

平成 30 年 6 月 30 日現在

機関番号：13102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14251

研究課題名(和文)トポタクティック導波路構造体を備えた高温超伝導モノリシック電圧標準素子の開発

研究課題名(英文)Development of high temperature superconducting monolithic voltage standard with topotactic waveguide structure

研究代表者

加藤 孝弘 (Takahiro, Kato)

長岡技術科学大学・工学研究科・助教

研究者番号：10432098

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、申請者が見出したBi-2212単結晶を極低濃度塩酸に浸漬させることで生じるトポタクティックBiOCl誘電体層を導波路とした、サブミリ波源・量子化定電圧発生器を一体化した高温超伝導モノリシック電圧標準素子開発を目指した。当該研究を通して、Bi-2212単結晶内に発振・検出素子を一体化させる素子作製プロセスを開発した。電磁波検出実験では、シャピロステップライクな応答を検出素子に見出すことに成功した。また、これまで報告のなかったBiOCl結晶のテラヘルツ帯誘電特性を調べ屈折率の実部が3程度であることを明らかにした。今後、検出した電圧ステップの起源を明らかにし電圧標準素子へと繋げたい。

研究成果の概要(英文)：In this research, we attempted to develop a monolithic voltage standard device integrated sub-millimeter source / quantized constant voltage generator which were coupled by topotactic BiOCl dielectric layer formed by immersing Bi-2212 single crystal in very low concentration hydrochloric acid solution. In this study, we developed an device fabrication process that integrates oscillator and detector in Bi-2212 single crystal. In the electromagnetic wave detection experiment, we succeeded in observing Shapiro step-like responses in the detector. We also examined the terahertz band dielectric properties of BiOCl crystals and clarified the real part of the refractive index is about 3. In the future, We would like to clarify the origin of the detected voltage steps and develop it as the voltage standard.

研究分野：超伝導エレクトロニクス

キーワード：電圧標準器 超伝導

### 1. 研究開始当初の背景

本研究を開始するに当たり固有ジョセフソン接合からの電磁波放射特性を Si ボロメータで調べ、素子に 5~10 mA の電流バイアスを加えることで約 300 GHz の電磁波が発生していることを明らかにしてきた。一方で、この周波数領域の電磁波発生技術は成熟されており固有ジョセフソン接合を利用することなく、高強度かつ安定な放射源を用意することが可能である。このため、高周波応用の観点から固有ジョセフソン接合の研究を考えた場合、さらなる高周波化、すなわち量子カスケードレーザーや共鳴トンネルダイオードにとって苦手とする 1~3 THz 帯で高強度かつ安定な発振器を目指した研究が多くの機関で行われている。本研究では上述の方向性とは異なり、すでに再現性良く作製できる 300 GHz 程度のサブミリ波源を積極的に利用し、77 K で動作する高温超伝導モノリシック電圧標準素子の開発を着想した。

### 2. 研究の目的

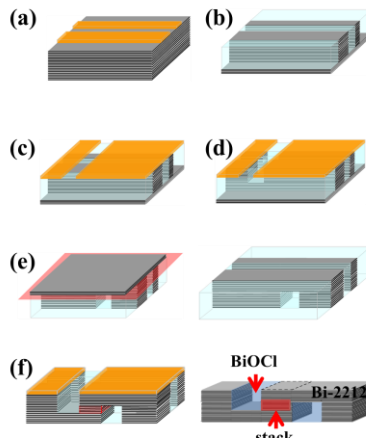
本研究課題では、申請者が見出した Bi-2212 単結晶を極低濃度塩酸に浸漬させることで生じるトポタクティク BiOCl 誘電体層を導波路とした、サブミリ波源・量子化定電圧発生器を一体化した高温超伝導モノリシック電圧標準素子開発を提案・実践する。本課題を通じて、オンチップ下では初となる 77 K でのシャピロステップの観測を行い、経時変化がなく取り扱いが容易な国家一次標準相当の量子電圧標準器への展開を目指した。

### 3. 研究の方法

上述の通り研究代表者これまで 1 mm 角の Bi-2212 単結晶上にメサ構造として形成された固有ジョセフソン接合からの電磁波放射特性を Si ボロメータで調べ、素子に 5~10 mA の電流バイアスを加えることで約 300 GHz の電磁波が発生していることを明らかにしてきた。本研究では、この発振素子と同一単結晶内に導波路構造を介して電磁波検出用の固有ジョセフソン素子を形成しシャピロステップの観測を行う。

