

PdNi 合金薄膜パターンを有する SQUID の電気的特性

谷口 壮耶[†] 伊藤 大[†] 石川 航太[†] 赤池 宏之[†] 藤巻 朗[†][†]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: [†] taniguchi@super.nuqe.nagoya-u.ac.jp

あらまし 我々は SQUID 上に PdNi 合金薄膜パターンを持つ構造のデバイスを作製し、PdNi 合金パターンが SQUID の電気的特性に与える影響について調査を行った。PdNi 合金は Pd と Ni の同時スパッタによって堆積し、リフトオフ法もしくは Ar イオンミリングによってパターンを形成した。SQUID の外部磁場特性を PdNi 合金パターン形成前後で比較したところ、SQUID の冷却中に磁場を加えることによって位相がシフトすることを確認し、超伝導位相シフタを実現した。また Ni 割合が 4 at% となる PdNi を用いた場合には SQUID のインダクタンスの増加が得られた。

キーワード SQUID, PdNi, 位相シフタ, インダクタンス

The electrical characteristics of SQUIDs with PdNi alloy thin film patterns

Soya TANIGUCHI[†] Hiroshi ITO[†] Kouta ISHIKAWA[†]Hiroyuki AKAIKE[†] and Akira FUJIMAKI[†][†] Department of Quantum Engineering, Nagoya University Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Aichi, 464-8603 JapanE-mail: [†] taniguchi@super.nuqe.nagoya-u.ac.jp

Abstract We fabricated SQUIDs with PdNi alloy thin film patterns, and measured the electrical characteristics of the SQUIDs. The PdNi alloy thin films were deposited by co-sputtering of Pd and Ni. The PdNi films were patterned by Ar ion milling or in the lift-off process. We evaluated the effect of PdNi patterns by comparing the characteristics with or without the PdNi patterns. The phenomenon of flux biasing, or, phase shift was observed in the external-magnetic-field dependence of SQUID critical current, when using field-cooling of SQUIDs with PdNi patterns, and the superconducting phase shifter was successfully demonstrated. We also found that the inductances of SQUIDs were increased by using Pd_{0.98}Ni_{0.04} alloy.

Keyword SQUID, PdNi, phase shifter, inductance

1. はじめに

ジョセフソン接合をスイッチング素子として用いる超伝導デバイスはその低消費電力性、高速動作性などから次世代のデバイスとして期待されている。

この超伝導デバイスに対して我々は磁性体を導入することを検討している。磁性体を用いることによって超伝導デバイスのさらなる高性能化、高機能化が見込める。高機能化の一つの例として位相シフタが挙げられる。磁性体を用いて磁束バイアスによる位相シフタを構成することで超伝導ループ内波動関数の位相をシフトさせることができ、位相シフタを実現することができる。この位相シフタは単一磁束量子(SFQ)回路の T フリップフロップなどで利用することができる。位相シフタを利用することによって従来設けていたバイアス電流線が不必要になるため、さらなる低消費電力化や高集積化を行うことができると考えられる。また、位相シフタを断熱型磁束量子パラメトロン(AQFP)[1]において利用すると、AQFP に流す励起電流を劇的に

減らすことができ、消費電力を極限まで下げることができると考えられる。他にも、超伝導体による位相シフタは新たな論理方式のデバイス[2]などで利用することができる。

また、超伝導デバイスに対して磁性体を導入する理由は位相シフタへの応用だけではない。磁性体の磁化の方向に情報を担わせれば、情報の保持に超伝導ループは必要ないため、メモリセル面積の小さなメモリを実現することができる。現在、単一磁束量子(SFQ)回路で利用できる高速かつ高集積可能なメモリが存在していないことから新たなメモリの開発が求められているが、このように磁性体を用いることで実現できると考えられる。他にも、磁性体の高透磁率という特徴を利用すれば自己・相互インダクタンスの増加や、高効率なモートの実現が可能になると考えられる。

