

## 微小トンネル接合の基礎特性の研究

### Research of Basic Characters of Small Tunnel Junctions

福島章雄 岩佐章夫 佐藤昭 遠藤忠  
A. FUKUSHIMA A. IWASA A. SATO T. ENDO

In this paper, we report a summary of our recent research project on small tunnel junctions (STJ). We consider this work will be basis for research of single electron tunneling to obtain the quantized current.

Theoretically, we studied the accuracy of the quantized current for the single electron pump, and estimate the accuracy of a two-gate single electron pump.

For experimental works, we installed a sample fabrication system and constructed a dilution refrigerator for STJ experiment. We also studied a method for evaluation of capacitance of STJ at 4.2 K, which is useful for the fabrication of small tunnel junctions. Recently, we success to measure a gate modulation of the conductance in a single electron transistor at 90 mK.

#### §1 はじめに

単一電子トンネル現象とは、非常に小さい接合容量を持つトンネル接合を十分低温まで冷却した場合、電子が一つずつ離散的にトンネルする現象のことである。単一電子トンネル現象を観測するためには、電子一個の移動（トンネル）による接合での静電エネルギーの変化分が、環境の熱擾乱のエネルギーより十分に大きくなるような微小トンネル接合を作製しなくてはならない。電子線リソグラフィ技術を用いてサブ $\mu\text{m}$  のオーダーの大きさの微小トンネル接合の作成が可能になったことと、希釈冷凍機の普及によって mK 領域までの冷却により単一電子トンネルのための実験環境を作ることができるようになったことから、微小トンネル接合の研究が行われるようになった。我々のグループは 1993 年から 1998 年の 5 年間にわたり「微小トンネル接合の基礎特性の研究」というテーマで研究を行った。ここでは、その研究において得られた結果の詳細をまとめて報告する。

電子の移動一つ一つを人工的に制御し（これを単一電子トンネル現象と呼ぶ）、素電荷  $e$  を単位として単位時間に移動する電子の数を数えることができ、ひいては量子電流標準の実験の可能性を見いだすことができる。しかし、単一電子トンネル現象を用いた電流標準では、トンネル現象の精度を考慮する必要がある。単一電子トンネル現象では、cotunneling（協調トンネリング）と呼ばれる現象による本質的な誤差があることが知られている。この場合の誤差とは、電子が期待されていない経路（トンネルすべき接合を通らない）でトンネルしてしまい、実際の電流値が量子化電流の値からずれてしまうことを意味する。期待されていない経路は、通常複数の接合を持ち、エネルギー的にトンネルが禁止されているが、この経路を複数の電子のトンネルが協調的に起こることにより、禁止されているトンネルの確率が零でなく存在するためである。我々のグループでは、研究の初期の段階に理論研究者の Arcadi A. Odintsov 氏を招聘することができ、cotunneling について研究を進

めることができた。次章では2ゲート単一電子ポンプにおける cotunneling について述べる。

理論的な研究と平行して、我々は微小トンネル接合素子の作成，作成した素子を冷却する<sup>3</sup>He-<sup>4</sup>He 希釈冷凍機の開発，素子の特性を測定する測定系の開発を行ってきた。我々の微小接合は Al-Al Oxide-Al を用いたオーソドックスなものであり，接合の大きさは 0.1 $\mu$ m 角程度，接合容量は 1 fF 程度で，現在では比較的大きな部類に入るものである。我々は微小トンネル接合で，接合に蓄積された電荷エネルギーにより，高温域でもそのコンダクタンスに変化が現れることを利用して，4.2 K で接合の容量を評価する方法を考案した。さらに，単一電子トランジスタを作成し，90 mK 程度まで冷却し，そのコンダクタンスがゲート電圧により変調することを観測した。第3章ではこれらの実験結果について述べる。

§ 2 理論的考察  
量子化電流の精度

2.1 クーロンブロックード

初めに単一電子トンネルの原理を，クーロンブロックードを例として説明する。 $e^2/2C \ll k_B T_e$  の条件下で，図1のように微小トンネル接合に定電流源を接続する。この回路では接合間の電圧は，図1下のグラ

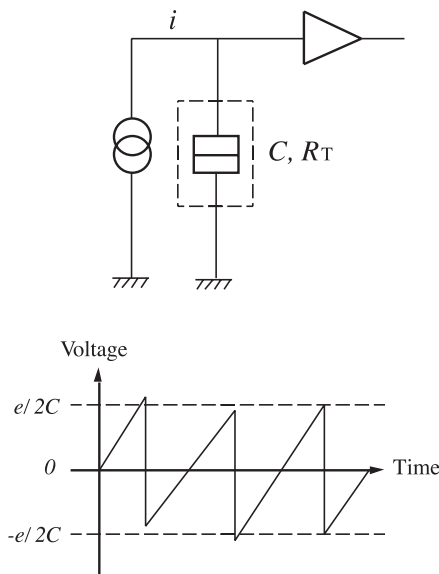


図1 単一接合におけるクーロン振動  
図下のグラフは接合端の電圧を，時間とともに記述したものを。

フのように時間に比例して直線的に上昇していく。接合端の電圧が  $e/2C$  を越えたあたりで，電子が一つだけトンネルした方が微小接合の静電エネルギーが小さくなるため，電子のトンネルが起こり，電圧が  $|e/C|$  だけ減少し  $-e/2C$  近傍になる。ここで近傍と表現したのは，電子のトンネルが確率現象であるため，必ずしも  $e/2C$  ちょうどの電位でトンネルするとは限らないためである。

このように， $e^2/2C \ll k_B T_e$  の条件下で，接合両端の電位差が  $\pm e/2C$  以下の時，電子のトンネルが抑制される状態をクーロンブロックードと呼ぶ。クーロンブロックードを人工的に作り出したり，壊したりして，電子一つ一つのトンネルを人工的に制御することが，単一電子トンネルの基礎となる。さて，図1の回路は定電流バイアスであるから，電子のトンネルが起こった後も電圧は時間とともに上昇し， $e/2C$  を越えたところで，再び電子のトンネルが起こる。こうして，定電流バイアスした微小トンネル接合端の電圧が，時間とともに振動することをクーロン振動と呼ぶ。

複数の接合を持つ素子の場合，それぞれの電極にゲートを設け，ゲート電圧を与えることにより，電子一つ一つのトンネルを制御することが可能になる。さらに電子を一つずつトンネルさせるためのゲート電圧の変化を，外部の周波数  $f$  に同期させることができれば，電流は

$$I = e \cdot f \tag{1}$$

となる。この電流を量子化電流と呼んでいる。

現時点では，量子化電流を実現する微小トンネル接合の回路として，単一電子ポンプ<sup>1)</sup> と，単一電子ターンスタイル<sup>2)</sup> がある。単一電子ポンプは，3 個以上の直列につながれた微小トンネル接合と，それぞれの島（微小トンネル接合で囲まれた部分で，電子がトンネルによってのみ出入りできる部分）へのゲート電極を持つ。単一電子ターンスタイルは，4 個以上の偶数個の直列につながれた微小トンネル接合と，中央の島へのみゲート電極を持つ。単一電子ポンプは，電子の移動に際し，すべてのゲートを電子が一つずつトンネルするように操作しなければならないが，ソースドレイン間のバイアス電圧は必ずしも

