

修士論文

# 多素子化に向けたニオブ積層配線を用いた TES型X線マイクロカロリメータの開発

首都大学東京大学院 理工学研究科 物理学専攻  
博士前期課程 宇宙物理実験研究室

学修番号 14879316

桑原 啓介

指導教授 大橋 隆哉 教授

2016年2月18日



## 概要

宇宙の大部分はダークエネルギーや暗黒物質（ダークマター）で構成されており、通常物質（バリオン）は宇宙のエネルギー密度 5% 程度にすぎない。バリオンの半分近くがダークバリオンと呼ばれる未観測の物質で、この宇宙の熱的・化学的進化や大規模構造の形成に深く関わっていると考えられている。ダークバリオンは宇宙流体シミュレーションによって数百万度の中高温銀河間物質 WHIM(Warm-Hot Intergalactic Medium) として分布していることが示唆されており、OVII, OVIII の輝線吸収線を精密 X 線分光することでこれを検出することができる。しかし、CCD などの従来の X 線検出器では、銀河系内の高温星間ガスから分離して WHIM を観測するにはエネルギー分解能が不十分で、高いエネルギー分解能と広い視野を備えた次世代の検出器が必要とされている。

我々のグループでは、WHIMを含む未検出のバリオン探査を目的とする衛星 DIOS(Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor) を提案しており、そこへ搭載することを目指して超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor) 型マイクロカロリメータの開発を進めている。マイクロカロリメータはおよそ 100 mK という極低温下で動作させ、X 線が入射した際の素子の温度上昇による電気抵抗値の変化から X 線のエネルギーを求めるという検出器である。DIOS ではピクセルひとつにつき 5.9 keV の X 線に対して 5 eV(FWHM) 以下のエネルギー分解能が求められているが、TES 型マイクロカロリメータは超伝導薄膜の相転移時の急峻な電気抵抗の変化を利用するため、1 eV 台の優れたエネルギー分解能を実現できると考えられている。我々のチームでは超伝導金属 (チタン Ti) と常伝導金属 (金 Au) 二種類の金属薄膜を重ねる事で近接効果を働かせ、両者の膜厚比から転移温度  $T_c$  をコントロールし、 $T_c \sim 100$  mK 程度まで下げている。これまでに我々の自作素子では、16 ピクセルアレイで 5.9 keV の入射 X 線に対して 2.8 eV(FWHM)、256 ピクセルアレイで 4.4 eV のエネルギー分解能を達成している。

DIOS 計画では、アレイ全体で  $1\text{ cm}^2$  の焦点面をカバーするため、500  $\mu\text{m}$  角の TES ピクセルからなる  $20 \times 20$  アレイが必要である。また DIOS で採用する可能性がある周波数分割読み出しでは数百 kHz から MHz の高周波を信号に重畳するため、配線インダクタンスによるクロストークも問題となる。この問題を解決するため、積層配線と呼ばれるピクセルまでのホットとリターン配線を絶縁膜  $\text{SiO}_2$  を挟んで上下に重ねる構造を採用した。従来の構造に比べて配線スペースが削減されるため多素子化が可能になるうえ、配線自身で磁場がキャンセルすることでクロストークを十分小さく抑えることができる。

しかし、現在  $20 \times 20$  積層配線素子を首都大で製作するには上部配線の上に TES を形成する必要があるが、段切れを防ぐため TES を配線よりも厚くしなければならない。また、これまでの条件出しでは膜厚比が  $\text{Ti}/\text{Au}=2$  であれば転移温度が 100 mK 付近になることがわかっていたが、TES 下層のチタンを厚くすると近接効果が効きにくくなり転移温度が 200 mK と高い温度で転移してしまう。

これらの問題を解決するため、産総研の協力によるイオンミリング法によって配線側面に傾斜 (テーパー) を付けた、積層配線 TES 型マイクロカロリメータの製作を行った。配線側面に傾斜を付けることにより、配線上に TES を成膜しても段切れを起こさず、TES はより薄く配線はより厚くすることが可能なデザインとなっている。昨年度から傾斜付き積層配線素子の製作及び評価を始めているが、常伝導抵抗が  $1 \sim 2\ \Omega$ 、残留抵抗が  $100 \sim 800\ \text{m}\Omega$  とどれも要求値 (それぞれ数  $\text{m}\Omega$ 、数百  $\text{m}\Omega$ ) より高い値となってしまった。その後の試作を経て常伝導抵抗値は  $300 \sim 400\ \text{m}\Omega$  程度まで下げることが成功したが、正常な超伝導転移を確認する事は出来ていない。

本研究では傾斜付き積層配線素子の優れたエネルギー分解能の達成と正常な超伝導転移が生じない原因の究明と改善を目指し、試作及び評価を進めた。昨年度の原子間力顕微鏡 (AFM: Atomic Force

Microscope) による積層配線基板の表面観察によって TES の下地となる絶縁膜の表面粗さが TES の転移を妨げる要因ではないかと考え、表面粗さの改善を行った。

TES の下地部分の積層構造を再現した基板を製作し TES べた膜での膜厚比 - 転移温度の条件出しを行うことで表面粗さ  $S_q$  (二乗平均平方根面粗さ)  $\sim 1$  nm に転移するかどうかの境界があると考えられることを突き止めた。また、エッチング後の表面粗さを改善するため配線素材をアルミからニオブへ変更し製作プロセスの確立を行ったところ、 $S_q$  は  $\sim 6$  nm から  $\sim 3$  nm に約 2 倍改善した。

さらなる表面粗さの改善のため、上部配線のパターニングに用いているイオンミリングエッチングの条件出しと共に、CMP 研磨を用いる新プロセスを検討している。



# 目次

|              |   |           |
|--------------|---|-----------|
| <b>第 1 章</b> | <b>序論</b>                                 | <b>1</b>  |
| 1.1          | X 線天文学                                    | 1         |
| 1.1.1        | X 線天文学の展開                                 | 1         |
| 1.1.2        | X 線観測の意義                                  | 2         |
| 1.2          | 放射線検出器                                    | 2         |
| 1.2.1        | エネルギー分解能                                  | 4         |
| 1.3          | X 線検出器                                    | 5         |
| 1.3.1        | ガス検出器                                     | 5         |
| 1.3.2        | マイクロチャンネルプレート                             | 6         |
| 1.3.3        | 半導体検出器                                    | 7         |
| 1.3.4        | CCD カメラ                                   | 7         |
| 1.3.5        | 超伝導トンネル接合検出器                              | 8         |
| 1.3.6        | 回折格子                                      | 8         |
| 1.3.7        | X 線マイクロカロリメータ                             | 9         |
| 1.4          | 次世代の X 線分光器に要求される性能                       | 11        |
| 1.4.1        | ミッシングバリオン問題                               | 11        |
| 1.4.2        | DIOS ミッション                                | 12        |
| <b>第 2 章</b> | <b>TES 型 X 線マイクロカロリメータ</b>                | <b>17</b> |
| 2.1          | X 線マイクロカロリメータの構造                          | 17        |
| 2.1.1        | 吸収体                                       | 17        |
| 2.1.2        | 温度計                                       | 18        |
| 2.2          | X 線マイクロカロリメータの原理                          | 18        |
| 2.3          | 超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor)   | 20        |
| 2.4          | ノイズとエネルギー分解能                              | 21        |
| 2.5          | 電熱フィードバック (ETF: Electro-Thermal Feedback) | 22        |
| 2.5.1        | 電熱フィードバック下の温度変化に対する応答                     | 22        |
| 2.6          | SQUID を用いた読み出し系                           | 24        |
| 2.6.1        | dc-SQUID                                  | 24        |
| 2.7          | 世界の開発状況                                   | 26        |
| 2.7.1        | 開発の歴史                                     | 26        |
| 2.7.2        | 世界の開発状況                                   | 26        |
| <b>第 3 章</b> | <b>これまでの開発状況</b>                          | <b>29</b> |
| 3.1          | 単素子の開発                                    | 29        |
| 3.1.1        | TES に用いる金属の選定                             | 29        |
| 3.1.2        | 製作素子の最高性能                                 | 29        |
| 3.2          | 多素子の開発                                    | 30        |
| 3.2.1        | 製作素子の最高性能                                 | 30        |

|       |                                    |    |
|-------|------------------------------------|----|
| 3.3   | 積層配線素子の開発                          | 32 |
| 3.3.1 | 製作素子の性能                            | 32 |
| 3.4   | 傾斜付き配線素子                           | 37 |
| 3.4.1 | 製作素子の性能                            | 37 |
| 第4章   | 超伝導積層配線素子製作プロセス                    | 41 |
| 4.1   | 傾斜付き積層配線デザイン                       | 41 |
| 4.2   | 傾斜付き積層配線構造の製作                      | 43 |
| 4.3   | スパッタによる TES 薄膜の形成                  | 47 |
| 4.4   | TES パターニング                         | 48 |
| 4.5   | 金吸収体の蒸着及びパターンフォトリソグラフィー            | 49 |
| 4.6   | DRIE によるメンブレン構造の形成                 | 49 |
| 第5章   | 性能評価・測定環境                          | 51 |
| 5.1   | 無冷媒希釈冷凍機                           | 51 |
| 5.1.1 | 冷却時間                               | 54 |
| 5.1.2 | 温度ゆらぎ                              | 54 |
| 5.1.3 | カロリメータの組み込み                        | 55 |
| 5.1.4 | R-T 測定                             | 55 |
| 5.1.5 | 臨界電流測定                             | 56 |
| 5.2   | 原子間力顕微鏡 (AFM)                      | 56 |
| 5.3   | マイクロプローバー                          | 57 |
| 5.4   | 段差計                                | 57 |
| 第6章   | 傾斜付き積層配線素子の試作                      | 59 |
| 6.1   | 試作プロセス                             | 59 |
| 6.2   | 試作基板                               | 59 |
| 6.3   | 試作素子のまとめ                           | 60 |
| 6.3.1 | wafer 01~07 の R-T 測定結果まとめ          | 65 |
| 6.4   | 断面観察                               | 66 |
| 6.4.1 | 断面観察のまとめ                           | 75 |
| 6.5   | 原子間力顕微鏡 (AFM) 観察                   | 75 |
| 6.5.1 | wafer 08                           | 75 |
| 6.6   | 転移温度条件出し                           | 78 |
| 第7章   | 表面粗さ改善積層配線素子                       | 81 |
| 7.1   | 表面粗さ                               | 81 |
| 7.2   | Al 配線構造再現基板                        | 81 |
| 7.2.1 | $T_c$ 条件出し (TMU 398~401, 418, 419) | 81 |
| 7.3   | レジスト溶液変更                           | 83 |
| 7.3.1 | リフロープロセス最適化 (wafer09~13)           | 83 |
| 7.4   | ニオブ配線素子                            | 84 |
| 7.4.1 | Nb 配線構造再現基板                        | 84 |
| 7.5   | ニオブ積層配線基板                          | 90 |
| 7.5.1 | イオンミリング条件変更 (wafer 14~16)          | 90 |
| 7.5.2 | wafer 14                           | 90 |

---

|              |                          |            |
|--------------|--------------------------|------------|
| 7.5.3        | wafer 15, 16 . . . . .   | 93         |
| 7.5.4        | wafer 19,20 . . . . .    | 97         |
| 7.5.5        | wafer 21,22 . . . . .    | 101        |
| 7.5.6        | ニオブ積層配線基板まとめ . . . . .   | 102        |
| <b>第 8 章</b> | <b>CMP 研磨試作基板</b>        | <b>103</b> |
| 8.1          | CMP 研磨 . . . . .         | 103        |
| 8.2          | CMP 研磨基板試作プロセス . . . . . | 103        |
| 8.3          | RT 測定 . . . . .          | 105        |
| 8.3.1        | CMP 研磨試作素子まとめ . . . . .  | 107        |
| <b>第 9 章</b> | <b>まとめと今後</b>            | <b>109</b> |
| 9.1          | まとめ . . . . .            | 109        |
| 9.2          | 今後 . . . . .             | 110        |



# 第1章 序論

## 1.1 X線天文学

### 1.1.1 X線天文学の展開

太陽以外の天体からやってきた X 線が初めて観測されたのは、1962 年にアメリカの B. Rossi や R. Giacconi らによる観測ロケットにより、全天で最も明るい X 線源である Sco X-1 が偶然発見されたときである。この時代になるまで観測されなかった理由は、宇宙からの X 線が地上まで届かないことにある。地上に 100% 近く到達する可視光に対し、宇宙から地球にやって来る X 線は地球大気に吸収されてしまいほとんど地上に届くことはない。上空ないし大気圏外に出ることで観測でき、20 世紀半ばからは気球やロケット、人工衛星等の技術の向上によりそれが可能になった (図 1.1)。

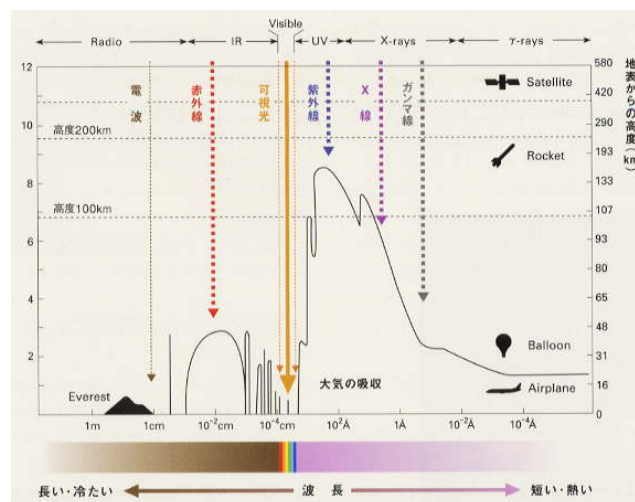


図 1.1: 宇宙空間からの電磁波が到達できる高度。

これを受けて、1960 年代には小型の観測ロケットにより X 線天体について断片的な知識が集められ始めたが、1970 年に世界初の X 線天文衛星 *Uhuru* (米) が登場し、全天走査の結果約 400 個の X 線天体をリストアップすることで研究は大きく飛躍した。その後は各国のそれぞれ特徴を持った観測器が次々に打ち上げられ、それらの幅広い活躍により X 線という波長は宇宙物理学にとって不可欠な窓として確立されてきた。

日本の X 線観測の歴史は小田稔が考案した「すだれコリメータ」によって、さそり座 X1 の位置を同定することに成功したことから始まった。このコリメータは、2 層のすだれ状のコリメータを検出器の上に置くことで、入射 X 線の角度による強度変化を感知し、方向を知るという仕組みであり、X 線撮像の難しい  $> 10$  keV 以上の太陽 X 線観測でもこの原理に基づく装置が今も使われている。すだれコリメータは 1979 年に打ち上げられた日本の第 1 機目の X 線天文衛星「はくちょう」に世界で初めて搭載され、次々と新しい X 線源の位置を決定することに貢献した。「はくちょう」を皮切りに、1983 年に「てんま」、1987 年に「ぎんが」、1993 年に「あすか」と続き、2005 年に 5 機目の X 線衛星である「すざく (ASTRO-E2)」の打ち上げに成功した (図 1.2)。現在「すざく」に続く新たな宇宙 X 線天文衛星「ASTRO-H」の開発が進行中であり、2016 年 2 月 12 日に打ち上げ予定である。

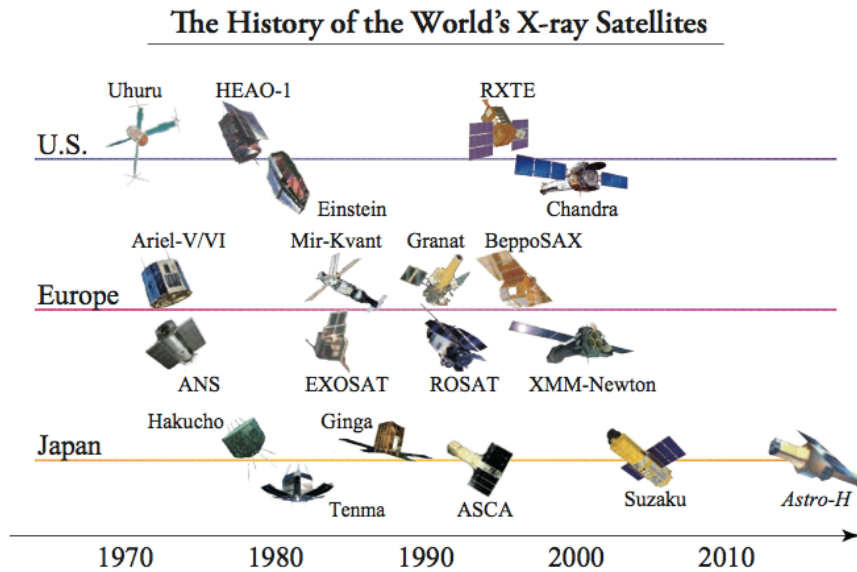


図 1.2: 世界の宇宙 X 線観測衛星の歴史。

### 1.1.2 X 線観測の意義

今日の宇宙観測は主に電磁波を用いて行われている。宇宙に存在する物質や現象は、マイクロからマクロまで、低温から高温までと実に幅広い。そのため、電波・赤外線・可視光・X 線・ $\gamma$  線を用いた多波長による複合的な観測により宇宙の本質を探る研究がなされている。その中で宇宙における X 線や  $\gamma$  線領域の放射は非常に多く、銀河間に存在する超高温ガスからの熱放射、超相対論的電子による逆コンプトン散乱、超新星残骸や  $\gamma$  線バーストからのシンクロトロン放射、X 線パルサーからのサイクロトロン共鳴などが挙げられる。また 10 keV 以上のエネルギーをもつ硬 X 線・ $\gamma$  線領域では、高エネルギー天体から放出される非熱的な放射や高温の熱放射を観測することが可能である。従って、宇宙における高温、高エネルギー現象を捉えるのに適した電磁波である。また、0.1~10 keV の X 線エネルギー帯 (軟 X 線帯) には、炭素、窒素、酸素、ネオン、マグネシウム、シリコン、硫黄、アルゴン、カルシウム、鉄、ニッケル等の宇宙に存在する主要な重元素の K、L 輝線が存在する。X 線・ $\gamma$  線による天体観測は、宇宙におけるこれらの重元素の量や物理状態を知る上でも重要な手段のひとつである。X 線を放射する天体は多岐に渡り、それぞれ異なった特徴の X 線を放射している。例えば、白色矮星、中性子星、活動銀河核のブラックホール等の高密度天体と恒星 (伴星) との連星系では、伴星からの質量降着によって高温の降着円盤が形成され、そこからの黒体放射や熱制動放射による X 線が観測される。中心星の自転や伴星の公転によって X 線強度が周期的に変化する X 線パルスが観測されることもある。また、銀河や銀河団からはそれらに付随する高温プラズマによる熱制動放射の X 線が見られる。最近では、太陽系惑星周辺の中性原子と太陽風の電離プラズマによる電荷交換反応によって X 線輝線が放射されることも分かってきた。X 線を通して見ると宇宙は高温、高エネルギー現象で満ちあふれていることが分かる。こういった情報をより正確に捉えるために、X 線検出器の撮像能力やエネルギー分解能、時間分解能等を向上させることは重要であると言える。

## 1.2 放射線検出器

放射線の検出器には様々なものが存在する。そのどれもが、放射線により物質中に与えられたエネルギーが電子・原子・分子の相互作用の多数回の繰り返しを通じて、多くの原子・分子に分配されていく物理過程、または結果を利用して放射線を検出するものである。

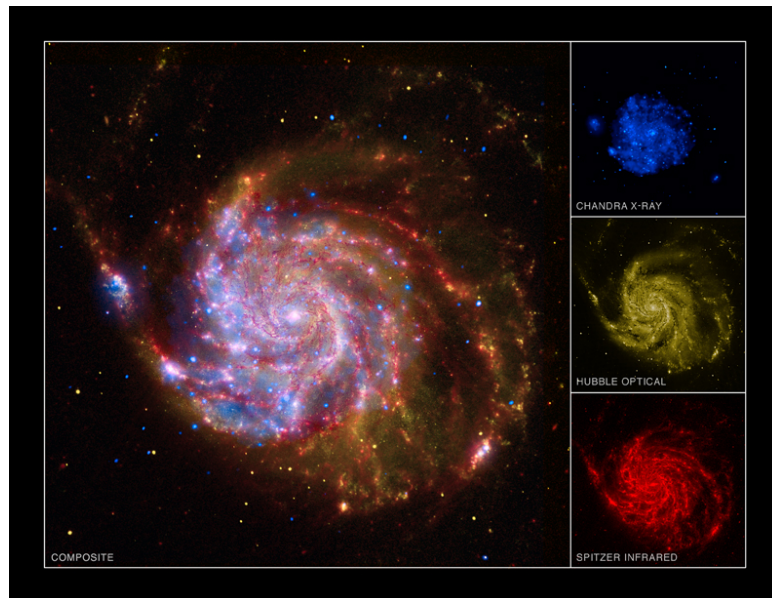


図 1.3: おおぐま座の渦巻き型銀河の各波長でのイメージ (青: X 線 (*Chandra* 衛星)、黄: 可視光 (*Hubble* 宇宙望遠鏡)、赤: 赤外線 (*Spitzer* 宇宙望遠鏡)。

表 1.1: 放射線の検出方法と測定器の種類。

| 検出方法     | 検出器                    |
|----------|------------------------|
| 気体の電離を利用 | 電離箱、比例計数管、GM 計数管       |
| 固体の電離を利用 | 半導体検出器                 |
| 蛍光作用を利用  | シンチレーション検出器、熱ルミネセンス線量計 |
| 写真作用を利用  | ガラスバッチ                 |

一般に 40 eV~20 keV(30~0.05 nm) のエネルギー (波長) 領域における X 線の検出には光電効果が利用され、硬 X 線から  $\gamma$  線の領域ではコンプトン効果や電子対生成が有効となる。上に挙げたような検出器の中から、X 線の検出に適したものを選択する必要がある。また、天体からの X 線を観測する際には地球大気による X 線の吸収があるために地上での観測は不可能である。そのため人工衛星に搭載しての観測が現在では主流であり、これらの検出器には大きさ・寿命・耐久性などの制限が与えられることとなる。また、X 線以外の成分 (バックグラウンド)、例えば紫外線、荷電粒子、宇宙線にも感度を持っているため微弱な X 線を検出する場合には、これらの除去も重要な機能となる。

### 1.2.1 エネルギー分解能

ここでエネルギー分解能についての一般論を述べる。エネルギー分解能とは X 線光子のエネルギーの決定精度のことで、決定した X 線光子のエネルギーの頻度分布を X 線エネルギースペクトルと呼ぶ。エネルギー  $E_0$  の単色の X 線が入射した際に得られるエネルギースペクトルを図 1.4 に示す。キャリア

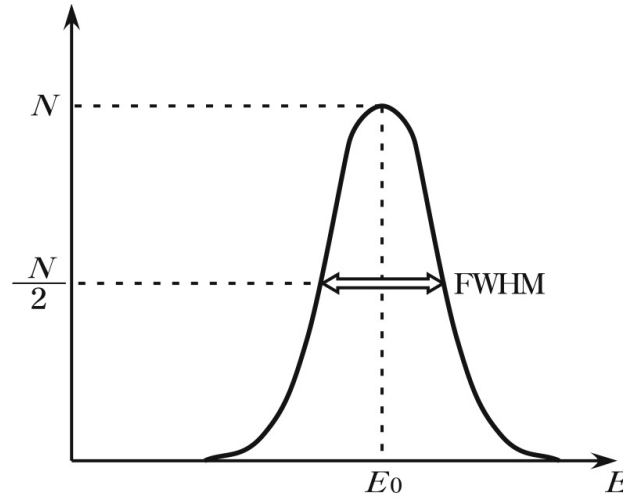


図 1.4: 単色 X 線入射時の計測スペクトル。

の揺らぎや読み出しシステムによるノイズなどの影響により、単色 X 線を入射した場合であっても得られるエネルギースペクトルは必ず有限の幅を有する。この分布の高さが半分になるところの幅を半値幅 (FWHM: Full Width Half Maximum) とよび、検出器のエネルギー分解能の指標として用いられる。半値幅が小さいほど分解能は高い。一般に X 線検出器では、X 線入射時の検出器との相互作用によって生じる電子、イオン、正孔、フォノンなどのキャリアを収集して入射エネルギーを測定する。検出器に 1 つの光子が入射し、生成した情報キャリアが  $N$  個であったとする。ここで、キャリアの生成はポアソン (Poisson) 統計に従うとし、情報キャリア生成に必要なエネルギーは入射 X 線光子のエネルギー  $E_0$  に比べて十分に小さく、情報キャリア数  $N$  が十分に大きい場合には、図 1.4 に示す応答関数はガウス (Gauss) 分布となる。その標準偏差は  $\sigma = \sqrt{N}$  であり、半値幅は  $\text{FWHM} = 2.35\sqrt{N}$  で表されることとなる。これより、情報キャリア数の統計揺らぎによって決まるエネルギー分解能  $\Delta E$  は、

$$\Delta E_{\text{FWHM}} = \frac{2.35E_0}{\sqrt{N}} \quad (1.1)$$

と表される。しかし、実際には情報キャリアの生成はポアソン分布に完全には従わないので、実際のエネルギー分解能の限界は、

$$\Delta E_{\text{real}} = 2.35E_0\sqrt{\frac{F}{N}} \quad (1.2)$$



と表される。ここで  $F$  は Fano 因子と呼ばれるポアソン統計からのずれを定量化するために導入された係数であり一般に  $F \leq 1$  である。

## 1.3 X線検出器

X線は物質との相互作用等を利用して検出することができる。これまで様々な種類のX線検出器が開発され、X線天文学の発展に貢献してきた。ここでは、代表的なX線検出器を紹介し、その原理や特徴等について簡単に述べる。

### 1.3.1 ガス検出器

比例係数管 (PC: Propotional Counter) は円筒または角筒を陰極とし、細い芯線を陽極として高電圧を印加し前置増幅器を通してパルス信号を取り出す検出器である。放射線がガス中を通過する際に、ガスを電離して一次電子とイオンを生成する。それぞれ電場により加速されるが、質量の違いから電子の方がより速く移動する。加速を受けた一次電子がガスのイオン化ポテンシャルを超えるエネルギーを得ると、一次電子によるガスのイオン化が生じ二次電子をイオンの対ができる。これを繰り返すことで入射エネルギーに比例した個数の電子が生成され、電極へ達することとなる。この電子増幅過程を電子なだれと呼ぶ。筒の中には希ガスと有機ガスの混合ガスを流すか密封する。筒の一部を切り取りX線透過率の高い薄膜を取り付けてX線の入射窓にする。芯線には直径  $20 \sim 100 \mu\text{m}$  のタングステン線が主に用いられ、混合ガスとしては  $\text{Ar } 90\% + \text{CH}_4 \text{ } 10\%$  の PR(P-10) ガスがよく使用される。X線入射窓の膜には Be、Al、Ti の金属薄膜やポリプロピレン、マイラー、カプトン等のプラスチック薄膜が用いられる。検出効率は窓膜の透過率とガスの吸収率によって決まる。エネルギー分解能は一次電子と二次電子の数の揺らぎで決まる。比例係数管では特に二次電子の数の揺らぎが大きく、入射X線エネルギーを  $E_0$ 、一つの中性ガスを電離しイオン対を生成するのに必要なエネルギーを  $W$  とし、二次電子の数の揺らぎの影響を加味し、式 1.2 を書き換えると、エネルギー分解能  $\Delta E$  は、

$$\Delta E = 2.35 \sqrt{E_0 W (F + b)} \quad (1.3)$$

と表される。ここで  $b$  は電子なだれの理論的予想から導かれる定数であり、 $0.4 < b < 0.7$  程度の値を持つ。比例係数管での典型的な値としては、 $W = 35 \text{ eV}$ 、 $F = 0.20$ 、 $b = 0.6$  である。これを上の式に代入すると、 $6 \text{ keV}$  に対するエネルギー分解能は  $960 \text{ eV}$  となる。比例計数管に似たX線検出器でX線天文学の初期に使用された Geiger-Muller 計数管は、電子増幅が飽和するほど高い電圧を印可するものであり、エネルギー測定よりもX線の計数に特化した検出器である (図 1.5)。世界初のX線天文衛星 *Uhuru* 衛星 (米) に搭載されて以来、これまで多くの衛星に搭載されてきた。中でも *Einstein* 衛星 (米) や *ROSAT* 衛星 (独) には、位置検出機能を備えた比例計数管が搭載され、X線撮像分光検出器としてX線望遠鏡の焦点面に配置された。日本の衛星「ぎんが」にも非X線バックグラウンドを低減する反同時計数機能を持った比例計数管が搭載された。

