

## 磁性ナノ粒子薄膜を形成した SQUID の閾値特性と共振ステップ

伊藤 大<sup>†</sup> 奥村 崇之<sup>†</sup> 谷口 壮耶<sup>†</sup> 赤池 宏之<sup>†</sup> 藤巻 朗<sup>†</sup><sup>†</sup>名古屋大学大学院量子工学専攻 〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町E-mail: <sup>†</sup> irreg@super.nuqe.nagoya-u.ac.jp

**あらまし** 本誌では、磁性ナノ粒子膜を形成した SQUID のインダクタンス変化のナノ粒子膜厚依存性及び共振ステップについて述べる。磁性ナノ粒子膜は、平均粒径 5nm の Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 磁性ナノ粒子溶液の溶媒を蒸発させることにより形成した。SQUID は、インダクタンス評価用としてワッシャー型を、共振ステップ評価用として縦型を用いた。磁性ナノ粒子膜の膜厚効果を調べたところ、膜厚に比例するインダクタンスの増加があり、最大で 19.7% の増加率を得た。また、共振ステップの変化を調べたところ、SQUID の LC 積 (SQUID インダクタンス  $L$ 、SQUID 等価接合容量  $C$ ) が最大 163% 増加していることが分かった。

**キーワード** 磁性ナノ粒子, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, SQUID, インダクタンス, LC 積

## Threshold characteristics and resonance steps of SQUIDs with magnetic nanoparticle films

Hiroshi ITO<sup>†</sup> Takayuki OKUMURA<sup>†</sup> Soya TANIGUCHI<sup>†</sup> Hiroyuki AKAIKE<sup>†</sup> and Akira Fujimaki<sup>†</sup><sup>†</sup> Department of Quantum Engineering, Nagoya University Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Aichi, 464-8603 JapanE-mail: <sup>†</sup> irreg@super.nuqe.nagoya-u.ac.jp

**Abstract** We present dependence of SQUID inductance variation on nanoparticle film thickness and SQUID resonant steps for SQUIDs with magnetic nanoparticle films. The magnetic nanoparticle films were formed by evaporating the solvent of magnetic nanoparticle solutions where Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles with an average size of 5nm were dispersed. Washer type and vertical type SQUIDs were used for inductance evaluation and resonant step measurement, respectively. Experimental results showed that SQUID inductance increased with the thickness of nanoparticle films, becoming as high as 19.7 %. We also found that the LC product of SQUIDs was increased up to 163 % by preparing nanoparticle films in measurement of resonance steps of SQUID, where  $L$  and  $C$  are SQUID inductance and equivalent capacitance, respectively.

**Keyword** Magnetic nanoparticle, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, SQUID, inductance, LC product

## 1. はじめに

単一磁束量子(SFQ)回路は、数 100GHz の高速動作性と半導体に比べ 1/1000 の低消費電力性を特徴に持つ、次世代の集積回路として注目されている。しかし、SFQ 回路のさらなる高性能化・高機能化に向けて、様々な課題がある。その一つが、微細化上の課題である。超伝導マイクロストリップ線路では、微細化を行うとフリンジ効果が大きくなり、シートインダクタンスが低下してしまう[1]。従って、回路を構成する論理セルの線幅に対する縮小率が鈍化し、集積度の向上が難しくなる。また、同様に、小さな面積での大きな相互インダクタンスの実現が困難になってくる。これは、大規模化に必要なカレントリサイクル技術を始めとする相互インダクタンスを用いる回路の小型化を難しくする[2]。そのため、磁氣的インダクタンス成分の増加や高

磁気結合係数の実現が重要である。微細化以外の観点からの課題は、SFQ 回路に適した大容量メモリが存在していないことである[3]。このメモリは、SFQ 回路の高機能化、あるいは、SFQ 回路の応用範囲を拡大するためには不可欠な回路・機能である。

これらの課題を解決するために、我々は磁性体材料の導入を検討している。磁性体の特徴である高透磁率に着目すると、自己・相互インダクタンスの増加、高効率のモートが実現可能であり、磁気ヒステリシスに着目すると、大容量メモリが実現できる可能性があるからである。

