

九州大学中央分析センター

46

センター
ニュース

平成6年10月

目 次

分析機器解説シリーズ (45)	2
量子磁束干渉計 (SQUID)	
装置利用経費表	10
お知らせ	11

★ 分析機器解説シリーズ (45) ★

量子磁束干渉計 (SQUID)

理学部物理 杉山正明、市川聡夫、阿知波紀郎
工学部応用理学 竹田和義

1 はじめに

超伝導現象の中で、波動関数の位相が直接姿を見せるジョセフソン効果を利用した高感度磁束計が、量子磁束干渉計(Superconducting Quantum Interference Device : SQUID)である。理学部極低温実験室に置かれた SQUID では、温度 4.2~300K、外部印加磁場 0~1T の範囲で物質の磁化及び帯磁率の精密測定が可能であり、主として以下に示すような測定に利用されている。

- ・ 酸化物高温超伝導体のマイスナー効果
- ・ スピングラスの磁氣的性質
- ・ 低対称磁性体の弱強磁性
- ・ 有機遷移金属錯体の磁氣的性質
- ・ 有機フリーラジカルの磁氣的性質
- ・ 遷移金属化合物の磁気相転移

2 原理

SQUID には、2つのジョセフソン接合を持つ超伝導リングを利用する DC-SQUID と1つのジョセフソン接合のみを持つ超伝導リングを高周波で駆動する RF-SQUID があるが、後者の方が接合が1つという簡潔さもあり、市販品も多く現在ではよく利用されている。本稿でも RF-SQUID を例に取りその測定原理を説明する。

超伝導体内で電子対は最低の運動状態に落ち込んでおり、1つの位相を持った波動関数で表される。したがって、超伝導リングに外部から磁場がかかったとすると、電子対の位相がそろっているためにリングを貫く磁束はとびとびの値しかとれなくなる(磁束の量子化)。図-1に示すように、このリングの中に超伝導の弱い場所(ジョセフソン接

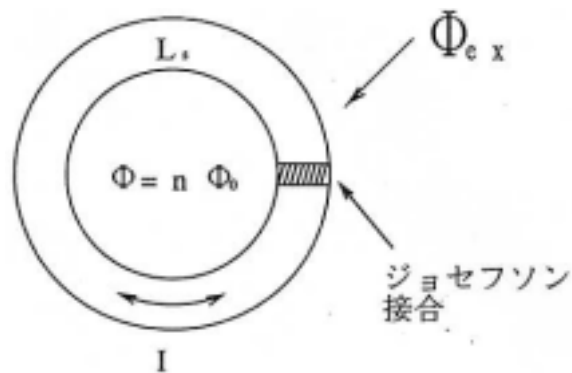


図-1 SQUIDリング

合) を作ると、この位相が観測の中に現れてくる。まず接合を無視して、リングを1周する事による波動関数の位相の変化は、 $\Delta \theta_r = 2e\Phi/h$ で与えられる。ここで、 Φ はリングを貫く磁束数である。また接合での位相の変化を $\Delta \theta$ とすると、合計の位相の変化は、波動関数の1価性より、 $2\pi n$ (n は整数) でなければならない。

よって、 Φ は、

$$2e\Phi/h - 2\pi n \quad (1)$$

$$\Phi = (n + \Delta \theta / 2\pi) \Phi_0 \quad (2)$$

のように量子化される。ここで Φ_0 は磁束量子 ($h/2e = 2.07 \times 10^{-15} \text{Wb}$) である。電子対の波動関数が平面波で表されるとすると、位相 θ と運動量 p の関係は、 $\theta = ip \cdot r / \hbar$ で与えられる。したがって、接合で位相差 $\Delta \theta$ が存在すると、それに応じて電子対は運動量を持つことになり、結果として電流 (ジョセフソン電流) が観測される。この電流は、

