

機関番号：82626

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2010

課題番号：21710143

研究課題名（和文） nano-SQUID を用いた3次元磁気センサーの開発

研究課題名（英文） The development of the 3D magnetic sensor using the nano-SQUID

研究代表者

松本 哲朗 (MATSUMOTO TETSURO)

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・産総研特別研究員

研究者番号：50450672

研究成果の概要（和文）：3次元磁気センサーに用いることを目的として、極低温（～1K）、および、1T程度の強磁場下において使用可能な nano-SQUID の作製プロセスを開発した。本プロセスでは、nano-SQUID の臨界電流値を制御性良く作製することを可能とした。また、これらの nano-SQUID はヒステリシスのない I-V 特性を示した。本研究で開発した nano-SQUID の作製プロセスは、高い素子設計の自由度を有するので、温度や印加磁場などの外部環境や、測定方法に応じて、それぞれの用途に最適化した nano-SQUID の作製に役立つと考えられる。

研究成果の概要（英文）：We develop a fabrication process of Nb based nano-SQUIDs that can be applied for three dimensional magnetic sensor. The SQUIDs were fabricated using Nb, Nb/W, Nb/Au films and patterned by a conventional lithography and a focused ion beam (FIB) process. The bilayer films were found to be effective to reduce the effects of the self-heating and to avoid the degradation due to the Ga ion diffusion during the FIB process. We succeeded in fabricating bilayer nano-SQUIDs having nonhysteretic I-V characteristics with  $I_c$  down to 30mA at 4.2K.  $I_c$  values could be easily tuned by changing the FIB pattern. Therefore, the present fabrication process has the flexibility to optimize the SQUID design for various measurement environments, such as for high magnetic field (～1T) and for low temperature (0.1K).

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：ナノ SQUID、弱結合、ジョセフソン接合、磁気センサー

## 1. 研究開始当初の背景

超伝導量子干渉素子 (SQUID) は高感度な磁気センサーとして広く知られている。その SQUID において、更なるスピン感度向上を実現するための研究が行われており、スピン感度向上のためには、SQUID の超伝導ループのサイズを小さくすることが有効であることが知られていた。このようなアプローチから、超伝導ループのサイズが  $1\mu\text{m}$  以下と

なる SQUID の研究が行われ、これらの SQUID は nano-SQUID と呼ばれている。

また、申請当時に行われていた nano-SQUID の研究は、1つの nano-SQUID を用いて、被測定物の1次元方向の磁気情報を得るものであった。

## 2. 研究の目的

(1) 高いスピン感度を有し、0.1K程度の

極低温、および、1T 程度の強磁場下において使用可能な nano-SQUID の作製プロセスを確立すること。

(2) 上記 nano-SQUID の作製プロセスを確立した上で、3 つの nano-SQUID を 1 つの基板に作り込んだ 3 次元磁気センサーを実現することが最終的な目標である。

具体的には、基板上に凹部、または、凸部の立体構造 (三角錐や四角錐など) を作製し、その立体構造の異なった面上に、それぞれ独立した 3 つの nano-SQUID を作製する。この構造を有した磁気センサーを作製することにより、各 nano-SQUID は、それぞれ異なった方向の磁気情報を検出することが可能となるため、3 次元の磁気情報を検出可能な磁気センサーとなる。

この 3 次元磁気センサーは、上記 nano-SQUID を用いるため、nm オーダーから数  $\mu\text{m}$  の微細粒子などの非常に微弱で局所的な磁気情報を検出することが可能であると期待される。

### 3. 研究の方法

#### (1) nano-SQUID の作製

nano-SQUID を構成するジョセフソン接合 (JJ) には、Nb 薄膜の一部を局所的に幅を狭くした Dayem bridge 型の JJ を用いることとした。本研究では、ナノスケールの Dayem bridge を用いるので、それをナノブリッジと呼ぶ。また、nano-SQUID を構成する超伝導ループは、JJ と同様に Nb 薄膜により作製されている。上記の nano-SQUID を作製するプロセスは、以下の通りである。

