

超伝導ジョセフソン接合と超伝導量子干渉計の 電流電圧特性の2次元磁界変調

中山 明芳* 阿部 晋** 穴田 哲夫***

Two-dimensional Magnetic Field Modulation of Current-voltage Characteristics of Superconducting Josephson Junctions and Superconducting Quantum Interference Devises

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 が超電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 (クーパー 対) のトンネル効果

等がある.

このうち性質(v)については、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. 以来この共同研究で扱うような超 伝導体を2つ弱く結合した構造は「ジョセフソン接合」 と呼ばれる.

*教授 電気電子情報工学科

Professor, Electrical, electronic and information engineering

**准教授 電気電子情報工学科

Associate Professor, Electrical, electronic and information engineering ****教授 電気電子情報工学科

Professor, Electrical, electronic and information engineering

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、3端子のトランジ スタ素子ではなく、超伝導体/バリア/超伝導体の構造を 基本とする2端子のジョセフソン接合を中心的な構成素 子として使っている。論理回路動作は、この2端子素子 を元に回路的に工夫することで得られ、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、ニオビ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

磁界センサーを応用とめざす超伝導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し、デジタルオシロスコープで電流電圧特性を計測することが可能となる。

3. 外部磁界による超伝導電流の変調

「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つの超伝導体の間の電位差が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導かれ、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(クーパー対)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/」のsinに比例し、

$$i = \sin \gamma$$
 (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 γ 」は、

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

である.ここでゲージ不変な位相差 γ 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の線積分である.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 $\gamma(d \rightarrow c)$ と、経路abに沿うゲージ不変な位相差 $\gamma(a \rightarrow b)$ との差分 $\Delta \gamma$ は、長方形abcdに沿う閉ループ $d \rightarrow c \rightarrow b \rightarrow a \rightarrow d$ 内を通過す

る鎖交する磁束 $\Delta\Phi$ の $2\pi/\Phi_0$ 倍であることになる。数式で 書くと

$$\Delta \gamma = \frac{2\pi}{\Phi_0} \Delta \Phi \tag{3}$$

である. 特に、長方形 abcd に鎖交する磁束が磁束量子 Φ_0 1 個分であれば、位相の増分 $\Delta\gamma$ は 2π 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 Lが接合を流れる。この Lは接合を流れる超伝導電流の臨界電流値(以下、単に超伝導電流 Lと記す)とも呼ばれる。

このように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 のとき、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わけ である。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 流の外部磁界変調特性 (dc ジョセフソン効果) 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 形似の接合について 調べられてきている。ただしこれまで、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、 $I_c H(H_x, H_y)$ 特性を調べること を提案していて、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(5-13)。

4. 超伝導サンドイッチ接合を流れる超伝導電流

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、正方形の接合を例に考えて みる。製作した正方形の接合の構造を図1に示す。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 200,5,50nm のニオビウム/アルミニウム・アルミニウム酸化膜/ニオビ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1に示すL×L=50 μ m $\times 50$ μ 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 一後での溶液中の陽極酸化法で決めた。素子を測定するため、さらに 50nm の厚さのニオビウム膜を堆積し、化学エッチング法により、ワイヤリング層としている。このワイヤリング層に 25μ m の太さのアルミニウム線を超音波ボンディングして、素子特性が 4 端子法で測定できるようにする。

測定は GPIB (General Purpose Interface Bus)システムで制御され、最大 3000A/m の磁界を発生させることができる H_x 及び H_y 用ヘルムホルツコイル対と、最大 8000A/m の磁界を発生させることができる H_z 用ヘルムホルツコイル対に、直流電源により電流を流した。素子に加える外部磁界を階段的に変化させることで 2 次元的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。

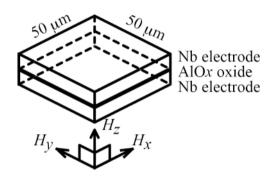
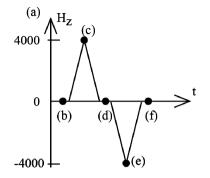


図1. 正方形接合

超伝導体の Nb でサンドイッチされた構造の中間の薄いアルミニウム酸化膜の正方形接合面のそれぞれの辺に平行に H_x H_y 成分を有する磁界 H を外部よりヘルムホルツコイルで加える。



