

令和 3 年 6 月 4 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K18870

研究課題名(和文) スピン誘起ウィークリンク素子の物理とデバイス創出

研究課題名(英文) Spin-induced weak-link device and physics

研究代表者

山下 太郎 (Yamashita, Taro)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60567254

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、超伝導ワイヤ上に局所的に磁性体を付加した構造を有するスピン誘起ウィークリンク素子に関する研究を行った。素子抵抗の温度依存性において、磁性体付加による2段階の超伝導-常伝導転移を観測し、明瞭な超伝導性の局所的抑制を観測した。そして磁性体を付加する領域が超伝導臨界電流に与える影響を体系的に調べ、領域増大に伴って素子毎の臨界電流のばらつきが大きくなる傾向を見出し、磁性体/超伝導体2層構造で生じる物理メカニズムに関する新たな知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究を通じて、国内外でほとんど報告例のないスピン誘起ウィークリンク素子に関する物理的知見が得られた。微小な磁性体を超伝導ワイヤに付加することで、超伝導性がどの程度の領域に渡り抑制されるのかを明らかにした他、超伝導体内でのスピン拡散や磁束ピンニングとの関連が予想される振る舞いが明らかとなり、未解明な点が多い磁性体と超伝導体の界面において生じる物理メカニズムに関する有用な知見が得られた。

研究成果の概要(英文)：We studied spin-induced weak-link devices which consist of the superconductor/ferromagnet bilayer. In the measurement of the temperature dependence of the resistance, we observed two-step superconducting transition indicating clearly the local suppression of the superconductivity of the superconducting wire. We investigated the effect of the ferromagnet region on the superconducting critical current and found that the variation of the critical current between the samples increased with increasing the ferromagnet area. From the present study, we obtained the new insight on physical mechanisms in the ferromagnet/superconductor bilayer structures.

研究分野：超伝導エレクトロニクス

キーワード：超伝導デバイス 近接効果

1. 研究開始当初の背景

超高感度な磁気センサ、低電力な超伝導論理回路や量子コンピューティング素子など、多様な超伝導デバイスが研究開発されており一部は実用化されている。これらのほぼ全てにおける基本素子が、ジョセフソン接合と呼ばれる超伝導/絶縁体/超伝導 (SIS) 構造である。絶縁体の厚さは数 nm で、この絶縁体をトンネルする超伝導電流は両側の超伝導体の巨視的位相に依存するという性質を示す。超伝導デバイスではこの巨視的位相を制御することで、超微弱な磁場の検出や超高速な論理演算が可能となる。優れたデバイス性能を得るためには、このジョセフソン接合をいかに高精度に制御し高品質に作製できるかが鍵を握るが、ジョセフソン接合は多層構造から構成されるため、その作製に非常に多くのプロセス工程が必要である。また、低電力論理回路の基本構成要素はジョセフソン接合と並列に抵抗を付加する構造をもち、この余分な並列抵抗が集積度の向上を妨げる大きな要因となっている。そのため、今後大規模集積化を目指すには、従来型ジョセフソン素子の代替となる、微細化可能な新しい素子の実現が鍵となる。その中で、磁性/超伝導ハイブリッド素子の新しい展開として、シンプルな構造で微細化・集積化が容易なスピン誘起ウィークリンク (Spin-induced Weak Link; 以下 Spin-WL) 素子の構想に至った。

2. 研究の目的

本研究の目的は、量子コンピュータ素子をはじめとする超伝導デバイスの基本素子として用いられてきたジョセフソン素子に置き換わる、Spin-WL 素子の創出である。Spin-WL 素子は、超伝導ワイヤ上の一部に磁性体を付加した構造を有する。従来のジョセフソン接合に比べ、飛躍的に少ないプロセス工程数で素子を作製できる。しかも構造は極めてシンプルで、従来デバイス応用に必須であった並列抵抗も不要なため、超伝導デバイスの大規模化・高集積化に対しても大きなメリットとなる。本研究では、素子構造や作製プロセス・磁性材料の検討を通じ、新奇な Spin-WL 素子を実現する。最終的には極低温測定によりジョセフソン効果が発現することを実証し、Spin-WL 素子の物理や優位性を明らかにすることを旨とする。

