および 7.5 GHz のスペクトルを示す。今回、3 GHz から 10 GHz まで f_m を変化させた結果、最大 7.5 GHz での変調に成功した。また、重畳信号源からの出力電力を一定にして測定した結果、3 GHz $< f_m < 7.5$ GHz で非常に複雑な Δf の f_m 依存性が観測された。Fig. 2 に JPE デバイスへの電圧印加回路を示す。信号源から入力された重畳電圧の振幅 V_s は、JPE デバイス Z_{JPE} に振幅 $|\tilde{V}_m|$ として印加される。 Δf は振幅 $|\tilde{V}_m|$ に比例するので、伝送線路のインピーダンス Z が強い周波数依存性を持つことが Δf の f_m 依存性から推測される。

本研究では Z の周波数依存性を直接観測する実験を提案する。具体的には Fig. 3 に示す方向性結合器を用いて、JPE デバイスを含むクライオスタットへの進行波と反射波を測定し、その比を求めることでインピーダンスの周波数依存性を求める。本講演では実験の詳細と得られた測定結果について紹介し、 $f_m > 20$ GHz を実現する手法について議論したい。

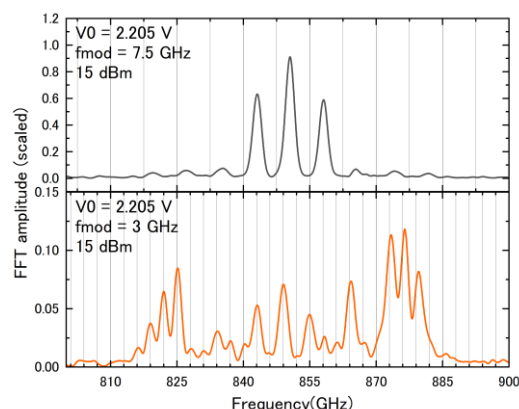


Fig.1: FM spectra of terahertz waves emitted from the JPE at $f_m = 3.0$ GHz and 7.5 GHz.

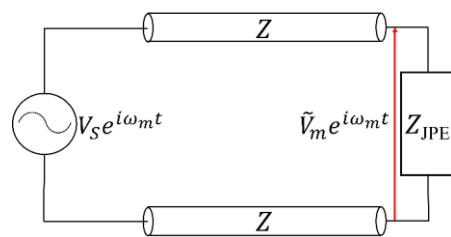


Fig.2: High-frequency circuit for applying an AC voltage from the signal source to the JPE device.

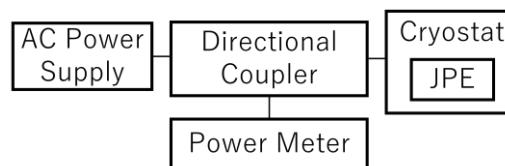


Fig.3: Analytical diagram for measuring the forward and reflected waves to and from a cryostat containing a JPE device, utilizing a directional coupler.

[1] I. Kakeya and H. Wang, *Supercond. Sci. Technol.*, **29**, 073001 (2016).

[2] M. Miyamoto *et al.*, *Nat. Photonics* **18**, 267 (2024).

一般型高精度万能旋光計を用いた光学測定による Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}単結晶の時間反転対称性の評価

Evaluation of time-reversal symmetry of Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} single crystals
by optical measurement using the generalized-high accuracy universal polarimeter

早大理工¹, 早大総研機構², 理研創発物性科学研究センター³, 東北大金研⁴

○(M1)岡野 洸明¹, 吉川 明子³, チョウ コン¹, 中西 卓也², 時田 桂吾^{1,4},
藤田 全基⁴, 田口 康二郎³, 朝日 透^{1,2}, 中川 鉄馬²

Faculty of Adv. Sci. & Eng., Waseda Univ.¹, Comprehensive Research Organization, Waseda Univ.²,
RIKEN Center for Emergent Matter Science³, Institute for Materials Research, Tohoku Univ.⁴

○(M1) Komei Okano¹, Akiko Kikkawa³, Kun Zhang¹, Takuya Nakanishi²,

Keigo Tokita^{1,4}, Masaki Fujita⁴, Yasujiro Taguchi³, Toru Asahi^{1,2}, Kenta Nakagawa²

E-mail : kenta.nakagawa@aoni.waseda.jp

高温超伝導体の発現機構を解明するために、Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} (Bi2212) を含む銅酸化物超伝導体は長年の研究対象となっている。銅酸化物超伝導体では、銅原子一つあたりのホールドーピング量 p を制御することによって、転移温度 T_C が変化するが、最も高い T_C を示す最適ホールドーピング量よりも低いホールドーピング量 (アンダードーピング) の試料では、特定の温度領域 ($T_C < T < T^*$) で擬ギャップが現れる^[1]。この擬ギャップの解釈の一つに、相転移仮説がある^[2]。相転移仮説では、擬ギャップが超伝導相と競合する秩序 (磁気秩序、環状電流) を持つことに由来する時間反転対称性の破れを仮定している^[2-3]。したがって、銅酸化物超伝導体の擬ギャップにおける時間反転対称性を評価し、その起源を明らかにすることは、超伝導発現機構の解明に重要な手掛かりとなる^[4-5]。試料の時間反転対称性の存否は、その相反・非相反的な円複屈折 (CB)、円二色性 (CD) を測定することで評価可能である^[6-7]。

我々が開発してきた一般型高精度万能旋光計 (G-HAUP) は、偏光子と検光子に由来する微小な系統誤差を定量的に評価することで、光学的異方性 (直線複屈折、直線二色性) に加えて CB と CD の同時測定が可能である^[6,8-11]。さらに我々は擬ギャップにおける光学測定のために、試料を冷却可能な G-HAUP を新たに開発した。本研究では、floating zone 法により育成したアンダードーピングの Bi2212 に対する、G-HAUP を用いた相反・非相反的な CB、CD 測定から擬ギャップにおける時間反転対称性を評価し、相転移仮説を検証した。本発表では、開発した G-HAUP の定量的な分解能評価を踏まえ、時間反転対称性の破れを定量的に考察したので、報告する。

- [1] T. Timusk *et al.*, *Rep. Prog. Phys.*, **62**, 61 (1999). [2] A. Kaminski *et al.*, *Nature*, **416**, 610 (2002).
[3] C. M. Varma, *Phys. Rev. B*, **55**, 14554 (1997). [4] P. Anderson *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2790 (1987). [5] T. Valla *et al.*, *Science*, **314**, 1914 (2006). [6] J. Kobayashi *et al.*, *Phys. Rev. B*, **53**, 11784 (1996). [7] A. Kapitulnik *et al.*, *New. J. Phys.*, **11**, 055060 (2009). [8] M. Tanaka *et al.*, *J. Phys. D*, **45**, 175303 (2012). [9] K. Nakagawa *et al.*, *Sci. Rep.*, **9**, 18453 (2019). [10] K. Zhang *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **90**, 113702 (2021). [11] K. Tokita *et al.*, *Sci. Rep.*, **14**, 27102 (2024).

Triaxial Magnetic Alignment of REBa₂Cu₄O₈ using Different MRF Methods

異なる回転変調磁場での REBa₂Cu₄O₈ 粒子の三軸配向

Kyoto Univ. Adv. Sci., °M.A. Ahmed, K.G.P.P. Kahagalla, F. Fukuyama, S. Adachi, F. Kimura, S. Horii

京都先端科学大・工：アハメド アフィク、カハガラ パモダ、福山風人、足立伸太郎、木村史子、堀井滋

E-mail: 2022m687@kuas.ac.jp

1. Introduction

Rare-earth (RE)-based cuprate superconductors are promising candidates for applications at 77 K due to their high critical temperatures (T_c). REBa₂Cu₄O₈ (RE124), in particular, shows stoichiometric oxygen content and $T_c \approx 80$ K. However, due to misorientation in the grain boundary, critical current density (J_c) of RE-based cuprate superconductors seriously decreases. To address this, magnetic alignment techniques using modulated rotating magnetic field (MRF) have been developed to improve tri/bi-axial grain orientation of them.

In this study, we employed triaxial magnetic alignment using two types of MRF, a Linear-drive type MRF (LDT-MRF) and a MRF of solenoidal superconducting magnet (SC-magnet), to investigate their effects on the alignment of DyBa₂Cu₄O₈ (Dy124) grains.

2. Experimental Method

The KOH flux method was used to prepare single Dy124 crystals at ambient pressure [1]. For magnetic alignment, the crystals were pulverized into fine powders in an agate mortar. The powders were mixed with epoxy resin at a weight ratio of 1: 10 (powder: resin) and placed inside the magnet array of LDT-MRF and SC-magnet with a sample rotation system for more than 12 h at room temperature, during which the epoxy resin mixture fully cured. After the magnetic alignment of the sample, (017) pole figure measurement was conducted for the bottom surface of the sample ($//ab$ -plane).

3. Results & Discussion

In the LDT-MRF system, the sample was subjected to linear reciprocating motion of a permanent magnet array, applying alternate magnetic field of static field of 0.8 T and a rotating field of 0.9 T, with a maximum rotation speed of approximately 900 rpm [2]. Whereas in the MRF of SC-magnet, sample was horizontally rotated within a static magnetic field of 0.5, 0.6, 0.8, 0.9, and 1 T along the transverse direction using the sample rotation system. The rotation was performed at 60 rpm, with 2-second pauses at 0° and 180°. The 0° angle was defined as the direction normal to the crystallographic a -plane [1]. Figure 1 shows pole figure plots of two-fold symmetric spots indicating the triaxial alignment of the

Dy124 grains. The measured full width at half maximum (FWHM) of the spots in the rotational direction was found to be $\Delta\phi \approx 4.7^\circ$ and $\Delta\phi \approx 5.9^\circ$ for LDT-MRF system and 0.8 T MRF of SC-magnet, respectively. Despite the different mechanisms both approaches produced equivalent alignment quality, as evidenced by FWHM values. This result demonstrates that multiple MRF approaches can be viable for achieving triaxial alignment in RE124 compounds. Furthermore, the effect of using magnet array of various widths on degree of grain orientation will be shown in the poster presentation.

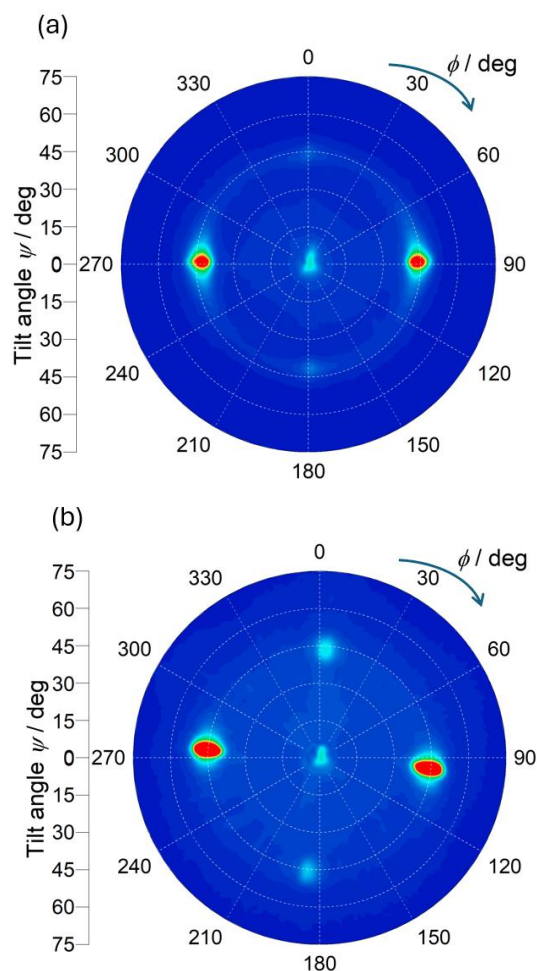


Figure 1. Pole Figure of magnetically aligned Dy124 with (a) MRF of SC-magnet with 0.8 T (b) LDT-MRF.

References

- [1] Yamaki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 51, 010107 (2012).
- [2] Ali *et al.*, J. Appl. Phys. 134, 163901 (2023).

NdFeAs(O,F)/CaF₂ 薄膜の局所構造と超伝導異方性

Local structure and superconducting anisotropy of NdFeAs(O,F)/CaF₂ thin films

名大院工¹, 名大 RCCME² °宮本 洸希¹, 日比野 絢斗¹, 吉川 淳朗¹, 富岡 隼也¹,
鷲谷 伊吹¹, 畑野 敬史¹, 生田 博志^{1,2}

Nagoya Univ.¹, Nagoya Univ RCCME², °Koki Miyamoto¹, Hiroto Hibino¹, Atsuro Yoshikawa¹,
Shunya Tomioka¹, Ibuki Washitani¹, Takafumi Hatano¹, Hiroshi Ikuta^{1,2}

E-mail: miyamoto.koki.i2@s.mail.nagoya-u.ac.jp

【緒言】最近我々は、鉄系超伝導体の中で最高の超伝導転移温度 T_c を示す NdFeAs(O,H)エピタキシャル薄膜における上部臨界磁場 H_{c2} の異方性 γ_{Hc2} の H 置換量依存性を系統的に調べ、 γ_{Hc2} が大きく異なる二つの領域の存在を見出した[1]。鉄系超伝導体においては As-Fe-As 結合角 α や As 高さ h などの局所構造パラメータと超伝導特性に相関があることが議論されている[2]。そこで、局所構造パラメータの H 置換量依存性を測定し、 γ_{Hc2} と比較したところ、明確な相関は見られなかった。この結果から、 γ_{Hc2} の急峻な変化はキャリアドーピングに伴う電子構造の変化による可能性があるとして報告した[3]。一方、第一原理計算によれば、 α が小さいほど 2 次元性の強いホールバンドのフェルミ面が大きくなるため [4]、 γ_{Hc2} の置換量依存性に影響が現れることが考えられる。そこで、格子整合性の観点から、 α が小さくなると期待される NdFeAs(O,F)/CaF₂ 薄膜に対し、X 線吸収微細構造 (XAFS) 測定および X 線回折 (XRD) 測定による局所構造パラメータの決定と、 γ_{Hc2} の測定を行った。

【手法】CaF₂ 基板上に分子線エピタキシー法によって NdFeAsO を成長させ、その上に NdOF を積層させることで F を拡散させる二層法により NdFeAs(O,F) 薄膜を作製した。これらについて電気抵抗の磁場角度依存性を測定し、 γ_{Hc2} を決定した。また、あいしンクロトロン光センター BL5S1 にて As K 吸収端における XAFS 測定を行い、微細構造から Fe-As 距離 d を算出した。この d と XRD 測定から決定した a 軸長から As-Fe-As 角度 α と As 高さ h を求めた。

【結果】Fig. 1 に、様々な H 置換量および F 置換量の試料に対する α 、 T_c の c 軸長依存性を示す。図(a)に示すように、NdFeAs(O,F)/CaF₂ の α は NdFeAs(O,H)/MgO と比較して小さく、バルク体において高い T_c の実現に最適とされる 109.47°[3]に近いことが分かった。図(b)に示すように、NdFeAs(O,F)/CaF₂ の T_c はバルク体と同等の 56 K であり、MgO 基板上の試料よりも高い。当日は、これらの試料に対する異方性測定の結果を示すとともに、H 置換試料との比較検討を行う予定である。

[1]畑野敬史ら, 応用物理学会秋季講演会, 16a-A35-10 (2024).

[2] C. H. Lee *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 083704 (2008).

[3]宮本洸希ら, 応用物理学会春季講演会, 15p-K209-8 (2025).

[4] H. Usui *et al.*, Phys. Rev. B **84**, 024505 (2011).

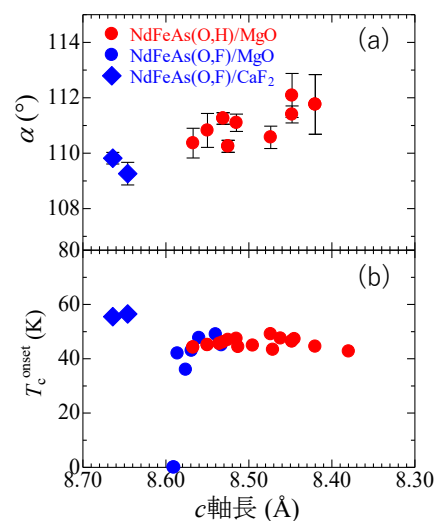


Fig. 1. The c -axis length dependence of (a) the As-Fe-As bond angle α and (b) T_c onset.

ミスフィット層状化合物 $(\text{BiSe})_n(\text{TaSe}_2)_m$ の元素置換効果による物性評価

Effect of Elemental Substitution on the Physical Properties of the Misfit Layered Compound $(\text{BiSe})_n(\text{TaSe}_2)_m$

日大理工 ○(M2) 中田 涼之助, (D) 桑原 彰梧, 渡辺 忠孝, 出村 郷志

CST Nihon Univ., °Ryonosuke Nakata, Shogo Kuwahara, Tadataka Watanabe, Satoshi Demura

E-mail: csry24021@g.nihon-u.ac.jp

ミスフィット層状化合物 $[(MX)_{1+\delta}]_n(TX_2)_m$ (M : Pb, Bi, Sn, rare earth, T : 遷移金属, X : S, Se) は絶縁性をもつ MX 層 n 層と伝導性をもつ TX_2 層 m 層がファンデルワールス力により交互に積層した結晶構造をもつ。この物質群の一部は超伝導を示し、その層数 n , m を制御することで超伝導転移温度 (T_c) が変化する。 $(\text{BiSe})_{1.10}(\text{NbSe}_2)_m$ は $m=1$ の時、 T_c は約 2.7 K であり、面内の結晶軸ごとに上部臨界磁場 ($\mu_0 H_{c2}$) が異なる [1]。また、この物質の Bi サイトに Ag 元素を置換し、電子キャリアドーピングを試みた、 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Se})(\text{NbSe}_2)_m$ は T_c や $\mu_0 H_{c2}$ の変化が確認された。次に本研究では、伝導層である NbSe_2 層の Nb を Ta に置き換えた、 $(\text{BiSe})(\text{TaSe}_2)_m$ に対しても Ag 置換による元素置換効果を調査し、その特性評価を試みた。目的物の単結晶は石英管内での熔融塩フラックス法で育成した。その結果、ミスフィット層状化合物由来の筋状模様を持つ、0.5mm 角の単結晶育成に成功した。X 線回折測定から、Ag 置換した試料のピークは高角側にシフトし、算出した c 軸方向の格子定数も縮小することを確認した(Fig 1.)。また、組成分析結果から、結晶中に Ag が含まれていることが確認された。しかし、Ag の仕込み値より低い値の検出であった。講演では、Ag 元素置換した $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Se})(\text{TaSe}_2)_m$ の超伝導特性の変化を紹介し、 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Se})(\text{NbSe}_2)_m$ の測定結果と比較しながら議論を行う。

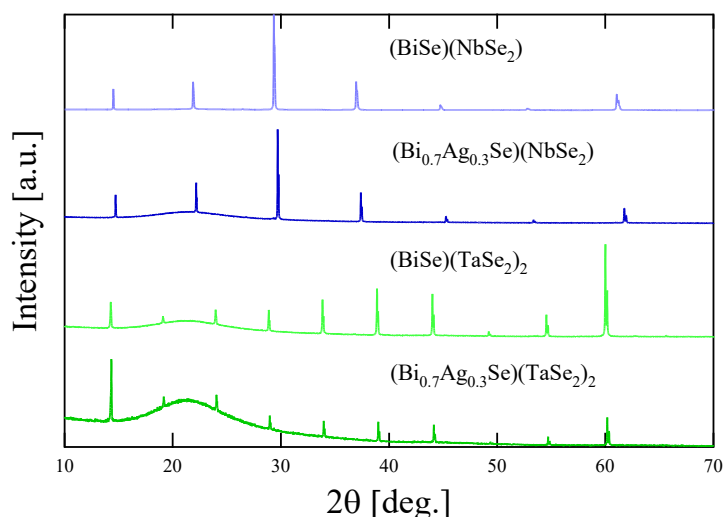


Fig1. XRD results of $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Se})(\text{NbSe}_2)$ and $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Se})(\text{TaSe}_2)_2$, $x_{\text{Ag}}=0.0, 0.3$

参考文献

- 【1】 S. Matsuzawa et al., J. Phys. Conf. Ser. 2545 012002 (2023)

高圧力下量子センシングに向けた NV ダイヤ成膜の取り組み

NV- Diamond Film Deposition for Quantum Sensing under High Pressure

物材機構¹, 筑波大学², ○(M2)加藤 健太^{1,2}, (M1)會田 倫久^{1,2}, 松本 凌¹, 高野 義彦^{1,2}

NIMS.¹, Univ. of Tsukuba², °Kenta Kato^{1,2}, Tomohisa Aita^{1,2}, Ryo Matsumoto¹, Yoshihiko Takano¹

E-mail: KATO.Kenta@nims.go.jp

超伝導体探索では、物質の電気抵抗と磁化の両方を測定することが重要であり、これは高圧力下においても同様である。我々はこれまで、ボロンドープダイヤモンドを電極とした装置開発により、高圧力下における電気抵抗測定を行ってきた[1]。一方、高圧下では試料サイズに制限があるため、磁化測定は依然として困難である。近年、窒素-空孔 (NV) センターを用いた高圧力下の量子センシングが注目されている[2][3]。NV センターはスピン量子数 $s=1$ を持ち、その基底状態は温度・磁場・圧力などによって変化するため、物性測定に使用できる。この特性を活かし、NV センターが入ったダイヤモンドで物質を加圧することで、高圧力下での量子センシングが可能となる。我々は、ダイヤモンドアンビルの上に NV センター入りダイヤモンドを成膜した NV-DAC を開発し、高圧下における電気抵抗と磁化の同時測定を行うことを提案する。本研究では、CVD 法を用いてダイヤモンド基板上に NV ダイヤモンド膜を成膜し、ラマン・PL 測定によって膜品質評価することで、高圧下における電気抵抗と磁化の同時測定に向けた検討を行った。

成膜にはマイクロ波プラズマ CVD を用いた。高感度なセンシングを可能にする上で NV-以外の欠陥濃度を最小限に抑え、NV-濃度を制御することが重要である[4]。本研究ではベイズ最適化を用いることで基板温度やマイクロ波出力、ガス比率などのパラメータを変化させ、NV-以外の欠陥を最小限にする成長条件を探索した。ラマン・PL 測定には、レニショー社製 inVia ラマンマイクロスコープを用い、励起光源として 532 nm のレーザーを使用した。得られたスペクトルに基づき、ダイヤモンド中の結晶性や欠陥の有無を評価した。結果として、各パラメータと膜品質の関係性について一定の知見が得られた。今後は、成膜した NV 入りダイヤモンドを用い、高圧力下における量子センシングに挑戦する。

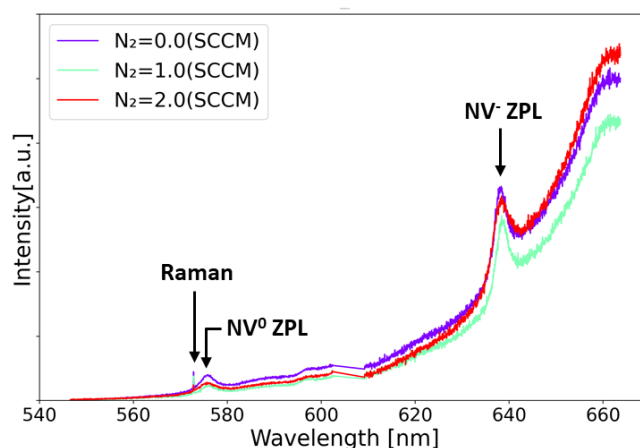


Fig1. Raman and ZPL spectra of CVD diamond films at nitrogen flow

[1] R. Matsumoto et al., *Rev. Sci. Instrum.* **87**, 076103 (2016) [2] Kin On Ho. et al., *J. Appl. Phys.* **129**, 241101 (2021)

[3] A. Hilberer. et al., *Phys. Rev. B* **107**, L220102 (2023) [4] J. Achard. Et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53**, 313001 (2020)

YBCO 薄膜を用いたコプレーナ伝送線路における カイネティックインダクタンスの評価

Evaluation of kinetic inductance in coplanar transmission lines using YBCO thin films

茨城大学 ○布留川 将、高橋 惟吹、島影 尚

Ibaraki Univ. °Masaru Furukawa, Ibuki Takahashi, Hisashi Shimakage

E-mail : 24nm647f@vc.ibaraki.ac.jp

1. はじめに

超伝導体が固有に持つカイネティックインダクタンス (L_k) の非線形性を利用したパラメトリック増幅の研究は、多くの研究機関で行われている。我々は、高温での動作が可能な汎用的増幅器の実現に向けて、高温超伝導体の活用を検討している。これまで、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) 薄膜を用いてコプレーナ伝送線路 (CPW) を作製し、 L_k の見積もりから実際の増幅器作製に向けての評価を行ってきた¹⁾。本発表では、異なる伝送線路の長さもつ CPW を作製し、 L_k の評価を行ったので報告する。

2. 実験方法及び結果

Fig.1 に作製した CPW の顕微鏡写真を示す。YBCO 薄膜の膜厚は 200 nm であり、CPW の芯線幅が 8 μm 、ギャップ幅が 8 μm 、線路長が 5 mm の直線状伝送線路 (サンプル A) と、芯線幅が 16 μm 、ギャップ幅が 16 μm 、線路長が 60 mm のミアンダ状伝送線路 (サンプル B) である。測定は、作製した CPW に直流の印加電流を流しながら、電磁波の伝送特性をネットワークアナライザで測定することにより、電磁波の位相変化量 $\Delta\theta$ を測定した。伝送線路を伝送する電磁波の波数を $k[\text{rad/m}]$ 、線路長を $l[\text{m}]$ としたときの、 $\Delta\theta = kl$ から、 L_k を導出し、印加電流依存性を得た。Fig.2 に測定した $\Delta\theta$ のデータから算出した L_k のバイアス電流依存性を示す。一般に L_k の印加電流に対する非線形性は $L_k(I) \approx L_k(0)[1 + (I/I_*)^2]$ で与

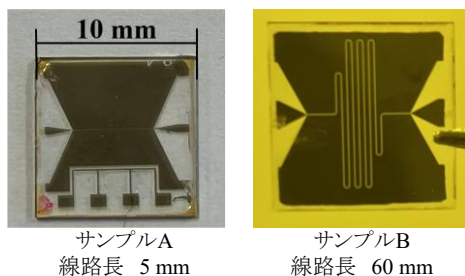


Fig.1 Micrograph of CPWs

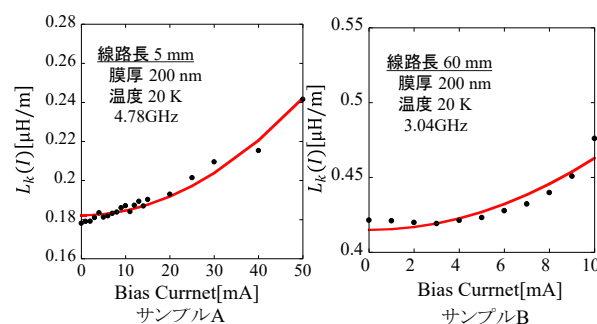


Fig.2 Bias current dependence of kinetic inductance

えられる。ここで、 $L_k(0)$ は、印加電流がないときの L_k であり、 I_* は超伝導薄膜の非線形性の強さを示すパラメータである。赤線は $L_k(I)$ の電流に対する二乗特性にフィッティングした回帰曲線であり、その依存性から $L_k(0)$ と I_* を導出した。 $L_k(0)$ と I_* は、サンプル A で 0.182 $\mu\text{H/m}$ 、87.2 mA、サンプル B で 0.415 $\mu\text{H/m}$ 、29.4 mA であった。本実験では、サンプル B はサンプル A に比べて線路長は 12 倍であり、線路幅は 2 倍としているので、サンプル B の太い線路幅のために、 $L_k(0)$ の値が小さくなると予想していたが、大きな値の結果となった。また、 I_* は、サンプル B の値の方が小さくなった。 I_* は増幅利得に関わるパラメータであるため、線路幅の太さとの関連がある。サンプル B では、線路長を延長するために、ミアンダ形状にしているため、線路幅の均一性や、伝送線路の曲率が特性に影響を与えている可能性がある。また、10 mm 角基板上的薄膜の外周部と中心部の膜質のばらつきの影響も考えられる。詳しい解析の結果は当日発表する。

【謝辞】本研究の一部は、産業技術総合研究所ナノプロセス施設の支援を受けて実施されました。

文献

- (1) 高橋 他、第 72 回応用物理学会春季学術講演会、16p-K209-16 (2025 年)

力学インダクタンス進行波型パラメトリック増幅器における 利得の膜厚依存性

Dependence of gain on film thickness in
kinetic-inductance traveling-wave parametric amplifiers

静大院総合 ○(M2) 近藤勇人, 武田正典

Shizuoka Univ. ○Hayato Kondo, Masanori Takeda

E-mail: kondo.hayato.20b@shizuoka.ac.jp

力学インダクタンス進行波型パラメトリック増幅器 (KITWPA) は超伝導伝送線路の力学インダクタンスの電流非線形性を利用するパラメトリック増幅器である。KITWPA は温度 1 K 以下の領域において、マイクロ波帯で量子限界雑音性能, 広帯域特性, 極低消費電力動作が実証されており, 量子コンピューティングや天文観測分野への応用が期待されている。我々は KITWPA の動作周波数をミリ波帯へ拡張することにより, KITWPA を電波天文用ミリ波ヘテロダイン受信機の前置増幅器 (温度 4 K 冷却) として用いることを検討している。

従来, KITWPA は力学インダクタンスの非線形性を強く得るために高抵抗率な薄膜になるように設計してきた。そのため超伝導薄膜にはシリコン基板上的窒化ニオブチタン (NbTiN) が用いられ, 膜厚は 10 ~ 30 nm 程度と非常に薄く設定される。しかし, 高抵抗率な材料は動作温度や動作周波数の上昇に伴い表面抵抗に起因する伝送損失の増加が大きくなり, 温度 4 K だと利得の低下が顕著となる。したがって, 動作温度 4 K のミリ波帯 KITWPA の実現には超伝導薄膜の表面抵抗を考慮した設計が必要不可欠になる。前回我々は単結晶 NbTiN 薄膜を使用することにより 30~50 GHz において十分な利得が期待できる設計を示したが, 本研究では設計材料は変更せず, 薄膜の膜厚を変更することによってミリ波帯で十分な利得が達成できるかの検討を行った。

設計する KITWPA の動作周波数を 30 ~ 50 GHz に設定し, 誘電体をアモルファスシリコン (a-Si) とする NbTiN 薄膜のマイクロストリップ線路を仮定した。線路構造について, 誘電体の厚さおよび GND の厚さを 200 nm, 線路の膜厚を 20, 50, 100 nm として比較を行う。線路幅は, それぞれの膜厚に対する断面積が一定となるように 2.0, 0.8, 0.4 μm と設定した。設計モデルの利得解析には損失を含んだ結合モード方程式を利用した。

図 1 に周波数 40 GHz における, 膜厚を変えた KITWPA の物理長に対する利得の増減を示す。破線は各膜厚の KITWPA における伝送損失による減衰を表す。入力ポンプ電流は $I_p = 1.5 \text{ mA}$ とした。膜厚が厚くなるほど伝送損失は小さくなり, 線路長を伸ばすことで高利得となる結果が得られた。図 2 に膜厚変更時の利得の周波数特性を示す。線路長はそれぞれ図 1 の最大利得を得る線路長とし, 入力ポンプ電流は図 1 と同様の強さとした。結果, 膜厚が厚いほど, 動作周波数帯域において利得 20 dB 以上を達成できる帯域幅が広がることが示唆された。詳細は当日報告する。

【謝辞】本研究の一部は, 科研費 23K03955 の助成により実施した。

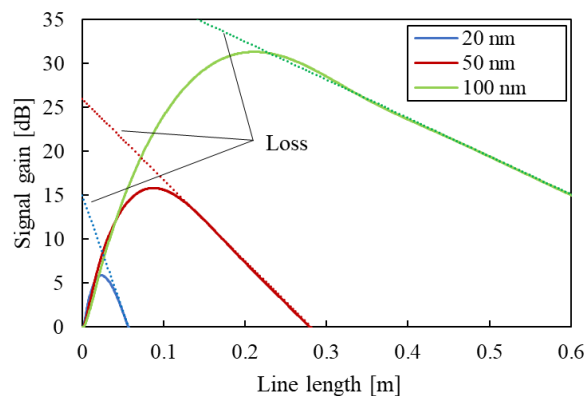


Fig.1 Signal gain and Transmission loss as a function of the line length of the KITWPAs at 4 K.

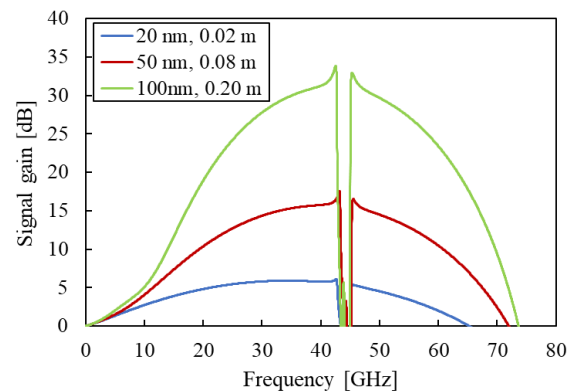


Fig.2 Gain-bandwidth profile of KITWPAs with varying film thickness at 4 K.

窒化ニオブを用いたフラクソニウム量子ビット

NbN Fluxonium Qubit

情報通信研究機構¹, 東京理科大² [○]布施 智子¹, 吉原 文樹², 寺井 弘高¹NICT¹, Tokyo Sci. Univ.², [○]Tomoko Fuse¹, Fumiki Yoshihara², Hiroataka Terai²

E-mail: tfuse@nict.go.jp

窒化ニオブは、アルミニウムに替わる可能性を持つ超伝導量子ビットの材料として期待されている。一方フラクソニウム[1]は、アルミ量子ビットにおいて数ミリ秒のコヒーレンス時間が報告されており、またトランスモンに比べ非調和度が高いという特徴を持つ。本研究では、窒化ニオブを用いたフラクソニウム量子ビットの設計を行ったので報告する。

結晶成長した NbN/AlN/NbN Josephson 接合は、非晶質の Al/Al_xO_y/Al Josephson 接合に比べ誘電損失が少ないことが期待される。量子ビットのエネルギー緩和時間 (T_1) については、誘電損失が支配的であることが多く、主に短絡キャパシタおよび接合のキャパシタの寄与があることが知られている。接合を短絡するキャパシタの誘電正接を 5×10^{-7} 、接合の誘電正接をその 1/10 と仮定した場合について、量子ビットの 01 遷移エネルギーに対する T_1 (凡例は接合の直径) の計算値を Fig. 1 に示す。遷移エネルギーが低くかつ接合サイズが大きい (接合の寄与率が大きい) 方が T_1 が大きくなることがわかる。講演では設計の詳細を報告する。

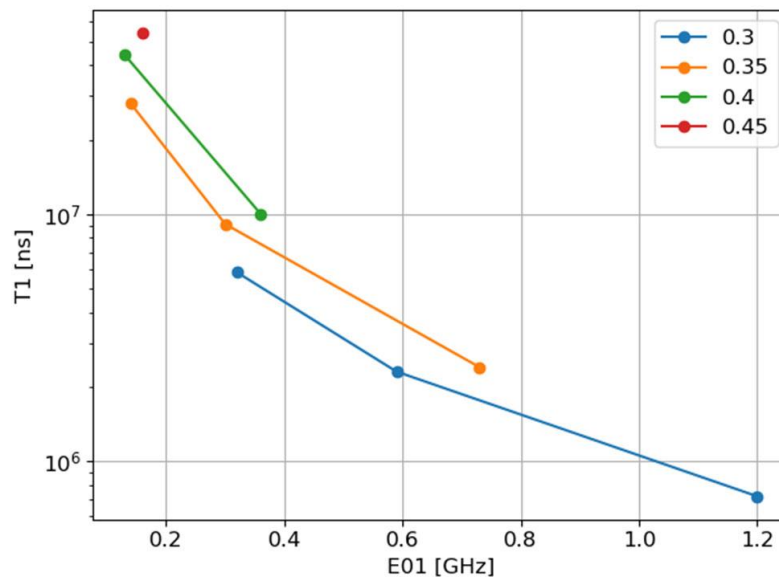


Fig. 1: Energy relaxation times as a function of the transition energy of a fluxonium qubit (calculation).

Dielectric losses are taken into account and contributions from other noise sources are neglected. The legend shows diameters [μm] of Josephson junctions.

- [1] V. E. Manucharyan, J. Koch, L. I. Glazman, and M. H. Devoret, Fluxonium: Single Cooper-Pair Circuit Free of Charge Offsets, Science 326, 113 (2009).

イオン照射 YBCO 薄膜における自己磁場臨界電流の異常な向上曲線

Unusual enhancement curves of self-field critical-current in ion-irradiated YBCO films

産総研¹, 原子力機構² ○松井 浩明¹, 山口 巖¹, 石川 法人²

AIST¹, JAEA², °Hiroaki Matsui¹, Iwao Yamaguchi¹, Norito Ishikawa²

E-mail: h.matsui@aist.go.jp

YBCO 薄膜における自己磁場中臨界電流密度(J_c^{sf})と膜組織の相関は明らかになっていない。我々は、 J_c^{sf} のイオン照射効果が特異的に大きく観測されるフッ素フリー塗布熱分解法(FF-MOD)の薄膜試料を用いて同機構の解明を進めている。今回、イオン照射量(Φ)のステップ幅を従来の約 1/3 に縮小した実験を行い、 J_c^{sf} の Φ 依存性に異常な振舞いを観測したので報告する[1]。

YBa₂Cu₃O₇ 膜($T_c = 90$ K)は、CeO₂/SrTiO₃ 基板上に FF-MOD 法により作製した。84-, 300-MeV Au イオン照射はそれぞれ筑波大学と原子力機構のタンデム加速器を用いて膜表面に対して垂直方向から行った。 J_c^{sf} および T_c は THEVA Cryoscan を用いて誘導法で測定した。

図 1 に、Au 照射 YBCO 薄膜の J_c^{sf} (77K)の Φ 依存性を示す。照射により J_c^{sf} は as-grown 値の約 2 倍に向上した(最大値= 4.5 MA/cm²@膜厚 $t = 420$ nm)。得られた $J_c^{sf}(\Phi)$ プロファイルは、磁場中 J_c で一般的に観測される単純なシングルピークとは異なり、以下の異常な構造を示す：1)ピークトップの平坦化(plateau、例：図 1 の楕円)、2) plateau の高 Φ 側の不連続な隆起(“stairstep”、図 1 のグレーの Φ 範囲)。これらの構造を解釈するため実験データと理論の定量的比較を行った[1]。その結果、plateau は vortex 数に対する 1D ピン数の充足、stairstep は単独 vortex と相互作用する 1D ピン数の変化(低 Φ 側 = 1, 高 Φ 側 > 1)による解釈とそれぞれ良い一致を示した。

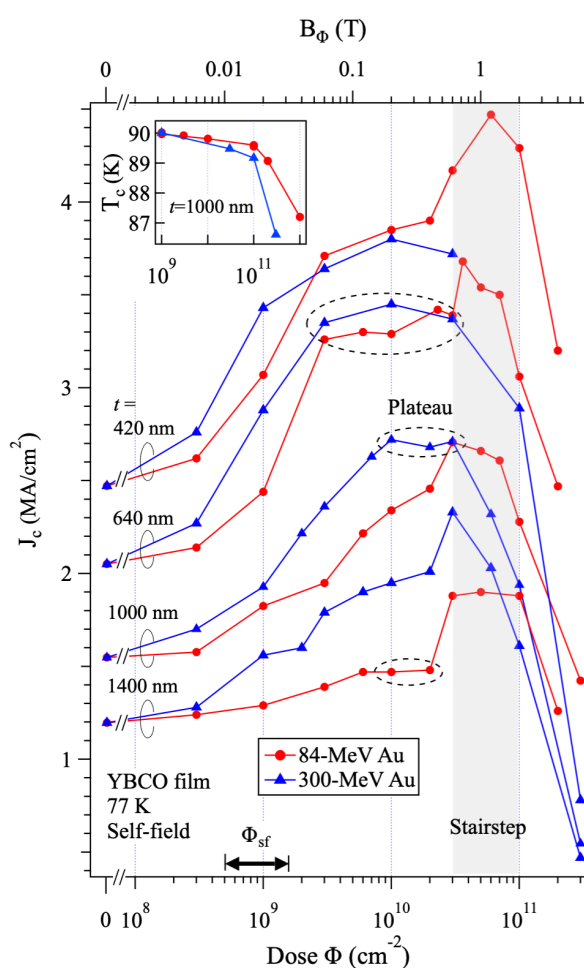
本結果は、YBCO 膜の高温/低磁場 J_c を高特性化する上で、ab 面方向のピン間隔を 10 nm オーダーの精度で制御することの重要性を示唆する。

Fig. 1 Dose dependence of J_c^{sf} in our Au-irradiated YBCO films. Examples of the plateau are indicated by dashed ellipses. The shaded area is the dose region of a sectional uplift of the plateau (“stairstep”) in the 84-MeV data. Inset shows the dose-dependence of T_c for samples with film thickness (t)=1000 nm.

謝辞：本研究は JSPS 科研費 JP23K04378 の助成を受けたものです。

参考文献：

[1] H. Matsui, I. Yamaguchi, and N. Ishikawa, Phys. Scr. **100**, 075917 (2025).



決定的スクリーニング設計手法を用いた HoBCO 薄膜の最適条件の探索

Exploration of Optimal Conditions for HoBCO Thin Films Using Definitive Screening Designs

愛工大¹, 九工大², 電中研³, 名大⁴, JST-CREST⁵ (M1) 簗 拓己¹, (B) 下平 皓太¹,
(B) 西村 伊織¹, 田岡 紀之¹, 清家 善之¹, 森 竜雄¹, 一野 祐亮^{1,5}, 堀尾 恵一^{2,5}, 一瀬 中^{3,5},
堀出 朋哉^{4,5}, 松本 要^{4,5}, 吉田 隆^{4,5}

Aichi Inst. of Technol.¹, Kyushu Inst. of Technol.², CRIEPI.³, Nagoya Univ.⁴, JST-CREST⁵

○T. Takamura¹, K. Shimodaira¹, I. Nishimura¹, N. Taoka¹, Y. Seike¹, T. Mori¹, Y. Ichino^{1,5}, K. Horio^{2,5},

A. Ichinose^{3,5}, T. Horde^{4,5}, K. Matsumoto^{4,5}, Y. Yoshida^{4,5}

E-mail: v25717vv@aitech.ac.jp

1. はじめに

主要な $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (REBCO, RE=希土類) 超伝導線材の作製方法として、パルスレーザー蒸着法(PLD法)が挙げられる。しかし、PLD法には希土類元素が変化すると最適な条件が変化する問題点がある。そのためREBCO毎に成膜条件の最適化が必要であり、かつ、成膜パラメータが多いため超伝導特性の最適化に時間がかかる。そこで本研究では、決定的スクリーニング設計(DSD)に着目した。DSDは多数の要因の中から超伝導特性など試料の特性値に影響を与える主要な要因を少ない実験回数で効率的に特定することができる^[1]。本報告ではPLD法による超伝導線材の作製報告があるHoBCOを対象として最適成膜条件の高速最適化手法の開発に関して報告する^[2]。

2. 実験方法

本研究では、HoBCOターゲットを用い、PLD法の成膜パラメータ3つ(ヒーター温度、酸素圧力、成膜時間)それぞれに対して3レベルを決め、 SrTiO_3 単結晶基板上に成膜を行った。成膜パラメータには、温度(Th) 900 °C、930 °C、950 °C、酸素圧力(pO2) 10 Pa、30 Pa、50 Pa、成膜時間 (time) 20 分、40 分、60 分とした。作製した薄膜の評価は、X線回折法(XRD)そして直流四端子法を用いた。評価データから、多重回帰分析によって数式モデルを構築した。

3. 結果

図1,2はDSDによって得られた、ヒーター温度、酸素圧力、成膜時間に対するHoBCO薄膜内の a 軸配向粒混在率の等高線図である。 a 軸混在率はXRDの結果より求めた。図中で1、0、-1は3レベルの値であり、色は a 軸混在率を示している。図は、 a 軸配向粒の少ない条件が、 $(\text{pO}_2, \text{time}) = (1.0, -0.8)$ 、 $(\text{Th}, \text{pO}_2) = (1.0, 1.0)$ であることを示している。つまり、ヒーター温度 950 °C 酸素圧力 50 Pa、成膜時間 25 分で最も a 軸配向粒が少なくなることがわかつ

た。今後は超伝導転移温度などにもDSDを用いて、超伝導特性が向上する成膜条件を探していく。

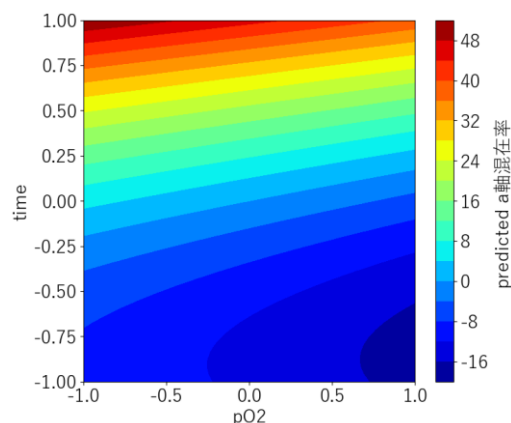


Fig.1 Oxygen pressure and deposition time

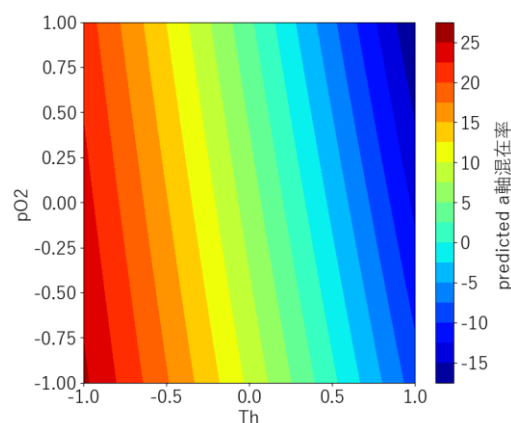


Fig.2 Heater temperature and oxygen pressure

謝辞

本研究では、JST-CREST (JPMJCR2336) の支援を受けたものである。

参考文献

- [1] J. Bradley ら, J. Qual. Technol. 43 (2011) 1-15.
- [2] K. Fujino ら, Physica C 392-396 (2003) 815.

GdBa₂Cu₃O_{7-δ} フリースタANDING薄膜の作製

Fabrication of freestanding GdBa₂Cu₃O_{7-δ} thin films

by water-soluble sacrificial layers



日大¹, カールスルーエ科大², ^{○(M2C)} 守永 昂世¹, カイ ワルター²

イエントツ ヘーニッシュ², 飯田 和昌¹

Nihon Univ.¹, ITEP-KIT.², ^{○(M2C)} Kose Morinaga¹, Kai Walter², Jens Hänisch², Kazumasa Iida¹,

E-mail: ciko24014@g.nihon-u.ac.jp

フリースタANDING超伝導薄膜は、基板の影響を排除した材料本来の物性評価を可能とし、ひずみの影響や異方性、輸送特性の基礎的理解に有用である。また、デバイス統合における高い柔軟性も備えている。これまでに、YBa₂Cu₃O_{7-δ} (YBCO) 薄膜において、水溶性のSr₃Al₂O₆ (SAO)を犠牲層としたフリースタANDING薄膜の作製が報告されている[1-2]。しかし、YBCO は脱イオン水によるエッチング処理により特性が劣化することが指摘されている。一方、GdBa₂Cu₃O_{7-δ} (GdBCO)では、同様の処理による劣化が比較的軽微である可能性がある[3]。そこで本研究では、SAO 犠牲層を用いた GdBCO エピタキシャル薄膜を作製し、脱イオン水によるエッチングが GdBCO フリースタANDING薄膜に与える影響を評価した。

Fig. 1 に、GdBCO 薄膜の剥離前における温度依存性を示す。SAO 上に直接成膜した薄膜のゼロ抵抗温度 (T_{c0}) は、STO 単結晶基板上に成長させたものに比べて約 5 K 低く、この要因として SAO 相との相互拡散が考えられる。そこで、SAO 層上に STO バリア層として堆積したが、得られた薄膜の T_{c0} は 54 K と大幅に低下した。同様の構造を有する薄膜を 3 回作製したが、いずれも T_{c0} が 90 K を超えることはなかった。次に、STO 層上にさらに LAO を堆積したところ、 T_{c0} は約 91 K を示し、単結晶基板上に成長させた GdBCO と同様の超伝導転移温度が得られた。X 線回折測定の結果、得られた GdBCO 薄膜はエピタキシャル成長していることが確認された。この薄膜を PET フィルム上に貼り付け、脱イオン水中に 1 日間浸漬することで基板からの剥離が可能であった (Fig. 2)。剥離後の薄膜の構造や特性については、当日報告する。

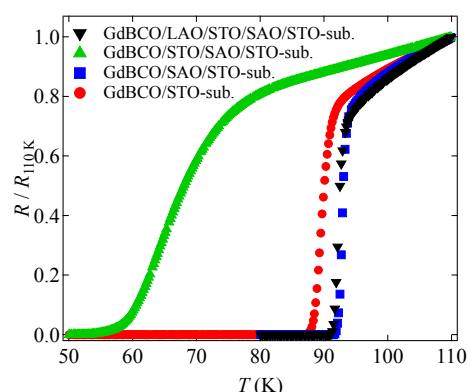


Fig. 1 The temperature dependence of the resistance for GdBCO thin films before delamination. The data are normalized to the value at 110 K.

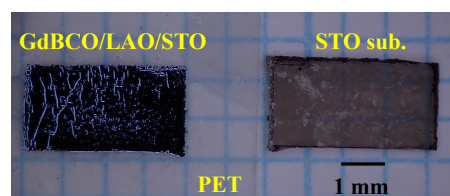


Fig. 2 Top view of the GdBCO film after delamination.

[1] Z. Chen *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **3** 060801(R) (2019). [2] Z. Jia *et al.*, *Appl. Phys. Rev.* **10** 031401 (2023). [3] Z. Xie *et al.*, *Ceramics International* **47** 13528 (2021).

パルスレーザー蒸着法による La_2CuO_4 薄膜作製に関する研究

Study on the fabrication of La_2CuO_4 thin films by pulsed laser deposition method

関学大工¹, 愛工大工², 島根大自然³

○見城 太喜¹, 一野 祐亮², 船木 修平³, 尾崎 壽紀¹

Kwansei Gakuin Univ.¹, Aichi Inst. of Technol.², Shimane Univ.³

○Taiki Kenjo¹, Yusuke Ichino², Shuhei Funaki¹, Toshinori Ozaki¹

E-mail: isi48805@kwansei.ac.jp

1.はじめに： $\text{AE}_{n+1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+1+\delta}$ ($n>0$) (AE-Cu-O：アルカリ土類系酸化物超伝導体)は希土類系に比べて資源リスクが低く、将来的な原料の安定供給という優位性をもつことから研究が進められている。AE-Cu-Oは1990年初頭から研究されており、高压合成で作製された試料では臨界温度(T_c)が90~100 Kの報告^[1]もあるが、超伝導を担う CuO_2 面での酸素欠損が起りやすいため、薄膜合成が困難である。そこで本研究では、AE-Cu-O 薄膜合成のための知見を得るために、AE-Cu-O と結晶構造が類似しており、かつ比較的作製が容易な La_2CuO_4 (La214)薄膜に着目し、PLD (Pulsed Laser Deposition) 法による作製について検討した。

2.実験方法：PLD 法のターゲットバルクには出発原料に La_2O_3 , CuO を用いて La214 の組成比で固相反応法により大気中で合成した。その後、Nd:YAG レーザー (LOTIS TII, LS2147, Belarus) の4倍波 ($\lambda=266$ nm)を用いた PLD 法により MgO (100)単結晶基板上に薄膜を成膜した。成膜条件として、基板温度を700~930 °C、酸素圧力を40~90 Paの範囲で変化させた。作製したターゲットおよび薄膜の結晶構造は、X線回折法(XRD)を用いて評価した。また、電気抵抗の温度依存性は物理物性測定システム PPMS (PPMS: Physical Properties Measurement System, Quantum Design 社製)による4端子法を用いた通電測定により評価した。

3.実験結果：Fig. 1 に基板温度 900 °C、酸素圧力 50 Pa で作製した La214 薄膜の X 線回折パターンを示す。La214 の(00*l*)面(*l*: 整数)でピークを確認できることから薄膜は *c* 軸配向していると考えられるが、(00*l*)面以外のピークも確認できた。当日は酸素圧力および基板温度を変化させて作製した La214 薄膜および SrTiO_3 (100)単結晶基板上的 La214 薄膜の結晶構造解析および通電測定の結果についても報告する。

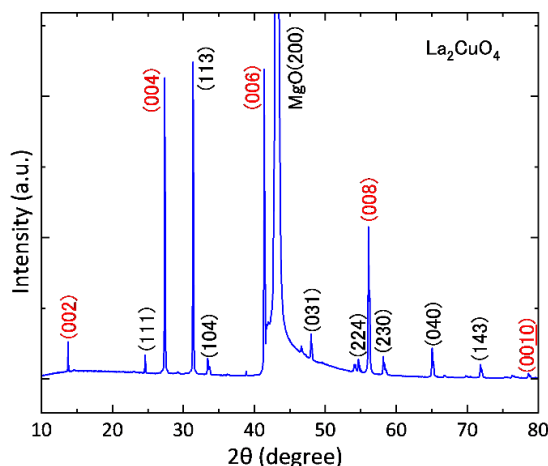


Fig. 1 XRD pattern of La_2CuO_4 thin film

参考文献: [1] Z. Hiroi et al., Nature 364, 315–317 (1994).

KOH フラックス法 Y123 膜の溶液内酸素量制御による低温合成に向けた検討

Investigation of low-temperature synthesis of Y123 films via KOH flux method

by controlling dissolved oxygen in solution

島根大自然¹, °(M2) 重信 明希¹, 船木 修平¹, 山田 容士¹

Shimane Univ.¹, °Haruki Shigenobu¹, Shuhei Funaki¹, Yasuji Yamada¹

E-mail: n24m207@matsu.shimane-u.ac.jp

【研究背景】 溶融 KOH に原料を溶かし結晶成長させる KOH フラックス法は、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Y123)結晶膜を 800°C 程度の大気中や、500 ~ 750°C 程度の低酸素分圧下で作製することが可能である^[1]。近年、我々は、原料内部の酸素量を減らすことにより合成時の溶液内の酸素分圧を低下させ、大気中の合成において従来よりも高い超伝導転移温度(T_c)を有する Nd123 が作製可能であることを明らかにした^[2]。一般的に Y123 は、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ (Y124)や $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$ (Y247)と比べ低酸素分圧下で安定であることが知られている。したがって、溶液内部の酸素分圧を低下させることで、大気中においても Y123 結晶をさらに低温で合成できると考えた。そこで本研究では、RE に Y を用い、さらに原料内の酸素量を減らすことにより、大気中低温環境において Y123 膜の作製が可能であるかを調査した。

【実験方法】 出発原料に Y_2O_3 , BaO_2 , Cu を用い、金属モル比が Y : Ba : Cu = 1 : 2 : 3 となるように秤量・混合した。原料に対し 200 wt% の KOH をアルミナ坩堝に入れ、大気中において 700°C・10 min の脱水熱処理を施した後、合成温度 500 ~ 650°C に調整し、 LaAlO_3 (100)単結晶 (LAO)基板と原料 2.5 g を融液内に投入し、12 h 保持した。炉冷後、坩堝から基板を回収し、フラックスの除去を行った。得られた膜試料に酸素アニールを施した後、結晶相を XRD 2θ - θ 測定により同定し、超伝導特性を超伝導量子干渉計(SQUID)による磁化率の温度依存性により評価した。

【実験結果】 XRD 2θ - θ 測定から、合成温度 550 ~ 600°C で得られた試料は粉末試料、膜試料ともに Y123 および Y124 の混相であった。図に合成温度 600°C において作製した試料の磁化率の温度依存性を示す。粉末試料では Y123 と考えられる 90 K 程度と Y124 と考えられる 80 K 程度の二段階の転移が確認された。また、LAO 基板上に成長した膜試料は、粉末試料と比べ T_c が低下し、合成温度が高くなるほど低下が顕著であった。これらの結果から、溶液内の酸素分圧が低下したことにより大気中 550 ~ 600°C の低温下で Y123 結晶は作製可能であることが示唆された。しかしながら、大気中における溶液内部の酸素分圧制御が不十分であり、Y123 単相が得られなかったことや、得られた粉末試料と膜試料では T_c が異なっていたことなど、新たな課題が見つかった。

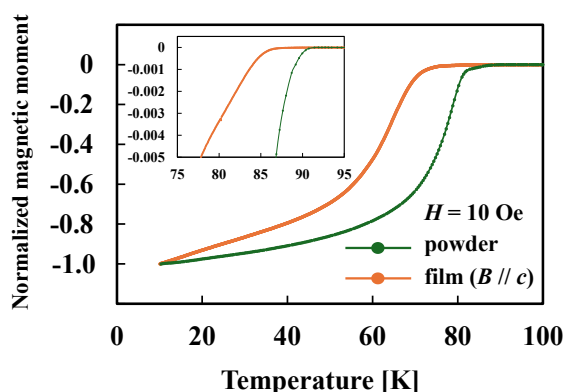


Fig. Normalized magnetic moment of obtained films fabricated by using of Y_2O_3 , BaO_2 , Cu for starting materials in air at 600°C.

【参考文献】

- [1] Y. Yamada, et al.: Physica C 512 (2015) 28–32.
- [2] 重信 他, 2025 年 第 72 回応用物理学会春季学術講演会予稿集 14a–P05–17.

