

高温超電導体薄膜のSQUIDへの応用

Application of High Critical Temperature Superconducting Films to SQUID

SQUID(Superconducting Quantum Interference Device: 超電導量子干渉計)は生体磁界のような微小な磁界を検出できるという特徴があり、高感度な磁束計としての応用が期待されている。従来のSQUIDは液体ヘリウム中でだけ動作するため、利用範囲が限られていた。しかし、近年、高温超電導体の出現によってSQUIDなどの超電導素子を液体窒素中で動作させる可能性が出てきた。そこで、高温超電導体薄膜によるSQUIDの試作を行った。

中根英章* *Hideaki Nakane*
 会田敏之* *Toshiyuki Aida*
 川辺 潮** *Ushio Kawabe*

高感度磁束計への応用のために必要な超電導入力コイルを備えたSQUIDとして、高温超電導体薄膜によってSQUIDと入力コイルを形成した2枚の基板による重ね合わせ形SQUIDと、SQUIDと入力コイルの間に層間絶縁膜を挟んで積層した積層形SQUIDを試作した。重ね合わせ形SQUIDで最高56.9 Kまで磁束応答特性を得、高温超電導体薄膜による薄膜素子化技術の見通しを得た。

1 緒 言

SQUID (Superconducting Quantum Interference Device: 超電導量子干渉計)は、**図1**に示すように超電導体のリングにジョセフソン接合を挿入した簡単な構造にもかかわらず、微小な磁界を検出できるという特徴がある。特に、人間の心臓や脳から発生する微小な磁界(地磁気の1億分の1の大きさ)は他の測定手段では無理で、唯一SQUIDしか測定できなかった。しかし、従来のSQUIDは液体ヘリウム中でだけ動作するため、利用範囲が限られていた。1986年、超電導臨界温度30 Kのランタン系高温超電導体が発見され¹⁾、さらに翌年、イットリウム系高温超電導体が発見されたことにより²⁾、SQUIDなどの超電導素子を液体窒素中で動作させる可能性が出てきた。これが可能ならば、超電導素子の応用範囲を著しく拡大するものと期待されている。

高温超電導体をSQUIDに応用した例としては、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ セラミックスによる高周波SQUID^{*1),3)}や直流SQUID^{*2),4)}が液体窒素温度で動作している。さらに、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜によるdc-SQUIDの動作も確認されている^{5),6)}。しかし、これは単層の薄膜を加工した素子であり、従来、液体ヘリウム中で動作するNb系SQUIDのように、超電導体の入力コイルを備えていない。そのため、素子をソレノイドコイルの中に置き、磁界を加えている。ソレノイドコイルと素子の磁氣的結合度

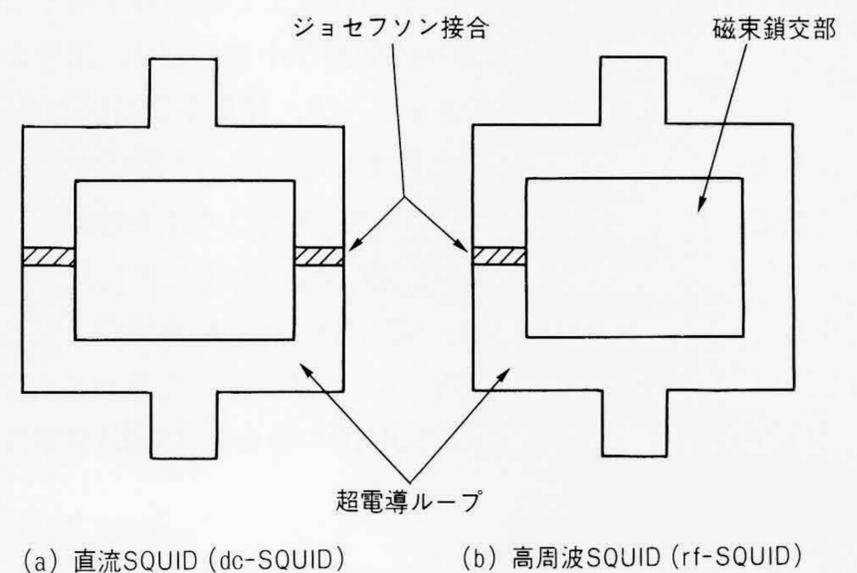


図1 SQUID(超電導量子干渉計)の構造 超電導ループで構成される磁束鎖交部に磁束量子 Φ_0 (2×10^{-15} Wb)の整数倍の磁束しか入ることができないため、SQUIDの出力電圧は磁束に対して周期 Φ_0 で変化する。