$$I = I_c \sin(\Delta \theta) \quad (3)$$

$$I = I_c \sin(2\pi \Phi / \Phi_0) \quad (4)$$

で与えられる。ここで、第1式から第2式の変形では、 $n=0$ として (2) 式を用いている。

以上より、超伝導リングのインダクタンスを L_s 、電流を I 、外部からの磁束を Φ_{ex} とすると、

$$\Phi = \Phi_{ex} - L_s I \quad (5)$$

$$\Phi = \Phi_{ex} - L_s I_c \sin(2\pi \Phi / \Phi_0) \quad (6)$$

となり、 Φ は、 $\alpha = 2\pi L_s I_c / \Phi_0 > 1$ の時、多価関数になる。この条件を満たすとき超伝導リングは SQUID 素子として利用される。 $\alpha = 2\pi$ の時の Φ の変化を図-2 に示す。

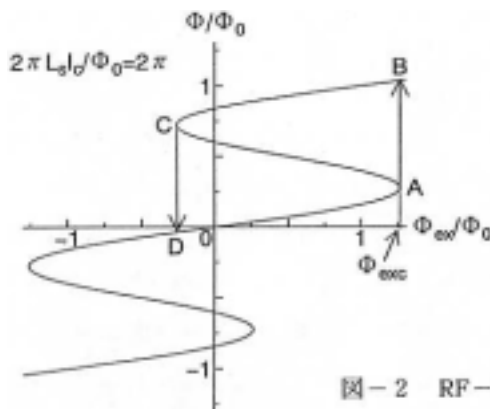


図-2 RF-SQUIDリングの特性

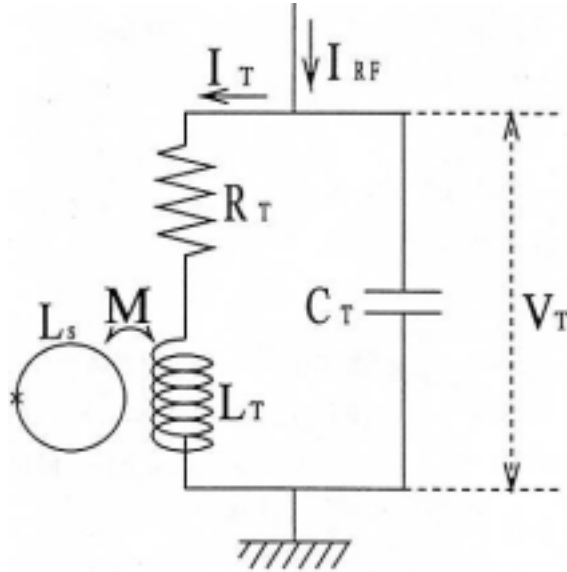


図-3 タンク回路と SQUID リングとのカップリング

さて、この超伝導リングを利用して磁束を測定するためには、図-3 に示すように超伝導リングにタンク回路をカップリングさせる。ここで、 L_T 、 R_T 、 M は、それぞれタンク回路のインダクタンス、抵抗、相互インダクタンスであり、タンク回路には高周波発振器より共鳴振動の $I_{RF} = I_0 \sin \omega t$ 電流が供給されるとする。この時、タンク回路の Q 値は、

$$Q = \omega L_T / R_T \quad (7)$$

である。

まず最初に、系は図-2 の原点にあったとする。ここでタンク回路に高周波電流を流すと、リングには新たに外部磁場として、

$$\Phi_T = MQI_T \quad (8)$$

の磁束が供給される (I_T はタンク回路のコイルを流れる電流)。 Φ_T が Φ_{exc} より小さい場合は、タンク回路の電圧 V_T は、外部から供給される電流 I_{RF} と共に変化する。さて、電流 I_{RF} を増加させていき、タンク回路による外部磁場が A 点 ($\Phi_T = \Phi_{exc}$) に達すると系は B 点に遷移し、リング内の磁束は急激に増加する。このとき、タンク回路は相互インダクタンス M でリングとカップリングしているので、タンク回路を流れる電流、電圧は急激に減少し、それに応じて磁束 Φ_T も減少する。このため、系は C 点を経て D 点に遷移する。この後しばらくは電流が小さいので新たな遷移は起

