

平成21年4月27日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18560011
 研究課題名（和文） 高温超伝導体固有ジョセフソン接合における超伝導状態の不均一性と
 その制御の研究
 研究課題名（英文） Inhomogeneous Superconductivity Seen in Intrinsic Josephson
 Junctions of High Temperature Superconductors and Its Control
 研究代表者
 鈴木 実（SUZUKI MINORU）
 京都大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：10314238

研究成果の概要：

ビスマス系高温超伝導体の結晶構造に自然に存在する固有ジョセフソン接合を用い、高温超伝導体に存在する可能性のある超伝導性の空間的不均一性とその制御の可能性について検討した。キャリアドーピング量が少ない不足ドーピング領域では、最大ジョセフソン電流密度が極めて小さいことから、空間的な不均一性があることを示した。またその理由を示した。またドーピング量を多くすることにより最大ジョセフソン電流密度を著しく大きくできることを示した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	2,000,000	0	2,000,000
2007年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	450,000	3,950,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：超伝導体

1. 研究開始当初の背景

(1) 高温超伝導体の異常なジョセフソン効果

超伝導のエレクトロニクス応用ではジョセフソン効果が重要な役割を担う。半導体と同じように、超伝導エレクトロニクス回路の高速化には微細化が必要である。その場合、ジョセフソン接合も同じように微小化されるが、ジョセフソン電流はある一定の大きさが必要であるために、回路の微細化には最大ジョセフソン電流密度の増大が必須になる。

しかし、高温超伝導体ではこの最大ジョセフソン電流密度 J_c を大きくすることは実は

非常に困難である。最初、このことは技術的な問題と考えられていた。ところが、次に述べる固有ジョセフソン接合では、接合が理想的であり、理想的な特性が実現されているはずであるにもかかわらず、同じように最大ジョセフソン電流密度が小さいことがわかったのである。つまり、最大ジョセフソン電流密度が小さいのは技術上の問題だけではなく、高温超伝導に付随するもっと本質的な問題であることが明らかになったのである。

(2) 固有ジョセフソン接合

ビスマス系高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$

(以下 Bi2212) では、結晶構造が層状構造をなし、異方性が極めて大きく、0.3 nm の超伝導層と 1.2 nm の絶縁層が交互に積層されており、結晶構造そのものが積層されたトンネル型ジョセフソン接合と同じであることが明らかにされた。このようなジョセフソン接合はイントリンシックジョセフソン接合あるいは固有ジョセフソン接合と呼ばれる。固有ジョセフソン接合では、トンネル層の界面が結晶構造そのものであるため、理想的なトンネル型ジョセフソン接合とみなすことができるという大きな特徴を有している。

この固有ジョセフソン接合を用いて、その最大ジョセフソン電流密度を測定したところ、やはり超伝導ギャップ Δ の大きさから期待される J_c の値よりも観察される J_c の値ははるかに小さいということがわかった。このことは、高温超伝導体の最大ジョセフソン電流が小さいという事実は、トンネル接合を作るという技術上の問題ではなく、高温超伝導体に付随する本質的な問題であることを意味している。このようにして高温超伝導体ではジョセフソン効果が異常であることが明らかになった。

(3) 微小メサ構造素子

固有ジョセフソン接合の正確な特性測定には、接合寸法をジョセフソン侵入長程度まで接合を小さくする必要がある。このような微細構造素子は Chalmers 工科大学の Yurgens らやわれわれによって実現され、微小メサ構造固有ジョセフソン接合を用いた研究が開始された。

われわれはこのような固有ジョセフソン接合の微小メサ構造を用いて、高温超伝導体の異常なジョセフソン効果が高温超伝導体に本質的な超伝導状態の不均一性に起因することを実験的に明らかにできる可能性を見出した。本研究はそれを具体的な実験で追求し、その理由を明らかにするとともに、それを制御する可能性を探ろうとするものである。

2. 研究の目的

(1) 固有ジョセフソン接合の微小メサ構造を用いて、短パルストンネル分光による超伝導ギャップと常伝導トンネル抵抗の測定、および最大ジョセフソン電流密度を測定して、本来観察されるべき最大ジョセフソン電流密度と実際の値の差を明らかにし、超伝導状態の不均一性の有無を実験的に示す。