一方、ガス蛍光比例係数管 (GSPC: Gas Scintillation Propotioanl Counter) では一次電子で中性ガスを励起させ、これが基底状態に戻る際に放出する光子を利用したもので、電子なだれを生じることがないため比例係数管よりも高いエネルギー分解能を達成することが可能である。代表的なガス蛍光比例係数管での値  $W = 35 \text{ eV}$ 、 $F = 0.20$  を用いると、 $6 \text{ keV}$  に対するエネルギー分解能は  $480 \text{ eV}$  となる。この値はX線天文衛星「あすか」に搭載されていた GIS(Gas Imaging Spectrometer) のエネルギー分解能にほぼ一致する。

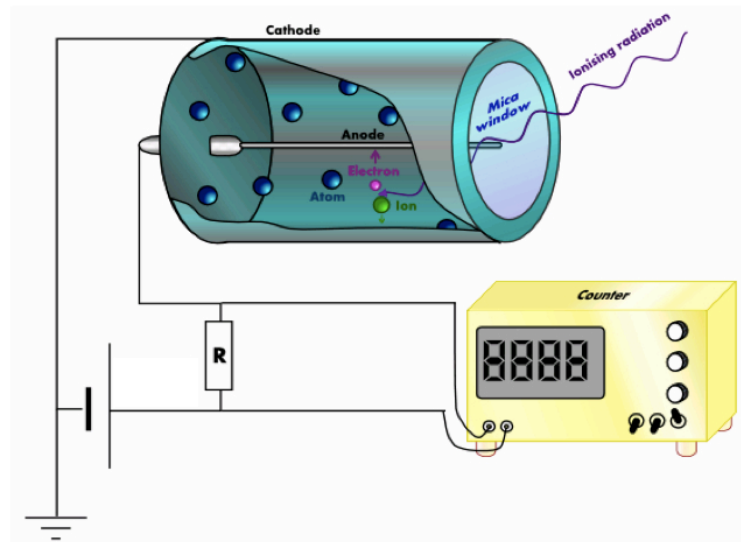


図 1.5: Geiger-Muller 計数管。

### 1.3.2 マイクロチャンネルプレート

マイクロチャンネルプレートはX線検出器の中では最も高い位置分解能を得ることができる検出器の一つである。図 1.6 に示すように、細管を多数束ねて平板状にした検出器である。細管の両端には電圧が印可されている。細管はそれぞれ光電子増倍管の役割を果たし、X線が細管の内壁に入射した際に発生する光電子を増倍する。この過程で増倍された電子を信号として取り出すとX線エネルギーの情報は得ることができないが、入射X線の位置の情報を得ることができる。そのため、X線望遠鏡の焦点面に配置することでX線画像を得ることができ、X線撮像検出器として用いることができる。これまで *Einstein* 衛星 (米) や *EXOSAT* 衛星 (欧州)、*ROSAT* 衛星 (独)、*Chandra* 衛星 (米) 等に搭載され、銀河や銀河団の高温プラズマの空間分布の研究等に大きな貢献をした。

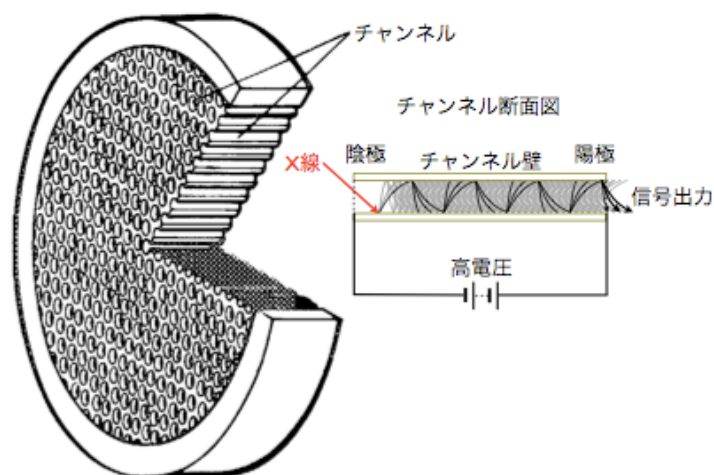


図 1.6: マイクロチャンネルプレート。

## 1.3.3 半導体検出器

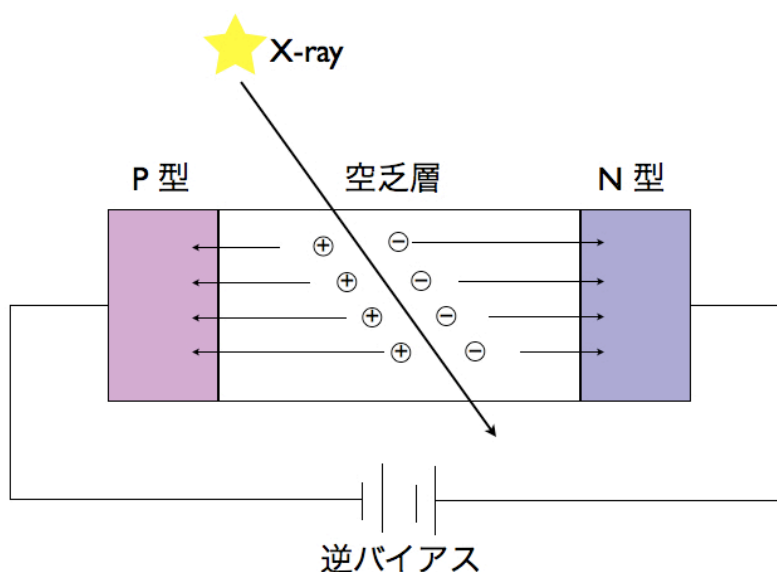


図 1.7: 半導体検出器の測定原理。

半導体検出器 (SSD: Solid State Disk) は比例計数管とは異なり、アルゴンガスではなくシリコンやゲルマニウムなどの半導体と使用するものである。この検出器の基本的情報キャリアは X 線から変換された一次電子であり、入射 X 線にそって電子・正孔対が生じる。これを検出器内部に印加した電圧によって収集して電気信号として読み出すのが基本的な検出原理である。次に述べる X 線 CCD も広義では半導体検出器であるが、ここでは放射線検出器として比較的歴史のあるリチウムドリフト型シリコン Si(Li) 検出器について簡単に述べる。

半導体検出器の構造を図 1.7 に示す。pn 接合に逆バイアスをかけると空乏領域が形成され、この領域にて X 線が吸収され電子・正孔対がその行路に沿って生じる。Si の場合この領域の厚みは数 mm まで可能であり、通常ここに数 100～数 1000 V のバイアスをかけて用いる。半導体検出器の時間分解能は、有感領域を電子または正孔が移動する速さで決まり、2 mm 厚を例にとれば 10～100 nm 程度になる。一つの情報キャリアを生じるのに必要なエネルギー  $W$  は、半導体検出器では Si で平均 3.65 eV、Ge で平均 2.96 eV とガス検出器に比べ 1/10 であり高いエネルギー分解能が期待される。Si を用いた半導体検出器のファノ因子  $F$  の典型的な値は 0.1 である。従って式 1.3 を用いると 5.9 keV に対するエネルギー分解能は 120 eV という値を得る。しかしながら実際は、半導体検出器の場合はガス検出器に比べて読み出し回路系に入力される電子の数が少ないため、読み出し回路系の雑音が無視できなくなり、エネルギー分解能の劣化をもたらす。「すざく」に搭載されている HXD(Hard X-ray Detector) による観測帯域のうち低エネルギー側を受け持つ PIN 型シリコン半導体検出器では、2 mm 厚のシリコン PIN フォトダイオード素子を 2 枚重ねにし、有効厚みを 4 mm として用いる。読み出し回路系の雑音を抑えるため低温に冷却して用いる。*Einstein* 衛星 (米) 等では X 線分光検出器として X 線望遠鏡の焦点面に配置された。

## 1.3.4 CCD カメラ

ビデオカメラやデジタルカメラ等としても多用される CCD(Charge Coupled Device) は X 線検出器としても有用である。X 線 CCD カメラは、一つ一つの小さな半導体検出器をモザイク状に並べることにより、前置増幅器からみた静電容量を小さくし、増幅器の雑音レベルを下げることに成功した検出器

である。典型的に 5.9 keV の X 線に対して  $\Delta E_{FWHM}$  は  $\sim 120$  eV 程度となる。長所はメガピクセルの精細撮像能力を持っていることである。多画素の情報を読み出すための仕組みとして、ある画素に入射した X 線光子が生成する電子群を電場によって電荷転送領域に移動させて蓄積し、電極に加える電圧を規則的に変化させることで蓄積された電子群をバケツリレー方式で読み出し口まで転送する。この方法を用いることで画素毎の信号を順番に取り出し、位置情報を再構築することができるが、時間分解能は数 sec 程度と低くなってしまう。現在軌道上で観測を行っている日本の衛星「すざく」には、XIS(X-ray Imaging Spectrometer) として X 線 CCD カメラが搭載されている (図 1.8)。



図 1.8: 「すざく」に搭載されている X 線 CCD カメラ。

### 1.3.5 超伝導トンネル接合検出器

超伝導トンネル接合検出器 (STJ: Superconducting Tunnel Junction) は、2 枚の超伝導対で薄い絶縁膜を挟んだ構造をしている。STJ 素子にて X 線が光電吸収される際に生成された光電子がクーパー (Cooper) 対を破壊して準粒子 (単独の電子) を作る。STJ ではトンネル効果で絶縁体を通じた準粒子を信号として検出する。超伝導現象を利用するため、 $\sim 4$  K の極低温にて動作させる必要がある。超伝導状態にある電子が常伝導状態となるのに必要なエネルギー、すなわちクーパー対を一つ破壊するのに必要なエネルギーは数 meV である。エネルギー分解能の限界は情報キャリア数の統計揺らぎによって決まるので、STJ の分解能は半導体検出器に比べ数十倍も良くなると考えられ、原理的には  $\sim 4$  eV のエネルギー分解能を達成することが可能である。

### 1.3.6 回折格子

回折格子は X 線検出器の中では最も高いエネルギー分解能を得ることができる検出器の一つである。ただし、分散型分光器である回折格子は分散された光だけがエネルギー情報を持つため、非分散型分光器に比べて X 線検出効率が低い。また、分散角が入射 X 線の波長に比例するため、波長の短い (エネルギーの高い) X 線に対しても高いエネルギー分解能を得ることができない。さらに、分散型分光器であるため、空間的に広がった天体に対しては高いエネルギー分解能を得ることができない。つまり、回折格子を用いた観測に適した対象は、軟 X 線で明るい点状の X 線源に制限される。回折格子は X 線望遠鏡とその焦点面の間に配置され、エネルギー分解能は望遠鏡の角度分解能や X 線エネルギー等に依存する。具

体的には  $\Delta E_{\text{FWHM}} \propto E^2$  であり、典型的に 1 keV の X 線に対して  $\Delta E_{\text{FWHM}}$  は数 eV 程度となる。現在軌道上で観測を行っている *Chandra* 衛星 (米) には透過型回折格子 (HETG: High Energy Transmission Grating、LETG: Low Energy Transmission Grating)、XMM-Newton 衛星 (欧州) には反射型回折格子 (RGS: Reflection Grating Spectrometer) が搭載されている。

### 1.3.7 X線マイクロカロリメータ

X線マイクロカロリメータは、100% に近い検出効率と半値幅約 10 eV のエネルギー分解能を実現し、さらに空間的に広がった X 線源も観測可能にする。X 線 CCD などほとんどの X 線検出器は X 線による物質のイオン化現象を利用し、イオン化で作られた電子などの電荷を電気信号として取り出す。一方、X線マイクロカロリメータはこれと全く異なる原理に基づいている。物質に X 線光子が吸収されると、そのエネルギーが熱に変換される。その熱量を測定するのが X 線マイクロカロリメータである。詳しくは次章で述べる。

現在、X 線分光検出器として動作しているマイクロカロリメータには、使用する温度計の違いによっていくつかの種類が存在する。以下に 4 種類のマイクロカロリメータを紹介する。

#### 1.3.7.1 半導体サーミスタ型 X 線マイクロカロリメータ

半導体サーミスタ型 X 線マイクロカロリメータは、半導体素子の電気抵抗の温度依存性を温度計として用いる。例えば、シリコンに  $10^{18} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  程度の不純物をドーピングすることにより  $\sim 100 \text{ mK}$  で大きな感度を持つようになる。温度計の絶対感度  $\alpha_R$  は、半導体素子の抵抗を  $R$  とすると、

$$\alpha_R = \frac{d \log R}{d \log T} \quad (1.4)$$

のように表すことができ、典型的に  $\alpha_R \sim -6$  程度を実現することができる。そして、これまでに実験室では 5.9 keV の X 線に対して  $\Delta E_{\text{FWHM}} = 3.2 \text{ eV}$  というエネルギー分解能が得られている。日本の X 線天文衛星「すざく」の XRS(X-Ray Spectrometer) として  $6 \times 6$  素子の半導体サーミスタ型 X 線マイクロカロリメータが搭載され、最初期の観測で  $\Delta E_{\text{FWHM}} = 6.7 \text{ eV}$  のエネルギー分解能を達成した実績がある。2014 年に打ち上げ予定の X 線天文衛星「ASTRO-H」の SXS(Soft X-ray Spectrometer) としても搭載される予定である。

#### 1.3.7.2 超伝導遷移型 X 線マイクロカロリメータ

超伝導遷移 (TES: Transition Edge Sensor) 型 X 線マイクロカロリメータは、超伝導体を素子として用い、X 線の入射、吸収による温度上昇を超伝導遷移端における急激な電気抵抗の変化として測定する。つまり、超伝導体の臨界温度付近の電気抵抗の急激な温度依存性を温度計として用いる (図 1.9)。このタイプの温度計を TES という。TES は X 線マイクロカロリメータだけではなく、赤外線や電波 (マイクロ波、サブミリ波等) のボロメータとしても用いられている。TES 温度計の絶対感度  $\alpha_R$  は、超伝導体素子の電気抵抗を  $R$  とすると、式 1.4 によって表すことができ、 $\alpha_R \sim 1000$  という半導体サーミスタ型の 100 倍以上の感度を実現することができる。TES に用いる超伝導体は、Ti/Au や Mo/Cu の 2 層薄膜などが主流である。温度計の感度が向上したことによって、半導体マイクロカロリメータと比べて応答時間が 100 倍程度速くなり、エネルギー分解能は数倍程度増加する。これまでに 5.9 keV の X 線に対して  $\Delta E_{\text{FWHM}} = 1.6 \text{ eV}$  というエネルギー分解能が GSFC/NASA により報告されている。TES 型 X 線マイクロカロリメータは 2012 年に打ち上げ予定のロケット実験「Micro-X(米)」に搭載され、初の X 線分光観測が行われる予定である。その後、2016 年に打ち上げ目標の日本の衛星「DIOS」にも搭載され、

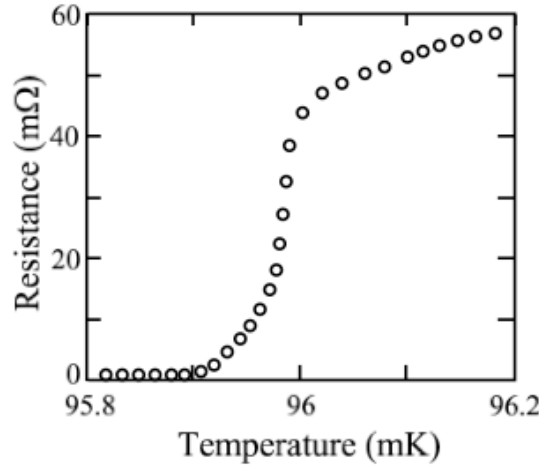


図 1.9: 超伝導薄膜の相転移端。

WHIM 探査に利用される予定である。また地上の分析装置として、SEM などの EDX(Energy Dispersive X-ray spectrometer) としての研究もすすめられている。

### 1.3.7.3 金属磁気型 X 線マイクロカロリメータ

金属磁気マイクロカロリメータ (MMC: Metallic Magnetic Calorimeter) は素子の温度上昇を電気抵抗の変化として読み取る代わりに、強磁性体の磁化の変化として読み出す (図 1.10)。検出器の温度変化  $\Delta T$  によって磁束の変化  $\Delta \Phi$  を生成するセンサーの磁化  $M$  は変化する。このプロセスは、

$$\Delta \Phi \propto \frac{\partial M}{\partial T} \Delta T = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{E}{C} = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{E}{C_a + C_s} \quad (1.5)$$

によって要約することができ、検出器の総熱容量  $C$  は吸収の熱容量  $C_a$  とセンサーの熱容量  $C_s$  の合計である。常伝導金属中に磁性原子 (エルビウム Er が主流) をドーブした金属磁気温度計に、磁場を印加し磁化量の温度変化を測定する。磁気カロリメータのエネルギー分解能は、素子のフォノンノイズと SQUID 読み出し系のノイズによって決まる。ドイツのハイデルベルグ大学とアメリカのブラウン大学の共同研究により開発が進められており、エルビウム-金の素子による金属磁気型 X 線マイクロカロリメータでは、5.9 keV の X 線に対して  $\Delta E_{FWHM} = 2.7$  eV というエネルギー分解能が得られている。

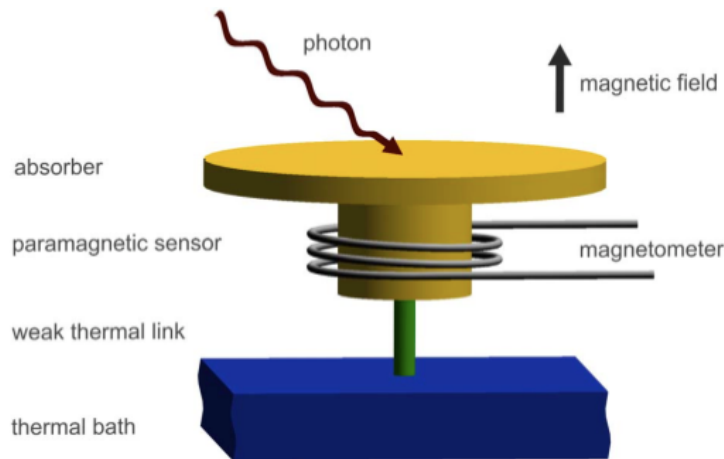


図 1.10: 金属磁気マイクロカロリメータ (MMC) の概要図。



#### 1.3.7.4 動インダクタンス検出器

動インダクタンス検出器 (KID: Kinetic Inductance Detector) は、光子の入射による温度変化によって Cooper 対の密度が変化することで生じる超伝導体のインダクタンス (動インダクタンス) の変化を温度計として用いる。動インダクタンスの変化は高周波 (GHz) 帯の LC 共振回路を用いて共振周波数の変化を測定することで読み出す。この方法を用いることで、LC 共振回路の並列という簡単な仕組みによって数千もの多素子アレイを実現することができる。最近ではマイクロ波の高感度イメージング検出器としての開発に重点が置かれている (図 1.11)。

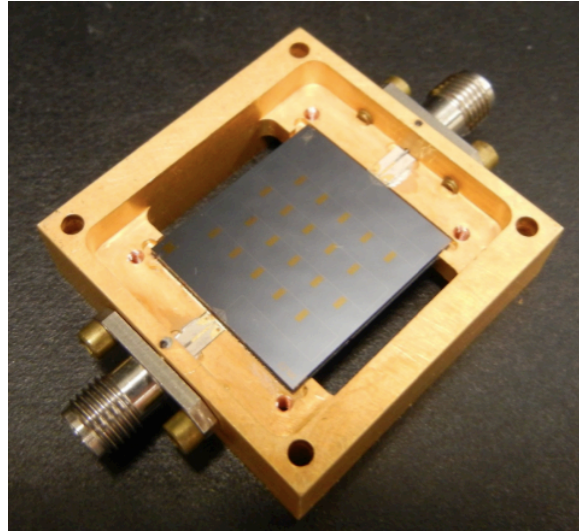


図 1.11: 動インダクタンス検出器 (KID)。

### 1.4 次世代の X 線分光器に要求される性能

1.12 に近年開発が進められている X 線分光検出器のエネルギー分解能の変遷を示す。X 線天文学初期から X 線検出器の性能は向上し続けており、エネルギー分解能に至っては 3 桁も改善されていることが分かる。これまで宇宙線の観測に用いられてきた X 線検出器としては、撮像に特化したマイクロチャンネルプレートや X 線 CCD カメラ、分光に特化した回折格子等があるが、次世代の X 線検出器としては広視野に渡って精細な X 線画像が得られる撮像性能と同時に高いエネルギー分解能を合わせ持つ総合的な検出器が必要とされる。

#### 1.4.1 ミッシングバリオン問題

現在の宇宙のエネルギー密度は、ダークエネルギーが約 7 割、物質が 3 割である。さらに物質全体の 8 割は暗黒物質 (ダークマター) と呼ばれる未知の粒子であり、直接観測が可能な通常物質 (バリオン) は物質全体の 2 割、宇宙のエネルギー密度の 5% にすぎない。しかし、現在存在しているバリオンのうち観測にかかるほど高密度で高温のものは、バリオン総量のたった 10% 程度でしかない。他の波長域での観測を合わせても半分程度が直接観測されていないのである。現在の宇宙に存在するバリオンの半分が未だ検出されていないこの問題を「missing baryon 問題」といい、これらのバリオンを総じて dark baryon ないしは missing baryon と呼ぶ。missing baryon は宇宙流体シミュレーションによって、密度が小さい領域については銀河団同士をフィラメント状につなぐ  $10^5 \sim 10^7$  程度のガスとなって分布していること

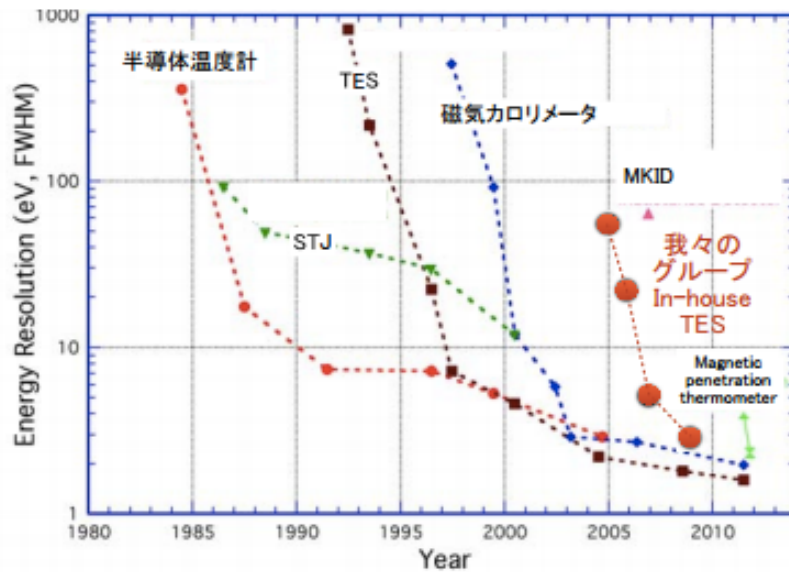


図 1.12: X 線分光検出器のエネルギー分解能の変遷。

が示唆された。この希薄なガスを総じて中高温銀河間物質 (WHIM: Warm-Hot intergalactic Medium) という。

WHIM は他の温度帯のガスよりも最もダークマターの分布をトレースしていることがシミュレーションによって言われており、WHIM を広視野で観測することがダークマターの構造を解明することにつながるのである (図 1.13)。 $10^5 \sim 10^7$  程度のガスは電離酸素のアバundanceが最も大きく、これらの輝線吸収線が卓越する。WHIM は X 線で明るく輝く銀河団に比べると、温度が低く密度が希薄であるため、熱制動輻射の強度は極めて低く観測することが難しい。明るい活動銀河核を背景光として、WHIM による紫外線や X 線の吸収線の観測も行われているが、この方法で検出できるのは特定の方向にあるガスだけであり、WHIM の広がりや構造を見ることはできない。そこで OVII、OVIII の輝線吸収線を X 線でダイレクトに観測することができれば WHIM の空間分布を明らかにすることができる。現在の X 線検出器では WHIM を観測するに十分なエネルギー分解能と視野を備えていない。そのため missing baryon 問題解決のためには次世代の X 線望遠鏡とよりよい検出器が求められている。

#### 1.4.2 DIOS ミッション

WHIM 検出のため、我々は軟 X 線精密分光ミッション「*DIOS* (Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor)」を進めている (図 1.14)。*DIOS* ミッションは、宇宙に広がる電離した銀河間物質からの酸素輝線検出を通じて missing baryon の存在とその物理的諸性質を探ることを主目的としたものである。酸素輝線 (OVII(561 eV、568 eV、574 eV)、OVIII(653 eV)) を精密 X 線分光することで赤方偏移  $0 < z < 0.3$  の範囲の  $10^5 \sim 10^7$  の WHIM を直接検出する。これによって可視光での銀河の赤方偏移サーベイ、X 線の銀河団観測と相補的な新しい宇宙の窓が開かれることが期待できる。それと同時に、OVII と OVIII の輝線吸収線強度比、輝線の微細構造と輝線幅から、ガスの加熱機構、ガスの運動状態等も明らかにする。宇宙の構造形成により一部の物質は銀河や星へとフィードバックし、その一方で余剰なエネルギーは物質と共に銀河空間に放出されたはずである。WHIM はこれらの構造をトレースしている。*DIOS* はこれを明かにし宇宙の構造形成史にも迫る。図 1.15 に *DIOS* の 10 万秒の観測で期待される WHIM からエネルギースペクトルを示す。視線内に存在する WHIM からいろいろな赤方偏移の輝線が見えることがわかる。シミュレーション結果から、輝線に対する感度として約  $10^{11} \text{ erg/cm}^2/\text{sr}$  あれば、全バリ



