エリプソメータを用いたジョセフソン接合酸化膜の形成過程の測定*

鈴木 秀雄**・今村 健**・蓮尾 信也**・太宰 浩一**

(昭和53年9月22日受理)

Ellipsometric Measurements of Oxide Formation Process for Josephson Junctions

Hideo SUZUKI, Takeshi IMAMURA, Shinya HASUO and Koichi DAZAI

(Fujitsu Laboratories Ltd, Kamikodanaka, Kawasaki)

(Received September 22, 1978)

Josephson tunneling junctions have been fabricated using the rf plasma oxidation method. Prior to the junction formation, the oxide growing processes on Pb or Pb-In alloy films have been investigated in detail with the aid of in situ ellipsometry. The oxide thickness tends to saturate under appropriate oxidation and sputtering parameters. The steady state oxide thickness has been in the 60~70 Å range for Pb and in the 40~50 Å range for Pb-In alloy (In 10 wt%). Referring these results, we have fabricated tunneling junctions whose base electrodes have been made of Pb-In/Au alloy film. The counter electrodes have been made of Pb-In alloy film or sequentially deposited Pb/Au/Pb film. The junctions with Pb/Au/Pb counter electrodes have exhibited good I-V characteristics with little scattering of the normal tunneling resistance.

1. はじめに

トンネル接合型ジョセフソン素子は二つの超伝導体の間に数十Åという非常に薄い酸化膜を挟んだ構造のものであり、この薄い酸化膜を形成することが最も重要である。特に論理回路に応用する場合には、酸化膜の厚みを精密に制御し、均一な酸化膜を歩留まり良く形成する必要がある。そのための方法として dc プラズマ酸化法¹⁾や酸素プラズマ中での曝露酸化法²⁾などが提案されているが、これらはいずれも酸化時間と共に酸化膜厚が増加するために膜厚決定には酸化時間が重要な役割をはたす。これに対して IBM の Greiner が提案した rf プラズマ酸化による方法^{3,4,5)}は、酸素中で rf 放電を行なうことによって酸化膜を形成するものであり、酸化とスパッターエッチが同時に行なわれる。このため反応の初期では酸化率がスパッタ率を上まわるため酸化が進行するが、最終的には両者がバランスする事により、酸化時間に依存しない一定の酸化膜厚が得られる。しかも最終膜厚は rf パワーや酸素圧などにより制御できる。そこで我々もこの方法を採用し、Pb および Pb-In 合金につい

て酸化膜の形成過程をエリプソメータで測定した。エリプソメータでは酸化膜の厚みおよび屈折率に関係した量を測定することができ、これにより酸化条件をある程度把握できる。この結果を用いて Pb-In 合金を超伝導材料としてフォトリソグラフィによりパターンを形成し、トンネル接合型のジョセフソン素子を製作した。以上のような方法で臨界電流のパラッキの少ない素子ができたので、ここではエリプソメータによる測定結果、ジョセフソン素子の製作方法および得られた素子特性について述べる。

2. rf プラズマ酸化の方法

rf プラズマ酸化に使用したスパッタ装置の内部構造を Fig. 1 に示す。試料は rf カソード (150 mm^φ, 水冷) に取付け、放電は、その真下に設けたシャッターとの間で行なう。更に、酸化と蒸着が真空を保持したまま連続的に行なえるように蒸着源が設けてある。また、rf カソードに取付けた試料の酸化過程を測定できるようにベルジャーの両側にエリプソメータの投光器と受光器を設置した。そのほか、rf プラズマ酸化中、ガス圧の変化を防ぐために APC (Automatic Pressure Controller) および蒸着速度を一定に保つために蒸着コントローラーを備え

*昭和53年3月27日第25回応用物理学関係連合講演会において講演

** (株)富士通研究所 (川崎市中原区上小田中1015)

Fig. 1 Schematic of the rf plasma oxidation apparatus.

Fig. 2 Oblique reflection and transmission of a plane wave by ambient-oxide-base film system with parallel plane boundaries.