### 4. 研究成果

導波路構造を介した発振・検出素子作製のために塩酸改質による両面加工プロセスを開発した。図 1 に素子作製プロセスの概略および素子観察写真を示す。導波路となるのは塩酸改質によって得られる BiOCl 結晶であり、Bi-2212 単結晶とは結晶的にエピタキシャル関係を満たしている。



- A) 1mm<sup>2</sup>程度の単結晶片を石英基板にNOA61を用いてマウント。
- B) 単結晶表面を真空脱離後、コンタクト用 Au を室温真空蒸着。装置から取り出した後に下部電極フォトリソパターンを形成。
- C) 20℃、pH=1.65の極低濃度塩酸に浸漬させ約10μmの透明な絶縁層を形成。続けて、接合アレイ作製用に同様のプロセスにて9.5μmのBiOClの溝構造を作製。
- D) 導波路用の導体(Au薄膜)を室温真空蒸着。
- E) 結晶片を上下反転させ石英基板にNOA61を用いてマウント。
- F) 真空脱離した結晶表面にコンタクト用 Au 膜を室温真空蒸着。
- G) 上部電極用フォトリソパターンを形成。20℃、pH=1.65の極低濃度塩酸に浸漬させ、表面と裏面の改質層が一対し透明になった後、1分で塩酸への浸漬を停止。固有接合アレイと導波路用の誘電体 BiOCl 層を同時形成する。
- H) 導波路用の導体(Au 薄膜)を室温真空蒸着によって0.5~1μm 成膜シドライプロセスによるエッチング加工。

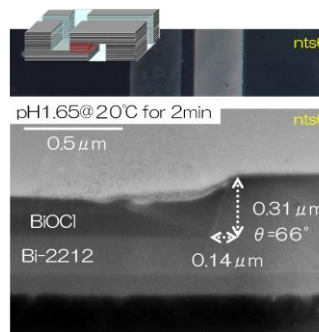


図 1 塩酸プロセスによる素子作製プロセスの概略および作製した素子の観察写真

図 2 に開発した作製プロセスによって得られた素子の電流電圧特性ならびに電磁波検出の結果を示す。検出素子の臨界電流は特定の電流バイアス範囲でのみ抑制を示すと同時に、電流電圧特性上にはシャピロステップライクな定電圧ステップを観測した。ただし、このような定電圧ステップが観測できたのは測定環境が液体の冷媒中(窒素あるいは減圧窒素)のみ場合であり、

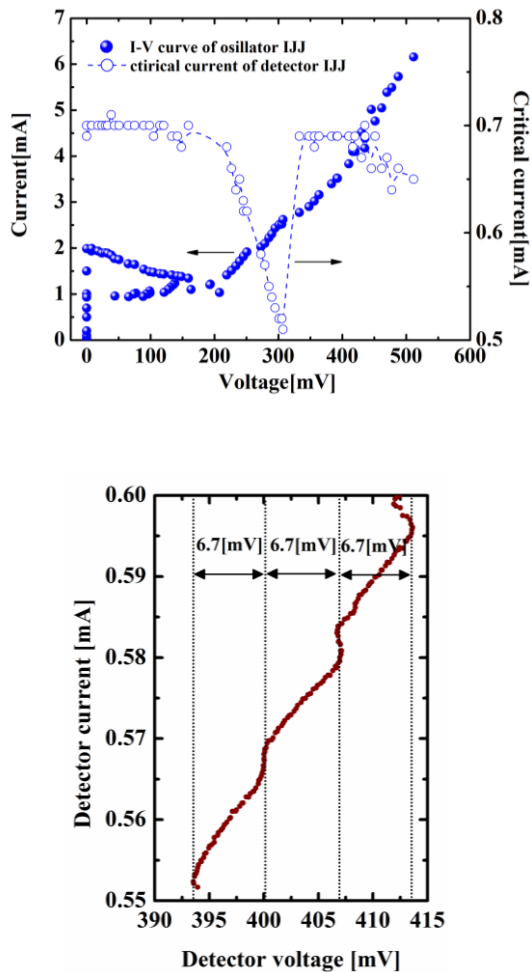


図2 モノリシック固有ジョセフソンデバイスを用いた THz 波検出実験の結果. (a)縦軸は検出用素子のゼロ電圧電流. 横軸は発振用素子へ印加した直流電圧. (b) 検出素子の電流電圧特性

