

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 8 月 29 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究（S）

研究期間：2008 ～ 2012

課題番号：20221007

研究課題名（和文） 究極のナノスクイッドの開発とデバイス展開

研究課題名（英文） Development of an ultimate SQUID and its device application

研究代表者

高柳 英明 (TAKAYANAGI HIDEAKI)

東京理科大学・総合研究機構・教授

研究者番号：70393725

研究成果の概要（和文）：単一の電子スピンの検出と少数スピン系の時間緩和過程の解明を行うナノスクイッド(nano-SQUID)の形成法を確立した。自己成長 InAs 量子ドットで結合したスクイッドで、 π 接合動作に成功した。これは量子インターフェースへの第一歩である。スクイッドのデバイス展開としては、 Sr_2RuO_4 のジョセフソン接合を用いた非 S 波超伝導による SRO-SQUID を作成し、P 波超伝導内の 3K 相において π SQUID 状態から 0-SQUID 状態の転移が起こることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：Fabrication process of nano-SQUID for a detection of a single spin and the time relaxation process of several spin was confirmed. Using self-assembled InAs-quantum dot coupled SQUID, π -operation of the SQUID succeeded. This is the first step to the quantum interface. About the device application of a SQUID, we fabricated SRO-SQUID of non S-wave SQUID made of Sr_2RuO_4 and confirmed the transition from π -SQUID-State to zero-SQUID-state in the 3K-phase of p-wave superconductor.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
20年度	78500000	23550000	102050000
21年度	51000000	15300000	66300000
22年度	10200000	3060000	13260000
23年度	10200000	3060000	13260000
24年度	10200000	3060000	13260000
総計	160100000	48030000	208130000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・マイクロ・ナノデバイス

キーワード：単量子デバイス、スクイッド、量子ドット、量子コンピューター

1. 研究開始当初の背景

(1) 近年、スピントロニクスと呼ばれるスピンを用いたデバイス研究が盛んになりつつある。一方、ナノファブリケーションの進展で、スピンデバイスの扱うスピン数は飛躍的にへりつつあり、その少数スピンの挙動の解明が重要なテーマとなっていた。

(2) スピンの検出に最も適しているのは、超伝導磁束量子干渉計(SQUID)であるが、こ

れは最も優れた量子ビットのひとつで、その展開が期待されていた。SQUID は更に、p 波超伝導体のような新しい超伝導体を用いて作成され、その超伝導特性解明に貢献しつつあった。

2. 研究の目的

(1) S-I-S SQUID アルミのトンネル接合を用いた微小スクイッドを直接に量子ドット基板や 2 次元電子系基板に作製し、そのルー

プ内に光を照射し励起する電子スピン計測を目指した。SQUID の微小化と計測対象上に SQUID を直接作製することにより局所的な微小磁気モーメント（少数スピン）を計測する計測技術を発展させることも目標とした。究極の目標としては超伝導量子ビットと光による量子ビット間をスピン量子ビットで結合した量子インターフェースとして展開することを目指した。

(2) QD-SQUID

量子ドット(QD)を超伝導体で挟んだ量子ドット超伝導接合はナノチューブやナノワイヤを用いたスクイッドや、自己形成 InAs 量子ドット接合を用いて、量子ドットに現れる近藤効果と超伝導との競合や 0 接合から π 接合への転移など精力的な研究が行われている。本研究では自己形成量子ドットを接合に用いた SQUID を作製し、量子ドットスクイッド(QD-SQUID)の特性を評価し、光励起スピン検出デバイスとしての展開を目指した。自己形成量子ドットはゼロ次元構造を持っているため、量子ドットを接合に用いた SQUID はナノチューブやナノワイヤによる SQUID よりも将来の集積化、デバイス化などに利点があると考えられている。この QD-SQUID は原理的には単一スピンの感度があると考えられたため、超伝導量子ビットと光による量子ビット間をスピン量子ビットで結合した量子インターフェースの有力な候補として研究を行った。

