

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月23日現在

機関番号：13903

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656065

研究課題名（和文） 単結晶・超伝導トンネル接合の創製と光デバイス応用

研究課題名（英文） Fabrication of Single-crystal Superconducting Tunnel Junctions, and Photodevice Applications

研究代表者

有吉 誠一郎 (ARIYOSHI SEIICHIRO)

名古屋工業大学・工学研究科・助教

研究者番号：20391849

研究成果の概要（和文）：

本研究は、超伝導トンネル接合素子（STJ）の新しい作製法を用いて究極感度の検出デバイス実現へ向けた技術的基礎を築くことにあった。具体的には、従来の多結晶成膜法（スパッタ法）に代わり、単結晶成膜法（分子線エピタキシー法）を導入し、原子層レベルで平坦なトンネルバリア界面を形成することで超低雑音特性をもつ Al 系 STJ 素子の作製技術を検討した。まず、Al 単層膜の成膜時には  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  と Si(111) の 2 種の基板を用いた。反射高速電子線回折（RHEED）や原子間力顕微鏡等を用いて薄膜の結晶性と平坦性を多角的に評価した結果、平坦性と結晶性の両立の観点から成膜時の基板温度は約  $100^\circ\text{C}$  が適していることが分かった。次に、MgO をトンネル障壁とする 3 層膜を STJ 素子に加工し  $0.3\text{K}$  に冷却して電流電圧特性を評価した結果、STJ 素子の臨界電流密度は  $15.5\sim 117\text{ A/cm}^2$ 、素子品質の指標の一つである  $R_{\text{sg}}/R_n$  は  $4.0\sim 60.2$  であり、良好な特性を有する 3 層エピタキシャル STJ 素子を実現した。

研究成果の概要（英文）：

We fabricated epitaxial-grown Al film as superconductor materials by molecular beam epitaxy. These films were characterized by reflection high-energy electron diffraction (RHEED), atomic force microscope (AFM) and residual resistance ratio (RRR) measurement. The growth of Al was investigated on  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  and Si (111) substrates, and flat surface with relatively high RRR of 15 was realized at substrate temperatures around 100 degrees Celsius. We also tried the deposition of epitaxial-grown MgO film as an insulator material and STJ fabrication. A streak RHEED pattern was successfully observed at the top surface of Al/MgO/Al junctions. The epitaxial-grown junctions showed good SIS characteristics in 0.3 K measurements.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野： 工学

科研費の分科・細目： 応用物理学・工学基礎、応用物理学一般

キーワード： センサー、エピタキシャル成長

## 1. 研究開始当初の背景

超伝導トンネル接合素子（STJ）とは【超伝導体／絶縁体／超伝導体】という 3 層の膜構造（SIS 構造）を基本とするジョセフソン素子の 1 種であり、極薄の絶縁体（数 nm、原子約 10 個分）が量子トンネル障壁となるバリアの役割を果たす。しかし、従来の成膜

法（スパッタ法）により作製した STJ 素子は、多結晶かつミクロなバリア欠陥が存在するため完璧なトンネル障壁の形成が困難であり、究極感度の検出デバイスに仕上げるには素子作製法上のブレイクスルーが必要であった。従来の STJ 検出器の検出限界は素子の残留漏れ電流に起因するショット雑音で制

限されており、フォトン非入射時における残留漏れ電流（ダーク電流）を如何に低減するかにかかっている。すなわち、STJ 素子の高品質化（完璧なトンネル障壁や高品質膜の実現）が光検出性能の飛躍的向上に繋がると期待される。

## 2. 研究の目的

テラヘルツ光は、物質に対する透過性と吸収スペクトルを利用した物質同定性を併せもつなど他の波長帯には見られない長所を有し、産業分野における各種非破壊検査、医療応用や天文観測研究など、様々な分野での利用が期待されている。我々は、テラヘルツ領域での1光子検出を最終目標として、単結晶 STJ 素子の研究開発を進めた。具体的には、従来の多結晶成膜法（スパッタ法）に代わり、分子線エピタキシー法（MBE 法）を導入し、原子層レベルで平坦なトンネル障壁界面を形成することで超低雑音特性（=低い漏れ電流特性）をもつ素子の作製技術開発を進めた。この成膜技術の確立により、従来の金属表面を酸化するという自然任せのデバイス作製手法ではなく、単結晶積層によって高度に制御することが可能となる。

