

超伝導クーパー対を使用した電子 EPR 対高密度ビームの開発

Development of high-intensity electron EPR pair beam

趙福來

Boklae Cho

科学技術振興機構

Japan Science and Technology Agency

概要: 高密度の EPR 対電子ビームの開発を最終目標とし、到達圧力 4×10^{-10} Pa の極高真空低温電界電子放出装置を作製した。電界放出電流は極高真空下で飛躍的に安定化し、10Hz 以下の低周波帯域でもショットノイズ測定に成功し、吸着分子による $1/f$ ノイズが排除されて電界放出現象本来の揺らぎ観測条件が得られた。今後はこの最高感度の電流ノイズ測定系を用いて、極低温機構を加え超伝導体電子源からのクーパー対放出の有無を確認する予定である。

【研究のねらい】 2 個の相関している量子、EPR 対は光子で実現され、量子情報処理へ向けた応用研究が盛んに行われている。一方、真空中の電子 EPR 対はその強い相互作用を生かした量子実験が期待できるが、必要不可欠な高密度 EPR 対電子ビームは実現されていない。

電子の EPR 対の場合、電子が電荷を持ち、クーロン・ポテンシャルやベクトル・ポテンシャルに強く相互作用するため、光子の EPR 対と比較して、量子実験或は情報処理がより多様になる。真空中の自由電子の場合、デコヒーレンス時間が無限大で、量子演算に回数の制限が無い理想的な環境である。ユニバーサル量子ゲートも電子間に働く強い電磁気相互作用を利用すれば製作可能である。しかし、現在の最高密度の電子ビームをもってしても、EPR 対の存在すら確認されていない状態であるため、自由電子の EPR 対を用いた量子実験や量子情報処理は殆ど不可能な状態である。

近来ナノ科学の急激な発展に伴って、ナノチップ、炭素ナノチューブ、ニオブ超伝導体チップ等の様々なナノ電子源が開発された。非常に狭い領域や、超伝導状態での電子状態

は量子的相関度が高く、そこから放出される電子ビームは強い電子相関を持つ可能性がある。超伝導体からの電界放出の注目すべき特徴は、電子 2 個が形成するスピン 1 重項状態のクーパー対がそのまま真空中に放出するとスピン 1 重項状態の EPR 対になる。クーパー対を EPR 対として量子実験を行う提案は、メゾスコピック系の理論研究で既に行なわれている。実験では金属/超伝導体接合 (NS junction) に低いバイアスをかけた時の、クーパー対トンネリングの存在が近年証明された。¹⁾ それで我々は超伝導体から電子ビームが真空中に電界放出される時も、クーパー対がスピンの相関を保ったまま出てくると考え、その相関を確認したい。既に、クーパー対からの電子放出は、我々のグループで 1998 年に確認している。²⁾

【研究方法】 本研究では、ナノチップ、ニオブ超伝導体チップ等の様々なナノ電子源に関して蓄積した技術を基礎に、電子源中での電子相関をそのまま電子ビームに反映させた高密度の EPR 対電子ビームの開発を目標としている。

実験は、まずナノ電界放出電子源の作成・評価を行なう。電子源の種類としては①単結

晶タングステン、②超伝導体、③CNT、④ナノチップを用いる。単結晶タングステンについては(310) 又は(111) 単結晶ワイヤーを針状に電界研磨したものを使用する。その針を試料準備室で加熱処理した後、-1 kV以上のバイアス電圧をかけ電子ビームを放出させ、そのパターンをスクリーン上に映し出し観察することで電子源の清浄を確認する。超伝導体電子材料には我々のグループで長年使用して実験方法が確立しているニオブ(Nb) 多結晶や、針状に加工可能なビスマス系超伝導体やSTM (Scanning Tunneling Microscopy) の探針として検証されているMgB₂などを用いる予定である。

非常に狭い領域や、超伝導状態での電子状態は量子的相関度が高く、そこから放出される電子ビームのノイズは、相関が全く無いポアソン分布からずれ、ショットノイズ強度の変化として観測される可能性がある。また、二つの電子検出器を用いて同時計数率を測定すると、電子はフェルミオンであるためコヒーレントな領域内では同時計数率の低下が予測される。超伝導体の場合ボゾンのように(正の相関を持つ) 逆に同時計数率が増加すると考えられ、この観察もあわせて行う。

