ジョセフソン素子用 Pb 合金超伝導薄膜の 磁束トラップ特性*

内田直人**・円福敬二**・吉田啓二**・入江富士男***

(昭和59年1月23日 受理)

Flux-Trapping Characteristics of Pb-alloy Superconducting
Thin Films for Josephson Tunnel Junctions

Naoto UCHIDA, Keiji ENPUKU, Keiji YOSHIDA
and Fujio IRIE

(Department of Electronics, Kyushu University 36, Fukuoka-shi, Fukuoka 812)

(Received January 23, 1984)

Magnetic-flux trapping in Pb-alloy thin films is studied experimentally. In order to clarify pinning characteristics of thin films, which dominate flux trapping, trapped flux in Pb-alloy thin films is measured in-situ from the increment of the quasiparticle current of the Josephson junction made of these Pb-alloy thin films. Experimental results are discussed with the critical state model based on the pinning theory of superconductors. From the material dependence of flux trapping, it is shown that the addition of Au to Pb increases flux trapping due to the occurrence of strong pinning centers of normal precipitates of AuPb_2 and AuPb_3 etc. It is also shown that the addition of Bi decreases flux trapping due to the large value of the London penetration depth of PbBi films. From the temperature dependence of flux trapping, it is shown that the amount of the trapped flux is reduced by raising the temperature of thin films. Finally, the effect of the trapped flux in junction electrodes on the suppression of the critical current of the junction is discussed quantitatively.

1. はじめに

ジョセフソン素子は、従来の半導体には無い優れた性能を有するため、ジョセフソン素子を用いた超伝導回路の実用化をめざして、近年、精力的な研究開発が進められている¹⁻¹²⁾。超伝導回路のデジタル応用としては、素子の高速動作特性を利用した高速論理・記憶回路²⁻⁵⁾や高速 AD 変換器^{6,7)} などがある。一方、アナログ応用としては、磁界に対する高感度特性を利用した SQUID 磁束計^{8,9)}、高周波特性を利用したミリ波・サブミリ波

帯での電磁波回路¹⁰⁻¹²⁾ などがある。このような超伝導回路に用いられるジョセフソン素子の電極材料には、現在、製作技術などの面から Pb 合金系の超伝導薄膜が多く用いられている¹³⁾。

ところで、超伝導回路を実用化する際の問題の一つに、磁束トラップがある。これは、回路を構成する超伝導薄膜、すなわち、ジョセフソン素子を形成する電極、インダクタンス、グランドプレーンなどへ磁束がトラップするものである。この磁束トラップは、回路内の薄膜が冷却され、常伝導状態から超伝導状態へ転移する際に、地磁気などの残留磁界や、回路内の温度勾配による熱起電力で流れる電流が作る磁界が薄膜にトラップすることにより発生するものと考えられている¹⁴⁻¹⁶⁾。このような磁束トラップの発生は、回路の動作上最も重要な関

* 昭和58年9月27日 第44回応用物理学会学術講演会において講演

** 九州大学工学部電子工学科 (〒812 福岡市東区箱崎6-10-1)

*** 九州大学工学部超電導マグネット研究センター
(〒812 福岡市東区箱崎6-10-1)

値特性に変化をもたらし、回路の誤動作の原因となるため、超伝導回路の信頼性を著しく低下させる^{16,17)}。このため、磁束トラップの問題を解決するための研究が近年行われているが^{14~19)}、現在のところ、本質的な解決までは至っていない。磁束トラップの問題を解決するためには、磁束トラップの発生するメカニズムを明らかにするとともに、実際に用いられている各種の超伝導薄膜の特性を磁束トラップの観点から評価しておく必要がある。さらに、実際の回路で磁束トラップが発生した場合、磁束トラップが回路特性に及ぼす影響を定量的に把握しておく必要がある。

これまでの研究により、超伝導薄膜への磁束トラップは、薄膜内の結晶粒界や析出物などのいわゆるピン(pin)によって制御されることが知られている²⁰⁾。すなわち、もし、薄膜内にピンが存在しなければ、冷却時に薄膜内に存在する磁界は、超伝導転移時にマイスナー効果によって薄膜から完全に追い出されるため、磁束トラップは発生しない。しかし、通常の薄膜ではピンが存在するために、薄膜内の磁束線が結晶粒界や析出物にピン止めされ、磁束がトラップされることになる。そのため、磁束トラップの観点から超伝導薄膜の特性を考察することは、超伝導薄膜のピン特性を考察することを意味する。一方、このピン特性を考察するためには、薄膜内に実際にトラップした磁束量を測定する必要がある。薄膜の面積が大きい場合には、従来バルクの超伝導体で用いられている、ピックアップコイルを使った磁束量の測定法が使用可能である。しかし、実際の回路に用いられているような小さな面積の薄膜では、従来の方法での測定は不可能である。そのため、薄膜が実際に使われている状況下での磁束量の in-situ 測定法が必要となる。

ところで、ジョセフソン素子の電極を形成する超伝導薄膜に磁束がトラップすると、素子の準粒子電流が薄膜内の磁束量に比例して増加することが知られている^{21,22)}。すなわち、この現象を利用すれば素子の準粒子電流の増加から薄膜内の磁束量を測定できる。筆者らは、これまでに、この原理を用いて超伝導薄膜内の磁束量を in-situ に測定する方法を確立した^{23~26)}。したがって、評価したい超伝導薄膜を用いてジョセフソン素子を製作し、上記の方法を用いて磁束量を測定すれば、その薄膜のピン特性を調べることが可能となる。

本報告では、上記の磁束量の測定法を Pb 合金超伝導薄膜に適用し、各種 Pb 合金薄膜のピン特性の定量的な評価を行い、さらに、磁束トラップのメカニズムについて考察する。まず、第2章では、磁束量の測定方法について述べるとともに、測定結果を示す。次に、第3章では、超伝導体のピンニング理論に基づいた磁束トラップ

