

超伝導および強磁性トンネル接合の作製

研究代表者 工学部 諸橋 信一

研究目的

トンネル接合は僅か1 nmの極薄膜であるトンネルバリアの両側を薄膜で挟み込む構造をもつ。挟み込む薄膜の種類による分類、研究開発状況及び期待される応用について概略する。

(A) 超伝導トンネル接合

挟み込む薄膜が超伝導薄膜である。ミリ波、サブミリ波及びX線の入射により数meVと非常に小さなエネルギーギャップをもつ電子対が容易に破壊されて多数の準粒子が生成され、トンネルバリアをトンネルする。理論的には6keVの入射X線で2.5 eVのエネルギー分解能が可能とされている。ミリ波、サブミリ波及びX線観測が可能な高性能な量子型検出器への応用が期待されている。

高性能なX線検出器の開発を目指し、Wood等によってSn接合を用いた実験が70年代始めに行われたが、 α 線入射による信号が判別できる程度であった。1986年にTwerenboldとZehnderによって5.9 keVのX線で65 eVのエネルギー分解能が得られた。その後、素子形状を工夫することで、1988年にRothmundとZehnderはエネルギー分解能41 eVを得た。これらの値はいずれもSi半導体検出器より優れた性能を示しているが、超伝導X線検出器の動作原理に基づく理論予測値2.5 eVと比較すると、かなり大きな値となっている。Sn接合による実験での性能の向上には、高品質接合作成技術によるリーク電流の抑制および、動作温度の低減下による熱的励起による準粒子電流の抑制があげられる。同時に、接合の形状の工夫によるエネルギーの拡散の影響を小さくした効果もある。これらの工夫によってSn接合では優れた性能が得られてきた。しかしながら、この接合はIBMを中心にデジタル応用の研究で精力的に研究されてきたPb合金接合同じく、室温での保存中に時間とともに特性の劣化が起き、更には、室温と極低温

での熱サイクルによって特性の劣化が起きるといふ致命的欠陥をもっており、実用的な検出器とはなりえなかった。

近年、デジタル応用の回路用素子として、Bell研のGurvitch等、国内では富士通の諸橋等によってNb/AlO_x-Al/Nb接合が開発されてきた。小さなリーク電流、臨界電流の高均一性および安定性を示すことから、デジタル集積回路用に広く用いられ、Pb合金接合では考えられなかった規模の回路が作製され、高速動作が実証されている。この接合を用いて、高性能で安定な超伝導X線検出器を目指して、多くの実験がおこなわれてきている。エネルギー分解能が半導体検出器を上回り、Sn接合同程度を示すようになったが、超伝導X線検出器の動作原理に基づく理論予測値には及ばない。

デジタル応用では日本がリードしたにもかかわらず、検出器としての研究は欧米が断然リードしており、欧州のESTEC、Cambridge大学、Twente大学等、米国ではNASA、NIST、Stanford大学等が精力的に研究を行っている。

(B) 強磁性トンネル接合

強磁性トンネル接合は構造的には、超伝導トンネル接合同一構造をとり、唯一の違いはトンネルバリアの両側が超伝導薄膜から強磁性薄膜に置き換わった構造である。電子はスピンを保持したままトンネルバリアをトンネルする。大きな磁気抵抗効果が得られることを利用した高密度・高速の不揮発性メモリとしての応用が期待されている。

磁性体をメモリへ応用しようとする考えはかなり古くからあったが、1995年東北大学の宮崎等によるFe/AlO_x-Al/Fe接合による強磁性トンネル効果の報告により研究が新展開してきた。国内の大手企業が磁気ヘッド用センサーとしての期待から基礎研究を行っている。MRAMへの応用は米国IBMを中心として先行しているのが現状である。皮肉なことに、IBMでMRAM研究開発に従事しているのは、超伝導トンネル接合のデジタル応用研究を進めていたグループである。

デバイスとしてみた時、トンネル接合は先に述べたサンドイッチ構造のみでは機能しない。フォトレジストプロセスによるパターンニングと反応性イオンエッチング等によるミクロンサイズの接合の微細加工、それに続く層間絶縁膜、配線層の堆積と微細加工によりデバイスが完成する、トータルに完成された作製技術が必要とされる。超伝導トンネル接合を例にあげても、デジタル、アナログ応用の両方を含めて、Nb/AlO_x-Al/Nb接合の作製報告例は、国内では電総研、天文台、理研、東大、東北大、名大、富士通、日立、日電、三菱電気と限られている。

本研究の目的は、始めに述べたような応用を可能とするデバイスとしての高品質・高機能なトンネル接合を作製することにある。

研究成果

強磁性トンネル接合については研究に着手しはじめたばかりであり、主として超伝導トンネル接合に関する研究成果について述べる。

(A) 超伝導トンネル接合

1. 量子型検出器としての動作原理と課題

図1に示すように、超伝導トンネル接合にX線の入射によって励起された準粒子がトンネルバリアをトンネルすることで、接合の電流-電圧 ($I-V$) 特性の準粒子電流が変化する。X線照射前の $I-V$ 特性の準粒子電流の起源は熱的に励起された準粒子のトンネリングである。あらかじめ接合にバイアス電流を印加しておくことによって、この変化を電圧変化として取り出すことができる。トンネルする準粒子数が多いほど高性能な検出器が実現される。しかしながら、励起された準粒子全てがトンネリングするわけではなく、

- ・電子対への再結合
- ・超伝導薄膜の粒界散乱

等によりトンネリング効率が低下する。準粒子のトンネリング効率の向上させる接合構造の工夫及び電極作製が求められる。

$I-V$ 特性の準粒子電流部分には接合の界面の乱れ及びトンネリングバリアの絶縁性に起因するリーク電流が上乘される。このリーク電流が大きいと、X線照射前後の準粒子電流の変化を観測することはできない。接合は断面でみた場合、僅か1

nmの極薄膜であるトンネルバリアの両側を超伝導薄膜で挟む構造で、接合面積は数 μm 角の多層構造である。界面の乱れのない接合構造を作製するためには、nmレベルの接合界面制御を可能とする接合作製技術と微細加工技術が求められる。

