

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 23 日現在

機関番号：82636

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560431

研究課題名(和文) 超伝導デバイス応用のための窒化物超伝導薄膜の最適化と物性制御

研究課題名(英文) Physical properties of optimization and control of nitride superconducting thin films for superconducting device applications

研究代表者

牧瀬 圭正 (Makise, Kazumasa)

独立行政法人情報通信研究機構・未来ICT研究所 ナノICT研究室・研究員

研究者番号：60363321

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円、(間接経費) 1,230,000円

研究成果の概要(和文)：高品質な窒化チタンニオブ(NbTiN)薄膜を様々な基板上に作製し、超伝導エレクトロニクス分野への応用に向けて、膜の最適化を行った。その結果、超伝導性は格子定数に依存することが分かった。次に窒化ニオブ(NbN)を用いて酸化マグネシウム基板上にNbN/AlN/NbNトンネル接合からなる単一量子磁束回路を作製し、動作実証に成功した。

研究成果の概要(英文)：In order to find the optimum condition for fabrication of high-quality NbTiN thin films, we investigated the relationship between superconducting properties and crystal structure for the NbTiN thin films deposited on various substrates under different depositing conditions. It is found that the superconducting properties of the films depend on the lattice constant. Next, we developed NbN-based SFQ circuits consisting of high-quality epitaxial NbN/AlN/NbN trilayer grown on MgO (100) substrate. We succeeded in demonstrating correct operations of all the designed SFQ cells.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：超伝導デバイス 超伝導薄膜 窒化物薄膜

1. 研究開始当初の背景

超伝導エレクトロニクス分野では、高感度磁気センサ、高感度サブミリ波検出器、超高速デジタル集積回路、電圧標準等の様々な応用で、Nb系ジョセフソン素子がこれまで使用されてきた。作製プロセスがすでに確立しており、酸化アルミをトンネル障壁として用いることで、優れた特性のジョセフソン素子が比較的容易に得られるためである。Nbの超伝導ギャップ周波数は750GHzであり、さらなる高周波応答、高速化を実現するには、より超伝導エネルギーギャップの大きい材料を使う必要がある。このようなことから、我々は臨界温度16Kを有する窒化ニオブ(NbN)に注目し、この材料をベースとしたジョセフソン素子の開発[1]、超伝導単一光子検出器(SSPD)用の高品質極薄膜の開発[2]に取り組んできた(右上図)。MgO基板上にエピタキシャル成長させることで、平滑性と高周波特性に優れたNbN薄膜が得られる一方、MgO以外の基板上では結晶粒界を多く含む膜となり、高周波損失が増大することが、これまでの研究でわかっている。そのため、実質的にMgO基板上でしかデバイス化できず、NbN薄膜を様々なデバイスに応用する上での足かせとなってきた。

2. 研究の目的

NbNやNbTiNについて、基礎物性に関する評価はNbN薄膜でようやく本格的に行われ始めているが、NbTiN膜に至ってはほとんど行われていない。それゆえ、評価の重要性は急激に高まっている。例えば、非エピタキシャル膜で増大するNbN薄膜の高周波損失が、なぜ同じ非エピタキシャル膜でもNbTiN膜だと改善するのか、その理由はよくわかっていない[3]。NbN、NbTiNを超伝導デバイス材料として活用していくためには、その基礎物性の理解は不可欠と考えられる。そこで我々はNbTiN薄膜に関していくつかの提言を行った[4]。物性評価をし、材料を最適化することは簡便なデュワーや冷凍機で容易に到達できる温度でデバイスを動作させることができ、デバイスの高速化への指針を与えることができる。また膜の低抵抗化は低損失に結びつき、熱雑音等を軽減できる。すなわち、基礎物性評価とデバイスの最適化は密接に結びついている。そこで本研究提案では、NbN、NbTiN薄膜の磁場・電気特性、高周波特性などの基礎物性を詳細に調べ、デバイス応用が必要となる材料パラメータを抽出し、物性制御することで、および実デバイスを作製することで窒化物超伝導体のポテンシャルを見極めることを目的とした。

