

新バリア材料を有するジョセフソン接合の作製と 二次元磁界変調特性の測定による接合の評価

渡邊 騎通* 穴田 哲夫** 中山 明芳***

Fabrication of Josephson junctions with new barrier materials and evaluation of junctions by two-dimensional scan of external magnetic field

Norimichi WATANABE* Tetsuo ANADA** Akiyoshi NAKAYAMA***

1. 緒言

二つの超伝導体で薄い絶縁層を挟んだ構造をしているものをジョセフソン接合というが、我々は、トンネル接合型のジョセフソン接合の磁界特性を研究してきた[1-3]。トンネル接合型のジョセフソン接合では、超伝導電極にNb、トンネルバリア層の材料に酸化アルミニウムを用いたものが試料作製の歩留まりもよく、超伝導特性の再現性も高いことから、Nb/Al-AIO_x/Nb 構造のジョセフソン接合が最も多く作製されており、超伝導デジタル回路などのエレクトロニクスの分野に多く利用されている[4-7]。ジョセフソン接合の応用としては、生体磁気などの微弱な磁場の検出が可能な高感度の磁気センサである SQUID (超伝導量子干渉素子) や、低消費電力、超高速動作を同時に実現できる SFQ (単一磁束量子) 回路と呼ばれている超伝導デジタル回路、X線や放射線を検出できる超伝導検出器などがある[8-10]。

近年、ジョセフソン接合のトンネルバリア層である酸化アルミニウムを磁性材料に置き換えた超伝導体/磁性体/超伝導体構造の磁性ジョセフソン接合の研究が精力的に行われている[11-16]。従来の超伝導体/絶縁体/超伝導体構造のジョセフソン接合では、接合部にバイアス電流や外部磁界を印加して接合を流れる超伝導電流を制御することにより超伝導回路などのエレクトロニクスに応用されるが、磁性ジョセフソン接合では、バリア層の磁性材料によって接合を流れる超伝導電流が抑制されるため、接合部にバイアス電流や外部磁界を印加する仕組みを減少させることができ、システムの消費電力を削減できることから磁性ジョセフソン接合をエレクトロニクスに応用する研究が行われている。

我々は、Nb/Al-AIO_x/Nb ジョセフソン接合を作製し、ジョセフソン接合を流れる超伝導電流の磁界特性について研究してきた。ジョセフソン接合を流れる超伝導電流は外部磁界によって変調されるが、ジョセフソン電流の磁界変調特性は、通常、接合面に平行に外部磁

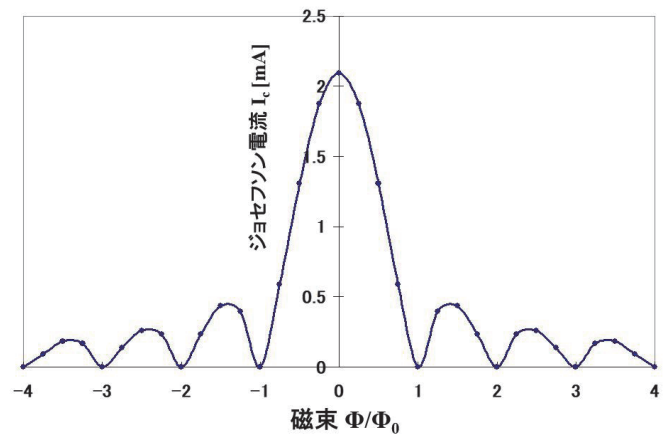


図1 ジョセフソン電流の外部磁界変調特性
(フラウンホーファーパターン)

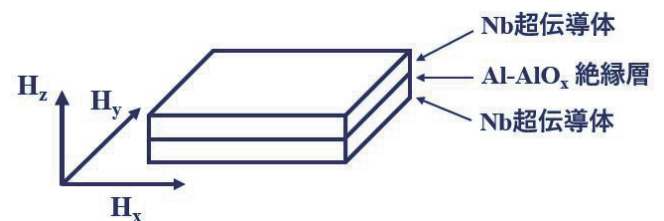


図2 ジョセフソン接合の接合面に平行に二方向から外部磁界 H_x, H_y を印加してジョセフソン電流の変調を行う

界を一方から印加することによりジョセフソン電流の変調を行い、図1のようなフラウンホーファーパターンと呼ばれる磁界変調特性を観測することにより接合の一様性が議論される[17]。それに対して我々は、図2に示すように接合面に平行に二方向から外部磁界を印加することによりジョセフソン電流の変調を行い、ジョセフソン電流の二次元磁界変調特性を測定してきた。外部磁界を二次元走査することにより、ジョセフソン電流の磁界特性においてより多くの情報を得ることができる。例えば、接合形状の異なるジョセフソン接合の磁界変調特性を測定した場合、外部磁界を二次元走査した方