① Nb 単層膜、または Nb/Au および Nb/W の二層膜をスパッタ装置にて成膜する。

② フォトリソグラフィープロセスを用いて、四端子電極のパターニングを行う。

③ 収束イオンビーム (FIB) 加工を用いて、超伝導ループおよび JJ を作製し、nano-SQUID とする。

(2) 上記のプロセスにて作製した nano-SQUID の基礎特性を、4.2K において評価した。電流-電圧 (I-V) 特性、および、臨界電流値 ( $I_c$ ) の印加磁場に対する応答を評価した。

(3) Si 基板上に立体構造を作製するために、水酸化カリウムを用いた Si の異方性エッチングを試みた。

#### 4. 研究成果

本研究では、3 次元磁気センサーを実現することを目的としているが、そのための要素技術を確立するために、前述の測定環境下で動作可能な nano-SQUID の作製プロセスの

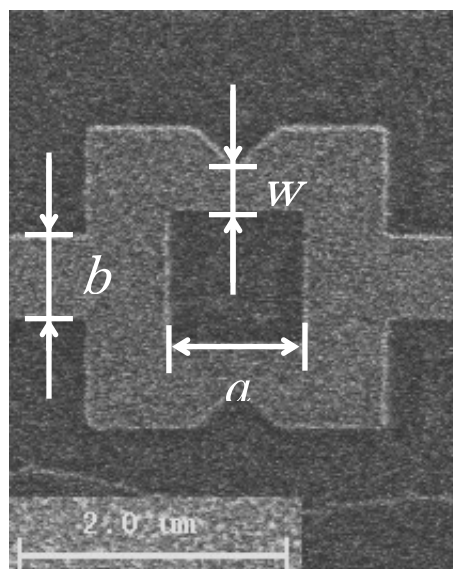


図 1 Nb 薄膜を用いた nano-SQUID の SIM 像

開発を行った。その開発過程で、nano-SQUID が動作する際に生じる熱が問題となり、その発熱を低減するために、nano-SQUID の  $I_c$  を低減する必要があった。 $I_c$  の低減を図り、極低温、および、強磁場中において使用可能な nano-SQUID の作製プロセスを開発したが、本研究の成果である。3 次元磁気センサーの実現には至らなかったが、その内容について以下に示す。

#### (1) Nb 単層膜の nano-SQUID

nano-SQUID を形成するための超伝導材料として Nb の薄膜を選択した。Nb を選択した理由は、nano-SQUID を磁場中において使用することを考慮し、Nb が高い磁場耐性を有しているためである。nano-SQUID の作製方法は、上記研究の方法に示したとおりである。

Nb 単層膜を用いた nano-SQUID の形状を図 1 に示す。フォトリソグラフィープロセスによってパターニングした四端子電極上に、FIB 加工を用いて作製した nano-SQUID を図 1 に示す。nano-SQUID は、Nb 薄膜を微細加工して作製される電極、および、超伝導ループと、その超伝導ループの幅を一部狭くした 2 つの Dayem bridge から構成される。Dayem bridge の幅はナノスケールであるため、以下では、Dayem bridge の事をナノブリッジと呼ぶ。超伝導体のナノブリッジは弱結合型の JJ として振る舞うことが知られており、図 1 に示す素子は、超伝導ループと 2 つの JJ からなる SQUID として機能することが期待される。また、超伝導ループの内径を  $a$ 、電極幅を  $b$ 、ナノブリッジの幅を  $w$ 、Nb 薄膜の膜厚を  $t_{\text{Nb}}$  とする。図 1 に示した nano-SQUID のサイズは、 $a=1\mu\text{m}$ 、 $b=500\text{nm}$ 、 $w=300\text{nm}$ 、 $t_{\text{Nb}}=20\text{nm}$  である。

