

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 27 日現在

機関番号：11501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13659

研究課題名(和文) テラヘルツ波フォトンによる高温超伝導体の電子対破壊現象と77K動作検出器への応用

研究課題名(英文) Application of electron pair breaking by photon for terahertz wave detection

研究代表者

中島 健介 (NAKAJIMA, Kensuke)

山形大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：70198084

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：ビスマス系高温超伝導体(Bi-HTS)薄膜は超伝導転移温度直下で特異な高周波応答を示す。本研究では、77K動作テラヘルツ波ボロメーターへの応用を目的に、応答メカニズムの解明と、デバイスに必要な膜厚数ナノメートルの高品質Bi-HTS薄膜を作製に取り組んだ。有機金属分解法によるBi-HTSのエピタキシャル成長に使用する誘電体基板としてテラヘルツ波の透過性に優れ、損失の少ないネオジウムガレート(NGO)を選定した。NGOの構成元素であるGaがBi-HTS薄膜に拡散し超伝導性が失われてしまう問題をバッファー層の導入によって解決し、75Kで超伝導転移する膜厚10nmのBi-HTS薄膜の作製に成功した。

研究成果の概要(英文)：Bismuth Cuprate High-Tc superconductors (Bi-HTS) reveal a peculiar RF response just below the superconducting transition temperature. In this research, we studied response mechanism and developing high quality nm-thick Bi-HTS thin films required for bolometer aiming at applying this to terahertz sensitive bolometers operating at 77K. We choose Neodymium Gallate (NGO: NdGaO3) as favorable substrates for epitaxial growth by Metal Organic Decomposition (MOD) method with low dielectric loss and good transparency in the terahertz wave range. At the first we encountered a serious problem that Ga ion diffused in Bi-HTS and totally inhibited its superconductivity. By using the non-superconducting Bi-HTS film as a self-buffer layer to overcome the problem, we succeeded to have epitaxially grown quality 10nm-thick Bi-HTS thin films exhibiting superconducting transition at 75K.

研究分野：超伝導エレクトロニクス

キーワード：テラヘルツ波 超伝導 検出器

1. 研究開始当初の背景

おおよそ周波数 100GHz~10THz、波長 3mm~30μm の範囲の電磁波であるテラヘルツ波は、ラジオ通信波長帯の上限であるマイクロ波（電波）と赤外線から可視光、紫外線に至る（光波）の境界にあり、【透過性】、【物質識別性】、【被爆安全性】といった特長をもつことから危険物や製品の透過検査といったセキュリティ、農業・工業製品検査から医療診断や創薬など幅広い分野での応用が期待されている。しかし、図1に示すようにテラヘルツ波应用到に必要な検出デバイスは開発が難しく、赤外線や可視光検出器に比べると検出能が極めて低い。これは、テラヘルツ波の光子エネルギーに相当するボルツマン温度 $T_B (=hv/k_B)$ が室温よりも低く

(1THz で $T_B=48\text{ K}$) 熱擾乱に弱いことが根本的な要因であり、可視光と同程度の検出能を持つ検出器は高価で取扱いが難しい液体ヘリウムによる冷却が避けられず、現在開発が進んでいるテラヘルツ波撮像素子として開発が進んでいる VOx などのボロメーターアレイの検出能も可視光撮像素子には到底及ばないなかで、冷却の容易な液体窒素の沸点(77K)で動作可能でテラヘルツ波に高い感度を有する撮像用検出デバイスの開発が喫緊の課題となっていた。

研究代表者らは、超伝導転移温度が約 90K のビスマス系高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi-HTS) の薄膜がその T_C 直下で示す特異な高周波応答がテラヘルツ光子による電子対破壊と準粒子励起に由来する可能性に着目し、77 K で動作する高速・高感度なテラヘルツ波検出用ボロメーターへ応用することを提案した。高感度な Bi-HTS ボロメーターを実現するためには膜厚が極めて薄く結晶性と超伝導特性に優れた薄膜をテラヘルツ波損失の少ない誘電体基板上に成膜する必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、77K 動作 Bi-HTS テラヘルツ波ボロメーターの実現を目指して、その基盤となる高品質超薄膜を成膜するための要素技術を開発し、テラヘルツ波アンテナを集積したボロメーターを試作・評価することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) MOD 法による Bi-2212 薄膜の作製
 先行研究により、SrTiO₃ (STO) 100 基板への有機金属分解 (MOD, Metal Organic Decomposition) 法による報告はあったが、STO のテラヘルツ波損失については不明であった。そこで本研究では、まず STO 100 を基板に用いて MOD 法による高品質 Bi-2212 超薄膜を成膜するとともに、フェムト秒レーザーを用いた時間領域テラヘルツ分光法を用いてテラヘルツ波特性に優れた基板の探索を合わせて行う。

