

## スクリーン印刷 Y-Ba-Cu-O 系高温超伝導膜の 粒界ジョセフソン接合

内田悦行・赤尾保男・野上正行\*  
橋本朋浩\*\*・澤木直人\*\*\*

### Grain Boundary Josephson Junction Using Screen Printed High-Tc Y-Ba-Cu-O Superconducting Films

Yoshiyuki UCHIDA, Yasuo AKAO, Masayuki NOGAMI  
Tomohiro HASHIMOTO and Naoto SAWAKI

Dc Josephson characteristics in the bridge type weakly linked Josephson junctions using screen printed high-Tc  $YBa_2Cu_3O_{7-y}$  superconducting thick films are presented. Relations between averaged grain size and weakly linked total cross sectional area in the bridge junction are also presented. Fabrication techniques using granularly junction for Josephson device applications are proposed. A zero resistance critical temperature of the screen printed sample, 81K, is measured by an automatic measuring system constructed in our laboratory. The grain characteristics for various fabrication conditions are observed by a scanning electron microscopy. The current-voltage Josephson characteristics at different operating temperatures, different sintering temperatures and different cross sectional areas in the bridge are measured. The critical current dependences on the sintering temperature and total cross sectional area are expected.

#### 1. はじめに

オランダの H.K. Onnesが極低温での金属の電気抵抗の測定中に超伝導現象を1911年に発見して以来、超伝導に関する研究が行われてきたが、70年余りの間、この現象は極低温でしか実現されないと考えられていた。しかし、1986年4月には、IBMチューリッヒ研究所の J.G. BednorzとK.A. Müllerは、La-Ba-Cu-O系混合酸化物が30~35Kに達する温度で超伝導の徴候を示すことを発表した<sup>1)</sup>。1987年2月には、液体窒素温度を越える臨界温度を持つ Y-Ba-Cu-O系超伝導体をヒューストン大学のC.W. Chuグループが発見した<sup>2)</sup>。その結果、液体窒素温度以上で超伝導現象が得られることにより、超伝導の応用は、急速

に進められてきた。

著者らは、これまでに超伝導体の作製と評価法に関する基礎研究から超伝導体の素子化技術として、超伝導体の作製条件を制御するという素子化の手法を見出してきた<sup>3)-9)</sup>。本報告では、スクリーン印刷焼結法で作製した Y-Ba-Cu-O系超伝導厚膜を機械的に加工することによりブリッジ型接合を実現し、電流-電圧特性の測定から、その特性がブリッジ型ジョセフソン接合に見られるジョセフソン特性と同じ傾向であることを述べ、次に、ブリッジ幅、焼結温度に対する電流-電圧特性と焼結温度の異なる試料のSEM写真から、臨界電流の制御が可能であることを述べる。

---

情報通信工学科

・応用化学科

\*\*大学院電気工学専攻

\*\*\*大学院電気工学専攻、現：日本特殊陶業（株）

## 2. ブリッジ型接合の作製法

超伝導体の膜化の方法としては、スパッタリング法、CVD法、反応性蒸着法、レーザーアブレーション法、スクリーン印刷法などの種々の方法が用いられている。ここではスクリーン印刷焼結法により膜化を行った。作製工程を図1に示す。酸化イットリウム、炭酸バリウム、酸化銅の粉末を焼結後所定の組成になるように秤量し、乳鉢混合する。その混合粉末を950℃5時間の条件で焼成し、焼成後、粉砕混合することにより $YBa_2Cu_3O_y$ 仮焼粉末を作る。仮焼粉末を有機溶媒プロピレングリコールと混合してペースト状にし、基板状に200メッシュのシートを通してスクリーン印刷する。乾燥させた後、焼結温度を変化させて各種試料を焼結し、常温まで炉冷する。基板には、安価で作製の容易な点、膜との結合性の良い点から $Y_2BaCuO_y$ 仮焼粉末をペレット状に成型、焼結したものをを用いている。このようにして作製した超伝導厚膜をブリッジ状になるように鋭利な刃物を用いて機械的に加工する。試作したブリッジ型接合を図2に示す。試作した超伝導厚膜の膜厚は、図3に示す試料断面のSEM写真により測定し、約 $30\mu m$ である。