必要としない。言い換えるとゼロバイアスでも、ゲート電圧の操作による「ポンプ」動作は可能である。

一方、単一電子ターンスタイルは、操作すべきゲートは一つであるが、量子化電流を得るために有限のバイアス電圧が必要となる。ターンスタイルは、電子が微小接合列を通過する際、少なくとも  $eV$  ( $V$ はバイアス電圧) だけエネルギーを消費し自己発熱を伴うため、この点でポンプに比べ不利である。我々は単一電子ポンプを追及した方が、電流標準の実現の可能性が高いと考え、当分の間、単一電子ポンプを用いた微小トンネル接合の研究を続けることにしている。その研究の最初として、単一電子ポンプによる量子化電流の精度について、理論的な考察を行った。

### 2.2 2ゲート単一電子ポンプ

単一電子ポンプの動作は、ゲート電圧の変化に対して、ポンプの静電エネルギーが最小になるように、電子がトンネルしていくことで説明できる。静電エネルギーは、「微小接合の容量」、ソースドレイン間の「バイアス電圧」と「ゲート電圧」、「島上の過剰電子の数」によって記述される。この内、バイアス電圧とゲート電圧が、外部からコントロールできる量(変数)であり、過剰電子とは、トンネルによって島に電子が入り出した時、島の電荷の電気的平衡からずれた分の電子を指す。ここでは、単一電子ポンプの中で、最も構造が簡単な2ゲートポンプに関して、その動作とcotunnelingによる量子化電流からのずれについて論じる。

2ゲート単一電子ポンプは、図2のように、三つの

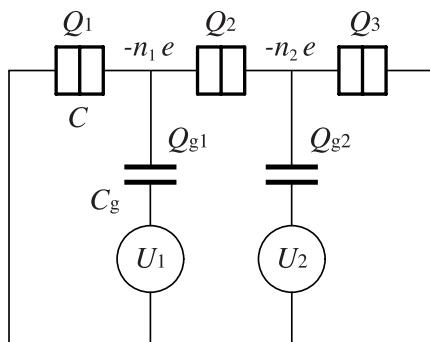


図2 2ゲート単一電子ポンプ

微小トンネル接合を直列に繋ぎ、そこにできた二つの島に、それぞれゲート電極を付けたものである。単一電子ポンプは、電子の通過に伴うエネルギー消費が最小になるように、通常ゼロバイアスで動作させる。ゼロバイアスの場合、ゲート信号を反転させると、反対向きの電流を得ることができる、という利点がある。

ここで、単一電子ポンプの静電エネルギーを求める。微小接合の容量  $C$ 、トンネル抵抗  $R_T$  は、すべて同じと仮定する。また二つのゲート容量も、同じ大きさ  $C_g$  とする。三つの微小接合に貯められた電荷を  $Q_1, Q_2, Q_3$  とし、ゲート電極に貯められた電荷を  $Q_{g1}, Q_{g2}$  とする。二つの島上の過剰電子の数を  $n_1, n_2$  としたとき、系の電荷分布は次の式で与えられる。

$$Q_2 - Q_1 - Q_{g1} = -n_1 e, \tag{2}$$

$$Q_3 - Q_2 - Q_{g2} = -n_2 e, \tag{3}$$

$$Q_1 + Q_2 + Q_3 = 0. \tag{4}$$

ここで  $e > 0$  とし、電子の電荷は  $-e$  で表すものとする。電子のトンネルに際し、ゲート電圧は、トンネル時間内で一定と見なせるので、ゲート電極の静電エネルギーは変化しないとしてよい。それゆえ、トンネルする電子に対する系の静電エネルギー  $E_c$  は、微小接合に貯められた電荷のエネルギーの和としてよい。従って

$$\begin{aligned} E_c &= \frac{1}{2C} \{Q_1^2 + Q_2^2 + Q_3^2\} \\ &= \frac{1}{6C} \left\{ (n_1 e - Q_{g1})^2 + (n_1 e - Q_{g1})^2 \right. \\ &\quad \left. + (n_1 e + n_2 e - Q_{g1} - Q_{g2})^2 \right\}, \tag{5} \end{aligned}$$

となる。ゲートに貯められた電荷は、ゲート電圧と比例関係に有るので、 $Q_{g1} = C_g U_1$ 、 $Q_{g2} = C_g U_2$  となる。

この式から、ある特定のゲート電圧の組み合わせ ( $U_1, U_2$ ) に対し、系の静電エネルギー  $E_c$  が最小になる過剰電子数の組み合わせ ( $n_1, n_2$ ) が一意に決まることが解る。ゲート電圧を変化させ、静電エネルギーを最小にする過剰電子の数の組み合わせが変化



Cotunneling は、電子がエネルギー的に禁止されている二つ以上の接合を、同時にトンネルすることをいう。一つ一つのトンネルがエネルギー的に禁止されていても、複数のトンネル全体でエネルギー収支がプラスになる場合、その経路によるトンネル確率が零でなく存在するからである。Cotunneling は Averin らによって、Macroscopic Quantum Tunneling (巨視的量子トンネリング) と呼ばれる量子現象の一つの例として、理論的な研究が行われている<sup>3,4)</sup>。それによると cotunneling の特徴として、

- ・ 絶対零度でも存在する。
- ・ 温度を上げると、トンネル確率が增大する。
- ・ トンネルすべき接合の数が一つ増えると、トンネル確率がおよそ一けた小さくなる。

などが挙げられている。

2 ゲート単一電子ポンプの場合、cotunneling は、電子が一つの微小接合をトンネルする際、トンネルすべき微小接合と反対側の二つの接合を、同時にトンネルする現象になる。一般に、単一電子ポンプの場合 cotunneling による誤差電流は、必ず量子化電流と反対の符号を持つ。Cotunneling は通常のトンネルの際にのみ起こるので、cotunneling による電流を見積もるには、通常のトンネルが起こる近傍 (図3の点 a, b) で cotunneling を計算し、その和を求めればよい。

2 ゲート単一電子ポンプにおける、正弦波駆動法の場合の cotunneling の表式は Iwasa<sup>7)</sup>らによって与えられ、以下のようなになる。

$$\Gamma_{\text{cot}} = \frac{\pi}{48\hbar} \left( \frac{R_k}{\pi^2 R_T} \right)^2 \left( \frac{1}{E_1} + \frac{1}{E_2} \right)^2 \times \frac{\Delta E \left[ \Delta E^2 + (2\pi k_B T_e)^2 \right]}{1 - \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T_e}\right)}, \quad (8)$$