こらないが、タンク回路は共鳴状態にあるのでやがて電流は回復し再びA点に達するようになる。結局、系はA→B→C→D→Aのヒステリシスループをたどることになり、この間に消費されるエネルギーは高周波発振器から得ている。

ここで、タンク回路の電圧 V_T は $(\omega L_T/M) \Phi_T$ と与えられるが、系がヒステリシスループにある内はA (B) 点での電圧

$$V_{Tc} = \omega L_T/M \cdot \Phi_{exc} \quad (9)$$

を越えることはない。 I_{RF} を増加させても、しばらくは電流の回復が早くなるだけで、ヒステリシスループをたどることは変わらないので、タンク回路の電圧の最大値は V_{Tc} より大きくはならない。さらに I_{RF} を増加させていくと電流の回復はますます早くなりやがて、1サイクルの間に外部から加わる電流だけでエネルギー損失を取り戻すことができるようになる。この後、系はB点からC点には向かわず、 $n=1 \leftrightarrow 2$ のループに入るまで電圧 V_T も電流 I_{RF} とともに増加するようになる。

次に、 I_{RF} をA⇄Bの遷移を起こす大きさより少し大きいところで固定して、リングに直流磁場 Φ_{dc} を加えるとす。これは、図-2において原点を Φ_{dc} だけ右に動かすことに相当する。

1. $0 \leq \Phi_{dc} \leq \Phi_0/2$ の時、タンク回路の磁束が最大になるのはA(B)点での遷移の時なので、タンク回路の電圧の最大値は

$$V_{Tc} = \omega L_T/M \cdot (-\Phi_{dc} + \Phi_{exc})$$

となる。

2. $\Phi_0/2 \leq \Phi_{dc} \leq \Phi_0$ の時、タンク回路の磁束が最大になるのはC(D)点での遷移の時なので、タンク回路の電圧の最大値は

$$V_{Tc} = \omega L_T/M \cdot (\Phi_{dc} + \Phi_{exc} - \Phi_0)$$

となる。

3. $\Phi_{dc} = n\Phi_0$ の時、ループ内の磁束がn倍になる他は $\Phi_{dc} = 0$ と変わらないので、 V_{Tc} は Φ_0 の周期関数になることがわかる。

以上をふまえて V_{Tc} を縦軸に Φ_{dc} を横軸にとり図示したのが、図-4であり、この図はオシロスコープで観測することができる。この時、磁束量子の整数倍の磁束がリングに加わるとその数だけ原点が移動するので、逆にこのことから加えられた磁束の数がわかる。

実際の装置は、図-5に示すような回路構成をしている。装置では、0磁場検出器となるように、位相検波を含む負帰還回路を構成し、インプットコイルにより入力される外部磁場をキャンセルするよう直流バイアス電流をタンク回路に注入している。この注入量を出力側で見ることに

