



# ニオブ接合を流れる超伝導電流と 有限電圧電流ステップの2次元磁界特性

中山 明芳\*      阿部 晋\*\*      穴田 哲夫\*\*\*

## Two-dimensional Magnetic Field Characteristics

### of Superconducting Current and Current Steps at Finite voltage of Niobium junctions

Akiyoshi NAKAYAMA\*      Susumu ABE\*\*      Tetsuo ANADA\*\*\*

#### 1. 緒言

超伝導は1911年カマリン オネスにより、約4.2K以下で水銀の抵抗値が測定できないほど小さくなるというかたちではじめて発見されている。この超伝導の特徴的な性質としては

- (i) 超伝導体内の磁束密度が零(反磁場の効果で磁束線が超伝導体の外へ押し出される)
- (ii) 直流抵抗の消滅
- (iii) 超伝導体でつながれた接合間の干渉効果(超伝導量子干渉計(Superconducting Quantum Interference Devices)というかたちで利用)
- (iv) オーダパラメータにより表される超伝導状態
- (v) 超伝導サンドイッチ構造での超伝導電子(クーバー対)のトンネル効果がある。

性質(v)について、イギリスのケンブリッジ大学のジョセフソン氏は2枚の超伝導体で薄い酸化膜を挟んだサンドイッチ構造で電流が流れても電位差が生じないことを1962年理論的に予想し、この現象は翌年実験的に観測されている。以来この構造はジョセフソン接合と呼ばれる。

ジョセフソン接合は基本的に二端子の素子である。超伝導デバイス及び超伝導集積回路は、超伝導体/バリア/超伝導体の構造である、この2端子のジョセフソン接合を中心的な構成素子として使い、回路的に工夫することでこれまで種々の超伝導回路が製作されてきている。

我々のグループでは、ニオブウム金属を使った超伝導薄膜堆積、バリア層用のアルミニウムの堆積とその自然酸化プロセスの最適化、及びフォトグラフィーと陽極酸化方法を使った接合部決定プロセスの改善により、実際に超伝導二端子および超伝導量子干渉計構造を製作し、その基本特性を測定している。さらに外部から加える磁界に対する超伝導接合の電流電圧特性と超伝導電流の特性を測定する新しい測定手法を開発してきている。

#### 2. 実験

##### 2.1 素子製作用スパッタリング装置

センサー接合の製作のためには、マグネトロンスパッタリング装置を使う。試料交換はロードロック室のみの真空を破ることにより短時間でおこなうことができる。主排気はターボ分子ポンプとドライポンプである。

##### 2.2 磁界特性測定装置

円形コイル[ヘルムホルツコイル]を3対使い、x, y, z方向の外部磁界を生成する。パーソナルコンピュータにより GPIB 制御された直流電源によりコイルに電流を流すと、その電流に比例して磁界が生じる。プログラム

\*教授 電子情報フロンティア学科

Professor, Electronics and Informatics Frontiers

\*\*准教授 電子情報フロンティア学科

Associate Professor, Electronics and Informatics Frontiers

\*\*\*教授 電子情報フロンティア学科

Professor, Electronics and Informatics Frontiers

ファイルであらかじめ設定したアルゴリズムにより、外部磁界を正確に生成することが可能となる。

### 3. 長方形接合

外部から磁界を加えることにより、サンドイッチ型超伝導接合を流れる超伝導電流は変調するこのサンドイッチ型超伝導接合の酸化膜バリア自体を横切る経路に沿ってのゲージ不変な位相差は、バリア内部の磁界の向きに垂直な方向に空間的に変調する。この変調周期は加える磁界の大きさに反比例する。このようなわけで、超伝導ジョセフソントンネル電流の変調特性から、トンネルバリアそのものの一様性等を診断することができる[1]。これまで quartic polynomial 形[2,3]や x 線解析のための normal-distribution-function 形[4] の接合について調べられてきている。ただし、このような磁界特性は外部磁界を一次元方向に走査して調べられてきているのが現状である。これに対して我々は 2 方向、3 方向に外部磁界を走査し、 $I_c\text{-}H(H_x, H_y)$  特性を調べることを提案して、実際に数値解析と、さまざまな接合形状の素子製作、実験により測定に成功している。

2 方向に外部磁界を走査したとき、接合に流れる超伝導電流が変調される様子を、長方形の接合を例に考えてみる。図 1 は、長方形の接合の  $I_c\text{-}H(H_x, H_y)$  磁界特性の測定結果である。この超伝導接合が長方形の場合の  $I_c\text{-}H(H_x, H_y)$  磁界特性の測定結果を下の図 1 に示す。外部磁界に垂直な向きに接合電流が空間変調していると考えることにより、数値解析した結果との一致は良い。実際に作製した接合では、レジストの角が丸くなり、接合自体も丸みを帯びていることにより、特性そのものもやや実験結果の方が丸みを帯びている。

