

# 高 S/N 比超伝導単一光子検出器の開発

研究代表者 柴田 浩行 北見工業大学 工学部 教授

## 1 はじめに

単一光子検出器は、光検出器の中で最も感度が高く、量子暗号通信、宇宙通信、レーザーレーダ、医療・バイオセンシングなど様々な先進分野の発展に不可欠な検出器である。近年開発された超伝導ナノストリップを用いた単一光子検出器 (Superconducting Strip Photon Detector 又は Superconducting Nanowire Single Photon Detector) は、従来の半導体検出器より高性能であるため注目されており、さらなる性能向上が期待されている [1-3]。例えば、物理法則に基づく究極の安全性を保つことのできる量子暗号通信では、情報の担い手として増幅不可能な単一光子を利用しているため、伝送距離の増大と共に S/N 比が低下して長距離伝送が不可能になるという欠点がある。単一光子検出器の S/N 比が向上すれば、量子暗号通信の長距離伝送が可能になる [4]。

単一光子検出器の S/N 比は、システム検出効率 ( $\eta_{\text{system}}$ ) ÷ 暗計数率 (DCR) に比例している。ここで、システム検出効率 ( $\eta_{\text{system}}$ ) は、検出器への入射光子数に対する出力パルス数の比、暗計数率は検出器に光が入射していない時の単位時間当たり出力パルス数である。従って単一光子検出器の S/N 比向上には、高いシステム検出効率と低い暗計数率を両立させる必要がある。さらに、システム検出効率 ( $\eta_{\text{system}}$ ) は、光結合効率 ( $\eta_{\text{coupling}}$ )、吸収率 ( $\eta_{\text{absorption}}$ )、および内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) の積で表すことが出来る。ここで、光結合効率 ( $\eta_{\text{coupling}}$ ) は検出器に入射した光が検出素子の有感部に照射される割合、吸収率 ( $\eta_{\text{absorption}}$ ) は、素子に照射された光が、反射・透過せずに超伝導体に吸収される割合、内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) はパルス生成率とも呼ばれ超伝導体に吸収された光子が電気パルスを出力する割合を表す。高いシステム検出効率 ( $\eta_{\text{system}}$ ) を得るには、これら 3 つのパラメータを全て向上させる必要がある。

本研究は、超伝導単一光子検出器の S/N 比向上を目標とした研究開発である。2 章では内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) の向上が期待できる窒化モリブデン (MoN) を超伝導材料に用いた検出器開発について報告する。3 章では、極低温で動作可能なナノポジショナーを用いた光結合効率 ( $\eta_{\text{coupling}}$ ) の向上、冷却した光バンドパスフィルタ導入による暗計数率 DCR の削減、およびキャビティ構造作製による吸収率 ( $\eta_{\text{absorption}}$ ) 向上の研究結果について報告する。

## 2 窒化モリブデンを用いた単一光子検出器

### 2-1 動作原理と MoN 材料

超伝導単一光子検出器の動作原理を、図 1 を用いて説明する。素子は大きさ  $15\mu\text{m}$  角、幅  $100\text{nm}$ 、厚さ  $4\text{nm}$  程度の超伝導ナノ細線からなっており、光ファイバを通じてナノ細線部に極微弱光が照射される。超伝導ナノ細線に臨界電流より僅かに低いバイアス電流を流した状態で、光子がナノ細線の一部分に吸収されると、吸収点に常伝導状態 (ホットスポット) が生じる。ナノ細線が十分に細いと、ホットスポットは細線幅一杯に拡がり有限の抵抗が生じて電圧パルスとなる。内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) は、光子のエネルギー、ナノ細線の大きさ (断面積)、バイアス電流、および材料固有の物性値に依存する。光子のエネルギーが大きい場合、多数のクーパー対が破壊されてホットスポットが大きくなり内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) は 1 に近づく。また、ナノ細線の断面積が小さく、バイアス電流が臨界

