

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年4月28日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560455

研究課題名（和文） 高温・高速・高感度動作を実現する単一光子検出器に関する研究

研究課題名（英文） Elemental technologies to develop single photon detectors having high temperature, high speed and high sensitivity operation

研究代表者

楠 正暢（KUSUNOKI MASANOBU）

近畿大学・生物理工学部・教授

研究者番号：20282238

研究成果の概要（和文）：

量子暗号通信のキーデバイスである単一光子検出器として、高温超伝導体でナノワイヤーを実現するための要素技術についての研究を行った。高温超伝導材料には $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO)を用いて実験を行い、Pt/Auのキャップ層を持つYBCO膜で、250回折り返された、全長約25mm、幅200nmのメアンダ型ナノワイヤーを $100 \times 100 \mu\text{m}$ 四方の領域に形成できることを示した。また、YBCOエッチング時に試料ステージを液体窒素冷却することにより、プラズマ衝撃による劣化の影響を抑制し、幅200nm、長さ $1 \mu\text{m}$ のワイヤーで超伝導電流を確認した。さらに、YBCOと単結晶基板のヘテロ界面近傍における格子不整合について検討し、20nmの膜厚でも80K以上の臨界温度(T_c)を持つYBCO膜の作製に成功した。一方、80~10nmの範囲で膜厚と T_c の関係を調べ、実効的に膜厚10nm以下の特性を有する高温超伝導ナノワイヤー実現の可能性を示し、その方法について述べた。

研究成果の概要（英文）：

We studied elemental technologies to develop HTS (high temperature superconducting) nano-wire as a key device “single photon detector” for the quantum cryptographic communication. Experiments were carried out using $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO). It was shown that a 200-nm-wide and 25-mm-long nano-wire could be constructed in a $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ square by using a 250-turns-meandering configuration. We examined how to suppress superconductivity degradation in the nano-wire during plasma etching processes. Liquid N_2 cooling to a sample stage was effective to prevent the degradation from ion bombardments of plasma etching. As a result, superconducting current was observed for a 200-nm-wide and $1\text{-}\mu\text{m}$ -long nano-wire. We also investigated lattice mismatching at a hetero-epitaxial surface between YBCO and single crystal substrate. Then, YBCO thin film with only 20 nm thickness showed critical temperature (T_c) over 80 K. On the other hand, a T_c dependence on the YBCO thickness was examined from 80 nm to 10 nm. It produced a possibility to realize very thin HTS nano-wire with effective thickness less than 10 nm.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野： 工学

科研費の分科・細目： 計測工学

キーワード： センシングデバイス、単一光子検出

1. 研究開始当初の背景

単一光子を情報の担体として用いることで、原理上絶対的安全性を持ち、高速ネットワークを実現できる量子情報通信が注目されている。平成19年には、世界最速(10GHz)、最長(200km)の量子暗号鍵配送試験の成功が報じられ¹⁾、実用化への期待が一層高まった。この試験では、光子数を識別するための単一光子検出器として、超伝導ナノワイヤーが用いられた。超伝導ナノワイヤーは、ナノスケールの線断面をもつメアンダ構造のワイヤーであり、常伝導転移する臨界点直下の電流をバイアスした状態で使用され、光子の入射エネルギーにより瞬間的に生じる局所的常伝導転移を数10psの高速信号として得ることで、単一光子検出器として動作する。

本研究の全体構想としては、現在までに最高性能が得られているNbN(臨界温度 T_c = 約15K)のナノワイヤーを、 T_c が約90Kの高温超伝導体(HTS)で構成することを目標とするもので、技術的に大きな飛躍が必要となる。これを実現することができれば電子-フォノン緩和時間、フォノン拡散時間の短縮、また、動作速度、動作温度の向上が期待できる。また、HTSは金属光沢がない材料であるため、光子の反射を抑え検出感度(量子効率)を改善できる点でも有利である。