## 3. 研究の方法

本研究では主に、Al 系 STJ 素子の作製と評価を行った。MBE 法を用いて Al 成膜を行う際、基板温度や分子線強度等が膜質に大きく影響するため、まず単層膜の成膜条件を最適化した。その後、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  基板上に Al/MgO/Al の3層膜を成膜し、フォトリソグラフィ、現像装置およびドライエッチング装置を用いて STJ 素子に加工した。最後に、STJ 素子を温度 0.3K に冷却して電流電圧特性を測定することで、本提案手法の優位性を検証した。

## 4. 研究成果

### 【Al 単層膜の成膜】

Al 成膜には Si(111)基板を用い、基板表面の酸化膜を除去するために成膜前に基板を 700°C で 10 分間アニール処理を施した。その後、室温～300°C の様々な温度条件下、

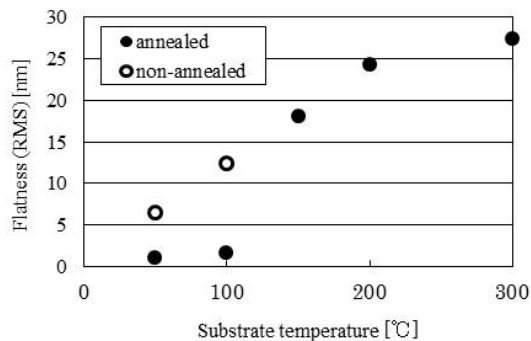


図 1. Al 薄膜の平坦性

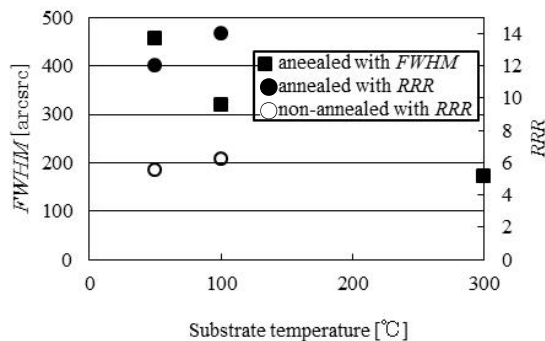


図 2. Al 薄膜の結晶性

1080°C に加熱したクヌーセンセルを用いて各 60 分間（約 100nm 厚）成膜した。また、比較のためにアニール処理を施さない基板上に室温と 100°C の基板温度で Al 成膜を行った。図 1 に基板温度と膜平坦性の関係を示す。なお、膜平坦性の評価に際しては原子間力顕微鏡を用いて薄膜の平坦性（RMS）を測定した。同図より、基板温度が低いほど、また同じ基板温度ではアニール処理を施した基板の方が膜平坦性に優れていることが分かった。

次に、基板温度と結晶性の関係を図 2 に示す。結晶性の評価に際しては、結晶中の不純物や格子欠陥量の指標となる残留抵抗比（RRR）、および X 線回折装置を用いたピーク半値幅（FWHM）を測定することで多角的に評価した。同図より、最大の RRR は約 15 が得られ、基板温度が高いほど、また同じ基板温度ではアニール処理を施した基板の方が結晶性に優れていることが分かった。

以上により、平坦性と結晶性の両立の観点から Al 成膜時の基板温度は 100°C 前後が適していることが分かった。

### 【3層膜の成膜】

その後、上記成膜条件を用いた Al 系 STJ

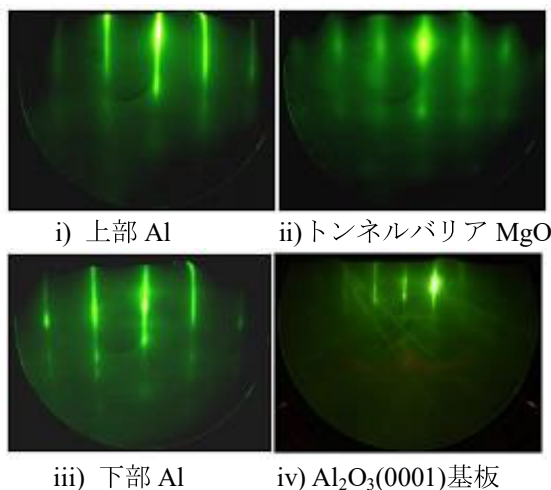


図 3. 3層膜の RHEED 像

素子の試作を開始した。具体的には、 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板上に  $\text{Al/MgO/Al}$  (=50/1.5/25 nm)の3層構造を採用した。図3に各階層のRHEED像を示す。その結果、 $\text{MgO}$ 成膜後の表面粗さは1.0 nmという高い平坦性を示し、 $\text{MgO}$ がトンネルバリア材料として適していることが分かった。さらに、各層成膜後にRHEED像を取得することにより3層全てがエピタキシャル成長したことを確認した。