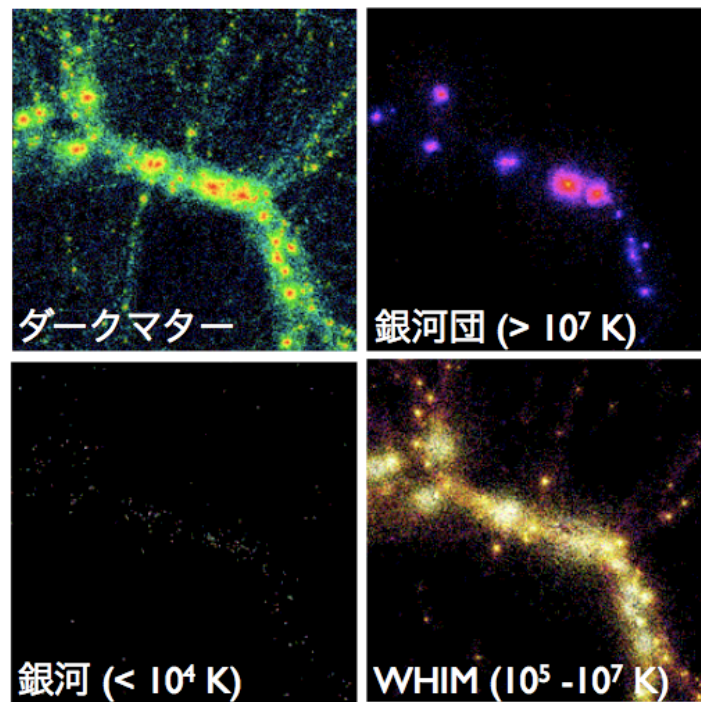


図 1.13: 流体シミュレーションによる銀河団周辺の物質分布。

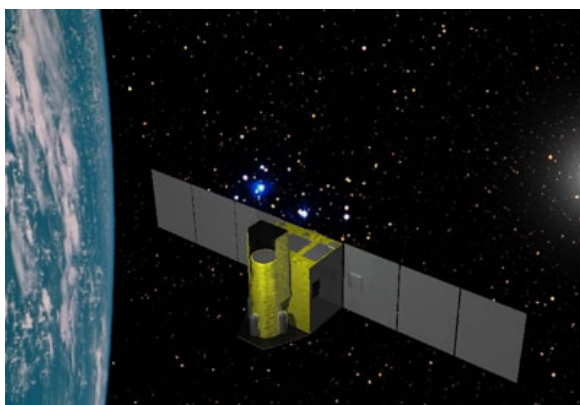


図 1.14: DIOS 衛星。

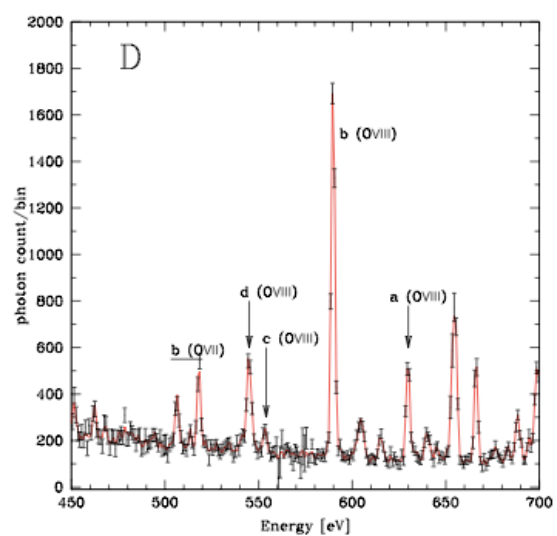


図 1.15: DIOS の 10 万秒の観測で期待される WHIM からのエネルギースペクトル。

オンの 20~30% が検出できると言われている (図 1.16)。ここから観測時間として 1 Msec 程度を仮定すれば、WHIM 検出のために検出器に要求される視野 × 面積は  $S\Omega \sim 100 \text{ cm}^2 \text{ deg}^2$  となる。また、図 1.17 は *DIOS* の視野 × 面積  $S\Omega$  とエネルギー分解能を他の衛星と比較したものである。*DIOS* は視野 × 面積が非常に大きくまたエネルギー分解能にも優れているため、空間的に広がった輝線に対する検出感度はすざく衛星の 40 倍以上を持つことができる。

このように *DIOS* は大きく広がった天体に対する X 線分光に特化した観測装置である。*DIOS* に搭載する検出器として以下に示す TES 型マイクロカロリメータを極低温下 (50 mK) で用いる必要がある。さらに望遠鏡との兼ね合いから決まる有効面積を広げるために、TES カロリメータを  $20 \times 20$  素子以上のアレイ化にしなければならない。現在、首都大、宇宙研をはじめとした我々の研究グループではカロリメータ素子のアレイ化に向けた研究がなされている。

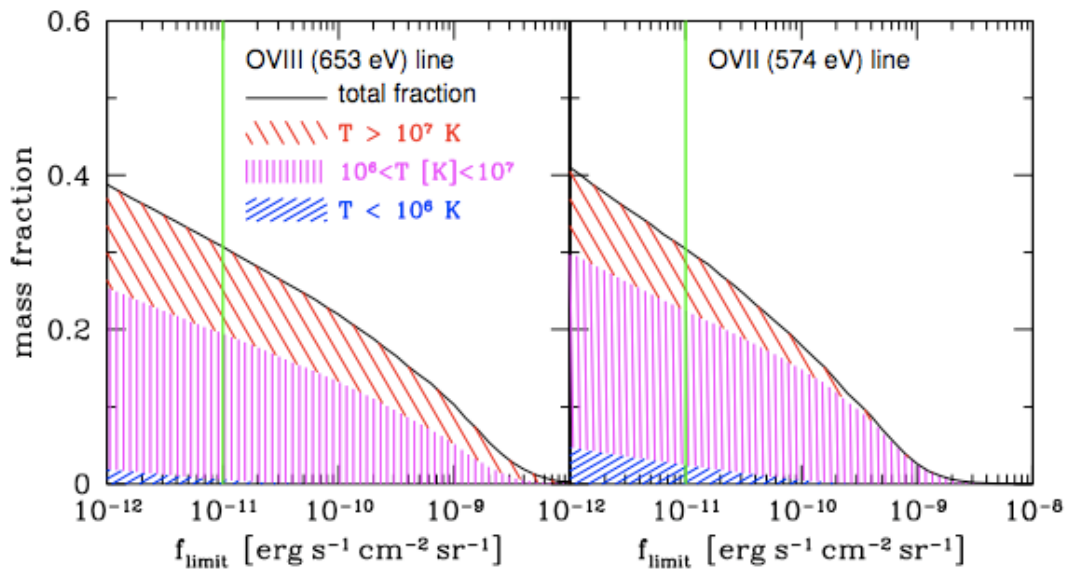


図 1.16: 2 種類の酸素輝線を使って検出できる近傍宇宙のダークバリオンの割合 (横軸: 検出器の検出限界、緑の縦線: *DIOS* の典型的な検出限界)。

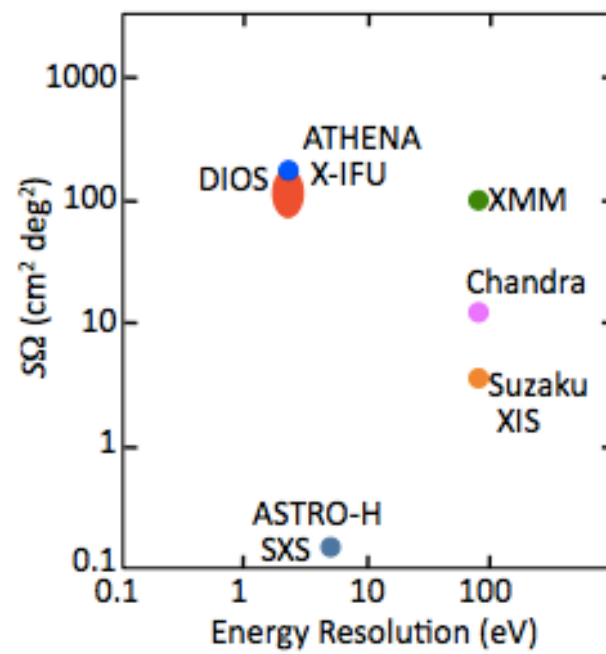


図 1.17: いろいろなミッションの広がった輝線放射に対する観測能力の比較 (縦軸: 視野 × 面積、横軸: エネルギー分解能)。



## 第2章 TES 型 X 線マイクロカロリメータ

超伝導遷移端の急激な抵抗変化を利用する TES 型 X 線マイクロカロリメータ (以下、TES カロリメータ) を開発するにあたって、その超伝導の性質を理解することが重要である。この章では TES カロリメータの原理と世界の開発状況について述べる。

### 2.1 X 線マイクロカロリメータの構造

X 線マイクロカロリメータ (以下、マイクロカロリメータ) は、入射 X 線光子の 1 つ 1 つのエネルギーを素子の温度上昇として測る検出器である。入射する X 線の温度上昇は極めて小さいものであるが (～数 mK)、素子を 100 mK 付近の極低温下で動作させ、さらに高感度の温度計を用いることで微小な温度上昇を計測できる。マイクロカロリメータは図 2.1 に示すように、温度  $T$  に冷やされた熱容量  $C$  の吸収体と温度計からなる構造をしており、適度に悪い熱伝導度  $G$  を持つサーマルリンクを通じて、より低温の熱浴と接続され、定常状態に保たれている。各構成要素の役割を表 2.1 に示す。

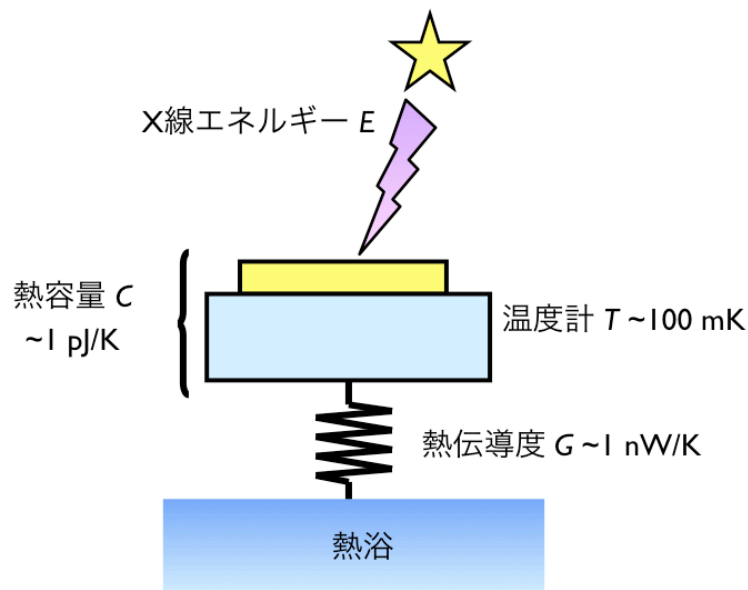


図 2.1: マイクロカロリメータの構造

マイクロカロリメータの素子は、入射 X 線のエネルギーを高い効率で光電吸収する X 線吸収体としての能力と素子の温度上昇を高い精度で測定する温度計としての能力を持ち合わせている必要がある。また、X 線が入射した際に素早く熱化し、十分熱化した後に素早く熱拡散する必要性もある。

#### 2.1.1 吸収体

素子に入射した X 線は光電吸収によってエネルギーを失う。マイクロカロリメータでは高い確率で吸収体中で X 線を止め、そのエネルギーを完全に熱エネルギーに変える必要がある。吸収体には原子番号

表 2.1: マイクロカロリメータを構成する要素の役割。

| 構成要素        | 役割  |
|-------------|---|
| X 線吸収体      | 光子を吸収し、入射エネルギーを熱に変換する<br>発生した熱を全て温度計に入力する |
| 温度計         | 吸収体にて生じた温度変化を電気信号に変換する                    |
| 熱リンク        | 発生した熱をヒートシンクに排出する                         |
| 熱浴 (ヒートシンク) | 系の温度を初期値に保つ                               |

の大きい物質を用い、その面積と厚さを増すことで検出効率を高くすることが可能である。しかし、素子が大きくなるとその分熱容量が大きくなるので、エネルギー分解能が悪くなる。また、熱化にかかる時間が遅いと吸収した熱が逃げてしまうので、エネルギー分解能が悪化する。以上より、吸収体として用いる物質には高い吸収効率、小さい熱容量、速い熱化という条件を同時にクリア可能な物質が適している。

以下に物質の種類に応じた特徴を挙げる。

- 絶縁体と半導体  
絶縁体や半導体はバンドギャップの不純物準位に電子がトラップされ、準安定な状態を形成する。そのため熱化が不完全であったり、安定性に欠ける。
- 準金属  
ビスマス、水銀テルルなどの準金属は熱化が比較的速いが、デバイ温度が低く格子比熱が大きい。すざく衛星に搭載された XRS では水銀テルルを用いている。
- 常伝導金属  
純粋な常伝導金属は熱化が非常に速いが、電子比熱が大きいため検出器のサイズが限られる。
- 超伝導金属  
超伝導金属は超伝導遷移温度よりも十分に低温に於いて、電子比熱が小さくなる。従って、原子番号が大きく、デバイ温度の高いものを用いれば比熱を押えつつ高い検出効率を実現できる。しかし、超伝導遷移温度よりも充分な低温では準粒子を生成する。再結合をするまでの時間、つまり準粒子の寿命が長い影響で熱化が非常に遅くなる。

### 2.1.2 温度計

半導体や金属の温度に依存した抵抗変化を測定することで、X 線フォトン入射時の温度変化を調べることができる。温度計の感度を表すパラメータ  $\alpha$  を、

$$\alpha \equiv \frac{d \ln R}{d \ln T} = \frac{R}{T} \frac{dR}{dT} \quad (2.1)$$

として定義する。この値は無次元量であり、 $\alpha$  が大きい程温度変化に対する感度が高く、小さい温度変化でも精密に測定することができる。

## 2.2 X 線マイクロカロリメータの原理

マイクロカロリメータを用いた X 線観測では、素子は極低温に冷却され、一定の温度に保たれる。この時の温度を動作点と呼ぶことにする。吸収体に入射した X 線光子は光電吸収され、即座にそのエネル

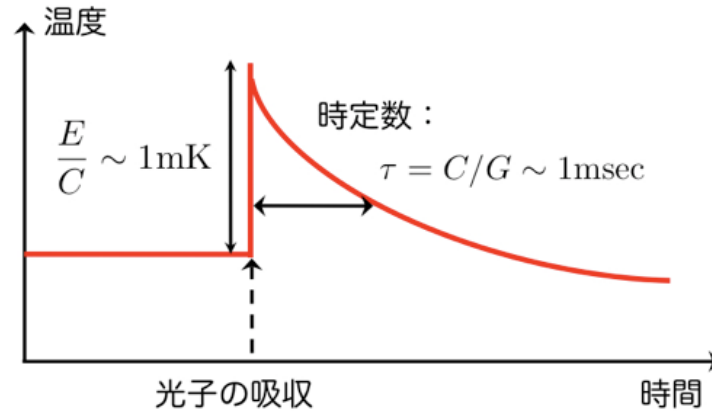


図 2.2: X 線入射によるマイクロカロリメータの温度変化。

ギーのほとんどが熱に変わる。この際に生じる温度上昇  $\Delta T$  は

$$\Delta T = \frac{E}{C} \quad (2.2)$$

となる (図 2.2)。厳密には入射 X 線による素子の温度上昇で  $C$  も変化するので、エネルギーと温度上昇の関係には非線形性がある。吸収体で生じた熱はサーマルリンクを介して低温熱浴へとゆっくりと流れ、再び定常状態へと戻る。素子が定常状態に戻るまでの時定数  $\tau$  は、 $C$  と  $G$  で決まる。典型的に数  $100 \mu\text{sec}$  程度である。ここで  $C$  と  $G$  はそれぞれ温度計を含めたカロリメータ素子の熱容量と熱リンクの熱伝導度である。従って温度上昇  $\Delta T$  を測れば光子のエネルギーを測定できる。

$$\tau = \frac{C}{G} \quad (2.3)$$

この時、温度測定の精度は熱リンクを通してランダムに熱が出入りすることによって生じる素子の温度揺らぎ (Phonon ノイズ) で原理的に決まってしまう。その大きさは直感的に見積もることができる。温度  $T$  の物質中のフォノンの平均のエネルギー  $\varepsilon$  は

$$\varepsilon = k_B T \quad (2.4)$$

である。一方、熱容量  $C$  の物質の持つ全エネルギーは  $CT$  であるので、平均のフォノンの数  $N$  は以下ようになる。

$$N = \frac{CT}{k_B T} \quad (2.5)$$

フォノンの数の統計的な揺らぎはポアソン分布に従うので、その分散は

$$\sigma(N) = \sqrt{\frac{CT}{k_B T}} \quad (2.6)$$

となる。これから、温度の分散は

$$\sigma(T) = \frac{\sigma(N)k_B T}{C} \quad (2.7)$$

となり、フォノン数の揺らぎによる素子のエネルギー分解能は

$$\sigma(E) = \sigma(N)k_B T = \sqrt{\frac{CT}{k_B T}} k_B T = \sqrt{k_B T^2 C} \quad (2.8)$$

と見積もられる。マイクロカロリメータにおいて高いエネルギー決定精度（エネルギー分解能）を実現するためには、信号雑音比をできるだけ大きくして、素子の温度上昇を精密に測定する必要がある。信号量を大きくするためには、X 線エネルギーを大きな温度上昇に変えてそれを高感度の温度計で測定すればよい。また、素子の熱容量  $C$  が低温では温度に強く依存することがわかる。ここで、 $C$  として格子比熱および電子比熱を考える。フェルミ (Fermi) 温度とデバイ (Debye) 温度よりもはるかに低い温度に於いては、金属の定積比熱  $c$  はフォノンに起因する格子比熱  $c_l$  と伝導電子に起因する電子比熱  $c_e$  との和として、

$$c = c_l + c_e = \alpha T^3 + \gamma T \quad (2.9)$$

と書ける。これよりそれぞれ温度の 3 乗および 1 乗に比例し、エネルギー分解は温度の  $5/2$  から  $3/2$  乗に比例する。よって、素子の動作温度を可能な限り低くすることも重要である。現実的に  $T$  は冷凍機によって安定に保持することができる  $\sim 100$  mK が主流である。典型的に  $C$  は最小 pJ/K オーダーとなり、結局、keV オーダーの X 線エネルギーを最大 mK オーダーという微小な温度上昇として測定することになる。これを精密に測定するためには高感度の温度計とノイズの抑制が必要となる。

### 2.3 超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor)

私たちのグループでは、温度計に超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensors) を採用している。この温度計に超伝導物質を用い、超伝導-常伝導相転移端の急激な抵抗-温度変化により素子の温度上昇を計測する仕組みである。遷移幅は典型的には数 mK という非常に狭い温度範囲で起こるため、温度計の感度  $\alpha$  は従来使用されてきた半導体温度計より遥かに高い感度を有する。典型的に  $\alpha \sim 1000$  程度が可能であり、半導体マイクロカロリメータにと比較すると 100 倍程度向上する。これにより応答速度、分解能を著しく改善する事が可能になる。以下に相転移点付近での温度に対する抵抗の変化の様子を示す。

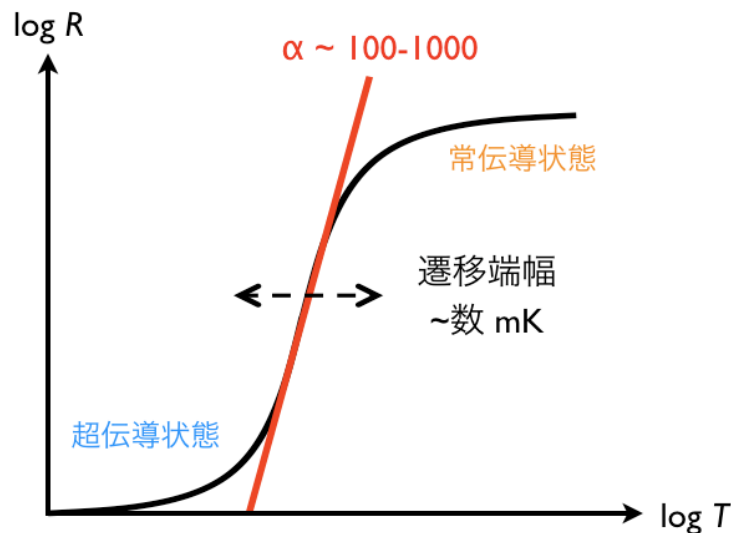


図 2.3: 相転移点付近での温度に対する抵抗の変化。



## 2.4 ノイズとエネルギー分解能

TES カロリメータにはいくつかのノイズが存在しており、これらがエネルギー分解能に制限を与えている。熱リンクを通して熱がランダムに流れ発生する温度揺らぎ (Phonon ノイズ) や温度計の抵抗に発生する電氣的な熱雑音 (Johnson ノイズ) などである。この他にも測定系セットアップに起因した外来ノイズ (読み出しノイズ) や、吸収体 - TES 間の熱揺らぎなど製作方法に依存した内因的ノイズ、原因不明の超過ノイズ (Excess ノイズ) が存在する。図 2.4 は理想的な TES カロリメータの典型的な Phonon ノイズと Johnson ノイズ、読み出し回路系のノイズを仮定した場合の X 線信号の電力スペクトルとノイズの電力スペクトル密度である。phonon ノイズのスペクトル密度は、信号の周波数応答と同じ形をしていて、回路系が応答できない周波数帯では急激に小さくなる。これに対して、Johnson ノイズはのフィードバックループを回った成分と直接出力に現れる成分が互いに打ち消しあうので回路系が応答する周波数帯域では逆に小さくなる。読み出し装置として低雑音の SQUID(2.6 節) を用いると読み出しノイズは、Phonon ノイズと Johnson ノイズの和よりも図 2.4 に示すように小さくすることが可能である。

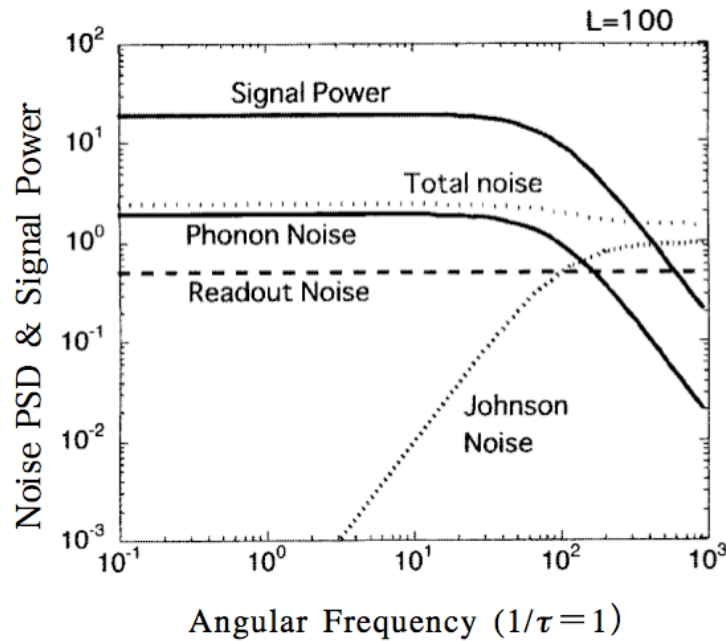


図 2.4: 理想的な TES 型 X 線マイクロカロリメータの X 線信号の電力スペクトルとノイズの電力スペクトル密度。

Phonon ノイズを考慮した原理的なエネルギー分解能は

$$\Delta E \simeq 2.35 \sqrt{\frac{4k_B T^2 C}{\alpha}} \sqrt{\frac{n}{2}} \quad (2.10)$$

と一般的に表される。ここで、 $\Delta E$  は検出器のエネルギー分解能を半値幅で定義したもので (1.2.1 節)、 $\Delta E = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma(E) = 2.35\sigma(E)$  である。 $\alpha$  は温度計の感度 (式 2.1) であり、 $n$  は熱伝導度の温度依存性による項である。式 2.10 に TES カロリメータの典型的な値を代入すると、

$$\Delta E \simeq 1.3\text{eV} \left( \frac{T}{100\text{mK}} \right) \left( \frac{C}{1\text{pJ/K}} \right)^{1/2} \left( \frac{\alpha}{100} \right)^{-1/2} \quad (2.11)$$

と理想的な TES カロリメータのエネルギー分解能を見積もることができる。 $n$  は電子-フォノン相互作用により 5 を代入している。式 2.10 より、より高いエネルギー分解能を実現させるには『動作温度  $T$

を下げ、素子の熱容量  $C$  を抑え、温度計感度  $\alpha$  を大きくすること』が必要である。しかし、ある程度の制限も存在する。X 線光子のエネルギーが大きいと温度変化によって遷移端から外れてしまい、エネルギー分解能は式で得られた理論値より悪くなってしまう。よって入射 X 線の最大エネルギー  $E_{max}$  は

$$\Delta E_{max} \simeq \frac{CT}{\alpha} = 6.3\text{keV} \left( \frac{T}{100\text{mK}} \right) \left( \frac{C}{1\text{pJ/K}} \right) \left( \frac{\alpha}{100} \right)^{-1} \quad (2.12)$$

と制限される。つまり、目標とするエネルギーバンドとエネルギー分解能を考慮した上で、最適な  $\alpha$  と  $C$  を見積もる必要がある。Johnson ノイズも考慮すると式 2.10 は

$$\Delta E \simeq 2.35 \sqrt{\frac{4k_B T^2 C}{\alpha}} \sqrt{\frac{n}{2}(1+2\beta)(1+M^2)} \quad (2.13)$$

となり、式 2.12 を代入すると

$$\Delta E \simeq 2.35 \sqrt{4k_B T} \sqrt{\frac{n}{2}(1+2\beta)(1+M^2)E_{max}} \quad (2.14)$$

と表すことができる。ここで、 $\beta$  は TES の電流感度であり、 $\beta = d\ln R / d\ln I$  で表される。また  $M$  は Excess ノイズのファクターである。

## 2.5 電熱フィードバック (ETF: Electro-Thermal Feedback)

TES は温度計として非常に高い感度を持っているが、感度を持つ温度域、つまり超伝導遷移幅が非常に狭い ( $\sim 1\text{mK}$ )。この狭い温度範囲に動作点を制御するには、TES を定電圧バイアスで動作させ、強いフィードバックをかけることで実現する。

### 2.5.1 電熱フィードバック下の温度変化に対する応答

図 2.5 左に示すような定電圧バイアスで TES を動作させた場合を考える。熱入力によって温度が上昇すると、TES の抵抗値は急激に増加する。定電圧なので電流は減少し、ジュール発熱も減少する。このように、熱入力を打ち消す方向にジュール発熱量が急激に変化して負のフィードバックが働くので、素子の温度も安定に保たれる。

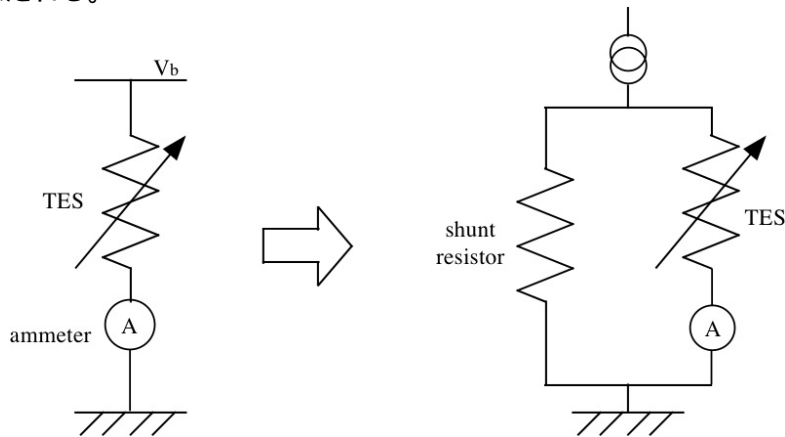


図 2.5: 左図: 定電圧バイアス 右図: シャント抵抗を使って疑似的に作る定電圧バイアス

実際には TES と並列にシャント抵抗をつないで、疑似的に定電圧バイアスを実現する (図 2.5 右)。以下では理想的な定電圧バイアスで動作しているものとする。

熱伝導度は

$$G \equiv dP/dT \quad (2.15)$$

で定義される。一般的に熱伝導度は温度依存性を持ち、

$$G = G_0 T^{n-1} \quad (2.16)$$

と温度に対するべき  $n$  を用いて表され、3~5 程度である。熱浴と TES との間の熱伝導度を考える。一般に  $T \gg T_{bath}$  であるので、熱浴との熱伝導度による熱の流れは

$$P = \int_{T_{bath}}^T G dT = \frac{G_0}{n} (T^n - T_{bath}^n) \quad (2.17)$$

と式 (2.15) を積分して計算できる。

平衡状態では、TES の温度を  $T_0$  として、TES におけるジュール発熱  $P_b \equiv V_b^2/R_0$  とカロリメータピクセルから熱浴へ流れる熱量とがつり合っているので、

$$P_b = \frac{G_0}{n} (T_0^n - T_{bath}^n) \quad (2.18)$$

と書ける。ただし、 $V_b$  はバイアス電圧、 $G_0$  は  $G = G_0 T^{n-1}$  を満たす定数 ( $G$  は熱伝導度)、 $R_0$  は動作点での TES の抵抗値、 $T_{bath}$  は熱浴の温度である。

