

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：10106

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2022

課題番号：18K04255

研究課題名（和文）超伝導単一光子検出器の20K動作

研究課題名（英文）Fabrication of superconducting single photon detector at 20K

研究代表者

柴田 浩行 (Shibata, Hiroyuki)

北見工業大学・工学部・教授

研究者番号：60393732

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：二ホウ化マグネシウム（MgB<sub>2</sub>）、または銅酸化物超伝導体など高いT<sub>c</sub>を有する物質を用いることにより、20Kで動作する超伝導ナノ細線単一光子検出器（SSPD、SNSPD）の実現を目指した。MBE成膜条件最適化によるMgB<sub>2</sub>極薄膜のT<sub>c</sub>向上、および電子線描画またはHeイオン顕微鏡を用いたナノ微細加工によって動作温度向上を目指したが、動作温度は最高11Kであった。T<sub>c</sub>=42Kを示す銅酸化物超伝導体La<sub>1.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>CuO<sub>4</sub>極薄膜を用いたSSPDは、30Kにおいて光検出可能だが単一光子検出感度は得られなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導ナノ細線単一光子検出器（SSPD、SNSPD）は、高性能な単一光子検出器として量子暗号通信など様々な先進分野で利用されているが、動作温度が3K以下のため冷却負荷が大きい欠点を持つ。20Kで動作可能なSSPDが実現すれば大幅な利用の拡大が可能となり、社会的意義は高い。冷却負荷削減のため、高いT<sub>c</sub>を有する超伝導体として、T<sub>c</sub>=39KのMgB<sub>2</sub>、および格子歪によりT<sub>c</sub>が42Kに向上したLa<sub>1.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>CuO<sub>4</sub>薄膜を用いたSSPDの開発を進めた。

研究成果の概要（英文）：We tried to realize superconducting nanowire single-photon detectors (SSPD, SNSPD) operating at 20K by using materials with high T<sub>c</sub> such as magnesium diboride (MgB<sub>2</sub>) or cuprate superconductors. We improved the T<sub>c</sub> of MgB<sub>2</sub> ultra-thin films by optimizing the MBE deposition conditions, and fabricated the device using electron beam lithography or He ion microscopy, but the maximum operating temperature was 11K. A SSPD fabricated using a copper oxide superconductor La<sub>1.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>CuO<sub>4</sub> ultrathin film with T<sub>c</sub>=42K detected photons at the operating temperature of 30K, but single-photon detection sensitivity was not obtained.

研究分野：超伝導エレクトロニクス、電子工学

キーワード：単一光子検出器 二ホウ化マグネシウム 銅酸化物超伝導体 SSPD SNSPD Heイオン顕微鏡

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

超伝導ナノ細線を用いた単一光子検出器 (SSPD, SNSPD) は、近年、飛躍的な性能向上を果たし、量子暗号通信など様々な先進分野で利用されている。通常、SSPD は超伝導転移温度 ( $T_c$ ) が 16K の窒化ニオブ (NbN)、または高性能が得られる  $T_c=5K$  のタングステンシリサイド (WSi) が用いられており、動作温度は 3K 以下であるため冷却負荷が大きい。冷却負荷を低減出来れば、大幅な利用の拡大が期待できる。冷却負荷削減のために、従来の GM 冷凍機を置き換える新しい小型・軽量冷却装置の開発や、既存の NbN-SSPD や WSi-SSPD の動作温度向上の研究が報告されている。一方、根本的な解決策として  $T_c$  の高い超伝導体を用いた SSPD 開発も進められている[1]。

申請者は以前、 $T_c=39K$  の二ホウ化マグネシウム ( $MgB_2$ ) を用いた SSPD を初めて実現した。さらに細線サイズを厚さ 10nm、幅 76nm に削減した  $T_c=20K$  の  $MgB_2$ -SSPD を用いて動作温度 11K を実証しており、これは研究開始当初における SSPD の最高動作温度であった[2]。

### 2. 研究の目的

本研究では、20K を越える動作温度を有する SSPD の実現を目的とした。新材料として、第一に以前より申請者が作製している  $MgB_2$  に注目し、極薄膜の  $T_c$  向上、および更なる微細化を進めることによる動作温度向上を目指した。第二の材料として高い  $T_c$  を有する様々な銅酸化物超伝導体の中で、申請者が作製済みの膜厚 5nm で  $T_c=42K$  を示す  $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$  極薄膜に着目し、これを用いて 20K 動作可能な SSPD の実現を目指した。