(2) 高温超伝導体のドーピング量を制御し、異なるドーピング量により不均一性の有無とその程度を知る。

(3) 固有ジョセフソン接合のスイッチング確率分布を測定して巨視的量子トンネル効果の温度領域を知る。そのドーピング量依存性、すなわち超伝導の不均一性の影響を検討する。

3. 研究の方法

以上の目的を実現するために、以下の実験を行う。

(1) 固有ジョセフソン接合の微小メサ構造の作製と特性改善

微小メサ構造では 3 端子構造になるため、上部電極と固有ジョセフソン接合との間の接触抵抗が全体の抵抗に含まれる。これまでは熱処理によって低接触抵抗を得たが、層数が少なくなると問題があった。この問題を熱処理方法を改良することにより改善する。また、真空中における熱処理法も検討する。

(2) 短パルストンネル分光と分光特性のドーピング量依存性測定

5-10 層の固有ジョセフソンメサ構造を用いて固有トンネル分光特性とそのドーピング量依存性を測定する。得られた結果を解析して超伝導状態の不均一性を検討する。

(3) 固有ジョセフソン微小メサ構造素子を用いたスイッチング確率分布の測定と巨視的量子トンネル効果の観察

1 辺が 2 μm 以下の微小メサ構造をフォトリソグラフと電子ビーム露光装置を併用して作製し、スイッチング電流の確率分布を測定し、巨視的量子トンネル効果(MQT)を観察する。ドーピング量との関係を検討する。

4. 研究成果

(1) 微小固有ジョセフソン接合微小メサ構造の作製と特性改善

Au または Ag 電極を真空中で劈開した直後の新鮮な劈開表面に蒸着する方法により、熱処理しなくとも $10^{-6} \Omega\text{cm}$ かそれ以下の接触抵抗を得ることができた。これによりほぼ理想的な 2.3 層の固有ジョセフソン接合微小メサ構造を得ることができるようになった。その典型的な例を図 1 に示す。

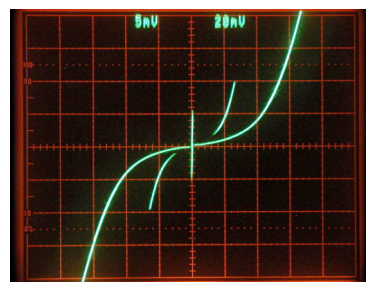


図 1 真空中劈開、in situ 電極蒸着方法により得られた微小メサ構造の改善された 5 K における I - V 特性。メサは 2 層の固有ジョセフソン接合で、メサの大きさは 2 μm 角。X 軸: 20 mV/div, Y 軸: 50 μA /div。

(2) 高温超伝導体における超伝導の不均一性に関する研究

固有ジョセフソン接合は、本来結晶構造そのものであるということから、高温超伝導体の結晶のすべてにわたって存在しているこ

とになる。つまり、固有ジョセフソン接合の特性は、高温超伝導体のバルクの特性を反映していることになる。この点が、表面の電子状態しか反映していないこれまでの固有ジョセフソン接合と対照的に異なる点である。一般に、最大ジョセフソン電流密度 J_c の大きさは Ambegaokar-Baratoff (AB) の理論により、

$$J_c = \frac{\pi\Delta}{2eR_N} \tanh \frac{\Delta}{2k_B T} \cong \frac{\pi\Delta}{2eR_N} \quad (1)$$

と表すことができる。つまり高温超伝導体の最大ジョセフソン電流密度の大きさは固有ジョセフソン接合のトンネル抵抗 R_N と Δ を知れば、高温超伝導体の超流動濃度の大きさを基本的に最大ジョセフソン電流密度の大きさ J_c を知ることができる。もし、 J_c が AB 理論に比較してほぼ同じであれば高温超伝導体が通常の均一な超伝導を示すものと理解することができる。

しかしながら、われわれはこれまでの研究から最大ジョセフソン電流密度はドーピングにより著しく変化することを明らかにしてきた。その原因はまだ明らかではない。本研究では、その原因をまず明らかにするために、種々の異なるドーピング量の Bi2212 結晶から微小固有ジョセフソン接合素子を形成し、それぞれのドーピング量における J_c と R_N と Δ を測定した。 J_c は微小メサ構造の I - V 特性から、 R_N と Δ は短パルス固有トンネル分光により測定した。固有トンネル分光用の試料には、発熱を避ける意味で、1 辺が 5 - 10 μm 、層数が 5 - 10 層のメサ構造を使用した。特に過剰ドーピング領域では発熱が著しくなるので、より微小で層数の少ない試料を使用した。