ここで、 $R_k = h/e^2 \cong 25.8 \text{ k}\Omega$  である。 $\Delta E$  はトンネルの前後でのエネルギー差、 $E_1, E_2$  は初めの状態と中間状態でのエネルギー差、 $T_e$  は電子系の温度である。

電子は cotunneling により、反対側の二つの接合を通

り抜けなければならない。この時、仮想的にどちらの接合を初めにトンネルするかによって、二つの中間状態が存在する。例えば (0, 0) (1, 0) のトンネルに際し、(0, 0) (0, 1) (1, 0) と (0, 0) (1, -1) (1, 0) という二つのトンネルの仕方が考えられ、この時 (0, 1) と (1, -1) が中間状態となる。

図3中の円形の軌跡で示した、正弦波ドライブ法におけるパラメータを求めると、表1のようなになる。ここで  $\phi = 2\pi f t$  ( $f$  はゲート電圧の交流成分の周波数であり、以下これを駆動周波数と呼ぶ) である。図3で b 点は二つあるが、この二つの交点は、過剰電子数の配置の対称性から、まったく同じエネルギー表式が得られるため、一つの表式とした。

表1 正弦波ドライブ法における、cotunneling の計算に必要なパラメータ。A はゲート電圧の交流分の振幅。 $\phi = 2\pi f t$  で、 $f$  はポンプの駆動周波数である。

	a 点	b 点
$\Delta E$	$\frac{A\sqrt{2}}{3} \phi \frac{e^2}{C}$	$\frac{A\sqrt{5}}{3} \phi \frac{e^2}{C}$
$E_1$	$\frac{A}{\sqrt{2}} \frac{e^2}{C}$	$\frac{A}{\sqrt{5}} \frac{e^2}{C}$
$E_2$	$\left(\frac{1}{3} - \frac{A}{\sqrt{2}}\right) \frac{e^2}{C}$	$\left(\frac{1}{3} - \frac{A}{\sqrt{5}}\right) \frac{e^2}{C}$

Cotunneling による電流と、量子化電流との比を見積もるために、有限のエネルギー差を与えたときの通常のトンネルの確率を求めておく必要が有る。このトンネルは、古典的に解くことができ、トンネル抵抗  $R_T$  を持つ障壁でのトンネル確率を、

$$\Gamma_{\text{cl}} = \frac{1}{R_T e^2} \frac{\Delta E}{1 - \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T_e}\right)} \quad (9)$$

とする時、電子の移動は、Master Equations (トンネルの基本式) と呼ばれる以下の微分方程式によって記

述される。

$$\frac{dp_1}{dt} = -\Gamma_{cl}(\Delta E)p_1 + \Gamma_{cl}(-\Delta E)p_2, \quad (10)$$

$$\frac{dp_2}{dt} = \Gamma_{cl}(\Delta E)p_1 - \Gamma_{cl}(-\Delta E)p_2, \quad (11)$$

ここで  $p_1(t)$ ,  $p_2(t)$  は電子が、それぞれ、初めの状態、終わりの状態に存在する確率である。この微分方程式を解いて得られる  $p_1, p_2$  を用い、量子化電流に対する cotunneling による電流の比  $\delta I/I$  を求めると、以下ようになる。ここで の添字 a, b は、図 3 での交点 a, b で和をとることを示す。

$$\frac{\delta I}{I} = \sum_{a,b} \int_{-\infty}^{\infty} \{-\Gamma_{cot}(\Delta E) \cdot p_1(t) + \Gamma_{cot}(-\Delta E) \cdot p_2(t)\} dt. \quad (12)$$

以上の計算により、cotunneling による電流は、温度、駆動周波数と振幅に依存することが解る。以下、トンネル抵抗  $R_T = 10 R_K \cong 258 \text{ k}\Omega$ ,  $C = 0.1 \text{ fF}$  として計算を行った結果を図 4 に示す。この時、計算の都合上、 $e^2/(k_B C) \cong 18.5 \text{ K}$  を単位として温度を規格化し、 $1/(R_T C) \cong 38.7 \text{ GHz}$  を単位として駆動周波数を規

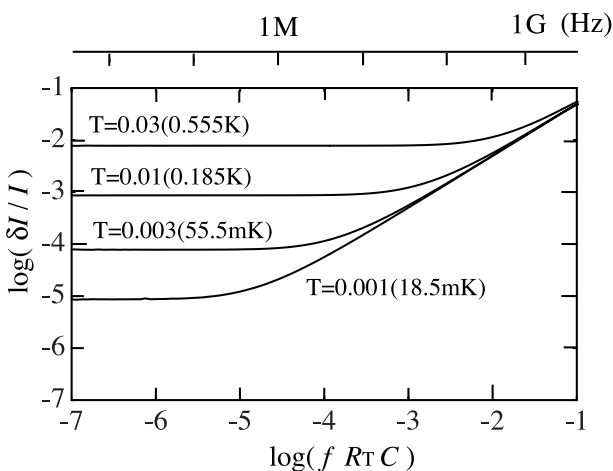


図 4 2 ゲート単一電子ポンプによる cotunneling による電流の駆動周波数の周波数による依存性。ポンプの駆動法は、90度ずらした二つの正弦波によるものとし、振幅は、cotunneling による電流が最も小さくなる  $A = 0.3$  とした。

格化した。

数値計算の結果、ポンプを正弦波でドライブする場合、cotunneling による電流に関して、以下のことが解った。ゲート電圧の交流分の振幅に関しては、ポンプの軌跡が隣り合う領域の交線の midpoint 近傍を通る場合に cotunneling による電流が最も小さくなる。素子の電子系の温度に関しては、ゲート電圧の交流部分と同じ振幅、同じ駆動周波数であれば、温度が低いほど cotunneling による電流が小さくなる。一方、cotunneling による電流の駆動周波数依存性に関しては、図 4 に示すような結果が得られ、周波数が低い領域では cotunneling による電流は周波数に依存せず、周波数が高い領域では、周波数が高くなるほど cotunneling による電流は大きくなることが解った。

#### 2.4 2 ゲートポンプにおける Cotunneling の近似解析法

前節で示したように、cotunneling による電流は、駆動周波数が低い領域では周波数に依存せず、周波数が高くなる領域では周波数とともに大きくなっている。このことは、それぞれの領域で cotunneling を支配している主要因が違うことを示唆している。そこで、低い周波数、高い周波数、それぞれの極限で電子がどのようにトンネルするのかを計算してみた。低い周波数、高い周波数、それぞれの場合のトンネルに際して、電子の存在確率  $p_1(t)$ ,  $p_2(t)$  に対する数値計算の結果を図 5 に示す。