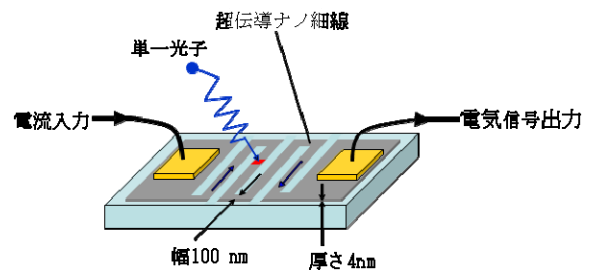


図 1 超伝導単一光子検出器概略図

電流に近い程、内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) は大きい。材料固有の物性値では、特に準粒子拡散係数 ( $D$ ) と電子格子緩和時間 ( $\tau_{\text{e-ph}}$ ) が内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) に大きく影響する。拡散係数 ( $D$ ) が大きいと、ホットスポットは電流方向に広がるため、横幅方向の広がりは小さく、電圧が発生しにくい。また、電子格子緩和時間 ( $\tau_{\text{e-ph}}$ ) が小さいとホットスポットが直ぐに格子振動に緩和して消失するため電圧が発生しにくい。従って、内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) を大きくするには、拡散係数 ( $D$ ) が小さく、電子格子緩和時間 ( $\tau_{\text{e-ph}}$ ) が大きな材料が望ましい。表 1 は、窒化モリブデン (MoN)、および超伝導単一光子検出器に通常利用されている窒化ニオブ (NbN) の物性値である [5]。これから、MoN は NbN より少し  $T_c$  が低い、拡散係数 ( $D$ ) はほぼ等しく、電子格子緩和時間 ( $\tau_{\text{e-ph}}$ ) は 1 桁以上大きいことが判る。従って、MoN を用いると NbN を用いた単一光子検出器より、内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) が大きくなることを期待できる。

薄膜	臨界温度 $T_c$ [K]	拡散係数 $D$ [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ]	電子格子緩和時間 [ps]
NbN	16	0.4	12
MoN	12	0.38	290

表 1 NbN および MoN の物性値

## 2-2 MoN 薄膜成長

超伝導単一光子検出器の作製には厚さ 10nm 以下の超伝導薄膜が必要である。反応性 DC マグネトロンスパッタ装置を用いて MoN 薄膜を成長した。ターゲットは 3 インチの Mo (>99.9%)、導入ガスは窒素 ( $\text{N}_2$ ) およびアルゴン (Ar)、基板はサファイア c 面を用いた。図 2 に成膜条件等を変化させた場合の、薄膜抵抗率の温度特性を示す。これより、Ar: $\text{N}_2$  = 6:1、全圧 0.10Pa が最適であることが判る。最終的に、素子用に成長した薄膜の抵抗率温度特性を図 2(d) に示す。厚さ 7nm で、 $T_c \sim 7\text{K}$  の MoN 極薄膜を得ることが出来た。

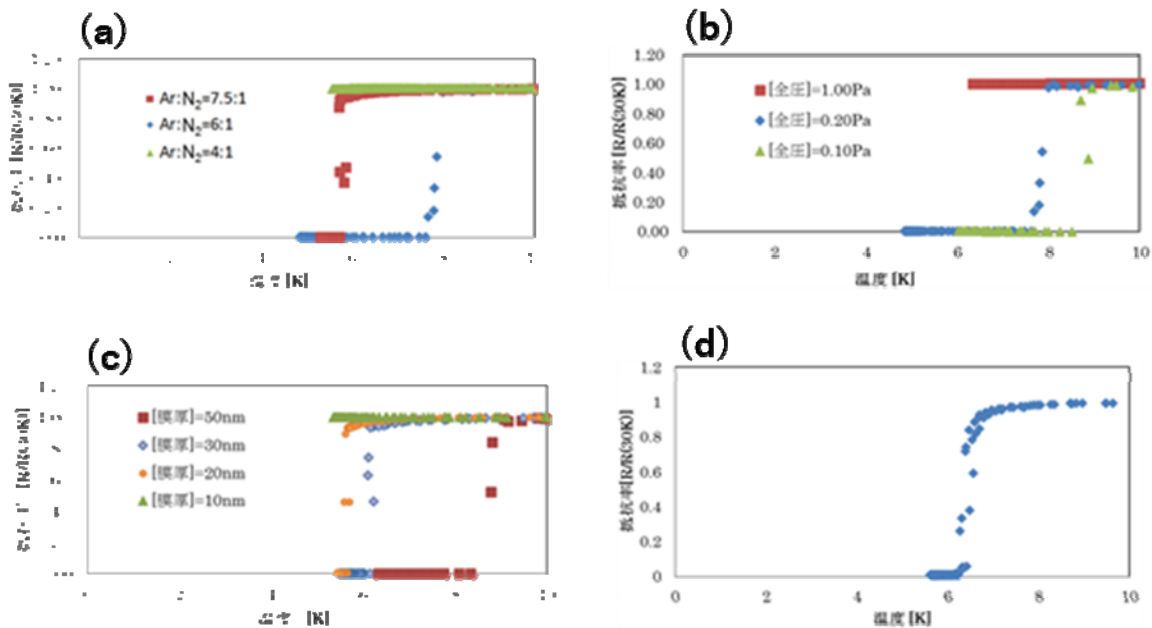


図 2 MoN 薄膜抵抗率の温度依存性：(a) 分圧変化、(b) 全圧変化、(c) 膜厚変化、(d) 素子用 (7nm 厚)