のモデルについて述べる。第4章では、磁束トラップの材料依存性について考察し、各種 Pb 合金超伝導薄膜の評価を行う。さらに、磁束トラップの温度依存性についても考察し、トラップした磁束の低減法について述べる。最後に、第5章では、ジョセフソン素子を形成する超伝導薄膜電極に磁束がトラップした場合の素子の臨界電流の低下を、トラップした磁束量と対応させて両者の関係を定量的に明らかにする。

2. 磁束量の測定

2.1 実験方法

実験に用いたジョセフソン素子の構造を Fig. 1 に示す。基部電極、対向電極は、Pb 合金薄膜で形成され、膜厚はそれぞれ2500, 4500 Åである。接合部を決定する絶縁膜は、SiO₂ でその膜厚は3500 Åである。また、電極のパターンニングはリフトオフ法、および酸化膜形成は RF プラズマ酸化法であり、詳しい製作法は既に報告しているのでここでは省略する²⁷⁾。この構造の特徴は、SiO₂ によって絶縁された基部電極と対向電極の重なり部分が電極の長さ方向 (y 方向) に十分長いために、ジョセフソン接合部分を垂直に貫く磁束が電極薄膜に出入りする際の磁束の運動を電極の幅方向 (x 方向) のみの一次元運動とみなせることである。

今回行った冷却時の薄膜への磁束トラップの実験方法について述べる。まず、Fig. 1 で示すように薄膜電極に垂直な磁界 $B_{\perp}$ として初期磁界 $B_{\perp,i}$ を印加したまま薄膜を冷却し、超伝導状態へ転移させる。その後、磁界 $B_{\perp}$ を変化すると薄膜への磁束の出入りが起こる。この時の薄膜内の磁束量の変化を、次に述べるように素子の準粒子電流の変化より測定する。ただし、準粒子電流を測定する際には、ジョセフソン電流の影響をなくすために、Fig. 1 に示すように平行磁界 $B_{\parallel} \approx 40\text{G}$ を印加している。

ジョセフソン素子の薄膜電極を貫いて量子化された磁

Fig. 1 Schematic figure of a Josephson tunnel junction made of Pb-alloys for flux-trapping experiment. For realizing flux trapping, $B_{\perp}$ is applied when the junction is cooled below T_c .

束 (vortex) が存在すると、量子磁束が存在する部分に常伝導電子が発生し²²⁾、この常伝導電子は Fig. 2 に示すように素子の準粒子電流の増加をもたらす。ここで、準粒子電流の規格化した増加量 Δi を次のように定義する。

$$\Delta i = \frac{I - I_0}{I_N - I_0} \quad (1)$$

ただし、 I 、 I_0 は Fig. 2 に示すように薄膜内に磁束が存在する場合と存在しない場合との電圧 $V = 1.8 \text{ mV}$ におけるそれぞれの準粒子電流値である。また、 I_N はノーマル抵抗状態での $V = 1.8 \text{ mV}$ における電流値 ($I_N = 1.8 \text{ mV}/R_N$, R_N はノーマル抵抗) である。この準粒子電流の増加量 Δi は、薄膜内の量子磁束の本数 N に比例するため、 Δi と N との関係を次のように表わすことができる。

$$\Delta i = \frac{A_N}{A} N \quad (2)$$

ここで、 A は接合面積である。また、 A_N は 1 本の量子磁束によって常伝導電子が発生する面積を表わす比例定数であり、等価的には量子磁束の常伝導核の面積とみなすことができる²²⁾。この A_N の値は、実験結果より決定できることを 2.3 節で示す。

Fig. 2 Change in the quasiparticle current of a junction due to the magnetic flux in junction electrodes. Solid and broken lines represent quasiparticle currents in the cases without and with the magnetic flux, respectively. Inset shows schematically magnetic flux in electrodes. (Sample No. A-12)

したがって、準粒子電流の増加量 Δi を測定すれば、(2)式より薄膜内の量子磁束の本数 N を求めることができる。ただし、薄膜内に存在する $+Z$ 方向、 $-Z$ 方向いずれの向きの量子磁束も同量の準粒子を増加させることに注意しておく必要がある。もし、薄膜内のすべての量子磁束が同一向きである場合には、磁束量 Φ を $\Phi = N\Phi_0$ で表わすことができる。ここで、 Φ_0 は磁束量子 ($2.07 \times 10^{-15} \text{ Wb}$) である。

2.2 Δi - $B_{\perp}$ 曲線

薄膜に垂直磁界 $B_{\perp,i}$ を印加したまま冷却した後、垂直磁界 $B_{\perp}$ を $B_{\perp,i}$ から変化する。この時の薄膜内の磁束量に対応する Δi の変化を Fig. 3 に示す。なお、超伝導薄膜のピン特性を調べるため、 $B_{\perp,i}$ としては $10 \sim 200 \text{ G}$ 程度の比較的高い磁界を印加している。

Fig. 3(a)に、 $B_{\perp,i} = 194 \text{ G}$ の場合の測定結果を示す。同図に示すように、 Δi は $B_{\perp}$ の減少とともに単調に減少している。これは、冷却直後に薄膜内に存在していた磁束の一部が、 $B_{\perp}$ の減少とともに薄膜の外部へ追い出されていることを意味する。しかしながら、 $B_{\perp} = 0$ となっても Δi はゼロまでは減少せず、ある有限値にとどまる。このことは、 $B_{\perp} = 0$ となっても磁束の一部が依然薄膜内に存在しており、磁束がトラップしたことを表わしている。