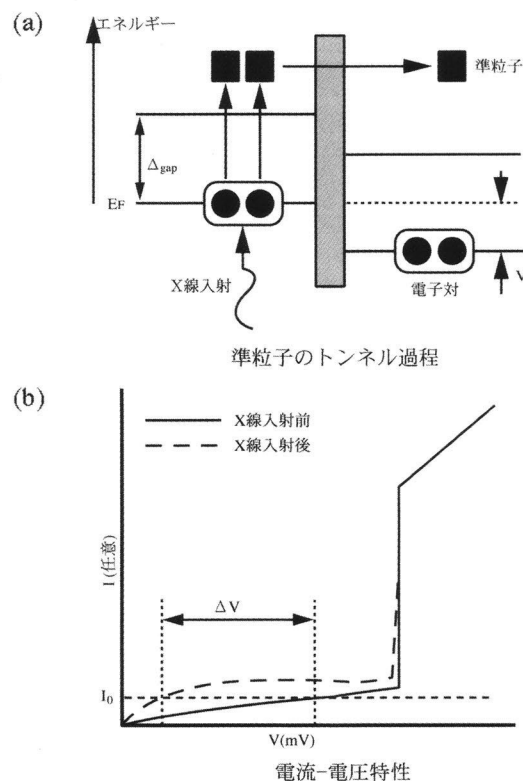


図1 量子型検出器としての動作原理

(a)はX線入射による準粒子生成とトンネリング、(b)は準粒子のトンネリングによる素子特性変化を表す。

2. 接合構造作製と素子特性

完全に界面の乱れのない接合構造を作製することは困難であり、本研究では以下の2つの方法、

- ・超高真空電子ビーム蒸着
- ・対向ターゲット2元スパッタ

による接合構造作製を試みた。各作製方法で得られた実験結果について述べる。

2.1 超高真空電子ビーム蒸着による接合作製

使用した超高真空電子ビーム(EB)蒸着装置の模式図を示す(図2)。VBLに設置されている装置で、製膜室と試料交換室からなるロードロック方式で、 4×10^{-9} Paの到達真空度で独立した3つのEB蒸着源をもつため、真空を破ることなくIn-situでのNb/AlO_x-Al/Nb超伝導トンネル接合作製が可能

能である。

Si(100)基板上にNb下部電極薄膜(100 nm)、連続でオーバーレイAl薄膜(5 nm)を堆積した。Al薄膜堆積後、大気暴露によりAl薄膜表面を酸化させてトンネルバリアAlO_xを形成した。再び装置にいれ高真空下でNb上部電極薄膜(100 nm)を堆積してNb/AlO_x-Al/Nb接合構造を作製した。構造作製中は基板加熱はしておらず、作製したNb, Al薄膜とも多結晶薄膜である。また、Nb薄膜の堆積速度は1.2, 2.4 nm/minの2種類で、Al薄膜は0.6 nm/minの堆積速度で製膜した。

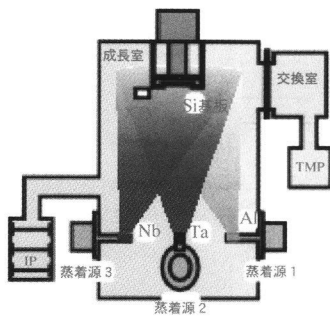


図2 超高真空EB蒸着装置

Nbは酸素と結合しやすく、酸素1 at%取り込んだだけで、その超伝導転移温度 (T_c) が9.2 Kから10%も下がることが知られている。堆積中の酸素あるいは水分の取り込みの影響を小さくするために、大きな堆積速度 (~100 nm/min) でNb薄膜を作製することが一般的である。本実験では約1/100の非常に遅い堆積速度でNbを製膜しているにもかかわらず、酸素等の取り込みによるT_cの下落は観測されていない。その理由について、

- ・ Hertz-Kundsenの式を用いて見積もった水分吸着層形成速度はNbの堆積速度と比較して3桁以上小さい、
- ・ 2次イオン質量分析(SIMS)から Nb薄膜内に取り込まれている酸素、水素等は非常に少ない、

ことから、非常に遅い堆積速度でもNb膜厚50 nm以上で T_c = 9.3 Kと良好な超伝導特性をもつNb薄膜が作製できることを平成11年度VBL成果報告会で発表した。

作製したNb/AlO_x-Al/Nb接合構造をデバイスとして完成させるためには、図3に示すようなフォ

トリジストプロセスによるパターンニングと反応性イオンエッチング等によるミクロンサイズの接合の微細加工、それに続くSiO₂層間絶縁膜、配線層の堆積と微細加工が必要である。Nb薄膜のエッチングはフロン系のガスのCF₄+5%O₂、SiO₂層間絶縁膜のエッチングはCHF₃+30%O₂を用いた反応性イオンエッチング(RIE)で行った。AlO_x-Al層はRIEでエッチングできないため、カウフマン型イオンビーム装置によるArイオンミリングで行った。加工条件の詳細は平成11年度VBL成果報告会で既に発表しているので割愛する。

