

研究終了報告書

「量子計算のための高品質酸化亜鉛を用いた材料基盤創出」

研究期間：2017年10月～2021年3月

研究者：小塚 裕介

1. 研究のねらい

量子計算等に用いられる量子状態は長いコヒーレンス時間と量子状態の制御を両立することが必要であり、一般的には相反する要請である。本研究では、この困難を解決することが期待される、トポロジカル超伝導状態の端に現れると予測されている非可換準粒子を形成するための材料基盤を、高品質酸化亜鉛二次元電子系が示す量子ホール状態と超伝導体の接合を用いて確立することを目的とした。GaAs 等従来の半導体はほとんどの金属との界面でショットキー障壁を形成するために超伝導との良質な接合を得ることが難しいが、酸化亜鉛は表面状態を形成されづらいことが特徴的であり、良い超伝導接合を形成できる可能性がある。また、二次元電子系は強磁場で明瞭な分数量子ホール状態を示すため、通常のトポロジカル絶縁体と超伝導体界面で予想されている、マヨラナ準粒子を一般化したパラフェルミオンの形成が期待でき、より高次の量子演算が可能となる。しかしながら、酸化亜鉛は近年高移動度二次元電子系が作製されたばかりであり、従来の半導体とも化学的性質が異なるため、微細加工等の要素技術が未発達である。

上述の目的のため、本研究では酸化亜鉛二次元電子系の量子ホール状態と超伝導体の接合を作製し、その界面に存在することが予測されている非可換準粒子の端緒を得ることを狙った。その達成のため次の項目を具体的な研究内容として定めた。①酸化亜鉛二次元電子系と良質な接合を形成し、上部臨界磁場が 10T 程度以上の超伝導電極の探索および界面形成手法の確立、②超伝導近接効果の電気的評価、③ジョセフソン接合による電荷検出など非可換準粒子に特徴的な物理量の計測。また、将来的に量子演算を行うため準粒子の移動をさせることを見据えて、電界効果による二次元電子系の変調が可能となる絶縁膜形成手法の確立も視野に入れる。これらを達成することで、酸化亜鉛二次元電子/超伝導ハイブリッド系の材料的な基盤を構築し、今後理論が予測する非可換準粒子を検証する土台とすることを目指す。

2. 研究成果

(1) 概要

酸化亜鉛二次元電子系/超伝導ハイブリッド系を作製するため、超伝導電極の探索を行った。上部臨界磁場がおおよそ 10T 以上かつリソグラフィのプロセスと相性の良い室温で成膜可能な超伝導体に絞った。その中でも、MoGe が比較的接触抵抗が低く、常伝導状態では良いオーミック特性を示した。酸化亜鉛二次元電子系と MoGe の接合を用いて、量子ホール状態における超伝導近接効果の検証を希釈冷凍機温度で行った。ゼロ磁場ではアンドレーフ反射を示す伝導度の増大を観測した。磁場を印加するとフィリングファクターによってアンドレーフ反射のシグナルは周期的に変化し、特に量子ホール状態では伝導度の増大も減少も観測されず、一見するとアンドレーフ反射も通常の反射も起こってないことを示している。しかしなが

ら、量子ホール状態でのみこの状態になっている特殊性を考慮すると、むしろ多重アンドレーフ反射の帰結であると推察され、量子ホール状態でも超伝導近接効果が働いている端緒と理解できる。

次に、二次元電子系を中間層とする横型のジョセフソン接合の作製を行った。超伝導体として MoGe を用いるとほぼオーミックの特性が得られたが、超伝導電流の観測には至らなかった。その原因として、界面でのバリア層の影響がまだ大きく、近接効果によって二次元電子内に誘起される超伝導ギャップが十分でないことが考えられ、より良質な界面を酸化亜鉛と形成できる超伝導体の探索が必要である。

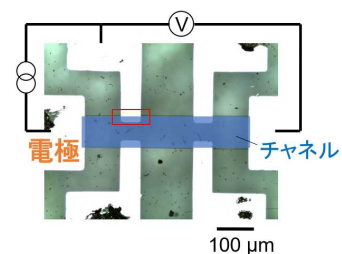
また、電界効果による二次元電子系の変調を行うため、ゲート絶縁膜の開発を行った。酸化亜鉛二次元電子系では原子層堆積による Al₂O₃ 絶縁膜を用いていたが、ポテンシャルの揺らぎによって二次元電子系の質が低下することが分かっていた。そこで界面状態を形成しづらい有機物絶縁体パラキシレンを絶縁膜として用いると、二次元電子系の質を保ったまま電界変調が可能となった。このゲート絶縁膜を用いて量子ポイントコンタクト構造を作製し、酸化亜鉛二次元電子系において初めて1次元量子化伝導の観測に成功した。

