

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 6 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06390

研究課題名(和文)2次元超伝導相転移から見た超伝導デバイスの革新的評価方法の開発

研究課題名(英文)Development of an innovative evaluation method for superconducting devices due to phase transition on two-dimensional superconductors

研究代表者

市川 聡夫 (ICHIKAWA, Fusao)

熊本大学・大学院先端科学研究部(理)・教授

研究者番号：30223085

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文): 試料の低次元化に伴い現れる超伝導ゆらぎや超伝導-絶縁体転移(SI転移)の現象が、超伝導デバイスへおよぼす影響を調べるために、Mo系超伝導薄膜であるMoN、MoRu、MoRe、MoRe-N薄膜に対してこれらの現象を調べた。膜厚を変えた試料に対しては、超伝導転移温度と常伝導状態での面抵抗との関係を電子局在のモデルで説明でき、面抵抗と乱れの関係は試料の種類に依存していた。一方、MoN薄膜に対して磁場誘起のSI転移が観測され、縁体側にクーパー対が存在するモデルで予想されるスケーリング則が成り立ち、ホール抵抗の磁場依存性にピークが観測された。膜厚誘起と磁場誘起でメカニズムが異なる可能性がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

極限的な微細加工技術によって実現される超伝導デバイスでは、次元低下に伴って応答速度の低下や雑音増加が起こる。そこで2次元超伝導相転移から得られる諸特性を定量的にデバイスパラメータ化し、デバイスの限界性能を見極める評価方法を開発することが求められる。本研究ではMo系超伝導体であるMoN、MoRu、MoRe、MoRe-N薄膜に対して実験を行った。その結果、元素の種類を変えても諸特性は近い値を示すが、乱れの種類や導入に左右されることがわかった。

研究成果の概要(英文): In order to investigate the effects of superconducting fluctuations and superconducting-insulator transition (SIT) phenomena that occur with the reduction of dimension of samples on superconducting devices, these phenomena were investigated for Mo-based superconducting thin films: MoN, MoRu, MoRe, and MoRe-N. For the relationship between superconducting transition temperature and sheet resistance in the normal state of these films with different thickness, the result is consistent with the electron localization model. The relation between sheet resistance and disorder depends on the material. On the other hand, the field-tuned SI transition was observed for MoN thin films, and all the data collapse onto two separate curves as a function of the scaling variable. Peaks were observed in the magnetic field dependence of the Hall resistance. The mechanism may be different between thickness-tuned SIT and magnetic field-tuned SIT.

研究分野：低温物性物理学

キーワード：超伝導デバイス 超伝導ゆらぎ 超伝導-絶縁体転移 デバイス評価

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 低次元超伝導デバイスで高い注目を集めている超伝導ナノワイヤ単一光子検出器 (SNSPD) は、高検出感度、低暗係数率、広波長帯域等の優れた特徴を持つ。その応用は東京 QKD (Quantum Key Distribution) ネットワークをはじめとする量子鍵配送実験やアメリカ航空宇宙局で提唱されている Lunar Laser Communication (地球-月通信) や深宇宙通信といった通信技術にとどまらず、細胞内の酸素の励起スペクトル信号を SNSPD で検出し、がんを早期発見しようというバイオ・医療分野へも目が向けられ始めている。これらのチャレンジングなテーマの実現には、検出器の更なる高性能化が要求され、世界中で研究開発は熾烈を極めていく。

(2) SNSPD は検出感度を高めるために、超伝導の特徴的長さのコヒーレンス長 ( $\xi$ ) 程度の数十 nm まで微細化されている。それ故、その研究開発は、高度な微細加工プロセスおよび微細化しても超伝導性が劣化しないような材料探索、さらに高品質な薄膜作製等の要素技術に左右される。ナノテクノロジーの進歩や高度な材料分析、原子層堆積法等の新たな技術導入によって、それらの問題は改善され、超伝導検出器は加速度的に高性能化してきた。