LaO_xF_{1-x}Bi(S,Se)₂ と金属の接合における I-V 特性の検討

I-V Characteristics of LaO_xF_{1-x}Bi(S,Se)₂-Metal Junction

東京都立大学, °岡田和樹, 齊藤光史

Tokyo Metropolitan Univ, °Kazuki Okada, Mitsufumi Saito

E-mail: 24861611@ed.tmu.ac.jp

【背景】

LaO_xF_{1-x}Bi(S,Se)₂ は超伝導材料や熱電材料として注目されている※¹。また、この材料は電気伝導層である BiS₂ 層と絶縁層である LaO 層が交互に積層する構造を取っている層状物質であり、BiS₂ 層内で強い内部電界が生じている。それにより、非常に大きなスピン軌道相互作用が生じると予測されているため、新規動作原理デバイスへの応用が期待されている※²。しかし、この材料系における金属材料との接合の影響については検討が行われていない。本研究では各種金属材料と LaO_xF_{1-x}Bi(S,Se)₂ との接合界面について検討を行った。

【内容】

本研究で用いた LaO_xF_{1-x}Bi(S,Se)₂ は CsCl フラックス法により成長した結晶片を用いている。スコッチテープ法により薄膜化した後、SiO₂ 基板上へ転写した。その後、Hall Bar 形状へ加工した後、金属蒸着により電極を形成した。電極材料としては、Au, Ti/Au, Ni/Au を使い、それぞれ I-V 特性測定による評価を行った。

【結果・考察】

Au 接合による I-V 特性(Fig. 1)において、ショットキー接合に由来する非線形性が確認された。Ti/Au 接合による I-V 特性(Fig. 2)においては、はじめ Au と同じく非線形性が観察されたが、測定を繰り返すことにより、オーミック特性に変化し、その接触抵抗が大きく低減された。この変化はジュール熱によるアニールによるものと考えられる。また、Ni/Au 接合においては Ti/Au 接合の様な特性変化は観察されない。本材料系においては、Ti/Au 接合により良好なオーミック接合を実現できる可能性が示唆される。

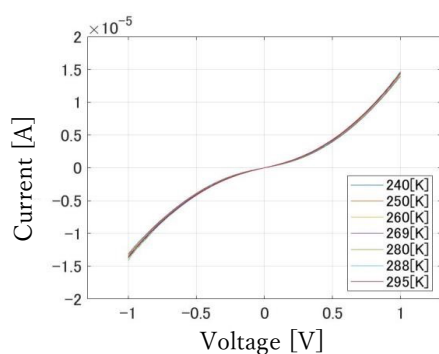


Fig. 1 I-V characteristic with Au contact

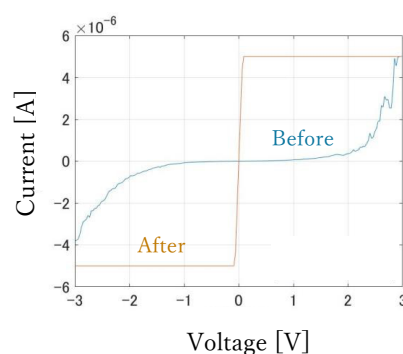


Fig. 2 I-V characteristic with Ti/Au contact

【参考文献】

※¹ Y. Mizuguchi *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. 81, 114725(1-5) (2012)

※² Qihang Liu *et al.* Nano Lett. Vol 13, pp.5264-5270 2013

コンビナトリアル PLD 法を用いた AE-Cu-O 薄膜の最適組成探索

Optimization of AE-Cu-O Thin Film Composition Using Combinatorial PLD Method

愛工大¹, 関西学院大², 島根大学³ ○内田 陽人¹, 小笠原 和哉¹, 鈴木 新九郎¹

田岡 紀之¹, 清家 善之¹, 森 竜雄¹, 尾崎 壽紀², 船木 修平³, 一野 祐亮¹

Aichi Inst. of Technol.¹, Kwansei Gakuin Univ.², Shimane Univ.³

○H. Uchida¹, K. Ogasawara¹, S. Suzuki¹, N. Taoka¹, Y. Seike¹, T. Mori¹, T. Ozaki², S. Funaki³, Y. Ichino¹

E-mail: v25704vv@aitech.ac.jp

1. はじめに

現在市販されている超伝導線材は希土類元素を含んでいる。希土類元素は主に中国から輸入され、その依存度は高く、国内においても他の重要製品との取り合いがあるという問題点がある。そこで、薄膜技術を用いて希土類フリーな $AE_{n+1}Cu_nO_{2n+1+\delta}$ (AE-Cu-O) 超伝導体の作製を目的とした。AE-Cu-O は超伝導を担う CuO_2 面での酸素欠損が起こりやすい欠点を持つ。そこで本研究では、AE に Sr や Ca を用いて、その比率が CuO_2 面酸素に与える影響について検討するために、コンビナトリアル PLD 法[1]を用いて AE の組成を連続的に変化させた試料の作製を行った。

2. 実験方法

本研究では、Nd:YAG レーザー(波長 266 nm、エネルギー 40 mJ、繰り返し周波数 10 Hz)を用いたコンビナトリアル PLD 法により、 Sr_2CuO_3 から Ca_2CuO_3 まで連続的に組成が変化した薄膜を $LaAlO_3$ (LAO) (100) 基板上に成膜した。成膜条件として、ヒーター温度を 650~850 °C、酸素圧力を 10~50 Pa の範囲で変化させた。作製した試料に対して、X 線回折法(XRD)、走査型電子顕微鏡(SEM)、簡易プローバー四端子法によるシート抵抗測定により評価を行った。

3. 結果と考察

Fig. 1 に LAO 基板上の位置に対する Sr/Cu、Ca/Cu 組成比および c 軸長を示す。基板上位置は左端を 0 mm と定義している。0 から 10 mm に向かって組成比 Sr/Cu は連続的に減少し、Ca/Cu は連続的に増加する傾向がみられた。また、 c 軸長は減少傾向がみられた。これは組成比の変化からも示されるように、 AE_2CuO_3 結晶においてイオン半径の小さい Ca^{2+} が Sr^{2+} と置換されることにより c 軸長が減少したためと考えられる。Fig. 2 にヒーター温度 850 °C 酸素圧力 10 Pa と 50 Pa の条件で作製した試料の室温におけるシート抵抗を測定した。この結果より、Sr-Cu-O 膜に Ca が一部置換することで抵抗値が減少することが分かった。また、酸素圧力が高いほどシート抵抗が高くなることも分かった。Fig. 1、

Fig. 2 よりコンビナトリアル PLD 法によって 1 枚の基板上で Sr/Ca 組成比が連続的に変化したデータが得られることが示された。一方で、Ca/Cu の変化が小さいため成膜条件の改善が必要である。今後、ヒーター温度、酸素圧力など条件最適化により AE-Cu-O 超伝導体の作製を目指す。

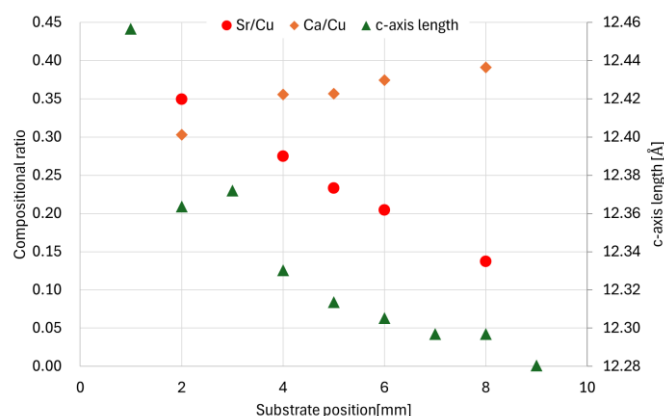


Fig. 1 Compositional ratio and c -axis length depending on substrate position ($T_s = 850^\circ\text{C}$, $O_2 = 10\text{Pa}$)

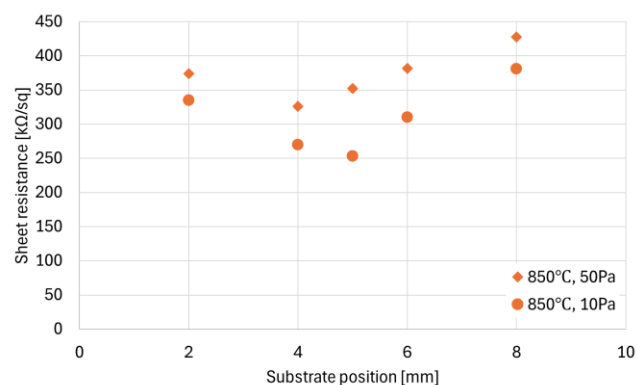


Fig. 2 Sheet Resistance profile across the LAO substrate

謝辞

本研究における XRD、SEM 測定には名古屋大学 吉田隆研究室の装置を借用した。

参考文献

[1] T. Yoshimura ら, Physica C 471 (2011) 947-950

PLD 法による YBCO 薄膜成膜時におけるプルームの 定量解析と薄膜への影響

Quantitative Analysis of the Plume in YBCO Thin Film Deposition by PLD and Its Influence on Film Properties

愛工大¹, 九工大², 電中研³, 名大⁴, JST-CREST⁵, ○松田 遼太郎¹, 角田 伊織¹, 田中 悠翔¹,
田岡 紀之¹, 清家 善之¹, 森 竜雄¹, 一野 祐亮^{1,5}, 堀尾 恵一^{2,5}, 一瀬 中^{3,5}, 堀出 朋哉^{4,5},
松本 要^{4,5}, 吉田 隆^{4,5}

Aichi Inst. of Technol.¹, Kyushu Inst. of Technol.², CRIEPI³, Nagoya Univ.⁴, JST-CREST⁵,
○R. Matsuda¹, I. Kadota¹, Y. Tanaka¹, N. Taoka¹, Y. Seike¹, T. Mori¹, Y. Ichino^{1,5}, K. Horio^{2,5},
A. Ichinose^{3,5}, T. Horide^{4,5}, K. Matsumoto^{4,5}, Y. Yoshida^{4,5}

E-mail: v24728vv@aitech.ac.jp

1. はじめに

YBa₂Cu₃O_y (YBCO) 薄膜の作製において Pulsed Laser Deposition (PLD) 法は有効な成膜手法の一つである。PLD 法では、ターゲットと基板の間にプルームと呼ばれる柱状のアブレーションプラズマ発光が観測される。プルームの形状はレーザーエネルギーや酸素圧力の揺らぎ、ターゲットの形状等の非定量的なパラメータに影響される。これにより YBCO 薄膜の成膜環境の維持が難しく、同条件に設定して成膜しても T_c 等の超伝導特性の再現性がやや低いという課題がある。そこで、PLD 法による YBCO 薄膜の再現性向上を目的とし、基礎検討として、プルームの色および形状変化の超伝導特性への影響に着目した。様々な実験条件下におけるプルーム特性と超伝導特性を評価し、両者の相関について報告する。

2. 実験方法

PLD 法を用いて SrTiO₃(100) 単結晶基板上に YBCO 薄膜を成膜し、成膜中のプルームをデプスカメラ (Intel 社, Realsense Depth Camera D405) により撮影した。撮影した画像をグレースケール、2 値化処理を施し、その情報を基に外接矩形を描いている。2 値化処理の閾値 (全範囲: 0~255) は 10 と 100 で固定した。RGB 値は平均値を使用した。成膜条件に関しては、基板温度を 920 °C、Nd:YAG レーザー (波長 266 nm、繰り返し周波数 10 Hz) のエネルギーを 20 mJ に固定し、酸素圧力を 0.1 ~ 70 Pa と変化させて成膜した。 T_c は四端子法による電気抵抗率測定において、電気抵抗率が 1 $\mu\Omega\text{cm}$ 以下となる温度をゼロ抵抗 T_c (T_{c0}) と定義した。また、抵抗が急激に低下し始めた温度を $T_{c, \text{onset}}$ と定義した。

3. 結果と考察

Fig. 1 に各酸素圧力下で成膜中に撮影したプルームの画像を示す。画像の下側にはターゲットが、上側に基板が配置されている。画像から、酸素圧力 0.1 Pa ではプルームがターゲット付近のみ白く発光し

ているのに対し、5 Pa ではターゲットから基板にかけて赤く発光し、30 Pa では同領域が白色に近い発光へと変化していることが確認できた。また、1-10 Pa では 5 Pa と同様の傾向が、20-70 Pa では 30 Pa と同様の傾向がそれぞれ観察された。Fig. 2 に、閾値 10 で 2 値化した矩形内の RGB 値における B 値に対する T_c を示す。B 値と T_{c0} の相関係数は 0.99、 $T_{c, \text{onset}}$ との相関係数は 0.70 と非常に高い数値であった。Cu 及び CuO の持つ発光スペクトルが 520 nm と 460 nm 付近に分布していることから [1]、プルーム中の Cu の組成変化がプルームの色及び T_c に影響を及ぼしたと考えられる。当日は、 T_c だけでなく、組成比等の薄膜特性とプルーム特性との相関も報告予定である。

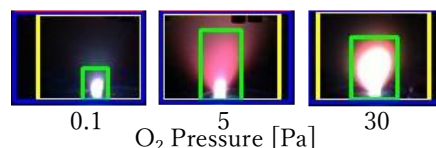


Fig. 1 Photos of YBCO ablation plumes at different O₂ pressures

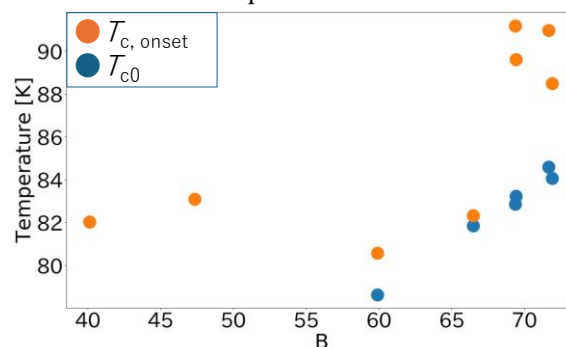


Fig. 2 T_c of YBCO films as a function of B value

謝辞

本研究は JST-CREST(JPMJCR2336)の支援を受けたものである。

参考文献

[1] X. D. Wu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **54**, 179–181. (1989)

ドロップレット抑制を目的としたエクリプス Nd:YAG-PLD 法による YBCO 薄膜作製と決定的スクリーニング設計による実験条件最適化

Deposition of YBCO thin films by Eclipse Nd:YAG-PLD Method for droplet suppression and optimization of experimental conditions using definitive screening design

愛工大¹, 九工大², 電中研³, 名大⁴, JST-CREST⁵, °奥村英二郎¹, 家田弦¹, 垂水颯汰¹,
小川剛史¹, 田岡紀之¹, 清家善之¹, 森竜雄¹, 一野祐亮^{1,5}, 堀尾恵一^{2,5}, 一瀬中^{3,5},
堀出朋哉^{4,5}, 松本要^{4,5}, 吉田隆^{4,5}

Aichi Inst. of Technol.¹, Kyushu Inst. of Technol.², CRIEPI³, Nagoya Univ.⁴, JST-CREST⁵

°E. Okumura¹, G. Ieda¹, S. Tarumi¹, T. Ogawa¹, N. Taoka¹, Y. Seike¹, T. Mori¹, Y. Ichino^{1,5},

K. Horio^{2,5}, A. Ichinose^{3,5}, T. Horde^{4,5}, K. Matsumoto^{4,5}, Y. Yoshida^{4,5}

E-mail: v24714vv@aitech.ac.jp

1. はじめに

YBa₂Cu₃O₇ (YBCO) 超伝導体の薄膜作製には、パルスレーザー蒸着 (PLD) 法が多く用いられる。しかし、Nd:YAG レーザーを用いた PLD 法では、ターゲットから飛散するドロップレットが薄膜表面に多く付着するという問題がある。これにより、薄膜表面の評価を困難にするだけでなく、結晶成長や超伝導特性にも悪影響を及ぼす可能性がある。そこで本研究では、エクリプス Nd:YAG-PLD 法における実験条件が YBCO エピタキシャル薄膜に与える影響を明らかにすることを目的とし、ドロップレットの発生を抑制できる実験条件を探索した。

2. 実験方法

本研究では、SrTiO₃ (STO) 単結晶基板上に YBCO 薄膜を、エクリプス Nd:YAG-PLD 法により作製した。エクリプス PLD 法とは、成膜時に基板-ターゲット間に金属板 (シャドウマスク) を配置することで、ターゲットから飛散するドロップレットを物理的に遮る手法である。成膜条件は、基板温度 950 °C、酸素圧力 53 Pa、成膜時間 1 h、基板-ターゲット間距離を 43 mm に固定した。シャドウマスクの幅と基板からの距離の 2 つを変数とし、幅は (0, 5, 10 mm)、距離は (15, 25, 35 mm) の 3 段階とした。すべての組み合わせで実験を行うと、時間コストがかかるため、本研究では決定的スクリーニング法 (DSD: Definitive Screening Design) [1] という実験計画法を用いて実験した。DSD は、少ない試行回数で、効率的に重要な要因やその組み合わせの特性を明らかにすることができる手法であり、最適条件の探索に適している。ここでは、各要因 (シャドウマスクの幅、基板からの距離) を 3 水準 (-1: 低, 0: 中, +1: 高) に正規化したレベル表を用いた。ドロップレットの評価は、走査型電子顕微鏡 (SEM) により得られた表面画像からドロップレット数密度を計数した。

3. 実験結果

図 1 は、2 要因 (A: シャドウマスク幅、B: 基板からの距離) に対するドロップレット数密度の等高線図である。ここで A および B の値は、それぞれ -1, 0, +1 に正規化されており、図中の色はドロップレット数密度の高さを示す。等高線図から、A が -0.5 ~ 0.5、B が -1 ~ 0 の範囲において、ドロップレットが少なくなる傾向が示された。これは、シャドウマスク幅 5 mm がドロップレットの抑制に適していることを示している。今後は、ドロップレット数密度が低い条件で超伝導特性や薄膜表面モフォロジーなどの評価を行う。また、酸素圧力などの成膜条件を変数に用い、超伝導特性にとって最適な実験条件を探索する。

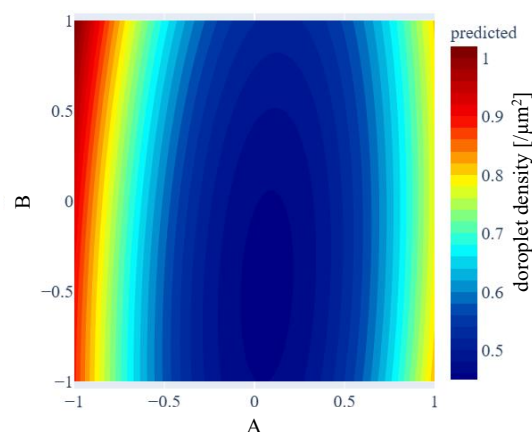


Fig. 1. Number density of droplets on YBCO films as a function of shadow mask width (A) and clearance between substrate and shadow mask (B).

4. 謝辞

本研究では、JST-CREST(JPMJCR2336)の支援を受けたものである。

参考文献

- [1] J. Bradley ら, J. Qual. Technol. 43.1 (2011) 1-15.

常圧下で高温超伝導を示す $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ 薄膜作製の試み

Attempt for growth of $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ film with high- T_c superconductivity at ambient pressure

○松本 凌¹, 樫田 英治^{1,2}, 小谷 聡馬³, 田中 博美³, 高野 義彦^{1,2}

(1. NIMS, 2. 筑波大, 3. 米子高専)

°Ryo Matsumoto¹, Eiji Hitsuda^{1,2}, Soma Kodani³, Hiromi Tanaka³, Yoshihiko Takano^{1,2}

(1. NIMS, 2. Univ. of Tsukuba, 3. NITYC)

E-mail: MATSUMOTO.Ryo@nims.go.jp

2023 年、20 GPa の高圧力で圧縮した Ruddlesden-Popper 相の層状ニッケル酸化物 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ が 80 K を超える高い超伝導転移温度 (T_c) を示し、大きな注目を集めている[1]。銅酸化物超伝導体の歴史を考えると、関連物質の合成による T_c の上昇や、キャリア量制御による相図の解明などの展開が期待されるが、超伝導の発現に高圧力が必要であることが進捗を妨げている。そこで我々は、 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ を格子定数がわずかに小さい基板からエピタキシャル成長させ、格子ミスマッチ由来の歪の導入によって常圧超伝導を誘起できると着想し研究を行ってきた。最近、海外で常圧超伝導の報告があり[2]第一報は逃したが、キャリア量制御などの基礎的な検討は十分になされていない。本講演では、我々のグループが進めてきた試料作製や物性測定の進捗を報告する。

薄膜試料は、パルスレーザー堆積 (Pulse laser deposition : PLD) 法により、 LaAlO_3 基板および $(\text{La,Sr})\text{AlO}_3$ 基板上に成膜した。得られた試料の結晶構造は X 線回折 (XRD) 法により、電気抵抗は 4 端子法により評価した。酸素量の調整はオゾンアニール装置を用いて行った。

Fig. 1 (a) に LaAlO_3 基板上に成膜した試料の XRD パターンを示す。基板由来の鋭いピークを除くと、図中に示した $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ の (00l) ピークのみが観測されており、単結晶の $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ エピタキシャル膜が成膜された可能性が示唆される。Fig. 1 (b) には as-grown 薄膜およびオゾンアニールを行った薄膜の電気抵抗の温度依存性をそれぞれ示す。半導体的な特性を示す as-grown 薄膜にオゾンアニール処理を施すことで、金属的な特性に変化した。これらの振る舞いは先行研究で示されたものとよく一致しており、酸素量を制御可能な $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ エピタキシャル薄膜の作製に成功したと考えている。今後は透過型電子顕微鏡を用いた局所構造解析を行い、 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ エピタキシャル薄膜が成膜されたことの確証を得たのち、膜厚やキャリア量の制御を用いた超伝導発現を目指す。

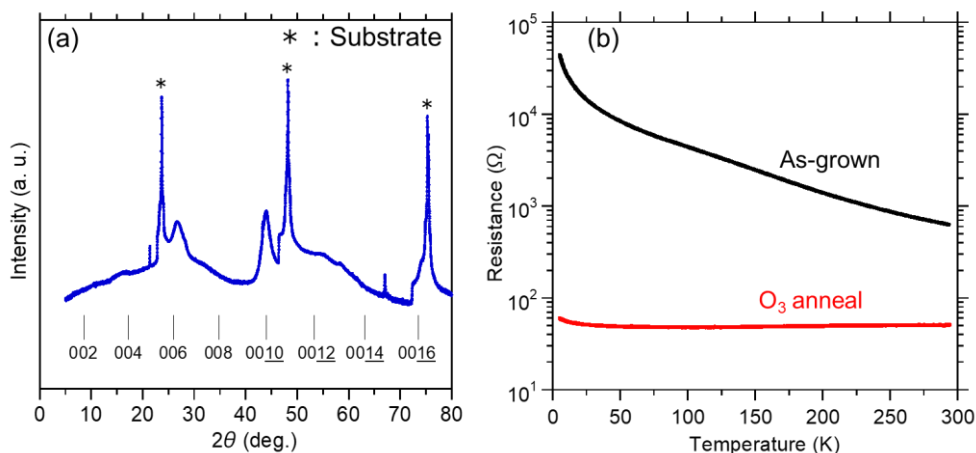


Fig. 1 (a) XRD pattern of $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ film on LaAlO_3 substrate. (b) Temperature dependence of resistance before and after the O_3 annealing.

[1] H. Sun et al., Nature **621**, 493 (2023).

[2] E. K. Ko et al., Nature **638**, 935 (2025).

KOH フラックス法を用いた Sr-Cu-O 系超伝導膜作製の試み

Preparation of Sr-Cu-O Superconducting Films using the KOH Flux Method

島根大自然¹, 愛工大工², 関学大工³

○船木 修平¹, 河田 浩一郎¹, 山田 容士¹, 一野 祐亮², 尾崎 壽紀³

Shimane Univ.¹, Aichi Inst. of Technol.², Kwansei Gakuin Univ.³,

○Shuhei Funkai¹, Koichiro Kawata¹, Yasuji Yamada¹, Yusuke Ichino², Toshinori Ozaki³

E-mail: s-funaki@riko.shimane-u.ac.jp

【背景】

これまで、銅酸化物高温超伝導体として BSCCO や REBCO が開発されてきたが、Bi や RE は地球上の地表付近に存在する元素の割合（クラーク数）が低い。さらに、生産が中国に依存しており、経済安全保障の点でも懸念がある。そこで Bi や RE を用いない銅酸化物高温超伝導体として、アルカリ土類（AE）を用いた Sr-Cu-O に着目した。Sr-Cu-O は、これまで高压合成法^[1]や高酸化を伴う MBE 法^[2]で作製された実績はあるが、線材応用を考えると、簡便な手法で再現性良く薄膜化させる技術の開発が必要である。近年、我々は水酸化カリウムをフラックスに用いた低温合成法（KOH フラックス法）を提案し、高压合成法や高酸化環境で合成されやすい YB₂Cu₄O₈ や LaNiO₃ などの、大気中・低温下での成膜に成功している^[3, 4]。本研究では、Sr-Cu-O 膜の簡易的な作製手法の確立を目的とし、KOH フラックス法を用いて結晶相の合成と特性評価を試みた。

【実験方法】

出発原料に SrCO₃, CuO を用いて、目的とする金属モル比となるよう秤量・混合した。また、RE や Ca の添加も行った。混合粉と KOH、単結晶基板をアルミナ坩堝に入れ、大気中で 800°C・12 h の熱処理を施した。単結晶基板は SrTiO₃ (100), LaAlO₃ (100) の 2 種類を用いた。炉冷後、坩堝から基板試料と粉体試料を回収し、

水とエタノールで洗浄した。得られた試料の結晶相を XRD 2 θ - θ により、超伝導特性を磁化率の温度依存性により評価した。

【結果および考察】

金属モル比が Sr : Nd : Cu = 0.33 : 0.67 : 1.00 となるように秤量・混合した出発原料で作製した STO 基板試料は、XRD 測定から *b* 軸配向した SrCuO₂ 相と不明な結晶相からの回折ピークが確認された。図に同試料の *M-T* 曲線を示す。78 K より低温における反磁性は、微々たるものではあったが FC に比べて ZFC の方が大きかった。10 K における FC と ZFC の磁気モーメントの差は、印加磁場を高くするに従って *H* = 50 Oe 程度でピークを持つことから、超伝導性を有する結晶が存在していると考えられる。

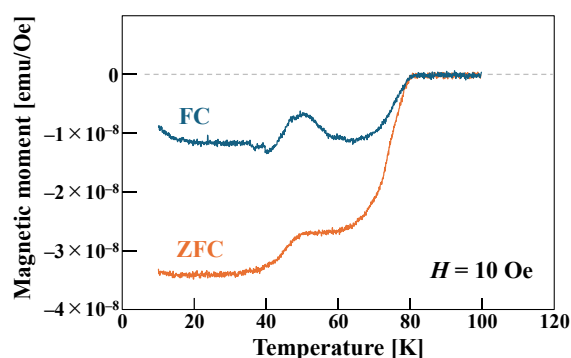


Fig. *M-T* curve of an obtained film fabricated by using (Nd_{0.67}Sr_{0.33})CuO₂ as starting composition.

【参考文献】

- [1] Hiroi et al., Nature 364 (1993) 315
- [2] Karimoto et al., Jpn. J. Appl. Phys. 40 (2001) L127
- [3] S. Funaki et al., Phys. Proc. 27 (2012) 284
- [4] 船木 他, 第 70 回 応用物理学会 春季学術講演会 予稿集 (2023) 16a-PB03-7

11 Superconductivity Oral presentation : 11.1 Fundamental properties
--

[8a-N404-1~11] 11.1 Fundamental properties

[8a-N404-1]

A novel H/F doping method for polycrystalline SmFeAsO bulk samples

○Shunya Tomioka¹, Kenshin Sakurai¹, Fumiya Shimoyama³, Takafumi Hatano¹, Akiyasu Yamamoto³, Hiroshi Ikuta^{1,2} (1.Dept. Mater. Phys., Nagoya Univ., 2.RCCME, Nagoya Univ., 3.Dept. Appl. Phys., Tokyo Univ. Agric. & Technol.)

[8a-N404-2]

He-ion irradiation tolerance of NdFeAs(O,H) thin films

○Ibuki Washitani¹, Atsuro Yoshikawa¹, Koki Miyamoto¹, Shunya Tomioka¹, Toshinori Ozaki², Takafumi Hatano¹, Hiroshi Ikuta^{1,3} (1.Nagoya University., 2.Kwansei Gakuin Univ., 3.Nagoya Univ RCCME)

[8a-N404-3]

Understanding the Structural Evolution in Y-doped Ba_{0.6}K_{0.4}Fe₂As₂ Superconductor

○(D)Nur Rahmawati Ayukaryana¹, Fumiya Shimoyama¹, Akiyasu Yamamoto¹ (1.Tokyo Univ. of Agri. and Tech.)

[8a-N404-4]

Superconductivity in GdSr₂RuCu₂O_{8-δ} Single Crystal by Post-annealing under 2 atm

Tsubasa Hitokoto¹, Satoshi Ishii¹, Akinobu Irie¹, ○Kazuhiro Yamaki¹ (1.Utsunomiya Univ.)

[8a-N404-5]

Fabrication of magnetically biaxial aligned DyBa₂Cu₃O_y ceramics by a colloidal process

○(M2)Futo Fukuyama¹, Adachi Shintaro¹, Kimura Fumiko¹, Hirota Noriyuki², Suzuki Tohru², Uchikoshi Tetsuo², Horii Shigeru¹ (1.Kyoto Univ. Adv. Sci., 2.NIMS)

[8a-N404-6]

Doping effect of Ca for RE123 melt-textured bulks grown by SDMG method

○(M1)Ryo Asako¹, Takanori Motoki¹, Jun Endo¹, Keita Kunitomo¹, Naoya Matsunaga¹, Masafumi Kunii¹, Jun-ichi Shimoyama¹ (1.Aoyama Gakuin Univ.)

[8a-N404-7]

Synthesis of grain oriented Y124 materials and their anisotropic physical properties

○Hiroto Taguchi¹, Yuki Ajisaka¹, Yuto Takagi¹, Masayoshi Morioka¹, Takanori Motoki¹, Jun-ichi Shimoyama¹ (1.Aoyama Gakuin Univ.)

[8a-N404-8]

Synthesis of c-axis oriented RE247 sintered bulks and their physical properties

○Yuto Takagi¹, Hiroto Taguchi¹, Yuki Ajisaka¹, Masayoshi Morioka¹, Takanori Motoki¹, Jun-ichi Shimoyama¹ (1.Aoyama Gakuin Univ.)

[8a-N404-9]

Imaging of Quantum Vortices in High-Tc Cuprates under Transport Current

○(D)Shunsuke Nishimura¹, Takeyuki Tsuji^{2,3}, Takayuki Iwasaki³, Mutsuko Hatano³, Kento Sasaki³, Kensuke Kobayashi³ (1.Univ. Tokyo, 2.NIMS, 3.Science Tokyo)

[8a-N404-10]

Composition ratio dependence of superconducting transition temperature in A15-type superconductor $V_3Si_xGe_{1-x}$

O(M2) Ryusei Ukai¹, Ebihara Takao¹, Asakura Mihiro², Sakai Akito², Nakatsuji Satoru², Iyo Akira³
(1.Shizuoka Univ., 2.Univ. of Tokyo, 3.AIST)

[8a-N404-11]

Optically-Guided Autonomous Synthesis of Superconducting Alloys via Arc-Melting

O(D) WeiSheng Wang^{1,2}, kensei Terashima^{2,1}, yoshihiko Takano² (1.Tsukuba Univ., 2.NIMS)

SmFeAsO 多結晶バルク体に対する新規 H/F 置換手法の開発

A novel H/F doping method for polycrystalline SmFeAsO bulk samples

名大工¹, 名大 RCCME², 東京農工大工³

○富岡 隼也¹, 櫻井 謙真¹, 霜山 郁弥³, 畑野 敬史¹, 山本 明保³, 生田 博志^{1,2}

Dept. Mater. Phys., Nagoya Univ.¹, RCCME, Nagoya Univ.², Dept. Appl. Phys., Tokyo Univ. Agric. &

Technol.³○Shunya Tomioka¹, Kenshin Sakurai¹, Fumiya Shimoyama³, Takafumi Hatano¹,

Akiyasu Yamamoto³, Hiroshi Ikuta^{1,2}

E-mail: tomioka.shunya.h5@s.mail.nagoya-u.ac.jp

【はじめに】 $LnFeAsO$ ($Ln = Nd, Sm$) は O サイトの一部を H もしくは F で置換することで鉄系超伝導体の中でも最高の $T_c = 56$ K を示す。しかしながら、原料の H/F 化合物の反応性が高く、 $LnOF$ や $FeAs$ などの不純物が容易に形成されてしまう。一方、本系の薄膜作製においては $LnFeAsO$ 単相薄膜を成長後、 CaH_2 と共に熱処理することで、トポタクティック反応によって $LnFeAs(O,H)$ 薄膜を得ることができる^[1,2]。そこでこの手法をバルク体に適用することで、 $SmFeAs(O,H/F)$ バルク体を作製することを目指して実験を実施した。

【手法】まず $SmFeAsO$ ペレット試料を遊星ボールミルによる高エネルギー混合と SPS 焼結による固相反応で作製した。その後 $SmFeAsO$ 試料を H/F 化合物と共に真空封管して熱処理し、トポタクティック反応による元素置換が進行する条件を探索した。具体的には熱処理温度・時間、 $SmFeAsO$ の形態(ペレット or 粉末)、H/F 化合物の種類などを系統的に変えた。本系においては H/F 置換が進行するにつれて格子定数が減少するため、粉末 X 線回折(XRD)から格子定数を決定し、元素置換の程度を評価した。超伝導特性の評価には磁化測定を用いた。

【結果】Fig. 1 にアルミホイルで包んだ $SmFeAsO$ 粉末を CaH_2 粉末と共に真空封管して熱処理した試料の XRD 測定結果を示す。挿入図の 220 ピーク拡大図からピークシフト、すなわち H 置換の進行が確認できる。また、目立った不純物ピークは見られなかった。一方、文献値における格子定数^[3]の変化量と比較することで H 置換量 x は 0.04 程度と見積もられるため、超伝導発現には不十分である。そこで、より大きな x を目指して様々な H/F 置換条件で試料作製を行っている。当日はそれらの結果も含めて詳細を報告する予定である。

[1] J. Matsumoto *et al.*, *Phys. Rev. Materials*. **3** 103401 (2019)

[2] K. Kondo *et al.*, *Supercond. Sci. Technol.* **33** 09LT01 (2020)

[3] T. Hanna *et al.*, *Phys. Rev. B* **84**, 024521 (2011)

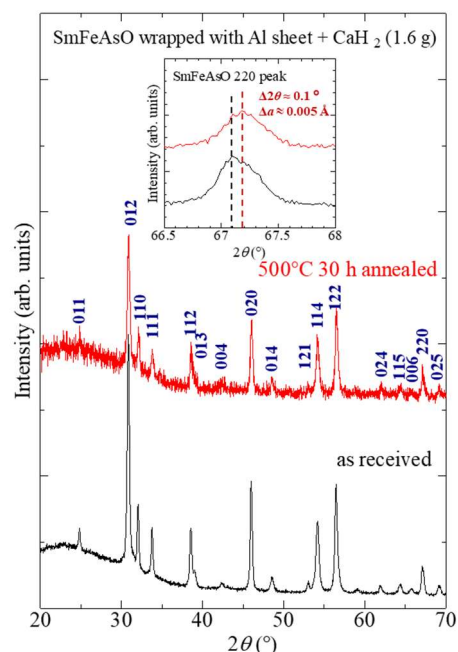


Fig. 1 Powder XRD patterns of as-received and with CaH_2 annealed $SmFeAsO$. The inset shows enlarged views of the 220 peaks.

鉄系超伝導体 NdFeAs(O,H)薄膜の He イオン照射耐性

He-ion irradiation tolerance of NdFeAs(O,H) thin films

名大院工¹, 関西学院大², 名大 RCCME³, [○]鷲谷 伊吹¹, 吉川 淳朗¹, 宮本 洗希¹,
富岡 隼也¹, 尾崎壽紀², 畑野 敬史¹, 生田 博志^{1,3}

Nagoya Univ.¹, Kwansei Gakuin Univ.², Nagoya Univ RCCME³, [○]Washitani Ibuki¹, Atsuro Yoshikawa¹,
Koki Miyamoto¹, Shunya Tomioka¹, Toshinori Ozaki², Takafumi Hatano¹, Hiroshi Ikuta^{1,3}

E-mail: washitani.ibuki.p0@s.mail.nagoya-u.ac.jp

【緒言】磁場閉じ込め方式核融合では、超伝導マグネットによる強力磁場が用いられる。現在建設中の実験炉には従来型超伝導体の Nb₃Sn を用いたマグネットが実装されているが、核融合技術の商用展開を進めるには、より高温で運用可能な高温超伝導体の活用が重要である。このため、銅酸化物系材料の適用が盛んに検討されているものの、核融合反応過程で発生する中性子線による超伝導特性の劣化が懸念されている[1]。一方、もう一つの高温超伝導物質群である鉄系超伝導体については中性子耐性の報告は限られている。その理由の一つは、中性子照射が実験設備の制約や安全性の観点から容易には実施できないためである。そこで、近年報告された中性子照射と He イオン照射の強い相関に着目し[1]、本研究では鉄系超伝導体で最高 T_c を示す NdFeAs(O,H) 薄膜に対して He イオン照射を実施し、照射の前後で T_c および臨界電流密度 J_c の変化を評価した。

【手法】まず NdFeAsO 母相薄膜を分子線エピタキシー法により成膜した。後に CaH₂ 粉末(~0.8 g) と共に真空封管し、熱処理をすることで topotactic 反応による H 置換を行った。作製した試料は線幅 25 μm の細線状に加工し、He イオン照射の前後に電気輸送特性を調べ、 T_c および J_c を決定した。また照射は量子科学技術研究開発機構にて実施した。加速電圧は 100 keV で、試料 A に対する照射量は 8.5×10^{13} [ions/cm²] とし、試料 B については 8.4×10^{12} [ions/cm²] とした。この条件を元に材料中の He イオン飛程シミュレーションを行い、照射に伴うダメージのスケールとして、叩き出し損傷量を算出した。

【結果】Fig.1 に照射前後における T_c の劣化の割合および J_c の損傷量依存性を示す。(a)に示すように、GdBa₂Cu₃O_{7- δ} に対する He イオン照射の先行研究[1]と比較すると、5 mdpa のダメージでの T_c 劣化がおおよそ 1/3 程度と見積もられた。さらに、20 K, self field における He イオン照射後の J_c の損傷量依存性を照射前の J_c で規格化してプロットすると(b)のようになり、GdBa₂Cu₃O_{7- δ} [2]に対するデータと比較すると J_c の劣化も小さいことがわかった。これらの結果から鉄系超伝導体 NdFeAs(O,H)薄膜の照射耐性が銅酸化物超伝導体より優れている可能性が唆される。

[1] K. Adams *et al.* *Supercond. Sci. Technol.* **36**, (2023) 10LT01

[2] W. Iliffe *et al.* *Supercond. Sci. Technol.* **34**, (2021) 09LT01

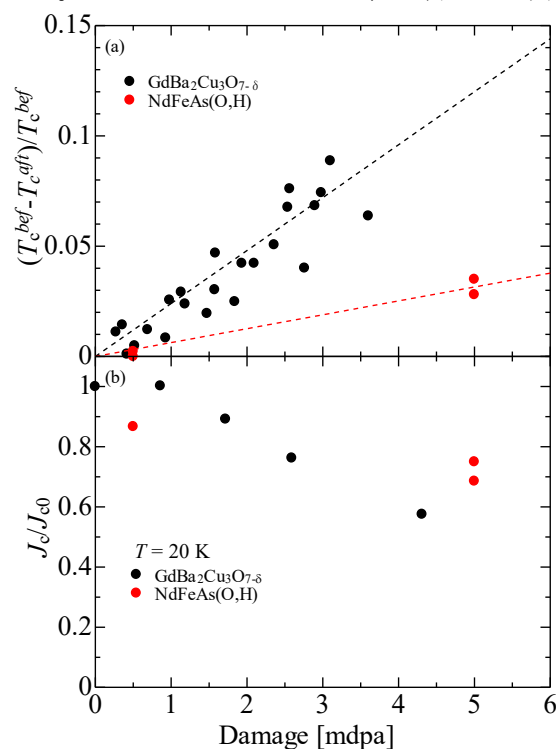


Fig. 1. (a) The dpa dependence of transition temperature degradation defined as $(T_c^{bef} - T_c^{aft})/T_c^{bef}$, where T_c^{bef} is the T_c before irradiation and T_c^{aft} is the T_c after irradiation. (b) The dpa dependence of the J_c at 20 K normalized by the J_c before irradiation (J_{c0}).

Understanding the Structural Evolution in Y-doped $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ Superconductor

Tokyo Univ. of Agri. and Tech., °Nur Rahmawati Ayukaryana, Fumiya Shimoyama, Akiyasu

Yamamoto

E-mail: s240755z@st.go.tuat.ac.jp

The K-doped BaFe_2As_2 (K-Ba122) compound is a leading candidate for the next generation superconducting materials due to the high critical temperature of 38 K and strong robustness against high magnetic fields with upper critical field value of more than 50 T^{[1][2]}. The presence of FeAs and Ba-O wetting phase formations at grain boundaries inhibits the superconducting current flow, thereby hindering its development for practical applications^{[3][4]}. While the mechanism of such wetting phases remains unknown^[4], we reported the reduction of FeAs phases through thermodynamically driven strategy to control oxygen by introducing yttrium (Figure 1)^[5]. On the other hand, the introduction of yttrium caused systematic lattice parameter changes as shown in Figure 2.

Herein, we investigate the structural and physical properties of Y-doped K-Ba122 bulks by tuning the milling energy^[6] and synthesizing Y-doped BaFe_2As_2 compound to distinguish their contribution to the lattice distortion profile. Mechanical alloying by high-energy ball milling and heat treatment by spark plasma sintering^[7] were employed to fabricate the bulk samples. Material characterizations including XRD analysis, SEM-EDX observation, resistivity and magnetization measurements through PPMS-VSM were conducted.

References

- [1] M. Rotter, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 107006 (2008).
- [2] H. Hosono, *et al.*, *Materials today* **21**, 278 (2018).
- [3] Y. J. Kim, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 162604 (2014).
- [4] C. Dong, *et al.*, *Natl. Sci. Rev.* **11**, nwae122 (2024).
- [5] N. R. Ayukaryana, *et al.*, September 1-6, 2024, Applied Superconductivity Conference, Salt Lake City, USA.
- [6] Z. Guo, *et al.*, *Acta Materialia* **266**, 119648 (2024).
- [7] S. Tokuta, *et al.*, *iScience* **25**, 103992 (2022).

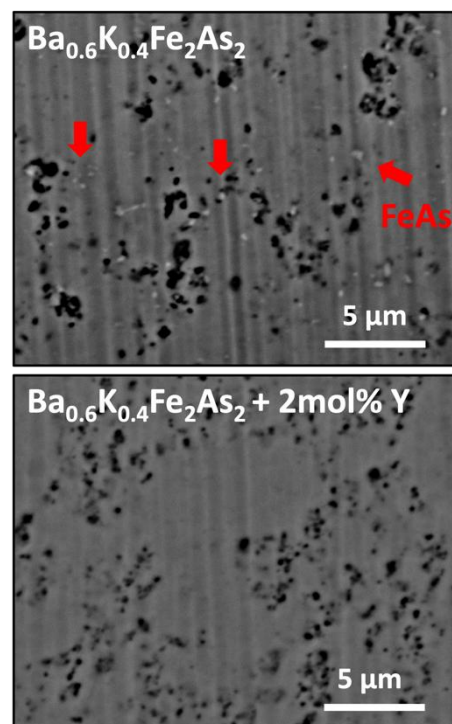


Fig. 1 FeAs phase reduction in K-Ba122

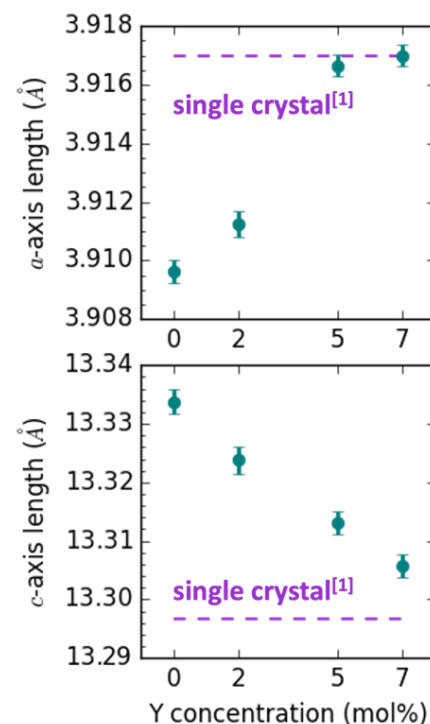


Fig. 2 Lattice parameters dependence of Y concentration in K-Ba122

2 気圧下でのポストアニールによる $\text{GdSr}_2\text{RuCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ 単結晶の超伝導化

Superconductivity in $\text{GdSr}_2\text{RuCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ Single Crystal by Post-annealing under 2 atm

宇都宮大工¹, 一言 飛翔¹, 石井 聡史¹, 入江 晃亘¹, °八巻 和宏¹

Utsunomiya Univ.¹, Tsubasa Hitokoto¹, Satoshi Ishii¹, Akinobu Irie¹, °Kazuhiro Yamaki¹

E-mail: kyamaki@cc.utsunomiya-u.ac.jp

ルテニウム系銅酸化物超伝導体 $\text{GdSr}_2\text{RuCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ (RuGd-1212) は、磁性(RuO_2)層と超伝導(CuO_2)層が交互に積層した層状構造を形成し、磁気秩序と超伝導性が共存する磁性超伝導体として知られている。この系の単結晶は Pt 坩堝を用いた自己フラックス法の報告があり、電流電圧特性において多重ブランチ構造が報告されている[1]。しかし合成グループ間で超伝導特性にバラツキも大きく、RuGd-1212 の超伝導には未だ不明瞭な点が残る。

我々のグループでは Sr-Gd-Cu-O 系フラックスを用いて融点直下で2段階の焼成を行う部分熔融法と名付けた手法によって、一辺 100 μm 程度の単結晶を合成してきた。数気圧の加圧下で合成することで、超伝導転移による抵抗減少開始温度 ($T_{\text{c-onset}}$) が 50 K を超える試料の合成にも成功している[2]。この加圧下で合成した試料に関しては 200 μm を超える大型の RuGd-1212 単結晶片も見られるものの、炉内の温度分布の不均一性を反映してか、粒の表面形態に問題があり単結晶の取り出しには至らなかった。そこで今回、より温度分布が良く、高い再現性が確認されているシリコニット管状炉を用いて合成した非超伝導 RuGd-1212 単結晶塊の加圧下でのポストアニールを検討した。

RuGd-1212 単結晶片の取り出しに向け、まずはシリコニット炉で従来 180 μm 程度だった RuGd-1212 単結晶の大型化に取り組んだ。その結果、融点直下での焼成温度と降温時間の2つのパラメータを精査することで、最大で一辺 400 μm 程度、平均でも 200 μm 大の直方体 RuGd-1212 単結晶を多数含む多結晶塊の合成に成功した。得られた試料から単結晶片を取り出し、抵抗の温度依存性を測定したところ、低温で抵抗は増加し 4.2 K まで超伝導転移は確認できなかった。そこで、酸素雰囲気下 2 気圧の条件で 1050 $^{\circ}\text{C}$, 25 時間のポストアニールを行った。この RuGd-1212 単結晶の抵抗の温度依存性と光学顕微鏡写真、4.2 K での電流電圧特性を図 1 に示す。抵抗減少開始温度 ($T_{\text{c-onset}}$) は 40 K と若干低いものの、加圧下でポストアニールすることで、RuGd-1212 単結晶を用いて、超伝導特性を観測することに成功した。

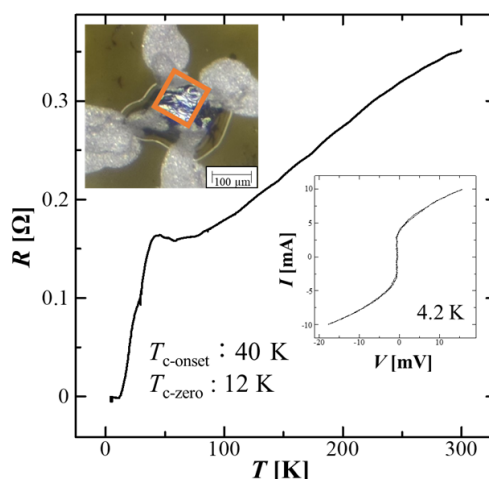


Fig.1 R - T characteristics for RuGd-1212 single crystal.

[1] T. Nachtrab *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92** (2004) 117001.

[2] 丸山ら, 2024 年第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 22a-P01-5.

コロイドプロセスによる二軸磁場配向 DyBa₂Cu₃O_y セラミックスの作製

Fabrication of magnetically biaxial aligned DyBa₂Cu₃O_y ceramics by a colloidal process

¹京都先端科学大・工, ²物材機構

福山風人¹, 足立伸太郎¹, 木村史子¹, 廣田憲之², 鈴木達², 打越哲郎², 堀井滋¹

¹Kyoto Univ. Adv. Sci., ²NIMS

F. Fukuyama¹, S. Adachi¹, F. Kimura¹, N. Hirota², T. Suzuki², T. Uchikoshi², and S. Horii¹

E-mail: 2024mm18@kuas.ac.jp

1. Introduction

To achieve the high critical current densities (J_c) of REBa₂Cu₃O_y (RE123) superconductors (SCs) for practical use, biaxial grain alignment and densification are essential. Our group focuses on the magnetic alignment technique to improve critical current by fabricating the thick RE123 films (> 100 μm) with biaxially aligned microstructures. Biaxial alignment of RE123 grains with twinned microstructure has been achieved under the modulated rotating magnetic field (MRF) of solenoidal SC magnet (SC-MRF) [1] and linear drive type MRF (LDT-MRF) in an epoxy resin [2, 3]. As the next step, our group aims at the development of the biaxial aligned RE123 ceramics by the colloidal process and LDT-MRF. Requirements of a colloidal solution having the appropriate viscosity, which is related to magnetic alignment time was strongly suggested for fabrication of the biaxial aligned ceramics [4]. In the previous JSAP meeting, we reported the preparation of DyBa₂Cu₃O_y (Dy123) colloidal solution with various viscosities [5]. In this study, the fabrication of the magnetically biaxial aligned Dy123 ceramics is attempted.

2. Experimental

Dy123 ($y \sim 7$) polycrystals were synthesized by the standard solid-state reaction and oxygen annealing. Incidentally, the average particle size is $\sim 0.5 \mu\text{m}$. Dispersant (polyethyleneimine, 1 wt%, PEI) mixed with the butanol. Then, the binder (Hydroxypropyl Cellulose H type, HPC-H) and fined Dy123 powder (5 – 15 vol%) were added to the PEI mixtures. Prepared Dy123 colloidal solutions were dried in a mold under LDT-MRF with ambient pressure. Degrees of orientation of the magnetically aligned Dy123 ceramics were determined from (103) pole figure measurements. Magnetic J_c was determined by PPMS (Versa Lab).

3. Results and Discussion

Fig. 1(a) shows the (103) pole figure of a magnetically aligned Dy123 ceramic, which was sintered at 950°C in air for 24 h aligned under LDT-MRF. Then the viscosity of Dy123 colloidal solution is roughly 500 mPa·s. The relative density (ρ) of the Dy123 ceramic is $\sim 80\%$. Note that the measurement plane for the (103) pole figure is perpendicular to the

direction of the static magnetic field component. Clearly, four-fold symmetric spots were obtained for the magnetically aligned Dy123 ceramic, indicating that Dy123 was biaxially aligned. The average FWHM value ($\Delta\phi$) in the rotational direction on the four spots was approximately 17 deg.

Fig. 1(b) shows the magneto-hysteresis curve (M - H curve) of the magnetically biaxial aligned Dy123 ceramic at 77 K. ΔM at self-field was 87 emu/cm³. Magnetic J_c of the magnetically aligned Dy123 ceramic was $\sim 1100 \text{ A/cm}^2$ at 77 K and self-field. This self-field J_c value is qualitatively explained in terms of the relatively lower $\Delta\phi$ and ρ .

In this study, we will report the details of the fabrication process of Dy123 ceramics using the colloidal process and the change in J_c for various magnetically aligned Dy123 ceramics.

References

- [1] S. Horii *et al.*, SuST **29** (2016) 125007.
- [2] S. Horii *et al.*, J. Ceram. Soc. Jpn. **126** (2018) 885.
- [3] W. B. Ali *et al.*, J. Appl. Phys. **134** (2023) 163901.
- [4] F. Fukuyama *et al.*, J. Phys. Conf. Ser. (in press)
- [5] F. Fukuyama *et al.*, JSAP2025, Spring Meeting, 14a-P05-12

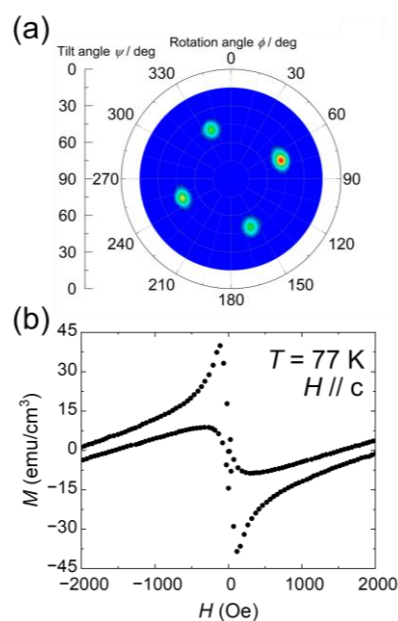


Fig. 1(a) (103) pole figure of the sintered Dy123 ceramics with LDT-MRF. (b) M - H curve on the annealed magnetically biaxial aligned Dy123 ceramics at 77 K.

SDMG 法 RE123 溶融凝固バルクへの Ca ドープ効果

Doping effect of Ca for RE123 melt-textured bulks grown by SDMG method

青学大理工 °浅古 諒, 元木 貴則, 遠藤 淳, 國本 慧太, 松永 直也, 國井 正文, 下山 淳一

Aoyama Gakuin Univ. °Ryo Asako, Takanori Motoki, Jun Endo, Keita Kunimoto,

Naoya Matsunaga, Masafumi Kunii and Jun-ichi Shimoyama

E-mail: c5625058@aoyama.jp

1. はじめに

REBa₂Cu₃O_{7-δ} (RE123, RE: 希土類元素)は、高磁場下においても高い臨界電流密度 J_c を維持することから、強力超伝導磁石などへの応用が期待されている。我々は RE123 溶融凝固バルクの作製手法として、既製のバルクを seed plate として用い、包晶温度の差を利用して結晶成長させる Single-Direction Melt Growth (SDMG)法^[1]を開発してきた。この手法では方位を揃えた複数の seed plate を並べることで粒界を含む大型バルクの育成が可能である。一方、RE サイトへの Ca ドープは、 T_c の低下を伴うものの、キャリアドープの効果によって、中低温域や結晶粒間の臨界電流特性の改善、さらにバルク材料が応用される中低温域(20 – 60 K)における捕捉磁場特性の向上が期待される。以上の背景のもと、本研究では、SDMG 法により Ca ドープ Y123 溶融凝固バルクを作製し捕捉磁場特性および粒界をまたぐ輸送特性などを評価した。

2. 実験方法

本研究では Y に対して Ca を 0 – 8 mol% ドープした Y123 溶融凝固バルクを SDMG 法により作製した。日本製鉄社製 Eu123 溶融凝固バルク(Eu-QMG)を上面が(001)面となるように切り出した平板を seed plate とし、その上に前駆体ペレットを設置し、溶融凝固を行った。作製したバルクについて、還元ポストアニール、低温長時間の酸素アニールの後、ホール素子を用いた捕捉磁場(B_T)測定、SQUID 磁束計を用いた磁化測定、交流 4 端子法による電気抵抗率測定を行った。

3. 結果と考察

Fig. 1 に Ca ドープ量を制御した Y123 溶融凝固バルクの捕捉磁場の温度依存性を、Fig. 2 に磁場中冷却法による着磁後の捕捉磁場の温度変化率を示す。Ca ドープ試料では中低温において Ca-free 試料よりも捕捉磁場増加の傾きが急峻であることから、Ca ドープによってより低温での臨界電流特性が向上することが示唆された。Fig. 3 に Ca-free および Ca を 5% ドープした Y123 溶融凝固バルクの電気抵抗率の温度依存性を示す。 a 軸方位が 45° ずれた粒界を含む試料において抵抗率が Ca ドープにより低下した。講演では不定比酸素量制御の捕捉磁場特性、粒界をまたぐ物性に及ぼす効果についても報告する。

[1] T. Motoki *et al.*, *Appl. Phys. Express* **13** (2020) 093002.

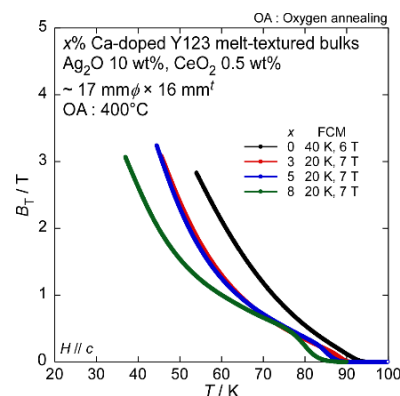


Fig. 1 Temperature dependence of trapped field of Y123 melt-textured bulks.

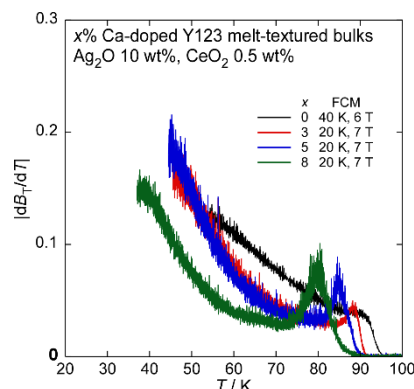


Fig. 2 Temperature coefficient of trapped field of Y123 melt-textured bulks

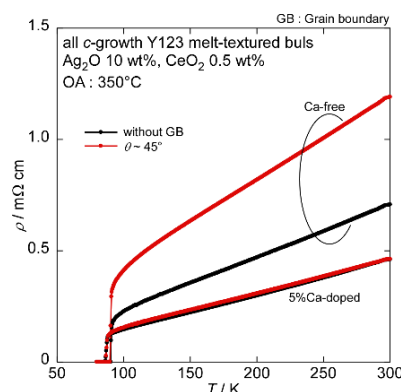


Fig. 3 ρ - T curves of Y123 melt-textured bulks with and without a grain boundary.