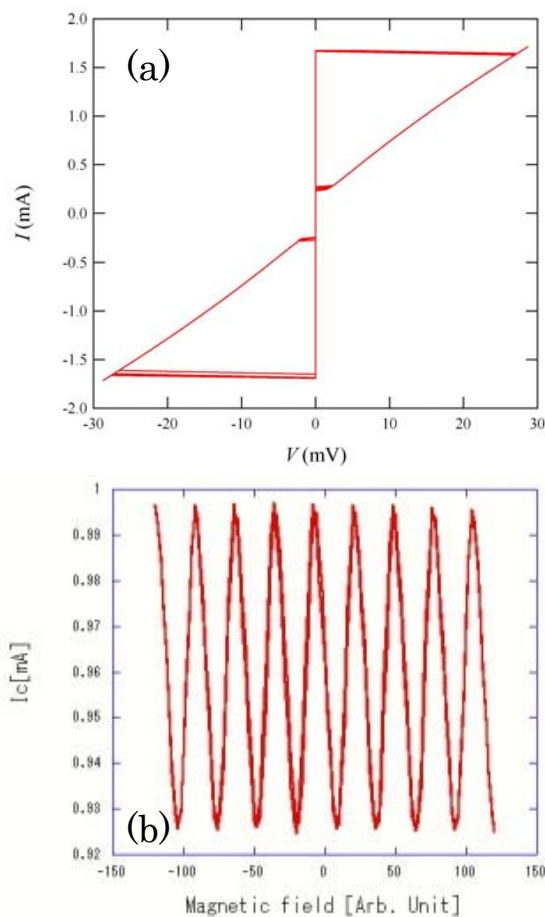


図2 (a) Nb 薄膜を用いた nano-SQUID の I-V 特性, (b)  $I_c$  の磁場依存性

つぎに、このようにして作製した nano-SQUID の I-V 特性と、 $I_c$  の磁場依存性を図 2 に示す。I-V 特性において、大きなヒステリシスが確認できる。このヒステリシスは、nano-SQUID が超伝導状態から常伝導状態に転移した際のジュール熱が原因と考えられ、常伝導転移した状態におけるジュール熱の発熱量は約  $50\mu\text{W}$  である。この大きな発熱は SQUID の動作に対して、次のような弊害を与える。1 つは、nano-SQUID の使用条件として極低温領域を想定しているので、上記のような大きな発熱は、試料および測定系の温度上昇を招く。また、被測定物はナノパーティクルなど微細なものなので、発熱によりダメージを受ける可能性もある。さらに、SQUID の動作方法として一般的な FLL (Flux Locked Loop) 法を用いる場合には、ヒステリシスのない I-V 特性が求められる。以上のような理由から、nano-SQUID の  $I_c$  を低減し、動作時の発熱量が少ない素子が必要とされた。

図 2 (b) に  $I_c$  の磁場依存性を示す。この時の磁場印加方向は、超伝導ループに対して垂直方向である。この図より、 $I_c$  が印加磁場の変化に対して周期的に応答しており、作製した