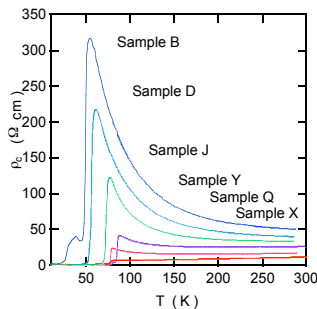


図2 種々のドーピング量を有する5-10層の固有ジョセフソン接合の微小メサ試料の c 軸抵抗率温度依存性。

図2は、本研究に使用したドーピング量の異なる微小メサ試料の抵抗率温度依存性である。

図3-5にはドーピング量の異なる3種類の代表的な試料についてトンネル分光特性を示す。この特性から明らかのように、ドーピングが多くなるほど超伝導ピークが鋭く大きくなりかつ超伝導ギャップの大きさが小さくなる傾向がある。また、不足ドーピング領域では超伝導ギャップよりも高いエネルギー領域に擬ギャップ構造が見られ、不足ドーピング領域で

大きく発達している擬ギャップ構造が短パルス層間トンネル分光で明瞭に観察できていることがわかる。これから各ドーピング量における超伝導ギャップ 2Δ の大きさを知ることができる。

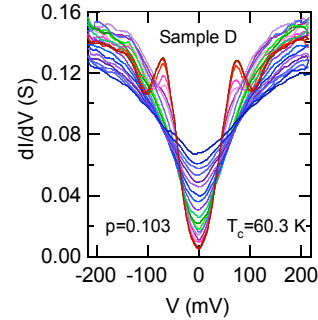


図3 不足ドーピング ($p=0.103$) 試料の10Kから180Kの種々の温度における dI/dV - V 特性。

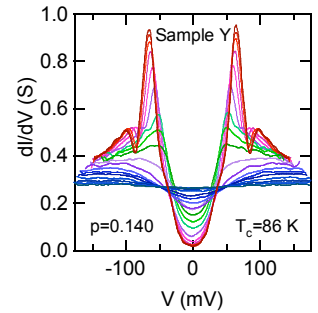


図4 ほぼ最適ドーピング ($p=0.14$) 試料の10Kから180Kの種々の温度における dI/dV - V 特性。

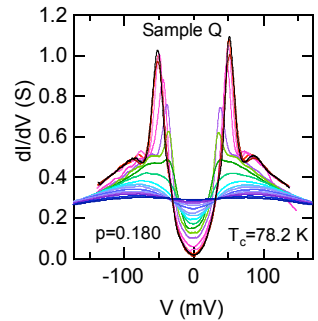


図5 過剰ドーピング ($p=0.18$) 試料の10Kから180Kの種々の温度における dI/dV - V 特性。

以上のようにして得られた超伝導ギャップ 2Δ 、 J_c 、 R_N 、および 2Δ と R_N から計算される J_c^{th} を不足ドーピング領域から過剰ドーピング領域まで種々の異なるドーピング量に対してプロットした関係を図6に示す。これからわかることは、固有ジョセフソン接合の J_c がドーピングに非常に強く依存し、ドーピングが減少すると指数関数的に J_c が減少することがわかる。また、 J_c はドーピングとともに増加するが、最適

ドーピング量で最大となることはなく、過剰ドーピング領域でも増加し続けることがわかる。このような顕著な J_c のドーピング依存性は高温超伝導体バルクの性質であると考えられる。

上記の顕著なドーピング量依存性がバルクの性質であることを明らかにするため、 R_N と Δ の値を用いて、(1)式により理論から予測される最大ジョセフソン電流を評価した。その結果は図6に J_c^{th} として示した。この評価値はトンネル障壁層の特性あるいは性質がすでに含まれている。 R_N の値はドーピング量に依存して変化し、不足ドーピング領域で大きくなるが、顕著な変化というほどでもない。したがって、 J_c^{th} の大きさは固有ジョセフソン接合の本質的な特性を反映しており、かつ固有ジョセフソン接合はバルクの性質を反映するものであることから、 J_c のドーピング依存性は高温超伝導体の本質的な特性を反映するものと考えてよい。