2. 研究の目的

本研究の最終目標は、単一光子検出用超伝導ナノワイヤーの高性能化にあるが、本事業の実施期間においては、それを実現するための作製プロセスの検討を主眼に置いている。具体的には、光子1個の入射による僅かなエネルギーに対し、常伝導転移パルスを生成するのに十分な極めて小さい線断面を作製する技術を確認しなければならぬ。したがって、リソグラフィとエッチングで決定される線幅に対する加工技術のほかに、HTSを高い品質を維持したまま極めて薄く成膜する技術が必要である。現行のNbNナノワイヤーを例にとると、情報通信研究機構では薄さ4nm以下の高品質薄膜を用いて高性能光子検出器を実現しているため、²⁾これに迫る膜厚

- 1) H. Takasue et al., "Quantum key distribution over a 40-dB channel loss using superconducting single-photon detectors", NATURE PHOTONICS, Vol.1, p.343-348 (2007).
- 2) S. Miki et al., "NbN Superconducting Single-Photon Detectors Prepared on Single-Crystal MgO Substrates", IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol.17, pp.285-288, (2007).

が要求される。これまで、ナノワイヤー開発にHTSの適用が行われなかった背景には、HTSのヘテロエピタキシー膜の極薄化が困難であったことが大きな理由として存在している。

本研究では、これらの問題を改善する、HTSのナノ加工法と成膜方法を検討することが目的である。

3. 研究の方法

超伝導ナノワイヤー型の単一光子検出器の場合、動作原理が、光子の入射エネルギーによる超伝導電子対の破壊に基づいているため、僅かなエネルギーで常伝導転移するよう感度を得るためには、ワイヤー内の超伝導電子対の数を下げる必要がある。超伝導電子対数はナノワイヤーの臨界電流 I_c に比例するので、観測容易な評価パラメータとしては I_c を下げればよいことになる。さらに、

$$I_c = J_c \times w \times t \quad \dots \textcircled{1}$$

(J_c : HTS膜の臨界電流密度、 w : ワイヤー幅、 t : ワイヤー厚さ(膜厚))であるため、設計上は、 J_c 、 w 、 t それぞれについて値を下げる方法を検討するとともに、確率的な受光面積を確保する目的で、図1のイメージのようにHTSナノワイヤーを細密にする、メアンダ構造の実現法についても検討を行う。

4. 研究成果

4.1) デバイス構造の作製法の検討

まずはじめに、メアンダ型HTSナノワイヤーを実現するためのデバイス構造と、電子線リソグラフィーの条件について検討を行った。HTSには、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO)を用いた。YBCOの膜表面には、加工プロセス中の超伝導性の劣化防止と電極(ボンディングパッド)の役割を兼ね、Au層を設けた。これは、光を基板裏側から入力することを想定した際の、反射層の役割も果たす。しかし、Au層上で電子線描画を行うと、反射電子によるバックスキヤッタにより露光精度が低下するため、それを防ぐためのPt層を最表面に設けた。図1のようなメアンダ構造を幅200nmのライン・アン

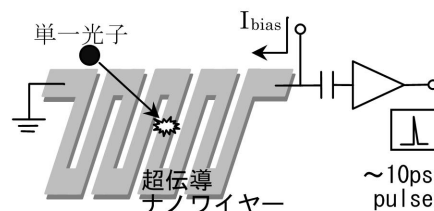


図1. 単一光子検出の原理

ド・スペースで実現するための描画条件を最適化し、図2のような結果を得た。この試料は、250回折り返された、全長約25mm、幅200nmのナノワイヤーが100×100 μm 四方の領域に形成されたものである。ナノワイヤーを分割して特性を読み取る目的で、ワイヤー端部折り返し箇所には電極との結合部分を拡大した写真である。