### 3. 研究の方法

本研究課題では SSPD の 20K 動作に向けて、 $MgB_2$  極薄膜成長、 $MgB_2$  微細加工、 $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$  微細加工について研究を遂行した。

#### (1) $MgB_2$ 極薄膜成長

申請者の所属機関に新たに移設した分子線エピタキシー (MBE) 装置を立ち上げて  $MgB_2$  薄膜を成長した。以前とほぼ同じ超伝導特性を有する  $MgB_2$  極薄膜の成長条件を確立した。次に、 $MgB_2$  極薄膜の保護膜として窒化アルミニウム (AlN)、酸化マグネシウム (MgO)、酸化アルミニウム ( $AlO_x$ )、二酸化ケイ素 ( $SiO_2$ ) 薄膜を in-situ で成長した。MBE 成膜条件、保護膜およびラピッドアニール処理条件の最適化を進め、極薄膜の  $T_c$  向上を試みた。

#### (2) $MgB_2$ 微細加工

申請者の所属機関に新たに移設したフォトリソグラフィ用装置を立ち上げてミクロンサイズの加工を進め、劣化の少ない加工条件を確立した。次に、北大ナノテクノロジー推進室所有の電子線描画装置および Ar イオンミリング装置を利用して、従来型のナノ微細加工を進めた。更に、大阪大学ナノテクノロジー設備供用拠点の He イオン顕微鏡を利用して、最近、注目されている He イオン照射による新しいナノ微細加工[3]を進めた。

#### (3) $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$ 微細加工

申請者の所属機関に移設したフォトリソグラフィ用装置を用いて作製済み  $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$  極薄膜のミクロンサイズの加工を進め、劣化の少ない加工条件を確立した。ミクロン加工済みの試料に対して、外部機関の装置を利用してナノ微細加工を進めた。

### 4. 研究成果

前節の項目分けに沿って、得られた成果について述べる。

#### (1) $MgB_2$ 極薄膜成長

MBE 装置を用いてサファイア c 面基板上に Mg および B を電子ビーム加熱で共蒸着することにより  $MgB_2$  極薄膜を成長した。基板温度、蒸着レートなどの最適化により膜厚 10nm で  $T_c=20K$  程度の  $MgB_2$  極薄膜が再現性良く作製可能となった。 $MgB_2$  薄膜は、表面数 nm の Mg が酸化していることが知られており、酸化防止のため、in-situ で保護膜を成長した後、ラピッドアニール処理によって  $T_c$  の向上を試みた。保護膜として、酸化マグネシウム (MgO)、酸化アルミニウム ( $AlO_x$ )、二酸化ケイ素 ( $SiO_2$ ) 薄膜は電子ビーム蒸着、窒化アルミニウム (AlN) 薄膜は窒素ラジカル照射下における Al の K セル蒸着によって作製した。その結果、AlN 保護膜の場合に最も高い  $T_c$  向上が見られた。酸化物保護膜の場合、ラピッドアニールによって、保護膜中の酸素が界面の Mg を一部酸化するのに対して、AlN は反応しないためと考えられる。20K 動作には、 $T_c>30K$  の膜が必須なので膜厚を増加させる必要がある。基板温度 250°C で成長した厚さ 30nm の  $MgB_2$  薄膜に、AlN 保護膜を成膜後、600°C でラピッドアニールすることによって、 $T_c>32K$  の膜が得られた。

#### (2) $MgB_2$ 微細加工

フォトリソグラフィにより、10-20 ミクロン幅の細線に微細加工した。所有する Ar イオンエッチング装置では  $MgB_2$  のエッチングレートが低いため、硝酸によるウェットエッチングに切り替えた所、良好な特性を示す細線作製が可能となった。図 1 に作製した幅 10 $\mu$ m、長さ 100 $\mu$ m、厚さ 30nm の  $MgB_2$  細線の顕微鏡写真、抵抗率温度依存性および電流電圧 (I-V) 特性を示す。 $T_c=31K$  で大きなヒステリシスを有する良好な細線が得られた。

