

## 超伝導磁束量子の観察法と全方位磁場印加機構

### Lorentz Microscopy for Observation of Vortices in Superconductors with “Direction-Free Magnetic Field Application System”

原 田 研

Ken Harada

日立製作所 中央研究所

**要 旨** 超伝導磁束量子の観察は物理現象の直接観察であり、細菌や材料など『もの』を観るために開発されてきた電子顕微鏡にとっては、常とは少し異なる実験手法を必要とする。例えば、空間分解能や倍率を犠牲にしても電子線の平行度を高めたり、磁場印加機構や冷却システムの設置が対物レンズに優先するなど、観察対象に応じた柔軟な利用法が重要となる。そして、実際の磁束量子観察は、高電圧で高輝度な電子源を備えた電子顕微鏡の開発と、磁束量子観察に特化した付加装置の開発・改良により実現された。本稿では、従来あまり紹介して来なかった Lorentz 顕微鏡法などの観察手法と付加装置としての磁場印加機構について紹介する。

**キーワード**：磁束量子，超伝導，Lorentz 顕微鏡法，磁場印加装置，電界放出形電子顕微鏡

#### 1. はじめに

1957年に超伝導磁束量子の存在が予言され<sup>1)</sup>、1967年に Bitter 法により実験的に確認<sup>2)</sup>されて以来、磁束量子のその場観察は電子顕微鏡研究者にとって夢の研究テーマの一つであった。しかし、それは電界放出電子源の開発とその電子源を搭載した高電圧透過型電子顕微鏡の開発、そして極低温試料冷却機構や磁場印加機構に代表される高性能付加装置の開発無くしては実現しないものであった<sup>3)</sup>。1992年、20年に渡る日立基礎研究所での開発研究を経て、ようやく磁束量子の動的観察<sup>4)</sup>に成功したが、これは『もの』を観るために開発され発展してきた電子顕微鏡にとって、Aharonov-Bohm 効果の検証実験<sup>5)</sup>に引き続き、物理現象そのものを観察ターゲットとする研究テーマのスタートとなった。その後も、同研究所においては新たな付加装置の開発や改良、新しい観察手法<sup>6)</sup>の考案とその発展など、超伝導磁束量子の観察に関連した研究が20年近く継続されてきた。この間、研究対象は高温超伝導磁束量子となり、試料作製法には収束イオンビーム装置が用いられるようになり、電子顕微鏡は1 MV 電界放出形電子顕微鏡<sup>7)</sup>となった。

研究対象である磁束量子の観察結果や明らかとなった物性情報についてはもちろんのこと、主たる研究装置としての電子顕微鏡本体については、これまでに紹介する機会<sup>3,8)</sup>があった。しかし、具体的な観察手法である Lorentz 顕微鏡法や磁場印加機構に関しては、その機会は少なかった様に思われる。

本稿は瀬藤賞受賞論文として機会をいただいたが、執筆にあたり超伝導磁束量子の観察に実績のあった Lorentz 顕微鏡法をまとめるとともに、磁束量子を電子顕微鏡の鏡体内で発現させ、観察するために重要な磁場印加機構、特に高温超伝導磁束量子観察のために開発した全方位磁場印加機構<sup>9)</sup>とそれを用いて得られた主な結果について紹介する。

#### 2. 超伝導磁束量子<sup>10)</sup>

低温で超伝導状態に転移した超伝導体は、外部から磁場を印加すると、磁場に反発する性質（完全反磁性（Meissner 効果））が現れる。さらに外部磁場を強めていくと、ある強度の磁場になると超伝導状態が一気に壊れてしまう（第一種超伝導体）。そのため、強磁場中での超伝導体の利用には制限・制約が多い。一般に実用化されている第二種超伝導体では、外部磁場を強めていくと、磁場を細い磁束線として取り込み、全体として超伝導状態を保つ性質が備わっている。超伝導体中に取り込まれた磁束は、周りを超伝導電流（渦電流）で遮蔽されることによって細い糸状の形に閉じ込められている（図1参照）。さらに、この渦電流により磁束線の磁束量は  $h/2e = 2.07 \times 10^{-15}$  Wb（ここで  $h$  はプランク定数、 $e$  は電子の電荷である）に量子化されている。これを磁束量子と呼ぶ。磁束量子の磁束量は大変に僅かな量で、例えば地磁気（約 30  $\mu$ T）に相当する磁束密度を磁束量子で作ろうとすると、1  $\text{mm}^2$  あたり 15,000 個もの数を必要とする。また、磁束量子のサイズは、超伝導の2つのパラメータ、コヒーレンス長  $\xi$  と磁場侵入長  $\lambda$  との和より  $2 \times (\xi + \lambda)$  と見積もられるが、一般にそのサイズは 100 nm 程度である。すなわち、磁束量子は超伝導体中に自発的に発生した非常に細く弱いミニ電磁

〒350-0395 埼玉県鳩山町赤沼 2520  
TEL: 049-296-6111; FAX: 049-296-6006  
2013年9月27日受付

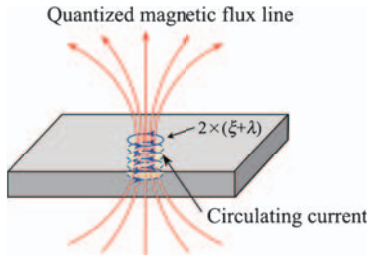


図1 磁束量子のモデル (金属超伝導体の場合)

