科学研究費助成事業

研究成果報告書



交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文):本研究では、テラヘルツ帯でこれまで世界最高性能を示したSISミキサを改良することで、さらなる性能向上を目指した開発を実施した。従来同調回路部に用いていた高周波損失のあるAIを置き換えるためのNbTiNが、テラヘルツ帯で低損失であることを実験的に明らかにした。NbTiN配線とNb接合を接続した際のエネルギーギャップ差により生じる接合の電流-電圧特性の劣化をNb電極の厚さを増大することで低減することに成功した。新たに設計・試作したSISミキサは若干のギャップ電圧の低下を示したが、これは現時点での作製プロセスの制約から上下部のNb電極の厚さが不十分であることが原因であり、今後の有益な開発指針を得た。

研究成果の概要(英文): In this study, a terahertz SIS mixer have been developed aiming at further improvement of the sensitivity by improving the current SIS mixer with the best performance in the world so far. It was experimentally revealed that our NbTiN films for replacing AI with RF loss used in the tuning circuit has low loss in the terahertz band. We succeeded in reducing the degradation of the current-voltage characteristics of Nb tunnel junctions, caused by connecting NbTiN wirings due to the superconducting energy gap difference between Nb and NbTiN, by increasing the thickness of the Nb electrodes. Although our newly-designed prototype SIS mixers still showed slight reduction of the gap voltage in the current-voltage characteristics due to the fact that the upper and lower Nb electrodes were not able to be made thick enough due to the restriction of the fabrication process at the present time, this result suggests a useful guideline for the future development.

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 超伝導 窒化ニオブチタン

1. 研究開始当初の背景

これまで技術的未開拓電磁波領域と呼ば れていたテラヘルツ帯は近年、パラメトリッ ク発振器や量子カスケードレーザなどの比 較的強いテラヘルツ光源の出現によって、急 速に発展を遂げている。特にテラヘルツ分光 を可能にしたフェムト秒パルスレーザによ るテラヘルツ波の発生、検出技術(時間領域 分光法)では、主に高い強度の光源開発によ って信号対雑音 (S/N) 比を上げ、容易にテ ラヘルツ分光を行なえる状況を作り出した。 現在は商業ベースでテラヘルツ時間領域分 光装置の入手が可能となっており、非破壊検 査や薬品の成分分析など実用段階に入って いる。一方で、外部光源を使わず(使えず)、 測定対象物が自ら放射するテラヘルツ光を 計測するパッシブな分光技術の発展も、学術 上極めて重要である。たとえば宇宙物理学、 天文学などの分野においては、天体からの非 常に微弱なテラヘルツ信号を高分解能分光 するため、量子雑音限界の感度を有するヘテ ロダイン分光技術を必要としている。これま で不可能であった星間ガスにおける原子分 子のテラヘルツ帯スペクトル線の観測など が可能となれば、宇宙における銀河の形成、 星・惑星系の誕生、およびそこでの物質進化、 さらには生命の起源などの重要な問題が 次々と解明され得る。宇宙天文分野に限った 話ではない。生物科学分野においても、生体 分子の振動・回転などに伴う極微弱なテラへ ルツ放射を計測することによって、生体物質 中で起こるアデノシン三リン酸(ATP)など の非常に小さなエネルギー消費に伴う化学 反応や代謝のメカニズムなどの解明が期待 されている。このような短時間に変化を伴う 発光現象を計測するためには時間分解能が 必要で、積分時間を増やして S/N 比を改善す る手法が使えない。このため検出器には究極 の感度、すなわち量子力学的極限の雑音性能 が要求されている。