我々は、検討の第一段階として、プロセス的に導入が比較的容易な磁性ナノ粒子に着目した。既存の超伝導デバイス上にリフトオフプロセス等を用いてナノ粒子パターンを形成することができるため、各種真空装置のチャンバーが磁性材料によって汚染されることを

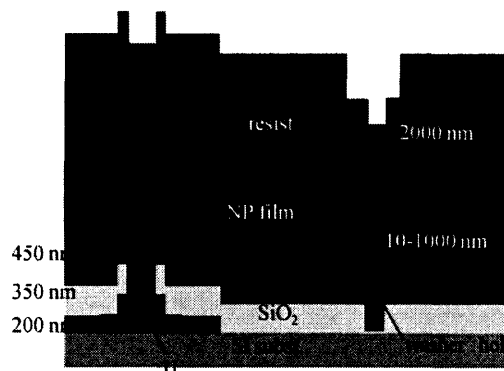
回避できること、及び、磁性ナノ粒子の粒径や材料を変えることにより磁気特性を容易に変化させることが可能なためである。実際、後者に関しては、磁性ナノ粒子は粒径を小さくすると超常磁性となり、磁化曲線のヒステリシスがなくなることが知られている[4]。

これまでに、我々は、ワッシャー型超伝導量子干渉計 (SQUID) を用いて、SQUID 上に形成した磁性ナノ粒子膜の影響について評価してきた[5]。これは、SQUID の閾値特性 (臨界電流 ( $I_c$ ) のワッシャーに与える SQUID 制御電流 ( $I_{ctl}$ ) 依存性、 $I_c$ - $I_{ctl}$  特性) を用いて評価したものであり、磁性ナノ粒子膜の低周波応答に対応する。インダクタンス変化量の粒径依存性を 5nm 及び 50nm の  $Fe_3O_4$  ナノ粒子を用いて調べたところ、粒径依存性が見られ、5nm のものにおいて 10% 以上の大きなインダクタンス変化が得られることが分かった。しかし、ナノ粒子膜の膜厚の効果や、高周波応答に関する評価は行っておらず、SFQ 回路への応用を考慮すると、これらの知見は必須のものと考えられる。そこで、今回、ナノ粒子膜の膜厚を変化させた時の磁気効果及び高周波応答に関して、評価を行った。膜厚依存性に関しては、従来と同じワッシャー型 SQUID を用い  $I_c$ - $I_{ctl}$  特性から、また、高周波応答は縦型 SQUID を用い SQUID 共振ステップを観測することにより評価した。

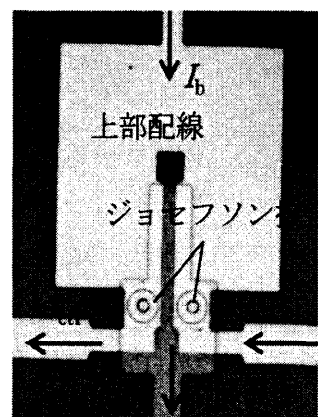
## 2. 実験方法

まず、磁性ナノ粒子膜の作成方法について述べる。磁性ナノ粒子はトルエン中に分散させた平均粒径が 5nm の  $Fe_3O_4$  であり、市販のものを用いた。磁性ナノ粒子のトルエン中での濃度は、5mg/ml であった。この磁性ナノ粒子溶液を、リフトオフ用レジスタパターンが形成された SQUID チップ上に滴下後、ホットプレート上で  $135^\circ C$ 、10min ベイクを行った。このベイクにより、トルエンを蒸発、ナノ粒子膜を形成した。ナノ粒子膜のパターニングは、上記レジスタをリフトオフすることにより行った。その後、ナノ粒子パターン保護用のフォトレジスタを塗布し、ホットプレート上で  $135^\circ C$ 、10min ベイクを行った。