(3) しかしながら、微細化による超伝導の低次元化はバルクの超伝導とは異なる“低次元超伝導体で特有な物理現象”が明瞭に発現し、これがデバイス性能を左右しているということが指摘され始めてきた。例えば、超伝導ゆらぎは超伝導転移温度 ( $T_c$ ) より高温側で熱ゆらぎとして超伝導が現れる前駆現象であり、膜厚が  $\xi$  程度以下の超伝導薄膜において顕著である。この熱ゆらぎによって雑音が生じることが指摘されている。また、2016 年ノーベル物理学賞受賞者により示されたように、2 次元超伝導体では Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 転移 (BKT 転移) と呼ばれる相転移現象を示す。これは低次元化によってゆらぎの効果が大きくなり、2 次元超伝導体中に常伝導状態を渦芯にもつ量子渦の対が生成される現象であり、量子渦がバイアス電流によって運動して電圧を生じると、信号とは無関係なノイズを発生させてしまう。更に深刻なことに、この量子渦は薄膜の乱れ度合いで増加していき、ある“臨界点”を超えると電圧が発散的に発生することによって、超伝導性が失われるという理論的考察がある。これは 2 次元超伝導-絶縁体転移 (SI 転移) として現在でも凝縮系物理の未解決な問題の一つである。

### 2. 研究の目的

(1) 2 次元超伝導相転移から得られる諸特性を定量的にデバイスパラメータ化し、超高感度超伝導検出器の限界性能を見極め、材料探索やデバイスの設計および最適構造化の革新的な評価方法を開発することにある。超伝導検出器は、量子通信・量子光学の分野で単一光子検出、量子雑音限界を可能にする一方で、極細線化や超薄膜化されているため、“超伝導ゆらぎ”や“超伝導-絶縁体転移”を示す。これらの現象が超伝導デバイスへ及ぼす影響を定性的にでも評価した例はほとんどなく、定量的な議論は皆無に近い。本研究の実施によって、超伝導デバイスに徹底的な評価指針を与えることができる。

(2) デバイスパラメータを決めている物性パラメータが何かを明らかにし、材料に対するデバイスの性能限界を見極め、新たな材料の探索やデバイス構造の最適化することである。低次元超伝導体で特有な物理現象を解析することにより得られる物性パラメータは、下表に示すようなデバイスパラメータと関係しており、物性パラメータからデバイスパラメータの抽出を行い、材料探索やデバイス設計に向けた新たな評価方法の確立を目指す。

(3) 情報通信や極限的な観測技術でブレークスルーを起こすために新しい超伝導デバイスが期待されている。特に新奇なデバイスにおける材料探索で低次元超伝導体のゆらぎや乱れ効果を定量的に評価することにより、諸特性を正確に予想でき、評価することはその成否を決める鍵となる。本研究では系統的に研究を進めるため、モリブデン (Mo) 系超伝導体に焦点を当て、データを蓄積する。これはデバイスの歩留まり向上や高性能化のみならず、基礎物性の理解にも貢献することができる。さらに本研究により、超伝導デバイスのスケールリングリミットを打破し、マージナルパフォーマンスを実現するための設計指針を与えることができる。

### 3. 研究の方法

#### (1) Mo 系超伝導薄膜の作製と評価

MoN、MoRu、MoRe、MoRe-N 薄膜は DC または RF スパッタリング法で成膜した。MoN 薄膜は Mo ターゲットを、MoRe 薄膜と MoRu 薄膜はそれぞれ Mo75-Ru25wt% および Mo75-Re25wt% 合金のターゲットを用いた。窒素 (N) はスパッタガスに窒素ガスを混合して反応性スパッタリング法で成膜した。スパッタガスにおける窒素分圧を変化させることで Mo/N の組成比等を制御することができる。基板は MgO 単結晶基板、サファイア基板、ガラスなどを用いて、 $T_c$  向上の可能性やデバイス応用を検討する。作製した薄膜は、膜厚、面抵抗 ( $R_{sq}$ )、 $T_c$  等を評価する。

#### (2) 超伝導ゆらぎと SI 転移等の解析

膜厚を変化させて成膜し、電気抵抗や Hall 抵抗の温度依存性等を測定し、超伝導ゆらぎや SI 転移の解析から乱れ誘起の SI 転移の臨界面抵抗 ( $R_c$ ) や弾性散乱時間 ( $\tau$ ) などの物性パラメ