付けた。

酸化は1～数10 mTorrの純酸素あるいはアルゴンと酸素の混合ガス中でrf放電することにより行なう。rfパワー密度としては、10～100 mW/cm²程度である。酸化率は酸化膜厚と共に指数関数的に減少し、スパッタ率が酸化膜厚によらず一定であるとすると、酸化膜の厚み x は次式で与えられる^{3,4)}。

$$x = x_0 \ln \left[\frac{K}{R} - \left\{ \frac{K}{R} - \exp(x_i/x_0) \right\} \exp(-Rt/x_0) \right] \quad x > 0 \quad (1)$$

定常状態では、 $\exp(-Rt/x_0)$ がゼロに近づき、最終膜厚 x_L は

$$x_L = x_0 \ln(K/R) \quad (2)$$

で決まり、この際、これを決めるパラメータとしては、酸素圧、rfパワー、基板の温度が考えられる。ここで R はスパッタ率、 x_i は初期の酸化膜の厚み、 x_0 と K は酸化パラメータである。

3. エリプソメーターの測定値と酸化膜の厚みの関係

エリプソメーターの測定原理は他に解説等^{6,7)}があるのでここでは述べないが、エリプソメーターで直接測定される量は、被測定物から反射した光の偏波の楕円率の変化量を示す Δ と Ψ である。トンネル型ジョセフソン素子を製作する際、下部電極の表面を酸化した時点ではFig. 2に示した構造になり、この時入射面に平行なP方向と、垂直なS方向の反射係数の比が次式に示すように Δ と Ψ で表わせる。

$$R_P/R_S(d, n_2, k_2, n_3, k_3, \theta_0, \lambda) = \tan \Psi \cdot \exp(i\Delta) \quad (3)$$

ここで入射角 θ_0 および波長 λ は固定されている($\theta_0 = 70^\circ$, $\lambda = 6328 \text{ \AA}$)ので、未知数は d, n_2, k_2, n_3, k_3 の5つである。また、 d は下部電極上に形成された酸化膜の厚み、 n_2, k_2 はその屈折率と消失係数であり、 n_3, k_3 は下部

Fig. 3 Dependence of the ellipsometric angle Δ and ψ on the optical constant n and k of the base film. Measured data for the base film of Pb and Pb alloy are plotted in the figure.

電極の屈折率、消失係数である。

まず酸化膜がない場合には、未知数は n_3 と k_3 でありこれらは Δ と ψ から求まる。Fig. 3 はこれらの関係を求めたグラフであり、測定した Δ と ψ から n_3 と k_3 が求まる。Si ウエハー上に Pb を約 3,000 Å 蒸着して、その直後の Δ と ψ を測定した結果を Fig. 3 中に丸印 (●印) で示した。これから n_3 と k_3 はそれぞれ 2.55 ± 0.1 と 4.15 ± 0.1 と求まる。また、Pb[3,000 Å]/Au [120 Å]* (×印) および Pb-In (In 10 wt%) [3,000 Å]/Au[120 Å]** (▲印) について測定した結果も示している。Pb-In では測定点のバラツキが多く、これは Pb-In のグレインサイズが測定に使用した波長と同程度であり、その影響を受けやすい事や、Pb-In が厚み方向に組成分布を持つためであると考えられる。

次に酸化膜がある場合には、5つの未知数のうち3つを与えれば、残りの未知数に対する Δ と ψ の関係が求まる。 n_3 と k_3 は Pb について求めた値、2.55 と 4.15 を与え、また、入射した光が形成した酸化膜で減衰しないとして $k_2=0.0$ とした⁸⁾。このとき、酸化膜厚 d と酸化膜の屈折率 n_2 をパラメータとした場合の Δ と ψ の関係を Fig. 4 に示す。 n_2 は 2.0~3.4 まで変化させ、 d は 100 Å まで 10 Å おきに等膜厚線を描いている。酸化膜が形成されることによる Δ の変化量は n_2 の大きさに対して変

Fig. 4 Relation between Δ and ψ for various n_2 , assuming $k_2=0$. Measured data for Pb oxide are plotted in the figure.

