

## 7-6 エピタキシャル窒化ニオブによる テラヘルツ帯ミキサの研究開発

### 7-6 Development of Epitaxial NbN THz Mixers

川上 彰 武田正典 王 鎮

KAWAKAMI Akira, TAKEDA Masanori, and WANG Zhen

#### 要旨

テラヘルツ帯でのミキサ開発を目指して、NbN/MgO 多層膜のエピタキシャル成長法と、すべてエピタキシャル多層膜で構成した NbN/MgO/NbN-SIS 接合の作成プロセスを開発した。エピタキシャル NbN 薄膜の表面抵抗を評価した結果、0.1–0.8 THz の周波数領域において 2.6–25 mΩ の低損失特性が得られた。また作製した NbN/MgO/NbN-SIS 接合は優れたトンネル特性を有し、同接合による SIS ミキサは、Nb のギャップ周波数を超える 795 GHz において受信機雑音温度 260 K (DSB) の低雑音特性を示した。同時にフッ素ラジカルエッティング法を開発し、素子の高耐久性を目指した新しい HEB 作製プロセスを考案した。試作した HEB ミキサは 780 GHz で受信機雑音温度 615 K (DSB) の優れた低雑音特性を示した。

We have developed fabrication processes for epitaxial NbN/MgO/NbN trilayers. The surface resistance of the epitaxial NbN films was estimated to be approximately 2.6–25 mΩ at 0.1–0.8 THz. We also have succeeded to fabricate epitaxial NbN/MgO/NbN Josephson tunnel junctions with good tunneling characteristics. The fully epitaxial SIS mixers showed low-noise properties over the Nb gap frequency, and the DSB receiver noise was 260 K at 795 GHz. We also report on a new structure and the new process of HEB mixers that uses fluoride radical etching to improve both durability and reproducibility. The receiver noise temperature of the HEB mixer was evaluated and it was about 615 K at 780 GHz.

#### [キーワード]

エピタキシャル, テラヘルツ, NbN, MgO, SIS, HEB

Epitaxial, THz, NbN, MgO, SIS, HEB

## 1 まえがき

次世代の超高速通信や地球環境計測、電波天文学等の分野において、テラヘルツ帯での受信機及び発振器の開発が望まれている。これらを構成する導体材料には低損失特性が要求されるが、従来から利用してきたニオブ（以下 Nb）超伝導材料の場合、ギャップ周波数（以下  $f_g$ ）は約 725 GHz であり、この周波数を超えるテラヘルツ帯での導体材料としては問題がある。Nb に代わる超伝導材料として、以前からより高いギャップ周波数を有する窒化ニオブ（以下 NbN,  $f_g = 1.4 \text{ THz}$ ）が期待されてきた。しかし NbN の低損失特性は薄膜の

結晶性に大きく依存することが知られており<sup>[1]</sup>、テラヘルツ帯 NbN デバイス開発への導入には、良好な結晶性を保ちながらデバイスを作製するエピタキシャル素子作製技術が必要となり、このことが NbN を用いたデバイス開発を困難なものにしてきた。

NbN 単層膜であれば、格子整合性の良い単結晶酸化マグネシウム（以下 MgO）基板等を用いることにより、NbN 薄膜のエピタキシャル成長は可能である<sup>[2][3]</sup>。しかし受信機、発振器を構成するには、薄膜で構成したマイクロストリップ線路などによる同調回路、整合回路等構成が必要となる。図 1 にマイクロストリップ線路の概略図を示

す。同調回路、整合回路実現のためにはエピタキシャル NbN 単層膜上に更に誘電体薄膜をエピタキシャル成長させ、その上で良好な結晶性を維持しながら NbN 薄膜を成膜する必要がある。誘電体材料としては従来から低損失、低誘電率のシリコン酸化物 ( $\text{SiO}$ 、 $\text{SiO}_2$ ) が多く用いられてきた。しかしこれらの材料は NbN との格子整合性が悪く、 $\text{SiO}$ 、 $\text{SiO}_2$  上に直接成膜した NbN 薄膜は多結晶薄膜となってしまう。そのため膜中に存在する結晶粒界によると考えられる超伝導転移温度(以下  $T_c$ ) の低下及び抵抗率の上昇が生じ、テラヘルツ周波数領域での導体損が極端に増大した<sup>[1]</sup>。

近年、これらを解決する一手段として多くの研究期間において、多結晶薄膜でも比較的高い  $T_c$  及び低い抵抗率を示す NbTiN ( $T_c = 15.2\text{ K}$ 、 $20\text{ K}$  における抵抗率  $\rho_{20\text{K}} = 75\ \mu\Omega\text{cm}$ 、 $f_g = 1.2\text{ THz}$ ) が研究され、NbTiN による同調回路を有する SIS ミキサとして比較的良好な結果が報告されている<sup>[4] - [6]</sup>。しかし超伝導の導体損を支配する  $T_c$ 、 $\rho_{20\text{K}}$  はともにエピタキシャル成長した NbN 薄膜が優れている( $T_c = \text{約 } 16\text{ K}$ 、 $\rho_{20\text{K}} = \text{約 } 60\ \mu\Omega\text{cm}$ )。すなわちデバイスを構成する NbN 及び誘電体薄膜すべてをエピタキシャル成長させることで、NbTiN で構成したデバイス以上の高性能・高周波化を期待することができる。これらのことから我々は、誘電体材料として NbN との格子整合性の良い酸化マグネシウム(以下 MgO)を用いることで、デバイスを構成するすべての薄膜をエピタキシャル成長させた、NbN テラヘルツ帯デバイスの作製を試みている。

MgO 薄膜の成膜法としては従来から MgO 焼結ターゲットを用いた RF スパッタ法(以下 RF-MgO)が多く報告されており<sup>[7][8]</sup>、当初我々も RF-MgO による NbN/MgO 二層膜の作製を試みた。しかし最も理想的な成膜基板条件である MgO 単結晶基板上に、ミキサ作製に必要な数百 nm の RF-MgO を成膜した場合においても、この RF-MgO 上に作製した NbN 薄膜の超伝導特性( $T_c$ 、 $\rho_{20\text{K}}$ )は、直接 MgO 単結晶基板に成膜したエピタキシャル NbN 薄膜に比べ明らかに劣化し、RF-MgO 薄膜ではエピタキシャル成長は困難であることが分かった。これらの原因としては RF スパッタ法による遅い成膜速度、成膜に伴うイオン衝撃等による試料への表面加熱等により

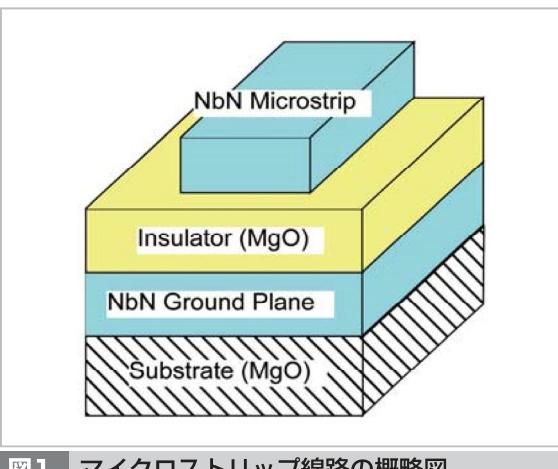


図1 マイクロストリップ線路の概略図

MgO 膜中に柱状構造が形成され、結果として MgO 薄膜上に作製した NbN 薄膜中にも結晶粒界が生じ、 $T_c$  の低下及び抵抗率の上昇を招いたものと考えている。そこで我々は、Mg 金属ターゲットを用いた DC 反応性スパッタ法を用いた MgO 薄膜作製(以下 DC-MgO)を試みた<sup>[9][10]</sup>。DC 反応性スパッタ法による成膜では、放電成膜中に電極電位が反転せず、試料へのイオン衝撃及び表面加熱の影響が RF スパッタに比べ少ないと考えられる。結果として NbN/MgO/NbN 多層膜のエピタキシャル成長に成功し、すべてエピタキシャル多層膜で構成したエピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS 接合の作成も可能にした<sup>[11] - [13]</sup>。