石である。ところが、この小さな電磁石が超伝導体に流せる電流量の上限 (臨界電流密度) を定めるなど、超伝導の物性に重要な役割を演じている。そのため、磁束量子の観察、とりわけ動的な振る舞いの観察は、超伝導体の実用化にとって重要な研究テーマであり、電子顕微鏡にとっても魅力的な観察対象であった。

図2は、高温超伝導体の磁束量子の概念図である。図1に示した3次元に等方的な金属超伝導体の場合と異なり、超伝導を発現する領域が層状に積み重なった構造をしている<sup>11)</sup>。各層間の結合状態は一般的に弱く、2次元的な超伝導状態を示す。高温超伝導体では各層ごとに渦電流が流れるため、図2aのごとく超伝導層に垂直な方向を持つ超伝導磁束量子の場合は各渦電流も積み重なり、これをパンケーキ磁束量子と呼ぶ。磁束量子が傾斜した場合には各渦電流が斜めに積み重なり (図2b)、超伝導層に平行に磁束量子が存在する場合 (図2c) には、層間の超伝導電流密度が低いことから磁

束量子は層に沿って広がった構造を取る。各超伝導層の結合状態が Josephson 結合と見なせる場合には、特に Josephson 磁束量子と呼ぶ。

### 3. 磁束量子観察のための Lorentz 顕微鏡法

図3に、我々が磁束量子の観察に用いた Lorentz 顕微鏡法の光学系を示す。図中に用いた観察像は、それぞれ代表的な実験条件でのシミュレーション像である<sup>12)</sup>。薄膜化された超伝導材料は極低温冷却ホルダーに取り付けられ、光軸に対して斜めにセットされる。これは光軸と垂直方向の磁場成分のみが、電子線と相互作用するためである。傾斜角度は選択可能で、実験では主に水平 (光軸垂直) に対して  $30^\circ$  または  $45^\circ$  を用いた。磁場印加機構としては、電子線の振り戻し機構を含む3段の水平磁場印加装置<sup>13)</sup> (図3a, b, c: 最大印加磁束密度: 15 mT) および、垂直磁場印加装置<sup>14)</sup> (図3d: 最大印加磁束密度: 140 mT) を用いた。これら磁場印加機構は、対物レンズの磁路から十分上方に位置しており、試料位置への対物レンズの磁場の影響はほとんどない。

図3aは、最も一般的に用いられる Fresnel 法を示している<sup>4,13)</sup>。Fresnel 法では、単一磁束量子は白黒対を成した粒状のコントラストで観察される。白黒対のコントラストは、磁束量子の極性とデフォーカスの正負に依存して反転するが、これは一般の Fresnel 法と同じである。しかし、観察に要するデフォーカス量は、通常の磁性体観察と比較して2桁以上大きなデフォーカス量 (数 mm ~ 数 100 mm) が必要となる。

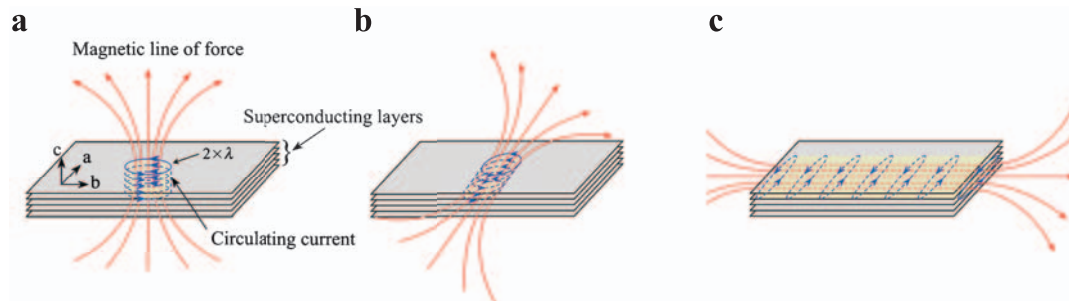


図2 高温超伝導体磁束量子のモデル, (a) パンケーキ磁束量子, (b) 傾斜磁束量子, (c) 層間磁束量子 (Josephson 磁束量子)

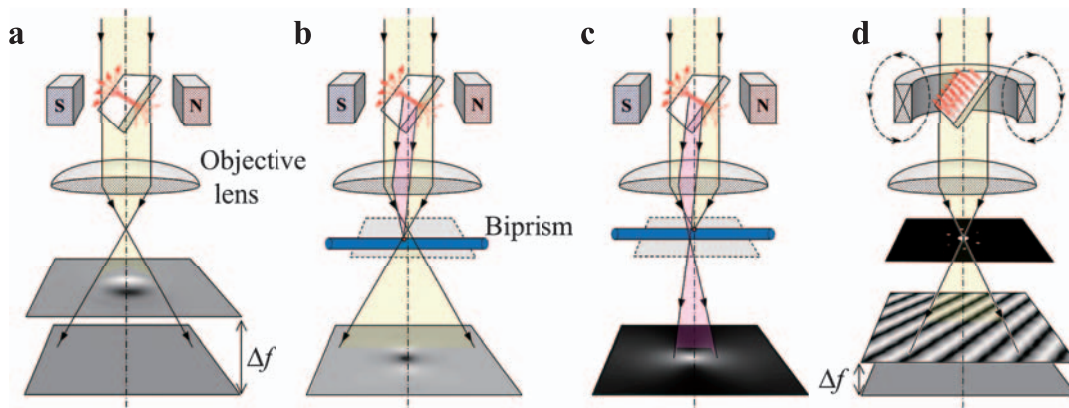


図3 磁束量子観察のための Lorentz 法光学系, (a) Fresnel 法, (b) 明視野 Foucault 法, (c) 暗視野 Foucault 法, (d) 小角回折と併用した Fresnel 法