*特別助教 電気電子情報工学科

Assistant Professor, Dept. of Electrical, Electronics, and Information Engineering

**名誉教授 電気電子情報工学科

Professor Emeritus, Dept. of Electrical, Electronics, and Information Engineering

***教授 電気電子情報工学科

Professor, Dept. of Electrical, Electronics, and Information Engineering

が、一次元で走査した場合よりも、明瞭にジョセフソン電流の磁界変調特性の接合形状依存性を観測することができる[18, 19]。また、ジョセフソン接合の接合面に垂直に外部磁界を印加してジョセフソン電流の磁界特性を調べたジョセフソン電流の垂直磁界依存性についての研究の報告例は少ないが[20]、ジョセフソン接合に垂直磁界に加えて、同時に接合面に平行な外部磁界も二方向から印加してジョセフソン電流を変調することにより、ジョセフソン電流の垂直磁界依存性についても、より多くの情報を得ることが可能になる[21-24]。そこで、本研究では、この外部磁界を接合面に平行に二方向から印加してジョセフソン電流を変調するという接合の評価手法を、超伝導体/磁性体/超伝導体構造の磁性ジョセフソン接合の評価に適用し、磁性ジョセフソン接合を流れる超伝導電流の二次元磁界変調特性を測定することを目的に研究を行っている。

2. 試料作製

最初に、図3に示したような磁性ジョセフソン接合を作製するためのdcスパッタリング装置の立ち上げを行った。Nb、Al、Niが成膜できるスパッタリング室を有しており、各スパッタリング室の間は磁気移動棒を用いて試料を移動することができる構造になっているので、高真空を破らずに積層膜を作製することが可能である。試料交換室を含めて3台のターボ分子ポンプで真空引きを行っており、到達真空度は 2.0×10^{-5} Pa程度である。Nbのスパッタリングレートは、Arガス圧1.0 Pa、陰極電圧-320 V、陰極電流0.5 Aのときに1.24 nm/s、Alのスパッタリングレートは、Arガス圧4.0 Pa、陰極電圧-350 V、陰極電流0.2 Aのときに0.5 nm/s、Niのスパッタリングレートは、Arガス圧5.0 Pa、陰極電圧-260 V、陰極電流0.2 Aのとき0.05 nm/sであった。次に、新たに立ち上げたスパッタリング装置で、Nb/Al-AIO_x/Nb ジョセフソン接合を作製し、新スパッタリング装置で、従来のジョセフソン接合が正常に作製できるのか確認を行った。Nb/Al-AIO_x/Nb と配線用の Wiring Nb 層の各層の膜厚は、それぞれ300 nm、5 nm、50 nm、100 nmである。フォトリソグラフィにより積層膜のパターニングを行い、陽極酸化法により接合領域を作製した[25]。素子の大きさは、75 μm×75 μmである。

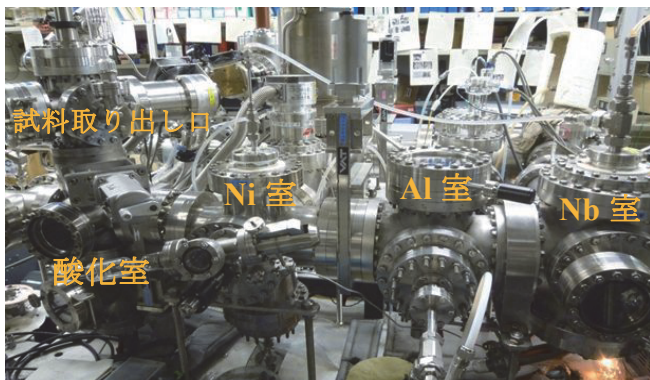


図3 磁性ジョセフソン接合を作製するために、新たに立ち上げたスパッタリング装置

3. 実験

図4に、4.2Kで測定したジョセフソン接合の電流-電圧特性を示す。V=0で、1.1 mAの超伝導電流が観測されており、2.7mVのギャッ

プ電圧が観測されている。このように、新たに立ち上げたスパッタリング装置を用いても、超伝導トンネル接合特有の大きなヒステリシスを持つ電流-電圧特性を示すジョセフソン接合を作製できることが確認できた。さらに、ジョセフソン接合の接合面に平行に二方向から外部磁界 H_x , H_y を印加して、ジョセフソン電流の変調を行った。測定結果を図5に示す。 H_x 方向と H_y 方向の二方向にフラウンホーファーパターンのメインピークとサブピークが観測されていることから、均一なトンネルバリア層が作製できていると推測される。

