ジョセフソン接合作製のためのスパッタ装置

太 田 浩*

(昭和54年 7 月 6 日受理)

A Sputtering System Designed for Fabrication of Josephson Junctions

Hiroshi OHTA

(The Institute of Physical and Chemical Research, 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama)

(Received July 6, 1979)

1. はじめに

高感度電磁波検出器や高速低電力電子計算機素子として用いるジョセフソン接合の実用化のための研究が、我が国でも盛んになってきた。ジョセフソン接合をどのように応用する場合でも、接合素子そのものの性能と信頼性が大切である。この報告では、信頼性の高いジョセフソン接合を開発する目的で作製されたスパッタ装置の機能・性能、問題点等について述べてみたい。

純度の高い特に酸化物を含まない超伝導体薄膜で、結晶構造がよい、特に columnar grain structure でないものを得ること、及び原子レベルできれいな金属境界面を得ることが話の中心になる。

筆者はニオブの点接触ジョセフソン接合の研究を行った後、米国に移り電波望遠鏡用低雑音受信機に使うジョセフソン接合の研究を行っていた。ニオブの点接触接合は性能は良いが機械的振動に対して不安定であった。米国では最初、錫のマイクロブリッジを開発し、これを用いた 10 GHz のパラメトリック増幅器を作ることができた。このパラメトリック増幅器の動作周波数を上げるには、ニオブ等のようなエネルギーギャップの大きな超伝導体で接合素子を作る必要があった。ニオブの薄膜を作る目的で最初に組立てたのが図 1 の高周波スパッタ装置である。カリフォルニア大学から NRAO (米国国立電波天文台) に移って最初に行った仕事である。Randex (今は Perkin Elmer Ultek に吸収されている), Varian, MRC, CVC, R. D. Mathis Co., Ion Equipment Co. のスパッタ装置を比較して、Randex の sputtering module に決めた。排気系は、Western Electric 社から払下げを受けた蒸着装置を改造したもので Ultek の 500 l/s

のイオンポンプとチタンサブリーメーションポンプから成る。この排気系の到達真空度は 2.2×10^{-9} Torr. sputtering module を乗せた状態でチタンサブリーメーションポンプを用いて 5.6×10^{-9} Torr が実測された。sputtering module のアルゴン導入口は用いないで、ペローシールのニードルバルブを用いて feedthrough collar からアルゴンを導入するようになっている様子も図 1 に見える。

スパッタリング中、 1.5×10^{-2} Torr 程度アルゴンガス圧で、チタンサブリーメーションポンプは ON であり、アルゴンの排気はソーブションポンプで行った。このシステムで作られたニオブ薄膜は $300 \text{ \AA}$ の膜厚で、超伝導臨界温度 T_c は約 8 K で、 T_c としては非常に高い部類である¹⁾。このニオブ薄膜を用いたジョセフソン接合については、すでにいくつか発表されている²⁾³⁾。

ニオブをスパッタまたは電子ビーム蒸着している時、酸素分圧を低く抑えなくては、得られる薄膜の T_c が低ばかりでなく、極端な場合は超伝導にならない。酸化物の混入を最小限にして純度の高い薄膜にする配慮が必

図 1 高周波スパッタ装置

* 理化学研究所 (埼玉県和光市広沢 2-1)

図2 スパッタ薄膜の構造のアルゴン圧と基板温度に対する依存性

要である。

薄膜の純度だけでなく結晶構造も、作られたジョセフソン接合の性能や寿命に影響を及ぼす。 1.5×10^{-2} Torr 程度のアルゴンガス圧で基板温度を 400°C まで上げてても得られるニオブ薄膜の結晶構造は、図2の ZONE-I に示されているような columnar grain structure になる。ニオブの融点が 1950°C なので $T/T_M = 400/1950 = 0.2$ だ

からである。しかし 1×10^{-3} Torr のアルゴン中でスパッタすれば $T/T_M = 0.2$ の時、薄膜の結晶構造は ZONE-T のようになり columnar grain structure になることを免れている。図2は Teil Corporation の John Thornton の作ったもので Vacuum Technology Associates 社のカタログからの引用である。

columnar grain structure を持つニオブ薄膜の平均自由行程は、grain の径と同程度の数 nm で、このような薄膜を用いて超伝導マイクロブリッジと呼ばれるジョセフソン接合を作っても性能はよくない。同じ性能を得るために、薄膜の平均自由行程が短い程ブリッジのサイズを小さくする必要があり、電子ビームリソグラフィとサブミクロン加工の技術に対する要求は、より過酷なものとなる。