超伝導デバイスへの磁性体の導入として、我々はこれまでに、磁性ナノ粒子を用いた研究を行ってきた[3]。磁性ナノ粒子は材料・粒径を選択することによって磁

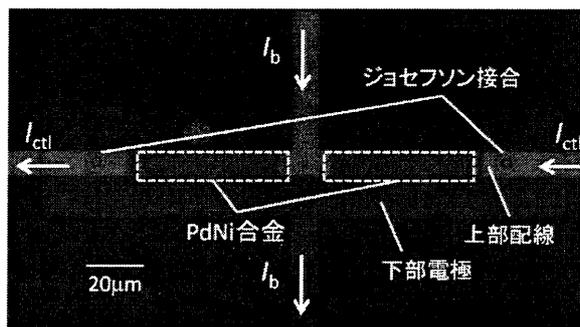
気的特性を容易に変更させることができる点や、大規模な装置が必要なく容易に導入できるという点で利点があった。この磁性ナノ粒子によって自己インダクタンスの増加やヒステリシスの確認といった成果が得られている [4][5]。

本研究では、次の段階として、磁性材料の磁気特性の制御性及び加工性を高めることが可能な磁性合金薄膜に着目し、強磁性体 PdNi を用いた実験を行った。強磁性体である Ni 単体ではキュリー点が 600K 以上と非常に高く、超伝導デバイスの動作する極低温では磁化は固定されてしまっている。そのためこのままでは磁化の制御はほぼできず、扱いが難しいと考えられる。そこで常磁性体である Pd との合金を利用した。強磁性の性質の弱められた PdNi 合金を利用することで極低温下でも磁化の大きさや方向を制御することができると考えられる。そこで、今回、縦型の超伝導量子干渉計(SQUID)上に PdNi 合金パターンを形成し、その PdNi パターンが SQUID の特性に与える影響について調査した。

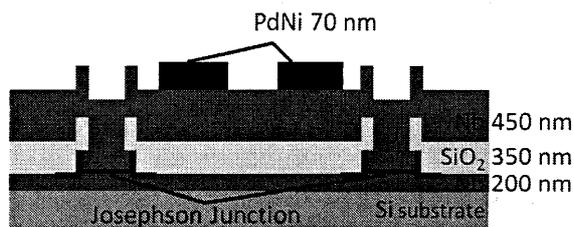
2. 実験手法

本研究では、図 1 に示す PdNi パターンを搭載した縦型 SQUID を作製し、PdNi パターン前後での SQUID 特性の評価を 4.2K にて行った。図 1(a)は実際に作製した SQUID の顕微鏡写真、図 1(b)は SQUID の断面図である。以下に、実験の手順を述べる。

まず、Nb/AlOx/Nb による接合作製プロセスを用いて縦型の dc-SQUID を作製した。接合寸法は $6\mu\text{m}\phi$ であり、SQUID ループを形成する上部配線の幅及び長さそれぞれ、 $10\mu\text{m}\times 150\mu\text{m}$ である。層間絶縁層の SiO₂ の膜厚 350nm を考慮すると、SQUID ループインダクタンスはおよそ 7 pH となった。他にも上部配線部分が $10\mu\text{m}\times 200\mu\text{m}$ となる SQUID を利用した。この場合ループインダクタンスはおよそ 10pH となった。SQUID を作製後、図 1(a)に示す制御電流 I_{ctl} を流すことにより SQUID のインダクタンス評価に加え、外部コイルを用いて SQUID の外部磁場特性を測定し PdNi パターンを持たない SQUID の特性を得た。次に、SQUID 上に PdNi 合金パターンを形成した。PdNi 合金パターンの寸法は $10\mu\text{m}\times 55\mu\text{m}\times 70\text{nm}$ である。図 1(a)からわかるように、SQUID ループ状の 2 カ所に配置した。再度、SQUID のインダクタンス評価及び外部磁場特性を測定し PdNi パターンを持つ SQUID の特性を得た。その際、PdNi パターンの磁気特性を変化させるため、必要に応じて外部磁場を加えた状態で試料を冷却するフィールドクーリングを行った。これら二回の測定で得た特性を比較することで PdNi 合金パターンが SQUID の外部磁場特性に与える影響を調査した。