はきわめて小さく、また、このソレノイドコイルにセンサコイルを接続しても微小磁束の検出は不可能である。特に直流や低周波の信号は検出できない。入力コイルを超電導体で作成し、SQUID本体に積層することによって、微小な磁束信号を効率よくSQUIDに伝達することができる。本稿では、高温超電導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜によるdc-SQUIDに高温超電導体の

*1) 高周波SQUID: 超電導ループにジョセフソン接合を1個含むもので、rf-SQUIDと呼ばれる。

*2) 直流SQUID: 超電導ループにジョセフソン接合を2個含むもので、dc-SQUIDと呼ばれる。

* 日立製作所中央研究所 工学博士 ** 日立製作所中央研究所 理学博士

入力コイルを積層した素子を試作し、動作を検討した。

2 試験素子の作製

高温超電導体の入力コイルを備えたdc-SQUIDとしては、別の基板に形成した入力コイルと本体を重ね合わせた重ね合わせ形SQUIDと、同一基板上にSQUIDと入力コイルを積層した積層形SQUIDを試作した。重ね合わせ形SQUIDの構造を図2に示す。一方の基板上に高温超電導体薄膜によるdc-SQUIDを形成し、薄い絶縁膜でおおった後、他方の基板上に高温超電導体薄膜の入力コイルを形成し、2枚の基板を重ね合わせて素子とする。この素子の特徴は、SQUID用の高温超電導体薄膜と入力コイルの高温超電導体薄膜が、それぞれ加工プロセス中に一度しか熱処理工程を受けず、超電導臨界温度 T_c が劣化しないことから、比較的簡単に高温動作ができる。しかし、薄膜や基板の凹凸のため薄い絶縁膜を挟んでもSQUIDと入力コイルの間隔を小さくすることができず、信号の伝達効率が悪い。積層形SQUIDの構造を図3に示す。1枚の基板上に高温超電導体薄膜のSQUIDを形成し、その上に絶縁膜を形成した後、高温超電導体薄膜の入力コイルを形成する。積層形SQUIDの特徴は、SQUIDと入力コイルの間隔を小さくできることである。ピンホールが生じない程度まで絶縁膜を薄くできるので、SQUIDと入力コイルの間隔が小さくなり、信号の伝達効率を良くすることができる。一方、積層形SQUIDは加工プロセスで2回の熱処理が必要であるため、1回目の熱処理で高温超電導相になったSQUID部が入力コイルを形成する際の2回目の熱処理によって超電導特性が劣化してしまう。

重ね合わせ形SQUIDの場合、SQUIDの高温超電導体としては $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ のほか $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ も試みた。入力コイルは $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ を用いた。積層形SQUIDの場合、SQUID本体は