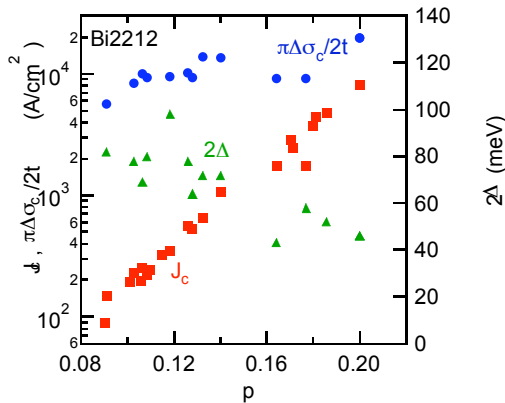


図6 種々のドーピング量における 2Δ 、 J_c 、 R_N 、および 2Δ と R_N から計算された J_c^{th} 。

J_c^{th} の振る舞いは、 Δ と R_N のドーピング依存性から決まり、それぞれのドーピング依存性を反映してドーピング量が少なくなると J_c^{th} も減少する。しかし、 J_c の実験結果と比較すると、その乖離は著しいことが明らかである。 J_c^{th} はドーピング量の変化に対して約2倍弱変化するのに対して、実験結果のほうは2桁以上変化している。不足ドーピング領域では理論からの予測と実験結果との間に約2桁の乖離が存在する。また、過剰ドーピング領域では両者の差は少なくなるが、それでも J_c^{th} は実験結果よりも大きい。このようなふるまいは(1)式で示されるような均一な超伝導体に対する理論では説明が困難である。一方、実験結果は高品質な単結晶を用い、かつ理想的なジョセフソン接合に関して得られたデータであり、しかもトンネル障壁の性質も考慮したうえでの比較を示したものである。つまり、高温超伝導では本質的に不均一な超伝導状態が出現していることをこの結果は意味している。 J_c が観察されることになる。

(3)電子ビーム露光による微小メサ構造素子の作製と2,3層の固有ジョセフソン接合微小メサ構造のトンネル特性および巨視的量子トンネル効果

電子ビーム露光により作製された2mm角2層の微小メサ構造固有ジョセフソン接合の典型的な特性を図7に示す。この固有ジョセフソン接合素子を用いて、 ^3He 冷凍機を用いたスイッチング電流確率分布の測定結果を図8に示す。スイッチング電流の確率分布は、6K以下の低温では熱励起による確率分布によってほぼ説明することができる。図8のスイッチング電流確率分布を理論でフィッティングして得られる実効的な脱出温度 T_{esc} を図9に示す。これから明らかのように1K以上6K以下においては脱出温度 T_{esc} は環境温度に一致し、Kramers型の熱励起理論のスイッチングとして説明できる。

1K以下では T_{esc} が理論よりも大きいほうに乖離する傾向が見られる。これはMQTによるスイッチングが十分観察されるようになってきたためであり、図9では0.5K以下では飽和してMQTによるスイッチングが支配的であると考えられる。

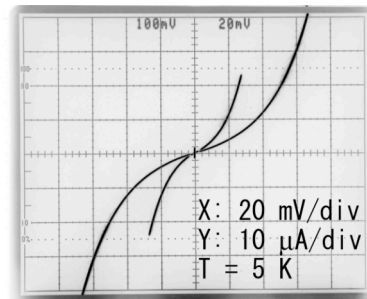


図7 Bi2212単結晶の表面に形成した2層の固有ジョセフソン接合からなる微小メサ構造の電流電圧特性。微小メサの寸法は $2\mu\text{m}$ 角、厚さ 3nm 。

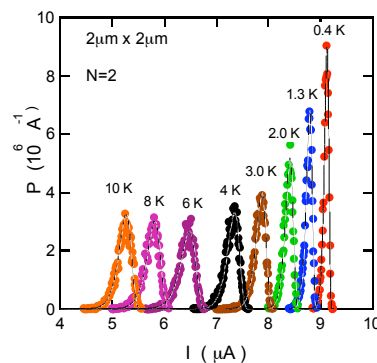


図8 図7に示した微小メサ構造表面固有ジョセフソン接合のスイッチング電流の確率分布測定結果。

$I_c=10\mu\text{A}$ 、 $\varepsilon=5$ とすると ω_p を評価することができる。これとさらに、

$$T_{cr} = \frac{\hbar\omega_p}{2\pi k_B} \quad (2)$$

という関係を用いて、熱励起型のスイッチングから MQT によるスイッチングが支配的になるクロスオーバー温度 T_{cr} を評価すると、0.4K という値が得られる。この値は実験値とほぼ一致しており、この点からも、1K 以下のふるまいは微小メサ型固有ジョセフソン接合において MQT が観察できたことを意味している。さらに、これまで固有ジョセフソン接合の微小メサ構造において観察された T_{esc} は 0.1K であり、0.4K という値はこれまでメサ構造において観察された T_{esc} で最も高い値である。

