

# ジョセフソン電流に対する水素不純物による位相コヒーレンス 破壊機構の解明と量子素子評価技術の開発

九州大学 工学研究院 河江達也

Study of Breakdown Mechanism in Superconducting Coherence of  
Josephson Junction due to Hydrogen Impurity

Tatsuya Kawae

Faculty of Engineering, Kyushu University

ブレイクジャンクション法で作製した清浄な表面を持つ超伝導-常伝導-超伝導型の Nb 製ジョセフソン接合 (SCS-JJ) の表面に、水素 ( $H_2$ ) を吸着させた際の電流電圧 ( $I$ - $V$ ) 特性および微分伝導信号  $dI/dV$  を詳細に調べた。  $T \sim 20K$  で  $H_2$  を SNS-JJ に吸着させると超伝導ギャップ内の信号は真空中で観測した信号から大きく変化し、電圧値の正負に対して対称的にスパイク状のピークがほぼ等間隔に多数出現した。また温度変化させてもスパイク間隔は変化せず、超伝導転移より高温ではスパイクは消失した。さらに、このスパイク状ピークは、コンタクトサイズを変化させても大きく変化しない。以上の結果より、SNS-JJ 表面に吸着した水素が、超伝導電流と相互作用をすることによってノイズ構造を発生することがわかった。

We have investigated the current-voltage ( $I$ - $V$ ) and differential conductance  $dI/dV$  characteristics of Josephson junctions (JJ) made by niobium (Nb) adsorbing a small amount of hydrogen (H) and deuterium (D) impurities using a mechanically controllable break junction (MCBJ) technique. Below the superconducting transition temperature  $T_c$ ,  $dI/dV$  spectra show distinct peaks within the superconducting gap arising from multiple Andreev reflection in pure Nb. When H or D impurities are adsorbed on the surface of the Nb-JJ, many spike-like peaks with almost the same spacing appear inside the superconducting gap in addition to anomalies owing to the multiple Andreev reflection in the  $dI/dV$  spectra. The spacing between the adjacent peaks is independent of the temperature variation. These indicate that H or D impurities adsorbed on the JJ are sources of noise for the Josephson current.

## 1. はじめに

量子コンピュータの実用化に対する最難問の 1 つに、演算過程における波動関数の重ね合わせ状態 (コヒーレンス) の維持がある<sup>1)</sup>。コヒーレンスが破壊されると素子のエラー頻出、プログラムの複雑化などの問題が起こる。このコヒーレンスを破壊するノイズの要因として超伝導量子素子表面に吸着あるいは内部に侵入した原子状水素が指摘されている<sup>2,3)</sup>。水素は金属表面に吸着あるいは内部に侵入し、様々な機材の性能低下を引き起こす要因となってきた。これは、水素が最も存在比の高い元素であるとともに強い量子性や

反応性を示すので、熱的運動が抑制される低温でも金属表面で原子に解離後、原子状水素として表面に吸着あるいは内部へ侵入するためである。ここで実際の超伝導量子素子に着目すると、超伝導ジョセフソン接合(JJ)はアルミニウム(Al)とその酸化膜 $\text{AlO}_x$ で作製され、素子内の配線にはAlあるいはニオブ(Nb)が用いられている。またシャント抵抗としてパラジウム(Pd)を用いてある。Al, Nb, Pd, はいずれも水素化物を形成する。したがってわずかな水素も量子素子の表面に吸着すれば電子の波動関数に対するノイズとなり、コヒーレンスを破壊する要因の1つとなり得る。実際、素子成膜時にSi表面処理などで水素を使用するため残留水素の影響は避けられないのだが、金属に吸着あるいは内部に侵入した水素が超伝導状態にどのように影響しコヒーレンスを壊すのか直接研究した実験はなかった。