本論文では NICT が独自に開発したエピタキシャル NbN/MgO デバイス化技術を紹介し、エピタキシャル NbN 薄膜がサブミリ波帯における優れた低損失材料であることを示している。またエピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS 接合による準光学 SIS ミキサを試作し、795 GHz においてその低雑音特性を明らかにしている。併せて 1.4 THz の NbN ギャップ周波数以上で極低雑音動作が期待されているホットエレクトロンボロメータ(以下 HEB)について、素子の機械的・電気的耐性及び特性再現性の向上を目指した独自の作製プロセスを提案、特性評価とテラヘルツ帯ミキサとしての可能性を述べている。

## 2 テラヘルツ帯エピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS ミキサ

超伝導体(S)/絶縁体(I)/超伝導体(S)のサンド

イッチ構造を構成する SIS 接合は、半導体素子では実現困難な強い非線形特性を有している。その非線形性を利用した SIS ミキサは今日、ミリ波、サブミリ波帯において量子雑音限界に迫る極低雑音特性を示し、地球環境計測、電波天文などの分野で既に広く利用されている。SIS 接合は構造上大きな接合容量を保有しており、ミキサ動作時ににおいては容量成分を消失させる同調回路が不可欠である。しかし近年、期待される動作周波数が、これまで SIS ミキサを構成してきた Nb のギャップ周波数 (725 GHz) 以上となり、Nb の導体損増大に伴う同調回路の性能低下が大きな問題となっている。そこで我々は 1.4 THz までの周波数領域で、優れた低損失特性が期待されているエピタキシャル NbN を用いたデバイス化技術を開発した。ここではエピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS 接合を用いた THz 帯ミキサの可能性について述べている。

## 2.1 エピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜の直流及び高周波特性の評価

NbN/MgO/NbN 多層膜及び NbN 単層膜の X 線回折パターンを図 2 に示す。多層膜作製法の詳細については文献<sup>[11]</sup>で記述している。多層膜 (a) において下部 NbN 薄膜上の RF-MgO (膜厚 1.3 nm) は、DC-MgO 成膜時の放電ガスである酸素に対する下部 NbN 薄膜表面の酸化防止膜である。また上部 NbN (166 nm) に比べ下部 NbN (11 nm) を薄くしているのは、X 線解析時に全ピーク中、上部 NbN 薄膜からの回折ピークを支配的にすることを目的としている。得られた多層膜の X 線回折パターン (図 2 (a)) における NbN (200) ピークは、MgO 単結晶基板上に直接 NbN 薄膜を成膜した場合の図 2 (b) と比較して差異は見られなかった。また上部 NbN 薄膜の直流超伝導特性 ( $T_c$ 、 $\rho_{20K}$ ) は各々 15.8 K、 $57.4 \mu\Omega \text{ cm}$  で、直接 MgO 単結晶基板上に成膜した場合 ( $T_c = 15.6 \text{ K}$ 、 $\rho_{20K} = 64 \mu\Omega \text{ cm}$ ) と比べて劣化は見られず優れた特性を示した。

次にこの多層膜の高分解 TEM 観測を行った。図 3 に各層の電子線回折図と断面 TEM 写真を示す。電子線回折図はすべて同様な二次元格子点配列を示し、各層が基板と同一方位で結晶成長していることが分かる。各層界面における TEM 格子

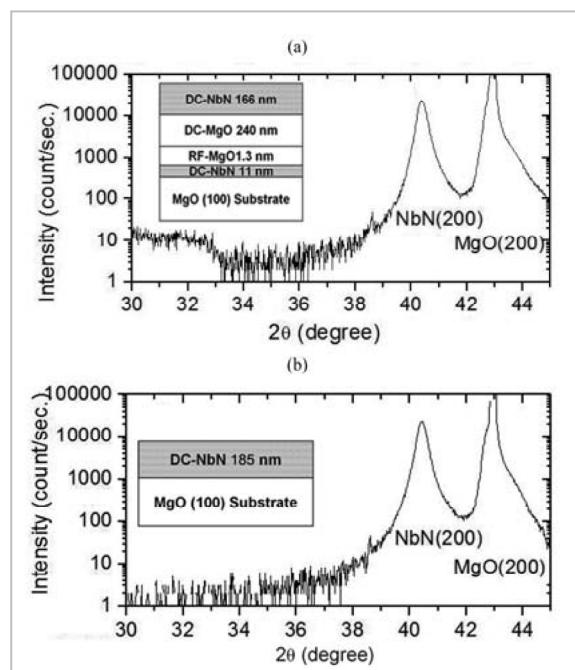


図2 NbN/MgO/NbN 多層膜(a)およびNbN 単層膜(b)のX線回折パターン

像からもアモルファス層などは観測されず、同一方位で結晶成長していることが確認できた。また約  $1 \mu\text{m}$  の TEM 観測領域において多層膜内に柱状構造は観測されなかった。X 線解析及び以上のことから NbN/MgO/NbN 多層膜はエピタキシャル成長していると考えている。

エピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜における上部 NbN 薄膜超伝導特性の中間層 MgO 膜厚依存性を図 4 に示す。ここで中間層 MgO 薄膜の膜厚を  $0 \sim 480 \text{ nm}$  間で変化させたが、上部 NbN 薄膜の転移温度  $T_c$  及び  $\rho_{20K}$  は MgO 単結晶基板上に直接 NbN 薄膜を成膜した場合と変わらず、劣化は見られなかった。層間 MgO の膜厚  $480 \text{ nm}$  時においても上部 NbN 薄膜は各約 15.8 K、 $59.0 \mu\Omega \text{ cm}$  の優れた直流特性を示した。これらは SIS 受信機の同調回路に用いて既に良好な結果を報告している NbTiN 薄膜より  $T_c$ 、 $\rho_{20K}$  ともに優れている。超伝導特性を表現する BCS 理論より、エピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜は、NbN のギャップ周波数である 1.4 THz までのテラヘルツ帯において優れた体損失特性を有することを示唆している。