本研究では、酸化亜鉛二次元電子系と超伝導体接合等の作製技術の発展および量子ホール状態における超伝導近接効果の観測が達成された。一方、非可換準粒子については手掛かりを得る段階まで到達できなかった。しかしながら、材料的側面で良質な界面形成に必要な知見が得られ、今後非可換準粒子の形成・制御につながると期待される。

(2) 詳細

研究テーマ A「酸化亜鉛二次元電子系と超伝導体の接合作製」

酸化亜鉛二次元電子系の量子ホール状態に超伝導状態を近接効果によって誘起するため、酸化亜鉛と電氣的接触のよい超伝導体の探索を行った。量子ホール状態が観測される環境においても超伝導状態を保つため上部臨界磁場が大きく(おおむね 10T 以上)、リソグラフィのリフトオフプロセスとも相性のよい室温成膜可能な超伝導体を候補とし、NbTi, MoGe, MoRu, ReW に絞った。図1に示される3端子のジオメトリ(接触幅 50 μm)によって、接触抵抗によって評価した。初めに用いた NbTi/Ti は接触抵抗がおおよそ 10kΩ であるが、MoGe や ReW ではそれぞれ 3kΩ、200Ω 程度となっている。界面での酸化層や仕事関数が影響していると考えられる。ReW の接触抵抗は低いが、以下で説明するジョセフソン接合の微小構造では絶縁的特性となってしまう、界面に弱いショットキー障壁が存在すると考えられる。



超伝導電極	接触抵抗
NbTi/Ti (sputtering/EB)	~10kΩ
MoGe (sputtering)	~3kΩ
MoRu (sputtering)	~5kΩ
ReW (sputtering)	~200Ω

図1. 3端子法による接触抵抗評価のジオメトリと接触抵抗値。

研究テーマ B「マイクロ波による非可換粒子の確認」

(論文成果3)

非可換準粒子を検証するためのジョセフソン接合作製前に、酸化亜鉛二次元電子系と MoGe 超伝導体の単一界面において近接効果を調べるため、アンドレーフ反射の測定を行った。ゼロ磁場において接合に印加する DC 電圧をスイープしながら、微小交流信号により微分伝導度を測定すると、図2(a)に示すように低電圧領域では伝導度の増大が観測された。中央のディップは界面の障壁に由来すると考えられ、アンドレーフ反射の理論式 Blonder-Tinkham-Klapwijk フィッティングを行うと、障壁の強さ(フェルミエネルギーに対する障壁エネルギー) Z は 0.35 程度と見積もられた。

次に、量子ホール状態において超伝導体との近接効果が得られるか検証するため、磁場中でのアンドレーフ反射測定を行った。図2(b)に示すように、磁場中においてもアンドレーフ反射に起因すると考えられる伝導度の増大は観測された(図中の赤の領域)。また、伝導度の増大の強さはフィリングファクター ($\nu = nh/eB$, n : キャリア濃度、 h : プランク定数、 e : 素電荷、 B : 磁場)によって周期的な挙動が得られた。特に、 $\nu = 2$ 付近の量子ホール状態では(図 2(b)中赤で囲まれた領域)、伝導度の増大も減少も観測されず、見かけ上オーミックとなっている。しかしながら、アンドレーフ反射が完全に抑制され通常反射が起これば伝導度の減少が観測されるため、この観測はむしろ二次元電子系と超伝導体界面で多重のアンドレーフ反射と通常反射が起こった結果、両方反射過程が同数回行われる状態と理解できる。この状態はエッジ状態と超伝導状態が共存する1つの解であり、非可換準粒子形成にも重要と考えられる。