化する。Pb の表面を rf プラズマ酸化したときの測定例を Fig. 4 中に丸印 (○) で示す。図より $k_2=0.0$ と仮定した場合には n_2 は約 2.8 と求まる。ここで酸化前の Δ と

*Au を蒸着した後 Pb をその上に蒸着した薄膜

**Au を蒸着した後 Pb-In の合金を全量蒸着した薄膜

Ψ の値が $d=0$ の点に一致するように補正している。図からわかるように、主として酸化膜厚の情報を与えるのは Δ であり、酸化前の Δ の値 Δ_0 を測定しておき、これからの偏差 $\Delta_0 - \Delta$ を求めれば酸化膜厚を知ることができる。しかも酸化膜の厚みは $\Delta_0 - \Delta$ にほぼ比例しPbOの屈折率と消失係数をおおの2.8と0.0に与えれば、 $\Delta_0 - \Delta$ の値を4.0倍した値がオングストローム(Å)単位で表わした酸化膜厚になる。これは純粋なPbの表面を酸化した場合には正しいが、Pb-Inのような合金を酸化した場合には、酸化膜の厚みは必ずしも $\Delta_0 - \Delta$ に比例しない恐れがある。しかし、4.2で詳細に述べるように、ジョセフソン素子を製作する場合には、実用上 $\Delta_0 - \Delta$ に比例していると考えてさしつかえない。

4. エリプソメーターによる酸化膜厚の測定

4.1 PbおよびPb/Au膜の酸化

4.1.1 酸素ガスによる酸化

基板としてガラスとSiウェハラの2種類を用いて、Pb[3,000 Å]あるいはPb[3,000 Å]/Au[120 Å]を蒸着しその表面をrfプラズマ酸化法で酸化した。酸化中エリプソメーターで Δ と Ψ を測定し、酸化時間と酸化膜厚の関係を調べ、さらに酸化後の表面状態を微分干渉顕微鏡で観測した。エリプソメーターによる測定は従来1つのデータを得るために4回の測定を行なう必要があったが、 $\lambda/4$ 板の不正確さを定量的に評価する事により1回

Fig. 5 Surface of the Pb/Au film after rf oxidation.

の測定で済み、時間的に変化する試料を連続的に測定する事が可能である⁹⁾。ガラス基板上にPbあるいはPb/Auを蒸着して、表面をrfプラズマ酸化した場合には、酸素圧やrfパワーを変えても、エリプソメーターで測定

Fig. 6 Dependence of $(\Delta_0 - \Delta)$ on the rf oxidation time as a parameter of the rf power.

される酸化膜厚は酸化時間と共に増加してしまい飽和特性⁴⁾が得られない。rf プラズマ酸化を行なった後、その表面を観測すると Fig. 5 (a), (b) に示すように hillock と呼ばれる小さな山が発生している。この hillock は基板と薄膜との熱膨張率の差によって生じるものであり、rf プラズマ酸化中に基板の温度が上昇している事が予想され、これが酸化時間に対して酸化膜厚が飽和しない原因と考えられる。そこで、基板をガラスから Si ウエハーに変えた。さらに Si ウエハーと rf カソード（水冷）の熱接触を良くするためにシリコンオイルを間に塗り、Pb/Au 膜を酸化した。この場合には Fig. 6 に示すように、酸化時間に対して酸化膜厚が飽和する結果が得られた。ここでは Pb/Au についての結果を示したが Pb についても同様に飽和特性が得られる。酸素の圧力は 10 mTorr に固定して rf パワーを変化させた。rf パワーが小さい場合（2 W）には、酸化時間と共に酸化膜厚は徐々に増加し、一定にならない。逆に rf パワーが大きい場合（15 W, 20 W）には、酸化時間が10分程度で酸化膜厚は一定になったかに見えるが、その後再び増加する。rf パワーを適当に選ぶ事により（5 W, 10 W）酸化時間によらず、酸化膜厚は一定になる。

rf パワーが 5 W と 20 W で 100 分酸化した後の表面状態を Fig. 5 (c) と (d) に示す。Fig. 5 (b) と (c) では酸化条件は同一であり、基板がガラスか Si ウエハーかの違いであるが、Si ウエハーを基板としたものでは hillock の発生は見られない。また、Si ウエハーを基板として用いた場合でも、rf パワーを 20 W 程度に大きくすると表