ニオブ超伝導体チップ等の様々なナノ電子源から電子ビームを安定に放出させるためには、低温と10⁻¹⁰ Pa 台以下の極高真空が必要になる。ナノ電子源は原子数個で形成されているため、分子1 個が吸着されても電界放出の様子が変わり、放出電流量が大きく揺らぐためである。極高真空下では吸着分子による揺らぎが排除され、電界放出現象本来の揺らぎ観測条件が向上する。筆者らはナノ電子源の安定な動作条件と電界放出現象本来の揺らぎを研究する目的で、極高真空低温電界電子放出顕微鏡を作製し、テストを行った。³⁾

【研究成果】 現在ナノ電子源から放出される電子ビームの電流ノイズの変化を測定している。ノイズ測定のため開発した極高真空低温電界電子放出顕微鏡の圧力は実験を行うシステムとしては記録的な3x10⁻¹⁰Pa であって、不純物による電流の揺らぎも極めて少なかった。装置にW(111)針を搭載して極高真空下で行ったショットノイズ測定は10Hz 以下だという低周波測定記録を達成した。そして装置の極高真空環境を利用して、仮に電界電子放出現象を応用した極高真空領域の圧力測定法を開発した。以下にその二つの成果と装置の構造を記述し、期待される今後の展開について述べる。

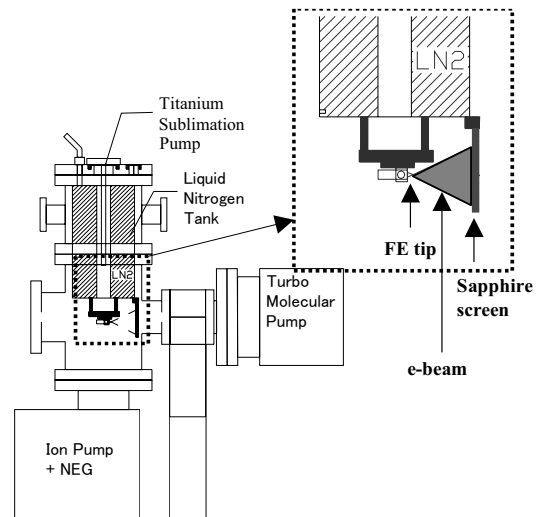


図1. 極高真空低温電界電子放出顕微鏡

A. 極高真空低温電界電子放出顕微鏡³⁾

図1は作製した極高真空低温電界電子放出顕微鏡の概略図を示す。真空容器の内壁と電界電子放出顕微鏡の全ての金属部品には電解複合鏡面研磨が施された。研磨後1x10⁻⁴ Pa 程度の真空中で、真空容器と導入端子は350°C、他の金属とセラミック部品は450°Cで24時間以上加熱するガス出しを行った。真空システムはターボ分子ポンプを除いた全てを、オープンを用いて170°Cで48時間そ

のベーキングを行った。オーブンの中の温度のむらは $\pm 5^{\circ}\text{C}$ 以内であった。

イオンポンプは 10^{-9}Pa 台前半以下では殆ど排気しないので、TSP (チタンサブリメーションポンプ) だけで排気する方が、(イオンポンプ+TSP)で排気するより、到達圧力を下げられると考えられる。しかし実験装置ではフィラメントのアニール、部品のガス出し、実験用ガスの導入など、圧力が上がる場合が多い。実用的な面から見ると、ガス放出量が極めて少ない(イオンポンプ+TSP)が最適だという考えのもと、排気システムを構成した。ベーキング中と前の排気はターボ分子ポンプを用いて行われた。ベーキングの終了後、ターボポンプと真空容器をつなぐオールメタルゲートバルブを閉め、純クロム酸化膜作製法で処理された極高真空用のイオンポンプと TSP で排気した。ベーキングした後 24 時間で、到達圧力は $4\sim 6\times 10^{-10}\text{Pa}$ に達した。フィラメント、蛍光スクリーンと電界放出電子源のガス出しを行った後、圧力は少し上がり $7\sim 8\times 10^{-10}\text{Pa}$ になった。