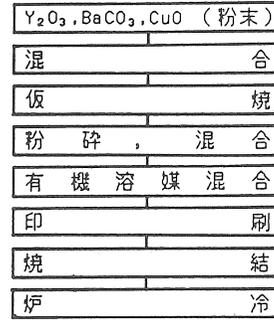


図1. 超伝導厚膜の作製工程図

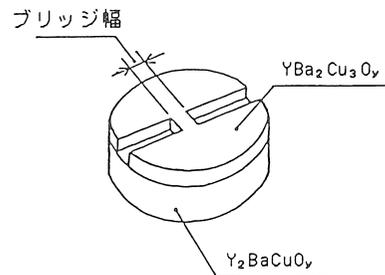


図2. ブリッジ加工図

## 3. 実験方法

Y-Ba-Cu-O系超伝導体で実用化の鍵となる一つは、液体窒素温度以上で臨界温度を示すことである。そこで、作製した超伝導厚膜の電気抵抗-温度特性を測定した。次に、ブリッジ型接合試料を用いて、測定温度、ブリッジ幅、焼結温度をパラメータとした電流-電圧特性を測定した。それぞれの特性は、超伝導特性自動測定システム(AIT-100型)を用いて測定した。測定は、四端子法で行った。端子は、銅線をインジウムで圧着することにより形成し、電圧端子間距離は、2mmで一定とした。また、焼結温度の異なる試料に対して、グレインサイズと接合面積の関係をSEM写真により観察した。

## 4. 結果と検討

スクリーン印刷焼結法により試作した超伝導厚膜の電気抵抗-温度特性の一例を図4に示す。臨界温度 $T_c$ のエンドポイントは81Kを示し、液体窒素温度

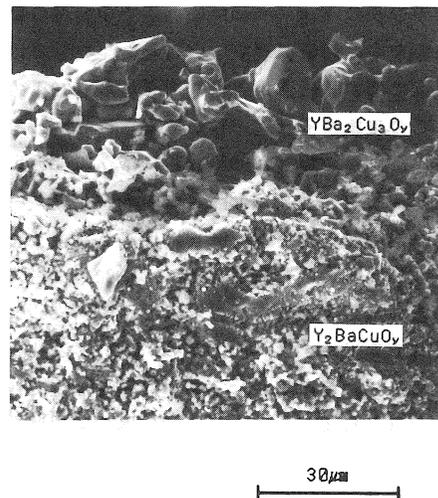


図3. 膜断面のSEM写真

77Kを越えている。

測定温度をパラメータとした電流-電圧特性を焼結条件 940°C 2時間、ブリッジ幅 1.8mmの試料に対して図5に示す。電圧 0において最大電流を示す臨界電流は、測定温度に依存しており、測定温度が低くなるほど大きな値を示している。また、この電流-電圧特性は、点接触型、ブリッジ型のジョセフソン接合同様の傾向を示している<sup>10)</sup>。臨界電流の温度特性を焼結条件 940°C 2時間、ブリッジ幅 1.8mmの試料に対して図6に示す。ブリッジ型ジョセフ

ソン接合同じく、臨界電流 $I_c$ が $(1-T_c/T)^{3/2}$ に比例している<sup>11)</sup>ので、試作したブリッジ型接合がブリッジ型ジョセフソン接合であり、ジョセフソン素子として利用できる可能性があると言える。

焼結条件 940°C 2時間の試料の、測定温度70Kにおけるブリッジ幅をパラメータとした電流-電圧特性を電流密度-電圧特性に変換して図7に示す。ブリッジ幅に関係なく特性が一致していないのは、膜の内部のグレイン密度分布にばらつきがあるためだと考えられる。この結果から、ブリッジ幅によって