これまで SIS ミキサは SIS トンネル接合の高臨界電流密度化、接合面積の極小化による接合容量

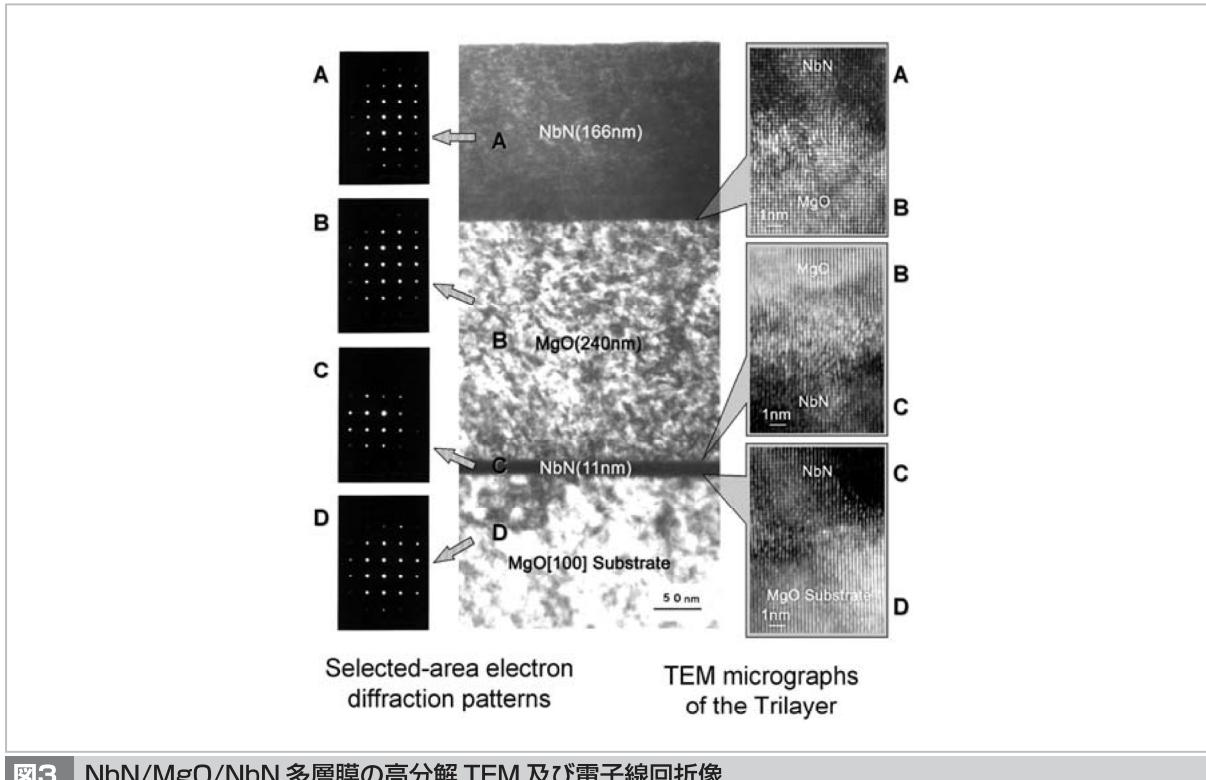


図3 NbN/MgO/NbN 多層膜の高分解 TEM 及び電子線回折像

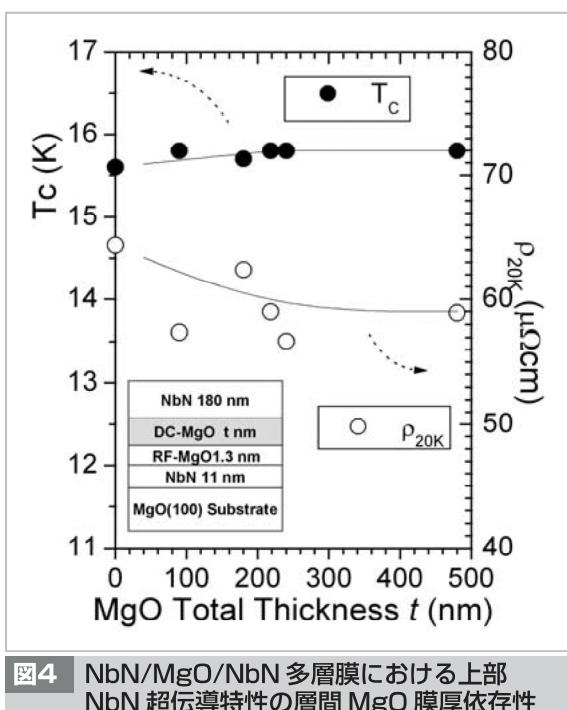


図4 NbN/MgO/NbN 多層膜における上部 NbN 超伝導特性の層間 MgO 膜厚依存性

の極小化により動作周波数の向上を達成してきた。しかし現在、良好な非線形性を保有した状態で得られる最大の臨界電流密度は、我々の報告している NbN/MgO/NbN トンネル接合では

20 kA/cm<sup>2</sup>程度であり [13]、Nb 系接合においても高  $J_c$  化に伴う特性の劣化が報告されている [14][15]。このことはテラヘルツ帯での SIS ミキサ開発において、必然的に大きな接合容量を有する SIS 接合を使用しなければならないことを意味し、結果として同調回路などの回路を構成する導体材料の低損失特性が、従来以上に要求されることになるとを考えている。そこでエピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜のサブミリ波帯における表面抵抗  $R_s$  の評価を試みた。

マイクロストリップ共振器の中央にジョセフソン接合配置した共振器一体型ジョセフソン接合を作製し、エピタキシャル NbN 薄膜のサブミリ波帯における表面抵抗評価を試みた。図 5 に作製した共振器一体型ジョセフソン接合の素子写真を示す。ここで同ジョセフソン接合は、すべてエピタキシャル成長した薄膜で構成されている。超伝導二端子素子であるジョセフソン接合は、AC ジョセフソン効果によりサブミリ波帯における電圧依存型発振器として動作する。そのため共振器内に配置したジョセフソン接合は、電流-電圧特性上、自己発振周波数と共振周波数が一致する電圧位置に共振ステップが発生する [16]。このステップ高

さは共振器損失に依存することから、測定値と計算機シミュレーションとを比較することにより共振器損失を決定し、共振器を構成する NbN 薄膜の表面抵抗を導出した。評価法の詳細については文献<sup>[17]</sup>で述べている。図 6 にサブミリ波帯におけるエピタキシャル NbN 薄膜の表面抵抗  $R_s$  を示す。図中実線、点線、破線は各 NbN、Nb、Al の理論値である。0.2–0.8 THz の周波数領域において測定した NbN 薄膜表面抵抗は、Al の理論値より低い約 3.5–25 mΩ が得られた。ここで同調回路を構成する導体材料に要求される表面抵抗  $R_s$  の目安を J. Zmuidzinas ら<sup>[18]</sup>は次のように検討している。超伝導体の表面リアクタンス  $X_s$  は  $X_s = \omega L = \omega \mu_0 \lambda$  であらわされる。式中の  $\lambda$  は超伝導磁場侵入長、 $\mu_0$  は真空の透磁率である。マイクロストリップ線路などで同調回路等を構成する場合、少なくとも表面抵抗  $R_s$  が  $X_s$  より充分小さい必要がある。また設計周波数における接合容量  $C_J$  の影響を考慮することで、同調回路を構成する導体材料の表面抵抗は次式を満足する必要がある。