さらに、 $B_{\perp} < 0$ の領域では、 Δi は $B_{\perp}$ の減少とともにひき続き減少するが、 $B_{\perp} = -50 \text{ G}$ 付近で最小値をとり、逆に増加を始める。前節で述べたように、準粒子電流の増加は量子磁束の向きにはよらない。このため、 $B_{\perp} < -50 \text{ G}$ の Δi の増加は、逆向きの磁束が薄膜へ侵入していることを意味する。

一方、 $B_{\perp}$ を何らかの経路で増加する場合には、Fig. 3(a)に示すように $B_{\perp}$ の増加にもかかわらず Δi が変化しない領域、すなわち、薄膜内の磁束量が増えない領域が存在する。このことは、外部からの磁束の侵入に対して何らかのバリアが存在することを意味する。このバリアは、バルクの超伝導体の場合に存在するいわゆる surface barrier²⁸⁾ に対応するものである。この surface barrier の存在は、薄膜が一旦超伝導状態になれば、磁界が印加されても磁束が薄膜内へ入りにくいことを意味する。

Fig. 3(b)に、 $B_{\perp,i}$ が比較的小さな $B_{\perp,i} = 78 \text{ G}$ の場合の測定結果を示す。この場合は、 $B_{\perp} = B_{\perp,i}$ の時に存在する磁束が、 $B_{\perp} = 0$ となってもほとんどそのままトラップされるが、それ以外は Fig. 3(a)とほぼ同様の結果が得られる。

2.3 パラメータの A_N 決定

この節では、準粒子電流の増加量 Δi より薄膜内の磁

Fig. 3 Δi - $B_{\perp}$ curves. The field $B_{\perp,i}$ is an initial field which is applied when a junction is cooled. (a) $B_{\perp,i}=194$ G (b) $B_{\perp,i}=78$ G. (Sample No. A-12)

束量を求めるために必要な(2)式中の定数 A_N の決定を行う。Fig. 3 に示した Δi - $B_{\perp}$ 曲線の中で、冷却直後、初期磁界 $B_{\perp,i}$ が印加されている $B_{\perp}=B_{\perp,i}$ の状態を考える。 $B_{\perp}=B_{\perp,i}$ の状態での Δi の値を Δi_i と定義すると、 Δi_i の $B_{\perp,i}$ 依存性は Fig. 4 で表わされる。同図に示すように、 Δi_i は $B_{\perp,i}$ のすべての領域で $B_{\perp,i}$ に比例している。この Δi_i と $B_{\perp,i}$ との比例関係より、次のように A_N を決定することができる。

初期磁界 $B_{\perp,i}$ が大きい場合には冷却直後 $B_{\perp,i}$ が印加されたままの状態では、印加された磁界 $B_{\perp,i}$ がすべて薄膜内に侵入するため、薄膜内部の磁束密度 $N\Phi_0/A$ は $B_{\perp,i}$ に等しくなる。この結果、 $B_{\perp,i}$ と N 、すなわち $B_{\perp,i}$ と Δi_i は、Fig. 4 に示すように比例すると考えられる。また、Fig. 4 において、 $B_{\perp,i}$ と Δi_i は $B_{\perp,i}$ が大きい場合のみならず、小さい場合も比例している。このことは、 $B_{\perp}=B_{\perp,i}$ の状態では、 $B_{\perp,i}$ のすべての領域で初期磁界 $B_{\perp,i}$ がそのまま薄膜内に侵入しているものと考えることができる。すなわち、 $N\Phi_0/A=B_{\perp,i}$ (あるいは $N=AB_{\perp,i}/\Phi_0$) という関係式が常に成り立つことになる。したがっ

Fig. 4 Δi_i - $B_{\perp,i}$ and Δi_t - $B_{\perp,i}$ curves. Inset shows the definition of Δi_i and Δi_t . Broken lines represent theoretical ones calculated from Eqs. (4)-(6). (Sample No. A-12)

て、関係式 $N=AB_{\perp,i}/\Phi_0$ を(2)式へ代入すれば、 A_N は次のように求めることができる。

$$A_N = \frac{\Delta i_i \cdot \Phi_0}{B_{\perp,i}} \quad (3)$$

Table 1 に(3)式を用いて得られた各種薄膜の A_N の値を示している。 A_N は、2.1節で述べたように量子磁束1本により発生する常伝導核の等価的な面積に対応する比例定数であった。この A_N の値は、理論的には近似的に次のように与えられる。すなわち、量子磁束がトラップすると1本当り $2\pi\xi^2$ の領域が常伝導状態へなることが知られている³⁴⁾。ここで、 ξ は薄膜のコヒーレント長である。また、基部電極と対向電極を貫いてトラップした量子磁束は、その中心が2つの電極間でわずかにずれる、いわゆる misalignment が生じることが知られている^{14,22)}。従って、ずれの量が ξ に比べて大きい場合には、 A_N の値は、 $A_N=2\pi(\xi_1^2+\xi_2^2)$ で近似的に与えられる。ここで、 ξ_1 、 ξ_2 はそれぞれ基部電極、対向電極のコヒーレント長である。Table 1 に示された A_N の値は、この理論値と比較してもほぼ一致しているとみなすことができる。たとえば、Sample No. A-12では、実験結果より $A_N=0.038 \mu\text{m}^2$ が得られている。この場合、基部電極 PbInAu と対向電極 Pb の ξ の値として文献(29)よりそれぞれ $0.017 \mu\text{m}$ 、 $0.093 \mu\text{m}$ を用いると、 A_N の理論値は $A_N=0.056 \mu\text{m}^2$ となり実験結果とほぼ一致している。

Table 1 Parameters characterizing flux trapping of thin-film Pb-alloys.