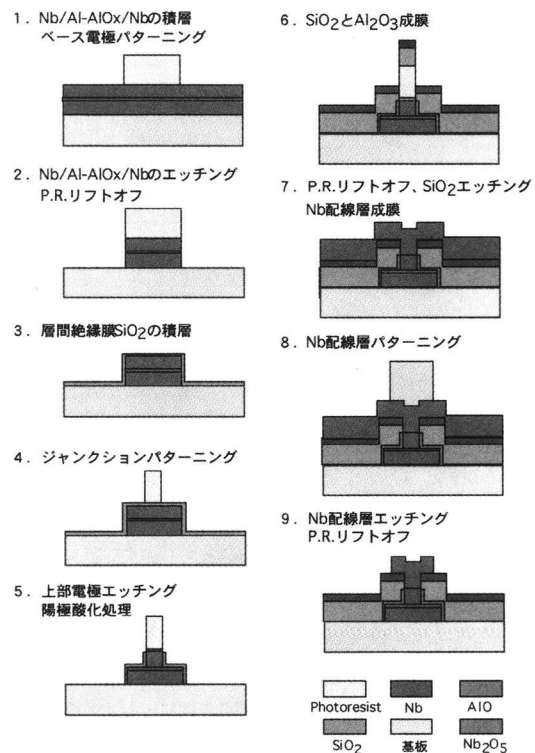


図3 トンネル接合作製プロセス

図4-(a), (b)はそれぞれNb薄膜を堆積速度1.2 nm/min, 2.4 nm/minで製膜した時の4.2 Kでの超伝導トンネル接合の素子特性を示す。いずれもギャップ構造及びジョセフソン臨界電流が観測され超伝導トンネル接合の素子特性が観測された。Nbの堆積速度を大きくすることで、ギャップ電圧 (V_g) = 2.8 mVでの立ち上がりは急峻になったものの、本来の準粒子電流部分でのサブギャップリーク電流の寄与がかなり大きい。R_{SG}/R_{NN}値はそれぞれ3.7, 3.3と、高品質な素子特性のレベル (R_{SG}/R_{NN}値>15) にはほど遠い値を示した。ここで、ノーマル抵抗 (R_{NN}) は5 mVで、サブギャッ

プリーク抵抗 (R_{SG}) は2 mVで定義する。 R_{SG}/R_{NN} は素子特性を示す指標で、その値が大きいほどサブギャッププリーク電流の小さな優れた素子特性を表す。

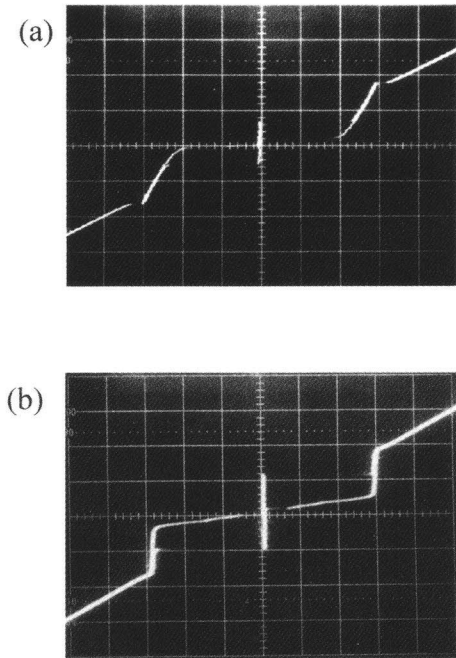


図4 超高真空EB蒸着で作製した Nb/AlOx-Al/Nb接合の素子特性 (4.2 K)
Nb堆積速度：(a) 1.2 nm/min, (b) 2.4 nm/min,
接合面積：(a) 20 μ m角, (b) 5 μ m角,
縦軸：(a) 1 mA/div, (b) 0.5 mA/div,
横軸：1 mV/div共通

この原因として、超高真空EB蒸着による接合構造作製時の基板冷却が不十分であることによる NbとAlとの間の粒界拡散による接合界面の乱れが生じているためであると考えられる。僅か数 nm程度のAl/Nb接合界面の乱れでもサブギャッププリーク電流が大きくなるのが、諸橋による超伝導の近接効果理論を用いた理論検討及び接合界面の断面TEM観察から明らかになっている。Nb堆積速度を変えてもNb薄膜に生じている引張応力の大きさは変わらなかったことから、接合加工時の応力開放によるトンネルバリア層AlOxへのダメージの影響はあまりないものと考えられる。超高真空EB装置の構造上、基板冷却が困難なため堆積方法あるいはトンネルバリア材料などの検討が必要と考えられる。

2.2 対向ターゲット2元スパッタでの接合作製

研究目的の項目でも述べたように、Nb/AlOx-Al/Nb接合構造はスパッタで作製されるのが一般的な手法になっている。本研究では差別化を図るために特殊なスパッタ手法で接合構造の作製を試みた。

通常のスパッタでは、ターゲットと基板が向き合う構造をとる (図5-(a))。そのために γ 電子及び反跳Arイオンが基板へ入射することで基板へのダメージが生じることが懸念される。それに対して、対向ターゲット2元スパッタは、一对の正対するターゲット間にプラズマを閉じこめ、基板はターゲット面に垂直でプラズマ密度が低い位置に配置するために、 γ 電子及び反跳Arイオンによるダメージが軽減できることを特徴とする (図5-(b))。しかも、本装置は対のターゲットが2組備わっているために、*in-situ*でNb/AlOx-Al/Nb接合構造作製が可能である。また、本装置はスパッタ電源として直流(DC)及び高周波(RF)電源の両方を持ち、バイアスパッタも可能である。メインポンプはクライオポンプ (排気速度1500 l/sec) で到達真空度は 5×10^{-5} Pa, マスフローコントロールにより3系統の異なるスパッタ用ガスを装置内に導入できる。