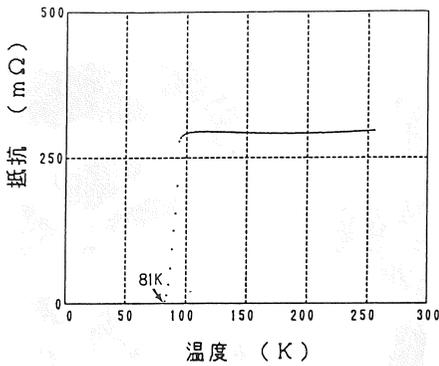


図4. 膜の電気抵抗-温度特性

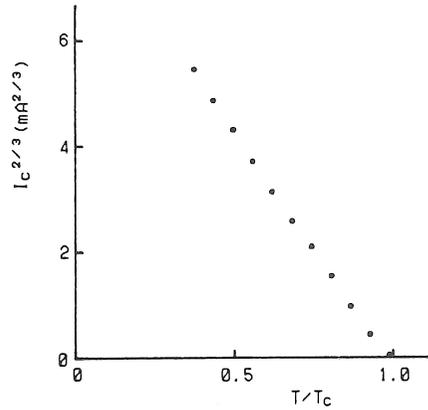


図6. 臨界電流の温度特性  
(焼結温度 940°C, ブリッジ幅 1.8mm)

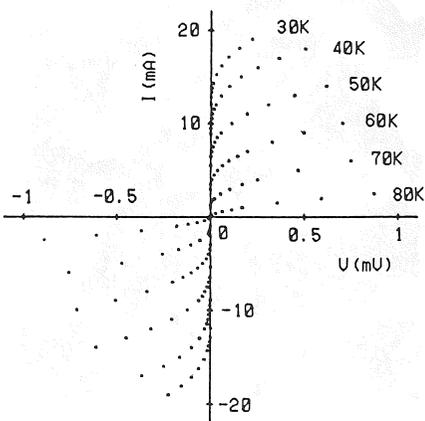


図5. 測定温度をパラメータとした  
電流-電圧特性  
(焼結温度 940°C, ブリッジ幅 1.8mm)

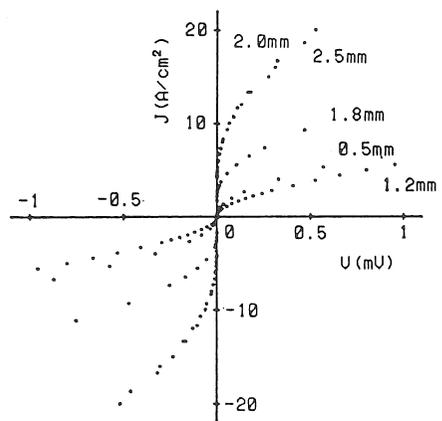


図7. ブリッジ幅をパラメータとした  
電流密度-電圧特性  
(焼結温度 940°C, 測定温度 70K)

臨界電流の制御をするには、グレイン密度が均一な膜の作製が必要であると言える。

ブリッジ幅 2.0mm, 測定温度 70K で, 焼結時間 2 時間一定とし, 焼結温度をパラメータとした電流-電圧特性を電流密度-電圧特性に変換して図 8 に示す。臨界電流密度は, 焼結温度に依存しており, 焼結温度が高くなるほど大きな値を示している。この試料を SEM で観察した写真を図 9 に示す。焼結温度が高くなるほど, グレインは成長して大きくなっていく傾向にあり, グレイン間の総接合面積は, 試料全体でみて平均的に増加していると言える。この結果から, 電流密度はグレイン間の総接合面積に依存していると言える。

グレイン密度の均一な膜を作ることにより, ブリッジ幅と焼結温度で臨界電流が制御できると結論づけられる。

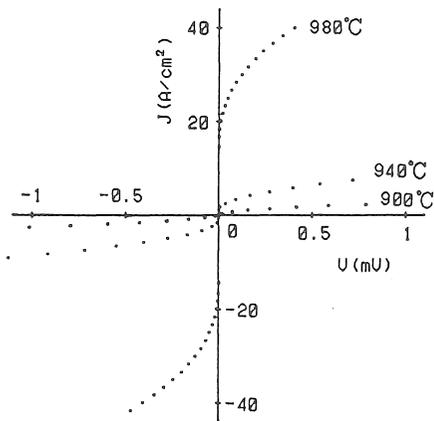


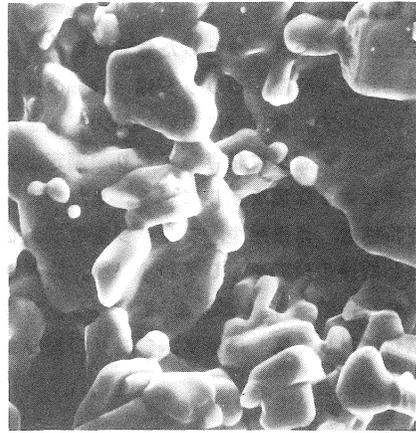
図 8. 焼結温度をパラメータとした電流密度-電圧特性  
(ブリッジ幅 2.0mm, 測定温度 70K)

