

学位論文の要旨

氏名

大木 康太郎

学位論文題目

積層型高温超伝導ジョセフソン接合における超伝導電極・界面改質バリアの評価・制御に関する研究

本論文は、次世代デバイスとして期待されている超伝導デバイスを実現するために行った高温超伝導電極の平坦化と界面改質バリアの評価、制御及び微細加工プロセスの確立に関するものである。急速な情報化社会の発展に伴い、通信量は増加の一途を辿っている。ネットワークの中核機器であるルータやサーバなどには更なる高速化、低消費電力化が要求されているが半導体デバイスでは素子の発熱や消費電力など多くの克服すべき課題があり、これらの要求を満たすデバイスを半導体のみで作製するのは困難と考えられている。そのような中で期待されている次世代デバイスの一つが高温超伝導デバイスである。半導体と比較し100倍以上の高速性、1/1000の低消費電力の特徴を併せ持つ。高温超伝導デバイスはジョセフソン接合を基本素子とし、その特性は数nmという極薄いバリア層に大きく依存する。ジョセフソン素子の集積化には臨界電流 I_c などの特性分散を抑制する必要があるが現在ではこの分散は大きい。この問題の解決には、接合特性の鍵となるバリア層の特性改善が必要である。近年、この接合特性分散の抑制に界面改質バリアが有効であることが報告された。しかし、改質バリアの形成メカニズムなどは未明であり、バリア層の再結晶化による超伝導ショートなど、新たな問題点が指摘されている。本研究では、この問題の解決策としてバリア層の基盤となる下部電極(c軸配向 $YBa_2Cu_3O_x$: YBCO)の平坦化、界面改質バリアの形成・再結晶化機構の解明を行った。平坦化に関しては、スパッタリング法による成膜時の表面拡散の制御、原子レベルのステップ構造をもつ $SrTiO_3$ 基板上への成膜を行いこれらが平坦化に有効であることを示す。界面改質バリアの形成・再結晶化機構の解明に関しては、改質層の結晶構造、電子状態の評価、これらの改質条件依存性、改質層の再結晶化機構の解明について述べる。第5章では接合作製のための微細加工プロセスの確立についても述べる。

第1章は、(序章)であり、研究の背景と目的について述べる。次世代デバイスとして期待されている超伝導デバイスとその特徴を紹介し、現在の課題である接合特性分散の抑制について検討を行う。この特性分散の抑制に有効であると報告されている界面改質バリアについて説明し、積層型接合に適応した場合に発生する超伝導ショートという新たな問題について述べ、解決策を検討した。この問題の原因は界面改質バリアの基盤となる下部電極の表面荒さ、形成・再結晶化メカニズムに対する情報不足に起因することを指摘し、これらの問題解決のために行った下部電極であるYBCO薄膜の平坦化、改質層の結晶構造・電子状態の評価による改質層形成プロセスの最適化、について述べる。

第2章は、スパッタリングの条件最適化による下部電極の原子レベルでの平坦化について述べる。積層型接合の形成には、バリア層と同程度のオーダーで平坦な下部電極の作製が必要不可欠である。ここでは、スパッタリング時の表面拡散をチャンバー内圧力、基板温度等を変化させ制御し平坦化を行った。表面拡散を最適化した結果、幅 $2\mu\text{m}$ の領域で表面の最大高低差が 10nm 以下の平坦な膜が得られた。また、更なる平坦化のために、島状成長した粒子の抑制を行った。この粒子の成長の原因は基板の欠陥に起因すると考え、ステップ構造をもつ SrTiO_3 基板上への成膜を行ったところ粒子の成長の抑制効果が見られ、ステップ構造を持つ SrTiO_3 基板の有効性を示した。

第3章は、改質バリア形成に最適なプロセスを確立するために、改質バリア形成の主プロセスであるイオンビーム照射のイオンエネルギーと、改質層の結晶構造、電子状態の関係の解明について述べる。結晶構造、電子状態はそれぞれ反射高速電子回折法 (RHEED)、光電子分光法 (XPS) により高真空中で「その場」評価した。イオンビーム照射後、改質層の結晶構造はアモルファスで組成はYリッチであること、改質層の厚さはイオンビームのエネルギーに依存しバリア層形成には高エネルギーのイオンビーム照射が必要であることを明らかにした。熱的安定性の評価は酸素雰囲気中熱処理を行い同様に評価することで行った。改質層をバリア層として利用するためには高エネルギーのイオンビーム照射、高温プロセスの短縮が有効であることを明らかにした。

第4章は、改質バリアに対するより詳細な情報を得るために行った改質層の再結晶化メカニズムの解明について述べる。はじめに、再結晶過程の評価方法について検討を行った。YBCO薄膜表面を 1keV の高エネルギーのイオンビームを照射し数 nm の改質層を形成した後、酸素雰囲気中熱処理して再結晶化させ、角度分解光電子分光法で深さ方向の評価を行った。熱処理後の改質層から得られたスペクトルは角度に依存し、すなわち電子状態は改質層の内部と表面で異なることが示された。再結晶化は下部電極である超伝導層と改質層の界面からはじまり、表面の方へと再結晶化するということが明らかになった。この結果は、高エネルギーのイオンビーム照射で得た改質層が長時間の熱処理によって超伝導体へ再結晶化するという結果とも矛盾しない。

第5章は、微細加工プロセスの確立について述べる。第3、4章の結果をもとに予想されるバリア層に適した改質条件で接合の作製を行い接合特性を評価するために行った微細加工プロセスとそれに必要な装置の立ち上げの詳細について述べる。高温超伝導薄膜は酸素脱離し劣化し易いためイオンビーム照射によるエッチング処理や薬品などによる劣化を抑える必要があり、これらに適したプロセスの検討を行った。リソグラフィでのレジストパターン作製時、薄膜表面がレジストや現像液にさらされるため劣化が起こるが、この劣化を防ぐために接合形成後、Au層による保護層を形成した。この保護層は最終的に配線層の一部となり、薄膜表面は一度も薬品や大気に触れないため表面の劣化が抑制することができる。また、改質バリア層形成時や微細加工にArイオンビーム照射を行うが、イオンビーム照射時に起こる局所的な温度上昇でYBCO薄膜表面の酸素脱離が起こり、超伝導特性が劣化することが報告されているが、この酸素脱離による劣化を防ぐために液体窒素冷却が可能なシステムを立ち上げたのでその詳細について述べる。

第6章は、本研究の成果を要約し、スパッタリング法による成膜時の表面拡散制御、ステップ基板の適用による平坦化の有効性、改質バリアの形成メカニズム、再結晶化メカニズムの解明による改質バリア形成プロセスの最適化の有効性が実証を示し、本研究を総括している。

論文審査の要旨

報告番号	理工研 第225号	氏名	大木 康太郎
審査委員	主査	寺田 教男	
	副査	小原 幸三	奥田 哲治

学位論文題目
積層型高温超伝導ジョセフソン接合における超伝導電極・界面改質バリアの評価・制御に関する研究
(Study of Characterization and Control of Superconducting Electrodes and Interface-Engineered Barrier in Sandwich Type High Temperature Superconducting Josephson Junctions)

審査要旨

提出された学位論文及び論文目録等を基に学位論文審査を実施した。本論文は積層型高温超伝導ジョセフソン接合における超伝導電極・界面改質バリアの評価・制御に関する研究について述べたもので、全文6章より構成されている。

第1章は序章である。第2章ではスパッタリング法による $c\text{-YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 薄膜の超平坦化について述べている。本研究では超伝導層作成手法に、大面積化に適するスパッタリング法を用い、形成条件を最適化することで成膜時の平坦化を行い、超伝導転移温度 $T_c=80\text{ K}$ 、薄膜表面の最大高低差 3.5 nm 以下のas-grownスパッタ膜としては最高レベルの平坦性を持った高品質な薄膜の作製に成功している。

第3章では改質条件と界面改質バリアの関係の解明について述べている。ジョセフソン接合を集積化するための最も大きな課題は特性分散の抑制であるが、この問題解決に、薄膜表面にイオンビーム照射、熱処理を行うことで形成される改質バリアが有効であることが他のグループにより報告されている。しかし、上部電極の高温プロセスでバリア層が超伝導体へ再結晶化し短絡するという新たな問題も報告されている。この問題の原因は改質バリア層形成プロセスの最適化指針が未解明なためであることを指摘し、この最適化指針を得るために改質バリア層の結晶構造、電子構造、熱的安定性を光電子分光法、反射高速電子回折により「その場」評価している。この結果より、 $c\text{-YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 薄膜表面に改質処理の主プロセスであるイオンビーム照射を行うと表面は化学量論組成からずれYリッチとなり結晶構造はアモルファスで、この改質層がバリア層として働くこと、高エネルギーのイオンビーム照射により厚い改質層が得られ熱的安定性が向上すること、高エネルギーのイオンビーム照射後も長時間の熱処理後は再結晶化すること、を明らかにしている。これらの結果より、改質バリア層の形成には、高エネルギーのイオンビーム照射、高温プロセスの短縮が適するという改質バリア層形成条件最適化のための新たな指針を得ている。

第4章では改質層の再結晶化過程の解明について述べている。評価手法に角度分解光電子分光法のその場評価により改質層の深さ方向の評価を行い再結晶化過程を調べている。この実験結果より、改質層の再結晶化は、改質層/下部電極の界面からはじまり表面の方へと進行するというこれまで未解明であった再結晶化機構をはじめて明らかにしている。

第5章は微細加工プロセスについて述べている。フォトリソグラフィシステムの新たな構築、構築したシステムで微細加工後の超伝導体へ配線し、低温熱処理を行うことで $10^5\ \Omega \cdot \text{cm}^2$ オーダーの低コンタクト抵抗が達成されている。

第6章は結論である。

以上、本論文は積層型高温超伝導ジョセフソン接合に関する研究で界面改質バリアの結晶構造、電子構造、熱的安定性の評価を行い形成プロセス最適化の指針を確立した。これは積層型接合の集積回路実現に大きく寄与する。

以上から、審査委員会は学位（博士）の学位論文として合格と判定する。

最終試験結果の要旨

報告番号	理工研 第225号	氏名	大木 康太郎
審査委員	主査	寺田 教男	
	副査	小原 幸三	奥田 哲治

平成17年2月10日の論文発表会において、論文の内容および関連事項について、約2時間の質疑応答を行った。以下に質疑応答の概略を示す。

- Q1: SrTiO₃ (100)、MgO (100)の2種の基板に成長した試料の表面粗さの差異の原因として格子ミスマッチが挙げられているが、それぞれの基板の表面凹凸に差は無いか。
A1: 平均凹凸に10~20%程度の差があるが、膜表面で見られた顕著な差異は存在していない。
- Q2: 試料膜の表面凹凸が成長温度760℃近傍で急激な変化を示す原因として、熱エネルギーの上昇以外の要因はあるか?
A2: 成長した試料膜組成の成長温度依存性を調べたところ、770℃からBaおよびCuの欠損が観測されている。このことは、この温度から成長面付着原子の選択的再蒸発が始まることを意味するとともに、この直下の成長温度領域では化学量論組成が保持されるとともに付着原子の表面拡散が顕著に促進されると考えられる。これが試料膜の表面形態の温度依存性に表れたものと考えている。
- Q3: 基板・成長膜のミスマッチの効果について、他種の基板を用いた定量的検討は行っていないか?
A3: 本研究の膜成長に関する部分は、積層型ジョセフソン接合の下部超伝導層用の超平坦表面を得ることを目的としたため、系統的な検討は行っていない。
- Q4: エピタキシャル成長と表面凹凸の存在は矛盾しないか。
A4: 原子間力顕微鏡で観測された結晶粒のファセットの方位およびRHEEDにおけるストリークパターンの面内対称性から、膜と基板の[100]、[010]方位がそれぞれ平行になっていることが観測されており、この意味で「エピタキシャル」を用いている。ミスマッチはSrTiO₃ (100)、MgO (100)基板でそれぞれ約1, 10%であり、これに起因する界面歪の緩和のために発生する欠陥が表面凹凸の原因となっていると考えている。
- Q5: イオンエネルギー500Vで改質した表面は650℃で再結晶化しているが、接合形成上問題はないか?
A5: 上部電極成長温度は700℃以上に設定することが望ましいので500Vでの改質では不十分と考えられる。一方、第3, 4章でしめしたように改質時のイオンエネルギーを1 keVに上昇させることにより、改質層の非超伝導性が720℃以上の温度でも維持されることが見出されている。本研究の結果から、バリアー層の耐熱特性が改質条件、特に照射イオンの運動エネルギーに依存することが明らかになった。実際、本研究では、1 kV改質層を用いることによりRSJ的特性を持つ積層型接合が実現された。
- Q6: 表面の電子顕微鏡写真では欠陥周囲で析出粒子密度が下がっているが、この減少を析出粒子密度低減に利用する可能性はあるか。
A6: 本研究では、析出物が構造欠陥の周囲に凝集する傾向は常に見られた。意図的に、段差を接合形成領域の近傍に形成しておけば、接合領域における析出物・異常成長結晶粒をほぼ完全に除去できると考えている。ただし、このプロセスを実施する場合、段差形成に用いたレジストを完全に除去しておくことが必須である。

以上のように、質疑に対し概ね的確な回答が得られた。3名の審査委員は、論文が学位の授与に対して十分な内容であること、申請者が大学院博士後期課程の修了者としての学力ならびに見識を有するものと判定し、博士(工学)の学位を与えるに足る資格を有するものと認定した。