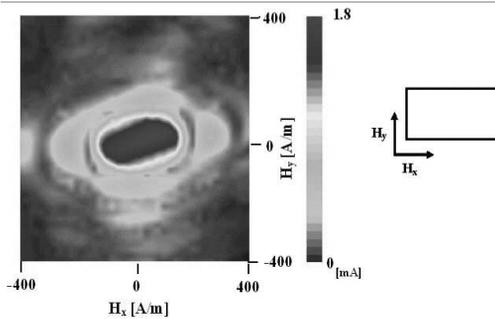


図 1. 長方形の接合の  $I_c\text{-}H(H_x, H_y)$  磁界特性の測定結果数値解析した図 2 の結果との一致は良いといえる。やや実験結果の方が丸みを帯びているのは、実際に作製した接合の形のかどの丸みを帯びていることの反映であろう。

### 4. 正方形接合を流れる超伝導電流の磁界特性

図 2 に示す正方形の接合形状のトンネル素子接合を流れる超伝導ジョセフソン電流と、有限電圧での共振による電流ステップを詳しく調べた結果を述べる。次に電流と有限電圧の電流ステップの 2 次元磁界特性について述べる。素子はマグネトロンスパッタリング法により成膜したそれぞれ 300,5,150nm のニオブウム/アルミニウム-アルミニウム酸化膜/ニオブウムのサンドイッチ構造である。アルミニウム酸化膜は、アルミニウム薄膜堆積後、酸化室で純酸素を導入して表面を酸化し形成した。図に示す  $L \times L = 50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$  の接合寸法は、ポジレジストとコンタクト式マスクアライナーを使ったフォトリソグラフィ後での溶液中の陽極酸化法で決めた。

測定は GPIB (General Purpose Interface Bus) システムで制御された電源により電流を、最大 3000A/m の磁界を発生させることができるヘルムホルツコイル対に流した。素子に加える外部磁界を段階的に変化させることで 2 次元の磁界特性測定をおこなった。測定は液体ヘリウム中 4.2K である。

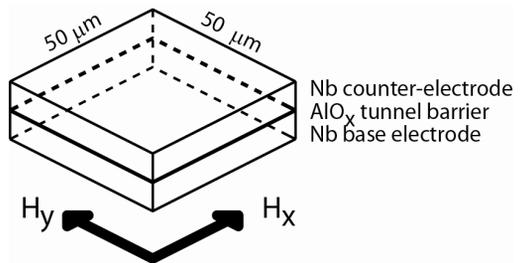


図 2 正方形のトンネル素子の構成

ニオブウムの下部電極と上部電極のロンドン侵入長を  $\lambda_1, \lambda_2$  とし、酸化膜の厚さを  $t_0$  とおくと、和  $d = [\lambda_1 + \lambda_2 + t_0]$  が 173 nm、また、ジョセフソンの侵入長  $\lambda_j$  が  $40 \mu\text{m}$  と求まる。  $L / \lambda_j \approx 1$  なので、外部磁界がないときほぼ同じ電流密度で超伝導電流が流れると仮定してよい。

接合内の点を定めたとき、そこでの下部電極と上部電極の超伝導電極間のゲージ不変な位相差は、超伝導電極間の位相の差の項と、接合を横切って電磁場のベクトルポテンシャル  $A$  を線積分した項の  $4\pi e/h$  倍の和である。