3. 研究の方法

NbN、NbTiN薄膜はDCマグネトロンスパッタ法によって作成を行う。組成比およびスパッ

タ雰囲気中のアルゴンと窒素比等いくつかのパラメータの最適化が重要である。最適化のためには構造と組成評価さらに電気輸送特性の評価を並列に行う必要がある。

(1) 膜の結晶構造と組成分析、電気輸送特性の評価を行い、膜の結晶性と超伝導性および成膜プロセスの相関を明らかにし、NbN、NbTiN膜の最適化とその再現性について研究を行った。膜の結晶性についてはXRD、TEM、SEMによる観察し、組成はEDSやWDSによる分析した。超伝導性、電気輸送特性は抵抗の温度依存性の測定やホール係数測定を実施し、超伝導転移温度、臨界磁場、キャリア数等の物性パラメータを求めた。

(2) 実際にNbN、NbTiN膜を用いたデバイスとしてSIS接合を作成し評価を行った。まず良好なデバイスを作製するためにエッチング条件や絶縁層の被覆率の改善を目指した。デバイス評価は表面観察や電流電圧特性から得られるデバイスパラメータ(ギャップ電圧、quality factor、臨界電流)を評価した。

(3) 超伝導単一光子検出器(Superconducting Single Photon detector:SSPD)をアレー化することで、高速化および光子数識別が可能となるため、近年注目を集めている。そこで実デバイスの実現のため、SSPDアレーからの出力信号処理を目的とした、NbNを用いた単一量子磁束(Single Flux Quantum:SFQ)回路の開発を行った。

4. 研究成果

以下、研究方法にそって、得られた成果を示す。

図1にバイアス条件および分圧比を最適条件とし、熔融石英基板上をターゲットのエロージョン近傍と中心付近に配置して成膜した時のNbTiN薄膜の T_c 近傍における抵抗率の温度依存性を示す。エロージョン近傍で成膜した膜の20Kにおける抵抗率は約80 $\square\square$ cmで、中心付近で成膜した膜の100 $\square\square$ cmよりも小さい。 T_c は逆に中心付近で成膜した膜のほうが高いという結果となっている。この原因を明らかにするためXRD解析を行った結果を図2に示す。(111)ピーク強度に顕著な相違が見られ、電気特性の違いの一因として結晶構造の違いがあることがわかった。さらに、両者の膜に対してEDSによる組成分析を行った結果、エロージョン近傍の膜では中心のものよりTi濃度が2wt%ほど高いことが明らかとなった。以上の結果から、最適条件においても、スパッタエロージョンに対する基板位置により、NbTiN膜の結晶構造及び薄膜組成が異なり、電気的特性に影響を及ぼしていることがわかった。