微小な温度上昇  $\Delta T \equiv T - T_0$  によって素子の温度が  $T$  になった場合、内部エネルギーの変化は熱の収支に等しいので、

$$C \frac{dT}{dt} = \frac{V_b^2}{R(T)} - \frac{G_0}{n} (T^n - T_{bath}^n) \quad (2.19)$$

が成り立つ。温度上昇  $\Delta T$  は 1 次の近似で、

$$C \frac{d\Delta T}{dt} \simeq -\frac{V_b^2}{R_0^2} \Delta R - G_0 T^{n-1} \Delta T \quad (2.20)$$

$$= \frac{P_b \alpha}{T} \Delta T - G \Delta T \quad (2.21)$$

となる。

最後の項の  $G$  は TES の温度  $T$  での熱伝導度  $G(T)$  を表す。以後単に  $G$  と書いた場合は TES の温度  $T$  での熱伝導度を表すこととする。式 (2.20) の解は、

$$\Delta T = \Delta T_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}}\right) \quad (2.22)$$

と書ける。ただし、

$$\tau_{\text{eff}} \equiv \frac{C/G}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}} \quad (2.23)$$

$$= \frac{\tau_0}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}} \quad (2.24)$$

は有効時定数である。式 (2.18)、(2.24) より、 $\tau_{\text{eff}}$  は

$$\tau_{\text{eff}} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n} \left( 1 - \left( \frac{T_{\text{bath}}}{T} \right)^n \right)} \quad (2.25)$$

のように書ける。さらに、熱浴の温度が TES の温度よりも十分に低い場合 ( $T_{\text{bath}}^n \ll T^n$ ) は、

$$\tau_{\text{eff}} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n}} \quad (2.26)$$

$$\approx \frac{n}{\alpha} \tau_0 \quad (2.27)$$

と近似できる。ただし、式 (2.27) は  $\alpha/n \gg 1$  の場合である。このように、 $\alpha$  が大きい場合は、電熱フィードバックによって応答速度が非常に速くなることがわかる。また、X 線のエネルギーは電流値の変化として読み出され、

$$\Delta I = \frac{V_b}{R(T_0 + \Delta T)} - \frac{V_b}{R(T_0)} \quad (2.28)$$

$$\simeq -\frac{\Delta R}{R} I \quad (2.29)$$

$$\simeq -\alpha \frac{E}{CT} I \quad (2.30)$$

となる。

## 2.6 SQUID を用いた読み出し系

TES の電流変化を読み出すには、低ノイズ、低インピーダンスの電流計が必要である。その点で、SQUID は最良の電流計である。

### 2.6.1 dc-SQUID

SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) とはジョセフソン効果を利用した素子で、図 2.6 のように 2 つのジョセフソン接合を並列に持つリングである。2 つの接合の位相差とリングを貫く磁束との間には

$$\theta_2 - \theta_1 = 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0} \quad (2.31)$$

という関係がある。ただし、 $\theta_1$  と  $\theta_2$  はそれぞれのジョセフソン接合での位相差、 $\Phi$  はリングを貫く磁束、 $\Phi_0$  は磁束量子で、

$$\Phi_0 \equiv h/2e = 2.06 \times 10^{-15} \text{ Wb} \quad (2.32)$$

という定数である。ジョセフソン接合が超伝導状態のとき、バイアス電流  $I_B$  は

$$I_B = I_0 \cos \left( \pi \frac{\Phi_{\text{exp}}}{\Phi_0} \right) \sin \left( \theta_1 - \pi \frac{\Phi_{\text{exp}}}{\Phi_0} \right) \quad (2.33)$$

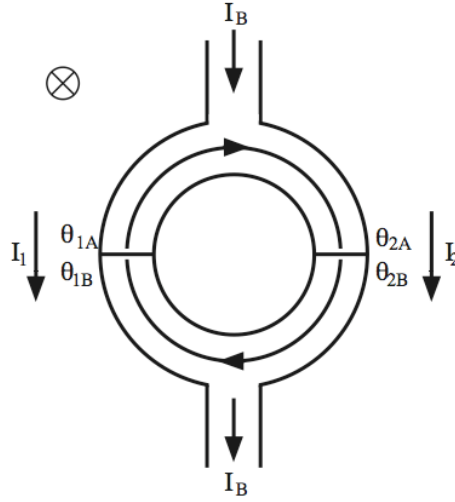


図 2.6: dc-SQUID の模式図

となる。ただし、 $I_0$  は接合の臨界電流、 $\Phi_{\text{ext}} \equiv \Phi - LJ$  は外部磁束、 $L$  と  $J$  はリングの自己インダクタンスとリングを循環する電流である。したがって、SQUID が超伝導でいられる最大の電流、すなわち SQUID の臨界電流は

$$I_{\text{max}} = 2I_0 \left| \cos \left( \pi \frac{\Phi_{\text{ext}}}{\Phi_0} \right) \right| \quad (2.34)$$

となる。このように、SQUID の臨界電流は外部磁束によって変化する。 $2I_0$  より大きなバイアス電流で SQUID を動作させると、臨界電流が変化することにより、外部磁束の変化に対して出力電圧が変化するようになる。したがって、SQUID の隣にコイルを置くことによって、SQUID を非常に感度の高い電流計として扱うことが可能になる。カロリメータの読み出し系として SQUID を用いた場合の模式図を図 2.7 に示す。

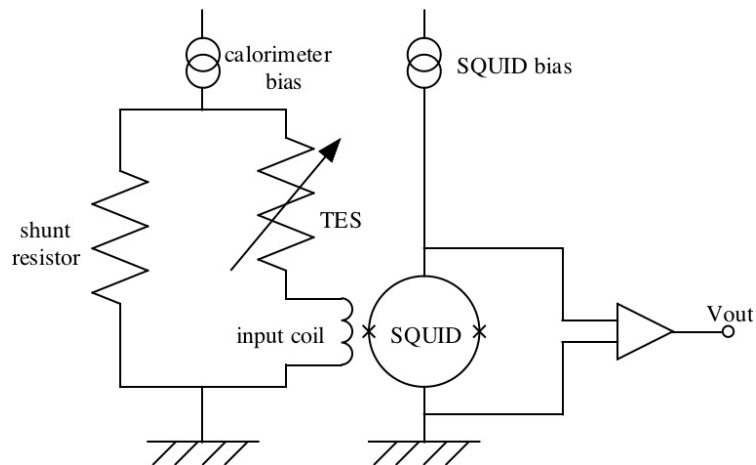


図 2.7: SQUID を用いたカロリメータの読み出し系

## 2.7 世界の開発状況

### 2.7.1 開発の歴史

1941 年、Andrews は 3.2 K の超伝導遷移端中のタンタル細線を流れる電流を利用し、温度変化による抵抗の変化から赤外線のを検出した。これは TES を利用した史上初のボロメータである。また彼は 1949 年に 15 K の遷移端中にある窒化ニオブのストリップを流れる電流を利用し、アルファ粒子の崩壊に伴う電圧パルスを計測することに成功した。これも史上初となる TES 型カロリメータの検出実証である。

だが上記の発明から半世紀の間、TES 型検出器の応用はあまり行われてこなかった。開発を阻む顕著な障害となったのは、FET アンプに対して TES のノイズをマッチングさせることが難しい点である (TES の典型的な常伝導状態の抵抗は数  $\Omega$  か、それ以下である)。近年では低抵抗な TES 型検出器に対して、容易にインピーダンスマッチングが取りやすい超伝導量子干渉計 (SQUID: Superconducting Quantum Interference Device) を用いた電流増幅によって、この問題は解決された。SQUID 系による電流読み出しと電圧バイアスの動作制御を導入したことで、過去十年の間に TES 型検出器は飛躍的な進歩を遂げた。TES カロリメータは、多素子サブミリ観測器として天文観測に応用されている。X 線分光器としては、提案段階であり、まだ観測は行われていない。MIT が中心となって計画されているロケット実験 *Micro-X* が最初の観測となる可能性が高い。

### 2.7.2 世界の開発状況

TES カロリメータの開発は、世界最高性能を出し続けているアメリカの NIST をはじめ、様々な機関で行われている。

NIST(National Institute of Standards and Technology) では TES である超伝導金属に Mo、常伝導金属に Cu を使用した二層薄膜を採用している。400  $\mu\text{m}$  角の TES に 5.9 keV の X 線を照射したところ、 $\Delta E_{\text{FWHM}}=2.4$  eV という高性能を達成している。また、より高いエネルギー帯域である  $\gamma$  線を測る TES カロリメータも開発されている。構造は Mo/Cu の TES の上に 1.45 mm 角の Sn が吸収体として形成されている。単素子では  $^{153}\text{Gd}$  の 97.4 keV  $\gamma$  線を照射し、 $\Delta E_{\text{FWHM}}=22$  eV を達成している。また、256 pixel アレイの製作を行い、歩留まり 92%(=236 pixel)、平均  $\Delta E_{\text{FWHM}}= 53.3 \text{ eV} \pm 6.9 \text{ eV}$  を達成している。図 2.8、図 2.9 には  $\gamma$  線カロリメータの写真、図 2.10 にはスペクトルを示す。

このように他機関においても TES カロリメータの開発は活発である。高性能な単素子の基礎開発はもちろんのこと、多素子化へ向けた開発を日本でも行われてきた。次章では日本のこれまでの開発状況と製作方法などを詳しく説明する。

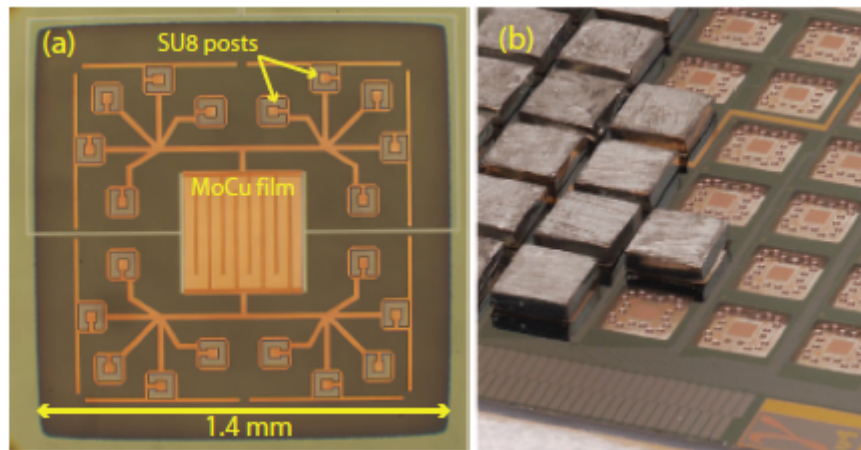


図 2.8: TES 型  $\gamma$  線カロリメータの 1 ピクセルの写真。

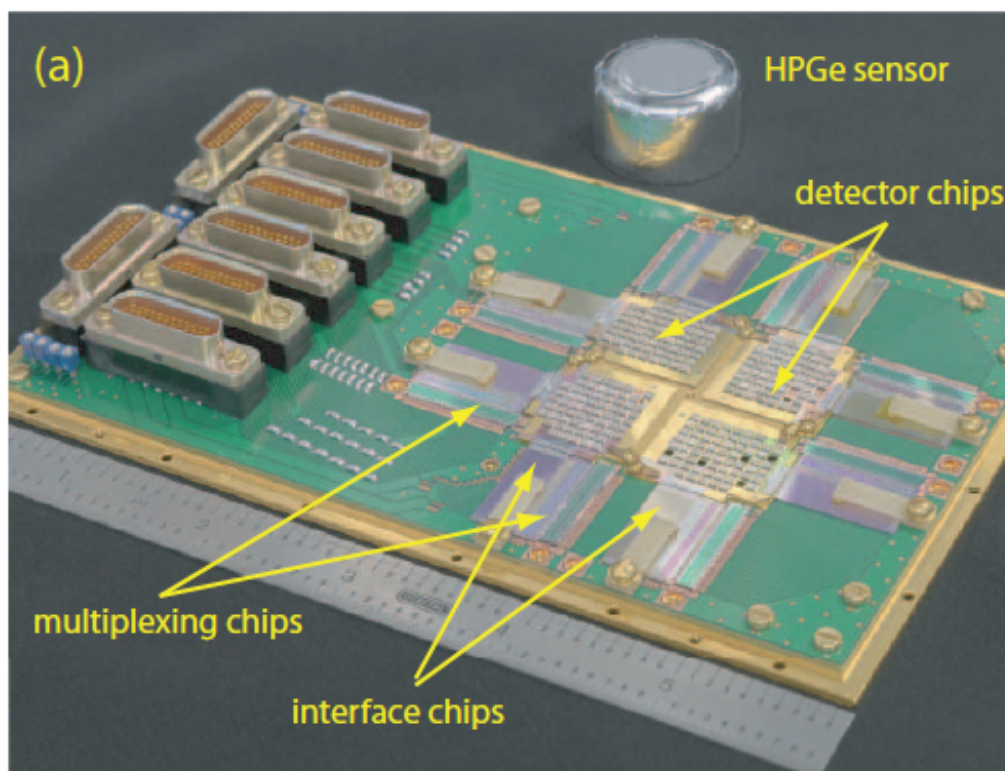


図 2.9:  $\gamma$  線カロリメータの全体像。

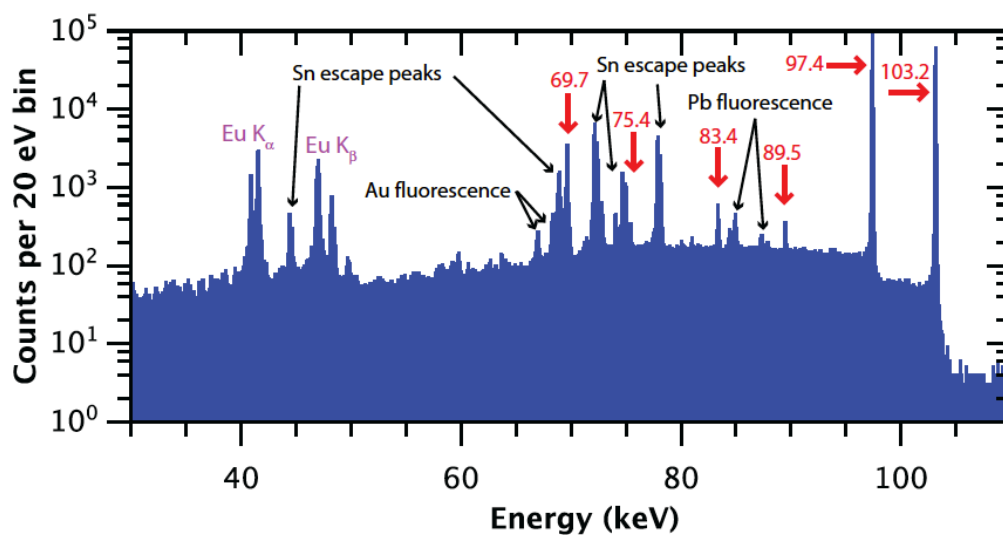


図 2.10: 97.4 keV  $\gamma$  線を照射した際に得られたエネルギースペクトル。



## 第3章 これまでの開発状況

我々は2006年からTESカロリメータ素子の製作、測定を全てグループ内(主に首都大学東京(以下、首都大)、宇宙科学研究本部(以下、宇宙研)の2機関)で行える環境を整えている。この章ではこれまでに製作し評価してきたTESの単素子、多素子、 $4\times 4$ ,  $20\times 20$ 積層配線素子、傾斜付き上部配線素子の開発結果を述べる。なお、単素子・多素子用の配線基板、 $4\times 4$ ,  $20\times 20$ 積層配線基板の配線形成はセイコーインスツル株式会社(以下、SII社)及びエスアイアイ・ナノテクノロジー社(以下、SII NT社)に依頼していた。2013年以降の傾斜付き積層配線構造の製作については産業技術総合研究所(以下、産総研)に依頼している。

### 3.1 単素子の開発

TESカロリメータ素子の基礎研究として、まず $4\times 4$ の16ピクセル素子を製作し、単素子の性能評価をおこなってきた。TES温度計には超伝導金属(Ti)と常伝導金属(Au)の二層薄膜を採用している。前章で述べたように、他機関では超伝導金属にMo、常伝導金属にはCuを使用するなどTESに用いる金属はさまざまである。次小節ではTESに使用している金属の選定について述べる。

#### 3.1.1 TESに用いる金属の選定

TESカロリメータは $\sim 100$  mKという極低温下で能力を発揮する検出器である。温度計に超伝導金属を用いることでこれを満たすことが可能である。合金や化合物の超伝導体でも転移特性を急峻にすることは可能だが、現実的には $\alpha$ の高い超伝導転移特性を得るための手段として、単体の超伝導体を用いたほうがよい。これは合金や化合物では分散や結晶構造の不均一によって超伝導転移がなだらかになり、2段階以上の転移や $\alpha$ の低下を引き起こしやすいからである。また、1 K以下で超伝導転移を起こすような材料も単体金属に多い。

上記の理由から、TESの材料としてTiを選択した。Tiは非常に酸化しやすい金属であるため、Auを保護層としてTi上に形成する二層薄膜にしている。バルクTiの超伝導転移温度 $T_c$ は390 mKであり、要求される $\sim 100$  mKよりも高いが、薄膜の $T_c$ がバルクの $T_c$ と異なる場合があることはよく知られている。これは薄膜がコヒーレンス長や磁界侵入長を無視できない厚さになったとき、電子間引力相互作用の変化によって $T_c$ が変動するためである。このような効果は一般に「薄膜効果」と呼ばれている。また、超伝導薄膜と常伝導薄膜を積層すると、クーパ対が常伝導体に入り込むため、両者の膜厚比に依存して転移温度が下がる「近接効果」と呼ばれる現象がある。この2つの効果を用いることで $T_c$ をコントロールすることが可能になる。また変質しやすい金属であっても、その上に安定な金属を常伝導層を重ねることにより、超伝導層の保護膜としての効果を得ること可能である。保護膜はTESの経時劣化を防ぐだけでなく、プロセス中にTESが受けるダメージを防ぐ効果もある。

#### 3.1.2 製作素子の最高性能

これまでに首都大で製作した $200\text{ }\mu\text{m}$ 角のTESカロリメータ素子(TMU146-4d)では、5.9keVのX線に対して $\Delta E_{\text{FWHM}}=2.8\text{ eV}$ という最高性能を達成している。これは世界最高性能であるNASA/GSFC

の  $\Delta E_{FWHM}=1.6$  eV に迫る高いエネルギー分解能である。以下に最高性能素子とエネルギースペクトルを示す (図 3.1)。200  $\mu\text{m}$  角の TES(Ti/Au) の上に 120  $\mu\text{m}$  角の Au の吸収体がのっている。

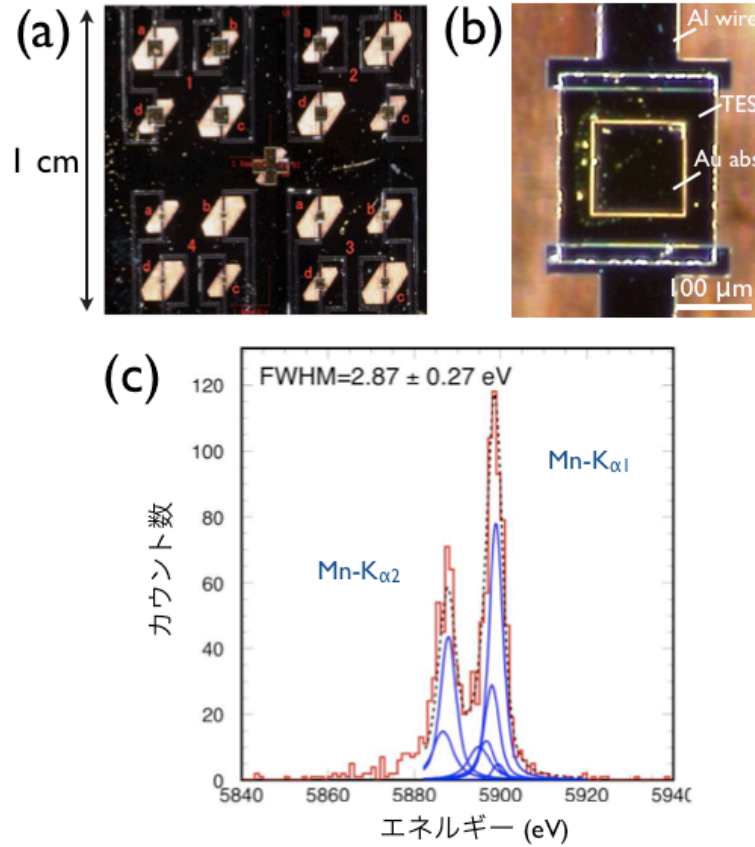


図 3.1: 首都大製最高性能素子 (TMU146-4d)。(a)16 ピクセル全体、(b)1 ピクセルの拡大写真、(c)Mn-K $\alpha$  を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

## 3.2 多素子の開発

衛星搭載を目的とし、16 $\times$ 16 の 256 ピクセルアレイ素子も開発もおこなってきた。こちらは三菱重工業株式会社 (MHI: Mitsubishi Heavy Industries) と共同で開発を進め、構造は 200  $\mu\text{m}$  角の TES(Ti/Au) のみで吸収体はのっていない。

### 3.2.1 製作素子の最高性能

256 ピクセル素子に 5.9keV の X 線を照射し、 $\Delta E_{FWHM}=4.4$  eV の分解能を得ている。以下に最高性能素子とエネルギースペクトルを示す (図 3.2)。

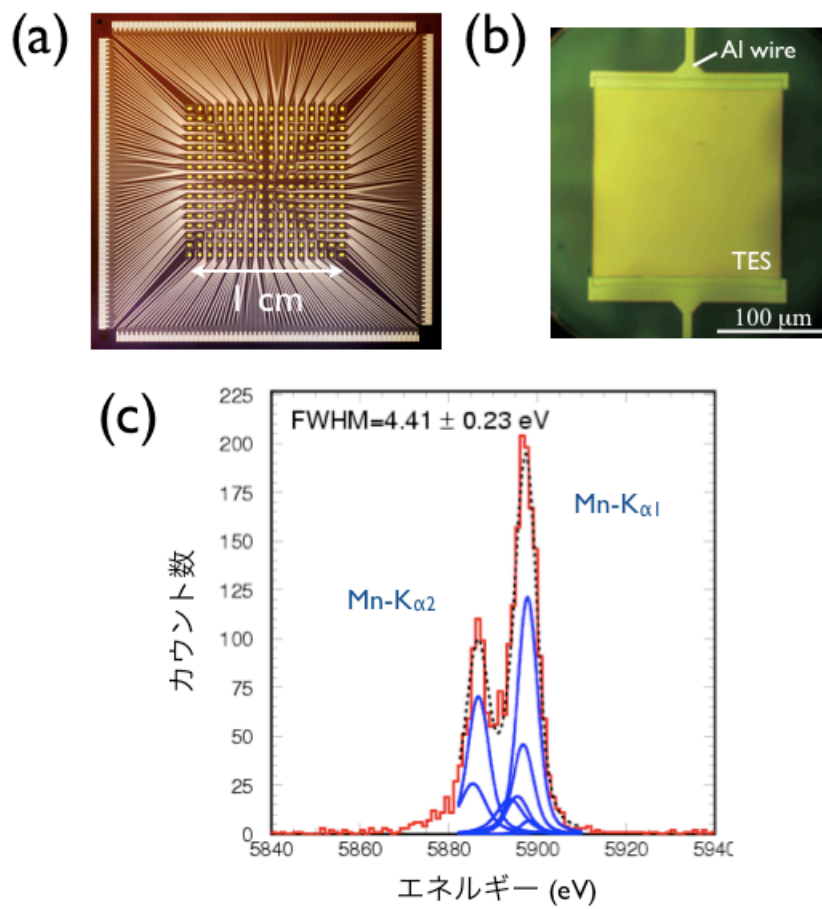


図 3.2: MHI 素子。(a) 基板全体図、(b)1 ピクセルの拡大写真、(c)Mn-K $\alpha$  を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

### 3.3 積層配線素子の開発

これまで製作した素子は TES の両端から配線が伸びる構造 (以下、単層配線構造) をしている (図 3.3)。DIOS の要求する有効面積  $1\text{ cm}^2$  及び単ピクセルでのエネルギー分解能  $< 5\text{ eV}$  を満たす為には、熱容量との兼ね合いから  $200\text{ }\mu\text{m}$  角のピクセルによる  $20\times 20$  アレイが必要となる。しかし、単層配線ではピクセルをより密集させようとすると以下のような問題が発生してしまう。

#### 1. 配線スペース

単層配線では  $16\times 16$  の 256 ピクセルアレイが限界である。これよりもピクセルを増やしてしまうと配線幅を細くせざるをえなくなり、配線も更に密集するため製作面でも困難となる。また、配線の表面形状による影響が顕在化することで完全に超伝導転移することができず、残留抵抗が高くなってしまふ可能性がある。

#### 2. 配線間クロストークの発生

配線数が増えることにより配線間隔が狭くなり、配線電流やピクセルから発生した磁場が他配線や他ピクセルに誘導起電力を起し、余計な電流を発生させてしまう (クロストーク)。

#### 3. 配線のループによる自己インダクタンスの影響

単層配線はコイルのようなループ構造をしている。よって配線電流が変化した際に、磁場の変化を打ち消すような逆起電力を生み出してしまう。

これらの問題を解決するために、我々は積層配線構造を採用した。ここで積層配線構造とは、ピクセルまでのホットとリターン配線を絶縁膜を挟み上下に重ね、コンタクトホール部分で接続したものである。図 3.4 に積層配線デザイン図を示す。上下に重なった構造により、配線スペースの削減につながる他、ホットとリターンを流れる電流がお互いの磁場を打ち消す効果がある。

#### 3.3.1 製作素子の性能

最終的に DIOS に搭載するためには  $20\times 20$  アレイが必要であるが、製作プロセス確立のためまずは  $4\times 4$ ,  $16\times 16$  アレイの試作を行った。

$4\times 4$  ピクセルアレイ素子 TMU 284 では、歩留まりは 94%、常伝導抵抗は  $\sim 153\text{ m}\Omega$ 、残留抵抗は  $0.28\text{ m}\Omega$  と DIOS の要求値を満たしていた。しかし臨界電流が  $30\text{ }\mu\text{A}$  とやや低かった他、転移温度が  $\sim 260\text{ mK}$  と要求値に対し高くなってしまった。これは TES と上部配線間の段切れを防ぐために TES の膜厚をチタン  $100\text{ nm}$ 、金  $200\text{ nm}$  と上部配線よりも厚くせざるを得なかったためである。また、TMU 284 の X 線照射試験を行い積層配線素子で初の X 線信号を検出したが、エネルギー分解能は  $\sim 100\text{ eV}$  と高かった。これは TES の膜厚を厚くしたために高くなった転移温度とピクセルの熱容量が効いてきているものと考えられる。