## 5. おわりに

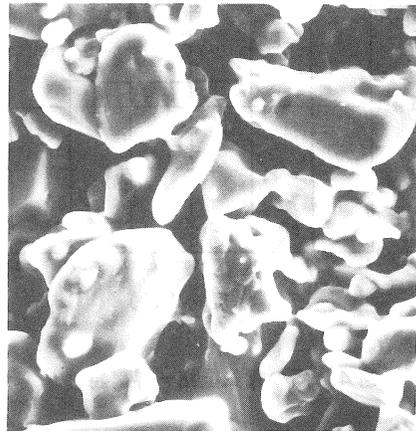
本実験で得られた結果をまとめる。

(1) スクリーン印刷焼結法で, 液体窒素温度を越える臨界温度を持つ Y-Ba-Cu-O 超伝導膜を作製した。

(2) 測定温度をパラメータとした電流-電圧特性と臨界電流の温度特性から, 試作したブリッジ型接合が, ブリッジ型ジョセフソン素子として利用できる可能性があることを明らかにした。



(a)



(b)



(c)

15 μm



図 9. 焼結温度の異なる試料の SEM 写真  
(a) 980°C, (b) 940°C, (c) 900°C

(3) 焼結温度をパラメータとした電流密度-電圧特性から、グレイン密度の均一な膜を作製することにより、ブリッジ幅で臨界電流が制御できることを明らかにした。

(4) 焼結温度をパラメータとした電流密度-電圧特性と焼結温度の異なる試料のSEM写真観察から、臨界電流はグレイン間の総接合面積に依存しており、焼結温度で制御できることを明らかにした。

#### 謝辞

愛知県工業技術センター黒沢和芳氏には、SEM観察で御協力いただいた。

#### 参考文献

- 1) J.G.Bednorz, K.A.Muller : Possible High  $T_c$  Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System *Z.Phys.*, B64, 189-193, 1986.
- 2) M.K.Wu, J.R.Ashburn, C.J.Torng, P.H.Hor, R.L. Meng, L. Gao, Z.J.Huang, Y.Q.Wang, C.W.Chu : Superconductivity at 93K in a New Mixed-Phase Y-Ba-Cu-O Compound System, at Ambient Pressure, *Phys. Rev. Lett.*, 58, 908-910, 1987.
- 3) 澤木直人, 内田悦行, 赤尾保男 : Y-Ba-Cu-O系セラミックス超伝導体の作製, 愛知工業大学研究報告, 23B, 17-21, 1988.
- 4) 澤木直人: セラミックス超伝導体の素子化技術に関する研究, 愛知工業大学大学院昭和63年度修士論文, 1989.
- 5) 澤木直人, 内田悦行 : Y-Ba-Cu-O系超伝導膜における粒界ジョセフソン接合, ACTIVE技術年報・東海 1989年版, 115, 1989.
- 6) T.Hashimoto, Y.Uchida : Granularity Effect in Josephson Junction Using Ceramics Superconducting Films, The Beijing International Conference on High  $T_c$  Superconductivity, FD-21, (Beijing, P.R.China), Abstract, 104, 1989.
- 7) Y. Uchida, T. Hashimoto : Grain Boundary Josephson Junction Using Screen Printed High- $T_c$  Y-Ba-Cu-O Superconducting Films, The 1989 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, 5E-525, (Honolulu, Hawaii, U.S.A.), Abstracts, 1, 659-660, 1989.
- 8) T.Hashimoto, Y.Uchida, Y.Akao, M.Nogami : Grain Boundary Josephson Junction Using Screen Printed High- $T_c$  Superconducting Films, *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, (submitted).
- 9) 橋本朋浩: セラミックス超伝導体の特性評価法に関する研究, 愛知工業大学大学院平成元年度修士論文, 1990.
- 10) 日本物理学会編: 超伝導, 丸善, 1979.
- 11) H. Tanabe, Y. Yoshizako, M. Tonouchi and T. Kobayashi : Grain Boundary Josephson Junctions Using Y-Ba-Cu-O Films Operative at 77K, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 26, 1961-1963 1987.

(受理 平成2年3月20日)