このような様々な応用に応えるため、これ までテラヘルツ帯における高感度ヘテロダ イン検出器が開発されてきた。我々が開発し た超伝導体-絶縁体-超伝導体(SIS) ミキサは テラヘルツ帯において量子雑音の3倍という 世界最高性能を示したが、量子雑音限界の感 度には到達していない。これは、高周波回路 の一部に用いている A1 の高周波損失による 信号の減衰によって、SIS 接合自身が潜在的 に有する量子力学的極限性能を十分に引き 出せていないためである。この部分を超伝導 材料である NbTiN で置き換え、回路を無損失 化すればテラヘルツ帯において理論的限界 性能を有する超高感度検出器を実現するこ とが可能である。しかし、新たに配線層とす る NbTiN と SIS 接合の材料である Nb を直接 接続することはできない。両者の超伝導エネ ルギーギャップの大きさの違いによりポテ ンシャル井戸が形成され、トンネルしてきた 準粒子が SIS 接合の Nb 電極中にトラップさ れると考えられている。この過剰準粒子が等 価的に SIS 接合の温度上昇をもたらすために、 接合本来の超低雑音動作を妨げているので ある。

2. 研究の目的

本研究では、テラヘルツ帯ヘテロダイン検 出器の高感度化を阻んでいる SIS 接合中の過 剰準粒子による加熱効果を抑制するため、新 たなデバイス構造を提案する。これによって 前人未到となる量子雑音限界の感度を有す るテラヘルツ検出器を目指す。過剰準粒子は エネルギーギャップの大きさが異なる2つの 超伝導材料の接続部で形成されるポテンシ ャル井戸で生ずるため、エネルギーギャップ を持たない常伝導金属の特性を利用してこ れを解消するデバイス構造を検討、その作製 プロセスを確立する。デバイスを試作し、直 流特性評価による過剰準粒子の抑制効果を 検証、さらに検出器として高周波特性評価を 行うことで、従来型に対する本検出器の優位 性を明確にすることを目的とする。

3. 研究の方法

テラヘルツ検出器の超高感度化のために 必要となる低損失の NbTiN/Si0₂/NbTiN マイ クロストリップ伝送線路の獲得を目指し、そ の作製と高周波特性評価を行う。次に、NbTiN と Nb を接続した際のエネルギーギャップ差 によって Nb 電極中にトラップされる過剰準 粒子が引き起こす SIS 接合の電流-電圧(*F*) 特性の劣化を低減するための新たなデバイ ス構造を提案し、作製、実証する。さらに各 材料の物性パラメータを用いて得られた結 果をモデル化することによりデバイスを設 計、作製し、テラヘルツ帯における高周波特 性を評価する。具体的な研究内容としては、 次の研究成果で述べる。

4. 研究成果

(1)NbTiN 薄膜の作製と特性評価

低損失同調回路に使用するための伝送線 路として、グランドプレーン(下部導体)及 びストリップ(上部導体)を NbTiN 薄膜、絶 縁層を SiO₂とするマイクロストリップ線路 を想定して、テラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) を用いた高周波特性評価用のサ ンプルを準備した(図1)。同図の(a)は下部 導体評価用のサンプルで、厚さ 1 mm の石英 基板上に直接成膜した NbTiN 膜、(b)は上部 導体評価用のサンプルで、厚さ 1 mm の石英 基板上に RF スパッタリング法で成膜した厚 さ約 150 nm の SiO₂上に成膜した NbTiN 薄膜 である。NbTiN 膜は、20wt%の Ti と 80wt% の Nb から成る合金ターゲットを用いた反応 性 DC マグネトロンスパッタリング法によっ て意図的な加熱なしで成膜された。NbTiN 膜 の厚さは、(a) が 145 nm、(b) が 120 nm で あった。また、NbTiN 薄膜の臨界温度 (T_c) は共に約14 K であった。