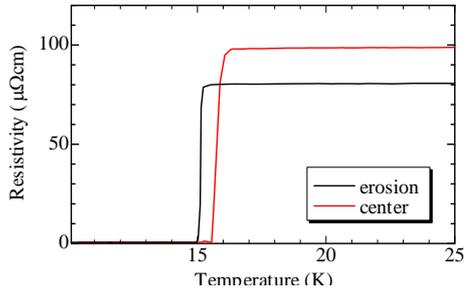


図 1 NbTiN 膜の抵抗の温度依存性

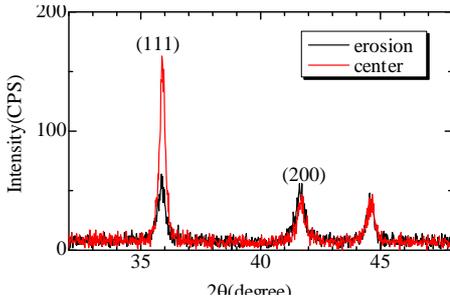


図 2 NbTiN 膜の XRD パターン

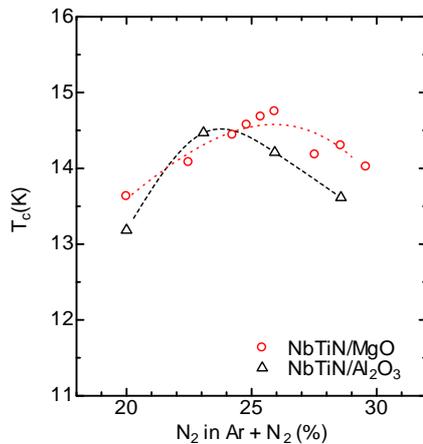


図 3 超伝導転移温度の窒素分圧依存性

図 3 に、MgO と Al_2O_3 基板上に成膜した NbTiN 薄膜の T_c とスパッタ時のガス分圧比の依存性を示す。MgO 基板上に成膜した NbTiN 薄膜の T_c のピークは、 Al_2O_3 基板上に成膜した場合より窒素分圧の高い方にシフトしていることが分かる。作成した薄膜の組成比は窒素分圧に依存していることから、超伝導転移温度 T_c のこの振る舞いは結晶性の違いに起因していると考えられる。

次に SSPD (Superconducting Single Photon detector: SSPD) アレーの信号処理回路として窒化ニオブ (NbN) を用いた単一量子磁束

Process	Material	Thickness (nm)	Circuit param
Base electrode	NbN	300	
AlN barrier	AlN	< 1nm	$J_c \sim 2.5 \text{ kA/cm}$
Counter	NbN	200	
	SiO_2	250	
Shunt resistor	Mo	100	$R_{sq} = 1.2 \Omega$
	SiO_2	100	
Wiring layer	NbN	400	$L_{sq} = 1.2 \text{ pH}$
	SiO_2	450	
Ground plane	NbN	500	

表 1 デバイス作製のためのプロセスと要求されるデバイスパラメータ

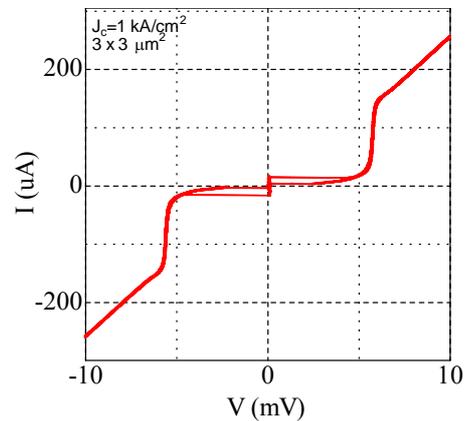


図 4 NbN トンネル接合の電流 電圧特性

(Single Flux Quantum: SFQ) 回路の開発を目指した。SSPD と SFQ 回路を同一な基板上で作製することで検出器と処理回路の集積化や信号処理回路からの熱流入の問題の解決等のいくつかの利点がある。そこで信号処理用 SFQ 回路設計に必要なとされるデバイスパラメータおよびジョセフソン接合アレーの I_c の均一性の評価を行った。NbN/AlN/NbN トンネル接合は反応性 DC スパッタ法により $20 \times 20 \times 0.4 \text{ mm}$ の MgO (100) 単結晶基板上に作製した。表 1 に回路作製プロセスと膜厚等を示す。今回は臨界電流 $J_c \sim 2.5 \text{ kA/cm}^2$ で回路設計を行った。

トンネル接合の臨界電流密度 J_c の設計値を 2.5 kA/cm^2 とし、SQUID、Fiske step、1024 接合アレーの電流-電圧 (I - V) 特性から、配線のシートインダクタンスや接合容量等の回路パラメータおよび接合の特性均一性の評価を行った。図 4 は $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ で $J_c \sim 1 \text{ kA/cm}^2$ の単一接合の I - V 特性である。その結果、ギャップ電圧 $V_g = 5.7 \text{ mV}$ 、クオリティファクター $R_{sq}/R_n = 13$ が得られ、本回路に要求される接合特性の条件は満たすものと考えられる。図 5 は $3 \mu\text{m}$ 角で $J_c \sim 10 \text{ kA/cm}^2$ の 1024 接合アレー