(a) 顕微鏡写真



(b) 断面図

図 1 作製した SQUID

表 1 今回利用した Pd,Ni のスパッタレート

スパッタレート		
PdNi		
1.76	0.0583	4
2.85	0.266	11
1.76	0.266	17
1.76	0.375	22

次に、PdNi 合金パターンの形成方法について述べる。PdNi 合金薄膜は Pd と Ni の同時スパッタによって堆積した。この PdNi 合金中の Ni 割合は、Pd もしくは Ni それぞれを個別でスパッタした際のスパッタレートから見積もることができる。今回利用した PdNi 合金の Ni 割合、Pd もしくは Ni のスパッタレートは表 1 に示すとおりである。今回は PdNi 合金中の Ni 割合として 4,11,17,22 at% のものを用意した。堆積した PdNi 合金はリフトオフ法もしくは Ar イオンミリングによってパターンに形成した。

作製した SQUID の評価方法について述べる。SQUID のインダクタンスは、先に述べたように I_{ctl} を流すことにより見積もった。SQUID の臨界電流 (I_c) の I_{ctl} 依存性 (I_c - I_{ctl} 特性) は図 2 のようになる。この I_c - I_{ctl} 特性に見られる変調周期 ΔI_{ctl} を用いて、以下の式から SQUID のインダクタンス L の評価を行った。

$$L = \frac{\Phi_0}{\Delta I_{\text{ctl}}} [\text{H}] \quad \Phi_0 = 2.07 \times 10^{-15} [\text{Wb}]$$

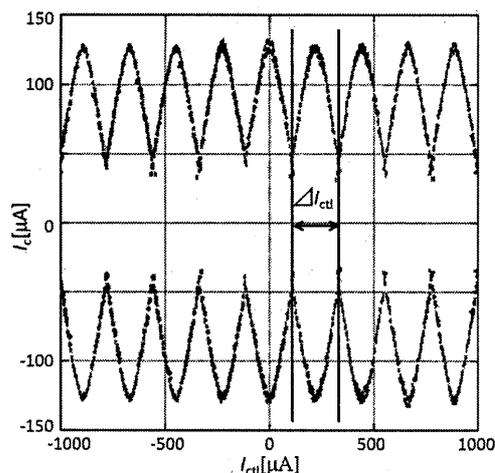


図 2 SQUID の I_c - I_{c1} 特性

一方、SQUID のループに対して、外部コイルによる磁場 (B_{coil}) を加えた評価も行った。このときの I_c - B_{coil} 特性を、以下では外部磁場特性と呼ぶ。今回はヘルムホルツコイルを用いて SQUID のループに垂直な向きに二種類の磁場を印加した。一つは、磁性体中の磁化による磁束バイアス効果を反映した I_c ピークのシフト評価のためのものであり、 $-130 \sim +130 \mu\text{T}$ 程度の弱い磁場を印加した。もう一つは、磁化反転の評価のために $-2.5 \sim +2.5 \text{ mT}$ 程度の強い磁場を印加した。