4.2) エッチング時の劣化の軽減と超伝導特性の確認～wの検討～

上記、4.1のように、電子ビームリソグラフィと、プラズマエッチングにより素子形状は実現できることが示されたが、化学的安定性の乏しいYBCOのナノ加工時（プラズマエッチング時）には超伝導特性の劣化が顕著に表れることが過去の研究で明らかとなっているため、劣化の少ないプロセスについての検討を行った。従来は、イオン衝撃の少ない、電子サイクロトロン共鳴（ECR）プラズマエッチングを用い、試料ステージを -30°C のエチレングリコール液を循環させることにより冷却することで、プラズマの衝撃、温度上昇による超伝導特性劣化を抑制し、一定の効果を得られていた。しかし、それでもなお、再現性が十分ではなかったため、試料ステージを液体窒素冷却が行えるよう改良を施した。その結果、再現性が向上し、図3のように、線幅200nm、長さ1 μm のナノワイヤーで超伝導電流を観測できるに至った。

4.3) a軸配向膜を利用した低 J_c 化の検討

次に、YBCO膜の J_c を下げる可能性についての検討を行った。超伝導デバイス作製に多く用いられるc軸配向YBCO膜に対し、a軸配向膜の J_c は同じ動作温度下では桁程度小さい。その異方性を利用できれば、大幅に I_c を下げる事が可能となる。そこで、a軸配向膜作成条件の検討を行ったが、結晶としては良好なa軸配向を示す膜であっても T_c の高いものを得ることはできなかった。高い臨界温度を示す成膜条件を見出すためには、より長期間の検討が必要と判断し、将来的な可能性は残しつつ、本研究期間で行うことは困難と結論付けた。

4.4) 極薄HTS膜作製法の検討～tの検討～

I_c を下げるためのもう一つの方法として、膜厚wを薄くすることも重要であることから、以下のように詳細な検討を行った。

成膜には、直流マグネトロンスパッタリングを用い、c軸配向YBCOに対して実験を行った。ターゲット-基板間距離30mm、雰囲気ガス流量Ar : O₂ = 20 : 20 (ml/min)、全ガス圧45Pa、カソード電圧190V、カソード電流50mAを一定とし、基板加熱ヒーター温度をパラメータとして、750 $^{\circ}\text{C}$ ～875 $^{\circ}\text{C}$ の範囲

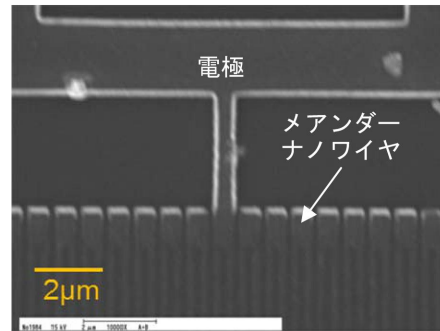


図2. HTS ナノワイヤー端部を拡大した電子顕微鏡写真

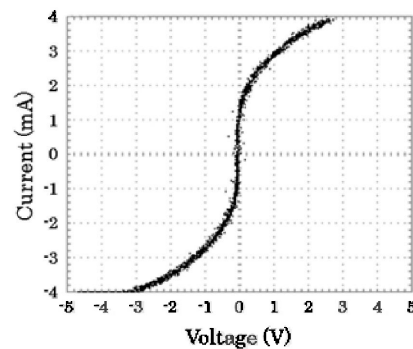


図3. ナノワイヤーの電流-電圧特性 (線幅200nm、長さ1 μm)

で変化させ成膜を行った。このときの基板ヒーター温度に対する超伝導転移温度 T_c 、およびYBCOの結晶性について、格子定数の異なる3種類の単結晶基板 (MgO (100), SrTiO₃ (100), NdGaO₃ (110)) について比較を行った。また、MgO基板については空気中での潮解性があるため、成膜直前に酸素プラズマによる表面クリーニングを行ったものを用いた。