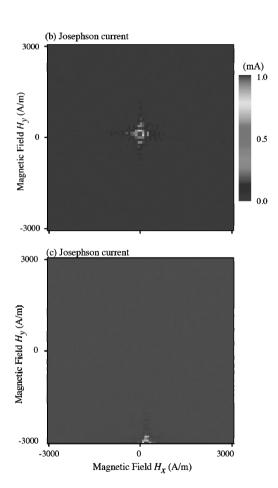


図2. (a) 垂直磁界の履歴 (b) 初期状態の I_c - $H(H_x, H_y)$ 磁界特性 (c) 垂直磁界を 4000A/m 印加中の磁界特性

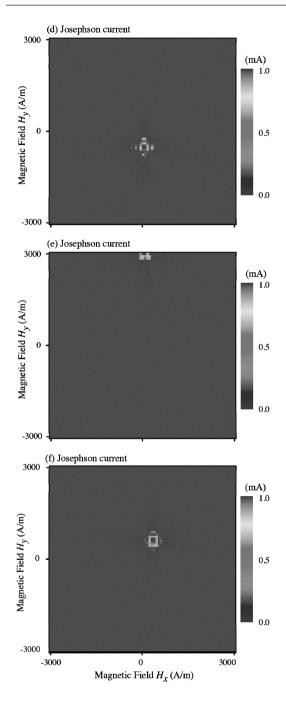


図2(続). (d) 4000A/m 除去後の磁界特性(e) - 4000A/m 印加中の磁界特性(f) - 4000A/m を除去後の磁界特性

測定においては、外部磁界 $H(H_x, H_y)$ をパラメータとして特定のステップで変化させ、各々の外部磁界において超伝導接合の電流電圧特性(I-V 特性)をデジタルオシロスコープで取り込む。後ほどその I-V 特性を、超伝導電流については0V(測定時のオフセットを考慮)を中心に、また、有限電圧 Vr での共振ステップは電圧 Vr を中心電圧として、 ± 0.02 mV の窓を設け、その窓内での最大値、最小値から超伝導電流の値と共振ステップの値を読み出すことになる。

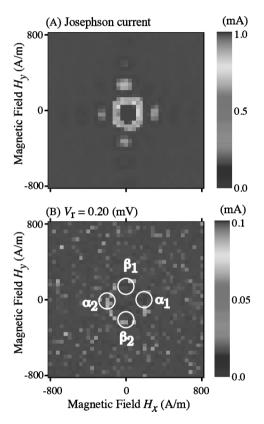


図3. 垂直磁界 H_z 印加前の (A) I_c - $H(H_X, H_y)$ 磁界特性および (B) I_{step} - $H(H_{X}, H_y)$ 磁界特性

この超伝導接合が正方形の場合の I_c -H(H_x , H_y)磁界特性を±3000A/m の広い範囲で 60A/m ステップで測定した結果を図 2に示す。この測定では、接合に垂直な磁界 H_z も時間軸を横にすると図 2(a)に示すような三角形状で変えた。垂直磁界を加える前の初期状態の I_c -H(H_x) 磁界特性の測定結果を図 (b)に示す。原点に接合辺に平行な H_x , H_x 2方向のフラウンホーファー特性を示す。

図(c) は垂直磁界を 4000A/m 印加中の磁界特性であり、ピークが第 4 象限の縦 H_r 軸の- 4000A/m に近いところに移動している。図(d) は 4000A/m 除去後の磁界特性であり、ピークが原点付近に戻っているが、 I_c 最大値を示す位置 (H_x , H_z) は第 4 象限内にある。 図(e) は - 4000A/m 印加中の磁界特性で、ピークは縦 H_z 軸の+4000A/m の位置に移動している。図(f) は - 4000A/m を除去後の磁界特性であり、再度ピークは原点付近に戻っているが、その位置はちょうど原点ではなく第一象限にある。

次に $I_cH(H_s, H_s)$ 磁界特性と有限電圧 0.20mV での 共振ステップの $I_{stop}H(H_s, H_s)$ を、-800</br> A/m, -800</br> A/m, -800</br> A/m, -800
 -800<br/