次に評価用 SQUID について述べる。インダクタンス増加率の膜厚依存性についてはワッシャー型 SQUID を、共振ステップの変化については縦型 SQUID を用いた。SQUID の断面構造図 (磁性ナノ粒子膜付) 及びワッシャー型及び縦型 SQUID の顕微鏡写真 (磁性ナノ粒子膜なし) を図 1(a),(b) 及び図 2(a),(b) に示す。ともに Nb/ $AlO_x$ /Nb プロセスで作製されている。なお、図中では磁性ナノ粒子膜を NP film と記してある。



(a)



(b)

図 1 ワッシャー型 SQUID の断面図(a)と顕微鏡写真(b)

次に評価方法について述べる。インダクタンスについては、SQUID に図 1(b),2(b)で示すような制御電流  $I_{ctl}$  を流すことにより、評価する。SQUID のインダクタンス  $L$  は以下のような式で与えられる。

$$L = \frac{\Phi_0}{\Delta I_{ctl}}$$

ここで、 $\Phi_0$  は磁束量子であり、 $2.07 \times 10^{-15}$  Wb である。図 3 に SQUID の  $I_c$ - $I_{ctl}$  依存性の例を示す。

X 軸が  $I_{ctl}$ 、Y 軸が  $I_c$  である。図 3 に示す  $\Delta I_{ctl}$  を読み取ることによりインダクタンス  $L$  を評価する。

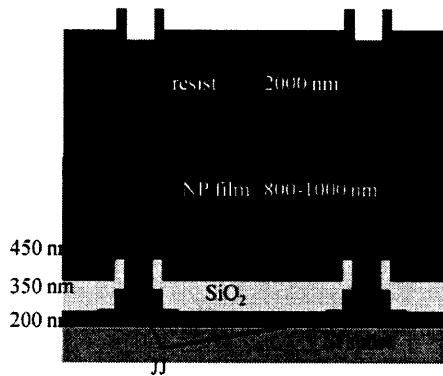
共振ステップについては、図 4 における SQUID の接合容量  $C_j$  及び SQUID インダクタンス  $L$  が共振することにより、ステップ電圧  $V_r$  が現れる。これらの関係は次のような式で与えられる。

$$V_r = \frac{1}{\sqrt{0.5LC_j}}$$

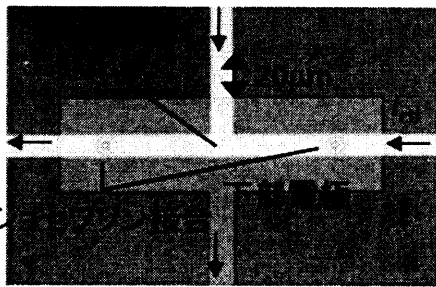
従って、共振ステップ電圧  $V_r$  を読み取ることにより  $LC_j$  積を評価することが可能となる。図 5 に SQUID の電流-電圧 ( $I$ - $V$ ) 特性に現れた共振ステップの例を示す。これは、通常数 10GHz 以上の共振周波数における

特性を示しているため、磁性ナノ粒子薄膜の高周波応答とみなすことができる。

以上のように、磁性ナノ粒子膜形成前後での SQUID インダクタンスと  $LC_j$  積の変化を測定し、磁性ナノ粒子膜厚に対するインダクタンス変化及び、磁性ナノ粒子膜が SQUID の高周波特性に与える影響を評価した。



(a)



(b)

図 2 縦型 SQUID の断面図(a)と顕微鏡写真(b)