今回、これまでよりも高い T_{esc} が観察された理由は表面の固有ジョセフソン接合の J_c が大きかったのが大きな理由である。今後、さらに大きい J_c の固有ジョセフソン接合を用いればより高い T_{esc} が観察されるものと期待される。

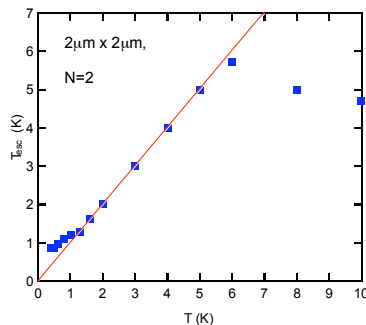


図9 図7の試料の脱出温度の環境温度依存性。

(4)超伝導状態の不均一性の制御について

化学的な方法としては、Pb 等の元素置換により過剰ドープ領域の組成による結晶を合成すれば可能である。これがおそらく最も簡単な制御方法であるといえる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 16 件)

- ① K. Ota, K. Hamada, R. Takemura, M. Omaki, T. Machi, K. Tanabe, M. Suzuki, A. Maeda, and H. Kitano, “Comparative study of macroscopic quantum tunneling in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ intrinsic Josephson junctions with different device structures”, *Phys. Rev. B*, vol. **79**, pp. 134505-1-11 (2009). [査読有]
- ② M. Suzuki, T. Hamatani, Y. Yamada, K. Anagawa, and T. Watanabe, “Significantly doping-dependent Josephson critical current-Inhomogeneity in real space or heterogeneity in k-space”, *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. **150**, pp. 052252-1-4 (2009). [査読有]

- ③ H. Kitano, K. Ota, K. Hamada, R. Takemura, M. Ohmaki, A. Maeda, and M. Suzuki, “Macroscopic quantum tunneling and thermal activation in a small mesa structured $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ intrinsic Josephson junctions”, *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. **150**, pp. 052110-1-4 (2009) [査読有]
- ④ Yu. M. Shukrinov, F. Mahfouzi, and M. Suzuki, “Structure of the breakpoint on current-voltage characteristics of intrinsic Josephson junctions”, *Phys. Rev. B*, vol. **78**, pp. 134521-1-5 (2008). [査読有]
- ⑤ M. Suzuki, M. Ohmaki, R. Takemura, K. Hamada, T. Watanabe, K. Ota, H. Kitano, and A. Maeda, “Tunneling characteristics for nm-thick mesas consisting of a few intrinsic Josephson junctions”, *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. **129**, pp. 012033-1-8 (2008) [査読有]
- ⑥ M. Suzuki, R. Takemura, M. Ohmaki, and K. Anagawa, “SIN feature observed in intrinsic Josephson junction characteristics for overdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. **97**, pp. 012260-1-6 (2008). [査読有]
- ⑦ Y. Yamada, T. Watanabe, and M. Suzuki, “Systematic transport properties and their doping dependences for $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ single crystals in a wide doping range”, *Physica C*, vol. **460-462**, pp. 815-816 (2007). [査読有]
- ⑧ Y. Yamada, T. Watanabe, and M. Suzuki, “Fabrication and transport properties for cleaved thin film BSCCO single crystals”, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. **17**, pp. 3533-3536 (2007). [査読有]
- ⑨ R. Takemura, T. Kumano, M. Ohmaki, T. Watanabe, and M. Suzuki, “Fabrication of small mesa structures of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ intrinsic Josephson junctions using polyimide process: Improvement of current-voltage characteristics with a very small number of junctions”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. **46**, pp. 5788-5791 (2007). [査読有]
- ⑩ T. Kawakami and M. Suzuki, “Direct observation of the intrinsic Josephson junction characteristics in electron-doped $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ ”, *Phys. Rev. B*, vol. **76**, pp. 134503-1-7 (2007). [査読有]
- ⑪ M. Suzuki, Y. Yamada, E. Tajitsu, S. Kojima, and K. Anagawa, “Self-heating due to injection of quasiparticle current in small mesa structures made of intrinsic Josephson junctions in BSCCO”, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. **17**, pp. 594-597 (2007). [査読有]
- ⑫ M. Suzuki, Y. Yamada, T. Hamatani, K. Anagawa, and T. Watanabe, “Anomalously

strong doping dependence of the maximum Josephson current in intrinsic Josephson junctions and inhomogeneous superconducting state in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, *Physica C*, vol. **460-462**, pp.386-387 (2006) [査読有]