結晶配向 Y124 試料の作製と異方的物性

Synthesis of grain oriented Y124 materials and their anisotropic physical properties

青学大理工 °田口 寛人, 鯉坂 侑輝, 高木 佑大, 森岡 昌義, 元木 貴則, 下山 淳一

Aoyama Gakuin Univ., °Hiroto Taguchi, Yuki Ajisaka, Yuto Takagi, Masayoshi Morioka,

Takanori Motoki and Jun-ichi Shimoyama

E-mail: c5624053@aoyama.jp

1. はじめに

RE124($\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_8$)はブロック層に酸素不定比性を持たない CuO 二重鎖のみを有するため、酸素量による超伝導特性の変化が起こらず、常に直方晶である。Y124 では $T_c = 80 \text{ K}$ を示し、Caドーピングによって $T_c = 90 \text{ K}$ まで向上する。しかし、RE124 多結晶材料の開発や応用への取り組みはほとんどない。それは銅酸化物超伝導体共通の課題である短いコヒーレンス長、大きな異方性、超伝導の d 波対称性による結晶粒間の弱結合のため、RE124 多結晶材料においても緻密な結晶配向組織の形成が臨界電流特性向上に不可欠であるのに対し有効な方法が確立できていないためである。一方、超伝導磁石による 10 T の回転変調磁場中での、エポキシ樹脂に混練した Y124 粉末の磁場配向により、三軸配向体の作製が報告されている^[1]ように、RE124 では磁場を利用した結晶配向が可能である。以上の背景のもと、本研究では、RE124 の異方的な物性が評価できる試料の作製を目的として、RE124 のエピタキシャル薄膜および c 軸配向焼結体の作製を試みた。

2. 実験方法

仕込組成が $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の焼結体から作製したフッ素フリーMOD 法溶液をスピコート法により $\text{SrTiO}_3(100)$ 単結晶基板上に塗布した後、有機物を熱分解するために仮焼した。この塗布と仮焼を 3 回繰り返した後、 $P_{\text{O}_2} = 3 \text{ Pa}$ (O_2 / Ar), 800°C , 1 h の条件で本焼成を行い、Y123 を主相とする 2 軸配向薄膜を作製した。この薄膜に対し、HIP 装置を用いて高压酸素雰囲気下でアニールすることにより Y124 薄膜を作製した。Ca-free および Ca を Y に対して 10%ドーピングした c 軸配向 Dy124 焼結体は、あらかじめ作製した 124 相の粉末とエタノールを混合したスラリーを、永久磁石上に置き、沈殿、乾燥して得られた粉末配向体を焼成することにより作製した。薄膜および焼結体試料について、表面 XRD により構成相の同定や配向度、SQUID 磁束計により磁化特性を評価した。

3. 結果と考察

Fig.1 に本焼成後の Ca を 10%ドーピングした Y123+CuO 薄膜に対して $P_{\text{O}_2} = 3 \text{ MPa}$, 850°C , 12 h のアニールを繰り返し行った薄膜の表面 XRD パターンを示す。高压酸素アニールの繰り返しによって徐々に 00ℓ ピークが低角側にシフトし、合計 36 h のアニールにより強く c 軸配向した Y(Ca)124 薄膜が得られた。Fig. 2 に Ca-free および Ca を 10%ドーピングした Y124 薄膜の磁化率の温度依存性を示す。Caドーピングにより $T_c \sim 77 \text{ K}$ から $T_c \sim 85 \text{ K}$ に向上し、超伝導転移も鋭くなった。講演では Y(Ca)124 薄膜の通電特性や臨界電流特性、 c 軸配向および Dy124 焼結体の物性についても報告する。

参考文献

[1] T. Fukushima *et al.*, *Appl. Phys. Express* **1** (2008) 111701

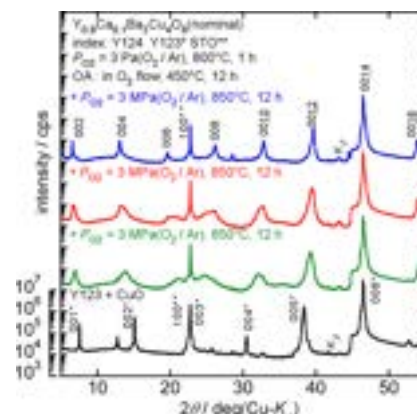


Fig. 1 Changes of surface XRD patterns of Y(Ca)124 thin films by repetitions of HIP treatment at 850°C in $P_{\text{O}_2} = 3 \text{ MPa}$ for 12 h .

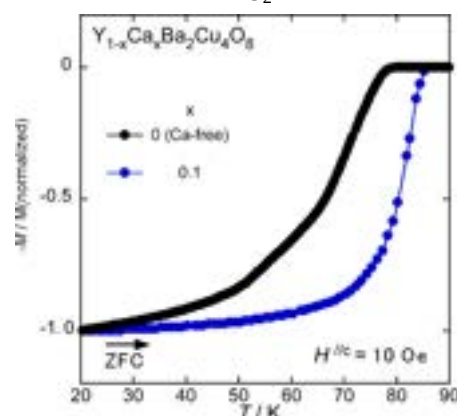


Fig. 2 ZFC magnetization curves of Ca-free and 10%Ca-doped Y124 thin films.

c 軸配向 RE247 焼結体の作製と物性

Synthesis of c-axis oriented RE247 sintered bulks and their physical properties

青学大理工 °高木 佑大, 田口 寛人, 鯨坂 侑輝, 森岡 昌義, 元木 貴則, 下山 淳一

Aoyama Gakuin Univ., °Yuto Takagi, Hiroto Taguchi, Yuki Ajisaka, Masayoshi Morioka

Takanori Motoki and Jun-ichi Shimoyama

E-mail: c5625069@aoyama.jp

1. はじめに

RE247($\text{RE}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$, RE: 希土類元素)は c 軸方向に RE123($\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$)と RE124($\text{REBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$)が交互に積層した結晶構造を持つ銅酸化物超伝導体であり、酸素量が最大の $\delta=0$ のとき、Y247 は Y123 の 92 K よりも高い臨界温度(T_c)95 K を示すことが報告されている^[1]。また、RE247 は層状の結晶構造に由来した短いコヒーレンス長と d 波対称性による結晶粒間の弱結合の問題を抱えているため、多結晶体における異方的物性の評価や通電応用には結晶配向組織の形成による粒間結合の強化が必要である。RE247 は RE イオンと CuO_2 面の磁化で決まる磁気異方性を持つため結晶方位の磁場配向が可能で、磁場 12 T でのエポキシ樹脂中硬化による Y247 三軸配向体の作製が報告されている^[2]が、輸送特性などの物性評価は困難であった。以上の背景のもと、本研究では RE247 の本質的な異方的物性の解明を目的とし、物性評価が可能な大型試料を得るため、低温での磁場配向による c 軸配向 RE247 焼結体(RE = Dy, Y)の作製を試み、得られた試料の物性評価を行っている。

2. 実験方法

出発原料は Dy_2O_3 、 Y_2O_3 、 BaCO_3 、 CuO の粉末でこれらを Dy : Y : Ba : Cu = 2-x : x : 4 : 7 (x = 0, 1) のモル比になるように秤量、混合後、仮焼、焼結、酸素アニールを行うことによって(Dy,Y)123 と CuO からなる反応前駆体を得た。この前駆体を石英管内に封入し焼成することで(Dy,Y)247 焼結体を作製した。石英管内の酸素分圧は封入する前駆体の量により調整した。得られた焼結体を粉砕し、エタノールを加え、ボールミル処理で粒径を制御した(Dy,Y)247 粉末を含むスラリーを調製した。Fig. 2 に示すように凍結させたスラリーを永久磁石 (0.5 T) 上に置き、粉末を沈降させることにより磁場配向を行い、乾燥、一軸プレス後、焼結することで c 軸配向(Dy,Y)247 焼結体を作製した。構成相同定や磁場配向度は表面 XRD 測定、磁化特性は SQUID 磁束計、電気抵抗率は交流四端子法により調べた。磁場配向度は XRD パターンの解析から求めた Lotgering factor (F)により評価した。

3. 結果と考察

Fig.2 に磁場配向後の Dy247 磁場配向堆積物およびプレス・焼結後の試料の上面及び下面の XRD パターンを示す。堆積後だけでなく焼結後も強い c 軸配向を保った試料が得られた。しかし、相対密度が 50 %程度と低く、詳細な物性評価を行うには不十分である。そこで、磁場配向に用いる粉末の作製条件や磁場配向後のプレス条件の最適化を進めている。講演では ($\text{Dy}_{0.5}\text{Y}_{0.5}$)247 磁場配向体の作製および磁場印加方向を変えて調べた電気抵抗率の温度依存性などを報告する。

参考文献

[1] J. Y. Genoud, T. Graf, A. Junod, D. Sanchez, G. Triscone and J. Muller, *Physica C* **177** (1991) 315.

[2] T. Fukushima *et al.*, *Appl. Phys. Express* **1** (2008) 111701.

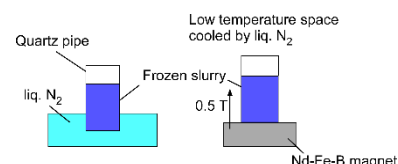


Fig. 1 Schematic illustration of magnetic grain alignment method starting from frozen slurry composed of Dy247 and EtOH.

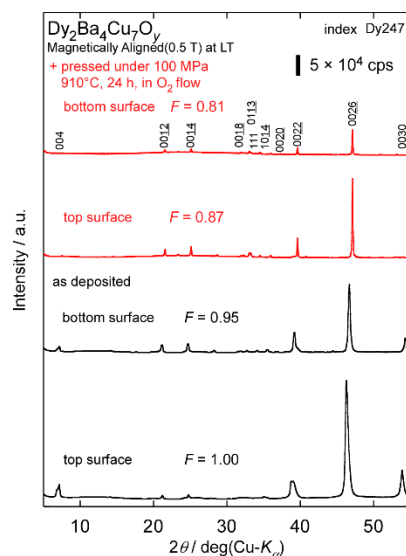


Fig. 2 XRD patterns of top and bottom surfaces of a Dy247 sample after depositing and after sintering.

銅酸化物超伝導体の電流に誘起された量子渦状態の可視化

Imaging of Quantum Vortices in High- T_c Cuprates under Transport Current

東大理¹, 物材機構², 科学大³, ○(D) 西村 俊亮¹, 辻 起行^{2,3}, 岩崎 孝之³, 波多野 睦子³, 佐々木 健人¹, 小林 研介¹

Univ. Tokyo¹, NIMS², Science Tokyo³, ○(D) Shunsuke Nishimura¹, Takeyuki Tsuji^{2,3}, Takayuki Iwasaki³, Mutsuko Hatano³, Kento Sasaki¹, Kensuke Kobayashi¹

E-mail: shunsuke.nishimura@phys.s.u-tokyo.ac.jp

強いピン止めを持つ系では、電流によるローレンツ力 $\vec{f} = \vec{j} \times \vec{\Phi}_0$ とピン止めの競合によるクリープ運動が量子渦の配置を決定する [1]。その結果、磁化および交流損失に顕著な履歴的挙動を引き起こすことが長年調べられてきた。一方で、この履歴は冷却後の磁場印加による Meissner 遮蔽電流との相互作用について主に着目され、冷却後の直流電流印加による量子渦の分布を可視化した例 [2] は限られている。また、磁場中冷却との対比として、直流電流中で冷却した結果などは知られていない。

本研究では、強いピン止めを示す銅酸化物超伝導マイクロストリップ内の磁束分布をさまざまな条件下で広視野で測定する。特に、ゼロ電流で冷却後に電流を印加した場合と、冷却中に電流を印加した場合の二つの条件について、温度、電流値を変化させた測定を行う。その結果、電流を印加することで、冷却後電流印加と冷却中電流印加の両方で量子渦が生成することを確認した。前者の場合、渦はストリップの端部から局所的な閾電流に基づき内部へ侵入する Critical State Model [3, 4] に定性的に適合し、熱的なクリープ運動を含めると理解できる振る舞いを見せた。一方、後者の結果、明瞭に量子渦の生成を確認したが、この時は端ではなく中央付近に偏重した様子を見せた。この時のストリップ内に存在する渦の数は、印加電流に比例して線形に増加し、さらに、冷却過程で電流と磁場を同時に印加する実験ではローレンツ力と逆方向に偏った渦配置が確認された。電流による自己磁場の分布を反映した結果と考えるとこれらの結果は自然であり、この過程で電流は中央付近に偏っていることを意味する。この結果は、量子渦フロー状態の平衡状態に対応すると考えられる。以上のようにいずれの結果でも量子渦が生じるが、分布と生成のモチベーションが異なっていることは、第二種超伝導体のゼロ磁場冷却と磁場中冷却の差異の電流でのアナロジーで捉えられる。これらの結果は超伝導の電流に関する履歴的現象への理解を深化させるものである。

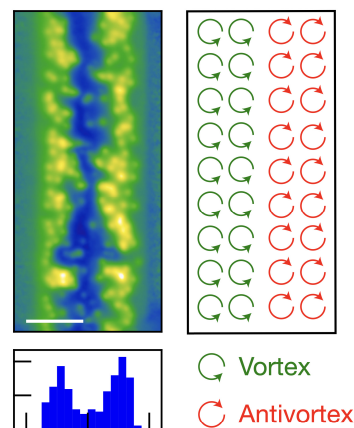


図1 (左上) 電流を印加した状態での冷却結果の磁場マッピング像。(左下) 量子渦の x 座標の統計。この結果は(右)のように渦-反渦の対として理解できる。スケールバーは 20 μm

- [1] G. Blatter, M. V. Feigel'Man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, *Reviews of Modern Physics* **66**, 1125 (1994).
- [2] M. E. Gaevski, A. V. Bobyl, D. V. Shantsev, Y. M. Galperin, T. H. Johansen, M. Baziljevich, H. Bratsberg, and S. F. Karmanenko, *Physical Review B* **59**, 9655 (1999).
- [3] E. H. Brandt and M. Indenbom, *Physical Review B* **48**, 12893 (1993).
- [4] E. Zeldov, J. R. Clem, M. McElfresh, and M. Darwin, *Physical Review B* **49**, 9802 (1994).

A15 型超伝導体 $V_3Si_xGe_{1-x}$ の組成比と超伝導転移温度

Composition ratio dependence of superconducting transition temperature in

A15-type superconductor $V_3Si_xGe_{1-x}$

静大総合科学研¹, 東大理², 産総研³, [○](M2) 鵜飼 竜盛¹, 海老原孝雄¹, 朝倉海寛²,
酒井明人², 中辻知², 伊豫彰³

Integrated Science and Technology, Shizuoka University¹, [○]Ukai Ryusei¹, Ebihara Takao¹Department of Physics, The University of Tokyo², Asakura Mihiro², Sakai Akito², Nakatsuji Satoru²AIST³, Iyo Akira³

E-mail: ukai.ryusei.20@shizuoka.ac.jp

V_3Si や Nb_3Sn に代表される $Pm3n$ 空間群に属する A15 型構造をとる超伝導体は 1950 年代に発見され、高い超伝導転移温度 (T_c) や高い上部臨界磁場 (H_{c2}) を持つことから、加工しやすい Nb_3Sn を中心に、線材・薄膜加工などへの応用研究が強力に推進されてきた。しかし、 V_3Si ($T_c \sim 17$ K, $H_{c2} > 20$ T) や Nb_3Sn ($T_c \sim 23$ K, $H_{c2} > 20$ T) が他の金属超伝導体に比べて高い T_c および H_{c2} を示す理由は、現在においても必ずしも明らかになっていない[1][2]。二元合金状態図は、 V_3Si や Nb_3Sn において単一相で純良な結晶が得られ難いことを示しており[3]、この結晶育成の困難さのため、基礎的な研究に資する良質な試料が必ずしも得られなかったことに、基礎研究の進展が緩やかなことの原因があるものと考えた。

以上のような問題意識を持って、 Nb_3Sn に比べて単一相が得られやすそうな V_3Si に着目し、比較対象物質となる V_3Ge ($T_c \sim 6$ K, $H_{c2} \sim 4$ T) とともにアーク溶融法 (含 チョコラルスキー法) によって単一相合成・結晶育成を開始し、さらに Si サイトを Ge に置換し ($V_3Si_xGe_{1-x}$: $x = 0 \sim 1$)、 T_c と H_{c2} を中心とする諸物性の Ge 濃度依存性を明らかにすることで、電子状態および高い T_c と H_{c2} を示す原因との関係を追求することにした。

本講演では、粉末 X 線回折法と SEM による V_3Si が単一相で合成できたこと、単一相 V_3Si では T_c 以外の異常は、磁化率と比熱測定からは見出せなかったことを報告する[4][5]。その上で、 $V_3Si_xGe_{1-x}$ ($x = 0 \sim 1$) が単一相で合成されたことを粉末 X 線回折法によって確認し、磁化率測定から決定した T_c の x 依存性を示すとともに、今後の電子状態研究の方向性について議論する。

[参考文献]

- [1] 渡辺 和雄, 能登 宏七, 武藤 芳雄 低温工学 1990 年 25 巻 5 号 pp. 317-322
- [2] 北 沢 宏 一 応用物理 1984 年 53 巻 4 号 pp. 320-325
- [3] Binary alloy phase diagrams ASM International 1990 年
- [4] L. R. Testardi, J. E. Kunzler, H. J. Levinstein, J. P. Maita and J. H. Wernick, Phys. Rev. B, Vol.3 pp. 107-122 (1971)
- [5] G. R. Stewart and B. L. Brandt, Phys. Rev. B. Vol.29 pp.3908-3912 (1984)

Optically-Guided Autonomous Synthesis of Superconducting Alloys via Arc-Melting

Wei-Sheng Wang^{1,2}, Kensei Terashima¹, Yoshihiko Takano^{1,2}

NIMS¹, Univ. of Tsukuba²

Email: WANG.Wei-Sheng@nims.go.jp

In our current work, we have developed an automated arc-melting system (Figure 1) that is capable of executing the synthesis process with high repeatability. However, despite the consistency of robotic operations, human intervention is still required when the synthesis results are suboptimal—particularly to manually adjust process parameters such as arc current, melting duration, or environmental conditions. This dependency on human feedback remains a major bottleneck in achieving fully autonomous materials synthesis.

The objective of this research is to enhance the autonomy of the arc-melting process by introducing real-time, automated monitoring and feedback control during synthesis[1]. To achieve this, we are integrating optical cameras into the existing robotic system. These sensors allow for continuous observation of synthesis parameters such as melt pool behavior, sample shape or brightness.

By applying computer vision and machine learning algorithms to the acquired sensor data[2], the system can identify anomalies or deviations from optimal synthesis conditions. This enables closed-loop control, where the system autonomously adjusts operating parameters (e.g., arc power, melting time) in response to feedback. The ultimate goal is to reduce or eliminate the need for human oversight and create a truly autonomous synthesis platform capable of producing high-quality materials with minimal variability.

The current focus of our system is on the fabrication of superconducting alloys. Following synthesis, the samples are manually retrieved and characterized using a Superconducting Quantum Interference Device (SQUID). The magnetic susceptibility measurements, as shown in Figure 3, confirm the successful formation of superconducting phases in the synthesized materials. While this work currently emphasizes superconductivity research, the system's modular design and programmable workflow enable straightforward adaptation to a wide variety of alloy compositions and material systems, including structural alloys, thermoelectrics, and functional oxides.



Figure 1: Automated arc-melting system.



Figure 2: Photo during arc-melting.

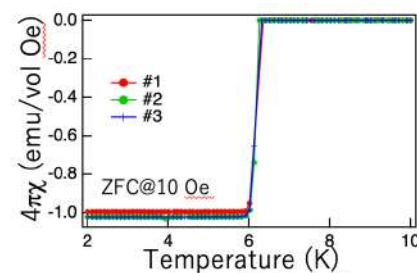


Figure 3: Magnetization data under 10 Oe, for V_3Ge sample synthesized by the automated arc-melting system.

References:

- [1] AA Borodin, EG Kabulova, and KA Polozhentsev. In: *Steel in Translation* 46 (2016).
- [2] Rogfel Thompson Martínez et al. In: *Journal of Manufacturing Processes* 62 (2021).

11 Superconductivity | Oral presentation : 11.1 Fundamental properties

[8p-N404-1~16] 11.1 Fundamental properties

[8p-N404-1]

Electron-Hole Asymmetric Phase in Layered Nickelate LaNiO_2

Masaki Kouda¹, Kengo Osame¹, Hiroyoshi Nobukane², Shuhei Shimoda³, Yoshiyuki Egami¹, ○ Masahito Sakoda¹ (1.Eng., Hokkaido Univ., 2.Sci., Hokkaido Univ., 3.Cat., Hokkaido Univ.)

[8p-N404-2]

Gate control of Phases in $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$ using Electric double-layer transistor

○Sugata Koura¹, Hiroyoshi Nobukane², Masahito Sakoda¹ (1.Eng., Hokkaido Univ., 2.Sci., Hokkaido Univ.)

[8p-N404-3]

Theoretical Analysis of Ambient Pressure Superconductivity in Thin Film $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ Based on First-Principles Calculations

○Kensei Ushio¹, Shu Kamiyama², Yuto Hoshi¹, Ryota Mizuno², Masayuki Ochi², Kazuhiko Kuroki², Hirohumi Sakakibara^{1,3} (1.Fac. of Eng., Tottori Univ., 2.School of Sci., Osaka Univ., 3.AMES, Tottori Univ.)

[8p-N404-4]

Theoretical analysis on the possibility of superconductivity in the heavily hole doped infinite layer nickelate

○Hirofumi Sakakibara¹, Ryota Mizuno², Masayuki Ochi², Hidetomo Usui³, Kuroki Kazuhiko² (1.Tottori Univ. AMES, 2.Osaka Univ., 3.Shimane Univ.)

[8p-N404-5]

Theoretical investigation on the structural stability of T' single-layer nickel oxide and the possibility of superconductivity

○(M2)Daiki Nakaoka¹, Yuto Hoshi¹, Kaoru Kurita¹, Kazuhiko Kuroki², Hirofumi Sakakibara^{1,3} (1.Faculty of Eng., Tottori Univ., 2.Dept. of Phys., Osaka Univ., 3.AMES, Tottori Univ.)

[8p-N404-6]

Theoretical analysis of orbital-space superconductivity in layered palladium compounds using the combination of FLEX and QSGW method

○(M2)Yuto Hoshi¹, Kensei Ushio¹, Kazuhiko Kuroki², Hirohumi Sakakibara³ (1.GSE, Tottori Univ., 2.Osaka Univ., 3.AMES, Tottori Univ.)

[8p-N404-7]

Theoretical study on optical control of the crystal structure of nickelate superconductor $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ via nonlinear phononics

○Shu Kamiyama¹, Tatsuya Kaneko¹, Kazuhiko Kuroki¹, Masayuki Ochi¹ (1.Univ. of Osaka)

[8p-N404-8]

Strain Effects on the Electronic State in the Bilayer Nickelate Thin Film of $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_{7-\delta}$

○Kota Morita¹, Hirotaka Okabe², Jumpei G. Nakamura², Hideki Kuwahara¹, Ryosuke Kadono², Tadashi Adachi¹ (1.Sophia Univ., 2.KEK-IMSS)

[8p-N404-9]

Pressure-induced superconductivity in trilayer nickelate $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ with different oxygen treatment

○(M2)Hibiki Nagata^{1,2}, Hiroya Sakurai¹, Ryo Matsumoto¹, Kensei Terashima¹, Keisuke Hirose³, Hiroto Ohta³, Masaki Kato³, Yoshihiko Takano^{1,2} (1.NIMS, 2.Univ. of Tsukuba, 3.Doshisha Univ.)

[8p-N404-10]

Electrical Transport Measurements of La-doped $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ under high pressure using DAC with Boron-doped Diamond Electrodes

○Eiji Hitsuda^{1,2}, Masanori Nagao³, Hibiki Nagata^{1,2}, Ryo Matsumoto¹, Yoshihiko Takano^{1,2} (1.NIMS, 2.Univ. of Tsukuba, 3.Univ. of Yamanashi)

[8p-N404-11]

Crystal structure of $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$

○(M2)Shunsuke Oka^{1,2}, Jhao-Wei Su^{2,3}, Hiroya Sakurai², Ryo Matsumoto², Naohito Tsujii², Kensei Terashima², Jiunn-Yuan Lin³, Yoshihiko Takano^{1,2} (1.Univ. of Tsukuba, 2.NIMS, 3.National Yang Ming Chiao Tung Univ.)

[8p-N404-12]

Anomalous enhancement of T_c in light-element superconductor La_2C_3 using high-pressure application

○Ryo Matsumoto¹, Masaaki Yoshikawa², Kenji Kawashima², Takano Yoshihiko^{1,3} (1.NIMS, 2.IMRA JAPAN Co., Ltd, 3.Univ. of Tsukuba)

[8p-N404-13]

Comparison of properties of Nb thin films deposited on R-plane sapphire substrates at various substrate temperatures

○(D)Tomohiro Hirama¹, Yasushi Ishiguro¹, Takashi Tachiki¹ (1.NDA)

[8p-N404-14]

Investigation of Flux Trapping Mechanism in Phase-Separated Sn-Pb Alloy

○Hiroto Arima¹, Takumi Murakami², Yuto Kinoshita³, Hossein Sepehri-Amin⁴, Masashi Tokunaga³, Tsutomu Nojima⁵, Yoshikazu Mizuguchi² (1.AIST, 2.TMU, 3.ISSP, 4.NIMS, 5.IMR)

[8p-N404-15]

Modulation of Transport Properties in Oxide Superconductor LiTi_2O_4 *via* Organic Molecule Adsorption

○(D)Kaede Kawaguchi¹, Yoshinori Okada¹, Ryota Kabe¹ (1.Okinawa Inst. Sci. Tech.)

[8p-N404-16]

Synthesis and Superconducting Behavior of FeSe Intercalated by an Ionic Molecular Tripod with Two-Dimensional Assembly Properties

○Ryota Yoshie^{1,2}, Keita Mori^{2,3}, Takayoshi Katase^{2,3}, Yoshiaki Shoji^{1,2,4}, Takanori Fukushima^{1,2,4} (1.CLS, Science Tokyo, 2.Sch. Mater. and Chem. Tech., Science Tokyo, 3.MDX ES, Science Tokyo, 4.ASMat, Science Tokyo)

層状ニッケル酸化物 LaNiO_2 におけるドーピング非対称相Electron-Hole Asymmetric Phase in Layered Nickelate LaNiO_2 北大工, 北大理¹, 北大触研²香田匡貴, 納謙吾, 延兼啓純¹, 下田周平², 江上喜幸, °迫田 将仁

Hokkaido Univ., M. Kouda, K. Osame, S. Shimoda, H. Nobukane, Y. Egami, °M. Sakoda

E-mail: sakodam@eng.hokudai.ac.jp

無限層構造を持つ LaNiO_2 における La^{3+} をアルカリ土類金属 Sr^{2+} や Ca^{2+} に化学置換する（正孔ドーピング）ことで、 $T_c = 25 \text{ K}$ の超伝導が報告されている¹。一方で銅酸化物超伝導体では、Mott 絶縁体である母物質に、電子または正孔をドーピングすることで超伝導が発見されてきた。そこで、ニッケル系の母物質に Ce^{4+} を化学置換した（電子ドーピング） $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$ を作製することで新たな秩序相を開拓し、超伝導相との関係を明らかにすることを目的とする。

Ce 濃度 $x \geq 0.25$ において、抵抗率は非常に強い電子相関を表わす Efros-Shklovskii 型可変範囲ホッピング(ES-VRH): $\rho \propto T^{-1/2}$ に従い、活性化エネルギーに対応する特性温度 T_{ES} は 10 万ケルビン以上に達する（図 1 左）。このことは、強い電子間クーロン反発によって絶縁相が形成されていることを示す。さらに、 LaNiO_2 の相図（図 1 右）は、正孔ドーピング系で観測される超伝導相とは対照的に、電子ドーピング側では広範囲に ES 型絶縁相が現れる強い非対称性を示した。本研究は、ニッケル酸化物系におけるキャリア対称性の破れと、それに伴う相変化の機構を理解する。

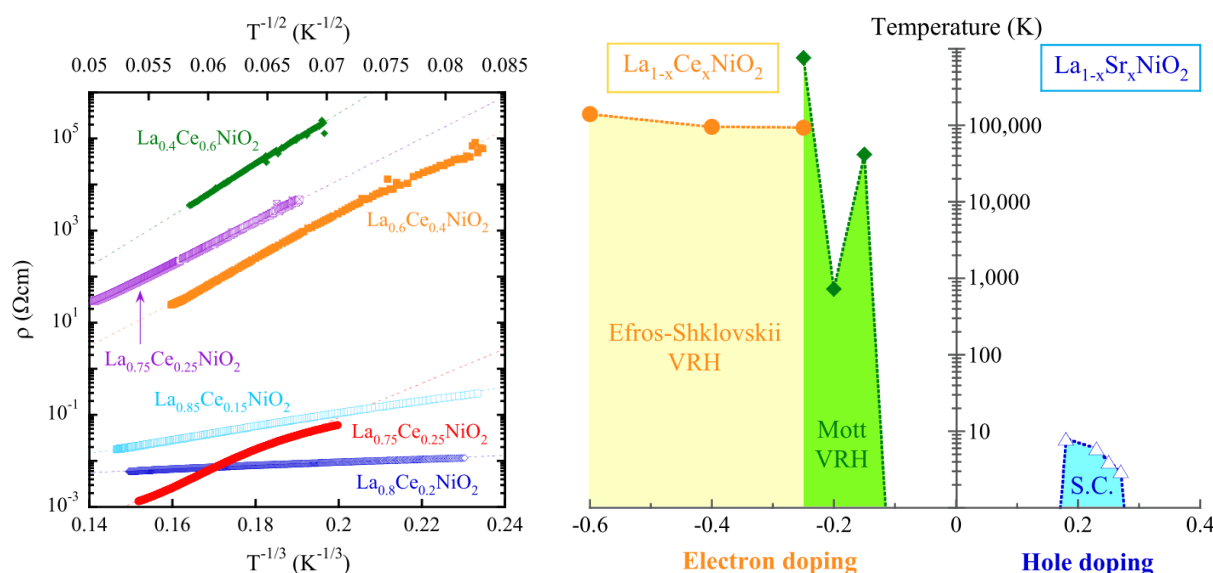
1) D. Li et al., Nature **572**, 624–627 (2019).

Figure 1. (left) Temperature dependence of the electrical resistivity of $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$. The lower horizontal axis is scaled as $T^{-1/3}$ for Mott-VRH, while the upper horizontal axis is scaled as $T^{-1/2}$ for ES-VRH. (right) Phase diagram combining the characteristic temperatures of $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$ in this study and previously reported $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$. The vertical axis represents the characteristic temperatures of each compound, while the horizontal axis corresponds to electron doping and hole doping.

電気二重層トランジスタを用いた $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$ の相制御

Gate control of Phases in $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$ using Electric double-layer transistor

北大工¹ 北大理² ◯(M2)小浦 姿¹, 延兼 啓純², 迫田将仁¹

Hokkaido Univ.¹, ◯Sugata Koura¹, Nobukane Hiroyoshi¹, Masahito Sakoda¹

E-mail: kora.sugata.c9@elms.hokudai.ac.jp

近年、ニッケル酸化物に対し、3 価希土類元素を 2 価の Sr で置換することによって常圧で $T_c = 14 \text{ K}$ の超伝導が確認された[1]。銅酸化物との類似性から、キャリアドーピングに対して対称的に超伝導相が存在することが期待されていた。そこで、私たちのグループでは、 LaNiO_2 に対し La を 4 価希土類元素 Ce で化学置換した。その結果、キャリアドーピングに対して対称的に超伝導相が存在する銅酸化物とは異なり、ニッケル酸化物では電子ドーピングにより、Mott 相及び Efros-Shklovskii 型の電気伝導を示す相があることが確認された。ここで Ce への置換は、系に対してキャリアドーピングに加え、イオン半径の小さい元素へ置換することによる化学圧力の増加の二つの効果を与えてしまう。そこで、純粋なキャリアドーピングのみを行った相探索と制御を目的とした。

今回、私たちは MBE 法を用いて、より結晶性の高い $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_3$ の作製及びその還元に成功し、得られた $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$ を用いて電気二重層トランジスタを作成して、キャリアドーピングを行った。その結果、 $\text{La}_{0.8}\text{Ce}_{0.2}\text{NiO}_2$ に対して -4 V のゲート電圧 V_g を印加することで、図 1 に示すように、正孔ドーピングによる電気抵抗率 ρ の顕著な低下が確認された。これにより、 $\ln \rho \propto T^{-2}$ の抵抗率温度依存性を示していた Efros-Shklovskii VRH タイプの伝導を示す相から、 $\ln \rho \propto T^{-3}$ の抵抗率温度依存性を示す二次元 Mott VRH 相への移行が見られた。当日は、この結果の詳細な分析に加えて、ホール測定によるキャリアドーピングによるキャリア密度変化の評価や、Mott 相にある $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{NiO}_2$ に対する電子ドーピングの結果などについても報告する。

[1] D. Li et al., Nature **572**, 624–627 (2019).

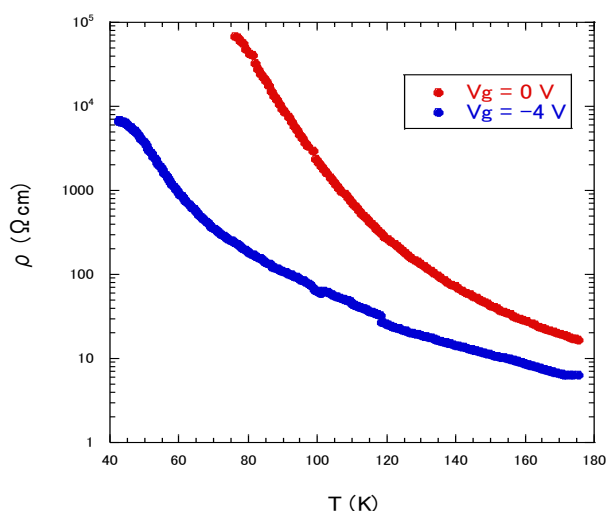


Figure 1. Temperature dependence of the electrical resistivity of $\text{La}_{0.8}\text{Ce}_{0.2}\text{NiO}_2$.

第一原理計算に基づく薄膜 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ における 常圧超伝導に対する理論的解析

Theoretical Analysis of Ambient Pressure Superconductivity in Thin Film $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ Based on First-Principles Calculations

鳥取大工¹, 阪大理², 鳥取大 AMES³

°牛尾 賢生¹, 神山 周², 星 佑人¹, 水野 竜太², 越智 正之², 黒木 和彦²,
榊原 寛史^{1,3}

Fac. of Eng., Tottori Univ.¹, School of Sci., Osaka Univ.², AMES, Tottori Univ.³

°Ushio Kensei¹, Shu Kamiyama², Yuto Hoshi¹, Ryota Mizuno², Masayuki Ochi², Kazuhiko Kuroki²,
Hirofumi Sakakibara^{1,3}

E-mail: M24J3009Y@edu.tottori-u.ac.jp

2023 年にバルク物質の $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ にて転移温度 $T_c \sim 80$ K の超伝導が発見されて以来、興味を持たれている[1]。理論的には、 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ に含まれる 2 層構造の間で強く結合した $d_{3z^2-r^2}$ 軌道が超伝導にとって重要であるとされる[2]。超伝導の実現には 10 ~ 20 GPa 程度の高圧印加が必要であるため、常圧で超伝導転移する同種の物質が発見されれば、実験的測定の自由度が向上し、高温超伝導のメカニズムの解明が進みやすくなる。そのような背景の元、Hwang らのグループが薄膜で $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ を作成し、常圧で $T_c \sim 40$ K 程度の超伝導が報告され、にわかに注目を集めている[3]。彼らの実験では SrLaAlO_4 [SLAO], LaAlO_3 [LAO], $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{TaAlO}_6)_{0.7}$ [LSAT]基板を用いて薄膜を作成しており、そのうち超伝導転移したものは SLAO のみであった。そこで本研究では、超伝導に対する基板の影響について、理論計算を用いて調べた。

方法としては、第一原理バンド計算を用いて結晶構造を決定した。その際、 a, b 軸は基板の格子定数に固定し、 c 軸と原子位置の構造最適化を行った(図 1)。得られた結晶構造に基づき、第一原理バンド計算によって最局在ワニエ軌道[4]を構築することで有効モデルを導出した。得られた模型に対し揺らぎ交換近似[5]を適用して超伝導性を評価した。その結果、薄膜の場合でも論文[2]で指摘されていた $d_{3z^2-r^2}$ 軌道の電子数と T_c の間の強い相関性が改めて確認され、 $s\pm$ 波超伝導が実現する可能性が示された。当日の発表ではギャップ関数やフェルミ面を ARPES 実験の結果[6]との比較し、実験的に観測された結晶構造と理論計算から導いた結晶構造の違いが生み出す効果について議論する予定である。

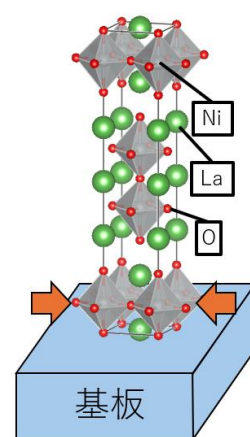


図 1 薄膜の構造最適化

[1] H. Sun et al., Nature **621**, 493 (2023).

[2] H. Sakakibara, N. Kitamine, M. Ochi, K. Kuroki, Phys. Rev. Lett. **132**, 106002 (2024).

[3] E. K. Ko et al., Nature **638**, 935 (2025).

[4] N. Marzari and D. Vanderbilt, Phys. Rev. B **56**, 12847 (1997).

[5] N.E. Bickers, D. J. Scalapino, S. R. White, Phys. Rev. Lett. **62**, 961 (1989).

[6] P. Li et al., Nati. Sci. Rev., nwaf205 (2025).

多量ホールドーブされた無限層ニッケル酸化物の超伝導の可能性に対する理論的解析

Theoretical analysis on the possibility of superconductivity in the heavily hole doped infinite layer nickelate

鳥取大 AMES¹, 阪大理², 島根大総合理工³ ○榊原寛史¹, 水野竜太², 越智正之²,
白井秀知³, 黒木和彦²

AMES, Tottori Univ.¹, School of Sci., Osaka Univ.², Dept. of Applied Phys., Shimane Univ.³

○H. Sakakibara¹, R. Mizuno², M. Ochi², H. Usui³, and K. Kuroki²

E-mail: sakakibara@tottori-u.ac.jp

Ruddlesden-popper 型ニッケル酸化物 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ において $T_c = 80$ K 程度の超伝導転移が報告されて以降、注目を集めている[1]。 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ ではニッケル及び酸素が形成する 2 層平面の間で $d_{3z^2-r^2}$ 軌道が強く結合し、結合バンドと反結合バンドが形成され、両者のバンド端がフェルミ準位に接近している。この状態は incipient band と呼ばれ、バンド間で超伝導ギャップ関数の符号が反転する $s\pm$ 波超伝導が実現している可能性が高い[2]。

一方、北峯らの先行理論研究にて、同様の incipient band を持つ多軌道系において $s\pm$ 波超伝導が実現する可能性が提案されていた[3]。この提案物質ではペロブスカイト型酸化物の頂点酸素を塩素に置換することで、 $d_{x^2-y^2}$ 軌道とそれ以外の d 軌道との結晶場分裂を増大させ、 $s\pm$ 波超伝導が増強されている。対して本研究では、頂点酸素のない無限層構造に着目し、 $s\pm$ 波超伝導の物質設計を目指した。 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_2$ [3] を候補とし、置換率 x が 1 に近い領域（多量のホールがドーブされた領域）では先行研究[4]と同程度の電子数となるため、 $s\pm$ 波超伝導が増強されると考えた[5]。

方法として、第一原理バンド計算及び多体電子のモデル計算を用いて超伝導の傾向を評価した。まず結晶構造最適化計算を用いて最安定の結晶構造を決定した(Fig. 1)。薄膜を成長させる基板はバルク構造の格子定数と比較的近い SrTiO_3 , LSAT, LaAlO_3 のものを仮定し、 a 軸長を基板の値に制限しつつ c 軸長のみ構造緩和にて決定した。また、第一原理フォノン計算を用いて結晶構造の動的安定性を評価し、想定した全てのパターンが安定であることを確認した[5]。決定した構造から最局在ワニエ軌道法を用いて有効モデルを導出し、揺らぎ交換近似と呼ばれる多体効果の計算手法を適用することで T_c の理論指標である λ の値を計算した(Fig. 2)。ドーブ量に対する変化の解析から、 $x=0.4\sim 0.8$ 程度の

ドーブ量で $s\pm$ 波超伝導が増強される可能性を見出した。当日は各軌道の効果やギャップ構造の詳細について議論する。

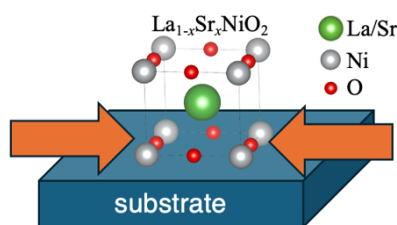


Fig. 1: Schematic figure of the thin film on substrates.

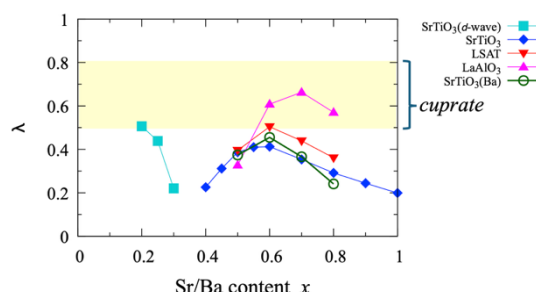


Fig. 2: The eigenvalue of Eliashberg equation against substitution ratio x .

[1] H. Sun et al., Nature **621**, 493 (2023).

[2] H. Sakakibara, N. Kitamine, M. Ochi, and K. Kuroki, Phys. Rev. Lett. **132**, 106002 (2024).

[3] N. Kitamine, M. Ochi, K. Kuroki, Phys. Rev. Res **2**, 042032 (2020).

[4] M. Osada et al., Adv. Mater. **33**, 2104083 (2021).

[5] H. Sakakibara, R. Mizuno, M. Ochi, H. Usui, K. Kuroki, arXiv:2407.21461 (2024), to be published.

T'構造を持つ一層型ニッケル酸化物の 構造安定性の検証と超伝導の可能性

Theoretical investigation on the structural stability of T' single-layer nickel oxide and the possibility of superconductivity

鳥取大工¹, 阪大理², 鳥取大 AMES³ ○(M2)中岡大輝¹, 星佑人¹, 栗田薫¹, 黒木和彦², 榊原寛史^{1,3}

Faculty of Eng., Tottori Univ.¹, Dept. of Phys., Osaka Univ.², AMES, Tottori Univ.³

○Daiki Nakaoka¹, Yuto Hoshi¹, Kaoru Kurita¹, Kazuhiko Kuroki², Hirofumi Sakakibara^{1,3}

E-mail: m24j3037h@edu.tottori-u.ac.jp

Bednorz と Muller により発見された La_2CuO_4 を母物質とする超伝導体[1]の発見を皮切りに、多くの銅酸化物高温超伝導体が発見された。 La_2CuO_4 はモット絶縁体だが、適切にキャリア量を調節することで超伝導へ転移する。特に Ln_2CuO_4 (Ln : ランタノイド) は、図 1 (a)のような T 構造 (K_2NiF_4 構造) と図 1 (b)のような T' 構造 (Nd_2CuO_4 構造) を持つことが知られている[2]。Ln サイトのイオン半径制御により T 構造または T' 構造のどちらかが実現し、適切なキャリアドープにより両方で超伝導へ転移する。一方、周期表上 Ni は Cu の直ぐ隣に位置するが、近年無限層系や二層系のニッケル酸化物超伝導体が発見され、盛り上がりを見せている。そこで本研究では、一層型ニッケル酸化物 Ln_2NiO_4 の超伝導の可能性に着目した。しかし、 La_2NiO_4 の T 構造は超伝導を示さない[3]。そのため本研究では、 La_2NiO_4 の T' 構造について超伝導の可能性を解析した。これは、頂点酸素がないという共通点を持つ無限層系 LaNiO_2 について、その多量ホールドープ領域と似た電子状態になっている[4]。また、La を置換しイオン半径を変更した T' 構造 Ln_2NiO_4 (Ln =ランタノイド) について、結晶構造の動的安定性について解析を行った。

方法として、第一原理計算ソフトの Quantum Espresso[5]と phonopy[6,7]を用いてフォノン計算を行い、構造安定性を評価した。さらに、Wannier90[8]を用いて、対象物質の有効モデルを構築した。また、RESPACK[9]を用いて電子間相互作用の値を計算した。これらのパラメータを用いて多体電子の運動シミュレーション計算(揺らぎ交換近似[10])を実行し、超伝導について定性的に評価した。当日の発表では、T' 構造 Ln_2NiO_4 の構造安定性と incipient band[4,11]による超伝導増強シナリオについて、両者の可能性を議論する。

- [1] J. G. Bednorz and K. A. Muller, Z. Phys. B **64**, 189 (1957).
- [2] H. Okada, M. Takano, Y. Takeda, Physica C **160**, 111 (1990).
- [3] K. Nakajima et al., J. Phys. Chem. Solids **60**, 1083(1999).
- [4] H. Sakakibara et al., arXiv: 2407.21461 (2024).
- [5] P. Giannozzi et al., J. Phys.: Condens. Matter **21**, 395502 (2009).
- [6] A. Togo et al., J. Phys. Condens. Matter **35**, 353001-1-22 (2023)
- [7] A Togo, J. Phys. Soc. Jpn., **92**, 012001-1-21 (2023).
- [8] A. Mostofi et al., Comput. Phys. Commun. **185**, 2309 (2014).
- [9] K. Nakamura et al., Compt. Phys. Commun. **261**, 107781 (2021).
- [10] N. E. Bickers et al., Phys. Rev. Lett. **62**, 961 (1989).
- [11] N. Kitamine et al., Phys. Rev. Res. **2**, 042032 (2020).

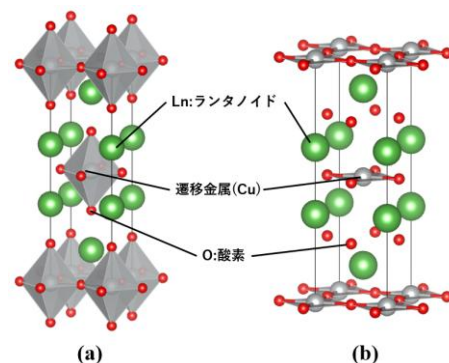


図 1 : Ln_2CuO_4 (Ln : ランタノイド) の結晶構造
(a) : T 構造 (K_2NiF_4 構造)
(b) : T' 構造 (Nd_2CuO_4 構造)

FLEX と QSGW 法の組み合わせを用いた 層状パラジウム化合物の軌道空間二層超伝導に対する理論解析

Theoretical analysis of orbital-space superconductivity in layered palladium compounds using
the combination of FLEX and QSGW method

鳥取大院工¹, 阪大理², 鳥取大 AMES³, [○](M2)星 佑人¹, (M2)牛尾 賢生¹, 黒木 和彦², 榊原 寛史³

Grad. Sch. Eng., Tottori Univ.¹, Dept. Phys., Osaka Univ.², AMES, Tottori Univ.³,

[○]Yuto Hoshi¹, Kensei Ushio¹, Kazuhiko Kuroki², Hirofumi Sakakibara³

E-mail: m24j3050b@edu.tottori-u.ac.jp

2023 年に、高圧条件下のルドルスデンポッパー型二層ニッケル酸化物 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ にて $T_c \sim 80\text{K}$ の超伝導が報告[1]されて以来、ニッケル酸化物超伝導体に注目が集まっている。この物質では、面間酸素を介して縦に繋がるニッケル原子の $3d_{z^2}$ 軌道が強く結合しており、それらが結合・反結合軌道の分裂を起こすことで超伝導に有利とされる incipient band というバンド構造が形成されている。これに対して Fig. 1 のように、別種類のバンドであっても同様のバンドを形成できれば、高い T_c が期待されるという理論的な先行研究[2]がある。 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ に代表される実空間二層モデル(RSBM)に対して、我々はこれを軌道空間二層モデル(OSBM)と呼ぶ。本研究では OSBM の候補物質として、 $\text{Ba}_2\text{PdO}_2\text{Cl}_2$ [3]と La_2PdO_4 [4]について理論解析を行った。

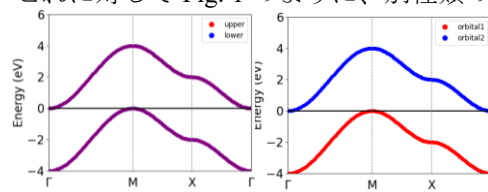


Fig.1 Incipient bands in RSBM (left) and OSBM (right)

はじめに、結晶構造最適化計算により理論上の最安定構造を決定した。両物質は全スピン量子数 $S = 0$ のバンド絶縁体であり、本研究ではこれを母体として OSBM の実現を目指す、そのためにはフェルミ準位近傍の高精度評価が求められる。そこで、乱雑位相近似に基づき、正確な独立準粒子描像を計算する手法である QSGW 法[5, 6]を用いた。次に、得られたバンドをもとにパラジウム原子の $4d$ 軌道を用いた有効模型を導出した。最後に、揺らぎ交換近似(FLEX)[7]を有効模型に適用することで電子多体計算を行い、線形化エリアシュベルグ方程式から T_c の指標である固有値 λ を導出した。

得られたバンド構造を Fig. 2 に示す。PBE-GGA[8]と比較して、QSGW 法によって両母物質とも QSGW 法によってバンド絶縁体であることが示された。また、 λ は原子置換量 1% による電子ドーピングでピークを取ることがわかった。本研究では、超伝導を高精度に予想する手法として、QSGW 法を用いた精密な電子状態の導出と

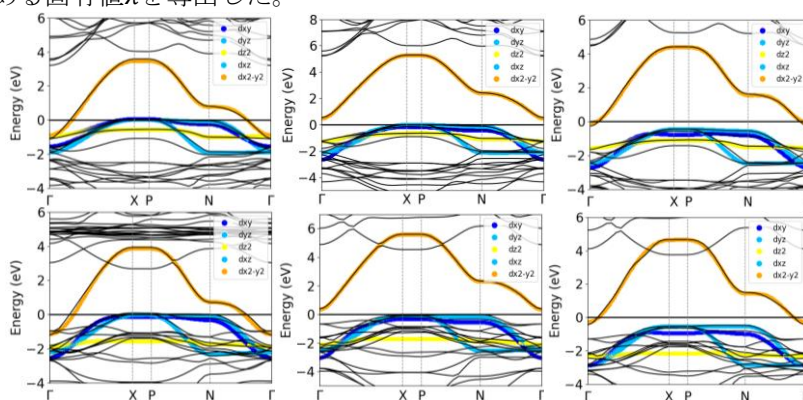


Fig.2 Band structures of $\text{Ba}_2\text{PdO}_2\text{Cl}_2$ (top row) and La_2PdO_4 (bottom row).
From left to right: GGA, QSGW (parent material), and QSGW (electron-doped).

FLEX 近似による超伝導の理論的評価の組み合わせの有効性を明らかにした。今後は、他の OSBM の候補物質を探索する予定である。

- [1] H. Sun *et al.*, Nature **621**, 493 (2023).
- [2] N. Kitamine *et al.*, Phys. Rev. Res. **2**, 042032 (2020).
- [3] Y. Tsujimoto *et al.*, Chem. Commun. **50**, 5915 (2014).
- [4] S. Sibaaki, I. Terasaki, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 024705 (2006).
- [5] T. Kotani, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 094711 (2014).
- [6] A first-principles electronic-structure suite based on the PMT method, ecalj package, is freely available at <https://github.com/tkotani/ecalj>.
- [7] N. E. Bickers, D. J. Scalapino, and S. R. White, Phys. Rev. Lett. **62**, 961 (1989).
- [8] J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. **77**, 3865 (1996).

非線形フォノンクスによるニッケル系超伝導体 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ の 光構造制御に向けた理論予測

Theoretical study on optical control of the crystal structure
of nickelate superconductor $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ via nonlinear phononics

阪大理 神山周, 金子竜也, 黒木和彦, 越智正之

University of Osaka, Shu Kamiyama, Tatsuta Kaneko, Kazuhiko Kuroki, Masayuki Ochi

E-mail: kamiyama@presto.phys.sci.osaka-u.ac.jp

本研究では、2層ニッケル系超伝導体 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ [1-4] の結晶構造に対する光制御について理論的に考察した。 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ は圧力下において高い温度 ($T_c \sim 78\text{K}$) で超伝導を示すことが発見されたが[2]、圧力を加えた際に結晶構造が正方晶に変化することから、結晶構造と超伝導発現に相関があることが示唆されている[4]。 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ の結晶構造は、2層の NiO_2 面が面間の酸素を介して結合しており、常圧で歪んだ Ni-O-Ni 結合が圧力下で直線的となることが知られている[2]。

光を用いて結晶構造を制御するための技術として「非線形フォノンクス」という枠組みを用いた研究が近年進められている[5,6]。非線形フォノンクスでは、光によって格子振動を起こし、フォノンモード間の相互作用によって生じる非調和な振動を誘起することで、結晶構造に時間平均的な変化を生むことができる[6]。このような技術は結晶構造が物性に及ぼす影響の理解につながり、対象となる現象の基礎メカニズムの解明や、新たな物性の光誘起の指針となることが期待される。

我々はまず、第一原理計算より $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ のフォノンモードを計算し、さらに非線形フォノンクスで重要となる異なるモード間の結合係数を計算した。求めたフォノン間相互作用をもとに、格子振動の運動方程式を数値計算することで、光によって誘起される結晶構造の変化を評価した。特に、得られた振動を解析することで結合角の平均変化を見積もった。フォノンモードの組み合わせは多数あるが、その中で歪みが緩和する方向にはたらく組み合わせを分析して探し出した。その結果、光によって励起させる IR モードを適切に選択すれば、面間の Ni-O-Ni 結合角がわずかに直線状に変化することがわかった[7]。本研究の結果は $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ の光照射による結晶構造制御の方法を提案したものとなっている。

[1] M. Nakata, D. Ogura, H. Usui, K. Kuroki, Phys. Rev. B **95**, 214509 (2017).

[2] H. Sun *et al.*, Nature **621**, 493 (2023).

[3] H. Sakakibara, N. Kitamine, M. Ochi, K. Kuroki, Phys. Rev. Lett. **132**, 106002 (2024).

[4] L. Wang *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **146**, 7506 (2024).

[5] R. Mankowsky *et al.*, Nature **516**, 71 (2014).

[6] A. S. Disa *et al.*, Nat. Phys. **17**, 1087 (2021).

[7] S. Kamiyama, T. Kaneko, K. Kuroki, M. Ochi, arXiv: 2501.11377.

2 枚層ニッケル酸化物 $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜における 電子状態のエピタキシャル歪み依存性

Strain Effects on the Electronic State in the Bilayer Nickelate Thin Film of
 $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_{7-\delta}$

上智大理工¹, KEK 物構研²

○(M2) 森田 航太¹, 岡部 博孝², 中村 惇平², 桑原 英樹¹, 門野 良典², 足立 匡¹

Sci. and Technol., Sophia Univ.¹, KEK-IMSS²

○Kota Morita¹, Hirotaka Okabe², Jumpei G. Nakamura², Hideki Kuwahara¹, Ryosuke Kadono²,
Tadashi Adachi¹

E-mail: k-morita-1s7@eagle.sophia.ac.jp

【緒言】単位格子に 2 枚の NiO_2 面を有する $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ のバルク試料において、18.5 GPa の高圧下で $T_c \sim 80$ K の超伝導が観測された[1]。また、ab 面内方向に約 2 % の圧縮歪みが加わる LaSrAlO_4 基板上に作製された $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_7$ ($x=0.15$) の薄膜において、常圧下で $T_c \sim 40$ K の超伝導が報告された[2]。これは基板からのエピタキシャル歪みが重要な役割を果たすことを示唆している。理論計算では超伝導電子対が NiO_2 面間で形成され、 $s_{\pm}$ 波の電子対対称性が提案されており[3]、銅酸化物や無限層ニッケル酸化物とは異なる超伝導発現機構の可能性がある。前回我々は、パルスレーザー堆積(PLD)法で作製した $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_{7-\delta}$ ($x=0$) の薄膜試料における電気抵抗率の測定から、約 1 % の ab 面内伸張歪みが加わった $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}\text{-(SrAl}_{0.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_3)_{0.7}$ (LSAT) 基板上の薄膜では半導体的な振る舞いであるのに対し、約 1.2 % の ab 面内圧縮歪みが加わった LaAlO_3 (LAO) 基板上の薄膜では金属的であることを報告した[4,5]。今回は、電子状態に対する基板からのエピタキシャル歪みの影響をさらに調べるため、 $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_{7-\delta}$ の薄膜試料の作製を試みた。

【実験】 $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_{7-\delta}$ の薄膜は、Nd:YAG レーザーの第 3 高調波(波長 355 nm)を用いた PLD 法により、LAO と LSAT 基板上に作製した。基板温度を 600–980°C、レーザーエネルギー密度を 1.3–5.1 J/cm²、酸素分圧を 5–40 Pa の範囲で変化させて薄膜を作製した。

【結果・考察】基板温度 715°C、酸素分圧 15 Pa、レーザーエネルギー密度 3.8 J/cm² で LAO、LSAT 基板上に作製した $\text{La}_{3-x}\text{Pr}_x\text{Ni}_2\text{O}_{7-\delta}$ ($x=0$) 薄膜における電気抵抗率から、伸張歪みを受けた LSAT 上の試料よりも、圧縮歪みを受けた LAO 上の試料の方が電気抵抗率が小さく、基板からの圧縮歪みが電気伝導性の向上に寄与していることが分かった。すなわち、ab 面内圧縮歪みがバルク試料の静水圧[1]と同等の役割を担っていることを示唆している。講演では Pr を置換した結果についても述べる。

参考文献：

- [1] H. Sun *et al.*, Nature **621**, 493 (2023).
- [2] G. Zhou *et al.*, Nature **640**, 641 (2025).
- [3] H. Sakakibara *et al.*, Phys. Rev. Lett. **132**, 106002 (2024).
- [4] 森田 航太 他, 第 72 回応用物理学会春季学術講演会, 14p-K206-8 (2025).
- [5] K. Morita *et al.*, to be submitted.

三層構造を有するニッケル酸化物 $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ における 圧力誘起超伝導の酸素量依存性

Pressure-induced superconductivity in trilayer nickelate $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ with different oxygen treatment

物材機構¹, 筑波大², 同志社大³ ○(M2) 永田 響^{1,2}, 櫻井 裕也¹, 松本 凌¹,
寺嶋 健成¹, 廣瀬 圭祐³, 太田 寛人³, 加藤 将樹³, 高野 義彦^{1,2}

NIMS¹, Univ. of Tsukuba², Doshisha Univ.³, ○Hibiki Nagata^{1,2}, Hiroya Sakurai¹, Ryo Matsumoto¹,
Kensei Terashima¹, Keisuke Hirose³, Hiroto Ohta³, Masaki Kato³, and Yoshihiko Takano^{1,2}

E-mail: NAGATA.Hibiki@nims.go.jp

2023年に、2層の NiO_2 面を持つ層状ニッケル酸化物 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_{7+\delta}$ が約14 GPaの高圧力で T_c (超伝導転移温度) ≈ 80 Kの超伝導を示すことが報告され、注目を集めている[1]。我々は同物質において酸素量と物性の関係に着目し、酸素欠損が超伝導を著しく抑制することを明らかにした[2]。さらに、3層の NiO_2 面を持つ $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ においても圧力下で超伝導を示すことを発見した[3]。この試料は、通常の固相反応で合成すると $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_{7+\delta}$ の intergrowth を含んでしまうが、高压酸素(O_2 -HIP)処理を施すことで $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ の純良試料が得られることを我々は見出した[4]。本研究では、この純良試料を用いて酸素量を制御した $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ を合成し、超伝導特性と酸素量の関係を検討した[5]。

試料は固相反応法と O_2 -HIP処理により合成した。固相反応で得られた試料を O_2 -HIP処理(酸素分圧400気圧・1200℃で1時間)し、 $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10.04}$ を得た。同試料を O_2 気流中及びAr気流中でアニールし、酸素量を減らした $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{9.98}$ 及び $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{9.93}$ を得た。また、異なる条件で O_2 -HIP処理(酸素分圧300気圧・600℃で2時間)し、 $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{9.99}$ を得た。圧力下抵抗測定は電極付き diamond anvil cell [6]を用いた。

Fig. 1に $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ の T_c の圧力依存性を示す。 $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10.04}$ では超伝導が発現する圧力(P_c)は20.2 GPaで、 T_c は加圧とともに急激に上昇し、48.0 GPaで $T_c^{\max} \approx 36$ Kに達した。酸素量を減らした $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{9.98}$ では、 $T_c^{\max}$ が7 Kまで減少した。一方で、更に酸素量を減らした $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{9.93}$ では、 $T_c^{\max}$ は24 Kまで上昇した。また、高压酸素処理の条件が異なる $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{9.99}$ では、 P_c は32.8 GPaと $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10.04}$ より高く、 T_c は加圧とともに徐々に上昇し、79.2 GPaで $T_c^{\max}$ は23 Kであった。Fig. 2に40 GPa近傍での $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ の T_c の酸素量依存性を示す。 $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ の T_c は僅かな酸素量の違いで大きく変化した。また、化学量論比付近で T_c が低下する点で $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_{7+\delta}$ とは異なる振る舞いを示した。今後は、酸素量が超伝導特性に与える影響について、局所構造解析などを用いたミクロな視点で考察していく予定である。

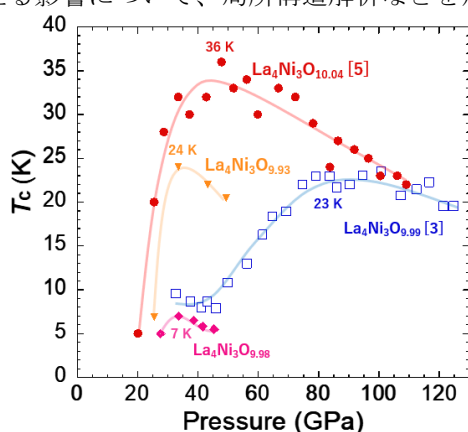


Figure 1. Pressure dependence T_c of $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$. The lines are guides to eye.