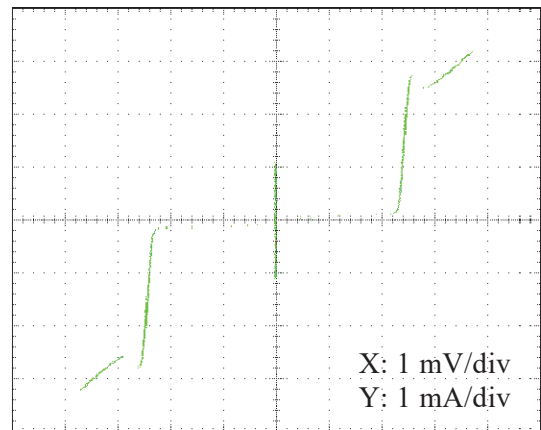


図4 新たに立ち上げたスパッタリング装置を用いて作製した Nb/Al-AIO_x/Nb ジョセフソン接合の電流-電圧特性

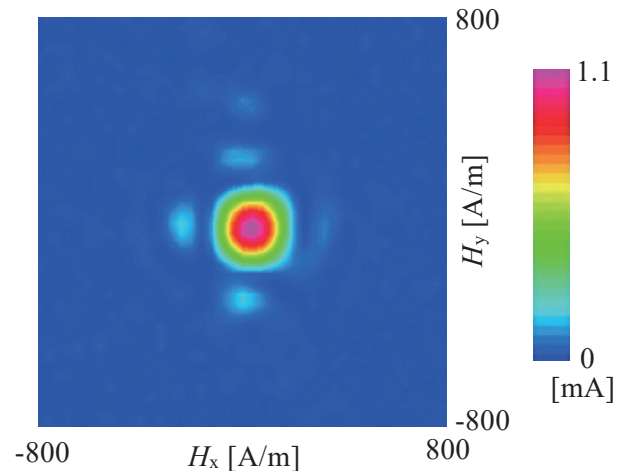


図5 新たに立ち上げたスパッタリング装置を用いて作製した Nb/Al-AIO_x/Nb ジョセフソン接合を流れるジョセフソン電流の二次元磁界変調特性

新たに立ち上げたスパッタリング装置で、Nb/Al-AIO_x/Nb ジョセフソン接合が作製できることを確認できたので、次に、Nb/Ni/Nb 磁性ジョセフソン接合の作製を行った。作製した素子の断面構造を図6に示す。同一基板上に、複数の磁性ジョセフソン接合が作製されており、Nb/Ni/Nbの各層の膜厚は、それぞれ300 nm、3 nm、50 nmである。素子間の絶縁は、Nb/Al-AIO_x/Nb 作製プロセスのときと同じように、陽極酸化法によって試みた。図7(a)は、Nb/Al-AIO_x/Nb ジョセフソン接合の陽極酸化後の素子表面の光学顕微鏡写真であり、図7(b)は、Nb/Ni/Nb ジョセフソン接合の陽極酸化後の素子表面の光学顕微鏡写真である。図7(a)において、正方形の形状のものがジョ