電子源周辺の部品に電子線が当たると、電子衝撃脱離(Electron Stimulated Desorption : ESD)により、分子及びイオンが放出して電子源に吸着する。ESD による吸着は電流量が大きいほどその量が増えるので、大電流が求められる実際の電子線応用装置では、残留ガスからの吸着より ESD による吸着量が多い場合もあると思われる。安定な電子線を得るには、圧力を下げると共に、電子源周辺の徹底的なガス出しが必要である。

電界放出電子源周辺に作られる電界の歪みをなくすためには、引き出し電極の形と電子線が通る穴の形を円にする必要がある。電極を細く薄いドーナツ形にして、熱が逃げないように細い電線で繋げて電流を流すと、電極から熱が発生して電極に吸着しているガス分

子が脱離するという発想で、融点が 3422°C であるタングステンの箔 (厚さ 0.015mm) をレーザーでカットして電極を作製した。電子が主に当たる中心部分は 9mm^2 以下の狭い面積であり、ガス分子の吸着量は板状の引き出し電極より極めて少ない量だと考えられる。

電子源、引出し電極、スクリーンを含む電界電子放出顕微鏡は液体窒素素タンクの底に設置し、全ての部品を 90K 以下に冷却することができる。特に電界放出電子源である金属針先端部の視野内にある全てのものは 90K の温度を保ち、それから脱離する水分子等のガスが電子源に吸着しないようにした。

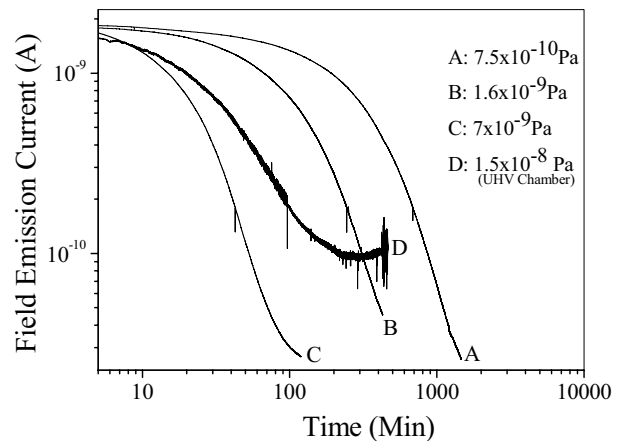


図 2. 電界放出電流の Damping Curve

電子源の洗浄後の清浄な表面に残留ガス (主に水素) が吸着すると表面の仕事関数が増加し、放出電流量が減少する。表面が残留ガスで飽和して吸着が止まると、放出電流は一定になる。図 2 は作製した極高真空装置で W(111)電子源を洗浄した後、放出電流の減少の様子を示す；比較のため別の超高真空装置で得たデータ (曲線 D: $1.5\times 10^{-8}\text{Pa}$ 、温度 $\sim 70\text{K}$) も示す。 $1.6\times 10^{-9}\text{Pa}$ の圧力 (曲線 B) はターボポンプを繋ぐゲートバルブを開けて、 $7\times 10^{-9}\text{Pa}$ の圧力 (曲線 C) は水素ガスを真空容器に導入して調節した。

作製した極高真空装置では放出電流は圧力が上がると速く落ち（曲線 A, B, C）、最終的には洗浄した直後の電流値の 1/100 程度で一定になった。一方、別の超高真空装置では放出電流（曲線 D）の落ちるスピードは相対的に遅く、一定になる電流値は洗浄した直後の 1/20 程度であった。これは別の超高真空装置でガス出しが不十分であったため、真空中の水素以外のガス分子が吸着して起きたことだと思われる。