また、 $4\times 4$  ピクセルアレイで確立した積層配線素子の製作プロセスを、 $20\times 20$  ピクセルアレイに適用し製作及び評価を行った。製作した  $20\times 20$  ピクセルアレイの TMU 293 は、TMU 284 の結果を受け TES の膜厚はチタン  $100\text{ nm}$ 、金  $250\text{ nm}$  と膜厚比を高くしたが転移温度は  $245\text{ mK}$  と依然高いままであった。また、常伝導抵抗は  $9\text{ }\Omega$ 、残留抵抗も  $20\text{ m}\Omega$  と高く、X 線信号は検出できなかった。歩留まりが 60% という低さも問題であり原因を探るために SEM 及び FIB にて観察を行ったところ、上部配線の傷による断線や上部配線 - TES 間のコンタクトが不十分であるということがわかった。

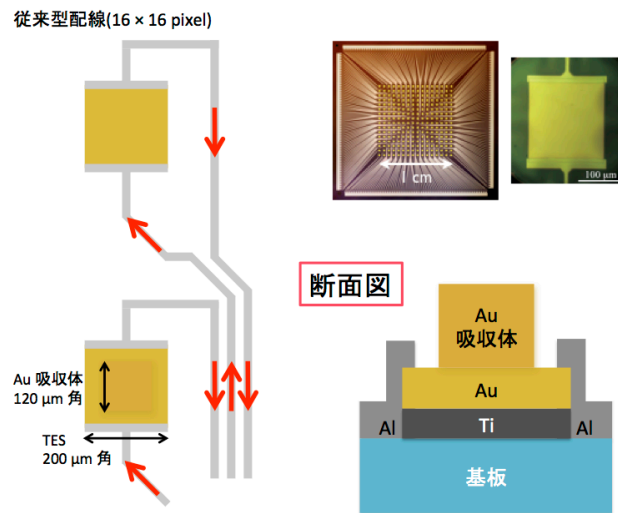


図 3.3: 従来の 16×16 アレイデザイン。

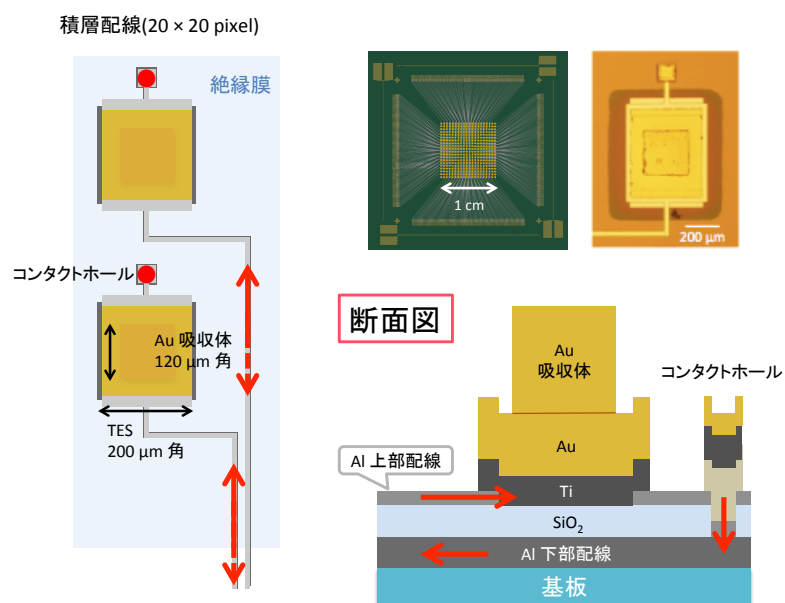


図 3.4: 積層配線 20 × 20 アレイデザイン。

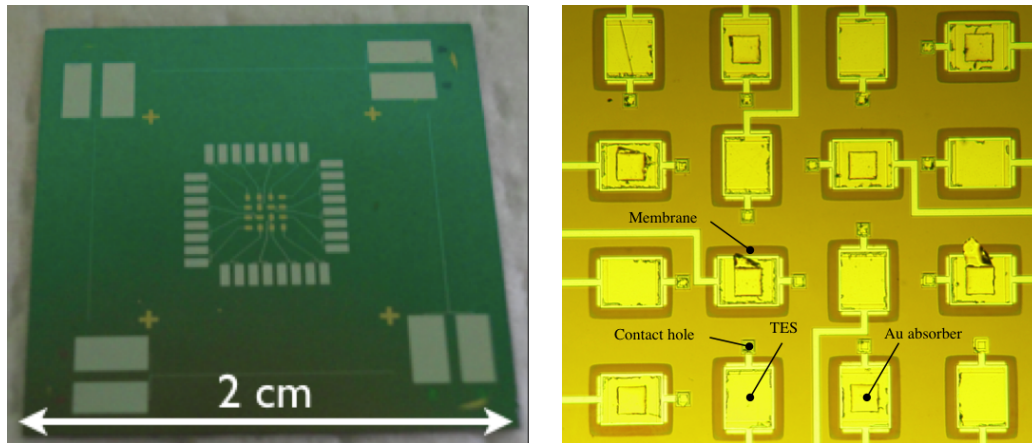


図 3.5: TMU 284 の完成後の光学顕微鏡写真。左: 全体像、右: ピクセル部分。

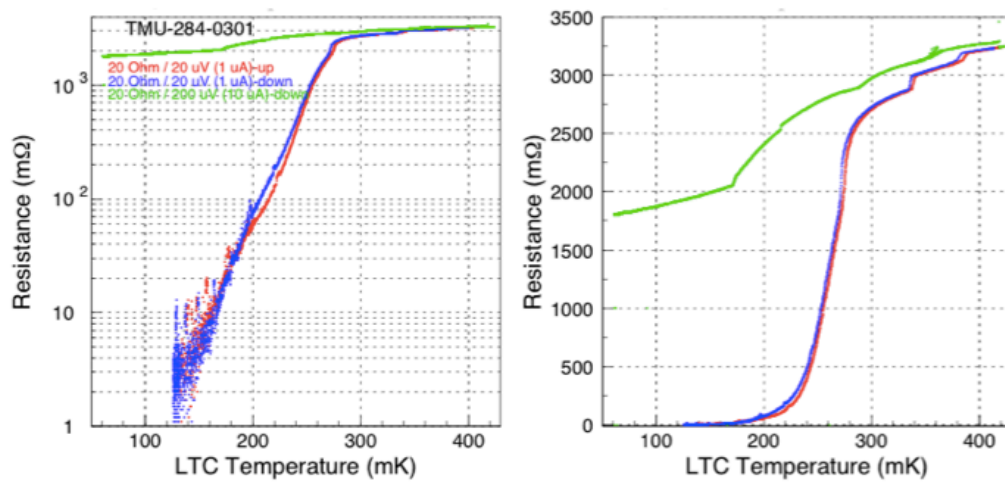


図 3.6: TMU 284 pixel ID:0301 の R-T 測定の結果。左: 対数スケール、右: 線形スケール。

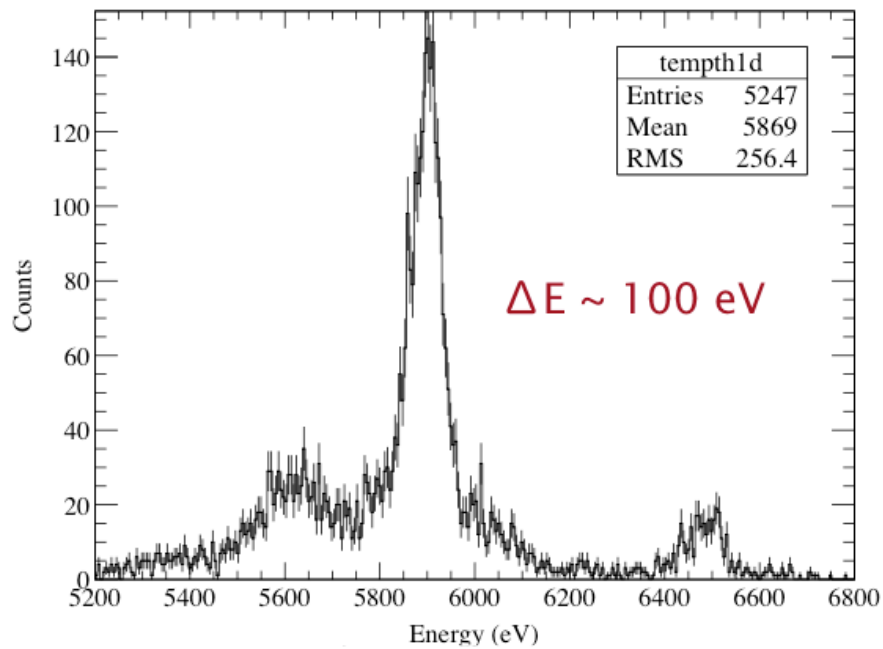


図 3.7: TMU 284 で得た 5.9 keV の鉄 55 線源に対する X 線信号。

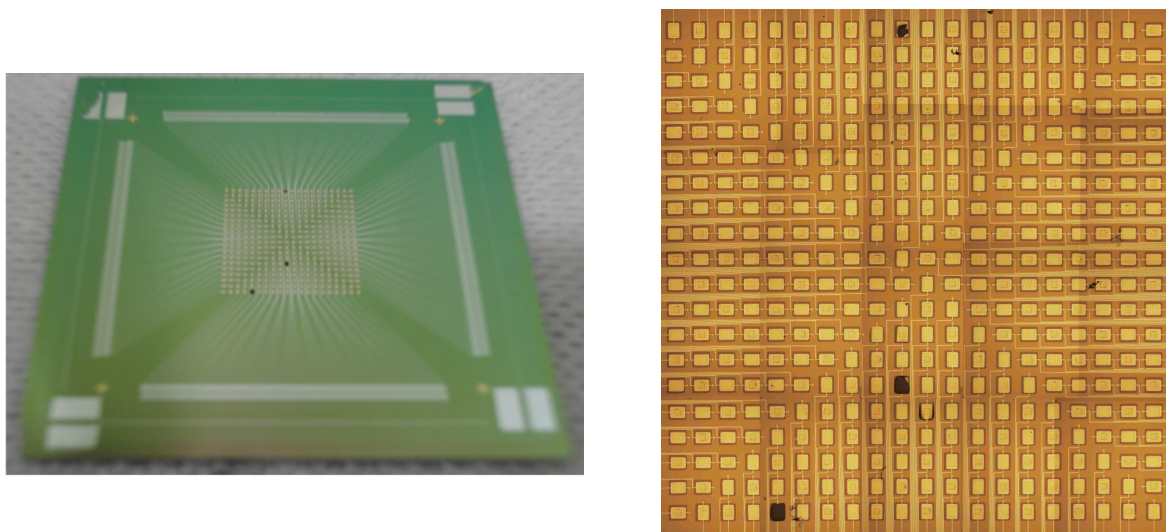


図 3.8: TMU 293 の完成後光学顕微鏡写真。左: 全体像、右: ピクセル部分。

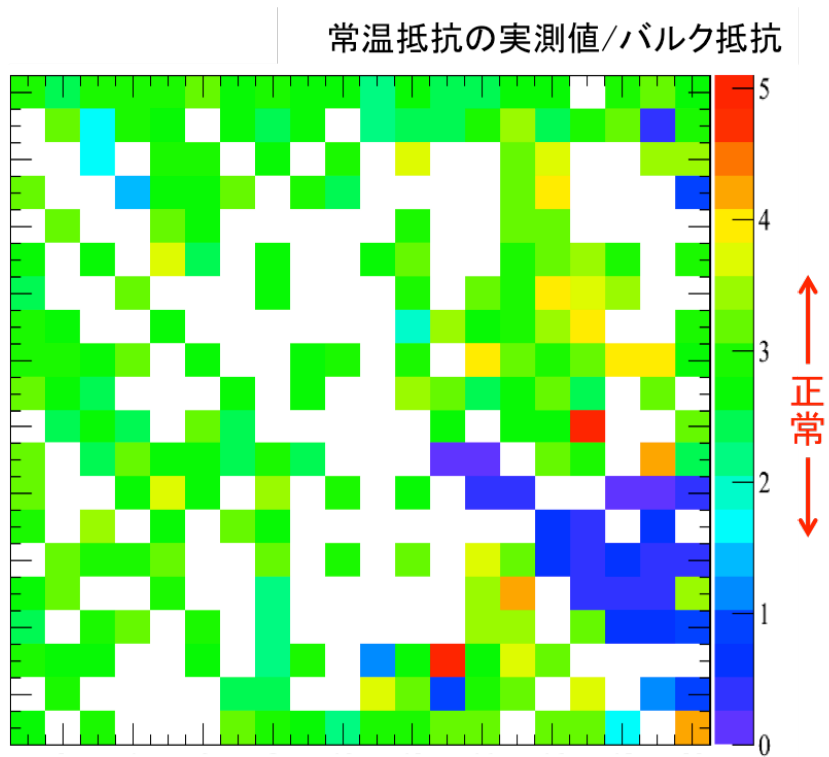


図 3.9: TMU 293 完成後の上部配線パッド - 下部配線パッド間の室温抵抗の実測値マップ。白く抜けているマスは導通していなかったピクセル。



### 3.4 傾斜付き配線素子

積層配線を用いた TES 型マイクロカロリメータ製作にあたり、TES の膜厚を薄くし転移温度を下げることで、上部配線 - TES 間のコンタクトの改善、配線の傷耐性の向上が必要になる。これらの問題を解決するため傾斜付き配線素子の製作を行なった。積層配線素子の上部配線を形成する際に配線側面に傾斜(テーパ)をつけ、TES とのコンタクトを良くすることで問題の改善を図った。傾斜を付けることで期待される効果として、TES を最適膜厚まで薄くすることで転移温度を最適化すること、コンタクトが良くなり常伝導抵抗及び残留抵抗が改善されること、配線を厚くすることが可能となり傷耐性が高くなることが挙げられる。傾斜を形成するにはイオンミリング法を用いる。イオンミリング法とは、イオンビームを試料に照射し試料原子をはじき飛ばすスパッタリング現象を利用して試料を削る方法である。配線用にパターンニングしたレジストに熱を加え液ダレさせた(リフロー)上で、イオンビーム軸に対し角度をつけ回転させることで傾斜のついた配線ができる。

#### 3.4.1 製作素子の性能

TMU 349 では上部配線イオンミリング時に  $45^\circ$  の角度で回転させて上部配線のパターンニングを行なった。DIOS の要求値では転移温度  $T_c \sim 100$  mK が理想だが、首都大の希釈冷凍機の最低到達温度が 100 mK 程度であることから余裕を持って  $150 \sim 160$  mK 程度の転移を目指す。そのため、TMU 349 は過去の条件出しから転移温度  $150 \sim 160$  mK 程度と予想される膜厚  $\text{Ti}/\text{Au} = 40/90$  nm でスパッタした。ベタ膜状態での R-T 測定では  $\sim 170$  mK で転移を確認、常伝導抵抗・残留抵抗も正常値となり従来の積層配線素子から改善が見られた。パターンニング処理を行なって再度 R-T 測定を行なった。

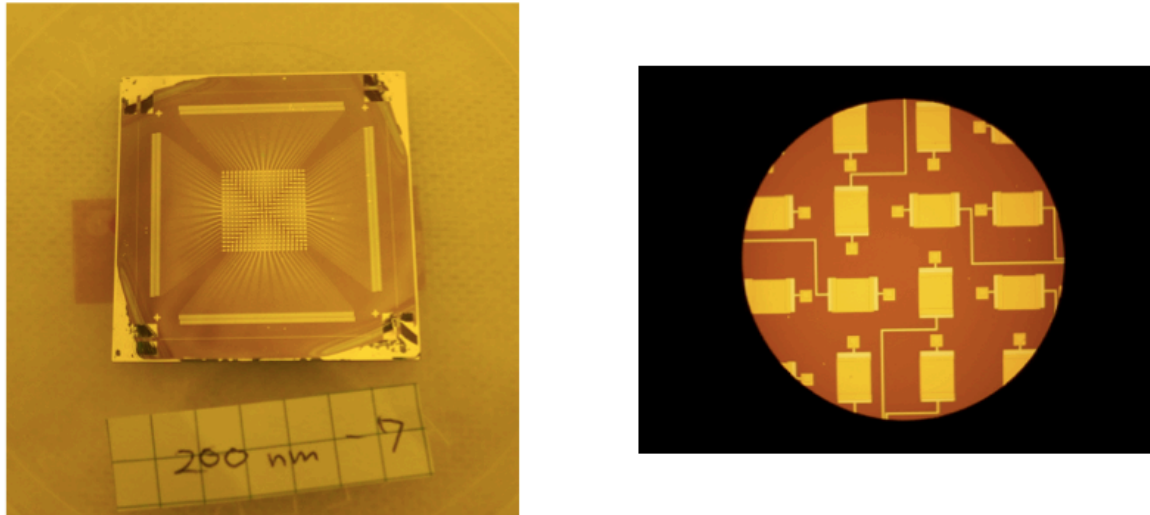


図 3.10: TMU 349 の完成後光学顕微鏡写真。左: 全体像、右: ピクセル中心部。

| date       | $T_{min}$ [mK] | Ch | $T_c$ [mK] | R [m $\Omega$ ] @150 mK | R [m $\Omega$ ] @200 mK |
|------------|----------------|----|------------|-------------------------|-------------------------|
| 2013/11/26 | 94             | 1  | $\sim 170$ | 2                       | 220                     |
|            |                | 3  | $\sim 175$ | 2                       | 216                     |
|            |                | 4  | $\sim 170$ | 3                       | 159                     |

表 3.1: TMU 349 の TES ベタ膜状態での R-T 測定の結果。

また、理化学研究所のナノサイエンス研究棟 CR 内にある Hitachi NB5000 という集束イオン/電子

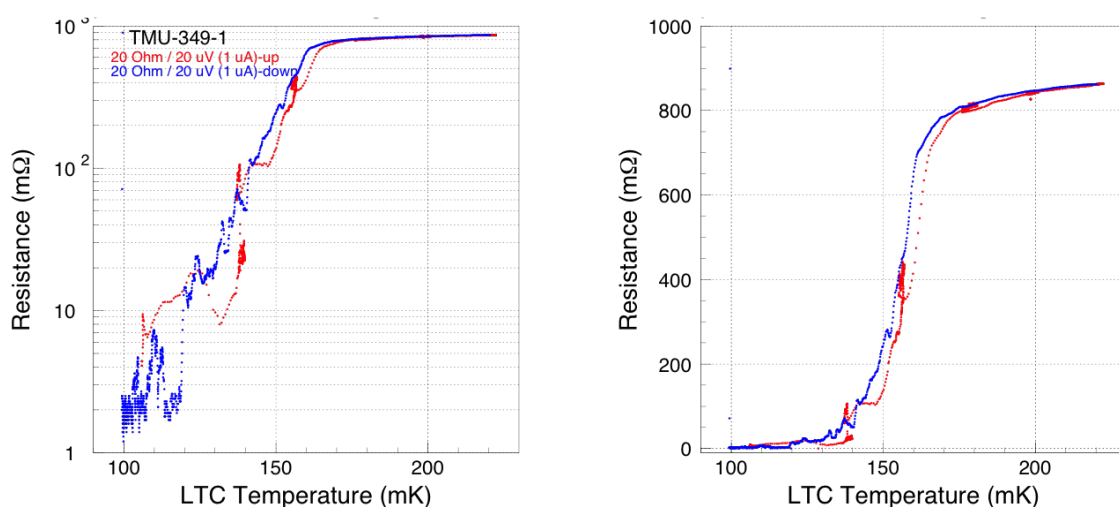


図 3.11: TMU 349 pixel ID: 1120 の R-T 測定結果。左はリニア、右はログスケール。

| date       | $T_{min}$ [mK] | Ch | pixel ID | $T_c$ [mK] | 残留抵抗 [mΩ]  | 常伝導抵抗 [mΩ]               | $I_c$ [ $\mu$ A] |
|------------|----------------|----|----------|------------|------------|--------------------------|------------------|
| 2013/12/06 | ~88            | 1  | 1301     | -          | -          | -                        | -                |
|            |                | 2  | 0111     | -          | -          | -                        | -                |
|            |                | 3  | 2008     | ~170       | ~20        | $1.5 \times 10^3$ @200mK | 未測定              |
|            |                | 4  | 0720     | ~160       | ~60        | $1.4 \times 10^4$ @200mK | 未測定              |
| 2013/12/26 | ~85            | 1  | 1120     | ~160       | 2 @85mK    | 842 @200mK               | <30              |
|            |                | 2  | 0112     | -          | -          | -                        | -                |
|            |                | 3  | 2018     | ~160       | ~4 @85mK   | $2.1 \times 10^3$ @200mK | <10              |
|            |                | 4  | 1501     | ~170       | ~1 @85mK   | 508 @200mK               | <30              |
| 2013/01/20 | ~78            | 1  | 0801     | ~175       | ~0.3 @90mK | 378 @220mK               | 未測定              |
|            |                | 2  | 2004     | -          | -          | -                        | -                |
|            |                | 3  | 0110     | ~170       | ~1 @90mK   | $1.1 \times 10^3$ @220mK | 未測定              |
|            |                | 4  | 1020     | ~170       | ~1 @90mK   | 134 @220mK               | 未測定              |

表 3.2: TMU 349 の R-T 測定全 3 回のまとめ。

ビーム加工装置 (FIB-SEM) を用いて TMU 349 の断面を観察し、段切れが起きていない事を確認した。また、TES - コンタクトホール間に関しては EDS (Energy Dispersive X-ray Spectrometer) による元素分析も行い、チタン金ともに段切れがないことを確認した。

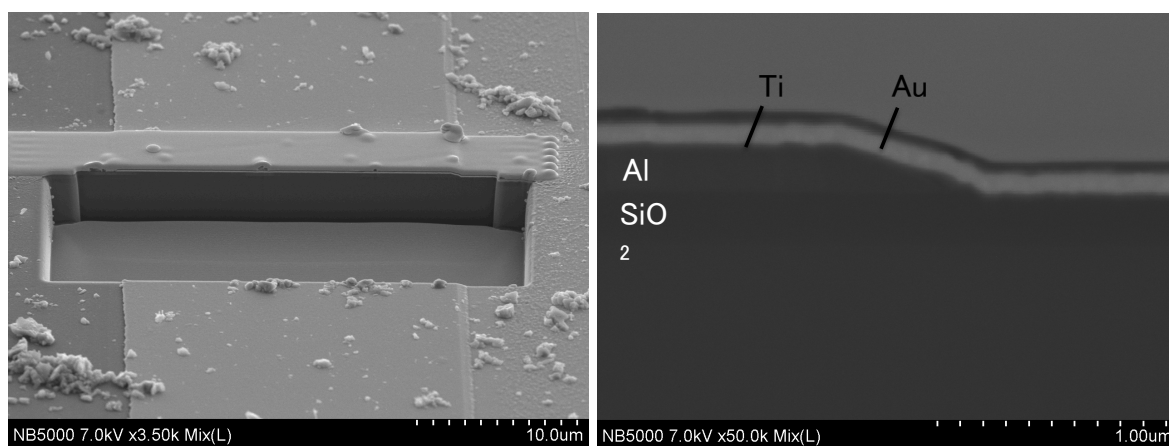


図 3.12: 上部配線 - TES の断面図。

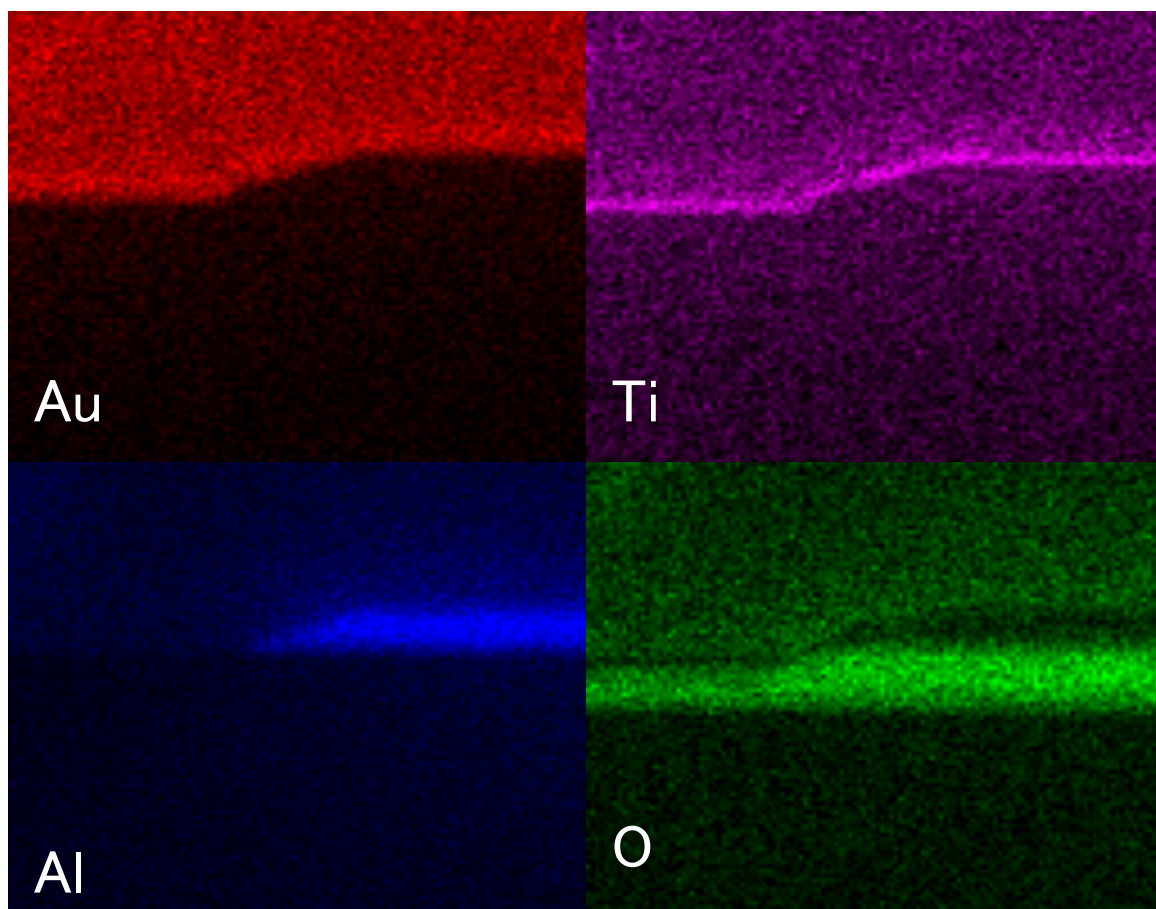


図 3.13: TES - コンタクトホールの断面の元素分析。段切れは起きていない。



## 第4章 超伝導積層配線素子製作プロセス

### 4.1 傾斜付き積層配線デザイン

積層配線構造とは、ピクセルまでのホットとリターン配線を絶縁膜を挟み上下に重ね、コンタクトホール部分で接続したものである。表 4.1 に各パラメータを示す。上下に重なった構造により、配線スペースの削減につながる他、ホットとリターンを流れる電流がお互いの磁場を打ち消す効果がある。

我々は上部配線側面に傾斜（テーパ）をつけた「テーパ付き積層配線素子」の製作、評価を行なっている。本章では、2015 年度時点での製作プロセスについて述べる。

積層配線の形成は産業技術総合研究所（以下、産総研）に依頼しており、3 inch シリコンウェハに 3.5 cm 角 20×20 ピクセルアレイの配線構造を形成できる（図 4.1）。これをダイシングソーで切り出し、首都大にてその後のプロセスを進めた。