(2)アンテナ集積型薄膜ボロメーターの試作
 MOD 法により製作した Bi-HTS 薄膜を用いて、これまでに粒界ジョセフソン接合型テラヘルツ波検出器で実績のある平面型対数周期型アンテナを集積したボロメーターを試作し応答特性を確認する。

4. 研究成果

(1)MOD 法による nm 厚-Bi-HTS 薄膜の作製
 MOD 法による Bi-HTS 薄膜の成膜プロセスを図 2 に示す。MOD 法に使用する有機金属 (MO) 溶液には (株) 高純度化学研究所製の BSCCO006 を原液のまま使用した。MO 溶液をスピコーティング、乾燥、仮焼した 2 枚の基板をコート面同士が対向するように水平に置きマッフル炉で焼成することで Bi-2212 をエピタキシャル成長させた。なお、本プロセス一回で得られる膜厚は約 10nm であった。また、所定の膜厚はこれを単位とし

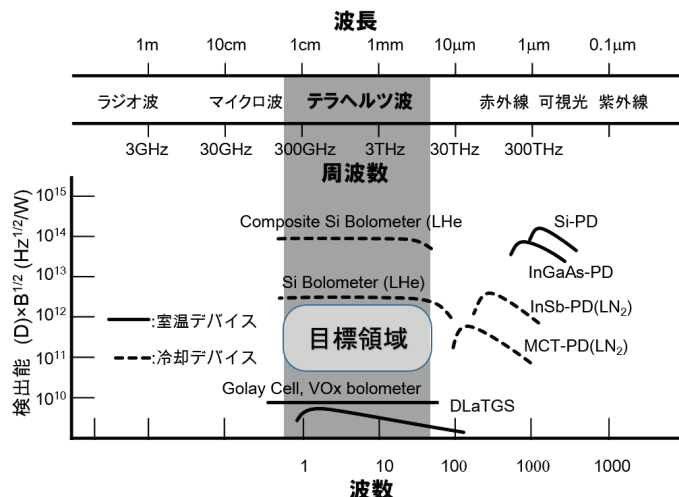


図1 様々な直接型電磁波検出器の検出能周波数（波長／波数）依存性

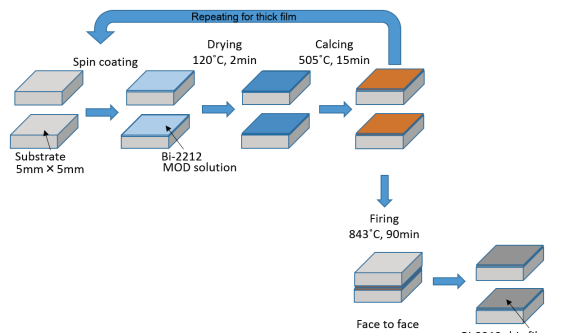


図2 MOD法によるBi-HTS超薄膜の作製プロセス

て仮焼までの工程を複数回繰り返すことで得ることができた。

STO 100 基板上に MOD 法で成膜した Bi-2212 薄膜は、XRD 測定の結果から c 軸配向した良好な結晶性を持ち図 3 に示すように as-grown の状態で約 80K の T_c を示した。しかし、時間領域テラヘルツ分光の結果、STO は 1THz 以上の周波数領域まで大きな誘電損失を示し、テラヘルツ波を透過しないことが明らかとなった。そこで、テラヘルツ波領域の特性が良好で Bi-2212 とのエピタキシャル整合性に適した誘電体基板として NdGaO₃ (NGO) 001 を選定した。NGO は、斜方晶 ($a=0.543\text{nm}$, $b=0.550\text{nm}$, $c=0.770\text{nm}$) でテラヘルツ波の損失が少なくその 001 面は Bi-2212 の ab 面 ($a=0.539\text{nm}$, $b=0.540\text{nm}$) と良好な結晶整合性が期待される。