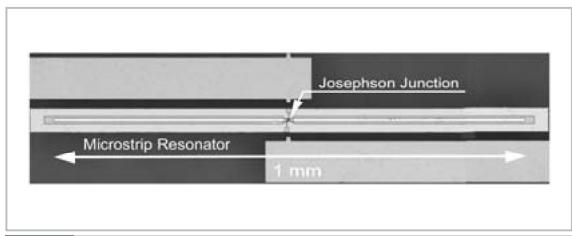


図5 NbN 表面抵抗評価用共振器一体型ジョセフソン接合の電子写真

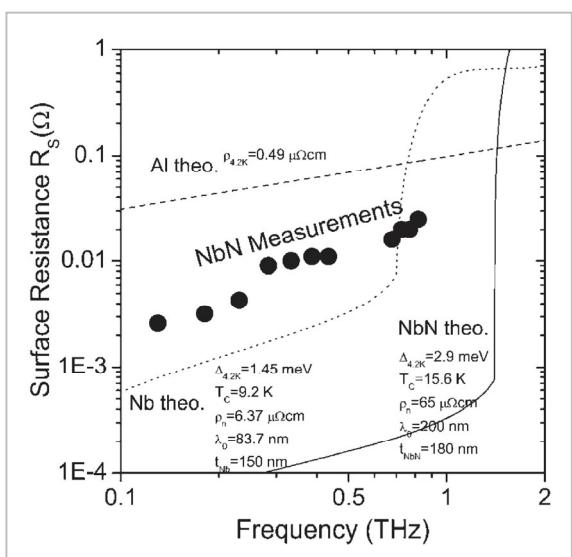


図6 サブミリ波帯におけるエピタキシャル NbN 薄膜の表面抵抗

$$R_s \ll 2\pi\eta_0\lambda / (\lambda_0 Q) \quad (1)$$

ここで  $\eta_0 = 377 \Omega$ ,  $\lambda_0$  は自由空間における波長である。また  $Q$  は SIS 接合のノーマル抵抗  $R_N$ 、接合容量  $C_J$  から  $Q = \omega C_J R_N$  としており、SIS ミキサの帯域を反映するパラメータである。ここで一般的な値として、接合抵抗と面積との積  $R_N A = 20 \Omega \mu\text{m}^2$ 、 $C_J/A = 120 \text{ fF}/\mu\text{m}^2$ 、 $f = 0.8 \text{ THz}$ 、 $\lambda = 200 \text{ nm}$  とした場合、(1) 式から  $R_s \ll 0.11 \Omega$  が得られる。これに対して 0.8 THz 付近での NbN の表面抵抗測定値は約 25 mΩ であり、テラヘルツ帯 SIS 受信機を構成する導体材料として、エピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜は有効であると考えられる。

## 2.2 エピタキシャル NbN/MgO/NbN トンネル接合による 870 GHz 帯準光学 SIS 電磁波受信機の試作

トンネル接合における非線形性は受信機性能に大きく影響を与える。我々は MgO トンネルバリアを用いたエピタキシャル NbN/MgO/NbN トンネル接合の作成プロセスを検討、層間絶縁層を含めすべてエピタキシャル多層膜で構成したトンネル接合を試みた<sup>[13]</sup>。NbN/MgO/NbN トンネル接合は MgO (100) 単結晶基板上に形成している。NbN 成膜には DC 反応性スパッタ法を用い、またトンネルバリアである MgO 薄膜は RF スパッタ法を用いて成膜している。ここで成膜に際して基板加熱は行っていない。作製した NbN/MgO/NbN 多層膜は X 線回折によりエピタキシャル成長していることを確認している。また NbN 薄膜の超伝導特性は上下電極とともに  $T_c = 15.7 \text{ K}$ 、 $\rho_{20K} = 57 \mu\Omega\text{cm}$  と良好な特性を示した。

4.2 K における典型的なエピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS 接合の電流–電圧特性を図 7 に示す。ここで  $R_N$  は 8 mV における接合抵抗、またリーキ電流を示すパラメータとして 4 mV における接合抵抗  $R_{4mV}$  と臨界電流  $I_c$  との積  $V_m = I_c R_{4mV}$  を定義した。また各接合面積は約  $3.1 \mu\text{m}^2$ 、接合臨界電流密度  $J_c$  は各々  $2.5 \text{ kA}/\text{cm}^2$  (a)、 $10 \text{ kA}/\text{cm}^2$  (b)、 $54 \text{ kA}/\text{cm}^2$  (c) である。(a)、(b) においてはいずれも高いギャップ電圧、低リーキ電流の良好なトンネル特性を示した。高  $J_c$  である  $54 \text{ kA}/\text{cm}^2$  においても自己加熱による  $V_{GAP}$  の減

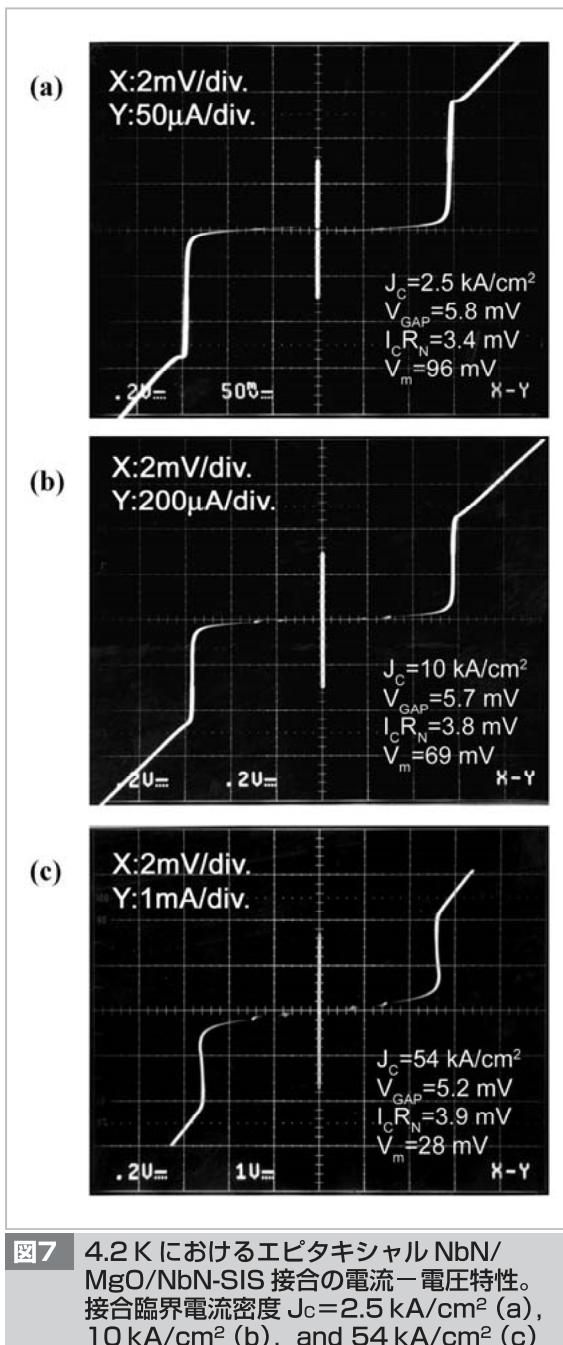


図7 4.2 K におけるエピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS 接合の電流一電圧特性。  
接合臨界電流密度  $J_c = 2.5 \text{ kA/cm}^2$  (a),  $10 \text{ kA/cm}^2$  (b), and  $54 \text{ kA/cm}^2$  (c)

