Ⅲ-5. SQUID の 応 用 計 測

藤 井 佳 子

岡山理科大学 岡山市理大町 1-1

(1991 年 9 月 25 日受理)

Application of SQUID to Various Measurements

Yoshiko FUJII

Okayama University of Science, 1-1 Ridai-cho, Okayama 700

(Received September 25, 1991)

Synopsis:

In recent years, SQUID is used in various fields. This paper presents the basic information for the application of SQUID to various measurements. The principle of SQUID, the configuration of pick up system and the way to decrease noise are described.

1. はじめに

SQUID (Superconducting QUantum Interference Device; 超伝導量子干渉計) は、ジョゼフソントンネル効果とフラクソイドの量子化に基づいて作られた高感度磁束計であるが、その応用範囲は、極低温での磁気温度計、雑音温度計、NMR 測定から鉱物探索、生体磁気測定、重力波測定等まで広範囲に及び、また最近では、酸化物高温超伝導体の研究に盛んに使用されている。SQUID 素子には、ジョゼフソン素子 1 個からなる rf-SQUID と 2 個からなる dc-SQUID があり、従来一般には rf-SQUID が使われていた。しかし、ここ数年の間に dc-SQUID の製作技術はめざましく進歩し、磁束ノイズレベルは rf-SQUID に比べ 1 桁以上低くなっている。これらの SQUID は、海外を含めると 10 社以上の会社で製造販売されており、SQUID 素子・測定回路一式を購入することができるので、ここでは、市販の素子・回路を使って測定する場合の技術的留意点を主眼において“SQUID の応用計測”を初心者向けに解説する。より詳しくは、文献 1～6) を参照されたい。

2. SQUID 概説

rf-SQUID および dc-SQUID の動作について簡単に

述べる。

2.1 rf-SQUID

弱結合 (ジョゼフソン結合) 1 個を含む超伝導リングを考える。リングを一周したときの位相差を $\Delta\varphi$ とすると、波動関数の一価性より

$$\Delta\varphi = \oint \mathbf{P}/(\hbar/2\pi) d\mathbf{l} = 2\pi n$$

($\hbar$: プランク定数, n : 整数) (1)

ここで運動量 $\mathbf{P}$ は磁場 $\mathbf{B}$ の下では、超伝導電流密度 $\mathbf{j}_s$ およびベクトルポテンシャル $\mathbf{A}$ ($\text{curl } \mathbf{A} = \mathbf{B}$) を用いて

$$\mathbf{P} = -\frac{m}{\rho_s |e|} \mathbf{j}_s - 2|e| \mathbf{A}$$

(m : 電子の質量, e : 電子の電荷,
 ρ_s : 超伝導ペアー電子の密度) (2)

と表せる。ところで、ストークスの定理より

$$\oint \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l} = \iint \text{curl } \mathbf{A} \cdot d\mathbf{s} = \iint \mathbf{B} \cdot d\mathbf{s} = \Phi$$

(リングを貫く磁束)

であるから、(1)式は、

$$-\frac{2\pi m}{\rho_s |e| \hbar} \oint \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{l} - \frac{4\pi |e|}{\hbar} \Phi = 2\pi n$$

(3)

(3) 式の両辺を $-(4\pi e/\hbar)$ で割ると

$$\Phi' \equiv \frac{m}{2\rho_s e^2} \oint \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{l} + \Phi = n \frac{\hbar}{2|e|} = n\Phi_0$$

(n は整数を表すので負の符号は省いた) (4)

ここで,

$$\begin{aligned}\Phi_0 &= \frac{h}{2|e|} = 2.068 \times 10^{-5} \text{ Wb} \\ &= 2.068 \times 10^{-7} \text{ Gauss} \cdot \text{cm}^2\end{aligned}$$