図 2. THz-TDS による時間領域波形。(a)下 部電極用、(b)上部電極用サンプル。挿入 図は石英基板のみの時間波形。

これらのサンプルを透過型 THz-TDS 装置に 取り付け、ヘリウムガスによる間接冷却によ って約5Kまで冷却した。図2に温度5K(超 伝導状態)と15 Kおよび室温(常伝導状態) での時間領域波形を示す。どちらの NbTiN 薄 膜も室温と 15 K での時間波形に大きな違い がないことから、残留抵抗比(RRR)は1程 度であることがわかる。また、NbTiN 薄膜の 常伝導導電率を、NbTiN を成膜していない石 英基板の透過測定結果(図2の挿入図)と比 較することによって求めた。その結果、(a) では 0.96 x 10⁶ Ω⁻¹m⁻¹、(b) では 0.79 x 10⁶ $\Omega^{-1}m^{-1}$ が得られ、SiO₂をスパッタした上に成 膜した NbTiN 薄膜の導電率が若干低い結果と なった。これは、スパッタで成膜した SiO₂ の表面が石英基板より粗いためと思われる。 次に常伝導状態(15 K)をリファレンスと して、超伝導状態(4 K)の複素導電率 $\sigma(\omega) = \sigma_1(\omega) - j \sigma_2(\omega)$ を導出した(図 3)。(a)、 (b)のサンプルについて得られた実部 $\sigma_{I}(\omega)$ は、約1.2 THz に明瞭な超伝導ギャップ(2A) を示した。これは、マイクロストリップ線路 として用いる NbTiN 薄膜が、ギャップ周波数 の1.2 THz まで低損失で動作する可能性を示 唆するものである。超伝導ギャップと転移温



図 3. 導出された複素導電率。(a)下部電極 用、(b)上部電極用サンプル

度の関係 $2\Delta/k_B T_c$ は 4.1 程度であり、弱結合 BCS 理論(約3.52)より大きい。また、虚部 の $\sigma(\omega)$ に関しては、ダーティリミットの Mattis-Bardeen(MB)理論による計算値より 小さいことが見いだされた。 $\sigma(\omega)$ は、超伝 導マイクロストリップ線路の位相速度やイ ンピーダンスを決める同調回路設計に必要 なパラメータとなるため、Ad hoc 的なフィッ ティングを試みた。その結果、MB 理論に有限 の準粒子散乱時間として 25 fsを導入すると、 実験結果と良い一致が見られた。または、 $\sigma(\omega) = \sigma^{MB}(\omega) \ge 0.8$ でも同様であり、回路 設計上、有益な知見が得られた。

(2)Nb 接合における加熱効果の抑圧

NbTiN薄膜とNb接合を直接接続する場合に は、両者のエネルギーギャップの大きさの違 いによってポテンシャル井戸が形成され、ト ンネルしてきた準粒子が Nb 電極中に閉じ込 められる。この非平衡状態が等価的に Nb 接 合の温度上昇をもたらすため、Nb 接合の I–V 特性上におけるギャップ電圧の低下や後方 屈曲的な振る舞いになると考えられている。 研究開始当初は、SIS接合電極のNbと配線の NbTiN の間に常伝導金属(A1)を挿入すること で、エネルギーギャップ差を解消させること を検討した。しかし、Nb と A1 を接続した場 合、近接効果によって Nb のエネルギーギャ ップが A1 に染み出し、A1 の厚さと共にその エネルギーギャップは減少するものの、デバ イス作製を想定した数 100 nm 厚程度では十 分に解消することは困難であると結論付け た。そこで、SIS 接合の Nb 電極を一般的な 100 nm以下程度より厚くし、体積を増大する ことで、過剰準粒子数に対する超伝導電子対 数の比を上げ、実効的な接合温度を低下させ る効果を検証した。具体的には図4に示すよ うに、Nb/A1N/Nb 接合の上部電極を 50 nm、



図 4.加熱効果を調べるための SIS デバイ ス構造。



図 5. 薄い(50 nm)上部電極と厚い(200 nm) 上部電極の Nb/A1N/Nb 接合の *I-V*特性。(a) 両方の接合の Nb 配線、(b)薄い接合の NbT iN 配線、(c)厚い接合の NbT iN 配線

200 nm の 2 種類の接合に厚さ約 400 nm の NbTiN 配線を施したデバイスを作製し、それ らの I-V 特性を比較した。下部電極の厚さは 150 nm であり、層間絶縁の SiO₂の厚さは 300 nm である。比較のために、Nb 配線を施した デバイスも作製した。