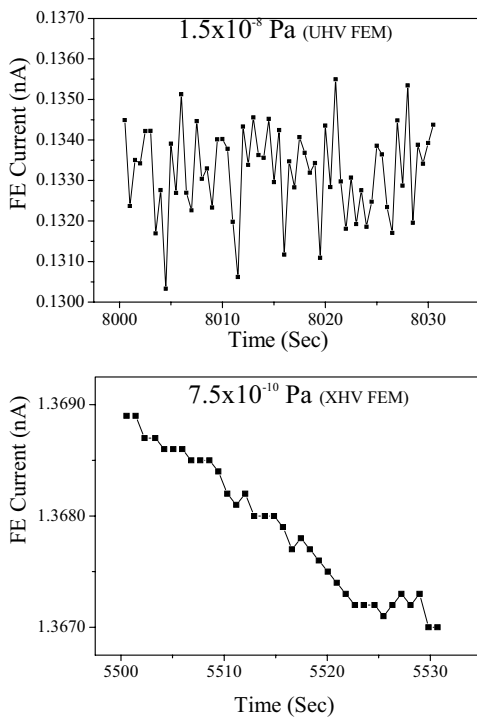


図 3. 放出電流の変動

作製した極高真空装置において洗浄後の放出電流の揺らぎは極めて小さく、デジタル電流計（Advantest Inc., R8340A）の分解能（0.01%）以下であった。図 3 に 30 秒間測定した極高真空装置と超高真空装置での放出電流の様子を示す。超高真空装置では、放出電流の吸着による減少傾向は揺らぎに埋もれて殆ど見えなかった。一方、極高真空装置で得た電流値は、30 秒間という短時間でも、その

揺らぎが電流計のデジタルステップが明確に見えるほどに抑えられ、放出電流が吸着によって落ちる様子がはっきりと現れた。

B. 電界放出電流のショット雑音測定⁴⁾

10⁻⁸Pa 台の超高真空下における電界放出電子源からの放出電流の揺らぎには、吸着分子によるフリッカー雑音(Flicker Noise)とショット雑音(Shot Noise)が含まれている。¹⁾フリッカー雑音は電界放出電子源の表面でガス分子が吸着、表面拡散、脱離等の動的運動をすることで仕事関数 ϕ が変化して発生する。放出電流値 I_{FE} は以下の Fowler-Nordheim 式で表される。

$$I_{FE} \propto \frac{(\mu/\phi)^{1/2}}{(\phi + \mu)} \exp(-C \cdot \phi^{3/2}) \quad (1)$$

ここで C は電子源の大きさ（針先端の曲率）と電界の強度で決められる比例定数、 μ はフェルミレベルである。変動 ΔI は仕事関数の変化 $\Delta\phi$ が小さいとき $\Delta I \propto -\Delta\phi$ になり、仕事関数が揺らぐと電流はそれに比例して揺らいでしまう。

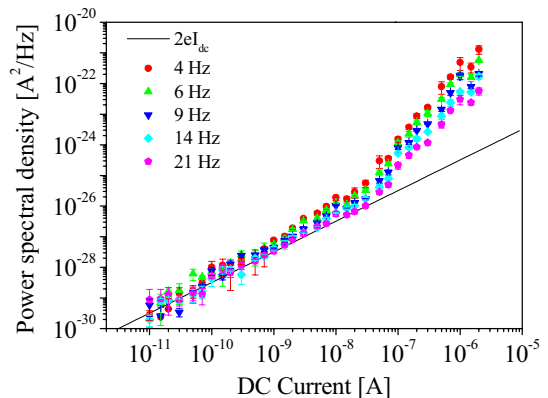


図 4. 放出電流ノイズの電力スペクトル密度

吸着分子による電流変動の電力スペクトル密度(Power Spectrum Density: PSD)は、電流量の二乗に比例し($N_f \propto I^2$)、周波数のべき

乗には反比例($N_f \propto 1/f^\alpha$)することがよく知られている。一方ショット雑音は、その電力スペクトル密度が周波数全領域で一定($N_s = 2eI$, e は電子の電荷の絶対値)の白色雑音である。超高真空領域で電界放出電流の電力スペクトルを観察すると、1kHz以下の低周波領域ではフリッカー雑音に埋もれてショット雑音は観察できない。Kleint は徹底的な周辺の電極のガス出しのあと 10^{-9} Pa 前半の真空下で 100Hz 以下までショット雑音を測定したと報告し、それは今まで最も低い周波数で行ったショット雑音測定であった。