STO(100)基板と同様な条件で NGO 上に MOD 法で成膜した Bi-2212 は図 4 の XRD パターンから分かるように STO(100)基板の場合と同様に c 軸配向した良好な結晶性を示した。しかし、その抵抗-温度 (R - T) 特性は、図 5 のように超伝導転移を示さず低温まで大きな電気抵抗値を示す結果となった。この原因を探るため、NGO 基板への YB₂Cu₃O_{7- δ} 成膜に関する先行研究の調査と EPMA 分析による膜中組成分析を行った。その結果、Bi-2212 薄膜の高抵抗化が NGO 基板から膜中へ微量の Ga イオンが拡散したためであることを明らかにした。Ga イオンの拡散を抑制する方法として本研究では超伝導性が失われた Bi-2212 薄膜自体と NGO と Bi-2212 の双方に対して結晶整合性

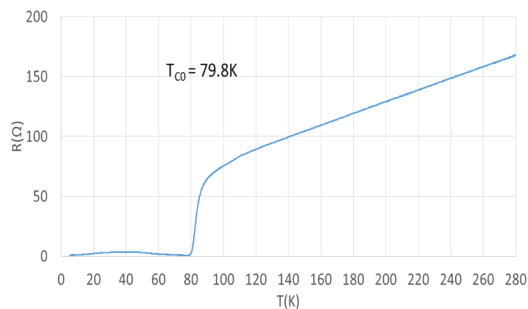


図3 STO(100)基板上に成膜したMOD-Bi-2212薄膜のR-T特性

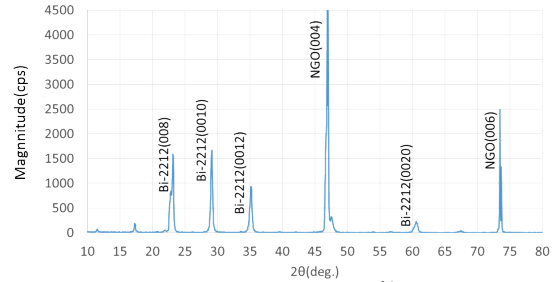


図4 NGO(001)基板上に成膜したMOD-Bi-2212薄膜のXRDパターン(CuK α)

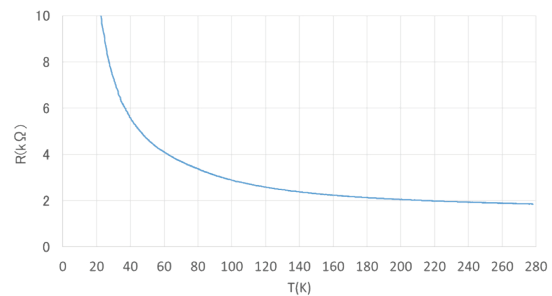


図5 STO(100)基板上に成膜したMOD-Bi-2212薄膜のR-T特性

が良い CeO₂ をスパッタ法でバッファ層として予め成膜した NGO 001 基板を用いて MOD 法による超伝導 Bi-2212 薄膜の成膜を試みた。その結果、Bi-2212 薄膜自体をバッファ層とした基板を用いることで図 6 のように約 75K で超伝導転移する Bi-2212 薄膜を得た。

超伝導転移温度が低い値に止まっている原因としては、EPMA 検出限界以下の極微量の Ga イオンの存在と STO 100 基板の場合にも見られる酸素欠損の影響が考えられる。超伝導特性のさらなる向上には、CeO₂ バッファ層を用いた成膜条件の確立と酸素雰囲気でのポストアニールによるキャリアドープ量の最適化が求められる。