ータを求める。また、印加磁場を変化させて電気抵抗や Hall 抵抗の温度依存性等を測定し、磁場誘起の SI 転移や磁気伝導度から非弾性散乱時間 ( $\tau_{in}$ ) などの物性パラメータを求める。

(3) 超伝導ゆらぎと SI 転移等の解析による物性パラメータの抽出とデバイスパラメータの検討  
デバイス評価に必要とされる最適な条件を検討するために、超伝導揺らぎと SI 転移の系統的な測定と解析を行う。

#### 4. 研究成果

(1) SI 転移における超伝導材料による違いを調べるため、Mo 系超伝導薄膜である MoN、MoRu、MoRe、MoRe-N 薄膜に対して調べてきた。図 1 は MoRe 薄膜における膜厚を変化させた際の  $R_{sq}$  温度  $T$  依存性であり、膜厚誘起の SI 転移が観測されている。いずれの材料においても、 $T_c$  と常伝導状態での面抵抗 ( $R_{sq}^N$ ) との関係を示す Finkel'stein の式 (電子局在理論) [1] と良く一致し、 $R_c$  及び  $\tau$  はどの試料も近い値を示している。図 2 は MoRe 及び MoRe-N 薄膜における結果を示している。

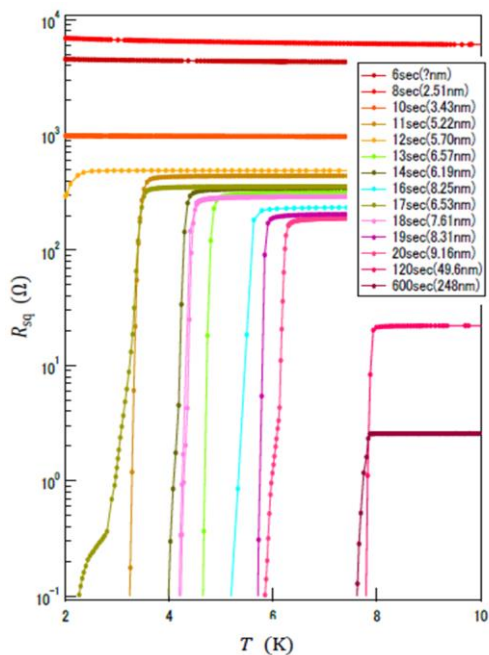


図 1 MoRe 薄膜における膜厚誘起の SI 転移

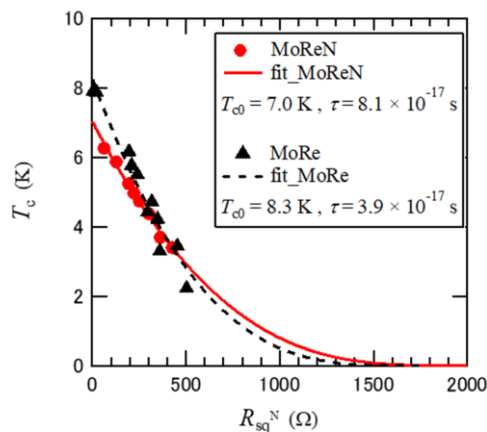


図 2 MoRe 及び MoRe-N 薄膜における  $T_c$  と  $R_{sq}^N$  の依存性。実線は Finkel'stein の式でフィッティングした結果である ( $T_{c0}$  と  $\tau$  はフィッティングパラメータ)

(2) MgO(100) 基板上的の乱れた MoN 薄膜の膜厚や磁場に対する SI 転移を観測した。磁場誘起の SI 転移においてはスケーリング則 (乱れたボゾンモデル) [2] が成り立っている。(1) で用いたモデルとは異なっており、膜厚誘起と磁場誘起でメカニズムが異なる可能性がある。また、 $T_c$  の上下両方の温度領域で、ホール抵抗の磁場依存性にピークが観測された[3]。  $T_c$  以上の温度におけるピークは超伝導ゆらぎによる解析と一致することから、絶縁体側にクーパー対が存在する可能性を示している。