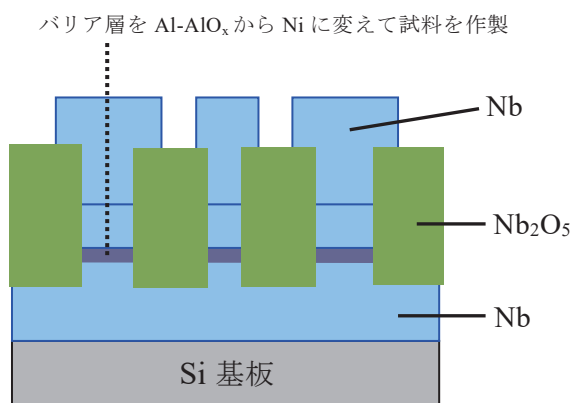


図6 陽極酸化プロセスで作製した試料の断面構造

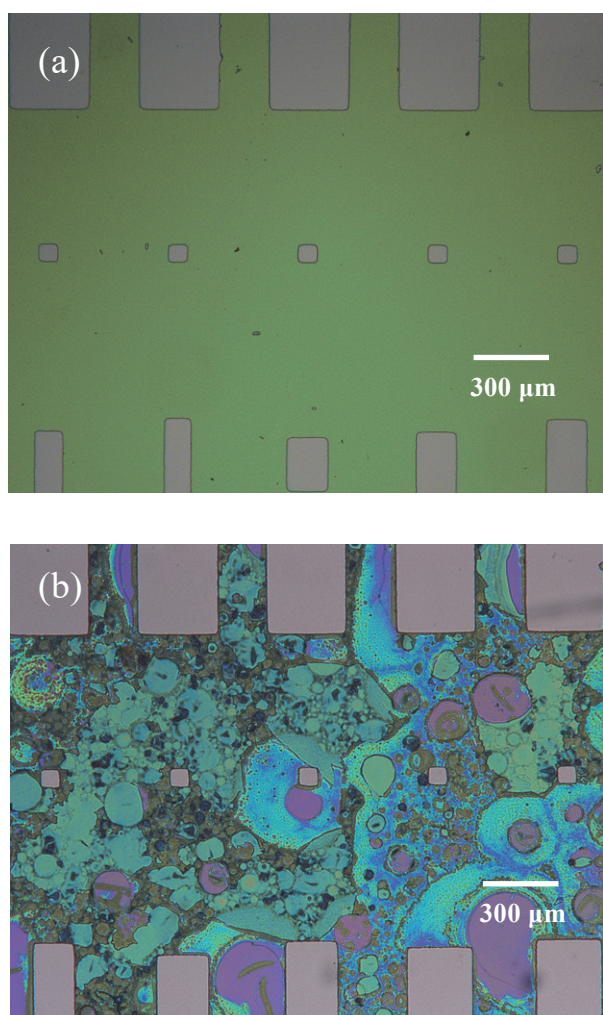


図7 陽極酸化プロセスで作製したジョセフソン接合の試料表面の光学顕微鏡写真 (a) Nb/Al-AlO_x/Nb ジョセフソン接合の試料表面 (b) Nb/Ni/Nb 磁性ジョセフソン接合の試料表面

セフソン接合であり、その周辺は陽極酸化法により絶縁された領域 (Nb₂O₅) である。図 7(b)においては、ジョセフソン接合周辺の陽極酸化された領域の表面形態が、図 7(a)と比較して大きく変化していることがわかる。これは、Niの陽極酸化に原因があると考え、ガラ

ス基板上に Ni 薄膜のみを成膜して陽極酸化を行い確認した結果、Ni 薄膜を陽極酸化すると、Ni 薄膜が基板から剥がれてしまうことがわかった。そこで、Niの陽極酸化の影響を減らす素子作製プロセスで磁性ジョセフソン接合の作製を行った。新たに作製した Nb/Ni/Nb 磁性ジョセフソン接合の構造を図 8 に示す。下部電極の Nb を幅 300 μm のライン状にパターンニングし、そのライン状の Nb 層の上に Nb/Ni/Nb の積層膜を成膜した。ライン状の Nb 層の膜厚は 300 nm、その上に作製した Nb/Ni/Nb 層の各膜厚は、50 nm、3 nm、50 nm である。接合領域は陽極酸化法ではなくケミカルエッチングにより接合領域以外の部分を取り除いて作製した。陽極酸化は下部電極の Nb と Wiring 層となる Nb 層が短絡しないように絶縁するためだけに行った。下部電極 Nb 層をパターンニングして作製した磁性ジョセフソン接合の試料表面の光学顕微鏡写真を図 9 に示す。ライン状の Nb 層の表面は、陽極酸化後も表面形態に大きな変化は見られず、Ni 層の陽極酸化の影響を取り除いて素子を作製することができた。さらに、4 端子法により、作製した磁性ジョセフソン接合の室温における抵抗を測定したところ、同一基板上に作製した 17 個すべての磁性ジョセフソン接合において、1 Ω 程度の常温抵抗が得られた。各素子において均一な常温抵抗が測定できていることから、均一なバリア層が作製できていると考えられる。

