

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：82108

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K22487

研究課題名（和文）ハーフメタル型Co系ホイスラー合金を用いたスピン三重項ジョセフソン接合の実証

研究課題名（英文）Spin-triplet Josephson junction using half-metallic Co-based Heusler alloy

研究代表者

藤田 裕一（FUJITA, Yuichi）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・ICYS研究員

研究者番号：40874459

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：超伝導古典・量子回路の性能を飛躍的に高める技術として、強磁性ジョセフソン接合（JJ）が注目されている。本研究では、安定かつ均一に機能する強磁性JJの実現に向けて、強磁性体中で長距離伝搬するスピン三重項超伝導に注目した。強磁性JJにおけるスピン三重項超伝導の高効率な生成・伝搬に適した強磁性材料として、強磁性多層構造中でハーフメタル性を発現するCo系ホイスラー合金が有望である可能性を見出した。また、強磁性JJの高品位形成のための超伝導プラットフォームの形成プロセスを開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、安定かつ均一に機能する新規強磁性ジョセフソン接合（JJ）に適した強磁性材料としてCo系ホイスラー合金が有望である可能性を見出し、また強磁性JJの高品位形成のための超伝導プラットフォームの形成プロセスを開発した。これらは、強磁性JJ以外の超伝導回路素子やスピントロニクス素子などの次世代エレクトロニクス技術の研究開発や、強磁性体・超伝導体薄膜の物性研究にも重要な知見をもたらす、学術的かつ社会的に意義が深い研究成果である。

研究成果の概要（英文）：Ferromagnetic Josephson junction (FJJ) has attracted great attention because it can improve performance of superconducting classical/quantum circuits. In this project, to realize FJJs with robust and uniform device properties, I have focused on the long-range spin-triplet supercurrent. I found that the half-metallic Co-based Heusler alloys may be promising ferromagnetic materials for highly efficient generation and propagation of spin-triplet supercurrent in FJJs. Further, I developed a controlled fabrication process to form superconducting platform for realization of high-quality FJJs.

研究分野：スピントロニクス，応用物性

キーワード：ホイスラー合金 ハーフメタル 巨大磁気抵抗効果 超伝導薄膜

1. 研究開始当初の背景

近年、次世代大規模計算機のハードウェア技術の有望な候補である超伝導(SC)ベースのデジタル回路や量子ビットの研究開発が国内外で精力的に進められている。SC ベースのデバイスの高性能化・高集積化を飛躍的に促進させる革新的技術として、強磁性ジョセフソン接合(JJ)が注目されている。これは中間層に強磁性体(FM)層を含んだ JJ であり、中間層で超伝導状態の巨視的波動関数( $\Psi = |\Psi|e^{i\phi}$ )の位相が変化し、両端の SC 層の位相が  $0$  から  $\pi$  にシフトする[図 1(a)]。強磁性 JJ を超伝導回路に展開することで、超伝導量子ビットの高集積化[1]、単一磁束量子(SFQ)論理回路の低消費電力化、およびジョセフソン磁気ランダムアクセスメモリ(JMRAM)の実現[2]などに繋がることが期待されている。

これまで、最もベーシックな SC/FM/SC 構造の強磁性 JJ において、 $0-\pi$  位相シフト[3]や SC 回路への導入[4]が原理的に実証されてきた。さらに、FM 層を 2 層含む強磁性 JJ において、FM 層の磁化配置の制御による  $0-\pi$  位相シフトの ON/OFF の実証とそれを利用した JMRAM セルの動作実証も報告されている[2]。一方、従来の強磁性 JJ は、FM 層で強く減衰するスピナー重項超伝導を介して  $0-\pi$  位相シフトを誘起するため、臨界電流( $I_c$ )や位相シフトが FM 層の膜厚に対して敏感に変化し、特性のばらつきを誘発しやすい。今後、強磁性 JJ を SC 集積回路へ展開するためには、安定かつ均一に機能する強磁性 JJ の構造と材料の探索が重要となる。そこで研究代表者は、FM 層を 3 層以上含むスピナー三重項 JJ[5] [図 1(b)]に注目した。スピナー三重項 JJ では、スピナー重項超伝導よりも極めて長いスピナー三重項超伝導を介して  $0-\pi$  位相シフトを誘起することから、臨界電流( $I_c$ )や位相シフトの均一化に有利であることが期待される。スピナー三重項 JJ による  $0-\pi$  位相シフトの原理実証は報告されているものの[5]、中間層に超格子構造を含む強磁性多層構造が導入されており、層界面でスピナー三重項相関の崩壊(スピナー緩和)を招くという課題が見つかった。したがって、スピナー三重項 JJ の実デバイス応用に向けて、スピナー三重項超伝導の高効率生成と長距離伝搬に適した材料の探索が重要となる。