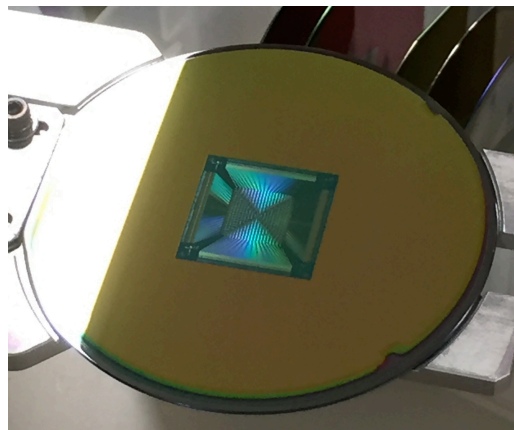


図 4.1: 3 inch シリコン基板。中央に見えるのが配線パターン。この時点では表面にレジストが乗っている。

選定の結果、配線は約 1.2 K で超伝導転移するアルミを採用していたが、本年度から同じく超伝導体であり約 9.2 K で転移するニオブも使用している。上部配線と下部配線の厚さはそれぞれ 200 nm と 100 nm であり、これはどちらの材質でも統一している。

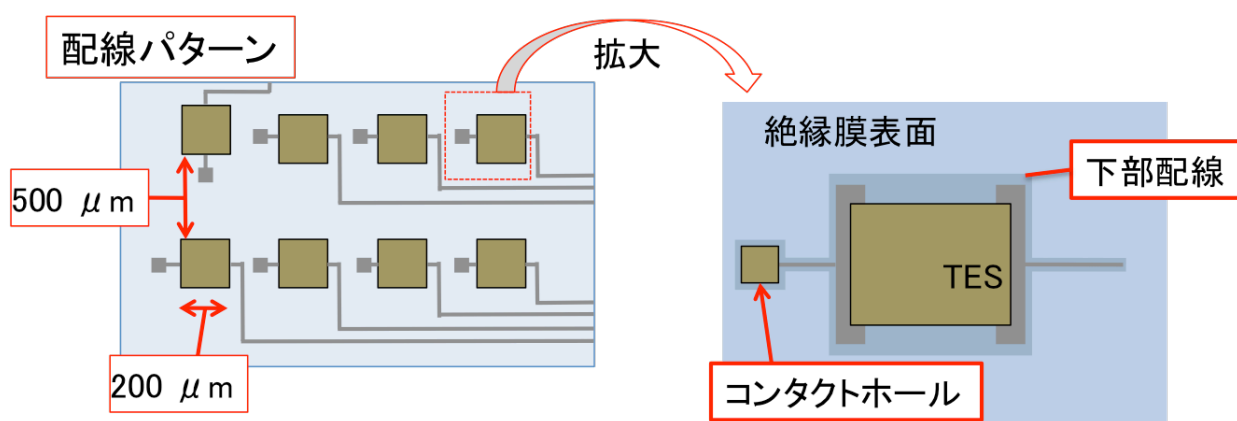


図 4.2: 積層配線パターン模式図。右は 1 ピクセルの拡大図

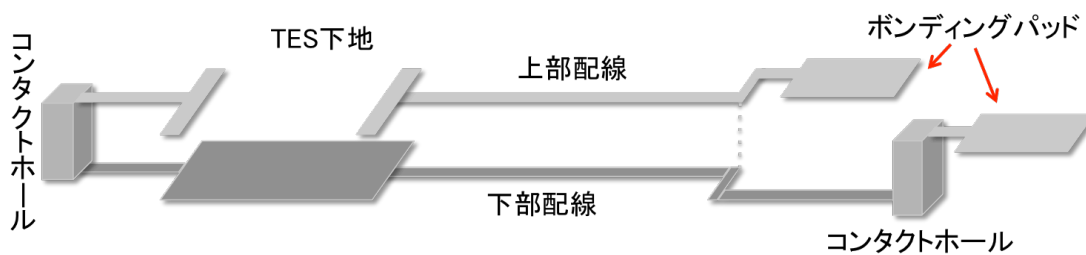


図 4.3: 積層配線模式図。間に挟まる絶縁膜は省略。上部配線と下部配線は重なっている。

|                            |       |
|----------------------------|-------|
| アレイサイズ                     | 20×20 |
| TES サイズ [ $\mu\text{m}$ 角] | 200   |
| ピクセルピッチ [ $\mu\text{m}$ ]  | 500   |
| 上部配線幅 [ $\mu\text{m}$ ]    | 10    |
| 下部配線幅 [ $\mu\text{m}$ ]    | 15    |
| 絶縁膜厚み [nm]                 | 180   |
| 上部配線厚み [nm]                | 200   |
| 下部配線厚み [nm]                | 100   |

表 4.1: 積層配線デザインの各パラメータ

## 4.2 傾斜付き積層配線構造の製作

現在の傾斜付き積層配線基板の製作プロセスについて説明する。使用するシリコン基板は、ROGUE VALLEY MICRODEVICES 社にて 3 inch シリコンウェハの両面に酸化膜及び窒化膜を成膜した基板を購入している。シリコンの厚みは 300  $\mu\text{m}$  から 380  $\mu\text{m}$  へ年度の途中から変更している。酸化膜  $\text{SiO}_2$  は 500 nm、窒化膜  $\text{Si}_3\text{N}_4$  は 1  $\mu\text{m}$  の厚みで成膜されている。この酸化膜・窒化膜部分が吸収体から熱浴へと排熱するメンブレン構造となる。

この基板を産総研に搬送し、以下のプロセスを進めていく。積層配線構造の形成は産総研内の超伝導アナログ・デジタルデバイス開発施設 (CRAVITY) にて行なった。

### 1. 下部配線パターンの形成

まず、下部配線のパターンを形成するため、スパッタリング法にて配線薄膜を 100 nm の厚さで成膜する。スパッタリング法とは高エネルギー粒子をターゲット材料に衝突させ、気相中に放出されたターゲット材料粒子を基板上に堆積させる方法である。アルミのスパッタ装置とニオブのスパッタ装置はそれぞれ異なるが、下部配線膜と上部配線膜のスパッタで装置を変更する事は無い。アルミのスパッタ装置でニオブも成膜できるが、200 nm 成膜後の表面粗さはどちらも平均二乗平方根面粗さ  $S_q=0.9$  nm 程度であり変わらない。

その後、産総研所有のレジスト溶液 PFI-68 を表面に塗布、ベーク、乾燥を行なう。次に i 線ステッパ装置 NIKON NSR-2205i12D を用いて下部配線パターンを露光する。露光量は 160  $\text{mJ}/\text{cm}^2$  に設定しており、実際の露光は 1 秒にも満たない時間で行われる。再び自動レジスト装置にセットし、現像液 NMD-3 に浸して余分なレジストを除去する。現像の前後にもベイク、乾燥が行なわれる。光学顕微鏡でレジストのパターニングが正常に行なわれているかを確認する。

次に、アルミ配線であればイオンミリング装置にて、ニオブ配線であれば反応性イオンエッチング (Reactive Ion Etching: RIE) (以下、RIE) 装置にてエッチングを行ない、下部配線パターンを形成する。イオンミリング装置は東京電子冶金研究所製 TDY-01800 を使用しており、基板の垂直方向からビームを当てたときのアルミのエッチングレートは 25  $\text{nm}/\text{min}$  で、削り具合を目視で判断しその都度エッチング時間を増減する。ニオブ配線の RIE エッチングは ULVAC 社製反応性イオンエッチング (RIE) 装置 CE-300R で  $\text{SF}_6$  ガスを使用する。ニオブのエッチングレートが約 3.1  $\text{nm}/\text{sec}$  なので 100 nm の厚みであれば計算上 26 秒程度でエッチングできるが、表面の自然酸化膜を除去するのに十数 sec 程度かかると思われるため、オーバーエッチングにも余裕をとり 85 sec エッチングを行なった。下部配線の下地は窒化膜なので RIE ではほとんど削れる事は無いと思われる。

エッチング終了後、酸素プラズマを使用した  $\text{O}_2$  アッシングクリーニングと洗浄液 NMP を使用したウェットクリーニングを行い基板表面を洗浄する。

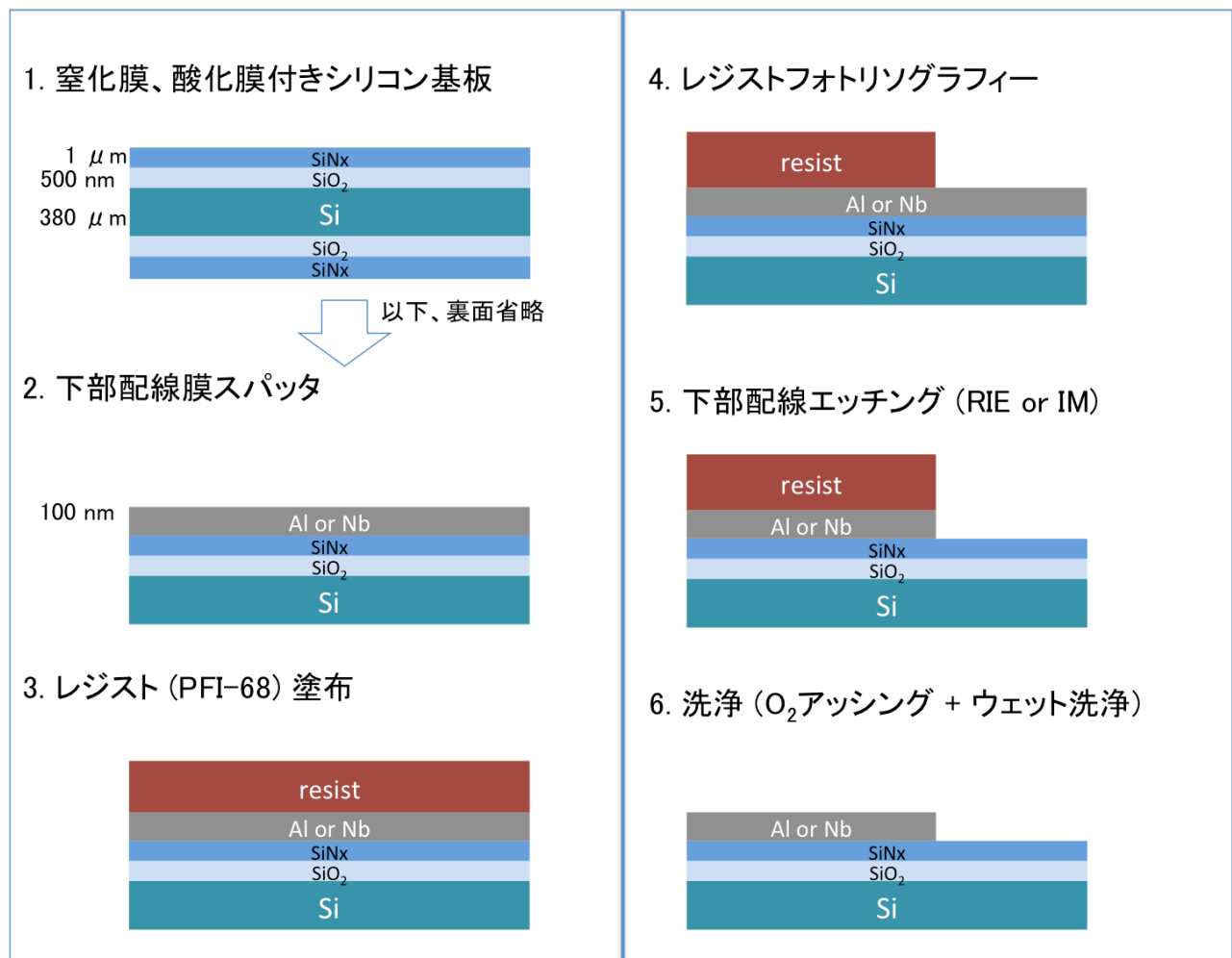


図 4.4: 下部配線パターンニングプロセス



## 2. 絶縁膜成膜及びコンタクトホール形成

TEOS-CVD 法を用いて下部配線の上に絶縁膜となる TEOS-SiO<sub>2</sub> を 180 nm 成膜する。TEOS-CVD 法はオルトケイ酸テトラエチル (TEOS) の分解反応を用いており、下部配線、窒化膜の下にある SiO<sub>2</sub> とは異なる成膜方法である。露光時にコンタクトホール形成用マスクに変更する以外は下部配線パターン作成プロセスと同様の装置、薬品を使用してレジストフォトリソグラフィーを進める。

TEOS-SiO<sub>2</sub> 膜のエッチングには RIE 法を用いる。装置はニオブ配線のエッチング時に使用する物とは異なり、SAMCO 社製ロードロック式 RIE 装置 RIE-200L で、CHF<sub>3</sub> ガスを使用する。TEOS-SiO<sub>2</sub> のエッチングレートは 18 nm/min で 12 分間のエッチングを行なう。エッチング終了後はマイクロプローバーを用いて TEOS-SiO<sub>2</sub> が削りきれているか、コンタクトホールの導通チェックを行なう。コンタクトホールが貫通している事を確認し、O<sub>2</sub> アッシングと NMP ウェットクリーニングを行い基板表面を洗浄する。

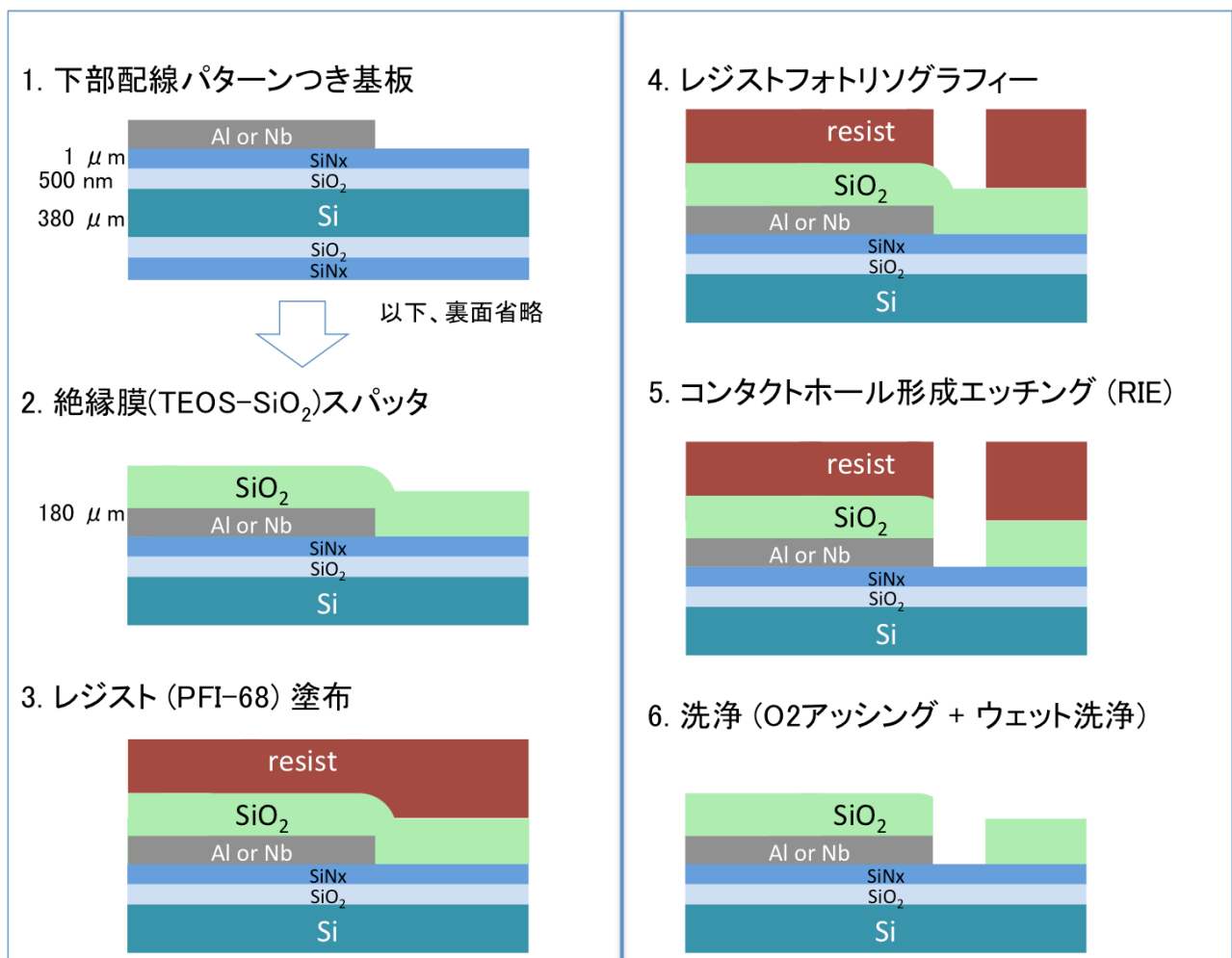


図 4.5: 絶縁膜パターンニングプロセス

### 3. 上部配線パターンの形成

下部配線と同じスパッタ装置を使用して 200 nm のアルミ、もしくはニオブの薄膜を成膜する。露光時に上部配線パターン形成用マスクに変更する以外は下部配線、絶縁膜と同様のプロセス、装置、薬品を使用してレジストフォトリソグラフィを進める。

上部配線については下部配線パターンニング時と異なり、傾斜（テーパ）をつけるためのレジストリフロー作業を行なう必要がある。レジストリフローとは、レジストフォトリソグラフィを行なった後、120°C に熱したヒーターの上で基板を 20 分加熱することでレジストを「液だれ」させ傾斜をつける行程である。さらに、エッチング時にイオンミリングビームの照射方向に 45° の角度をつけエッチングを行なうことで傾斜をつける。傾斜 45° をつけたイオンミリングでのエッチングレートはおよそ 12 nm/min で、下部配線と同様、目視で削り具合を確認しエッチング時間を増減する。ここでの 45° という角度やレジストリフローの条件は飯島修論 (2013) にて行なった条件出しを元に行っている。RIE エッチング装置ではこのような角度をつけるエッチングは出来ないので、アルミ配線でもニオブ配線でも上部配線はこのイオンミリング法でのエッチングを行なう。エッチングレートはほぼ同じ程度であると思われる。エッチング終了後は O<sub>2</sub> アッシングと NMP ウェットクリーニングを行い基板表面を洗浄する。

以上で積層配線構造の製作プロセスは終了である。表面に保護用レジストを塗布し、産総研のダイサーにて 2 cm 角あるいは 3.5 cm 角の適切なサイズにダイシングカットを行い首都大に配送する。

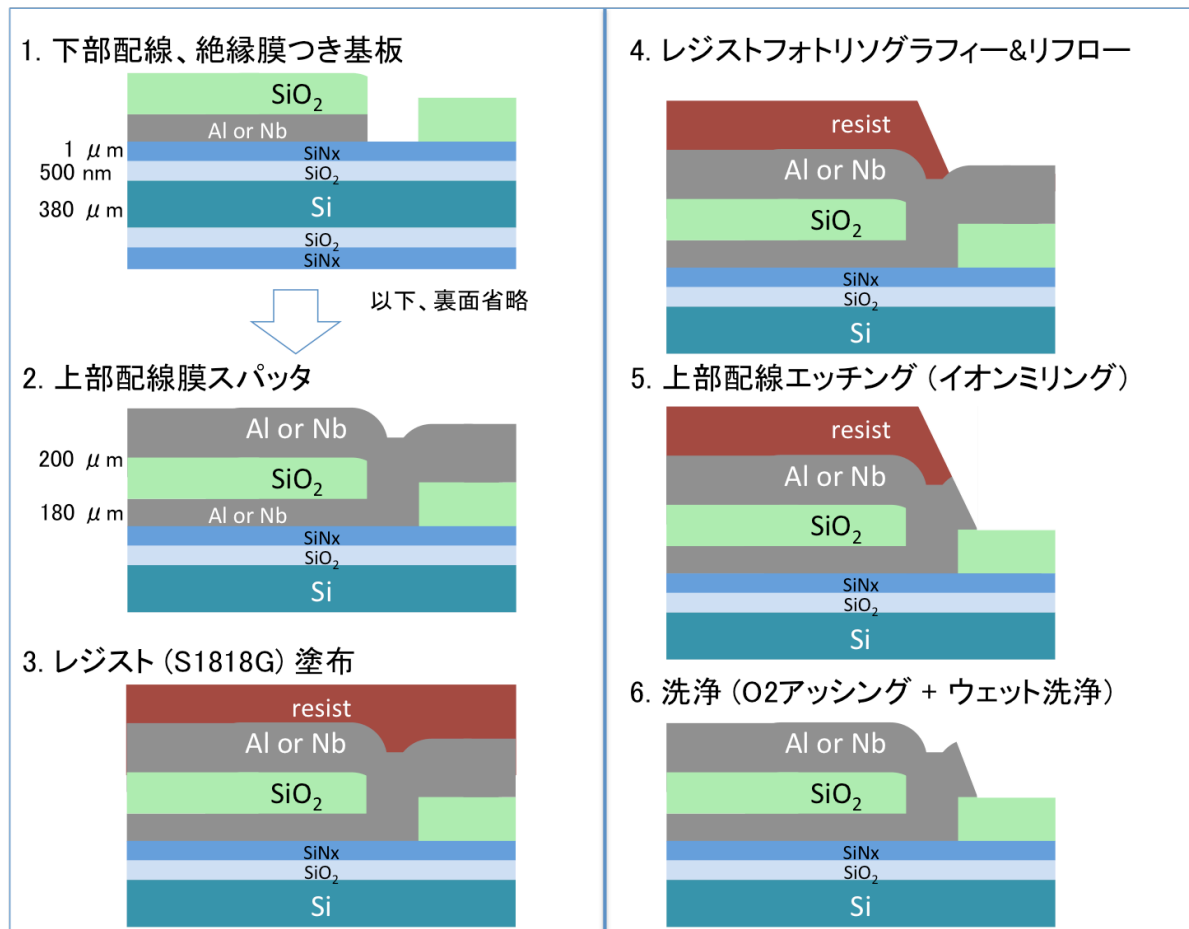


図 4.6: 上部配線パターンニングプロセス

### 4.3 スパッタによる TES 薄膜の形成

産総研で製作した 3.5 cm 角基板に首都大の ULVAC 社製スパッタリング装置にて TES 薄膜の成膜を行う。～ $10^{-7}$  Pa 程度に保たれた高真空のチャンバー内に不活性ガス (Ar ガス) を導入し、向かい合う基板とターゲットの電極間に直流高電圧を印加させてグロー放電を発生させる。このグロー放電によりイオン化した Ar のプラズマをターゲットに衝突させ、たたき出された原子を基板上に堆積させる仕組みである。この装置は基板交換や逆スパッタを行なう準備室と実際に成膜する成膜室の 2 つで構成されており、DC マグネトロンスパッタによって Ti と Au の薄膜を成膜する。2015 年 11 月に行なった改修作業によって 3 inch 基板の収容が可能になり、ダイシングカットする前、すなわち配線構造作成前であっても超伝導薄膜スパッタを行なう事が可能になった。スパッタ装置の仕様は表 4.2 に示す。

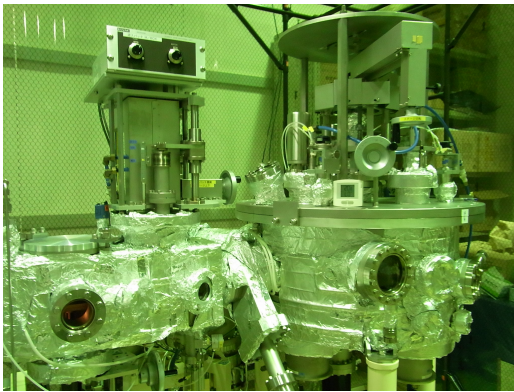


図 4.7: Ti/Au スパッタ装置

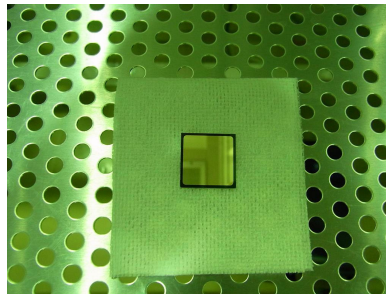


図 4.8: Ti/Au が成膜された Si 基板

表 4.2: 首都大 Ti/Au スパッタ装置の仕様

|              |                                   |
|--------------|-----------------------------------|
| 準備室 到達真空度    | ～ $1 \times 10^{-6}$ Pa           |
| 準備室 基板収容枚数   | $\phi$ 3 inch が 3 枚               |
| 成膜室 到達真空度    | ～ $1 \times 10^{-8}$ Pa           |
| 成膜室 基板収容枚数   | $\phi$ 3 inch が 1 枚               |
| ターゲット-基板距離   | 60 mm                             |
| スパッタ時の Ar 圧力 | 11.7 sccm                         |
| 成膜速度         | Ti 59.5 nm/min<br>Au 191.3 nm/min |
| 膜厚分布         | ± 5 %以内                           |

まず、 $5 \times 10^{-5}$  Pa 以下の真空度に保たれた準備室にて逆スパッタリングを用いて基板表面の自然酸化膜及び汚れを除去する。従来のプロセスではスパッタ時に基板表面は窒化膜しか成膜されていなかったため、逆スパッタのレシピは 100 W で 1 分間であった。しかし、積層配線基板ではアルミ、もしくはニオブの配線が既に形成されており、それら配線表面の自然酸化膜を取り除くために 150 W で 3 分間の逆スパッタが必要である。次に  $1 \times 10^{-7}$  Pa 以下の高真空度の成膜室にて、条件出しされたスパッタレートから目的の膜厚まで堆積するのに必要な時間分スパッタリングを行いチタン・金を続けて基板表面全体に成膜する。

上部配線側面に傾斜のない積層配線素子では、上部配線よりチタンが厚くなければ段切れを起こしてしまうため、チタンは 100 nm 以上の厚みが必要となる。飯島卒論 (2011) での条件出しから、膜厚比と転移温度の関係はチタンが 40 nm、金が 80 nm の膜厚が転移温度  $T_c \sim 100$  mK と最適であることがわ

かっている。

首都大のスパッタ装置にて成膜した素子には全て通し番号の ID(例:TMU 123) をつけている。

基本的にはスパッタを行った後の全面に TES が成膜された状態 (ベタ膜状態) でも R-T 測定を行い、転移温度などの特性を確認する。

## 4.4 TES パターニング

宇宙研 MEMS クリーンルームにて作業を行う。TES 成膜後のプロセスでは TES の表面保護のため超音波洗浄は極力行わない事とする。

### 1. レジストフォトリソグラフィー

アセトン・イソプロピルアルコール (IPA)・純水を用いて基板表面を洗浄した後、スピンコーターにてプライマー HMDS 及びレジスト S1818G を基板全体に均一に塗布する。レジストと基板の密着性を高めるため、プライマーを塗布する前後にもベークを行うとよい。レジストを固化させるため 115°C に熱したヒーターの上で 2 分半ベークし、冷却のためガーゼの上に移し 3 分乾燥させる。両面アライナーにてマスクと基板のアライメントを合わせた後、紫外光を 7 秒間照射する。使用するマスクは TES が乗る部分をクロムでパターニングしてある。また、コンタクトホールを補強するために、ピクセル部分及び下部配線パッド部分のコンタクトホール上に一回り大きい TES が被覆されるデザインとなっている。