- ⑬ Y. Yamada and M. Suzuki, “Interlayer tunneling spectroscopy for deeply underdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$: Spectroscopic evidence for inhomogeneous superconductivity”, *Phys. Rev. B*, vol. **74**, 054508-1-7 (2006) [査読有]
- ⑭ M. Suzuki, T. Hamatani, Y. Yamada, K. Anagawa, and T. Watanabe, “Maximum Josephson current and inhomogeneous superconductivity in $\text{Bi}_{2-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, *J. Phys. Conf. Ser.* vol. **43**, pp. 1110-1113 (2006) [査読有]
- ⑮ T. Kawakami, T. Shibauchi, Y. Terao, and M. Suzuki, “Pseudogap in electron-doped superconducting $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ by interlayer magnetotransport”, *Phys. Rev. B*, vol. **74**, pp. 144520-1-7 (2006) [査読有]
- ⑯ K. Anagawa, T. Watanabe, and M. Suzuki, “Superconducting gap and pseudogap for overdoped $\text{Bi}_{2-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ using 60 ns time-scale short-pulse interlayer tunneling spectroscopy”, *Phys. Rev. B*, vol. **73**, pp. 184512-7 (2006) [査読有]

[学会発表] (計 11 件)

- ① H. Kitano et al, “Macroscopic quantum tunneling and thermal activation in a small mesa structured $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ intrinsic Josephson junctions”, 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), August 8, 2008, Amsterdam, Netherland
- ② K. Hamada et al, “Switching current distribution in $\text{Bi}2212$ IJJ mesa structures with various areas”, 21st International Symposium on Superconductivity, October 29, 2008, Tsukuba, Japan
- ③ I. Takeya et al, “Switching probability distribution and tunneling spectra in small mesa structures with a few intrinsic Josephson junctions of BSCCO cuprates”, 21st International Symposium on Superconductivity, October 28, 2008, Tsukuba, Japan
- ④ M. Suzuki et al, “Significantly doping-dependent Josephson current -- Inhomogeneity in real space or heterogeneity in k -space”, 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), August 12, 2008, Amsterdam, Netherland
- ⑤ M. Suzuki et al, “Fabrication of small mesas consisting of a few intrinsic Josephson

junctions and their tunneling characteristics”, 6th International Symposium on Intrinsic Josephson Effect in High- T_c Superconductors, July 18, 2008, POSTECH, Pohang, Korea

- ⑥ M. Suzuki et al, “Tunneling characteristics for nano-mm thick small mesa structures consisting of a few intrinsic Josephson junctions”, International Conference on Theoretical Physics (Dubna-Nano 2008) July 10, 2008, Dubna, Russia
- ⑦ M. Suzuki et al, “SIN feature observed in intrinsic Josephson junctions characteristics for overdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, European Conference on Applied Superconductivity 2007, September 20, 2007, Brussel, Belgium
- ⑧ M. Suzuki et al, “Self-heating I small mesa structures made of intrinsic Josephson junctions in BSCCO”, Applied Superconductivity Conference 2006, August 28, 2006, Seattle, USA
- ⑨ M. Suzuki et al, “Anomalously strong doping dependence of the maximum Josephson current in intrinsic Josephson junctions and inhomogeneous superconducting state in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, 8th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity (M²S 2006), July 13, 2006, Dresden, Germany
- ⑩ Y. Yamada et al, “Systematic transport properties and their doping dependencies for $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ single crystals in a wide doping range”, 8th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity (M²S 2006), July 13, 2006, Dresden, Germany
- ⑪ Y. Yamada et al, “Fabrication and transport properties for cleaved thin film BSCCO single crystals”, Applied Superconductivity Conference 2006, August 28, 2006, Seattle, USA

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 実 (SUZUKI MINORU)
京都大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：10314238

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし