

プラズマ窒化 AlN_x 障壁層を持つ NbN トンネル接合の電気的特性改善

船井 辰則[†] 内藤 直生人[†] 赤池 宏之[†] 藤巻 朗[†]

[†]名古屋大学大学院量子工学専攻 〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町

E-mail: [†] funai@super.nuqe.nagoya-u.ac.jp

あらまし 本誌では、プラズマ窒化 AlN_x 障壁層を持つ NbN トンネル接合における接合作製プロセス及び電気的特性改善について述べる。この NbN トンネル接合を高周波電磁波検出器に応用するためには、臨界電流密度 J_c 及びギャップ電圧 V_g の向上が必要である。そこで本研究では、接合特性改善のため、NbN トンネル接合の上部電極堆積条件及び障壁層形成条件の検討を行った。その結果、接合上部 NbN 層の堆積条件の調整及び基板温度を上昇させることにより、 V_g が 0.6 mV 向上し、5.0 mV の接合が得られた。また、Al のプラズマ窒化時の RF 電力密度を変化させることにより、 J_c が最大で 10.2 kA/cm² の接合が得られた。

キーワード プラズマ窒化、AlN_x、NbN

Improvement in Electrical Characteristics of NbN tunnel Junctions With Plasma-Nitrided AlN_x Barriers

Tatsunori FUNAI[†] Naoto NAITO[†] Hiroyuki AKAIKE[†] and Akira FUJIMAKI[†]

[†] Department of Quantum Engineering, Nagoya University Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Aichi, 464-8603 Japan

E-mail: [†] funai@super.nuqe.nagoya-u.ac.jp

Abstract We present the fabrication process of NbN tunnel junctions with plasma-nitrided AlN_x barriers and the electrical characteristics of the junctions. The application of the junctions to high frequency electromagnetic wave detectors requires increase in the critical current density J_c and the gap voltage V_g of the junctions. In this work, we examined the conditions of depositing a counter NbN layer and forming an AlN_x barrier for the purpose of improving the characteristics of the junctions. As a result, the V_g was increased by 0.4 mV to 5.0 mV by adjusting the deposition conditions and by raising the substrate temperature during deposition of the counter NbN layer. On the other hand, the J_c up to 10.2 kA/cm² was obtained by changing the RF power density for nitriding an Al layer.

Keyword Plasma-Nitridation, AlN_x, NbN

1. はじめに

SIS(Superconductor-Insulator-Superconductor) ミクサは、超伝導トンネル接合の2つの超伝導体間の絶縁層を通して流れる準粒子トンネル電流の強い非線形性を利用してヘテロダインミキシングを行う。半導体ミクサに比べ、高変換効率、極低雑音といった特徴があり、ミリ波、サブミリ波帯における高感度なミクサ素子として実用化されている。SIS ミクサに用いる SIS 接合特性としてサブギャップ領域のリーク電流が極めて小さく、ギャップ電圧での立ち上がり急峻な場合、量子限界 $h\nu/k_B$ に迫る雑音温度でヘテロダインミキシングが実現できる。 h 、 ν 、 k_B はそれぞれプランク定数、信号周波数、ボルツマン定数である。しかし、SIS ミクサは動作周波数に上限があり、接合に用いる超伝導材料の固有パラメータであるギャップ周波数 f_g によって制限される[1][2]。現在、良好な接合特性を持つことから主に Nb/AlO_x-Al/Nb 接合が使用されている。Nb 接合の場合、動作上限周波数は f_g の2倍である約 1.4

THz となり、それ以上の周波数の検出では、受信機雑音温度が急激に増大するという問題が起こる[3]。そこで、Nb に代わる超伝導材料として窒化ニオブ(NbN)がある。Nb の臨界温度 T_c が約 9 K であるのに対し、NbN の T_c は約 16 K であり、NbN を用いることで動作上限周波数は約 2.7 THz と倍近くなる。これまでに AlN をトンネル障壁層とした高品質なエピタキシャル NbN/AlN/NbN 接合が実現されている[4]。