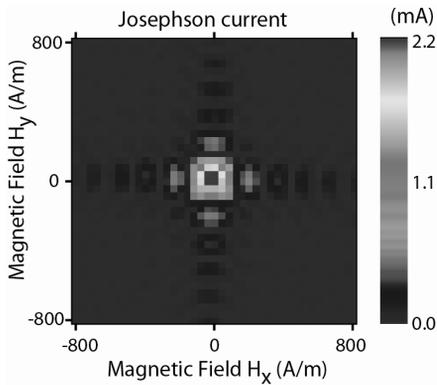


図3 ジョセフソン電流の2次元磁界特性

「非常に薄い絶縁膜を挟んで2つの超伝導体があるとき、2つの超伝導体の間に電流が流れていても、2つの超伝導体間の電位差が0でありうるという現象」が、ジョセフソンにより理論的に予言され、翌年実験により確かめられ、ジョセフソン効果と呼ばれることになった。この現象は、言い換えると、一方の超伝導体から他方の超伝導体へ、電子のみならず、いわば、超伝導電子対（クーバー対）もトンネルするというわけである。サンドイッチ形の超伝導接合を電流が流れても、二つの超伝導電極間に電位差は生じない。このとき、2つの超伝導体間に電位差なしで、いくらかでも大きな電流を流せるわけではなくて、流しうるある上限の値がある。2つの超伝導体を下部の超伝導体電極及び上部の超伝導体電極と呼ぶことにすると、この下部超伝導体電極から上部電極に向かって、接合を電位差なしで流れる電流  $i$  は、二つの超伝導体電極間の「(ゲージ不変な) 位相差  $\gamma$ 」の  $\sin$  に比例し、

$$i = \sin\gamma \quad (1)$$

の関係が成り立つ。基準となる下部の電極内の任意の点  $a$  のオーダーパラメータの位相を  $\theta(a)$ 、この点  $a$  から垂直に酸化膜バリアを横切って、もう一方の上部の電極内に入り点  $b$  を考える。その点の位相を  $\theta(b)$  としている。接合面を垂直に横切る経路に沿ったゲージによらない「ゲージ不変な位相差  $\gamma$ 」は、

$$\gamma = \theta(b) - \theta(a) + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int A \cdot ds \quad (2)$$

である。ここでゲージ不変な位相差  $\gamma$  の前半は、上部電極の点  $b$  の位相  $\theta(b)$  と、基準となる下部電極の点  $a$  のオーダーパラメータの位相  $\theta(a)$  の差である。後半は点  $a$  から垂直に酸化膜バリアを横切って、もう一方の電極の点  $b$  までの経路に沿う電磁場のベクトルポテンシャル  $A$  の線積分の項が入っている。さらに、上部電極の点  $c$  と下部電極の点  $d$  を4点  $abcd$  が長方形  $abcd$  になるように考えてみる。このとき、経路  $dc$  に沿うゲージ不変な位相差  $\gamma$  の、経路  $ab$  に沿うゲージ不変な位相差  $\gamma$  に対する差分  $\Delta\gamma$  は、長方形  $abcd$  に鎖交する磁束  $\Delta\Phi$  の  $2\pi/\Phi_0$  倍であることになる。数式で書くと

$$\Delta\gamma = \frac{2\pi}{\Phi_0} \Delta\Phi \quad (3)$$

である。特に、長方形  $abcd$  に鎖交する磁束が磁束量子  $\Phi_0$  1個分であれば、位相の増分は  $2\pi$  である。

$i = \sin\gamma$  により、接合全体について接合内の各点での電流値の和をとることにより、与えられた磁界における接合を流れる電流が得られる。特別な場合として、外部磁界がなければ、この位相差は、接合内で一定で、特に  $\pi/2$  のとき、最大の電流  $I_c$  が接合を流れる。この  $I_c$  は接合の臨界電流値とも呼ばれる。

電磁場のベクトルポテンシャル  $A$  の周回積分はその中を貫く磁束量に等しいので、 $x$  方向に磁界を加えた場合は、接合各部の位相差と電流密度は  $y$  方向に変調される。 $y$  方向に磁界を加えた場合は、接合各部の位相差と電流密度は  $x$  方向に変調されることになる。また、その空間変調波長は、加える磁界の大きさに反比例する。