図4(a)は、成膜時の基板温度を変化させ、膜厚80nm一定のYBCO (005)面に対する $\theta - 2\theta$ 法によるX線回折(XRD)強度を示したものである。それぞれの基板に対し図中にプロットされている温度領域においては、YBCOがc軸配向のみを示し、各プロットに対する最低温度以下では、a軸配向が混在し始める。今回、基板ヒーターの最高到達温度の制限から875 $^{\circ}\text{C}$ 以上での成膜を行うことができなかったが、最も高いXRD強度を示す温度が、MgO, SrTiO₃, NdGaO₃の順に高温側へシフトする傾向を読み取ることができる。また、YBCOとの格子不整合率が小さく、それぞれ2.11, 1.04%のSrTiO₃, NdGaO₃に対し、不整合が大きな7.12%のMgOについてはピーク強度の最高値が低いことが示され、ヘテロエピタキシャル界面でYBCOが成長し始めるの重要性が表れている。

次に、これらの試料に対して、直流四端子法でYBCO薄膜の抵抗-温度特性を測定し、ゼロ抵抗を示す T_c をプロットした結果を図

4(b)に示した。全体的傾向として、 T_c が高くととも85 K程度にとどまっておられ、YBCOの T_c として報告されている90K以上の値に達しないのは、今回用いた成膜システム、または、ヒーター温度以外の成膜パラメータなど別の要因に支配されているものと考えられる。傾向としては、結晶性が最高点を示す温度でなくとも、c軸配向を示す温度領域で高い T_c を示すことがわかる。これは、格子不整合が緩和された膜表面近傍の良好な超伝導層のみの性質を反映しているためと考えられる。具体的には、基板との界面近傍に、結晶性が低く T_c が低い領域が存在しているも、膜の全体的な結晶方位としてc軸配向さえ満たされていれば、格子不整合が緩和される膜厚以上の膜表面近傍では、良好な超伝導性を示す膜質を有する状態が存在し得る。このような状況下では、四端子測定で読み取られる T_c は膜表面の性質しか反映していないと解釈することができる。そこで、膜の厚さ方向の性質が現れる評価方法として、残留抵抗比 (RRR) に関して考察を行った。SrTiO₃上に875 °Cで成膜した試料を例に図5(a)を用いて説明する。常伝導領域における抵抗曲線を0 Kまで外挿した時の抵抗値を残留抵抗 $R(0)$ と定義し、300 Kでの抵抗値 $R(300)$ との比で表した値を $RRR = R(300) / R(0)$ とした。図4(a), (b)との対応を見やすくする目的で、RRRの逆数を図5(b)のようにプロットした。このパラメータは、格子散乱を受ける常伝導電子が受ける抵抗に関するものであるため、膜中の格子の不規則性の尺度となる。したがって、図5(b)では膜表面の性質のみしか得られないのに対し、図5(a)では膜の厚さ方向の情報を得ることができる。この結果は、図5(a)のXRDによる結晶性の傾向とよく一致しており、MgOでは800-825°C付近、SrTiO₃では850-875°C付近、NGOでは875°C以上の値で膜中の格子の不規則性が低くなることを意味している。すなわち、YBCO堆積開始近傍の格子歪の領域が最も小さいことを示している。

そこで、今回の実験の中で最も良い結晶性を示したSrTiO₃基板を用いたヒーター温度875°Cの場合に、膜厚を80 nmから40, 20, 15, 10 nmとしてその T_c についての評価を行った。その結果を図6に示す。膜厚の減少とともに T_c が減少するが、15 nm以下で、急激に低下しており、YBCO堆積開始直後の膜厚20 nm未満の領域では結晶中に歪や欠陥が多いことを示している。比較のため、同図にMgO基板上に厚さ80 nm, 20 nmのYBCOを堆積した場合もプロットした。膜厚20 nmにおいて、MgO基板上のYBCOの T_c は液体窒素温度77K以下(73.6K)であるのに対し、SrTiO₃基板では T_c =80.8Kで超伝導転移することが分かった。より高温で成膜できるヒーターを用いることができれば、格子不整合の小さいNdGaO₃基板