より、RF-SQUID に印加される磁束量を評価できる。

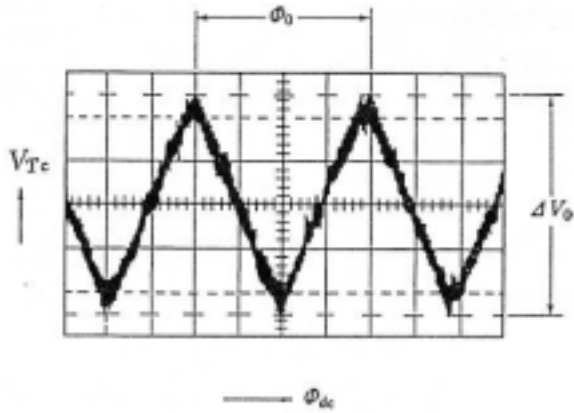


図-4 直流磁場 Φ_{dc} の変化に対する V_T の応答 (Φ_0 の周期関数になっている)。

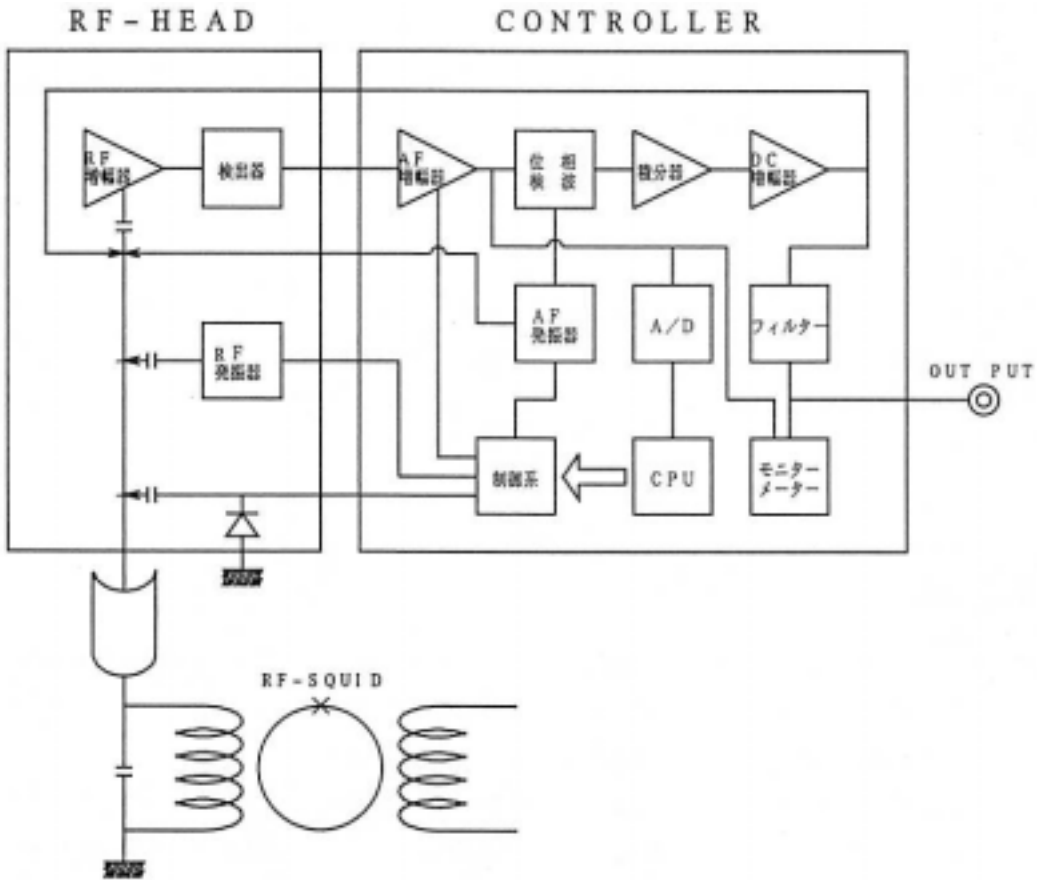


図-5 SQUID の回路構成。

3 装 置

理学部極低温実験室に設置されている SQUID の諸元は、

- ・形式 RF-SQUID (HOXSAN HSM-D)
- ・測定範馳 $10^{-6} \sim \pm 2\text{emu}$
- ・測定磁場範囲 $\pm 1\text{T}$
- ・測定温使範囲 4.2~300K
- ・試料サイズ 最大 6mm ϕ \times 10mm (ゼラチンカプセル使用)

である。図-6 に示すように運転中は SQUID は、常に液体ヘリウムに浸されているので、週 2 回の液体ヘリウムチャージが必要となり、1 週間で 1000 弱の液体ヘリウムを消費する。