駆動周波数が低い場合、電子のトンネルは断熱的 (adiabatic tunneling) に行われる。すなわち、ポンプの軌跡が、ゲート電圧平面上で二つの領域の境界を、ゆっくりと横切ることになり (交点は図 3 の点 a, b), トンネルは  $\Delta E$  が無視できる領域で行われる。このことは、トンネルの前後でエネルギー差がないとして良いことを意味する。一方、駆動周波数が高い領域では、電子のトンネルは非断熱的 (non-adiabatic tunneling) に行われる。この場合、電子はポンプの軌跡が、領域の境界線を越えたところで、 $\Delta E$  によりトンネルすることになる。

駆動周波数の低い領域 (断熱的トンネリング) の場合、系のエネルギーの変化が緩やかなため、電子は熱平衡状態でトンネルする。これを式で表せば、 $\Delta E \approx k_B T_e$  という近似になる。これを前節で解説した

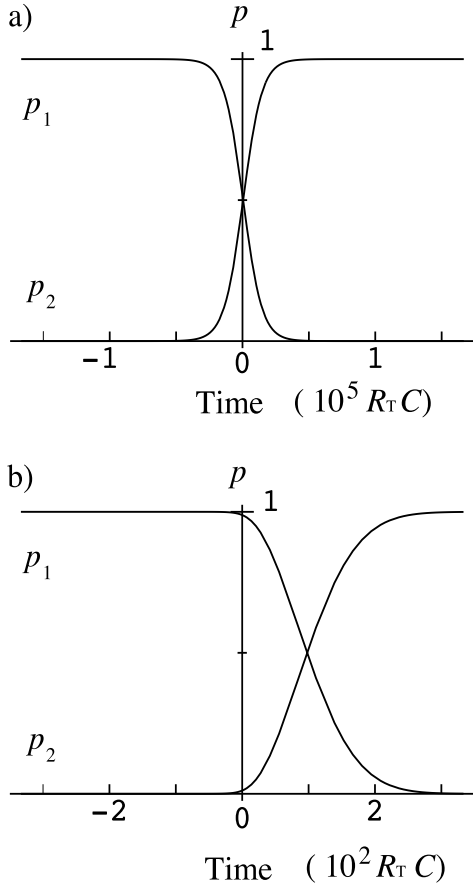


図5 断熱的トンネリングと非断熱的トンネリング  
換算温度  $T_e = 0.001e^2/(R_T C)$  , ゲート電圧の振幅  $A = 0.3$  における電子の存在確率の時間依存性。  
図 a : 駆動周波数が低い時  $f = 10^{-7}(R_T C)^{-1}$  ,  
図 b : 駆動周波数が高い時  $f = 10^{-4}(R_T C)^{-1}$  .

トンネルの基本式：式 10, 11 に代入し計算を行うと,

$$\frac{\delta I_{ad}}{ef} = \frac{1}{6} \left( \frac{R_K}{R_T} \right) \left\{ \left( \frac{1}{E_{1a}} + \frac{1}{E_{1b}} \right)^2 + 2 \left( \frac{1}{E_{2a}} + \frac{1}{E_{2b}} \right)^2 \right\} (k_B T_e)^2 \quad (13)$$

となる。上式は、cotunneling による電流が、駆動周波数の低い領域で  $T^2$  に比例する形で表せることを示している。従って、 $\Delta E \sim k_B T_e$  の領域では、cotunneling による電流は周波数には依存しないことが解る。

駆動周波数の高い領域（非断熱的トンネリング）では、トンネルが起こる時間内で、トンネルの前後での系のエネルギー差  $\Delta E$  が、素子の電子系の温度の工

ネルギーよりも大きくなるため、電子は主に  $\Delta E$  によってトンネルすることになる。これを表す近似式  $\Delta E \sim k_B T_e$  をトンネルの基本式：式 10,11 に代入すると,

$$\frac{dp_1}{dt} = -\frac{1}{e^2 R_T} \Delta E \cdot p_1 \quad (14)$$

が得られる。この解を用いて量子化電流に対する cotunneling による電流の比を求めてみると,

$$\frac{\delta I_{na}}{ef} = \frac{1}{6\pi} A \frac{e^2}{C} \left\{ \frac{\sqrt{2}}{3} \left( \frac{1}{E_{1a}} + \frac{1}{E_{2a}} \right)^2 + 2 \frac{\sqrt{5}}{3} \left( \frac{1}{E_{1b}} + \frac{1}{E_{2b}} \right)^2 \right\} (hf) \quad (15)$$

となる。ここで  $E_{1a}, E_{2a}$  は点 a における二つの中間状態と初めの状態のエネルギー差,  $E_{1b}, E_{2b}$  は点 b における中間状態と初めの状態のエネルギー差を表す定数である。上式をみると、 $hf$  の項を除くと、残りの項は振幅  $A$  のみの関数になっている。従って、駆動周波数の高い領域では cotunneling による電流は、駆動周波数に対し  $f$  の依存性を示すことが解る。

周波数の低い領域, 高い領域, それぞれの近似による結果を、数値計算の解と重ねて図 6 に表した。それ

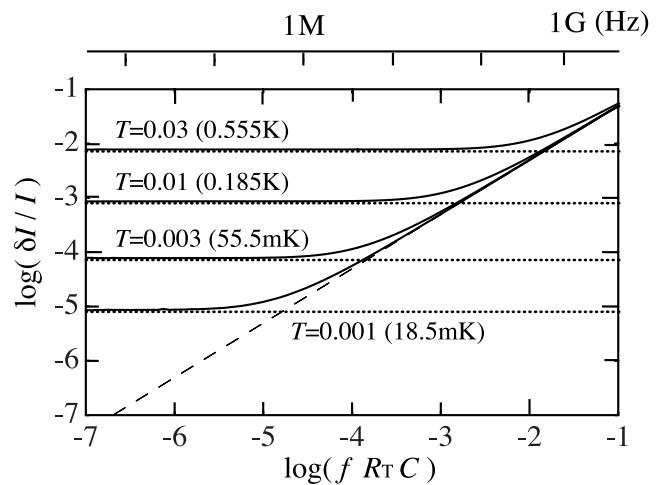


図6 数値計算と近似解の比較  
細かい点線は断熱的近似によるもので、荒い点線は非断熱的近似によるものである。

ぞれの近似は数値計算の結果と良く一致しており、近似に用いた物理的描像が適切であることを示していると考えている。

非断熱的なトンネルと断熱的なトンネルの起こる領域の境界を求めるために  $\Delta E \approx k_B T_e$  となる周波数を考える。これは、二つの領域のクロスオーバーを考えると、この時、トンネルが起こる時間は、

$$\Delta E(t) = 2\pi \alpha f A \frac{e^2}{C} t \quad (16)$$

である。これを  $k_B T_e$  と等しいとおいて、断熱的なトンネリングに特徴的な時間

$$t_{ad} \equiv \frac{k_B T_e C}{f A e^2} \quad (17)$$

が求められる。古典的な電子のトンネルが起こる時間は、 $\Gamma_0 \Gamma_{cl} (\Delta E=0) = k_B T_e / (e^2 R_T)$  の逆数程度になる。 $\Gamma_0 \cdot t_{ad} \gg 1$  より、

$$f \ll f_{cr} \equiv \left( \frac{k_B T_e C}{e^2} \right)^2 \frac{1}{A R_T C} \quad (18)$$