面に hillock が発生する。酸化時間に対して酸化膜厚が一定になる場合と、一度飽和した後再び増加する場合の表面状態を比較してみると、前者ではほとんど hillock は発生しないが、後者では hillock の発生が見られる。ここでの hillock による表面の凹凸程度では、エリプソメーターの測定値 Δ は、ほとんど影響を受けない。（これは Pb を酸化後、スパッタエッチで酸化膜を除去した時に、元の値に回復する事から確かめた。）これらのことから、酸化膜の厚みが一旦飽和した後再び増加する原因は基板温度の上昇であると思われる。従って rf プラズマ酸化を行なう時には、基板温度の上昇を防ぐ必要がある。

次に rf パワーが 10 W の場合に、酸素圧をパラメータとして酸化時間と酸化膜厚の関係を測定した結果を、Fig. 7 に示す。酸素圧を一定にした場合には、rf パワーを大きくするほど酸化膜の厚みが減少するのに対し、rf パワーを一定にした場合には、酸素圧を低くするほど酸化膜の厚みが減少する傾向にある。しかし酸素圧が 2 mTorr の場合飽和特性が得られないが、Fig. 6 で rf パワーが大きい時の傾向に似ていることから、飽和特性を得るためには rf パワーを小さくする必要があると思われる。このように酸化時間と共に酸化膜厚が飽和する条件は、かなり限定された範囲である。ここで Pb を酸化した場合に最終的に得られる酸化膜の厚みは 60 ~ 70 Å 程度であり、酸素圧と rf パワーを変化させて 30 ~ 40 Å 程度の薄い酸化膜を形成することは困難である。従って、何らかの他の手段によって酸化膜を薄くする必要が

Fig. 7 Dependence of ($\Delta_0 - \Delta$) on the rf oxidation time as a parameter of the oxygen pressure.

Fig. 8 Dependence of $(\Delta_0 - \Delta)$ on the oxidation time when the ratio between partial pressures of argon and oxygen are varied as shown in the figure.

ある。

4.1.2 酸素とアルゴンの混合ガスによる酸化

rf プラズマ酸化で最終的に得られる酸化膜厚を薄くするための一つの方法として、酸素とアルゴンの混合ガス中で Pb を酸化した。アルゴンは酸素に比べてスパッタ率が高いので、酸化膜を薄くできると考えられる。rf パワーを 5 W、酸素とアルゴンの総圧力を 10 mTorr にして、酸素とアルゴンの分圧比を変化させた時の酸化膜厚を Fig. 8 に示す。①の領域ではアルゴンだけでスパッタエッチをしており、酸化されないで、元の値を保っている。分圧比を、Ar: O₂=9:1 にすると急激に酸化が行なわれ、30~40 Å 程度の酸化膜が形成される（領域②）。さらに酸素の割合を多くすることにより、形成される酸化膜厚が増加する（領域③~⑤）。酸化後、再びアルゴンだけでスパッタエッチを行なうと、領域⑥に示すように酸化前の値に回復する。このように酸素とアルゴンの混合比を適当に選ぶことによって最終膜厚を制御することもできる。

4.2 Pb-In/Au 膜の酸化

トンネル型のジョセフソン素子を製作する超伝導材料として、現在 Pb, In, Au の合金膜を用いたものが熱サイクルに耐える事から多く使用されている^{10,11,12,13}。そこで Si ウエハー上に、Au を約 120 Å 蒸着した後 Pb-In (In₂~10 wt%) の合金を約 3,000 Å 蒸着し、表面を rf プラズマ酸化した。Pb-In の合金薄膜では、In が表面に析出する等の報告があり¹⁴、その組成が厚さ方向に変化するので、rf プラズマ酸化を行なった場合に形成される酸化膜および酸化膜の下層の Pb-In/Au 膜の屈折率と