一方、我々はこれまでに NbN/AlN_x-Al/NbN 接合の作製及び特性の評価を行ってきた。接合の作製において、障壁層形成法として Al のプラズマ窒化を用いており、上記エピタキシャル接合とは異なり、接合三層膜がエピタキシャルになっていない。その結果、AlN_x 障壁層の効果として、比較的良好なサブギャップリーク特性やギャップ電圧 V_g での小さな電圧遷移幅 ΔV_g が得られているが、臨界電流密度 J_c が最大 3 kA/cm² (Al 膜厚 1.0 nm 時)、あるいは 8 kA/cm² (Al 膜厚 0.7 nm 時) と制限されていた。また、ギャップ電圧 V_g も最大 4.35

mVとなっていた[5][6]。我々は、検出器に求められる接合特性として、 J_c : 20 kA/cm²以上、 V_g : 5.0 mV以上を目標としている。そこで、 V_g 及び J_c の向上が必要となる。 V_g 低下の原因として、上部 NbN 電極の超伝導性の劣化が大きいと考えられる[6]。従って、プラズマ窒化 AlN_x-Al上におけるNbNの超伝導性向上が必要である。また、 J_c 向上のためには障壁層形成メカニズムを解明する必要がある。これまでの実験より接合特性が Al 膜厚及び窒化時間に依存することが判明している[4]。そこで、窒化時の RF 電力密度依存性についても検討する必要があると考えた。

本研究では、上部電極堆積条件および AlN_x 障壁層形成条件の検討を行うことで特性向上を試みた。本誌では、我々がこれまで作製したプラズマ窒化 AlN_x 障壁層を用いた NbN トンネル接合の作製方法および諸特性について述べる。

2. 実験方法

2.1. AlN_x-Al 上における NbN 薄膜の作製

ここでは、接合上部 NbN 層堆積時の下地条件を模擬するため、2.2 で述べる接合多層膜堆積プロセスのうち、下部 NbN 層堆積プロセスを除いたプロセスを用いて試料を作製した。まず、10 mm×10 mm×0.5 mm MgO(100)単結晶基板の上に、Al 層を RF マグネトロンスパッタ法で、Ar プラズマ中で堆積した。到達真空度は 8.0×10^{-5} Pa 以下で、基板は室温である。Al の堆積レートは 10 nm/min であった。Al を 1 nm 堆積し、表面をプラズマ窒化した。窒化時のチャンパー内の様子を図 1 に示す。窒化条件は、窒素ガス圧 0.4 Pa、RF 電力密度は 2.26 W/cm²、窒化時間は 5 分であった。

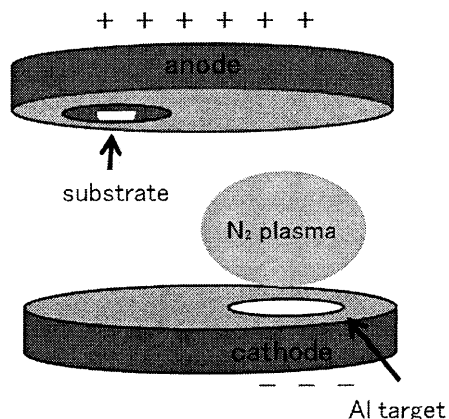


図 1. プラズマ窒化時のチャンパー内の様子

試料は Al ターゲットに対し対角の位置に配置させ、Al ターゲット上に N₂ プラズマを発生させた。このときの生成した窒素ラジカル及び窒素原子により Al が

窒化され、AlN_x が形成されることになる。ターゲット側にプラズマを生成したのは試料に与えるダメージを避けるためであり、また、基板とターゲットを対角に配置したのは余分な Al や AlN の堆積を避けるためである。次に、NbN 薄膜を DC マグネトロンスパッタリング法により、Ar と N₂ の混合ガス中で堆積した。Ar 流量は 40 sccm であり、N₂ 流量は 2.0~9.0 sccm、全圧は 0.8~1.6 Pa、電圧は 342~400V、電流は 500 mA であった。NbN 薄膜の膜厚は 145~200nm であった。作製した NbN 薄膜の T_c と抵抗率を測定し、より高い T_c が得られた条件を新しい上部電極堆積条件として接合作製を行った。

