

令和 5 年 6 月 18 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02631

研究課題名（和文）精密熱力学温度計のための高温超伝導体を用いた量子電圧雑音源の開発

研究課題名（英文）Development of quantum voltage noise source using high-temperature superconductor for precision thermodynamic thermometer

研究代表者

浦野 千春 (Urano, Chiharu)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・研究グループ長

研究者番号：30356589

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではヘリウムイオン顕微鏡(HIM)による描画加工でジョセフソン接合を作製する技術の開発に取り組んだ。HIMによって銅酸化物高温超伝導体YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>を描画加工してジョセフソン接合形成し、それらのジョセフソン接合の臨界電流や接合部の抵抗値がヘリウムイオンビームの照射条件に応じて系統的に変化することを確認した。また、マイクロ波の照射により、量子化された電圧ステップが現れていることを確認した。作製したジョセフソン接合の特性評価のため、最大10素子まで同時に素子の電流-電圧特性を測定可能な、最低到達温度43 Kの超小型冷凍機を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ヘリウムイオン顕微鏡技術を用いた微細構造部物性制御・加工の研究は萌芽期にあり、基礎的なことで未解明な点が多い。本研究の学術的意義は、ヘリウムイオンの照射で高温超伝導体に誘起される物質の微視的な構造変化と物性の変化の関係を明らかにすることを試みた点である。本手法によって、高温超伝導体だけでなく、他の物質群の物性制御が可能になれば、新たなデバイスを創出できる可能性がある。その意味で、本研究の取り組みは社会的にも意義があると考えている。

研究成果の概要（英文）：In this research, we focused on developing a technique for fabricating Josephson junctions using Helium Ion Microscopy (HIM) lithography. We successfully utilized HIM to pattern YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>, a copper oxide high-temperature superconductor, to form Josephson junctions. We observed that the critical current and resistance of these Josephson junctions systematically varied according to the irradiation conditions of the helium ion beam. Additionally, we confirmed the appearance of quantized voltage steps under microwave irradiation. To evaluate the characteristics of the fabricated Josephson junctions, we developed a compact cryocooler capable of simultaneously measuring the current-voltage characteristics of up to 10 devices, with a minimum achievable temperature of 43 K.

研究分野：電気標準

キーワード：超伝導 高温超伝導 ジョセフソン接合 ヘリウムイオンビーム顕微鏡 微細加工

## 1. 研究開始当初の背景

超伝導体と超伝導体で薄い絶縁体あるいは金属を挟んだトンネル効果デバイスであるジョセフソン接合は、理論的な提案から 60 年経ってもなお大きな研究舞台となっている。近年、特に量子計算機の構成要素である量子ビットの有望な実現方法として世界中で研究が加速している。精密電気計測では、超高感度な磁気センサーである超伝導量子干渉素子 (SQUID) や直流電圧標準として実用化されているものもある。

それらジョセフソン接合の作製には、私達が日常利用する携帯電話などの中で使われている半導体集積回路の製造技術と基本的に同様のプロセス技術が採用されている。その結果、半導体製造技術と相性が良い材料のみが選択されていると言える。一方、世の中には優れた特性を示すものの半導体プロセスの手法と相性が悪い物質群も多数存在する。例えば、銅酸化物高温超伝導体は高温動作するジョセフソン接合への利用が期待されるが、半導体プロセス技術で用いられるウエット表面処理プロセスで素子が変性するためあまり適していないとされている。

銅酸化物高温超伝導体によるジョセフソン接合の作製方法は双晶界面やステップエッジを利用した方法などがよく知られている。これらの方法は SQUID などの少数のジョセフソン接合の形成には適しているが、ジョセフソン接合を形成できる場所が薄膜基板上で限られ、任意の場所に自由自在に形成するのはほぼ不可能であり、特性がそろった接合を多数作製することは困難であった。

近年、ヘリウムイオン顕微鏡 (HIM) 技術を用いて 0.5nm 径前後に収束させたヘリウムイオンビーム照射で銅酸化物高温超伝導体  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  薄膜の物性制御を行うことによりジョセフソン接合の障壁層 (非超伝導体) を作製する新たな手法が提案された。HIM の最小ビーム径 (0.35nm) は  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  の格子定数の約 1.5 倍に相当し、従来のガリウムイオン収束イオンビーム径 (約 4nm) と比べて一桁微細かつ照射イオンの質量も小さい (約 1/18) ためイオン照射ダメージも少なく、ウエット表面処理プロセスを回避できる。この手法を用いると、銅酸化物高温超伝導体の転移温度の高さを生かした、小型の冷凍機や液体窒素で動く 2 次電圧標準や参照電圧源、精密な磁気センサーを作製することが可能と見込める。

現時点で HIM は装置が希少であることもあり、世界的に見ても先行研究はそれほど多くはない。また、先行研究では集積化されたジョセフソン接合の特性は十分揃っておらず、物理標準関連技術への応用といった観点での精密な評価の報告はない。ジョセフソン接合作製のためのヘリウムイオンビーム照射条件を最適化し、それらの電気的特性を精密に評価することは学術的に価値があり、実用的にも極めて重要である。本研究はジョセフソン接合の作製以外にも、様々な新規構造のデバイスや、新しい物理現象の検証のためのデバイスの作製を可能にすると考えられる。