Sample No.	Materials Base-/Counter-electrode	L × W (μm ²)	R _N (Ω)	I ₀ (mA)	B _p (G)	a _p (μm)	A _N (μm ²)
A-1	Pb-(12 wt%) In/Pb	15×14	0.417	0.49	56	0.61	0.034
A-2		15×30	0.190	1.03	39	0.73	0.032
A-3		15×35	0.174	1.12	39	0.73	0.037
A-4	Pb-(12 wt%) In/Pb-(4 wt%) Au	15×14	8.89	0.029	126	0.41	0.026
A-5		15×30	3.77	0.052	120	0.42	0.029
A-6		15×45	3.39	0.058	99	0.46	0.030
A-7	Pb-(12 wt%) In/Pb-(29 wt%) Bi	15×14	0.615	0.29	21	0.99	0.0050
A-8		15×35	0.186	1.06	21	0.99	0.0058
A-9		15×45	0.240	0.76	23	0.95	0.0061
A-10	Pb-(12 wt%) In-(4 wt%) Au/Pb	15×14	0.377	0.56	68	0.55	0.042
A-11		15×30	0.177	1.18	68	0.55	0.037
A-12		15×45	0.214	0.83	77	0.52	0.038
A-13	Pb-(12 wt%) In-(4 wt%) Au/ Pb-(29 wt%) Bi	15×14	0.588	0.33	44	0.69	0.016
A-14		15×30	0.209	0.87	45	0.68	0.014
A-15		15×45	0.169	1.36	46	0.67	0.017

2.4 飽和磁界 B_p

この節では、薄膜のピン特性を定量的に比較するために、薄膜のピン特性を特徴づけるパラメータとしてトラップ磁束量の飽和磁界 B_p を定義する。薄膜に磁束がトラップした状態とは、Fig. 3 に示した Δi -B_⊥ 曲線の中で、冷却後 B_⊥ = 0 とした状態を表わすものであった。この B_⊥ = 0 とした状態での Δi の値を Δi_i と定義すると、 Δi_i の初期磁界 B_{⊥,i} 依存性は Fig. 4 で表わされる。同図に示すように、 Δi_i は B_{⊥,i} の増加とともに増加しているが、ある値を越えると Δi_i は飽和している。これは、薄膜にトラップする磁束量は、初期磁界 B_{⊥,i} とともに増加するが、その量には限界があり、ある飽和値を持つことを意味する。この飽和値は、一般に薄膜のピン特性に大きく依存することが知られている²⁰⁾。したがって、薄膜の材料などによって大きく異なることが予想される。

そこで、各種の薄膜のピン特性を定量的に比較するために、磁束トラップを特徴づけるパラメータとして、飽和磁界 B_p を Fig. 4 に示すように定義する。薄膜にトラップする磁束量の飽和値は、B_p の値に比例するため、磁束トラップの観点から言えば B_p の値が小さい程よい薄膜と言える。また、B_p に対応した量子磁束の平均間隔は $a_p = (\Phi_0/B_p)^{1/2}$ で与えられ、a_p により飽和時の磁束間隔が求まる。

以後は、この B_p の値を用いて各種の超伝導薄膜の評価を行うことができる。次の3.1節では、磁束トラップ

のモデルより B_p の理論式を得るとともに、さらに4.1節では、実験より得られた B_p の材料依存性をもとに、Pb 合金超伝導薄膜の評価を行っている。

3. 磁束トラップのモデル

3.1 臨界状態モデル

超伝導薄膜内に存在する量子磁束の運動は、薄膜内の結晶粒界や析出物などのいわゆるピンによって制御され、この場合の磁束の運動は、超伝導体のピンニング理論に基づいた臨界状態モデルで記述できることが知られている²⁰⁾。このため本節では、臨界状態モデルを用いて超伝導薄膜での磁束トラップのモデル化を行う。

薄膜内に量子磁束が存在する場合、個々の量子磁束にはローレンツ力 F_L とピン力 F_p の2つの力が働く。ローレンツ力は、個々の量子磁束間の磁氣的相互作用によって発生し、結晶粒界や析出物などにピン止めされている量子磁束を動かそうとする力である。一方、ピン力は、量子磁束を結晶粒界や析出物などに留めようとする力である。臨界状態モデルでは、この2つの力は互いに釣り合っており、

$$F_L = F_p \quad (4)$$

となる。また、ローレンツ力 F_L およびピン力 F_p は、それぞれ次の式で与えられる²⁰⁾。

$$F_L = -B \frac{dB}{dx} \quad (5)$$

$$F_p = \pm \alpha |B|^7 \quad (6)$$

ここで、 B は薄膜内での磁束密度、 H は熱力学的磁界である。(6)式で与えられるピン力 F_p は、 F_p の B 依存性を考慮した場合の一般的な表式である³⁰⁾。 α はピンの強さを表わす薄膜固有のパラメータであり、薄膜のピン特性を決定する際の最も重要なパラメータである。一方、 γ はピンの強さの磁束密度依存性を表わすパラメータであり、 $0 \leq \gamma \leq 1$ の値をとる。また、(6)式中の+、-の符号は、それぞれ $F_L > 0$ 、 $F_L < 0$ の場合に対応する。

このような臨界状態モデルでは、ローレンツ力 F_L が(5)式で示すように dB/dx に依存しているため、薄膜内で磁束密度 B が場所的に分布する。この磁束密度分布 $B(x)$ は、(4)~(6)式を解くことにより求めることができる。その際、 F_L は dH/dB に依存しているため、この取扱いを次のように行った。磁束密度 B が大きく、 B に対応する量子磁束の間隔 $a = (\Phi_0/B)^{1/2}$ が、ロンドン侵入距離 λ に比べて小さい場合には、 $dH/dB = 1/\mu_0$ (μ_0 は真空の透磁率) という近似が成り立つ。一方、 B が小さい場合には、 B の減少とともに dH/dB も減少する。しかしながら、薄膜では反磁場効果などが複雑に影響するため、この理論的な表式は得られていない。そこで、ここでは高磁界での近似式 $dH/dB = 1/\mu_0$ を用いた。

