

論文の内容の要旨

論文題目 集積回路応用を目指した高温超伝導ジョセフソン接合の研究

氏名 佐藤 哲朗

ジョセフソン接合を用いることにより、超高感度の磁束計、精度の高い電圧標準、半導体素子をしのぐ超高速・低消費電力のスイッチング素子などを実現することができる。このうち超高速スイッチング素子として Nb/Al₂O₃/Nb 接合が開発され、これまでに 1 万個以上のジョセフソン接合を含む集積回路を構成した実績がある。超伝導集積回路における回路方式では、はじめはラッチングモードが用いられていたが、この方式では数 GHz のクロック周波数が限界であることが次第に明らかとなった。このような制約のない方式として、単一磁束量子 (Single Flux Quantum: SFQ) を用いた SFQ モードに基づく回路が提案され、現在はこちらの研究が主流となっている。

1986 年から数年間にわたって、銅を含む酸化物でそれまでになかった高い超伝導臨界温度 (T_c) を示す超伝導体が次々と発見された。従来の Nb などの低温超伝導体を用いた場合と比較すると、これらの高い T_c を持つ超伝導体を用いることにより、その使用に際して冷剤や低温維持のための設備が大幅に簡素化できる。そのうえ、大きな超伝導ギャップ電圧など高温超伝導体の優れた特性を用いることができるので、より高速の素子・回路の実現も可能となる。

しかし現在、銅酸化物系高温超伝導体を用いたジョセフソン接合は均一性・再現性

などの信頼性に乏しく、応用をめざした活発な研究開発はごく限られた分野にとどまっている。

本研究では銅酸化物系高温超伝導体を用いた集積回路を実現するための主要構成要素であるジョセフソン接合について、集積回路に適した高温超伝導接合を選び出し、その特性を初歩的な集積回路を構成するのに十分な水準まで高めることを目的とした。その際、接合特性の中でも現在特に問題となっている接合特性の均一性を高めることを主要課題とした。簡単なモデルを用いた考察から、集積回路への応用を考えた場合に目指すべき最低限の均一性の目標として、100個の接合で $1\sigma(I_c)=10\%$ のレベルを設定した。

集積回路に適した接合としては積層型とエッジ型を選択し、Bi-Sr-Ca-Cu-O系 *c* 軸配向積層型接合および Y-Ba-Cu-O系エッジ型接合の作製プロセス、微細構造評価、接合特性の解析をおこなった。バリア形成方法は高温超伝導の分野で唯一確立している成長法をまず採用した。この方法では得られる特性の均一性が不十分であったことから、別のバリア形成法である界面改質プロセスの確立にも取り組んだ。

まずジョセフソン接合として最も自然な形状を持つ積層型接合 ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x/\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_y/\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$) に取り組んだ。この接合ではきわめて薄い厚さを持つ均一なバリア層の成長技術が必要である。しかし、それに対して現在の酸化物薄膜成長技術は十分なものとは言えなかった。成長させたバリア層は原子レベルで急峻な界面を有する高品質な積層構造となっていることが確認されたが、ユニットセルの数倍の段差が存在し、十分な厚さの均一性を備えていなかった。

このような微細構造を持つ積層型接合の中には、理想的なジョセフソン特性を示すものもあった。しかし、作製した接合全体に占めるその収率は低かった。良好なジョセフソン特性を示す接合においても、その特性を解析した結果からは、局所的に形成されたバリア層の薄い部分にジョセフソン接合が形成されていると結論せざるを得なかった。これは AFM によるバリア層の観察結果からも裏づけられた。

このように低温超伝導の分野では主流であった積層型接合は、再現性の低さや作製プロセスの困難さなどの理由で、高温超伝導の分野では有望ではないことがわかった。

これに対して、エッジ型接合 ($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x/\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$) は研究当初から積層型接合に比べて特性の再現性がよく、その高い可能性を予想させた。エッジ接合では、高温超伝導体の示す短いコヒーレンス長のため、清浄な接合界面を形成するた

めのエッジ作製プロセスが重要な作製プロセスとなる。このエッジ作製プロセスの改良により、エッジ型接合は積層型より優れた特性と信頼性を示すことが確認された。また、積層構造など集積回路を構成する上で解決しておかなければならないプロセス上の技術課題も、エッジ型のほうが少ないという利点もあった。