異なる膜厚のいくつかの薄膜に対して臨界磁場  $H_c$  と臨界指数  $z\nu \sim 0.6$  を見積もった。この数値は(2+1)XY モデルに相当する[4]。常伝導状態では超伝導ゆらぎにより、ホール抵抗が磁場に対して極大を持つことが観測された。また、絶縁体側でのホール磁気伝導度は超伝導ゆらぎによるガウシアン近似理論と一致した。これらのことも、クーパー対の存在を支持している。

(3)  $c$  面サファイア基板上的の MoRu 薄膜やガラス基板上的の MoRe 薄膜についても、MoN と同様な SI 転移が観測されている。(図 3 に MoRu 薄膜の磁場誘起の SI 転移を示す。) 特に、RF スパッタにより作製した MoRe 薄膜では、超伝導ゆらぎや膜厚誘起の SI 転移を観測した。磁気伝導度に関する実験結果を 2 次元超伝導ゆら

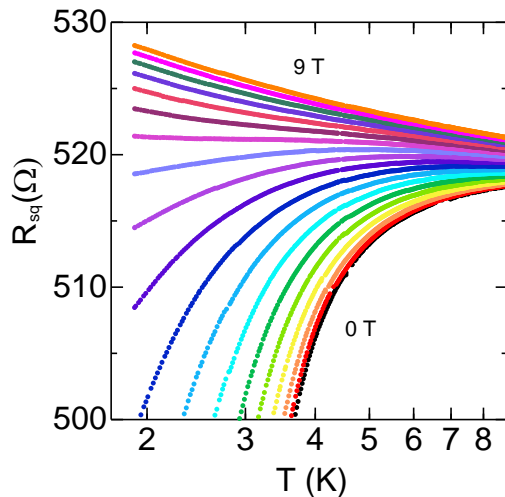


図 3 膜厚 6.0 nm の MoRu 薄膜における磁場誘起の SI 転移

ぎ、弱局在、電子電子相互作用の効果の和として解析した。結果は薄膜の乱れを考慮した最近のシミュレーションの結果と一致した。加えて、この結果を使って窒化ニオブや窒化モリブデンのような超伝導窒化物薄膜のデバイスパラメータと比較した。

(4) 超伝導特性は薄膜の乱れの状態と密接に関係しており、フェルミ波数 ( $k_F$ ) と平均自由行程 ( $l$ ) の積  $k_F l$  の値が目安となる。図4に膜厚を変化させた NbN, MoN, MoRe 薄膜に対する  $T_c/T_{c0}$  の  $k_F l$  依存性を示した。膜厚を薄くすると  $R_{sq}^N$  が増加し  $R_c$  に近づくにつれ  $T_c$  は0に向けて減少する。乱れを表す  $k_F l$  の値は、いずれの薄膜とも、膜厚を薄くするに従い減少し、1に近づくことがわかる。ただし、減少する割合(傾き)は試料の種類によって異なり、材料の特性を示すパラメータとして期待されることがわかった。

(5) RF スパッタ装置で製膜した MoRe 薄膜は X 線回折ではアモルファス状態になっていることが予想される。また、Re は原子番号も大きく乱れを導入する元素としては効果的であることが期待される。しかしながら、 $R_c$  の値は  $1.5k\Omega$  程度とまだ小さく、現在検討している位相すべりデバイスとして利用するには  $R_c$  が量子抵抗である  $6.45k\Omega$  と比較してまだ小さいことから、RF スパッタ時に窒素ガスも導入し、MoRe-N 薄膜を N ガス流量比と成膜時間を調整して作製し、その諸特性を調べた。図5は300 Kにおける  $R_{sq}$  の図6は  $T_c$  の膜厚  $d$  依存性を示す。スパッタ時間に対して系統的に膜厚が変化していない部分もありデータが多少乱れているが、全体的な傾向としては、スパッタ時間が短い、即ち膜厚が小さいほど窒素ガス流量が多いものが  $R_{sq}$  は高く、 $T_c$  は低かった。電子線マイクロアナライザーで調べた組成比では、窒素ガス流量比の増加に伴い Mo:Re の比が減少する結果が得られた。乱れと密接に関係している可能性があり、原因を調べる必要がある。また、 $\tau_{in}$  の  $T_c$  付近での温度依存性が膜厚や窒素ガス流量比に大きく依存しており、電子-電子相互作用や電子-フォノン相互作用等の影響が異なることを示しており、超伝導デバイスのデバイスパラメータを制御する上で重要な指標であることがわかった。図7にはスパッタ時間が18 secの試料に対する  $\tau_{in}$  の  $T/T_c$  依存性を示す。この振る舞いはスパッタ時間にも依存しているので、更なる研究が必要である。