窒化モリブデンには、 $\delta$ -MoN や  $\gamma$ - $\text{Mo}_2\text{N}$  など様々な構造の物質が知られている [6]。図 3 に成長した薄膜 (厚さ 500nm) の X 線回折データを示す。観測されたピークは全てサファイア基板のピークであり、窒化モリブデン由来のピークは観測されなかった。一方、 $2\theta = 40^\circ$  付近にブロードな盛り上がりが見られた。これから、成長した薄膜はアモルファスになっていると考えられる。

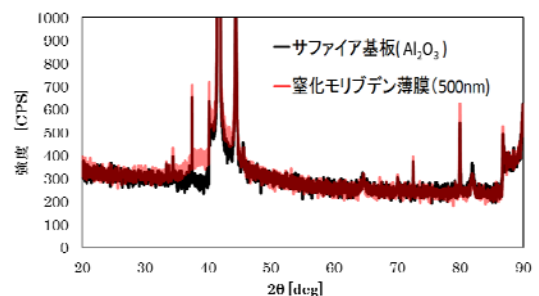


図 3 X 線回折 ( $\theta/2\theta$ )

### 2-3 MoN ナノ微細加工

成長した MoN 極薄膜にナノ微細加工を施して、デバイスを作製した。ナノ微細加工は、北海道大学ナノテクノロジー推進室（文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業）のクリーンルームを利用して行った。電子線描画装置(Elionix ELS-F130HM)、ポジレジスト(ZEP-520A)、SF<sub>6</sub>ドライエッチング装置(RIE-101iPH)などを用いて、細線幅 40nm~250nm、線間隔 70nm~250nm の 15μm 角メアング型細線を作製した。プロセスの概略を図 4 に示す。(a) レジストに電子線を照射して電極パターンを描画、(b) その上に金を蒸着後、(c) リフトオフにより電極を作製する。次に、(d) レジストにナノ細線パターンを描画後、(e) ドライエッチングによってナノ細線パターンを MoN に転写、(f) レジストを除去して完成する。

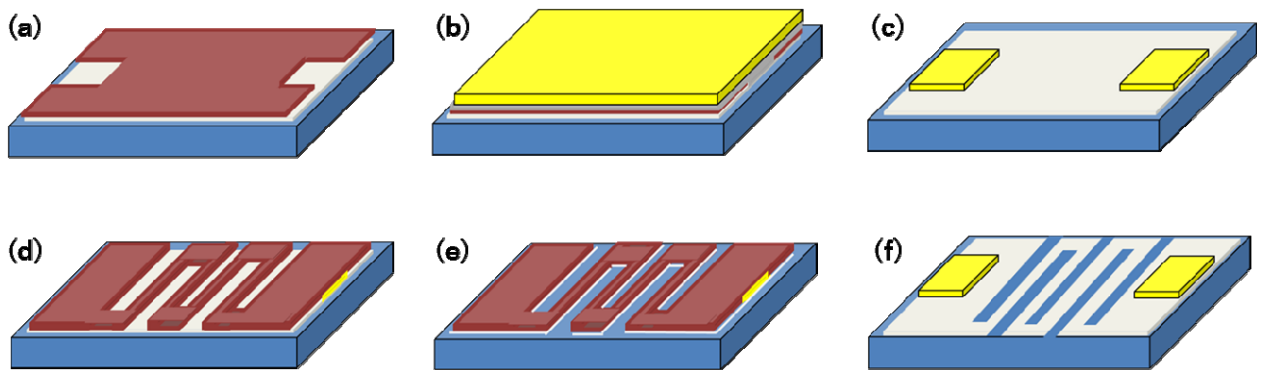


図 4 MoN 単一光子検出素子のナノ微細加工プロセス (a-c:電極作製、d-f : ナノ細線作製)

2泊3日または3泊4日の北大ナノテク出張を合計5回行い、最終的に図5のような走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を有するナノ細線を得た。欠陥がなく均一で良好な細線が作製されていることが判る。



図 5 MoN 単一光子検出素子の SEM 写真

### 2-4 MoN 単一光子検出器の特性評価

作製した単一光子検出素子の電流-電圧特性を典型的な例について図 6 に示す。超伝導細線に特有なヒステリシス特性を示しており、線幅 200nm では臨界電流  $I_c = 9.6\mu\text{A}$ 、線幅 150nm では  $7.0\mu\text{A}$ 、線幅 80nm では  $3.0\mu\text{A}$  となった。良好な電流-電圧特性から、線幅 200nm、150nm のナノ細線に光を照射すると単一光子検出可能であることが期待できる。一方、線幅 80nm のナノ細線は  $I_c$  が小さすぎるため、電圧パルスがノイズに埋もれる可能性がある。