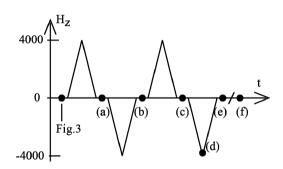
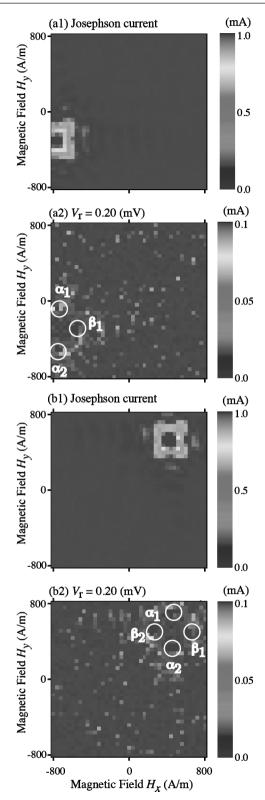
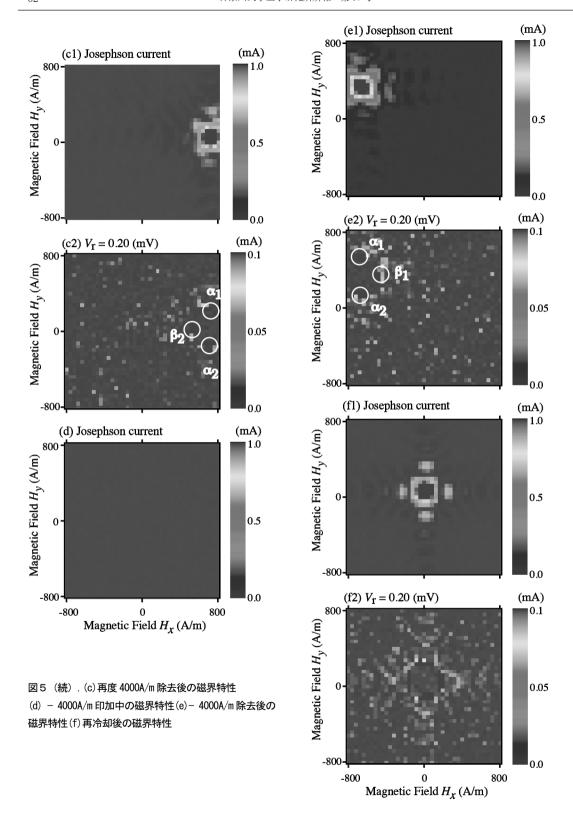


図4. 接合への垂直磁界の履歴 (a)-(f)は図5の特性を 測定した時点を示す。

図5(右). (a) 4000A/m 除去後の磁界特性(b) - 4000A/m を除去後の磁界特性





超伝導電流の外部磁界変調特性の測定結果を説明するには、前の第3節で考えたように、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仮定する。種々の向き及び大きさの外部磁界を正方形接合の接合面に加えたとき、接合面内の超伝導電流の分布は外部磁界と垂直方向に空間変調する。電磁場のベクトルボテンシャル Aの周回積分はその中を貫く磁束量に等しいので、仮に 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。逆に 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。

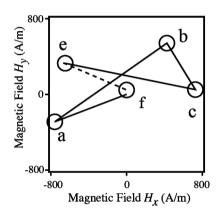
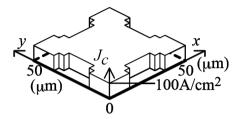


図6. メインピークの位置の変わり方 図5の各 I_cH (H_x, H_y) 磁界特性で得られたメインピークの位置を (H_x, H_y) 平面上に示した。 (a) - (c) 及び (e), (f) は図5の記号と対応

次に接合への垂直磁界 H_z を図 4 に示すように 0-(+4000)-0-(-4000)-0-(+4000)-0-(-4000A/m)-0 と変え τ 、それぞれの時点での I_c $H(H_x, H_x)$ 磁界特性と共振ステップの I_{step} $H(H_x, H_y)$ を、-800< H_x <+800, -800< H_y <+800A/m の範囲で 40A/m ステップ走査で測定した。この図 4 の垂直磁界 H_z 履歴の点(a),(b),(c),(d),(e)での I_c $H(H_x, H_y)$ 磁界特性と I_{step} $H(H_x, H_y)$ 磁界特性をぞれ ぞれ図 5 (a-e)に示す。これらの測定の後、一度素子を室温に戻してニオビウム電極を常伝導の状態にした後、再 び電極を超伝導状態にして測定したのが図(f)である。この図において、(a1),(b1),(c1),(d),(e1),(f1) は I_c $H(H_x, H_y)$ 磁界特性を示し、(a2),(b2),(c2),(e2),(f2) は有限電圧 0.2 (mV) での I_{step} $H(H_x, H_y)$ 磁界特性を示す。

(A) Assumed distribution of Josephson current density J_c



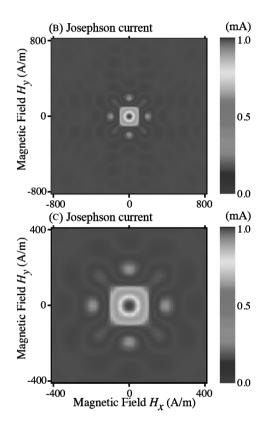


図7. (A) 接合の辺の電流密度が極端に減少した場合の電流分布、(B) この電流分布から数値計算した I_c - $H(H_x, H_y)$ 磁界特性、(C) ± 400 A/m の領域の拡大