以上のように磁束トラップを臨界状態モデルで記述した場合、2.4節で得られた飽和磁界 B_p は次のように表わすことができる²⁶⁾。

$$B_p = \frac{2-\gamma}{3-\gamma} \left\{ \frac{\mu_0 \alpha W (2-\gamma)}{2} \right\}^{1/(2-\gamma)} \quad (7)$$

ここで、 W は電極の幅である。(7)式に示すように、 B_p はピンの強さを表わすパラメータ α に依存している。すなわち、臨界状態モデルからも、 B_p は薄膜のピン特性を考察する際の重要なパラメータであることがわかる。

3.2 実験との比較

この節では、2.2節で得られた $\Delta i-B_L$ 曲線と、臨界状態モデルより得られる理論曲線との比較を行う。ただし、ここでは、超伝導薄膜のピン特性を考察する際に重要となる、 B_L が初期磁界 B_{L1} から減少する場合の $\Delta i-B_L$ 曲線の比較のみにとどめる。臨界状態モデルより $\Delta i-B_L$ 曲線を求める場合には、以下の手順により行う。まず、各 B_L に対して、(4)~(6)式より磁束密度分布 $B(x)$ を求め、次に、 $B(x)$ を次式へ代入し薄膜内の量子磁束の本数 N を求める。

$$N = \frac{L}{\Phi_0} \int_{-w/2}^{w/2} |B(x)| dx \quad (8)$$

ここで、 L は接合の長さである。次に、得られた N を(2)式へ代入することにより $\Delta i-B_L$ 曲線が求まる。

Fig. 5 に、 $\Delta i-B_L$ 曲線の実験と理論の比較を示す。同図において、実験および理論曲線を、それぞれ実線、破

Fig. 5 Comparison between experimental and theoretical $\Delta i-B_L$ curves. (Sample No. A-12)

線で示している。臨界状態モデルを用いた理論曲線の導出にあたっては、(6)式中のパラメータ γ のみを未知定数とし、 γ は実験曲線と理論曲線が最も一致するように決定した結果、 $\gamma = 0.25$ が最適であった。一方、(6)式中のパラメータ α は、実験で得られた B_p より(7)式を用いて決定できる。Fig. 5 からわかるように、 $B_L \geq 100$ G の領域では、実験と理論はかなり一致している。しかし、 $B_L \leq 100$ G の領域では、両者のちがいが発生する。このちがいは、理論曲線の導出において、前節で述べたように(5)式中の dH/dB を高い磁界中で有効な $dH/dB = 1/\mu_0$ という関係式で近似したためである。

また、Fig. 6 に、臨界状態モデルより得られる磁束密度分布 $B(x)$ の計算結果を示す。Fig. 6(a)~(f)で示す磁束密度分布は、それぞれ Fig. 5 中の A~F の各点における磁束密度分布に対応している。特に、Fig. 6(c) および Fig. 6(f) は、 $B_L = 0$ の時、すなわち磁束がトラップした状態での磁束密度分布を表わしている。

また、トラップした状態での磁束量は、Fig. 6(c), (f)の状態での磁束密度分布を積分することにより得られる。Fig. 4 において、トラップ磁束量に対応する Δi_c の理論曲線を破線で示し実験値と比較している。同図に示すように、両者はよく一致している。これら実験と理論との一致は、今回行った薄膜冷却時の磁束トラップが、臨界状態モデルでよく記述されていることを示している。

4. 考 察

4.1 磁束トラップの材料依存性

この節では、超伝導回路において電極薄膜材料として、現在最も多く使用されている Pb 合金薄膜を用いて、磁束トラップの材料依存性を調べ、これらの薄膜の評価を行う。特に、Pb に Au あるいは Bi を添加した場

Fig. 6 Distribution of magnetic-flux density $B(x)$ calculated from Eqs. (4)-(6). Figures (a)-(f) correspond to points A-F in Fig. 5, respectively. Figures (a)-(d) $B_{\perp,1} = 194\text{G}$, (e) and (f) $B_{\perp,1} = 78\text{ G}$.

合の磁束トラップに及ぼす影響を調べる。今回ジョセフソン素子の電極薄膜として用いた Pb 合金を、Table 1 に示している。まず、基部電極には Pb-(12 wt%) In-(4 wt%) Au, または Pb-(12 wt%) In を使用し、これらの合金は約 5×10^{-7} Torr の真空度のもとで (Au), Pb, In の順に積層蒸着により形成する。一方、対向電極には Pb, Pb-(4 wt%) Au, Pb-(29 wt%) Bi を使用し、Pb, Au, あるいは Pb, Bi の順に積層蒸着を行う。

2.4節で述べたように、薄膜への磁束トラップは飽和磁界 B_p により評価することができる。Fig. 7 に飽和磁界 B_p の材料依存性を示す。まず、Au の添加の影響について、Fig. 7(a) に示す PbIn/Pb と PbIn/PbAu の B_p のちがいより考察する。同図より、対向電極に Au を添加した PbIn/PaAu では、 B_p が PbIn/Pb に比べ約 2 倍増加していることがわかる。いずれの場合も、基部電極には共通の PbIn を使用しているために、この B_p の増加は、明らかに Pb に添加した Au の影響であり、この原因は次のように考えることができる。Pb 薄膜では、結晶粒界のみがピンとして働く。一方、Au を添加した PbAu 薄膜内には、析出物として AuPb_2 , AuPb_3 などの金属間化合物が存在することが知られている³¹⁾。さらに、これらの AuPb_2 , AuPb_3 は、転移温度 T_c が、それぞれ 3.15~5.40 K, 4.25~6.25 K と Pb の 7.2 K に比べて低く³²⁾、常伝導金属に近い性質を持つため、結晶粒界に比べて非常に強いピンとして働く。そのため、PbAu 薄膜は、Pb 薄膜に比べて大きなピン F_p を持つことになる。(7)式で示したように、飽和磁界 B_p は F_p とともに増加するた

Fig. 7 Material dependence of B_p . PbIn and PbInAu are used for common base electrode in (a) and (b), respectively.