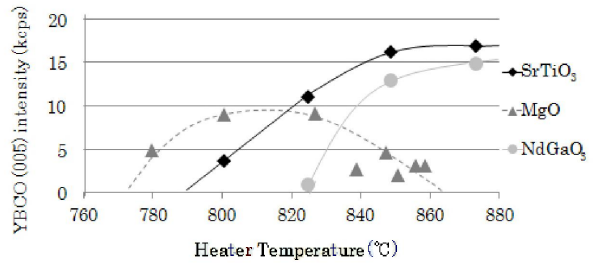


図4(a). YBCOのX線回折(00E)ピークと成膜時のヒーター温度の関係

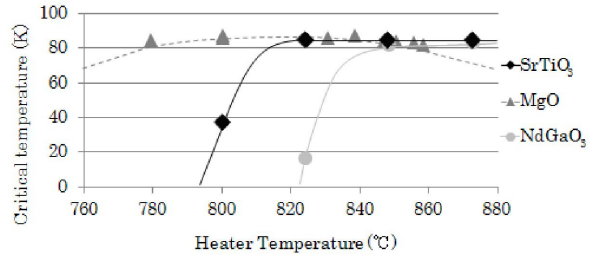


図4(b). YBCOの超伝導転移温度と成膜時のヒーター温度の関係

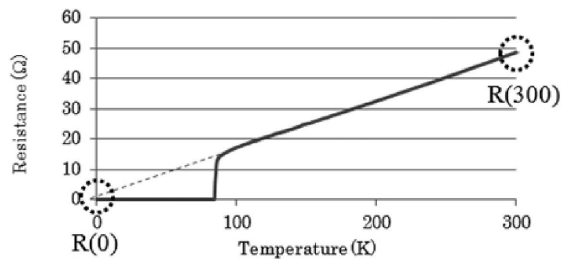


図5(a). YBCO 薄膜の抵抗-温度特性 (SrTiO₃基板上、成膜温度875°C)

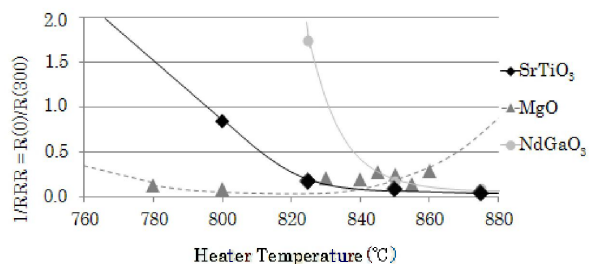


図5(b). HTS ナノワイヤー端部を拡大した電子顕微鏡写真

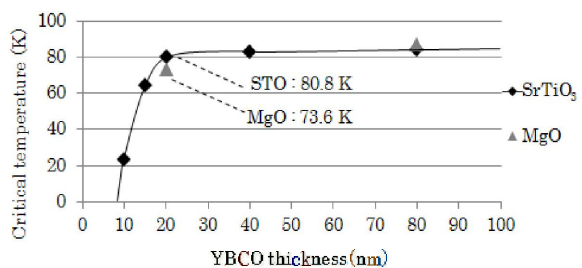


図6. YBCOの超伝導転移温度の膜厚依存性

を適用することで、さらに薄くすることが可能であると予想される。また、ヒーター温度以外の成膜パラメータの最適化により、少なくとも臨界温度の向上は期待することができる。