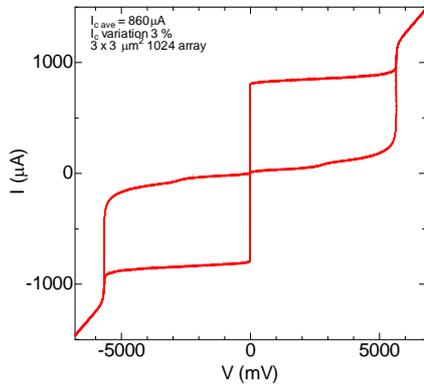


図5 NbN ジョセフソン接合 1024 アレーの電流 電圧特性

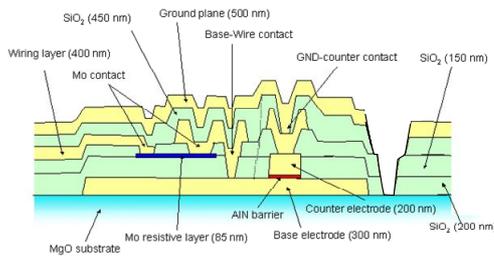


図6 NbN-SFQ 回路の断面模式図

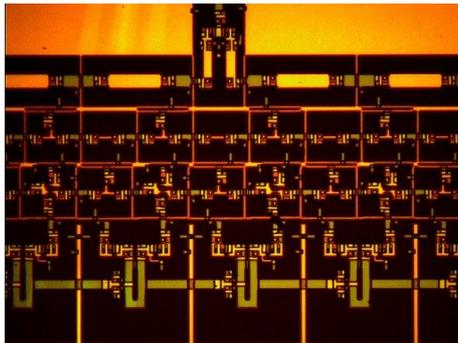


図7 NbN-SFQ 回路の光学顕微鏡写

の温度 4.2 K での I - V 特性である。この図から見積もられる超伝導電流 I_c のばらつきは $\pm 3\%$ であった。同様に $2\mu\text{m}$ 角の接合アレーから見積もられた I_c のばらつきは $\pm 7\%$ であることから、 I_c のばらつきの原因としては、接合サイズのばらつきが支配的であると推測した。図 6 に今回作成した NbN-SFQ 集積回路の断面図を示す。今回の設計では最上部にグランドプレーン、最下層にジョセフソン接合 (JJs) を配置した。このように配置することで、NbN が MgO 上でエピタキシャル成長するため、JJs の臨界電流値の制御性がよく、その再現性も得られやすい。さらにグランドプレーン直上にコンタクトを形成できるため寄生容量を低減できる等の利点がある。図 7 に表 1 の回路設計プロセスに基づき、

TEG	Self Inductance (pH)			Mutual Inductance (pH)	
	Designed (pH)	Measured (pH)	Deviation (%)	Designed (pH)	Measured (pH)
SQ1 (FTL)	5.2	4.74	-9		
SQ2 (FTL)	5.32	4.95	-7		
SQ3 (CB)	5.9	7.2	22		
SQ4 (CB)	5.2	5.54	7		
SQ5 (CB)	2.4	6.6	175		
SQ6 (MC-D/S)	11.3	18	59	66	69
SQ7 (MC-D/S)	3.7	3.61	-3		
SQ8 (DRV)	12	12.9	8	6	4.26
SQ9 (DRV)	12	13.3	10	6	4.19
SQ10(DRV)	3.9	4.4	13		
SQ11(TFF)	7.1	5.63	-20		
SQ12(TFF)	4	5.63	40		
SQ13(TFF)	3	4.73	58		
SQ14(TFF)	4.6	5.42	18		
SQ15(TFF)	3.9	5.25	26		