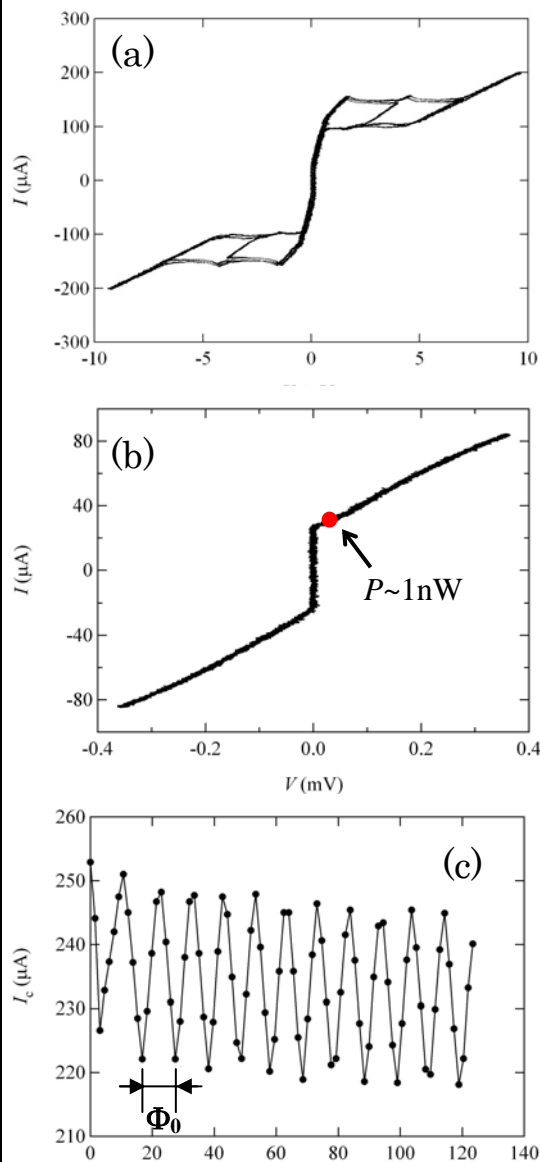


図 3 (a), (b) Nb/W 二層膜を用いた nano-SQUID の I-V 特性, (c)  $I_c$  の印加磁場依存性

nano-SQUID が SQUID として動作していることが確認できた。この nano-SQUID の  $I_c$  の変調率は約 10% であった。

## (2) Nb/常伝導金属の二層膜にて作製した nano-SQUID の発熱の効果

- ・ベースとなる薄膜に、Nb 単層膜ではなく、Nb/常伝導金属の二層膜を用いる。常伝導金属には、Au または W を用いた。
- ・上記 Nb/常伝導金属を成膜する際に、Nb との良好な接触界面を得るために、マルチターゲットのスパッタ装置にて成膜した。
- ・nano-SQUID を構成するナノブリッジの幅  $w$  を微細化した。

・ $t_{\text{Nb}}$  を薄くした。このことにより、Nb の超伝導特性が弱くなり、より小さい  $I_c$  を持つ nano-SQUID を作製することが可能となった。

その結果、得られた nano-SQUID の一例を図 3 に示す。これらの nano-SQUID は、Nb/W の二層膜を用いて作製したもので、サイズは  $a=1\mu\text{m}$ ,  $b=500\text{nm}$ ,  $w=80\text{nm}$ ,  $t_{\text{Nb}}=16\text{nm}$  である。

図 3(a) は I-V 特性を示し、図 3 (b) は図 3 (a) の低バイアス電流領域のみを拡大した図である。この nano-SQUID の  $I_c$  は 4.2K において  $27\mu\text{A}$  であり、その常伝導転移においてヒステリシスがないことが図 3(b) より確認できた。また、図 3 (b) の赤丸で示した点におけるジュール熱の発熱量は約  $1\text{nW}$  であり、図 2(a) に示した nano-SQUID が常伝導転移をした際の発熱量  $50\mu\text{W}$  と比較すると、劇的に小さくなっていることが分かった。

更にバイアス電流を増加していくと、ヒステリシスを伴う電圧の飛びが生じるが、これは nano-SQUID の電極部分が常伝導転移することにより生じるヒステリシスである。

図 3(c) の測定に用いた nano-SQUID は、図 3(a), (b) の測定に用いた nano-SQUID と同一ロット、同一サイズであるが別の素子である。この素子は、4.2K において  $I_c=53.5\mu\text{A}$  と、3(a), (b) の測定に用いた nano-SQUID より大きな  $I_c$  を示した。また、図 3(c) に示す磁場依存性の測定温度は  $2.5\text{K}$  である。そのために、ゼロ磁場において約  $250\mu\text{A}$  と大きな  $I_c$  を示している。図 3(c) の  $I_c$  の印加磁場依存性からは、印加磁場の増加に伴い  $I_c$  が振動する様子が確認できる。この振動周期は約  $11\text{G}$  であり、一辺の長さが  $1.37\mu\text{m}$  の超伝導ループに相当する。実際の超伝導ループは  $a=1\mu\text{m}$  であるが、電極の中心線のサイズを  $a'$  とすると、 $a'=1.5\mu\text{m}$  であり、この値におおよそ対応していると考えられる。また、 $I_c$  の変調率は約  $12\%$  であった。