(3) SRO-SQUID(Sr_2RuO_4 -SQUID)

SQUID の量子デバイス展開という観点から、SQUID を用いた非 S 波超伝導体の物性探索を目的とした。具体的には、非 S 波超伝導体と考えられている Ru- Sr_2RuO_4 共晶と従来型超伝導である Nb で超伝導ループを構成したハイブリッドスクイッドを作製しカイラル P 波超伝導体の特徴的な π -SQUID 状態、半整数量子渦状態の SQUID による検出を目指した。カイラル P 波超伝導体の半整数量子状態にはマヨラナ粒子が実現していると考えられ、環境に強いトポロジカル超伝導量子ビットの有力な候補であり、新たな SQUID の量子デバイス展開のために重要な知見を得ることを目指した。

3. 研究の方法

(1) S-I-S SQUID

量子ドット基板の上の最適な場所に直接ナノスクイッドを作製し、スクイッドループの内部のみに光を照射する技術を確立し、光励起したスピン寿命を延ばすことで観測を試みた。光で励起した量子ドット内の励起子の状態はゲート電圧によって操作し、量子ドット内からホールを引き抜き、スピン偏極状態を SQUID で観測可能な時間スケールまで延ば

すことを目指し研究を行った。

(2) QD-SQUID

基板にむき出しの自己形成 InAs 量子ドットに直接超伝導電極を付ける技術を確立し、バックとサイドゲート電圧によって量子ドット接合の電子状態と超伝導電極との結合状態を制御した。また 100nm 程度の大きさである InAs 量子ドットのみに光を照射し、光励起の影響を調べた。

(3) 走査型ナノスクイッドプローブ作製プロセスの確立

磁束検出の空間分解能の向上、少数スピン検出を目指してマッピング可能な走査型 SQUID プローブを開発を実施した。空間分解能の向上のために、測定対象と SQUID プローブ間の距離を最小化する必要がある。そのためにはプローブ先端の直近に高い位置精度で SQUID を作製する必要がある。そこで走査型 SQUID プローブの外形はリソグラフィーによって形状を定め、シリコンの深堀ドライエッチングであるボッシュプロセスにより作製した。少数スピン検出のためには、SQUID のループサイズを最小にすることが必要である。そのために、集束イオンビーム(FIB)による直接加工にて SQUID ループの作製を行った。

作製された走査型 SQUID プローブと、極低温中で動作するピエゾステージを用いた原子間力走査型顕微鏡の機構とを組み合わせ、スピン空間分解システムを開発した。極低温中での動作のため、走査型 SQUID プローブと試料表面との間の測距には水晶振動子を用いた方式を用いた。図 1 にこの方式を用いた空間マッピング法の概略図を示す。

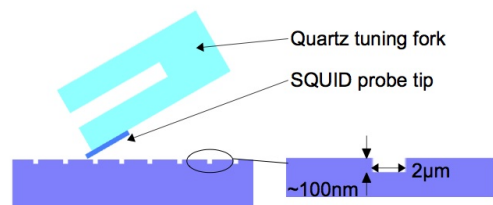


図 1 水晶振動子上にマウントされた走査型 SQUID プローブによる空間マッピング法の概略図。

(4) FIB 加工による nano-SQUID

Nb 膜をベースとし、FIB 加工のみによる簡単化されたプロセスを用いて、Scanning SQUID 探針上を含めた 3 次元形状を有する素子の上に nano-SQUID を作成し、輸送特性の評価を行った。

(5) SRO-SQUID

カイラル超伝導体として知られる Sr_2RuO_4 と通常の S 波超伝導体によって SQUID のループを構成しマイクロメータサイズのハイブリッドスクイッドを構成した。この SQUID の磁

場変調の周期と移送の温度変化を詳細に調べることにより、 Sr_2RuO_4 のカイラル超伝導性に起因した π スクイッド状態や半整数量子渦の実現の有無の検証を行った。