[1] H. Sun et al., *Nature* **621**, 493 (2023).

[3] H. Sakakibara et al., *Phys. Rev. B* **109**, 144511 (2024).

[5] H. Nagata et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **93**, 095003 (2024).

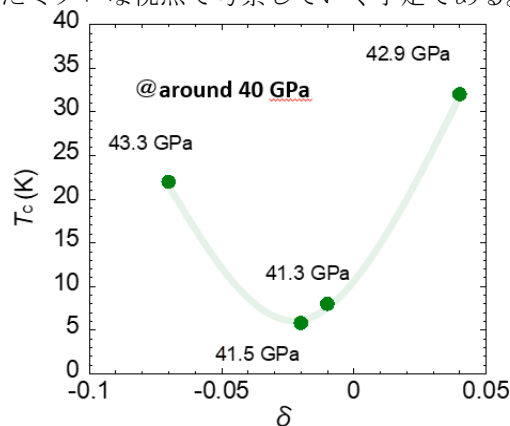


Fig.2. Oxygen content dependence T_c of $\text{La}_4\text{Ni}_3\text{O}_{10+\delta}$ around 40 GPa. The lines are guides to eye.

[2] Y. Ueki et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **94**, 013703 (2024).

[4] H. Sakurai et al., 第72回応用物理学会春季学術講演会シンポジウム T17

[6] R. Matsumoto et al., *Rev. Sci. Instrum.* **87**, 076103 (2016).

ホウ素ドーパダイヤモンド電極を有する DAC を用いた La ドープ $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ の高圧力下電気抵抗測定

Electrical Transport Measurements of La-doped $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ under high pressure using DAC with Boron-doped Diamond Electrodes

物材機構¹, 筑波大², 山梨大³ ○(M1) 榎田 英治^{1,2}, 長尾 雅則³,

永田 響^{1,2}, 松本 凌¹, 高野 義彦^{1,2}

NIMS¹, Univ. of Tsukuba², Univ. of Yamanashi³, °Eiji Hitsuda^{1,2}, Masanori Nagao³,

Hibiki Nagata^{1,2}, Ryo Matsumoto¹, Yoshihiko Takano^{1,2}

E-mail: HITSUDA.Eiji@nims.go.jp

2023 年、高圧力下の $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ が液体窒素温度を超える 80K の高温超伝導を示すことが報告され、大きな注目を集めている[1]。 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ は、一般式 $\text{La}_{n+1}\text{Ni}_n\text{O}_{3n+1}$ で表される Ruddlesden-Popper 結晶相の $n=2$ に相当し、正方格子の NiO_2 面を二層有する層状ニッケル酸化物である。常圧力下の $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ は、Ni-O-Ni 角が歪んだ斜方晶構造であり、20GPa 程度の圧力下で正方晶構造へと結晶相転移することが、高温超伝導の発現にとって重要であると考えられている[1]。我々は、高温超伝導ニッケル酸化物の類縁物質探索の一環として、常圧力下で正方晶構造を持つ、すなわち高温超伝導 $\text{La}_3\text{Ni}_2\text{O}_7$ と同型構造の $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ に注目した。 $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ は絶縁体であることが知られているが、キャリアドーピングにより金属化することができれば、高温超伝導体の候補となりうる。本研究では、Sr サイトを La で置換した $\text{Sr}_{3-x}\text{La}_x\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ を育成し、その物性を評価した。

$\text{Sr}_{3-x}\text{La}_x\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ の単結晶は、 $x=0.15$ の仕込み組成において、フラックス法により育成した。試料の組成分析にはエネルギー分散型 X 線分光法を用いた。同一の試料ロットから La ドープ量が異なる $x=0.11$ と $x=0.10$ の 2 つ単結晶をピックアップした。Fig. 1(a)に示すホウ素ドーパダイヤモンド(BDD)から成る電極を有するダイヤモンドアンビルセル(DAC)[2]に封入し、様々な圧力下での電気抵抗の温度依存性を測定した。BDD 電極の微細加工は、電子線リソグラフィーと化学気相成長法を組み合わせた選択成長を用いて行った。

Fig. 1(b)に、 $x=0.11$ の試料における電気抵抗の温度依存性を示す。本試料は、測定した全ての圧力範囲において半導体的な電気抵抗の温度依存性を示した。電気抵抗は、圧力の印加に伴い 24.9GPa までは急激に減少したが、29.6GPa 以上の圧力領域では緩やかな上昇に転じた。また、高圧力領域においては、電気抵抗の温度依存性が小さくなることが確認された。Fig. 1(c)は、ノンドープ ($x=0$) および $x=0.10, 0.11$ の試料について、300 Kにおける電気抵抗の圧力依存性を比較したものである。ノンドープの試料は圧力印加による電気抵抗の変化は観測されなかった。一方で、La をドーピングした両試料は、約 15GPa までは圧力の増加に伴い電気抵抗が急激に減少したが、それ以上の圧力では電気抵抗が飽和傾向を示した。これらの電気抵抗は、ノンドープ $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ の高圧力下の電気抵抗と比較して非常に小さく、La ドープが電気抵抗の低減に寄与していると考えられる。今後は、La ドープ量と電気抵抗の関連性について議論する予定である。

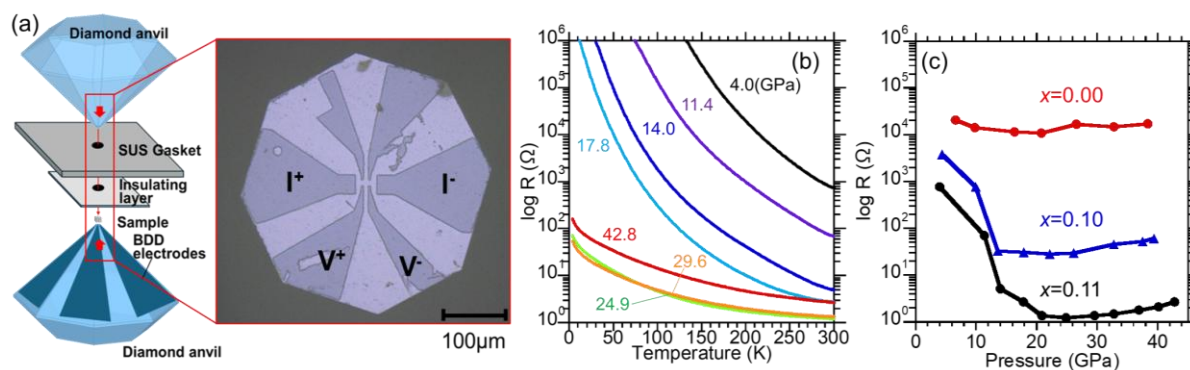


Figure 1. (a) The schematic image of the DAC and a sample image on the BDD electrodes. (b) Temperature dependence of resistance of $\text{Sr}_{3-x}\text{La}_x\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ ($x=0.11$). (c) Pressure dependence of resistance of $\text{Sr}_{3-x}\text{La}_x\text{Co}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ ($x=0.11, 0.10$) at 300K.

[1] H. Sun et al., Nature, 621, (2023), 493-498.

[2] R. Matsumoto et al., Rev. Sci. Instrum, 87, (2016), 076103.

(Ba_{1-x}Sr_x)₃Fe₂O₅Cl₂ の結晶構造**Crystal structure of (Ba_{1-x}Sr_x)₃Fe₂O₅Cl₂**

筑波大院¹, 物材機構², 国立陽明交大³, [○](M2)岡 駿佑^{1,2}, 蘇 兆璋^{2,3}, 櫻井 裕也²,
松本 凌², 辻井 直人², 寺嶋 健成², 林 俊源³, 高野 義彦^{1,2}

Univ. of Tsukuba¹, NIMS², National Yang Ming Chiao Tung Univ.³, [°]Shunsuke OKA^{1,2},

Jhao-Wei SU³, Hiroya SAKURAI², Ryo MATSUMOTO², Naohito TSUJII², Kensei TERASHIMA²,

Jiunn-Yuan LIN³ and Yoshihiko TAKANO^{1,2}

E-mail: OKA.Shunsuke@nims.go.jp

Ruddlesden-Popper(RP)相である La₃Ni₂O₇, La₄Ni₃O₁₀ が高圧力下で高温超伝導を示すことが注目されている^{[1][2][3]}。我々は前回、春季学術講演会において、超伝導発現が予測されている新物質 Sr₃Ni₂O₅Cl₂^[4]とその関連物質 Sr₂NiO₂Cl₂の合成方法、結晶構造および高圧下での電気抵抗の温度依存性を発表した^{[5][6]}。これらの物質はともに RP 相の酸塩化物である。今回我々は前者の結晶構造の一般的な特徴と安定性を調べるべく、(Ba_{1-x}Sr_x)₃Fe₂O₅Cl₂の合成条件と結晶構造の関係を調べた。この物質では Fe は 3 価で 3d⁵ 電子配置であるため Jahn-Teller 効果は生じない。Sr₃Fe₂O₅Cl₂は空間群 *I4/mmm* の正方晶で理想的な RP 相の結晶構造であるが^[7]、Ba₃Fe₂O₅Cl₂は FeO₄四面体を含む空間群 *I213* の立方晶となる^[8] (Figure 1)。

(Ba_{1-x}Sr_x)₃Fe₂O₅Cl₂となる組成で Sr₂Fe₂O₅, Ba₂Fe₂O₅, SrCl₂, BaCl₂, Fe₂O₃を混合し、Ar 中 800 °C から 1100 °C の温度で焼成して Figure 2 の相図を得た。RP 相(tetragonal)は x=1 の近傍でのみ現れ、幅広い組成の範囲で立方晶が得られた。これはアルカリ土類イオンが少し大きくなるだけで RP 相が急速に不安定になることを示唆している。なお tolerance factor が 1 を超えるのは x=0.6 以下であり、RP 相が不安定になることは tolerance factor からは予想できない。

また、立方晶の Ba₃Fe₂O₅Cl₂を 6 GPa の圧力下 1000 °C に加熱することで RP 相を得た。これは新物質である。高圧下では陽イオンの配位数が増える傾向があり、この物質の場合も常圧相では Fe が 4 配位であるのに対し、高圧相である RP 相では 5 配位ないしは塩素も含めて 6 配位である。講演では結合長などの詳細な結晶構造を示し、Sr₃Fe₂O₅Cl₂の結晶構造と比較することで RP 相の酸塩化物の結晶構造の特徴を明らかにしたい。

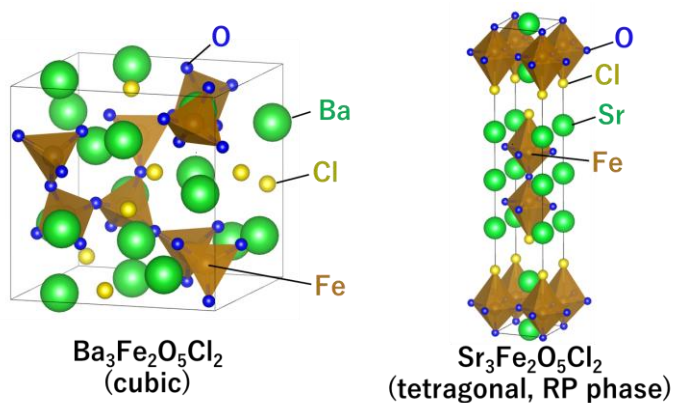


Figure 1. Crystal structures of Ba₃Fe₂O₅Cl₂ and Sr₃Fe₂O₅Cl₂.

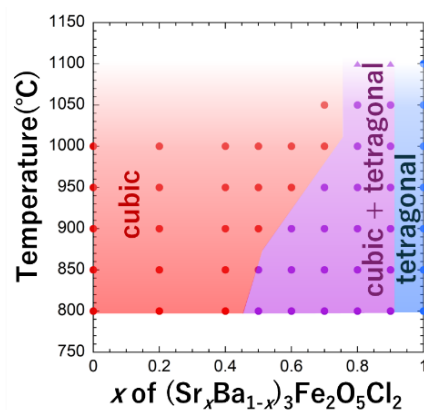


Figure 2. Phase diagram of (Ba_{1-x}Sr_x)₃Fe₂O₅Cl₂.

[1] H. Sun, *et al.* Nature **621** (2023).

[2] Sakakibara, *et al.* Phys. Rev. B **109** (2024).

[3] Nagata, *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. **93**(2024).

[4] K. Yamane, *et al.* Acta Cryst. **C81** (2025) 259-263.

[5] 山根ら, 2025 年第 72 回応用物理学会春季学術講演会. 14a-P05-5.

[6] 岡ら, 2025 年第 72 回応用物理学会春季学術講演会. 14a-P05-6.

[7] W. Leib, *et al.* Z. Anorg. Allg. Chem., **518**(1984) 115-119.

[8] W. Leib, *et al.* Z. Anorg. Allg. Chem., **521**(1985) 51-56.

高圧力印加による軽元素超伝導体 La_2C_3 の特異な T_c 上昇

Anomalous enhancement of T_c in light-element superconductor La_2C_3 using high-pressure application

○松本 凌¹, 吉川 雅章², 川島 健司², 高野 義彦^{1,3}

(1. NIMS, 2. イムラ・ジャパン, 3. 筑波大)

○Ryo Matsumoto¹, Masaaki Yoshikawa², Kenji Kawashima², Yoshihiko Takano^{1,4}

(1. NIMS, 2. IMRA JAPAN Co., Ltd, 3. Univ. of Tsukuba)

E-mail: MATSUMOTO.Ryo@nims.go.jp

水素や炭素、ホウ素などの軽元素から成る化合物は、デバイ振動数が大きいことからフォノン媒介型のBCS超伝導に有利と考えられている。軽元素超伝導体の中でも R_2C_3 ($\text{R} = \text{La}, \text{Y}$) は、空間反転対称性の破れた構造であることやマルチギャップ超伝導であることなどから、多くの研究がなされている[1,2]。 R_2C_3 の T_c は欠損などによるわずかな格子定数の変化で上下し、最大で La_2C_3 では 13 K、 Y_2C_3 では 18 K と高い値が報告されている[3,4]。本研究では、 R サイトのイオン半径が小さいほど T_c が向上することに着目し、 La_2C_3 や Y_2C_3 に高圧力を印加することでより高い T_c への到達を目指した。

La_2C_3 はアーク溶解法、 Y_2C_3 は高温高圧法によりそれぞれ合成した。試料の T_c の圧力変化は、電極付きのDAC[5]を用いた高圧力下での電気抵抗測定を行うことで評価した。

合成した La_2C_3 の T_c は常圧下で 12 K 程度であった。圧力の印加により T_c は劇的に上昇し、Fig. 1(a)の磁場中で測定した電気抵抗の温度依存性が示すように、25.2 GPaの圧力下で22 Kに達した。Fig. 1(b)に La_2C_3 における T_c の圧力依存性を示す。 T_c は 25 GPa 程度で最大となり、さらなる高圧力下では急激に減少した。 MgB_2 をはじめとする多くのBCS超伝導体の T_c は、圧力印加による状態密度の低下に伴って減少することが知られており、 La_2C_3 で観測された T_c の2倍近い上昇は特異である。現状の予備的な第一原理計算では、圧力によってフェルミエネルギー近傍の平坦なバンドの幅が広がり、状態密度が増大したことが T_c 上昇の理由と示唆された。今後は既に正の圧力効果が報告されている Y_2C_3 [6]でも同様の実験を行い、その比較から物性の議論を進めていく。

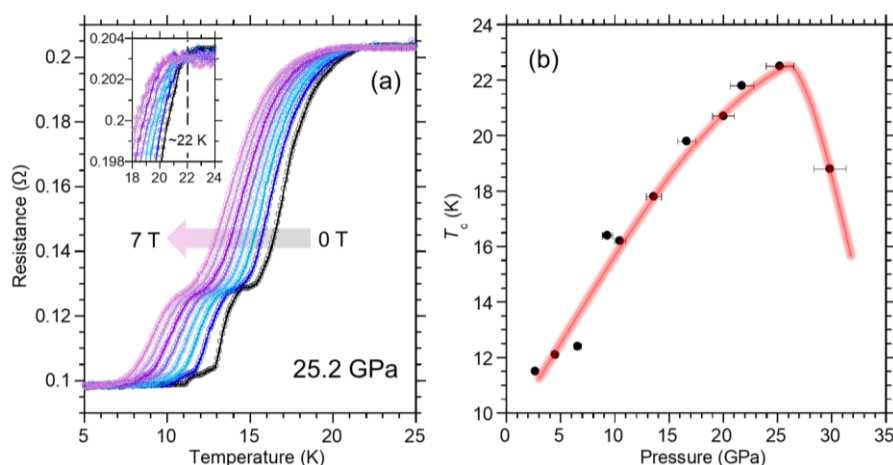


Fig. 1 (a) Temperature dependence of resistance at 25.2 GPa and (b) Pressure dependence of T_c in La_2C_3 .

- [1] H. Q. Yuan et al., J. Phys. Chem. Solid. **72**, 577 (2011). [2] S. Kuroiwa et al., PRL **100**, 097002 (2008).
 [3] J. S. Kim et al., PRB **76**, 014516 (2007). [4] G. Amano et al., JPSJ **73**, 530 (2004).
 [5] R. Matsumoto et al., RSI. **87**, 076103 (2016). [6] 中尾敏臣 他, 第 60 回高圧討論会 3A09 (2019).

基板温度変化による R 面サファイア基板上の Nb 薄膜の特性比較

Comparison of properties of Nb thin films deposited on R-plane

sapphire substrates at various substrate temperatures

防衛大 電気電子 ○(D) 平間 友博, 石黒 康志, 立木 隆

National Defense Academy, °Tomohiro Hirama, Yasushi Ishiguro, Takashi Tachiki

E-mail: ed24007@nda.ac.jp

【はじめに】

テラヘルツ波技術や量子技術に用いられる超伝導デバイスの高性能化を目指し、ジョセフソン接合や伝送線路等を構成する Nb 薄膜の特性向上を行っている。前回、800°C に加熱した R 面と C 面サファイア基板上に Nb 薄膜を DC マグネトロンスパッタにより作製し、特性を比較したところ前者のほうが高い残留抵抗比 (RRR) を示すことを報告した[1]。しかしながら、基板温度が 800°C に至るまでに Nb 薄膜の配向性や表面モフォロジーがどのように変化し、RRR が向上していくかが不明確であった。そこで、本研究では R 面サファイア基板上の Nb 薄膜の成長過程に着目し、基板温度を変えて成膜した Nb 薄膜の表面モフォロジーおよび電気的特性を比較することとした。

【実験および結果】

R 面サファイア基板（フルウチ化学製）を真空チャンバー（到達真空度 8.0×10^{-6} Pa）に導入後、SiC ヒーターにより基板温度 T_s を所望の温度まで昇温し、1 時間保った後、DC マグネトロンスパッタにより膜厚 100 nm で Nb 薄膜を成膜した。Fig. 1 は、 $T_s = 400, 600,$

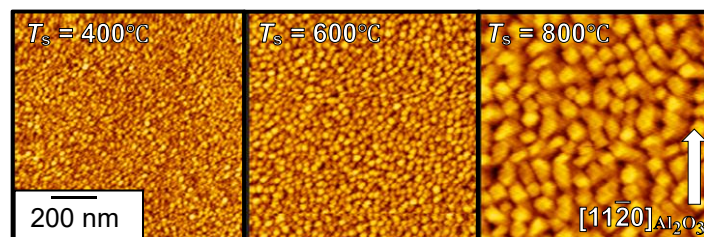


Fig. 1 AFM images of Nb thin films deposited on R-plane sapphire substrates at different substrate temperatures.

800°C で成膜した Nb 薄膜の AFM 像である。同図に示されるように基板温度の上昇とともにグレインサイズが大きくなり、特に 800°C で成膜した場合、グレインは $[11\bar{2}0]_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ 方向に約 45° 傾いた矩形状になった。また、表面粗さ (RMS 値) は、 $T_s = 400, 600, 800^\circ\text{C}$ のとき、それぞれ 0.23, 0.40, 0.93 nm であった。次に、 $2\theta/\theta$ 測定から T_s が 200°C 以下で Nb 薄膜は (001) と (110) の異なる配向が観測されたが、400°C 以上では (001) の単一配向が確かめられ、さらに ϕ スキャン測定から面内配向も確認された。また、抵抗率の温度依存性から見積もられる Nb 薄膜の RRR ($= R(300\text{ K}) / R(10\text{ K})$) は、 $T_s = 400, 600, 800^\circ\text{C}$ に対してそれぞれ 8.1, 27.7, 53.4 であった。

以上より R 面サファイア基板上の Nb 薄膜は、基板温度の上昇に伴って高い配向性と RRR を示すが、今後はデバイスプロセス側の要請（膜平坦性や使用温度）を踏まえた検討が必要である。

【参考文献】

[1] 平間友博他, 第 72 回応用物理学会春季学術講演会 (2025.3) 14a-p05-19.

相が分離した Sn-Pb 合金における磁束トラップの起源の解明

Investigation of Flux Trapping Mechanism in Phase-Separated Sn-Pb Alloy

産総研¹, 都立大理², 東大物性研³, NIMS⁴, 東北大金研⁵

○有馬 寛人¹, 村上 拓海², 木下 雄斗³, Hossein Sepehri-Amin⁴,
徳永 将史³, 野島 勉⁵, 水口 佳一²

AIST¹, Tokyo Metropolitan Univ², ISSP Univ. Tokyo³, NIMS⁴, IMR Tohoku Univ⁵

Hiroto Arima¹, Takumi Murakami², Yuto Kinoshita³, Hossein Sepehri-Amin⁴,

Masashi Tokunaga³, Tsutomu Nojima⁵, Yoshikazu Mizuguchi²

E-mail: h-arima@aist.go.jp

はんだ付けに使われる Sn-Pb 合金は、Pb の超伝導転移温度以下において磁束をトラップする[1,2]。トラップした磁束は磁気的な測定の実験結果に影響を与える可能性があるため、低温での Sn-Pb 合金の扱いには注意が必要なことは低温実験者に共有されてきた。市販の Sn-Pb 合金は Sn 相と Pb 相が相分離しているが、バルクの Sn と Pb は臨界磁場以下で磁束を排除する第一種超伝導体であるため、磁束トラップの起源については疑問が残る。本研究ではその起源を明らかにするために、SQUID 顕微鏡、磁気光学イメージング、磁化・比熱測定の実験を行った。

SQUID 顕微鏡で磁束をトラップした状態の実空間観察より、Sn-Pb 合金中では磁束が量子化されたボルテックスとして存在することが明らかとなった。磁気光学イメージングでは磁束雪崩、磁化測定ではフラックスジャンプが観察されたが、これらの結果は Sn-Pb 合金中に生成されたボルテックスに由来すると考えられる。ボルテックスが生じることは、Pb 相と Sn 相のどちらかは第二種超伝導体であることを示唆する。比熱測定から見積もった Pb の臨界磁場は、バルク Pb のものとおおよそ一致した。さらに磁化測定から得られた $M-H$ 曲線は、Pb の臨界磁場近傍において可逆的な振る舞いを示した。これらの測定より、Pb 相は第一種超伝導体であり、第二種超伝導体相は Sn 相であると結論付けた。Sn-Pb 合金では、多重に連結した超伝導 Pb のネットワーク構造が磁束をトラップすると考えられてきた[3,4]。本研究はその従来の説に対して新たな解釈を提示するものである。本講演では、Sn-Pb 合金における磁束トラップの起源について議論する。

[1] J. D. Livingston, Phys. Rev. **129**, 1943 (1963)

[2] J. D. Livingston, J. Appl. Phys. **34**, 3028 (1963)

[3] J. D. Livingston, and H.W. Schadler, Prog. Mater. Sci **12**, 185 (1963)

[4] J. D. Livingston J. Appl. Phys. **39**, 3836 (1968)

酸化物超伝導体 LiTi_2O_4 への有機分子吸着による輸送特性の変化

Modulation of Transport Properties in Oxide Superconductor LiTi_2O_4 via Organic Molecule Adsorption

沖縄科技大 ○(D) 川口 楓, 岡田 佳憲, 嘉部 量太

Okinawa Inst. Sci. Tech., °Kaede Kawaguchi, Yoshinori Okada, Ryota Kabe

E-mail: kaede.kawaguchi@oist.jp

【緒言】近年、原子層超伝導薄膜の表面への有機分子吸着^[1]や二次元超伝導体の層間への有機分子のインターカレーション^[2]により、その超伝導特性が大きく変化することが報告されている。これらのような有機分子を用いた超伝導状態の制御は、電気二重層トランジスタ (EDLT) などのゲート手法に代わる新しい超伝導デバイスの実現において重要な基盤技術となり得る。しかしながら、原子層薄膜や二次元材料は、大気下での安定性や外部刺激による制御性に乏しく、応用には一歩及ばない。そこで我々は、大気安定かつ電子密度が比較的小さい金属酸化物超伝導体である LiTi_2O_4 に着目した。本研究では、 LiTi_2O_4 の表面に有機半導体分子を吸着させる (Fig. 1) ことで超伝導を含む輸送特性がどのように変化するか調査した。

【実験方法】 LiTi_2O_4 薄膜は、KrF エキシマレーザー ($\lambda = 248 \text{ nm}$) を用いたパルスレーザー堆積 (PLD) 法で MgAl_2O_4 (111) 基板上に成長させた。続いて、その表面に有機半導体分子 (4CzIPN) を真空蒸着より積層し、複合薄膜の輸送特性を直流四端子法により測定した。

【結果と考察】今回成長させた LiTi_2O_4 の膜厚は 100 nm に及ぶにもかかわらず、表面への有機半導体分子吸脱着によって LiTi_2O_4 の超伝導転移が可逆的に消失および回復することを確認した (Fig. 2 inset)。さらに、超伝導臨界温度よりもはるかに高い温度領域 ($> 50 \text{ K}$) にお

いても分子吸着により抵抗特性が大きく変化した (Fig. 2)。このことは、界面での電荷移動などにより、特に結晶粒界近傍で d 電子密度が変化したことに起因すると考えられる。当日は、詳細な輸送特性の結果を含め、界面の電子状態について議論する。

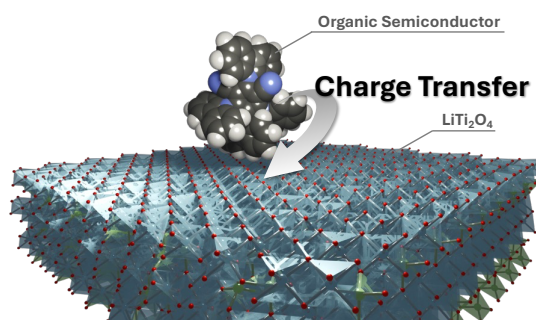


Fig. 1. Schematic illustration of the interfacial charge transfer between the organic semiconductor molecule and LiTi_2O_4 .

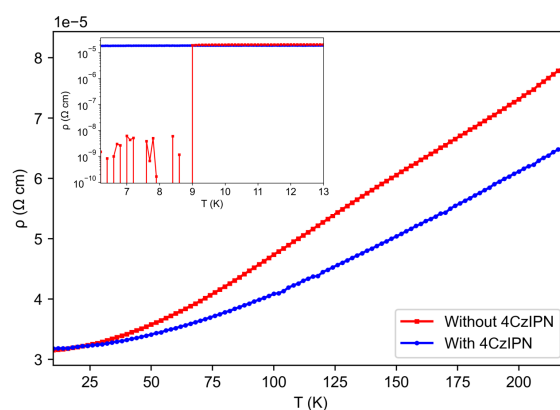


Fig. 2. ρ - T curves of LiTi_2O_4 (100 nm) with and without 4CzIPN molecules (15 nm) deposition. (inset) ρ - T curves at low-temperature region.

[1] J. Guan *et al.* *Phys. Rev. B* **95**, 205405 (2017).

[2] J. Choy *et al.* *J. Mater. Chem.* **9**, 129 (1999).

二次元自己集合化能を有するイオン性分子三脚を用いた 鉄セレンとの挿入複合体形成と超伝導特性

Synthesis and Superconducting Behavior of FeSe Intercalated by an Ionic Molecular Tripod with Two-Dimensional Assembly Properties

科学大総合研究院化生研¹, 科学大物質理工², 科学大総合研究院元素 MDX セ³,
科学大総合研究院 ASMat⁴

○(D1) 吉江 遼大^{1,2}, (M2) 森 啓太^{2,3}, 片瀬 貴義^{2,3}, 庄子 良晃^{1,2,4}, 福島 孝典^{1,2,4}

CLS, Science Tokyo¹, Sch. Mater. and Chem. Tech., Science Tokyo², MDX ES, Science Tokyo³,

ASMat, Science Tokyo⁴, (D1) Ryota Yoshie^{1,2}, (M2) Keita Mori^{2,3}, Takayoshi Katase^{2,3},

Yoshiaki Shoji^{1,2,4}, Takanori Fukushima^{1,2,4}

E-mail: yoshie.r.a373@m.isct.ac.jp

鉄セレン (FeSe) は PbO 型層状構造からなる鉄系超伝導体 (超伝導転移温度 $T_c = 8$ K) であり、その層間にアルカリ金属イオンや有機分子が挿入複合化して層間距離が増大すると T_c が高温側に大きくシフトすることが報告されている^[1]。これまで、FeSe を母体とする挿入複合体において、 T_c と層間距離との関係は詳細に検討されてきた。一方、層間に挿入した有機分子と FeSe 層との相互作用や、それが超伝導特性にどのように影響しているかについては未だ明確ではない。高い自己集合化能力を有する分子を FeSe との挿入複合化に用いれば、構造秩序の高い挿入複合体の形成を通じて、超伝導特性における構造-物性相関を明らかにできる可能性がある。本研究で我々は、高秩序な二次元集合構造を形成するプロペラ型分子である三脚型トリプチセン^[2]を用いて、FeSe との挿入複合化と超伝導特性について検討した。リチウムスルホナート ($-\text{SO}_3\text{Li}$) 基を面選択的に導入した三脚型トリプチセン誘導体 **Tso₃** (Fig. 1a) を、FeSe のリチウムアミド挿入体 $[\text{Li}_x(\text{NH}_2)_y(\text{NH}_3)_{1-y}\text{FeSe}]^{[1]}$ に作用させたところ、層間に三脚型トリプチセンが取り込まれた挿入複合体が得られた (Fig. 1b)。粉末 X 線回折測定により、**Tso₃** の挿入複合体の層間距離は 15.2 Å と見積もられ、FeSe (層間距離 5.3 Å) と比較して顕著に増大していた (Fig. 1b)。本発表では、得られた挿入複合体の構造解析および超伝導特性評価の結果について報告する。

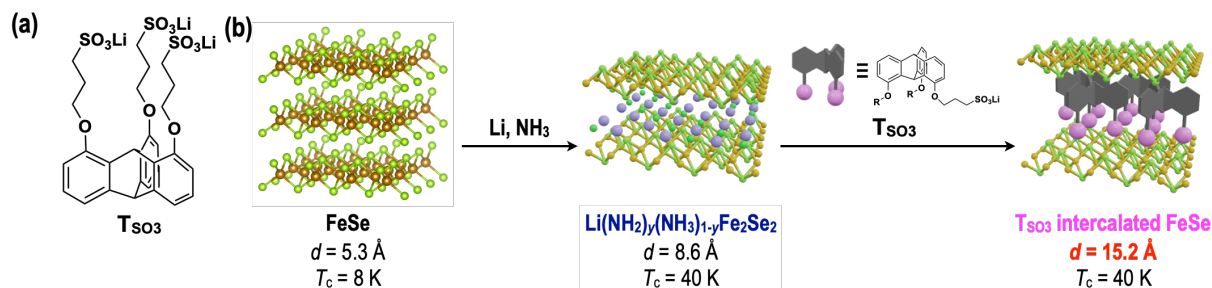


Fig. 1. (a) Chemical structure of **Tso₃** carrying lithium sulfonate groups. (b) Schematic illustration of an intercalation process using $\text{Li}_x(\text{NH}_2)_y(\text{NH}_3)_{1-y}\text{FeSe}$ and **Tso₃**.

[1] S. J. Clarke *et al.*, *Nat. Mater.* **2013**, 12, 15. [2] (a) T. Fukushima *et al.*, *Science* **2015**, 348, 1122. (b) T. Fukushima *et al.*, *Acc. Chem. Res.* **2025**, 58, 312. (c) F. Ishiwari, Y. Shoji, C. J. Martin, T. Fukushima, *Polym. J.* **2024**, 56, 791.

11 Superconductivity Oral presentation : 11.1 Fundamental properties
--

[9a-N404-1~6] 11.1 Fundamental properties

[9a-N404-1]

Study on the effect of Bi/Sr ratio on Bi2212-THz emitters

○Misaki Kobayashi¹, Shogo Hashimoto^{1,2}, Takayuki Matsuda¹, Daiki Matsumaru^{1,2}, Taketo Otsubo¹, Ryo Nishiyama¹, Hiroshi Eisaki², Shigeyuki Ishida², Takashi Mochiku³, Hironori Nakao⁴, Chiharu Mikami¹, Hidetoshi Minami¹, Takanari Kashiwagi^{1,5} (1.Univ. of Tsukuba, 2.AIST, 3.NIMS, 4.PF IMSS KEK, 5.Osaka Metropolitan Univ.)

[9a-N404-2]

Study on fabrication processes of array structure for high-power terahertz wave oscillators using high-temperature superconductor Bi2212 single crystals.

○Taketo Otsubo¹, Yoshihiko Kuzumi¹, Misaki Kobayashi¹, Takayuki Matsuda¹, Daiki Matsumaru^{1,2}, Shogo Hashimoto¹, Ryo Nishiyama¹, Chiharu Mikami¹, Atsuhiko Maeda², Yuichi Kurashima², Hideki Takagi², Hidetoshi Minami¹, Takanari Kashiwagi^{1,3} (1.Univ. of Tsukuba, 2.AIST, 3.Osaka Metropolitan Univ.)

[9a-N404-3]

Design of Magnetic Resonance Observation System Using Terahertz Wave Oscillation by Intrinsic Josephson Junctions

○Daiki Matsumaru^{1,2}, Maruyama Michitaka¹, Takanari Kashiwagi^{2,3} (1.AIST, 2.Univ. of Tsukuba, 3.OMU)

[9a-N404-4]

Optimal structure exploration and implementation of superconducting terahertz sources based on three-dimensional electromagnetic field numerical calculations

○(DC)Ryota Kobayashi¹, Rintaro Mori¹, Itsuhiro Takeya¹ (1.Kyoto Univ.)

[9a-N404-5]

Expanding Scalability of Equivalent Circuit Simulation with Symbolizing Intrinsic Josephson Junction Stacks

○(M2)Rintaro Mori¹, Kobayashi Ryota¹, Takeya Itsuhiro¹ (1.Kyoto Univ.)

[9a-N404-6]

Materials design and fabrication techniques for superconducting FM terahertz emitters

○Manabu Tsujimoto¹, Keitaro Sugimoto², Rintaro Mori², Ryota Kobayashi², Itsuhiro Takeya², Junichiro Kato^{1,3}, Taichirou Nishio³, Shigeyuki Ishida¹, Hiroshi Eisaki¹ (1.AIST, 2.Kyoto Univ., 3.Tokyo Univ. of Science)

Bi/Sr の不定比組成が Bi2212-THz 波発振素子の デバイス特性に及ぼす影響に関する研究

Study on the effect of Bi/Sr ratio on Bi2212-THz emitters

筑波大数理物質¹, 産総研², NIMS³, KEK 物構研 PF⁴, 阪公大 IQMC⁵

○小林未来¹, 橋本翔悟^{1,2}, 松田鷹元¹, 松丸大樹^{1,2}, 大坪健人¹, 西山諒¹,
永崎洋², 石田茂之², 茂筑高士³, 中尾裕則⁴, 三上千春¹, 南英俊¹, 柏木隆成^{1,5}

Univ. of Tsukuba¹, AIST², NIMS³, PF IMSS KEK⁴, Osaka Metropolitan Univ.⁵

○M. Kobayashi, S. Hashimoto, T. Matsuda, D. Matsumaru, T. Otsubo, R. Nishiyama,
H. Eisaki, S. Ishida, T. Mochiku, H. Nakao, C. Mikami, H. Minami, T. Kashiwagi

E-mail: s2520364@u.tsukuba.ac.jp

$\text{Bi}_{2+x}\text{Sr}_{2-x}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) 単結晶は不定比組成 x 、過剰酸素量 δ があり、これらはキャリア数及び結晶性の変化として臨界電流密度(J_c)や超伝導転移温度(T_c)などの諸物性に影響を与える [1]。我々は THz 波発振器の高強度化のための最適な組成や熱処理の条件を得ることを目的に、 x 及び δ が THz 波発振器(Bi2212-THz 波発振器)[2]の発振特性に与える影響について研究している[3-4]。その一環として現在は最適ドーピング量(OP)近傍のデバイス特性を中心に調査してきた。前回及び前々回の学会発表では[5]、仕込値で $x=0.05, 0.15$ とした OP 近傍の結晶を用いて作製した発振素子の発振特性について報告した。これらの組成では若干のアンダードーピング(UD)とすることで明瞭な発振が得られているが、発振出力に関しては、組成依存性がどう影響しているかは明確になっていない。これらの詳細を調査するために、本研究では仕込値で $x=0.10$ とした結晶を用いて $80 \times 400 \mu\text{m}^2$ 程度の発振素子を作製し、その特性を評価した。

Fig.1 に酸素濃度 1000 ppm のガス中で、温度 600°C , 700°C にて熱処理をした結晶を用いて作製した発振素子の 53 K における(a)電流-電圧特性及び(b)検出器(HEB)の応答電圧の素子印加電圧依存性のグラフを示す。電流-電圧特性のヒステリシスや臨界電流値 I_c は熱処理依存性を示しており、電磁波の発生は UD 寄りに調整した 700°C の素子のみから確認した。この傾向は過去の傾向[5]と共通している。ただし、発振強度はそれらに比べ微弱であり、その原因について現在調査を進めているところである。

[1] H. Eisaki *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 064512 (2004).

[2] L. Ozyuzer *et al.*, Science **318**, 1291 (2007).

[3] S. Nakagawa *et al.*, J. Appl. Phys. **133**, 163904 (2023).

[4] M. Nakayama *et al.*, J. Appl. Phys. **135**, 073902 (2024).

[5] 前島ら, 第 84 回応物秋季, 21p-B202-1 (2023).

前島ら, 第 85 回応物秋季, 16a-A35-7 (2024).

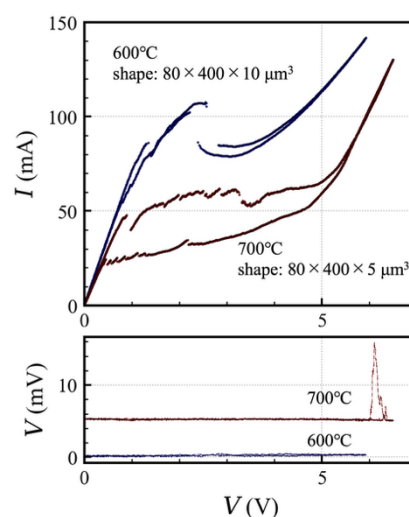


Fig. 1 (a) Current-Voltage characteristics and (b) detector response plotted as a function of applied bias voltages

高温超伝導体 Bi2212 単結晶を用いたテラヘルツ波発振器の 高出力化に向けたアレイ素子作製方法に関する研究

Study on fabrication processes of array structure for high-power terahertz wave
oscillators using high-temperature superconductor Bi2212 single crystals.

筑波大数理物質¹, 産総研², 阪公大 IQMC³

○大坪 健人¹, 葛見 佳彦¹, 小林 未来¹, 松田 鷹元¹, 松丸 大樹^{1,2}, 橋本 翔悟¹, 西山 諒¹,
三上 千春¹, 前田 敦彦², 倉島 優一², 高木 秀樹², 南 英俊¹, 柏木 隆成^{1,3}

Univ. of Tsukuba¹, AIST², Osaka Metropolitan Univ.³

○T. Otsubo¹, Y. Kuzumi¹, M. Kobayashi¹, T. Matsuda¹, D. Matsumaru^{1,2}, S. Hashimoto^{1,2}, R. Nishiyama¹,
C. Mikami¹, A. Maeda², Y. Kurashima², H. Takagi², H. Minami¹, T. Kashiwagi¹

E-mail: s2520351@u.tsukuba.ac.jp

我々の研究グループでは、銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) 単結晶を用いたテラヘルツ波発振器[1]の開発を行っている。この発振器の実用化には 1-2 THz で 1 mW を超える出力が望まれており、現状の素子のさらなる高出力化が必要である。そこで、我々は Bi2212 単結晶を微細加工した結晶チップを複数個並べたアレイ素子による高出力化を試みている。

アレイ素子による高出力化には、チップ同士の協調動作が欠かせない。素子を動作させる際に発生する高周波電流や電磁場の影響により結晶チップ間に相互作用を発生させることで、高出力化が期待できる。そのためには、結晶チップの配置（チップ同士の間隔、位置関係）を高い寸法精度で制御する技術が必要である。これまでの学会発表では、金属薄膜を介したサファイア基板と Bi2212 単結晶の接合技術の導入[2]、結晶チップの間隔を制御したアレイ素子の作製プロセスの確立を報告した[3]。本研究では、この素子の最近の開発状況を報告する。

Fig.1 に、上記の手法で作製したアレイ素子の内の一つの素子($80 \times 400 \mu\text{m}^2$)について測定した電流-電圧特性(IVCs)とホットエレクトロンボロメーター(HEB)からの応答電圧の結果を示した。IVCs では、温度依存性を示す明瞭なヒステリシスが確認できた。また、HEB の応答電圧より 40-50 K において電磁波の発振が得られた。応答電圧の最大値は 50 K において確認され、周波数は 0.45-0.48 THz であった。当日は、作製した素子の発振特性の詳細や加工における技術的課題に対する現在の取り組みについて議論する。

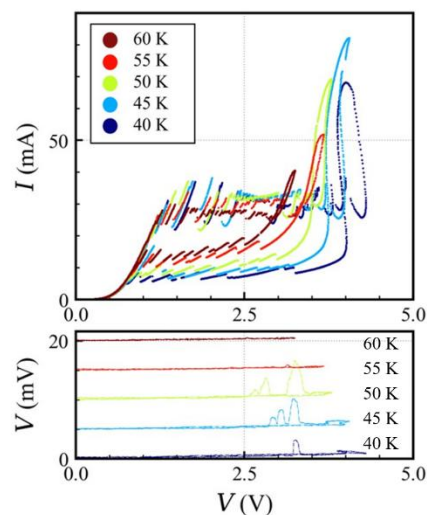


Fig.1 Temp. dependence of IVCs
and emission intensities
detected by the HEB

[1] L. Ozyuzer *et al.* Science **318**, 1291 (2007).

[2] 柏木ら, 第 68 回 応用物理学会 春季学術講演会 [17a-Z20-3] (2021)

[3] 葛見ら, 第 85 回 応用物理学会 秋季学術講演会 [16a-A35-2] (2024)

固有ジョセフソン接合によるテラヘルツ波発振を用いた 磁気共鳴観測システムの設計

Design of Magnetic Resonance Observation System Using Terahertz Wave Oscillation by Intrinsic Josephson Junctions

産総研¹, 筑波大数理物質², 阪公大 IQMC³ °松丸 大樹^{1,2}, 丸山 道隆¹, 柏木隆成^{2,3}

AIST¹, Univ. of Tsukuba², Osaka Metropolitan Univ.³,

°Daiki Matsumaru^{1,2}, Michitaka Maruyama¹, Takanari Kashiwagi^{2,3}

E-mail: d-matsumaru@aist.go.jp

テラヘルツ波を用いた磁性体の研究として、これまでは磁性体の磁気励起の調査などの基礎物性に関するものが多く行われてきた。しかしながら近年では、磁性体デバイスにおけるスピン流生成などにもこの帯域の電磁波が利用され始めており、テラヘルツ波を用いたアプリケーションに新たな広がりが見えている[1]。我々の研究グループでは、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 結晶が内包する固有ジョセフソン接合を用いたテラヘルツ波発振器の開発を行うとともに、この発振器を用いたアプリケーションの開発も目指している。その一つとして磁気共鳴への利用を検討している。我々が開発する発振素子では、光学系システムの小型化が期待できる一方で、外部磁場によって発振出力が抑制されてしまうという課題があった[2]。外部磁場に敏感な超伝導体デバイスを磁場環境下で用いることは通常困難であるが、超伝導体の完全反磁性を利用した磁気シールドを組み合わせることにより、磁場環境下でのデバイス駆動が期待できる[3]。

本研究では、我々が開発する固有ジョセフソン接合を用いたテラヘルツ発振素子を利用したコンパクトな磁気共鳴観測システムを構築するための要素技術に関する検討を行った。具体的には、マグネットによる磁場発生機構とテラヘルツ波の発振・測定機構が一体になったシステムを設計した(Fig. 1)。また、磁場による発振素子出力の低下を防ぐために、超伝導体磁気シールドの導入について検討を行った。システム設計にあたり、テラヘルツ波の導波管の傍にマグネット、発振器の位置に超伝導体磁気シールドを設置した際の磁場分布について有限要素法による磁気遮蔽効果のシミュレーションを実施した。発表では、発振機構であるテラヘルツ波デバイスに到達する磁束密度をシールドの有無やマグネットとの距離などの条件を変えて計算した結果について報告する。

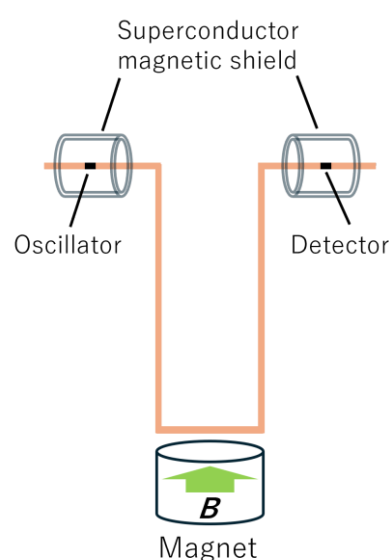


Fig. 1 Schematic view of magnetic resonance observation system using terahertz wave oscillation with superconductor magnetic shield.

[1] T. Hattori, *et al.*, Phys. Rev. Lett., **133**, 256701 (2024).

[2] T. Kitamura, *et al.*, Physica C, **494** 117-120 (2013).

[3] 松丸大樹, 他: 第 71 回応用物理学会春季学術講演会公演予稿集, 25a-12N-8 (2024) 10-091.



3次元電磁界数値計算にもとづく超伝導テラヘルツ光源の 最適構造探索およびその実装

京大院工¹, ^{○(PC)}小林 亮太¹, 森 倫太郎¹, 掛谷 一弘¹

Graduate School of Engineering, Kyoto Univ.¹,

^{○(PC)}Ryota Kobayashi¹, Rintaro Mori, Itsuhiro Kakeya¹

E-mail: kobayashi.ryota.86a@st.kyoto-u.ac.jp

ジョセフソンプラズマエミッタ (JPE) は銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) における固有ジョセフソン接合を利用したテラヘルツ連続光源であり、印加電圧によって放射波の周波数を制御できるという利点をもつ。この特徴はテラヘルツバンドにおける周波数変調信号伝送を可能にし、次世代の超高速無線通信への応用に期待される[1]。一方で、JPE の最高放射強度は 2013 年に $610 \mu\text{W}$ を記録して以来更新されておらず[2]、数値計算に基づく体系的な設計手法の欠如が JPE の放射強度向上の妨げになっている。この問題を解決するために、我々は Bi2212 の高周波電磁界応答を再現する異方的誘電体モデル[3]を用い JPE の共振特性を汎用的な電磁界シミュレータ上で再現する手法を構築した (Fig. 1)。

本発表ではこの数値計算手法を用いた JPE の最適構造探索結果と、その最適構造に基づくデバイスの実装結果を紹介する。まず、数値計算により、デバイスの体積を一定に保ちつつ高さと奥行きを変化させることで、放射強度が最大となる構造を探索した (Fig. 2)。次に、数値計算で得られた最適形状を実装し (Fig. 3)、作製した JPE の電流電圧放射強度特性を測定した。最後に、計算結果と測定結果の比較を通じてシミュレーションやデバイス設計手法の評価を行った。本手法は、数値計算に基づく体系的な設計手法を提供し、 1 mW 以上の放射強度をもつ JPE の実現に向けた重要な一歩である。

参考文献

- [1] M. Miyamoto *et al.*, *Nat. Photonics*, 1–9 (2024).
- [2] T. M. Benseman *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 022602 (2013)
- [3] A. L. Rakhmanov *et al.*, *Phys. Rev. B Condens. Matter* **81**, 075101 (2010).

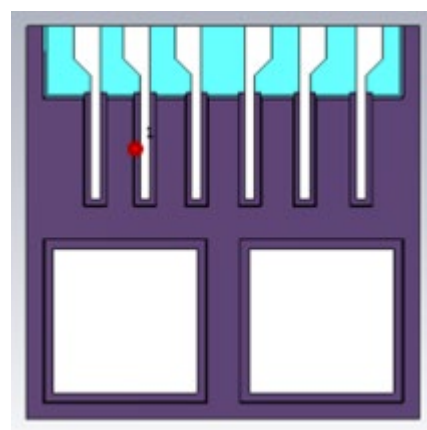


Fig 1: JPE modeled on a 3D-FDTD simulator.

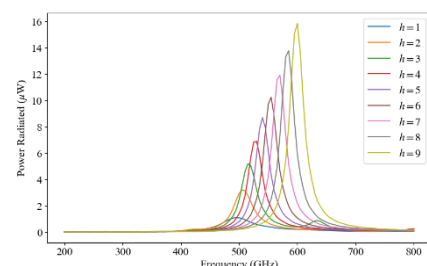


Fig 2: Changes in radiation intensity associated with the height-to-depth ratio of the resonator obtained by numerical calculation.



Fig 3: Optical microscope image of JPE designed and implemented based on numerical calculation.

固有ジョセフソン接合スタックのシンボル化による 等価回路シミュレーションの拡張性向上

Expanding Scalability of Equivalent Circuit Simulation with Symbolizing Intrinsic Josephson Junction Stacks

京大院工¹ ○(M2) 森 倫太郎¹, 小林 亮太¹, 掛谷 一弘¹

Kyoto Univ.¹ ○Rintaro Mori¹, Ryota Kobayashi¹, Itsuhiro Kakeya¹

E-mail: mori.rintaro.27z@st.kyoto-u.ac.jp

テラヘルツ波は電波と光の間の領域の周波数 (0.1~10THz) を持ち、それらの特性を併せ持つことから次世代光速通信や非破壊イメージングなど様々な応用が期待されている。我々は、テラヘルツ波源として銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ に内在する固有ジョセフソン接合 (IJJ) を用いたジョセフソンプラズマエミッタ (JPE) について研究を行っている[1]。最近、JPE から周波数変調テラヘルツ波の放射が報告され、高速通信への応用が提案された[2]。しかしながら、実用送信機としては、放射強度の増強が不可欠であり、メサの形状とアンテナの設計に関して数値計算とデバイス作製を併用した研究が急務である。

本報告では、JPE の形状最適化に向けた数値計算技術について述べる。我々は、JPE の設計手法の 1 つとして等価回路を用いた研究を進めており、回路パラメータを抽出することで実デバイスの電流電圧特性および放射特性を再現し[3]、アンテナを含めた多様なデバイス形状への拡張を目的として回路シミュレータ LTspice[®] の導入を報告[4]している。一方で、積層 IJJ 間相互作用の再現やパラメータスイープには、IJJ を構成する個別素子の一つ一つ組み替える必要がある。そこで、LTspice[®] の機能を用いてメサ構造をシンボル化することで可読性、拡張性の向上を試みる。

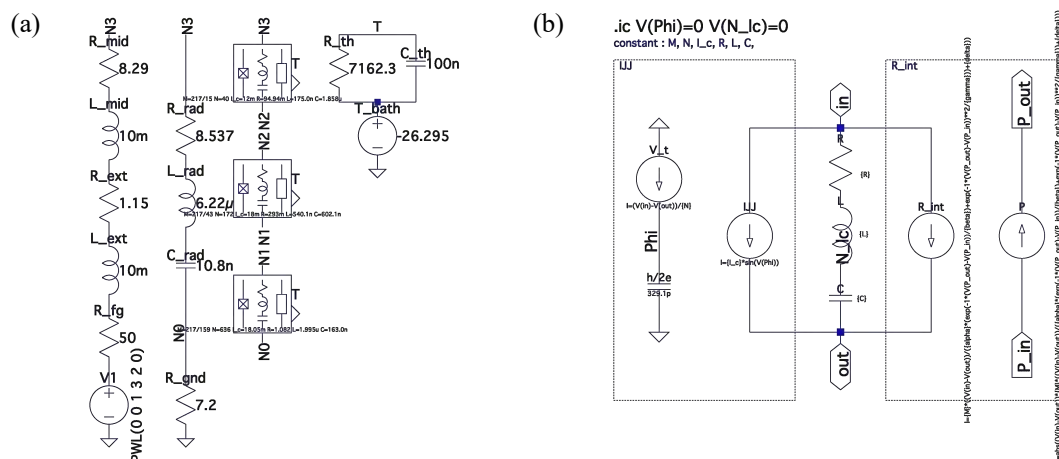


Fig. 1: (a) Proposed modular model using symbolic representation. The number of stacked junctions can be easily modified, improving scalability and readability. (b) Subcircuit of symbolic representation of IJJ stack in LTspice[®]. The symbol features four ports, enabling the integration of electrical and thermal circuits.

参考文献

- [1] I. Kakeya and H. Wang, *Supercond. Sci. Technol.*, **29**, 073001 (2016)
- [2] M. Miyamoto *et al.*, *Nat. Photon.*, **18**, 267 (2024).
- [3] R. Kobayashi *et al.*, *Appl. Phys. Express*, **15**, 093002 (2022).
- [4] R. Kobayashi and I. Kakeya, *Supercond. Sci. Technol.*, **38** 02LT01 (2025)

超伝導 FM テラヘルツエミッターの材料設計と製造プロセス開発

Materials design and fabrication techniques for superconducting FM terahertz emitters

産総研¹, 京大院工², 東理大理³ ○辻本 学¹, 杉本 啓太郎², 森 倫太郎², 小林 亮太²,
掛谷 一弘², 加藤 準一朗^{1,3}, 西尾 太一郎³, 石田 茂之¹, 永崎 洋¹

AIST¹, Kyoto Univ.², Tokyo Univ. of Science³ M. Tsujimoto¹, K. Sugimoto², R. Mori²,
R. Kobayashi², I. Kakeya², J. Kato^{1,3}, T. Nishio³, S. Ishida¹, and H. Eisaki¹

E-mail: m.tsujimoto@aist.go.jp

量子コンピューティングは、暗号通信、機械学習、材料探索、金融工学など、幅広い分野に大きな変革をもたらす基幹技術として注目されている。特に有望視されている超伝導方式では、マイクロ波を用いて繊細な量子ビットの状態を制御する技術の開発が行われている。しかし、現行のシステムでは、希釈冷凍機内の量子ビットと室温の電子機器がケーブルで接続されており、量子ビット数が増えるとケーブルの本数も増加するため、極低温環境を維持することが困難になる。この熱流入問題は、量子プロセッサのスケラビリティを制限するだけでなく、誤り耐性を備えた量子計算の実現を妨げる重大な障壁となっている。

近年、量子コンピュータの信号伝送の一部を無線化し、情報伝送量に対する熱流の比を最小化する極低温テラヘルツ (THz) 無線インターコネクト技術が提案されている [1]。このアーキテクチャを実現する基盤技術として、我々は超伝導ジョセフソンプラズマエミッター (JPE) [2,3] に着目している。JPE は、超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi-2212) の積層型ジョセフソン接合を集団的に同期発振させることで、単色 THz 波を放射するデバイスである。最近の研究では、印加電圧にマイクロ波を重畳することで周波数変調 (FM) 発振に成功し、THz キャリア波を用いた FM 通信の実現可能性を実証した [4]。

本研究では、JPE を構成する材料の設計と製造プロセスの最適化に取り組んでいる。Fig. 1(a) に透過型電子顕微鏡 (STEM) で観察した Bi-2212 単結晶と Au 電極の界面構造を示す。単結晶と電極の界面に厚さ約 3 nm のアモルファス層が形成されていることが確認され、電気特性評価の結果から、このアモルファス層がオーミックな接触抵抗の原因となることがわかった。界面の接触抵抗で生じるジュール発熱は出力低下につながるため、発振の高効率化には界面の整合性を改善することが求められる。Fig. 1(b) には、JPE チップを内蔵したパッケージの概念図と試作品の写真を示す。今回、JPE チップに加えて、高周波回路とプリント基板 (PCB) を広帯域 FM 発振用に設計した。講演では、これまでに得られた JPE の材料設計とパッケージング技術に関する成果を報告する。

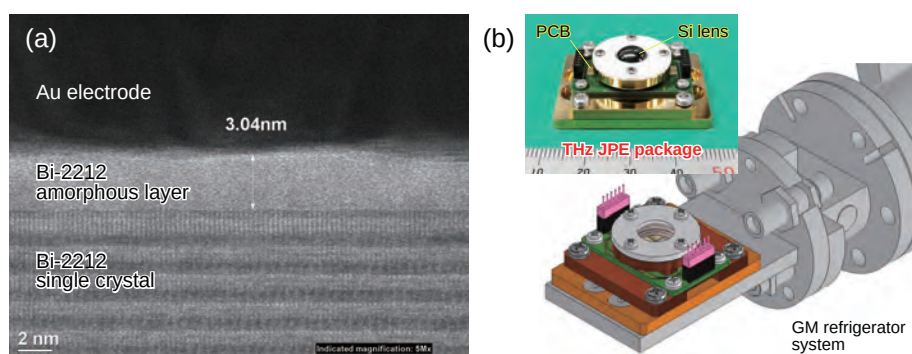


Fig. 1: (a) Bright-field STEM image showing the interface between a freshly cleaved Bi-2212 single crystal and a 50 nm-thick Au electrode layer. (b) Schematic illustration and photograph of a prototype package of the superconducting THz JPE.

参考文献

- [1] J. Wang *et al.*, Nat. Electron. **8**, 426 (2025).
- [2] L. Ozyuzer *et al.*, Science **318**, 1291 (2007).
- [3] I. Kakeya and H. Wang, Supercond. Sci. Technol. **29**, 073001 (2016).
- [4] M. Miyamoto *et al.*, Nat. Photonics **18**, 267 (2024).