Φ' をフラキソイド, Φ_0 を量子磁束と呼び, (4) 式はフラキソイドが Φ_0 を単位として量子化されていることを示す。弱結合をもたない超伝導リングでは, 超伝導体内部に積分経路を取ることにより $\oint \mathbf{j} \cdot d\mathbf{l} = 0$ となるので, 磁束が量子化されている。弱結合をもつ場合, いま厚さ $2a$ の酸化膜からなるジョゼフソン接合を考えると, (3) 式の左辺第 1 項は,

$$\begin{aligned}-\frac{2\pi m}{\rho_s |e| \hbar} \oint \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{l} \\ = -\frac{2\pi m}{\rho_s |e| \hbar} j_s \int_{-a}^a dl = -\frac{4\pi m a}{\rho_s |e| \hbar} j_s \\ = \theta \quad (\text{弱結合両端での位相差})\end{aligned}\quad (5)$$

となる。したがって(3)式は次のように表現される。

$$\theta = 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0} - 2\pi n \quad (6)$$

ところで, リングを流れる超伝導電流 J_s は, 電子ペアの波動関数を用いて計算されて²⁾

$$J_s = -J_c \sin \theta = -J_c \sin(2\pi \Phi / \Phi_0) \quad (7)$$

ここで臨界電流 J_c は, 弱結合の状態に依存する量であり, 一般に数十 μA の程度である⁷⁾。

リングのインダクタンスを L_s , リングを貫く磁束を Φ , 外部から加えた磁束を Φ_{ext} とすると

$$\Phi = \Phi_{\text{ext}} + L_s J_s \quad (8)$$

式(7), (8)より

$$\Phi + L_s J_c \sin(2\pi \Phi / \Phi_0) = \Phi_{\text{ext}} \quad (9)$$

$2\pi L_s J_c > \Phi_0$ の場合, Φ は Φ_{ext} の多価関数となり, 横軸に $\Phi_{\text{ext}} / \Phi_0$, 縦軸に Φ / Φ_0 をとって図示すると Fig. 1 のようになる。これからわかるように, Φ_{ext} を増やしていても, 初め Φ は遮蔽電流 J_s によりゆっくりとしか増加しない。しかし A 点までくると, J_s が臨界値に達し, リングを貫く磁束が急に Φ_0 だけ増加して, B 点に飛ぶ。逆に Φ_{ext} を減少していった場合, C 点において飛びが生じ Φ は Φ_0 だけ減少する。このように Φ_{ext} - Φ 曲線はヒステレシスを描く。この現象を利用して, rf-SQUID と LC タンク回路を結合させると, ヒステレシスループに伴うエネルギー損失を検出することにより Φ_{ext} を測定することが可能となる。

Fig. 2 に rf-SQUID 回路の動作原理を示す。Fig. 2(a) に示すように, SQUID は高周波タンク回路と結合している。rf 電流 J_{rf} (ピーク値) とタンク回路にかかる電圧 V_{rf} の関係は, SQUID を貫く磁束 Φ をパラメー

Fig. 1 Φ / Φ_0 as a function of $\Phi_{\text{ext}} / \Phi_0$ in the case of $2\pi L_s J_c = 3\Phi_0$.

Fig. 2 (a) Configuration of rf-SQUID, (b) V_{rf} versus J_{rf} for $\Phi = n\Phi_0$ and $(n+1/2)\Phi_0$, (c) The "triangle" pattern. V_{rf} versus Φ / Φ_0 at constant J_{rf} .

ターとして(b)図のようになり, 平らになる直前で磁束の飛びが生じている。今 J_{rf} をある一定値に定めて Φ を変化させると, (c)に示すように V_{rf} は Φ_0 を周期として鋸状に振動する。 V_{rf} の振幅は rf 周波数に比例するので高周波のほうが感度が上がるが, 通常 2~200 MHz である。広く一般に使用されている回路(Fig. 3)では, ロックインアンプを備えた帰還回路により, Φ の変化に比例した電圧 V_0 を読み出すようになってい

Fig. 3 Rf-SQUID in flux locked loop. The signal is phase sensitively detected, amplified and fed back to flux-lock the SQUID.