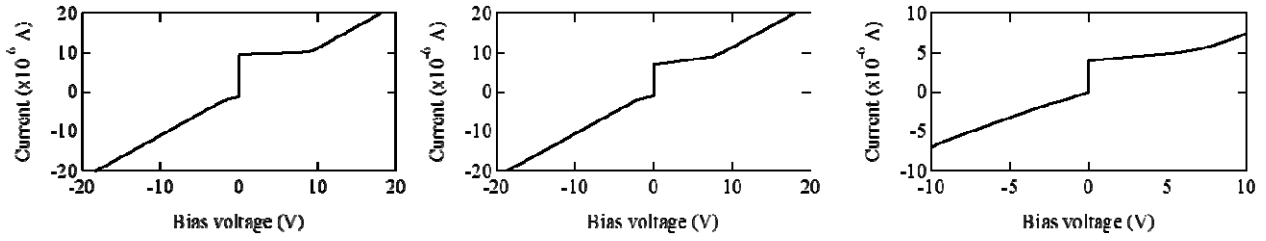


図6 MoN 単一光子検出素子の電流－電圧特性（左から線幅 200nm、150nm、80nm）

波長 1560nm の極微弱な連続光を照射することにより、検出素子の光特性を評価した。線幅 200nm のナノ細線では、システム検出効率 ( $\eta_{\text{system}}$ ) は最大 1.5% となった。図 7 に線幅 150nm ナノ細線のシステム検出効率 ( $\eta_{\text{system}}$ ) および暗計数率 (DCR) のバイアス電流依存性を示す。最大システム検出効率はバイアス電流 11 $\mu$ A において 14% であった。この値は、同サイズの NbN を用いた検出素子より約 1 桁大きい。