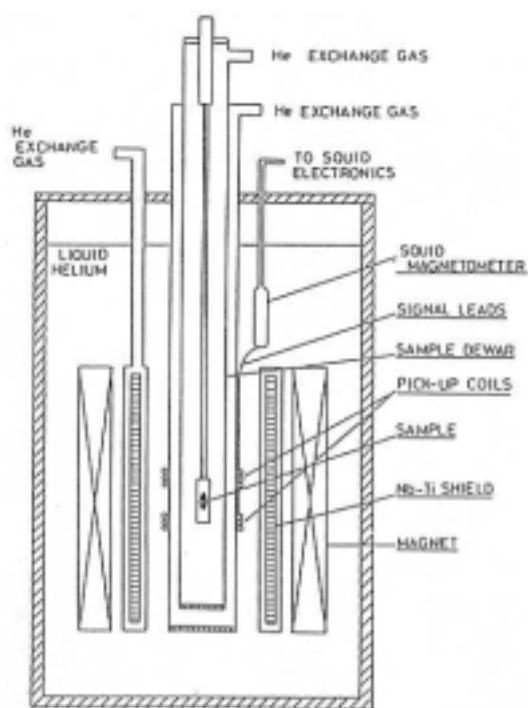


図-6 SQUID (HOXSAN HSM-D) の断面図。

SQUID 素子及び入力コイルは、Nb 薄膜により作成されているので、温度サイクルに強く長寿命である。また、動作温度範囲が広く、安定で高感度な測定ができる。

実際の測定では、図-7 (L) に示すように、試料を最初に 2 つのピックアップコイルの中心に置き、コイルを貫いて上下させる。この時の電流注入量は図-7 (R) に示すようになり、この振幅より試料の磁化が求められる。この時、最初の試料の位置が 2 つのコイルの中心にないと、対称なグラフは得られない。測定値の校正は Pd (磁気モーメント $1.5927 \times 10^{-3}\text{emu}$) を用いて行っ

ている。

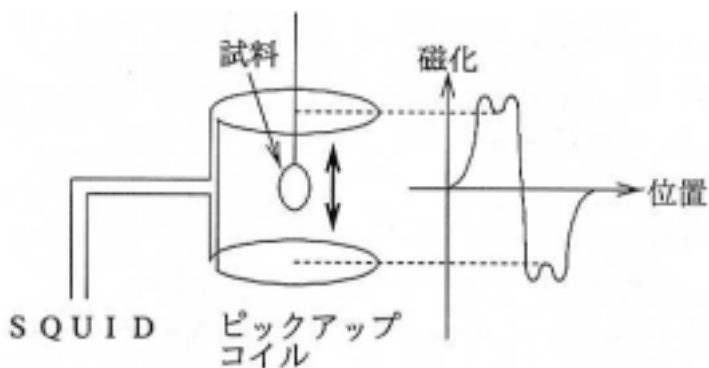


図-7 (L) ピックアップコイルと試料の位置関係。

(R) 試料の動きに対する注入電流の関係。

温度制御及び磁束測定は自動化されており、簡単な操作手順の説明を受ければ誰でも測定できるシステムになっている。この装置は、学内共同利用装置であり共同利用グループで利用運営を行っている。(共同利用グループ以外でも利用可)