Fig. 4 (a) Configuration of dc-SQUID, (b) J versus V for $\Phi = n\Phi_0$ and $(n + 1/2)\Phi_0$, (c) V versus Φ/Φ_0 at constant bias current J_B .

る。Fig. 3 の audio 発振器は、SQUID にピーク振幅 $\Phi_0/2$ の振動磁束を付加し変調する (Fig. 2(b)参照) ので、周波数は $1 \sim 10$ kHz 程度が用いられている。市販されている rf-SQUID の感度は、検出コイル L_p からのノイズを考えない場合 $\sim 1 \times 10^{-4} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ である。

2.2 dc-SQUID

弱結合を二つもつ超伝導リング (dc-SQUID) に Fig. 4(a) のように電流を流し、リングの両端の電圧を測ると、ある臨界電流 (J_c) 以上で電圧が生じる (Fig. 4(b)図), J_c の大きさはリングを貫く磁束 Φ の大きさに依存する。そこで、臨界電流の最大値より大きな一定のバイアス電流 J_B を流して、 Φ を増していくと、 V は Φ_0 を周期として (Fig. 4(c)図) のように変動する。実用上の回路では、rf-SQUID の回路と同じように帰還回路を構成し (Fig. 5), Φ に比例した電圧 V_0 を測定する⁴⁾。

市販されている dc-SQUID の感度は、検出コイル L_p からのノイズを考えない場合、 $\sim 5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ である。

3. SQUID による計測

SQUID を種々の物理量測定に用いる場合の検出部

Fig. 5 Dc-SQUID in flux locked loop.

Fig. 6 Detection coil system for static magnetization measurements.

の構成について述べる。

3.1 静磁化測定

SQUID を使用すると、微量な試料を用い、低磁場下でも高感度な磁化測定が可能となる。

Fig. 6 に示すように、試料の静磁化検出コイルは、逆向きで同じ巻数をもつコイルの組からなり、試料以外によって生ずる磁束の影響をできるだけ打ち消すようにしてある。ここで、検出コイル部の磁束の変化が、大きな伝達率で SQUID に入力されるための条件について考える。検出コイル、リード線部および SQUID と結合するコイルの自己インダクタンスを、それぞれ L_p , L_l , L_1 , 検出コイルの全巻数を $2N_p$ とし、SQUID センサー部の相互インダクタンスを M_{sg} とする。試料の磁化によって検出コイルの一方を貫く磁束が Φ_{ext} 変化し、これに伴って検出側ループに流れる遮蔽電流が J_{sg} 変化したとすると、

$$N_p \Phi_{ext} + (L_p + L_l + L_1) J_{sg} = 0 \quad (10)$$

J_{sg} によって SQUID センサーを貫く磁束は、

$$\Phi_{SQ} = M_{sg} J_{sg} \quad (11)$$

だけ変化する。ところで、検出コイルは密巻きにした二つのコイルの組よりなるので、 L_p は N_p の二乗に比例する。

$$L_p = C N_p^2 \quad (12)$$

式(10)~(12)より

$$\Phi_{SQ} = -\frac{M_{sg}}{\sqrt{C}} \frac{\sqrt{L_p}}{L_p + L_l + L_1} \Phi_{ext} \equiv -K \Phi_{ext} \quad (13)$$

K を磁束伝達率とよぶ。 M_{sg} , L_1 は一定であると考え、 K を最大にするには、 L_l をできるだけ小さくし、 L_p が L_1 と同じ値 (正確には $L_p = L_l + L_1$) になるように検出コイルを巻く。 L_l を小さくするために、リード線をきつく燃ると、 L_l は 1 m 当り約 $0.3 \mu\text{H}$ となる¹⁾。 L_1 は普通約 $1 \mu\text{H}$ であるので、検出コイルは L_p