3. 研究の方法

まず Spin-WL 素子の概念図を図 1 に示す。超伝導ワイヤの一部に磁性体を積層した構造をもち、磁性体直下近傍の超伝導体における超伝導性が弱められることで、ウィークリンク (弱結合) 領域が生じる。ウィークリンク領域が従来のジョセフソン素子における絶縁層と同様に機能するため、電気抵抗が生じないジョセフソン電流が素子に流れる。本研究では、作製した超伝導ワイヤの上にリフトオフプロセスを用いて局所的に磁性体を形成する。従来のジョセフソン素子作製プロセスに比べ、少ない工程数で素子を作製でき、しかも複雑な多層構造の形成が不要でデバイス構造が極めてシンプルである。本研究では、磁性体及び超伝導体のサイズや材料を検討し、得られた実験結果を逆近接効果や超伝導体中のスピン拡散の理論で考察することで、磁性体による超伝導性の抑制メカニズムを明らかにする。ジョセフソン効果を実証した後、Spin-WL 素子を用いた超伝導量子干渉計 (SQUID) 構造を作製・評価を行う。

本研究では図 2 に示す 4 ステッププロセスで Spin-WL 素子を作製する。超伝導材料としてはこれまで数々の超伝導素子の実績のある窒化ニオブ (NbN) を用いる。最初に NbN 膜を基板上に成膜した後、4 端子測定パターンをフォトリソグラフィとエッチングにより作製する。次に、磁性体を超伝導体上に局所的に成膜するため、フォトレジストを用いてパターニングを行う。最後に、磁性体を成膜した後リフトオフ法により必要な部分以外を除去して完成となる。デバイス構造に関しては、超伝導膜厚と磁性体膜厚・線幅の関係により、どの程度超伝導性の変化が発生するかを体系的に調べる。磁性材料に関しても、NiFe をはじめ様々な材料を検討する。また、作製素子の超伝導特性を測定するための極低温評価システムの構築も行う。従来の SIS 素子と

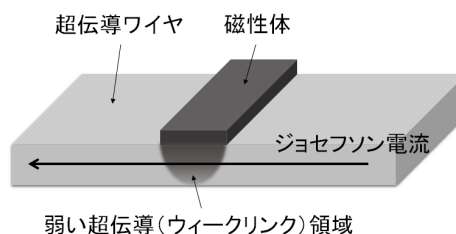


図 1. Spin-WL 素子の概念図。

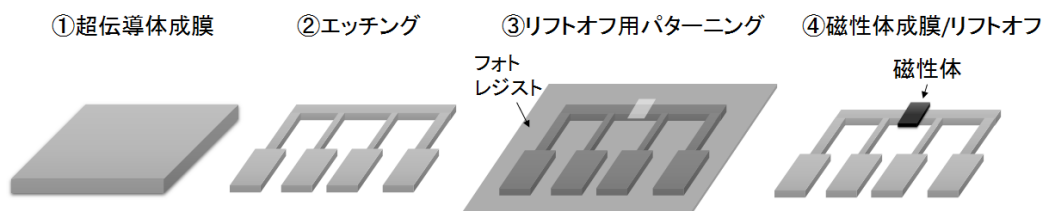


図 2. Spin-WL 素子の 4 ステップ作製プロセス。

異なり Spin-WL 素子は全て金属から構成され、素子を通る電流がジョセフソン臨界電流を超えた際に発生する電圧が小さいことが予想されるため、微小電圧の測定系を立ち上げる。

4. 研究成果

Spin-WL 素子の作製に先立ち、超伝導体 NbN 及び磁性体の成膜条件の探索を行った。NbN に関しては、反応性直流マグネトロンスパッタリングにより窒素雰囲気中で成膜し、放電電流量やガス流量、成膜時圧力を変化させ超伝導特性を評価した。その結果、膜厚 200 nm の超伝導薄膜において良好な超伝導転移温度 14 - 15 K が得られる条件を明らかにした。磁性体についても同様にマグネトロンスパッタリングによる成膜を行い、NiFe, CuNi, Co 等に関して成膜レートを調べ、例として Co の場合には 0.06 nm/秒の膜厚を十分に制御可能な成膜レートを実現した。次に、極低温における微小電圧測定系として、ナノボルトメータを組み入れた測定系及び測定用ソフトウェアの立ち上げも行った。リファレンスとして既存の金属的ジョセフソン接合を用い、液体ヘリウムにより素子を 4.2 K に冷却した状態で、サブ μV の微小電圧を測定可能であることを確認した。