謝辞 本研究の実施にあたり、桑野玄気博士と齋藤嘉人博士から貴重なご助言とご支援を賜りました。本研究は JST さきがけ『量子フロンティア』(JPMJPR24F5) の支援を受けて行われました。

11 Superconductivity | Oral presentation : 11.2 Thin and thick superconducting films, coated conductors and film crystal growth

[9p-N405-1~18] 11.2 Thin and thick superconducting films, coated conductors and film crystal growth

[9p-N405-1]

Application study of the high-brightness synchrotron radiation facility NanoTerasu to high-temperature superconducting thin films

○Ataru Ichinose^{1,5}, Tomoya Horide^{2,5}, Yusuke Ichino^{3,5}, Keiichi Horio^{4,5}, Kaname Matsumoto^{2,5}, Yutaka Yoshida^{2,5} (1.CRIEPI, 2.Nagoya Univ., 3.AIT, 4.KIT, 5.JST-CREST)

[9p-N405-2]

Investigation of Upper Resistivity Limit Required for Conductive Buffer Layer in REBCO Wire

○Tsubasa Uchida¹, Kota Miyahara¹, Akiyoshi Matsumoto², Toshiya Doi¹ (1.Kyoto Univ., 2.NIMS)

[9p-N405-3]

Superconducting properties of GdBa₂Cu₃O_y thin films irradiated with 250 keV O ions

○Toshinori Ozaki¹, Hiroyuki Okazaki², Hiroshi Koshikawa², Shunya Yamamoto², Tetsuya Yamaki², Tetsuro Sueyoshi³, Hitoshi Sakane⁴ (1.Kwansei Gakuin Univ., 2.QST, 3.Kyushu Sangyo Univ., 4.SHI-ATEX Co., Ltd.)

[9p-N405-4]

Analysis of crystal surface precipitates on YBa₂Cu₃O_y films and estimation of the phase diagram using machine learning

○Ibuki Kato¹, Ito Shunta¹, Horide Tomoya¹, Yoshida Yutaka¹ (1.Nagoya Univ.)

[9p-N405-5]

Optimization of deposition conditions and microstructure analysis in YBCO-pure and YBCO+BHO thin films on IBAD substrates using machine learning

○Shin Okumura¹, Ataru Ichinose², Tomoya Horide¹, Yutaka Yoshida¹ (1.Nagoya Univ., 2.CRIEPI)

[9p-N405-6]

Filament 3D reconstruction of MgB₂ multi-filament wire using deep learning

○(BC)Daito Fukui¹, Kosuke Ando¹, Takahiro Hosokawa¹, Mio Ito¹, Kotomi Ogi¹, Motomune Kodama², Hideki Tanaka², Yusuke Shimada³, Akiyasu Yamamoto¹ (1.Tokyo Univ. Agricul. Technol., 2.Hitachi,Ltd, 3.Kyushu Univ.)

[9p-N405-7]

High-*T_c* NbN thin films on low-dielectric loss and flexible PTFE at ambient substrate temperature.

○(M2)Rion Yamashita¹, Keita Sakuma¹, Naoto Sekiya¹ (1.Yamanashi Univ.)

[9p-N405-8]

Study of selective growth of YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin film by water lift-off technique

Chaohuang Hong¹, Seiya Taguchi¹, Kyosuke Nakamura¹, Tasuku Mita¹, Masanori Nagao², ○ Takeshi Kawae¹ (1.Kanazawa Univ., 2.Univ. Yamanashi)

[9p-N405-9]

Deposition of c-axis oriented $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films on Si substrates using self-aligned LaNiO_3 (3)

O(M1C)Tasuku Mita¹, Nakamura Kyousuke¹, Shimamura Kazutoshi¹, Kwahara Masami², Nagao Masanori³, Kawae Takeshi¹ (1.Kanazawa Univ., 2.Kojundo Chemical Lab. Co., Ltd., 3.Yamanashi Univ.)

[9p-N405-10]

The effect of IHT temperature on in-field J_c for TFA-MOD (Y,Gd) $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ +BaHfO₃ CCs

O(DC)Yuki Ogimoto¹, Junya Kawanami¹, Ryuji Yoshida², Takeharu Kato², Koichi Nakaoka³, Teruo Izumi³, Masashi Miura^{1,4} (1.Seikei Univ., 2.JFCC, 3.AIST, 4.JST-FOREST)

[9p-N405-11]

RGB Analysis of plume images in the PLD method

O(M2)Tatsuma Hachiya¹, Nakao Shoya¹, Horio Keiichi^{1,5}, Ichino Yusuke^{3,5}, Ichinose Ataru^{4,5}, Horide Tomoya^{2,5}, Matsumoto Kaname^{2,5}, Yoshida Yutaka^{2,5} (1.Kyushu Inst. of Technol., 2.Nagoya Univ., 3.Aichi Inst. of Technol., 4.CRIEPI, 5.JST-CREST)

[9p-N405-12]

Analysis of Plume Images in the Thin Film Formation Process

O(B)Syoya Nakao¹, Hachiya Tatsuma¹, Horio Keiichi^{1,5}, Ichino Yusuke^{3,5}, Ichinose Ataru^{4,5}, Horide Tomoya^{2,5}, Matsumoto Kaname^{2,5}, Yoshida Yutaka^{2,5} (1.Kyushu Inst. of Technol., 2.Nagoya Univ., 3.Aichi Inst. of Technol., 4.CRIEPI, 5.JST-CREST)

[9p-N405-13]

Plume shape control by model predictive control in pulsed laser deposition

OKosuke Kawabata¹, Tomoya Horide¹, Yutaka Yoshida¹ (1.Nagoya Univ.)

[9p-N405-14]

Clarification technology by image processing for RHEED images under high oxygen partial pressure

OTomohiro Takeichi¹, Yusuke Ichino², Ataru Ichinose³, Keiichi Horio⁴, Kaname Matsumoto¹, Tomoya Horide¹, Yutaka Yoshida¹ (1.Nagoya Univ., 2.Aichi Inst. of Technol., 3.CRIEPI, 4.Kyushu Inst. of Technol.)

[9p-N405-15]

Fabricating multi-filament YBCO coated conductors using surface-modified substrates for crystal alignment control

ORyo Teranishi¹, Hiroki Fujimoto¹, Taiki Wada¹, Minoru Tachiki², Akiyoshi Matsumoto², Yasuhito Kawahara¹ (1.Kyushu Univ., 2.NIMS)

[9p-N405-16]

Observation of Delamination Behavior and Investigation of Delamination Causes in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ coated conductor

O(M1)Yusuke Kawagishi¹, Taiki Wada¹, Minoru Tachiki², Akiyoshi Matsumoto², Ryo Teranishi¹ (1.Kyushu Univ., 2.NIMS)

[9p-N405-17]

Physical properties of light rare earth doped Y123 thin films prepared by FF MOD method

ONaoki Hata¹, Kazutoyo Sagara¹, Takanori Motoki¹, Jun-ichi Shimoyama¹ (1.Aoyama Gakuin Univ.)

[9p-N405-18]

Effects of Ag protection layer on RE123 thin films during low temperature annealing

OJun-ichi Shimoyama¹, Kazutoyo Sagara¹, Naoki Hata¹, Takanori Motoki¹, Tatsuhiko Yoshihara², Genki Honda², Shinichi Kobayashi² (1.Aoyama Gakuin Univ, 2.SEI)

高輝度放射光施設ナノテラスの高温超電導薄膜材料への適用検討

Application study of the high-brightness synchrotron radiation facility NanoTerasu to high-temperature superconducting thin films

電中研¹, 名大院工², 愛工学工³, 九工大院生命体⁴, JST-CREST⁵ ○一瀬 中^{1,5}, 堀出 朋哉^{2,5},
一野 祐亮^{3,5}, 堀尾 恵一^{4,5}, 松本 要^{2,5}, 吉田 隆^{2,5}

CRIEPI¹, Nagoya Univ.², AIT³, KIT.⁴, JST-CREST⁵ ○Ataru Ichinose^{1,5}, Tomoya Horide^{2,5},
Yusuke Ichino^{3,5}, Keiichi Horio^{4,5}, Kaname Matsumoto^{2,5}, Yutaka Yoshida^{2,5}

E-mail: ai@criepi.denken.or.jp

東北大学青葉山キャンパスに設置の 3GeV の高輝度放射光施設ナノテラス (Photo 1) は官民地域パートナーシップにより, 民間企業はコアリションメンバーになることで各種ビームラインを使用できるようになる。今回は各種ビームラインの中で BL14U を利用した。BL14U は軟 X 線イメージング測定用で, 物質の元素, 化学状態, 磁区の分布をナノメートルレベルで可視化することができる⁽²⁾。そこで, 高輝度放射光施設ナノテラスの BL14U を利用し, 高温超電導薄膜について物質元素, 化学状態の可視化を試みた。

分析に用いた高温超電導薄膜は, 最初の試みということもあり, 欠陥が入り難い SrTiO_3 単結晶基板上にパルスレーザー蒸着法で作製した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 超電導薄膜とした。作製した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 超電導薄膜を 2 つに割り, 片方は蒸着後に後処理で酸素アニールを施し, もう片方は蒸着したままとし, 化学状態が異なると想定される 2 つの試料を準備した。測定は軟 X 線イメージング (STXM) と軟 X 線吸収分光 (XAS) を行った。 Cu の L 線近傍の軟 X 線吸収分光 (XAS) を Fig. 1 に示す。酸素アニールの前後で矢印の示すエネルギーでスペクトルが変化することが分かる。これは酸素アニールにより Cu の一部が 3 価になったことに起因すると考えられる。当日は, イメージング測定により Cu 価数の変化の nm レベルの分析可能性等について報告する。

謝辞: 本研究では, JST-CREST(JPMJCR2336)の支援を受けたものである。また, 測定においてご尽力いただいた PhoSIC 中村哲也先生 (東北大教授), 寒河江勝俊様, 住吉谷瞭歩様, 川端太嗣様に感謝致します。

参考文献:

- (1) https://nanoterasu.jp/com.res/wp-content/uploads/2024/06/ap-11_NanoTerasu%EF%BC%88%E5%8D%97%E6%9D%B1%E6%89-scaled.jpg
- (2) <https://www.qst.go.jp/uploaded/attachment/26729.pdf>



Photo 1 Appearance of NanoTerasu⁽¹⁾

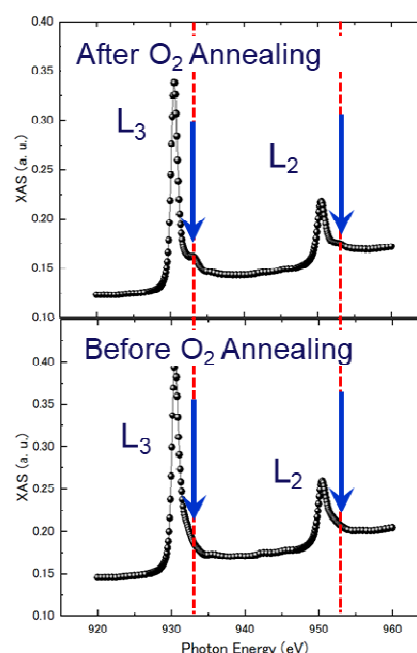


Fig. 1 XAS near the Cu absorption edge

REBCO 線材の導電性中間層に求められる上限抵抗の検討

Investigation of Upper Resistivity Limit Required for Conductive Buffer Layer in REBCO Wire

京大¹, 物材機構² [○]内田 翔¹, 宮原 康太¹, 松本 明善², 土井 俊哉¹Kyoto Univ.¹, NIMS² [○]Tsubasa Uchida¹, Kota Miyahara¹, Akiyoshi Matsumoto², Toshiya Doi¹

E-mail: uchida.tsubasa.62x@st.kyoto-u.ac.jp

1. はじめに

我々は Ag を使用しない REBCO 線材の実現に向けて、REBCO 層の上に Ag および Cu 層を形成する必要がある構造、つまり REBCO 層の一部で超伝導状態が破れた際に、電流が中間層を通して Cu テープに回避できる線材構造を検討している。具体的には基材に {100}<001> 集合組織を有する Cu テープを使用し、その上に導電性中間層および REBCO 層をエピタキシャル成長させる構造を開発している。この構造では導電性中間層の厚さ方向の電気抵抗は低いほど好ましいが、どの程度の低抵抗が求められるか検討されていない。本研究では、有限要素法により、導電性中間層に求められる電気抵抗の値を調べた。

2. モデル化した線材の想定と仮定

Figure 1 に、計算に用いた YBCO 線材構造を示す。30 μm 厚の Cu テープ上に 1 μm 厚の導電性中間層、3 μm 厚の YBCO 層を形成した構造とした。線材の長さ方向の長さは 20 cm とし、YBCO 層の中央に、長さ 0.02 mm、厚さ 3 μm の常伝導領域が、線幅いっぱいには発生していると仮定した。線幅方向の電流密度は一定、電流および温度分布は左右対称になると考えられるため、対称性を利用して右半分のみ、二次元で計算を行った。

有限要素法による計算には、(株)フォトン製の PHOTO-VOLT ver. 9.6 を使用した。常伝導状態の YBCO の電気抵抗率は $1.0 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ とし、超伝導状態の YBCO における電流電圧特性は、 $n = 11.6$ の n 値モデルに従うとした。 $J_c = 1.6 \text{ MA/cm}^2$ とした。線材には $I_c/2$ の電流を流す想定とした。導電性中間層の電気抵抗率 ρ_b を 10^{-2} から $10^0 \Omega\text{cm}$ まで変化させて線材内部の電流分布を計算した。

次に、各層の温度分布を計算した。Cu テープ層の下端は液体窒素で冷却していると仮定した。

3. 結果と考察

Figure 2 に、 ρ_b を変えて計算した線材中の最高温度の時間変化を示す。 ρ_b の値に依らず、0.2 秒以内に最高温度の上昇が止まり、以降は一定値を保っていることが分かる。 $\rho_b = 10^{-2}$ 、 10^{-1} 、 $10^0 \Omega\text{cm}$ としたとき、最高温度は 86.6、88.9、97.9 K となった。 ρ_b が低いほど最高温度は低くなった。当日は ρ_b がさらに低い値の場合の計算結果も報告する予定である。

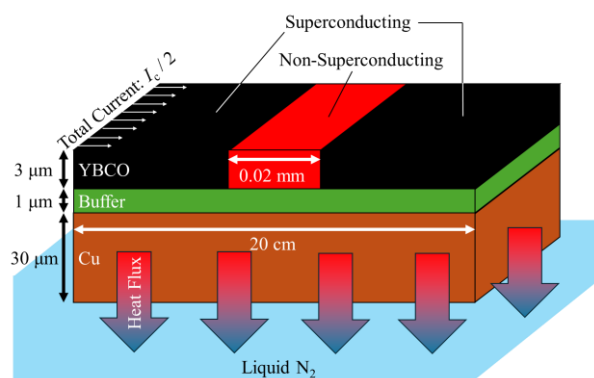
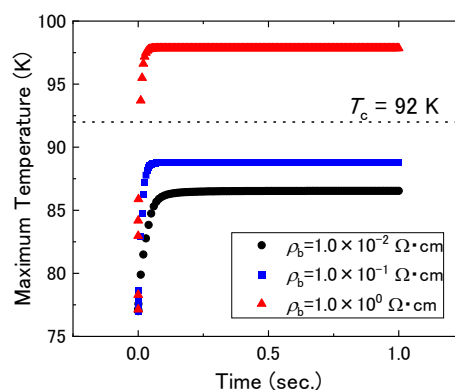


Figure 1 Schematic diagram of the assumed YBCO wire.

Figure 2 Temporal evolution of the maximum temperature in the wire for various ρ_b values .

250 keV O イオン照射した $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜の超伝導特性

Superconducting properties of $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ thin films irradiated with 250 keV O ions

関学大工¹, 量研機構², 九産大³, 住重アテックス(株)⁴ °尾崎 壽紀¹, 岡崎 宏之²,

越川 博², 山本 春也², 八巻 徹也², 末吉 哲郎³, 坂根 仁⁴

Kwansei Gakuin Univ.¹, QST², Kyushu Sangyo Univ.³, SHI-ATEX Co., Ltd.⁴

°Toshinori Ozaki¹, Hiroyuki Okazaki², Hiroshi Koshikawa², Shunya Yamamoto², Tetsuya Yamaki²,

Tetsuro Sueyoshi³, Hitoshi Sakane⁴

E-mail: tozaki@kwansei.ac.jp

1. はじめに 超伝導体において、磁場中の臨界電流密度 J_c を向上させる有効な手法として、イオン照射が知られている^[1,2]。これまで我々は、数 MeV 以下の低エネルギーイオン照射着目し、 $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (GdBCO) 超伝導薄膜に、さまざまなイオンを照射することで、照射前後の超伝導特性の変化を調べた^[3,4]。また、イオン照射後の酸素アニールが超伝導特性に与える影響を報告してきた^[4]。本研究では、O イオンを超伝導薄膜表面に垂直に照射した場合、超伝導層の途中で止まるエネルギー 250 keV で照射した GdBCO 薄膜の超伝導特性を調べた。

2. 実験方法 本実験では、パルスレーザー堆積法を用いて作製した住友電気工業株式会社製の GdBCO 超伝導線材を使用した。250 keV の O イオン照射実験(照射量: $7.6 \times 10^{11} - 3.1 \times 10^{14}$ ions/cm²)は、QST 高崎の 400 kV イオン注入装置を用いて行った。超伝導特性は、磁気特性測定システム (MPMS: Magnetic Property Measurement System, Quantum Design) を用いて評価した。

3. 実験結果 Fig. 1 に 250 keV の O イオンを照射した GdBCO 薄膜の dpa (displacement per atom) に対する T_c の変化を示す。比較として、350 keV Ar イオン照射および 2 MeV Au イオン照射した GdBCO 薄膜の測定結果を示す。いずれも超伝導層の途中で照射したイオンが止まる照射条件である。250 keV O イオン照射した GdBCO 薄膜は、2 MeV Au イオン照射同様、 ~ 0.002 dpa までは、照射量増加に伴い、 T_c が徐々に減少し、 ~ 0.002 dpa 以上では、 T_c が大きく低下した。また 350 keV Ar イオン照射した GdBCO 薄膜よりは、小さな dpa で T_c が大きく低下し始めることが分かった。当日は、250 keV O イオン照射した GdBCO 薄膜の磁場中

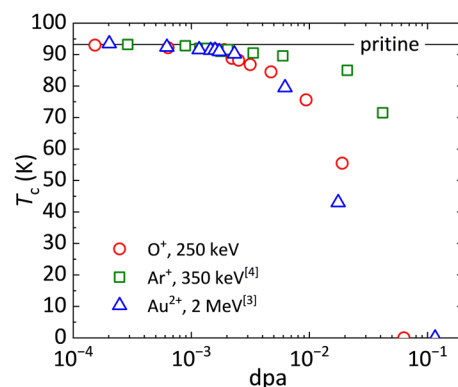


Fig. 1. T_c as a function of dpa for irradiated GdBCO thin films. (dpa: displacement per atom)

J_c 特性について、他の照射条件でイオン照射した GdBCO 薄膜の測定結果と比較しながら議論する。

[謝辞] $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 超伝導線材をご提供いただいた住友電気工業株式会社に深く感謝いたします。また、本研究は、JSPS 科研費(22H02020)の助成を受けて実施したものである。

[参考文献][1] H.Matsui et al. Appl. Phys. Lett. 101, 232601 (2012)., [2] T. Ozaki et al., Supercond. Sci. Technol. 33, 094008 (2020)., [3] 尾崎壽紀ら、2020 年第 81 回 応用物理学会 秋季学術講演会 9a-Z27-1. [4] 尾崎壽紀ら、2024 年第 85 回 応用物理学会 秋季学術講演会 19p-C31-3.

YBa₂Cu₃O_y 薄膜の表面析出物解析及び機械学習を用いた相図推定

Analysis of crystal surface precipitates on YBa₂Cu₃O_y films and estimation of the phase diagram using machine learning

名大工, ○加藤 伊吹, 伊藤 駿汰, 堀出 朋哉, 吉田 隆

Nagoya Univ., ○Ibuki Kato, Shunta Ito, Tomoya Horide, Yutaka Yoshida

E-mail: kato.ibuki.t7@s.mail.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

REBa₂Cu₃O_y(REBCO)はその高い臨界温度と不可逆磁場から Coated Conductor(CC)の応用が期待されている。CC の幅広い応用に向けて高性能化や高速成膜が必要であるが、そのための 1 つの手法として液相介在型の結晶成長が挙げられる。我々はこれまでに、成膜時に REBCO 結晶の成長表面に融解した Ba-Cu-O を設けることで、固液界面で結晶成長が進行する Vapor-Liquid-Solid(VLS)成長法について研究を行い、良好な結晶配向性や高速成膜などを報告してきた。しかし、成膜の進展に伴う液相の蒸発などの液相の安定性や成膜工程が多さなどの課題も存在する。

一方で REBCO の主要な成膜手法の 1 つである Pulsed Laser Deposition(PLD)法はターゲットの組成を調整することで、作製する薄膜の組成をコントロールすることが可能であり、非化学量論組成のターゲットによる VLS 成長も報告されている[1]。そこで本研究ではターゲット組成を中心に成膜条件を制御することにより、少ない成膜工程で VLS 成長での結晶成長を実現することを試みた。その中で作製した膜の表面に存在する析出物に着目して評価を行った。この研究では VLS 成長となる成膜条件を探索し、相図を作成することが目的である。しかし、この成膜を実現するにあたって制御すべきパラメータは数多く、成膜装置ごとに特徴が存在するため、条件探索には多大な時間を要することが予想される。そこで機械学習を用いた効率的な相図作成方法について検討した。

2. 実験方法

本研究では PLD 法におけるターゲット組成に焦点をあて、表面 SEM 像を基に VLS 成長となる成膜条件の特定を試みた。試料の作製は BaHfO₃(BHO)を添加した非化学量論組成のターゲットを用い IBAD-MgO 基板上に PLD 法によって成膜を行った。また、試料の表面 SEM 像を観察し、ImageJ による画像解析を行い、析出物の形状や分布の評価を行った。さらに、相図作成にあたり、Phase Diagram Construction(PDC)アルゴリズムを用いた AIPHAD を使用した[2]。

3. 実験結果及び考察

Fig.1 に(a)(b)サンプルの表面 SEM 像と(c)(d)それぞれの画像を解析した析出物のサイズと、サイズごとの面積の合計を示す。膜の析出物のサイズ及び密度は成膜条件によって異なり、特定の条件下では液相由来と思われる比較的大きな析出物が確認された。そこで、得られた析出物の大きさの分布から成膜条件を VLS 成長相と気相成長相に分類した。Fig.2 に 21 点の初期データを基に PDC を用いて作成した推定相図(a)及び推定相図の確信度を表す

不確実性スコア(b)を示す。21 点という少ないデータ数ながら、データが存在しない点についても相を推定し、およその相図を作ることができた。また、不確実性スコアは緑色が濃い点は推定した相の確実性が低い点を表し、不確実性スコアが高い点をサンプリングすることで、効率的に相図を作成できると考えられる。当日は析出物の形状を考慮した成膜条件の成長相分類結果についても報告する。

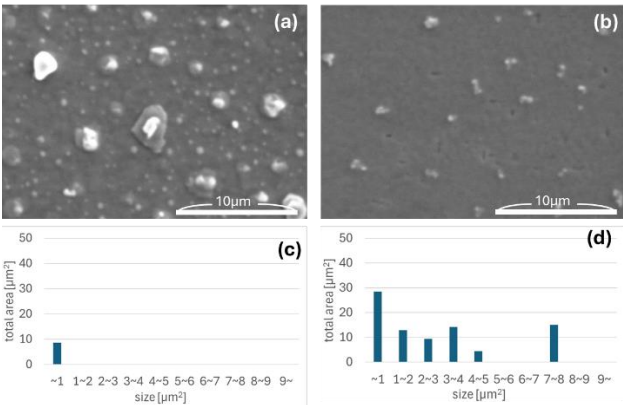


Fig.1 (a), (b) Crystal surface of YBCO+BHO observed by SEM (c), (d) Total area of precipitates of each size

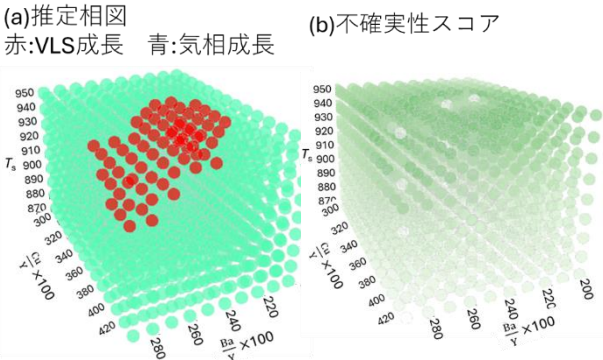


Fig.2 (a)Estimated phase diagram by PDC (b)The illustration of uncertain scores

謝辞

本研究は、JST, CREST(JPMJCR2336)からの助成を受けて実施した。また、Faraday Factory Japan 合同会社より IBAD-MgO 基板を提供していただいた。

参考文献

[1] A. Ibi *et al.*, *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* 756 (2020) 012024.
[2] K. Terayama *et al.*, *Phys. Rev. Materials* 3, 033802 (2019).

IBAD 基板上 YBCO-pure 薄膜及び YBCO+BHO 薄膜における機械学習を用いた成膜条件の最適化と微細構造の検討

Optimization of deposition conditions and microstructure analysis in YBCO-pure and YBCO+BHO thin films on IBAD substrates using machine learning

名大工¹, 電中研² ◯奥村 慎¹, 一瀬 中², 堀出 朋哉¹, 吉田 隆¹

Nagoya Univ.¹, CRIEPI², ◯Shin Okumura¹, Ataru Ichinose², Tomoya Horide¹, Yutaka Yoshida¹

E-mail: okumura.shin.x4@s.mail.nagoya-u.ac.jp

【はじめに】

高温超伝導体である $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (REBCO)はその高い磁場中臨界電流密度(J_c)から、Coated Conductor として線材応用されている。REBCO 薄膜の作製条件を J_c に関して最適化する場合、薄膜の作製から種々の評価を行い作製条件にフィードバックするサイクルは非常に時間とコストがかかることが課題である。薄膜作製における効率的な条件探索手法の開発が望まれている[1,2]。

我々の研究室では、機械学習を用いて効率的な条件探索手法の構築や成膜の再現性向上を目指し研究を行っている。これまで、単結晶基板上に作製した YBCO 薄膜の結晶配向性や臨界温度(T_c)、 J_c の効率的な最適化プロセスに関して研究を行ってきた。

本研究では IBAD-MgO 基板上の YBCO 薄膜に関して、機械学習を用いて効率的な条件最適化を行った。

【実験方法】

Pulsed Laser Deposition(PLD) 法によって IBAD 基板($\text{CeO}_2/\text{LaMnO}_3/\text{IBAD-MgO}/\text{安定化層}/\text{Hastelloy C276}$)上に YBCO-pure 薄膜及び YBCO+BaHfO₃(BHO)薄膜を作製した。また、最適化に関しては、目的変数を J_c や T_c などの物性値、入力変数を Y 組成及び PLD におけるレーザー周波数(F)とした。結晶構造に関して X 線回折(XRD)や透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて評価した。超伝導特性に関しては、直流四端子法により測定した。

【結果と考察】

Figure 1 に YBCO-pure/IBAD 薄膜においてベイズ最適化により条件探索した T_c 及び J_c (20 K, 9 T)の期待値マップを示す。マップの横軸は Y 組成、縦軸は常用対数をとったレーザー周波数であり、カラースケールが T_c 及び J_c (20 K, 9 T)の期待値を表す。入力 9 条件を探索した段階で T_c 及び J_c (20 K, 9 T)は回帰ができており、現状 T_c の高い条件は Y1.0 かつ周波数の小さい条件付近、 J_c (20 K, 9 T)の高い条件は Y1.1 かつ周波数は 10 Hz 付近の条件である。YBCO-pure における特性の最適化においても、 T_c と磁場中 J_c で最適条件が異なることが分かる。

YBCO+BHO ナノロッドではマトリックスの YBCO の特性に加えて、ナノロッド形状が作製条件に依存し、ピンニング特性がナノストラクチャーに強く相関する。そのため、目的の物性に合わせた条件の最適化は YBCO-pure 系よりも一層複雑化する。当日はこの YBCO+BHO 系に関しても機械学習を用いた条件最適化の結果についても併せて報告する。

【謝辞】

本研究は JST-CREST(JPMJCR2336)の助成を受けて実施した。ベイズ最適化のアプリケーションは BOXVIA を使用した。IBAD 基板は和泉輝郎様、衣斐 顕様よりご提供いただいた。

【参考文献】

- [1] Y. K. Wakabayashi et al, *APL Mater* **7**, 101114 (2019)
- [2] S. B. Harris et al, *Small Methods* **8**, 2301763 (2024)

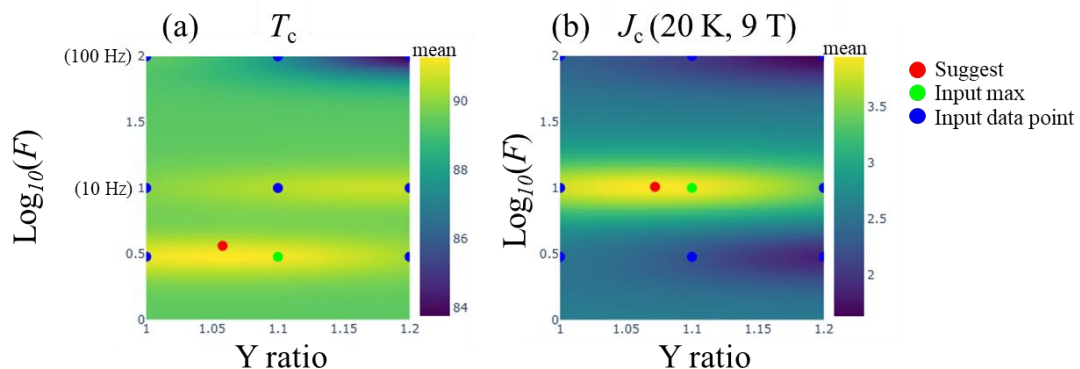


Figure 1 Expectation maps obtained by Bayesian optimization; (a) T_c (b) J_c (20 K, 9 T)

深層学習による MgB₂ 多芯線材のフィラメント 3 次元再構築

Filament 3D reconstruction of MgB₂ multi-filament wire using deep learning

東京農工大学¹, 日立製作所², 九州大学³ ○(B) 福井 大翔¹, 安東 昂亮¹, 細川 孝弘¹,
伊藤 海音¹, 扇 琴美¹, 児玉 一宗², 田中 秀樹², 嶋田 雄介³, 山本 明保¹

Tokyo Univ. of Agricul. & Technol.¹, Hitachi,Ltd², Kyushu Univ³

°Daito Fukui¹, Kosuke Ando¹, Takahiro Hosokawa¹, Mio Ito¹, Kotomi Ogi¹,

Motomune Kodama², Hideki Tanaka², Yusuke Shimada³, Akiyasu Yamamoto¹

E-mail: s242708v@st.go.tuat.ac.jp

背景: ニホウ化マグネシウム(MgB₂)[1]は、高い超伝導転移温度を持つことから、液体ヘリウムによる冷却だけでなく、省エネ性能に優れた冷凍機や液体水素による冷却により運転が可能な利点を持つ。また、MgB₂は多結晶材料で合成が容易なため、近年、多芯化が施された長尺線材の研究開発が活発に進められている[2]。しかし、フィラメント数の増加と径の縮小にともない、臨界電流性能が劣化するケースが報告されており、その機序理解が課題の一つである。一方、我々は多結晶材料の電子顕微鏡像に対して高い精度で相識別をすることが可能な、深層学習に基づくセマンティックセグメンテーションモデルを開発している[3]。本研究では、MgB₂多芯線材のフィラメント微細組織の定量解析に向けて、まず FIB-SEM で取得した 3 次元微細組織像に深層学習モデルを適用することで、フィラメントのセグメンテーション、及び 3 次元再構築を試みた。

方法: 解析対象試料は、世界最小レベルのフィラメントを有する MgB₂多芯線材[4]を用いた。線材横断面のフィラメントが含まれる視野を FIB-SEM により観察した。Fig. 1(a)に示すフィラメント 1 本を対象領域とした二次電子像と、その画像に対し手動で識別した画像を教師データセットとして使用した。Fig. 1(b)に示す Encoder-Decoder 型の完全畳み込みニューラルネットワークの一つである U-Net [5]を用いて、高い IoU 精度でフィラメント部の抽出を行うセグメンテーションモデルを構築した。

結果: 学習済み深層学習モデルを用いて、長手方向に連続する 457 枚の二次電子像に対し予測を行い、3 次元再構築した結果を Fig. 1(c)に示す。10 μm 程度のフィラメントを高解像度で可視化、抽出することに成功した。フィラメントの外形はおおむね長手方向に連続性がある様子が観察され、セグメンテーションの精度及びフィラメント自体の連続性が良好であることが示唆された。

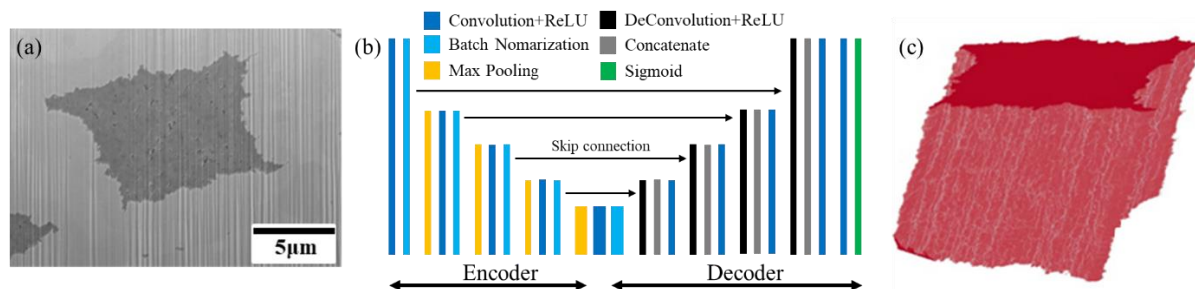


Fig. 1 Microstructure image obtained with FIB-SEM (a), U-Net model (b), and 3D reconstruction of a filament (c)

[参考文献]

- [1] J. Nagamatsu *et al.*, *Nature* **410** (2001)
- [2] H. Tanaka *et al.*, *J. Cryo. Super. Soc. Jpn.* **56**, 6 (2021)
- [3] Y. Hirabayashi *et al.*, *npj Comput. Mater.* **10**, 46 (2024)
- [4] M. Kodama *et al.*, *Supercond. Sci. Technol.* **34**, 025018 (2021)
- [5] O. Ronneberger *et al.*, *Proc. MICCAI*. **9351** (2015)

低誘電損失フレキシブルPTFE基板上への高 T_c -NbN薄膜の室温製膜方法の検討 High- T_c NbN thin films on low-dielectric loss and flexible PTFE at ambient substrate temperature.

山梨大[○](M2)山下 星穂, 作間 啓太, 關谷 尚人

Yamanashi Univ., [○]Rion Yamashita, Keita Sakuma, Naoto Sekiya

E-mail: ksakuma@yamanashi.ac.jp

1. はじめに

超伝導量子コンピュータは量子ビット数以上の信号伝送/制御用高周波ケーブルを必要とし、量子ビット数の増加に伴い、希釈冷凍機のサイズに限界があるため、高周波ケーブルの高密度化が求められている。文献[1]では、低損失高密度高周波ケーブルの基礎検討として、ポリイミド基板上に、Nb薄膜導体線路を作製したフレキシブル超伝導ケーブルが報告されている。しかしながら、ポリイミドは誘電損失が大きい(10^{-3} 台)ため、超伝導であるNb薄膜導体線路を用いても十分にケーブル損失を小さくできない問題がある。この問題に対して、我々は、ポリイミドより低誘電損失であるPTFE基板(10^{-4} 台)を用いることを提案する。また、Nbよりも超伝導転移温度(T_c)が高く化学的に安定なNbN薄膜を用いることを提案する。そこで、本研究ではPTFE基板上に高 T_c -NbN薄膜を製膜するための条件を検討したので報告する。

2. 実験方法

NbN製膜には反応性マグネトロンスパッタリング法を用いた。PTFEは耐熱性が低いため($\sim 250^\circ\text{C}$)、製膜は室温で行った。基板として、0.1 mm厚PTFE基板と比較用に0.5 mm厚MgO単結晶基板を用いた。スパッタターゲットにはNb、スパッタガスは N_2 とArの混合ガスを用いた。製膜条件を系統的に変化させ(スパッタ電流: 0.3 ~ 1 A, N_2 分圧: 4 ~ 13%), 各基板に対して高い T_c が得られる製膜条件の検討を行った。得られた試料について、表面性状を光学顕微鏡、結晶性をXRD、超伝導特性を直流四端子法により評価した。

3. 結果と考察

Fig. 1に、最も高い T_c が得られたスパッタ電流1.0 Aにおいて N_2 分圧を変化させたNbN薄膜のXRD θ -2 θ スキャンを示す。 N_2 分圧7%以下では、Nbの回折ピークが観測され、Nbが窒化していないことがわかった。表面性状は金属光沢が見られず、薄膜はボロボロであった。 N_2 分圧9%以上では、NbNと不純物相である Nb_5N_6 の回折ピークが確認された。Fig. 2に、 N_2 分圧11%のNbN薄膜の外観を示す。金属光沢が確認され、フレキシブル性を有していることがわかった。複数回曲げ操作を行ってもNbN薄膜の剥離は観察されなかった。しかし、プラズマの影響により、PTFEの一部[(a)試料下部]が熱収縮し、劣化していることがわかった。Fig. 3に同一試料の電気伝導特性を示す。比較のため、最も高い T_c が得られた製膜条件で作製したMgO基板上のNbN薄膜の電気伝導性も示す。PTFE基板上で $T_c = 15.6$ Kが得られ、この値は単結晶基板上やバルクの T_c と同程度である[2]。

4. まとめ

超伝導量子コンピュータの低損失高密度高周波ケーブルへの応用に向けて、低損失フレキシブル PTFE 基板上へ高 T_c -NbN 薄膜を製膜するための条件を検討した。室温製膜において、PTFE 基板上 NbN 薄膜は高い T_c を示し、高電流と N_2 分圧が高 T_c のキーファクターであることがわかった。

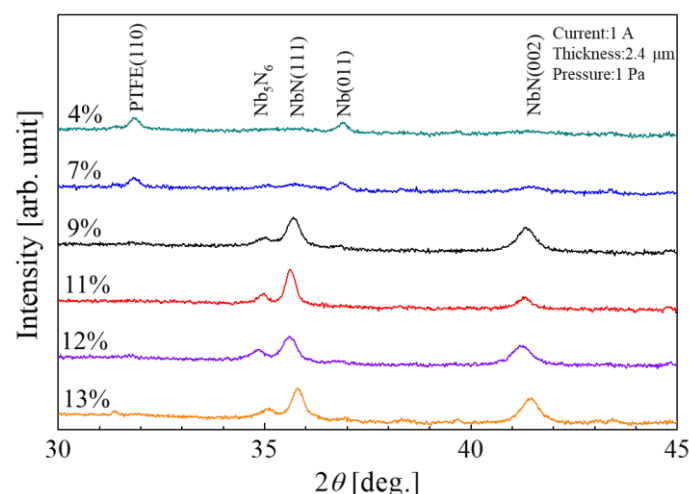


Fig.1 XRD θ -2 θ scans for NbN thin films on PTFE.

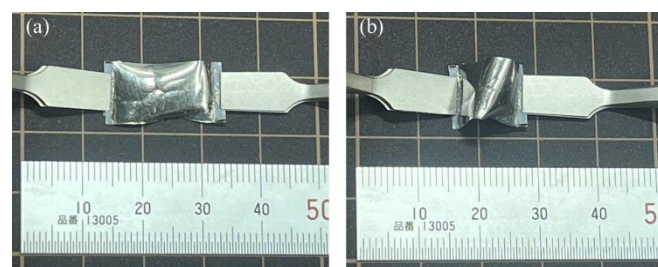


Fig.2 Photographs of NbN thin film on PTFE: (a)normal state and (b)bending state.

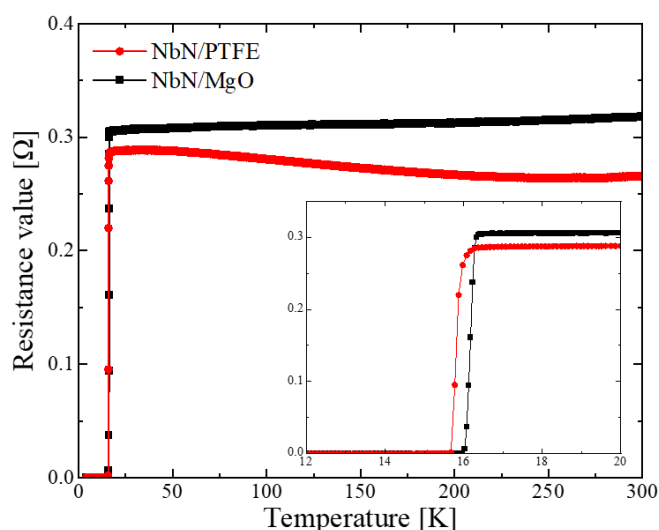


Fig.3 Temperature dependence of the resistance value for NbN thin films on PTFE and MgO.

参考文献

- [1] David B Tuckerman *et al.*, Supercond. Sci. Technol. **29**, 084007 (2016).
- [2] Zhen Wang *et al.*, J. Appl. Phys. **79**, 7837(1996).

水リフトオフ法を用いた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜の選択成長に関する検討

Study of selective growth of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin film by water lift-off technique

洪 超煌、田口聖也、中村匡祐、三田 祐、長尾雅則、[○]川江 健

C. Hong¹, S. Taguchi¹, K. Nakamura¹, T. Mita¹, M. Nagao², [○]T. Kawae¹

金沢大理工¹, 山梨大学²

¹College of Sci. & Eng. Kanazawa Univ., ²Univ. Yamanashi

E-mail: kawae@ec.t.kanazawa-u.ac.jp

【はじめに】

我々は潮解性酸化物・炭酸塩を犠牲層とする水リフトオフ (WLO) プロセスを提案し、配向制御した酸化物薄膜の選択成長について報告してきた^[1]。また、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) は著しい酸素不定比性を示すと同時に、銅酸化物高温超伝導体の中でも水に対する耐性が低いことが知られる。

そこで今回、WLO プロセスによる YBCO 薄膜の選択成長に関して、高圧水ジェット (HPWJ) を用いたプロセス高速化による YBCO 薄膜パターンの劣化に関する検討を行った。

【実験方法】

フォトリソグラフィによりレジストラインパターンを形成した (100) SrTiO_3 基板上に、PLD 法を用いて $a\text{-SrCO}_3$ 犠牲層を室温堆積した。アセトン浸漬によりレジスト除去・ $a\text{-SrCO}_3$ 犠牲層パターンを形成した試料に対し、PLD を用いて YBCO 薄膜を 720°C で堆積した。最後に HPWJ を用いて $a\text{-SrCO}_3$ 犠牲層の高速除去 (270sec) を行い、30~100 μm 幅の YBCO ラインパターンを形成した。作製した YBCO ラインパターンにフォトリソグラフィおよび真空蒸着法を用いて Ag 薄膜の 4 端子構造を形成した。

【結果と考察】

Fig.1 に HPWJ 処理前後における試料の XRD パターンを示す。HPWJ 処理後に STO 基板上に c 軸配向 YBCO が存在していることを確認した。また、YBCO (005) ピークの強度および半値幅に関して、HPWJ 処理前後で顕著な変化は見られなかった (Fig.1, inset.)。この結果より、HPWJ 処理によって作製された YBCO ラインパターンには著しい結晶性劣化は生じていないと考える。

Fig.2 に作製された YBCO ラインパターンの R - T 特性を示す。比較の為、一様堆積した YBCO 薄膜の結果も示す。作製された試料は明瞭な超伝導転移を示し、 T_c^{on} および ΔT は、それぞれ、82.8K・7.0K (一様堆積膜)、81.7K・7.2K (100 μm 幅) および 80.7K・10.0K (30 μm 幅) であった。極端なプロセスダメージは回避されたものの、ラインパターンの幅を狭くすることにより YBCO の超伝導特性が劣化したことは明白であると言える。今後は、HPWJ 条件や回復アニールを用いたプロセス最適化による最小加工寸法に関する検討を行う。

References

- [1] I. D. Antoro *et al.*, ECS J.Solid State Sci.Technol., **10**, 083005 (2021)

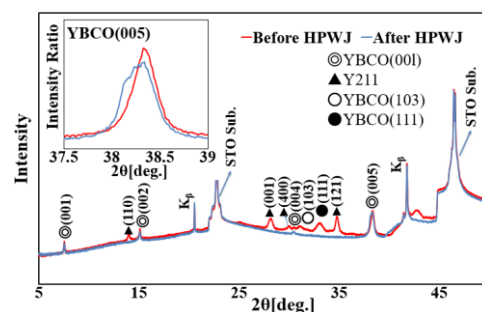


Fig.1 XRD patterns of YBCO before and after HPWJ treatment, and inset is magnified view of YBCO (005) peak.

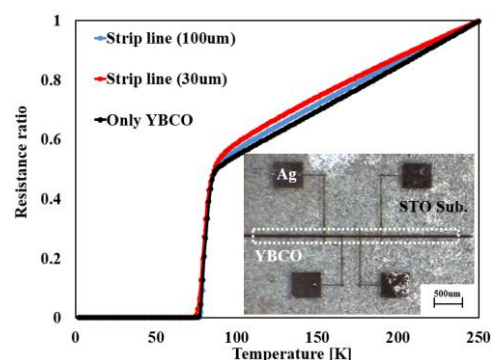


Fig.2 R - T curves of prepared YBCO strip-line and non-patterned film, and inset is optical microscope image of prepared YBCO strip-line structure.

自己配向 LaNiO_3 を利用した Si 基板上への c 軸配向 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 薄膜堆積 (3)

Deposition of c -axis oriented $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films on self-oriented LaNiO_3 coated Si substrate (3)

金沢大理工¹、(株)高純度化学研究所²、山梨大³

○(M1)三田 祐¹、(M2)中村匡佑¹、島村一利¹、河原正美²、長尾雅則³、川江 健¹

College of Sci. & Eng. Kanazawa Univ.¹,

Kojundo Chemical Lab. Co., Ltd.² Fac. of Eng. Univ. Yamanashi³

○T. Mita¹, K. Nakamura¹, K. Shimamura¹, M. Kawahara², M. Nagao³, and T. Kawae¹.

E-mail : tmita@stu.kanazawa-u.ac.jp

【はじめに】

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO) 薄膜を堆積させる基板材料に対する自由度の向上を念頭に、自己配向成長を示す LaNiO_3 (LNO, cubic, a :3.86Å) 薄膜^[1]をテンプレート層とした Si 基板上での YBCO 薄膜の作製を試みている。前回までに YBCO の酸素欠損抑制を目的とし、LNO の結晶性低下を考慮したアニール条件について報告した^[2]。今回、LNO 層からの Ni 拡散が YBCO 層の結晶性及び超伝導特性を劣化させている可能性に着目し、Ni 拡散抑制を目的とした、 SrRuO_3 (SRO, cubic, a :3.98Å) 緩衝層を新たに導入した YBCO/SRO/LNO/Si Sub.多層構造を形成し、結晶性及び超伝導特性を評価した。

【実験方法】

Si 基板上に LNO 原料溶液を回転塗布した後、オーブンでの乾燥、RTA(Rapid Thermal Annealing)を用いた仮焼、本焼を行った。自己配向 LNO 薄膜を堆積した基板上に、PLD(Pulsed Laser Deposition)法により SRO (基板温度: 750°C, O_2 : 0.1Torr)薄膜を堆積後、YBCO(基板温度: 720°C, O_2 : 0.1Torr)薄膜を堆積した。最後に、作製した積層膜表面に真空蒸着法を用いて Ag 薄膜の 4 端子構造を形成した。

作製した試料に対し、XRD(X-ray Diffraction)および電気抵抗-温度 (R - T) 測定による特性評価を行った。

【結果と考察】

Fig.1 に、作製した YBCO/SRO/LNO/Si Sub.に対する XRD パターンを示す。YBCO(00 l)と同時に SRO($h00$)の回折線が観測された。これは、自己配向 LNO に対して SRO、YBCO がエピタキシャル成長した結果と言える。また、観測された YBCO(005)の半値幅は 0.18 [deg.]であり、LNO 上に直接堆積させた YBCO 薄膜^[2]と同程度の結晶性を持つ YBCO 薄膜が成長可能であることが示唆された。

Fig.2 に同試料の R - T 特性を示す。 T_c^{on} : 83.7[K]の超伝導転移が確認された。さらに、室温から T_c^{on} の温度域において金属的な振る舞いが確認された。この結果から、SRO の導入により YBCO のキャリア密度が増加していることが考えられる。一方、 ΔT_c に関しては明確な改善は見られなかった。今後は、SRO の膜厚と LNO の熱履歴に関する検討を行い、成膜条件の最適化を図る必要がある。

【参考文献】

[1] R. Ashihara *et al.*, J. Ceram. Soc. Jpn., **32** 460-464 (2024)

[2] 三田 他, 第 72 回応用物理学会春季学術講演会講演予稿集, 16p-K206-2

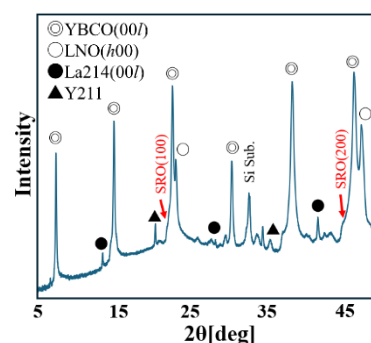


Fig.1 XRD pattern of YBCO/SRO/LNO/Si-Sub.

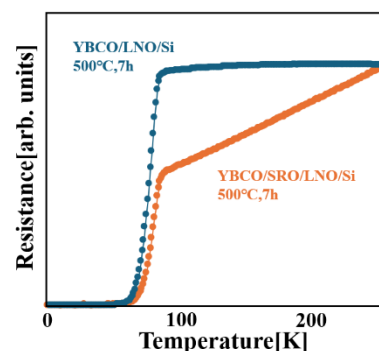


Fig.2 R - T characteristics of prepared YBCO/SRO/LNO/Si-Sub. structure.

中間熱処理温度が TFA-MOD 法(Y,Gd)Ba₂Cu₃O_y+BaHfO₃ 線材の 磁場中 J_c 特性に及ぼす影響

The effect of IHT temperature on in-field J_c for TFA-MOD (Y,Gd)Ba₂Cu₃O_y+BaHfO₃ CCs

成蹊大¹, JFCC², AIST³, JST-FOREST⁴

○大木元 勇貴¹, 川浪 隼也¹, 吉田 竜視², 加藤 丈晴², 中岡 晃一³, 和泉 輝郎³, 三浦 正志^{1,4}

Seikei Univ.¹, JFCC², AIST³, JST-FOREST⁴

○Yuki Ogimoto¹, Junya Kawanami¹, Ryuji Yoshida², Takeharu Kato², Koichi Nakaoka³, Teruo Izumi³ and
Masashi Miura^{1,4}

E-mail: dd246301@cc.seikei.ac.jp

1. はじめに

超伝導マグネット応用において、磁場中臨界電流密度 (J_c) は臨界温度 (T_c) と同じくらい重要なパラメータである。しかし、磁場中 J_c 特性は、量子化磁束の運動により磁場の増加に伴い急激に低下する。この課題の解決手法として、我々は、Trifluoroacetates Metal Organic Deposition (TFA-MOD) 法で作製した (Y_{0.77}Gd_{0.23})Ba₂Cu₃O_y ((Y,Gd)BCO) 線材に対してナノサイズの磁束ピンニング点 (BaHfO₃ (BHO)) を高密度に導入することにより、量子化磁束の運動を抑制し磁場中 J_c 特性を向上させることに成功した [1-2]。更なる特性向上には、母相の結晶性やキャリア濃度を維持しつつ超伝導体内に導入するナノ粒子の密度 (N_p) を最大化することが重要である [1]。

本研究では、TFA-MOD 法においてナノ粒子サイズ・密度制御において有効性が報告されている中間熱処理 (Intermediate Heating Treatment: IHT) を仮焼成と本焼成の間に挿入 [3]、その中間熱処理温度が (Y,Gd)BCO+BHO 線材の結晶性や超伝導特性に及ぼす影響を調べる。

2. 実験方法

TFA-MOD 法を用いて、金属基板上に (Y,Gd)BCO+12vol.%BHO 線材を作製した。中間熱処理における焼成時間を固定し焼成温度を 530 ~ 600 °C の範囲で変化させた。作製した (Y,Gd)BCO+BHO 線材の結晶性を X 線回折法、超伝導特性を四端子法、微細構造を透過型電子顕微鏡及びエネルギー分散型 X 線分光法を用いて評価した。

3. 実験結果

Fig. 1 に作製した (Y,Gd)BCO+BHO 線材の (a) c 軸配向性 ($\Delta\omega$)、(b) 面内配向性 ($\Delta\phi$)、(c) T_c 、(d) 自己磁場 J_c (77 K) 及び (e) 磁場中 J_c (77 K, 3 T) の IHT 温度依存性を示す。(a)-(c) より、すべての (Y,Gd)BCO+BHO 線材の結晶性及び T_c がほぼ一定の値を示すことから、IHT 温度を変えても超伝導母相に大きな影響を及ぼさないことが分かる。一方で、(d) 及び (e) に示すように、 J_c 特性は中間熱処理温度によって変動し、磁場中 J_c 特性は $T_{IHT} = 570$ °C の試料において最大値 ($J_c = 0.76$ MA/cm² (77 K, 3 T)) を得た。特に磁場中 J_c 特性にお

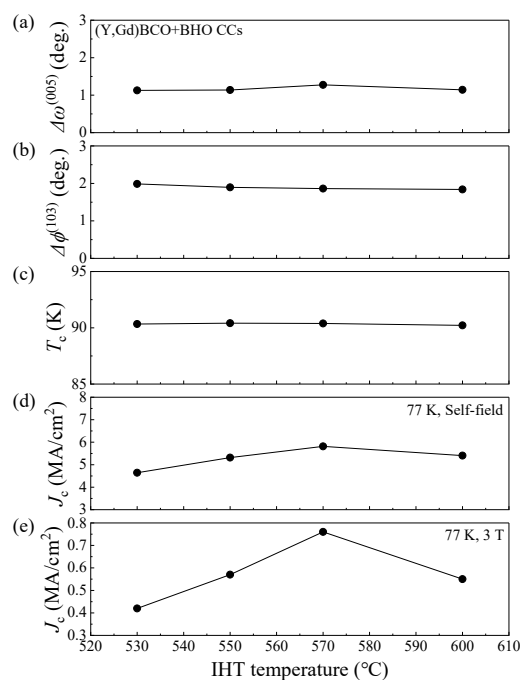


Fig. 1 IHT temperature dependence of (a) $\Delta\omega$, (b) $\Delta\phi$, (c) T_c , (d) J_c (77 K, Self-field) and (e) J_c (77 K, 3 T) for (Y,Gd)BCO+BHO coated conductors.

いて大きな差が生じたことから、IHT 温度の違いが BHO ナノ粒子のサイズや密度に影響を及ぼしたことが考えられる。当日は、微細構造観察及び X 線回折法の結果を基に詳細に報告する。

謝辞

本研究は、JST 創発的研究支援事業 (FOREST) JPMJFR202G の支援を受けたものである。また、本研究の一部は JSPS 科研費 (23K26147 及び 23KK0073) の助成を受け実施したものである。

参考文献

- [1] M. Miura *et al.*, *NPG Asia Materials* **9** (2017) e447.
- [2] M. Miura *et al.*, *NPG Asia Materials* **14** (2022) 85.
- [3] K. Nakaoka *et al.*, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **26** (2016) 800304.

PLD 法におけるプルーム画像の RGB 解析

RGB Analysis of plume images in the PLD method

九工大¹, 名大², 愛工大³, 電中研⁴, JST-CREST⁵

○(M2)八谷達磨¹, (B4)中尾匠治¹, 一野 祐亮^{3,5}, 一瀬 中^{4,5}, 堀出 朋哉^{2,5},
松本 要^{2,5}, 吉田 隆^{2,5}, 堀尾 恵一^{1,5}

Kyushu Inst. of Technol.¹, Nagoya Univ.², Aichi Inst. of Technol.³, CRIEPI⁴, JST-CREST⁵,

○T. Hachiya^{1,5}, S. Nakao^{1,5}, Y. Ichino^{3,5}, A. Ichinose^{4,5}, T. Horide^{2,5},
K. Matsumoto^{2,5}, Y. Yoshida^{2,5}, K. Horio^{1,5}

E-mail: hachiya.tatsuma306@mail.kyutech.jp

1. はじめに

我々はPLD法による薄膜生成の再現性向上およびプロセス安定化を目指しており、本稿では、ターゲット上に発生するプルームの色と材料やプロセスパラメータとの関係性を考察する。

2. 実験条件とプルーム画像の特徴量

ターゲットの材料として混合比を変えたものを含めて9種類用意し、パラメータは酸素分圧とレーザー強度をそれぞれ3通り変化させ、合計81条件のプルームを撮影し、各条件で10枚ずつ画像を抽出した。Fig.1に示すようにプルームの中心から右方向および上方向に45画素のRGB強度をプルームの特徴量とした。つまり、各プルームを270次元のベクトルで表現した。810データ(10枚×81条件)に対して主成分分析を適用し、それらの分布に基づき考察する。

3. 結果および考察

Fig. 2 に第一主成分に影響を及ぼした正

負それぞれ上位8つの特徴量と、第一主成分軸上における最大の条件(材料:BHO, 酸素分圧:1000mTorr, レーザー強度:30mJ)と、最小の条件(材料:CeO2, 酸素分圧:400mTorr, レーザー強度:50mJ)のRGB値を示す。プルーム外縁の靄のような淡い光の部分のG値と、プルームの材料やパラメータに関連があることが示唆された。これから結果をもとに詳細な解析を進めている。

謝辞

本研究は、JST, CREST, JPMJCR2336の支援を受けたものである。

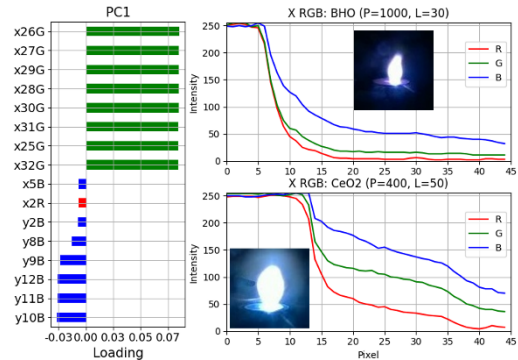


Fig. 2 Features which contribute to PC1.