が大きくなりすぎないように注意して巻かなければならない。半径 ρ cm の線を用い、半径 r cm の円 1 巻を作ったときの自己インダクタンス L (μH) は

$$L = 0.004\pi r \left(\ln \frac{8r}{\rho} - 2 \right) \quad (14)$$

で与えられる。例えば、Fig. 6 のような打ち消し型コイルの組を作るとき、 $80 \mu\text{m}$ の芯線で、直径 1 cm、巻数 4 のコイルの組を作ったときのインダクタンスの合計 (L_p) は、ほぼ $1 \mu\text{H}$ である。線材は Nb・Ti 線が適当であり、検出部には Cu clad していない単線を使うのが、低雑音上好ましい。また、検出感度を上げるには、試料の packing factor を上げるような構成にしなければならない。

静磁場 (H_0) を加える場合は、安全で一様な磁場を作ることが重要で、永久電流モードにする方法や、超伝導体の筒に磁場をトラップする方法がある。加えるべき H_0 の大きさは、測定の種類と性格によって異なるが、現在市販の SQUID 測定システムでは、約 7 T までの超伝導マグネットが組み込まれている。

試料を次々に取り替えて測定する必要がある場合は、SQUID センサー、ピックアップコイルや静磁場用超伝導マグネットは液体ヘリウム温度に冷却したままで、試料ケースを出し入れできるような構造のクライオスタットを作る。上記市販の SQUID 測定システムでは、試料の温度を 2 K から 400 K (オプションの炉を使用すれば 800 K) まで変えて測定することができる⁹⁾。

このほかの雑音に関する問題は、第 4 章で述べる。

3.2 交流磁化率測定

交流複素磁化率測定を行い、周波数依存を調べると、スピン緩和の情報を得ることができる。周波数が非常に低い場合は、静磁化率と見なされる。

Fig. 7 に、交流ブリッジによる磁化率測定回路の例を示す。この回路は、ハートションブリッジの零検出に SQUID を用いたものである。SQUID を使用すると、低周波 (数 Hz 以下) でかつごく小さい交流磁場 ($\sim 10^{-3}$ Gauss) でも高感度に測定できる。二次コイルの試料検出部は静磁化測定の場合と同様、同じ巻数で逆向きのコイルの組からなり、一方のコイルに試料が入っている。一次コイルにある周波数の交流を流すと、試料の交流磁化率に比例した起電力が二次回路に誘起される。室温部にある交流ブリッジのダイヤル α , β を調整して、この起電力を打ち消すようにトランス m_0 に交流を流す。打ち消しが完全であるかどうか

Fig. 7 (a) A bridge, in which a SQUID is employed as the null detector, for ac susceptibility measurements, (b) The bridge is also used to measure unknown self-inductance or resistance.

かは、SQUID システムにつながる 2 位相ロックイン増幅器によって検知する。ダイヤル α と β の読みはそれぞれ交流複素磁化率の実部と虚部 χ' と χ'' に対応している。二つ以上の試料の磁化率を一つの SQUID で測定したいときは、二次側ループに検出コイルの組を付け加え、一次コイルへの電流を切り換えて使用する。ただしこの場合、検出コイルのインダクタンスの合計 (L_p) に制限があるので、検出感度は低下する。

Fig. 7 には示していないが、必要に応じ、試料に直流磁場をかけて、交流磁化率測定を行う。現在市販の SQUID 交流磁化率測定システムでは、約 1 T の直流磁場をかけることができる。

同じブリッジを用い、微小な抵抗測定および自己インダクタンス測定を行うことも可能である (Fig. 7(b))。

3.3 核磁気共鳴 (NMR) 法による測定

NMR 法を使うと、特定の核スピンの着目して磁化の大きさを知ることができ、さらに、パルス NMR 法^{9,10)} では、緩和の情報を得ることができる。通常の NMR に比べ SQUID NMR の特長は、まず、低磁場でも高感度に測定できることである。横磁化の測定も可能である¹¹⁾、SQUID NMR では縦磁化の直接測定ができることもまたその特長であるので、ここでは

Fig. 8 Configuration of SQUID NMR measurements. The small resistor is used to keep the rf field away from the SQUID sensor.