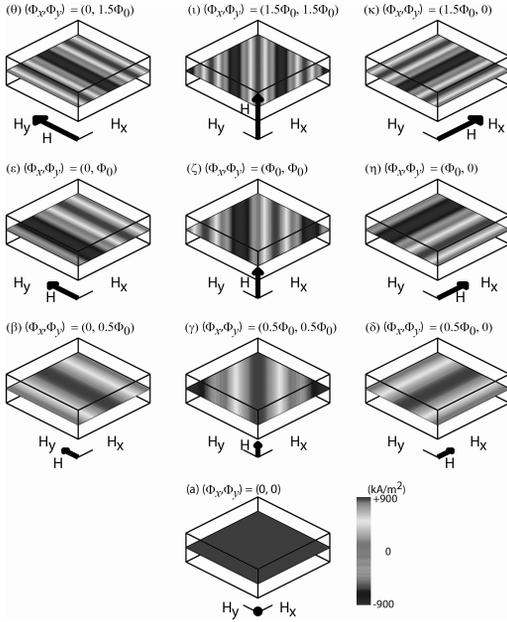


図 4 正方形接合内のジョセフソン電流分布

このように考えて得た接合電流分布を次に示す。 $(\Phi_x, \Phi_y)$  はそれぞれ接合バリア領域を x 方向および y 方向に貫く磁束量とする。 $\Phi_0$  を磁束量子  $h/2e$  として、 $(\beta)$  では  $(\Phi_x, \Phi_y) = (0, 0.5\Phi_0)$ 、 $(\gamma)$  では  $(0.5\Phi_0, 0.5\Phi_0)$ 、 $(\delta)$  では  $(0, 0.5\Phi_0)$  である。この場合は  $\gamma(0) = \pi/2$  で最大の接合電流値をとることになる。さらに磁界を増やして、 $(\Phi_x, \Phi_y)$  が  $(\epsilon)$  では  $(0, \Phi_0)$ 、 $(\zeta)$  では  $(\Phi_0, \Phi_0)$ 、 $(\eta)$  では  $(0, \Phi_0)$  である。この 3 例では、変調周期がちょうど接合寸法になるので、 $\gamma(0)$  の値によらず接合電流値は零である。さらに、 $(\Phi_x, \Phi_y)$  は  $(\theta)$  で  $(0, 1.5\Phi_0)$ 、 $(\kappa)$  で  $(1.5\Phi_0, 0)$  になると変調周期が  $(2/3)L$  になり、おおよそ  $\gamma(0) = -\pi/2$  のとき特性全体からみて 2 番目に大きな極大値になる。また、 $(\iota)$  では  $(\Phi_x, \Phi_y) = (1.5\Phi_0, 1.5\Phi_0)$  であるが、おおよそ  $\gamma(0) = \pi/2$  において極大値をとる。

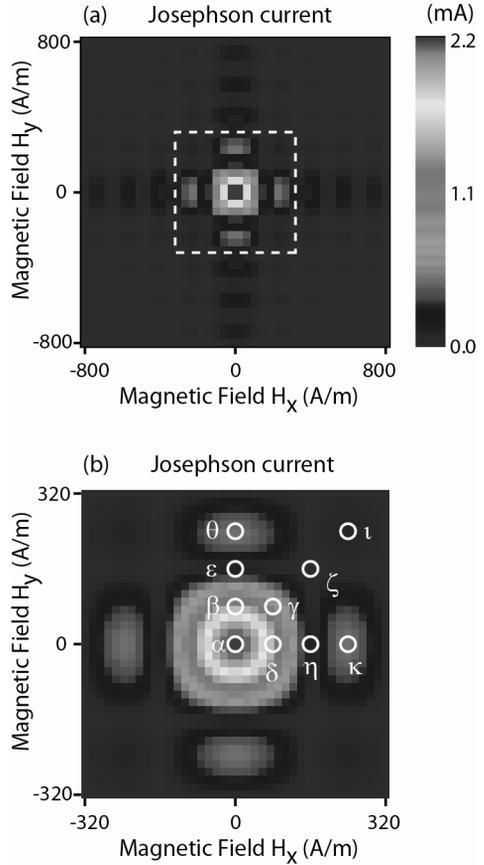


図 5 ジョセフソン電流の磁界特性

(数値解析結果、図中の記号は一つ前の図の記号と対応している)

正方形接合の場合、ジョセフソン電流の接合内 2 次元磁界依存性は、 $H_x$  方向のフラウンホーファーパターンと  $H_y$  方向のフラウンホーファーパターンの積となる。このようにして得られた数値解析結果は測定結果をよく説明している。

次に電流電圧特性の有限電圧に現れる共振ステップについても測定した。図 6 にしめすように、電流電圧特性において参照電圧  $V_r$  を決めこの電圧を中心として  $\pm 20 \mu\text{V}$  の範囲の電流の最大値と最小値の差を電流ステップ高さとして定義した。図 7 にこの電流ステップ高さの 2 次元磁界依存性を示す。図 7 において  $V_r$  をパラメータとして変えて測定した。