(6) 磁束渦糸の動的効果や試料の形状効果も検討すべく、2層配線構造からなるコルビノディスクとトンネル効果およびホール効果が同一チップ内で測定できるデバイスを設計し、作製した。層間絶縁層として低温 CVD で  $SiO_2$  を成膜することで、試料の熱やスパッタによるダメージを極力低減させた。電気輸送特性の結果から、試料の酸化等によるサンプルの変化がみられており、今後は試料の劣化を防ぐための層間絶縁膜の成膜プロセス最適化が課題である。

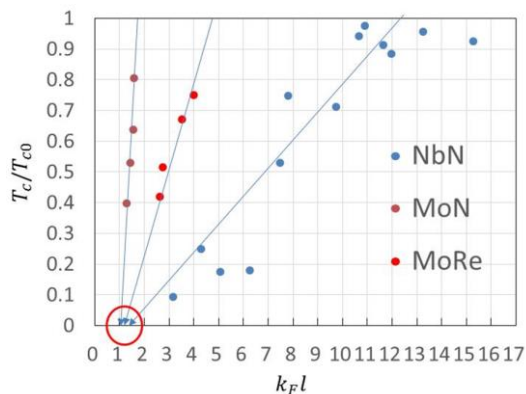


図4 NbN, MoN, MoRe 薄膜における  $T_c/T_{c0}$  の  $k_F l$  依存性

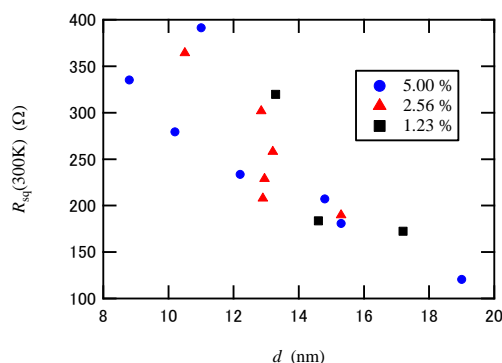


図5 窒素ガス流量比に対する MoRe-N 薄膜における 300 K における  $R_{sq}$  の膜厚  $d$  依存性

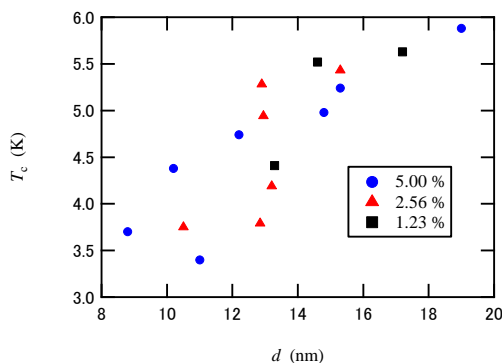


図6 窒素ガス流量比に対する MoRe-N 薄膜における  $T_c$  の膜厚  $d$  依存性

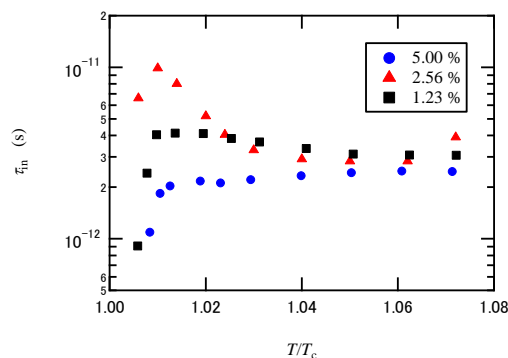


図7 窒素ガス流量比に対する MoRe-N 薄膜における  $\tau_{in}$  の  $T/T_c$  依存性

<引用文献>

- [1] A.M. Finkel'stein, JETP Lett., **45** (1987) 46.
- [2] M.P.A. Fisher, Phys. Rev. Lett., **65** (1990) 923.
- [3] N.P. Breznay and A. Kapitulnik, Phys. Rev. B **88** (2013) 104510.
- [4] Min-Chul Cha and S.M. Girvin, Phys. Rev. B, **49** (1994) 9794.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Makise Kazumasa, Mizokami Yuya, Nogami Tatsuya, Sawada Genki, Asano Takayuki, Shinozaki Bunju, Ichikawa Fusao	4. 巻 5
2. 論文標題 Estimations of superconducting fluctuation effects in amorphous MoRu and MoRe alloy thin films	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materials Research Express	6. 最初と最後の頁 096406 (6p)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2053-1591/aad65c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Makise Kazumasa, Ichikawa Fusao, Asano Takayuki, Shinozaki Bunju	4. 巻 30
2. 論文標題 Field-tuned superconductor-insulator transitions and Hall resistance in thin polycrystalline MoN films	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 065402 (8p)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/aa9e2e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Makise K, Shinozaki B, Ichikawa F	4. 巻 969
2. 論文標題 Superconductor-Insulator transition in sputtered amorphous MoRu and MoRuN thin films	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012026 (6p)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/969/1/012026	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ichikawa F, Makise K, Tsuneoka T, Maeda S, Shinozaki B	4. 巻 969