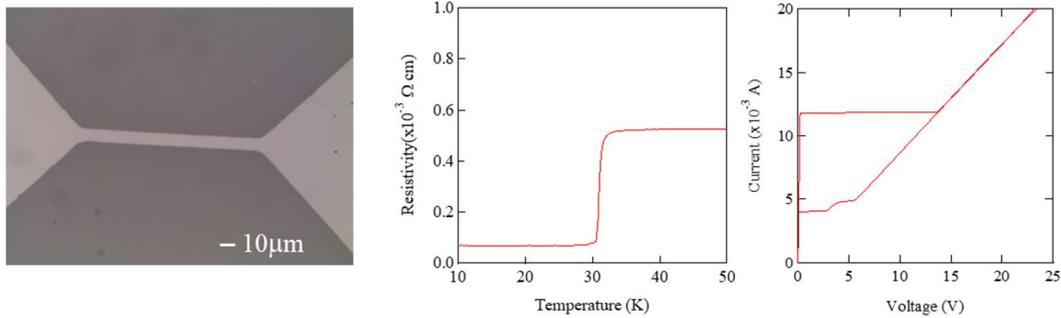


図1 MgB<sub>2</sub> マイクロ細線写真 (左)、2 端子抵抗率温度依存性 (中)、および I-V 特性 (右)

電子線描画および Ar イオンミリング加工によって、作製した MgB<sub>2</sub> マイクロ細線のナノ微細加工を行った。図 2 に作製したデバイスの SEM 像を示す。線幅 50nm、線間隔 110nm のメアンダ細線が得られ、以前の線幅 76nm より約 3 割の削減が可能となった。一方、光特性評価の結果、良好な単一光子特性は得られなかった。

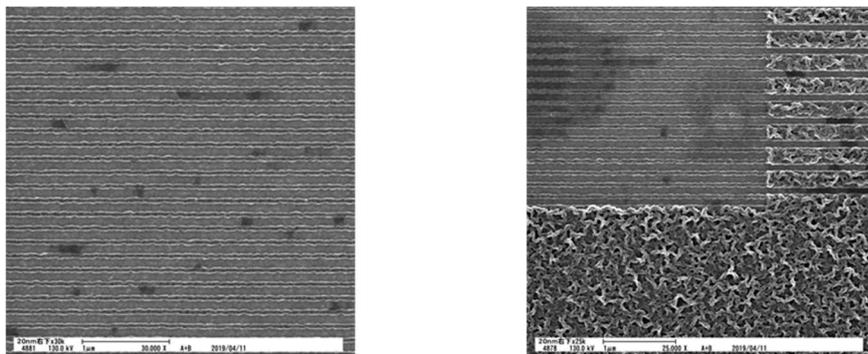


図2 MgB<sub>2</sub> メアンダ細線 (線幅 50nm、線間隔 110nm) SEM 像

電子線描画の代わりに、近年注目されている He イオン顕微鏡を用いたナノ微細加工を試みた。約 1nm 径に集光した He イオンビームを照射してダメージを与えることで MgB<sub>2</sub> 膜を局部的に非超伝導化することで薄膜を削ること無しに nm サイズの微細構造を作製する。図 3 に He イオン Dose 量を変化させた時の線幅 50nm、線間隔 50nm の 5 μm 角メアンダ細線の光学顕微鏡像を示す。Dose 量 5-10 × 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup> において微細構造が明確に観測できる。一方、再現性のある良好な超伝導特性を得ることは出来なかった。