#### 【STJ素子の電気特性評価】

最後に、上記3層膜をSTJ素子に加工し、温度0.3Kに冷却して電流電圧(I-V)特性を評価した。図4にI-V特性の一例を示す。同STJ素子のノーマル抵抗( $R_n$ )は1.79 $\Omega$ 、臨界電流密度は74.8A/cm<sup>2</sup>、素子品質の指標の一つである $R_{sg}/R_n$ は28.9であった。また、複数のSTJ素子の臨界電流密度は15.5~117 A/cm<sup>2</sup>、 $R_{sg}/R_n$ は4.0~60.2であり、従来のスパッタ法に比べて素子特性のばらつきは見られるものの、良好な特性を有する3層エピタキシャルSTJ素子を実現した。

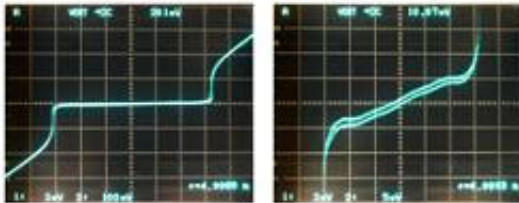


図4. 4×50 $\mu\text{m}^2$ 直列STJのI-V特性@0.3K  
(左側は全体像、右側は原点付近拡大像)

本研究で築いた単結晶STJ素子作製技術は、Al系のみではなく、NbやTaなど他の金属系超伝導材料の成膜時にも適用可能であり、3層エピタキシャル成長技術の更なる進展により、将来の超高感度デバイスにとって不可欠な基盤技術になると期待される。

#### 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4件)

- 1) S. Ariyoshi, T. Hamao, T. Tohru, K. Koga, K. Takahashi, T. Noguchi, M. Kurakado, N. Furukawa, C. Otani, “Two Topics on Superconducting Tunnel Junctions: Terahertz Detector and Single-crystal Fabrication”, Proc. 6th East Asia Symposium on Superconductor Electronics (EASSE2011), 29-DI2-3, (2011).
- 2) T. Hamao, S. Ariyoshi, T. Taino, N. Furukawa, K. Koga, H. Myoren, C. Otani, “Fabrication of Superconducting Tunnel

Junctions with Epitaxial Film by Molecular Beam Epitaxy”, Proc. EASSE2011, 27-P-29, (2011).

- 3) K. Takahashi, S. Ariyoshi, T. Noguchi, M. Kurakado, K. Koga, N. Furukawa, C. Otani, “Research of Micro-stripline STJ Detector for Terahertz Band”, Extended Abstract of HTSHFF2012, pp.44-45 (2012).
- 4) K. Takahashi, S. Ariyoshi, T. Noguchi, M. Kurakado, K. Koga, N. Furukawa, C. Otani, “Development of micro-stripline superconducting tunnel junction detectors for terahertz waves”, Proc. 23rd International Symposium on Space Terahertz Technology (ISSTT2012), P-46\_1-3, (2012).

[学会発表] (計12件)