雑音の測定は、(Agilent 4396B)を用いて行った。 7×10^{-9} Pa 程度の極高真空中で W(111) 電子源を洗浄した後 1kV 程度の電圧を引き出し電極にかけ、10 pA から 100 μ A までの電界放出電流のスペクトル密度を得た。⁴⁾ 図 4 に数十 Hz 以下の低周波で測定したスペクトル密度を示す。4Hz では 10 pA から 1nA までスペクトル密度はショット雑音の理論(実線、 $N_f = 2eI$)とよく合ったが、1nA 以上では理論直線(実線)を上まわる傾向を見せた。高い周波数になるとスペクトル密度の実測値がより広範囲で理論曲線に合い、20Hz 程度では 10 pA から 50nA までほぼ理論と一致した。100 nA 以上におけるスペクトル密度は、電流の二乗に比例し、かつ周波数のべき乗に反比例するフリッカー雑音になった。この雑音は洗浄後表面に残っているガス分子、あるいは表面のタングステン原子の動きで発生すると考えられる。

電界放出電子源の表面でのガス分子の吸着量が増えるにつれて、雑音のスペクトル密度は増加し、雑音のスペクトルは平坦なショット雑音的から $1/f^\alpha$ タイプのフリッカー雑音に変化した。2 日間電子源を 1×10^{-9} Pa の真空で放置すると、吸着により雑音が増加して、

N_f が I^2 に比例するフリッカー雑音の典型的な電流依存性を示した。

C. 放出電流の減少速度を利用した圧力測定⁵⁾

超高真空の圧力は一般的にイオンゲージで測定される。イオンゲージはフィラメントから熱放出される数 mA の電子を残留ガスに衝突させ、イオン化されたガスのイオン電流を測定して圧力を読む。イオンゲージでは熱電子が電極に衝突する時に出る X 線や ESD イオンが雑音を起こす。 10^{-10} Pa 台の極高真空になると、イオン電流が数百 fA レベルに下がり、X 線や ESD イオンによる雑音に埋められ、圧力測定が極めて難しくなる。発生する X 線や ESD イオンを防ぐため巧妙な機構が開発されたが、構造が複雑であり普及していない。 10^{-10} Pa 台の極高真空領域の圧力を測定するには、根本的に違う原理で働く圧力ゲージが必要だとも言える。

電界放出電子源を洗浄した後、真空中に放置すると表面に残留ガス分子が吸着して仕事関数 ϕ が増え、放出電流が減少する。放出電流 I の減少速度が圧力に比例することは経験的によく知られていて、その比例関係を圧力測定に利用しようとする試みは昔からあった。実際、大島らは電流値が洗浄後の 80% になる時間 τ と圧力 P の積 $P \cdot \tau$ が一定であることを示し、その関係から 10^{-10} Pa 台の圧力を見積もった。しかしその方法は、圧力を測定するために毎回電子源を加熱洗浄し、電流が減るのを待つという時間のかかるプロセスだったので、即座の圧力測定は出来なかった。

吸着量が少なく、仕事関数の増加量 $\Delta\phi$ が元の仕事関数 ϕ_0 に比べて小さいとき式(1)は、下式に近似できる。

$$\log I_{FE} \approx -\frac{3}{2} C \phi_0^{1/2} \Delta\phi + \log I_0 \quad (2)$$

ここで I_0 は初期の電流値である。N 個の分子が電子源に吸着したとき、分子の電気双極子モーメントを D とすると、仕事関数の変化量は $\Delta\phi=2\pi ND$ である。吸着分子の数 N は圧力 P と時間 t に比例する。放出電流の対数を縦軸に、時間を横軸に取った片対数グラフは理論的には直線になり、その傾きは圧力 P に比例して一定になる。しかし放出電流片対数グラフが長時間直線になったという報告はまだ無かった。

我々は電子源周辺の電子線衝突によるガス出しを行った後、周辺の部品を液体窒素温度に冷却し、放出電流片対数グラフが長時間直線になることを見出すのに成功した。電子源を洗浄した直後、放出電流を 2nA に調整して引き出し電圧を一定に維持し、放出電流の減少の様子を観察した。