め、PbAu 薄膜は Pb 薄膜に比べて大きな B_p を持つことになる。

同様の Au 添加による B_p の増加は、Fig. 7(a) と (b) に示す PbIn/Pb と PbInAu/Pb との比較からも知ることができる。この場合、基部電極の PbIn → Au を添加すると B_p が増加している。これは、PbIn 薄膜の場合も Pb 薄膜と同様に結晶粒界のみがピンとして働くのに対して、PbInAu 薄膜では、先に述べた AuPb_2 や AuPb_3 に加えて AuIn_2 ($T_c = 0.2\text{K}$) の金属間化合物が存在し^{13,31)}、これらが強いピンとして働くためである。

次に、Bi の添加の影響について、Fig. 7(b) に示す PbInAu/Pb と PbInAu/PbBi の B_p のちがいより考察する。同図より、対向電極の Pb → Bi を添加することによって B_p が約 40% 減少していることがわかる。Pb → Bi を添加しても析出物は存在せず、結晶粒界のみがピンとして働くことが知られている³³⁾。そのため、PbInAu/Pb と PbInAu/PbBi の間では、いずれの場合も共通の基部電極 PbInAu 中の強いピンである常伝導析出物がピン力 F_p を支配しているので、両者のピン力 F_p はほぼ等しいものとみなすことができる。したがって、両者の B_p のちがいを Au 添加の場合と同様に、ピン力 F_p のちがいから説明することはできない。

そこで、Bi 添加による B_p のちがいをローレンツ力 F_L のちがいから考察する。(5)式で表わされるように、ローレンツ力 F_L は dH/dB に比例しており、低い磁界において特に dH/dB の影響が効いてくる。パルクの超伝導体の場合には、量子磁束の間隔 a が λ に比べて大きくなるような低い磁界において、 dH/dB は、 $dH/dB = 0.128/\mu_0 (a/\lambda)^2 \exp\{-1.07(a/\lambda)\}$ と与えられる³⁴⁾。こ

の式からわかるように、 dH/dB はロンドン侵入距離 λ に依存しており、低い磁界においては λ が大きい程 dH/dB は大きくなる。すなわち、低い磁界では、 λ が大きい程ローレンツ力 F_L が増加する。以上は、バルクの場合であり、薄膜の場合には dH/dB の理論的な表式は得られていないが、上述の議論が定性的には成り立つものと予想される。

PbInAu/Pb と PbInAu/PbBi を比較した場合、対向電極に用いた Pb、PbBi のロンドン侵入距離 λ は、それぞれ $500\text{\AA}$ 、 $2020\text{\AA}$ であり²⁰⁾、PbBi が Pb に比べて4倍も大きい。したがって、先に述べたように、PbBi 薄膜のローレンツ力が Pb 薄膜のそれに比べて大きくなる。その結果、PbInAu/PbBi の B_p が PbInAu/Pb の B_p に比べて小さくなっているものと考えることができる。同様の Bi 添加による B_p の減少は、Fig. 7(a) に示す PbIn/Pb と PbIn/PbBi の比較からも知ることができる。

以上述べたように、Pb に Au および Bi を添加した場合の影響について考察した。まず、Pb や PbIn に Au を添加すると、薄膜内に析出物として AuPb_2 、 AuPb_3 、 AuIn_2 などの金属間化合物ができ、これらがジョセフソン素子のヒートサイクル特性を著しく向上させることが知られている⁹⁵⁾。しかしながら、磁束トラップの観点から見れば、これらの金属間化合物は、ピン力を著しく増加させるために望ましくないことがわかった。一方、Bi の添加は、ロンドン侵入距離を増大させるためローレンツ力が増加し、その結果、薄膜にトラップする磁束量が低減することがわかった。

4.2 磁束トラップの温度依存性

超伝導薄膜に磁束がトラップした場合、薄膜の温度を転移温度 T_c 以上に上昇し薄膜を常伝導転移させれば、トラップした磁束は薄膜外へ追い出される。しかしながら、再び冷却する場合、超伝導転移時に残留磁界などが再度トラップする可能性がある。そのため、 T_c 以下の領域で薄膜の温度を上昇すれば、トラップした磁束を低減できることが期待される。そこで、この節では、磁束トラップの温度依存性について調べ、トラップ磁束の低減法について考察している。

磁束トラップの温度依存性の測定は次のように行った。まず、2.2節で述べたように冷却時に磁界を印加し、薄膜に磁束をトラップさせる。その後、薄膜を 4.2K からある温度 T まで上昇させ、再度 4.2K へ戻し、この時のトラップ磁束量の変化を測定する。Fig. 8 に、トラップ磁束量（量子磁束の本数 N ）の温度依存性を示す。同図において、丸印と三角印は最初にトラップされた磁束量が異なる場合である。温度 T の上昇とともに、トラップ

磁束量が減少していることがわかる。また、 $T/T_c \geq 0.85$ の領域では、最初にトラップされた磁束量の多少にかかわらず、磁束量は同様の減少を示している。さらに、Fig. 8 は、 T_c の近傍まで温度を上昇することにより、薄膜内の磁束量を最初にトラップした磁束量の10%以下にまで低減できることを示している。