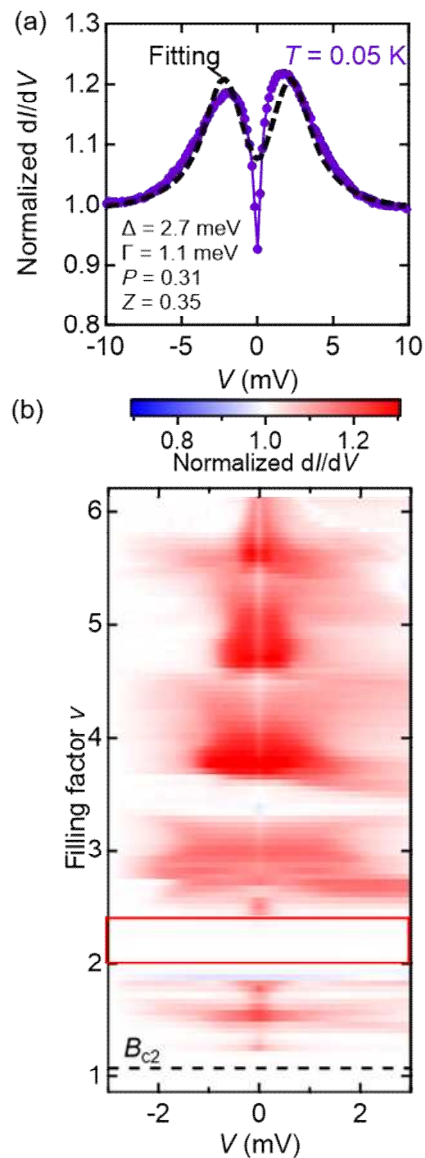


図2. (a)酸化亜鉛二次元電子系/MoGe 接合における微分伝導度の界面の電圧依存性とフィッティング結果。(b)磁場中におけるアンドレーフ反射測定。赤枠は $\nu = 2$ 付近の量子ホール状態で伝導度の増大や減少が見られない領域。 B_{c2} は MoGe の上部臨界磁場。

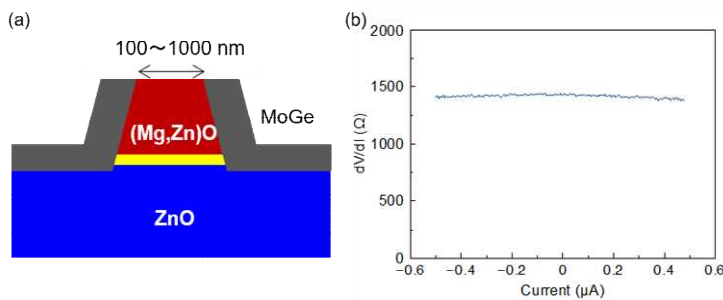


図3. (a)酸化亜鉛二次元電子系を中間層としたジョセフソン接合の構造。(b)接合の微分抵抗測定。

量子ホール状態に超伝導近接効果が働いたときの電荷状態を調べるため、ジョセフソン接合の作製を試みた。電子ビームリソグラフィを用い、Ar イオンミリングで上部(Mg,Zn)O 層をエッチング後、超伝導体を成膜し、そのままリフトオフを行い、図3(a)に示される構造を作製した。エッチング深さや超伝導体前の in-situ 表面クリーニング、超伝導電極間距離の調整等を試行錯誤行ったが、ゼロ磁場においても図3(b)に示されるようにジョセフソン電流の観測はされなかった。これは、界面での超伝導近接効果が酸化亜鉛内部に十分伝わっていないことを示している。MoGe はアモルファス超伝導体であり、酸化亜鉛との格子の不整合による界面準位が形成され、接触抵抗としての影響は少ないが、超伝導ギャップを急に低下させるエネルギー障壁となっていると考えられる。そのため、酸化亜鉛二次元電子系を中間層としたジョセフソン接合を作製するには、結晶が得られる化合物系の超伝導体を検討することが必要と考えられる。

研究テーマ C「ゲート操作による非可換粒子の操作」

(論文成果2)

二次元電子系の量子ホール状態と超伝導体の境界に形成されると予測されている非可換準粒子を移動させるためには、量子ホールエッジ状態に対し局所的に電界効果を印加する技術が必要である。そのため、まず酸化亜鉛二次元電子系に対し電界によってキャリア濃度を変調するための電界効果型トランジスタ構造を作製する必要がある。これまでは原子層堆積による Al_2O_3 絶縁膜を用いて二次元電子密度の変調を行ってきたが、分数量子ホール効果が得られる高品質試料では界面のポテンシャル揺らぎにより、移動度は変化しないものの量子ホール効果が明瞭に観測されなくなる問題が発生した。