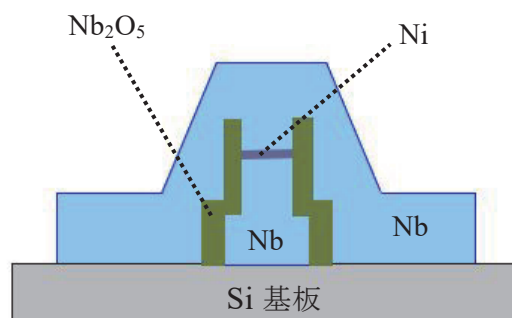


図8 下部電極の Nb 層をライン状にパターンニングして作製した Nb/Ni/Nb 磁性ジョセフソン接合の試料断面図

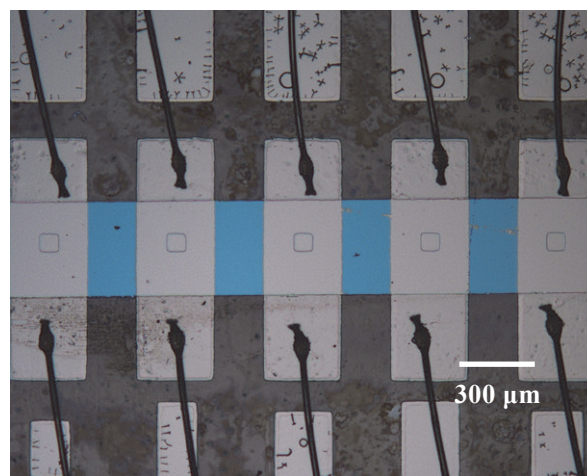


図9 下部電極の Nb 層をライン状にパターンニングして作製した Nb/Ni/Nb 磁性ジョセフソン接合の試料表面の光学顕微鏡写真

4. 結言

Ni 成膜室を有するロードロック方式のスパッタリング装置を新たに立ち上げ、Nb/Ni/Nb 磁性ジョセフソン接合の作製を行った。下部電極となる Nb 層をライン状にパターンニングして、その上に磁性ジョセフソン接合を作製することにより、Ni の陽極酸化の影響を少なくした作製プロセスで、磁性ジョセフソン接合を作製した。同一基板上に作製した磁性ジョセフソン接合の常温抵抗は、すべて 1Ω 程度になり、均一な Ni のバリア層を有するジョセフソン接合を作製することができた。今後は、作製した磁性ジョセフソン接合の超伝導状態における電流-電圧特性を測定し、さらに、接合面に平行に二方向から外部磁界を印加してジョセフソン電流の二次元磁界変調特性を測定し、接合の評価を行っていく予定である。