2.2. 接合作製プロセス

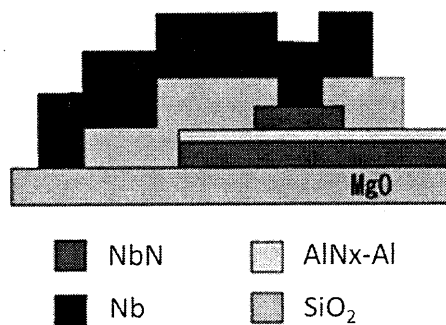


図 2. NbN/AlN_x-Al/NbN 接合の断面図

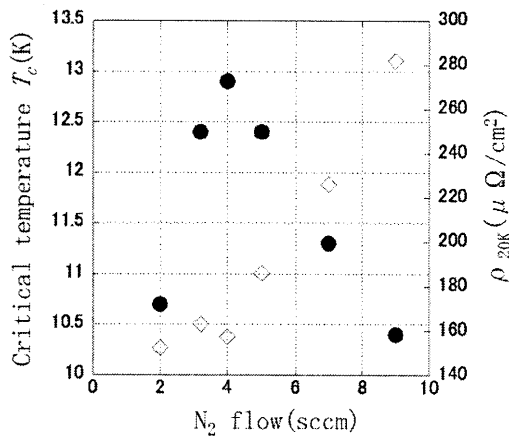
NbN/AlN_x-Al/NbN 接合の断面図を図 2 に示す。まず、NbN/AlN_x-Al/NbN 多層膜を、MgO 基板上に堆積した。下部 NbN 電極を DC マグネトロンスパッタリング法により、Ar と N₂ の混合ガス中で 200 nm 堆積した。Ar 流量は 40 sccm であり、N₂ 流量は 3.2 sccm、全圧は 0.8 Pa、電圧は 350V、電流は 500 mA であった。この時、NbN の堆積レートは 80 nm/min である。この条件で MgO 基板上に堆積させた場合の NbN 薄膜の臨界温度 T_c 及び 20K での抵抗率はそれぞれ 16.0 K、69.2 $\mu\Omega$ /cm² であった。次に、2.1 で述べたように Al 層を RF マグネトロンスパッタ法により Ar プラズマ中で堆積した。Al は 1 nm 堆積し、表面をプラズマ窒化した。窒化条件は、窒素ガス圧 0.4 Pa、RF 電力密度は 0.57~3.40 W/cm²、窒化時間は 5 分であった。次に上部 NbN 層を 200nm 堆積した。この時の堆積条件は、2.1 及び 3.1 で述べてある新条件(N₂ 流量 4.0 sccm、全圧 1.4 Pa)を用いた。

接合はフォトリソグラフィと反応性イオンエッチングによってパターンニングした。350 nm の SiO₂ スパッタ膜をベース NbN と配線 Nb の層間絶縁層として用いた。層間絶縁層にコンタクトホールを形成した後、500 nm の Nb 層を堆積し、配線を形成した。