このような温度の上昇によるトラップ磁束量の低下は、3.1節で述べた臨界状態モデルを使って、次のように定性的な説明をすることができる。一般に、温度が上昇すると、ピンの強さが弱まり(6)式中のパラメータ α が減少する²⁰⁾。すなわち、温度の上昇とともにピン力 F_p が減少する。一方、温度の上昇とともにロンドン侵入距離 λ が増加するため、前節で考察したようにローレンツ力 F_L が増加する。このような温度上昇による F_p の減少、 F_L の増加によって、薄膜内の磁束が追い出され、結果的にトラップ磁束量が減少する。

以上のように、超伝導薄膜にトラップした磁束を低減させるために、常伝導状態へ転移させることなく T_c 付近まで温度を上昇させることは、効果的な方法であると思われる。

5. 臨界電流の低下

ジョセフソン素子を形成する超伝導薄膜電極に磁束がトラップした場合、素子の動作上重要なパラメータである素子の臨界電流が低下することが知られている^{14,15,22)}。この章では、トラップ磁束量と臨界電流の低

Fig. 8 Change in the number of trapped vortices N at 4.2K after the temperature is raised from 4.2K to T , where $T_c = 7.2\text{K}$. Circles and triangles correspond to different values of the initial trapped flux. The value of $a = (A/N)^{1/2}$ represents the average spacing between trapped vortices. (Sample No. A-12)

下量を同時に測定することにより、両者の関係を定量的に明らかにしている。

まず、磁束トラップによる臨界電流の低下量は、素子の閾値特性の変化より測定した。冷却時の印加磁界 $B_{\perp,i}$ を変え、電極にトラップされる磁束量が異なる場合の閾値特性の変化例を Fig. 9 に示す。同図より、臨界電流の最大値 $I_{c,max}$ は、 $B_{\perp,i}$ の増加とともに低下していることがわかる。また、閾値特性の形も $B_{\perp,i}$ の増加とともに、理想的なフラウンホーファーパターンとは異なった形となっている。

一方、閾値特性の測定と同時に、第2章で述べたように、準粒子電流の変化よりジョセフソン素子を形成する電極にトラップした磁束量の測定を行った。Fig. 10 に、電極にトラップした量子磁束の本数 N と臨界電流 $I_{c,max}$ の関係を示す。同図より、 $I_{c,max}$ の低下量は、トラップした量子磁束の本数 N にほぼ比例していることがわかる。たとえば、Sample No. B-1 の場合、 $I_{c,max}$ の低下を実線で示す直線で近似すれば、1本の量子磁束による $I_{c,max}$ の低下率は0.17%となる。ところで、ジョセフソン素子の臨界電流は、素子の面積に比例するため、 $I_{c,max}$ の低下は量子磁束のトラップによって接合の一部の領域でジョセフソン電流が抑圧され、等価的に素子の面積が小さくなっているものとみなすことができる。そこで、1本の量子磁束によってジョセフソン電流が抑圧される面積を A_S とすると、Table 2 に示すように Sample No. B-1 の場合、 $A_S = 0.0017 \times A = 0.0017 \times 800 \mu\text{m}^2 = 1.36 \mu\text{m}^2$ となる。

以上のような結果は、電極のロンドン侵入距離 λ と関連させて議論することができる。1本の量子磁束によってジョセフソン電流が抑圧される面積 A_S を $A_S = \pi$

$(\beta\lambda)^2$ で表わすと、先程の Sample No. B-1 の場合、 λ として基部電極 (PbInAu)、対向電極 (PbAu) の λ である $1400 \text{ \AA}$, $800 \text{ \AA}$ の平均値 $\lambda = 1100 \text{ \AA}$ を用いると $\beta = 6.0$ となる。²⁹⁾ すなわち、1本の量子磁束によって半径が λ の約6倍の領域でジョセフソン電流が抑圧されているものとみなすことができる。一般に、接合を流れるジョセフソン電流が抑圧されるためには、接合部において接合面と平行な磁界が必要である。量子磁束が薄膜を垂直に貫いてトラップしている状況下で、このような接合部における磁界の平行成分の発生は、次の2つの原因によるものと考えることができる。まず第一は、量子磁束が基部電極と対向電極とを貫く位置がわずかにずれる、いわゆる misalignment によって発生するものである^{14,22)}。第二は、基部電極と対向電極の λ の値のちがいにによるものである。1本の量子磁束のトラップによって、ジョセフソン電流が $A_S = \pi(6\lambda)^2$ の領域で抑圧されるという実験結果は、このような磁界の平行成分発生メカニズムを考慮に入れた理論的な計算によっても、妥当であることを確認している²⁵⁾。

ここで得られた1本の量子磁束による臨界電流の低下率は、比較的大きな面積 ($20 \times 40 \mu\text{m}^2$) のジョセフソン素子で得られたものであるが、素子の集積化のために素子面積が小さくなった場合に適用してみることは非常に興味深い。たとえば、 $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ の素子面積を考えると、1本の量子磁束のトラップによる臨界電流の低下は、約6%となり Fulton らの実験結果²²⁾ と一致している。

6. ま と め

本報告では、Pb 合金超伝導薄膜の磁束トラップについての実験と考察を行い、次のような結果を得た。

1) 薄膜にトラップした磁束量の有効な測定法を示した。すなわち、薄膜によりジョセフソン素子を製作し、素子の準粒子電流の増加により薄膜内のトラップ磁束量

Fig. 9 Variation of the threshold curve due to flux trapping in junction electrodes. Maximum critical current $I_{c,max}$ is defined as shown in (b). (Sample No. B-1)

Fig. 10 Dependence of $I_{c,max}/I_c$ on the number of the trapped vortices N .

Table 2 Parameters characterizing suppression of the critical current of the junction due to flux trapping in junction electrodes.