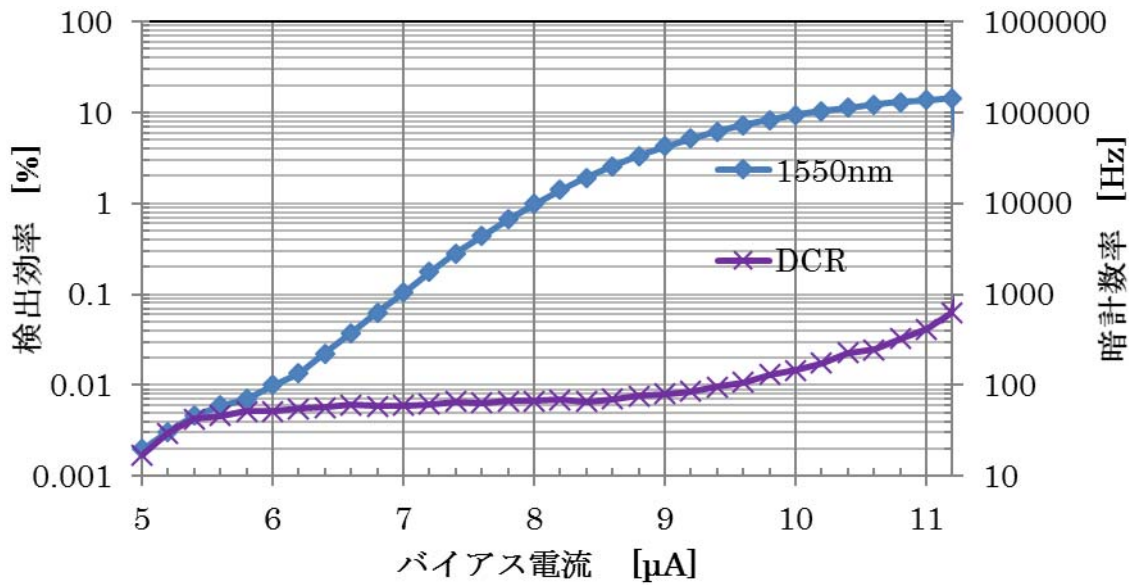


図7 MoN 単一光子検出素子（線幅 150nm）のシステム検出効率および暗計数率のバイアス電流依存性

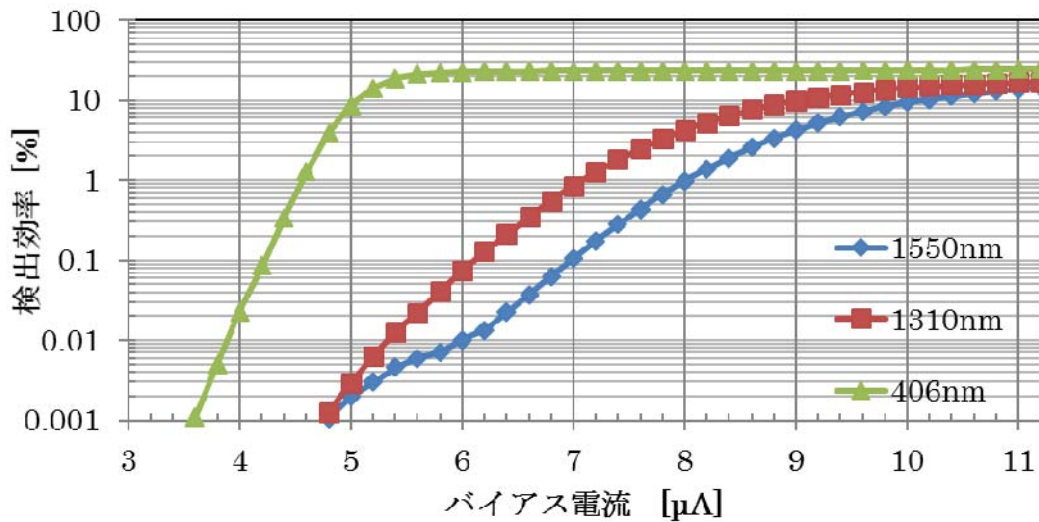


図8 様々な波長におけるシステム検出効率のバイアス電流依存性（線幅 150nm）

様々な波長におけるシステム検出効率のバイアス電流依存性を図 8 に示す。短波長ほど高い検出効率を得られている。特に波長 406nm では検出効率が低バイアス (6 $\mu$ A) 域から飽和しており、内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) は 100%であることが判る。

上記の結果から、MoN を用いると、内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) の高い検出器が得られることが明らかとなった。この原因は、予想通り MoN 固有の大きな電子格子緩和時間 ( $\tau_{\text{e-ph}}$ ) に起因すると考えられる。

### 3 窒化ニオブを用いた単一光子検出器

#### 3-1 ナノポジショナーによる光結合効率向上

通常、光ファイバから出射した光を単一光子検出素子のナノ細線部に照射するためのアライメントは、室温で実施する。しかし、冷却に伴う熱収縮によってアライメントがずれる可能性がある (図 9 参照) [7]。この問題を解決するには、図 10 の様に極低温下で動作可能なナノポジショナー (attocube) を用いて低温下でアライメントずれを補正すれば良い。今回、ナノポジショナーを導入して低温下でアライメント補正を行い、光結合効率 ( $\eta_{\text{coupling}}$ ) の向上を試みた。その結果の一例を図 11 に示す。補正によりシステム検出効率が約 2 倍向上した。