紫外線を露光した範囲のポジ型レジストは現像液に溶けやすくなるので、現像液 NMD-3 に約 3 分浸けると余分なレジストが剥離されレジストによる TES パターンが形成される。この現像時間は、レジスト剥離の具合を目視で確認しながら調整する。

### 2. エッチングによる金のパターニング

金のエッチャントには AURUM 101 を使用する。AURUM 101 に数十秒 (金の膜厚に準ずる) 浸けると、レジストが乗っていない範囲の金が溶け、チタンが露出する。このとき、ピンセットを上下させ水流を生み出してやると、金の溶け残りが洗い流され基板表面が綺麗になる。エッチングレートは 2.2 nm/sec なので、80 nm の金薄膜なら 40 秒程度で完全にチタンが露出する。エッチャントから取り出した後は純水にて 30 秒間の洗浄を行う。

### 3. エッチングによるチタンのパターニング

チタンのエッチングを行う前に、金の上に残っているレジストを除去する。これはリン酸塩を混ぜた積層配線用金のエッチャントによって変質したレジストが、チタンのエッチング中に焦げ付いてしまったことを受けた行程である。レジストを除去しても TES パターニングされた金がチタンのマスクとなる。

チタンのエッチャントは 60°C に湯煎・保温した 35% 過酸化水素水である。この中に基板を固定したディッパーごと 3 時間浸す。この場合のエッチングレートは約 13 nm/min なので 40~50 nm 程度のチタン薄膜なら数分で TES パターン部分以外のチタンが解け基板が露出するが、チタンの側面をエッチングし金のオーバーハング構造を形成させるのが狙いである。エッチャントから取り出した後は純水にて洗浄を行う。

以上で TES のパターニングは完了となる

## 4.5 金吸収体の蒸着及びパターンフォトリソグラフィー

これまでのプロセスと同様に、基板の洗浄を行った後レジストの塗布・ベイク・乾燥を行う。吸収体の形成にはリフトオフ法を用いるので、今回使用するマスクは吸収体の乗る部分以外がクロムでパターンニングされている。このプロセスでも、アライメントを行った後に紫外光を7秒間照射しNMD-3にて現像する。この状態のまま基板表面全体に、金を電子ビーム蒸着にて $1\text{ }\mu\text{m}$ 成膜する。

### リフトオフによる金吸収体のパターンニング

基板表面全体に金が蒸着された状態の基板を、アセトンを入れたシャーレに浸し1時間以上おく。アセトンによってレジストが流れ、その上に乗っていた金が浮いた状態になる。そこで小さい使い捨てスポイトを用いてシャーレ内に弱い水流を生み出すと、浮いた金が次第に剥がれていく。吸収体部分以外の金が剥がれ落ちたら、IPA・純水で洗浄を行う。

## 4.6 DRIE によるメンブレン構造の形成

TES カロリメータでは入射 X 線によって生じた吸収体の熱を熱浴へ排熱するために、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  膜のみのメンブレン構造をサーマルリンクとして採用している。積層配線素子に対しては、宇宙研 MEMS クリーンルームにある ICP (Inductively Coupled Plasma) 装置を用いて DRIE 法でのエッチングを行なう。

DRIE 法を用いてピクセル部分真下のシリコンを基板裏面からエッチングし、メンブレン構造を形成する。基板は表面に拡散オイルを塗布してアルミ台座に接着するが、その際に四辺をカプトンテープで空気を抜きながら二重に固定する。これは、テープが一重であったり空気が入っていることにより、エッチング中に拡散オイルが飛散しブラックシリコン (不純物等がマスクの役割をしたため削り残ってしまうシリコンのこと) が発生してしまうのを防ぐためである。

エッチングは TES high speed を  $25\text{ cycle}\times 3$  回、TES default を  $25\text{ cycle}\times 1\sim 2$  回 (1 回目の彫り具合を見て 2 回目を追加) 行う。各レシピの内容については表 4.3 に示す。

| レシピ名           | $\text{SF}_6$ 時間 (E : エッチング) | $\text{C}_4\text{F}_8$ 供給時間 (P : 保護) | 1 サイクル | レート                      |
|----------------|------------------------------|--------------------------------------|--------|--------------------------|
| TES high speed | 3 s または 6.5 s                | 3 s                                  | E→E→P  | $4.2\text{ }\mu\text{m}$ |
| TES default    | 3 s                          | 2.5 s                                | E→P    | $0.4\text{ }\mu\text{m}$ |

表 4.3: DRIE エッチングレシピ

以上が積層配線構造の TES 素子の全製作プロセスである。次章では製作した素子の評価方法と使用する装置について記述する。



## 第5章 性能評価・測定環境

### 5.1 無冷媒希釈冷凍機

カロリメータの性能を引き出すには極低温で動作させることが必須であり、 $\sim 100$  mK 以下の冷凍能力をもつ冷凍機が必要である。首都大学東京 TES 開発チームでは、TES の性能評価に希釈冷凍機を使用している。希釈冷凍機は冷却能力が大きく、寒剤の液体 He(4.2 K) が無くならない限り極低温を保ち続けることが可能である。 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機の冷却は液体  $^3\text{He}$  と液体  $^4\text{He}$  との混合希釈によってなされる。 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  混合液 (mixture) は、0.87 K 以下で超流動性を示さない  $^3\text{He}$  含量の多い  $^3\text{He}$ -濃厚層 (concentrated phase) と超流動性を示す  $^3\text{He}$  含量の少ない  $^3\text{He}$ -希薄層 (dilution phase) とに分離する。冷却は  $^3\text{He}$ -濃厚相と  $^3\text{He}$ -希薄相中の  $^3\text{He}$  のエントロピーの差を利用するもので、 $^3\text{He}$ -濃厚相から  $^3\text{He}$ -希薄相へ  $^3\text{He}$  が混入するときに吸熱がおこる。

使用している希釈冷凍機は、大陽日酸製 TS-3H100-GM 型希釈冷凍機 (図 5.1) で、高さ 96.1 cm、直径 25.4 cm の円柱形をしている。低温に気密用シール部を持たないためサンプル交換が容易である。4 KGM 冷凍機を同じ真空断熱容器内に設置し 4.2 K の低温ステージを作ることによって、寒剤としての液体 He を必要としない。ガスハンドリングシステムは自動制御で、スイッチを押すだけで 100 mK 以下の極低温を得られる。冷却能力は  $\sim 20\mu\text{W}$  @100 mK、最低到達温度は  $\sim 80$  mK である。

表 5.1: 機器仕様。

|         |   |
|---------|---|
| 型式      | TS-3H100-GM   |
| 資料スペース  | 内径 80 mm × 高さ 120 mm  |
| 窓サイズ    | 外槽部 $\phi$ 、1 K シールド $\phi 40$  |
| 温度センサー  | 酸化ルテニウム抵抗 4 個 (混合器内・外、分溜器、凝縮器)  |
| 計測用コネクタ | SMA コネクタ 2 個<br>同軸ケーブル 室温導入部のみ、配線は無し<br>配線 48 本 (LOOM ワイヤー 12 ペア 2 セット) |

表 5.2: 冷凍機ユニットの仕様。

|           |            |             |
|-----------|------------|-------------|
| 4 KGM 冷凍機 | 型式         | SDRK408     |
|           | 最低到達温度     | 4.2 K 以下    |
|           | 冷凍能力 (1st) | 30 W @ 40 K |
|           | 冷凍能力 (2nd) | 1 W @ 4.2 K |
|           | メンテナンスサイクル | 10000 時間    |
| 圧縮機ユニット   | 型式         | F-50L       |
|           | 冷却水量       | 7~10 L/min  |
|           | メンテナンスサイクル | 30000 時間    |





図 5.1: 無冷媒希釈冷凍機全体像。

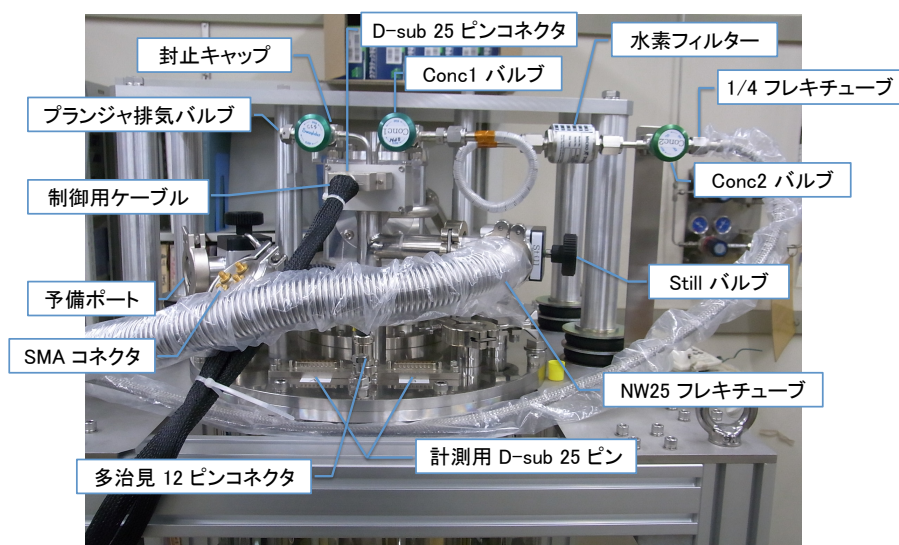


図 5.2: 冷凍機上部の各名称。



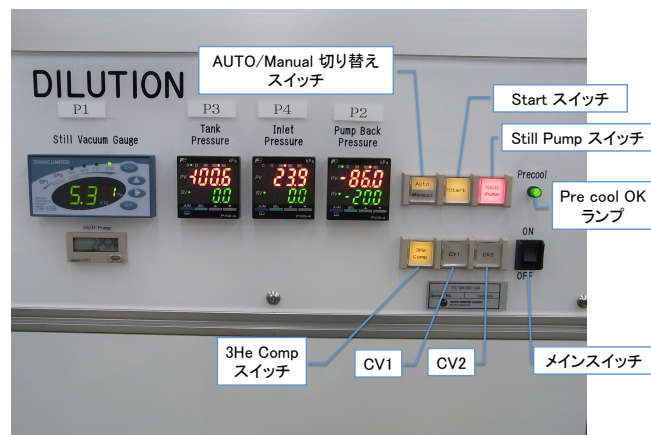


図 5.3: 冷凍機の操作スイッチ。

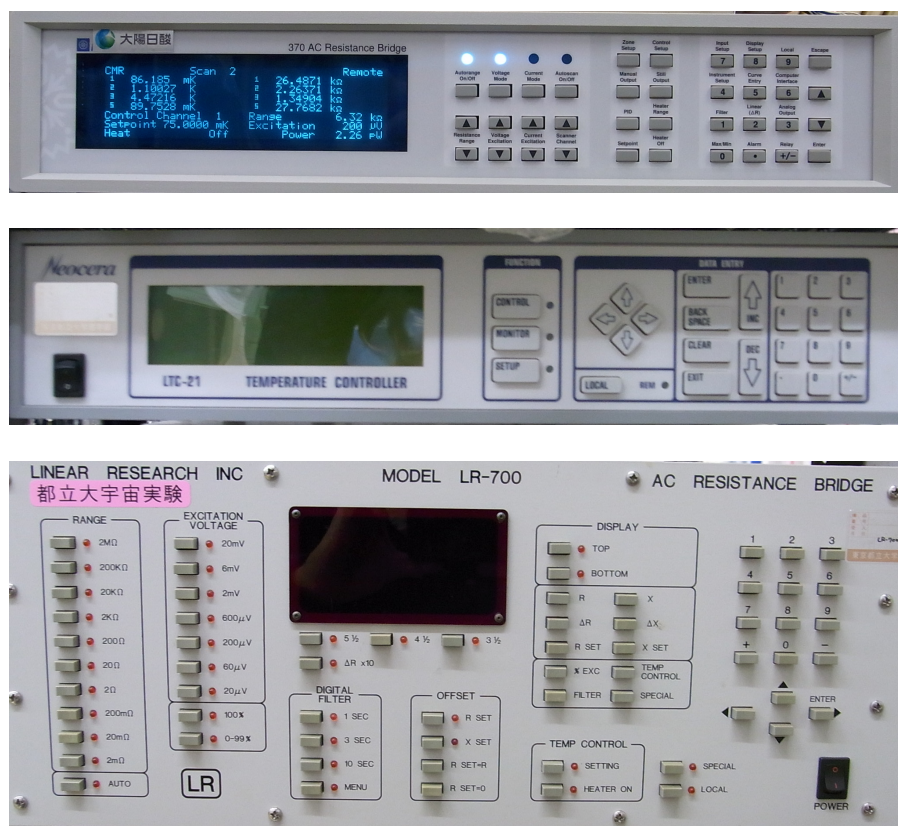


図 5.4: 測定に用いる機器。上から Lake Shore 370(温度モニター、ヒーターの制御)、LTC-21(素子の温度測定)、LR-700(素子の抵抗測定)。

### 5.1.1 冷却時間

表 5.3 は過去 10 回の測定で Mixing Chamber が最低温度付近 ( $\sim 120$  mK) に到達するまでの所要時間、図 5.5 左はその温度変化である。2014 年 10 月 23 日のみ素子を組み込まずに測定した。素子組み込み時は毎回約 65 時間で極低温に到達している。また、図 5.5 に 2015 年 1 月 10 日の各ステージの温度変化を示す。

表 5.3: 最低温度到達所要時間。

| 冷却開始日      | 所要時間 [hour] |
|------------|-------------|
| 2014/10/23 | 57.02       |
| 2014/10/31 | 65.34       |
| 2014/11/ 7 | 65.57       |
| 2014/11/13 | 63.48       |
| 2014/11/28 | 66.18       |
| 2014/12/ 5 | 63.81       |
| 2014/12/12 | 63.68       |
| 2014/12/19 | 66.18       |
| 2014/12/26 | 66.28       |
| 2015/ 1/10 | 64.02       |

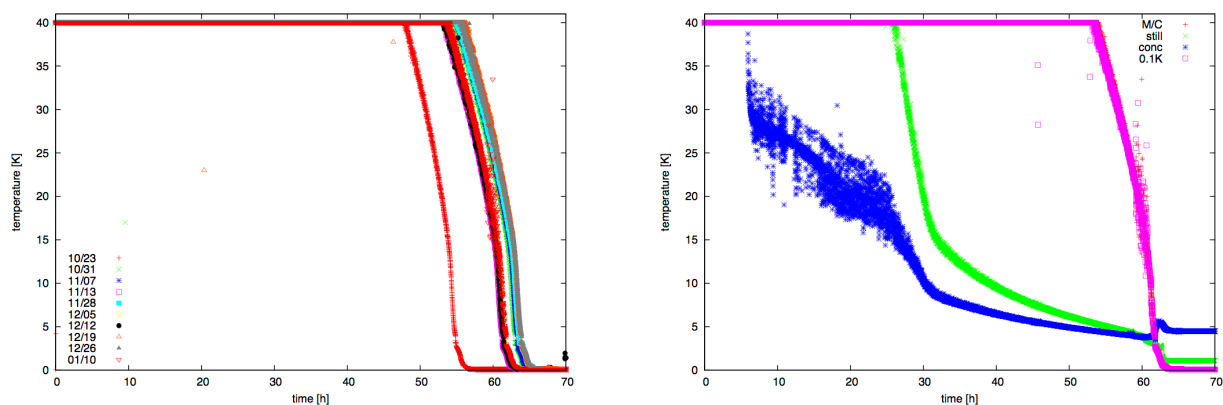


図 5.5: 左: 過去 10 回の測定での Mixing Chamber の温度変化、右: 各ステージの温度変化。

### 5.1.2 温度ゆらぎ

図 5.6 は極低温状態でのステージの温度変化を 200 分間記録したものである。これを見ると数十分周期の大きな波と数十秒周期の小さな波があることがわかる。温度ゆらぎの振幅 (peak-to-peak) は  $\sim 0.4$  mK である。

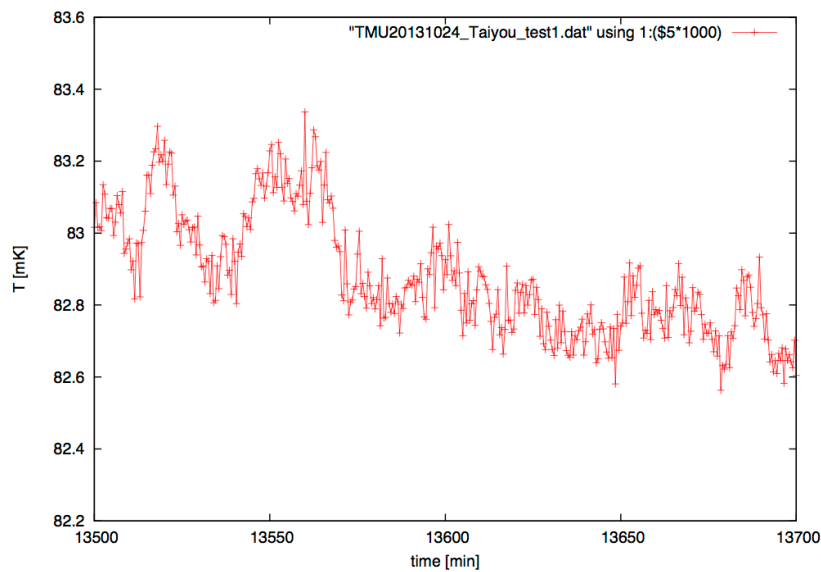


図 5.6: 低温ステージの 200 分の温度ゆらぎ。

### 5.1.3 カロリメータの組み込み

次に、カロリメータの固定方法を述べる。カロリメータホルダの材質には、ホルダとカロリメータとの間の温度勾配がほとんど無くなるように熱伝導度の良い OFC(無酸素銅)を使用している。また、ホルダとカロリメータの熱伝導をよくするため、接触部に真空グリス APIEZON-N を薄く塗っている。

積層配線のボンディングパッドと治具のボンディングパッド間は、Al のボンディングワイヤーで繋いでいる。ボンディングは首都大のボンディングマシンを用いて行っている。ボンディングワイヤーには  $\phi$  25  $\mu\text{m}$ 、Al 99% Si 1% のものを使用している。ボンディングパッドは、ホルダーに熱膨張率の低い特殊シリコン系の瞬間弾性接着材ペグ  $\alpha$  を用いて接着し、ホルダーとの電気的な接触はない。ボンディングパッドからの配線は、超伝導配線である銅皮膜付き  $\phi$  97  $\mu\text{m}$  の NbTi 線を信号ペアごとにツイストして配線している。このツイスト線の上に Al テープを巻くことで振動によって生じるノイズの軽減を行い、超伝導シールドによる磁気シールドにもなっている。また、サンプルステージ上でしっかりとサーマルアンカーをとることで、カロリメータへの直接の熱流入を防いでいる。抵抗測定 (R-T 測定) の際、この超伝導配線は micro D-sub につながる配線にスズメッキ IC ソケットで接続される。ホルダの温度測定には RuO<sub>2</sub> 温度計を用いており、温度計測には Neocera 社 LTC-21 Temperature Controller を使用している。ここで測定される温度は実際には熱浴の温度であるが、R-T 測定など TES カロリメータに流れる電流が微小な場合にはカロリメータの発熱の影響を小さいとし、LTC-21 で測定される温度を TES の温度とみなして測定を行う。

### 5.1.4 R-T 測定

カロリメータの性能評価を行うにあたって、まず初めに素子の温度  $T$  と電気抵抗  $R$  の関係 (R-T 特性) を測定し、素子の転移温度  $T_c$ 、転移幅、転移の様子などからカロリメータとして動作させることが可能かどうか調べることが必要である。また、測定される温度は、熱浴の温度となるので TES と熱浴との間で温度差ができないように流す電流は極微小でなければならない。サンプルの温度測定にはホルダ上に固定した RuO<sub>2</sub> 温度計を使用し、LTC-21 で読み出している。抵抗値の測定には Linear Research 社 LR-700 を使用し、4 端子法を用いて約 16 Hz の交流電流をサンプルに流して抵抗値を測定している。

### 5.1.5 臨界電流測定

超伝導状態にある物質に一定量の電流を流すと超伝導状態が破れ、常伝導状態へ遷移する。この電流の最小値が臨界電流である。臨界電流は TES の温度  $T$  と外部磁場  $B$  の関数であり、TES のサイズや膜質にも依存する。TES の応答の電流依存性は臨界電流でスケールされるため、臨界電流は TES の性能に深く関係する物理量である。この測定では、超伝導状態にある素子にすばやくバイアス電圧を掛け、超伝導状態が壊れるときの電圧を記録する事で臨界電流を測る。

SQUID に接続されていないチャンネルの場合、LTC controller 上で LR700 の電圧と抵抗を変えることで定電流の値を変えられる。電流値を変えていき、超伝導状態が壊れる時の電流値を臨界電流としている。ただし、設定可能な電流値が限定的なため、正確な数値を知ることはできない。

## 5.2 原子間力顕微鏡 (AFM)

原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope) は、試料に微小な探針を近づけて探針と試料表面との間に働く原子間力から、試料表面の凹凸を検出する装置である。表面と針が接触する事無く数 nm レベルの凹凸を観察し画像を得る事が出来る。我々は宇宙研、もしくは産総研の原子間力顕微鏡 (以下、AFM) を使用した。産総研 AFM は OLYMPUS 製 OLS4500 を使用している。どちらの装置も光学顕微鏡と一体化しており、光学顕微鏡で観察しながら走査範囲を指定する事が出来る。測定対象は TES 表面や TES の下地となる酸化膜表面、配線表面など様々で、表面粗さの測定や傾斜 (テーパー) の傾斜角を確認するのに用いる。

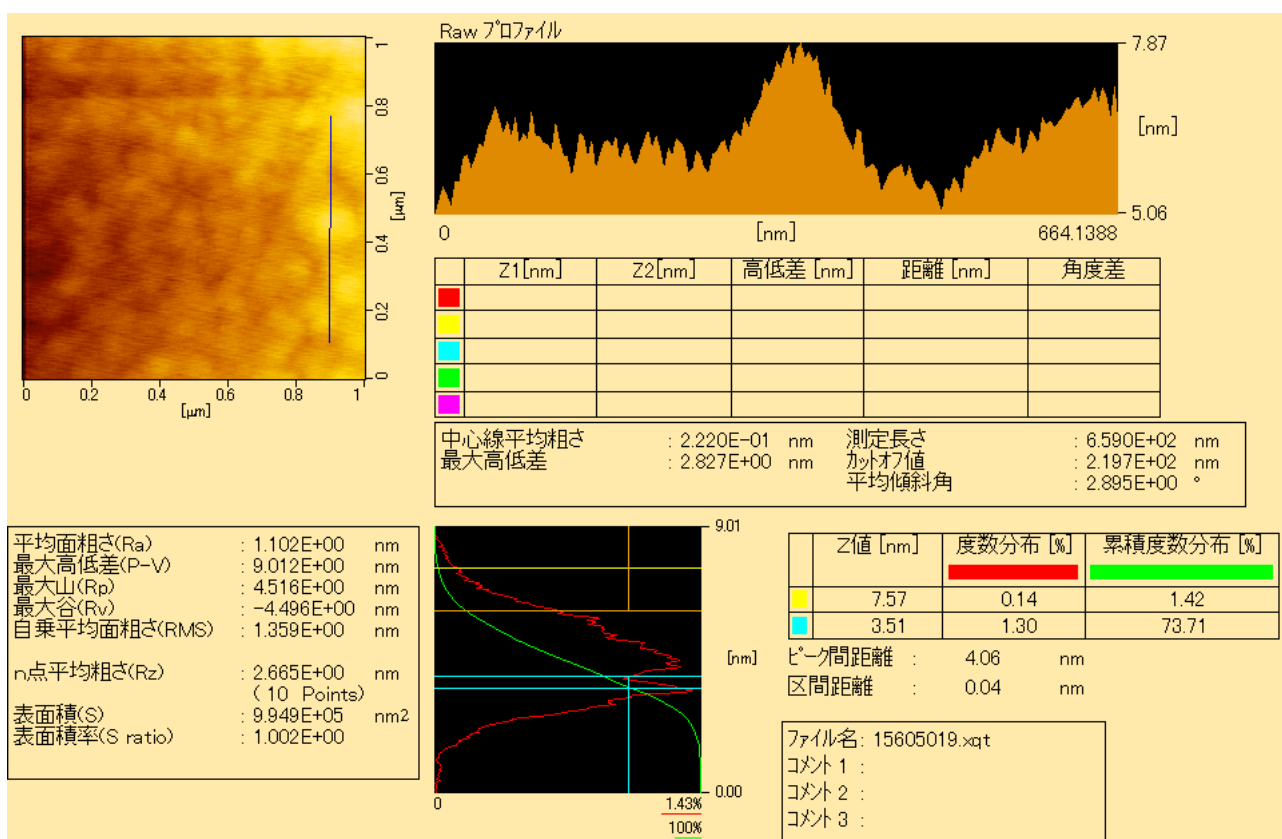


図 5.7: AFM 出力例。サンプル表面は酸化膜 TEOS-SiO<sub>2</sub>。宇宙研 AFM を使用。

### 宇宙研 AFM と産総研 AFM の違い

表面粗さに関するパラメータには ISO 25178 と JIS B 0601-2001(ISO13565-1) という 2 種類の規格がある。ISO25178 は三次元的な面の表面粗さに関するパラメータで、JIS B 0601-2001 は二次元的な直線の高さの粗さに関するパラメータである。産総研の OLS4500 は ISO 25178 を用いており、走査範囲全体の二乗平均平方根高さ  $S_q$  を出力する。宇宙研の AFM は JIS B 0601-2001 を用いており、走査範囲内から選択した直線上の二乗平均平方根高さ  $R_q$  を RMS という名称で表示している。 $R_q$  は走査方向や直線的位置によって値が変化してしまうが、小さな山の高さを測ったり、エラーが出力された箇所を回避して解析する事が出来る。

## 5.3 マイクロプローバー

主に首都大、もしくは産総研にて使用する。微小な対象物に顕微鏡を見ながら針を落とすことで目標の抵抗値を測定する事が出来る装置である。首都大マイクロプローバーはおもに TES ピクセルの PAD 間の導通チェック、産総研マイクロプローバーは主に絶縁膜コンタクトホールの絶縁チェックに用いる。

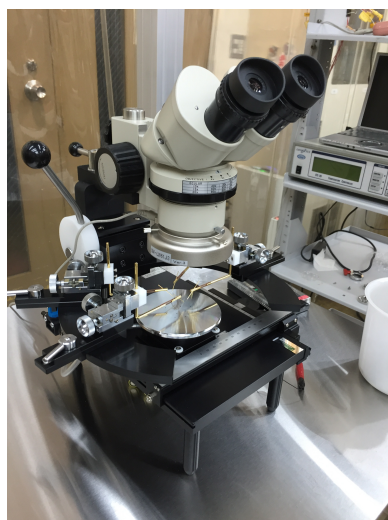


図 5.8: 首都大マイクロプローバー。

## 5.4 段差計

スパッタ装置の開閉を行った後や TES の  $T_c$  が予想と合わなかったときは、膜厚比と転移温度の関係の条件出しを行う。転移温度の測定は前述 (§5.1) の無冷媒希釈冷凍機による R-T 測定を行い、TES の膜厚は段差計で測定する。AFM と違い、表面に針を直接接触させて測定するため表面に傷がついてしまう。宇宙研では Dektak 6M を使用し、産総研の段差計は KLA Tencor 社製 P-16 を使用している。

例として TMU 389 の段差観察結果を図 5.9 に示した。Height=0 nm の面が配線外の絶縁膜、そこから下部配線の分の Height~100 nm の段差があり、さらにチタン、金が合計 130 nm 乗っている事が確認できる。