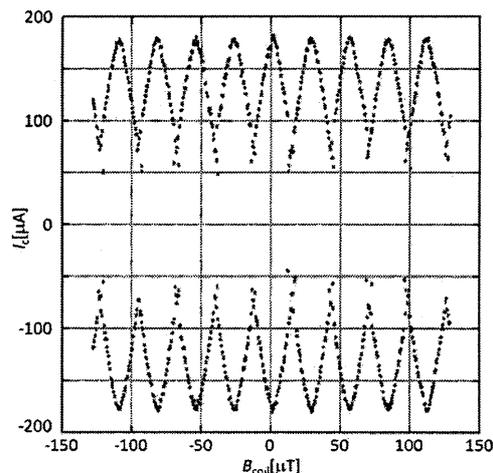
3. 実験結果及び考察

3.1. PdNi 合金パターンによる I_c ピークシフトの効果

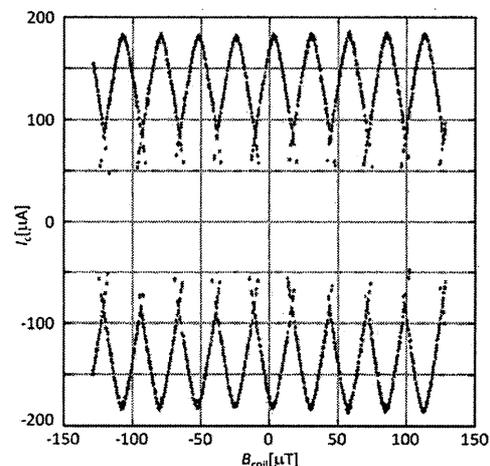
まず、 $-130 \sim +130 \mu\text{T}$ 程度弱い磁場を印加した場合の特性について述べる。図 3 は、 $\text{Pd}_{0.89}\text{Ni}_{0.11}$ パターン形成前後での SQUID の磁場特性を比較したものである。図 3(a) はパターンを形成する前の SQUID の外部磁場特性であるのに対し、図 3(b)、(c) はパターン形成後の外部磁場特性である。後者のうち、(b) は試料の冷却時に磁場を加えなかったものである。一方、(c) は、(b) を評価した後一度温度を 150 K まで上昇させ、再度 150 K から 15 K までの冷却時に 2.5 mT の磁場を加えたフィールドクーリングを行い、その後ゼロフィールドクーリングを 4.2 K まで行ったものである。

図 3(a) と (b) を比較すると、二つの特性は、ほぼ重なっており大きな変化はないと思われる。しかし図 3(a) と (c) を比較すると、(c) では外部磁場特性が横軸方向にずれており、ループ内の超伝導波動関数の位相がシフトしていると考えられる。このように、冷却時に磁場を加えることによって位相シフトが実現された。これは冷却時に磁場を加えることにより、PdNi 合金パターンが印加磁場の方向に磁化したためと考えられる。

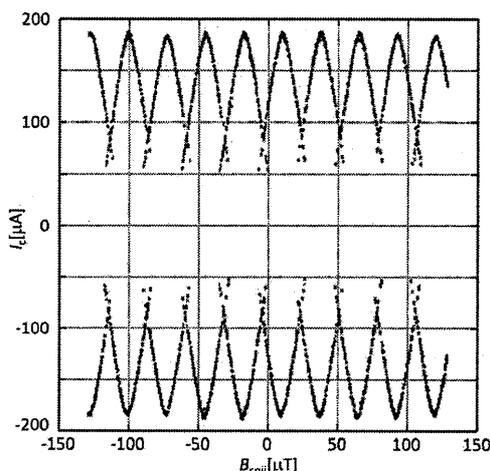
一方、PdNi 中の Ni 割合を変化させたとき効果も調べた。 17.22 at\% の Ni 割合となる PdNi 合金パターンを



(a) PdNi パターンを形成していない場合



(b) PdNi パターンを形成し
磁場を加えずに冷却した場合



(c) PdNi パターンを形成し
 $+2.5 \text{ mT}$ の磁場を加えながら冷却した場合

図 3. $\text{Pd}_{0.89}\text{Ni}_{0.11}$ パターン形成前後での弱い磁場に対する SQUID の外部磁場特性

形成した SQUID では、ゼロフィールドクーリング時にすでに何らかの位相のシフトが見られ、150 K から 15 K 間のフィールドクーリングを行っても位相シフトの制御はできなかった。また、4 at% の Ni 割合となる PdNi 合金のパターンを形成した SQUID では冷却時に磁場を加えても全くシフトが見えないという結果であった。

これらの結果から、Ni 割合が 4 at% の PdNi 合金は 4K の極低温下で常磁性となっているのに対し、11,17,22 at% の PdNi 合金は強磁性的であり、特に 11 at% の PdNi 合金は 15 K から 150 K の間にキュリー点が存在していると考えられる。この値は参考文献 [6] の示す値と一致している。