本研究では NbN ワイヤ上に局所的に付加する磁性体材料として、NiFe, CuNi, Co の 3 種類を採用した。素子作製においては図 2 に示した工程を用い(適宜 100 nm 程度の NbN 膜によるボンディングパッドも付加) NbN 膜厚 10 - 20 nm、磁性体膜厚 20 - 200 nm を有する素子を作製した。磁性体のパターニングにはフォトリソグラフィを用いたコンタクト露光もしくはレーザー直接描画によるフォトリソグラフィを用いた。露光条件を最適化した結果、最終的にはリフトオフ法により 1 μm 程度の線幅を有する磁性体の付加が可能となった。そこでまず、予備実験から超伝導性の抑制が示唆されていた NiFe を磁性体として用い Spin-WL 素子 (NiFe 膜厚 200 nm 及び線幅 0.7 - 5 μm) の作製と評価を行った。評価の結果、NbN ワイヤ部のパターン設計や不均一性の問題により予定していた 4 端子測定が困難であったため、2 端子法により 4.2 K におけるワイヤ部の電流-電圧特性を評価した。その結果、NiFe 線幅が 0 (NiFe なし) - 3 μm の範囲では、NbN ワイヤと交差する NiFe 線幅が大きくなるにつれ電圧の飛びが現れる電流値 (臨界電流値を示唆) が減少する傾向が得られたものの、4 μm では増大するなど明確な結論は得られなかった。そこで確実に 4 端子測定が可能となるよう、パターン設計を再検討し素子作製を行った。再設計により作製した素子写真を図 3 に示す。磁性体としては NiFe から、Cu と Ni の組成比により磁性の強さを調整可能な希釈磁性体 CuNi へと変更し、今回は $\text{Cu}_{0.47}\text{Ni}_{0.53}$ ターゲットを用いて素子を作製した。NbN 膜厚はより磁性体の効果が得られやすいことを期待して 10 nm または 15 nm と小さくし、CuNi 膜厚は 20 nm とした。同一基板上に作製した超伝導転移温度評価用素子の測定により、膜厚 15 nm の NbN 膜に関しては転移温度 6.7 K での超伝導転移が観測された。一方で、線幅 2 μm の NbN ワイヤからなる Spin-WL 素子の電流-電圧特性を測定した結果、明瞭なゼロ電圧 (超伝導電流) や CuNi 付加の効果が見られなかった。

以上の実験結果を踏まえ、素子構造・材料を再度検討した。まず NbN に関しては、磁性体による超伝導抑制を特徴付ける物理量 (特性長) として主に 2 つ考えられる。ひとつが磁性体/超伝導体界面からの逆近接効果におけるコヒーレンス長、もうひとつが界面に誘起されるスピン不均衡によるスピン分極が超伝導体内で緩和するスケールを表すスピン拡散長である。従来の報告において Nb では、スピン拡散長は数 10 - 100 nm とコヒーレンス長に対し十分長く、スピン拡散長により弱結合領域が決まることが示唆されている (L. K. Lin *et al.*, Appl. Phys. Lett. 2012)。一方、本研究で用いる NbN では、薄膜におけるコヒーレンス長は 4 - 5 nm 程度、スピン拡散長は 7 - 14 nm 程度との報告があり、Nb に比べてその差は小さいものやはりスピン拡散長が支配的になると考えられる。そこで Spin-WL 素子において確実に超伝導電流が得られ、かつ磁性の効果が現れやすいようスピン拡散長に近い値として、NbN 膜