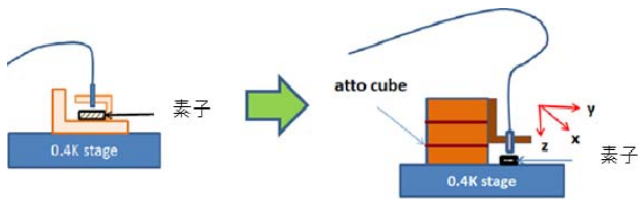


図 10 ナノポジショナー導入

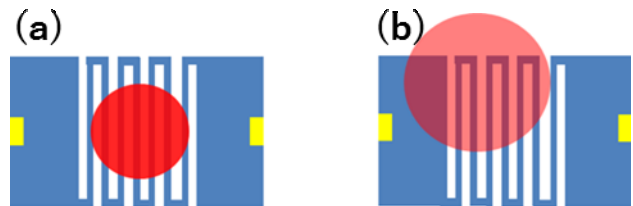


図 9 (a)アライメントずれ無、(b)ずれ有り

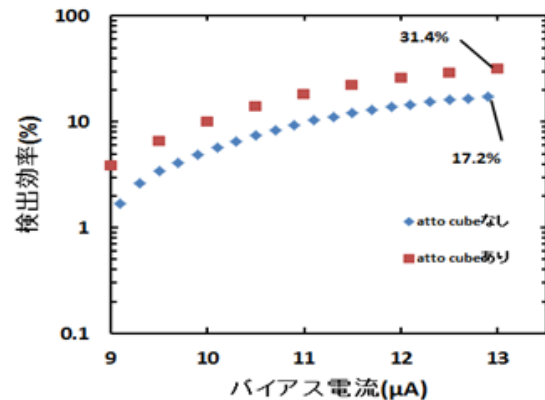


図 11 ナノポジショナー有無による $\eta_{\text{system}}$ の比較

#### 3-2 冷却フィルタによる暗計数率削減

はじめに述べたように S/N 比向上には暗計数率 (DCR) が重要である。超伝導単一光子検出器の低バイアス域における暗計数率の原因は、光ファイバを通じて流入する室温の黒体輻射に由来することが知られている [8]。これを削減するためには、図 12 に示すように素子の前に冷却した光フィルタを導入して、信号光以外の波長における黒体輻射を除去すれば良い [9]。今回、ナノポジショナーによって高い光結合効率 ( $\eta_{\text{coupling}}$ ) を有する NbN 単一光子検出素子に、光冷却フィルタを追加して S/N 比の向上を試みた。検出器の性能として、雑音等価指数 (Noise Equivalent Power, NEP) および性能指数 (Figure of Merit, FOM) を実験的に評価した。単一光子検出器において、NEP は次式で求められる。

$$\text{NEP} = h\nu (2 \times \text{DCR})^{1/2} / \eta_{\text{system}} \quad [\text{W}/\text{Hz}^{1/2}]$$

NEP は S/N 比が 1 になる時の光パワーを表し、値が

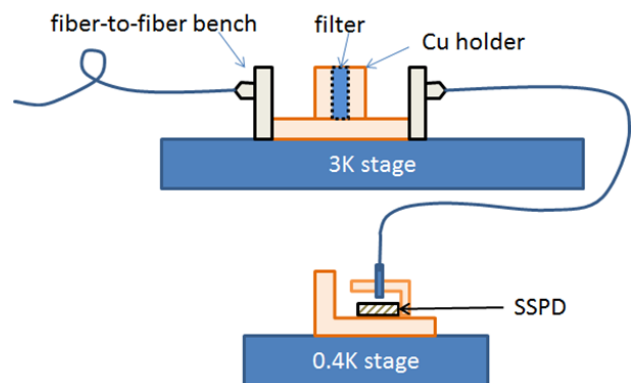


図 12 冷却光フィルタ導入



低いほど性能が高い。図 12 に冷却フィルタおよびナノポジショナーを導入した時の、NEP のバイアス依存性の結果を示す。冷却フィルタ導入により NEP は大きく減少している。ナノポジショナーおよび冷却フィルタを両方導入した時、NEP は導入無しと比較して 1 桁以上減少していることが判る。

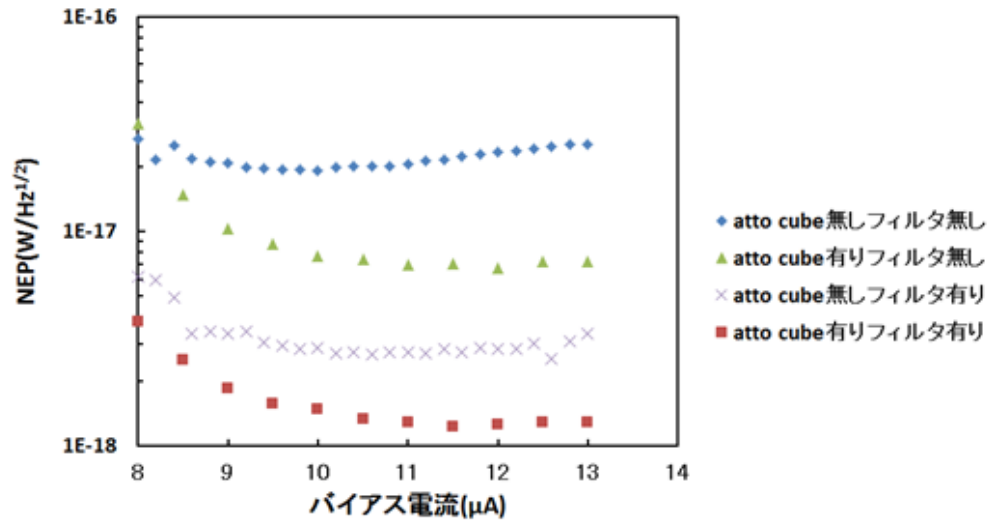


図 12 冷却フィルタおよびナノポジショナー導入の有無による NEP の比較

単一光子検出器の性能指数 (FOM) は、次式で定義される。

$$FOM = \eta_{\text{system}} / (DCR \cdot \Delta t)$$

ここで  $\Delta t$  は、検出器の時間ジッタを表し、検出器の動作速度を決定する。FOM は検出器の S/N 比である  $\eta_{\text{system}} / DCR$  に動作速度  $1 / \Delta t$  を掛けた無次元量であり、値が大きいほど性能が高い。図 13 に冷却フィルタおよびナノポジショナーを導入した時の、FOM のバイアス依存性を示す。両方を導入した場合、導入無しと比較して FOM は 2 桁以上上昇しており、これらの導入が S/N 比向上に大きく役立つことが判った。