という断熱的なトンネリングの領域を与える周波数  $f_{cr}$  が求められる。この周波数は図6上で、低い周波数領域で断熱的な近似線と、数値計算の結果がずれ始める周波数を与えている。

以上の結果から、実際の素子、実験条件に対して以下の方針が考えられる。実際の実験で望まれる条件は、できるだけ大きな量子化電流を得ることと、cotunnelingによる電流をできるだけ小さくすることである。断熱的な領域では、cotunnelingによる電流の大きさは温度によってのみ決まっているので、周波数を高くするほど、量子化電流が大きくなる。しかし、駆動周波数が高くなり、非断熱的な領域に入ると、cotunnelingによる電流の大きさが周波数に比例して大きくなるため意味がなくなる。従って、最も有効に量子化電流を得るためには、動作周波数が上記の断熱的な領域の上限に対応する周波数  $f_{cr}$  に等しくなる条件を用いるのが良いと考えられる。例として、2ゲート単一電子ポンプで動作周波数を10MHzとした場合、期待できる量子化電流の大きさは  $I = 1.6$

pAである。この時、条件  $R_T \cong 258 \text{ k}\Omega$ 、 $C = 0.1 \text{ fF}$  を仮定し、 $f_{cr} = 10 \text{ MHz}$  から cotunneling による電流が最も小さくなる条件を求めると、電子系の温度  $0.16 \text{ K}$  以下で量子化電流に対する比が  $10^{-3}$  程度になることが導かれる。

## §3 実験結果

### 3.1 素子作成

我々が作成している微小トンネル接合は、Al-Al Oxide-Alの構造で、概ね  $0.1 \mu\text{m} \times 0.2 \mu\text{m}$  の大きさで、容量は  $1 \sim 0.5 \text{ fF}$  程度である<sup>8)</sup>。我々の素子作成法の特徴は以下の通りである。

- ・電極部はメタルマスクを用いた蒸着により作成している。
- ・電子線描画装置の自動位置合わせ機能を用い、2インチ基板に16個の素子を同時に作成できる。
- ・微分干渉機能をもつ金属顕微鏡と、AFMの併用により、素子にダメージを与えずに観察が行える。
- ・専用のカンチレバーを使用することにより、DIPパッケージにマウントした状態でAFMで素子の観察ができる。

我々は、Alを材料にドーラン法<sup>9)</sup>と呼ばれる方法で、微小トンネル接合を作成している。この方法は二層レジストと電子線リソグラフィを用い、アルミニウム蒸着用のサスペンティッドマスク(下層が抜けている橋状のマスク)を作成し、異なる二方向からAlを蒸着し、橋の真下に微小接合を作製する方法である。二層レジストとは、上層に硬いレジスト、下層に軟らかいレジストを積み重ねたものである。これに電子線描画装置でパターンを焼き付け現像を行う。上層に比べ下層が早く溶けるので、適当な条件を見つけることにより、上層に比べ下層が大きくえぐれた構造(アンダーカット)ができる。これを利用しサスペンティッドマスクを作成する。

マスク完成後、基盤の角度を変えて、異なる二方向からAlの蒸着を行い、サスペンティッドマスクの下で、蒸着したAlの領域がごくわずかだけ重なるようにする。一回目の蒸着の後に適当に酸素を導入し、一回目に蒸着したAlの表面を酸化させておくと、

一回目と二回目に蒸着した二つの Al の領域が重なった部分に、Al-Al Oxide-Al というトンネル接合を形成することができる。作成した微小トンネル接合の面積は、およそマスクの線幅×蒸着領域の重なり具合の大きさになる。ここで蒸着領域の重なり具合は、二層レジストの下層の厚さ程度（すなわち橋の高さ程度）の数分の一程度にすると再現性がよい。

単一電子トンネル素子を作成する場合、一つの接合のみ小さくすることにより、それぞれのトンネル接合の容量が揃っていることが重要である。そのため、ある程度マージンをとって、各接合の容量が揃うようにパターン、描画の工程を工夫している。こうして、我々のグループでは概ね  $0.1\mu\text{m} \times 0.2\mu\text{m}$  の大きさの微小トンネル接合をユニットに、単一電子トランジスタ、単一電子ポンプを作成している。例として図 7 に、我々が作成した微小トンネル接合の AFM 像を示す。以下、実際の素子作成の手順を、各工程に分けて述べる。

1. 基板は、直径 2 インチのドーパされたシリコン基板を使用している。ドーパされた基板は、常温で導電性を持つため、微小素子が静電気によって破壊されるのを防ぐことができる。この基板は、低温では絶縁体となるので、単一電子素子としての動作には影響しない。基板をまずイソプロピルアルコールで、5 分間超音波洗浄する。

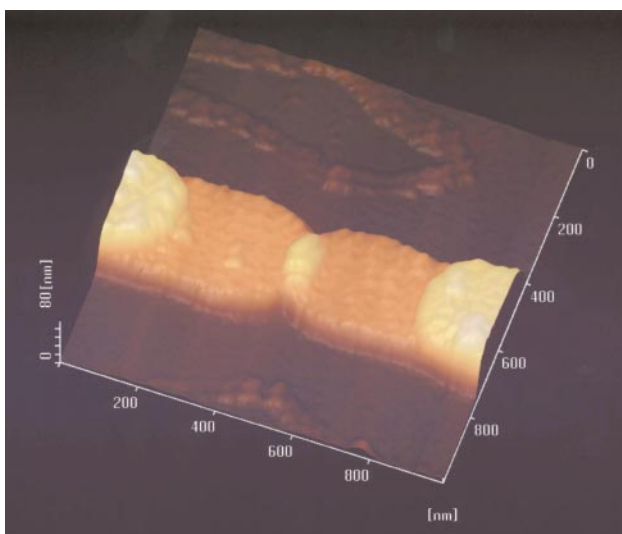


図 7 微小トンネル接合の AFM 像  
中央部の明るい部分が微小トンネル接合で、  
大きさは  $0.1\mu\text{m} \times 0.2\mu\text{m}$  程度である。