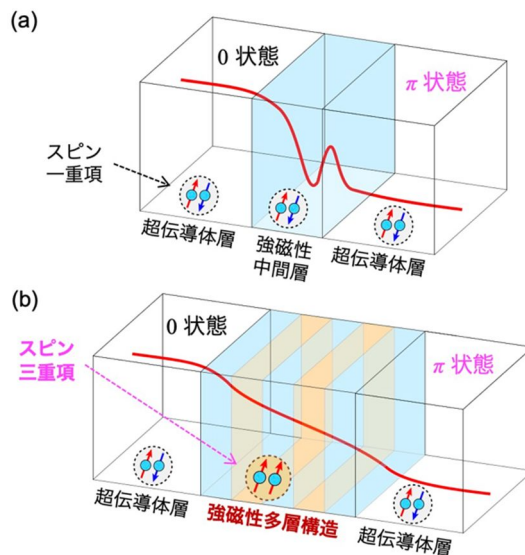


図 1. (a) ベーシックな強磁性 JJ, および(b)スピナー三重項 JJ の概略。

2. 研究の目的

研究代表者は、スピナー三重項超伝導の高効率生成と長距離伝搬に適した材料として、ハーフメタル型 Co 系ホイスラー合金に注目した。ハーフメタルは、理論的に完全スピナー分極(強いスピナー依存伝導の発現)が予想されている FM であり、その特性によりスピナー三重項超伝導の高効率生成[6]や長距離伝搬[7]が実証されている。Co 系ホイスラー合金は、ハーフメタル性を有することが予想されており、高品位薄膜・多層膜の実現やそれらを用いたスピントロニクス素子の高性能化で最も豊富な実績を有する材料である[8]。本研究では、Co 系ホイスラー合金のスピナー三重項 JJ への導入を検討するため、強磁性金属多層構造中におけるハーフメタル性の実験的な検証と、高品位形成のための超伝導プラットフォームのプロセス開発を目標とした。

3. 研究の方法

金属多層構造における Co 系ホイスラー合金層や Co 系ホイスラー合金/金属界面のスピナー依存伝導について詳細に検証するため、エピタキシャル FM/Co 系ホイスラー合金/非磁性体(NM)/Co 系ホイスラー合金/FM 構造の面直通電型巨大磁気抵抗効果(CPP-GMR)素子を独自開発し、Co 系ホイスラー合金のハーフメタル性に起因する強いスピナー依存散乱を実証する。また、超伝導プラットフォーム用 SC 材料として高い臨界温度(~16.5 K)と化学的安定性を有する窒化ニオブ(NbN)を採用し、表面平坦性が極めて高いエピタキシャル NbN 薄膜の成膜プロセスを開発する。

4. 研究成果

(1) Co 系ホイスラー合金/FM 構造を有する新規 CPP-GMR 素子

Co 系ホイスラー合金として、従来構造の CPP-GMR 素子において高磁気抵抗(MR)出力の実証の実績がある  $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$  (CFMS)[9]を採用した。スパッタリング法と成膜後アニール処理を含むプロセスを用いて、エピタキシャル  $\text{CoFe}/\text{CFMS}/\text{Ag}/\text{CFMS}/\text{CoFe}$  新規構造を  $\text{MgO}(001)$  基板上に形成した  $\text{Cr}/\text{Ag}$  バッファ層上に作製した。参照試料として、同様の方法で従来型のエピタ