ガス中冷却の場合には一切観測することができなかった。この理由は、素子の熱的な問題だと推察されるが原因を特性するには至らなかった。

本研究ではは導波路構造のパラメータを最適化するためにこれまで報告例のなかったテラヘルツ帯における BiOCl 結晶の光学特性をテラヘルツ時間領域分光測定によって併せて調べた。

評価対象である BiOCl は以下の方法で得た。Traveling Solvent Floating Zone (TSFZ) 法によって  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  結晶を育成し、これを 20°C に保持した pH 1.65 の希塩酸溶液に 3 時間から 5 時間程度浸漬させることで BiOCl 試料を厚さ 15~40  $\mu\text{m}$  のフリースタANDING 結晶として用意した。フェムト秒レーザーを用いて光伝導アンテナから発生させたテラヘルツ波パルスを試料の正面へ入射させ、透過波の電界を時間領域で電気光学センサーによって検出した。厚さ 26  $\mu\text{m}$  の試料に対するテラヘルツ入射波と透過波

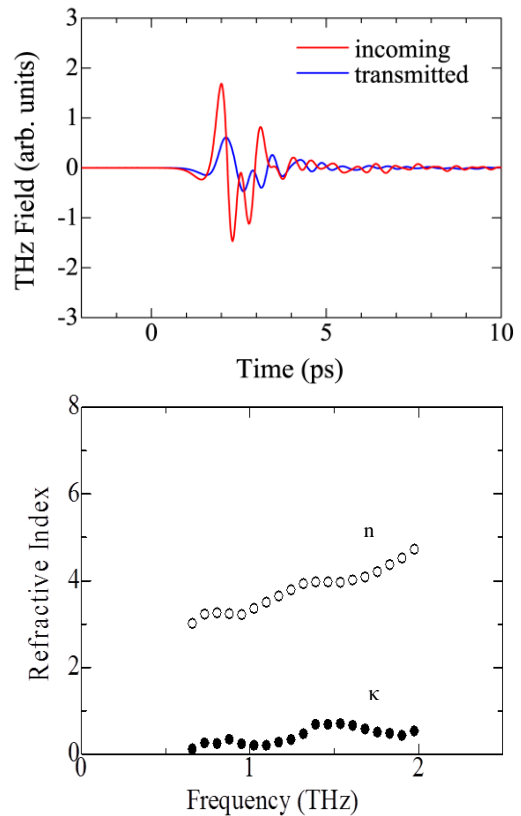


図3 BiOCl 結晶のテラヘルツ透過波形および算出した複素屈折率の周波数依存性

の時間波形を図 3 に示す。入射波と比較して透過波には位相シフトと振幅減少が明確に現れ、約 0.5~2.0 THz の範囲で BiOCl 結晶の複素屈折率スペクトルを算出することができた。その結果、1.0 THz における屈折率の実部は 3.3 程度であることを明らかにした。

#### 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 1 件)

1. Y. Yamada, T. Kato, T. Ishibashi, T. Okamoto, and N. Mori, "Preparation of (11n) oriented  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  thin films without c-axis twin structure by the metal-organic decomposition method using vicinal  $\text{SrTiO}_3$  (110) substrates", AIP Advances, 8, 015101-1-015101-10, (2018) 査読有

[学会発表] (計 4 件)

1. 加藤 孝弘、川上 彰、"塩酸改質プロセスパラメータが Bi-2212 固有接合テラヘルツ放射素子の特性に与える影響"、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会

2. 小野 佑太、加藤 孝弘、内富 直隆、石橋 隆幸、川上 彰、“両面加工法で作製した Bi 系固有接合スタックの自己発熱効果Ⅱ” 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会
3. 加藤 孝弘、イッファ ファーハナ、鶴沼 毅也、八巻 和宏、入江 晃亘、“BiOCl 結晶におけるテラヘルツ領域の複素屈折率の評価”、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会
4. 山田 容士、西尾 優樹、荒川 幸治、船木 修平、加藤 孝弘、“テラヘルツ波発振用の単結晶  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  のフラックス成長”、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会

[その他]

特になし

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

加藤 孝弘 (Takahiro Kato)

長岡技術科学大学 工学研究科・助教

研究者番号:10432098