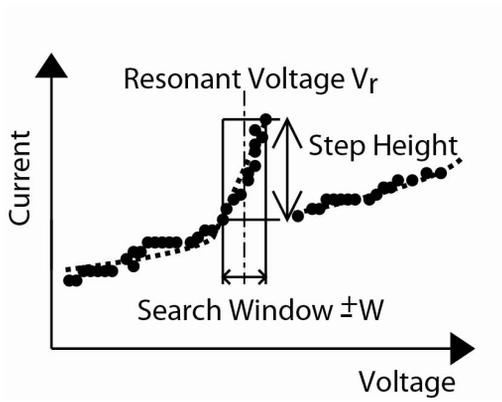


図6 有限電圧の電流ステップの測定

図7はこうして得られた電流電圧特性内の有限電圧での電流ステップの2次元磁界特性を示している。

図8には、有限電圧での電流ステップを生じさせる共振モードの接合内の電圧分布を示す。

図(a)では鎖交磁束( $\Phi_x, \Phi_y$ )= $(\Phi_0, 0)$ であり、接合各部の電圧  $V$  は位相差の時間微分に比例し、電圧  $V$  の定在波は接合内の  $y$  方向に一波長あることになる。一方で図(b)では鎖交磁束( $\Phi_x, \Phi_y$ )= $(0, \Phi_0)$ であり、電圧  $V$  の定在波はやはり磁束と垂直な方向に変調され、接合内  $x$  方向に一波長あることになる。外部磁界とこの共振モードの組み合わせで、実際の共振分布は成り立つ。その結果、位相差が  $\pi/2$  の領域が広がり、時間的に平均した結果、上部電極から下部電極の向きに大きな電流が流れ、電流-電圧特性上の電流ステップになると考えられる。

さらに、参照電圧  $V_R$  が 0.6 mV 以上の範囲では図7より、共振電流ステップの磁界  $H(H_x, H_y)$  依存性はおおよそ等方的になるようにみうけられる。接合ジョセフソン電流の位相速度がバリア領域の電磁波の位相速度  $\bar{c}$  と一致したとき共振が発生するので、図9に示すように、特に電圧が比較的大きく空間波長が小さい領域で、最大の電流ステップの現れる共振電圧は外部からの印加磁界の大きさに比例する。その比例定数から、 $\epsilon_r$  をバリア層アルミニウム酸化膜のこの周波数領域での等価的な比誘電率として、比  $t_b/\epsilon_r$  は 0.16(nm)と求まる。図9に共振電圧が  $H > 500$  (A/m) の領域でやや飽和するのは、侵入長の周波数依存性によるとされる。