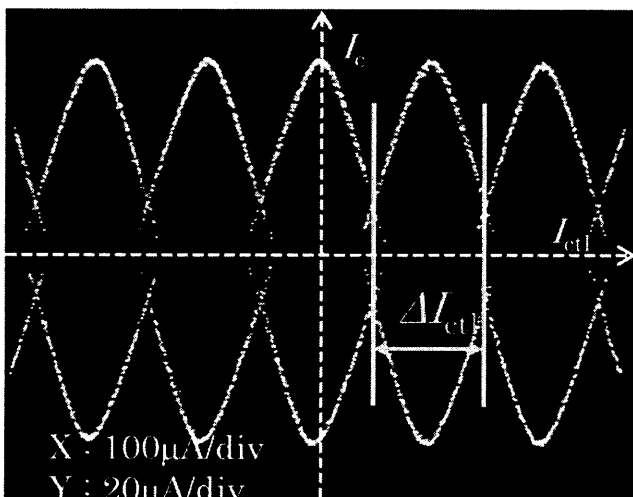


図 3 SQUID の  $I_c$ - $I_{ctl}$  特性

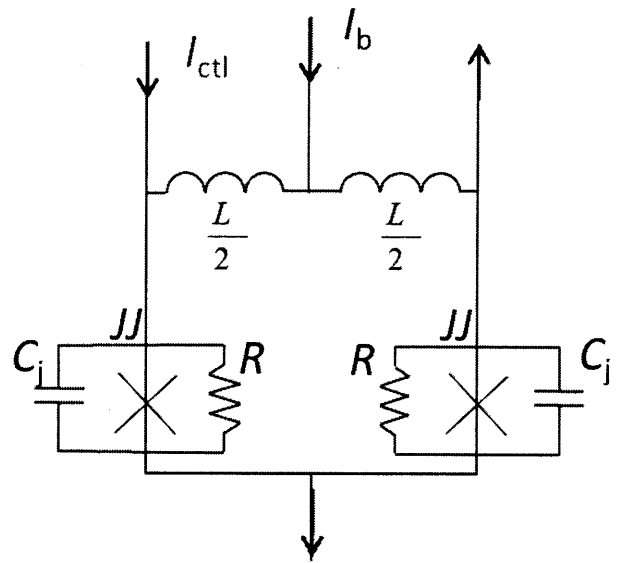


図 4 SQUID の等価回路

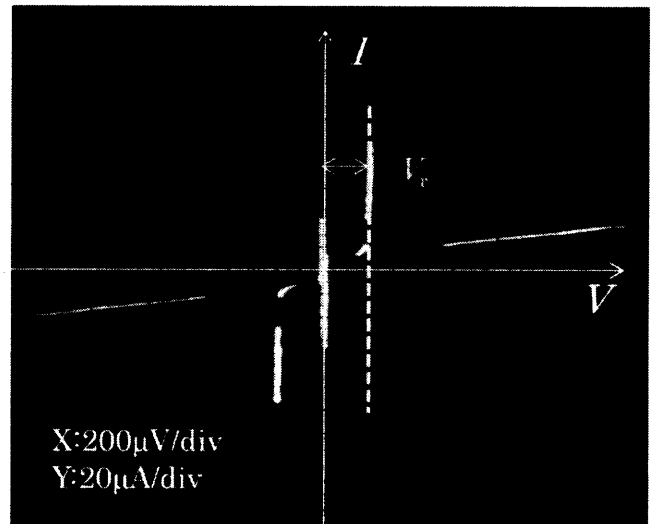


図 5 SQUID の  $IV$  特性における共振ステップ

### 3. 実験結果及び考察

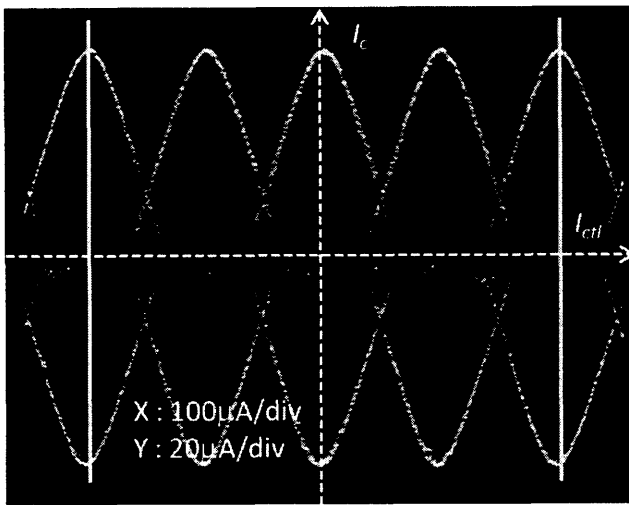
#### 3.1. ナノ粒子膜厚の効果

まず、SQUID インダクタンスの増加率とナノ粒子膜厚との関係を調べた。評価用 SQUID として図 1 のワッシャー型を用いた。また、ナノ粒子膜はチップ中心部に配置された複数個の SQUID を十分余裕をもって全体を被覆するように形成した。膜厚については、形成されたナノ粒子膜周辺の段差部を測定して、その値を決定した。