上記のように、本研究で開発した作製プロセスにより、常伝導転移時の発熱量が小さく、ヒステリシスのない I-V 特性を示す nano-SQUID の作製が可能となった。ナノブリッジの  $I_c$  は温度の低下に伴い、直線的に増大していく傾向を示すが、4.2K において  $I_c\sim 30\mu\text{A}$  の nano-SQUID であれば、1K において  $I_c\sim 250\mu\text{A}$  程度になると見積もっている。本研究では、Nb/Au の二層膜を用いた nano-SQUID において、 $I_c\sim 400\mu\text{A}$  でもヒステリシスが生じないことを確認している。よって、1K 以下の温度領域においても発熱量が小さく、ヒステリシスを示さない nano-SQUID が作製可能であると考えている。

(3) ブリッジ幅の微細化と FIB 加工によるダメージの評価

nano-SQUID が常伝導転移した際の発熱量を低減し、なおかつヒステリシスのない I-V 特性を実現するためには、nano-SQUID の  $I_c$  を低減する必要がある。そのために、ブリッジ幅の微細化を進めていったが、その際に FIB 加工によるダメージが問題となった。FIB 加工は、30kV に加速した  $\text{Ga}^+$  イオンを試料に照射することでエッチングを行う方法であり、FIB 加工にともなうダメージの存在はよく知られていることである。

Nb 薄膜を用いたナノブリッジにおける  $I_c$  の  $w$  依存性を図 4 に示す。赤丸でプロットしたのが Nb 単層膜を用いたナノブリッジの  $I_c$  であり、 $w=200\text{nm}$  において超伝導性を示していないことが確認できる。これは、FIB による加工および観察の際に照射される  $\text{Ga}^+$  イオンが、Nb のナノブリッジの超伝導性にダメージを与えていると考えられる。

そこで、Nb 薄膜の成膜後に、常伝導金属の薄膜を Nb の上に成膜することで二層膜構造として、同様の FIB 加工を行った。常伝導金属層は、Nb 薄膜の上面から照射される  $\text{Ga}^+$  イオンから、Nb 薄膜を保護するための保護層である。この保護層に Au (膜厚、 $t_{\text{Au}}=70\text{nm}$ ) を用いた場合の  $I_c$  が図 4 において青丸でプロットしたものである。Nb 単層膜の場合と比較して、 $w$  を狭くしても明らかに Nb の超伝導性が保たれていることが確認できる。なお、図 4 において Au の保護膜を用いた場合でも、 $w=100\text{nm}$  では超伝導性を失っている。これは、ブリッジ加工時に、試料側面から Nb に拡散する  $\text{Ga}^+$  イオンに起因するダメージであり、 $\text{Ga}^+$  イオンのエネルギーが高いことから、FIB 加工では避けがたいことである。しかし、FIB 加工の加工手順を最適化し、また、加工精度を向上させることにより、現在では  $w=70\text{nm}$  の nano-SQUID においても超伝導性が確認でき