そこで本研究では、酸化亜鉛二次元電子系試料を共同研究先の Cambridge 大 Chris Ford 研究室に提供し、パラキシレンをゲート絶縁膜として用いた量子ポイントコンタクトの作製を行った(図4(a))。結果として、図4(b)に示される量子化伝導の観測に至った。また、 $G = i + 0.7(2e^2/h)$ (i : 整数)は電子相関によって発現するとされる量子化であり、酸化亜鉛二次元電子系の特徴が表れた帰結である。この絶縁膜は今後量子ホール/超伝導接合へと適用することができる。

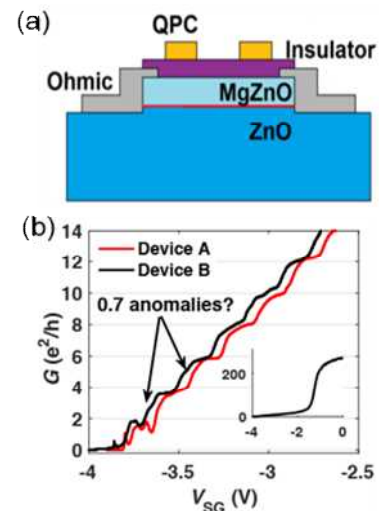


図4. (a)電界効果型トランジスタ構造。(b)量子ポイントコンタクト測定。

3. 今後の展開

本研究では、代表的なトポロジカル状態である量子ホール効果と超伝導体の界面において非可換準粒子を形成・制御することを目的として酸化亜鉛二次元電子系を用いてきた。今後、酸化亜鉛二次元電子系をさらに発展させるとともに、同様の物理が展開できる新たな物質の作製を進めていく。

A. 酸化亜鉛二次元電子系

非可換準粒子を界面で実現する目的において、トポロジカル状態として量子ホール効果を利用できる物質の中で、酸化亜鉛二次元電子系は電極との良い接触および明瞭な分数量子ホール効果が得られるという点において特徴的な材料である。他に比肩する物質はグラフェンであり、良い超伝導接合が得られ、量子ホール状態でのジョセフソン効果の報告がある。一方、電子相関は弱く、分数量子ホール効果は極めて良質なグラフェンでのみ観測されている点では、パラフェルミオン形成には酸化亜鉛の方が有利と考えられる。分数量子ホール状態の複合フェルミオンのアンドレーフ反射やジョセフソン効果は基礎学問的にも興味深く、その理解はパラフェルミオン形成に重要である。

最終的に非可換性を示すことは最も重要かつ難関な課題である。微小接合と局所的な電界効果による二次元電子系の変調が必要であり、メゾスコピックの分野で GaAs やグラフェンを用いて行われてきた作製技術を酸化亜鉛で発展させる必要がある。さらに、非可換性を示すために必要と考えられる干渉計は量子ホールエッジ状態の制御でも最も高い技術の 1 つであり、このような非可換重粒子系への適用を検討することは今後の課題である。

B. 非可換準粒子を形成するための新物質開拓

現在、非可換準粒子を固体中で形成する様々な研究がおこなわれているが、将来的に工学的な見地で研究が進められるには、化学的に安定しており、4K(液体ヘリウム温度)以上の高温でトポロジカル状態が保てる材料の開発ができれば、本研究に対し格段に有利と考えられる。そのような材料が開発できれば、ノイズ耐性が上がり精密な計測系を必要とせず、また冷却に係る時間の短縮による迅速化を図ることも可能である。候補物質としては化学的に安定な酸化物や組成ずれの影響がない単金属が候補材料である。上述の酸化亜鉛やグラフェンの研究と並行して進めることで、良質な高移動度電子系の研究で得られた知見や技術をこれらの材料にも適用することを念頭に置き、両面から進めることが重要である。

4. 自己評価

本研究は高品質酸化亜鉛の二次元電子系を用いて、非可換準粒子が形成されることが理論的に予測されている、量子ホール状態と超伝導体の接合を作製し、その検出・制御を行うための材料的基盤技術を開拓することを目的とした。超伝導体の選択や酸化亜鉛のエッチング方法、電子ビームリソグラフィの条件等基礎的な要素を網羅的に試行し、ある程度良質な界面が形成可能となった。その結果、量子ホール状態を含めた磁場中での超伝導近接効果であるアンドレーフ反射の詳細解析が可能となった。しかしながら、非可換準粒子の検証の一つとしていた電荷の測定は、ジョセフソン接合において超伝導電流の観測に至らなかったため未達成である。超伝導近接効果を決める界面の質がまだ十分でないことが主要因ではあるが、超伝導材料選択や界面形成手法への新たな方向性を決めるうえで重要な知見が