キシャル CFMS/Ag/CFMS 構造も作製した．試料断面の断面高角度散乱暗視野走査透過電子顕微鏡(HAADF-STEM)像の観察結果から，原子層レベルで平坦かつ急峻な層界面の実現を確認した[図 2(a)]．また，エネルギー分散型 X 線分光(EDS)分析により，各層間の原子拡散もほとんどないことを確認した[図 2(b)]．試料をピラー型の CPP-GMR 素子に微細加工し，MR 測定を行ったところ[図 2(c)]，CoFe/CFMS/Ag/CFMS/CoFe 構造の CPP-GMR 素子において，従来構造の CFMS/Ag/CFMS 構造の場合と比べて明瞭な MR 出力の増大を観測した[図 2(d)]．CFMS/CoFe 界面のスピンの依存伝導に関する理論計算と MR 出力のシミュレーションの結果から，この MR 出力の増大が，CFMS 層のハーフメタル性に起因する CFMS/CoFe 界面の非常に強いスピン依存散乱によるものであることを明らかにした．したがって，Co 系ホイスラー合金は強磁性金属多層構造においてハーフメタル性を発現し，スピン三重項超伝導の高效率生成・長距離伝搬に有望な材料であることが示唆された．

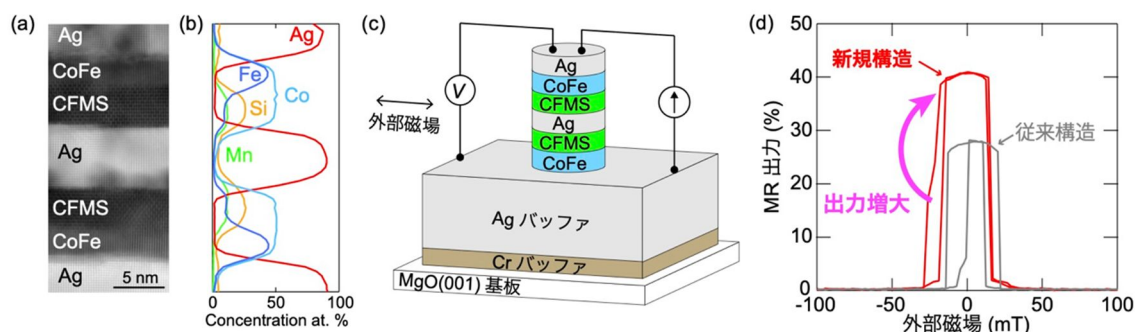


図 2. (a)CoFe/CFMS/Ag/CFMS/CoFe 新規 CPP-GMR 構造の断面 TEM 像，および(b)深さ方向の EDS 濃度分布．(c)ピラー型 CPP-GMR 素子の MR 測定の配置．(d)新規 CPP-GMR 素子における MR 出力の増大．

## (2) 超伝導プラットフォーム用エピタキシャル NbN 薄膜のプロセス開発

NbN は，整合性の良い MgO 基板などの上に容易にエピタキシャル成長させることが可能であるものの，表面の凹凸を抑制するプロセスはほとんど開発されていなかった．そこで，バッファ層と成膜後高温アニール処理を導入し，エピタキシャル NbN 薄膜の表面形態を改善するプロセスを開発した．MgO(001)基板の上に Cr バッファ層を形成し，その上に反応性スパッタリング法によりエピタキシャル NbN 薄膜を形成した．NbN の成膜後，試料を 800 °C でアニールした．作製した NbN 薄膜表面の凹凸を原子間力顕微鏡(AFM)を用いて検証したところ，平均面粗さ( $R_a$ )が  $\sim 1.7$  nm となり，非常に平坦な表面の実現が確認された[図 3(a)]．さらに，表面平坦な NbN 薄膜上に Co 系ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  を成膜した．試料断面の HAADF-STEM 観察により，原子層レベルで急峻かつ平坦な NbN/CFS 界面の実現も確認した[図 3(b)]．したがって，NbN をベースとした表面平坦な超伝導プラットフォームの形成のために，バッファ層と高温アニール処理の導入が極めて有望であることが示唆された．