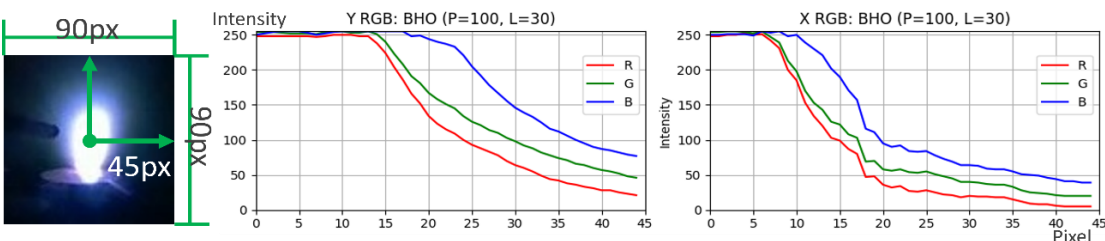


Fig. 1 Example of Plume Image and its RGB intensities in horizontal and vertical axes.

薄膜生成プロセスにおけるプルーム画像の色情報に関する考察

Analysis of color information of plume images in thin film deposition process.

九工大¹, 名大², 愛工大³, 電中研⁴, JST-CREST⁵

○(B4) 中尾匠治^{1,5}, (M1) 八谷達磨^{1,5}, 一野 祐亮^{3,5}, 一瀬 中^{4,5}, 堀出 朋哉^{2,5},

松本 要^{2,5}, 吉田 隆^{2,5}, 堀尾 恵一^{1,5}

Kyushu Inst. of Technol.¹, Nagoya Univ.², Aichi Inst. of Technol.³, CRIEPI⁴, JST-CREST⁵,

○S. Nakao^{1,5}, T. Hachiya^{1,5}, Y. Ichino^{3,5}, A. Ichinose^{4,5}, T. Horide^{2,5},

K. Matsumoto^{2,5}, Y. Yoshida^{2,5}, K. Horio^{1,5}

E-mail: nakao.syouya@mail.kyutech.jp

1. はじめに

PLD 法による薄膜生成において、プルームの形状や色と材料との関係性の解析を行った。プロセスパラメータであるレーザー強度と酸素分圧を変化させ、各環境下で約1分間プルームを撮影した。9種類の異なる材料を用いた。各動画から80×80画素のプルーム画像を抽出し、その画像に基づき材料を推定することで、画像の各種特徴量と材料との関係性を検討した。

2. 特徴量算出

本研究では、プルームの色に着目し、特徴量として、プルーム周辺のコヤ領域のRGBの各平均値、輪郭部のRGBの各平均値、輪郭部のRGB値の各組合せの相関係数を採用した。コヤ領域の抽出では、Fig. 1に示すようにノイズとなる画像下部30画素と白い領域を除去した残り領域をコヤとし、これらの画素のRGB値の各平均を算出した。



Fig 1. Process for extracting hazy area.

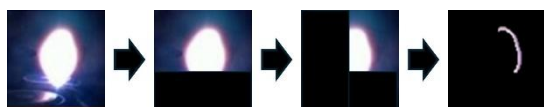


Fig 2. Process for extracting contour area.

輪郭領域は、Fig. 2に示すように画像右上の40×40画素のみを対象とし、白い領域の右上3画素分を輪郭領域とし、RGB値の各平均を算出した。輪郭領域に関して更にRGBの各組合せで相関係数を算出した。

3. LightGBMによる分類および考察

LightGBMによりプルーム画像を9つの材料に分類する実験を行い、分類に際してどの特徴量が重要であるかを考察した。Fig. 3にBHOとその他の材料を分類する際のSHAP値を示す。図から、例えば、BHOのプルーム画像は輪郭領域のRとGの相関係数が他材料と比較して低い傾向にあることなどが示唆された。

謝辞

本研究は、JST, CREST, JPMJCR2336の支援を受けたものである。

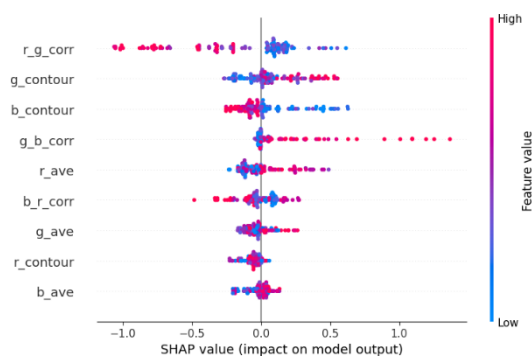


Fig 3. SHAP plot in classifying BHO from other materials.

パルスレーザー堆積法におけるモデル予測制御によるプルーム形状制御

Plume shape control by model predictive control in pulsed laser deposition

名大工 〇(M2)川端 康介, 堀出 朋哉, 吉田 隆

Nagoya Univ., 〇Kosuke Kawabata, Tomoya Horide, Yutaka Yoshida

E-mail: kawabata.kosuke.i5@s.mail.nagoya-u.ac.jp

YBa₂Cu₃O_{7-y}(YBCO)線材は核融合、電動航空機、MRI、NMR などへの応用が期待されている。これらの応用に向けて km 級の長さの線材を作製する必要がある、km クラスの長さにわたる均一な特性が求められる。YBCO 線材の成膜方法として、パルスレーザー堆積 (PLD) 法が複数のメーカーで使われている。PLD はパルスレーザーを照射し構成物質をプラズマ化させ堆積させる成膜手法である。このプラズマ化の際にプルームが発生するが、プルームの形状は雰囲気酸素圧力やレーザーエネルギーによって変化し、薄膜の特性に影響を与える。製造装置の安定性には限界があり、酸素圧力やレーザーエネルギーが意図せず変化してしまう。そこで我々は、PLD 法における成膜の均一性を向上させることを目的として、成膜中のプルーム情報をリアルタイムでモニタリングし、成膜中にプルームの状態を一定にする技術の開発を進めることを目的とした。

本研究では、プルームをカメラでリアルタイムに撮影し、プルーム状態の時間変化を計測した。さらにプルーム状態の時間発展を予測することができれば、プルームサイズの変化が致命的になる前に前もって制御を行うことができ、プルーム状態が最適範囲から一度もずれることのない成膜を実現できる可能性がある。本研究では、プルームの状態の変化を時系列データとして取得し、時系列解析を用いてその時間発展モデルを構築した。プルームの状態の意図しない変化は製造装置の安定性に起因するもので、何が起きているかを理解することは難しい。そこでプルームの時系列変化予測にデータ科学を用いる。プルームサイズの時系列データをもとに時系列予測モデル prophet を用いて将来のプルームサイズの変化をデータ科学的に予測した。

図 1 にプルームの写真を示す。画像からプルームの明るい部分のサイズ(高さ)と幅)を制御対象パラメータとして抽出した。図 2 はプルーム高さの時間変化を示す。赤線は予測結果を示す。予測結果と観察結果はよく一致しており、プルーム高さの時間変化を予測することに成功した。プルーム予測を制御に組み込み、プルームサイズを一定とする制御について報告する。さらに臨界電流密度のプルームサイズ依存性を予測制御に組み込みプルームサイズでなく臨界電流密度を一定に保つ制御についても報告する予定である。

謝辞 本研究の一部は、JST, CREST(JPMJCR2336)からの助成を受けて実施した。



Fig.1 Optical photograph of plume.

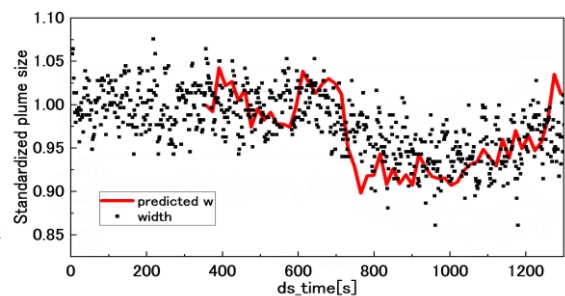


Fig.2 Time series data of standardized plume size during deposition.

高酸素分圧下 RHEED 像の画像処理による鮮明化技術

Clarification technology by image processing for RHEED images under high oxygen partial pressure

名大工¹, 愛工大², 電中研³, 九工大⁴, ○竹市朋央¹, 一野祐亮², 一瀬 中³, 堀尾恵一⁴,

松本 要¹, 堀出朋哉¹, 吉田 隆¹,

Nagoya Univ.¹, Aichi Inst. of Technol.², CRIEPI³, Kyushu Inst. of Technol.⁴,

T. Takeichi¹, Y. Ichino², A. Ichinose³, K. Horio⁴, K. Matsumoto¹, T. Horide¹, Y. Yoshida¹

E-mail: takeichi.tomohiro.h0@s.mail.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

超伝導線材の製品化、量産には、製品の均一化や品質の一定の保証が求められる。そのためには、成膜条件のリアルタイム制御が必要であり、超伝導体成膜中の *in-situ* 観測が重要となる。*in-situ* 観測の方法の1つとして、反射高速電子線回折 (RHEED) 法が挙げられる。RHEED 法は高真空中における運用が一般的である。主に分子線エピタキシー (MBE) 法において用いられており、近年では機械学習を用いた解析も進んでいる[1]。しかし、REBa₂Cu₃O_y といった高酸素分圧下で成膜する結晶に対して、電子線は酸素によって散乱される。その結果、強度が弱く、不鮮明な像となり、活用が進んでいないといった問題がある。

そこで本研究では、酸素により不鮮明となった RHEED 像を、画像処理を用いて鮮明化することを検討した。

2. 実験方法

YBa₂Cu₃O_y (YBCO) と格子定数が近く、YBCO 膜の基板に用いられる SrTiO₃ (STO) (100) 単結晶を対象にして RHEED 像の撮影を行った。また、カメラは Basler 製の acA720-290gm を使用した。基板温度は 900 °C に固定した。電子線は加速電圧、エミッション電流それぞれ 20 kV、21 pA とした。撮影条件は露光時間、ゲインそれぞれ 50 ms、60 で撮影した。酸素分圧 10 Pa で撮影を行った。

撮影された RHEED 像は適用的ヒストグラム平坦化 (CLAHE) を用いて画像処理を行った。ヒストグラム平坦化とは、ヒストグラムの偏りを解消する処理である。CLAHE では画像をいくつかの区間に分割し、それぞれの区間でヒストグラム平坦化を行う。その結果、画像の場所によって輝度のムラがあった場合においても、均一に整えることができる。Fig. 1 に画像処理の流れと、その時の画像の様子を示す。黄色の線は CLAHE における分割区間であり、区間を変化させて 2 回処理を行った。分割方法はそれぞれ、8 × 8、4 × 4、コントラスト制限は 3.0 とした。

3. 結果と考察

Fig. 2 に酸素分圧 10 Pa における RHEED 像について、画像処理前後を比較した画像を示す。一番左のストリークにおいて、原画像では不鮮明であった特徴が、画像処理によってはっきりと見えている様子が確認できる。また、左

下へ斜め方向に伸びている菊池線については、画像処理によって形状や先端まで見ることができる。当日は、他の酸素分圧における画像処理結果や、STO だけでなく MgO (100) 単結晶や *c* 軸配向 YBCO 膜といった他の試料に対する RHEED 画像の画像処理についても報告する予定である。

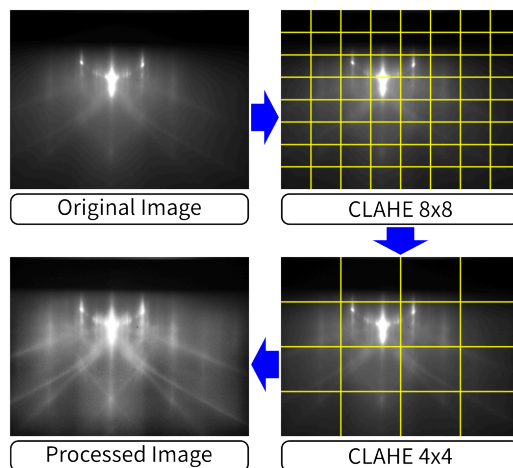


Fig. 1 Image processing pipeline and each image

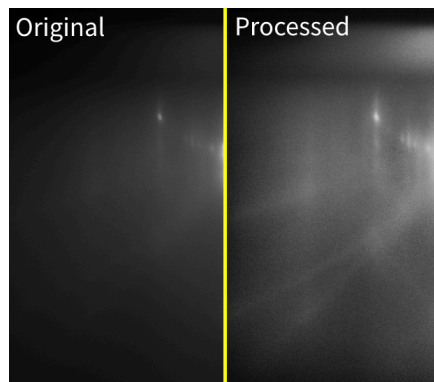


Fig. 2 Comparison between original and processed RHEED image (STO (001), $P_{O_2} = 10$ Pa)

謝辞

本研究は、JST、CREST(JPMJCR2336)からの助成を受けて実施した。

参考文献

- [1] S. R. Provence *et al.*: *Physical Review Materials* 4, 83807 (2020).

表面改質基板を用いた YBCO 線材のマルチフィラメント化

Fabricating multi-filament $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ coated conductors using surface-modified substrates for crystal alignment control

九大工¹, NIMS² ○寺西亮¹, 藤本大貴¹, 和田大生¹, 河原康仁¹, 立木 実², 松本明善²

Kyushu Univ.¹, NIMS² ○Ryo Teranishi¹, Hiroki Fujimoto¹, Taiki Wada¹, Yasuhito Kawahara¹, Minoru Tachiki², Akiyoshi Matsumoto²

E-mail: Teranishi.ryo.438@m.kyushu-u.ac.jp

【緒言】 $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (REBCO)線材の交流損失低減には超伝導層内での磁束の移動を抑制するためのマルチフィラメント化が有用で、これまでに線材作製後にレーザー加工などのトップダウン方式での低損失化が進められている[1]。これに対して、我々はボトムアップ方式によるマルチフィラメント化を提案している[2, 3]。この手法では、REBCO 膜の成膜に先立ち、多結晶金属のストライプを基板上に意図的にパターン形成したのち超伝導層を成膜することで、ストライプ部分の直上のみに非超伝導領域が形成されるよう条件を検討している。本研究では、ストライプ材料の違いが超伝導層の組織に及ぼす影響を調査した。

【実験方法】二段階の成膜プロセスを用いてマルチフィラメント化を行った。まず、Zr や Nb などの金属ストライプをフォトリソグラフィ技術で SrTiO_3 (STO)基板上に個別にパターン形成した。次に、三フッ化酢酸塩溶液 (TFA) を用いた塗布熱分解法 (MOD) にて YBCO を成膜した。なお、ストライプは約 5、10、15、20 μm の 4 種類の幅で一枚の基板上にパターン形成した。作製した YBCO 膜は断面の (走査) 透過型電子顕微鏡により微細組織を観察し、Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (STEM-EDS)により元素分布を評価した。

【結果と考察】Fig.1(a)および(b)は、約 5 mm 幅の Zr および Nb ストライプ上に作製した YBCO 膜部分の断面 STEM 像をそれぞれ示す。YBCO 層、ストライプ部分、STO 基板の 3 つの異なる相がコントラストの違いから識別され、ストライプの幅はいずれも約 4.0 μm と観察された。YBCO 層内部には非超伝導領域と思われる粒子が複数観察され、EDS の結果から、YBCO マ

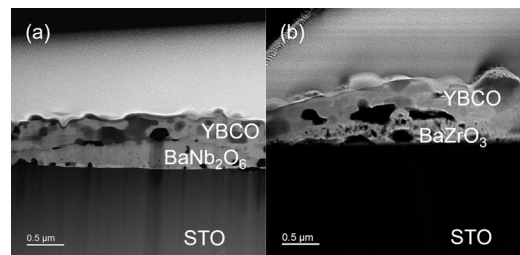


Fig. 1. Cross-sectional HAADF-STEM of YBCO on (a)Nb stripe (b)Zr stripe

トリックス中に Y-Cu-O および Cu-O 粒子、Zr ストライプ内に BaZrO_3 および Zr-O 化合物、Nb ストライプ内に BaNb_2O_6 が生成していることが分かった。また、Y-Cu-O や Cu-O の数は、Zr 上の YBCO 層よりも Nb 上の YBCO 層の方が著しく多く観察された。

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 22H02019 および 22H02021, ならびに NIMS の Joint Research Hub Program の助成を受けて実施した。

[1] A. C. Wulff et al., Supercond. Sci. Technol., 28, 2015, 072001.

[2] A. Matsumoto et al., IEEE Trans. Appl. Supercond., 34, 3, 2024, 7500404

[3] H. Fujimoto et al., IEEE Trans. Appl. Supercond., 34, 3, 2024, 7500604

YBa₂Cu₃O_y 超伝導線材の剥離挙動の観察と剥離原因の考察

Observation of Delamination Behavior and Investigation of Delamination Causes in YBa₂Cu₃O_y coated conductor

九大工¹, NIMS² ○(M1)川岸 勇介¹, 和田 大生¹, 立木 実², 松本 明善², 寺西 亮¹

Kyushu Univ.¹, NIMS² ○Yusuke Kawagishi¹, Taiki Wada¹, Minoru Tachiki², Akiyoshi Matsumoto², Ryo Teranishi¹

E-mail: kawagishi.yusuke.516@s.kyushu-u.ac.jp

【緒言】YBa₂Cu₃O_y (YBCO) 線材は多層構造を持つ超伝導線材であり、高磁場中での優れた臨界電流密度を持つことから超伝導コイルへの試験的な応用が進められている。コイル応用における課題の1つが電磁力による線材の剥離である。YBCO 線材の構造は様々で個別具体的な剥離特性の評価が必要であり、典型である CeO₂ キャップ層を有する YBCO 線材の剥離特性は盛んに研究されている。また、近年 LaMnO₃ (LMO) キャップ層を有する線材の開発も進められており、その剥離特性評価も重要である。そこで本研究は LMO キャップ層を有する YBCO 線材の剥離挙動の観察と剥離原因の考察を目的とした。

【実験方法】本実験では Faraday Factory Japan 社製 YBCO 線材 (4 mm 幅) を 1 cm 長に切断したものを使用した。ピンプル法[1]を参考に自作した治具を用いて線材長手方向に垂直に剥離した。走査型電子顕微鏡 (SEM)、エネルギー分散型 X 線分光法 (EDS) により剥離表面の微細観察を行い、元素マッピング画像を取得した。

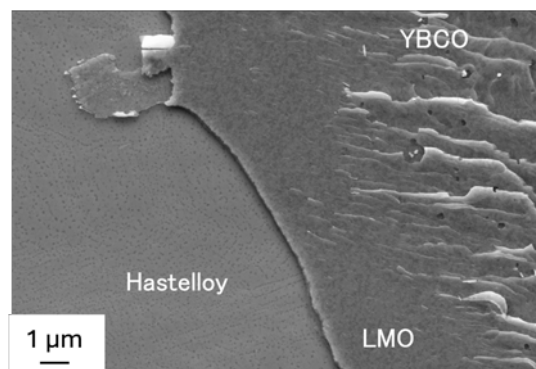


Fig.1 A SEM image of the delaminated surface

【結果と考察】Fig.1 には剥離表面の SEM 像を示す。写真上下方向の段差とみられるコントラストを境に、右側に波状の組織、左側に一様な凹みのある組織、中央右側に平滑な組織が観察された。同視野の元素マッピング画像と比較したところ、波状の組織は YBCO 層、一様な凹みのある組織は Hastelloy 金属基板、平滑な組織は LMO 層と判明した。この観察結果をもとに、Fig.2 には剥離箇所の模式図を示している。ここで、Fig.1 で YBCO 層のみが大きく破壊されていることから、YBCO 層の強度が比較的低いことが推察される。Yan Xin[2]らは、REBCO/LMO 界面の脆弱性は、界面に存在する転位によると考察している。このことから、本研究における YBCO 層内での剥離の原因は、YBCO 内部に存在する転位や空孔などの格子欠陥による層内の脆弱性であると考えられる。

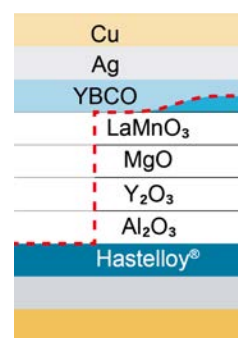


Fig.2 A schematic of layer structure of YBCO tape (not to scale). Delamination interfaces are indicated by dashed line.

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 22H02019 および 22H02021, ならびに NIMS の Joint Research Hub Program の助成を受けて実施した。

[1] Shogo Muto et al. Supercond. Sci. Technol. 34 (2021) 075001.

[2] Yan Xin et al. K. IEEE Transactions on Applied Superconductivity. 35(2025) 6601405.

軽希土類元素をドーブした FF-MOD 法 Y123 薄膜の物性

Physical properties of light rare earth doped Y123 thin films prepared by FF MOD method

青学大理工 ○ 嶋 直輝, 相楽 和豊, 元木 貴則, 下山 淳一

Aoyama Gakuin Univ. ○ Naoki Hata, Kazutoyo Sagara, Takanori Motoki and Jun-ichi Shimoyama

E-mail: c5625076@aoyama.jp

1. はじめに

RE123 薄膜作製方法の一つであるフッ素フリー有機機金属塗布熱分解(FF-MOD)法は、RE123 相の生成が非常に速く^[1]、簡便な常圧下での焼成装置のみで作製することができるため、本来、最も量産化に適した手法であるが、結晶性が高い、つまり有効なピン止め中心となる欠陥密度が低く、磁場中の J_c が低いことが課題である。イオン半径が比較的大きい Nd, Sm, Eu などの軽希土類を用いた RE123 は、 T_c が約 94 K と高く、より高温、高磁場応用に適した薄膜線材として期待されている。しかし、これらの RE は Ba サイトに部分置換しやすく、置換が微量の場合には、置換部位近傍が点欠陥的なピン止め中心となり臨界電流特性を改善するが、置換量が大きくなると超伝導特性が大きく劣化する。しかし、RE123 薄膜の作製では還元雰囲気下で結晶成長を行うこともあり、より精密な RE/Ba 固溶量の制御により臨界電流特性の向上が期待できる。以上の背景のもと、本研究では Y の一部を Nd や La に置換した Y123 薄膜を作製しそれらの物性を調べた。

2. 実験方法

RE123 の FF-MOD 原料溶液はあらかじめ固相反応法によって合成した RE123 粉末を直接プロピオン酸に溶解後、乾固させ、その粉末を有機溶媒に溶解することにより調製した。この溶液を 2 軸配向した酸化物表面を有する IBAD 基板上にスピコートより塗布、乾燥後、仮焼した。この塗布と仮焼を 3 回繰り返した後、様々な温度、酸素分圧下で本焼成を行い、最後に酸素アニールにより酸素量を制御することで RE123 薄膜を作製した。得られた試料について、XRD による相同定、光学顕微鏡による微細組織観察を行い、臨界電流特性は SQUID 磁束計を用いた磁化測定により評価した。

3. 結果と考察

Fig 1 に La を 1% 添加、Nd を 10% 置換した Y123 薄膜の表面 XRD パターンを示す。いずれの試料においても鋭い 00 l ピークが見られ、 c 軸配向した RE123 薄膜が得られた。Fig. 2 に La 1% 添加 Y123 薄膜の磁化率の温度依存性を示す。鋭い超伝導転移を示したもののわずか 1% の La 添加で T_c が大きく低下した。Fig. 3 に IBAD 基板上にまず Y123 薄膜(~150 nm)を成膜し、その上に作製した Nd 置換 RE123 薄膜の J_c の磁場依存性を示す。追加の 250°C までの酸素アニールにより J_c が向上する傾向が見られた。講演では La や Nd の組成を変えて作製した Y123 薄膜の超伝導特性と微細組織についても報告する。

参考文献

[1] Y. Ishiwata *et al.*, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **23** (2013) 7500804

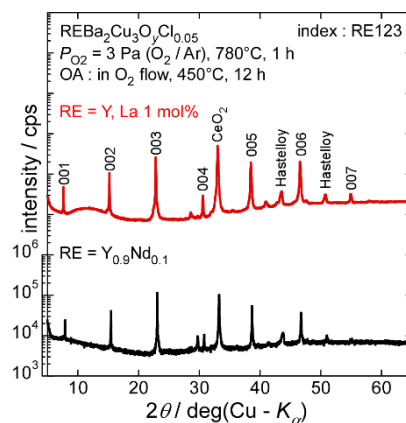


Fig. 1. Surface XRD patterns of RE123 thin films (RE = Y, Y_{0.9}Nd_{0.1}) grown on IBAD substrates.

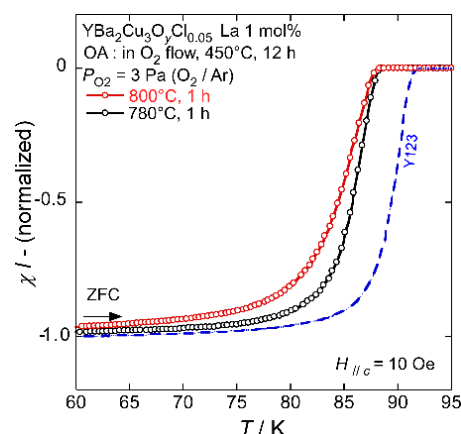


Fig. 2. ZFC magnetization curves of 1% La-added Y123 thin films.

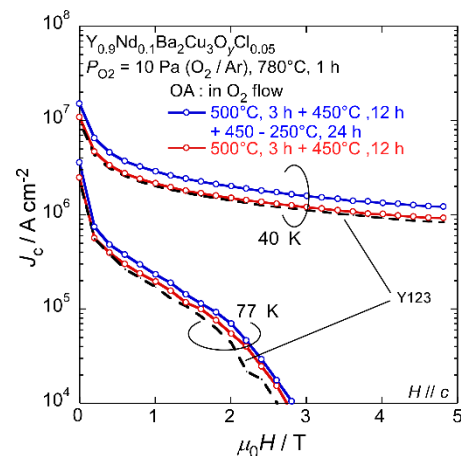


Fig. 3. J_c - H curves of Y_{0.9}Nd_{0.1}123 thin films at 40 and 77 K.

銀保護層が低温アニール時に RE123 薄膜に及ぼす影響

Effects of Ag protection layer on RE123 thin films during low temperature annealing

青学大理工¹, 住友電工²

○下山 淳一¹, 相楽 和豊¹, 畠 直輝¹, 元木 貴則¹, 吉原 健彦², 本田 元気², 小林 慎一²

Aoyama Gakuin Univ.¹, Sumitomo Electric Industries, Ltd.²

○Jun-ichi Shimoyama¹, Kazutoyo Sagara¹, Naoki Hata¹, Takanori Motoki¹

Tatsuhiko Yoshihara², Genki Honda², Shinichi Kobayashi²

E-mail: shimo@phys.aoyama.ac.jp

様々な RE123($\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$)薄膜線材に対して、酸素欠損量 δ を小さくし、キャリアの弱いオーバードープ状態にすることが臨界電流特性の向上に有効な普遍的な戦略であることを前回の学会で報告した^[1]。その一連の実験のなかで、銀保護層の有無が低温での酸素アニール時の酸素溶解挙動に大きく影響し、銀保護層がある場合には短時間のアニールで 90 K 級の T_c を示すが、銀保護層がない場合にはより長時間のアニールが 90 K 級の超伝導体になるまでに必要であることを見出した。銀と RE123 薄膜の界面において、より速やかに酸素が RE123 結晶内に取り込まれるようになったことが考えられるが、その機構は不明である。市販されている RE123 薄膜線材の多くは銀保護層を設けた後に酸素アニールを行って製造されるが、このときにも銀と RE123 の界面の寄与によって酸素導入がより速やかに進んでいることが考えられる。一方、我々は Gd123 薄膜の表面に 20 nm 程度の薄い銀層を載せ 600°C 以下の低温でアニールすると、銀層が消失し Gd123 の 00l 面の X 線回折ピークがブロードになり、Gd123 薄膜内に積層欠陥が生じることを報告してきた^[2]。通常の RE123 薄膜線材では厚さ 2 μm 程度の銀保護層を堆積するため、アニール前後の銀層表面の変化は認められないが、RE123 層に銀が何らかの影響を与えている可能性が高い。以上の背景のもと、本研究では IBA 基板上に Gd123 薄膜を結晶化させた後、還元雰囲気下で冷却したアンダードープ状態の超伝導を示さない線材の Gd123 層(2.2 μm)上に、スパッタリングにより厚さ 200 nm の銀層を載せた試料について、低温でのアニール条件と超伝導特性の関係を調べている。

Fig. 1 は銀層を設けた Gd123 薄膜に対して酸素気流中 250°C で 36 時間アニールした後、さらに同じ試料に 240°C, 48 時間の追加酸素アニールを行った後の試料の 10 Oe 下で調べた磁化率の温度依存性を示す。250°C は通常の酸素アニール過程の最高温度としては異例の低い温度であるにもかかわらず、36 時間アニール後の試料は 90 K 級の超伝導体となり、77 K、低磁場の J_c は 1 MA cm⁻² を超えた。しかし、追加酸素アニールを 240°C で 48 時間行った後には T_c が低下し、転移もブロードになり、77 K、低磁場の J_c も 0.6 MA cm⁻² に低下した。Fig. 2 に銀層を設けた直後と追加酸素アニールまで行った後の試料の表面 XRD パターンを示す。銀層が薄いので、Gd123 の回折ピークが明瞭に現れ、銀層を設けた直後は酸素量が少ないため c 軸が長く、追加酸素アニール後には c 軸が短縮し酸素を導入できたことが確認できたが、ピークはブロードになり強度も低下した。これは積層欠陥の生成を示唆するものである。講演では銀保護層を設けた後の RE123 薄膜に対する酸素アニール過程について酸素量制御と積層欠陥生成制御の観点から議論する。

[1] 下山ほか、第 72 応用物理学会春季学術講演会 16p-K206-7

[2] 大崎ほか、第 70 応用物理学会春季学術講演会 16p-D221-11

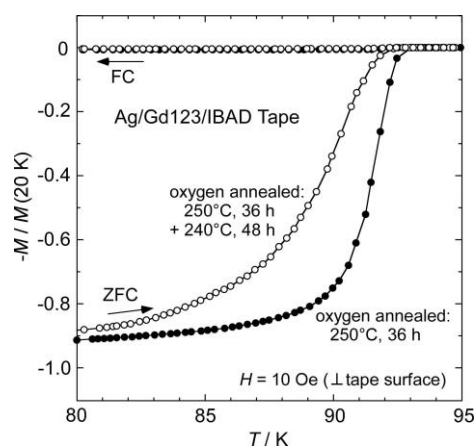


Fig. 1 ZFC and FC magnetization curves of Gd123/IBAD tapes after oxygen annealing.

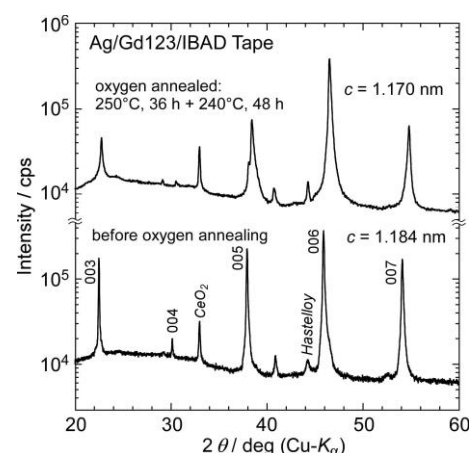


Fig. 2 Surface XRD patterns of Gd123/IBAD tapes before and after oxygen annealing.

11 Superconductivity Oral presentation : 11.3 Critical Current, Superconducting Power Applications
--

[10a-N404-1~8] 11.3 Critical Current, Superconducting Power Applications

[10a-N404-1]

In-field Critical current density in YBCO nanocomposite films fabricated at high-speed deposition rate

○Ryoya Jindo¹, Tomoya Horide¹, Nao Ikemoto², Manabu Ishimaru², Yutaka Yoshida¹ (1.Nagoya Univ., 2.Kyushu Inst. Technol.)

[10a-N404-2]

Gaussian Process Regression analysis for critical current density in YBa₂Cu₃O_y+BaHfO₃/YBa₂Cu₃O_y multilayer

○Shunta Ito¹, Ataru Ichinose², Tomoya Horide¹, Yutaka Yoshida¹ (1.Nagoya Univ., 2.CRIEPI)

[10a-N404-3]

Analysis of critical current in network-patterned YBa₂Cu₃O_{7-y} films using maximum flow problem.

○Ryoga Nagae¹, Tomoya Horide¹, Takuya Ohwa², Yutaka Yoshida¹ (1.Nagoya Univ., 2.Kyushu Inst of Tech.)

[10a-N404-4]

Flux Pinning Effect of Spherical Irradiation Defects Arranged in Serial in High- T_c Superconducting Tapes (2)

○Tetsuro Sueyoshi¹, Hiroaki Matsui², Toshinori Ozaki³, Hitoshi Sakane⁴, Terukazu Nishizaki⁴ (1.Kyushu Sangyo Univ., 2.AIST, 3.Kwansei Gakuin Univ., 4.SHI-ATEX Co., Ltd.)

[10a-N404-5]

Local Current Density Characterization for Combinatorial REBCO Film by Transient Liquid-Assisted Growth

○Zeyu Wu¹, Kohei Higashikawa¹, Albert Queralto², Emma Ghiara², Cornelia Pop², Kapli Gupta², Xavier Obradors², Teresa Puig², Takanobu Kiss¹ (1.Kyushu Univ., 2.ICMAB-CSIC)

[10a-N404-6]

Investigation of Degradation Factors in Superconducting Properties Induced by the Sonic Welding Process of Cu-Stabilized REBCO Coated Conductors

○Shinya Sera¹, Zeyu Wu¹, Kenji Suzuki², Kohei Higashikawa¹, Takanobu Kiss¹ (1.Kyushu Univ., 2.RTRI)

[10a-N404-7]

Development of a fabrication method for A₃C₆₀ (A = K, Rb, Cs) bulk superconductors

○Akira Iyo¹, Hiroshi Fujihisa¹, Yoshito Gotoh¹, Shigeyuki Ishida¹, Hiroshi Eisaki¹, Hiraku Ogino¹, Kenji Kawashima^{1,2} (1.AIST, 2.IMRA JAPAN)

[10a-N404-8]

Critical current density of A₃C₆₀ (A=alkali metal) bulk superconductor

○(M1)Hiroki Hasegawa¹, Akira Iyo², Hiroshi Fujihisa², Yoshito Gotoh², Shigeyuki Ishida², Hiroshi Eisaki², Hiraku Ogino², Kenji Kawashima³, Mariko Murayama¹, Taichiro Nishio¹ (1.Tokyo Univ. of

高速成膜した YBCO ナノコンポジット膜の磁場中臨界電流密度制御

In-field Critical current density in YBCO nanocomposite films fabricated at high-speed deposition rate

名大工¹, 九工大² 神道 凌也¹, 堀出 朋哉¹, 池本 直生², 石丸 学², 吉田 隆¹

Nagoya Univ.¹, Kyushu Inst. Technol.² Ryoya Jindo¹, Tomoya Horide¹, Nao Ikemoto²,

Manabu Ishimaru², Yutaka Yoshida¹

1. はじめに

高温超伝導体である $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (REBCO) は、高磁場環境での運用が想定されるコンパクト核融合炉などへの応用が期待されている。REBCO において最も重要な特性の一つが臨界電流密度 (J_c) である。常伝導物質を添加することで人工ピンニングセンターを導入し、磁場中 J_c の向上を図る研究が進められてきた。ナノスケールの格子欠陥、ナノ粒子、ナノロッドが導入されてきた。Pulsed Laser Deposition (PLD) 法では、 BaMO_3 (BMO) を導入しナノロッドを形成することが有効である。これまでの研究で BaZrO_3 、 BaSnO_3 、 BaHfO_3 、 Ba_2NbYO_6 などがナノロッド材料として検討されてきた。ナノロッドのサイズ、密度、直線性などのナノロッドに関する因子に加え、YBCO マトリックスの欠陥や組成も J_c に影響する。したがってナノロッドによって高いピンニング特性を実現するには条件の最適化が必要である。

産業への応用に向けて、成膜コストに直結する成膜速度を向上させる必要がある。しかし成長速度を向上させることによりナノロッドの形態やマトリックスの結晶性などが大きく変化すると考えられる。これまでのナノロッドを導入した YBCO 膜の構造や特性の学術的な研究は、低速で成長させた膜を用いて行われてきた。高速成長した場合には、構造が変化し、特性制御のための手法も異なってくる可能性がある。本研究では高速成膜した YBCO 薄膜の磁場中特性の評価を行った。低速成膜した YBCO 膜の構造や特性と比較することにより、高速成膜の影響を議論した。その上で高速成膜での YBCO ナノコンポジット膜の特性制御のために Nb ドープ BaHfO_3 (BHO) を添加した YBCO 薄膜を作製し、評価を行った。高速成膜した YBCO ナノコンポジット膜の特性とその制御について議論する。

2. 実験方法

Reel to Reel チャンバーを用いた PLD 法により、最表面層は CeO_2 として Ion beam assisted deposition 基板上に無添加 YBCO 薄膜、BMO 3 vol.% 添加 YBCO 薄膜した。レーザー繰り返し周波数を 10 Hz (低速成膜)、100 Hz (高速成膜) とした。さらに Nb ドープ BMO₃ を 3 vol.% 添加した YBCO 薄膜も周波数 100 Hz で作製した。各薄膜の結晶配向性と磁場中臨界電流密度を評価した。薄膜の結晶配向性の評価として Rigaku 社製 SmartLab を用いた 2θ - ω 測定、Rocking-curve 測定、 ϕ -scan 測定を行った。電流特性の評価は UV レーザーマーカーを用いたエッチングにより長さ 1 mm、幅 100 μm のブリッジを作製し、カンタムデザイン社製の Physical Property Measurement System (PPMS) を用いて、直流四端子法により測定した。 J_c の電界基準は 1 $\mu\text{V}/\text{cm}$ とした。

3. 実験結果及び考察

Fig. 1 に低速成膜した BMO 添加 YBCO 薄膜 (BMO 10 Hz)、高速成膜した BHO 添加 YBCO 薄膜 (BMO 100 Hz) の J_c の磁場依存性を示す。10 Hz では 77 K, self field で 0.8 MA/cm² の膜が作製できたが、100 Hz では 1 桁以上 J_c が劣化した。20 K でも同様に 10 Hz から 100 Hz に成膜速度を向上させると J_c が劣化した。これはナノロッドの構造不安定性、もしくはマトリックス構造を劣化させることが原因である。

Fig. 2 に BHO 100 Hz、Nb ドープ BHO 100 Hz の 20 K の J_c の磁場依存性を示す。Nb ドープにより 20 K, 9 T で J_c が 5 倍程度増加することが分かる。Nb をドープすることによる高速成膜時の磁場中ピンニング力密度の改善が確認された。

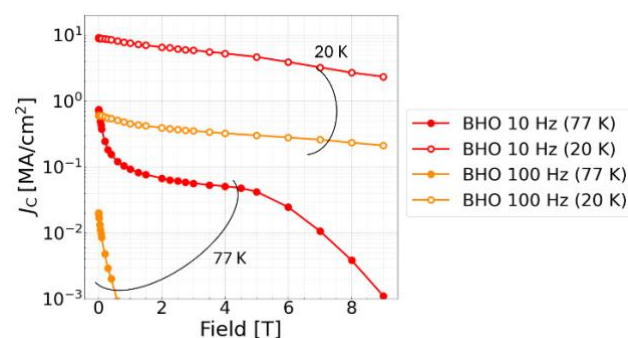


Figure 1: Magnetic field dependence of J_c for YBCO+BHO films deposited at 10Hz and 100Hz.

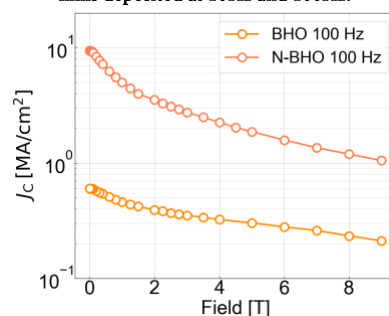


Figure 2: Magnetic field dependence of J_c for YBCO+BHO and YBCO+Nb doped BHO films deposited at 100Hz.

謝辞

本研究の一部は、公益財団法人中部電気利用基礎研究振興財団、JST, CREST (JPMJCR2336) からの助成を受けて実施した。有益な議論をしていただいた古河電工杉原和樹博士に感謝します。また、産総研の和泉輝郎氏及び衣斐頭氏から IBAD-MgO 基板を提供していただいた。

YBa₂Cu₃O_y+BaHfO₃/YBa₂Cu₃O_y 多層膜の臨界電流密度特性に対する ガウス過程回帰の検討

Gaussian Process Regression analysis for critical current density in YBa₂Cu₃O_y+BaHfO₃/YBa₂Cu₃O_y multilayer

名大工¹, 電中研², ○伊藤 駿汰¹, 一瀬 中², 堀出 朋哉¹, 吉田 隆¹

Nagoya Univ.¹, CRIEPI², ○Shunta Ito¹, Ataru Ichinose², Tomoya Horide¹, Yutaka Yoshida¹

E-mail: ito.shunta.y4@s.mail.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

Coated conductor の応用に向けて REBa₂Cu₃O_y (REBCO : RE = Y 等の希土類元素) 薄膜の臨界電流密度(J_c)の向上が求められている。REBCO 膜では、ナノロッドやナノパーティクルといった第二相の APC (artificial pinning center) 導入によって磁場中 J_c の向上が図られてきた。ナノロッドにおいては、ナノロッドの太さや数密度が磁束ピンニング特性に重要なパラメータとなるが、これらのパラメータは主に第二相の添加量によって制御されるため[1]、膜構造の最適化や J_c 特性と構造の関係を考察することは複雑な問題ではない。一方で、より高い J_c を達成するために通常ナノロッドよりも複雑な構造も検討されている。2種類の第二相を導入によるハイブリッドピンニングセンターやナノロッド添加 REBCO/REBCO の積層構造による切れたナノロッドによって磁場印加角度に対する J_c の異方性低減が報告されている。

しかしながら、通常のナノロッド添加 REBCO 膜と比較して、3次元的な構造を持つ薄膜は制御するパラメータが多数存在し、パラメータと特性間の関係の視覚化・理解が難しい。近年ではデータサイエンスが様々な分野で取り入れられており、多次元のデータを視覚化・分析する手法が検討されている。データサイエンスの手法を用いた J_c 特性の解析は、複雑な構造を持つ薄膜と J_c 間の傾向を分析でき、効率的な構造の最適化が達成できる可能性がある。

2. 実験方法

本研究では、BaHfO₃(BHO)添加 YBCO/YBCO の多層膜に焦点を当て、多層構造と J_c 特性に関して回帰分析を試みた。多層膜の作製にあたり、IBAD-MgO 基板上に Pulsed Laser Deposition(PLD)法によって YBCO 層と BHO 添加 YBCO 層を交互に成膜することで多層膜を作製した。Fig.1 に多層膜の模式図を示す。3次元的な構造を制御するために「積層数」「BHO 添加 YBCO 層の比率(膜厚比)」「BHO 添加量」の3つのパラメータを変更した。これらの試料の超伝導特性は直流四端子法を用いた通電測定により評価した。

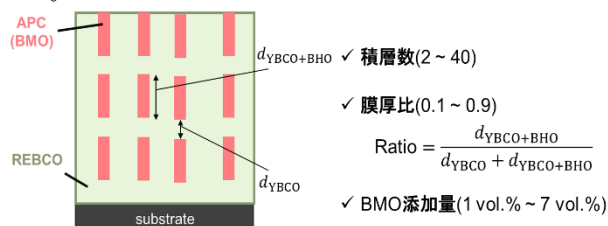


Fig.1 Schematic diagram of BHO-doped YBCO/YBCO multilayer structure

そして、構造に関する3つのパラメータと J_c に対しガウス過程回帰(GPR)によって回帰モデルを構築した。GPRはPythonライブラリの1つであるPHYSBOを用いて行った[2]。

3. 実験結果及び考察

本研究でははじめに元データとして、積層数を4層, 10層, 30層、膜厚比を0.2, 0.8、添加量を1.5 vol.%, 5 vol.%に変更した計12試料を作製した。Fig.2 に作製した試料の77 Kにおける J_c - B 特性および、GPRによって得られた77 K-self-field の J_c 特性の期待値のマップを示す。 J_c - B 特性から、積層構造の違いにより J_c 特性が変化することが分かる。また12データという少ないデータ数ながら、期待値のマップはデータの傾向を良く表しており、GPRは J_c の傾向を分析する手法として優れている可能性がある。当日は、データを追加した場合の温度-磁場による積層構造と J_c 間の傾向の変化や、構造に関する各パラメータと特性間の関係についても報告する予定である。

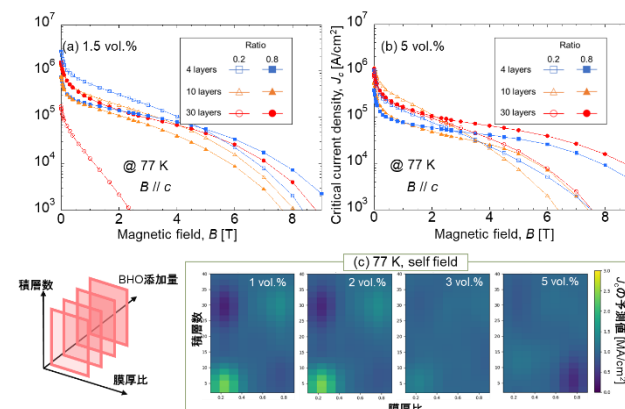


Fig.2 The applied magnetic field dependences of the critical current density in multilayer films (a) 1.5 vol.% (b) 5 vol.% (c) Predicted J_c (77 K, self-field) maps sliced at a constant BHO content

謝辞

本研究は、JST, CREST(JPMJCR2336)からの助成を受けて実施した。また、株式会社フジクラの飯島氏より IBAD-MgO 基板を提供していただいた。

参考文献

- [1] P. Mele *et al.*, “Systematic study of BaSnO₃ doped YBa₂Cu₃O_{7-x} films,” *Phys. C Supercond.*, vol. 469, issues 15-20 (2009) pp. 1380-1383.
- [2] Y. Motoyama *et al.*, “Bayesian optimization package: PHYSBO,” *Computer Physics Communications*, vol. 278 (2022) 108405.

最大フロー問題を用いた不均一 YBa₂Cu₃O_{7-y} 薄膜の臨界電流の解析

Analysis of critical current in network-patterned YBa₂Cu₃O_{7-y} films using maximum flow problem.

名大工¹、九工大²、長江 凌雅¹、堀出 朋哉¹、大輪 拓也²、吉田 隆¹

Nagoya University¹, Kyushu Institute of Technology²

Ryoga Nagae¹, Tomoya Horide¹, Takuya Ohwa², Yutaka Yoshida¹

E-mail: nagae.ryoga.w2@s.mail.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

核融合などへの超伝導応用に向けて超伝導線材の臨界電流(I_c)は重要なパラメータである。超伝導線材は局所的な欠陥などにより不均一な I_c 分布をもつ。磁化測定を用いて局所的な I_c 分布が評価されているが、磁化で求めた I_c は局所的な値であり、電流電圧曲線から求めた全体の I_c と必ずしも一致しない。これまでの材料や物理研究における I_c 解析は均一な試料を想定されてきた。しかし今後の線材応用に向けた超伝導特性の理解には、不均一性を想定して I_c 解析することが求められる。局所的な I_c 分布を全体の I_c に変換することで、線材のデータを使ったより高精度なプロセス管理や設計が可能になる。

I_c 分布を解析する手法として有限要素法や画像解析などが考えられる。有限要素法は電磁気学的な計算であるが、材料分布を事前に準備する必要があるため、計測したデータの逐次変換には不向きである。機械学習を用いた画像処理で画像処理することも考えられるが、電流の流れという物理的な現象を考慮されていないため直接的ではない。本研究ではグラフ構造の中での流れを解析する数学的手法である最大フロー問題に着目した。

最大フロー問題を実装するうえで、最大フロー問題が超伝導体の I_c に適用できるかどうかが重要である。本研究では、最大フロー問題が超伝導体の I_c に適用できることを証明することを目的に、ネットワーク状の超伝導試料の I_c を解析した。

2. 実験方法

パルスレーザー蒸着を用いて、SrTiO₃(100)基板上に YBa₂Cu₃O_{7-y} 薄膜を作製した。作製した膜上に図 1 のような 5 mm×5 mm の格子状のネットワークパターンをレーザーエッチングにより作製した。まず切断していない初期状態のネットワークパターンの I_c を測定した。ブリッジの一部を切断し、 I_c 測定し、この実験を繰り返し行った。 I_c 測定は 77, 80 及び 83 K で行った。

本研究では I_c の挙動を、最大フロー問題を用いて解析した。最大フロー問題とは、グラフ上のフローの最大値を求める問題である。最大フローを求めるアルゴリズムは、まず、全てのフローが 0 の状態をはじめの状態(初期フロー)とし、始点から終点までのパスを見つける。そのパスをフローネットワークから差し引き、残余ネットワークを得る。これを繰り返し、始点から終点まで流せる経路がなくなった時、最大フローが求められる。最大フロー問題を用いて、経路の切断による I_c の変化を計算し、測定結果と計算結果を比較した。

3. 実験結果及び考察

図 1 には、本研究で用いたネットワークパターンの一例を示す。最も左に示したものは、経路の切断を行っていない初期状態のネットワークパターンであり、以降、特定の経路(図 1 では赤丸で囲まれた箇所)をカッターにより切断し、不均一なネットワークパターンを作製した。

図 2 に、77 K における測定された I_c を経路切断前の臨界電流 I_{c0} で規格化したもの(I/I_{c0})と最大フロー問題を用いた計算による I/I_{c0} の比較を示す。凡例の 1~11 はサンプル番号を表し、点線は、測定された I/I_{c0} と最大フロー問題を用いた計算による I/I_{c0} が一致することを示す。測定された I/I_{c0} と最大フロー問題を用いた計算による I/I_{c0} はほぼ一致していることが分かる。このことは、最大フロー問題を用いて超伝導体の I_c を説明できることを示している。

当日は、不均一な I_c 分布を、最大フロー問題を用いて解くことができることを説明する。さらに最大フロー問題を、実際の不均一な I_c 分布をもつ超伝導線材の I_c 予測に応用する手法についても議論する。

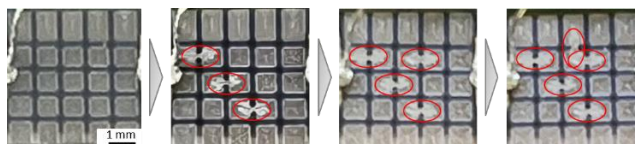


Fig.1 Non-uniform network pattern fabricated by cutting the bridges.

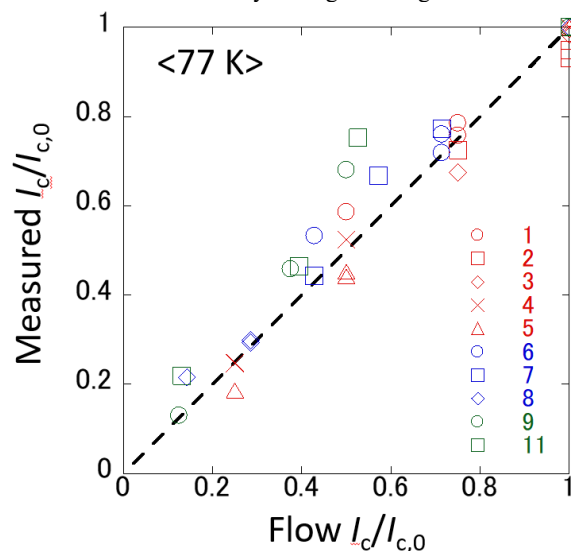


Fig.2 Comparison of the measured I/I_{c0} and the calculated from the maximum flow problem

謝辞 本研究は科研費(22K18812)と JST-CREST(Grant number JPMJCR2336)の支援を受けて行われた。

高温超伝導線材における直列した球状照射欠陥の磁束ピン止め効果 (2)

Flux Pinning Effect of Spherical Irradiation Defects Arranged in Serial in High- T_c Superconducting Tapes (2)

九産大理工¹, 産総研², 関学大工³, 住重アテックス(株)⁴

○末吉哲郎¹, 松井浩明², 尾崎壽紀³, 坂根仁⁴, 西寄照和¹

Kyushu Sangyo Univ.¹, AIST², Kwansei Gakuin Univ.³, SHI-ATEX Co., Ltd.⁴

○Tetsuro Sueyoshi¹, Hiroaki Matsui², Toshinori Ozaki³, Hitoshi Sakane⁴, Terukazu Nishizaki¹

E-mail: s.teturo@ip.kyusan-u.ac.jp

1. はじめに

高温超伝導体に磁場中で侵入する量子化磁束に対して、ピン止め点として作用する不純物や結晶欠陥の形状や分散状態は、磁場中の臨界電流密度 J_c 特性に大きく影響し、その最適化は理論的限界値に近づける上で 1 つの鍵と考えられる。ここで、高温超伝導体に対し 44 MeV Au イオン照射でビーム方向に沿って形成される直列した球状照射欠陥[1]では、複数の量子化磁束に対する等方的なピン止めと、量子化磁束 1 本に対する集中的な強いピン止めを有するピン止め点の可能性がある。前回我々は、高温超伝導体での 44 MeV Au イオン照射には、球状欠陥以外の二次的な照射損傷の影響が含まれている可能性があり、直接のピン止め特性の評価はし難い点があることを報告した[2]。

そこで今回、 J_c の温度依存性を臨界温度 T_c で規格化することで、44 MeV Au イオンによる照射欠陥の正味のピン止め特性の評価を試みた。

2. 実験および結果

本研究では、FFJ 製のピン無しの GdBCO 高温超伝導線材 (2019 年 5 月購入) と Y_2O_3 がドープされた YBCO 高温超伝導線材 (2021 年 8 月購入) および Ceraco 社の NdBCO 薄膜を用いた。44 MeV Au イオン照射は、筑波大学 6MV タンデム加速器にて行った。照射方向は、膜面に垂直 (c 軸方向に平行) である。照射量は、 $2.42 \times 10^{10} \sim 4.84 \times 10^{11}$ ions/cm² (マッチング磁場 $B_\phi = 2 \sim 10$ T) である。 J_c の磁場依存性は、SQUID 磁束計を用いて c 軸方向の磁場における磁化特性から評価した。

Fig.1 に、6 T における T_c で規格化した温度に対する J_c 特性を示す。NdBCO 薄膜では、 $B_\phi = 5$ T の照射量で J_c が大きく増加し、 $B_\phi = 10$ T においては高温領域でわずかに高い J_c 値を示しており、導入した照射欠陥が高温高磁場で有効なピン止め点として作用している。一方、GdBCO 線材では、 T/T_c でプロットしても照射

に対し J_c 特性はほぼ変わらず、ピンを同様に含まない NdBCO 薄膜とは異なり J_c の増加は見られない。この原因として、高温超伝導線材に含まれる弱結合へのイオン照射損傷の影響が考えられる[3]。これに対し、ピン入りの線材においては、照射量に対して順に J_c が増加し、 $B_\phi = 10$ T においては最も高い値を示しており、人工ピンと照射欠陥のハイブリッドピン止め効果がその要因の 1 つとして考えられる。

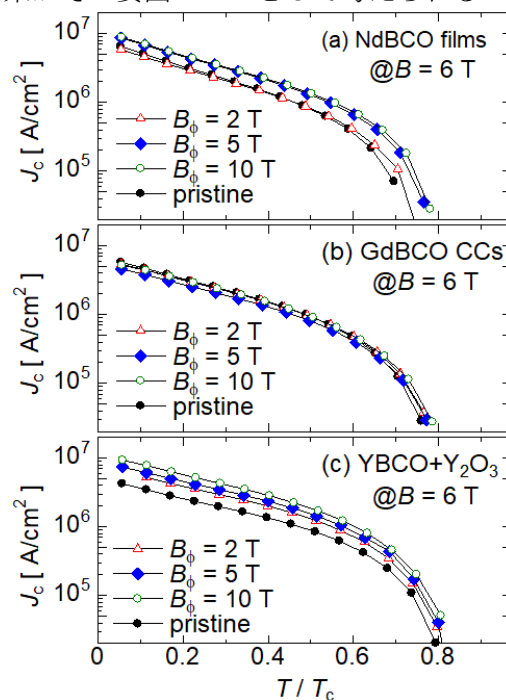


Fig.1 Normalized temperature dependence of J_c at 6 T as a function of irradiation fluence for (a) NdBCO films, (b) GdBCO CCs, and (c) YBCO CCs with APCs, respectively.

謝辞

本研究の一部は、科研費 (22K04207) の助成を受けて実施したものである。

参考文献

- [1] Matsui *et al.* JJAP **61** (2022) 043001.
- [2] 末吉ら, R7 春季応用物理学会 16a-K206-1.
- [3] Iwase, *et al.*, Physica C **174** (1991) 321.

TLAG 法によるコンビナトリアル REBCO 薄膜の局所電流密度特性評価 Local Current Density Characterization for Combinatorial REBCO Film by Transient Liquid-Assisted Growth

九大¹, パルセロナ材料科学研究所² ○呉 澤宇¹, 東川 甲平¹, Albert Queraltó², Emma Ghiara²,
Cornelia Pop², Kapil Gupta², Xavier Obradors², Teresa Puig²,
木須 隆暢¹

Kyushu Univ.¹, ICMAB-CSIC²

○Zeyu Wu¹, Kohei Higashikawa¹, Albert Queraltó², Emma Ghiara²,
Cornelia Pop², Kapil Gupta², Xavier Obradors², Teresa Puig²,
Takanobu Kiss¹

E-mail: z.wu@super.ees.kyushu-u.ac.jp

1. はじめに

Transient Liquid-Assisted Growth using Chemical Solution Deposition (TLAG-CSD)は、速度論的制御(kinetic controlled)が可能な成膜プロセスであり、従来手法と比べて10~1000倍以上高速な成膜レートを実現できることが報告されている [1]。ただし、薄膜の特性には多くの成膜パラメーターが影響を与えるため、それらを最適化する必要がある。Inkjet printing (IJP)はコンビナトリアル試料の作製に適しており、二次元的な構造・組成解析技術と組み合わせることで材料探索が進展している [2]。しかしながら、材料組成と電流特性との関係は、依然として十分には解明されていない。四端子法や SQUID 磁力計を用いたピックアップコイル法などの一般的な測定手法では、試料全体の平均的な特性しか評価できず、コンビナトリアル試料への適用には限界がある。そこで本研究では、局所的な電流特性をハイスループットで評価可能な手法を検討し、コンビナトリアル試料における組成と電流特性の関係の解明を目的とした。

2. 実験方法

測定には、TLAG 法による $5 \times 5 \text{ mm}^2$ の $\text{Y}_\varepsilon\text{Gd}_{(1-\varepsilon)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜を用いた。図1(a)に示すように、y方向に沿って材料の組成 ε を変化させて SrTiO_3 基板上で成膜している。ICMAB-CSIC で詳細な微細構造解析を行い、y方向に沿った(b) EDX 解析によるY (Gd)の組成比の計測から、コンビナトリアル試料の作製に成功していることが分かる。低温走査型ホール素子磁気顕微法(LT-SHPM)に基づいて5 Kにおける局所電流特性測定を行った。同試料を十分に大きい外部磁場を印加して磁化させたのち取り除き、残留磁場分布をホール素子で測定した。同様に、最大4.5 T 磁場を印加した状態で磁場分布を取得した。測定の空間分解能はy方向に $20 \mu\text{m}$ 、x方向に $100 \mu\text{m}$ と設定した。一回の測定は30分以下である。磁気像よりビオ・サバル則の逆問題を解くことで磁化電流密度分布を求めた。

3. 実験結果及び考察

Fig. 2 (a)に残留磁場分布、(b)に計算した磁化電流密度分布を示す。y方向のグラディエントに明確な違いが表れていることが分かる。高い空間分解能により、一回の測定において取得できる局所電流密度のデータ数は12,500となり、通常の測定法と比べて約3桁のハイスループット計測を実施できたと言える。当日は詳細な電流密度と組成との関係について報告する。

謝辞:本研究は、JST ムーンショット型研究開発事業 JPMJMS24A2 ならびに JSPS 科研費 JP24H00320, JP23K13368 の助成を受けたものである。

参考文献:

[1] Puig, T., Gutierrez, J. & Obradors, X., Nat Rev Phys 6, 132–148 (2024).