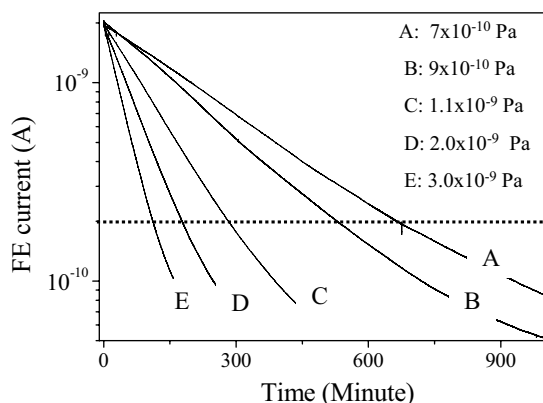


図 5. 放出電流の片対数グラフ

図 5 は $7 \times 10^{-10} \sim 3 \times 10^{-9}$ Pa の圧力下で測った放出電流の片対数グラフである。圧力は、清浄な超高真空あるいは極高真空中で残留ガスの 99% 以上を構成している水素を真空容器に導入して調節した。図 5 の片対数グラフは、点線 (200pA) の上ではほぼ直線であった。点線の以下では減少速度が次第に落ち、最終的には一定になった。

グラフの点線の上の部分はほぼ完璧に (相関係数 $R^2 > 0.999$) フィッティングされ、その傾きは圧力に比例する傾向を見せた。図 6 は片対数グラフ (図 5) の傾きを縦軸に、イオンゲージ (Leybold IM540 コントローラと IE514 ゲージヘッド) の測定圧力 P_I を横軸に取ったグラフである。グラフを見ると、 10^{-9} Pa 台では測定圧力 P_I と傾きが比例関係を満たすが、 10^{-10} Pa 台では傾きが比例関係 (点線) から下にずれることが分かる。イオンゲージは 10^{-10} Pa 台で測定値の信頼性が低いことから、 10^{-10} Pa 台での実際の圧力がイオンゲージの測定値より低かったことを示すと考えられる。

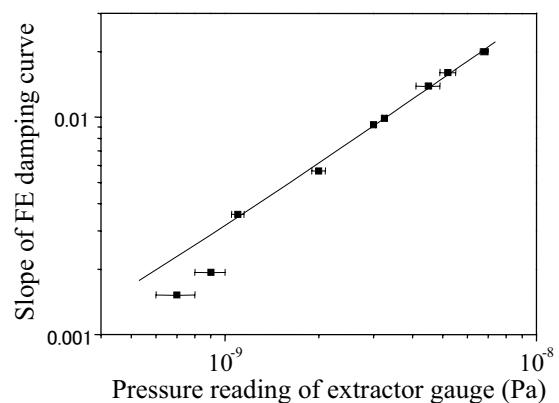


図 6. 放出電流減少速度(勾配)と圧力の関係

作製した極高真空電界放出システムで電流の揺らぎが極めて小さい ($\Delta I/I < 0.01\%$) 特性を生かして、短時間の片対数グラフの傾きから圧力を測定することも可能であった。2.5 分間 0.5 秒毎に取った 300 個の放出電流データの片対数傾きを換算して得た圧力値 (P_F) は、イオンゲージの測定値が平均値 $P_I = 7.5 \times 10^{-10}$ Pa を中心に $\pm 10\%$ 以上変動する真空の中で、10 時間測定した P_F の値は平均 5×10^{-10} Pa、標準偏差 10% 以下の分布を見せた。データの個数を 100 個 (50 秒間)、50 個

(25 秒間) に減らずと標準偏差はそれぞれ 13%、21%に増えた。

【結言と今後の展開】 さきがけ研究の期間中、電子相関を測るための極高真空電子ビームノイズ測定装置を開発した。本装置を用いた最低周波数ショットノイズの測定は、従来のノイズ測定系では例が無いレベルの感度を示し、今後行う予定の様々なナノ電子源から放出される電子ビームの電子相関測定が、十分可能なことを示唆している。一方、5 K以下を実現する極低温機能は、現在組み立てを完了しテスト中である。今後は、この極低温機能とノイズ測定系を組み合わせることで、最近装

置に設置した二つの電子検出器を用いて同時計数率を測定し、超伝導電子源からのクーパー対放出の有無を確認する予定である。

参考文献

- 1) X. Jehl *et al.*, Nature **405**, 50
- 2) K. Nagaoka *et al.*, Nature **396**, 557(1998).
- 3) B.Cho, *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B **25**, 1420 (2007)
- 4) B.Cho, T. Itagaki and C.Oshima, Applied Physics Letters **91(5)**, 051916 (2007).
- 5) B.Cho, T. Itagaki, T. Ishikawa, and C.Oshima, Applied Physics Letters **91(1)**, 012105(2007).