(6) SQUID 上に Sr_2RuO_4 の微小結晶を固定

Sr_2RuO_4 を含む SQUID、あるいは Nb 系 nano-SQUID 上に Sr_2RuO_4 の微小結晶を固定することにより、 Sr_2RuO_4 の内部位相や磁束量子を含めた量子状態の観測を行った。

4. 研究成果

(1) S-I-S SQUID

量子ドット基板や HEMT 基板上に、直接アルミニウムとアルミ酸化膜を用いたトンネル型のスクイッドを安定的に作製するプロセスを構築し、スクイッドの臨界電流を数 nA から数 $10\ \mu\text{A}$ 程度の任意の値になるようにアルミ酸化膜の厚みを制御することに成功した。これは光の量子情報を超伝導側に転写のための超伝導量子ビット作製に必要なプロセスの一部を確立できたといえる。SQUID による光励起スピンについては量子ドット基板上に作製した SQUID を無冷媒希釈冷凍機を用い 1 K から 20 mK の温度領域まで冷却し実験を行い、SQUID ループ内のみに円偏光を照射し光励起スピン計測を行ったが、光による発熱の効果のみが観測された。これは量子ドットに励起された電子スピンの寿命が短いため、この寿命を延ばすために量子ドットの電子状態の制御とその状態を PL 法により確認した。

(2) QD-SQUID

量子ドットスクイッドの臨界電流の磁場変調特性の、バックゲートとサイドゲート電圧による影響を調べ、バックゲート電圧は超伝導電極のフェルミ面と量子ドット中のエネルギー準位の相対位置を変調し、電子数状態を変え、臨界電流の大きさを大きく制御出来ることを示した。またサイドゲート電圧によって量子ドットと超伝導電極間の結合エネルギーを変化させ、これはサイドゲート電圧が量子ドット接合の近藤状態を制御したことになる。このサイドゲート電極による近藤状態の制御により、量子ドットスクイッドを通常の 0-SQUID 状態から自発的超伝導電流の流れる π -SQUID 状態へ転移させることに成功した。詳細な解析により SQUID の 2 つの並列な QD 接合の臨界電流を独立に求めることに成功し、 π スクイッド状態では 2 つの接合のうちのサイドゲート電圧をかけた量子ドット接合が 0 接合状態から π 接合状態に転移しており、負の超伝導電流が流れていることを実証した。この量子ドット接合に 1000 nm から 2000 nm の波長の光を照射し光励起の効果を検証した。QD-SQUID) による光励起スピンの観測に向けた実験については

QD 接合部にのみ光を照射できるようにマスクをつけた SQUID を作製し希釈冷凍機温度において光とマイクロ波照射実験を行った。光の偏光状態による差異は見られず、単一スピンの観測には至っていない。

(3) 走査型ナノ SQUID プローブ

少数電子スピンの直接的な観測のために、走査型ナノ SQUID プローブの研究を行った。ナノスケールでの局所磁気観察用プローブとして、SQUID と測定対象との直接的な磁気カップリングさせる方式に基づき、マッピング可能な走査型 SQUID プローブを開発した。空間分解能の向上のためには、測定対象と SQUID プローブ間の距離を最小化する必要がある。そのため、プローブ先端の直近に高精度に SQUID を作製する必要がある。そこで、走査型 SQUID プローブは、リソグラフィによって形状を定め、シリコンの深堀ドライエッチングにより作製した。 SF_6 によるシリコンのエッチングと、 C_4F_8 によるエッチング面への保護膜の堆積を交互に行い、高いアスペクト比を持った深堀加工が可能となった。図 2 にこのボッシュプロセスにて作製された SQUID プローブの端面の走査型顕微鏡写真と水晶振動子上にマウントされた SQUID プローブの光学顕微鏡写真を示す。この結果、再現性良く多数の走査型 SQUID プローブを一度のプロセスで作製することに成功した。