3. 実験結果及び考察

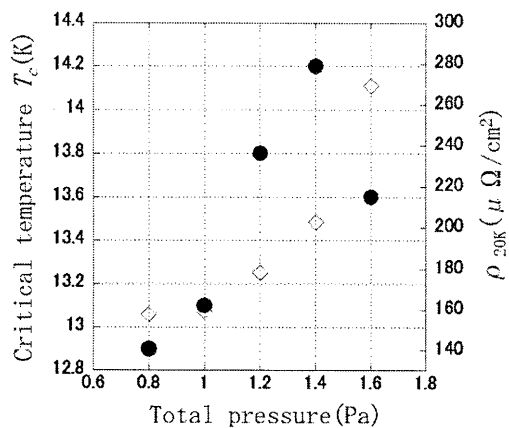
3.1. 上部電極堆積条件の検討

AINx-Al上に成膜したNbN薄膜の臨界温度 T_c と 20 Kでの抵抗率 ρ_{20K} を図 3 に示す。図 3(a) は、NbN 薄膜の N_2 流量依存性である。全圧は 0.8 Pa で一定とした。これまで用いていた NbN の堆積条件は、 N_2 流量 3.2 sccm、全圧 0.8 Pa であり、この条件で AINx-Al 上に NbN を堆積させた場合、 T_c 及び ρ_{20K} はそれぞれ 12.4 K、163.1 $\mu\Omega/cm^2$ であった。この結果から MgO 上に堆積させた場合と AINx-Al 上に堆積させた場合とで T_c 及び ρ_{20K} が大きく変化していることが分かる。今回、 N_2 流量を 4.0 sccm にすることで T_c 及び ρ_{20K} はそれぞれ 12.9 K、157.5 $\mu\Omega/cm^2$ となった。



● : 臨界温度 T_c ◇ : 抵抗率 ρ_{20K}

(a) N_2 流量依存性



● : 臨界温度 T_c ◇ : 抵抗率 ρ_{20K}

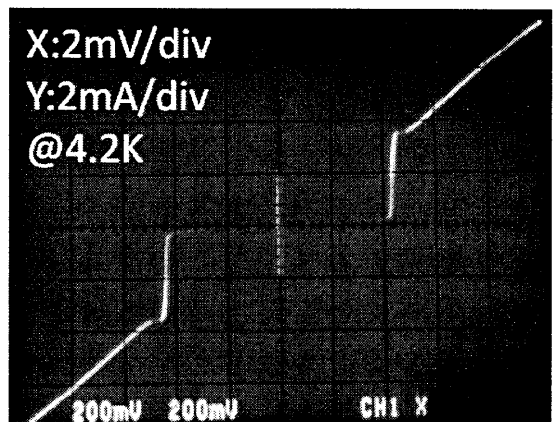
(b) 全圧依存性

図 3. NbN 薄膜の臨界温度 T_c と 20 K での抵抗率 ρ_{20K}

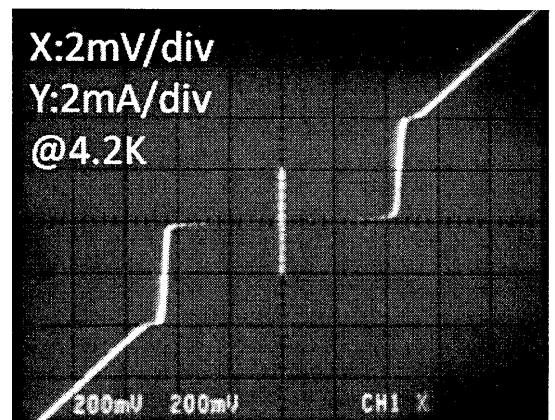
次に、NbN 薄膜の全圧依存性を図 3(b) に示す。 N_2 流量は 4.0 sccm で一定とした。全圧 1.4 Pa で、 T_c 及び ρ_{20K} はそれぞれ 14.2 K、202.7 $\mu\Omega/cm^2$ となった。

超伝導エネルギーギャップ Δ と T_c には、 $\Delta \propto k_B T_c$ の関係がある。ここで、 k_B はボルツマン定数である。よって今回最も高い T_c が得られた N_2 流量 4.0 sccm、全圧 1.4 Pa を新しい上部電極堆積条件とした。