超伝導デバイスの運用面において、超伝導転移温度が 90 K 級にも達する高温超伝導体を用いる利点は大きい。現在実用的に利用されている SQUID などの超伝導デバイスでは、通常、超伝導転移温度  $T_c$  が 9.2 K のニオブを利用したジョセフソン接合が用いられている。素子を超伝導状態に保つため、液体ヘリウムによる冷却や GM 冷凍機やパルスチューブ冷凍機などが必要となる。液体ヘリウムは近年入手が困難で価格も非常に高価である。機械式冷凍機に関しては、冷却系を含めた装置が大型になる上に、電氣的に雑音が多いコンプレッサが不可欠である。もし、ジョセフソン接合デバイスを高温でも動作が可能な高温超伝導体で置き換えることができれば、非常に安価な液体窒素中や、可搬性に優れたスターリング冷凍機で到達できる 40 K でも運用が可能になる。スターリング冷凍機は非常に小型なため配線が大幅に短縮でき、コンプレッサが不要なため電氣的雑音の影響も小さいことが期待出来る。

## 2. 研究の目的

ヘリウムイオン顕微鏡を用いた微細構造の描画加工技術は大きな新奇デバイスの開発に対して極めて大きなポテンシャルを持っている。ヘリウムイオンビーム照射を自由に制御し、様々な物質に適用できれば、様々な新奇なデバイスの開発やそれらの物性計測、制御に関して無限の可能性が拓かれる。特に、本手法は遷移金属と軽元素の組み合わせからなる様々な物質群で広く適用できる可能性がある。ヘリウムイオン顕微鏡技術を用いた微細構造部物性制御・加工技術は依然萌芽期にあり、また、加工に用いる装置が希少なことから、世界的に見ても研究例が豊富ではなく、基礎的なことで未解明な点が多い。

そのための第一歩として、本研究では、銅酸化物高温超伝導体 YBCO をヘリウムイオン顕微鏡で描画加工し、加工条件と電気的特性の相関関係、物性の安定性向上の条件、微視的な構造上の変化、などに関する基礎的な研究を行い、ヘリウムイオン顕微鏡を用いた高温超伝導体の微細加工により均一で高品質なトンネル障壁層を再現性良く作製するための条件の抽出に取り組む。

銅酸化物高温超伝導体 YBCO の物性を自在に制御して集積度が高いジョセフソン接合を作る

ことができれば、液体窒素や簡便な機械式冷凍機を用いて、SQUID やジョセフソン効果に基づく精密な基準電圧源を手軽に利用可能となる。ニオブなどの従来型の超伝導体をベースとしたジョセフソン接合デバイスに対する高温超伝導体ベースのジョセフソン接合デバイスの利点は圧倒的に高温で利用できる点にある。素子開発と並行して、素子の電気特性の評価や、将来高温超伝導デバイスを実用的な用途で運用するための、超小型のスターリング式冷凍機の開発に取り組む。目標とする最低到達温度は YBCO の超伝導転移温度のおよそ半分の 40 K 程度とする。

本研究では、ヘリウムイオンビームの照射条件として、ヘリウムイオンビームの照射領域の大きさ、ドーズ量、など複数のパラメータを少しずつ変えた試料を作製し、温度・磁場を精密に制御した環境下で多数のデバイスを効率よく評価する必要がある。そのために、カンタムデザイン社製の物理特性評価システム PPMS 専用のインサートプローブの作製も行う。スターリングエンジンベースの超小型冷凍機も PPMS 用インサートプローブもシャピロステップを観察できるようにするためにマイクロ波入力ポートが必要である。

### 3. 研究の方法

銅酸化物高温超伝導体としては MgO 基板、LSAT 基板あるいはサファイア基板上に 25 nm から 35 nm の YBCO を成長させた Ceraco 社製の市販の薄膜を用いた。YBCO 上にはパッシベーション用に 100 nm の金が積層されている。MgO 基板上と Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上には基板と YBCO 薄膜の間にバッファ層として CeO<sub>2</sub> が用いられている。納入された薄膜試料は薄膜 X 線回折によって YBCO の c 軸からの回折ピークが見えることを確認した。基板はあらかじめメーカー側で a 軸と b 軸に並行な角度でダイシングされている。YBCO 薄膜はいわゆる双晶となっていて、薄膜結晶中で a 軸と b 軸が入れ替わったドメインが形成されていると考えられる。

上記の YBCO 薄膜試料を産総研ナノプロセッシング施設 (NPF) のマスクレス露光装置を利用して露光し、電気特性評価用の大規模な電極構造を形成した。これに加え、マイクロ波照射用のデバイスについてはコプレーナ導波路構造を作製した。さらにジョセフソン接合を形成する領域にある YBCO 薄膜の上に積層された金をアルゴンイオンミリング装置によって除去し、ヘリウムイオンビームを照射するための超伝導ブリッジ構造を形成した。ナノブリッジの幅は 4 μm (設計値) とした。