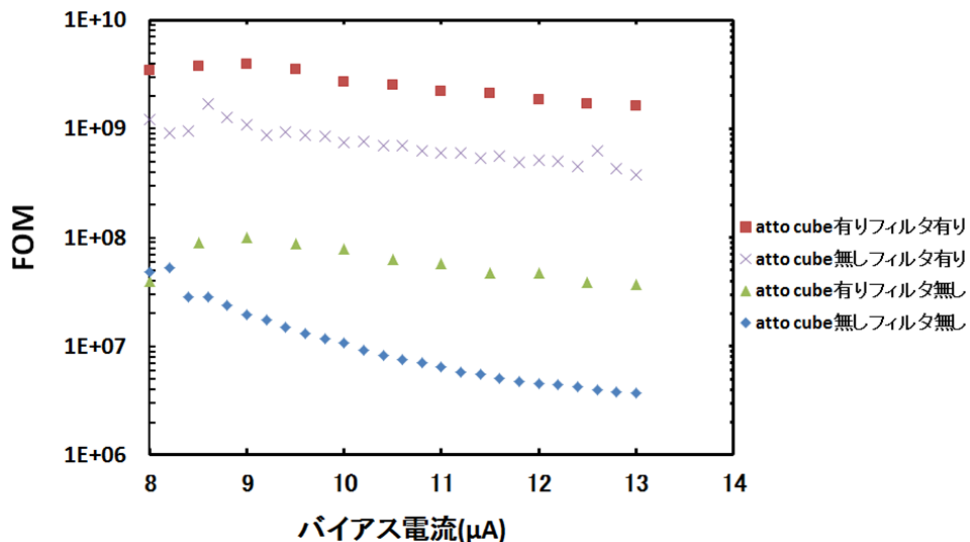


図 13 冷却フィルタおよびナノポジショナー導入の有無による FOM の比較

### 3-3 キャビティ構造による吸収率向上

超伝導ナノ細線からの反射光、透過光を抑制して吸収率 ( $\eta_{\text{absorption}}$ ) を向上させるため、図 14 の様にナノ細線の上下にキャビティ構造を有した超伝導単一光子素子の作製を進めた[10]。シリコン基板の両面に、熱

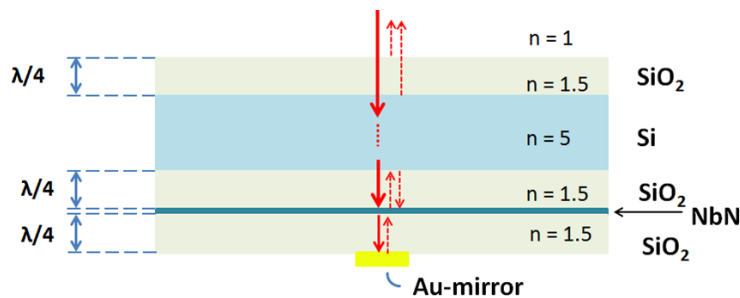


図 14 キャビティ構造を有する超伝導単一光子検出素子の断面図

酸化によって $\lambda/4$  波長厚 (約 250nm) の  $\text{SiO}_2$  膜を形成し、その上に NbN を成長後、微細加工により素子を作製する。熱酸化膜の膜厚は、分光光度計による透過測定により決定し、ナノ微細加工は、北大ナノテク推進室において実施した。作製した線幅 130nm の素子について、検出効率のバイアス電流依存性を図 15 に示す。キャビティ構造無しの場合と比較して、検出効率は約 2 倍向上していることが判る。一方、ナノ細線幅が 130nm と太いこと、ナノ細線の均一性が不十分なことなど、現時点ではプロセス条件が最適化されていないため検出効率自体は低い状況にあり、今後、さらに最適化を進める必要がある。

