

論文内容の要旨

AlN Tunnel Barriers for Submillimeter Wave SIS Mixers

(AlN トンネルバリアとサブミリ波 SIS ミクサへの応用)

氏 名 遠藤 光

この論文は、 $10 \Omega \mu\text{m}^2$ 以下のきわめて低いトンネル抵抗率 R_{TA} を持つ Nb/Al-AlN/Nb 超伝導体/絶縁体/超伝導体トンネル接合（以下、SIS 接合と呼ぶ）の生成過程、微視的構造、そしてその応用について述べたものである。この研究は、アタカマ大型ミリ波サブミリ波干渉計（Atacama Large Millimeter Submillimeter Array : ALMA）のバンド 10 受信機開発の一環で行った。ALMA は、ミリ波-サブミリ波帯において比類ない集光力と空間分解能を併せ持つ、現在研究開発中の干渉計型天体望遠鏡である。0.787-0.950 THz を受信するバンド 10 は、ALMA の観測周波数を 10 分割したバンドの中で最も高周波のバンドである。ALMA の抜きん出た集光力を高い感度に結びつけるためには、各バンドに対応したきわめて低雑音かつ広帯域な SIS ミクサが求められる。しかし、従来サブミリ波帯で用いられてきた Nb/Al-AIO_x/Nb SIS 接合を用いた場合、AIO_x バリアの R_{TA} がおよそ $20 \Omega \mu\text{m}^2$ 以上に制限されるため、バンド 10 で要求される周波数比帯域 19% の約半分しかカバーできない。AIO_x に代わるトンネルバリア材料としては、AlN が世界的に有望視されている。しかし、様々な活性窒素雰囲気で AlN バリアを生成する実験が試行錯誤的に行われ、一定の成功を収めてきた裏で、そもそもなぜ AlN が従来の AIO_x よりも欠陥が少ないのか、また、どうして特定の条件のもとで窒化した AlN バリアだけが優れた特性を有するのか、といった本質的な問題はこれまで置き去りにされてきた。ALMA の 80 台の素子アンテナに、きわめて高性能な SIS ミクサ素子を 4 つずつ実装するためには、このような基本的な物理の深い理解に基づく、信頼性の高い AlN バリア SIS 接合作製手法の確立が必要である。そこで私は、Al 膜表面の窒化に寄与する活性窒素の種類が AlN トンネルバリアの生成に及ぼす影響を実験的に調べた。その結果、Al との反応性が高い窒素原子が豊富な雰囲気中で、 $10 \Omega \mu\text{m}^2$ 以下のトンネル抵抗率を持ちながら欠陥も十分に少ない、きわめて高品質な AlN トンネルバリアが生成することを突き止めた。この発見により、ALMA

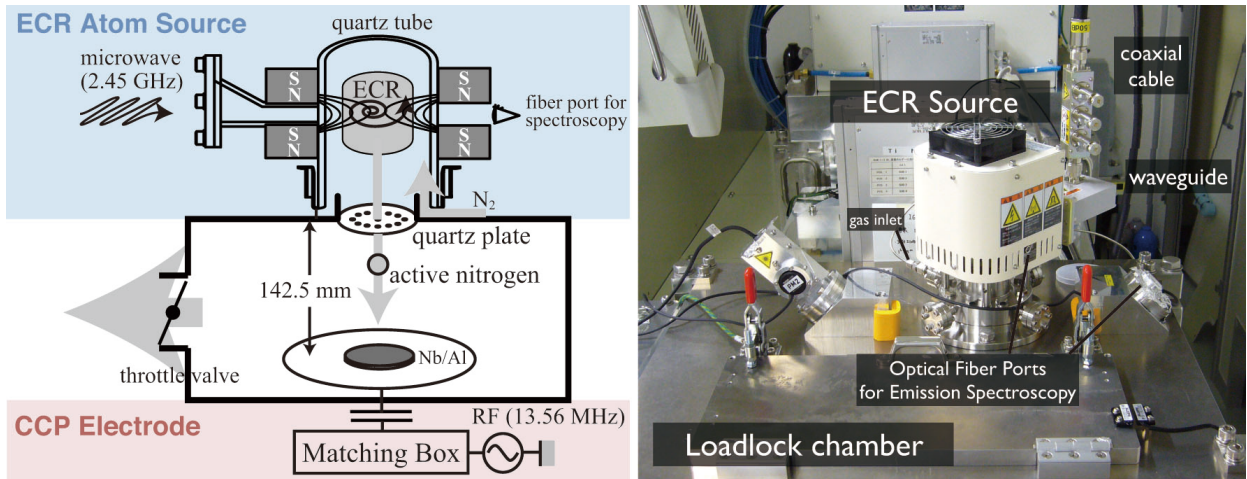


図1 (左) ECR プラズマ源、CCP 電極、ロードロック/窒化用真空室の位置関係を示した模式図。(右) ロードロック/窒化用真空室の上に取付けられた ECR プラズマ源の写真。