結晶構造の良い超伝導体薄膜を得るには 1×10^{-3} Torr かそれ以下の低いアルゴン圧中でスパッタリングを行う必要がある。低いアルゴン圧力でスパッタリングを行う方法として、われわれはマグネトロン型の高速スパッタ方式を選んだ。

2. 高速スパッタ装置

図3に今回試作したスパッタ室と電極の設計図があり、図4に製作されたスパッタ室が示されている。図3で対向している電極の上側にあるのがプラナーマグネ

図3 スパッタ室と電極の構造

図4 スパッタ室

図5 高速スパッタ電極

ロン型の高速スパッタターゲットで、実物の写真が図5にある。

図5の左側に見えているのが銅の backing plate で、この裏側にニオブ、バナジウム、ビスマス、水晶等スパッタする材質の円板が、ガス放出の少ない金属で接着(metal bonding)される。いろいろな種類の材質の円板を真空中で接着させるこの metal bonding の技術は、円板にひび割れが入ることもあり難しい技術である。図5の右手には、磁界のヨークとなっているマルテンサイト系ステンレス円板に希土類磁石が片方だけ取り付けられている。もう一つの磁石が図3に示されているようにマルテンサイト系ステンレス円板の反対の端に取り付けられて冷却水の中を回転する。このN極とS極の磁石が回転することにより、ニオブやバナジウム等の高価なターゲット円板がより均一に削られ、ターゲット円板の有効利用率が増す。この回転磁界型では、N極とS極の間の距離が市販の固定磁石型のものの約2倍あり、主眼である低いアルゴン圧力でのスパッタリングにも有効である。磁極とヨークの形状は、ターゲットが一番均一に削れるように経験的に決める必要がある。磁場が電場と直交するマグネトロン型でターゲットの形状はプレーナである。

図3と図5から明らかであるが、電極の冷却水と真空とが O-リングのみで隔てられている構造ではないので冷却水が漏れてもスパッタ室には入らない。

図3に示されている水冷アノードとスパッタ電極とがスパッタ銃を形成するので基板保持台は陽光柱の外に出すことができる。

旋盤加工したテフロンは高真空装置には用いられないので、電極と真空容器の間のスペーサとしては、鏡面研磨したセラミックディスクが用いられている。材質は京都セラミックのアルミナA479である。ターゲット近くの O-リングの冷却には注意を払った。

電極と ground shield との間隔は放電が起らない

範囲で静電容量ができる限り小さくするようにした。直流電源による高速スパッタリングだけでなく、高周波スパッタリングも可能である。

基板保持台は水冷、液体チソソ冷却、加熱、スパッタエッチングが出来、カソード電極との間隔は半固定で変えられる。

実験の変更に応じて、装置を修正できる柔軟性を重視した。スパッタ室の上蓋だけでなく下蓋も他のものと交換できる。

3. 排気系

結晶構造の良い薄膜を得るには低いアルゴン圧力でスパッタすることが必要である。 1×10^{-8} Torr 以下のアルゴンを、ソーブションポンプで排気することは難しく、ターボ分子ポンプか、拡散ポンプか、クライオポンプが必要である。先のイオンポンプを用いたシステムは補助のターボ分子ポンプを備えている。

ここでは経済的な拡散ポンプが選ばれた。NRC の技術者によって設計された拡散ポンプ VHS-6 と、液体窒素が20時間持つ VARIAN 社の long life trap との組合

図6 排気系の構成

図7 高速スパッタ装置

せの性能を目標として国産品で組立てて、ほぼ目標を達成している。

排気系のブロック図は図6にあり、実物の写真は図7に示されている。排気特性は、図8に示されているとおり、拡散ポンプをスタートさせて第1回目は4時間以内に 10^{-8} Torr 台となり、第2回目以降は1時間以内に 10^{-8} Torr 台になる。bakeout しない場合、数時間で 6.5×10^{-8} Torr となるが、これはバージニア大学で用いられている VHS-6 と long life trap の排気特性とほとんど同じである。

6 インチの拡散ポンプの排気速度は $1,500 \text{ l/s}$ であるが水冷パツフル、液体窒素トラップを付けて実効的な排気速度は 330 l/s である。

拡散ポンプ油の逆流量は $1 \times 10^{-7} \text{ mg/cm}^2/\text{min}$ 以下で、 $10 \text{ \AA}$ 足らずの厚さの拡散ポンプ油 DC705 分子一層 (monolayer) が真空室の内壁を覆うのに約10日かかる。真空室の直径が $350 \text{ mm}\phi$ で高さが 240 mm 、拡散ポンプの引き口が6インチ、DC705 拡散ポンプ油の分子量が546、密度が 1.09 g/cm^3 とした粗い計算である。