3.2. 強い磁場に対する PdNi 合金の応答

図 4 は Pd_{0.78}Ni_{0.22} の合金パターンを持つ SQUID に対して -2.5 ~ +2.5 mT の強い磁場を加えた場合の原点付近の特性である。また、磁場を横軸の負から正に変化させたとき、及び正から負へ変化させたときの両方の場合における特性が重ね合わさったものである。この図からわかるように、その二つの特性にずれは生じておらず、磁化反転によるヒステリシスは見られていないことが分かる。この結果は強磁性となっているであろう他の 11,17 at% の PdNi 合金でも同じで、どれも磁化の反転効果は観察されなかった。このことから 11~22 at% の PdNi 合金パターンは保持力が 2.5 mT 以上の硬磁性であると考えられる。磁束バイアスによる位相シフト効果を目的とする応用の場合、このような保磁力大きさは特に問題は生じないだろう。それに対し、磁化反転を必要とするメモリ応用では、保磁力の小さな軟磁性を得るため Ni 割合を下げる必要があると考えられる。

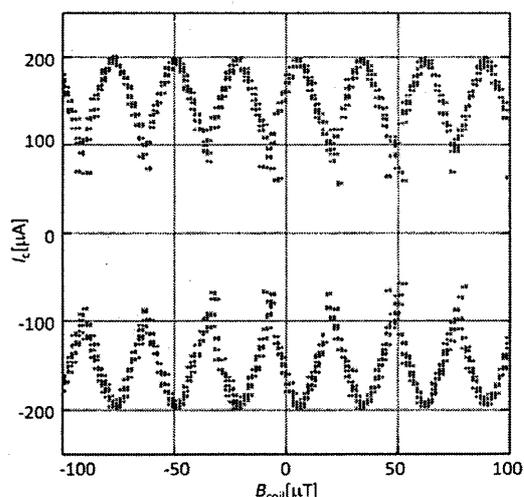
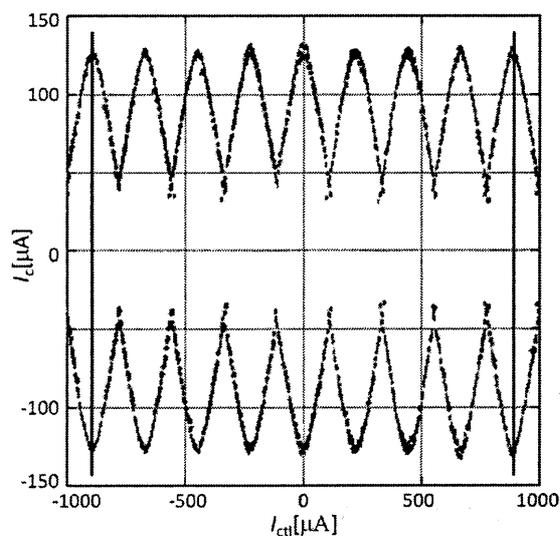


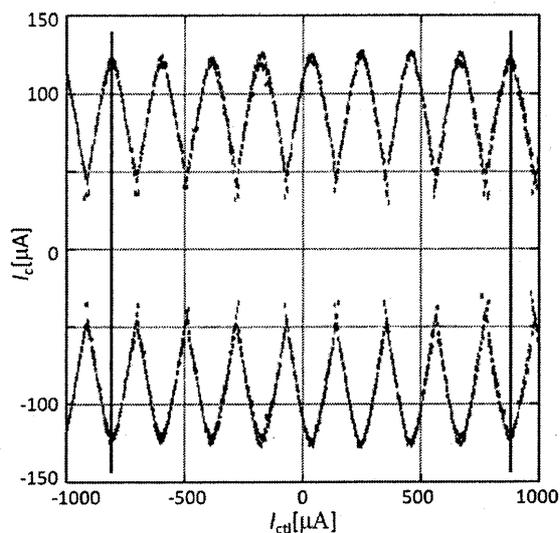
図 4 強い磁場を加えた場合の原点付近の外部磁場特性 (Pd_{0.78}Ni_{0.22} 合金パターン)