参考文献

- [1] A. Nakayama, S. Abe, T. Morita, M. Iwata, Y. Yamamoto, Modulation of Josephson current of Nb junctions by two-dimensional scan of external magnetic field, *IEEE Trans. Magn.*, 36, 3511-3513 (2000).
- [2] A. Nakayama, S. Abe, N. Watanabe, Two-dimensional magnetic field dependence of Josephson current and resonant current steps at finite voltage of square shape superconducting tunnel junctions, *J. Appl. Phys.*, 111, 113907 (2012).
- [3] A. Nakayama, S. Abe, N. Watanabe, Y. Okabe, Two-dimensional magnetic field dependence of zero and finite voltage steps in current-voltage characteristics of rectangular shape niobium tunnel junctions, *Microelectron. Eng.*, 108, 163-168 (2013).
- [4] Y. Tarutani, M. Hirano, U. Kawabe, Niobium-Based Integrated Circuit Technologies, *Proc. IEEE*, 77, 1164-1176 (1989).
- [5] T. Imamura, T. Shiota, S. Hasuo, Fabrication of high quality Nb/ AlO_x -Al/Nb Josephson junctions. I. Sputtered Nb films for junction electrodes, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 2, 1-14 (1992).
- [6] T. Imamura, S. Hasuo, Fabrication of high quality Nb/ AlO_x -Al/Nb Josephson junctions. II. Deposition of thin Al layers on Nb films, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 2, 84-94 (1992).
- [7] T. Shiota, T. Imamura, S. Hasuo, Fabrication of high quality Nb/ AlO_x -Al/Nb Josephson junctions. III. Annealing stability of AlO_x tunneling barriers, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 2, 222-227 (1992).
- [8] 小山大介, 生体磁気計測分野で活躍する超伝導磁気センサ, *電子情報通信学会誌*, 99, 193-198 (2016).
- [9] 日高睦夫, 永沢秀一, 低温超伝導デバイス作製プロセスと今後の展望, *低温工学*, 52, 315-322 (2017).
- [10] 大久保雅隆, 超伝導エレクトロニクスにより拓く先端分析技術, *低温工学*, 46, 47-52 (2011).
- [11] J. W. A. Robinson, Z. H. Barber, M. G. Blamire, Strong ferromagnetic Josephson devices with optimized magnetism, *Appl. Phys. Lett.*, 95, 192509 (2009).
- [12] S. Scharinger, C. Gurlich, R. G. Mints, M. Weides, H. Kohlstedt, E. Goldobin, D. Koelle, R. Kleiner, Interference patterns of multifacet $20 \times (0-\pi)$ Josephson junctions with ferromagnetic barrier, *Phys. Rev. B*, vol. 81, 174535 (2010).
- [13] T. I. Larkin, V. V. Bol'ginov, V. S. Stolyarov, V. V. Ryazanov, Igor V. Vernik, S. K. Tolpygo, O. A. Mukhanov, Ferromagnetic Josephson switching device with high characteristic voltage, *Appl. Phys. Lett.* 100, 222601 (2012).
- [14] J. A. Glick, R. Loloee, W. P. Pratt, Jr., N. O. Birge, Critical Current Oscillations of Josephson Junctions Containing PdFe Nanomagnets, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 27, 1800205 (2017).
- [15] T. Yamashita, A. Kawakami, H. Terai, NbN-Based Ferromagnetic 0 and π Josephson Junctions, *Phys. Rev. Appl.*, 8, 054028 (2017).
- [16] S. K. Tolpygo, V. Bolkhovskoy, R. Rastogi, S. Zarr, A. L. Day, E. Golden, T. J. Weir, A. Wynn, L. M. Johnson, Planarized Fabrication Process With Two Layers of SIS Josephson Junctions and Integration of SIS and SFS π -Junctions, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 29, 1101208 (2019).
- [17] Barone and G. Paterno, *Physics and Applications of the Josephson Effect*, Wiley-Interscience, New York (1982).
- [18] N. Watanabe, A. Nakayama, S. Abe, S. Kawai, Y. Nishi, and K. Masuda, The shape dependency of two-dimensional magnetic field dependence of a Josephson junction, *J. Appl. Phys.*, 103, 07C707 (2008).
- [19] A. Nakayama, S. Abe, N. Watanabe, Y. Nishi, Y. Okabe, Two-dimensional Magnetic Field Dependence of Current-Voltage Characteristics of Rectangular, Hexagonal and Triangle Shape Superconducting Junctions and DC-SQUIDS, *J. Phys. Conf. Ser.*, 97, 012247 (2008).
- [20] S. L. Miller, Kevin R. Biagi, John R. Clem, and D. K. Finnemore, Critical currents of cross-type superconducting-normal-superconducting junctions in perpendicular magnetic fields, *Phys. Rev. B*, vol. 31, 2684-2693 (1985).
- [21] N. Watanabe, A. Nakayama, S. Abe, K. Masuda, Measurement of perpendicular magnetic field dependence of the Josephson current by a three-dimensional scan of the external magnetic field, *J. Phys. Conf. Ser.*, 234, 042038 (2010).
- [22] A. Nakayama, S. Abe, N. Watanabe and Y. Okabe, Anomalous modulation characteristics of DC Josephson current through niobium tunnel junction by applying external magnetic field 4000 A/m in perpendicular direction, *Microelectron. Eng.*, 108, 93-98 (2013).
- [23] N. Watanabe, S. Abe, and A. Nakayama, Modulation of a Josephson current through an Nb/Al- AlO_x /Nb Josephson junction by a parallel magnetic field and perpendicular magnetic field, *J. Appl. Phys.*, 116, 033920 (2014).
- [24] A. Nakayama, S. Abe, N. Watanabe, Deviation From Fraunhofer-Type Modulation of Josephson Current Through Niobium Tunnel Junctions by Applying Vertical Magnetic Field, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 26, 1100606 (2016).
- [25] H. Kroger, L. N. Smith, and D. W. Jillie, Selective niobium anodization process for fabricating Josephson tunnel junctions, *Appl. Phys. Lett.*, 39, 280 (1981).