そこで、上部電極堆積条件を変えたことによる効果を確認するため、接合を作製し、4.2K にて特性評価を行った。旧条件 (N_2 流量 3.2 sccm、全圧 0.8 Pa) 及び新条件 (N_2 流量 4.0 sccm、全圧 1.4 Pa) で上部電極を堆積させた接合の I - V 特性をそれぞれ図 4(a)、(b) に示す。どちらの接合も Al 膜厚は 1 nm であり、窒化条件は、窒素ガス圧 0.4 Pa、RF 電力密度 2.26 W/cm²、窒化時間 5 分であった。接合サイズはどちらも 10 μm^2 である。



(a) 旧条件 (N_2 流量 3.2 sccm、全圧 0.8 Pa)



(b) 新条件 (N_2 流量 4.0 sccm、全圧 1.4 Pa)

図 4. NbN/AINx-Al/NbN 接合の I - V 特性 (10 μm^2)

図 4 の接合特性はそれぞれ、(a) J_c : 2.0 kA/cm²、 V_g : 4.35 mV、 R_{sg}/R_n : 30 と (b) J_c : 2.1 kA/cm²、 V_g : 4.50 mV、 R_{sg}/R_n : 28.3 となっている。ここで、 R_{sg} は 2 mV でのサブギャップ抵抗、 R_n は 10 mV での接合抵抗である。新条件を用いることで V_g が 0.15 mV 向上した。各条件の接合の臨界電流 I_c の温度特性を図 5 に示す。旧条件の接合と新条件の接合の T_c はそれぞれ 12.4 K、13.8 K となった。新しい条件では、 T_c が 1.4 K 向上した。し

かし、 $\text{AlN}_x\text{-Al}$ 上に成膜したNbN薄膜の T_c が14.2 Kであったのに対し、接合の T_c は13.8 Kであったことから上部電極の初期成長部分の超伝導性が不十分であると考えられる。

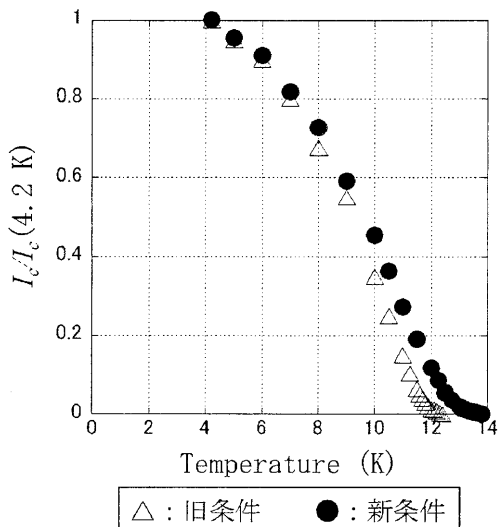
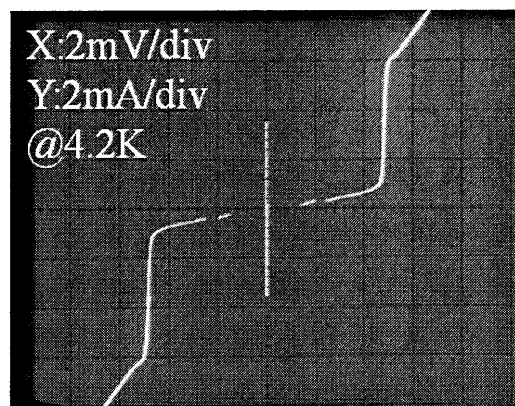