3.3. PdNi が SQUID のインダクタンスに与える影響

PdNi が SQUID のインダクタンスに与える影響について評価した。図 5 は Pd_{0.96}Ni_{0.04} の合金パターンを形成する前後の SQUID の I_c - I_{ct1} 特性である。この図 5 の比較では ΔI_{ct1} が減少しており、結果として 5.2% のインダクタンス増加となった。この Pd_{0.96}Ni_{0.04} の合金パターンを持つ SQUID の場合では 2.7~5.2% の増加が得られた。一方で、他の Ni 割合が 11,17,22 at% となる PdNi 合金パターンを持つ SQUID の場合では増加は見られなかった。



(a) Pd_{0.96}Ni_{0.04} パターン形成前



(b) Pd_{0.96}Ni_{0.04} パターン形成後

図 5 I_c - I_{ct1} 特性の比較

これは 3.1 で得られたように、Ni 割合によって PdNi の性質が異なることによる違いと考えられる。PdNi 中の Ni 割合が多く強磁性となっている場合は、制御電流に対して PdNi はほぼ影響を与えていないと考えられる。一方で Ni 割合が小さい場合は磁性ナノ粒子的に振る舞っていると考えられ、制御電流に対し PdNi 中の Ni が応答しインダクタンスの増加につながっていると考えられる。

4. 結論

PdNi 合金パターンが SQUID に与える効果を評価するため、パターン形成前後での SQUID の外部磁場特性、 I_c - I_{c11} 特性を評価した。外部磁場特性においては、Pd_{0.89}Ni_{0.11} パターンを用いたとき、冷却時に磁場を加えることによって位相シフトを実現した。また、PdNi 中の Ni 割合が 11at% 以上の磁性合金パターンに対して、-2.5~+2.5 mT 程度の強い磁場を印加した場合は磁化の反転は見られなかった。一方、Pd_{0.96}Ni_{0.04} の合金パターンを持つ SQUID のインダクタンス変化を調査したところ、2.7~5.2 % のインダクタンスの増加が得られた。これは PdNi 合金がナノ粒子的に振る舞っているためであると考えられる。

今後は、冷却時に加える磁場によって位相のシフト量を完全にコントロールすることを目指す。さらに Ni 割合の異なる PdNi について調査を進め、メモリ応用に重要となる保磁力の制御を試みる。

5. 謝辞

この研究は JST-ALCA 「低エネルギー情報ネットワーク用光・磁気・超伝導融合システム」、ならびに科学研究費挑戦的萌芽研究(25630171)のもとで行われた。

文 献

- [1] N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, "Measurement of 10 zJ energy dissipation of adiabatic quantum-flux-parametron logic using a superconducting resonator", *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, 052602, 2013.
- [2] Esin Terzioglu, and M. R. Beasley, "Complementary Josephson Junction Devices and Circuits: A Possible New Approach to Superconducting Electronics", *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 8, no. 2, pp. 48-53, June, 1998
- [3] Hiroyuki Akaike, Keisuke Shigehara, Takayuki Okumura, Shun Yano, and Akira Fujimaki, "The Effect of Magnetic Nanoparticles on Inductances for SFQ Device Application", *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 21, no. 3, pp. 131-134, June, 2011
- [4] T. Okumura, S. Yano, H. Akaike, A. Fujimaki, "A clear increase in SQUID inductance using Fe₃O₄ nanoparticles," *Superconductivity Centennial Conference*, 4-EA-P8, The Hague, The Netherlands, Sept. 22, 2011

[5] H. Ito, T. Okumura, S. Yano, H. Akaike, A. Fujimaki, "The threshold and resonance characteristics of dc-SQUIDs with magnetic nanoparticle patterns", 2012 Applied Superconductivity Conference (ASC 2012), 3EPN-03.

[6] W. A. Ferrando, R. Segnan, and A. I. Schindler, "Matrix and Impurity-Cluster Polarization in Ni-Pt and Ni-Pd Alloys", *Phys. Rev. B*, vol. 5, no. 12, pp. 4657-4664, June, 1972