## 2. 実験方法

以上のような背景より著者は、水素が超伝導電流にどのような影響を与え、波動関数に対するノイズになるのか直接観測する研究計画を申請した。そこで本研究では、水素が表面部に吸着した超伝導-常伝導-超伝導ジョセフソン接合(SNS-JJ)を作製し、その伝導特性を詳細に調べることでSNS-JJの対する水素の影響を解明する実験を実施した(図1模式図)。本実験では、SNS-JJをブレークジャンクション(MCBJ)法と呼ばれる金属ワイヤを機械的応力によって引き延ばして作製する。特に本研究ではSNS-JJの作製を $T \sim 20\text{K}$ かつ高真空中で行うことで、不純物の混入を防いだ。さらにMCBJ機構を用いて、超伝導ジョセフソン接合部のサイズや表面部に吸着あるいは内部に侵入した水素間の距離を超伝導転移以下の温度で変化させることが可能になっている<sup>4)</sup>。これによって水素と超伝導電子間の相互作用を詳細に調べることが出来る。

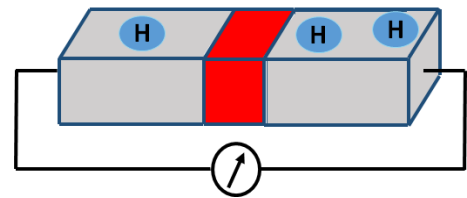


図1：水素吸着によるジョセフソン電流の変化より超伝導波動関数に対する影響を調べる。

## 3. 結果と考察

### 3.1 ニオブ製SNS-JJに対する水素吸着

まずNb製のSNS-JJに水素吸着した際に出現する電流ノイズに関する研究結果を記す。図2にMCBJ法で作製した超伝導金属ニオブ(Nb,  $T_c \sim 9.3\text{K}$ )製のSNS-JJにおいて $T \sim 4\text{K}$ で測定した微分伝導信号 $dI/dV$ の電圧依存を示す。水素( $\text{H}_2$ )導入前は超伝導ギャップに起因するピークが $|V| \sim 1.3, 2.5\text{mV}$ に見られる。一方、 $T \sim 20\text{K}$ で $\text{H}_2$ をNb製SNS-JJに吸着させると、超伝導ギャップ内の信号は大きく変化する。図内○印で示すように、電圧値の正負に対して対称的にスパイク状のピークがほぼ等間隔に多数出現する<sup>5)</sup>。このピークに低電圧側より順番を割り振り、出現する電圧値を横軸にしてプロットした結果を図に挿入図に示す。この図から分

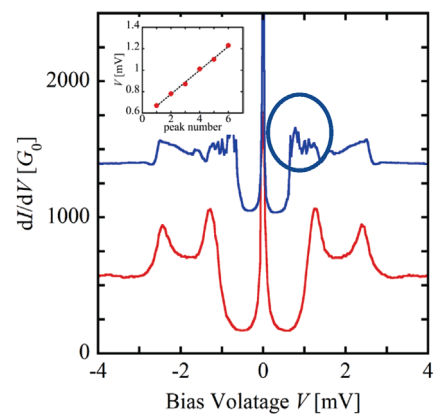


図2：Nb製SNS-JJの $dI/dV$ 信号(下)および水素吸着後に測定した信号(上)。SNS-JJに微量の $\text{H}_2$ を吸着させると多数のスパイク状ピーク(○印内)が出現する。そのピークはほぼ $\sim 0.11\text{mV}$ のほぼ等間隔で現れる(挿入図)。

かるように $\sim 0.11\text{mV}$ の等間隔で出現していることが分かる。そこで次にピエゾ素子の伸縮を用いてSNS-JJのジャンクション径を連続的に変化させ、スパイク状ピークのサイズ依存性を調べた。その結果、ジャンクションサイズを変化させてもピーク間隔に変化はないことがわかった。図3に $dI/dV$ 信号の温度依存性を示す。図中の矢印で示した超伝導ギャップの温度依存性を見てみると、温度上昇とともにゼロバイアス側へとシフトしていく。このピークの温度依存性は超伝導ギャップ関数でよく再現できた。一方、スパイク状ピークの温度依存性に注目すると、ピークが出現する温度域は変化するものの、ピーク間隔自体は変化しないことが分かる。特に $T \leq \sim 6\text{K}$ では $\sim 0.6\text{mV}$ 以上のみでしかスパイク状ピークは見られないのに対して、 $\sim 7\text{K}$ 以上の温度では低エネルギー域でもスパイク状ピークがほぼ等間隔で現れている。また超伝導転移より高温ではスパイクは消失していることから、このスパイク状ピークは超伝導電流に起因する異常であることがわかる。