ただしこの少ない逆流量を維持するにはトラップの液体窒素を絶やさないことが大切である。図7に示した液体窒素トラップの液体窒素は夕方7時から翌朝9時半以降までもつ。連続運転中に液体窒素が無くなれば、装置全体が安全に停止するようになっており、スパッタ室が多量の拡散ポンプ油の逆流にさらされることはない。

連続運転中、拡散ポンプの背圧側は 6×10^{-8} Torr 程度の圧力である。液体窒素がなくなると、トラップの内壁に捕えられていた気体分子が放出され真空度は悪くなる。この時、拡散ポンプの背圧側の圧力も上昇し、この圧力が図6のピラニゲージで 2×10^{-2} Torr を越えればメインバルブと補助排気系側のバルブが閉じ、拡散ポンプ、油回転ポンプの電源が切れ、油回転ポンプの吸引口は自動リークバルブによって大気圧になる。

図8 排気特性

この装置によって運転中の停電、電離真空計用球の破損、回転ポンプのベルトの切断に際してシステムは安全に停止できる。冷却水の圧力の下った状態が1分以上続けばシステムはやはり停止する。

近くで200Vのスイッチが開閉される環境の中でピラニゲージのブリッジの数 mV を検出するには common mode rejection の大きい Analog Devices 社の model 605 instrumentation amplifier がよいが、ここでは3個の $\mu\text{A} 725$ を用いて同等の回路を自作した (common mode rejection の大きい増幅器は pick upの影響を受けにくい。)

高純度のニオブ薄膜を得るため、及び原子レベルできれいな金属境界面を得るために、スパッタ時に、スパッタ室に導入されるアルゴンの純度を高く保つ工夫が必要である。スパッタ室、メインバルブ、液体窒素トラップ、可変コンダクタンス絞り弁、アダプタ付水冷バルブ、油拡散ポンプの順に図6のように接続されている。拡散ポンプのフランジからメインバルブまでの高さは30 cm 以内に納っている。将来金属ガasketで置換えられるように一対ずつのフランジを8本のビスで締付けられるようになっている。

チタンサブリーメーションポンプがスパッタ室に取付けられている。

可変コンダクタンス絞り弁は、図9に示されているようなオリジナルな構造で、輸入品のような dead space がなく、全開時のコンダクタンスが大きい。図10は閉じた状態であるが隙間は小さくコンダクタンスは非常に小さい。米国の VARIAN 社で、かつてスパッタ装置の排気部の拡散ポンプの上に 50 l/s の固定コンダクタンスのオリフィス板を取り付けていた。可変コンダクタンス絞り弁の「閉」状態のコンダクタンスは、 50 l/s より遥かに小さい。「開」状態のコンダクタンスは $14,000 \text{ l/s}$ と

図9 可変コンダクタンス絞り弁

大きく、これを挿入したことによるコンダクタンスの損失は無視することができ、50 l/s 固定コンダクタンスの場合のように排気に時間がかかるということはない。

アルゴンの純度は次のようにして高く保つ。メインバルブと可変コンダクタンス絞り弁を全開にして、出来る限り短時間で高真空を得る。次にメインバルブを全開にしたまま可変コンダクタンス絞り弁を絞ってコンダクタンスを小さくした後、不純物 5 ppm 以下の高純度 アルゴンガスをスパッタ室に導入する。スパッタ室中のアルゴンが数 mTorr でも、絞り弁のおかげで、拡散ポンプのすぐ上のアルゴンの圧力は低く保たれ、拡散ポンプ油の逆流は増大しない。メインバルブは全開なので、液体窒素トラップの水蒸気に対する排気速度は最大に保たれる。同時に、スパッタ室に取付けられたチタンサブリメーションポンプを作動させて、アルゴンガス中の酸素、窒素、水素の分圧を下げる。

アルゴンガス中の残留酸素ガスの分圧が、 1×10^{-8} Torr の場合、毎分1000Åの速さでニオブをスパッタすれば、悪くても99.8%の純度のニオブ薄膜が得られる。もともとニオブのスパッタターゲットに含まれているわずかのタンタルは超伝導特性をあまり損わないので不純物とはみなさない。アルゴンガスの純度が一定なら、速くスパッタする方が高純度の薄膜が得られる。この点でも高速スパッタリングは有利である。