得られた。また、量子ホール系とジョセフソン接合という2つの量子系の計測系を両立する困難さと解決への道筋が明らかとなり、今後につながる成果を得た。

固体中の非可換準粒子は交換操作がユニタリー変換に相当する量子状態変化をするため、擾乱に強い量子計算への応用が検討されているが、実験系はまだ萌芽期であり、その実現可能性は不確定要素が多い。しかし、その実現には新たな実験手法や理論的側面の多くの発展が必要であり、過去の研究に鑑みても、そこから派生的に生まれる新たな研究の方向へとつながることが期待され、他の物質系を含め、物質・計測両側面から基礎的技術を高めることが有意義であると考えられる。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 5件

1. K. Tanaka, J. Falson, Y. Kozuka, M. Uchida, D. Maryenko, J. T. Ye, Y. Iwasa, A. Tsukazaki, J. H. Smet, M. Kawasaki

“Ballistic transport in periodically modulated MgZnO/ZnO two-dimensional electron systems”

Applied Physics Letters **115**, 153101-1-4 (2019)

酸化亜鉛は極性の結晶構造を持つため、濡れ性が著しく悪いリソグラフィ用のレジストがあり、電子ビームリソグラフィが容易ではなかった。表面密着層を用いることで、電子ビームリソグラフィを用いて酸化亜鉛上に 100nm を下回る微細構造を作製することを可能とした。その結果として、高移動度二次元電子系がドット形状のレジストによるポテンシャル変調を受け、電子の周回軌道とポテンシャル変調の周期による抵抗の整合性振動を観測した。

2.H. Hou, Y. Kozuka, Jun-Wei Liao, L. W. Smith, D. Kos, J. P. Griffiths, J. Falson, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, C. J. B. Ford

“Quantized conductance of one-dimensional strongly correlated electrons in an oxide heterostructure”

Physical Review B **99**, 121302(R)-1-6 (2019)

酸化亜鉛には原子層堆積による Al₂O₃ 絶縁膜が用いられてきたが、表面のポテンシャル揺らぎの増大のため、二次元電子系の移動度が変わらないにもかかわらず分数量子ホール状態が消失し量子伝導が得られないことが問題となっていた。そこで、有機物絶縁膜でありパラキシレンを用いることで二次元電子系の質を保ったまま電界変調を可能とした。また、量子ポイントコンタクト構造を作製し、酸化亜鉛二次元電子系で初めて量子化電動を観測した。

3. Y. Kozuka, A. Sakaguchi, J. Falson, A. Tsukazaki, M. Kawasaki

“Andreev reflection at the interface with an oxide in the quantum Hall regime”

J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 124712-1-7 (2018)

注目論文として選出

従来半導体は金属とショットキー障壁を形成するため、量子ホール状態におけるアンドレーフ反射の研究は限られていた。酸化亜鉛は金属電極とも良好な接合を形成することが特徴であり、二次元電子系とアモルファス超伝導体 MoGe の接合を作製し、アンドレーフ反射の観測を試みた。磁場中においてランダウレベルの形成に由来するアンドレーフ反射の磁場に対する周期的変化を観測した。アンドレーフ反射の解析により、量子ホール状態においても超伝導接合両端において、非局所的なアンドレーフ反射が起こっていることを示唆する結果を得た。

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0件(特許公開前のもも含む)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

招待講演

1. “Quantum Hall/superconductor hybrid in an oxide heterostructure”
Oxide Superspin Workshop 2019, Seoul, South Korea, June 24–28, 2019
2. “High-mobility electrons in ZnO heterostructures as a new platform for quantum information technology”
2nd Workshop on Functional Materials Science, Pusan, South Korea, October 22–23, 2018
3. “Unconventional superconductivity at the interfaces of oxide and related materials”
Oxide SuperSpin International School 2018, Sapporo, Japan, August 6–9, 2018
4. 「量子情報材料としての酸化亜鉛二次元電子系のポテンシャルと課題」
第9回トポロジー連携研究会「ナノ構造・エッジ伝導・マヨラナモード」, 東京, 2017 年
12 月 18 日–19 日

受賞

2018 年4月 科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