2. ボンディング用の電極作成のため、電極パターンを抜いたステンレス製の厚さ  $50\mu\text{m}$  のメタルマスクを基板に載せ、チタン  $10\text{ nm}$ 、金  $90\text{ nm}$  の順で、 $0.13\text{ mPa}$  程度の真空中で蒸着する。チタン層は、金が基板から剥離しないようにするためである。メタルマスクのプロセスは、フォトリソを用いたプロセスに比較して、工程が簡単で、残存フォトリソによる基板表面の汚れが無いという利点がある。一枚の基板上で 4 行 4 列  $3.9\text{ mm}$  ピッチの配列より 16 個の素子が得られる。
3. 次にレジストの塗布を行う。アンダーカットを作るため、二層レジストの下層に、上層よりも感度の高いものを用いる。下層には Co-PMMA<sup>10</sup> を最初  $500\text{ rpm}$  5 秒間、続いて  $3000\text{ rpm}$  30 秒間の順で回転塗布し、 $125^\circ\text{C}$  のオープン中で 30 分間ベークする。これはレジスト膜厚が  $500\text{ nm}$  程度の厚さとなる設計値である。約 50 分間冷却の後、上層のレジスト PMMA<sup>10</sup> を回転塗布する。最初  $500\text{ rpm}$  5 秒間、続いて  $5000\text{ rpm}$  30 秒間の順に塗布する。これはレジスト膜厚が  $150\text{ nm}$  程度の厚さとなる設計値である。これを  $160^\circ\text{C}$  のオープン中で 20 分間ベークする。
4. ベーク後の基板に、電子線描画装置の焦点合わせ用に、導電性塗料（カーボン系）を少量乗せる。基板を上面基準カセットにのせ、電子線描画装置の試料室に導入する。描画は  $20\text{ kV}$ 、 $40\text{ pA}$  の電子線で行う。10 時間程度の描画時間中、描画電流の変化が 3% 以下になるように調整する。我々の装置の場合、ビーム径は  $15\text{ nm}$  程度であり、装置により設定されたパターンのドット間隔  $25\text{ nm}$  と同程度である。導電性塗料を観察しながら、焦点を慎重にあわせ、パターンを描画する。パターンによって多少異なるが、二層レジストの場合、 $160\mu\text{C}/\text{cm}^2$  程度が最適の露光量である。自動位置合わせ機能により、16 カ所の素子を自動的に順番に露光することができる。露光時間を、同じ基板上で素子ごとに変化させることができるので、最適条件を見出すのが容易になった。また、無人で温度変化の少ない夜間の露光が可能であるため、効率的に作業ができる。
5. 次にアルミニウムの蒸着を行う。基板を切断せず

大きいまま用いるので、容易に基板の回転軸と、橋の向きを合わせることができる。蒸着は、チャンバー内を酸素でフラッシングをしてから行う。角度を30度ずらして二回、30 nmずつ0.13 mPaで蒸着を行う。二回の蒸着の間に5.2 kPa程度で酸化を行う。酸化時間はでき上がった接合の、トンネル抵抗を見ながら調整するが、数十分程度になるようにしてある。

6. 描画後、現像を行う。現像液はメチルイソブチルケトンのイソプロピルアルコール希釈液（MIBK: IPA = 1:3）で、3分間浸けた後イソプロピルアルコールで約15秒リンスする。窒素ガスでブローした後、金属顕微鏡で微分干渉観察すると、アンダーカットが明確に観察される。1500倍程度の倍率の微分干渉観察では、0.2 μm程度の橋構造の存在も確認できる。さらに、400倍程度で電極とパターンの接触についても確認する。
7. 蒸着後、室温で8時間アセトンに浸してリフトオフする。終了後、金属顕微鏡で観察し、リフトオフの完了を確認する。この時、微分干渉観察で、蒸着回数の違いによる段差が確認できる。
8. スクライパーで16個の素子に分割し、AFMを用い、素子の形状を観察する（図7）。その後、DIPパッケージにのせ、金線でボンディングする。素子はDIPパッケージに導電性接着剤で接着している。我々は、金メッキを施した無酸素銅を用いたDIPパッケージを使用している。素子をマウントする無酸素銅の部分は、パッケージの底まで貫通していて、ここに冷凍機の冷却部分を接触させることで、素子が確実に低温まで冷却できるように工夫している。

### 3.2 ヘリウム温度域での微小接合容量測定法

一次元微小トンネル接合アレーにおいて、高温域（静電エネルギーに比べ温度が比較的高い領域）で微小接合の静電エネルギーがIV特性に与える影響から、微小接合アレーのコンダクタンスの変化が一次温度計として利用できるという報告がある<sup>11)</sup>。このことは、高温域でのIV特性から、微小接合の容量 $C$ 、トンネル抵抗 $R_T$ 、伝導電子の温度 $T_e$ が求められることを意味する。この結果を利用して、我々はヘリウム温度で、電流・電圧測定を行うことにより、微小

接合の容量を見積もる方法<sup>12)</sup>を考案し、素子作製の効率を上げている。以下、この方法について説明する。

高温域（ $E_c \ll k_B T_e$ ）で、同じ $C$ と $R_T$ を持つ $N$ 個の微小接合の直列接合による1次元アレーのIV特性は以下の式で与えられる<sup>13)</sup>。

$$I(v_N) = \frac{k_B T_e}{e R_T} \left[ v_N + u_N \left\{ f(v_N) - \frac{1}{2} \right\} + \frac{1}{4} u_N^2 f''(v_N) h(v_N) + \dots \right], \quad (19)$$

ここで

$$u_N \equiv \frac{2(N-1)}{N} \frac{e^2}{2C} \frac{1}{k_B T_e} \ll 1, \quad (20)$$

$$v_N \equiv \frac{eV}{N k_B T_e}, \quad (21)$$

$$f(v_N) \equiv \frac{1 + (v_N - 1) \exp(v_N)}{\{1 - \exp(v_N)\}^2}, \quad (22)$$

$$h(v_N) \equiv v_N \coth\left(\frac{v_N}{2}\right), \quad (23)$$

であり、2.4節ですでに述べたように $T_e$ は電子系の温度である。

$v_N \pm 1$  の時、 $f(v_N) - 1/2$  と  $f''(v_N) \cdot h(v_N)$  が、それぞれ  $\pm 1/2$  と 0 に収束するため、 $R_T$  は微分抵抗  $dV/dI$  ( $|V| \rightarrow \infty$ ) として求めることができる。

$$\left. \frac{dV}{dI} \right|_{|V| \rightarrow \infty} = N R_T. \quad (24)$$

上式から $R_T$ を求めた後、微小接合の静電エネルギーによる電流の変化分を  $r(V) = I(V) - V/(NR_T)$  とすると、 $C$ は次の関係から求めることができる。

$$r(\pm\infty) = \mp \frac{1}{2R_T} \frac{N-1}{N} \frac{e}{C}. \quad (25)$$

ここで測定したデータを、IV特性の理論式にフィッティングすることにより、電子系の温度 $T_e$ を得ること

ができる。\$T\_e\$と測定した素子の温度を比較することにより、素子が十分に冷えているかどうかを知ることが出来る。

\$u\_N \le 0.1\$ の範囲では、\$u\_N^2\$の項が十分小さいため近似関数として、

$$I(v_N) = \frac{k_B T_e}{e R_T} \left[ v_N + u_N \left\{ f(v_N) - \frac{1}{2} \right\} \right] \quad (26)$$