表2 NbN-SFQ 回路のシートインダクタンスの設計値と測定値

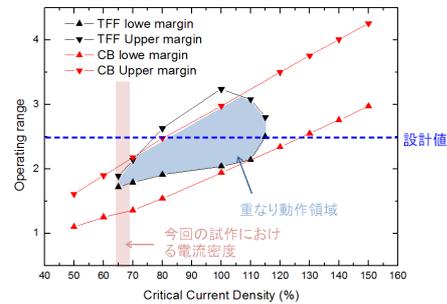


図8 NbN-SFQ 回路の動作マージンのシミュレーション

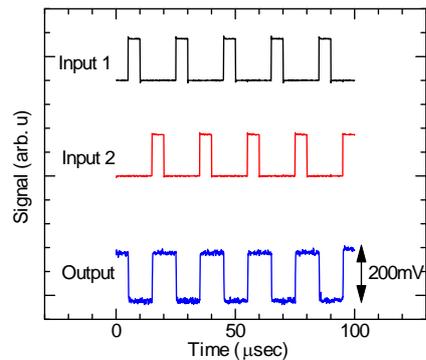


図9 NbN-SFQ 回路の光学顕微鏡写真

実際に作製した SFQ 回路しめす。表 2 に今回作成した NbN 集積回路の断面図を示す。表 2 に作製したインダクタンス評価用 SQUID のしきい値測定の結果を示す。インダクタンスの値は設計値から最少数%から最大 2 倍以上ズレが生じているが分かった。次にその結果と実際に測定した I_c を用いて、T-Flip-Flop (TFF) と Confluence Buffer (CB) の動作領域のシミュレーションを行った。その結果を図 8 に示す。試作したデバイスの I_c が設計値の 70% であったため、動作領域はかなり狭くなるが、動作可能であることが示された。そこで、TFF と CB を含む回路を測定した結果、

正常動作を確認できた。回路は、2つのポートから入力した信号を SFQ パルスに変換し、CB でマージした後、TFF で分周して、電圧ドライバーをセット・リセットする構成となっている。動作波形を図 9 に示す。出力波形の電圧が、2つの入力信号の立ち上がり部分で反転しており、正常動作していることがわかった。

以上の成果により、NbTiN に関する詳細な知見が得られ、最適化された膜は ALMA 電波望遠鏡の Band10 受信機において、その性能が実証されている。またエピタキシャル NbN による SFQ 回路の動作実証により 10K 動作に向けた実用化への展開が期待される。さらに現在も継続中の NbN, NbTiN 超薄膜および量子細線の物性評価によって、“窒化物超伝導デバイス”という新たな分野の開拓を目指す。

参考文献

- [1] Z. Wang *et. al.* Appl. Phys. Lett. **75**, 701 (1999).
- [2] S. Miki *et. al.* Appl. Phys. Lett. **92**, 061116 (2008).
- [3] M. Takeda *et. al.* Supercond. Sci. Technol. **22**, 075015 (2009).
- [4] K. Makise *et. al.* *IEEE Trans. on Appl. Supercond.*, to be accepted.

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 6 件)