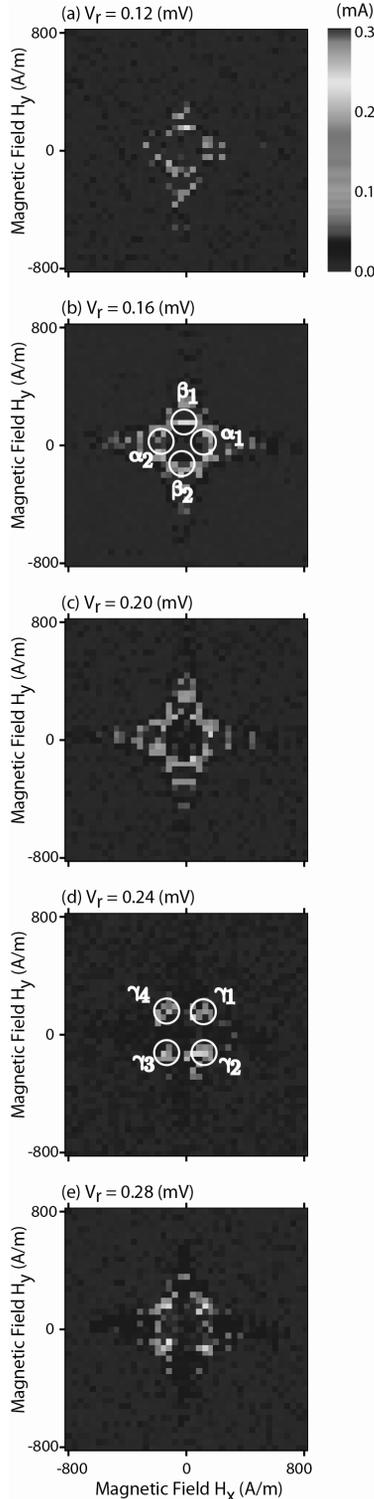


図7(a-e)有限電圧での電流ステップ

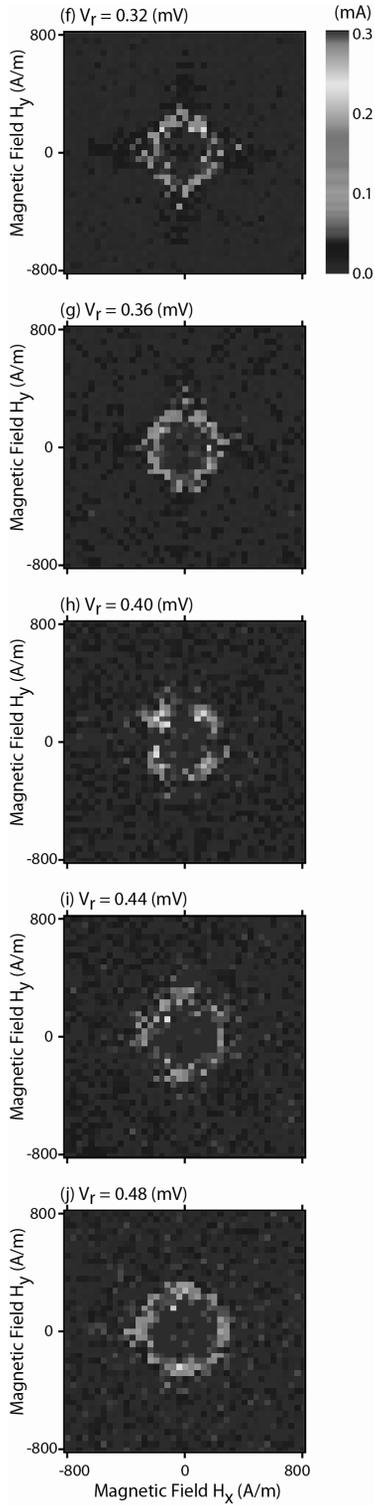


図 7(f-j)有限電圧での電流ステップ

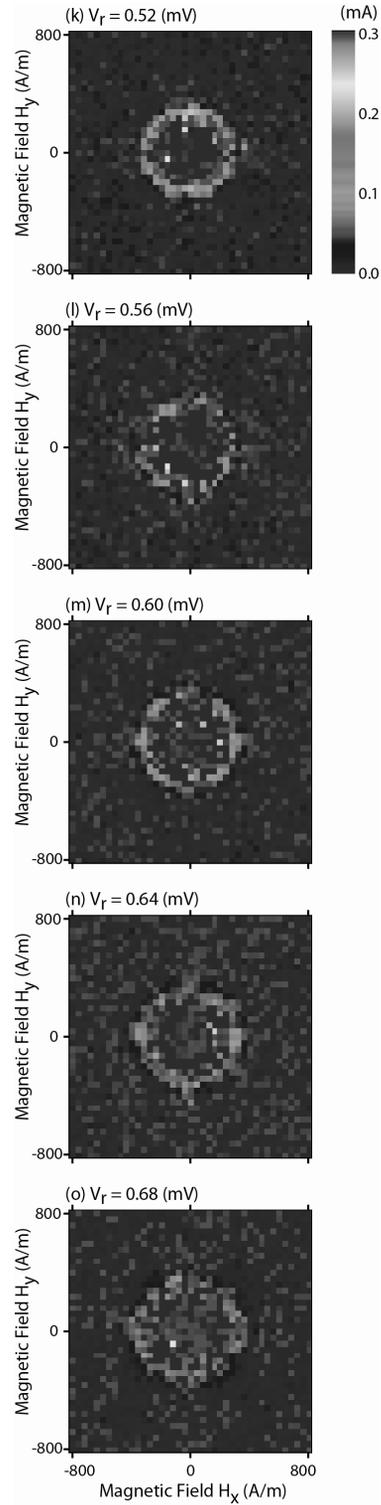


図 7(k-o)有限電圧での電流ステップ

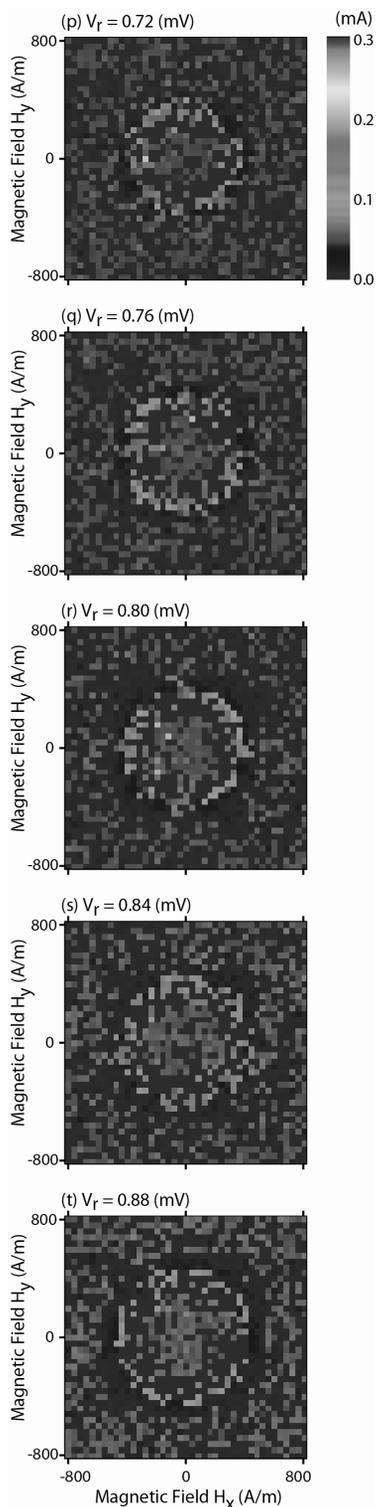


図7 (p-t)有限電圧での電流ステップ

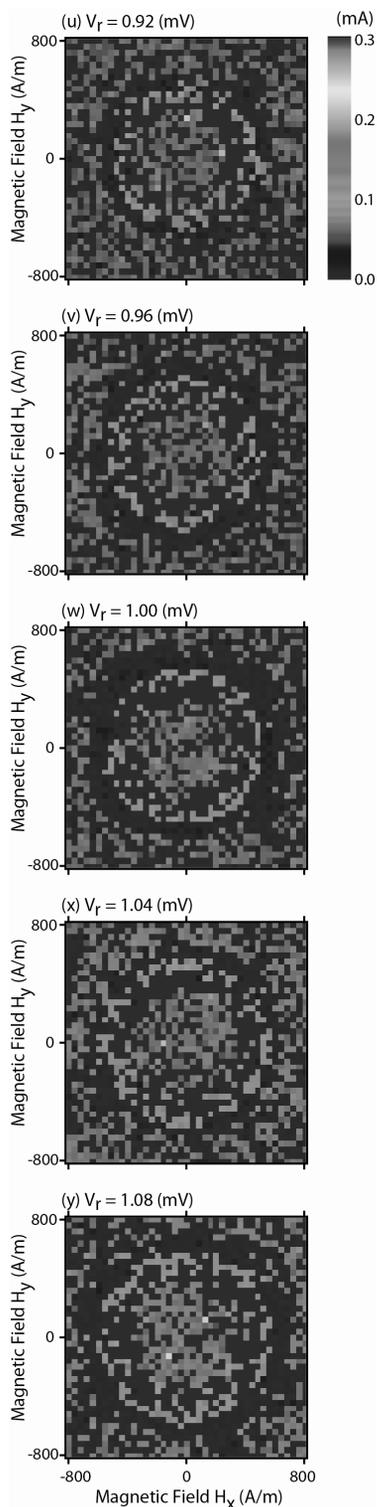


図7 (u-y)有限電圧での電流ステップ

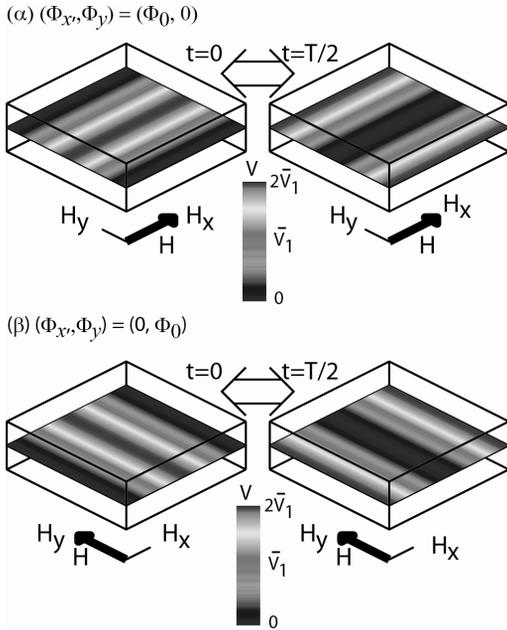


図 8 共振ステップの接合内電圧分布

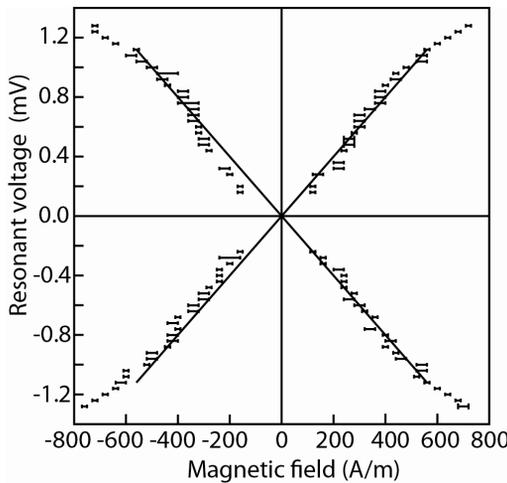


図 9 最大電流ステップが現れる電圧の外部磁界依存性

バリアとしてはアルミニウムの酸化膜に加えて、磁性薄膜を堆積している。この磁性薄膜の再現性のよい堆積のためには、バックグラウンド真空度を良くする必要がある。ベーキングのできない粗挽きドライポンプ、ターボ分子ポンプ下側（補助ポンプ接続側）半分を除き、装置全体が 150 度までベークできるようなベーキングジャケットで覆った。スパッタリング用膜厚計の水晶振動子の耐ベーキング温度が 105 度のため、通常 100 度で数時間ベーキングする。ベーキング後、ドライポンプ、ターボ

分子ポンプおよびイオンポンプにより排気し、10-6Pa の良いところに装置内真空度は到達する。

スパッタリングガンは、電気的な絶縁にセラミックを使い、リークなしで、ターゲットを水冷しつつ 300V の電圧を印加することが可能な構造である。スパッタリング用チェンバーに純アルゴンガスを約 1Pa 導入後、300V の負電圧をターゲットに印加することにより、直流放電が開始する。