を使うことができる。しかし、この関数は\$v\_N = 0\$で\$f(v\_N) = 0/0\$となり発散するため、\$v\_N \sim 0\$のデータが近似結果に間違いをもたらす。測定データのオフセットを調節するため、\$v\_N \sim 0\$のデータは重要であるため、代替の近似関数として次の関数を提案する。

$$I(v_N) = \frac{k_B T_e}{e R_T} \left[ v_N - \frac{u_N}{2} \tanh\left(\frac{v_N}{3}\right) \right]. \quad (27)$$

この関数は式 26 に比べて特異点を持たず計算しやすいという特徴を持ち、\$v\_N\$の全範囲において、式 26 との絶対値の比で3%以内に収まっている。

実際の測定は、ディップスティック型のサンプルプローブを、直接液体ヘリウムのコンテナに差し込み行っている。IV特性は四端子法で、素子に-20 mVから+20 mVの電圧を引加し、電流をエレクトロメーター (Keithley 617) で、電圧を低入力バイアス電流 (3 fA typ.) の計測アンプ (Burr-Brown 社 INA116) を入力段に用いた自作の電圧アンプを使用し測定している。素子の電圧端子に、市販のナノボルトメーター (HP 34420A, Keithley 182) を直接接続すると、ナノボルトメーターの入力バイアス電流 (数十 pA 程度) が、測定対象である素子に流れて、測定ができなくなってしまうためである。自作した測定系での測定電流のばらつきは5 pA<sub>pp</sub>以下である。

例として、4接合の微小トンネル接合列 (接合列全体のトンネル抵抗で2 MΩ程度の素子) に対する測定結果を示す。4.2 Kでの測定では、IV特性において、最大200 pA程度のオーム則からのずれを観測することができた。さらに、同じ試料に対して2.1 Kと10 mKでIV特性を測定した。2.1 Kでの測定結果は、4.2 Kの場合とほぼ同じであったが、10 mKでは図8に示した

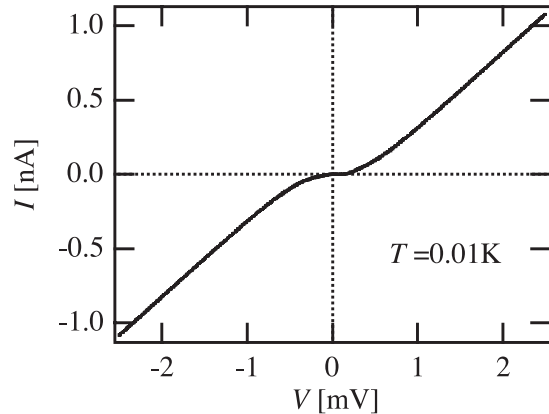


図8 0.01Kで測定した、4接合微小トンネル接合アレーのクーロンブロッケード

表2 高温域のIV特性から見積もった微小トンネル接合のキャパシタンスと、クーロンブロッケードから見積もったキャパシタンスの値の比較。

	測定温度 [K]	4.2	2.1
Fitting by Eq. 26	\$R_T\$ [kΩ]	473	490
	\$C\$ [fF]	0.719	0.683
	\$T_e\$ [K]	4.27	2.38
Fitting by Eq. 27	\$R_T\$ [kΩ]	473	490
	\$C\$ [fF]	0.703	0.677
	\$T_e\$ [K]	4.28	2.35

クーロンブロッケードからの見積もり

$$R_T : 450 \text{ [kΩ]} \quad C : 0.6 \text{ [fF]}$$

ように、明瞭なクーロンブロッケードを観測することができた。

表2に式26, 27を用いて、4.2 Kと2.1 KのIV特性から求めた\$C, R\_T, T\_e\$の値と、10 mKでの測定で得られたクーロンブロッケードの幅から求めた\$C, R\_T\$を示す。同じ温度では、2つの近似関数による\$C\$の値はよい一致を示している。4.2 Kに比べ2.1 Kでの\$C\$の値が少し小さく、\$R\_T\$の値が少し大きいのは、±20 mVに対応する\$v\_N\$の範囲が広がるからである。近似から得られた電子系の温度と測定温度を比較すると、4.2 Kでは両者はよい一致を示しているが、2.1 Kでは電子系の温度が一割ほど高くなっている。このことは2.1 Kですでに素子が冷えにくくなっていることを示している。図8でグラフの直線部分を外挿して得られる

クーロンブロッケードの幅は 0.7 mV 程度である。この幅は容量として 0.6 fF に対応し、近似から得られる値よりも10%程小さくなっている。これは測定した電流・電圧の範囲が  $\pm 2.5$  mV であるため、対応する  $v_N$  が狭くなり、グラフの直線部分が少し鈍ってきているため、 $C$ 、 $R_T$  の値が小さく評価されるためと考えている。

### 3.3 単一電子トランジスタ

単一電子トランジスタは、微小トンネル接合を二つ直列に接続し、トンネル接合間の島の部分にゲート一つ付けた三端子素子である。この素子では、ゲート電圧をコントロールすることにより、島の電荷分布を変化させ、クーロンブロッケードを制御することができる。このように、ゲート電圧によって素子の接合列側（ソース ドレイン間）のコンダクタンスを変化させることを、ゲート変調をかけると呼んでいる。

ゲート変調の仕組みは次のように説明できる。初期条件として、単一電子トランジスタで、ソース - ドレイン間に、クーロンブロッケードを壊さない程度にバイアス電圧をかけておく。そこで、ゲート電圧を与え、島の電荷分布を変化させ、片方の接合間の電圧差が大きくなるようにする。この電圧差が  $|e/C|$  を越えると、クーロンブロッケードが壊れ、そこで電子一個のトンネルが起こる。電子一つのトンネル後、島の静電エネルギーが増えるため、もう一方の接合で接合間の電圧差が大きくなり、その接合でもクーロンブロッケードが壊れ、電子一個がトンネルしていく。電子が島から抜けてしまった後は、最初の接合で再び電子のトンネルが起こり、島に電子が入ってくる。こうして次々に電子のトンネルが起こりソース ドレイン間に電流が流れる。このようにして、ゲート電圧によって、接合列全体を流れる電流を制御することができる。

ゲート変調の特徴は、ゲート電圧の増減に対して、接合列のコンダクタンスが  $e/C_0$  の周期を持つことである。これは、クーロンブロッケードの有無をコントロールするのが、ゲート電圧による島の電荷分布の変化であるため、ゲート電極において電子がちょうど整数個だけ異なる状態は、トンネル接合列にとって全く同じ状態であるからである。ゲート電

極にちょうど電子が一つだけ多い状態を作ると、島にそれに釣り合う電子が一つトンネルして入ってくる。このトンネルした電子によって、ゲート電極での過剰電荷はキャンセルされてしまう。従って、接合列のコンダクタンスは、ゲート電圧に対して  $e/C_0$  の周期を持つことが導かれる。