少は見られるが、 $V_m = 28 \text{ mV}$  を示し、良好なトンネル特性であると考えている。

エピタキシャル多層膜で構成した準光学型 NbN/MgO/NbN-SIS 受信機を試作し、その特性評価を行った<sup>[19]</sup>。図 8 に作製した受信機の素子写真を示す。今回、同調回路としてはエピタキシャル NbN-SIS 接合自身を全波長共振器として機能させ、接合容量に起因する虚数成分を除去する同調方式を採用している。接合寸法は長さ  $7 \mu\text{m}$ 、幅約  $0.6 \mu\text{m}$  で設計周波数は  $870 \text{ GHz}$  あ

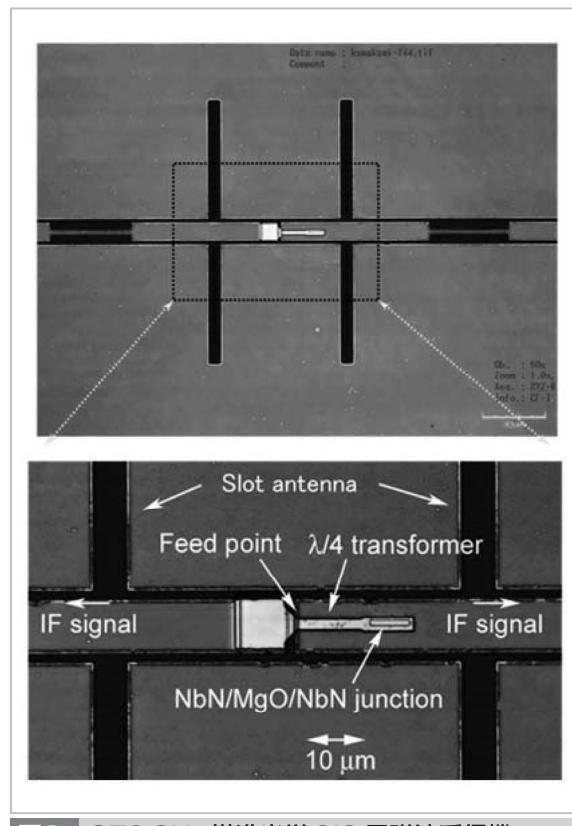


図8 870 GHz 帯準光学 SIS 電磁波受信機の  
顕微鏡写真

る。空間との結合はツインスロットアンテナを介して行っており、アンテナと接合とはアンテナインピーダンスと一致させたコプラナーラインを介して、幅  $2 \mu\text{m}$  の  $1/4$  波長 NbN/MgO/NbN マイクロストリップ整合回路で接続させている。これらは MgO (100) 単結晶基板上に形成しており、受信機を構成する NbN、MgO 全薄膜は X 線回折によりエピタキシャル成長していることを確認している。

受信機性能は準光学受信機システムにより評価しており、測定構成の詳細は文献<sup>[20]</sup>で述べている。図 9 に作成した SIS 受信機のサブミリ波電磁波応答特性を示す。照射周波数  $795 \text{ GHz}$  で、 $77 \text{ K}$  と  $300 \text{ K}$  の熱輻射による Y ファクター法で受信機雑音温度を評価した。図中点線は  $77 \text{ K}$  の熱輻射に対する IF 出力、実線は  $300 \text{ K}$  の熱輻射による IF 出力である。LO 照射に伴い明瞭な Photon-assisted tunneling が観測された。今回、トンネル接合の臨界電流密度  $J_c$  は設計値 ( $25 \text{ kA/cm}^2$ ) より大きく異なり約  $4 \text{ kA/cm}^2$  で  $\omega C_J R_N$  積は約 50 であったが、受信機雑音温度  $T_{\text{N(DSB)}} = 260 \text{ K}$  の低雑

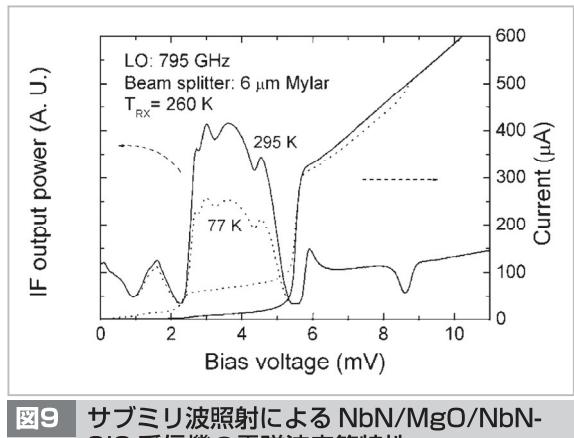


図9 サブミリ波照射による NbN/MgO/NbN-SIS 受信機の電磁波応答特性

音特性を示した。このことは同調、整合回路に用いているエピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜が極低損失であることを意味しており、エピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS 受信機は、テラヘルツ帯 SIS 受信機として有望であると考えられる。

### 3 テラヘルツ帯 NbN-HEB の研究

ミリ波、サブミリ波領域において SIS ミキサは、現在最も優れた低雑音・高感度ヘテロダイイン検出器である。しかし先に述べたように、SIS ミキサは構造的に大きな寄生容量を持ち、そのため同調回路が必要である。しかし同回路をマイクロストリップラインなどで構成する以上、回路を構成する材料特性がミキサ性能の上限周波数を決定してしまう。NbN を用いた場合でも少なくとも 1.4 THz 以上では、優れた特性を達成することが困難になると考えられる。1.4 THz 以上のテラヘルツ周波数領域では、構造上、寄生容量が小さく同調回路が不要な HEB が低雑音ミキサとして期待されている。

#### 3.1 フッ素ラジカルエッチング法による NbN-HEB の作成プロセスの検討

THz 周波数領域での低雑音ミキサとして期待されている HEB は、近接した金属電極間に数 nm 極薄の超伝導薄膜を配置した構造を有している。既に我々は同プロセスにより良好な受信特性を持つ HEB (IF 帯域幅 2.0 GHz、雑音温度 780 K at 900 GHz) の作製・評価に成功している [21]。しかし作製した HEB は、機械的・電気的耐性に弱く、