[2] Queraltó, Albert, et al., Journal of Materials Chemistry C 10.17 (2022): 6885–6895.

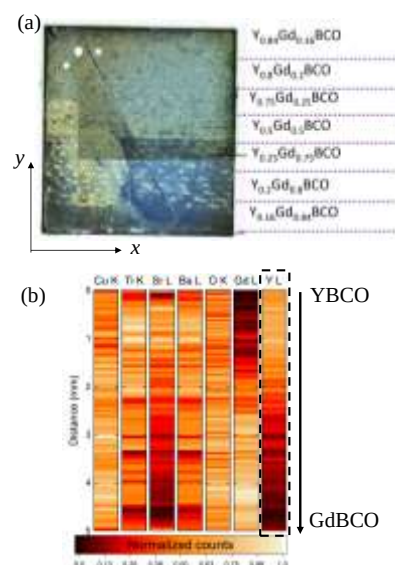


Fig. 1 (a) Optical microscopy for the $5 \times 5 \text{ mm}^2$ $\text{Y}_\varepsilon\text{Gd}_{(1-\varepsilon)}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ combinatorial sample. (b) EDX analysis where the dash box shows the normalized count of Yttrium along y direction.

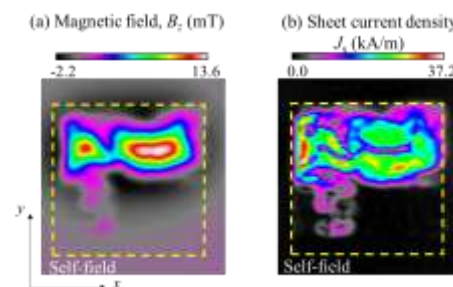


Fig. 2 (a) Remanent magnetic field, B_z , distribution at 5.0 K and self-field. (b) The corresponding sheet current density, J_s , distribution by solving the inverted Biot Savart's law.

Cu 安定化層を有する REBCO 線材の音波接合プロセスにおける超伝導特性の劣化因子に関する検討

Investigation of Degradation Factors in Superconducting Properties Induced by the Sonic Welding Process of Cu-Stabilized REBCO Coated Conductors

九大院シス情¹, 鉄道総研² ○世良 真也¹, 呉 澤宇¹, 鈴木 賢次², 東川 甲平¹, 木須 隆暢¹
Kyushu Univ.¹, RTRI.², Shinya Sera¹, Zeyu Wu¹, Kenji Suzuki², Kohei Higashikawa¹, Takanobu Kiss¹
E-mail: s.sera@super.ees.kyushu-u.ac.jp

1. はじめに

希土類系 (REBCO) 高温超伝導線材の低抵抗接合技術の確立は、REBCO 線材の応用のための基盤技術として不可欠であり、迅速かつ再現性に優れる手法の確立が求められている。そこで音波接合が注目されている。音波接合はワーク上に重ね合わせた試料に対し Horn で加圧しながら高周波振動を印加し、接合界面に拡散接合を促す接合法であり、1 s 程度で接合界面に金属結合を形成できる。しかし、従来法では低抵抗実現には半田や In 箔の併用が不可欠であった [1],[2]。これに対し、我々はプロセス条件を精査することで REBCO 線材の金属安定化層同士を半田フリーで低抵抗に接合すると共に、接合特性の支配因子を明らかにしてきた [3]。しかしながら、音波接合プロセスによって超伝導特性 (臨界電流 I_c) の劣化が生じることがある。本研究では、音波接合プロセスにおける I_c 劣化の因子について考察し、健全な接合が得られる接合条件を明らかにすることを目的とした。

2. 実験方法

本研究では、20 μm 厚の Cu 安定化層を有する PLD 法で成膜された 3 mm 幅 REBCO 線材 ($I_c \approx 150 \text{ A @ s.f.}$) を用いて、入力パワー P (振幅 A)、投入エネルギー E を変化させて Cu-Cu 接合試料を作製した。このとき、超伝導層同士を向かい合わせて Lap 接合 (Lap 長 $L=5, 10, 20 \text{ mm}$) を形成し、荷重 1750 N 下で 15 kHz の音波振動を印加した。接合試料の臨界電流 I_c を 4 端子法により評価し、素線の I_c に対して接合試料の I_c が低下した場合を劣化と定義した。

3. 実験結果及び考察

Fig. 1 に音波接合において、異なるパワーで作製した際の接合の I_c の変化をプロットした。高いパワーで I_c の低下が生じる傾向が見取れるが、接合時のエネルギーによって、許容できるパワーの臨界値は異なっており、パワーだけでは I_c の劣化が記述できないことが分かった。そこで、プロセス時の界面の温度上昇に着目し、等価的な温度上昇 ΔT を次式によって推定した。

$$\Delta T(P, t) = P\beta \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{2\alpha\beta Lwd}\right) \right\}$$

ここで、 α は密度と比熱の積、 β は熱抵抗、 L, w, d はそれぞれ接合長、線材幅、安定化層の膜厚、 P は入力パワー、 t は接合時間である。この表式から推定した界面温度の上昇 ΔT と試料の臨界電流 I_c との関係を図 2 に示す。但し、上述した式により推定した ΔT は相対値であり、絶対値は β の選び方で変化する。Fig. 2 は界面の温度上昇がある閾値を超えると I_c が劣化するすなわち、音波接合における I_c の低下は熱的劣化によるものだと示唆している。また、これにより劣化の生じない条件導出が可能となった。

謝辞: 本研究は、JST【ムーンショット型研究開発事業】[JPMJMS24A2]ならびに JSPS 科研費 JP24H00320 の支援を受けて実施したものである。

参考文献

- [1] H. Shin et al., *IEEE Trans. Appl. Supercond.* 26, 6601704 (2016).
- [2] S. Ito et al., *IEEE Trans. Appl. Supercond.* 29, 6600405 (2019).
- [3] 世良ら, 第 72 回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集(2025 春) 16a-K206-5.

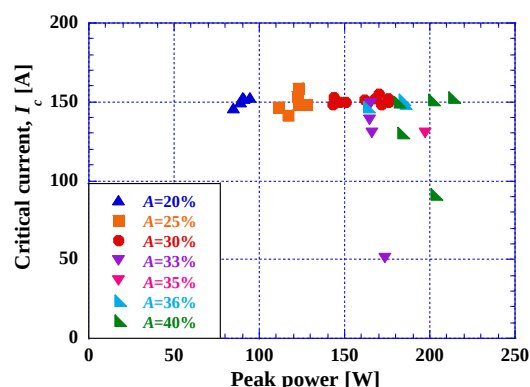


Fig. 1 Changes in critical current I_c under different power levels at the joining process. The degradation threshold was not clearly determined in this case.

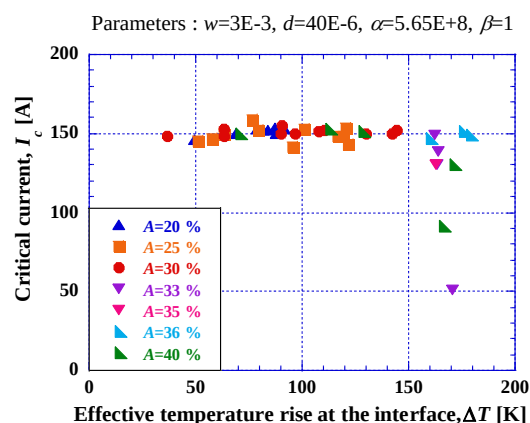


Fig. 2 Relationship between estimated interface temperature rise (relative value) and critical current I_c . The parameters used to estimate ΔT were $\alpha = 5.65\text{E}+8$, $\beta = 1$, $w = 3 \text{ mm}$, and $d = 20 \mu\text{m}$, and α was adjusted appropriately.

A_3C_{60} ($A = \text{アルカリ金属}$)バルク超伝導体の作製法の開発

Development of a fabrication method for Alkali Metal-Intercalated C_{60} Bulk Superconductors

産総研¹, イムラ・ジャパン², °伊豫 彰¹, 藤久裕司¹, 後藤義人¹, 石田茂之¹, 永崎 洋¹,
荻野 拓¹, 川島健司^{1,2}

AIST¹, IMRA JAPAN Co., Ltd.², °A. Iyo,^{1*} H. Fujihisa¹, Y. Gotoh¹, S. Ishida¹, H. Eisaki¹, H. Ogino¹,
K. Kawashima^{1,2} E-mail: iyo-akira@aist.go.jp

アルカリ金属 ($A = K, Rb, Cs$) をインターカレーションしたフラーレン A_3C_{60} は、比較的高い超伝導転移温度 ($T_c \approx 30 \text{ K}$ [1])、高い上部臨界磁場 ($H_{c2} \approx 900 \text{ kOe}$ [2])、および等方的な超伝導特性により、応用材料として大きな可能性を秘めている。しかしながら、これまでに報告されている気相法や液相法などによる A_3C_{60} の合成は、いずれもプロセスが煩雑で合成に長時間を要するなどの課題があり、大量生産可能なプロセスへの展開には限界があった。このように高効率な合成手法の欠如が、 A_3C_{60} の実用化に向けた研究の進展を妨げてきた要因の一つとなっている。

本講演では、迅速かつ大量生産が可能な A_3C_{60} 合成法を開発したことを報告する[3]。まず、 Rb_3C_{60} の合成プロセスについて Fig. 1 に例示するように、原料であるアルカリ金属と C_{60} をグローブボックス内で秤量し、乳鉢を用いて直接混合した。次に、この混合粉末をペレット状に成形し、アルミ箔で包んだ後、グローブボックス内に設置した電気炉にて $200\text{--}400^\circ\text{C}$ で1時間熱処理を行い A_3C_{60} 焼結体ペレットを得た。この試料は、シャープな超伝導転移と大きな超伝導遮蔽体積分率を示した。直接法で合成した A_3C_{60} の格子定数と転移温度との関係もこれまでの報告と良い一致を示した。

本直接混合法により、簡便かつ迅速に高品質な A_3C_{60} を大量製造することが可能となり、バルク磁石や超伝導線材などへの応用展開が期待される。

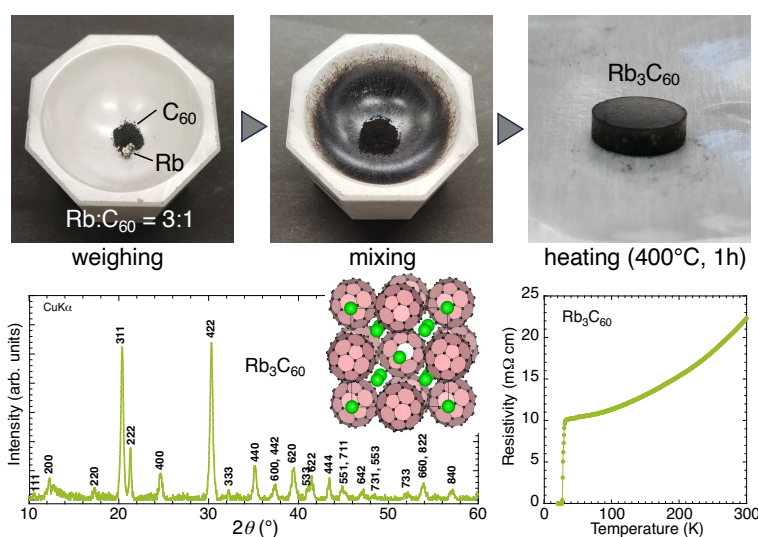


Fig. 1 Synthesis process of Rb_3C_{60} by direct mixing method, powder X-ray diffraction pattern and resistivity data

References

- [1] K. Tanigaki, T. W. Ebbesen, S. Saito, J. Mizuki, J. S. Tsai, Y. Kubo, S. Kuroshima, *Nature* **352**, 222(1991).
- [2] Y. Kasahara, Y. Takeuchi, R. H. Zadik, Y. Takabayashi, R. H. Colman, R. D. McDonald, M. J. Rosseinsky, K. Prassides, Y. Iwasa, *Nat. Commun.* **8**, 14467 (2017).
- [3] A. Iyo, H. Fujihisa, Y. Gotoh, S. Ishida, H. Eisaki, K. Kawashima, *Supercond. Sci. Technol.* **38**, 055013 (2025).

A_3C_{60} (A = アルカリ金属) バルク超伝導体の臨界電流密度

Critical current density of A_3C_{60} (A = alkali metal) bulk superconductor

産総研¹, イムラ・ジャパン², 東理大³ ○(M1)長谷川 弘樹^{1,3}, 伊豫 彰¹, 藤久 裕司¹,
後藤 義人¹, 石田 茂之¹, 永崎 洋¹, 荻野 拓¹, 川島 健司^{1,2}, 村山 真理子³, 西尾 太一郎^{1,3}
AIST¹, IMRA JAPAN Co., Ltd.², Tokyo Univ. of Science³, ○H. Hasegawa^{1,3}, A. Iyo¹, H. Fujihisa¹,
Y. Gotoh¹, S. Ishida¹, H. Eisaki¹, H. Ogino¹, K. Kawashima^{1,2}, M. Murayama³, T. Nishio^{1,3}
E-mail: 1225555@ed.tus.ac.jp (H.H), iyo-akira@aist.go.jp

はじめに： A_3C_{60} (A = アルカリ金属)超伝導体は、比較的高い超伝導転移温度 T_c (≈ 30 K [1])、高い上部臨界磁場 H_{c2} (≈ 900 kOe [2])、および等方的な超伝導特性を有することから、応用上魅力的な材料である。しかし、これまで高効率な合成方法が存在しなかったため、応用研究はあまり進展してこなかった。近年、 A ($=K, Rb, Cs$)と C_{60} を直接混合し、比較的低温($\sim 400^\circ\text{C}$)で短時間熱処理するだけで A_3C_{60} を合成する手法(直接混合法)が開発されたことから、 A_3C_{60} の応用研究の進展が期待されている[3]。我々は、直接混合法で作製された A_3C_{60} 試料の臨界電流密度 J_c を見積もり、バルク超伝導磁石としての応用可能性の評価を開始した。本講演では、 $A = Rb$ (Rb_3C_{60}) について、 J_c の Rb 仕込み量および熱処理温度依存性について報告する。

試料作製と J_c 評価：グローブボックス (GB) 中で A と C_{60} を モル比 $x:1$ で秤量し、乳鉢で混合後、ペレット状に加圧成形した。これをアルミ箔で包み、GB 内に設置した電気炉を用いて熱処理温度 T_s ($= 350\sim 500^\circ\text{C}$) で 1 時間加熱した。得られたバルク焼結体の J_c を磁気ヒステリシスから Bean モデルを用いて評価した。

結果と考察： Fig. 1 に、 $T_s = 400^\circ\text{C}$ で作製したバルク試料の 5 K における J_c の仕込み Rb 組成 x 依存性を示す。 $x = 3.0\sim 3.1$ の時に、自己磁場粒間 $J_c = 4.6 \times 10^4$ A/cm² という高い値が得られ、 Rb_3C_{60} がバルク超伝導磁石として有望であることが示された。また、 J_c は x に非常に敏感であることが明らかとなり、特性再現性の高いバルク試料作製に向けた有益な知見も得られた。発表当日は、試料合成の詳細や J_c の熱処理温度依存性なども報告する。

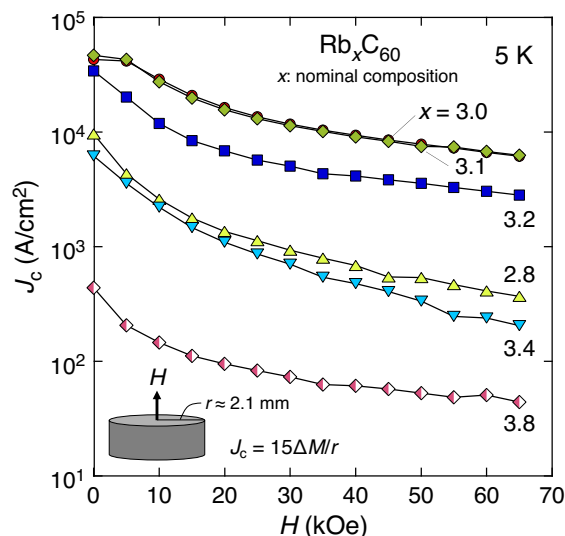


Fig.1 H dependent intergrain J_c of Rb_xC_{60} at 5 K. J_c is calculated using the formula in the figure. ΔM is magnitude of magnetic hysteresis.

References

- [1] K. Tanigaki, T. W. Ebbesen, S. Saito, J. Mizuki, J. S. Tsai, Y. Kubo, S. Kuroshima, *Nature* **352**, 222(1991).
- [2] Y. Kasahara, Y. Takeuchi, R. H. Zadik, Y. Takabayashi, R. H. Colman, R. D. McDonald, M. J. Rosseinsky, K. Prassides, Y. Iwasa, *Nat. Commun.* **8**, 14467 (2017).
- [3] A. Iyo, H. Fujihisa, Y. Gotoh, S. Ishida, H. Eisaki, K. Kawashima, *Supercond. Sci. Technol.* **38**, 055013 (2025).

11 Superconductivity | Oral presentation : 11.4 Analog applications and their related technologies

[9p-N404-1~15] 11.4 Analog applications and their related technologies

[9p-N404-1]

[The 58th Young Scientist Presentation Award Speech] Simulation of Pulse-Driven Response in a Superconducting Nanowire Three-Terminal Device

○Naoki Yasukawa^{1,2,3}, Yuki Yamanashi⁴, Nobuyuki Yoshikawa⁴, Taichiro Nishio¹, Yasunori Mawatari² (1.Tokyo Univ. of Sci., 2.AIST, 3.JSPS Research Fellow, 4.Yokohama National Univ.)

[9p-N404-2]

Verification of Small-Amplitude Quantum AC Voltage Waveforms Using Thermal-Voltage Converter

○Kaho Koyanagi¹, Michitaka Maruyama¹, Hirotake Yamamori¹, Daiki Matsumaru¹, Nobu-Hisa Kaneko¹ (1.AIST)

[9p-N404-3]

Development of liquid-helium-free cryogenic current comparator

○Yuma Okazaki¹, Takehiko Oe¹, Nobu-Hisa Kaneko¹ (1.AIST)

[9p-N404-4]

Implementation of Cryo-Devices Toward Simultaneous Operation of Josephson Voltage Standard and Quantum Hall Resistance Standard

○Daiki Matsumaru¹, Takehiko Oe¹, Shuji Nakamura¹, Hirotake Yamamori¹, Michitaka Maruyama¹, Nobu-Hisa Kaneko¹ (1.AIST)

[9p-N404-5]

Magnetic field measurements in magnetic shields at low and room temperatures for superconducting tunnel junction X-ray detectors

○Shigetomo Shiki¹, Go Fujii¹ (1.AIST)

[9p-N404-6]

Development of Rhombus-type Sample Coil Using High-Temperature Superconductor for NMR

○Takanori Fujita^{1,2}, Keita Sakuma¹, Ryoji Tanaka², Katsuyuki Toshima², Naoto Sekiya¹ (1.Univ. of Yamanashi, 2.JEOL Ltd.)

[9p-N404-7]

Evaluation of the superconducting wide strip photon detector with widths ranging from 30 to 100 μm

○Masahiro Yabuno¹, Hirotake Terai¹, Shigehito Miki¹ (1.NICT)

[9p-N404-8]

Evaluation of photoresponse properties of iron-based superconductor NdFeAs(O,H) toward photon detector applications

○Atsuro Yoshikawa¹, Shunya Tomioka¹, Ibuki Washitani¹, Daichi Aoki¹, Koki Miyamoto¹, Takafumi Hatano¹, Hiroki Kutsuma³, Taro Yamashita³, Hiroshi Ikuta^{1,2} (1.Nagoya Univ., 2.RCCME, 3.Tohoku Univ.)

[9p-N404-9]

Superconducting Nanostrip Single-Photon Detector with an Optical Cavity for Mid-infrared Photon Detection

○Yusuke Konno¹, Yuta Hagiwara¹, Hiroki Kutsuma¹, Taro Yamashita¹ (1.Tohoku Univ.)

[9p-N404-10]

Development and experimental demonstration of circuit parameter extraction method for superconducting nanostrip photon detectors

○Hiroki Kutsuma¹, Taro Yamashita¹ (1.Tohoku Univ.)

[9p-N404-11]

Investigation of The Readout Sensitivity of a Josephson Parametric Oscillator for Qubit State Readout

○(M2)Itaru Machimura¹, Hongxiang Shen², Nobuyuki Yoshikawa^{1,2} (1.YNU Univ., 2.IAS)

[9p-N404-12]

Evaluation of the Effect of SiO₂ Thickness on STJ Detectors with a Buffer Layer

○Takaho Oguchi^{1,2}, Tsuyoshi Noguchi¹, Go Fujii², Tohru Taino¹ (1.Saitama Univ., 2.AIST)

[9p-N404-13]

Bonding interface analysis of In/Nb bumps for fabrication of 3D superconducting circuits

○Shoei Ishiyama¹, Yuuki Araga², Hiroshi Nakagawa², Katsuya Kikuchi², Tohru Taino¹ (1.Saitama Univ., 2.AIST)

[9p-N404-14]

Evaluation of MKID for multicolor camera mounted on Greenland telescope

○(M1C)Taiki Sato¹, Kazuki Watanabe², Shuhei Inoue³, Shinsuke Uno⁴, Tai Oshima⁵, Tatsuya Takekoshi⁶, Tohru Taino¹ (1.Saitama Univ., 2.SOKENDAI, 3.Tokyo Univ., 4.RIKEN, 5.NAOJ, 6.KIT)

[9p-N404-15]

Nonlinear kinetic inductance of YBCO thin film measured by Bragg-mirror resonator

○(M2)Kaito Yuda¹, Seiichiro Ariyoshi², Masanori Takeda¹ (1.Shizuoka Univ., 2.Toyama Univ.)

超伝導細線三端子素子における パルス駆動応答のシミュレーション

Simulation of Pulse-Driven Response in a Superconducting Nanowire Three-Terminal Device

東理大¹, 産総研², 学振特別研究員³, 横国大⁴

○安川 直輝^{1,2,3}, 山梨 裕希⁴, 吉川 信行⁴, 西尾 太一郎¹, 馬渡 康德²

Tokyo Univ. of Science¹, AIST², JSPS Research Fellow³, Yokohama National Univ.⁴,
○Naoki Yasukawa^{1,2,3}, Yuki Yamanashi⁴, Nobuyuki Yoshikawa⁴, Taichiro Nishio¹, and Yasunori Mawatari²

E-mail : 1224703@ed.tus.ac.jp

超高速かつ極めて低損失な超伝導単一磁束量子 (SFQ) 回路と高集積化が可能な半導体 (CMOS) 回路を融合させた、超高性能なハイブリッドシステムの実現が期待されている。その SFQ 回路と CMOS 回路の接続を担うインターフェイスとして、超伝導細線の超伝導-常伝導転移を利用した三端子素子「nTron」[1]が発明された。我々は、この nTron の三端子動作の基本的な理解を深めることを目的に、ゲート電流 (I_g) を固定し、チャネルバイアス電流 (I_{bias}) を掃引した場合の直流応答シミュレーション[2]やゲートにパルス信号を入力したときのパルス電流三端子動作に関するシミュレーション[3,4]を実施し、その結果を報告してきた。シミュレーション解析の利点の一つは、実験では取得が困難なデータを得られ、モデリング対象で起こる物理現象のより詳細な解明が可能な点である。今回はそのようなデータの特性に注目しながら、パルス電圧を三端子素子に入力した際の三端子動作に関するシミュレーション結果について述べる。

これまでと同様に支配方程式として時間依存 Ginzburg-Landau 方程式と熱拡散方程式を連立させ、有限要素法により数値解析シミュレーションを行った[2]。超伝導状態にある三端子素子にドレイン側からチャネルバイアス電流を印加し、ゲートから SFQ 信号を模したパルス電圧 (V_0) を入力した際のシャント抵抗 (R_L) にかかる電圧 (V_L) 及びドレイン-ソース間の電圧 (V_{ch}) の応答を調べた (Fig. 1(A)参照)。

Fig. 1(B) は、ゲートから量子化磁束ひとつ分程度の矩形波状のパルス電圧 (V_0 の波高 0.5 mV, 波幅 ~5 ps) を印加した際の V_L と V_{ch} の数値計算結果である。時刻 $t = 0$ ps にパルス電圧の入力後、 V_L は、 $t = 150$ ps で最大 2.4 mV になり、時定数 1 ns で指数関数的に減少する。一方、 V_{ch} は $t = 50$ ps で約 28 mV に達し、その後約 100 ps かけてゼロ電圧に戻る。

この V_{ch} は、チャネルでの超伝導-常伝導転移により発生する電圧応答であり、短時間で発生・消失するため、実験的に取得しづらい。そのため、時間分解能に優れる数値シミュレーションにより、こうした高速かつ局所的な現象を解析することが不可欠となる。今回の結果からは、チャネルが常伝導状態から超伝導状態へと復帰する過程が、シャント抵抗 R_L を含む回路全体の応答よりも迅速であるという既知の時間スケール差を、シミュレーションにより再現可能であることが確認された。これにより、チャネルでの物理現象の詳細な時間ダイナミクスを定量的に評価できる解析手法として、本手法は有用であると考えられる。得られた知見は、素子構造の最適化や動作速度の向上といった高性能化への応用が期待される。

本研究は、JSPS 科研費 JP20K05314 及び JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2151 の支援を受けたものです。
[1] A. N. McCaughan and K. K. Berggren, *Nano Lett.* **14**, 5748 (2014). [2] N. Yasukawa et al., *Supercond. Sci. Technol.* **37**, 065013 (2024). [3] N. Yasukawa et al., The 37th International Symposium on Superconductivity (ISS 2024) ED5-5. [4] 安川他、第 72 回応用物理学会春季学術講演会 16p-K209-11 (2025).

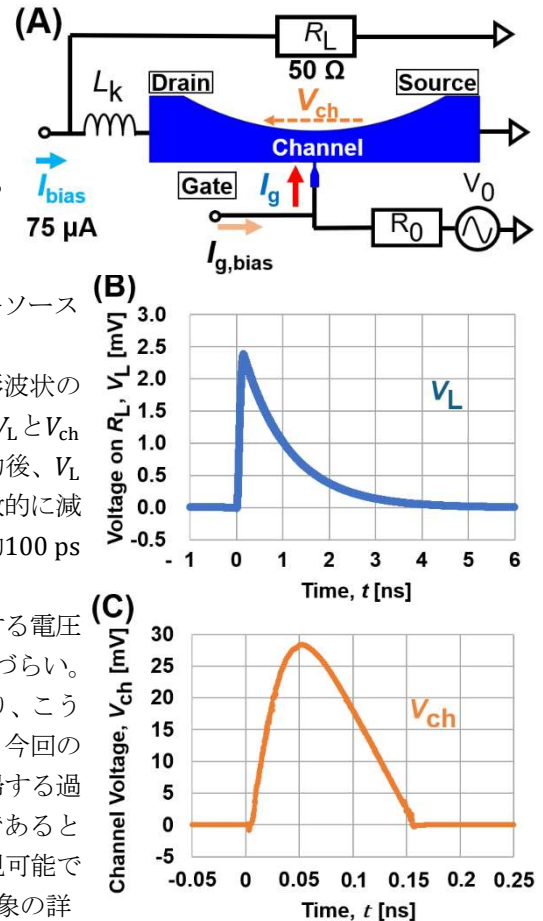


Figure 1. (A) Circuit schematic for nTron (B) Voltage on the shunted resistance and (C) Channel voltage characteristics of the nTron.

サーマルコンバータを用いた微小量子交流電圧波形の精度検証

Verification of Small-Amplitude Quantum AC Voltage Waveforms Using

Thermal-Voltage Converter

産総研¹ ○小柳 香穂¹, 丸山 道隆¹, 山森 弘毅¹, 松丸 大樹¹, 金子 晋久¹

AIST¹, °Kaho Koyanagi¹, Michitaka Maruyama¹, Hirotake Yamamori¹, Daiki Matsumaru¹

and Nobu-Hisa Kaneko¹

E-mail: koyanagi.kaho@aist.go.jp

IoT センサや微細化・低電圧化が進む電子機器などのトレーサビリティ確保を目的に、微小電圧レンジに対応した量子電圧源の開発および校正技術の確立を目指した研究を行っている[1]。これまでの研究で、従来の 1/100 以下となる約 $30 \mu\text{V}$ の分解能をもつ小型プログラマブル型ジョセフソン電圧標準 (Tower 型 PJVS) 装置を開発し、直流電圧校正において国家標準と同等レベルの測定精度を実証するとともに、周波数変調方式による微小量子交流電圧波形の新しい生成方式の提案を行った[2], [3]。しかし、後者の交流波形生成においては、得られる振幅が約 1 mV と小さいため、既存の計測器では高精度な評価が難しいという課題があった。

本研究では、交流電圧実効値の高精度計測に使用されている交直変換素子 (サーマルコンバータ: TVC) を用いることで、周波数変調方式による微小量子交流電圧波形の生成精度の検証に取り組んだ。本方式では、Fig. 1 に示されるように、直列接続された 2 本のジョセフソン接合アレイ A、B に対し、A には特性周波数 (約 12 GHz) を中心として周波数変調したマイクロ波を、B には特性周波数のマイクロ波を入力することで、AB 間の差電圧から直流のオフセット成分を含まない変調周期に同期した量子交流波形が生成される。さらに、ミキサー回路を用いて A、B のマイクロ波の差周波数成分のパルスをカウントし、変調周波数の時間変化を正確に把握することで、生成電圧波形を計算により再生し、実験的に生成される量子交流波形を理論的に予測することが可能である。今回、実験的に生成された交流電圧の実効値を TVC により測定し、上記したパルスカウントによる再現波形との比較を試みた。その結果、TVC 測定における待ち時間や、パルスカウントにおける計算方法が、比較結果に大きな影響をもつことが分かった。発表では、それらの最適化条件や生成波形の精度検証結果について報告する。

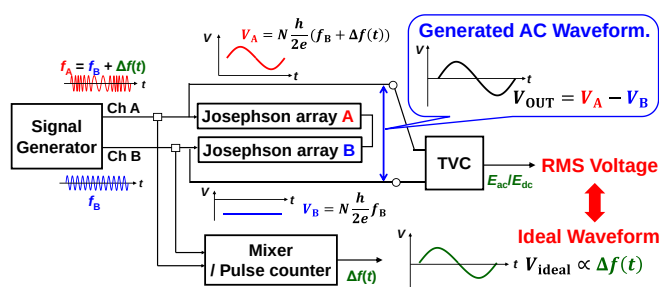


Fig.1. Generation and Verification of Quantum AC Waveform.

謝辞：周波数変調方式による交流波形生成に関して佐々木 仁氏に、素子作製に関して吉田 朗氏に感謝します。本研究は、大阪大学および神戸大学との共同研究の一環として行われたものです。ご関係の皆様へ感謝します。この成果の一部は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務 (JPNP19005) の結果得られたものです。本研究の一部は、JST 共創の場形成支援プログラム JPMJPF2115 の支援を受けたものです。

[1] M. Maruyama, *et al.*, International Symposium on Superconductivity, ED8-1, 2021.

[2] M. Maruyama, *et al.*, Conference on Precision Electromagnetic Measurements, 2022.

[3] 小柳香穂, 他：第 72 回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集 16p-K209-1, 2025.

無冷媒極低温電流比較器の開発

Development of Liquid-helium-free Cryogenic Current Comparator

産業技術総合研究所¹ °岡崎 雄馬¹, 大江 武彦¹, 金子 晋久¹

AIST¹, °Yuma Okazaki¹, Takehiko Oe¹, Nobu-Hisa Kaneko²

E-mail: yuma.okazaki@aist.go.jp

極低温電流比較器(CCC)は、抵抗の精密測定に用いられる超伝導電気回路であり超伝導シールドされたコイル、SQUID 磁力計、超伝導磁気シールドから構成される。通常液体ヘリウムに浸漬して冷却するが、液体ヘリウム不足のために長時間の測定が難しくなりつつあり、CCC を必要とする量子抵抗標準にも支障が出ている。今回、パルスチューブ無冷媒冷凍機中にガスチャンバーを設置し、気体ヘリウムを熱伝導冷媒として利用する新たな冷凍機システムを開発した。CCC を液体ヘリウムに浸漬する代わりに、このガスチャンバー中で冷却することによって液体ヘリウムを用いずに長期間運用が可能になる。

右図は現在開発している無冷媒冷凍機内部の写真である。冷凍機の $\phi 70$ mm ポート(ISO K63)からステンレス製フレキシブル配管(内径 $\phi 50$ mm)を4 K プレートまで配置し、配管内側で CCC プローブを低温部に挿入する。パルスチューブ冷凍機によって最低温度まで冷却後にヘリウムガスを導入し、ガスの熱伝導を利用して CCC を冷却する。実際の実験では、4 K プレートが 3.9 K の時、約 5 L のヘリウムを導入後 CCC プローブ先端部は 5.5 K まで冷却された。この状態で SQUID 磁力計の ϕV 特性の測定を行ったところ、液体ヘリウムに浸漬して動作した時と同程度の信号出力を観測した。さらに極低温電流比較器を動作させ標準抵抗器の $10\text{ k}\Omega$ 対 $100\text{ }\Omega$ の 100:1 比較測定を行ったところ、液体ヘリウムを用いて動作させた際に測定した結果と 9 桁の精度で一致した。

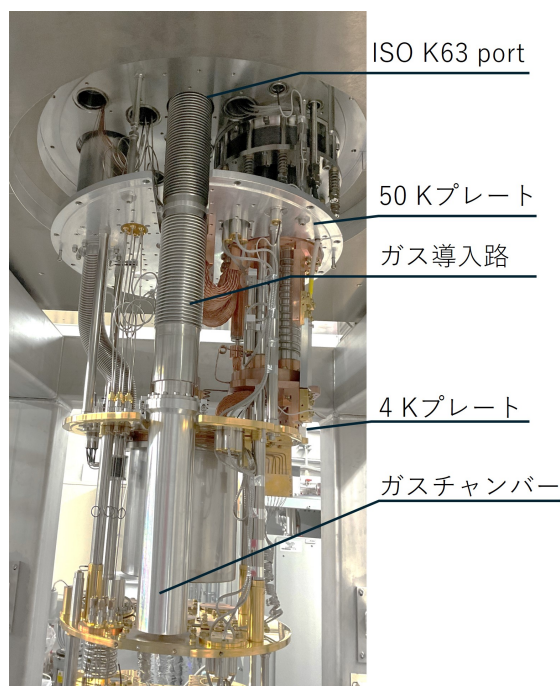


図: 開発した無冷媒冷凍機システム

講演では、熱伝導方程式に基づくチャンバーの設計やより詳細な精密抵抗測定の結果について発表する。

ジョセフソン電圧標準と量子ホール抵抗標準の同時駆動に向けた 冷凍機実装

Implementation of Cryo-Devices Toward Simultaneous Operation of Josephson Voltage Standard and Quantum Hall Resistance Standard

産総研¹, °松丸 大樹¹, 大江 武彦¹, 中村 秀司¹, 山森 弘毅¹, 丸山 道隆¹, 金子 晋久¹

AIST¹, °Daiki Matsumaru¹, Takehiko Oe¹, Shuji Nakamura¹, Hirotake Yamamori¹,

Michitaka Maruyama¹, Nobu-Hisa Kaneko¹

E-mail: d-matsumaru@aist.go.jp

直流電気関係量の国家計量標準で培われた技術を、希釈冷凍機中での高精度な電気計測や低温環境下における汎用測定系へと応用する研究に取り組んでいる。その一例として、ジョセフソン効果を利用した電圧標準 (JVS) 素子と量子ホール効果を利用した抵抗標準 (QHR) 素子、単電子トンネル効果を利用した単一電子ポンプ (SEP) 素子を 1 台の希釈冷凍機中に実装し、高精度な比較測定を行うことでこれら 3 つの量子システムの整合性をオームの法則を介して検証する量子メトロロジートライアングル (QMT) 検証実験の実現を目指している。この実験では、数 T 以上の強磁場を必要とする QHR 素子と、数十 μT の磁場を必要とする JVS 素子とを同時駆動させることが求められる。これまでの研究で我々は、希釈冷凍機中での JVS 素子動作を実現するとともに[1]、超伝導体と強磁性体を組合わせたハイブリッド磁気シールド構造を設計・試作することで、この問題に取り組んでいる[2],[3]。その結果、強磁場発生時にも JVS 素子近傍の磁束密度を地磁気強度以下まで低減し、量子化電圧を生成することに成功した[4]。

本発表では、QMT 検証実験に向けた次のステップとして、開発した JVS 素子モジュールを超伝導体/強磁性体ハイブリッド磁気シールドと組み合わせた状態で希釈冷凍機内に実装し、強磁場を発生させながら QHR 素子と同時駆動させることを目指しており (Fig. 1)、同時駆動の実現に向けた取り組みとその結果について報告する。

[1] D. Matsumaru, et al, IEEE Trans. Instrum. Meas., vol. 72, pp. 1–6, May 2023. Art. no. 1004706.

[2] 松丸 他: 第 83 回応用物理学会秋季学術講演会講演予稿集, 22a-A306-5 (2022) 10-071.

[3] 松丸 他: 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会講演予稿集, 21p-B204-2 (2023) 10-083.

[4] 松丸 他: 第 71 回応用物理学会春季学術講演会講演予稿集, 25a-12N-8 (2024) 10-091.

本研究は JSPS 科研費 JP24K07616 の助成を受けたものです。

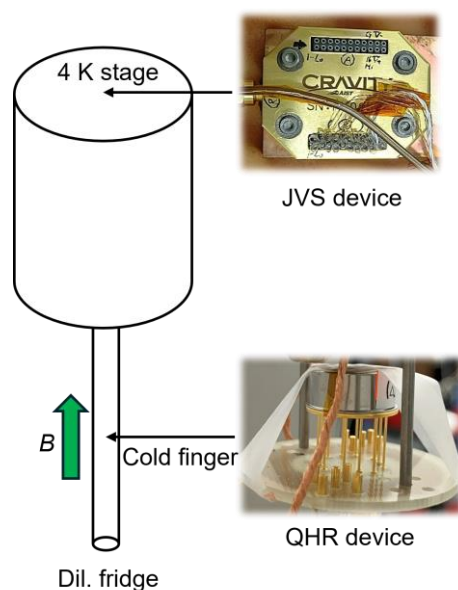


Fig. 1 Schematic view of implementation of Josephson Voltage Standard and Quantum Hall Resistance Standard.

超伝導トンネル接合 X 線検出器のための 低温・常温における磁気シールド内の磁場測定

Magnetic field measurements in magnetic shields at low and room temperatures for superconducting tunnel junction X-ray detectors

産総研¹ °志岐 成友¹, 藤井 剛¹

AIST¹, °Shigetomo Shiki¹, Go Fujii¹

E-mail: s-shiki@aist.go.jp

産総研では、軟 X 線領域における X 線吸収分光や SEM-EDX を目的として、超伝導トンネル接合(STJ: Superconducting Tunnel Junction)を用いた X 線検出器アレイを開発している。STJ 検出器アレイの全素子を動作させるには地磁気による磁束トラップを防ぐ必要があるため、軟磁性材料を用いた磁気シールドを冷凍機の初段熱シールド外側に組み込んでいる。STJ のサイズは 100 ミクロン角であり、超伝導転移時に素子を貫く磁場を 1 磁束量子(200nT)以下にすれば確実に磁束トラップを防止できる。しかしながら、磁気シールドを用いてなお、いくつかの素子で磁束トラップが生じている。この原因として、磁気シールドや基板・コネクタ等が磁化している可能性がある。本研究は磁束トラップの解消を目指し、磁気シールド内の磁場の強さを調べた。

常温および低温で磁気シールド内部の磁場を測定した。測定に用いた磁気センサーはフラックスゲートである。センサーは常温に設置され、ゼロ点はセンサーをシールド内の各測定位置で 180° 回転させることにより校正した。冷凍機はスターリング冷凍機(SCR-05B, AISHIN)を用いた。磁気シールドは SEM-EDX と STJ を組み合わせる際に利用するためのもので、素材はパーマロイ C、形状はカップ状、層数は 1 である。先端付近の側面に X 線導入のため直径 10mm の窓がある。最も磁場が侵入しやすい条件を模擬するため、水平面内の地磁気の向きが窓と直交するように配置した。図 1 に常温および 70K での磁気シールド中心軸付近での STJ 面に垂直方向の磁場分布を示す。磁場は、取付直後は 100nT 近くあるが、交流脱磁により 30nT 以下、窓の正面を避ければ 10nT 以下になった。測定された磁場の値は 100 ミクロン角 STJ のためには十分である。今後、実際の動作条件に近い温度 (3~30K) ・低温用シールド材料(A4K)での磁気シールド内の磁場分布や、基板・コネクタ等の磁気シールド以外の材料が STJ に及ぼす磁場を調べる。

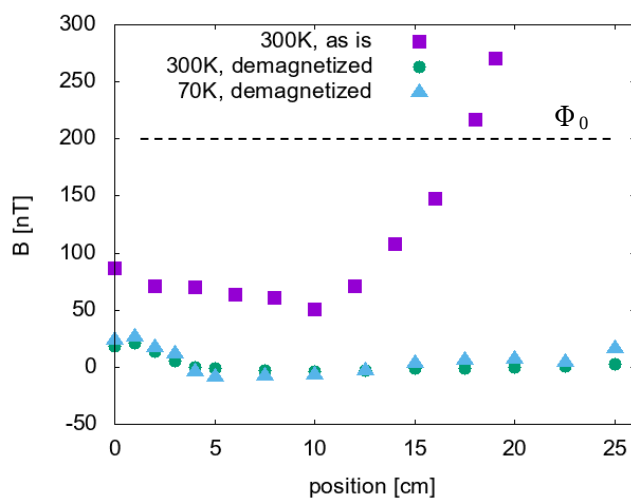


図 1. 常温および低温(70L)における磁気シールド内窓と垂直方向の磁場分布。

高温超伝導体を使用した NMR 用ひし形サンプルコイルの開発

Development of Rhombus-type Sample Coil Using High-Temperature Superconductor for NMR

山梨大工¹, 日本電子(株)² ◯藤田 貴紀^{1,2}, 作間 啓太¹, 田中 良二², 豊島 克幸², 關谷 尚人¹

Univ. of Yamanashi¹, JEOL Ltd.², ◯Takanori Fujita^{1,2}, Keita Sakuma¹, Ryoji Tanaka²,

Katsuyuki Toshima², Naoto Sekiya¹

E-mail: g22dts05@yamanashi.ac.jp

1. はじめに

核磁気共鳴 (NMR) は分子構造の解析に非常に有効である。我々は SNR を向上させ、解析時間を短縮するために高温超伝導体 (HTS) を用いたサンプルコイル (HTS コイル) を開発し、市販されている低温銅製鞍型コイルの 10 倍以上の Q 値を実現した[1]。しかし、円筒試料を覆う鞍型コイルに対して、平面基板上にのみ作製可能な HTS コイルが試料に照射できる RF 磁場の強度が本質的に低い問題があった。そこで、本研究では共振器の電流集中部分を試料領域に近づけることで RF 磁場の強度を高めたひし形 HTS コイルを開発したので報告する。

2. 設計

直径 5 mm の試料領域を囲むように、独立した 4 つの半波長共振器を配置する。それらが試料領域に発生する RF 磁場の強度を高めるために、三次元電磁界シミュレータを使用し、試料領域に近い側の共振器の設置角度を変化させたときの RF 磁場分布を解析した。Fig. 1 より、設置角度が小さいほど RF 磁場の強度が上昇し、最小の 124° のときに従来構造[1]の 1.9 倍に上昇することを明らかにした。

3. 作製および評価

フォトリソグラフィとイオンミリングで作製したひし形 HTS コイルを Fig. 2 に示す。これを NMR プロブに実装し、11 K に冷却した時の周波数特性を測定した。共振周波数は 600.2 MHz, Q 値は低温の銅製コイルの 10 倍以上だった。RF 磁場分布を測定した結果、従来構造の 1.8 倍の強度を実現した。これを 14 T の静磁場を発生する超伝導磁石に装着し、標準試料である直径 5 mm の 0.1 %エチルベンゼンを用いて SNR を評価した。測定の詳細は当日報告する。

参考文献

- [1] T. Fujita *et al.*, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 35, no. 5, Aug. 2025, Art. no. 4601104.

4. まとめ

共振器の電流集中部が試料に近いほど RF 磁場の強度が高まることを解析で示し、作製したひし形 HTS コイルの RF 磁場分布を測定することで RF 磁場の強度を従来構造の 1.8 倍に改善した。

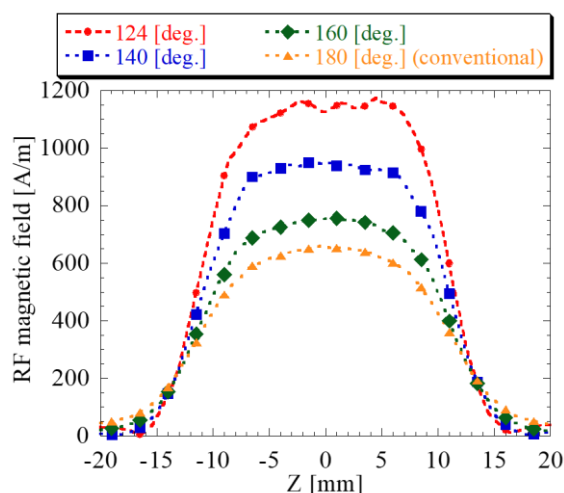


Fig. 1. Simulated RF magnetic field distribution

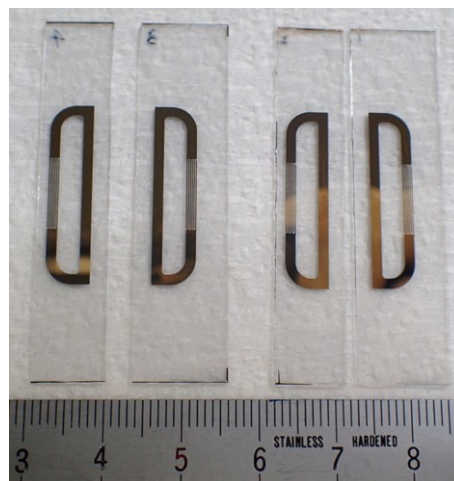


Fig. 2. Fabricated rhombus-type HTS sample coil

線幅 30 – 100 μm の超伝導ワイドストリップ光子検出器の特性評価

Evaluation of the superconducting wide strip photon detector with widths ranging from 30 to 100 μm

情通機構 °藪野 正裕, 寺井 弘高, 三木 茂人

NICT °Masahiro Yabuno, Hirotaka Terai, Shigehito Miki

E-mail: masahiro.yabuno@nict.go.jp

超伝導ストリップ光子検出器は、紫外から中赤外波長帯において高検出効率、低暗計数率かつ高時間分解能な単一光子検出器として、量子情報処理や深宇宙通信、LiDAR、バイオイメージング等の広範な先端光技術への応用が進められている。従来の超伝導ナノストリップ光子検出器(SNSPD)は、線幅 100 nm 前後の細い超伝導ストリップを高性能化のために必要としてきたが、我々は最近、従来よりも遥かに幅が太い線幅 20 μm の超伝導ワイドストリップ光子検出器(SWSPD)の高性能動作を実証した[1]。SWSPD は光リソグラフィで作製可能であり、SNSPD で課題となる偏光依存性も無いという利点から実用面での将来性が期待されていることに加え、基礎研究の観点からどこまで太い幅の超伝導ストリップで単一光子を検出可能であるのかが注目されている。そこで我々は今回、線幅 30 ~ 100 μm までの SWSPD を作製し、波長 1550 nm において、その光子検出特性を評価したので報告する。

厚さ約 6 nm の窒化ニオブチタン(NbTiN)超伝導薄膜を用いて、幅 30 μm (長さ 35 μm) ~ 幅 100 μm (長さ 105 μm) の超伝導ストリップを作製した。暗計数低減と内部検出効率向上のため、受光領域へ Ar イオンビームを照射し、高臨界電流バンク(HCCB)構造[1]を付与した。光キャビティ構造は作製せず、素子表面から光子を照射して特性評価を行った。図 1 に一例として、線幅 60 μm の SWSPD の温度 790 mK で測定したシステム検出効率

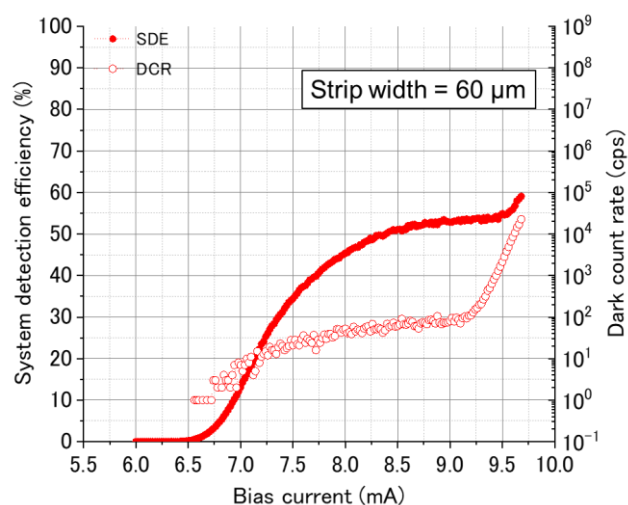


Fig. 1 Bias current dependences of the system detection efficiency and dark count rate.

(SDE)と暗計数率(DCR)のバイアス電流依存性を示す。バイアス電流の増加にともない SDE が飽和しており、線幅 60 μm でも内部検出効率はほぼ 100%に達した。SDE は約 54%に達しており、光学薄膜シミュレーションの結果とほぼ一致する値が得られた。他の線幅についても同様に測定を行い、波長 1550 nm での単一光子検出を実証するとともに、バイアス電流依存性を評価することに成功した。講演では、これらの詳細について報告する。

(謝辞) 本研究の一部は、JSPS 科研費(22H01965)、JST ムーンショット型研究開発事業(JPMJMS2066)の助成を受けて実施された。

[1] M. Yabuno *et al.*, *Optica Quantum* **1**(1), 26-34 (2023).

光子検出器応用に向けた鉄系超伝導体 NdFeAs(O,H)の光応答特性評価

Evaluation of photoresponse properties of iron-based superconductor NdFeAs(O,H)

toward photon detector applications

名大工¹, 名大 RCCME², 東北大工³

○吉川 淳朗¹, 富岡 隼也¹, 鷲谷 伊吹¹, 青木 大知¹, 宮本 洸希¹, 畑野 敬史¹,

沓間 弘樹³, 山下 太郎³, 生田 博志^{1,2}

Dept. Mater. Phys., Nagoya Univ.¹, RCCME, Nagoya Univ.², Dept. Appl. Phys., Tohoku Univ.³

○Atsuro Yoshikawa¹, Shunya Tomioka¹, Ibuki Washitani¹, Daichi Aoki¹, Koki Miyamoto¹,

Takafumi Hatano¹, Hiroki Kutsuma³, Taro Yamashita³, Hiroshi Ikuta^{1,2}

E-mail: yoshikawa.atsuro.t0@s.mail.nagoya-u.ac.jp

【はじめに】超伝導単一光子検出器(Superconducting Single Photon Detector: SSPD)は、従来の半導体検出器を大きく凌駕する検出効率/動作速度/ノイズ性能を示すことから、量子暗号通信などの様々な先端技術への適用が期待されている[1]。しかし、実用化されている SSPD は転移温度(T_c)の低い超伝導体を用いたものに限られ、極低温(<3 K)での運用が必須となっている。そこで、我々は近年新たに発見された高温超伝導体である鉄系 NdFeAs(O,H)に着目し、SSPD 作製プロセスの確立に取り組んでいる[2,3]。今回は、NdFeAs(O,H)細線デバイスの光応答特性評価を行ったので、その結果について報告する。

【手法】分子線エピタキシー法により作製した NdFeAsO 薄膜を、CaH₂ 粉末と共に加熱処理して H 置換を行った。その後、電子線リソグラフィと Ar イオンミリングにより薄膜を線幅 540 nm, 線長 10 μ m へ細線加工し、ダークカウント率を測定した。その際、ラッチング防止のために並列シャント抵抗(5.8 Ω)と直列インダクタ(3 μ H)を使用した。

【結果】NdFeAs(O,H)細線へスイッチング電流(I_{sw})を印加した結果、図(a)に示すダークカウントが観測された。また、図(b)に示すようにダークカウント率はバイアス電流(I_b)に対して指数関数的に変化した。線長が異なるため単純な比較はできないが、NdFeAs(O,H)細線は既存 SSPD[4]の高 I_b 領域と同程度のノイズレベルであることが分かった。さらに、10 K においても同様にダークカウントが観測された。講演会では、光照射の結果も含めて詳細に報告する予定である。

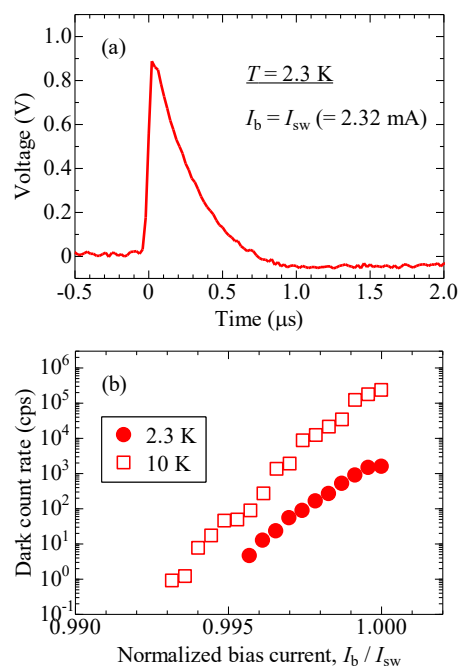


Fig. (a) Voltage signal waveform of a dark count. **(b)** Dark count rate as a function of the normalized bias current (I_b / I_{sw}).

[1] C. M. Natarajan *et al.*, *Supercond. Sci. Technol.* **25**, 063001 (2012). [2] A. Yoshikawa *et al.*, *Supercond. Sci. Technol.* **37**, 085008 (2024). [3] 吉川淳朗 他, 第 85 回応用物理学会秋季学術講演会, 16a-A35-9 (2024). [4] W. J. Zhang *et al.*, *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **60**, 120314 (2017).

中赤外光子検出用光キャビティ構造を備えた 超伝導ナノストリップ光子検出器

Superconducting Nanostrip Single-Photon Detector with an Optical Cavity for Mid-infrared Photon Detection

東北大院工[○](M2) 今野 佑輔, (M1) 萩原 悠太, 沓間 弘樹, 山下 太郎

Tohoku Univ., [○]Yusuke Konno, Yuta Hagiwara, Hiroki Kutsuma, and Taro Yamashita

E-mail: konno.yusuke.p7@dc.tohoku.ac.jp

超伝導ナノストリップ光子検出器 (SNSPD) は、通信波長帯 (波長 $1.55\ \mu\text{m}$) の光に対して 90% を超える優れた検出効率が報告され [1]、量子光学をはじめとする様々な分野に応用されている。近年では LIDAR や大気環境計測、自由空間光通信等の分野において、より波長の長い中赤外領域 (波長 $2\text{--}25\ \mu\text{m}$ 程度) での応用が期待されている。しかし、通信波長帯よりも波長の長い、つまりエネルギーの小さい光子を高効率に検出することは従来の SNSPD では困難で、実用化には検出効率の向上が課題となっている。

そこで本研究では、まず中赤外光子の検出効率向上に向けた光キャビティ構造の検討と最適化を行った。従来の通信波長帯用 SNSPD のキャビティ層材料として用いられている SiO_2 や Al_2O_3 、 SiN 等は中赤外光を吸収するため適さない。そこで我々は、キャビティ層材料として中赤外光の吸収が少ない Si に着目し、Fig. 1 に示すような熱酸化膜付き Si 基板上の NbN/Si/Au キャビティ構造について、NbN ワイヤにおける光吸収率を電磁界シミュレーションソフトウェア (COMSOL Multiphysics, RF module) により計算した。光は検出層で

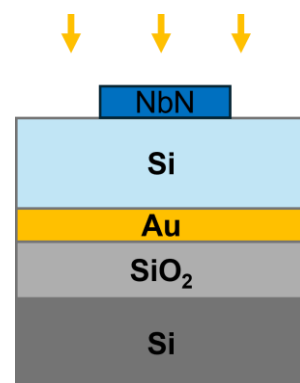


Fig.1 Unit cell of SNSPD with Si optical cavity for the numerical simulation.

ある NbN ワイヤ側より入射し、Si がキャビティ層、Au がミラー層として機能する。Fig. 2 に、数値計算で得られた膜厚 10 nm、線

幅 100 nm の NbN ワイヤにおける光吸収率の波長依存性を示す。図に示すように、Si 膜厚を変えることで中赤外領域の広い範囲で 90% を超える光吸収率が得られることがわかった。講演では、キャビティ構造を備えた NbN 薄膜の物性評価やシミュレーション結果に基づき作製した中赤外用 SNSPD の特性評価についても報告する。

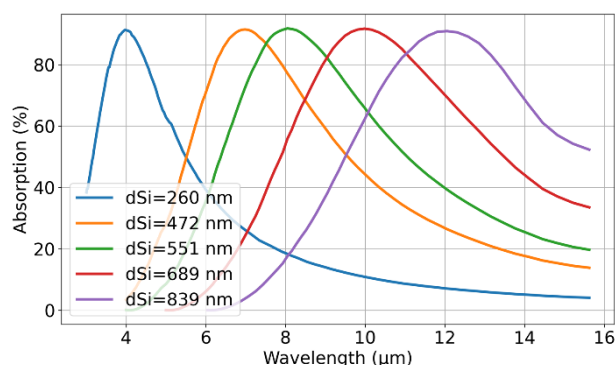


Fig.2 Wavelength dependence of the absorptance in the NbN wires for various Si film thicknesses.

本研究の一部は JSPS 科研費(23K17323)及び JST さきがけ(JPMJPR23F4)の支援により行われた。

[1] D. V. Reddy *et al.*, *Optica* **7**, 12 (2020).