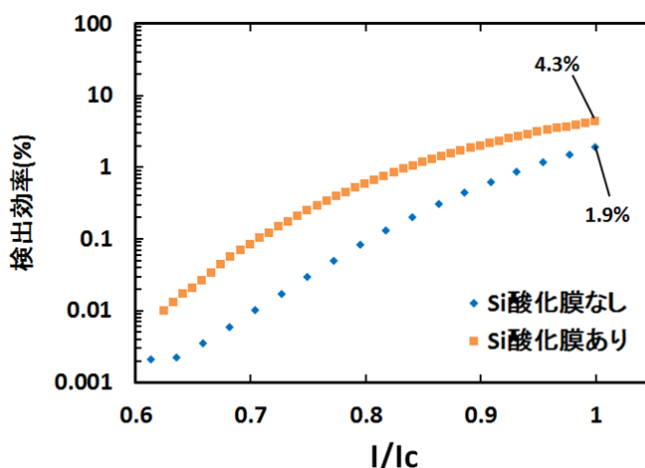


図 15 キャビティ有無による $\eta_{\text{system}}$  の比較

### 3 まとめと展望

本研究では、S/N 比の高い超伝導単一光子検出器を開発した。新たに MoN を用いた検出器を開発し、内部量子効率 ( $\eta_{\text{registering}}$ ) が NbN より大幅に高いことを明らかにした。また、ナノポジショナーおよび冷却フィルタ導入によって、光結合効率 ( $\eta_{\text{coupling}}$ ) の向上および暗計数率 DCR の削減を図り、NEP は 1 桁削減および FOM は 2 桁上昇という大幅な高性能化に成功した。さらに、キャビティ構造により吸収率 ( $\eta_{\text{absorption}}$ ) が 2 倍向上することを確認した。

今後は、これらの結果をさらに発展・統合して、世界最高性能の S/N 比を有する超伝導単一光子検出器の開発を進める予定である。本研究助成によって、北海道ナノテクノロジー推進室におけるナノ微細加工を実施できたことは、上記目標は勿論、将来の新規超伝導ナノデバイス開発の発展につながる非常に有益な研究であった。

## 【参考文献】

- [1] G. Goltsman, O. Okunev, G. Chulkova, A. Lipatov, A. Semenov, K. Smirnov, B. Voronov, A. Dzardanov, C. Williams, and R. Sobolewski, “Picosecond superconducting single-photon optical detector”, *Appl. Phys. Lett.* 79, pp. 705-707 (2001).
- [2] C. M. Natarajan, M. G. Tanner, and R. H. Hadfield, “Superconducting nanowire single-photon detectors: physics and applications”, *Supercond. Sci. Technol.* 25, 063001 (2012).
- [3] T. Yamashita, S. Miki, H. Terai, “Recent Progress and Applications of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors”, *IEICE Trans. Electron.* E100-C, pp. 274-282 (2017).
- [4] H. Shibata, T. Honjo, and K. Shimizu, “Quantum key distribution over a 72 dB channel loss using ultralow dark count superconducting single-photon detectors”, *Opt. Lett.* 39, pp. 5078-5081 (2014).
- [5] Y. Korneeva, I. Florya, S. Vdovichev, M. Moshkova, N. Simonov, N. Kaurova, A. Korneev, and G. Goltsman, “Comparison of Hot Spot Formation in NbN and MoN Thin Superconducting Films After Photon Absorption”, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* 27, 2201504 (2017).
- [6] I. Jauberteau, A. Bessaudou, R. Mayet, J. Cornette, J. Janberteau, P. Carles, and T. Mejean, “Molybdenum Nitride Films: Crystal Structures, Synthesis, Mechanical, Electrical and Some Other Properties”, *Coatings* 5, pp. 656-687 (2015).
- [7] X. Hu, T. Zhong, J. White, E. Dauler, F. Najafi, C. Herder, F. Wong, K. Berggren, “Fiber-coupled nanowire photon counter at 1550 nm with 24% system detection efficiency”, *Opt. Lett.* 34, pp. 3607-3609 (2009).
- [8] H. Shibata, K. Shimizu, H. Takesue, and Y. Tokura, “Superconducting Nanowire Single-Photon Detector with Ultralow Dark Count Rate Using Cold Optical Filters”, *Appl. Phys. Express* 6, 072801 (2013).
- [9] 柴田浩行、清水薫、本庄利守、武居弘樹、都倉康弘、「冷却フィルタを用いた超伝導単一光子検出器の性能指数向上及び長距離量子暗号通信への応用」電子情報通信学会誌 Vol. J99-C, No.3, pp.51-58 (2016).
- [10] D. Rosenberg, A. Kerman, R. Molnar, and E. Dauler, “High-speed and high-efficiency superconducting nanowire single photon detector array”, *Opt. Express* 21, pp. 1440-1447 (2013).

## 〈発表資料〉

題 名	掲載誌・学会名等	発表年月
超伝導ナノワイヤ単一光子検出器(SSPD)の性能指数向上	第53回応用物理学会北海道支部学術講演会	平成30年1月6日
窒化モリブデン薄膜を用いた超伝導ナノ細線単一光子検出器の開発	第53回応用物理学会北海道支部学術講演会	平成30年1月6日
MoN超伝導単一光子検出器の作製	第65回応用物理学会春季学術講演会	平成30年3月19日