消失係数も変化する。従って、エリプソメーターで測定される Δ から酸化膜の厚みを正確に求めるには、この組成分布を考慮に入れなければならないが、これは実際には困難である。そこで純粋な Pb と In を酸化した場合の Δ と Ψ の値から、Pb-In を酸化した場合に予想される酸化膜厚と Δ や Ψ との関係を考えてみる。

まず下地膜の Pb 膜および In 膜の複素屈折率は、 $n_{Pb} = 2.55 - j4.15$, $n_{In} = 0.89 - j5.37$ であり¹⁵、エリプソメーターでの測定値として、 $\Delta_{Pb} = 128.8^\circ$, $\Psi_{Pb} = 32.7^\circ$, $\Delta_{In} = 130.2^\circ$, $\Psi_{In} = 41.5^\circ$ に相当する。ここで主として酸化膜の厚みに対応する Δ の値に着目すると、Pb と In では、 1.4° の違いしかない。そこで Pb-In 膜の Δ_{Pb-In} の値が Pb 膜と In 膜の Δ の値の中間的な値をもつとすると、rf プラズマ酸化中、酸化膜の下層の Pb-In の Δ_{Pb-In} の値はほとんど変化しないと考えてよい。

つぎに酸化膜が形成された場合を考えてみると、酸化膜の屈折率と消失係数は Pb の酸化物の場合には $n_2 = 2.8$, $k_2 = 0.0$ を仮定しているが、Pb-In を酸化した際には、その酸化物の屈折率と消失係数を与える必要がある。 k_2 に関しては Pb の酸化物と同様に、入射光に対して減衰がないとして $k_2 = 0.0$ とする。Fig. 4 からわかるように、形成された酸化物の屈折率 n_2 が 2.8 から大きく変動しない限り、 $d/(\Delta_0 - \Delta) = 4.0 [\text{\AA}/\text{deg}]$ としてよい。一方、In の酸化物として In₂O₃ の屈折率 $n_2 = 2.1$ を与えると、 $d/(\Delta_0 - \Delta) = 5.1 [\text{\AA}/\text{deg}]$ になる。これらの値は下地の屈折率にはほとんど依存せず酸化膜の屈折率だけに依存している。従って、Pb に In が 10 wt% 程度混入されている場合には、 Δ の 1 度の変化は酸化膜厚にし

Fig. 9 Dependence of $(\Delta_0 - \Delta)$ on the rf oxidation time for the various indium compositions.

Fig. 10 Time variation of the ellipsometric parameter Δ after rf oxidation is stopped.

て $4.0 \text{ \AA}$ より少し多目に变化したことに相当するが、大ざっぱには Pb を酸化した時と同様に考えられる。

Pb-In について、In の割合を変えて rf プラズマ酸化を行なったときの酸化過程をエリプソメーターで測定した結果を Fig. 9 に示す。In の割合が 2wt% および 5wt% の場合には純粋な Pb とほとんど変わらないが、In

の割合を 7.5 wt%, 10 wt% と増加するほど $\Delta_0 - \Delta$ が減少し、酸化膜厚が減少している。In の割合が 10 wt% の場合には $\Delta_0 - \Delta$ は 11 度 ~ 12 度であり、厚みに換算する際の係数を 4.0 とすれば、酸素だけで酸化しても $40 \sim 50 \text{ \AA}$ 程度の酸化膜厚が得られることがわかる。