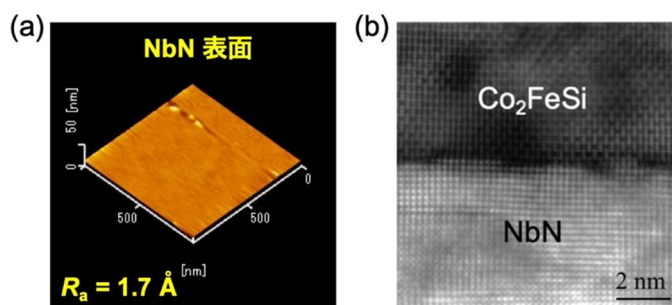


図 3. (a)表面形態が改善されたエピタキシャル NbN 薄膜表面の AFM 像．(b) NbN/Co<sub>2</sub>FeSi 高品位接合界面．

## <引用文献>

- [1] T. Yamashita *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 097001 (2005).
- [2] I. M. Dayton *et al.*, IEEE Magn. Lett. **9**, 3301905 (2018).
- [3] V. V. Ryazanov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 2427 (2001).
- [4] A. K. Feofanov *et al.*, Nat. Phys. **6**, 593 (2010).
- [5] J. A. Glick *et al.*, Sci. Adv. **4**, eaat9457 (2018).
- [6] A. Singh *et al.*, Phys. Rev. X **5**, 021019 (2015).
- [7] R. S. Keizer *et al.*, Nature **439**, 825 (2006).
- [8] K. Elphick *et al.*, Sci. Technol. Adv. Mater. **22**, 236 (2021).
- [9] Y. Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 252408 (2012).

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Yuichi Fujita, Taisuke Sasaki, Yuya Sakuraba	4. 巻 745
2. 論文標題 Fabrication of Co <sub>2</sub> FeSi Heusler-alloy epitaxial film on NbN epilayer with improved surface morphology	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Thin Solid Films	6. 最初と最後の頁 139084-1 ~ -6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.tsf.2022.139084	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 Y. Fujita, Y. Miura, T. Sasaki, T. Nakatani, K. Hono, Y. Sakuraba	4. 巻 104
2. 論文標題 Spin-scattering asymmetry at half-metallic-ferromagnet ferromagnet interface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L140403-1 ~ -6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.L140403	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 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Yuichi Fujita
2. 発表標題 Developing Structures and Materials of Current-Perpendicular-to-Plane Giant Magnetoresistance Devices for Spintronic and Superconducting Electronic Applications
3. 学会等名 The 5th International Union of Materials Research Societies International Conference of Young Researchers on Advanced Materials (IUMRS-ICYRAM 2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Fujita, Y. Miura, T. Sasaki, T. Nakatani, K. Hono, Y. Sakuraba
2. 発表標題 Large spin-scattering asymmetry at half-metallic Co-based Heusler-alloy/ferromagnet interface
3. 学会等名 2022 Joint MMM-INTERMAG (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuichi Fujita, Yoshio Miura, Taisuke Sasaki, Tomoya Nakatani, Kazuhiro Hono, Yuya Sakuraba
2. 発表標題 Large impact of spin-scattering asymmetry at Co <sub>2</sub> Fe <sub>0.4</sub> Mn <sub>0.6</sub> Si/CoFe ferromagnetic interface on current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Fujita, Y. Miura, T. Sasaki, T. Nakatani, K. Hono, Y. Sakuraba
2. 発表標題 Large impact of spin asymmetry at half-metallic Co <sub>2</sub> Fe <sub>0.4</sub> Mn <sub>0.6</sub> Si/CoFe interface on current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance
3. 学会等名 The 32nd Magnetic Recording Conference (TMRC 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 面直通電型巨大磁気抵抗素子及びその製造方法	発明者 藤田 裕一/桜庭 裕弥 /三浦 良雄/佐々木 泰祐/宝野 和博	権利者 物質・材料研究 機構
産業財産権の種類、番号 特許、2021-061205	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 面直通電型巨大磁気抵抗素子及びその製造方法	発明者 藤田 裕一/桜庭 裕弥 /三浦 良雄/佐々木 泰祐/宝野 和博	権利者 物質・材料研究 機構
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2022/008645 (WIPO)	出願年 2022年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------