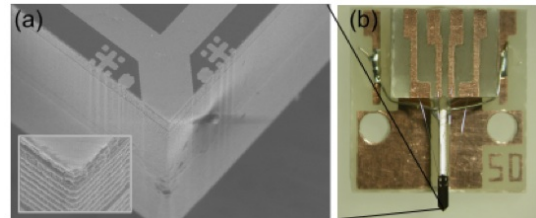


図 2 (a) ボッシュプロセスにて作製された SQUID プローブの端面の走査型顕微鏡写真と (b) 水晶振動子上にマウントされた SQUID プローブの光学顕微鏡写真。

少数スピン検出のためには、SQUID のループサイズを最小にすることが必要であり、FIB による直接加工によって SQUID ループを作製した。FIB 加工は、ナノオーダーの加工が可能であるという長所がある反面、イオン照射により超伝導膜の損傷により超伝導転移温度の増大が生じる。そこで、Nb 薄膜上に Au 保護薄膜を形成した上で、Ar イオンビーム照射による直接加工にて SQUID ループの作製を行った。Au 保護膜の膜厚の最適化により、FIB 照射による損傷を最小に留めつつ微小ループサイズの SQUID の作製に成功した。図 3 に走査プローブ先端に作製された SQUID ループの走査型顕微鏡写真を示す。以上のように作

製された走査型 SQUID プローブの臨界電流 (I_c)-磁場(B)の特性を図4に示す。このように良好の SQUID の超伝導臨界電流 I_c の磁場に対する振動が得られた。

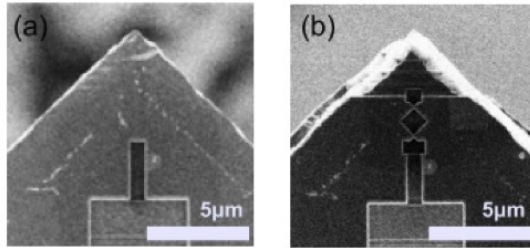


図3 走査プローブ先端に作製された (a)SQUID ループの加工前、(b)加工後の走査型顕微鏡写真。

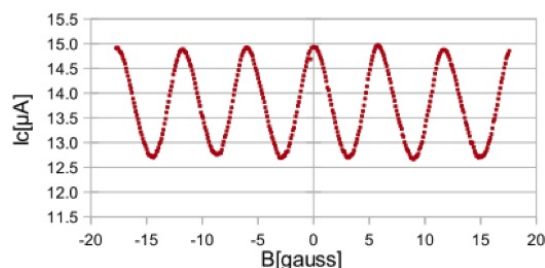


図4 FIBにより作製された走査型 SQUID プローブの I_c -B 特性。

(4) nano-SQUID

Nb 薄膜と FIB を用いて nano-SQUID を作成し、素子形状と SQUID 特性の相関を調べた。ネック部が weak link になる場合には、電流一位相特性が単純な \sin 関係から外れ、変調特性が劣化することが予想される。そのため、ネック部の幅、長さ、角度などをパラメータとして SQUID の変調特性を調べた。その結果、測定に適切と考えられる 100 μ A 程度には、Nb23nm, Au 70nm, スリット幅 80nm 程度で、直線状の切れ込みを持つ形状が、もっとも変調率が高くなった(33%)。またこの SQUID が垂直磁場印加で 1.2T 程度まで SQUID 動作することを確認し、量子ホール状態の測定に利用可能なことを示した。

またこの条件を用いて、通常のプロセスを用いることのできない 3D 形状を有する scanning SQUID 探針の先端に SQUID 加工を行った。

(5) SRO-SQUID

バルクの Sr_2RuO_4 -Ru 共晶と Nb を用いてハイブリッドスクイッドを作製する方法を確立し、 Sr_2RuO_4 -Ru 共晶の超伝導状態の検証を行った。 Sr_2RuO_4 -Ru 共晶の超伝導状態の 3K 相において π -スクイッド、低温の 1.5K 相で 0-スクイッド 状態になること等を示した。この結果は Sr_2RuO_4 の超伝導状態が P 波であることを強く示唆しているが、当初の予想では低温の 1.5K 相で π -スクイッド状態にな