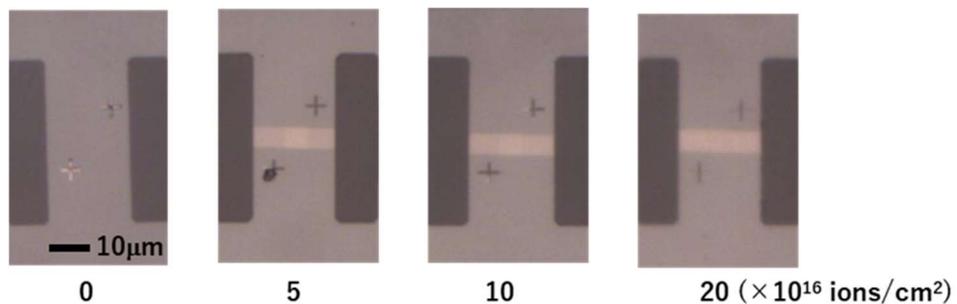


図3 He イオン顕微鏡で描画した MgB<sub>2</sub> メアンダ細線の Dose 量による変化

### (3) La<sub>1.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>CuO<sub>4</sub> 微細加工

フォトリソグラフィおよびウェットエッチングにより、厚さ 5nm の La<sub>1.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>CuO<sub>4</sub> 薄膜を 20 ミクロン幅の細線に微細加工した。図 4 に作製した幅 20 μm、長さ 200 μm、厚さ 5nm の La<sub>1.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>CuO<sub>4</sub> 細線の顕微鏡写真、抵抗率温度依存性および I-V 特性を示す。T<sub>c</sub>=38K で大きなヒステリシスを有する、劣化の少ない良好な細線が得られた。

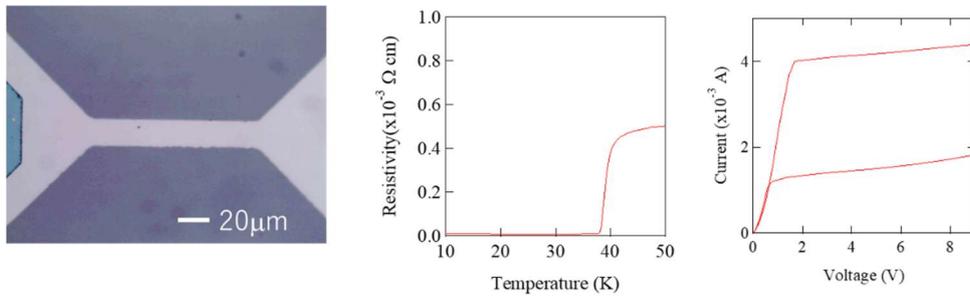


図4  $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$  マイクロ細線写真(左)、抵抗率温度依存性(中)、および I-V 特性(右)

フォトリソ加工後の試料について He イオン顕微鏡を用いたナノ微細加工を試みた。図 5 に He イオン描画した線幅 80nm、線間隔 160nm の 10 $\mu\text{m}$  角メアンダ細線の HIM 像を示す。明確な微細構造が観測できたが、再現性のある良好な超伝導特性を得ることは出来なかった。一方、電子線描画と Ar イオンミリングにより作製した線幅 100nm、長さ 10 $\mu\text{m}$  の単一細線は、30K においても光応答を示したが単一光子検出には至らなかった。

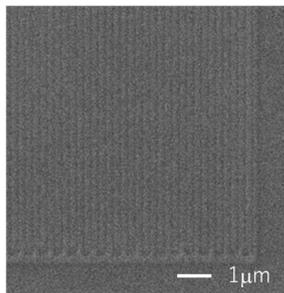


図5 He イオン顕微鏡で描画した  $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$  メアンダ細線の HIM 像

今後はナノ微細加工の更なる最適化によって 20K 動作可能な SSPD を実現する。

<引用文献>

- [1] I. E. Zadeh *et al.*, Appl. Phys. Lett. 118, 190502 (2021).
- [2] Shibata, Appl. Phys. Express. 7, 103101 (2014).
- [3] S. A. Cybart *et al.*, Nat. Nanotech. 10, 598 (2015).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 SHIBATA Hiroyuki	4. 巻 E104.C
2. 論文標題 Review of Superconducting Nanostrip Photon Detectors using Various Superconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 IEICE Transactions on Electronics	6. 最初と最後の頁 429 ~ 434
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1587/transele.2020SUI0001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ono Kyotaro, Hiraki Tatsuou, Tsuchizawa Tai, Yamada Koji, Matsuo Shinji, Sakai Daisuke, Shibata Hiroyuki	4. 巻 118060S
2. 論文標題 Si waveguide-integrated superconducting nanowire single photon detectors with arrayed waveguide grating	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 PROCEEDINGS OF SPIE	6. 最初と最後の頁 1 ~ 5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2595902	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nishikawa M., Sawai K., Sakai K., Kirigane N., Ohnishi K., Nakano W., Matsuo Y., Shibata H.	4. 巻 32
2. 論文標題 Fabrication of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors Using MoN	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity	6. 最初と最後の頁 1 ~ 4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TASC.2022.3144967	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計19件（うち招待講演 3件／うち国際学会 7件）