水素導入後に出現した伝導度ピークが水素の量子効果を起源とするならば、水素の同位体である重水素を用いて同様の実験を行うことにより、同様の現象が観測されると予想される。そこで次に、水素を重水素に置き換えて実験を行った。重水素導入後もスパイク状ピークがほぼ等エネルギー間隔で出現することがわかった。したがって、スパイク状ピークの起源は、水素と重水素で同様のものと考えられる。一方、ピーク間隔は、水素曝露の場合が $\sim 0.11\text{meV}$ 、重水素曝露の場合が $\sim 0.09\text{meV}$ となったことから、質量の違いによって大きな変化は見られないことがわかった<sup>5)</sup>。このことから、伝導度ピークの出現は、水素あるいは重水素が吸着した際に形成される2準位レベル間の水素・重水素のトンネルが起源ではない可能性が高い。もし、これに起因する異常なら、ピーク間隔・強度に明瞭な違いが見られると予想される。

### 3.2 鉛製SNS-JJに対する水素吸着

次に試料金属の違いに着目して、超伝導金属鉛(Pb,  $T_c \sim 7.2\text{K}$ )製のSNS-JJに水素を曝露した用いた実験を行った<sup>6)</sup>。ここで、NbとPbの大きな違いは、水素/重水素の溶解熱である。すなわち、Nbは水素溶解熱が負であるため水素が固溶するが、Pbには水素が

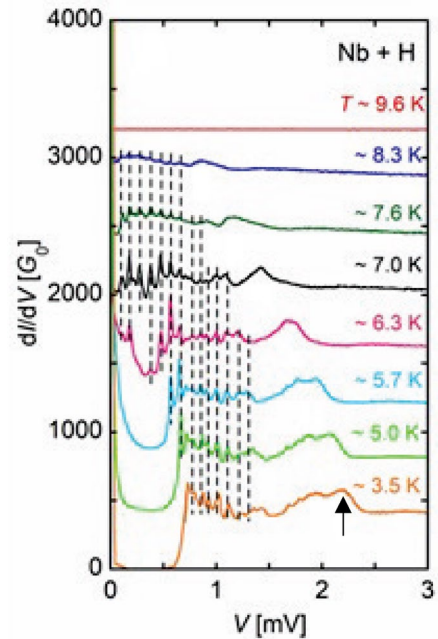


図3：Nb製SNS-JJの $dI/dV$ 信号の温度依存性。点線は各温度で出現したピークを結んでいる。矢印は超伝導ギャップに起因するピークである。

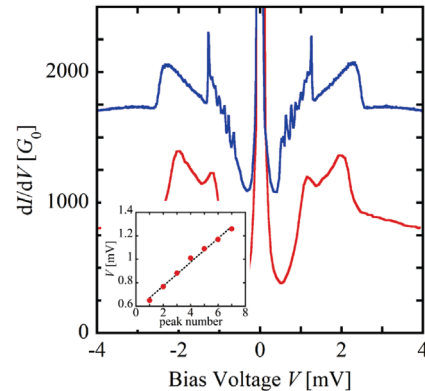


図4：Pb製SNS-JJの $dI/dV$ 信号(下)および水素吸着後に測定した信号(上)。SNS-JJに微量の $\text{H}_2$ を吸着させると多数のスパイク状ピーク(○印内)が出現する。そのピークはほぼ $\sim 0.1\text{mV}$ のほぼ等間隔で現れる(挿入図)。