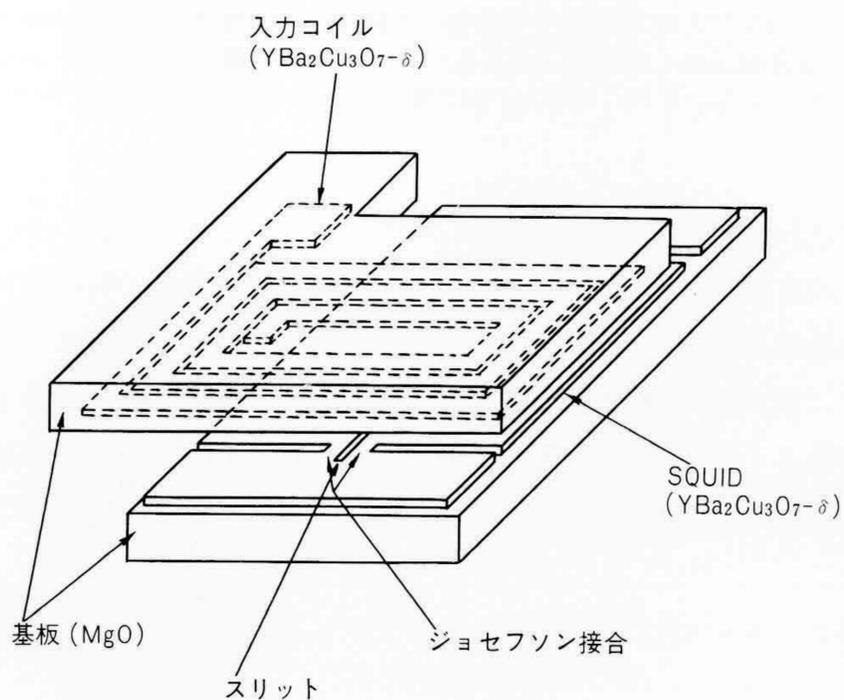


図2 重ね合わせ形SQUIDの構造 SQUIDの上に絶縁膜を塗布した後、別の基板に形成した入力コイルを重ね合わせる。

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ を用い、入力コイルは $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ を用いた。

dc-SQUID用の高温超電導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜はマグネトロンスパッタリング法と酸素中熱処理によって作製した。この薄膜を通常のホトリソグラフィと化学エッチングによってSQUIDに形成した。このSQUIDパターンの電極接続部以外の部分に、ネガレジストを塗布して絶縁膜とする。ネガレジストは基板や薄膜の凹凸を埋めて平坦化でき、低温でも割れやはく離を起こさない。SQUIDの上に高温超電導薄膜入力コイルを図2に示すように重ね合わせる。

積層形SQUIDは基板上に $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜をマグネトロンスパッタリング法と酸素中熱処理によって作製し、SQUIDパターンを形成した後、層間絶縁膜 MgO をスパッタリング法によって積層する。次に、入力コイル用の高温超電導体薄膜を形成する際、従来のようにスパッタリングの後で熱処理を行うと、熱処理温度が高いため先に形成したSQUIDの超電導特性が劣化してしまう。そこで、スパッタリング時に基板を加熱することによって処理温度を下げることを試みた。これによって処理温度を 910°C から 650°C に下げることができた。入力コイル用高温超電導体薄膜は $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ を用い、ホトリソグラフィによりコイルパターンを形成した。積層形SQUIDの顕微鏡写真を図4に示す。

3 試験素子の測定

試作したSQUIDの試験素子を非磁性の測定装置に固定し、低温容器の中に入れて測定した。地磁気などによるSQUIDの誤動作を防ぐため、低温容器の外側に高透磁率磁性体(パーマロイ)の4層の磁気遮へいを設けた。磁気遮へいにより、素子周辺の磁界は地磁気の5万分の1程度($10\ \mu\text{G}$)となっている。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜を用いたSQUIDと入力コイルの重ね合わせ