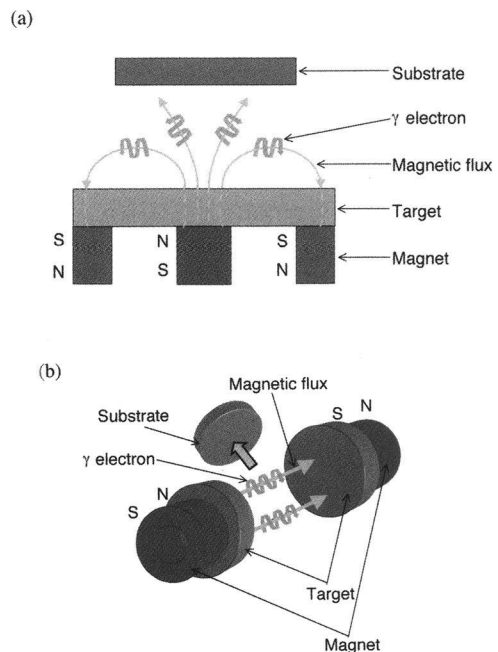


図5 スパッタ方式の比較
(a)は通常のon-axisマグネトロンスパッタ,
(b)は対向ターゲット式スパッタ

<Nb薄膜作製>

接合デバイスを作製するためには、最適な条件でNb 薄膜を作製することが必要である。蒸着と異なり、スパッタの場合は特にAr圧力で膜質が大きく変化すること、しかも本作製装置は特殊なターゲット-基板配置になっているため、Ar圧力を変化させた場合の、Nb薄膜の均一性（超伝導特性、膜厚）及び応力について詳細に調べた。ここでT-S間距離はターゲット中心から基板までの距離と定義した。Nb製膜はDC印加電流4.0 A, Ar圧力は0.13~2.34 Paの範囲、ターゲット-基板(T-S)間距離は90 mmで、いずれもSi(100)基板上に堆積した。

Nb堆積速度のAr圧力依存性を図6に示す。Ar圧力の減少とともに堆積速度は増加する傾向が見られた。この結果を基に、接合電極用のNb膜厚100 nmを各々のAr圧力で製膜して、Nb薄膜の特性を評価した。

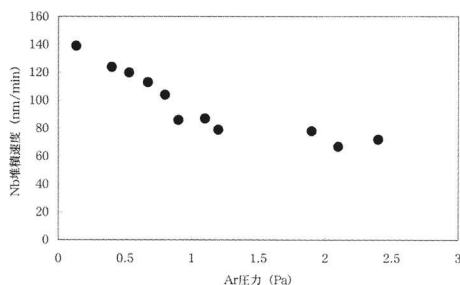


図6 対向ターゲット式スパッタでのNb堆積速度のAr圧力依存性

図7にTc及び残留抵抗比（RRR：室温の抵抗率/10 Kでの抵抗率で定義）、図8にNb薄膜の表面粗さ、図9にNb薄膜の応力状態、のAr圧力依存性の結果を示す。Ar圧力0.13~1.0 PaでTcはバルクNbのもつTcと同程度の値、膜質の良好さの度合いを示すRRRも3以上の値を示した。また、原子間力顕微鏡（AFM）によるNb薄膜表面粗さの測定ではAr圧力1.0 Pa以上では急激な表面粗さの増加が見られるが、Ar圧力0.13~1.0 Paでは表面粗さは1.0 nm程度と表面平滑性も良好な結果が得られた。X線回折結果から算出した応力はAr圧力の増加とともに圧縮応力→引張応力→圧縮応力と遷移していた。

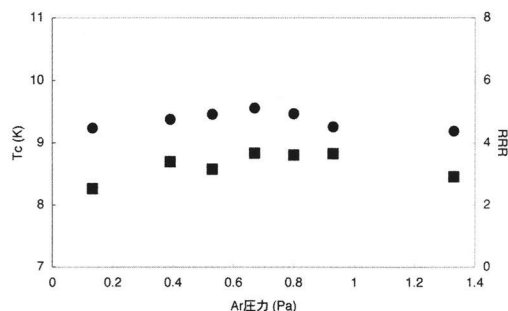


図7 Nb薄膜Tc及びRRRのAr圧力依存性

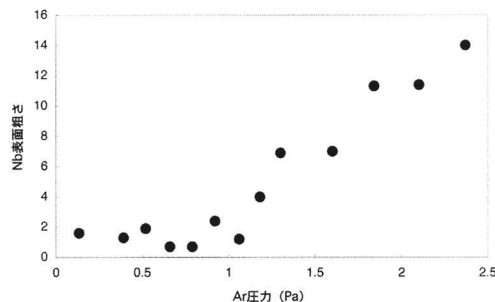


図8 Nb薄膜表面粗さのAr圧力依存性
●はTc, ■はRRRを示す。

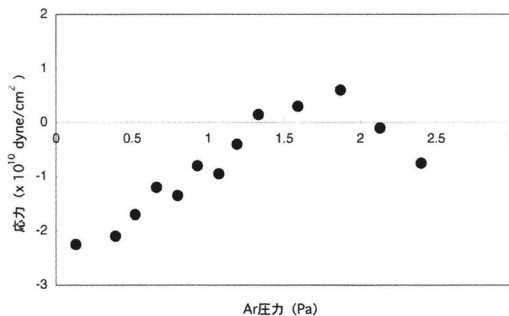


図9 Nb薄膜の応力Ar圧力依存性

超伝導特性及び表面平滑性の結果が良かったAr圧力0.13~1.0 Paの範囲で、5×5cmのSi基板上に堆積したNb薄膜（100 nm）の膜厚分布を調べた。対向ターゲットスパッタのターゲットと基板の配置の特異性を考慮して、基板中心からターゲット面に平行と垂直の2方向で1 cm間隔で、触針式段差計でNb薄膜の膜厚を測定した。

測る部分は予めテフロンテープを基板に十字に張り付け、Nb薄膜を堆積した。堆積終了後でもテフロンテープにはなんら損傷はみられず、基板がプラズマ外に配置されているためにγ電子や反跳Arイオンによる基板へのダメージが小さい、

という対向ターゲット式スパッタの特徴を反映していた。基板中心の膜厚を基準にした膜厚面内分布のAr圧力による変化を図10に示す。Ar圧力0.65 Paで最も小さな膜厚面内分布1.8%が得られた。この値は2インチSiウエファ上に接合デバイスを作製するのに十分許容できる値である。以上の結果からAr圧力0.65 Pa, T-S間距離90 mm, DC印加電流4.0 A,堆積速度110 nm/minでNb薄膜を作製することにした。