図 5 に各デバイスを液体ヘリウム中(4.2 K) で測定した結果を示す。(a)は SIS 接合お よび配線層が Nb のデバイスの *F-V*特性であ る。ここで、SIS 接合の *LRA*(=*LRA*)積が、 超伝導材料が同じであればほぼ一定値であ ることを利用して、電流に正常抵抗 *R*を乗じ て電流を正規化した。ここで *L*は SIS 接合の 臨界電流密度、*A*は面積、*L*は臨界電流であ る。上部電極が薄い(50 nm)デバイスと厚 い(200 nm)デバイスの *L*は、それぞれ 25 kA/cm²と 15 kA/cm²であり、通常の 10 kA/cm² より十分高い。配線層が Nb の場合には上部 電極の厚さによらず、ギャップ電圧として約



図 6. 設計した全 NbTiN マイクロストリップ線路を用いた同調回路の反射特性。

2.8 mV が得られている。ただし、面積の大き い SIS 接合では、若干のギャップ電圧の低下 がみられる。

次に(b)は上部電極が薄く、NbTiNの配線層 の*I-V*特性である。前述と同様に電流を正規 化している。接合面積の小さい(直径1 µm) デバイスと大きい(直径2 µm)デバイスの電 流の立ち上がり電圧は約2.7 mVであり、(a) より小さい。加えて、接合面積の大きいデバ イスはギャップ電圧において後方屈曲とな っており、準粒子が Nb 電極に閉じ込められ たことによる加熱効果が観測された。

最後に(c)は、上部電極を厚くし、NbTiN 配 線層を用いたデバイスの *I-V*特性である。ギ ャップ電圧は 2.73 mV と(a)より若干低いも のの、ギャップ電圧での後方屈曲が観測され ず、加熱効果を抑圧できていることが確認さ れた。

(3)NbTiN/SiO₂/NbTiN マイクロストリップ線路を用いた同調回路設計

前述のような高 Lの Nb 接合を用いること を想定し、高周波回路設計のために必要な SIS 接合の静電容量を求めるために、新たに 極低温プローバによるSパラメータ測定法を 開発した。SIS 接合の高周波インピーダンス の周波数依存性を測定することで、高精度な 接合容量の測定を可能にしたもので、20 kA/cm²のNb/A10x/Nb 接合に対して100 fF/µm² が得られた。図6に設計した同調回路と導波 管プローブインピーダンス(37Ω)から見た 反射特性を示す。回路設計には、実験的に得 られた NbTiN の複素導電率などの知見が反映 されている。その結果、ALMA Band 10の周波 数帯である 787-950 GHz 帯で低雑音動作可能 な設計解を得た。これまでより1.4倍程度の 感度向上が期待できる。

(4)デバイス作製と評価

i 線ステッパを用いて SIS ミキサデバイス を作製した。接合の大きさは直径 1.1 µm で ある。ドライエッチングにより SIS 接合部(3 層)の形成を行う際、接合上部のフォトレジ ストの耐エッチング特性から、接合全体の厚 さは最大 280 nm に制限された。これにより SIS 接合の上部と下部電極の厚さを 140 nm と



図 7. 試作した全 NbTiN 同調回路の SIS ミキサと従来のAl を用いた SIS ミキサの I-V 特性。



図8. 雑音温度特性の比較。

した。この Nb 接合(臨界電流密度 20 kA/cm²) を用いて、今回提案している NbTiN/SiO₂/NbTiN 伝送線路と従来の NbTiN/SiO₂/A1 伝送線路を持つデバイスを作 製し、*I-V*特性を比較した(図 7)。従来のデ バイスの Nb 接合のギャップ電圧が約 2.6 mV に対し、全 NbTiN 伝送線路のデバイスの Nb 接合のそれは約 2.5 mV であった。後者の接 合の等価温度は約5Kと推定され、140 nm厚 の Nb 電極では準粒子抑制効果が十分でない ことが判明した。この条件で、受信機雑音温 度のテラヘルツ帯周波数特性の理論計算を 実施した。すなわち、Nb 接合の物理温度が5 KでNbTiN/SiO₂/NbTiN伝送線路を用いた場合 と、Nb 接合が 4.2 K で従来の NbTiN/SiO₂/A1 伝送線路を用いた場合の理論的な受信機雑 音温度特性の比較である。その結果、図8に 示すように、ほぼ同等の受信機雑音特性が得 られることが判明したが、実際のミキサ動作 では、局部発振波を入力する必要があるため、 さらに I-V特性が劣化する。今後に課題を残 しているものの、新たな接合形成プロセスの 開発によって SIS 接合の Nb 電極を厚くする ことが可能であれば電極中の過剰準粒子効 果を抑制できることを明らかにし、我々の全 NbTiN 同調回路によってテラヘルツ帯超低雑 音受信機の実現可能性を示した。