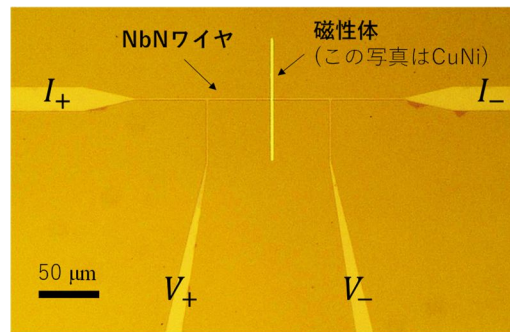


図 3. 作製した Spin-WL 素子の顕微鏡写真。

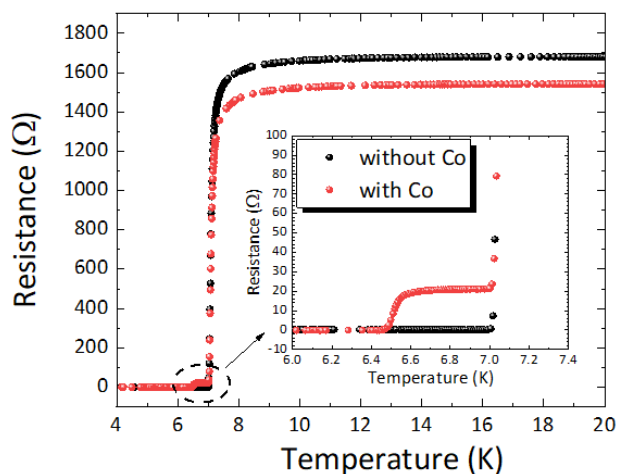


図 4. NbN 上への Co 付加による転移温度低減効果。

厚を 20 nm に設定した。また磁性体材料としては希釈磁性体 CuNi に替えて、より強い磁性を示し単元素で面内均一性にも優れた磁性体である Co (膜厚 50 nm) を採用した。

まず、Co 付加による超伝導性の抑制効果を定量的に評価するため、超伝導転移温度評価用素子に線幅 50 μm の Co を局所的に付加して抵抗-温度特性を評価し、Co なしの素子と比較した。実験結果を図 4 に示す。Co あり/なしの素子ともに、7.1 K 近傍において急激な抵抗減少が生じており、これが素子の超伝導転移温度に対応する。ところが Co を付加した素子においては、図 4 の inset に示すように、抵抗が完全にゼロにはならず、6.5 K 付近まで 21 Ω 程度の有限な残留抵抗が存在し、それ以下の温度で完全にゼロ抵抗となる。この結果は、Co による局所的な超伝導抑制効果を明瞭に示している。残留抵抗値から超伝導が抑制された領域を算出すると 6.8 μm 程度となり、Co 直下の NbN ワイヤの約 14% 程度の範囲で局所的に転移温度が減少していることが明らかとなった。

そこで Co ベースの Spin-WL 素子 (Co なし及び Co 線幅 1.5 - 3 μm) を作製し、構築した測定系により 4 端子法で電流-電圧特性の評価を行った。図 5 に、Co なしの素子と Co 線幅 2.5 μm の典型的な電流-電圧特性を示す。測定した全ての素子に関して同様の特性が得られ、明瞭な超伝導電流の存在と臨界電流を確認した。Co 線幅 2.5 μm 素子以外では、臨界電流値以上で発生する電圧が数 V オーダーとなり、常伝導抵抗として 6 - 12 k Ω の大きな値が得られた。膜の抵抗率から見積もると、長さ 100 μm の NbN ワイヤ全体が常伝導状態へ転移していることを示唆している。一方、図 5 の inset に示すように Co 線幅 2.5 μm 素子については、臨界電流 260 μA を超えるとまず数 μV の微小電圧が発生し、440 μA 以上で他の素子と同様の数 V の大きな電圧が発生する振る舞いが観測された。

図 6 に、臨界電流の Co 線幅に対する依存性を示す。図から分かるように、Co 線幅 1.5 μm 素子については Co なしの素子と比べて臨界電流値が減少した。一方で、Co 線幅 2.0 μm 以上の素子については臨界電流値のばらつきが大きくなる傾向が得られた。各 Co 線幅の素子において、最小の臨界電流値は線幅増大に伴って減少するが、最大の臨界電流値については逆に Co なしの素子よりも大きな値が得られた。当初予測していた線幅増大に伴う臨界電流の単調減少とは異なる結果が得られたため、以下のように考察した。臨界電流値のばらつきの原因として、NbN ワイヤ加工時の不均一性以外に可能性として考えられるのは、Co 付加による超伝導性抑制と磁束ピンニング増大の共存である。本研究では前者に着目してきたが、後者についても CuNi/NbN バイレイヤー構造で報告されているように (N. Marrocco *et al.*, Appl. Phys. Lett. 2010)、磁性体が積層されることで磁束ピンニングが強くなり、スピン拡散効果とは逆に、超伝導ワイヤの臨界電流が増加する可能性が考えられる。加工による不均一性と合わせ、この可能性について今後詳細な検証が必要である。また各素子に対して基板面内方向へ外部磁場を印加したが、磁場による臨界電流の変調は観測されなかった。今後、電子線描画装置による NbN 及び Co パターンの微細化と精度改善も含め Spin-WL 素子の更なる検証を進めていく。一方で、Co による超伝導性の抑制は観測されたことから、図 7 に示すような Spin-WL 型の SQUID 構造の作製・評価を行った。超伝導ループに対し垂直に磁場を印加し臨界電流を測定した結果、SQUID で得られるような変調パターンは観測されなかった。