さて、本実験で、膜厚に対する T_c の関係が明らかとなったため、図7のような単純化したモデルをもとに、以下のような活用方法について考察した。たとえば、80.9 K付近の動作温度を仮定する場合、膜厚15 nm以下の領域は超伝導転移していないため、光エネルギーで表面の厚さ5 nmの領域にのみ存在する超伝導電子対を破壊すれば常伝導転移が得られるため、実質的には5 nmの厚さを持つ超伝導膜で光/超伝導変換ナノデバイスを作製できることになる。これとは逆に、動作温度を24.1 K付近に設定するならば、膜厚10 nmのYBCOでデバイス作製を行うことにより、実用上、光/超伝導変換デバイスが動作する条件を満たせる可能性があるといえる。

4.5) まとめ

単一光子検出器の高性能化を目的として、高温超伝導ナノワイヤー作製法の研究を行った。要素技術として必要な、デバイス構造を電子線リソグラフィで得る方法、YBCOのナノ加工時における超伝導特性の劣化を抑制し再現よくプラズマエッチングする方法、YBCOの異方性を利用して J_c を下げる方法、YBCOの膜厚を薄くする方法について検討を行い、以下のような結果を得た。

Pt/Auのキャップ層をもつYBCO膜で、250回折り返された、全長約25mm、幅200nmのナノワイヤーを200nm幅のライン・アンド・スペースで $100 \times 100 \mu\text{m}$ 四方の領域に形成可能であることを示した。

ECRプラズマエッチングの試料ステージを液体窒素冷却することで、線幅200nm、長さ $1 \mu\text{m}$ のナノワイヤーで超伝導電流を観測できた。

a軸配向YBCO膜を用いれば、一桁程度低い J_c を期待できるが、良好な結晶性を示すa軸配向であっても T_c の高いものを得ることは困難であり、高い臨界温度を示す成膜条件を見出すためには、より長期間の検討が必要と判断した。

YBCOと単結晶基板のヘテロ界面近傍における格子不整合について検討し、20nmの膜厚でも80K以上の T_c を持つYBCO膜の作製に成功した。また、 T_c と膜厚の関係を、80~10nmの範囲で調べ、簡単なモデル化を行うことにより、ナノワイヤーの動作温度に合わせた間圧を設計に盛り込むことにより、実効的に10nm以下の膜厚の特性を実現するHTSナノワイヤーの作製の可能性を示唆する結論を導くことができた。

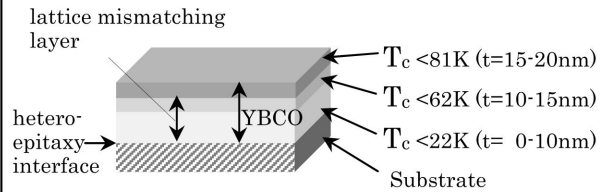


図7. YBCO/基板界面付近における膜質のモデル

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5件)

- ① 伊藤大介、小谷克己、三宅智貴、西川博昭、本津茂樹、楠正暢；光/超伝導変換デバイスの感度向上を目的とした極薄高温超伝導膜の作製法の研究，電気学会論文誌C，査読有，印刷中。
- ② D. Okai, R. Nagai, G. Motoyama, H. M. Kimura and A. Inoue; Superconducting property of Zr-Co-Al-Nb metallic glass, Physica C, 査読有, Vol. 471, 2011, pp. 725-729.
- ③ S. Miki, T. Yamashita, M. Fujiwara, M. Sasaki, Z. Wang; Characterization of Coupling Efficiency and Absorption Coefficient for Fiber-Coupled SNSPD With an Optical Cavity, IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 査読有, Vol. 21, 2011, pp. 332-335.
- ④ D. Okai, R. Nagai, G. Motoyama, T. Fukami, T. Yamasaki, Y. Yokoyama, H. M. Kimura A. Inoue; Superconducting property of Zr-Co and Zr-Co-Al alloys fabricated by rapid solidification, Physica C, 査読有, Vol. 40, 2010, pp. 1048-1051.
- ⑤ S. Miki, M. Takeda, M. Fujiwara, M. Sasaki, A. Otomo, Z. Wang; Superconducting NbTiN Nanowire Single Photon Detectors with Low Kinetic Inductance, Applied Physics Express, 査読有, Vol. 2, 2009, pp.075002(3 page).