侵入できない。したがって、この実験から、水素 / 重水素導入後に観測された伝導度ピークが水素吸蔵に起因するか否かを検証できる。図 4 に実験結果を示す。水素( $H_2$ )導入前は超伝導ギャップに起因するピークが  $|V| \sim 1.1, 2.2 \text{ mV}$  に見られる。一方、水素吸着した信号は、Nb 製 SNS-JJ で観測された信号と同様に超伝導ギャップより低エネルギー側の  $dI/dV$  信号に多数のスパイク状ピークが多数出現することが分かる。図 2 挿入図と同じように、スパイク状ピークに低電圧側より順番を割り振り、出現する電圧値を横軸にしてプロットした結果を図 4 挿入図に示す。各ピークは  $\sim 0.1 \text{ meV}$  の等エネルギー間隔で出現しており、Nb の場合と同様であることが分かる。また温度変化を測定したところ、超伝導ギャップは温度上昇とともにゼロバイアス側へとシフトしていき、超伝導ギャップ関数でよくフィットできた。それに対して、スパイク状ピークは温度やコンタクトサイズを変化させても大きく変化しない<sup>6)</sup>。以上の結果より、水素吸蔵しない Pb でも観測されることから、伝導度ピークの起源は水素吸着に起因すると考えられる。

以上をもとに水素 / 重水素を吸着した SNS-JJ における  $dI/dV$  信号で見られるスパイク状ピークの起源について考察する。図 3 の温度依存性で示したように  $T \leq 6 \text{ K}$  の低温領域では、 $dI/dV$  の急激な減少により低バイアス側でスパイク状ピークは見えず、高バイアス領域 ( $V \geq 0.6 \text{ mV}$ ) でピークが見え始めるようになる。一方、7K 以上では、ゼロ付近の低バイアス領域でもピークが明瞭に観測される。ここで、 $\sim 7 \text{ K}$  はエネルギーに換算すると  $\sim 0.6\text{-}0.7 \text{ meV}$  である。このことから、スパイク状ピークの出現は  $\sim 0.6\text{-}0.7 \text{ meV}$  のエネルギーしきい値をこえなければならないことが示唆される。このエネルギーしきい値は、超伝導ナノコンタクト表面上に吸着した水素 / 重水素に起因するはずである。すなわち、表面に吸着した水素 / 重水素が、ジョセフソン電流と相互作用することにより、低エネルギー状態からエネルギーギャップ  $\sim 0.7 \text{ meV}$  をこえて集団的な励起状態を形成することで、ギャップ内に伝導度ピークが出現したと考えられる。これらの成果については参考文献 (5,6) に発表した。

#### 4. 結論

著者が開発した MCBJ 実験技術を用いて SNS-JJ を作製し、その表面に吸着した水素が誘起する電流ノイズに関して調べた。その結果、表面部に水素吸着するだけでもノイズを発生させる可能性がある。またこれらの計測は高精度の微分伝導信号測定を通して行った。測定を高精度化することにより、さらに詳細にノイズ源探究が可能になると期待される。

#### 5. 謝辞

本研究は令和 2 年度日本板硝子材料工学助成会の研究助成を受けて行ったものである。同助成会に心より感謝いたします。

#### 6. 参考文献

- 1) T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, and J. L. O'Brien, *Nature* **464**, 45 (2010)
- 2) A. M. Holder, K. D. Osborn, C. J. Lobb, B. Charles, and Musgrave, *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 065901 (2013).

- 3) Z. Wang, H. Wang, C. C. Yu, and R. Q. Wu, Phys. Rev. B **98**, 020403 (R) (2018).
- 4) K. Ienaga, H. Takata, Y. Onishi, Y. Inagaki, H. Tsujii, T. Kimura, and T. Kawae, Appl. Phys. Lett. 106, 021605 (2015).
- 5) K. Miyakawa, H. Takata, T. Yamaguchi, Y. Inagaki, K. Makise, and T. Kawae, Appl. Phys. Express **15**, 013002 (2022) および
- 6) K. Miyakawa, H. Takata, R. Kata, and T. Kawae, JPS Conference Proceedings (印刷中)