縦磁化測定 SQUID NMR のコイル配置を Fig. 8 に示す。rf コイルと検出コイルは、実際上、完全には直交していないので、検出コイルに rf による遮蔽電流が多少乗ってくる。これが SQUID 素子まで伝わらないように、SQUID への入力コイルと並列に抵抗 ($\sim 0.1 \Omega$) を入れる。NMR では H_0 磁場の均一性と安定性が特に重要であり、永久電流モードで使うことが多い。永久電流モードにする場合、Fig. 8 の persistent switch 部分は、Nb・Ti 線にハンダチューブを被せ、その上にマンガニンのヒーター線約 50 Ω を密に巻いて、さらにそれをエポキシ樹脂スタイキャスト 1266 で固めて作る。ヒーターに 30 mA 程度の電流を流すと Nb・Ti 線は常伝導状態になり persistent switch が off になる。

筆者の経験では、 H_0 磁場用コイルのように 100 mA 以上の電流が流れる場合、Nb・Ti 線どうしの接続は、圧着ではなく、溶接によりしっかりと接続する必要がある。

SQUID NMR と通常の NMR の感度の比較については、文献 9) を参照されたい。

3.4 熱電対の起電力測定

SQUID と熱電対を組み合わせると、低温での微小な温度差を、高感度に測定することができる^{12,13)}。この方法では、Fig. 9 に示すように熱電対のリード線が室温まで延びていないため、リード線の寄生熱起電力の影響を考慮する必要がある。

SQUID 出力の分解能を決めるのは、SQUID のデバ

Fig. 9 A circuit employing a SQUID for measurements of small voltages generated by a thermocouple.

イス・ノイズと熱電対の抵抗によるジョンソン・ノイズである。筆者らは、超流動ヘリウムの熱伝達測定に線径 0.08 mmφ の Au (0.03 at%Fe) 対 Nb・Ti 線の熱電対を用いているが、2 K においては、分解能はジョンソン・ノイズにより制限され、温度差の分解能は 3×10^{-7} K と見積もられる。しかし実際の測定における分解能は 1×10^{-6} K であり、この場合、電磁波や振動等による外部からの誘導雑音が分解能を支配していた。

3.5 雑音温度計

自由電子のブラウン運動によって抵抗 R の両端に生じる雑音電圧 V_n の二乗平均値は、ナイキストの式

$$\langle V_n^2 \rangle = 4kTR\Delta f$$

(k : ボルツマン定数, Δf : 周波数帯域) (15)

によって表される。一定の時間にわたり、周波数帯域 Δf 内で V_n を測定し平均化することにより絶対温度 T を求めることができる。小さな V_n の測定に SQUID が使用されるが、実際の測定においては、測定回路からくるデバイス・ノイズが上乘せされることが、精度を上げるには長時間の測定を要する等の問題があり、簡便に使用できる温度計ではない。詳しくは、文献 1), 14) を参照されたい。

4. 雑音対策

高感度測定器の性能を十分発揮させるには、雑音対策が、重要かつ厄介な課題となる。とりわけ SQUID を使う場合、雑音対策は極めて念入りに行う必要がある。しかしここでは、脳磁気測定のような特殊な測定環境を必要とするものについては触れない^{15,16)}。

ラジオやテレビの電磁波シールドのためには、銅

Fig. 10 An example of electrical terminal to ensure the superconductive connection, which is magnetically shielded by superconductor.

(またはアルミニウムと) 鉄板でシールドルームを作るのが望ましいが、クライオスタットが金属製であれば、特にシールドルームを用意しなくてもよい。地磁気等の小さい磁場まで取り除く必要があれば、2~3 層のミューメタルの筒で囲む。測定時における外磁場の変動の影響をなくすので十分であれば、ミューメタルなしでも、クライオスタット内において超伝導体による磁気シールドを念入りに行えばよい。まず、4.2 K 断熱ケースを超伝導体の長い筒で覆う。簡単には、鉛板を巻き、端をハンダ付けして筒を作る。市販の SQUID センサーは Nb の筒で覆われているが、センサーから検出部までの超伝導リード線は、撚り合わせ、ハンダまたは鉛のチューブの中に入れる。チューブに入れる際、アピエゾン N グリースをリード線に塗っておくと、低温でグリースが固まり、振動からくるノイズを低減できる。また、チューブ自体もブラブラしないよう固定する。超伝導リード線が断熱真空中を走る場合は、ハンダチューブのサーマルアンカーを十分行わなければならない。途中リード線の接続を行う必要があるときは、Fig. 10 に示すような接続ポートを置く。ネジを切った Nb 板はエポキシ樹脂スタイキャスト 2850 GT*1 で銅アンカーに接着する。各接続箇所において、隙間からの磁場の漏れ込みをできるだけ少なくすることがノイズ低減のポイントとなる。