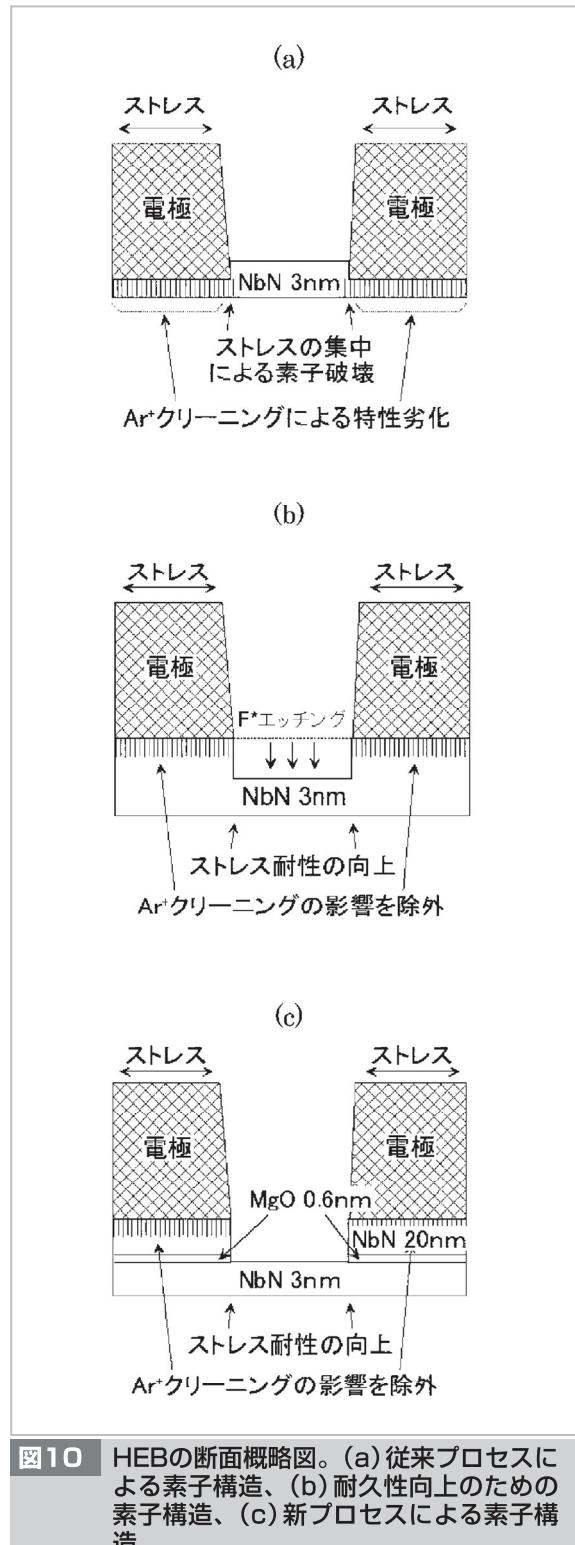


図10 HEBの断面概略図。(a)従来プロセスによる素子構造、(b)耐久性向上のための素子構造、(c)新プロセスによる素子構造

応用上の障害になっていた。図 10(a)に一般的な素子作製プロセスによる HEB の断面概略図を示す。従来プロセスでは厚さ 3 nm 程度の超伝導膜上にアルミなど金属電極を成膜していたが、金属電極取り付け時に行う NbN 薄膜表面の Ar

イオンビーム等表面クリーニングにより NbN 極薄膜は更に薄くなり、外部からのサージなどにより破壊される可能性が増大していたと考えている。また液体ヘリウム温度(4.2 K)での冷却による熱サイクル及び金属電極が有するストレスにより、薄くなった NbN 薄膜を機械的に破壊することも考えられる。

これらの対策として図 10(b)に示す素子構造を検討している。最初に膜厚約 3 nm の NbN 極薄膜ではなく、数十 nm の比較的厚い NbN 薄膜を成膜し、金属電極を付加する。最後にフッ素ラジカルエッティングにより、NbN 薄膜を適当な 3 nm 程度までエッティングし、HEB 素子構造を完成させる。これにより NbN 薄膜に 3 nm より薄い部分がなくなり、機械的、電気的に強度が増すものと考えている。また Ar イオンクリーニングによる超伝導特性の劣化も初期 NbN 薄膜膜厚を数十 nm の程度な厚さに保つことで除外できると考えている。しかし図 10(b)の構造では NbN ストリップの膜厚を確定することは困難であるため、今回、図 10(c)に示す素子構造を採用した。ここで中間の MgO は 0.6 nm と極薄いためトンネル電流の電流密度は高く(約 20 kA/cm<sup>2</sup>以上)電気的には無視できることと考えられる。

新プロセスを実現するためには NbN 薄膜にダメージを与えることなく薄くするエッティング法が必要であった。そこで新たにフッ素ラジカルエッティング法を開発した。図 11 にフッ素ラジカルエッティング法の概念図を示す。ここでフッ素ラジカルの発生源として、ECR (Electron Cyclotron Resonance) イオン源を用いた。ECR イオン源に CF<sub>4</sub>ガスを導入し、プラズマを発生させる。通常のイオンビームエッティングではイオン引き出しグリッドに直流電圧を印加して CF<sub>3</sub><sup>+</sup>イオンを加速して試料に照射、エッティングを行うが、ここではイオン引き出しグリッドは 0 V に設定し、濃度分布のみでフッ素ラジカルを拡散させており、NbN 薄膜表面に到達したフッ素ラジカルが Nb と反応してエッティングに寄与することになる。電気的加速を伴うイオンを用いて電気的に中性なフッ素ラジカルをエッティングに用いることで、イオン衝撃による極薄膜特性の劣化の抑制している。

試料には事前に膜厚測定用の抵抗測定用 4 端子パターンを作成している。電気的中性なフッ素ラ

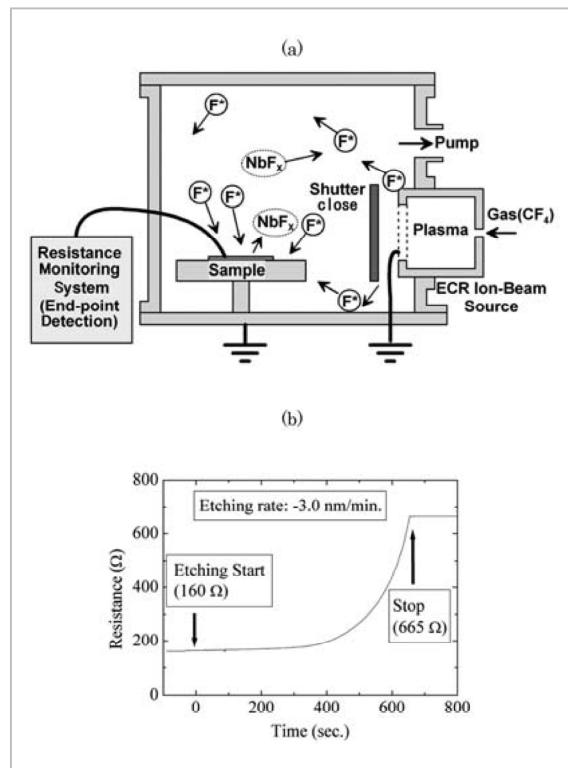


図 11 フッ素ラジカルエッティング法。(a) 概念図、(b) 測定した薄膜抵抗の時間変化

ジカルを用いることで、エッティング中においても薄膜抵抗の測定が可能であり、試料の薄膜抵抗を測定することで、被エッティング材料である NbN 薄膜の残膜量の目安を得ることができる。図 11 (b) に測定した薄膜抵抗の時間変化を示す。今回エッティング開始時に 166 Ω (膜厚 20 nm) の薄膜抵抗を示していたが、フッ素ラジカルエッティングにより約 11 分後 665 Ω まで薄膜抵抗は増大した。NbN 薄膜の抵抗率を一定と仮定した場合、最終的な抵抗値から残った膜厚は 4.8 nm と考えられるが、触針式段差計(アルファステップ 500: テンコール社製、垂直分解能 0.1 nm)で実測したところ、5.4 nm が得られた。初期成長膜の抵抗率が増大することを考慮した場合、両膜厚は適切な値であると考えられる。フッ素ラジカルエッティング後の極薄膜の超伝導転移温度 T<sub>c</sub> と 20 K における抵抗率は各 T<sub>c</sub> = 11.3 K,  $\rho_{20K} = 92 \mu\Omega\text{cm}$  であった。これらは MgO 基板エッティング単結晶基板に直接成膜した NbN 極薄膜(膜厚 5.5 nm 時、T<sub>c</sub> = 12.8 K,  $\rho_{20K} = 110 \mu\Omega\text{cm}$ )と比べても優劣なく、エッティングによるダメージはないと考えられる。