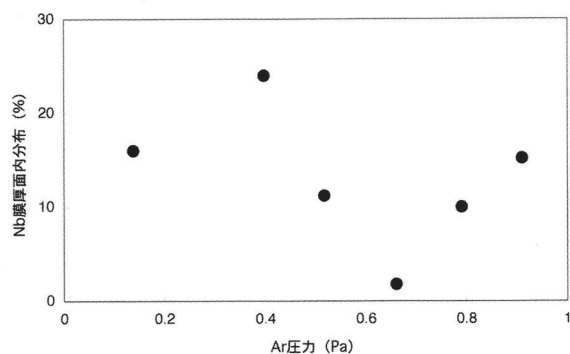


図10 Nb膜厚面内分布のAr圧力依存性

<Al薄膜堆積>

接合構造中で、オーバーレイAl層はトンネルバリア層AlO_xを形成するために必要である。僅か1nmのトンネルバリアをピンホールなく堆積することは困難で、ピンホールによって接合のI-V特性上、サブギャップ電流が増加してしまうためである。そのために、Nb下部電極堆積後に、その直上に10nm程度のAl層を堆積して、その表面を酸化してトンネルバリア層AlO_xを形成する手法をとる。従って、接合構造においては超伝導を弱める近接層として作用する。優れた素子特性を得るためには、この近接層の影響をできるだけ小さくすることが求められる。超伝導の近接効果の理論検討から、そのためには残留抵抗率の小さなAl薄膜が必要となる。対向ターゲット2元スパッタでRF印加電力500W, T-S間距離90mm一定でAr圧力を $6.65 \times 10^{-2} \sim 1.33$ Paと変化させて作製した膜厚50nmのAl薄膜の、10Kでの残留抵抗率 ρ_{10K} を評価した。フォトレジストプロセス及びカウフマン型イオンビーム装置を用いたArイオンミリングで、Al薄膜をパターン形成した。表1に ρ_{10K} のAr圧力依存性の結果を示す。Ar圧力を 6.65×10^{-2} Paで堆積した時、最も小さな値を示した。また、この時のAl堆積速度は22 nm/minであった。

表1 Al薄膜の残留抵抗率のAr圧力依存性

Ar圧力 (Pa)	ρ_{10K} (ρ Ω-cm)
6.65×10^{-2}	4.36
1.33×10^{-1}	4.38
5.32×10^{-1}	5.39
1.33	8.09

<Nb/AlO_x-Al/Nb接合作製>

対向ターゲット2元スパッタ装置で、2インチSi基板上に、始めにNb下部電極(100 nm)を堆積し、基板ホルダーを回転して*in-situ*でオーバーレイAl層(5 nm)を堆積した。堆積後、大気暴露してAl層表面を酸化してトンネルバリアAlO_xを形成した。装置に到達真空度 5×10^{-5} Pa後、Nb上部電極(100 nm)を堆積した。先に述べた条件でNb, Al薄膜を堆積した。次に、図3に示すような接合作製プロセスでデバイスを完成させた。

図11に4.2 Kでの超伝導トンネル接合の素子特性を示す。ギャップ構造及びビョセフソン臨界電流が観測されている。ギャップ電圧 $V_g = 2.8$ mVで、その立ち上がりも急峻である。図4で示した超高真空EB蒸着で作製した素子との大きな違いはサブギャップリーク電流が非常に小さいことである。図中×10とあるのは縦軸を10倍に拡大した時の特性を示している。ノーマル抵抗 $R_{NN} = 147$ Ω, サブギャップリーク抵抗 $R_{SG} = 6.15 \times 10^3$ Ωであった。素子特性を示す指標である R_{SG}/R_{NN} は42で4.2 Kでの素子特性としては最高水準の特性が得られた。対向ターゲット2元スパッタの特徴を反映して、乱れの小さな接合界面が形成されているためと考えられる。

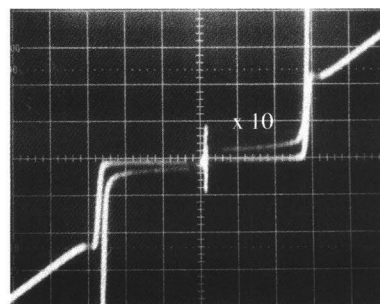


図11 対向ターゲット2元スパッタで作製したNb/AlO_x-Al/Nb接合の素子特性(4.2 K)
接合面積: $3 \mu\text{m}^2$, 縦軸: $10 \mu\text{A}/\text{div}$,
横軸: $1\text{mV}/\text{div}$

3. 高機能化のためのNb及びTa薄膜単結晶化

超伝導トンネル接合が量子型検出器として動作する上で準粒子のトンネリング効率を高めるには、

- ・超伝導薄膜内での粒界散乱を少なくする
- ・電子対の再結合の影響を小さくするために準粒子寿命の永い超伝導材料を選択する

ことが重要となる。

超高真空EB蒸着によるNb及びTa薄膜の単結晶化を試みた。Ta薄膜選定の理由は、

- ・超伝導理論による見積もりで準粒子寿命がNbの20倍程度永い、
- ・放射線吸収能がNbより6倍程度良い

ためである。

超高真空EB蒸着装置は基板加熱（最大800度）ができること、EB蒸着ではNbの堆積速度が非常に遅い（ ~ 1.2 nm/min）こと、からヘテロエピタキシャル成長が期待できる。ヘテロエピタキシャル成長を行うためには基板の選択が重要となり、種々の基板材料について検討した。詳細は割愛するが、化学的に安定で、Nbにたいして格子不整合が小さい（ $\sim 1.8\%$ ）、Nbの熱膨張係数（ $7.2 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ）と同程度の値（ $7.3 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ）をもつサファイアR面基板を選択した。