4 測定例

SQUID を利用した測定のを以下に示す。

1. Bi 系酸化物超伝導体に Al が混入した場合のマイスナー効果の変化を図-8 に示す。⁴⁾ 試料は、

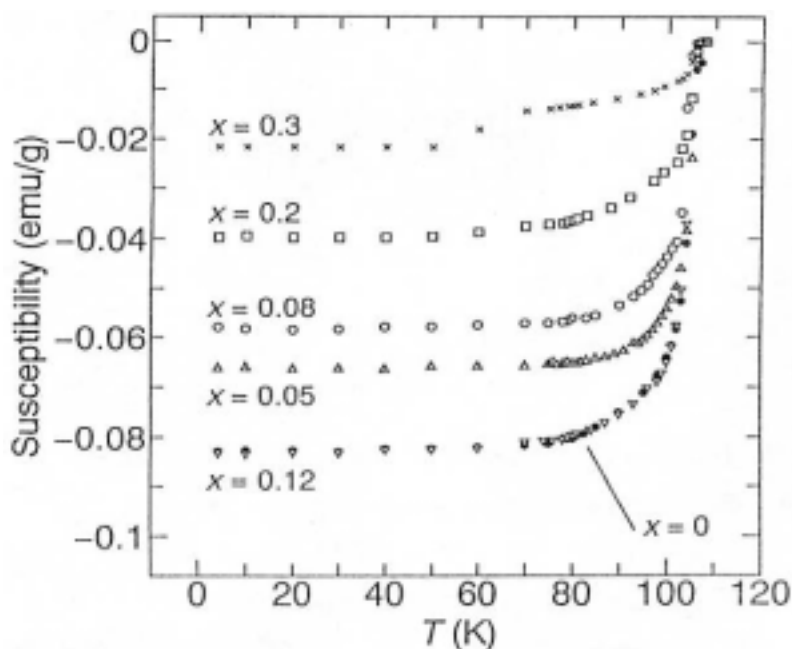


図-8 酸化物高温超伝導体における不純物(Al)混入によるマイスナー効果の変化⁴⁾

固相反応法で作成した $(\text{Bi}_{0.8}\text{Pb}_{0.2})_{1-x}\text{Al}_x)_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ である。Al の混入によりマイスナー効果が弱まっていくのが良くわかる。

2. 弱強磁性物質 $\text{Co}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ の a-b 面での磁化の分布を図-9 に示す。⁵⁾ 試料は単結晶で、各測定方向には 200 Oe の磁場が印加されており、測定温度は 0.2 K ごとである。

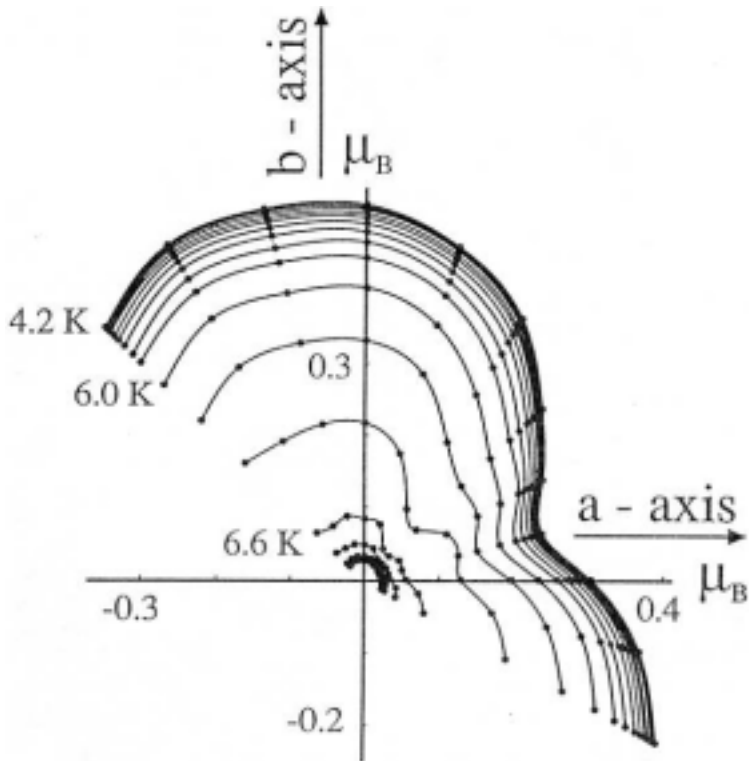


図-9 弱強磁性体 $\text{Co}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ の 2 次元磁化分布⁵⁾

References

- (1) J. E. Zimmerman, P. Thiene and J. T. Harding : J. Appl. Phys., 41 (1970) 1572.
- (2) M. B. Simmonds and W. H. Parker : J. Appl. Phys., 42 (1971) 38.
- (3) 日本物理学会編：超伝導，丸善株式会社。
- (4) 折田正栄：修士論文，九州大学大学院総合理工学研究科情報システム学専攻，(1992)。
- (5) K. Nakayama, N. Achiwa, M. Fujino, N. Matsugaki and K. Yamagata : J. Magn. & Magn. Mater., (1995) (in press).