- K. Makise, H. Terai, S. Miki, T. Yamashita and Z. Wang “Design and Fabrication of All-NbN SFQ Circuits for SSPD Signal Processing”, *IEEE Trans. Appl. Supercon.* **23** (2013) 1100804-1-4. (査読有)
DOI:10.1109/TASC.2012.2235504
- R. Matsunaga, Y. I. Hamada, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang and R. Shimano “Higgs Amplitude Mode in the BCS Superconductors Nb_{1-x}Ti_xN Induced by Terahertz Pulse Excitation”, *Phys. Rev. Lett.* **111** (2013) 057002-1-5 (査読有).
DOI:10.1103/PhysRevLett.111.057002
- S. Ezaki, K. Makise, B. Shinozaki, T. Odou, T. Asano, H. Terai, T. Yamashita, S. Miki and Z. Wang *J. Phys. Condens. Matter* **24** (2012) 4757022-1-5 (査読有).
DOI:10.1088/0953-8984/24/47/475702
- K. Makise, H. Terai and Z. Wang “Resistively shunted NbN/AlN/NbN tunnel junctions for single flux quantum circuits”, *Physics Proceed.* **36** (2012) 116-120 (査読有).
DOI:10.1016/j.phpro.2012.06.056
- K. Makise, H. Terai, T. Yamashita, S.

Miki, Z. Wang, Y. Uzawa, S. Ezaki, T. Odou, and B. Shinozaki “Fluctuation conductance and the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless transition in two dimensional epitaxial NbTiN ultrathin films” *Journal of Physics Conference Series* **400** (2012) 022064-1-4 (査読有).
DOI:10.1088/1742-6596/400/2/022064

K. Makise, H. Terai, M. Takeda, Y. Uzawa and Z. Wang “Characterization of NbTiN Thin Films Deposited on Various Substrates” *IEEE Trans. Appl. Supercon.* **21** (2011)139-142 (査読有).
DOI:10.1109/TASC.2010.2088350

〔学会発表〕(計 12 件)

牧瀬圭正、窒化物超伝導ナノワイヤの超伝導-絶縁体転移、日本物理学会 第 69 回年次大会、2014 年 3 月 27 日 30 日、東海大学、神奈川県、平塚市

牧瀬圭正、TiN/AlN/TiN トンネル接合の作製と評価、第 61 回応用物理学会春季学術講演会、2014 年 3 月 17 日 20 日、垂青山学院大学、神奈川県、平塚市

牧瀬圭正、エピタキシャル NbN 超伝導ナノ細線における負の磁気抵抗、2013 年 9 月 25 日 28 日、日本物理学会 2013 年秋季大会、徳島大学、徳島県、徳島市

牧瀬圭正、Operating of SFQ logic circuits consisting of NbN/AlN/NbN tunnel junctions, European Conference on Applied Superconductivity, 2013 年 9 月 15 日 19 日、Magazzini del Contone conference center ジェノバ、イタリア

牧瀬圭正、Design and fabrication of all-NbN SFQ circuits for SSPD signal processing, Applied Superconductivity Conference, 2012 年 10 月 7 日 12 日、Oregon convention center, ポートランド、アメリカ

牧瀬圭正、NbN 超薄膜の超伝導揺らぎと転移温度抑制機構、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 9 月 18 日 21 日、横浜国立大学、神奈川県、横浜市

牧瀬圭正、グラニューラー NbN 超薄膜の輸送特性と超伝導特性、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 11 日 14 日 愛媛大学・松山大学、愛媛県、松山市

牧瀬圭正、SSPD 信号処理のための NbN-SFQ 回路の作製 2、応用物理学会 第 59 回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学、東京都、新宿区

牧瀬圭正、Resistively shunted NbN/AlN/NbN tunnel junctions for single flux quantum circuits, European Conference on Applied Superconductivity, 2011 年 9 月 19 日、World Forum Conference Centre ハーグ、

オランダ

牧瀬圭正、Fluctuation conductance and the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless transition in two dimensional epitaxial NbTiN ultra-thin films, 26th International Conference on Low Temperature Physics, 2011年8月15日、China international conference center, 北京、中国

牧瀬圭正、SSPD 信号処理のための NbN-SFQ 集積回路の開発、第 72 回応用物理学会学術講演会、2011 年 8 月 31 日、山形大学、山形県、山形市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

牧瀬 圭正 (MAKISE, Kazumasa)
(独) 情報通信研究機構・未来 ICT 研究所
ナノ ICT 研究室・研究員
研究者番号：60363321

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：