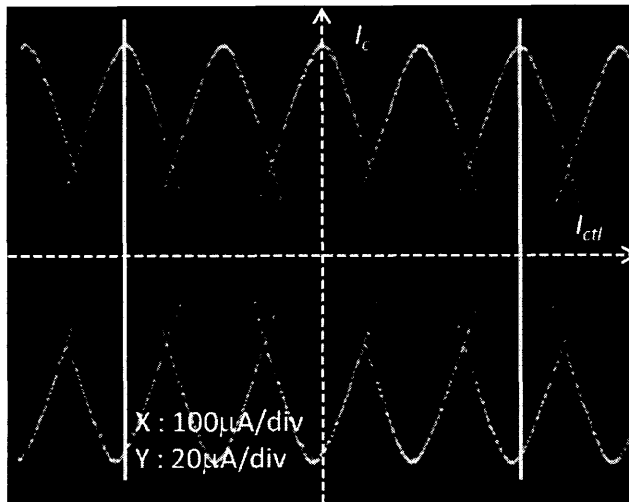
膜厚 910nm の磁性ナノ粒子膜形成前の  $I_c$ - $I_{ctl}$  特性を図 6(a)、形成後の  $I_c$ - $I_{ctl}$  特性を図 6(b)に示す。また、図 7 は形成されたナノ粒子膜とインダクタンス増加率との関係をグラフにしたものである。図 7 より、膜厚に

応じてインダクタンスが増加していることがわかる。また、磁性ナノ粒子膜が膜厚 990nm のとき、10.5pH から 12.6pH へと 19.7%増加した。

これは、 $I_{ct1}$ により発生する磁場を SQUID ワッシャー表面近傍からナノ粒子膜の膜厚方向にかけて十分にナノ粒子膜を貫くようにすることにより、ワッシャー裏面を通り、ワッシャーホールを貫く磁束量を大きくすることができる、すなわち、SQUID インダクタンスを増加させることが可能であることを示している。ただし、より効率的にインダクタンスを向上させるには、裏面も含めワッシャー全体を覆うような磁路にギャップが生じない構造が適していると思われる。



(a)



(b)

図6 ナノ粒子膜(膜厚 910nm)形成前後での  $I_c$ - $I_{ct1}$  特性  
形成前(a)と形成後(b)

### 3.2. 高周波特性への影響

図2に示した縦型 SQUID の共振ステップを観測することにより、磁性ナノ粒子が高周波特性に与える影響を調べた。また、用いたナノ粒子膜は、3.1 節で述べたものと同様に、チップ中心部に配置された SQUID を十分な余裕をもって全体を被覆する寸法に形成された。

測定結果を、図8に示す。膜厚 830nm の磁性ナノ粒子膜形成前の  $I$ - $V$  特性が図8(a)、形成後の  $I$ - $V$  特性が図8(b)である。図8を比較すると、明らかに特性が変化していることが分かる。この変化から  $LC_j$  積の変化を見積もったところ、最大で 163%増加していた。また、同じ SQUID について  $I_c$ - $I_{ct1}$  特性からインダクタンス増加率を見積もったところ、5.1%であった。インダクタンス増加率と比べて、 $LC_j$  積が大きく増加していることがわかる。

低周波におけるインダクタンス増加率が 5.1%であったこと、及び、バルク磁性体の応答上限周波数が一般的には数 GHz 程度であることを考慮すると、163%という極短に大きな  $LC_j$  積の増大は、 $C_j$  の可能性があると考えられる。従って、磁性体の高周波特性に与える影響について詳しい検討をするには、 $LC_j$  積におけるインダクタンス  $L$  の影響とキャパシタンス  $C_j$  の影響を分離して評価する必要がある。そこで、ナノ粒子膜を SQUID と同程度の大きさにパターニングを行い、詳しい評価を試みた。