[学会発表] (計10件)

- ① 伊藤大介、三宅智貴、小谷克己、高橋晋也、西川博昭、楠正暢、本津茂樹；光/超伝導変換デバイスの感度向上を目的とした極薄酸化物超伝導膜の作製，電気関係学会関西連合大会，2011年10月30日，兵庫県立大学。
- ② D. Okai, G. Motoyama, H. M. Kimura, A. Inoue; Superconducting property of

- Zr-Cu-Al-Ni-Nb alloys, 24th Symposium on Superconductivity, Oct. 26. 2011, Tokyo, Japan.
- ③ S. Miki, T. Yamashita, M. Fujiwara, M. Sasaki, Z. Wang; Performances of superconducting nanowire single photon detectors at 800 nm wavelength, Superconductivity Centennial Conference, Sep. 20, 2011, Netherlands.
- ④ 高橋晋也, 伊藤大介, 楠正暢, 西川博昭, 本津茂樹; 酸化超伝導薄膜のダメージレスナノプロセスに用いるエピタキシャル成長阻害層の検討, 電気関係学会関西連合大会関西連合大会, 2010年11月14日, 立命館大学.
- ⑤ 高橋晋也, 馬場康仁, 楠正暢, 西川博昭, 本津茂樹; 酸化超伝導薄膜のダメージレスナノ加工プロセスの検討, 電気関係学会関西連合大会関西連合大会, 2010年11月13日, 立命館大学. (奨励賞受賞によるポスターシンポジウム講演)
- ⑥ S. Miki, T. Yamashita, M. Fujiwara, M. Sasaki, and Z. Wang; Multichannel SNSPD system with 21% system detection efficiency at 1550nm wavelength, Applied Superconducting Conference, Aug. 1-6, 2010, Washington D.C.
- ⑦ 馬場康仁, 高橋晋也, 楠正暢, 西川博昭, 本津茂樹; 酸化超伝導薄膜のダメージレスナノ加工プロセスの検討, 電気関係学会関西支部連合大会 2009年11月7日, 大阪大学.
- ⑧ D. Okai, R. Nagai, T. Fukami, T. Yamasaki, Y. Yokoyama, A. Inoue; Superconducting property of Zr-Co and Zr-Co-Al alloys fabricated by rapid solidification, 22nd International Symposium on Superconductivity, Nov. 2-4, 2009, Tsukuba, Japan.
- ⑨ S. Miki, M. Takeda, M. Fujiwara, M. Sasaki, Z. Wang; Compact packaging of optical cavity structured SNSPDs with high optical coupling efficiency, 9th European Conference on Applied Superconductivity, Sep. 13-17, 2009, Dresden, Germany.
- ⑩ 三木茂人, 武田正典, 藤原幹生, 佐々木雅英, 王鎮; 光キャビティ付超伝導ナノワイヤ単一光子検出器の開発I, 第70回応用物理学学会学術講演会, 2009年9月8-11日, 富山大学.

[その他]

奨励賞受賞

馬場康仁, 高橋晋也, 楠正暢, 西川博昭, 本津茂樹; 酸化超伝導薄膜のダメージ

レスナノ加工プロセスの検討, 電気関係学会関西支部連合大会 2009年11月7日, 大阪大学.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

楠 正暢 (KUSUNOKI MASANOBU)
近畿大学・生物理工学部・教授
研究者番号: 20282238

(2) 研究分担者

三木 茂人 (MIKI SHIGEHITO)
情報通信研究機構・主任研究員
研究者番号: 30398424
岡井 大祐 (OKAI DAISUKE)
兵庫県立大学大学院・工学研究科・助教
研究者番号: 60336831

(3) 連携研究者

なし