5. 主な発表論文等 〔雑誌論文〕(計 5件)

- 1. <u>Y. Uzawa</u>, M. Kroug, <u>T. Kojima</u>, <u>K.</u> Makise, A. Gonzalez, S. Saito, Y. Fujii, K. Kaneko, H. Terai, and Z. Wang, Design of Terahertz SIS Mixers Using Nb/AlN/Nb Junctions Integrated with All-NbTiN Tuning Circuits, IEEE Trans. Appl. Supercond., 査読有, vol. 27, 2017, 1500705, DOI: pp. 10.1109/TASC.2016.2632628.
- 2. T. Kojima, M. Kroug, K. Sato, T. Sakai, and Y. Uzawa, On-Wafer Capacitance Measurement of Nb-Based SIS Junctions with a 4-K Probe, IEEE Trans. Appl. Supercond., 査読有, vol. 27, 2017, pp. 9000704, DOI: 10. 1109/TASC. 2017. 2657693

- M. Ikeya, T. Noguchi, T. Kojima, and T. 3. Sakai, Low Leakage Current Nb-based Tunnel Junctions with an Extra Top Al Laver, IEICE Trans. Electron., 查読有, vol. E100-C, 2017, pp. 291-297, DOI: 10.1578/transele.E100.C.291
- Y. Uzawa, K. Makise, T. Kojima, M. 4 Kroug, S. Saito, Y. Fujii, A. Gonzalez, K. Kaneko, H. Terai, and Z. Wang, Characterization of NbTiN films for superconducting terahertz circuitry, $15^{\rm th}$ IEEE International Superconductive Electronics Conference (ISEC), 査読有, 2015, pp. MF-P11, DOI: 10. 1109/ISEC. 2015. 7383432
- Y. Uzawa, Y. Fujii, A. Gonzalez, K. 5 Kaneko, M. Kroug, T. Kojima, A. Miyachi, K. Makise, S. Saito, H. Terai, and Z. Wang, Tuning circuit material for mass-produced Terahertz SIS receivers, IEEE Trans. Appl. Supercond., 查読有, vol. 25, 2015, pp. 2401005, DOI: 10.1109/TASC.2014.2386211

〔学会発表〕(計 11件)

- 1. Y. Uzawa, Y. Fujii, M. Kroug, K. Makise, A. Gonzalez, K. Kaneko, <u>T. Kojima</u>, A. Miyachi, S. Saito, H. Terai, and Z. Wang, Development of Superconducting THz Receivers for Radio Astronomy, 41st International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (招待 講演), 2016 年 9 月 25-30 日, Bella center, Copenhagen, Denmark.
- 2. 小嶋崇文, Matthias Kroug, 酒井剛, 鵜 澤佳徳,冷却プローブステーションを用 いた SIS 接合のキャパシタンス評価, 2016 年第 77 回応用物理学会秋季学術講 演会,2016年9月13-16日,朱鷺メッセ (新潟県新潟市)
- 3. <u>Y. Uzawa</u>, M. Kroug, <u>T. Kojima</u>, <u>K.</u> Makise, A. Gonzalez, S. Saito, Y. Fujii, K. Kaneko, H. Terai, and Z. Wang,

Development of Terahertz SIS Mixers Using Nb/AlN/Nb Tunnel Junctions Integrated with All-NbTiN Tuning Circuits, Applied Superconductivity Conference 2016, 2016 年 9 月 4-9 日, Colorado Convention Center, Denver, USA.