上記のように準備した YBCO ブリッジに対し、ヘリウムイオンビームで描画加工を行った。ヘリウムイオン顕微鏡としては産総研 NPF の Orion+ を主に利用した。一部の素子は大阪大学ナノテクノロジー設備供用拠点の NanoFAB を利用して描画加工した。ヘリウムイオンビームのビーム径は前者では 0.35 nm、後者では 0.5 nm である。ヘリウムイオンビームの加速電圧は 30 keV に固定した。超伝導ブリッジ上でヘリウムイオンビームを照射する幅  $t$  と単位面積当たりのヘリウムイオンの照射量  $D$  を変化させ描画加工を行った。

ヘリウムイオンビームの照射により加工したブリッジ素子の電流-電圧特性、電気抵抗の温度依存性、マイクロ波応答を測定することにより、ヘリウムイオンビームの照射条件と作製されたジョセフソン接合の電気特性の相関関係を評価した。その他、基板の異なる YBCO ブリッジにヘリウムイオンビーム照射を行い、ジョセフソン接合の特性の基板の違いによる影響を比較する実験も行った。

作製した超伝導デバイスの電気抵抗の温度依存性、電流-電圧特性、および電流電圧特性のマイクロ波特性の評価を行うため、PPMS とスターリング冷凍機を用いた。PPMS に関しては、本研究では温度と磁場を制御するための環境として利用するために専用のインサートプローブを作製した。電気特性の評価には市販の電流源、ナノボルトメータ、温度モニタ、および手製のスクアナを用いた測定系を作製した。これに加えて、より多くの素子を同時に評価するための、スターリングエンジンベースの超小型冷凍機を開発した。

### 4. 研究成果

我々の研究では、オーバーダンブなジョセフソン接合を作製することを目標としているため、金属的な振る舞いが得られる条件を探索した。ヘリウムイオンビームを照射する幅  $t$  を固定した場合、接合の特性はヘリウムイオンの照射量  $D$  によって系統的に変化し、 $D \leq 2000$  ions/nm<sup>2</sup> においてドーズ量の増大と共にジョセフソン臨界電流  $I_c$  の大きさは指数関数的に減少した。電流-電圧特性をオーバーダンブなジョセフソン接合を記述する、いわゆる RSJ モデルでフィッティングしてヘリウムイオンの照射により常伝導金属に変質した領域の常伝導抵抗  $R_n$  の値を求めると、ドーズ量の増大と共に  $R_n$  は系統的に増大することが分かった。臨界電流と障壁部の常伝導抵抗の積  $I_c R_n$  はドーズ量と共に減少した。 $I_c R_n$  積から特性周波数  $f_c$  を求めると、大部分の照射パラメータ領域において、 $f_c$  は 100 GHz 程度以上であり、目標とする 10 GHz 程度の  $f_c$  を得るには温度  $T$  を超伝導転移温度  $T_c$  にかかなり近づける必要があることが分かった。本手法によって作製した接合にマイクロ波を照射し、シャピロステップが現れることを確認し、確かにジョセフソン接合が形成されていることを確認した。

素子作製と並行して、素子の電流-電圧特性およびマイクロ波特性の評価を効率よく行うため

に、カンタムデザイン社製の物理特性評価システム PPMS 専用のインサートプローブを作製した。最低到達温度は PPMS の最低到達温度である 2 K である。加えて、スターリングエンジンを用いた超小型冷凍機を開発した。最低到達温度は 42 K である。両者ともマイクロ波照射実験が可能である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 三澤哲郎, 井上陸, 石田茂之, 小川真一, 森田行則, 永崎洋, 内田慎一, 西尾太一郎, 浦野千春
2. 発表標題 ヘリウムイオン顕微鏡技術による銅酸化物高温超伝導体YBCO薄膜の物性制御
3. 学会等名 2021年第82回秋季応用物理学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三澤哲郎, 井上陸, 石田茂之, 小川真一, 森田行則, 永崎洋, 内田慎一, 西尾太一郎, 浦野千春
2. 発表標題 ヘリウムイオン顕微鏡技術による銅酸化物高温超伝導体YBCO薄膜の物性制御 ( 2 )
3. 学会等名 2022年第69回春季応用物理学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 井上陸, 三澤哲郎, 浦野千春, 永崎洋, 石田茂之, 内田慎一, 小川真一, 森田行則, 西尾太一郎
2. 発表標題 ヘリウムイオン顕微鏡技術による銅酸化物高温超伝導体YBCOの面内ジョセフソン接合の作製
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023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
研究分担者	永崎 洋  (EISAKI HIROSHI)  (20242018)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・首席研究員    (82626)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究分担者	三澤 哲郎  (MISAWA TETSURO)  (40635819)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員    (82626)	
研究分担者	森田 行則  (MORITA YUKINORI)  (60358190)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究グループ長    (82626)	
研究分担者	石田 茂之  (ISHIDA SHIGEYUKI)  (90738064)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・主任研究員    (82626)	
研究分担者	内藤 裕一  (NAITO YUICHI)  (80392637)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・主任研究員    (82626)	

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