4.3 酸化膜厚の経時変化

rf プラズマ酸化で形成した酸化膜は、真空中に自然放置しておくと、酸化時間によらずその膜厚が増加する。Pb と Pb-In 合金を rf プラズマ酸化した後、真空中（1 時間以内は $1 \sim 2 \times 10^{-6}$ Torr, 以後は ~ 1 Torr 以下）に放置した時の変化をエリプソメーターで測定した結果を Fig. 10 に示す。Pb については、 O_2 ガスだけで酸化した後と、 O_2 と Ar の混合ガスで酸化した後の変化を示している。ここでそのほかの酸化条件は全て同一である。Pb を O_2 ガスだけで酸化した後の変化は非常に大きく、20 時間後には酸化膜厚がおよそ $30 \text{ \AA}$ も増加してしまう。これに対して Pb を Ar と O_2 の混合ガスで酸化した場合には $10 \text{ \AA}$ 以下の増加、さらに Pb-In を O_2 ガスだけで酸化した場合には、これより小さな増加に停まっている。これから Pb-In を rf プラズマ酸化して酸化膜を形成した場合には、酸化停止後の酸化膜厚の増加はさほど問題にならない。rf プラズマ酸化後の酸化膜厚の増加の原因は、真空中の残留酸素による自然酸化であると考え、予想される酸化速度⁸⁾ に比べ遙かに大きい事、Pb を酸素だけで酸化したときとアルゴンとの混合ガスで酸化したときとで酸化後の膜厚変化にかなりの違いがあること等の実験結果と一致しない。Pb を酸素だけで酸化したときに、酸化膜厚の増加が激しいことから、rf プラズマ酸化によって叩き込まれた過剰酸素の拡散が酸化膜厚の増加の原因ではないかと考えられる。

5. ジョセフソン素子の製作

基板として 1.5 インチの Si ウエハーを用い、フォトリソレジスト (AZ 1350J) によるリフトオフ法で、パターン

Fig. 11 Photomicrograph of the cross type tunneling junctions.

を形成した。また、酸化膜はこれまで述べてきた rf プラズマ酸化法で形成している。一枚のウエハーには数十個のチップが含まれており、また一部分にエリプソメーターの測定用パッド ($12 \text{ mm} \times 16 \text{ mm}$) を設けた。チップサイズは $3 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ であり、その中に Fig. 11 に示すようなクロス型のジャンクションが 9 個ある。寸法は $25 \mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$, $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ の 3 種類である。

ボンディング電極として、Au-Ge の合金を用い、このパターンはエッチングにより形成した。下部電極は Au を約 $120 \text{ \AA}$ 蒸着した上に、Pb-In (In 7.5 wt%, または 10 wt%) の合金を約 $3,000 \text{ \AA}$ 蒸着して形成した。酸

Fig. 12 I-V characteristics of tunnel junctions whose counter electrodes are made of (a) Pb-In and (b) Pb/Au/Pb.

Vert: 2 mA/div

Horiz: 2 mV/div

Junction area = 50 μ m $\times$ 50 μ m

Fig. 13 Uniformity of I-V characteristics of junctions made on a same chip. (Chip size is 3 mm $\times$ 4 mm).

化膜は、(1)下部電極蒸着後、酸化してから上部電極のレジストパターンを作成する方法と、(2)上部電極のレジストパターン作成後、下部電極の表面をスパッタエッチで削ってから酸化する方法の、2通り行なった。最後に上部電極として、Pb-In (In7.5 wt%, または 10 wt%) [3,000 Å], あるいは、Pb[1,500 Å]/Au[60 Å]/Pb[1,500 Å] を蒸着した。(1)と(2)の作成方法では、酸化膜形成後、上部電極を蒸着するまでの間に水洗いの工程を経るかどうかが本質的に異なっている。

上部電極として Pb-In を用いた場合と、Pb/Au/Pb を用いた場合の、素子の I-V 特性をおのおの **Fig. 12 (a)** と **(b)** に示す。この場合は酸化膜は(1)の方法で形成した。両者を比較すると、ギャップ電圧 2.5 mV 以下の特性に大きな違いがあり、Pb-In を用いたものではリーク電流が大きい。素子の I-V 特性を支配するのは、下部電極の表面に形成される酸化膜の良否であって、上部電極の材料は関係しないようであるが、実験結果からこれは否定される。Pb-In は Pb/Au/Pb に比べてグレインが大きく、蒸着中およびその後のグレインマイグレーションによって、形成した酸化膜に悪影響を及ぼすものと思われる。従って、理想的な I-V 特性を得るには上部電極は Pb/Au/Pb(Au/Pb でもよいとの報告¹¹⁾もある。)を使用することが必要である。