本研究を通じ、これまで国内外でほとんど報告例のな

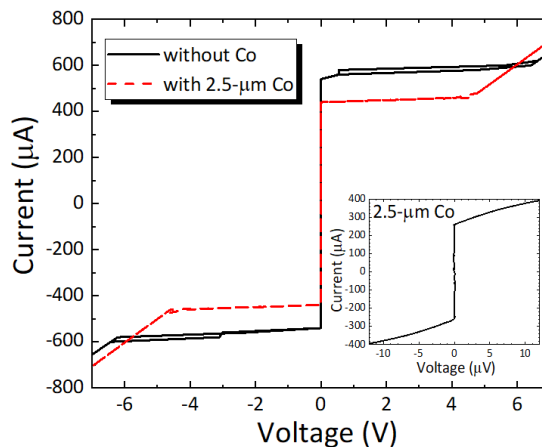


図 5. Spin-WL 素子の電流-電圧特性。

残留抵抗値から超伝導が抑制された領域を算出すると 6.8 μm 程度となり、Co 直下の NbN ワイヤの約 14% 程度の範囲で局所的に転移温度が減少していることが明らかとなった。

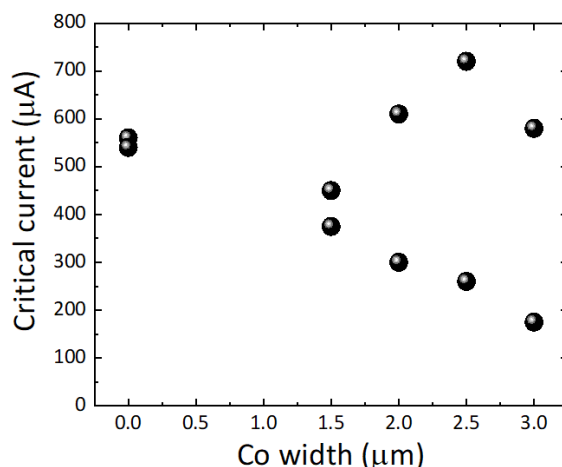


図 6. Spin-WL 素子の臨界電流の Co 線幅依存性。

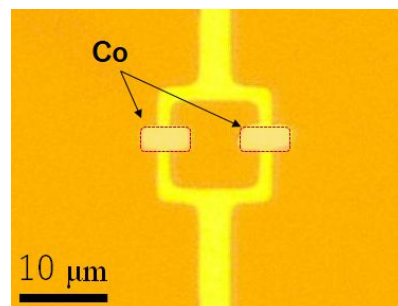


図 7. 作製した Spin-WL 型 SQUID 構造の顕微鏡写真。

かった磁性 / 超伝導ハイブリッド構造をもつ Spin-WL 素子に関する物理的知見が得られた。磁性体 Co 付加による局所的な超伝導抑制効果を明瞭に観測した一方、本命であったジョセフソン効果を示唆する実験結果は得られなかったが、磁性領域増大に対する臨界電流の振る舞い等、当初予見しなかった結果が得られ、その考察を通じて新たなメカニズムの可能性や素子構造に関する知見が得られた。今後の展望として、より微細化した磁性領域及び均一性の高い超伝導ワイヤを有する Spin-WL 素子の作製・評価により原理実証を進め、SQUID を始めとする超伝導デバイスへの実応用・高度化を目指す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 山下太郎
2. 発表標題 強磁性ジョセフソン接合の作製技術と量子デバイス応用
3. 学会等名 電子情報通信学会2020年総合大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中村颯, 加藤悠輝, 田中雅光, 山下太郎, 藤巻朗
2. 発表標題 コバルト障壁層をもつ強磁性ジョセフソン接合の作製と評価
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中村颯, 杉本理駆, Pham Duong, 田中雅光, 山下太郎, 藤巻朗
2. 発表標題 位相シフトに向けたコバルト障壁層をもつ強磁性ジョセフソン接合の作製と評価
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------