3.1 Nb薄膜の単結晶化

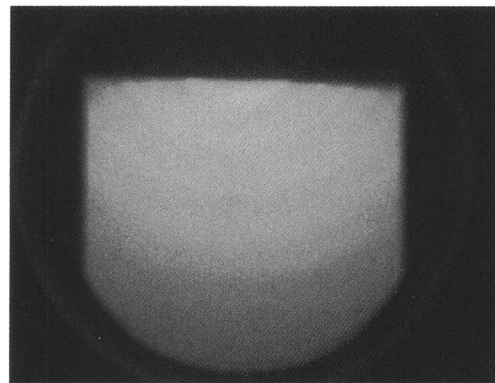
基板加熱温度を室温（RT）、350、500、700 $^\circ\text{C}$ 、堆積速度を0.6、1.2、2.4、3.6 nm/minの条件でNb薄膜（100 nm：接合電極厚さ）を作製した。

*In-situ*でNb薄膜の反射高速電子線回折（RHEED）観察を行った。室温で堆積した場合は、多結晶構造を示す同心円状のリングパターンが観測された（図12-(a)）。700 $^\circ\text{C}$ で堆積した場合は、ストリーク状のパターンが観測された（図12-(b)）。表面平滑性の優れたヘテロエピタキシャルNb薄膜が成長していることがわかる。

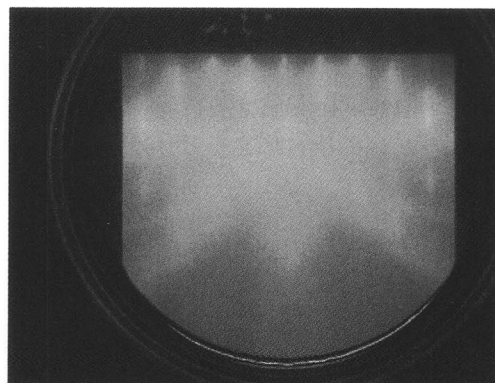
どの程度の表面平滑性をもっているかAFMによって表面粗さを評価した。室温で作製した多結晶Nb薄膜の5.8 nmの表面粗さに対して、基板加熱温度700 $^\circ\text{C}$ 、堆積速度1.2 nm/minで堆積した単結晶化Nb薄膜では表面粗さは0.8 nm程度と格段に向上していた。

超伝導特性（ T_c 及びRRR）の評価は、RIEによる微細加工でパターン形成をして、直流4端子法で行った。基板加熱により超高真空EB蒸着装置の到達真空度は1桁程度悪くなり、Nb堆積速度

が非常に遅いことでゲッターリングの影響が懸念されたが、いずれも T_c はバルクと同程度の値を示した。基板加熱の効果が最も顕著に現れたのがRRRである。室温で作製した多結晶Nb薄膜のRRR値が3程度であるのに対し、基板加熱温度700 $^\circ\text{C}$ 、堆積速度1.2 nm/minで堆積した単結晶化Nb薄膜ではRRR値約51が得られた。粒界の少ない良質の薄膜が形成されたと考えられる。



(a)



(b)

図12 Nb薄膜のIn-situ RHEEDパターン
(a)基板温度：室温、(b)基板加熱温度：700 $^\circ\text{C}$ 、サファイアR面上に堆積速度1.2 nm/minでNb薄膜（100 nm）堆積直後

3.2 Ta薄膜の単結晶化

Taはバルクでは体心立方晶（bcc）構造で $T_c=4.5$ Kの超伝導体であるが、薄膜では $T_c=0.5$ Kの正方晶（Tetra）になりやすいというやっかいな性質をもっている。bcc結晶構造をもつTa（bcc-Ta）薄膜の作製条件について調べた。基板加熱温度を室温（RT）、100、300、400、500、600、700 $^\circ\text{C}$ 、堆積速度を1.2、2.4、3.6 nm/minの条件でTa薄膜（100 nm：接合電極厚さ）を作製した。

AFMによる表面粗さの評価では、室温で作製

した多結晶Ta薄膜の6 nm程度の表面粗さに対して基板加熱温度500℃、堆積速度2.4 nm/minで堆積した単結晶化Ta薄膜では表面粗さは0.6 nm程度と格段に向上していた。

Tc及びRRRの評価は、パターン形成をせず、膜表面に端子を接続して直流4端子法で行った。基板温度300℃までのTa薄膜では4.2 Kまで超伝導状態への転移は確認されなかった。基板温度400℃以上で堆積したTa薄膜では、バルクTaと同程度のTc=4.5 Kの値を示した。X線回折による結晶評価から、基板温度300℃まではteta構造、400℃以上ではbcc構造になっていることを確認した。基板加熱温度500℃、堆積速度2.4 nm/minで堆積した単結晶化Ta薄膜ではRRR値が40~140を示し、良質なbcc-Ta薄膜が得られた。RRRのバラツキは面内での薄膜内粒界分布のバラツキを反映していると考えられる。

3.3 XPSによる接合構造評価

実際に、単結晶化NbあるいはTa薄膜を接合の下部電極に用いる場合、

- ・ NbあるいはTa薄膜表面での吸着層形成
- ・ オーバーレイアAl層の被覆性

について検討する必要がある。Alは低融点金属(融点660℃)であるために、500~700℃の基板加熱でのNbあるいはTa薄膜作製直後にその直上に堆積することは接合界面の乱れを増大させる。基板温度が室温に戻ってからAl薄膜を堆積する必要がある。室温に戻るまで 10^{-9} Paの真空中で約7時間放置しなければならず、薄膜表面の汚染(酸化)が懸念される。また、単結晶化したことでAl層が完全にNbあるいはTa薄膜表面を被覆する、いわゆるヌレ性も懸念された。これらについて光電子分光(XPS)分析で調べた。