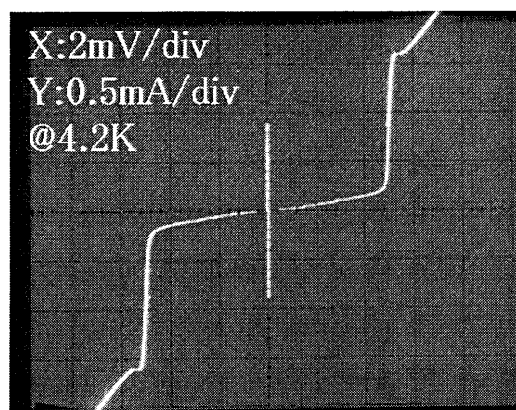
図 5. 各接合の臨界電流 I_c の温度特性

そこで、上部電極の初期成長を促すために上部電極堆積時の基板温度上昇を行った。基板温度 300 °C、400 °C の接合の I - V 特性をそれぞれ図 6(a)、(b) に示す。接合特性は、(a) J_c : 3.7 kA/cm²、 V_g : 4.80 mV、 R_{sg}/R_n : 8.6、(b) J_c : 0.9 kA/cm²、 V_g : 5.00 mV、 R_{sg}/R_n : 11.6 となった。また、図 7 に V_g と R_{sg}/R_n の基板温度依存性を示す。基板温度を上昇させることで V_g が向上し、基板温度 400 °C において $V_g=5.0$ mV が得られた。また、基板温度 27 °C、300 °C、400 °C の接合の T_c はそれぞれ 13.8 K、14.2 K、14.7 K であり、基板温度を上昇させると T_c が向上した。以上のことから、上部電極堆積時の基板温度の上昇は障壁層界面の超伝導性向上に効果があると考えられる。

一方、基板温度を上昇させると R_{sg}/R_n が低下した。室温で作製した図 4(b) の接合に比べ、図 6(a)、(b) の接合はサブギャップリーク電流が増加していることが分かる。リーク電流増加の原因としては、基板温度上昇により、障壁層内にピンホールなどのシャントパスが生じた可能性や障壁層界面付近に存在する常伝導層の実効的膜厚が変化している可能性がある。実際、後者に関しては、 I - V 特性における Knee 構造の変化がみられるからである。今後、接合の磁場応答や 4.2 K 以下の極低温での測定を行うことで、リーク電流の原因を検討することが課題である。



(a) 基板温度 300 °C



(b) 基板温度 400 °C

図 6. 上部電極堆積時基板温度を上昇させた接合の I - V 特性

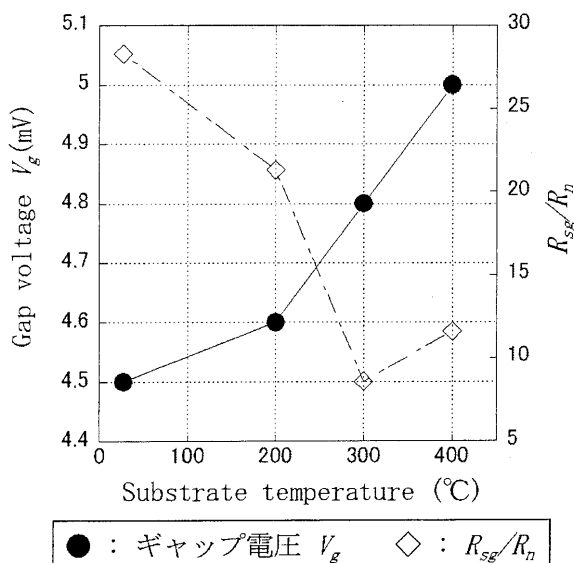
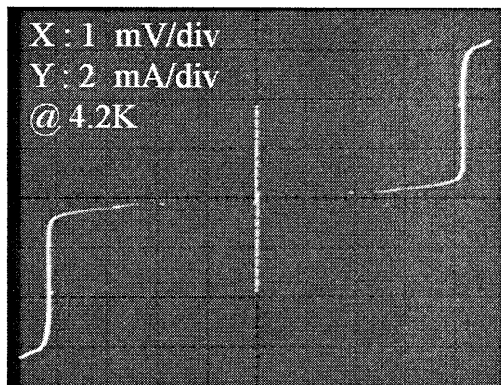