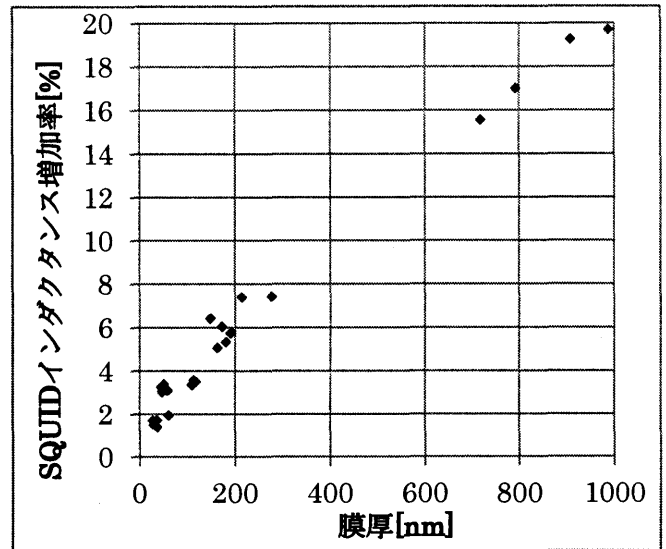


図7 ナノ粒子の膜厚とインダクタンス増加率の関係

### 3.3. 磁性体ナノ粒子膜小型パターンによる高周波応答特性

小型パターンに形成したナノ粒子膜を用い、ナノ粒子膜が SQUID のインダクタンスとキャパシタンスのどちらに影響しているのかを検証した。SQUID は前節と同様、縦型のものを用いた。ナノ粒子パターンとしては、縦型 SQUID インダクタンスを主に構成する 2 接合間の上部配線に対して、幅を 3-5 倍、長さを両接合間にしたナノ粒子小パターンを何種類か用意した。また、比較のため、同一の SQUID に対して、3.2 節と同様に、複数個の SQUID を大きく被覆するような一つの大型長方形パターンも用いた。

SQUID 共振特性評価の結果、後者の大型長方形ナノ粒子膜パターンを形成したものでは最大 10% 前後増加したが、前者の SQUID 接合間のみの小型パターンのものは 2% 以下の  $LC_j$  積増加率であった。

この結果から、 $LC_j$  積の増加は、SQUID のインダクタンス増加によるものではなく、キャパシタンス  $C_j$  の増大効果によるものと推察される。この  $C_j$  は、通常、接合容量で決まってくる。しかし、大型長方形パターンを用いた場合、接合容量成分のみではなく、SQUID からボンディングパッドまでの配線間容量が大きく増大した可能性がある。つまり、磁性ナノ粒子パターン

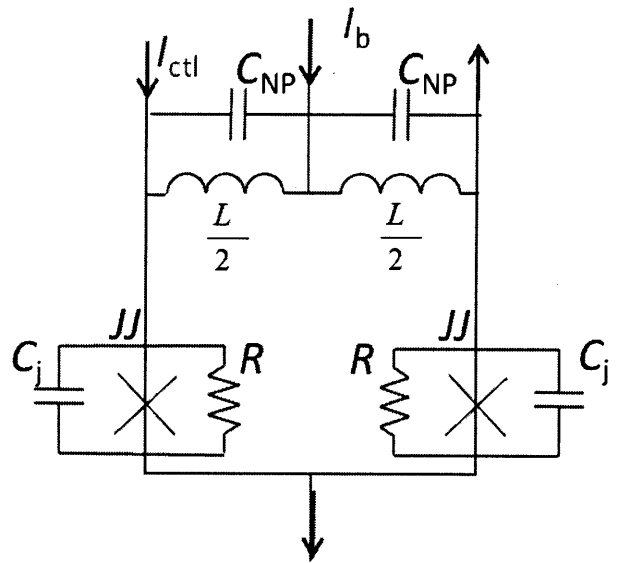


図 9 磁性体が容量を形成した場合の SQUID 等価回路

が図 9 のように、上部配線間においてキャパシタンス  $C_{NP}$  を形成していることが考えられる。また、チップレイアウトからもその可能性が高いことを確認した。なお、酸化鉄ナノ粒子集合体がキャパシタンスとして振る舞うことについては、例えばナノ粒子表面が金属的に振る舞うことで金属ナノ粒子集合体(グラニュー膜)と同等の効果を発揮している可能性が考えられる。