ると考えておりカイラルドメインの存在などを示唆した結果である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 23 件)

- ① S. Kim, R. Ishiguro, M. Kamio, Y. Doda, E. Watanabe, D. Tsuya, K. Shibata, K. Hirakawa & H. Takayanagi, “ π junction transition in InAs self-assembled quantum dot coupled with SQUID”, Appl. Phys. Lett. **98** (2011), 063106/1-063106/3. 査読有り
- ② S. Kashiwaya, “Edge States of Sr_2RuO_4 Detected by In-Plane Tunneling Spectroscopy” Phys. Rev. Lett. 107 (2011), 077003-1-4 査読有り
- ③ T. Matsumoto, S. Kashiwaya, “Fabrication of weak-link Nb-based nano-SQUIDs by FIB process”, Physica C **471** (2011) 1246-1248 査読有り
- ④ K. Tsumura, S. Nomura, T. Akazaki and H. Takayanagi, “Optical imaging of the transport properties of S-Sm-S junctions”, J. Phys. Conf. Series. **150** (2009) 052273/1-052273/4 (2009) 査読有り

[学会発表] (計 52 件)

- (1) Y. Shibata, R. Ishiguro, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, H. Takayanagi, and S. Nomura, “Development of scanning nano-SQUIDs for local magnetic imaging”, Asia-Pacific Workshop on Fundamentals and Applications of Advanced Semiconductor Devices 2012, Naha, Japan, June 28, 2012.
- (2) 矢ヶ部恵弥, 石黒亮輔, “Nb/Ru/ Sr_2RuO_4 超伝導接合をもつ SQUID を用いたカイラル超伝導性の検証” 日本物理学会 第 67 回年次大会 2012/3/26 関西学院大学
- (3) 柏谷聡, “微小 SQUID の開発”, 第 59 回応用物理学関連合講演会 2012/3/18 早稲田大学
- (4) 松野美砂, 石黒亮輔, “Measurement of a local magnet field by alumina tunnel junction SQUIDs for a small sample of p-wave superconductor Sr_2RuO_4 ” 第 59 回応用物理学関連合講演会 2012/3/10 早稲田大学
- (5) 石黒亮輔, “Ru- Sr_2RuO_4 共晶と Nb を用いた SQUID による Sr_2RuO_4 超伝導状態の研究” 第 59 回応用物理学関連合講演会 2012/ 3/10 早稲田大学
- (6) 佐久間大輔, 高柳英明, “dc-SQUID による自己形成 InAs 量子ドット中の光励起電

- 子スピン検出に向けた研究” 第 59 回応用物理学関係連合講演会 2012/3/9 早稲田大学
- (7) R. Ishiguro, “SQUIDs with Nb/Ru/Sr 2 RuO₄ junctions” MANA International symposium 2012 2012/3/2 つくば
- (8) B. Kaviraj and H. Takayanagi, “Effect of optical irradiation in the transport properties of SQUIDS coupled to InAs self-assembled quantum dots” FIRST Project general meeting 2011 2011/12/14 京都
- (9) 石黒亮輔, “超伝導/量子ドット/超伝導接合を用いたSQUIDの研究”, ナノテクノロジー・ネットワーク平成23年度成果報告会 2011/11/8 東工大
- (10) R. Ishiguro, “Dc-SQUIDs with Nb/Ru/Sr 2RuO₄ junctions” International Workshop for Young Researchers on Topological Quantum Phenomena in Condensed Matter with Broken Symmetries 2011/11/3 滋賀
- (11) S. Nomura, “Imaging of Quantum Hall Edge States by Near-field Optical Microscopy”, Quantum Nanostructures and Nanoelectronics 2011 2011/10/3 東京大学
- (12) 矢ヶ部恵弥, 石黒亮輔, “Nb/Ru/Sr2RuO₄ 超伝導接合を用いたマイクロ SQUID の温度特性”, 日本物理学会 2011 年秋季大会 2011/9/21 富山大学
- (13) 金 鮮美, “Quantum interference in InAs self-assembled quantum ring grown by drop let epitaxy” 日本物理学会 2011 年秋季大会 2011/9/20 富山大学
- (14) 石黒亮輔, “Ru-Sr2RuO₄ 共晶と Nb 用いた立体型 nanoSQUID の開発”, 第 72 回応用物理学学会学術講演会 2011 年度秋季大会 2011/8/31 山形大学
- (15) K. Tsumura, “Development of superconducting interference device based on grapheme”, 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26) 2011/8/12 Beijing, China.
- (16) R. Ishiguro, “Fabrication of the SQUID with Nb/Ru/Sr2RuO₄ junction”, 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26) 2011/8/12 Beijing, China
- (17) 石黒亮輔, Nb-Ru-Sr2RuO₄接合を用いた SQUID, 第58回応用物理関係連合講演会 2011年3月26日, 神奈川工科大学
- (18) 柴田祐輔, 宍戸将之, 松本哲朗, 柏谷 聡, 野村晋太郎, 高柳英明, 「局所磁気観察用 2ch-SQUID 測定系の開発」, 応用物理学学会学術講演会. 長崎市, 2010年9月16日
- (19) S. Kim, Side-gate controlled electrical properties of superconducting quantum interference device coupled with self-