つぎに、酸化膜を形成する工程として(1)および(2)の方

法を比較した。(1)では、たとえ形成時の酸化膜厚を制御し、なおかつウエハー全体に渡って均一な膜を形成したにしても、その後、酸化膜の表面が空气中やウェットな工程にさらされる事により、酸化膜厚の変化などを生じる。従って(2)のように、酸化後真空を破らずに上部電極を蒸着して表面を覆ってしまう方法が望ましい。しかしこの方法では酸化する下部電極の表面状態が重要であり、前処理での異物の付着やスパッタエッチによる損傷などを防ぐ必要がある。(1)の方法でジョセフソン素子を製作した場合、同一面積の素子のノーマル抵抗のバラツキが、チップ内で10~20%程度ある。ところが(2)の方法で製作した素子では、このバラツキが **Fig. 13** に示す様にほとんどないものが得られる。

6. あとがき

以上述べたように、rf プラズマ酸化法によって Pb あるいは Pb/Au と Pb-In/Au 合金の酸化過程および酸化後の酸化膜厚の変化をエリブソメーターで測定し、その結果を用いてジョセフソン特性を示す素子が出来た。rf プラズマ酸化法では基板温度が上昇するので、これに対する配慮が必要である。従って、基板はガラスより熱伝導のよい Si が望ましい。また、Pb/Au を酸素だけで酸化した場合には、最終的に得られる酸化膜厚が60~70 Å であり、ジョセフソン素子を製作するには厚すぎる。しかし、熱サイクルに耐え得る Pb-In(10 wt%)/Au合金の場合には、酸化速度が遅いために、酸素だけで酸化しても最終膜厚は 40~50 Å と薄くなる。更に In が混入した場合には、同一の酸化膜厚に対する臨界電流密度が大きくなるので¹⁰⁾、都合が良い。従って Pb-In/Au 合金を rf プラズマ酸化して、ジョセフソン素子の酸化膜を形成する際の放電ガスは酸素だけで良い。さらに、素子を製作する際、上部電極に Pb-In を用いた場合は I-V 特性でギャップ電圧以下でのリーク電流が大きく、これに対して Pb/Au/Pb を用いた場合は良好な I-V 特性が得られる。とくに、スパッタエッチを併用した rf プラズマ酸化法により、バラツキを小さくすることができた。しかし現時点では特性の再現性などの点で問題があり、論理回路を構成するには、臨界電流が設計値どおりにおさえられるようにするためになお検討の余地がある。

【文 献】

- 1) M. Koyanagi et al.: Proc. 6th Conf. Solid State Devices, Supple. Japan. J. appl. Phys. **44** (1975) 135.
- 2) 黒田研一他:第25回応用物理学関係連合講演会予稿集 昭和53年春季 p. 38, 27a-B-2

- 3) J. H. Greiner: J. appl. Phys. **42** (1971) 5151.
- 4) J. H. Greiner: J. appl. Phys. **45** (1974) 32.
- 5) J. H. Greiner et al.: J. Vac. Sci. Technol. **11** (1), (1974) 32.
- 6) 木下是雄, 横田英嗣: 応用物理 **34**-11 (1965) 782
- 7) 土井康弘: 応用物理 **25**-3 (1956) 85
- 8) J. M. Eldridge and D. W. Dong: Surface Science **40** (1973) 512.
- 9) S. Hásuo et al.: FUJITSU Scientific & Technical Journal. **14** (4), (1978) 17.
- 10) S. K. Lahiri: J. Vac. Sci. Technol. **13** (1), (1976) 148.
- 11) S. K. Lahiri and S. Basavaiah: J. appl. Phys. **49** (5), (1978) 2880.
- 12) R. H. Haveman et al.: J. Vac. Sci. Technol. **15** (2), (1978) 392.
- 13) S. Basavaiah and J. H. Greiner: J. appl. Phys. **48** (11), (1977) 4630.
- 14) 永田公一, 稲村隆弘: 第24回応用物理学関係連合講演会予稿集昭和52年春季分冊 1, p. 236, 26a-F-3
- 15) J. M. Eldridge et al.: Thin Solid Film, **12** (1972) 447.
- 16) J. M. Eldridge and J. Matisoo: 米国特許 3816173, appl. Date. Nov. 29. 1972.