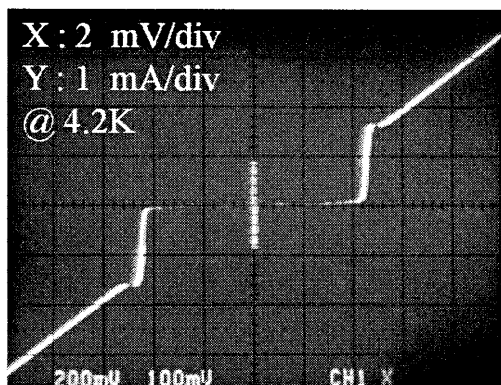
図 7. V_g と R_{sg}/R_n の基板温度依存性

3.2. 障壁層形成条件の検討

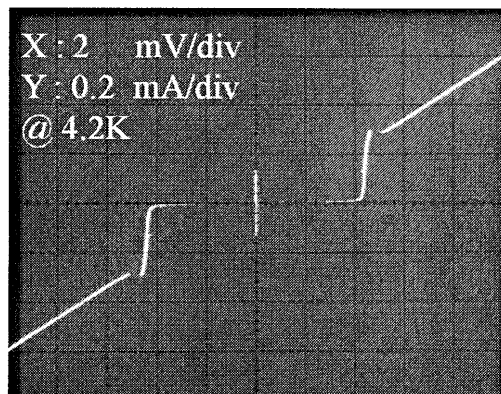
接合の J_c 向上に向けて、Al のプラズマ窒化時の RF 電力密度依存性を調べた。RF 電力密度 0.57 W/cm^2 、 2.26 W/cm^2 、 3.40 W/cm^2 で作製した接合 ($6\mu\text{m}\square$) の I - V 特性をそれぞれ図 8(a)、(b)、(c)に示す。どの接合も Al 膜厚は 1 nm であり、窒素ガス圧は 0.4 Pa 、窒化時間は 5 分である。上部電極堆積条件には 3.1 の新条件を用いた。接合特性は、(a) J_c : 10.2 kA/cm^2 、 V_g : 4.20 mV 、 R_{sg}/R_n : 9.8 、(b) J_c : 2.3 kA/cm^2 、 V_g : 4.50 mV 、 R_{sg}/R_n : 37.8 、(c) J_c : 0.39 kA/cm^2 、 V_g : 4.40 mV 、 R_{sg}/R_n : 60.0 となった。



(a) RF 電力密度 0.57 W/cm^2



(b) RF 電力密度 2.26 W/cm^2



(c) RF 電力密度 3.40 W/cm^2

図 8. RF 電力密度が違う接合の I - V 特性

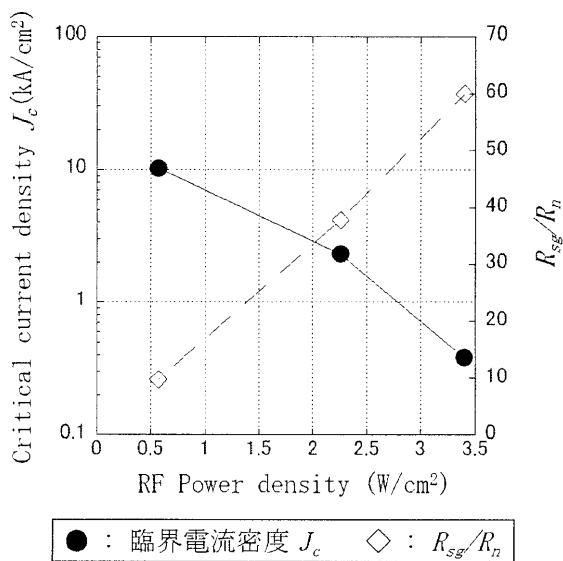


図 9. J_c と R_{sg}/R_n の RF 電力密度依存性

図 9 に J_c と R_{sg}/R_n の RF 電力密度依存性を示す。 J_c と R_{sg}/R_n は RF 電力密度に大きく依存することがわかる。従って、プラズマ窒化時の RF 電力密度により、 AlN_x 障壁層の特性を制御でき、接合の高 J_c 化を実現できる可能性がある。ただし、高 J_c 化に伴い R_{sg}/R_n の低下が見られており、この原因については、さらに検討が必要である。