- 1) 有吉 誠一郎、濱尾 俊幸、田井野 徹、古賀 健祐、古川 昇、大谷 知行、“単結晶・超伝導トンネル接合の創製とテラヘルツ光デバイス応用”、理研・分子研合同シンポジウム(第12回エクストリームフォトニクス研究シンポジウム)、埼玉、6月30日(2011).
- 2) 有吉 誠一郎、濱尾 俊幸、田井野 徹、古賀 健祐、古川 昇、大谷 知行、“単結晶・超伝導トンネル接合の創製とテラヘルツ光デバイス応用”、“背景放射で拓く宇宙創成の物理～インフレーションからダークエイジまで～”、2011年度新学術領域シンポジウム、相模原、7月11日(2011).
- 3) 濱尾 俊幸、有吉 誠一郎、田井野 徹、明連 広昭、古賀 健祐、大谷 知行、“分子線エピタキシー法によるエピタキシャル成長薄膜を用いた超伝導トンネル接合の作製”、2011年秋季第72回応用物理学学会学術講演会、山形、8月31日(2011).
- 4) S. Ariyoshi, T. Hamao, T. Tohru, K. Koga, N. Furukawa, C. Otani, “Fabrication of Single-crystal Films by Molecular Beam Epitaxy for Superconducting Tunnel Junctions”, 24th International Symposium on Superconductivity (ISS2011), Tokyo, Japan, (October 24-26, 2011).
- 5) 【招待講演】S. Ariyoshi, T. Hamao, T. Tohru, K. Koga, K. Takahashi, T. Noguchi, M. Kurakado, N. Furukawa, C. Otani, “Two Topics on Superconducting Tunnel Junctions: Terahertz Detector and Single-crystal Fabrication”, 6th East Asia Symposium on Superconductor Electronics (EASSE2011), Yonezawa, Japan, (October 27-29, 2011).
- 6) T. Hamao, S. Ariyoshi, T. Tohru, N. Furukawa, K. Koga, H. Myoren, C. Otani, “Fabrication of Superconducting Tunnel Junctions with Epitaxial Film by Molecular

Beam Epitaxy”, EASSE2011, Yonezawa, Japan, (October 27-29, 2011).

- 7) 濱尾 俊幸、有吉 誠一郎、田井野 徹、明連 広昭、古賀 健祐、大谷 知行、“分子線エピタキシー法によるエピタキシャル成長薄膜を用いた超伝導トンネル接合の作製”、第10回低温工学・超伝導若手合同講演会、大阪、12月02日(2011).
- 8) 【招待講演】有吉 誠一郎、“テラヘルツ帯・超伝導検出器の現状と今後”、日本学術振興会 超伝導エレクトロニクス第146委員会 センシングシステム分科会第4回研究会、東京、1月26日(2012).
- 9) 【依頼講演】有吉 誠一郎、“STJに関する2つの話題：テラヘルツ波検出器と単結晶デバイス”、東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会 「High-Q マイクロ波超伝導共振器を用いた大規模量子検出アレイに関する研究」、仙台、2月13日(2012).
- 10) 【招待講演】有吉 誠一郎、濱尾 俊幸、田井野 徹、古川 昇、野口 卓、大谷 知行、“分子線エピタキシー法による超伝導トンネル接合素子の作製”、2012年春季第59回 応用物理学関係連合講演会、東京、3月16日(2012).
- 11) K. Takahashi, S. Ariyoshi, T. Noguchi, M. Kurakado, K. Koga, N. Furukawa, C. Otani, “Research of Micro-stripline STJ Detector for Terahertz Band”, 11th International Symposium on High Temperature Superconductors in High Frequency Fields (HTSHFF2012), Matsushima, Miyagi, Japan, (May 29 - June 1, 2012).
- 12) K. Takahashi, S. Ariyoshi, T. Noguchi, M. Kurakado, K. Koga, N. Furukawa, C. Otani, “Development of micro-stripline superconducting tunnel junction detectors for terahertz waves”, 23rd International Symposium on Space Terahertz Technology (ISSTT2012), Tokyo, Japan, (April 2-4, 2012).

〔図書〕(計1件)

- 1) 濱尾 俊幸、埼玉大学大学院、修士論文「分子線エピタキシー法によるエピタキシャル成長薄膜を用いた超伝導トンネル接合の作製」2013年3月

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計0件)
- 取得状況 (計0件)

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

有吉 誠一郎 (ARIYOSHI SEIICHIRO)  
名古屋工業大学・工学研究科・助教  
研究者番号：20391849

### (2) 研究分担者

田井野 徹 (TAINO TOHRU)  
埼玉大学・理工学研究科・准教授  
研究者番号：40359592

### (3) 連携研究者

寺嶋 亘 (TERASHIMA WATARU)  
理化学研究所・テラヘルツ量子素子研究チーム・研究員  
研究者番号：30450406

### (3) 連携研究者

大谷 知行 (OTANI CHIKO)  
理化学研究所・テラヘルツイメージング研究チーム・チームリーダー  
研究者番号：50281663