サンプルを出し入れする時にはメインバルブを閉じるので、液体窒素トラップの表面は大気にさらされることはない。

スパッタ時にアルゴンガスを排気する時、拡散ポンプの背圧が上昇する。拡散ポンプと油回転ポンプの間は38φのパイプで結び、コンダクタンスを大きく保ったまま油回転ポンプ油の蒸気の逆流を止める目的で拡散ポンプの背圧側を図7に見えるようにマントルヒータを用いて加熱している。これは熊谷方式と呼ばれているものである。

図10 「閉」状態の可変コンダクタンス絞り弁

る。

排気系を停止する時、拡散ポンプの背圧側で、粘性流領域の 100 mTorr ~ 150 mTorr になるようにアルゴンガスを流して背圧側の回転ポンプ油の蒸気を押し出してから補助排気系側のバルブを閉じて停止する。こうすると次回排気系をスタートした時、短時間で高真空が得られる。

拡散ポンプ油はダウコーニングの DC705、回転ポンプ油は松村石油の MR200、真空グリースはAPIEZON-L、O-リングはすべてバイトンAである。

4. ジョセフソン接合の作製

アルゴンガスの純度を高く保った一つの大切な理由は、原子レベルできれいな金属境界面を得る為である。

図11に示されたジョセフソン接合の性能はニオブとビスマスの間の金属境界面のきれいさに強く依存する⁴⁾。トンネルジョセフソン接合の絶縁体層の厚さが5~7原子層の程度であるから、図11のジョセフソン接合の金属境界面に於ける数原子層の汚染物層が当然問題になる。この接合素子は次のようにして作られる。微細加工の技術によって作られた3000Åのスリットを持つニオブ薄膜を図3の基板保持台の上に置き、上側のターゲット電極にはビスマスを用いる。下側のシャッタは開いてお

図11 プラナー型ジョセフソン接合

き上側のシャッタを閉じる。直流電源をターゲット電極と水冷アノードの間に取付けてビスマスターゲットの表面の酸化物をスパッタリングで削り取る。それと同時に、基板保持台と、アース電位のシャッタとの間の高周波電源を ON にしてニオブ薄膜表面の酸化物をスパッタエッチする。ビスマスターゲット表面の酸化物も、ニオブ薄膜表面の酸化物も、削り取られた時点でシャッタを開いてニオブの上にビスマスをスパッタする。スパッタ時のアルゴンガス中の不純物酸素ガスの分圧が 1×10^{-8} Torr の場合、付着確率を 1 とする時、スパッタエッチングできれいにされたニオブ薄膜の表面が一原子層の酸化物で覆われるまでに約 100 秒の時間的ゆとりがある。シャッタを開けるには数秒かかるだけである。微細加工の技術でビスマスの幅を小さくすれば図11の接合素子となる。

ビスマスのかわりにニオブのターゲットを用いて同じことを実行すれば不均一膜厚マイクロブリッジ(variable thickness microbridge) と呼ばれるジョセフソン接合が得られる。

卓上型の走査型電子顕微鏡とあまり変わらない価格の電子ビーム露光装置が現われて普及し、超伝導体にサブミクロンのスリットを作ることが以前程困難ではなくなりつつある。図11の構造のジョセフソン接合は作り易くなる。

5. おわりに

ここで紹介したスパッタシステムの性能は質量分析計

を用いて定量的に調べる予定であるが、改良を要する部分もでてくるであろう。

システムの骨組を、ここで述べられているように選べば、誰が作っても、使いやすく、性能も悪くないシステムを経済的に作れると言える。

このシステムは倉田奨励金と文部省科研費一般研究 C の援助によって作られた。

大日真空、徳田製作所、日本真空技術、東京技研をはじめ、Randex の sputtering module を購入してくれた NRAO の Electronics Division の Head, S. Weinreb, Western Electric 社から払下げのイオンポンプ排気系を工面してくれたバージニア大学物理学科の B. S. Deaver, Jr, 長い期間にわたって理解と支援をいただいた霜田光一教授には、言葉では尽せないお世話になっている。

〔文 献〕

- 1) Stuart A. Wolf, James J. Kennedy and Martin Nisenoff: J. Vac. Sci. Technol. **13** (1976) 145.
- 2) Li-Kong Wang, Alessandro Callegari, and Bascom S. Deaver, Jr: Appl. Phys. Letters **31** (1977) 306.
- 3) Bradley G. Boone, Charles H. Arrington, III, Li-Kong Wang and Bascom S. Deaver: IEEE Trans. on Magnetism, **MAG-13**, (1977) 735.
- 4) H. Ohta, M. J. Feldman, P. T. Parrish and R. Y. Chiao: Rev. Phys. Appl. (Paris) **9** (1974) 187.