ニッケルの 90mm のターゲットを使用し、1nm/s の堆積速度でのニッケル薄膜のスパッタリングが可能となった。超伝導ニオビウム電極用薄膜作成も同様なプロセスでおこない、やはり、1nm/s の堆積レートが得られる。ニッケルをバリア領域に有する良質なトンネル接合を得るには至っていない。今後の課題としては、数 nm の厚さのニッケルを含む磁性薄膜の M-H 磁化特性等の基本特性を調べ、ニッケルをバリアとする酸化膜作成条件をさらに詳しく調べていく。熱酸化のみでなくプラズマ放電酸化も試み、トンネル特性を有する素子を得る。そのうち、このニッケル薄膜をストリップライン状に加工し、第 3 番目の制御電極としてトランジスタ動作をめざして素子製作をおこなっていく予定である。なお、図 2-図 9 は文献[13]より引用した。

本共同研究の機会を与えてくださった神奈川大学工学研究所および工学研究所所長、共同研究審査委員会に感謝いたします。

参考文献

[1] A. Barone and G. Paterno, "Physics and Applications of the Josephson Effect," Wiley-Interscience, New York, (1982)  
 [2] R.L. Peterson, *Cryogenics*, Vol. 31, Pages 132- (1991)  
 [3] J. G. Gijsbertsen, E.P. Houwman, B.B.G. Klopman, J. Flokstra, H. Rogalla, D. Quenter, S. Lemke, *Physica* Vol. C249, Pages 12- (1995)  
 [4] K. Kikuchi, H. Myoren, T. Iizuka, S. Takada, *Appl. Phys. Lett.*, Vol.77, Pages.3660- (2000)  
 [5] Akiyoshi Nakayama, Susumu Abe, Tatsuyuki Morita, Makoto Iwata, and Yusuke Yamamoto, *IEEE Trans.Mag.*, Vol.36, Pages 3511-(2000)  