バンド 10 の SIS 素子開発は大きく前進し、今では国際的な性能仕様の達成が目前というところまできている。以下、研究内容の詳細を述べる。

AIN バリアを作製するにあたり、まずは先行研究の多い容量結合型プラズマ窒化（以下 CCP 窒化と呼ぶ）を採用した。この手法は、一般的に制御性に問題があるとされている。そこで、 R_{TA} の窒化時間 t_N 依存性を調べたところ、従来の純粋 N_2 プラズマを用いた場合には確かに R_{TA} の再現性が悪かったが、これは放電開始時の不安定な状態で起こる余分な窒化のためだと考えた。そこで、Ar または He の不活性ガス中で放電を開始し、後から窒素を導入して窒化を開始する方式を導入したところ、 R_{TA} の再現性が向上し、 R_{TA} が t_N に対してべき乗関数的に増加する傾向が明らかになった。これは、バリアの厚さが t_N の対数、あるいは平方根に比例する事を意味しており、AIN バリアの成長が Al-AIN 膜中の窒素の拡散、または Al 陽イオンの移動で律速していることを示唆している。また、間欠的に RF 電力を投入する事により、窒化速度が低下することも示した。このように、AIN 膜の成長に関する理解が深まり、CCP 窒化法の制御性を高めるうえでも重要な進歩があった。しかし、残念ながらどの放電条件のもとでも ALMA バンド 10 に必要な $R_{TA} < 20 \Omega \mu m^2$ の Nb/Al-AIN/Nb SIS 接合が安定して得られることはなかった。

次に、周波数 2.45 GHz のマイクロ波でプラズマを励起する、電子サイクロトロン共鳴（以下 ECR と呼ぶ）型のリモートプラズマ源を用いて AIN バリアを生成した。 N_2 流量の異なる条件で生成した AIN トンネルバリアの特性を比較したところ、流量の少ない場合のほうがバリアの欠陥が少ない傾向があることがわかった。そこで、放電管内のプラズマ発光スペクトルを分析したところ、良質な AIN バリアの得られた低流量条件のもとでは窒素原子 N の強い発光が見られた。さらに、Ar-アクチノメトリを用いて放電管内の N_2 の解離率を調べたところ、最大で 6% 程度の解離率があることがわかった。この解離率最大の条件のもとで AIN トンネルバリアを生成したところ、たとえば $R_{TA} = 7 \Omega \mu m^2$ でもサブギャップ抵抗/常伝導抵抗比 R_{sg}/R_N が 16 という、ALMA バンド 10 で必要とされている水準を上回る、きわめて低抵抗率で欠陥の少ない SIS 接合が得られた。窒素原子は Al との反応性が高いので Al 膜への侵入が浅く、表面付近が集中的に窒化されるために、きわめて薄くかつ一様な AIN 膜の生成が促進されるのだと考えられる。