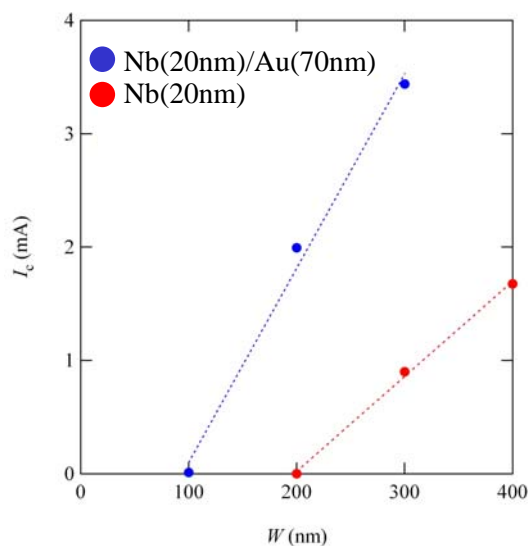


図 4 Nb 薄膜を用いたナノブリッジにおける  $I_c$  の  $w$  依存性

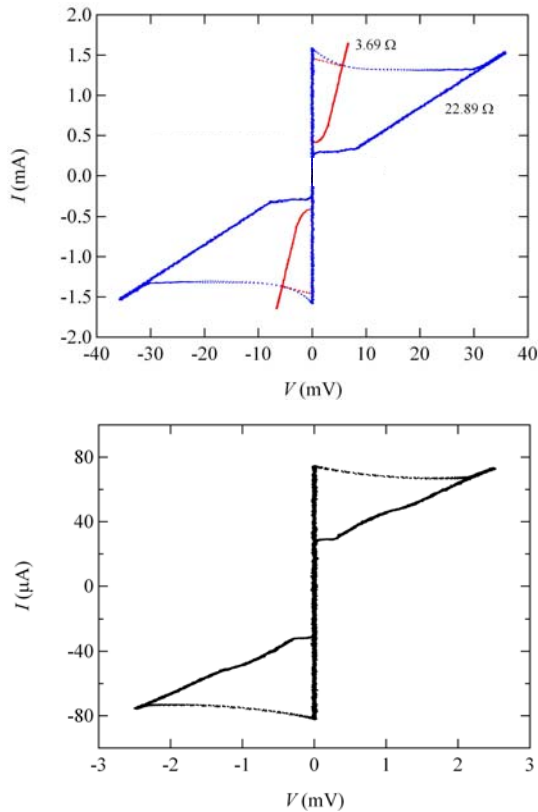


図5 (a) Nb/Auを用いた nano-SQUID, (b) Auを除去した nano-SQUID の I-V 特性

ている。本研究のFIB加工プロセスにおいて、側面から侵入するGa<sup>+</sup>イオンによるダメージ幅は、約25nmとの結果が得られる。ナノブリッジには両側面からGa<sup>+</sup>イオンが侵入するため、幅約50nm分のNb膜は超伝導性を失っていると考えられる。

また、ここでは常伝導金属の保護層としてAuの場合を示したが、Wも保護層として有効に働くことを確認している。

#### (4) 常伝導金属による合成抵抗および近接効果の影響

本研究で得られた結果より、常伝導金属はnano-SQUID(ナノブリッジ)に対して、複数の効果をもたらしていることが分かった。その中で、以下の効果について本項では述べる。

① nano-SQUIDを構成するJJに対して、並列に接続されたシャント抵抗となるので、JJが常伝導状態に転移した際の合成抵抗値を小さくし、その結果、生じるジュール熱を低減する。

② 近接効果によりNbの超伝導性を弱める働きがあり、超伝導転移温度( $T_c$ )、および、 $I_c$ の双方を低減させる。

常伝導金属の効果を検証するために、Nb/Auの二層膜を用いてnano-SQUIDを作製し、

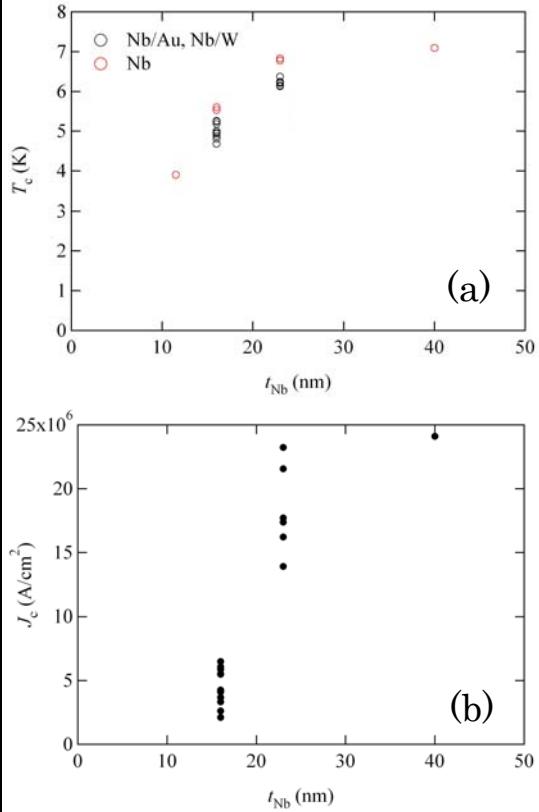


図6 (a) Nb薄膜における $T_c$ の膜厚依存性、(b)  $J_c$ の膜厚依存性

その後、Au膜を除去した場合のI-V特性を図5(a)に示す。赤線はNb/Au(40/70nm)の二層膜を用いた $w=150\text{nm}$ のnano-SQUIDのI-V特性を示している。青線は、上記nano-SQUIDからAu(70nm)を除去した後に測定したI-V特性である。