これは、磁束量子による電子線の偏向角度が約  $10^{-5}$  rad 以下 (例えば、300 kV で加速された電子線の場合) と、小さいためである。

図 3b, c は Foucault 法を示している<sup>14)</sup>。上述の通り、磁束量子による電子線の偏向角度は大変に小さいので、小角回折法の光学系であるとともに回折面に角度制限絞りなどの遮蔽板が必要となる。そのため、対物レンズによるクロスオーバーを電子線パイプの位置に構成し、フィラメント電極を遮蔽板の代用とした。これに類する光学系は、Twin-Foucault 法<sup>15)</sup>や Lens-less Foucault 法<sup>16)</sup>として磁束量子以外の観察手法にも発展している。図 3b は磁束量子により偏向を受けた電子線を除いた明視野 Foucault 像、図 3c は磁束量子により偏向を受けた電子線のみを抽出した暗視野 Foucault 像である。

図 3d は、磁束量子が 2 次元配列した磁束格子の Fresnel 像観察光学系である<sup>14,17)</sup>。磁束格子像の観察には Fresnel 法を用いるとともに、磁束格子からの回折パターンも観察できるように小角回折光学系への切り替えを可能としている。図 3d の観察法においては、磁束量子の配列が規則正しいほど明るい回折パターンが得られるため、光軸と平行に大きな磁束密度が印加できるように改造した磁場印加機構を用い

た。超伝導薄膜を傾斜させることによって磁束量子が光軸と垂直の磁場成分を持てば、外部からの印加磁場の方向に依らず磁束量子の観察は可能である。

図 4 にそれぞれ図 3 の Lorentz 法光学系による磁束量子の観察結果を示す。試料は単結晶ニオブ (Nb) 薄膜を 4.5 K にて観察したもので、300 kV 電界放出形電子顕微鏡<sup>18)</sup>を用いた。図 4 は同一視野の Fresnel 法 (a)、および Foucault 法 (b, c) の観察結果で、印加磁束密度はいずれも水平方向に 2 mT であった<sup>19)</sup>。図 4a の白黒ベアのコントラスト (左上白: 右下黒) から、磁束量子の磁束線は Nb 薄膜を左下から右上に向かって貫通していることがわかる。図 4b では磁束量子が黒い点状のコントラストで観察され、図 4c では黒い背景上に白い点状のコントラストで観察されている。図 4b の明視野 Foucault 像での磁束量子の形状の伸びや黒いコントラストと対を成す両サイドの白いコントラストの位置、および、図 4c の暗視野 Foucault 像での磁束量子の白いコントラストが斜めに陰を引くことなど、これら観察結果は、図 3 中のシミュレーション像ともよい一致を示している。

図 5 は磁束格子の小角回折パターン、および Fresnel 像である (図 3d 参照)<sup>17)</sup>。試料は単結晶 Nb 薄膜で、観察時の温度は 7 K、印加磁束は光軸方向に 50 mT であった。図 5a は小角回折パターン (カメラ長 120 m)、図 5b は 2 mm アンダーフォーカスで記録した磁束格子の Fresnel 像である。一般的に、印加磁束密度が 20 mT 以上の場合には、磁束格子の回折パターンが観察できることや Fresnel 像が広範囲に渡って格子像となることから、20 mT 以上では磁束量子は規則正し

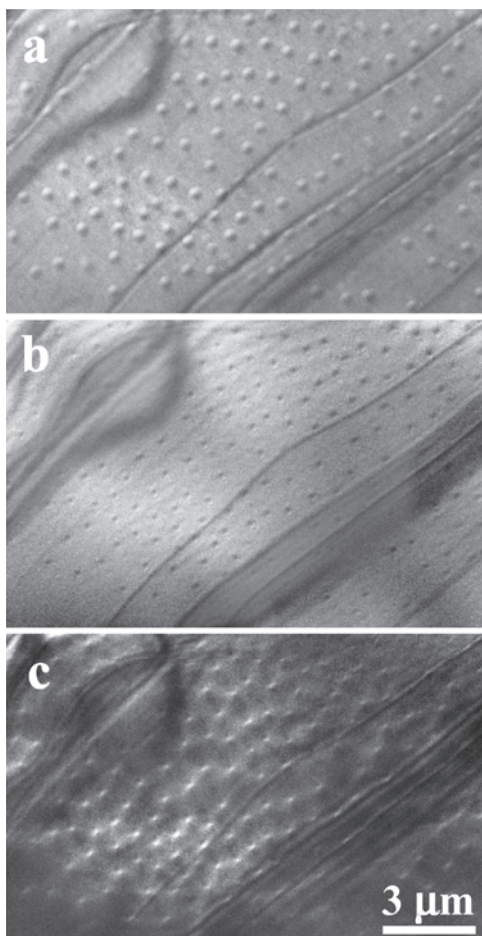


図 4 Nb の磁束量子の Lorentz 像観察結果 (4.5 K, 2 mT), (a) Fresnel 像, (b) 明視野 Foucault 像, (c) 暗視野 Foucault 像