先に述べた条件でAl(10 nm)/単結晶化Nb(100 nm)及びAl(10 nm)/単結晶化Ta(100 nm)を作製した後、装置から取り出しXPS分析を行った。試料はいったん大気暴露をしているためAl表面が酸化された、

- ・ AlOx-Al/単結晶化Nb
- ・ AlOx-Al/単結晶化Ta

となり、実際の接合構造で上部電極を除いたものと同じ構造となる。図13にAlOx-Al/単結晶化Nb

構造でのXPS Nb_{3d}スペクトルを示す。XPSスペクトルで202.5及び205.0 eVの金属Nbのd_{3/2}及びd_{5/2}電子からのピークのみが観測され、207.5及び210.5 eVの酸化Nbのd_{3/2}及びd_{5/2}電子からのピークは観測されなかった。

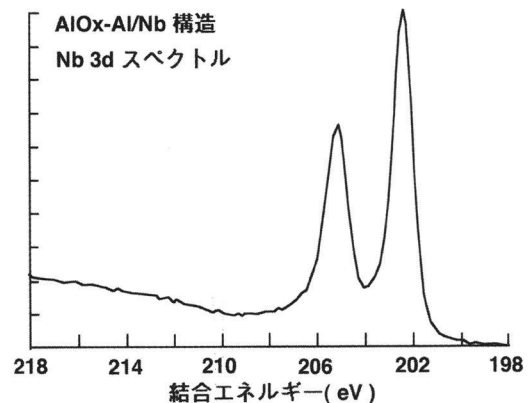


図13 AlOx-Al/単結晶化Nb構造でのXPS Nb_{3d}スペクトル

このことから、長時間放置によるNb表面の酸化あるいはAl層の被覆性の不完全さによるNb表面の酸化の問題は、単結晶化薄膜を接合電極に用いる場合、大きな問題にはならないことがわかった。同じ結果がAlOx-Al/単結晶化Taでも得られた。詳細は割愛するが、単結晶化薄膜では残留応力が多結晶薄膜より1桁程度大きく、接合作製時にこの残留応力の影響を小さくするような作製プロセスを検討することが必要である。

4. 高機能化のための接合構造

最後に本研究で提案している超伝導トンネル接合構造を図14に示す。この構造は

- ・ 上下電極とも準粒子寿命、放射線吸収能もNbより優れたTaの使用によるトンネル効率の向上
- ・ NbとTaの超伝導エネルギーギャップの違いを利用して接合構造にエネルギーバンド構造をもつ接合構造を作製して、接合内で生成する準粒子の生成・収集効率の向上
- ・ この接合材料・構造を単結晶化することで、膜内にある粒界散乱による準粒子のロスをなくすことで、準粒子の生成・収集効率の更なる向上を目指している。

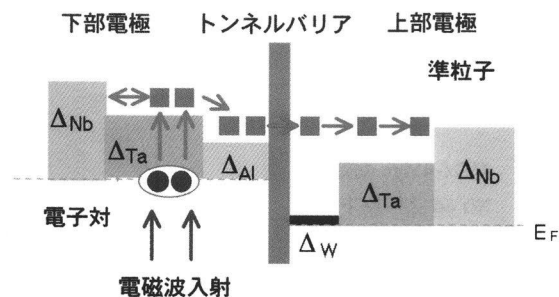


図14 本研究で提案している超伝導トンネル接合構造

作製したジョセフソン接合を国立天文台野辺山及び九州大学と共同で、量子型検出器としての動作評価をおこなう。国立天文台ではミリ波サブミリ波領域を、九州大学とはX線領域での評価を目指す。この結果を接合作製にフィードバックしながら、検出器として電極形状、構造等を最適化する。

(B) 強磁性トンネル接合

超伝導トンネル接合同じく研究課題として、

- ・原子オーダーの接合界面制御を可能とする多層構造の接合作製技術と微細加工技術

があげられる。動作原理から大きな磁気抵抗をもつことが必要であり、そのためには、強磁性薄膜の作製、トンネルバリアの材料選択と作製方法、更には、接合加工プロセスの検討が必要である。超伝導トンネル接合作製の経験を活かして研究を進める。

具体的には接合作製は、昨年度の本研究費でオーバーホールした対向ターゲット式スパッタ装置を用いる。本装置は基板がターゲット面に垂直でプラズマ密度が低い位置に配置するために電子衝撃やイオン衝撃が小さくできる、所謂、低温スパッタが可能であることを特徴としている。このことは、先に述べた対向ターゲット2元スパッタで作製したNb/AlO_x-Al/Nb接合の素子特性が非常に優れた素子特性を示したことから伺える。また、通常のマグネトロンスパッタでは強磁性体ターゲットを用いた場合、堆積速度の速い、所謂、高速スパッタは困難であるが、対向ターゲット式スパッタではその構成上、通常のマグネトロンスパッタが抱えている問題はなく、高速スパッタが可能である。トンネルバリアとしては当面AlO_xを考

えており、超伝導トンネル接合作製のAl薄膜堆積条件を用いる。今後は、対向ターゲット2元スパッタによる強磁性薄膜の高速・低温スパッタで、良質な薄膜作製及び強磁性トンネル接合構造の作製を行う予定である。

産業技術への貢献

宇宙空間に漂う低温で希薄な星間物質からの放射は、星間塵による減光が極めて小さいために波長300mmを越えるサブミリ波領域で最大となっている。半導体検出器では星間物質から放射されるこの波長帯の観測は不可能である。超伝導ジョセフソン接合を量子型検出器として用いることで、この波長帯での観測が可能となる。