これら L_{top} **H**(H_x , H)磁界特性の測定結果の図 5 において(α 1),(α 2),(β 1),(β 2)はそれぞれ共振モード(n_x , n_y)= (1,0),(-1,0),(0,1),(0,-1)である。ここで(n_x , n_y)の数 n_x および n_y は、外部磁界が与えられた状況下で超伝導接合からなる共振器構造を x 方向、y 方向に貫く磁束量子の数で、マイナスは逆方向であることを示す。(1,0),(-1,0)モードでは、正方形の接合領域において加えられた x 方向外部

磁界に垂直なy方向に変調された電磁波1波長分とそれに伴う上下電極の超伝導量子状態位相の差の変化 2π があると考えられる。一方で(0,1),(0,-1)モードでは、接合領域においてy方向外部磁界に垂直なx方向に変調された電磁波1波長分とそれに伴う上下電極の超伝導量子状態位相の差の変化 2π があると考えられる。

垂直磁界 H_a を図4に示すように0-(+4000A/m)-0-もしくは0-(-4000 A/m)-0-と加えるたびに、L-H(H_x , H_y)の磁界特性のメインピークの位置は、第3象限の a、第1象限のb、 H_x 軸上のc、第2象限のeと変わっている[図6]。また、外部磁界を加えている最中の L-H(H_x , H_y)磁界特性は図 5(d)のように、測定した範囲では、L-の値は30 μ A以下であり、ピーク位置は測定した \pm 800A/m の領域の外にでてしまっていると考えられる。これは、より広い範囲 \pm 3000A/m の測定において、L-のピーク位置が測定領域の端に見られた実験結果からも、そのように考えざるを得ない。

次に図5の(a)から(f) までの I_c H(H_x , H_y)の磁界特性 が単純なフラウンホーファーパターンの積でなく、 I_c **H** (Hx, Hy)の4隅が跳び出ていることに注目する。このよ うなずれについては再度種々の素子について実験中であ る。以下述べるのはこのような4隅の尾根が強調される 特性を説明するための、ひとつの仮説である。すなわち、 接合内のトンネル電流分布を図7(A)に示すように仮定 する。すなわち、磁束の侵入により、接合の辺の電流密 度が他の部分に比べて極端に減少した電流分布を設定し、 外部磁界を加え磁界に垂直に接合位相差を空間変調する。 このように分布する超伝導電流を正方形の接合全体につ いて合計すると、接合を流れる超伝導電流を数値として 求めることができる。 $H(H_x, H_y)$ を変えて求めた $I_cH(H_x, H_y)$ H,)の磁界特性の数値計算結果が図(B)で、図(C)は原点の 周りの拡大図である。4つの尾根が強調された磁界特性 の説明に成功している。現在さらに素子を変えた実験お よび Hz履歴を種々に変えた実験をおこなっている。

5. 超伝導量子干渉計

超伝導サンドイッチ接合の下側のベース電極同士、および上側のワイヤリング電極同士を超伝導体で接続すると、超伝導量子干渉計構造になる。超伝導量子干渉計は、両方の接合と下側の電極、上側の電極で構成される大きなループが、外部磁界を捕まえる大きな有効面積を有する。特に縦方向(厚さ方向)の超伝導量子干渉計と、基板平面内に超伝導ループを有するタイプの超伝導量子干渉計を製作中である。特に2つの接合の間の距離を50、150、250μmと変えることで、すでに3通りの磁束捕獲

断面を有する超伝導量子干渉計の作製に成功した。この 磁界特性の測定と解析は現在進行中である。また、超伝 導量子干渉計の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ている。

これまで述べたジョセフソン効果は、超伝導電流の磁 界変調、いわゆる dc ジョセフソン効果と言われるもので ある。一方で68GHzのマイクロ波発生器を使い、マイク 口波を素子に照射したときに一定電圧でステップが現わ れるという、「ac(交流)ジョセフソン効果」の測定もおこ なっている。今のところ、室温から液体ヘリウム中の素 子へのマイクロ波電力供給は 70GHz 用のセミリジッド ケーブルを使い、液体ヘリウム側の終端は解放終端であ る。しかしこの照射方法で、非線形特性が強い特性優良 な素子については、超伝導電流の減少は確認されるが、 ステップが生じるまでには至っていない。より非線形が 弱い I-V 特性を有する素子に被測定対象を変更すること、 解放終端の形状を変えること、また、別の電力供給照射 方法を試す等により、ステップ特性が生じるに十分な電 力を超伝導素子に与えることを今後試みる。なお、図2 一図7は文献(14)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)
- (14)A.Nakayama,S.Abe,N.Watanabe, *Microelectronic Engineering*., Vol.108. Pages 93-98 (2013)