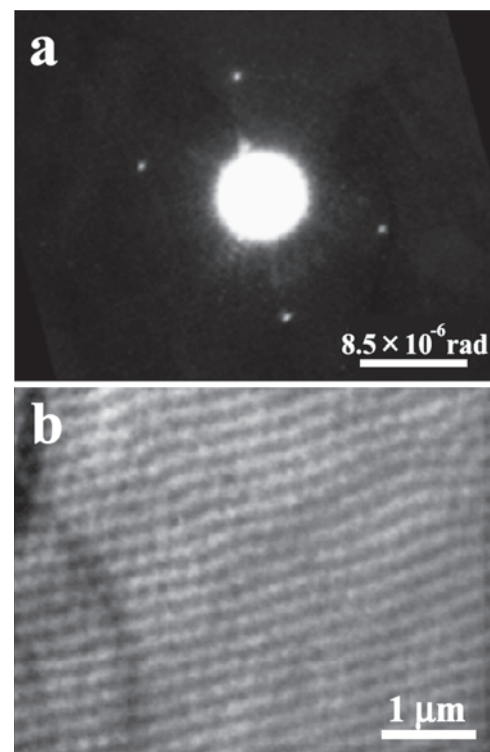


図 5 Nb 磁束格子の観察結果 (7 K, 50 mT)<sup>17)</sup>, (a) 小角回折パターン, (b) Fresnel 像

い三角格子を形成していると推定される。しかし、ほとんどの場合、回折パターン中には傾斜方向（膜法線の投影方位）の周期性を示すスポットは観察できなかった。例えば、図 5a の場合は、0 次スポットの右上と左下に回折スポットが欠損している。これは磁束量子による磁気的な偏向（散乱）が、磁束線と垂直方向であるため傾斜方向への散乱強度が不足してしまうこと、あるいは膜の傾斜角度が大きい（約 45°）ため、格子の膜法線の投影方位が Bragg 条件から外れてしまうことにより回折スポットが得られなかったと考えられる。なお、磁束格子の観察においては、単一の磁束量子観察時よりも小さなデフォーカス量の方が良好なコントラストの像となった。これは、強磁場印加により磁束量子の位置が接近しているため、過度に大きなデフォーカスは、返って像の分解能を劣化させるためだと解釈している。

#### 4. 全方位磁場印加機構<sup>9)</sup>

前節までに、振り戻し機構を含む 3 段から構成される水平磁場印加装置<sup>13)</sup>、および光軸方向に磁場を印加できる垂直磁場印加装置<sup>14)</sup>について、用いた Lorentz 法光学系とともに説明した。これらの装置は 300 kV 電界放出形電子顕微鏡用に開発されたもので、試料冷却部や電流導入部などの基本構造を共有し、磁場印加部分のみを交換する構造となっている。しかし、交換に際しては鏡体を試料位置で分割しなければならず、かなりの作業時間を必要としていた。また、層状構造をとる高温超伝導体では、超伝導層と磁場の印加方位によって磁束量子が鎖状配列や鎖状格子を構成することが知られている<sup>20,21)</sup>が、磁束量子のこの特異な構造を観察するためには、試料への磁場印加方向を任意に制御する必要があった。しかし、従来良く用いられる試料薄膜と光軸との角度を変更して実効的に試料と磁場印加方向とをコントロールする手法は、一定のコントラストで磁束量子を観察するためには採用できなかった。そこで、1 MV 電界放出形電子顕微鏡<sup>7)</sup>の開発に合わせて、試料に対して全方位に磁場印加が可能な、全方位磁場印加機構<sup>9)</sup>の開発を行なった。

磁場は線形結合可能なベクトル量であるので、直交する 3 方向の磁場をそれぞれ独立に制御し、合成として任意の方向に磁場印加可能な構造とした。開発した全方位磁場印加機構のコイル構成を図 6 に示す。試料への磁場印加は、X, Y, Z それぞれの軸方向に Helmholtz 型の空心コイルペアを用い、6 つのコイルの中心部に試料を配置する。Z 軸を光軸と一致させ、Z 軸方向磁場印加コイルの中空部を電子線が通過する。試料はサイドエントリー型冷却試料ホルダーにセットし、Y 軸に沿ってコイルの中空部を通して光軸まで導入する。Helmholtz 型のコイルペアであるため、試料に印加される磁場がほぼ平行である点は実験条件として望ましいが、磁場の印加されている空間が大きいため、電子線は長距離に渡り磁場中を伝搬することになり偏向角度が大きくなる。そこで、電子線を光軸上へ振り戻すための制御の精度向上と、磁場印加機構の発生させる最大磁場を試料への印加磁場とするた

め、試料の上下に 2 段 2 方向の振り戻し機構を備えた 5 段の磁場印加機構とした。その結果、図 6 に示すとおり、補助コイル (BD2-sub コイル 4 個, BD3-sub コイル 4 個) を含めると、全体で 30 個のコイルから構成される機構となった。なお、発生させる磁場強度に対する装置サイズを小さくするため、ニオブチタン (NbTi) 超伝導線材を使用するとともに、偏向系 (BD1 ~ BD4) には、磁性体リングに 4 個のコイルを巻きつける環状コイル構造とした。

図 7 に開発した磁場印加機構のカットモデルを示す。先述の 300 kV 電界放出形電子顕微鏡に設置して超伝導磁束量子観察に供した極低温試料冷却機構<sup>13)</sup>を、磁場印加専用の機構に改造したものである。NbTi 超伝導線材を 10 K 以下に冷却するため 3 槽からなる輻射シールド構造とし、図 6 の全コイルを設置した最内槽と中間槽を液体ヘリウムにより冷却するとともに、最外槽を液体窒素で冷却する構造である。4N (フォーナイン) 以上の高純度の銅で製造し、槽表面は酸化防止のため金メッキを施している。