ジョセフソン接合の検出器としての動作原理は、フォトン入射によって数meVと非常に小さい電子対のエネルギーギャップ（半導体のエネルギーギャップより3桁小さい）をもつ電子対が破壊され準粒子が生成されることに基づいている。理論的にはHubble宇宙望遠鏡等の既存の光学赤外線望遠鏡の限界を100倍程度上回る分解能の可能性をもつ。また、X線領域においても動作原理に基づく量子限界にある半導体検出器に比べて100倍以上の優れたエネルギー分解能が期待できる。Hubble宇宙望遠鏡等の既存の光学赤外線望遠鏡の限界を100倍程度上回る分解能の可能性をもつ高性能な量子型検出器が実現すれば、宇宙に漂う低温で希薄な星間物質からの可視光では観測しにくいサブミリ波領域の放射が観測可能になり、原始星、銀河等の様々な天体の構造と成因の解明、ひいては宇宙創成の謎に迫ることが期待できる。また、X線領域においても、素粒子、宇宙物理等の基礎科学分野だけでなく、量子限界にある半導体検出器をリプレースして、オージェ・ESCA・XPS等に代表される特性X線や荷電粒子を利用した材料・表面分析或いは、医療診断等への応用展開が期待できる。更には従来の半導体検出器では考えもされなかった新しい応用分野が開拓できる可能性を持っていると考えられる。

強磁性トンネル接合の両端に電圧を印加すると電子はスピンを保存したままでトンネルし、磁性薄膜層の磁化を互いに平行、反平行に切り替えると、トンネル効果によって大きな磁気抵抗効果が得られる。この特性を利用して磁気抵抗効果型ランダムアクセスメモリ（MRAM）への応用が考えられている。MRAMへの応用では片側の電極の磁性層スピンを固定し、もう一方の電極のスピ

ンを電流磁場で反転させて、固定スピンと平行、反平行をそれぞれ1および0として書き込み、読み出しは定電流下での強磁性トンネル接合の電極のスピンの方きの違いによる電圧差を利用して1および0を検出する。Si半導体のDRAMとフラッシュメモリを兼用した高速書き込み読みだし・高密度大容量の不揮発性メモリとして期待される。

研究発表

- 1) 武田典久, 川西正徳, 辻村昇吾, 原田啓太, 吉川尚志, 前川昇司, 大島直樹, 諸橋信一: 超高真空EB蒸着で堆積したNbジョセフソン接合用薄膜: 第60回応用物理学会学術講演会, 2a-ZW-11
- 2) 諸橋信一, 武田典久, 川西正徳, 辻村昇吾, 野口卓: 超高真空EB蒸着で堆積したNb薄膜の性質とジョセフソン接合作製; 第47回応用物理学会学術講演会, 31a-E-2
- 3) 川西正徳, 松尾充倫, 原田啓太, 樋口徹, 辻村昇吾, 諸橋信一: 対向ターゲット式スパッタによるジョセフソン接合用SiO₂膜の作製; 2000年電子情報通信学会, C-8-7
- 4) S. Morohashi, N. Takeda, S. Tsujimura, M. Kawanishi, K. Harada, H. Yoshikawa, S. Maekawa, N. Nakayama and T. Noguchi: Characteristics of Superconducting Nb layer fabricated using High-Vacuum Electron Beam Evaporation; Jpn. J. A.P, 40, p.576-579 (2001)
- 5) 伊村領太郎, 佐野尚樹, 川西正徳, 辻村昇吾, 諸橋信一: 超高真空EB蒸着によるNb, Ta薄膜の単結晶化; 2001年春季第48回応用物理学会学術講演会, 31a-ZE-3
- 6) 松尾充倫, 原田啓太, 樋口徹, 川西正徳, 諸橋信一: 対向ターゲット式スパッタによる層間絶縁膜SiO₂の作製; 2001年春季第48回応用物理学会学術講演会, 31a-ZE-4
- 7) S. Morohashi, A. Matsuo, S. Tsujimura and M. Kawanishi: Fabrication of SiO₂ Insulation Layer for Josephson Junction using RF magnetron Facing Target Sputtering Technique; Jpn. J. A. P in press
- 8) S. Morohashi, S. Tsujimura, M. Kawanishi, R.Imura, N. Sano, M. Suzuta, Y. takasago, S. Okamoto and N. Ohshima: High-vacuum EB Evaporated Single Crystal Nb and Ta Layers; 8th International Superconductive Electronics Conference (ISEC'01), June 19-22,2001, Osaka, Japan 発表予定
- 9) S. Morohashi, S. Eguchi, M. Nakamura, S. Fukuda and S. Maekawa: Nb and Al Layers for Nb/AlO_x-Al/Nb Josephson Junction Fabricated Using Magnetron Facing Target Sputtering; 8th International Superconductive Electronics Conference (ISEC'01), June 19-22,2001, Osaka, Japan 発表予定
- 10) S. Morohashi, A. Matsuo, T. Higuchi, K. Harada and M. Kawanishi: Fabrication of SiO₂ Insulation Layer for Josephson Junction using RF magnetron Facing Target Sputtering; 8th International Superconductive Electronics Conference (ISEC'01), June 19-22,2001, Osaka, Japan 発表予定
- 11) 諸橋信一: 特願2000-84163
- 12) 諸橋信一: 特願2001-094997

グループメンバー

氏名	所属	職 (学年)
諸橋 信一	工・機能材料	助教授
大島 直樹	工・機能材料	講師
野口 卓	国立天文台	助教授
石橋 健二	九大・工・応用原子核	教授
前川 昇司	工・機能材料	技官
川西 正徳	理工・機能材料工学	M2
辻村 昇吾	理工・機能材料工学	M2
原田 啓太	理工・機能材料工学	M2
吉川 尚志	理工・機能材料工学	M2
伊村 領太郎	理工・機能材料工学	M1
佐野 尚樹	理工・機能材料工学	M1
樋口 徹	理工・機能材料工学	M1
松尾 充倫	理工・機能材料工学	M1

連絡先

山口大学工学部機能材料工学科 諸橋信一
 mailto: smoro@po.cc.yamaguchi-u.ac.jp
 http://www.amse.yamaguchi-u.ac.jp/smoro
 TEL & FAX : 0836-85-9610