超伝導ナノストリップ光子検出器の回路パラメータ抽出手法の開発と実証

Development and experimental demonstration of circuit parameter extraction method for superconducting nanostrip photon detectors

東北大院工¹, [○]沓間 弘樹¹, 山下 太郎¹

Tohoku Univ.¹, [○]Hiroki Kutsuma¹, Taro Yamashita¹

E-mail: hiroki.kutsuma.c5@tohoku.ac.jp

超伝導ナノストリップ光子検出器 (SNSPD: superconducting nanostrip photon detector) [1]は、高い検出効率等の優れた特徴により、量子光学実験等の幅広い分野に応用されている。近年、回路シミュレータを用いて SNSPD の光子検出時の波形を再現する手法が報告[2]されており、回路モデルに基づく動作メカニズムの理解が進んでいる。さらに、こうしたシミュレーション技術を活用した新規構造の SNSPD が提案され、光子数分解能の向上[3]や構造起因のジッターの抑制[4]等が報告されている。これまで、回路シミュレーションに用いられるインダクタンスや電流に動的に依存する抵抗等の回路パラメータには、超伝導ストリップの熱伝導率や超伝導/基板界面の熱接触伝導率等の典型値を基に算出された値が使用されてきた。一方、高精度な SNSPD 設計を行うためには、実デバイスの測定結果から回路パラメータを抽出する手法が必要であるが、そのような手法は存在しない。

そこで本研究では、SNSPD の電流-電圧特性が、SNSPD に並列に接続されたシャント抵抗 R_{shunt} (Fig.1)の値によって変化することに着目し、実デバイス測定から回路パラメータを抽出する方法の開発および実証を行った。まず、回路シミュレータに SNSPD を模擬した等価回路を実装し、SNSPD に電流を印加した場合の数値シミュレーションを行った。その結果、シャント

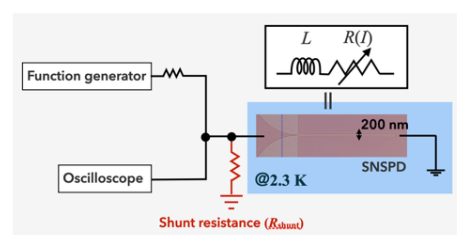


Fig. 1 Measurement setup.

抵抗の値に応じて、電流-電圧特性のヒステリシス形状が変化することを確認した (Fig.2 左)。次に、線幅 200 nm 膜厚 7 nm の NbN ナノストリップからなる SNSPD を作製し (Fig.1)、様々なシャント抵抗を接続して、電流-電圧測定を行った (Fig.2 右)。その結果、測定結果をシミュレーション結果と比較することにより、実デバイスの測定から回路パラメータを抽出することに成功した。

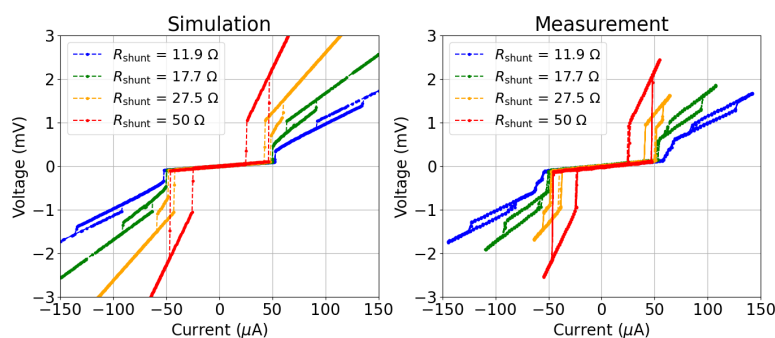


Fig. 2 Current-voltage characteristics of SNSPD with various shunt resistances: simulation (left) and measurements (right).

謝辞 本研究の一部は、JST さきがけ (JPMJPR23F4)、JSPS 科研費(23K17323)の支援により行われた。

[1] G. N. Gol'tsman *et al.*, Applied Physics Letters **79**, 705-707 (2001).

[2] K. Berggren *et al.*, Superconductor Science and Technology **31**, 055010 (2018). [3] D. Zhu *et al.*, Nano Letters **20**, 3858-3863 (2020).

[4] M. Colangelo *et al.*, Physical Review Applied **19**, 044093 (2023).

量子ビットの読み出しに向けたジョセフソンパラメトリック発振器の読み出し感度の検討

Investigation of The Readout Sensitivity of a Josephson Parametric Oscillator for Qubit State Readout

横国大¹, IAS² ○(M2) 町村 至¹、沈 泓翔²、吉川信行^{1,2}

1 Josephson Parametric Oscillator

我々は、極低温において量子ビットの読み出しを行い、デジタル処理を行うことを目的とし、ジョセフソンパラメトリック発振器の開発を行っている。図1に示すようにジョセフソンパラメトリック発振器(JPO)[1]はLC共振器の形となっており、インダクタンスの一部がdc-squidとなっている。外部磁束によってdc-squidの等価インダクタンスを共振周波数の2倍の周波数で変化させることによって、パラメトリック発振を起こすことができる。

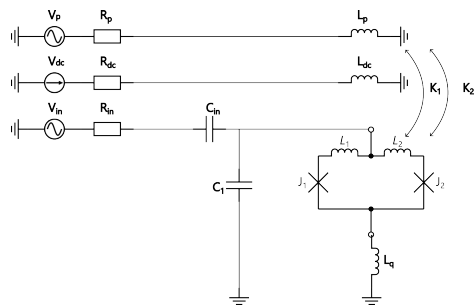


図 1: JPO の回路図

2 JPO のシミュレーション

回路の値としては $C_1 = 50pF$, $L_q = 13.4pH$, $I_0 = 50\mu A$ となっており, 入力電流 $I_{in} = 0.1\mu A$ で周波数は 5 GHz 、dc-squid への中心印加磁束は $0.34\Phi_0$ とし、 $f_0 = 5GHz$ となるように設計を行いシミュレーションを行った。この時出力電圧は図2のようになり、過渡状態を経た後に定常状態になった。

3 JPO の位相判別感度

10mK において各点 1000 回のシミュレーション

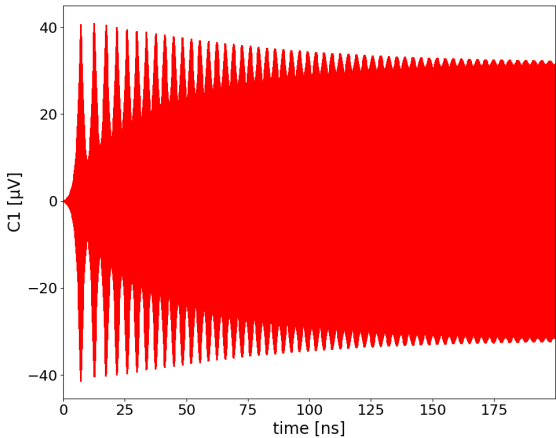


図 2: JPO の発振電圧

において位相判別感度を計算し、Grayzone を求めると図3のようになった。その結果 $\Delta I = 1.6nA$ となり、高感度な位相判別が可能である。

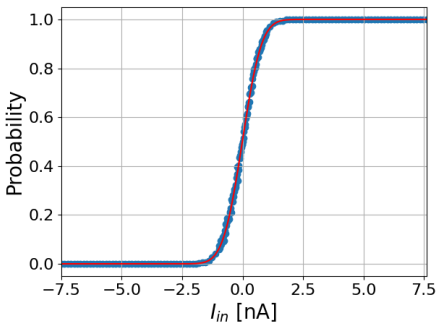


図 3: JPO の入力電流に対する位相判別確率の特性

参考文献

[1] J. Bardin, “Design and characterization of a 28-nm bulk-cmos cryogenic quantum controller dissipating less than 2 mw at 3 k,” *IEEE J. Solid-State Circuits*, pp. 54,3043–3060, 2019.

Buffer 層を有する STJ 検出器の SiO₂ 膜厚による影響評価**Evaluation of the Effect of SiO₂ Thickness on STJ Detectors with a Buffer Layer****埼玉大院¹, 産総研² ○(M2)小口 貴穂^{1,2}, 野口 剛志¹, 藤井 剛², 田井野 徹¹****Saitama Univ.¹, AIST², °T. Oguchi¹, T. Noguchi¹, G. Fujii², and T. Taino¹****E-mail: t.oguchi.628@ms.saitama-u.ac.jp****背景：**

現在、持続可能な社会に向けて SiC や GaN など次世代省エネルギー半導体材料に関する研究が進められている。その開発には材料分析が重要であるが、一般的に X 線検出器として用いられているシリコンドリフト検出器(Silicon Drift Detector : SDD)ではエネルギー分解能が不十分であり、微量軽元素の X 線ピークを明瞭に識別することが困難である。そこで、我々は SDD と比較しエネルギー分解能に優れる超伝導トンネル接合(Superconducting Tunnel Junction : STJ)検出器の研究を行っている[1]。

通常、STJ は Si 基板上に直接作製されるが、高エネルギー X 線の入射により X 線の大部分は厚さ数百 nm の STJ を透過し Si 基板で吸収される。その際に発生するフォノン信号(ノイズ)が、STJ の超伝導電極で直接吸収された低エネルギー X 線によって生成される信号との比較を困難にしている[2]。この問題の解消に向け、これまでに Si 基板と STJ の間に様々な材料の Buffer 層を成膜することによりフォノンノイズの低減が図られてきた。その結果、Buffer 層として Ti/Au/Ti/SiO₂ を採用することで、Buffer 層のない Si-STJ と比較してフォノンノイズを 79%低減したことが報告されている[3]。

本研究では、Buffer 層中の絶縁層として成膜されている SiO₂ の膜厚に着目し、SiO₂ のフォノンノイズへの寄与に関する調査を目的とした。

実験：

SiO₂ の膜厚によるフォノンノイズを評価するため、従来の SiO₂ が 100 nm であった STJ に対し、50 nm、20 nm と変化させた STJ を作製し、高エネルギー X 線源を用いて X 線照射試験を行った。STJ の構造、作製方法や測定結果の詳細については当日報告する。

謝辞：

本研究の一部は、文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業（課題番号 JPMXP1224AT5027, JPMXP1225AT5004）の支援を受けた。

参考文献：

[1] G. Fujii, et al., X-Ray Spec., 46, pp.325-329, 2017.

[2] Y. Fujisawa, et al., J. Phys.: Conf. Ser. 1293, 2019

[3] T. Noguchi, et al., 低温工学, Abs. CSSJ conf., Vol. 106, pp. 40, Dec.2023

三次元超伝導回路作製に向けた In/Nb バンプの接合界面解析

Bonding interface analysis of In/Nb bumps for fabrication of 3D superconducting circuits

埼玉大院¹, 産総研² ○(M2)石山 照瑛^{1,2}, 荒賀 佑樹², 仲川 博², 菊地 克弥², 田井野 徹¹

Saitama Univ.¹, AIST.², °S. Ishiyama^{1,2}, Y. Araga², H. Nakagawa², K. Kikuchi², and T. Taino¹

E-mail: s.ishiyama.793@ms.saitama-u.ac.jp

近年、量子コンピューティングや高感度センサ技術の発展に伴い、超伝導量子ビット(Qubit)や超伝導量子干渉素子 (SQUID) に代表される超伝導デバイスへの関心が高まっている。これらの超伝導デバイスは回路を三次元的に実装することで、高集積化・高性能化・小型化を実現することが期待されており、これに対応する三次元実装技術の開発が急速に進められている。三次元実装技術の一つとして、フリップチップ実装技術がある。フリップ実装技術は、バンプと呼ばれる微細な接続端子をチップ表面に形成し、基板に裏返して直接接合する実装技術である。我々はフリップチップ実装技術の一つである、表面活性化接合(Surface Activated Bonding : SAB)[1]を用いた接合に着目した。SAB は常温での接合が可能であり、同種の物質だけでなく、異種材料同士の直接接合も可能である。これまでに、SAB を用いた Nb バンプ同士の直接接合が報告されている[2]。しかし、チップ内におけるバンプの高さのばらつきなどが原因で、一部の箇所では接合不良が生じた。このバンプの高さのばらつきを吸収する手法として In 薄膜を Nb 表面に形成し、Nb と In/Nb バンプの直接接合を提案した[3]。

本発表では、接合部における構造的接続の健全性を確認するとともに、接合界面における In 層の分布状況を確認し、不純物の残存がないかを評価することを目的として、In/Nb バンプを用いたフリップチップ接合界面の解析を行った。Fig1 と Fig2 に接合断面図を示す。詳細は発表当日に報告する。

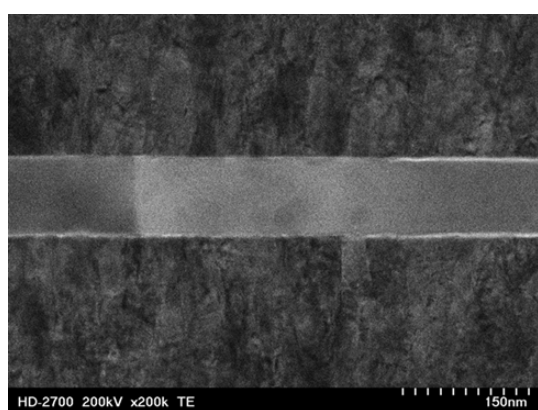


Fig.1 Bonding interface analysis of In/Nb bumps (STEM-SE image)

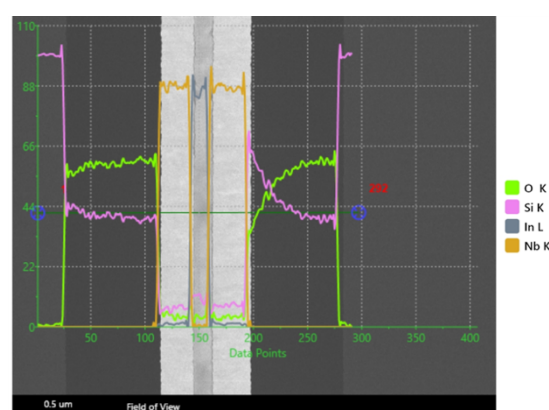


Fig.2 Bonding interface analysis of In/Nb bumps (EDX analysis)

[1] T. Suga et. al., Acta metal. Mater., Vol.40, Suppl., pp.S133-S137, 1992.

[2] M. Fujino et. al., J. Appl. Phys., 133, 2023.

[3] S. Ishiyama et. al., The 85th JSAP Autumn Meeting 2024, 18p-B5-7, 2024.

グリーンランド望遠鏡搭載用多色カメラのための MKID の評価

Evaluation of MKID for multicolor camera mounted on Greenland telescope



○(MIC)佐藤泰基¹, 渡邊一輝², 井上修平³, 宇野慎介⁴, 大島泰⁵, 竹腰達哉⁶, 田井野徹¹

○(MIC)Taiki Sato¹, Kazuki Watanabe², Shuhei Inoue³, Shinsuke Uno⁴, Tai Oshima⁵, Tatsuya Takekoshi⁶, Tohru Taino¹

Saitama Univ.¹, The Graduate University for Advanced Studies (SOKENDAI)²,

The University of Tokyo³, RIKEN Center for Advanced Photonics⁴,

National Astronomical Observatory of Japan⁵, Kitami Institute of Technology⁶

E-mail: sato.t.217@ms.saitama-u.ac.jp

宇宙最大の重力構造である銀河団の動的進化の観測は、宇宙の構造進化の深い理解に大きな役割を果たすことが期待されているが、これまでに遠方銀河団の運動を検出した例は少ない。

そこで我々は遠方銀河団の運動の同定を目的として、銀河団のスニヤエフ・ゼルドビッチ効果の測定やサブミリ波銀河の探査を行うための観測用カメラ(グリーンランド 12m 望遠鏡に搭載予定)を開発している。このカメラの特徴は、スニヤエフ・ゼルドビッチ効果を測定するため、ミリ波サブミリ波帯にわたって広帯域・多色の検出器を有することである。

Figure1 に示す多色カメラでは、超伝導集積回路上の平面アンテナで受けた広帯域信号をオンチップバンドパスフィルターで周波数弁別し、それぞれのバンド毎に弁別された信号をマイクロ波力学インダクタンス検出器(MKID)で読み出すことにより、ミリ波とサブミリ波でそれぞれ3色(ミリ波帯 150/220/270 GHz, サブミリ波帯 350/400/650 GHz)を同時検出する(Figure1)。これによって、広帯域・多色の検出を実現する。

現時点では、ミリ波側 150 GHz 帯用の MKID アレイ試作チップ(Figure2)を用い、ダーク環境試験と光学試験を行い、ダーク環境試験では BPF やアンテナの結合が MKID の共振特性に変化を及ぼさないこと、光学試験では黒体放射に対する応答を確認した。本発表では、この試作チップを用いた極低温評価の結果の詳細について報告する。

【参考文献】

1) S. Uno, Ph.D. thesis, The University of Tokyo, 2024

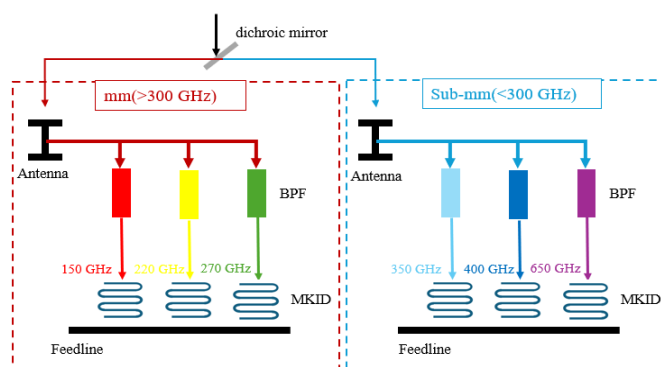


Figure1: Diagram of focal plane detector.

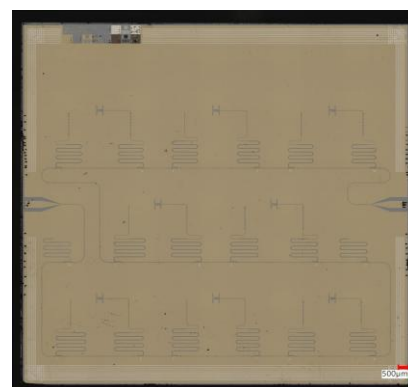


Figure2: MKID array prototype chip

ブラッグミラー共振器を用いた YBCO 薄膜の 非線形力学インダクタンスの評価

Nonlinear kinetic inductance of YBCO thin film measured by Bragg-mirror resonator

静大院総合¹, 富山大² ○(M2)湯田 海斗¹, 有吉 誠一郎², 武田 正典¹

Shizuoka Univ.¹, Toyama Univ.²

○Kaito Yuda¹, Seiichiro Ariyoshi², Masanori Takeda¹

E-mail: yuda.kaito.20@shizuoka.ac.jp

近年、量子計測や電波天文観測において広帯域かつ低雑音のマイクロ波増幅器が求められており、特に力学インダクタンスを用いた進行波型パラメトリック増幅器 (KITWPA) が注目されている。従来の KITWPA は NbTiN 薄膜を用いて作製されており、転移温度の制約から動作温度が mK～数 K 程度と低温に限られている。そこで本研究では、より高温で動作可能な KITWPA の作製を目指し、転移温度の高い高温超伝導である YBCO 薄膜を用いた KITWPA の実現に向けて、設計に必要な YBCO 薄膜の力学インダクタンス、非線形パラメータを評価したので報告する。

本研究では、力学インダクタンスおよび力学インダクタンスの電流に対する非線形性を評価するため、図 1 に示すような両端にブラッグミラーを備えた $\lambda/4$ コプレーナ線路型共振器を設計・作製した。共振器は、中心導体幅 $5\ \mu\text{m}$ 、中心導体と GND 間の間隔 $5\ \mu\text{m}$ 、線路長 $5.4\ \text{mm}$ となっている。入出力ポート、ブラッグミラー、共振器はすべて連続して形成されており、共振器への直流電流の印加が可能な構造となっている。作製には厚さ $25\ \text{nm}$ の YBCO 薄膜を MgO 基板上に蒸着し、その上に厚さ $200\ \text{nm}$ の金保護膜を形成した積層膜 (Ceraco 社製) を用いた。この YBCO 薄膜の抵抗率を 4 端子法により測定したところ、温度 $100\ \text{K}$ において $308\ \mu\Omega \cdot \text{cm}$ であり、また超伝導転移温度は $83\ \text{K}$ であった。この積層膜をフォトリソグラフィでパターンニングしイオンビームエッチングで加工した。作製したデバイスを筐体の実装し、透過特性の測定を行った。測定にはベクトルネットワークアナライザ (VNA) を用いた。S/N 比を向上させるため、VNA とデバイスの間に利得約 $25\ \text{dB}$ の室温アンプを接続した。また、交流信号に直流電流を重畳するためにバイアスティーを用いた。測定は温度 $4\ \text{K}$ から $50\ \text{K}$ の範囲で、入力電力は $-55\ \text{dBm}$ で行った。測定の結果、直流電流を印加していないときの共振周波数 f_0 は、 $4\ \text{K}$ で $3.41\ \text{GHz}$ 、 $50\ \text{K}$ で $3.04\ \text{GHz}$ であった。次に、直流電流を印加して、直流電流と共振周波数の変化率の関係を調べた。その結果を図 2 に示す。図 2 では、横軸に印加した直流電流 I_{dc} 、縦軸に共振周波数の変化率 $\delta f/f_0$ (共振周波数の変化量を直流電流無印加時の共振周波数で正規化した値) を示している。結果から、直流電流の増加に伴い共振周波数が低下することがわかる。これは、電流により YBCO 薄膜の力学インダクタンスが増加したためと考えられる。また、温度が高いほど共振周波数の変化量が大きくなる傾向も確認された。

本発表では、得られた透過特性に基づいて YBCO 薄膜の力学インダクタンスや非線形性などの物性パラメータを評価した結果と、それらを用いて設計した KITWPA の特性について報告する。

【謝辞】本研究の一部は、科研費 23K03955 の助成により実施した。

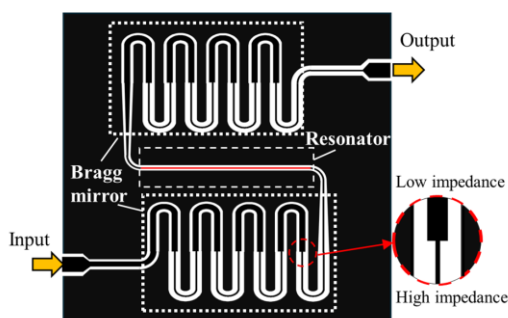


Fig.1 Overview of a Bragg mirror resonator fabricated from a YBCO thin film.

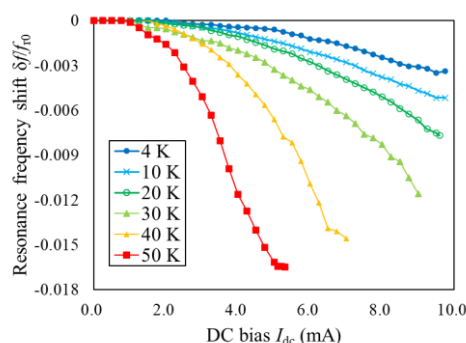


Fig.2 Normalized frequency shift to resonance frequency as a function of DC bias current.

11 Superconductivity | Oral presentation : 11.5 Junction and circuit fabrication process, digital applications

[10a-N405-1~8] 11.5 Junction and circuit fabrication process, digital applications

[10a-N405-1]

Development of single flux quantum signal processor for photon number resolving system with high repetition rate

○Shigeyuki Miyajima¹, Masahiro Yabuno¹, Hirotaka Terai¹, Shigehito Miki¹ (1.NICT)

[10a-N405-2]

Observation of superconducting quantum vortices in NbN using diamond quantum sensors

○Ryoei Ota¹, Shunsuke Nishimura¹, Koki Honda², Takeyuki Tsuji³, Hayato Ozawa⁴, Taro Yamashita², Mutsuko Hatano⁴, Takayuki Iwasaki⁴, Kento Sasaki¹, Kensuke Kobayashi¹ (1.Tokyo Univ., 2.Tohoku Univ., 3.NIMS, 4.Science Tokyo)

[10a-N405-3]

Demonstration of Tlerance to Parameter Variations in Superconducting ReLU Neuron Circuit

○Yuto Ueno¹, Yuki Hironaka², Nobuyuki Yoshikawa^{1,2}, Yuki Yamanashi^{1,2} (1.Yokohama National Univ., 2.Yokohama National Univ. IAS)

[10a-N405-4]

Evaluation of Error-Rate Test Circuits for Measuring Radiation Tolerance in Single Flux Quantum Circuits

○Kazuto Osakabe¹, Yuki Yamanashi¹, Nobuyuki Yoshikawa¹ (1.Yokohama Natl. Univ.)

[10a-N405-5]

Characterization of π Josephson Junction with Nb/GdN/Nb Trilayer

○Feng Li¹, William Freeman Holmes-Hewett², Jackson Miller², Simon Granville², Ben Ruck², Masamitsu Tanaka¹, Akira Fujimaki¹ (1.Nagoya Univ., 2.Victoria Univ. of Wellington)

[10a-N405-6]

Suppression of variation in Josephson junction characteristics

○KOSUKE KAKUYANAGI¹, Teran Nika¹, Hiraku Toida¹, Shiro Saito¹ (1.NTT BRL)

[10a-N405-7]

Study on controlling the fluorination reactivity of native Nb oxide to improve the Q factor of superconducting resonators

○(M2)Yamato Aoyama¹, Daisuke Ohori¹, Yuichi Fujita², Yoshiro Urade², Go Fujii², Kunihiro Inomata², Kazuhiko Endo¹ (1.IFS, Tohoku Univ., 2.AIST)

[10a-N405-8]

Evaluation of High- β_c Junction Effects in Half-Flux Quantum Logic Circuits

○Kenshin Inagaki¹, Soma Deguchi¹, Feng Li¹, Masamitsu Tanaka¹, Akira Fujimaki¹ (1.Nagoya Univ.)

光子数識別システムの高速化に向けた単一磁束量子信号処理回路の開発

Development of single flux quantum signal processor for photon number resolving system with high repetition rate

情通機構¹ ○宮嶋 茂之, 藪野 正裕, 寺井 弘高, 三木 茂人

NICT, °Shigeyuki Miyajima, Masahiro Yabuno, Hirotaka Terai, Shigehito Miki

E-mail: miyajima@nict.go.jp

光子数識別検出器は、光子技術の高度化に不可欠な要素技術である。近年、高検出効率・低暗計数率・低ジッタ特性を有する超伝導ストリップ光子検出器(SSPD)を多素子アレイ化した光子数識別検出器の高性能性が実証され、注目を集めている [1, 2]。SSPD アレイ型の光子数識別技術は、高精度の光子数識別には多数の検出素子を必要とする一方で、SSPD の特徴である高速動作を維持することが可能であり、近年実証された単一素子の SSPD を用いた光子数識別技術[3]に比べ、低ジッタかつ高カウントレートな光子数識別検出器を実現可能である。このような SSPD アレイ型の光子数識別器の高性能化には、複数の SSPD からの出力信号数を識別可能な形で多重化する高速な信号処理回路の開発が不可欠である。本稿では高速な光子数識別システムを実現するために単一磁束量子(SFQ)回路による光子数識別用回路の開発を行った。Fig. 1 に 4 チャンネルの場合の SFQ 光子数識別回路のブロック図を示す。今回設計した回路ではパルスレーザ源から与えられるトリガー信号を基準として 300 ps の時間幅を時間窓と設定しており、このゲート動作をリセット機能付きの DFF(RDFF)を用いて実現した。各 SSPD の出力信号は磁気結合型の DC/SFQ converter (MC-DC/SFQ converter) を介して SFQ パルスへと変換され、RDFF に保持される。トリガー信号から 300 ps 後に RDFF の clock 端子に SFQ パルスが供給される。RDFF から出力された SFQ パルスは後段の超伝導量子干渉素子(SQUID)により電圧へと変換される。複数のピクセルが光子を検出した場合、対応した数の SQUID の電圧が重畳されることになり、出力電圧の波高値を観測することで光子を検出した SSPD の数を識別することが可能となる。今回設計した回路では出力電圧の時間幅を 5 ns と設定しており、100 MHz での繰り返し応答が可能となっている。

本稿では 8 チャンネル入力可能な SFQ 光子数識別回路の設計・作製を行い液体ヘリウム下で単独試験を行った。得られた波形は Fig. 2 となっており、6 段階まで電圧波高値の変化を観測することが出来た。実験結果の詳細については講演で報告する。

[1] Zhang, *et al.*, *Photon. Res.* **12**, 1328 (2024). [2] Cheng, *et al.*, *Nat. Photon.* **17**, 112 (2023). [3] Endo, *et al.*, *Opt. Exp.*, **29**, 11728 (2021).

謝辞 本研究の一部は JST ムーンショット型研究開発事業(JPMJMS2026)の助成を受けたものである。また本研究に使用された回路は、国立研究開発法人産業技術総合研究所の超伝導量子回路試作施設 (Qufab) において作製された。

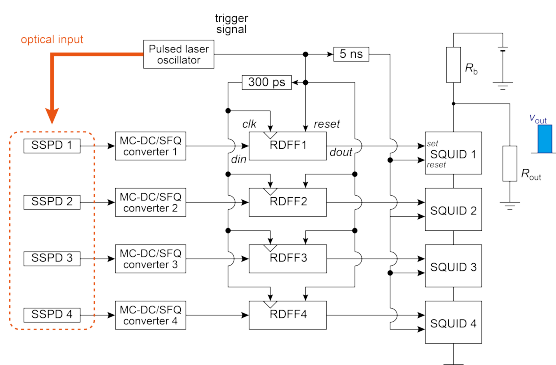


Fig. 1 Block diagram of 4-channel SFQ-based photon number resolving circuits.

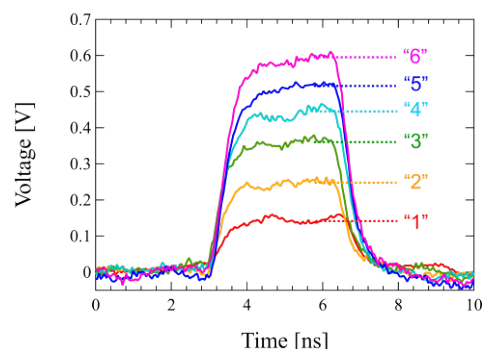


Fig. 2 Observed waveforms by experiment at liquid helium.

ダイヤモンド量子センサによる NbN 超伝導量子渦の観測

Observation of superconducting quantum vortices in NbN using diamond quantum sensors

東大理¹, 東北大院工², 物材機構³, 科学大⁴, ○(D1) 太田 怜英¹, (D3) 西村 俊亮¹,
(M2) 本田 浩輝², 辻 赳行³, 小澤 勇斗⁴, 山下 太郎², 波多野 睦子⁴, 岩崎 孝之⁴, 佐々木 健
人¹, 小林 研介¹

The University of Tokyo¹, Tohoku University², NIMS³, Science Tokyo⁴, ○Ryoei Ota¹,
Shunsuke Nishimura¹, Koki Honda², Takeyuki Tsuji³, Hayato Ozawa⁴, Taro Yamashita²,
Mutsuko Hatano⁴, Takayuki Iwasaki⁴, Kento Sasaki¹, Kensuke Kobayashi¹

E-mail: ryoei.ota@phys.s.u-tokyo.ac.jp

超伝導磁束状態は単一磁束量子 (Single Flux Quantum: SFQ) 論理回路の動作において中心的役割を果たす [1]. また, 超伝導回路の内部に侵入した量子渦は SFQ や, 超伝導単一光子検出器などのデバイスの動作への影響が指摘されている [1, 2]. したがって, 超伝導体の磁場分布はこれらのデバイス開発において極めて重要であり, その可視化はこれらの応用に対して必要な知見をもたらす.

本研究では, 量子渦の可視化に有望な新手法として, ダイヤモンド中の窒素空孔 (NV) 中心を用いた測定手法に着目する. NV 中心は, 磁場によって変化するスピン準位の分裂を光学的に検出できることから, 磁場のイメージングに利用されている. 特に, 完全配向した NV 中心の集団 [3] を持つダイヤモンドセンサ試料を用いると, 薄膜表面付近における磁場の面直成分を定量的にマッピングできる. これを利用して, 我々は銅酸化物超伝導体の量子渦のイメージングにすでに成功している [4].

本講演では, 完全配向した NV 中心の集団を用いて, エピタキシャル NbN 試料表面磁場の 2 次元イメージングを行った結果について報告する. まず, ゼロ磁場中冷却した NbN 試料に外部磁場を印加した後, 試料磁場をイメージングすることで, 完全反磁性の発現を確認した. 次に, NbN 試料を磁場中冷却した後, 試料磁場をイメージングすることで, 量子渦の発現を確認した. さらに, 冷却中の印加磁場の大きさによって量子渦の個数密度が変化することを確認した.

[1] K. K. Likharev and V. K. Semenov, IEEE Trans. Appl. Supercond., **1**, 3 (1991).

[2] T. Yamashita, *et al.*, Appl. Phys. Lett., **99**, 161105 (2011).

[3] T. Tsuji, *et al.*, Diam. Relat. Mater., **123**, 108840 (2022).

[4] S. Nishimura, *et al.*, Appl. Phys. Lett., **123**, 112603 (2023).

超伝導 ReLU ニューロン回路のパラメータ変動耐性の実証

Demonstration of Tolerance to Parameter Variations in Superconducting ReLU Neuron Circuits

上野 佑斗¹, 弘中 祐樹², 吉川 信行^{1,2}, 山梨 裕希^{1,2}

Yokohama National Univ.¹, Yokohama National Univ. IAS²

Yuto Ueno, Yuki Hironaka, Nobuyuki Yoshikawa, Yuki Yamanashi

E-mail: ueno-yuto-vy@ynu.jp

1. はじめに

近年の人工知能 (Artificial Intelligence) の発展は目覚ましく、画像認識やテキスト生成、質疑応答などの様々な用途で用いられている。これを可能にしている学習モデルの一つとして人工ニューラルネットワーク (Artificial Neural Network: ANN) がある。この ANN によってテキストや画像などの分析が難しい分野においても判別が可能になった。しかし、ANN を汎用プロセッサにおいてプログラム上で実装すると処理時間が長くなるという欠点がある。そこで ANN 専用回路を作成することで処理時間を短くする試みがなされている。CMOS [1] や photonic [2], 超伝導単一磁束量子 (Single Flux Quantum: SFQ) 回路 [3] など、様々な回路によって ANN 専用回路が作成されており、特に入力に対して非線形な出力を得られるニューロン回路の作成が行われている。しかし、ニューロン回路の出力特性が回路素子のパラメータによって変化する問題がある。これは、大規模なネットワークを構築するために多くのニューロン回路を使用したときに個別で調整する必要があり、大規模化に適さない。本研究では回路パラメータに依存しない出力を得られるニューロン回路を作成し、そのパラメータ変動耐性の実証を行なった。

2. ニューロン回路のパラメータ変動耐性の実証

Fig.1 に設計したニューロン回路の構成図を示す。エスケープ付き Delay Flip-Flop (DFFE) とリセット機能付き Delay Flip-Flop (RDFF) を用いた。Input と cancel の 2 入力あり、周期的に SFQ パルスを入力する。出力は input, cancel から入力周波数を f_{in} , f_{can} , 出力平均周波数を f_{out} とすると $0 < f_{in} < f_{can}$ のとき $f_{out} = 0$ GHz, $f_{can} \leq f_{in}$ のとき $f_{out} = f_{in} - f_{can}$ となる。回路出力は 2 つの入力である f_{in} と f_{can} のみによって決定される。周波数は SFQ 論理によってデジタル的に処

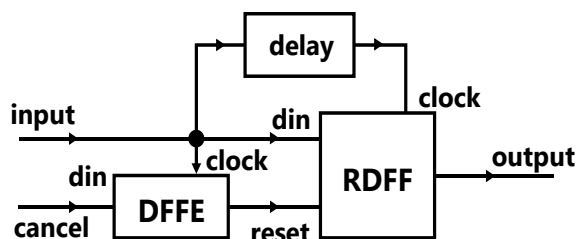


Fig. 1 Circuit configuration diagram implementing ReLU output characteristics

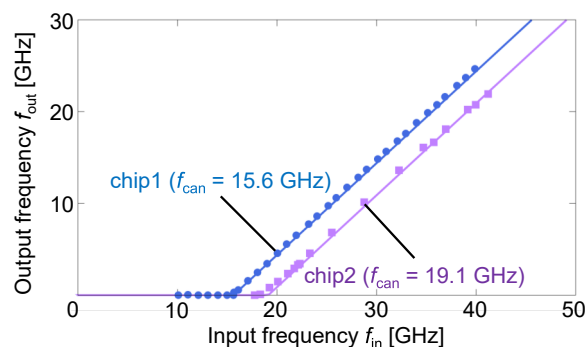


Fig. 2 Measured input-output characteristics with 2 chips

理されるため、回路素子である RDFF と DFF が動作する範囲ではパラメータ変動が出力特性与える影響がない。

Fig. 2 に複数チップでの出力特性測定の結果を示す。測定した回路は産業総合研究所の 10 kA/cm² Nb High-speed Standard Process (HSTP) によって作製された。異なるチップを用いた場合でもほぼ理想的な出力が得られ、製造誤差によるパラメータ変動に対して耐性があることが実証された。理想特性との誤差は測定に用いた増幅器の増幅率の誤差によって発生していると考えられる。

3. 謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP24H00311 と JP25K01284 の助成を受けたものです。本研究で使用された回路は、国立研究開発法人産業技術総合研究所の超伝導量子回路試作施設 (Qufab) において作製された。

参考文献

- [1] Krestinskaya O, Salama K N and James A P 2018 Learning in memristive neural network architectures using analog backpropagation circuits *IEEE Trans. Circuits Syst. I* **66** 719–32
- [2] Yamanashi Y, Umeda K and Yoshikawa N 2013 Pseudo Sigmoid Function Generator for a Superconductive Neural Network *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **23** 1701004
- [3] Pappas C, Kovaiois S, Moralis-Pegios M, Tsakyridis A, Giamougiannis G and Kirtas M 2023 Programmable Tanh-, ELU-, Sigmoid-, and Sin-Based Nonlinear Activation Functions for Neuromorphic Photonics *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* **29** 6101210

単一磁束量子回路の放射線耐性測定のためのエラー率試験回路の評価

Evaluation of Error-Rate Test Circuits for Measuring Radiation Tolerance in Single Flux Quantum Circuits

横浜国立大学, °(M2) 刑部 一斗, 山梨裕希, 吉川信行

Yokohama National Univ., °Kazuto Osakabe, Yuki Yamanashi, Nobuyuki Yoshikawa

E-mail: osakabe-kazuto-sg@ynu.jp

1. 単一磁束量子回路

近年の急速な情報化に伴い、情報処理量は増大し続けており、情報処理の高速化が必要となってきた。一方で情報処理を行うための回路に含まれる半導体集積回路は微細化による性能向上に限界を迎えつつあり、さらに情報処理量の増大に伴って消費電力も増大している。そこで、半導体集積回路に代わる回路方式として、単一磁束量子回路(SFQ 回路)や、量子コンピュータが提案されている。近年、 γ 線などの二次宇宙線粒子はこれらの超伝導回路の大規模化を阻害する原因になりうるという指摘がされており、過去の研究では、Josephson 接合の臨界電流値などの特性が放射線によって変化することが確かめられている[1]。本研究では SFQ 回路の環境放射線による誤動作の頻度の測定を通して超伝導回路の信頼性評価を行うことを目的とし、SFQ 回路の誤動作を検出するためのエラー検出回路(ERTC: Error Rate Test Circuit)の評価を行った。

2. ERTC の概要

本研究における ERTC の概念図を Fig.1 に示す。

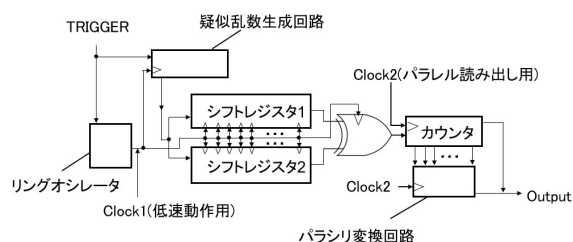


Figure.1 Block diagram of ERTC

ERTC はリングオシレータ、疑似乱数生成回路、2 列のシフトレジスタと XOR ゲート、エラー回数カウント用カウンタ、パラレル-シリアル変換回路からなる。疑似乱数生成回路で生成された疑似ランダムパルス列および自動停止可能なリングオシレータによって生成されたクロックパルスを 2 列のシフトレジスタに入力し、それらの出力を XOR ゲートに入力することで、一方の列でエラーが発生した場合、

XOR からパルスが出力される [2]。これをカウンタによって数え上げる。カウンタに蓄積されたエラー回数のデータは外部からのクロック信号によって読み出しを行うことができる。測定の際には、冷凍機内で動作しているシフトレジスタ部分に γ 線などの放射線を照射し、回路のエラー率を計測する。回路の設計は Qufab ADP プロセスおよび Qufab HSTP プロセスにより行った。

3. ERTC の評価方法

本回路は上述の通り自動停止可能なリングオシレータによって一定回数のクロックごとのエラー回数を出力することができ、その値をもとにエラー率を計算する。エラー率は $(2^{10}-1)/2^{15}$ (約 3.12%) まで計算することができる。これを超える割合でエラーが発生した場合はカウンタがオーバーフローし、正確な確率は得られない。放射線はランダムに回路に当たり、常に一定の割合でエラーを起こすとは考えにくいいため、長時間の自動測定を行い、十分な数のエラー率データを収集した。Fig.2 は本回路の動作の一例であり、上から TRIGGER 入力、低速クロック入力、読み出し用クロック、疑似乱数生成回路の出力、そして下二段がシフトレジスタの出力である。

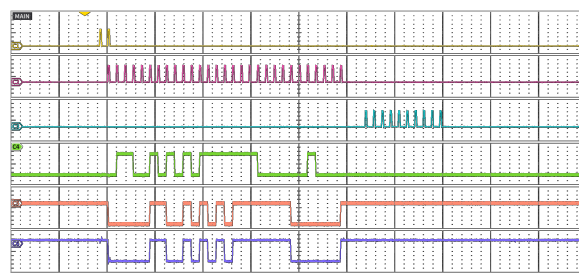


Figure.2 Example of input and output waveforms from ERTC

参考文献

- [1] M. P. Lisitskiy and C Camerlingo, "Detection of X-ray photons by niobium Josephson tunnel junctions with trapped Abrikosov vortices," J. Phys.: Conf. Ser. 2014
- [2] Q. P. Herr, M. J. Feldman, "Error Rate of RSFQ Circuits: Theory," IEEE Transaction on Applied Superconductivity, Vol.7, No.2, 1997.

Characterization of π Josephson Junction with Nb/GdN/Nb Trilayer

Nagoya Univ.¹, Victoria Univ. of Wellington², °Feng Li¹, William Freeman Holmes-Hewett², Jackson Miller², Simon Granville², Ben Ruck², Masamitsu Tanaka¹, Akira Fujimaki¹

E-mail: li.feng.h4@f.mail.nagoya-u.ac.jp

Ferromagnetic Josephson junctions (MJJs), which fabricated with superconductor/ferromagnet/superconductor (SFS) structure, have been adopted as π phase shifters in superconducting digital and quantum circuits. However, the metallic interlayer leads to a low characteristic voltage and significant quasiparticle dissipation, which limits their effectiveness in superconducting digital and quantum applications, respectively. To address these limitations, ferromagnetic semiconductor, whose energy gap can suppress electron and quasiparticle transport, has been adopted, but MJJs with additional π phase shift (π -JJ) have not yet been demonstrated [1]

We aim to experimentally show π -JJ utilizing GdN interlayer, where the 4f shell electrons are responsible for the ferromagnetism while the nitrogen vacancy concentration is used to tune the film's conductivity [2]. We deposited Nb(200nm)/GdN(2-15nm)/Nb(200nm) trilayers in-situ on Si substrates and fabricated MJJs and 3-MJJs SQUIDs with various junction areas. The Josephson effect was characterized at 4.2 K and the observed characteristic voltage ($V_c \sim 360 \mu\text{V}$) is several hundred times larger than that of metallic π -JJs. The dependence of the critical current on the external magnetic field confirmed the uniformity of the MJJs. Moreover, the half-period shift observed in the modulation pattern of the 3-MJJs SQUIDs at both 4.2 K and 10 mK indicates the intrinsic π phase shift in the Nb/GdN/Nb MJJs. This represents the first demonstration of a π -JJ based on a ferromagnetic semiconductor, highlighting its potential to enhance the performance of superconducting digital and quantum circuits.

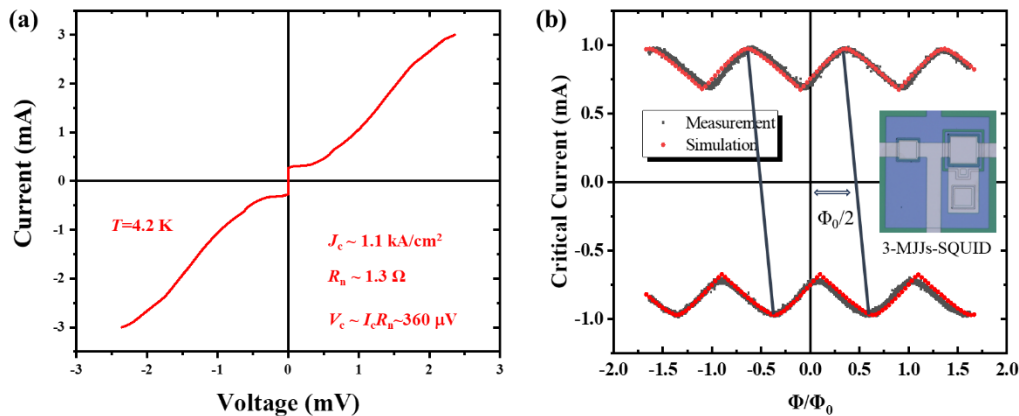


Fig. 1 (a) I - V curve of Nb/GdN/Nb MJJ. (b) Modulation pattern of 3-MJJs SQUID at 4.2 K.

Acknowledgment

This work was supported by the JSPS KAKENHI, Grant Numbers JP25K17638, 23H05447, JST-CREST Program Grant Number JPMJCR20C5 and the New Zealand Quantum Technologies Aotearoa, contract number UOO2347.

References

- [1] J. Linder and J. W. A. Robinson, Superconducting spintronics, Nat. Phys. 11, 307 (2015).
- [2] S. Granville, et al., Semiconducting ground state of GdN thin films, Phys. Rev. B 73, 235335 (2006)

ジョセフソン接合のばらつきの抑制

Suppression of variation in Josephson junction characteristics

NTT 物性基礎研 角柳孝輔, Nika Teran, 樋田啓, 齊藤志郎

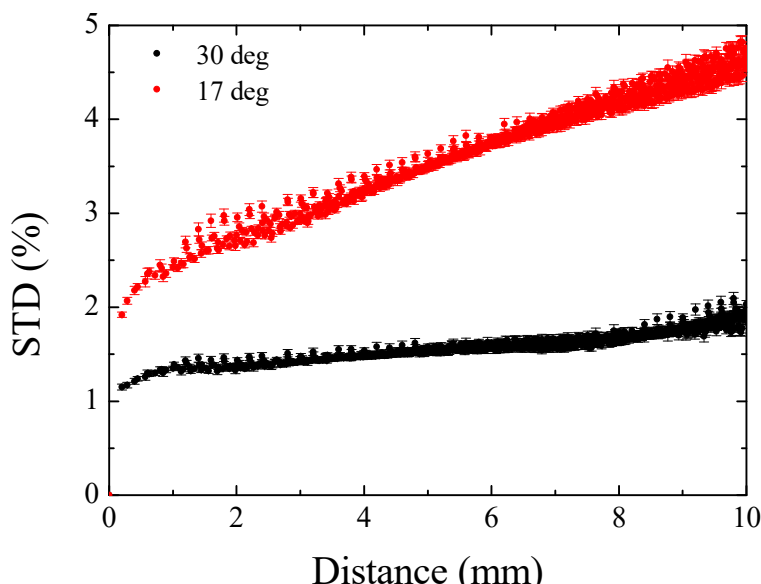
NTT BRL, Kosuke Kakuyanagi, Nika Teran, Hiraku Toida, Shiro Saito

E-mail: kosuke.kakuyanagi@ntt.com

超伝導量子回路の大規模化には素子の均一性の向上が欠かせない。我々はジョセフソン接合の臨界電流値の均一性向上を目的に、接合特性のばらつきの原因を調べ、その抑制を試みた。

ジョセフソン接合を作製した際の臨界電流のばらつきには、絶縁層の厚さのばらつきや、レジストの現像の局所的多寡などによるばらつきなど、様々な原因が寄与していると考えられる。ジョセフソン接合形状を変化させた際に接合のばらつきの大きさがどう変化するかは、ばらつきの原因によって異なることが期待される。そこで、我々はドーランブリッジ法 [1] で作製したジョセフソン接合試料のばらつきの接合形状依存性を室温抵抗測定で評価し、ばらつきの原因とその寄与の大きさについて分析を行った。この分析の結果、作製したジョセフソン接合試料のばらつきの大きさには、超伝導膜厚のばらつきの寄与が大きいという示唆を得た。

そこで、この超伝導膜厚のばらつきに起因するジョセフソン接合試料のばらつきの抑制を試みた。分析に用いたモデルでは有効的な接合面積が膜厚に依存し変化することがばらつきの起源であった。この有効的な接合面積の膜厚依存性はジョセフソン接合作製時のアルミニウム薄膜の蒸着角に依存し、最適蒸着角で最も小さくなることが期待できる。分析に使ったモデルでの最適角である $\pm 30^\circ$ の蒸着角で蒸着したところ、蒸着角 $\pm 17^\circ$ の試料よりもばらつきを低減させることに成功した (Fig. 1)。ばらつきの大きさは、ジョセフソン接合の接合面積にも依存するが、蒸着角を $\pm 30^\circ$ とした際のばらつきの低減は接合面積の増加により期待される量を超えており、ドーランブリッジ法での蒸着角の調整はジョセフソン接合のばらつきの抑制に有効であると考えられる。



(Fig.1) Standard deviation (STD) of room temperature resistance between Josephson junctions separated by a fixed distance on the wafer. Red dots are experimental results at an evaporation angle of $\pm 17^\circ$. The black dots are experimental results at the optimum evaporation angle of $\pm 30^\circ$.

[1] G. J. Dolan, Appl. Phys. Lett. 31, 337-339 (1977).

超伝導 Nb 自然酸化膜の表面フッ化処理および 脱離過程における温度依存性

Temperature dependence of surface fluorination and desorption processes for superconducting Nb native oxide films

東北大流休研¹, 産総研²

○(M1) 青山 大和¹, 大堀 大介¹, 藤田 裕一², 浦出 芳郎², 藤井 剛², 猪股 邦宏², 遠藤 和彦¹,
IFS, Tohoku Univ¹, AIST²

°Y. Aoyama¹, D. Ohori¹, Y. Fujita², Y. Urade², G. Fujii², K. Inomata², K. Endo¹

E-mail: aoyama.yamato.s2@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】

量子計算を担う情報の最小単位である量子ビットの中でも、超伝導を応用した超伝導量子ビットは、量子コンピュータを実現し得る最も有力な量子ビットとして、世界各国で精力的に研究が進められている。超伝導量子ビットやその状態読み出し用の超伝導共振器には、Al や Nb、Ta などの超伝導材料が採用されている^[1]。その中でも Nb は、成膜や加工プロセスが比較的容易であることから広く用いられる超伝導材料である。一方で、空気暴露で容易に表面が酸化し、絶縁体である Nb₂O₅ のみならず、金属的な性質の NbO、NbO₂ といった低級酸化物が生成される^[2]。これらの表面酸化膜は量子ビットや共振器の損失源となり、Nb 超伝導共振器の Q 値劣化につながるため、表面酸化膜の除去および酸化防止が鍵となる。従来、Nb 酸化膜の除去には HF 溶液等が用いられており、加工後に露出している Si の酸化膜と同時に除去してきた。しかしながら、その後、再び大気暴露されるため再酸化防止は容易ではない。そこで、ドライプロセスによって Nb 表面の酸化膜の除去とパッシベーションを in-situ で行うことで再酸化を抑制し、高 Q 値の超伝導共振器の作製を目指す。酸化膜除去プロセスとして、Nb 自然酸化膜に対して 3 フッ化窒素(NF₃)ガスを水素ラジカルで反応させることで、酸化膜の一部がフッ化し、表面から脱離できることが分かっている。一方で、反応時に分子の運動エネルギーが不十分なことによる、Nb オキシフッ化物の生成が確認されている^[3]。これは Nb 酸化物との選択的な脱離が困難な化合物である。本研究では、この Nb 表面酸化膜のフッ化反応をより進行させるためのプロセスについて検討した。

【実験方法と結果】

試料は、Si(100)基板上に 200nm の Nb 膜を室温 Ar スパッタで成膜した。Nb 自然酸化膜のフッ化処理を行うために、試料温度は室温で NF₃ ガス雰囲気中に水素ラジカルを照射した(反応過程)。また、反応過程において 150°C で処理することによって、Nb 酸化物のフッ化処理の進行における温度依存性について検証した。反応過程および脱離過程後の Nb 試料表面における化学組成の変化を、X 線光電子分光(XPS)により測定した。Fig.1 に処理前と反応過程の処理温度別における Nb3d ピークのフィッティング結果から見積もった化合物組成比を示す。反応過程時の温度を上昇させることによって Nb 酸化物のフッ化がより進行することが分かった。

【まとめ】

Nb 表面酸化膜のドライフッ化プロセスにおいて、処理温度を上昇させることによって反応が促進され、Nb 酸化物をよりフッ化させることができた。

【謝辞】

本講演で発表した研究の一部は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(JPNP16007)の結果得られた。

【参考文献】

- [1] Y. Urade, et al., *APL Mater.* **12**, 021132 (2024).
- [2] G. V. Chandrashekar, et al., *J. Solid State Chem.* **2**, 528 (1970).
- [3] A. D. Pienaar, et al., *International Journal of Mineral Processing*, **114-117** (2012).

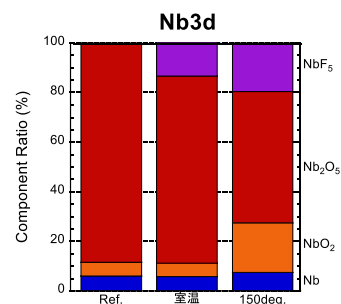


Fig.1 Nb 3d の表面組成比

半磁束量子回路論理ゲートにおける高 β_c 接合の影響評価

Evaluation of High- β_c Junction Effects in Half-Flux Quantum Logic Circuits

名大院工 ○稲垣賢信, 出口創万, 李峰, 田中雅光, 藤巻朗

Nagoya Univ., ○K. Inagaki, S. Deguchi, F. Li, M. Tanaka, A. Fujimaki

E-mail: inagaki@super.nuee.nagoya-u.ac.jp

背景 我々は、単一磁束量子 (SFQ) 回路のジョセフソン接合(0 接合)を、 π 接合を導入した SQUID (0- π SQUID) に置換した、より低消費電力で動作する半磁束量子 (HFQ) 回路[1]の研究を行っている。臨界電流密度が 10 kA/cm^2 の素子を想定した場合、HFQ 回路の論理ゲートの遅延時間は $\beta_c = 1$ において 25 ps であり、SFQ 回路と比べて 5 倍程度大きい。スイッチング時間は接合のマッコンバ係数 β_c を大きく設計することで短縮できるが、動作が不安定になるため SFQ 回路においては 2 程度に留めている[2]。HFQ 回路においては、スイッチしない接合側に電流が流れるため、SFQ 回路とは異なる振る舞いをすると考えられる。本稿では、HFQ 論理ゲートにおいて高 β_c の接合の導入による動作速度及び動作マージンへの影響を明らかにすることを目的に、回路シミュレーションによる評価を行ったので報告する。

シミュレーション 回路シミュレータには JoSIM[3]を使用し、産業技術総合研究所の 10 kA/cm^2 プロセスで作製される 0 接合及び同じ特性を持つ π 接合を想定して行った。 $\beta_c = 1$ となる条件は、臨界電流値とシャント抵抗の積 $I_c R_s = 0.773 \text{ mV}$ である。HFQ 回路を構成する 0- π SQUID の典型的な見かけの臨界電流値 I_{cn} は $19 \mu\text{A}$ とした。HFQ 回路は SFQ 回路よりも低電圧で駆動できることが特徴となっているが、バイアス抵抗の影響を排除するため、今回は SFQ 回路と同じ 2.5 mV とした。典型的なバイアス電流量は $I_b = 0.4 I_{cn}$ である。論理ゲートの遅延時間は、クロック信号が入力されてから出力されるまでの時間とした。

結果 Fig. 1 に HFQ 伝送路 (SFQ 回路のジョセフソン伝送路に相当) を伝搬する電圧パルスの時間波形を示す。 $\beta_c = 2$ において、パルス半値幅は 20 ps であり、SFQ 回路の約 5 倍である。Fig. 2 に異なる β_c に対して、SFQ 論理ゲート ($\beta_c = 1, 2$) と HFQ 論理ゲートの遅延時間を評価した結果を示す。今回の条件では、OR ゲートは $\beta_c = 1$ 、XOR ゲートは $\beta_c = 7$ まで、AND ゲートは $\beta_c = 8$ 以上動作することが確認された。Fig. 3 は 10 GHz 動作時における各論理ゲートの動作マージンを示す。XOR ゲートと AND ゲートについては高い β_c においても十分な動作マージンが確保できる。一方、OR ゲートについては $\beta_c = 2$ 以上になるとクロックと出力が同期してしまい、安定動作が得

られなかった。2つのゲートでは $\beta_c = 7$ までは安定動作を確保しながら伝搬遅延の低減が可能であり、高 β_c 接合の導入により、およそ遅延時間を $1/2$ に低減できると考えられる。

謝辞

本研究は、JST CREST (JPMJCR20C5) 及び JSPS 科研費 (JP23H05447) の支援を受けて実施した。

参考文献

- [1] T. Kamiya et al. IEICE Trans. Electron. E101-C, 385, 2018.
- [2] Y. Yamanashi et al. IEICE Trans. Electron. E930C, 440, 2010.
- [2] J. A. Delpert et al. IEEE Trans. Appl. Supercond. 29, 1300905, 2019.

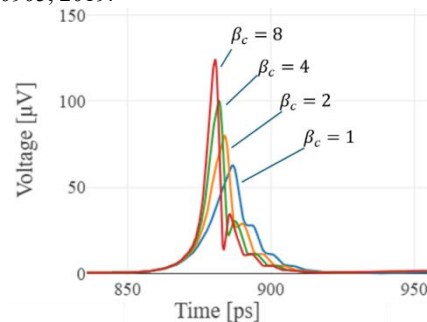


Fig.1 Switching characteristic for different β_c

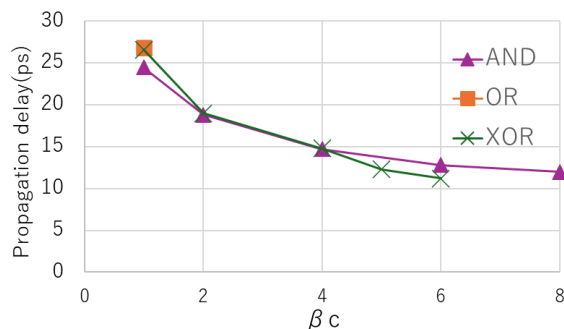


Fig.2 Propagation delay

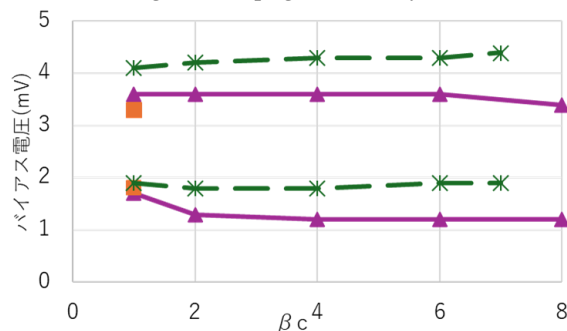


Fig.3 Bias margin(10GHz)