1. 発表者名 十鳥聡太、細井浩貴、松尾保孝、シェン・ペン、柴田浩行
2. 発表標題 超伝導マイクロストリップ光子検出器（SMSPD）の作製
3. 学会等名 第58回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 南瑛太、中野和佳子、シェン・ペン、柴田浩行
2. 発表標題 窒化ニオブを用いた超伝導ナノ細線トランジスタの作製
3. 学会等名 第58回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 K. Ono, T. Hiraki, T. Tsuchizawa, K. Yamada, S. Matsuo, D. Sakai, H. Shibata
2. 発表標題 Si waveguide-integrated superconducting nanowire single photon detectors with arrayed waveguide grating
3. 学会等名 SPIE Optics + Photonics 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Nishikawa, K. Sawai, K. Sakai, N. Kirigane, K. Ohnishi, W. Nakano, Y. Matsuo, H. Shibata
2. 発表標題 Fabrication of Superconducting Nanowire Single-Photon detectors using MoN
3. 学会等名 European Society for Applied Superconductivity (EUCAS2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西川真衣、沢井昂平、柴田浩行
2. 発表標題 FDTD法による超伝導ナノストリップ光子検出器における高い光吸収効率設計
3. 学会等名 電子情報通信学会超伝導エレクトロニクス研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西川真衣、沢井昂平、境健斗、大西広、中野和佳子、松尾保孝、柴田浩行
2. 発表標題 MoN超伝導単一光子検出器の作製および高光吸収効率設計
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 沢井昂平、西川真衣、大西広、中野和佳子、松尾保孝、柴田浩行
2. 発表標題 6チャンネル超伝導単一光子検出器の作製
3. 学会等名 第57回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Ono, T. Hiraki, T. Tsuchizawa, K. Yamada, S. Matsuo, D. Sakai, H. Shibata
2. 発表標題 Si waveguide-integrated SSPD with arrayed waveguide grating
3. 学会等名 33rd International Symposium on Superconductivity (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 黒川一生、沢井昂平、小野亨太郎、西川真衣、大西広、中野和佳子、酒井大輔、柴田浩行
2. 発表標題 窒化モリブデンを用いた超電導ナノ細線トランジスタの開発
3. 学会等名 第56回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Sakai, K. Ohnishi, W. Nakano, Y. Matsuo, D. Sakai, H. Shibata
2. 発表標題 Development of Superconducting Single-Photon Detector (SSPD) using molybdenum nitride thin film
3. 学会等名 32nd International Symposium on Superconductivity (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Ono, I. Kurokawa, K. Sakai, K. Ohnishi, W. Nakano, D. Sakai, H. Shibata
2. 発表標題 Improvement of detection efficiency by reducing shunt resistance of SSPDs
3. 学会等名 32nd International Symposium on Superconductivity (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小野亨太郎、法澤公寛、大西広、中野和佳子、内藤方夫、酒井大輔、柴田浩行
2. 発表標題 Heイオン顕微鏡を用いた二ホウ化マグネシウム薄膜の微細加工
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 柴田浩行
2. 発表標題 様々な超伝導材料を用いた光子検出素子の作製
3. 学会等名 電子情報通信学会2020年総合大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小野亨太郎、境健斗、大西広、中野和佳子、酒井大輔、柴田浩行
2. 発表標題 SSPDのシャント抵抗削減による検出効率向上
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小野亨太郎、境健斗、大西広、中野和佳子、酒井大輔、柴田浩行
2. 発表標題 シャント抵抗を削減したSSPDとマイクロブリッジの特性評価
3. 学会等名 第55回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 H. Shibata
2. 発表標題 Superconducting nanostrip photon detector using various materials
3. 学会等名 International Workshop on Superconducting Sensors and Detectors (IWSSD2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Sakai, H. Niii, D. Sakai, H. Shibata
2. 発表標題 Simple photon incidence method from the front side for Superconducting Single-Photon Detector (SSPD) using alignment mark
3. 学会等名 31st International Symposium on Superconductivity (ISS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小野亨太郎、境健斗、大西広、中野和佳子、酒井大輔、柴田浩行
2. 発表標題 ミクロンスケールのNbNブリッジによる単一光子検出の可能性
3. 学会等名 第54回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 境健斗、大西広、中野和佳子、酒井大輔、柴田浩行
2. 発表標題 アライメントマークを用いた超電導単一光子検出器の簡易アライメント法
3. 学会等名 第54回応用物理学会北海道支部学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関