5 段の磁場印加機構による電子線の振り戻し方法を図 8 により説明する。図 8a は中央部の第 3 段に配された試料に対して、水平方向に 2B の磁束密度が印加されたときの電子線の軌道 (赤線) を描いたものである。描画では便宜的に磁場の印加方向に偏向を受けるように描いているが、実際には電子線は磁束と直交する方向へ偏向される。試料の上側 2 段の偏向系 (BD1, BD2) はそれぞれ (B, -2B) の磁束密度が印加され、同時に試料の下側 2 段の偏向系 (BD3, BD4) にもそれぞれ (-2B, B) の磁束密度が印加される。すなわち、試料を挟んで上下の偏向系が対称な強度の磁場を印加する。このとき、均一場近似の範囲内では、光軸に沿って磁場印加機構に入射した電子線は、試料位置では光軸上を光軸に沿って透過し、そして光軸に沿って機構を射出する。この条件は原理的には印加磁場の強度に依らない理想的なものである。

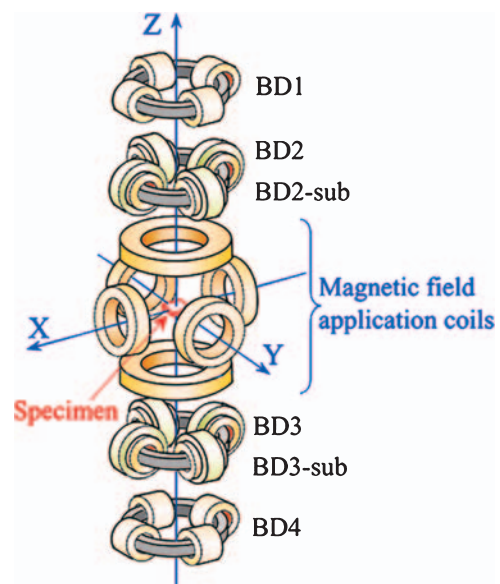


図 6 全方位磁場印加機構のコイル構成



図7 全方位磁場印加機構 (カットモデル)

3段の磁場印加機構では、試料位置で印加磁場に依らず光軸上を光軸に沿う電子軌道は原理的に描けない。さらに5段の磁場印加機構では、機構の発生させる最大磁束密度 (図8aの場合  $|2B|$ ) が試料への印加磁束密度となっている。このような利点を享受できることから、開発に当たって5段の磁場印加機構を採用した。電子線は磁場中では円軌道を描くことから、より高い精度の制御には、偏向系BD2とBD3は試料への磁場印加系  $B_x$  よりも大きな偏向を与えなければならない。そのため、偏向系BD2とBD3に補助コイル (BD2-sub, BD3-sub) を付加し対応させている<sup>9)</sup>。

図8bに水平磁場に加えて垂直磁場を印加した時の電子軌道を示す。光軸と平行方向の磁場は、電子軌道の光軸を中心

とした回転とともにレンズ効果 (焦点への収束) を生じさせる。レンズ効果については、磁場印加機構が空芯コイルであり本開発の範囲内ではほとんど無視できるレベルであるが、電子軌道の回転に関しては、垂直磁場の印加空間領域が大きいため無視できない。そこで、試料位置よりも上側の垂直磁場により回転する方位角度分だけ予め異なる方向 (図8bでは反時計方向) に偏向系 (BD1, BD2) で偏向を与えておき、電子線を試料位置では光軸上を光軸方向に透過させる。そして、試料位置よりも下側の垂直磁場により発生した電子線の回転は、偏向系 (BD3, BD4) で補正して光軸に沿って射出させる。この制御手法では、回転による効果を偏向で補う方式であるため厳密さには欠けるが、印加磁束密度が  $\pm 10$  mT程度の範囲内では支障は無かった。

以上のように、本機構の制御の原則は、試料を挟んで上下対称な軌道を描くように調整する、と言う点に尽きる。

## 5. 高温超伝導磁束量子の観察例

上述の全方位磁場印加機構を1 MV電界放出形電子顕微鏡に設置し、高温超伝導体 ( $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) と  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (Y-123)) の様々な形態の磁束量子の観察を行った。以下に3つの例を示す。

### 5.1 コラム状欠陥にピン止めされた磁束量子

図9はBi-2212薄膜内のコラム状 (円筒状) 欠陥にピン止めされた磁束量子 (図中矢印) とピン止めされていない磁束量子を同一視野で観察した例である<sup>22,23)</sup>。コラム状欠陥は高速重イオン ( $240 \text{ MeV} : \text{Au}^{+15}$ ) を薄膜表面に対して  $20^\circ$  以下の浅い傾斜角で照射し、貫通部を局所的にアモルファス化させたものである。コラム状欠陥をインフォーカスで確認する