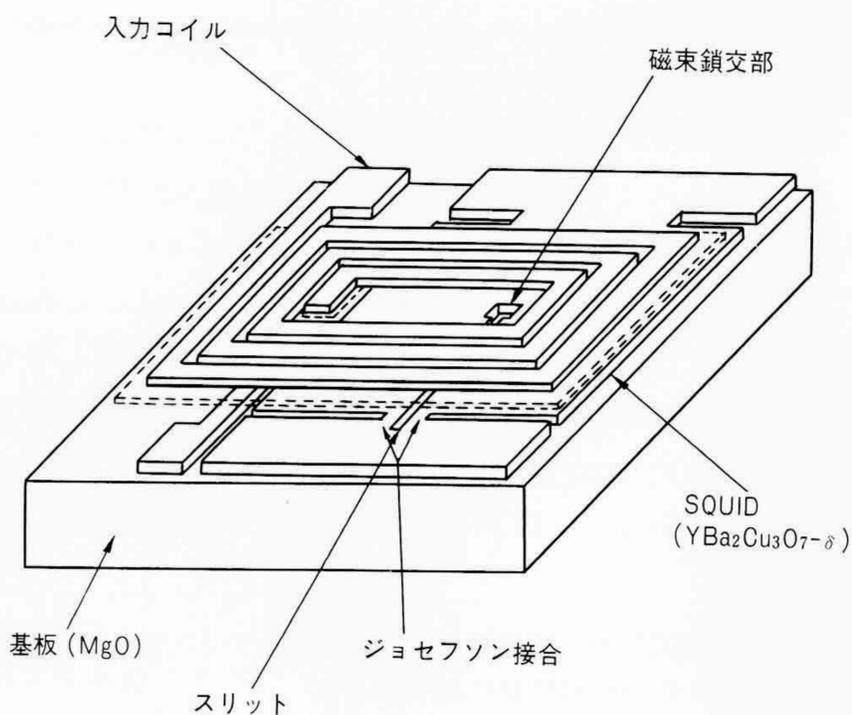


図3 積層形SQUIDの構造 SQUIDを形成した後、絶縁膜 MgO を積層し、さらに入力コイルを形成する。

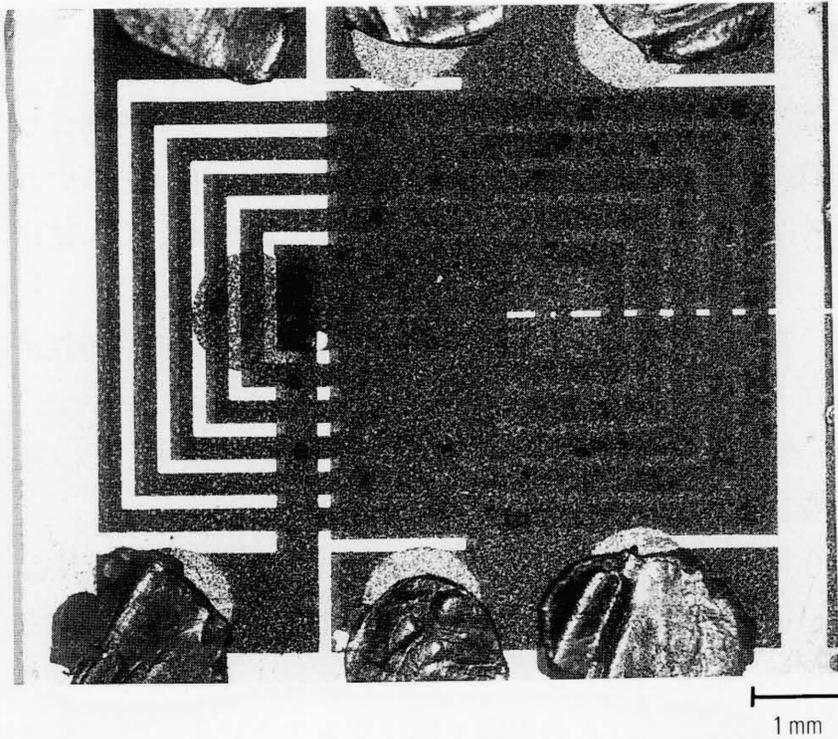


図4 積層形SQUIDの顕微鏡写真 素子の右側がSQUID本体である。周辺の電極にInを押し付けてリード線を接続している。

形SQUIDの磁束応答特性と電流-電圧特性を図5に示す。最高56.9 Kまで磁束応答特性を観測することができた。最高動作温度でSQUIDの超電導臨界電流 $2 I_c$ は1 mA以上あり、熱雑音より十分大きい値である。SQUIDを $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜で形成した重ね合わせ形SQUIDの最高動作温度は37.7 Kであった。SQUIDでは電流-電圧特性で超電導状態(縦軸と一致している直線部)から常電導状態(電圧が出る部分)へ変わるところに屈曲部が現れる。SQUIDを動作させるときは、この屈曲部が現れるように電流を設定する。磁束を加えるとSQUIDリングを流れる超電導電流が周期的に変化し、設定した電流を一定に保つと超電導電流の変化を電圧の変化として測定できる。屈曲部が直線的に折れ曲がっているほうが現れると電圧が大きくなり、あまり緩やかに曲がっていると電圧が現れなくなる。同図のように56.9 K以上で磁束応答特性が現れなくなるのは、屈曲部が緩やかに変化しているためであると考えられる。 $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜で形成したSQUIDでも同様である。屈