Sample No.	Materials Base-/Counter-electrode	$L \times W$ (μm^2)	R_N (Ω)	I_c (mA)	A_s (μm^2)	β
B-1		20×40	0.426	3.4	1.36	6.0
B-2	Pb-(12 wt%) In-(4 wt%)Au/Pb-(4 wt%) Au	20×40	0.143	9.8	1.44	6.2
B-3		20×40	0.114	12.0	1.04	5.2

を測定した。

2) 磁束トラップのモデルとして超伝導体のピンニング理論に基づいた臨界状態モデルを用い、薄膜の磁束トラップ特性を説明することができた。

3) Pb に Au を添加した場合、薄膜内に析出物として存在する AuPb_2 , AuPb_3 などが非常に強いピンとして働くため、磁束トラップの観点から Au の添加は望ましくないことが判明した。

4) Pb に Bi を添加すると、ロンドン侵入距離の増加によってローレンツ力が増加し、磁束トラップが低減することを示した。

5) 磁束トラップの温度依存性について調べ、薄膜の温度を T_c 付近まで上昇させることにより、トラップ磁束を減少できることを示した。

6) ジョセフソン素子の電極に磁束がトラップした場合、量子磁束 1 本当たり約 $\pi(6\lambda)^2$ の面積でジョセフソン電流が抑圧され、その結果素子の臨界電流が低下することを示した。

謝 辞

素子製作にあたり、Si 基板などを提供していただいた信越化学工業㈱および九州日本電気㈱に感謝する。また、実験に協力していただいた九州大学印刷所高橋政義氏、および当研究室田中孝浩君に感謝する。

〔文 献〕

- 1) IEEE Trans. Electron Devices **ED-27** No. 10 (1980) ジョセフソン特集号。
- 2) IBM J. Res. & Dev. **24** No. 2 (1980) ジョセフソン特集号。
- 3) M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Miyahara, K. Kuroda, F. Yanagawa and A. Ishida: IEEE Electron Device Lett. **EDL-4** (1983) 150.
- 4) J. Sone, T. Yoshida, S. Tahara and H. Abe: Appl. Phys. Lett. **41** (1982) 886.
- 5) S. Kosaka, A. Shoji, M. Aoyagi, F. Shinoki, H. Nakagawa, S. Takada and H. Hayakawa: Appl. Phys. Lett. **43** (1983) 213.
- 6) J. W. Spargo, R. E. Jewett and T. Van Duzer: IEEE Trans. Magn. **MAG-19** (1983) 1255.

- 7) C. A. Hamilton and F. L. Lloyd: IEEE Trans. Magn. **MAG-19** (1983) 1259.
- 8) J. Clarke: IEEE Trans. Magn. **MAG-19** (1983) 288.
- 9) A. Davidson: IEEE Trans. Magn. **MAG-19** (1983) 295.
- 10) R. L. Richards and T.-M. Shen: IEEE Trans. Electron Devices **ED-27** (1980) 1909.
- 11) E. C. Sutton: IEEE Trans. Microwave Theory Tech. **MTT-31** (1983) 589.
- 12) T. Nagatsuma, K. Enpuku, F. Irie and K. Yoshida: J. Appl. Phys. **54** (1983) 3302.
- 13) J. H. Greiner, C. J. Kircher, S. P. Klepner, S. K. Lahiri, A. J. Warnecke, S. Basavaiah, E. T. Yen, John. M. Baker, P. R. Brosious, H.-C. W. Huang, M. Murakami and I. Ames: IBM J. Res. & Dev. **24** (1980) 195.
- 14) A. F. Hebard and R. H. Eick: J. Appl. Phys. **49** (1978) 338.
- 15) M. A. Washington and T. A. Fulton: Appl. Phys. Lett. **40** (1982) 848.
- 16) S. Berman and T. Gheewala: IEEE Trans. Magn. **MAG-19** (1983) 1160.
- 17) W. H. Chang: J. Appl. Phys. **53** (1982) 8901.
- 18) 和田正人, 中野純一, 柳川文彦, 林 孝好: 信学技報 **SCE82-54** (1982).
- 19) 宮原一紀, 石田晶: 信学技報 **SCE83-32** (1983).
- 20) A. M. Campbell and J. E. Evetts: *Critical currents in superconductors* (Taylor and Francis, London, 1972).
- 21) W. T. Band and G. B. Donaldson: J. Phys. **F4** (1974) 2017.
- 22) T. A. Fulton, A. F. Hebard, L. N. Dunkleberger and R. H. Eick: Solid State Commun. **22** (1977) 493.
- 23) 内田直人, 円福敬二, 松垣佳克, 入江富士男, 吉田啓二: 信学技報 **SCE82-40** (1982).
- 24) 内田直人, 円福敬二, 入江富士男, 吉田啓二: 信学技報 **ED83-44** (1983).
- 25) N. Uchida, K. Enpuku, Y. Matsugaki, S. Tomita, F. Irie and K. Yoshida: J. Appl. Phys. **54** (1983) 5287.
- 26) N. Uchida, K. Enpuku, K. Yoshida and F. Irie: J. Appl. Phys. (to be published).
- 27) 内田直人, 円福敬二, 吉田啓二, 入江富士男: 真空 **25** (1982) 613.
- 28) C. P. Bean and J. D. Livingston: Phys. Rev.

- Lett. **12** (1964) 14.
- 29) W. H. Henkels and C. J. Kircher: IEEE Trans. Magn. **MAG-13** (1977) 63.
- 30) F. Irie and K. Yamafuji: J. Phys. Soc. Japan **23** (1967) 55.
- 31) S. K. Lahiri: J. Vac. Sci. Technol. **13** (1976) 148.
- 32) L. B. Leder: Cryogenics **8** (1968) 364.
- 33) W. E. Yetter and E. J. Kramer: Philos. Mag. **46** (1982) 221.
- 34) M. Thinkham: *Introduction to superconductivity* (McGraw-Hill, New York, 1975) p. 129, p. 152.
- 35) S. Basavaiah and J. H. Greiner: J. Appl. Phys. **48** (1977) 4630.