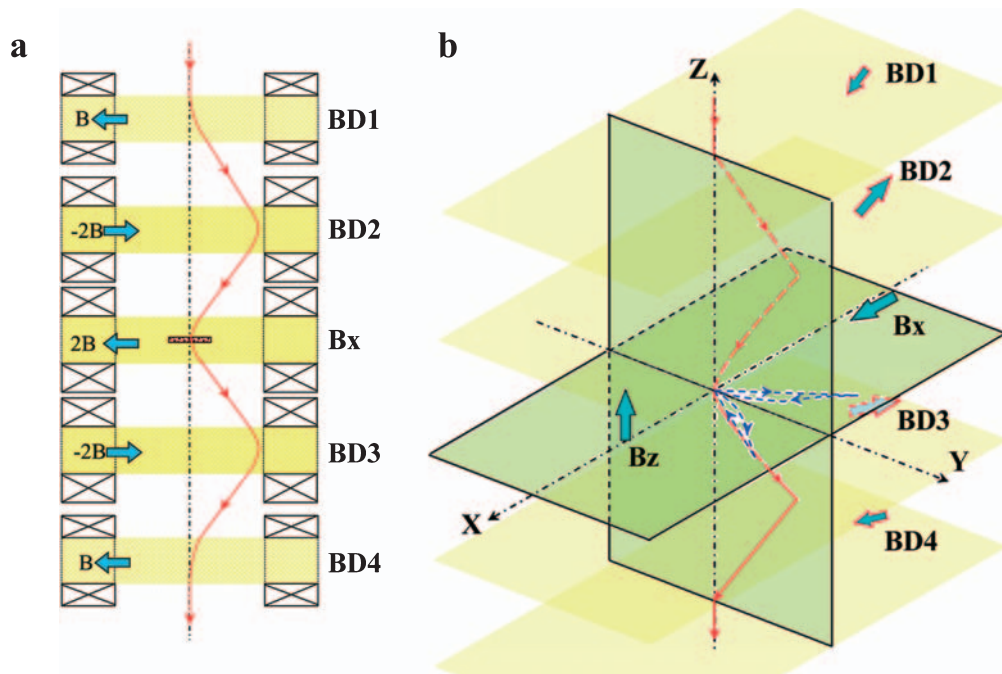


図8 5段の磁場印加機構による電子軌道, (a) 水平方向への磁場印加時の軌道, (b) 垂直磁場 (光軸方向) が付加されたときの軌道

とともに、そこにピン止めされた磁束量子を Fresnel 法で観察した。コラム状欠陥にピン止めされた磁束量子（矢印）は欠陥に沿って傾斜しているため、Fresnel 像ではコントラストの低下とともに形状が歪んでいる。図 9 右上の挿入図は、図中それぞれ a, b で示した磁束量子の Fresnel 像を 18 階調で描画したもので、コラム状欠陥にピン止めされた磁束量子像 (b) の形状の歪とコントラストの低下が良くわかる。また、図 9 の左上挿入図は薄膜断面の磁束線を描いたもので、図 2a, b と対応している。

本研究ではコラム状欠陥のピン止め効果だけでなく、試料温度を 12 K 以下に冷却すると、ピン止めされ傾斜していた磁束量子が膜に垂直に立つ様子も観察された<sup>22)</sup>。この磁束量子の試料薄膜内での形態の変化は可逆的であるが、温度に対してヒステリシスを持つことも Fresnel 像のコントラストと形状の変化の様子から確認できた。

## 5.2 鎖状磁束格子

高温超伝導体の超伝導層に斜めに磁場を印加すると、通常の三角格子に代わって、印加磁場の膜面への投影方向に鎖状の格子配列が形成されることが Bitter 法により明らかにされた<sup>20,21)</sup>。この鎖状格子については、Bi-2212 の場合には鎖状配列の間には通常の三角格子を組むが、Y-123 の場合には鎖状格子のみが配列することから、高温超伝導体であっても Bi-2212 と Y-123 では鎖状格子構造のメカニズムが異なることが予想されていた。しかし、超伝導体表面に磁性超微粒子を散布する Bitter 法で明らかとなるのは、磁束量子の表面分布だけであり、磁束量子の超伝導体内部の形態までは不明であった。そこで、1 MV の電子線が透過可能な厚さ 400 nm の Bi-2212 と厚さ 300 nm の Y-123 の薄膜試料を作製し、斜めに磁場を印加して鎖状格子構造を電子顕微鏡鏡体内で発現させた<sup>24,25)</sup>。

図 10 は高温超伝導体の超伝導層に斜めに磁場を印加した際に観察される鎖状磁束格子の Fresnel 像である。図 10a は Bi-2212 の観察例で、図中縦方向に 3 本の鎖状格子列とその

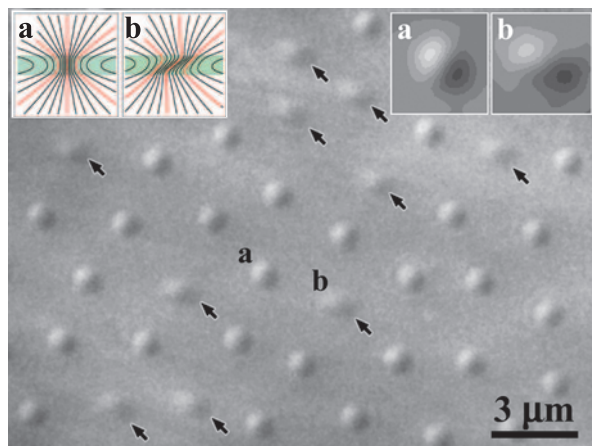


図 9 Bi-2212 の磁束量子の Fresnel 像 (20 K, 0.5 mT), 矢印はコラム状欠陥にピン止めされ傾斜した磁束量子。右上挿入図は図中 a, b の磁束量子の Fresnel 像を 18 階調で描画したもので、左上挿入図は a, b それぞれの磁束量子断面の磁束線分布の概念図である。