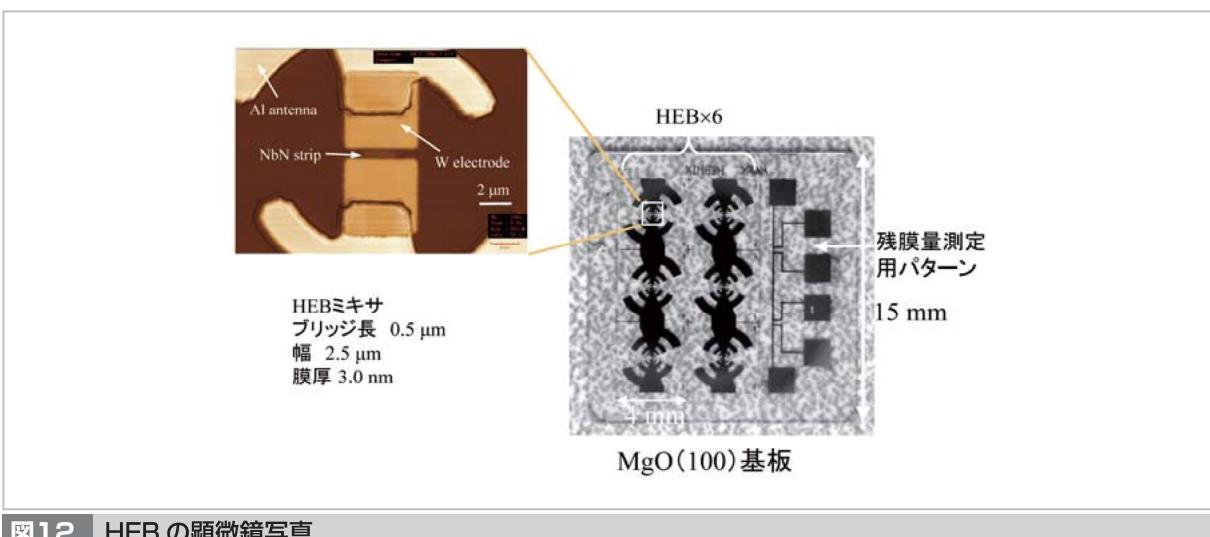


図12 HEB の顕微鏡写真

### 3.2 エピタキシャル NbN-HEB の電磁波応答特性

フッ素ラジカルエッチング法により作成した HEB の顕微鏡写真を図 12 に示す。HEB は NbN ストリップ部、タンゲステン (W) 電極及び Al 薄膜によるログペリオディックアンテナにより構成されている。まず MgO (100) 単結晶基板上に NbN (20 nm)/MgO (0.6 nm)/NbN (3 nm) 三層を成膜、W 電極、Al アンテナ形成後に F\* エッチングにより三層膜の上部 NbN (20 nm) をエッチングし、ストリップ部を形成した。ここで NbN 及び MgO 薄膜は、エピタキシャル成長していることを確認している。また微細化に伴いストリップ部電流密度の増大することから、熱的電極破壊の防止のため電極材料には比較的抵抗率が低く高融点材料であるタンゲステンを採用している。NbN ストリップ部は電子ビームリソグラフィにより形成しており、その寸法は膜厚 3.0 nm、幅 2.5  $\mu\text{m}$ 、長さ 0.5  $\mu\text{m}$  であった。

作成した HEB 素子の耐久性評価を行った。50 日間にわたる経時及び HEB 素子の端子脱着を伴う 14 回の室温-4.2 K の熱サイクルを加えたが、直流特性は全く変化せず、新プロセスの導入により電気的・機械的耐久性は向上したと考えている。図 13 に 780 GHz における HEB ミキサの電磁波応答特性を示す。受信機雑音温度評価には Y ファクター法を用いて評価したが、結果として測定周波数 780 GHz において受信機雑音温度  $T_{\text{N}}(\text{DSB}) = 615 \text{ K}$  の低雑音特性が得られた。

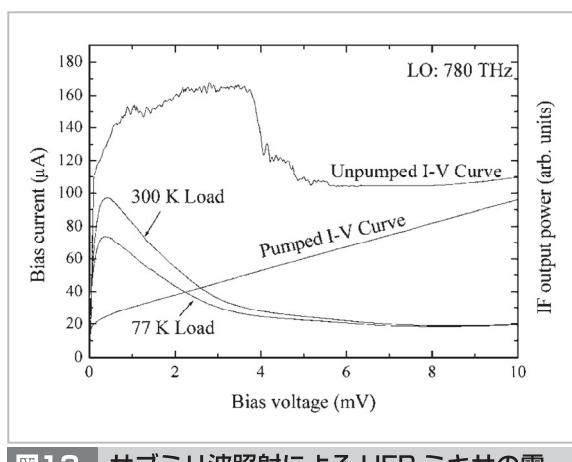


図13 サブミリ波照射による HEB ミキサの電磁波応答特性

### 4 むすび

テラヘルツ帯における低雑音ミキサ開発を目的として、エピタキシャル NbN/MgO/NbN デバイス化技術を検討した。エピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜における上部 NbN 薄膜の  $T_c$  及び  $\rho_{20K}$  を評価した結果、層間 MgO の膜厚増大に伴う超伝導特性の劣化は見られず、すべて約 15.7 K、約 60  $\mu\Omega\text{cm}$  の良好な直流特性を示した。また 0.2–0.8 THz の周波数領域において作成した NbN 薄膜は表面抵抗約 3.5–25 m $\Omega$  の優れた低損失特性を示した。

作成したエピタキシャル NbN/MgO/NbN-SIS 接合はいずれも高いギャップ電圧、低リーク電流の良好なトンネル特性を示し、試作した準光学

SIS ミキサは、795 GHzにおいて受信機雑音温度 260 K (DSB) の優れた低雑音特性を示した。

HEB の耐久性及び特性再現性の向上を目指し、フッ素ラジカルエッチング法による新しい HEB 作製プロセスを提案した。作成した HEB 素子は、50 日間にわたる経時及び 14 回の熱サイクルにも特性変化せず、素子耐久性が向上したと考えている。また HEB ミキサの受信機雑音温度を評価した結果、780 GHzにおいて 615 K (DSB) の低雑音特性が得られた。

0.3~3 THz の周波数領域において現在報告されている各種ヘテロダイン受信機の雑音温度を図 14 に示す。現在他研究機関において、約 1 THz 付近で NbTiN を同調回路に用いた優れた Nb-SIS ミキサの報告がなされている。その一方で NICT における NbN/MgO/NbN-SIS も同レベルの低雑音特性を示していることが分かる。ここで NbTiN のギャップ周波数は 1.2 THz であり、我々は今後アンテナを含めた同調・整合回路の最適化により、エピタキシャル NbN-SIS ミキサは 1.4 THz までの周波数領域での極低雑音受信機として期待できている。一方で HEB は、1 THz 付近では NbN-SIS ミキサに雑音特性は劣る