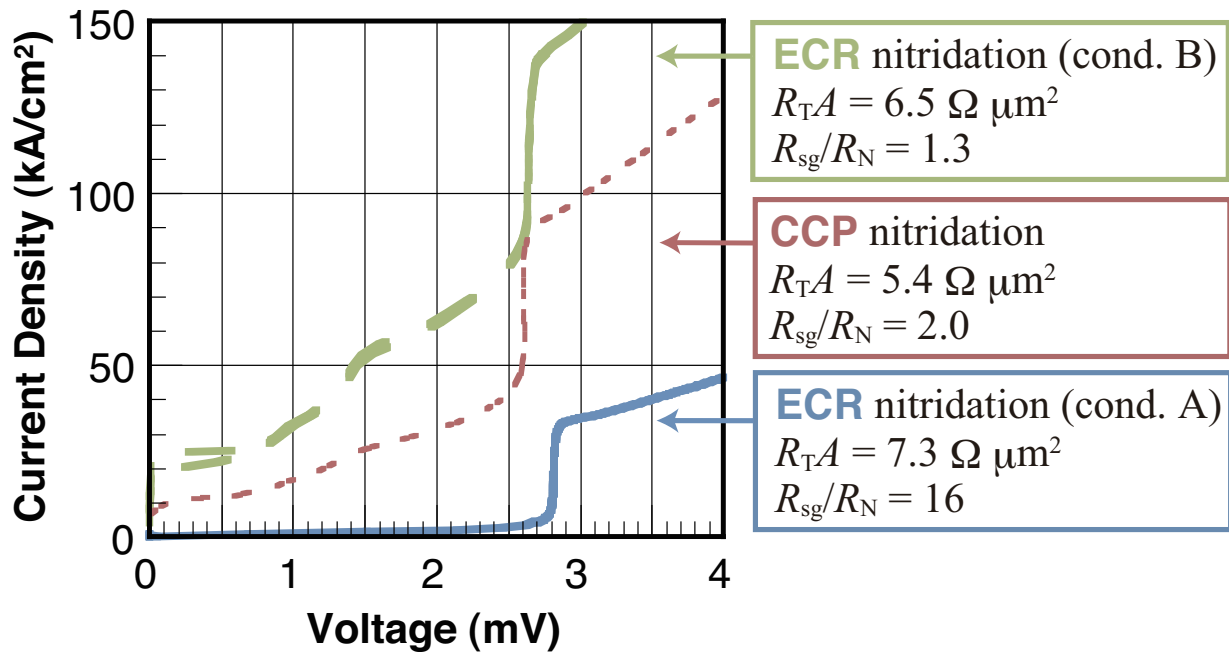


図2 ECR 窒化と CCP 窒化で作製した、 $R_{TA} \sim 7 \Omega \mu\text{m}^2$ というきわめて低いトンネル抵抗率を持つ Nb/Al-AlN/Nb SIS 接合の dc $I(V)$ 特性。ECR 窒化の条件 A はプラズマの発光スペクトルに窒素原子の輝線がみられた、窒素解離率 6% の条件。条件 B はプラズマの発光スペクトルに窒素原子の輝線がみられない、窒素解離率 1% 未満の条件。CCP 窒化では窒素原子の輝線はみられず、窒素解離率は 1% 未満。窒素解離率の高い、条件 A の ECR 窒化の場合のみ、AlN トンネルバリアのリーク電流が際立って小さい。

このように、窒化の最中のプラズマを観察することで AlN 膜の生成に関する理解が深まり、飛躍的な品質改善につながった。さらに AlN 膜自体が成長する様子も実時間で観察するために、半導体レーザーを利用した反射率モニターを開発した。レーザーの出力強度変動による測定誤差を減らすため、レーザー光の一部をハーフミラーで取り出して独立に強度を測定し、反射光の強度補正に用いた。この装置で AlO_x 膜の自然酸化過程を観察したところ、反射率が酸化時間とともに滑らかに減少し、かつその変化の割合は酸素圧力が高いほど大きいことを確認した。しかし、プラズマ窒化の場合には途中で反射率が上昇に転じるなど不可解な結果が得られた。この原因は解明できておらず、現状では AlN 膜成長のその場観察には成功していない。しかし一方で、放電開始前の反射率の観測から、何らかの背景ガスが窒化前の Al 膜に R_{TA} を大きくするような影響を及ぼしていることを見いだすなど、現状でも異常検出器として有効に利用されている。

さて、ECR 窒化で生成した AlN トンネルバリアは、なぜ低 R_{TA} でもリーク電流が少ないのだろうか。手がかりを得るため、 $R_{TA} = 7 \Omega \mu\text{m}^2$, $R_{sg}/R_N = 16$ の Nb/Al-AlN/Nb SIS 接合の断面を透過型電子顕微鏡を用いて観察した。得られた明視野像から、AlN バリアの膜厚が 0.8-1.1 nm であり、先行研究よりも 1.5-2 倍程度薄いことがわかった。 R_{TA} はバリアの厚さに指数関数的に依存するため、 R_{TA} はバリアが薄い部分の厚さに強く依存する。このため、バリアのポテンシャルエネルギーが同じだと仮定すれば、 R_{TA} がほぼ同じで平均的に薄いことはバリアの厚さがより一様であることを意味すると考えられる。また、このことは窒素原子によってより薄く均一な厚さの AlN バリアが形成されるという描像と整合性が