- mbled InAs quantum dot: 30th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2010) 2010/7/27 Seoul, Korea
- (20) H. Takayanagi, “SQUID coupled with self-assembled InAs Quantum Dot” Plasma 2010 2010/4/30 Hirosaki University, Japan
- (21) 石黒亮輔, 深川尚義, 神尾充弥, 中島翔, 気谷卓, 金鮮美, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 柴田憲治, 平川一彦, 高柳英明, “自己成長InAs量子ドットを接合に用いた SQUIDの研究”, 日本物理学会第65回年次大会 2010年3月21日 岡山大学
- (22) R. Ishiguro, S. Kim, E. Watanabe, D. Tsuya, K. Shibata, K. Hirakawa, H. Takayanagi, “Quantum Dot Superconducting Quantum Interference Devices with self-assembled InAs”, APS March Meeting, March 18, 2010, Portland, USA.

[図書] (計 2件)

- (1) 高柳英明, 他, オーム社, 基礎からわかるナノデバイス 2011
- (2) 柏谷聡, 他 朝倉書店 超伝導ハンドブック, 2009

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 固有ジョセフソン接合素子,及び,これを用いた量子ビット,超伝導量子干渉素子,テラヘルツ検出器,テラヘルツ発振器,電圧標準装置,ミリ波・サブミリ派受信機,並びに,固有ジョセフソン接合素子の製造方法発明者:

権利者: 独立行政法人産業技術総合研究所

種類: 特許

番号: 特願 2010-105228 号

出願年月日: 2010 年 4 月 30 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

[その他]

6. 研究組織

(1)研究代表者

高柳英明 (TAKAYANAGI HIDEAKI)
東京理科大学・総合研究機構・教授
研究者番号：70393725

(2)研究分担者

野村晋太郎 (NOMURA SHINTAROU)
筑波大学・数理物質科学研究科・准教授
研究者番号：90271527

柏谷聡 (KASHIWAYA SATOSHI)
独立行政法人 産業技術総合研究所・エレクトロニクス研究部門・グループ長
研究者番号：40356770

津村公平 (TSUMURA KOUHEI)
独立行政法人 物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点・ポスドク研究員
研究者番号：70583251

金 鮮美 (KIM SUNMI)
独立行政法人 物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点・ポスドク研究員
研究者番号 90585697

堂田泰史 (DODA YASUFUMI)
独立行政法人 物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点・ポスドク研究員
研究者番号：00511586

KAVIRAJ Bhaskar (KABIRAJI BASHUKARU)
独立行政法人 物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点・ポスドク研究員
研究者番号：00649668

(3)連携研究者

石黒亮輔 (ISHIGURO RYOUSUKE)
東京理科大学・応用物理学科・助教
研究者番号：40433312