間に 2 列幅の三角格子が観察されている。鎖状格子列の磁束量子は、他の部分と比較して列方向に数密度が高くなっているが、各磁束量子のコントラスト、形状には三角格子を形成する磁束量子との差異は見出せない。すなわち、鎖状格子列の磁束量子は、超伝導体薄膜に対して大きな傾斜はしていないことがわかる。一方、図 10b は、Y-123 の鎖状磁束格子の観察例である。列状に配列した磁束量子のみが観察されている。また、各磁束量子の像は列の方向に少し伸びていることがわかる。このことから Y-123 の場合には、磁束量子が鎖状配列を取るとともに、印加磁場の投影方向に傾斜していることがわかる。この磁束量子の傾斜角度は、外部磁場の印加角度に応じて変化することもわかった<sup>25)</sup>。

印加磁場の傾斜角度や強度を変化させたときの磁束量子の振る舞いの動的観察などから、Bi-2212 では Josephson 磁束量子（観察できていない）があらかじめ膜内に存在し、その上をパンケーキ磁束量子が配列すること、Y-123 では各々の磁束量子が印加磁場の方向に傾斜し、それぞれの相互作用によって列状に配列することが確かめられた。これら鎖状磁束格子の形態の描像は、理論的な予想<sup>26)</sup>とも一致していた。

## 5.3 層間磁束量子

先述のとおり膜表面と印加磁場方向の角度を平行に近づけていくと、角度の減少に伴って磁束量子の Fresnel 像は延び

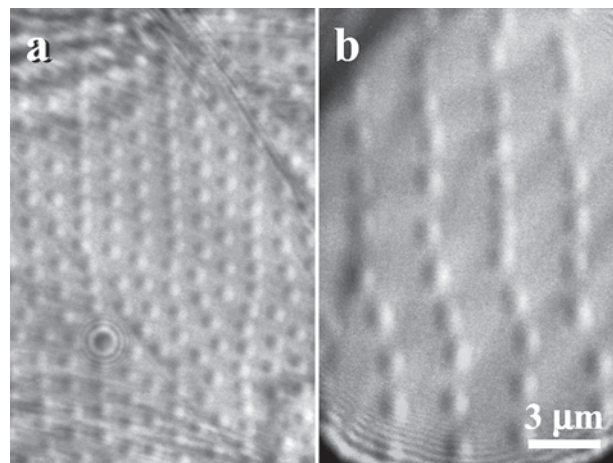


図 10 鎖状磁束格子配列の Fresnel 像, (a) Bi-2212 の場合 (1 mT, 50 K, 10°), (b) Y-123 の場合 (1 mT, 50 K, 8°)

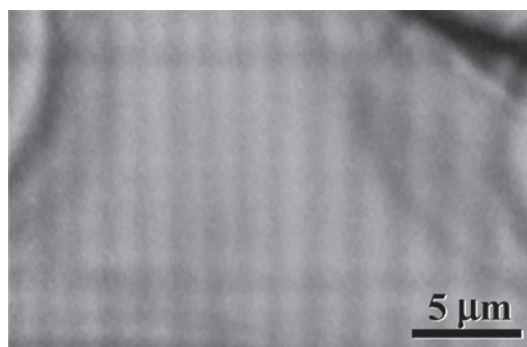


図 11 Y-123 の層間磁束量子の Fresnel 像 (3 mT, 24 K)

ていく。図 11 は、膜面とほぼ平行な磁場 ( $< \pm 0.5^\circ$ ) を印加したときに、磁束量子の像の伸びが視野範囲を超えて格子状に観察された例である<sup>27)</sup>。すなわち、視野の範囲内では層間の磁束量子となっている。図 5b の磁束格子とは像としては似ているが、大きな違いは図 11 では格子を構成する磁束量子は各格子列ごとに 1 個程度と考えられる点である。磁束量子が表面、または裏面に抜け出る点が観察されていないため、膜内での角度やその個数については厳密には分からないが、膜内に 1 個の層間磁束量子 (図 3c) となっていると考えている。

## 6. おわりに

本稿では、磁束量子観察手法としての Lorentz 顕微鏡法と、磁束量子を発現させるための付加装置としての磁場印加機構に絞って紹介した。超伝導磁束量子を透過型電子顕微鏡で観察するには、何よりもまず可干渉性と透過能に優れた電子線が必要であり、また、試料を超伝導状態に転移させるために、極低温試料冷却システムが必要となることは言を待たない。本稿で述べなかった必須のこれら基幹装置は、300 kV 以上の加速電圧を持つ電界放出形電子顕微鏡と、電子顕微鏡に付加された冷却システムとして既に複数台が稼働している。超伝導研究は、以前のフィーバーが終わり落ち着いた研究フェーズとなっているが、電子顕微鏡による超伝導現象の観察研究は、今でも高いポテンシャルを維持しており、新たな展開があれば大きく発展できる素地を持っている。今後のさらなる研究の進展に期待したい。

## 謝 辞

超伝導磁束量子の観察研究は、電界放出形電子顕微鏡の開発や試料冷却システムの開発から数えると 40 年に及ぶ歴史がある。本稿で紹介した内容は Lorentz 法による磁束量子の直接観察についてはほぼ網羅しており、筆者が直接携わった部分である。これだけでも 20 余年に渡っている。そして、ここに紹介した研究内容は、先人の築かれた技術や知見の上にスタートさせていただいたものである。日立製作所基礎研究所の外村彰先生をはじめとする外村研究グループの方々、イタリア Bologna 大学の Giulio Pozzi 先生、東京大学の北澤宏一先生、岸尾光二先生、日本原子力研究所の岡安悟博士などの諸先生方、そして先生方の研究室の方々、加えて日立基礎研究所開発グループと日立ハイテクノロジーズの方々など、大変多くの方々のご指導、ご支援を頂いた。ここに心からの謝意を表します。(注：所属機関名は研究推進時)