あるといえる。明視野像と電子線回折像からはまた、AlN バリアがアモルファスに近いがある程度の短距離秩序が存在する構造であることがわかった。明視野像を見る限り AlN 層はきわめて一様かつ平坦であり、これが小さいリーク電流の一因であるのは間違いないだろう。

このように、低 R_{TA} の極限では ECR 窒化法できわめて高品質なバリアを生成できることが示された。それでは、 R_{TA} を高くした場合、つまりバリアを厚くした場合には、どこまでリーク電流を減らす事ができるだろうか。これを検証するため、 $R_{TA}=3.1\text{ k}\Omega\ \mu\text{m}^2$ の Nb/Al-AlN/Nb SIS 接合を ECR 窒化法で作製し、dc $I(V)$ 特性を測定した。その結果、0.3 K におけるサブギャップ電流は、超伝導体の準粒子状態密度分布を考慮し、理想的なバリアを仮定した理論計算により再現できることがわかった。これにより、この Nb/Al-AlN/Nb SIS 接合のトンネル抵抗率の下限値は $4\times 10^9\ \Omega\ \mu\text{m}^2$ であり、 R_{TA} より少なくとも 6 桁大きく、きわめて欠陥が少ないことがわかった。

これらの低 R_{TA} SIS 接合を、ALMA バンド 10 および 1 THz を超える周波数の SIS ミクサに応用するため、 μm スケールの Nb/Al-AlN/Nb SIS 接合と NbTiN-マイクロストリップ線路がそれぞれ水晶基板に直接接する構造を有する、新しい SIS ミクサ素子の構造（以下 MTL 構造と呼ぶ）とその作製方法を考案した。MTL 構造は、従来の積層型の構造と比較して、i) SIS 接合の性質が、グランドプレーンの薄膜の物性（ストレス、表面粗さ、結晶性など）に影響されない、ii) SIS 接合と基板が直接接しており、SIS 接合で発生した Joule 熱の散逸が阻害されにくい、という利点をもつと考えられる。高周波シミュレーションの結果、SIS 接合と NbTiN-グランドプレーンとの間の間隔が $1\ \mu\text{m}$ 以下であれば、余分な高周波損失が無視できることが明らかになった。また、実際に MTL 構造の SIS 素子を作製したところ、NbTiN グランドプレーンと組み合わせても全 Nb-SIS 素子と遜色ない dc $I(V)$ 特性が得られることが示された。

最後に、本研究で作成方法を確立したきわめて R_{TA} の小さい Nb/Al-AlN/Nb SIS 接合の応用例として、現在開発中の 0.8 THz 帯用受信機 AERO を紹介する。AERO は、ASTE (Atacama Submillimeter Telescope Experiment) 望遠鏡に搭載予定であり、ALMA バンド 10 用に設計された SIS ミクサ素子と互換性がある。狙いは、数年後の ALMA バンド 10 の稼働前に、低雑音な SIS ミクサをいち早く観測天文学に応用することである。既に光学系及び IF 系の組み立てが完了しており、いよいよミクサを搭載しての冷却高周波試験を開始できる段階に至った。上記 ECR 窒化法で作製した Nb/Al-AlN/Nb SIS 接合と、NbTiN/SiO₂/Al マイクロストリップラインからなる SIS ミクサ素子は、ALMA バンド 10 の試験用受信機で 300 K 以下のきわめて低い受信機雑音温度を達成している。これは、全 Nb-SIS 素子を採用していた試作型受信機のおよそ 1/5 という飛躍的改善である。今後このような SIS ミクサを AERO に実装すれば、0.8 THz 帯の観測天文学に先鞭をつけることができるだろう。

このように、AlN トンネルバリアの生成過程における活性窒素種の役割に注目することで、きわめて R_{TA} の小さい Nb/Al-AlN/Nb SIS 素子の作製方法を確立することができた。これにより、ALMA バンド 10 の SIS 素子開発は大きく前進し、今では国際的な性能仕様の達成を目前にしている。さらに、今回の研究の結果得られた「活性種の反応性が高いほど、薄くかつ一様な膜が生成する」という示唆が一般的に正しいならば、より解離率を高めた窒素雰囲気、あるいは酸素雰囲気の中でバリアを生成する事で、今後さらに低 R_{TA} のトンネルバリアを生成できる可能性がある。このようなトンネルバリアは、SIS ミクサ、STJ 検出器、Cooper 対箱などの天文用電磁波検出デバイスはもちろん、不揮発性メモリや超伝導集積回路など産業用にも応用が期待される。今後のさらなる展開が期待される。