Nb/Au二層膜nano-SQUIDと、Auを除去したNb単層膜nano-SQUIDのそれぞれについて、常伝導転移後の傾きから抵抗値を見積もると、それぞれ $3.7\Omega$ と $22.9\Omega$ となる。このことは、AuがNbと並列に存在していることにより、合成抵抗値を減少させていると考えられる。

一方、 $I_c$ はNb/Au二層膜nano-SQUIDの $1.47\text{mA}$ に対して、Auを除去したNb単層膜nano-SQUIDでは $1.58\text{mA}$ と $0.11\text{mA}$ の上昇を示した。また、Auを除去することにより $T_c$ が上昇することも確認した。この結果は、Nbの超伝導性がAuによる近接効果により弱められていることを示している。

また、図5(a)に示したNb単層膜のnano-SQUIDを陽極酸化することによって、 $I_c$ を低減したnano-SQUIDのI-V特性を図5(b)に示す。このnano-SQUIDの $I_c$ は約 $80\mu\text{A}$ であり、小さな $I_c$ を示すが、明確なヒステリシスが存在した。また、常伝導転移後の抵抗値は $46.0\Omega$ と大きく、その時のジュール熱は約 $160\text{nW}$ である。このことから、Nb単層膜を用

いて  $I_c$  を小さくするだけでは、nano-SQUID からの発熱を十分に排熱することが出来ずに、nano-SQUID の加熱を防ぐことができないことが分かった。

(5) Nb の超伝導特性の膜厚依存性

ナノブリッジの  $w$  を微細化することにより、JJ の断面積が減少し、 $I_c$  が減少することは前に述べた。一方、 $t_{Nb}$  を薄くすることによっても、JJ の断面積を小さくすることが可能であり、 $I_c$  を低減することができる。

そこで、 $T_c$  の膜厚依存性を図 6(a) に、臨界電流密度 ( $J_c$ ) の膜厚依存性を図 6(b) に、それぞれ示す。 $T_c$  および  $J_c$  が膜厚の薄い領域 ( $10\text{nm} < t_{Nb} < 30\text{nm}$ ) において強い膜厚依存性を示すことにより、Nb の超伝導特性が膜厚に大きく依存していることが確認できた。

このことは、 $t_{Nb}$  を 10nm から 30nm の領域において任意に選ぶことにより、Nb の超伝導特性を制御することが可能なことを意味している。

まとめ

3次元磁気センサーに用いる nano-SQUID として、極低温、および、強磁場下において使用可能な発熱量の少ない nano-SQUID の作製プロセスを開発した。被測定物を測定する際の温度や印加磁場といった環境は、被測定物に応じて最適な領域が異なる。また、使用する測定系に応じて、測定しやすい  $I_c$  の値も変化すると考えられる。本研究で開発した作製プロセスでは、4.2K において  $I_c > 30\mu\text{A}$  の nano-SQUID は任意に作製可能である。また、更に  $I_c$  の小さな nano-SQUID も、 $t_{Nb}$  を最適化することにより作製可能と考えている。本研究で開発した nano-SQUID の作製プロセスは、設計の自由度が高いため、それぞれの用途に特化した nano-SQUID の作製に役立つと考えている。

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 1 件)

① 松本哲朗、柏谷裕美、柴田肇、高柳英明、野村晋太郎、柏谷聡、Fabrication of Weak-link Nb-based nanoSQUIDs by FIB process、Physica C、査読有、発表予定

[学会発表] (計 3 件)

① 松本哲朗、WEAK-LINK Nb BASED NANOSQUIDS FABRICATED BY FIB PROCESS、ISS2011、2010年11月03日、つくば

② 松本哲朗、Nb nanoSQUID の  $I_c$  低減に向けてのアプローチ、応用物理学会、

2010年03月19日、東海大学

③ 松本哲朗、Nb 薄膜を用いた nanoSQUID の作製と特性評価、応用物理学会、2009年09月08日、富山大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松本 哲朗 (MATSUMOTO TETSURO)

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・産総研特別研究員

研究者番号：50450672