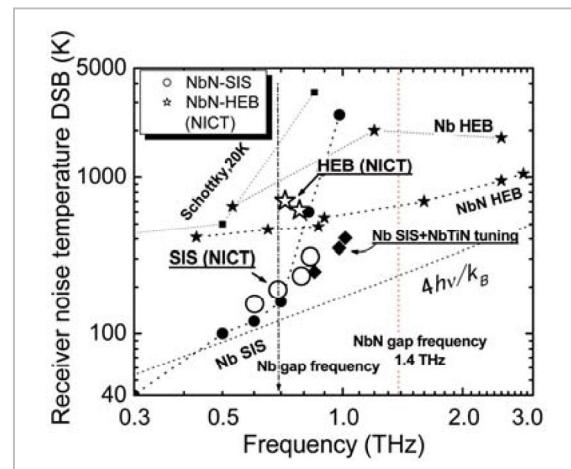


図 14 各種テラヘルツ帯ミキサの受信機雑音温度

ものの、他の報告から分かるように、その特性に大きな周波数依存性を有していないため、数 THz の周波数領域での低雑音動作が期待できると考えている。

## 謝辞

SIS 及び HEB ミキサの高周波特性評価にご協力頂いた国立天文台、鶴沢佳徳氏に感謝します。

## 参考文献

- 1 Y. Uzawa, Z. Wang, and A. Kawakami, "Terahertz NbN/AlN/NbN mixers with Al/SiO/NbN microstrip tuning circuits", Proc. 9<sup>th</sup> Int. Symp. on Space THz Technology, Pasadena, CA, pp.273-281, Mar. 1998.
- 2 Z. Wang, A. Kawakami, Y. Uzawa, and B. Komiyama, "Superconducting properties and crystal structures of single-crystal niobium nitride thin films deposited at ambient substrate temperature", J. Appl. Phys., Vol.79, No.10, pp.7837-7842, May 1996.
- 3 A. Shoji, "Fabrication of All-NbN Josephson tunnel junctions using single crystal NbN films for the base electrodes", IEEE Trans. Magn., Vol.27, pp.3184-3187, Mar. 1991.
- 4 J. Kawamura, J. Chen, D. Miller, J. Kooi, J. Zmuidzinas, B. Bumble, H. G. LeDuc, and J. A. Stern, "Low-noise submillimeter-wave NbTiN superconducting tunnel junction mixers", Appl. Phys. Lett., Vol.75, pp.4013-4015, Dec. 1999.
- 5 J. A. Stern, B. Bumble, H. G. LeDuc, J. W. Kooi, and J. Zmuidzinas, "Fabrication and DC-characterization of NbTiN based SIS mixers for the use between 600 and 1200 GHz", Proc. 9<sup>th</sup> Int. Symp. on Space THz Technology, Pasadena, CA, pp.305-313, Mar. 1998.
- 6 B. D. Jackson, A. M. Baryshev, G. de Lange, J. R. Gao, S. V. Shitov, N. N. Iosad, and T. M. Klapwijk, "Low-noise 1 THz superconductor-insulator-superconductor mixer incorporating a NbTiN/SiO<sub>2</sub>/Al tuning circuit", Appl. Phys. Lett., Vol.79, pp.436-438, Jul. 2001.

- 7 S. Nagaoka, K. Hamasaki, T. Yamashita, and T. Komata, "Microstructure and superconductivity in epitaxial MgO/NbN multilayers", Jpn. J. Appl. Phys., Vol.28, No.8, pp.1367-1372, Aug. 1989.
- 8 Y. Misaki, M. Mikawa, T. Ishiguro, and K. Hamasaki, "Effect of N<sub>2</sub> partial pressure on the structure of MgO thin films deposited by radio frequencymagnetron sputtering with single-crystal MgO target", J. Vac. Sci. Technol., A 15(1), pp.48-51, Jan/Feb. 1997.
- 9 三木茂人, 賀谷伸幸, 鶴澤佳徳, 川上 彰, 王 鎮, "NbN ホットエレクトロンボロメータの作製と IF 帯域幅の評価", 信学技法 SCE99-25, 1999.
- 10 S. Miki, N. Kaya, Y. Uzawa, A. Kawakami, and Z. Wang, "NbN phonon-cooled hot-electron bolometers prepared on MgO substrate", Proc. Int. Superconductive Electronics Conference (ISEC'99), pp.453-455, Berkeley, CA, Jun. 1999.
- 11 川上 彰, 三木茂人, 王 鎮, "DC 反応性スパッタ法によるエピタキシャル NbN/MgO/NbN 多層膜の作製", 信学論(C), vol.J84-C, No.4, pp.300-307, Apr. 2001.
- 12 A. Kawakami, Z. Wang and, S. Miki, "Low-loss epitaxial NbN/MgO/NbN trilayers for THz applications", IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol.11, pp.80-83, Mar. 2001.
- 13 A. Kawakami and Z. Wang, "Fabrication and characterization of epitaxial NbN/MgO/NbN Josephson tunnel junctions", J. Appl. Phys., Vol.90, No.9, pp.4796-4799, Nov. 2001.
- 14 M. Maezawa, M. Aoyagi, H. Nakagawa, I. Kurosawa, and S. Takada, "Subgap characteristics of Nb/AIOx/Nb tunnel junctions with high current density", IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol.5, pp.3073-3076, Jun. 1995.
- 15 A. W. Kleinsasser, W. H. Mallison, and R. E. Miller, "Nb/AlN/Nb Josephson junction with high critical current density", IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol.5, pp.2318-2321, Jun. 1995.
- 16 川上 彰, 王 鎮, 小宮山牧児, "ジョセフソン効果を用いたミリ波, サブミリ波帯における誘電率及び表面抵抗の測定", 信学論(C), Vol.J76-C-II, No.9, pp.593-600, 1993.
- 17 A. Kawakami, Z. Wang, and S. Miki, "Estimation of surface resistance for epitaxial NbN films in the frequency range of 0.1-1.1 THz", IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol.13, pp.1147-1150, Jun. 2003.
- 18 J. Zmuidzinas, J W. Kooi, J. Kawamura, G. Chattopadhyay, B. Bumble, H. G. LeDuc, and J. A. Stern, "Development of SIS mixers for 1 THz", Proc. SPIE, Vol.3357, pp.53-61, 1998.
- 19 A. Kawakami, Y. Uzawa, and Z. Wang, "Development of epitaxial NbN/MgO/NbN-SIS mixers for operations over the Nb gap frequency", Appl. Phys. Lett., Vol.83, No.19, pp.3954-3956, Nov. 2003.
- 20 Y. Uzawa, Z. Wang, and A. Kawakami, "Performance of quasi-optical mixer with NbN/AlN/NbN tunnel junctions and NbN tuning circuit at 760 GHz", Appl. Supercond., Vol.6, pp.465-475, 1998.
- 21 川上 彰, 三木茂人, 王 鎮, "NbN ホットエレクトロンボロメータの作成と IF 帯域幅の評価", 信学論(C), Vol.J83-C, No.9, pp.867-872, 2000.



川上 彰

未来 ICT 研究センター ナノ ICT グループ主任研究員 博士(工学)  
超伝導エレクトロニクス



武田正典

未来 ICT 研究センター ナノ ICT グループ専攻研究員 博士(工学)  
超伝導受信機技術



王 鎮(WANG Zhen)  
未来 ICT 研究センター ナノ ICT グループリーダー 博士(工学)  
超伝導エレクトロニクス