 [6] A.Nakayama, S.Abe, T.Shoji, R.Aoki, and N.Watanabe, *Physica* Vol. B329-333, Pages 1493- (2003)  
 [7] Norimichi Watanabe, Akiyoshi Nakayama, Susumu Abe, Kunimori Aizawa, *J. Appl. Phys.*, Vol.97, Pages 10B116 1- May (2005)  
 [8] N.Watanabe, A.Nakayama, S.Abe, K.Aizawa, *J. Appl. Phys.*, Vol. 97, Pages 10B116- (2005)  
 [9] Akiyoshi NAKAYAMA, Susumu ABE, Tetsuya SHIMOYAMA, Norimichi WATANABE, Hsu Jui-Pang and Yoichi OKABE, *J.Phys.Conf.Ser.* Vol. 43 Pages 1092- (2006)  
 [10] N.Watanabe, A.Nakayama, S.Abe, *J. Appl. Phys.*, Vol. 101, Pages

09G105- (2007)

[11] N.Watanabe, A.Nakayama, S.Abe, et.al, *J. Appl. Phys.*, Vol. 103, Pages 07C707- (2008)

[12] N.Watanabe, A.Nakayama, S.Abe, et.al., *J. Appl. Phys.*, Vol. 105,

Pages 07E312- (2009)

[13]A.Nakayama,S.Abe,N.Watanabe, *J. Appl. Phys.*, Vol.111. Pages 113907-1- (2012)