高温超伝導エッジ型ジョセフソン接合の作製プロセスにおいて、接合界面を清浄に保つ *in situ* 法の開発など主にエッジ作製プロセスを改良することにより、接合特性の均一性を向上させることに成功した。成長型 $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ バリアを用いたエッジ接合で、 I_c の均一性は 12 接合につき $1\sigma=10\%$ に達した。

また接合特性およびその均一性は、上層グランドプレーンの積層などの高温プロセスを経ても顕著な劣化を示さないことが確認され、これで集積回路作製のための基礎技術が整った。これらのプロセスをもとに、5 個のエッジ型接合と上層グランドプレーンを組み合わせた高温超伝導サンプラー回路を作製し、基本動作の確認に成功した。

本研究を基礎とした高温超伝導サンプラー回路の動作実証は、世界でもごく初期の集積回路動作成功例であり、エッジ型が集積回路用接合の主流と位置づけられるようになったひとつのきっかけであった。その意味で、本研究は高温超伝導集積回路用としてのエッジ型接合の優位性を実証したものと位置づけられる。また、本研究で開発した層間絶縁層をマスクに用いる *in situ* 法はエッジ型ジョセフソン接合の標準的な作製方法のひとつとして認められ、他研究機関でも採用されている。

なお、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x/\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 接合の特性を解析することにより、従来は近接効果に基づく弱結合型接合と考えられていた本接合は、バリア中の局在準位が関係したトンネル接合として理解すべきであることも明らかにした。

次に、本研究では従来の成長法とは異なる界面改質法でバリアを形成することが可能であり、そのバリア作製方法により、さらに優れた特性の均一性を示す接合を作製できることを示した。本作製方法では、バリアは意図的な堆積・成長プロセスではなく、イオン衝撃とその後の熱処理により下部 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 超伝導電極表面に形成される。作製された界面改質型接合は優れた $I-V$ 特性とその均一性を示した。これらの接合の I_c はこれまでになく高い均一性を示し、100 接合につき 4.2 K で $1\sigma=8\%$ にまで達した。また 1000 接合でも $1\sigma=10\%$ のレベルに達しており、研究当初の目標を達成した。また、TEM 観察および EDX 分析の結果から、バリア層形成の過程はイオン照射によるアモルファス化と熱処理による結晶化であることを明らかにし、バリア層を構成する物質を Ba ベースのペロヴ

スカイト構造をもつ化合物 $\text{Ba}(\text{Y}_{1-x}\text{Cu}_x)\text{O}_y$ ($x < 0.5$)と推定した。界面改質型接合におけるさらに詳細なバリアの構造・組成、La などの不純物の効果も含めたその形成機構の詳細を解明し、さらにプロセス条件を最適化していくのはこれからの課題である。

本研究以前にも界面改質型接合の研究例は存在したが、それらのほとんどがジョセフソン効果の確認にとどまっていた。接合特性の均一性にまで踏み込んだ最初の例が Moeckly らの **Interface-engineered Junction** であったが、成長法に対する優位性は明らかにされなかった。またその作製プロセスに不明な点が多かったため、客観的に見て真に確立した作製プロセスとは言いがたかった。加えて、Moeckly らの主張するバリア形成機構、すなわちイオン衝撃による結晶構造破壊と真空アニールによる $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 組成を持つ非超伝導相の形成、には強い疑問がある。

本研究はこれらの研究の後におこなわれたものであるが、界面改質型接合の優れた接合特性に加え、かつて報告されなかった 100~1000 接合における高い均一性を初めて実証した。さらにバリアの組成や構造、その形成機構についても主要部分を解明した。これらの優れた接合特性、接合作製方法やバリアの組成・構造など本研究で明らかにした事柄の多くは、その後他研究機関でも再現性良く確認された。本研究の成果である界面改質型接合は現在、エッジ型接合を用いた高温超伝導集積回路の標準的な作製プロセスとなっており、多くの研究機関で研究が継続されている。この技術を用いて、近い将来有用な小・中規模の高温超伝導集積回路が実現することが期待される。