## 文 献

- 1) Abrikosov, A.A.: *Sov. Phys. JETP*, **5**, 1174–1182 (1957)
- 2) Essmann, U. and Träuble, H.: *Phys. Lett.*, **24A**, 526–527 (1967)
- 3) Harada, K.: *Microscopy*, **62**, S3–S15 (2013)
- 4) Harada, K., Matsuda, T., Bonevich, J.E., Igarashi, M., Kondo, S., Pozzi, G., Kawabe, U. and Tonomura, A.: *Nature*, **360**, 51–54 (1992)

- 5) Tonomura, A., Osakabe, N., Matsuda, T., Kawasaki, T., Endo, J., Yano, S. and Yamada, H.: *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 792–795 (1986)
- 6) Harada, K., Akashi, T., Togawa, Y., Matsuda, T. and Tonomura, A.: *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 3229–3231 (2004)
- 7) Kawasaki, T., Yoshida, T., Matsuda, T., Osakabe, N., Tonomura, A., Matsui, I. and Kitazawa, K.: *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 1342–1344 (2000)
- 8) Kawasaki, T., Matsui, I., Yoshida, T., Katsuta, T., Hayashi, S., Onai, T., Furutsu, T., Myochin, K., Numata, M., Mogaki, H., Gorai, M., Akashi, T., Kamimura, O., Matsuda, T., Osakabe, N., Tonomura, A. and Kitazawa, K.: *J. Electron Microsc.*, **49**, 711–718 (2000)
- 9) Harada, K., Endo, J., Osakabe, N. and Tonomura, A.: *e-J. Surf. Sci. Nanotech.*, **6**, 29–34 (2008)
- 10) 超伝導関係の教科書, 例えば, Tinkham, M. (著): 小林俊一(訳), 超伝導現象, 産業図書
- 11) Blatter, G., Feigel'man, M.V., Geshkenbein, V.B., Larkin, A.I. and Vinokur, V.M.: *Rev. Mod. Phys.*, **66**, 1125–1388 (1994)
- 12) Beleggia, M., Pozzi, G., Masuko, J., Osakabe, N., Harada, K., Yoshida, T., Kamimura, O., Kasai, H., Matsuda, T. and Tonomura, A.: *Phys. Rev.*, **B66**, 174518-1–174518-10 (2002)
- 13) Harada, K., Kasai, H., Matsuda, T., Yamasaki, M., Bonevich, J.E. and Tonomura, A.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, 2534–2540 (1994)
- 14) Yoshida, T., Endo, J., Harada, K., Matsuda, T., Kamimura, O., Tonomura, A., Beleggia, M., Patti, R. and Pozzi, G.: *J. Appl. Phys.*, **85**, 4096–4103 (1999)
- 15) Harada, K.: *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 061901 (2012)
- 16) Taniguchi, Y., Matsumoto, H. and Harada, K.: *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 093101 (2012)
- 17) Harada, K., Kasai, H., Kamimura, O., Matsuda, T., Yoshida, T., Tonomura, A., Shimoyama, J., Kishio, Ko. and Kitazawa, K.: *Adv. Supercond.*, **12**, 287–292 (2000)
- 18) Kawasaki, T., Matsuda, T., Endo, J. and Tonomura, A.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**, L508–L510 (1990)
- 19) 原田 研: 電子顕微鏡, **35**, 61–63 (2000)
- 20) Gammel, P.L., Bishop, D.J., Dolan, G.J., Kwo, J.R., Murry, C.A., Schneemeyer, L.F. and Waszczak, J.V.: *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 2592–2595 (1987)
- 21) Bolle, C.A., Gammel, P.L., Grier, D.G., Murray, C.A. and Bishop, D.J.: *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 112–115 (1991)
- 22) Tonomura, A., Kasai, H., Kamimura, O., Matsuda, T., Harada, K., Nakayama, Y., Shimoyama, J., Kishio, K., Hanaguri, T., Kitazawa, K., Sasase, M. and Okayasu, S.: *Nature*, **412**, 620–622 (2001)
- 23) Kamimura, O., Kasai, H., Akashi, T., Matsuda, T., Harada, K., Masuko, J., Yoshida, T., Osakabe, N., Tonomura, A., Beleggia, M., Pozzi, G., Shimoyama, J., Kishio, K., Hanaguri, T., Kitazawa, K., Sasase, M. and Okayasu, S.: *J. Phys. Soc. Japan*, **71**, 1840–1843 (2002)
- 24) Matsuda, T., Kamimura, O., Kasai, H., Harada, K., Yoshida, T., Akashi, T., Tonomura, A., Nakayama, Y., Shimoyama, L., Kishio, K., Hanaguri, T. and Kitazawa, K.: *Science*, **294**, 2136–2138 (2001)
- 25) Tonomura, A., Kasai, H., Kamimura, O., Matsuda, T., Harada, K., Yoshida, T., Akashi, T., Shimoyama, J., Kishio, K., Hanaguri, T., Kitazawa, K., Masui, T., Tajima, S., Koshizuka, N., Gammel, P.L., Bishop, D.J., Sasase, M. and Okayasu, S.: *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 237001-1–237001-4 (2002)
- 26) Koshelev, A.E.: *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 187–190 (1999)
- 27) Tonomura, A.: *Proc. 9th Int. Symp. Foundations Quantum Mechanics (ISQM-Tokyo '08)*, 301–306 (2009)