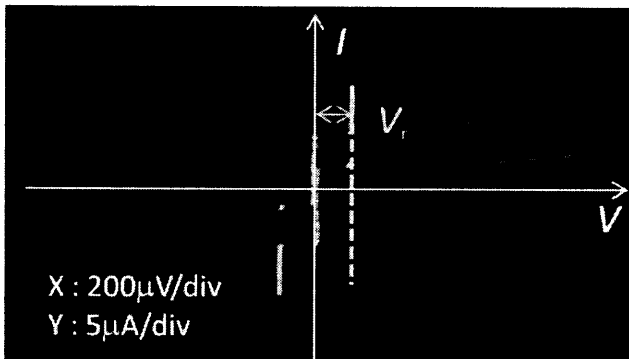
一方、3.2 節の実験と比べて  $LC_j$  積の増加率が小さいのは、キャパシタンスが形成されていると考えられる上部配線において、3.2 節の実験で用いたものと比べて、配線間の距離が大きく離れていたことが原因だと考えている。

### 4. 結論

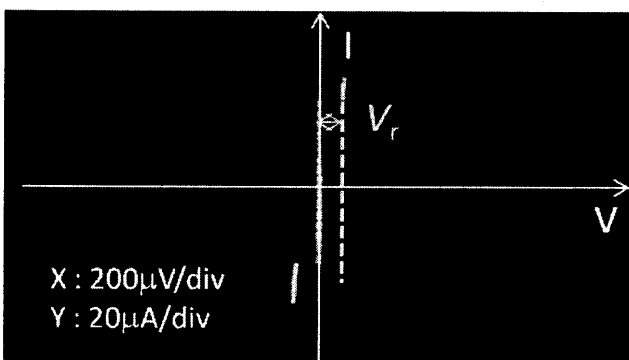
$Fe_3O_4$  磁性ナノ粒子膜の効果を評価するため、SQUID のインダクタンスと共振ステップの変化を評価した。磁性ナノ粒子の膜厚の増加に比例するようにインダクタンスの増加が見られた。このとき最大で、ナノ粒子膜厚 990nm のとき 19.7% となった。

共振ステップについては最大で 163% と大きな  $LC_j$  積の増加が見られた。これは SQUID のインダクタンス変化分に加え、大きな寄生キャパシタンスが上部配線間に形成され、 $C_j$  が増加している可能性があると考えられている。

今後は、磁性ナノ粒子が高周波特性に与える影響についてより詳しく調べていく。また、ナノ粒子以外の磁性体の超伝導デバイスへの適用も検討していく。



(a)



(b)

図 8 ナノ粒子膜形成前後での共振ステップ形成前の IV 特性(a)と形成後の IV 特性(b)

## 5. 謝辞

本研究は、科学研究費基盤研究(B) (課題番号 22360124)、ALCAによって支援されている。

## 文 献

- [1] W.H Chang, "The inductance of superconducting strip transmission line," J. Appl. Phys., vol. 50, pp. 8129-8134, 1979.
- [2] M. Igarashi, Y. Yamanashi, N. Yoshikawa, K. Fujiwara, Y. Hashimoto, "SFQ Pulse Transfer Circuits Using Inductive Coupling for Current Recycling," IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol. 19, no. 3, pp. 649-652, Jun. 2009.
- [3] R. Held, J. Xul, A. Schmehl, C. W. Schneider, J. Mannhart, and M. R. Beasley, "Superconducting memory based on ferromagnetism," Appl. Phys. Lett., vol. 89, 163509, 2006.
- [4] Gunter Schmid, "Nanoparticles: From Theory to Application." WILEY-VCH, 2004, ch. 3.
- [5] 矢野峻, 奥村崇之, 赤池宏之, 藤巻朗, "磁性ナノ粒子膜に対する SQUID インダクタンスの応答", 信学技報, vol. 111, no. 230, SCE2011-14, pp. 13-17, 2011年10月.