振動に伴う磁場変動からくるノイズを減らすには、検出部の試料と検出コイルおよび磁場コイルが相対運動をしないようしっかりと固定した組立にすることが大切である。

*1 グレースジャパン(株) 2850 GT は低温でも比較的熱伝導が良く、熱膨張係数は金属に近い。

SQUID 出力がドリフトしたり、帰還回路のロックが外れやすい場合は、アースラインに問題がある³⁾。アースラインにループ回路ができないよう 1 点アースに留意しなければならない。SQUID 回路を電池で駆動させれば、この問題はかなり改善される。

クライオスタット内には種々のリード線が走っており、これらにより SQUID ラインに rf ノイズが入ると、SQUID 出力の三角パターンのピーク値が下がり、S/N 比が悪くなる。NMR の H_0 コイル、ヒートスイッチ用コイルやヒーター線には、比較的大きな電流が流れているので、ノイズの原因となりやすいため、これらの線はハンダや Cu-Ni のチューブに入れると同時に、できるだけ SQUID ラインの近くを走らないように配線する。

5. おわりに

SQUID を使用すれば、電磁気的信号を従来の測定方法に比べ数桁も高感度に検出することが可能となるため、今後、応用範囲は一層広がっていくことであろう。また、近い将来酸化物高温超伝導体による SQUID センサーが実用化されれば、その傾向は加速されるであろう。

ここでは、従来の SQUID センサーを使って物理量を測定する場合の基礎的な技術について述べたが、筆者の経験が何かのお役に立てば幸いである。

この小文を書くにあたって資料を提供していただいた(株)はくさんの藤岡耕治氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) R.A. Webb, R.P. Giffard and J.C. Wheatley: J. Low Temp. Phys. 13 (1973) 383
- 2) O.V. Lounasmaa: *Experimental Principles and Methods below 1 K*, Academic Press, London and New York (1974) 140
- 3) R.C. Richardson and E.N. Smith: *Experimental Techniques in Condensed Matter Physics at Low Temperatures*, Addison-Wesley Publishing Co., Inc., Redwood City, Calif. (1988) 202
- 4) J. Clarke: IEEE Trans. Elec. Dev. **ED-27** (1980) 1896
- 5) 小林俊一: 低温技術, 東京大学出版会, 東京, 第 8 章
- 6) M.B. Ketchen: IEEE Trans. Magn. **MAG-17** (1981) 387
- 7) J.E. Zimmerman: J. Appl. Phys. 42 (1971) 30
- 8) Quantum Design, San Diego, USA
- 9) R.A. Webb: Rev. Sci. Instrum. 48 (1977) 1585
- 10) Y. Kondo, T. Mizusaki, A. Hirai, Y. Hirayoshi and K. Eguchi: J. Low Temp. Phys. 75 (1989) 289
- 11) G.J. Ehnholm, J.P. Ekstrom, M.T. Loonen and J.K. Soini: Cryogenics 19 (1979) 673
- 12) 前野悦輝: 固体物理 20 (1985) 334
- 13) 山口 稔, 藤井佳子: 低温工学 21 (1986) 104
- 14) R.A. Kamper and J.E. Zimmerman: J. Appl. Phys. 42 (1971) 132
- 15) 石川 登, 賀戸 久: 応用物理 60 (1991) 591
- 16) 葛西直子: 低温工学 26 (1991) 10