一方、 V_g に着目すると、(a)の接合ではヒーティング現象が若干見られているものの、他の接合に比べて V_g が 0.2 mV 程度小さくなった。本 $\text{NbN}/\text{AlN}_x\text{-Al}/\text{NbN}$ 接合では、 V_g は Al 膜厚に大きく依存することが分かっている[4]。従って、RF 電力密度が小さい場合、下部 NbN 表面にプラズマ窒化されていない Al 層が極わずかに残っており、それによって V_g の低下が起こった可能性がある。この場合、Al 膜厚を最適化することにより、接合特性の向上につながるため、今後検討する予定である。

4. むすびに

我々は、今回プラズマ窒化 AlN_x 障壁を用いた NbN 接合の上部電極堆積条件及び障壁層形成条件の検討を行った。上部電極堆積条件の検討では、 $\text{AlN}_x\text{-Al}$ 上における NbN 薄膜の堆積条件を調整することにより V_g を 0.15 mV 向上させることができた。今回の実験では、窒素流量、全圧両方を同時に変化させたときの最適条件化を行っていないので、引き続き条件の検討を行うことで更なる V_g 向上の可能性がある。また、上部電極堆積時の基板温度の上昇を行うことで V_g を 0.50 mV 向上させることができた。結果として、 V_g が 5.0 mV となり、我々が目標としている値を得ることができた。

しかし、基板温度の上昇による接合障壁層界面付近の超伝導特性や障壁層そのものへの影響を解明できておらず、特性向上のための今後の課題と考えている。

また、障壁層形成条件の検討では、Alのプラズマ窒化時のRF電力密度を制御することで J_c が大きく変化することが分かった。今後は、更なる低RF電力密度化や、Al膜厚の最適化により高 J_c の接合が作製可能であるとと考えている。

5. 謝辞

本研究は、科学研究費補助金・新学術領域研究(課題番号 22111505)の支援によって行われた。

文 献

- [1] Z.Wang , Y.Uzawa , M.Takeda , A.Kawakami , “Terahertz-band SIS mixers with NbN tunnel Junctions” 電子情報通信学会総合大会 CS-7-1 2005
- [2] A.Kawakami , Y.Uzawa , M.Takeda , Z.Wang “Development of SIS mixers using Single-crystal NbN films in the Sub-mm Wave Region” 信学技報 SCE2003-8 M W2003-8(2003-4) 2003
- [3] A.Karpov , B.Plathner , J.Blondel , M.Schicke , K.H.Gundlach , M.Aoyagi and S.Takada “Low noise submillimeter SIS receiver with niobium nitride quasiparticle tunnel junctions” International journal of infrared and millimeters waves volume17 number7 1139-1147
- [4] Z.Wang , W.Qiu , K.Makise and H.Terai “Fabrication of high-quality NbN/AlN/NbN tunnel junctions with a wide range of current density” ASC 2010 1EPB-09 2010
- [5] Y.Nagao , H.Akaike , R.Kanada , N.Naito and A.Fujimaki , “The preparation process of plasma-nitrided barriers in NbN Josephson junctions for digital application” Supercond. Sci. Technol, vol. 22, 114015, 2009
- [6] N.Naito , T.Funai , C.Maruyama , H.Akaike , A.Fujimaki , “Electric Characteristics of NbN Tunnel Junctions with plasma-nitrided AlN_x barriers” 信学技報 SCE2010-10 pp13-18 2010