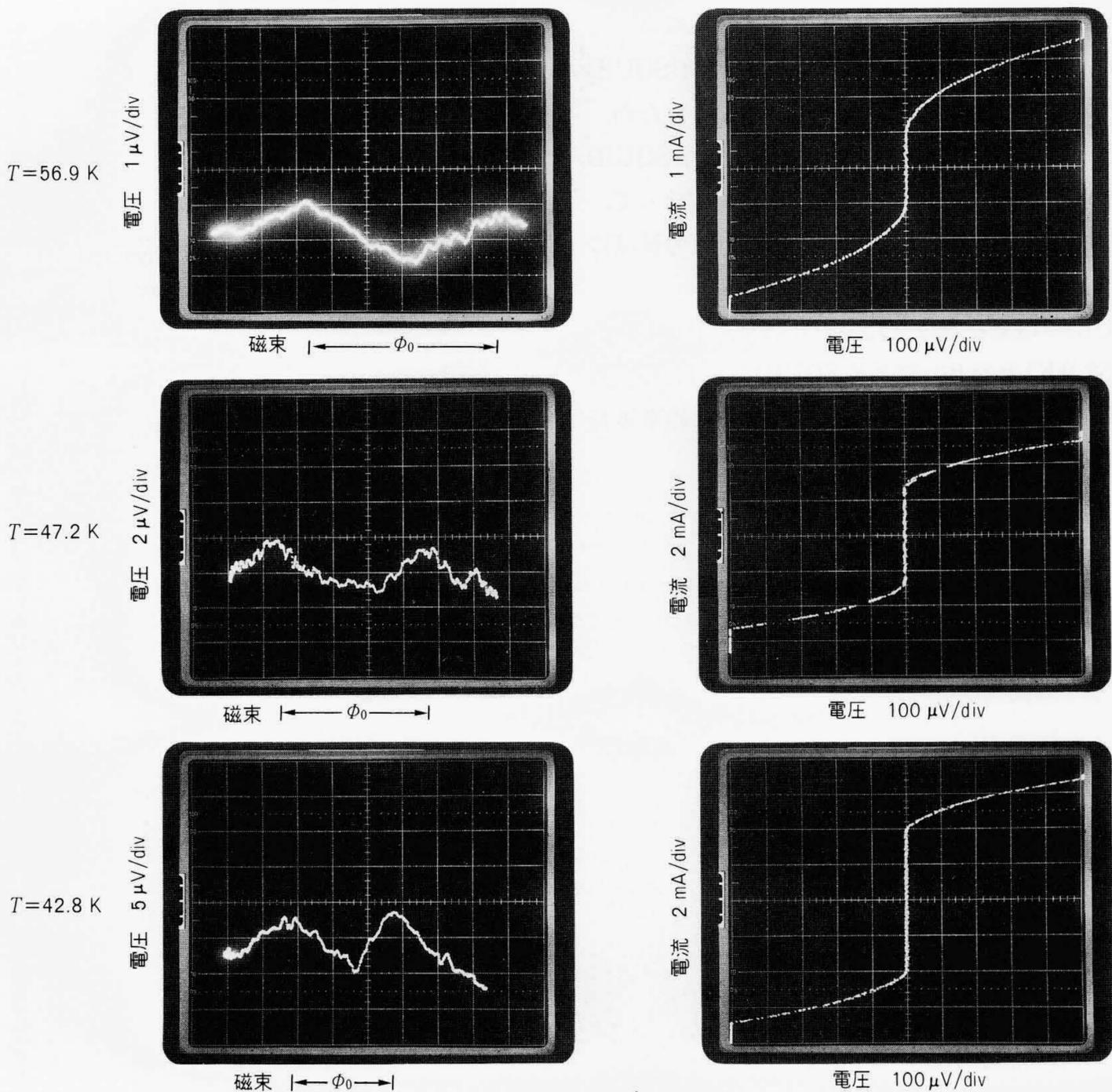


図5 重ね合わせ形SQUIDの磁束応答特性と電流-電圧特性 温度が上昇すると電流-電圧特性は緩かになり、磁束応答特性の出力電圧も小さくなる。

曲部の特性はSQUIDのジョセフソン接合の特性に依存している。従来のメタル系(NbやPb)のジョセフソン接合では、接合部を超電導体のコヒーレンス長さ(10 nm)程度に加工する必要があった。これに対して $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の多結晶膜などでは、結晶の粒界でジョセフソン効果を示す。試作した素子では、これらの粒界ジョセフソン接合が直列接続されたものを1個のジョセフソン接合として用いている。このため、粒界の数が多くなると電圧-電流特性の屈曲部が緩やかになり、また温度が高くなるとこの傾向が熱雑音の発生によって著しくなる。したがって、動作温度を高くするには粒界の数を減らす必要がある。これはジョセフソン接合を微細化すればよいが、これによって接合電流が減少すると熱雑音の影響が大きくなりSQUID動作が困難になる。液体窒素温度(77 K)では接合電流が1 mA以上必要であるとされている。このため、高温動作を実現するためには接合部の微細化とともに超電導体の臨界電流を大きくする必要がある。

次に、積層形SQUIDの測定では、4.2 Kで磁束応答特性を得ることができた。ただし、SQUIDのジョセフソン接合の臨界温度が20 K程度であるため、高温動作は困難であった。これは入力コイルの $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 薄膜を形成する際に低酸素下で650 °Cの熱処理を受けたためである。このように積層形SQUIDは低温しか動作しなかったが、入力コイルを積層したため、入力コイルとSQUIDの磁氣的結合度が重ね合わせ形SQUIDの3.4倍に増大した。今後、薄膜の凹凸を減らすことによって、さらに結合度を増やすことができ、また熱処理温度の低減によって高温動作を実現できると考えられる。

試作したSQUIDの磁束雑音は重ね合わせ形SQUIDで $4.6 \times 10^{-3} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ (56.9 K)となり、積層形SQUIDでは $1.3 \times 10^{-4} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ (4.2 K)である。生体磁界の測定にはさらに磁束雑音の低減が必要である。

4 結 言

高温超電導体薄膜によってSQUIDと入力コイルを形成した2枚の基板による重ね合わせ形SQUIDと、SQUIDと入力コイルの間に層間絶縁膜を挟んで積層した積層形SQUIDを試作して、以下に述べるような結果を得た。

- (1) 重ね合わせ形SQUIDは最高56.9 Kまで磁束応答特性が得られ、磁束雑音は $4.6 \times 10^{-3} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ (56.9 K)であった。
- (2) 積層形SQUIDの磁束応答特性を4.2 Kで観測した。磁束雑音 $1.3 \times 10^{-4} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ (4.2 K)であった。

今後の課題としては、高温超電導体薄膜の低温形成法および超電導特性の劣化の少ない加工法を確立することである。さらに、磁氣的結合度を増加させるデバイス構造を検討する必要がある。これらの課題を解決することによって、生体磁界などの微小磁界計測を容易に行うことができ、SQUIDの応用範囲を飛躍的に拡大できると考えられる。

参考文献

- 1) J. G. Bednorz, et al. : Z. Physik B64(1986), 189
- 2) M. K. Wu, et al. : Phys. Rev. Lett. 58(1987), 908
- 3) J. E. Zimmerman, et al. : Appl. Phys. Lett. 51(1987), 617
- 4) I. Iguchi, et al. : Jpn. J. Appl. Phys. 26(1987), L1021
- 5) R. H. Koch, et al. : Appl. Phys. Lett. 51(1987), 200
- 6) H. Nakane, et al. : Jpn. J. Appl. Phys. 26(1987), L1925