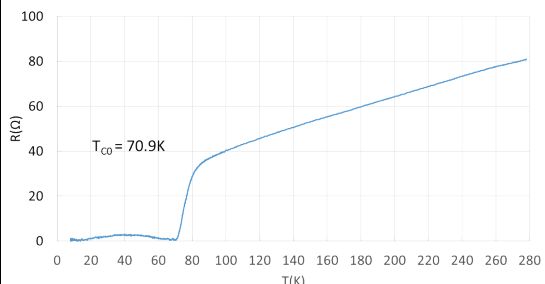


図6 STO(100)基板上に成膜したMOD-Bi-2212薄膜のR-T特性

(2) 薄膜マイクロボロメーターの試作

＝バッファー層による微細超伝導パターンニング＝作製した Bi-HTS 超薄膜を用いて図 7 のような形状の周波数帯域が 24.8GHz–3.18THz となるように設計した平面对数周期型アンテナを集積したボロメーター素子を試作した。極薄の Bi-HTS 超伝導薄膜のパターンニングには、予めバッファー層を必要な微細パターンにパターンニングしておき、その上に MOD 法で Bi-HTS 薄膜を成膜するテンプレートリソグラフィ法を考案し、最後にリフト法により金薄膜をアンテナの形状にパターンニングすることで Bi-HTS 劣化を防いだ。研究期間内に超伝導転移の確認できる素子の完成には至らなかったが、テンプレートリソグラフィ並びにアンテナパターンのリフトオフプロセスで Bi-HTS 薄膜が劣化しないことは確認できていることから、超伝導パターンとアンテナ給電点ギャップとのアライニングミスが超伝導特性の得られなかった主たる原因と考えられる。

以上のように本研究では、テラヘルツ波ボロメーター材料として期待される品質の良い Bi-HTS 超薄膜をテラヘルツ波特性の優れた NGO(001) 基板上に成膜するとともに、バッファー層を用いたテンプレートリソグラフィ法を考案した。これらの基盤技術によって今後高感度 Bi-HTS テラヘルツ波ボロメーターの実現につながると期待される。

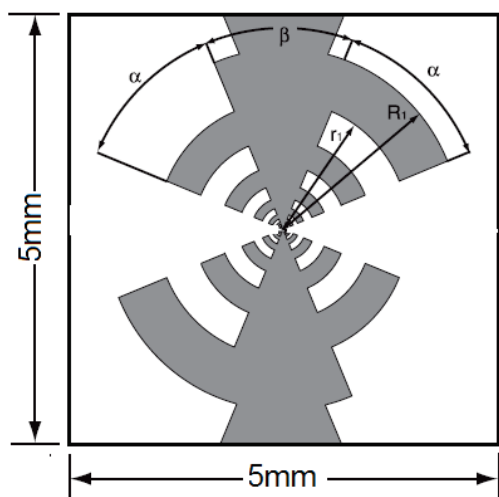


図 7 アンテナ集積型 Bi-HTS ボロメーター

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

1. A. Saito, T. Saito, S. Kodama, K. Nakajima, S. Ohshima, Trimming Mechanism of External Quality Factor in HTS Bandpass Filter Using Bulk Resonators, IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol. 28, No. 4, p.1500205(4), 2018.
2. Teppei Uchida, W. Kimura, K. Nakajima, T. Tachiki, and Takashi Uchida, Effect of RF Isolation of Intrinsic Josephson Junctions Made of Solid Bi-2212 Film for Terahertz Radiation, IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol. 28, No. 4, p.1800304(4), 2018.

[学会発表] (計 2 件)

1. 倉科大輔, 三上直紀, 中島健介, 齊藤 敦, Spiral-MKIDs を用いた 2 次元テラヘルツ波イメージング, 2017 年第 78 回応用物理学学会秋季学術講演会, 6p-S43-15, 2017.
2. K. Suzuki, Y. Shiozaki, T. Uchiyama, H. Yamada, K. Nakajima, Fabrication of nanometer thick Bi-2212 thin films for Bolometric THz wave detector, 14th International Workshop of High-Temperature Superconductors in High Frequency Field, (HTSHFF 2018) June 5-8, 2018 Yamagata, Japan.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中島健介 (NAKAJIMA, Kensuke)
山形大学大学院・理工学研究科・教授
研究者番号：70198084

(2) 研究分担者

山田博信 (YAMADA, Hironobu)
山形大学大学院・理工学研究科・助教
研究者番号：50400411