2. 論文標題 Tc depression and superconductor-insulator transition in molybdenum nitride thin films	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012064 (6p)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/969/1/012064	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 武田寛喜, 澤田元気, 溝上裕也, 牧瀬圭正, 篠崎文重, 市川聡夫
2. 発表標題 MoReN薄膜の作製と評価
3. 学会等名 第125回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 武田寛喜, 澤田元気, 溝上裕也, 牧瀬圭正, 篠崎文重, 市川聡夫
2. 発表標題 MoRe薄膜における超伝導 - 絶縁体転移への窒素の効果
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Fusao Ichikawa, Kazumasa Makise, Genki Sawada, Yuya Mizokami, Sho Maeda, Bunju Shinozaki
2. 発表標題 Superconductor-insulator transitions and Tc dependence of disorder in superconducting Mo alloy thin films
3. 学会等名 The 31st International Symposium on Superconductivity (ISS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 澤田元気, 溝上裕也, 藤野洋平, 野上達也, 前田翔, 牧瀬圭正, 篠崎文重, 市川聡夫
2. 発表標題 MoRe薄膜における超伝導 - 絶縁体転移とゆらぎ
3. 学会等名 日本物理学会2018年度秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 澤田元気, 溝上裕也, 藤野洋平, 野上達也, 前田翔, 牧瀬圭正, 篠崎文重, 市川聡夫
2. 発表標題 超伝導デバイス応用に向けたMoRe 薄膜の作製と評価
3. 学会等名 第124回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 F. Ichikawa, K. Makise, T. Tsuneoka, S. Maeda, B. Shinozaki
2. 発表標題 Tc depression and superconductor-insulator transition in molybdenum nitride thin films
3. 学会等名 The 28th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 K. Makise, B. Shinozaki, F. Ichikawa
2. 発表標題 Superconductor-Insulator transition in sputtered amorphous MoRu and MoRuN thin films
3. 学会等名 The 28th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 溝上裕也
2. 発表標題 超伝導MoNおよびMoRu薄膜における超伝導 - 絶縁体転移と局在効果
3. 学会等名 日本物理学会平成29年度秋季大会
4. 発表年 2017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
研究 分担者	牧瀬 圭正  (MAKISE Kazumasa)  (60363321)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・ 製造領域・主任研究員   (82626)	
研究 分担者	篠崎 文重  (SHINOZAKI Bunju)  (80117126)	九州大学・理学研究院・名誉教授   (17102)	