- <u>T. Kojima</u>, M. Kroug, K. Sato, T. Sakai, and <u>Y. Uzawa</u>, On-Wafer Capacitance Measurement of Nb-Based SIS Junctions With a 4-K Probe Station, Applied Superconductivity Conference 2016, 2016年9月4-9日, Colorado Convention Center, Denver, USA.
- Y. Uzawa, K. Makise, S. Saito, H. Terai, Z. Wang, <u>T. Kojima</u>, M. Kroug, Y. Fujii, A. Gonzalez, and K. Kaneko, Development of Highly Sensitive Superconducting Receivers for ALMA Band 10 and Future Prospects, 2016 URSI Asia-Pacific Radio Science Conference (招待講演), 2016 年 8 月 21-25 日, Grand Hilton Seoul Hotel, Seoul, Korea.
- Y. Uzawa, M. Kroug, <u>T. Kojima, K.</u> <u>Makise</u>, A. Gonzalez, S. Saito, Y. Fujii, K. Kaneko, H. Terai, and Z. Wang, Development of Terahertz SIS Mixers Using Nb/AlN/Nb Tunnel Junctions Integrated with All-NbTiN Tuning Circuits, 27th International Symposium on Space Terahertz Technology, 2016 年4月12-15日, Jinling Hotel, Nanjing, China.
- Y. Uzawa, Terahertz radio astronomy applications and activities at NICT, Spain-Japan Joint workshop on Millimetre-wave and Terahertz (招待講 演), 2016年3月17-18日, Universidad Carlos III de Madrid, Spain.
- Y. Uzawa, K. Makise, T. Kojima, M. Kroug, S. Saito, Y. Fujii, A. Gonzalez, K. Kaneko, H. Terai, and Z. Wang, Characterization of NbTiN films for superconducting terahertz circuitry, The 15th International Superconductive Electronics Conference, 2015年7月6-9日, Nagoya University and Nogakudo, Nagoya, Japan.
- Y. Uzawa, K. Makise, T. Kojima, S. Saito, Y. Fujii, A. Gonzalez, K. Kaneko, H. Terai, and Z. Wang, Characterization of NbTIN films for superconducting terahertz circuitry, 15th Workshop on Submillimeter-Wave Receiver Technologies in Eastern Asia, 2014 年 12 月 15-17 日, Hotel Kintetsu Aquavilla Ise-Shima, Mie, Japan.
- <u>Y. Uzawa</u>, Y. Fujii, M. Kroug, <u>K. Makise</u>, <u>T. Kojima</u>, A. Miyachi, A. Gonzalez, K. Kaneko, S. Saito, H. Terai, Z. Wang,

and S. Asayama, Performance of Terahertz Superconducting Receivers for the ALMA Telescope, The 9th International Symposium on Intrinsic Josephson Effect and THz Plasma Oscillations in High-Tc Superconductors (招待講演), 2014 年 11 月 30 日-12 月 3 日, Kyoto University, Kyoto, Japan.

11. <u>Y. Uzawa</u>, Y. Fujii, A. Gonzalez, K. Kaneko, M. Kroug, <u>T. Kojima</u>, A. Miyachi, <u>K. Makise</u>, H. Terai, Z. Wang, and S. Asayama, Performance of mass-produced terahertz SIS receivers for the ALMA telescope, Applied Superconductivity Conference 2014, 2014年8月10-15日, Charlotte Convention Center, Charlotte, USA.

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 1件)

名称:テラヘルツ波イメージング装置 発明者:鵜澤佳徳、木内等、小嶋崇文、川瀬 晃道 権利者:同上 種類:特許 番号:特願 2016-048305 出願年月日:2016 年3月11日 国内外の別: 国内

○取得状況(計 0件)

〔その他〕 なし

6. 研究組織

(1)研究代表者
鵜澤 佳徳(UZAWA Yoshinori)
国立研究開発法人情報通信研究機構・ソーシャルイノベーションユニットテラヘル
ツ研究センターテラヘルツ連携研究室・室長
研究者番号:00359093

(2)研究分担者
小嶋 崇文(KOJIMA Takafumi)
国立天文台・先端技術センター・助教
研究者番号:00617417

(3) 連携研究者
牧瀬 圭正 (MAKISE Kazumasa)
国立研究開発法人情報通信研究機構・未来
ICT 研究所フロンティア創造総合研究室・
主任研究技術員
研究者番号:60363321