前節の測定系は、測定装置の入力バイアス電流をできるだけ小さくすることを目的に作成したが、ゲート変調の測定に対しては、エレクトロメーター (Keithley 617) の入力バイアス電圧が問題になり、十分な S/N 比で測定が出来なかった。Keithley 617 の入力バイアス電圧は 2 pA max. の測定レンジの時、およそ数  $\mu$ V で、さらに測定する電流に応じて変化するために、素子に  $\mu$ V のオーダーのバイアス電圧を正確に与えることが出来なくなるためである。

そのため、NIST ボルダールのグループが用いている回路を参考に電流アンプを自作した。オリジナルの回路は T. M. Eliles の博士論文<sup>14)</sup>に詳しい。回路の構成は、冷凍機内の低温部分 (約 1.5 K) に、電流測定用の基準抵抗 (1 M $\Omega$ ) を設置し、その電圧 (これが電流値になる) と素子にかかる電圧を測定するものである。熱ノイズを少なくするためには、基準抵抗をできるだけ低温にするのが望ましいが、素子近傍に設置すると発熱が気になるので 1.5K 部分に設置した。アンプ用の IC として、低ノイズ (4.5 nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$  at 10 kHz)、低バイアス電流 (5 pA max.)、低オフセット電圧 (100  $\mu$ V max.) のオペアンプ: Burr-Brown 社 OPA627 を用いた。この測定系では、電流を測定する場合、フィードバックループを使わないように工夫をした。

この回路で測定した実験結果を、図 9 に示す。単一

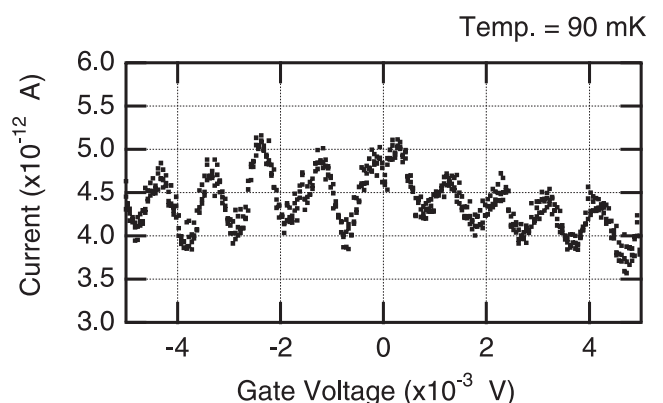


図 9 90 mK で測定した単一電子トランジスタにおけるゲート変調

電子トランジスタを 90 mK に冷却し、ゲート電圧を  $\pm 5$  mV の範囲で振ることにより、1 pA<sub>pp</sub> 程度のゲート変調を観測することができた。ゲート変調の周期より、ゲートキャパシタンスの容量がおおよそ 0.16 fF であると見積ることができた。

#### § 4 おわりに

今までの我々の研究成果としては、次のようにまとめられる。

- ・ 電子線描画装置を整備し、斜め蒸着装置を作成することで、Al-Al Oxide-Al 構造を持つ微小トンネル接合の作成ができるようになった。2 接合1 ゲートの単一電子トランジスタを作成し、3 接合2 ゲートの単一電子ポンプの試作を行った。
- ・ ヘリウム温度で電流電圧特性を測定することにより、微小トンネル接合の容量を見積もる方法を提案した。
- ・ 作成した単一電子トランジスタに対して 80 mK と 90 mK の温度でゲート変調を観測することができた。

#### 謝辞

第 2 章の研究は、我々のグループに 1994 年 7 月から 1995 年 2 月まで、科学技術庁特別研究員として滞在された Arcadi A. Odintsov 氏との共同研究によるものです。同氏との有意義な議論に感謝の意を表します。

#### 参考文献

- H. Pothier, P. Lafarge, C. Urbina, D. Esteve and M. H. Devoret; Europhys.Lett., **17**, 249, (1992).
- L. J. Geerligs, V. F. Anderegg, P. A. M. Holweg, J. E. Mooij, H. Pothier, D. Esteve, C. Urbina and M. H. Devoret; Phys. Rev. Lett., **64**, 2691, (1990).
- D. V. Averin and A. A. Odintsov; Phys. Lett. A, **140**, 251 (1989).
- D. V. Averin, A. A. Odintsov and S. V. Vyshenskii; J. Appl. Phys., **73**, 1297 (1993).
- H. D. Jensen and J. M. Martinis; Phys. Rev. B, **46**, 13407 (1992).
- A. Fukushima, A. Iwasa, K. Yoshihiro, J. Kinoshita and T. Endo; IEEE Trans. Instrum. Meas., **44** 561 (1995).
- A. Iwasa, A. Fukushima and A. A. Odintsov; Jpn. J. Appl. Phys., **34**, 5871 (1995).
- 岩佐 章夫, 福島 章雄, 佐藤 昭, 坂本 泰彦; H9 電気学会全国大会論文集, **1**, 41, (1997).
- G. J. Dolan; Appl. Phys. Lett., **31**, 337, (1977).
- PMMA はポリメタクリル酸メチル, Co-PMMA はポリメタクリル酸メチル-メタクリル酸。  
我々は Microlithography Chemical Corp. 製の PMMA: PMMA 950 A4, Co-PMMA: MMA(8.5)MAA EL11 を用いている。
- J. P. Pekola, K. P. Hirvi, J. P. Kauppinen and M. A. Paalanen; Phys. Rev. Lett., **73**, 2903 (1994).
- 福島 章雄, 岩佐 章夫, 佐藤 昭, 坂本 泰彦; H10 電気学会全国大会論文集, **1**, 264 (1998).
- Sh. Farhangfar, K. P. Hirvi, J. P. Kauppinen, J. P. Pekola, and J. J. Toppari, D. V. Averin, and A. N. Korotov, J. Low Temp. Phys., **108**, 191, (1997).
- T. M. Eiles; Ph. D. Thesis, University of Colorado, Chap.3 (1993).

( 1999.8.19 受付 )

#### 著者紹介



福島 章雄

Akio FUKUSHIMA

基礎計測部 電子計測ラボ

fukushima@etl.go.jp

入所以来、単一電子トンネルを用いた電流標準の研究に従事。



岩佐 章夫

Akio IWASA

基礎計測部 電子計測ラボ

iwasa@etl.go.jp

入所後、ジョセフソン接合アレー電圧標準システムに関する研究に、近年は電流標準の構築を視野に入れて微小トンネル接合の基礎特性の研究に従事。



佐藤 昭

Akira SATO

基礎計測部 電子計測ラボ

akira@etl.go.jp

微小トンネル接合の研究及び量子ホール効果の研究に従事。



遠藤 忠

Tadashi ENDO

基礎計測部 電子計測ラボ

tendo@etl.go.jp

入所以来、電気の標準に関連した精密計測の研究に従事。