中央分析センター（筑紫地区）装置利用経費表 1

No.	装置名	利用経費(円)				備考
		A		B		
		1件当り	1時間当り	1件当り	1時間当り	
1	*エスカスキャンニングオージェ表面分析装置	4,000	3,000			件数+時間
2	蛍光X線分析装置			1,000		
3	エネルギー分散型X線回折計	2,000		1,000		件数又は日
4	*4軸型自動X線回折計	10,000				1日
5	島津X線回折計			500		
6	集中法粉末X線回折計	2,000	2,000	1,000	1,000	
7	Weissenbergカメラ	2,000		1,000		
8	X線小角散乱装置			4,000		
9	*質量分析計 (JEOL-OISG-2 型)	(1) LM(m/e<800) 5,000 (2) LM(m/e≥800) 10,000 (3) GC-LM 8,000 (4) HM 8,000 (5) GC-HM 15,000				LMの解析はm/e≤1500 データ解析の場合は以下の 経費を加算 2,000円/ピーク 2,000円/ピーク 5,000円/ピーク
10	電子スピン共鳴装置	1,500		500		
11	*超伝導核磁気共鳴装置	2,000	6,000			1件は20分以内、 20分増すごとに2,000円追加
12	核磁気共鳴吸収装置(JNM-PHX60型)			500		
13	*核磁気共鳴吸収装置(JNM-FX-100型)		3,000			試料は依頼者が調整
14	*多核種用FT型NMR(JNM-FX-100型)		3,000			試料は依頼者が調整
15	レーザー粒径解析装置			3,000		チャート1枚
16	分光蛍光光度計				300	
17	フーリエ変換赤外分光時計			5,000		+100円/チャート
18	*原子吸光・炎光発光・分光分析装置		1,200			原子吸光は光源に限られる
19	*C, H, N 元素分析計	550 900 350				C, H C, H, N N
20	*電子式精密自動天秤	300				
21	超高圧物性測定装置			10,000	1,000	1件は2週間以内
22	示差走査熱量計			1,000 1,500	500 1,000	標準型 低温型
23	双子型恒温壁熱量計				800	
24	メスbauer分光分析装置			5,000		件数又は日
25	光散乱光度計			3,000		
26	汎用型滴定記録装置			500		
27	雰囲気中液体急冷装置			5,000		ノズル持参
28	ラウエカメラ			200		
29	高周波2極スパッタ装置	2,000		1,000		
30	ラバープレス	1,000		500		1回
31	*水銀圧入式ポロシメーター	1,000				
32	熱分析装置			500		

(1) 上記経費表中、A欄は担当オペレーターに依頼、B欄は依頼者が装置を利用した場合の経費を示します。

(2) 上記経費表中の*印は、担当オペレーターが操作する装置で依頼者は操作できません。

(3) 利用時間は1時間単位で計算します。

★★★★ お 知 ら せ ★★★★★

筑紫地区では液体窒素料金を1ℓあたり40円（原価）でこの10年間供給してきました。ところが下記に列挙します事情により、この料金を80円／ℓに値上げせざるを得なくなりました。

値上げ理由

- (1) 筑紫地区共通経費への挙出負担増のため
- (2) 液体窒素タンクおよびくみ取り作業室の保守・修理のため

つきましては、よろしく御協力の程、お願い致します。

なお、実施期日は平成6年4月よりと致します。