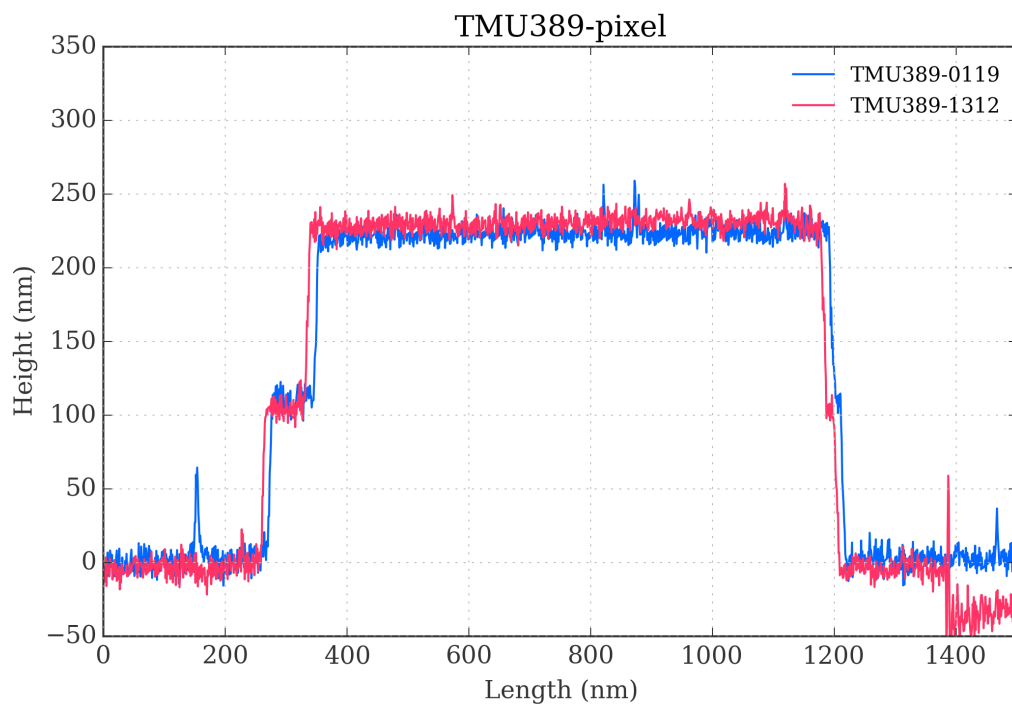


図 5.9: TMU 389(Ti/Au=40/90 nm) の pixel の段差測定結果。宇宙研の段差計を使用。

### チタン、金の膜厚測定

首都大スパッタ装置にてチタン、金薄膜を成膜後、膜厚を確認する。§4.4.2 に従って金をエッチングし、アセトン・IPA でレジストを洗浄後、宇宙研 Dektak で膜厚を確認する事で金のみの膜厚を測定する事が出来る。その後、§4.4.3 に従ってチタンもエッチングし、同様に洗浄後膜厚測定することでチタンと金の合計の膜厚を測定できる。チタンのみの膜厚はこれらの膜厚の差から計算する。

## 第6章 傾斜付き積層配線素子の試作

この章では、昨年度に行なったの傾斜付き積層配線素子の製作・測定の結果を紹介する。それまで製作した積層配線素子・傾斜付き上部配線素子のノウハウを活かして傾斜付き積層配線素子を製作することで、TES 型マイクロカロリメータとして基本的な動作を確認し積層配線素子での製作・測定プロセスを確立することが本章の目的である。

### 6.1 試作プロセス

以前の試作までは配線パターンニングは宇宙研や SHI で行っていたが、2013 年度から産総研に依頼している。イオンミリング法による上部配線パターンニングまでのプロセスは産総研で行われ、基板を 3.5 cm 角にダイシングカットし首都大に配送、スパッタリング法による TES 薄膜成膜以降の製作プロセスを首都大、宇宙研で行った。(§4 参照) R-T 測定等の性能評価方法については §5 を参照。

### 6.2 試作基板

2014 年度時点では配線にアルミを採用し、下部配線は 100 nm、上部配線は 200 nm で統一していた。四隅のピクセルは TES パターンが無く、上部配線間が繋がっている導通確認用ピクセルとした。使用する 3 inch シリコンウェハはシリコン厚み 300  $\mu\text{m}$ 、酸化膜厚み 300 nm の酸化膜付き基板を練習用、加えて両面に 400 nm の窒化膜を酸化膜上に成膜した基板を本番用とした。酸化膜の練習用基板はメンブレン処理まで行わず、プロセス毎の転移特性や表面膜厚の確認用として使用するために用意した物である。練習基板と本番基板は 1 枚ずつ同時に製作している。

TES は首都大のスパッタ装置にてチタンと金の二層薄膜を基板表面全体に成膜する。これまでの条件出しから、Ti/Au=40/80 nm という膜厚が転移温度や常伝導抵抗の大きさから見て最適な膜厚であると考えられる。今回の試作ではチタンの膜厚は 40 nm に固定し、金の膜厚を 70~110 nm の間でサイクルによって変えた。

### 6.3 試作素子のまとめ

まず、練習用基板を 3 枚 (wafer01, 02, 03)、本番用基板を 2 枚 (wafer04, 05) の計 5 枚を用意した。

表 6.1: 試作基板

| 基板 ID   | 基板の表面膜                         | 膜付け後の名称 | 成膜時期    | Ti/Au の膜厚 |
|---------|--------------------------------|---------|---------|-----------|
| wafer01 | SiO <sub>2</sub>               | TMU370  | 2014/07 | 40/110 nm |
| wafer02 | SiO <sub>2</sub>               | TMU387  | 2014/12 | 40/90 nm  |
| wafer03 | SiO <sub>2</sub>               | TMU393  | 2015/01 | 40/70 nm  |
| wafer04 | Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> | 成膜せず    |         |           |
| wafer05 | Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> | TMU371  | 2014/07 | 40/110 nm |

試作基板の結果を受け、レジストリフローの条件を変更 (160°C, 20 min → 180°C, 20 min) して wafer 06, 07, 08 を製作した。3 枚とも SiO<sub>2</sub>/SiN/Si 基板上に作られている。

表 6.2: リフロー条件変更基板

| 基板 ID   | 基板の表面膜                         | 膜付け後の名称 | 成膜時期    | Ti/Au の膜厚 |
|---------|--------------------------------|---------|---------|-----------|
| wafer06 | Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> | TMU389  | 2014/12 | 40/90 nm  |
| wafer07 | Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> | TMU394  | 2015/01 | 40/70 nm  |
| wafer08 | Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> | 成膜せず    |         |           |

これらのうち、TES 成膜後のパターニング処理まで行ったのは wafer 01, 05 のみであり、他の素子は TES べた膜での R-T 測定を行った。パターニング後の R-T 測定で転移が確認できたのは wafer 01 のみである。

製作の順番は wafer 01, 05 → wafer 02, 06 → wafer 03, 07 である。wafer 04, 08 は TES の成膜を行わなかった。以後は各素子の成膜条件と結果をまとめる。

#### TMU 370(wafer 01)

酸化膜付きシリコンウェハに積層配線を乗せた練習用基板。本番基板 wafer 05(TMU 371) と TES 成膜以降のプロセスを同時に進めた。四隅の導通ピクセルで配線の導通確認を行った後、TES を成膜した。転移温度  $T_c \sim 150$  mK を狙うため、膜厚比を Ti/Au=40/110 nm とし、逆スパッタは 150 W で 3 分間行った。TES スパッタ後、希釈冷凍機にてベタ膜状態の R-T 測定を行った。配線の無い箇所にワイヤボンディングを行い測定したところ、転移温度にばらつきがあった (図 6.1)。

パターニング後の R-T 測定では (図 6.2)、常伝導抵抗が 1-2  $\Omega$ 、残留抵抗が 100-1000 m $\Omega$ 、転移温度が  $\sim 180$  mK であり、どれも要求値 (§1.4 参照) より高かった。また、転移特性が非常に悪かった。

抵抗値が高い部分を特定するため、上部配線 PAD - TES 間と TES - 下部配線 PAD 間にワイヤボンディングし、上部配線と下部配線を切り分けて R-T 測定を行った。その結果、pixel ID: 1010, 2019 では上部配線 PAD - TES 間の抵抗値は残留抵抗・常伝導抵抗ともに上部配線 PAD - 下部配線 PAD の抵抗値の半分程度で、100~200 mK で転移した。しかし、TES - 下部配線 PAD 間の抵抗はアルミの転移温度まで常に数 m $\Omega$  とかなり低い値を保ったままであった。TES にボンディングしたアルミワイヤーが下部配線まで達している可能性が考えられる。



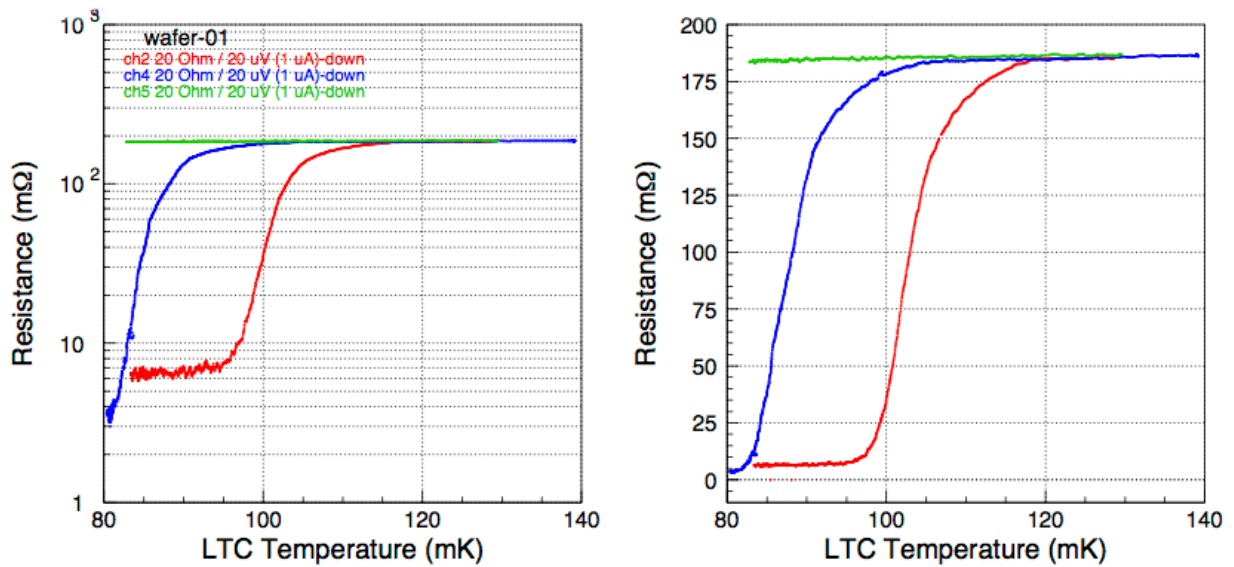


図 6.1: wafer 01 TES スパッタ後の R-T 測定結果。ベタ膜上の 3 点で測定。

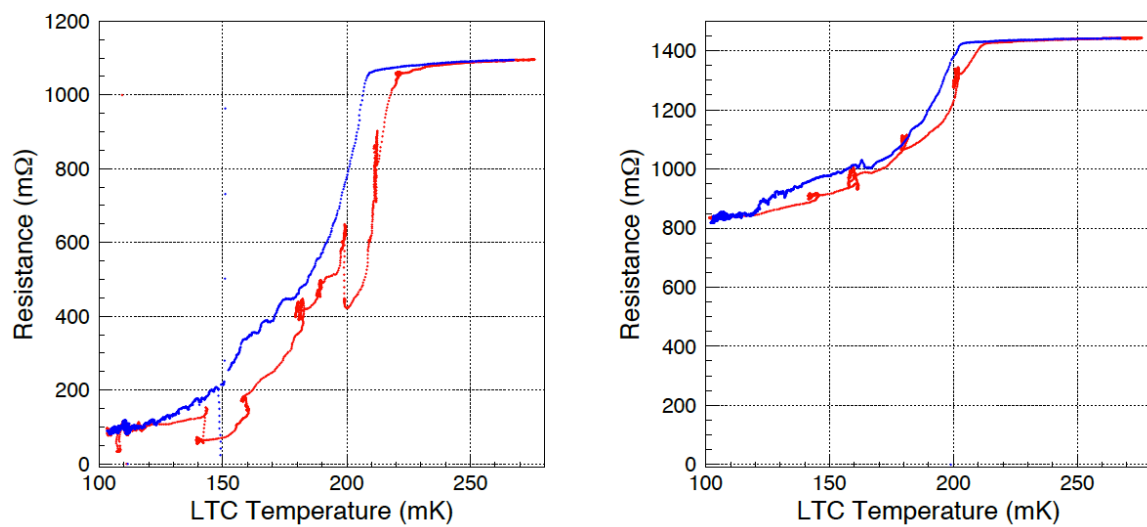


図 6.2: wafer 01 TES パターニング後の R-T 測定結果。左が pixel ID:1010、右が pixel ID:1901、赤が温度上昇時、青が温度下降時である。

表 6.3: wafer 01 パターニング後の上部、下部の配線抵抗比較。

| pixel ID: 1010      |           |                           |                            |
|---------------------|-----------|---------------------------|----------------------------|
| 測定箇所                | 転移温度 [mK] | 残留抵抗 [ $\text{m}\Omega$ ] | 常伝導抵抗 [ $\text{m}\Omega$ ] |
| 上部配線 PAD - 下部配線 PAD | 100~200   | 70                        | 1100                       |
| 上部配線 PAD - TES      | 225       | 33                        | 630                        |
| TES - 下部配線 PAD      | 転移せず      | -                         | 6.2 $\text{m}\Omega$ のまま一定 |
| pixel ID: 2019      |           |                           |                            |
| 測定箇所                | 転移温度 [mK] | 残留抵抗 [ $\text{m}\Omega$ ] | 常伝導抵抗 [ $\text{m}\Omega$ ] |
| 上部配線 PAD - 下部配線 PAD | 100~200   | 762                       | 1440                       |
| 上部配線 PAD - TES      | 100~200   | 320                       | 600                        |
| TES - 下部配線 PAD      | 転移せず      | -                         | 4.4 $\text{m}\Omega$ のまま一定 |
| pixel ID: 2002      |           |                           |                            |
| 測定箇所                | 転移温度 [mK] | 残留抵抗 [ $\text{m}\Omega$ ] | 常伝導抵抗 [ $\text{m}\Omega$ ] |
| 上部配線 PAD - 下部配線 PAD | 100~200   | 1250                      | 1430                       |
| 上部配線 PAD - TES      | 100~200   | 745                       | 900                        |
| TES - 下部配線 PAD      | 測定せず      |                           |                            |

## TMU 371(wafer 05)

窒化膜酸化膜付きのシリコンウェハに積層配線を乗せた本番基板。練習基板 wafer 01(TMU 370) と同条件下で TES 成膜以降のプロセスを進めたが、こちらはベタ膜での R-T 測定は行っていない。導通確認のため四隅のピクセルで R-T 測定を行った結果、正常な Al 転移を確認した (図 6.3 左)。金エッチング後の光学顕微鏡観察時、Al 配線にダメージが見られた。wafer 01 のエッチング後にエッチャントを使い回して使用したため、アルミ保護の二酸化リン酸アンモニウムが不足していたと考えられる。パターンニング後の R-T 測定の結果、転移は確認できず、常伝導抵抗も  $\sim 1 \Omega$  と高かった (図 6.3 右)。

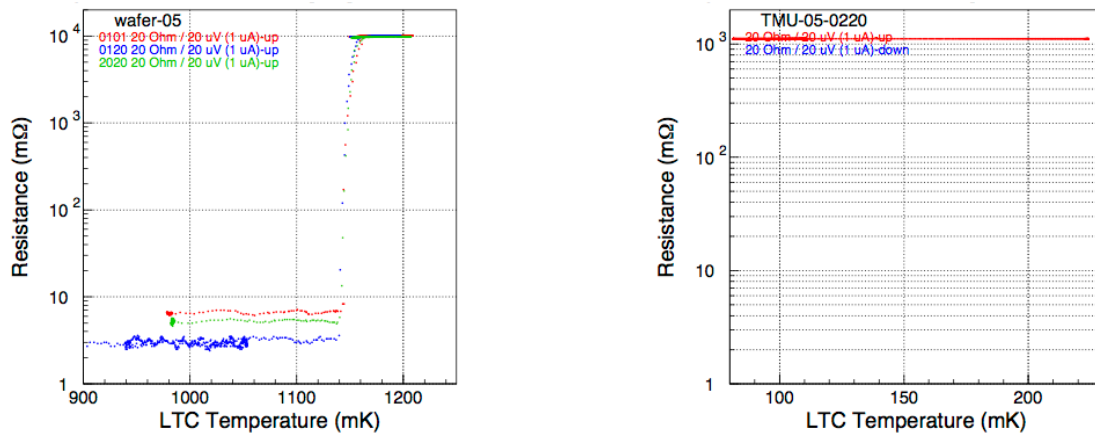


図 6.3: wafer 05 の R-T 測定結果。左: TES 成膜前の導通ピクセル、右: TES パターンニング後の pixel ID:0220。

TMU 370(wafer 01) と同じく上部配線 - TES、TES - 下部配線に切り分けて R-T 測定を行った結果、全てのピクセルで超伝導転移は見られなかった。上部配線 - TES 間の常伝導抵抗値は上部配線 - 下部配線の常伝導抵抗値の半分程度であった。TES - 下部配線の抵抗値は数  $m\Omega$  となり、こちらもアルミワイヤーが下部配線まで達している可能性がある。

表 6.4: wafer 05 パターンニング後の上部、下部の配線抵抗比較。  
pixel ID: 0504

| 測定箇所                | 転移温度 [mK] | 常伝導抵抗 [ $m\Omega$ ] |
|---------------------|-----------|---------------------|
| 上部配線 PAD - 下部配線 PAD | 転移せず      | 2000                |
| 上部配線 PAD - TES      | 転移せず      | 436 $m\Omega$ のまま一定 |
| TES - 下部配線 PAD      | 未測定       |                     |

pixel ID: 1010

| 測定箇所                | 転移温度 [mK] | 常伝導抵抗 [ $m\Omega$ ] |
|---------------------|-----------|---------------------|
| 上部配線 PAD - 下部配線 PAD | 転移せず      | 1790                |
| 上部配線 PAD - TES      | 測定せず      |                     |
| TES - 下部配線 PAD      | 転移せず      | 4 $m\Omega$ のまま一定   |

pixel ID: 1901

| 測定箇所                | 転移温度 [mK] | 常伝導抵抗 [ $m\Omega$ ] |
|---------------------|-----------|---------------------|
| 上部配線 PAD - 下部配線 PAD | 転移せず      | 1640                |
| 上部配線 PAD - TES      | 測定せず      |                     |
| TES - 下部配線 PAD      | 転移せず      | 6 $m\Omega$ のまま一定   |

### TMU 387 (wafer 02)

wafer 01 と同様、表面が酸化膜の練習用基板である。本番基板 wafer 06(TMU 389) と同条件下でプロセスを進めた。TES スパッタは膜厚  $\text{Ti}/\text{Au}=40/90\text{ nm}$  で行った。フォトリソグラフィー後に端の部分にレジストが少し残ってしまった。NMD-3 による現像は 315 秒行った。金エッチングを前回の膜厚 (110 nm) と勘違いし、52 秒行ってしまった。また、保護用の二酸化リン酸アンモニウムが完全に溶けきらず残っていた。そのため、金エッチング後に SEM で観察したところ上部配線がダメージを受けており、一部ピクセルには水滴のようなものが見られた。R-T 測定は行わなかった。

### TMU 389 (wafer 06)

窒化膜酸化膜付きシリコンウェハに配線構造を製作した本番基板の 1 枚で、cycle 1(wafer 01~05) とはレジストリフローの条件を変更している。練習基板 wafer 02(TMU 387) と同条件下でプロセスを進めた。

冷凍機にて R-T 測定をした結果、測定したすべてのピクセルで転移は見られなかったが、常伝導抵抗が  $\sim 300\text{ m}\Omega$  と改善できた。

### TMU 393 (wafer 03)

wafer 01, 02 と同様、表面が酸化膜の練習用基板。本番基板 wafer 07(TMU 394) と同条件下でプロセスを進めた。

これまでの素子で超伝導転移を確認できていないので、wafer 03, 07 では主に TES の転移を確認する事を目的とし、目標転移温度を引き上げ膜厚を  $\text{Ti}/\text{Au}=40/70\text{ nm}$  とした。過去の条件出しから、膜厚  $\text{Ti}/\text{Au}=40/70\text{ nm}$  での予想転移温度は  $T_c \sim 237\text{ mK}$  である。

金エッチング時のレジストフォトリソグラフィーにおいて、NMD-3 による現像でパターンが流れてしまったため三度やり直し、最後の現像は 261 秒行なった。現像後に SEM で観察したところ、完全に抜けているピクセルが 1 つと、コンタクトホールが何箇所か抜けていたが 9 割以上残っていたので、以降のプロセスを進めた。金エッチングはエッチングレート  $2.2\text{ nm/sec}$  に従い、32 秒行った。wafer 03 はプロセス確認用素子のため、Ti エッチング後のプロセスは行っていない。

### TMU 394(wafer 07)

窒化膜酸化膜付きシリコンウェハに配線構造を製作した本番基板の 1 枚で、cycle 1(wafer 01~05) とはレジストリフローの条件を変更している。練習基板 wafer 03(TMU 393) と同条件下でプロセスを進めた。

こちらも金エッチング時のレジストフォトリソグラフィーにおいて、NMD-3 による現像でパターンが流れてしまったため三度やり直し、最後の現像は 167 秒行なった。金エッチング後に基板の端の部分にレジストのようなものが残っていたが、Ti エッチング後に洗浄し SEM で観察したところ、レジストの残りは確認できなかった。また、一部配線にダメージが見られた。

冷凍機にて R-T 測定をした結果、常伝導抵抗は  $\sim 400\text{ m}\Omega$  となった。 $\sim 1.2\text{ K}$  での Al 転移は確認できたが、TES の超伝導転移は確認できなかった。

## 6.3.1 wafer 01~07 の R-T 測定結果まとめ

- wafer 01 以外の素子で超伝導転移が確認できず、唯一転移した wafer 01 でもパターンニング後は転移幅  $\sim 100$  mK 近いガラガラとした転移特性であった。
- 上部配線 PAD - TES 間の R-T 測定を行ったところ、上部配線 PAD - 下部配線 PAD 間の抵抗値の約半分の値であった。
- TES - 下部配線 PAD 間の R-T 測定も行ったが、数  $\text{m}\Omega$  という低い値のまま転移は確認できなかった。
- wafer 01, 05 では  $1\sim 2\ \Omega$  と高かった常伝導抵抗が、wafer 02, 06 以降は低い値に改善できた。

予想されていた転移温度を十分下回っていながらも超伝導転移しなかった原因を究明する必要がある。なお、この予想転移温度は、配線加工していない窒化膜酸化膜付きシリコンウェハに膜付けした TES の条件出しから導出している。

| 基板 ID            | Ti/Au[nm] | 基板表面                    | 超伝導転移                | 最低到達温度 [mK] | 常伝導抵抗 [ $\text{m}\Omega$ ] |
|------------------|-----------|-------------------------|----------------------|-------------|----------------------------|
| wafer 01(TMU370) | 40/110    | $\text{SiO}_2$          | $T_c=100\sim 200$ mK | 80          | 1000 $\sim$ 2000           |
| wafer 02(TMU387) | 40/90     | $\text{SiO}_2$          | 無し                   | 133         | 102.1                      |
| wafer 03(TMU393) | 40/70     | $\text{SiO}_2$          | 未測定                  |             |                            |
| wafer 05(TMU371) | 40/110    | $\text{Si}_3\text{N}_4$ | 無し                   | 81          | 1000 $\sim$ 2000           |
| wafer 06(TMU389) | 40/90     | $\text{Si}_3\text{N}_4$ | 無し                   | 112         | 200 $\sim$ 580             |
| wafer 07(TMU394) | 40/70     | $\text{Si}_3\text{N}_4$ | 無し                   | 92          | 340                        |

表 6.5: 2014 年度製作基板まとめ

## 6.4 断面観察

cycle1(wafer 01~05) で常伝導抵抗、残留抵抗、転移温度がいずれも要求値を満たさなかったことを受け、FIB-SEM を用いて wafer 01 と wafer 05 の断面を観察しその原因を探った。使用した装置は理化学研究所のナノサイエンス研究棟 CR 内にある Hitachi NB5000 である。観察位置は

- TES テーパー部 (上部配線パッド側)
- TES 中央部 (ボンディング痕)
- TES テーパー部 (コンタクトホール側)
- コンタクトホールテーパー部

の 4 箇所である (図 6.4)。また、上部配線 PAD 側 TES テーパー部、TES 中央部に関しては EDS(Energy Dispersive X-ray Spectrometer) による元素分析も行なった。

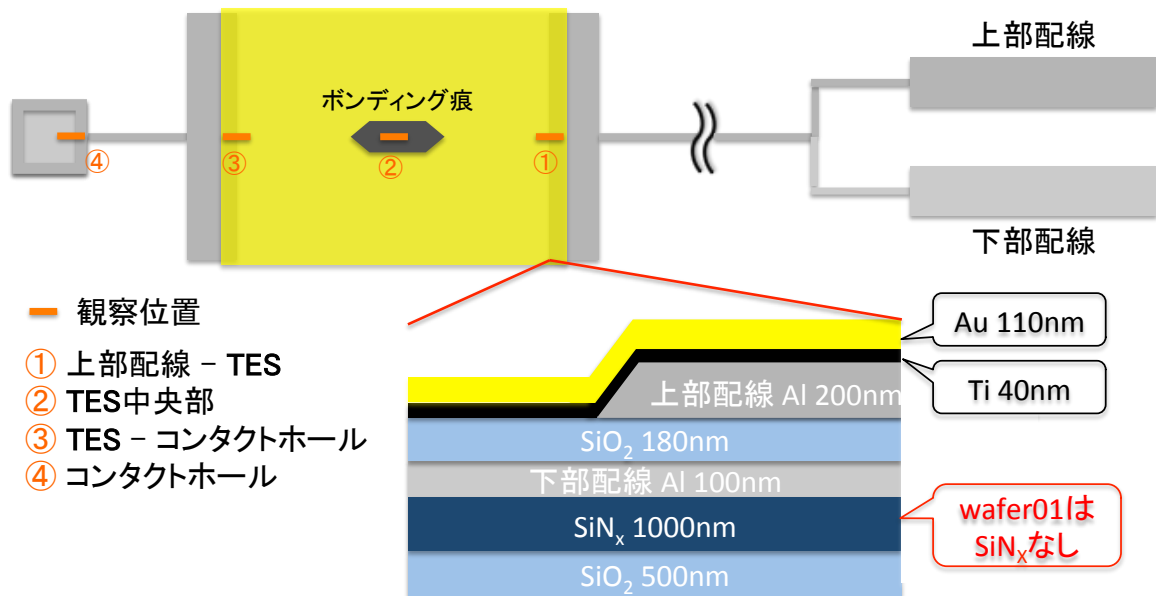


図 6.4: FIB-SEM による断面観察の測定位置。

### TMU 370 (wafer 01)

中央付近のピクセル (pixel ID:1010) の断面を観察した。素子の断面観察の前に SEM でピクセル全体を撮影した。TES テーパー部 (パッド側) の断面を見ると傾斜角が大きく、チタンと金が薄くなっていることを確認できる。(図 6.4)

ボンディング痕を見る限りチタンと金は剥離しているように見える。おそらくアルミ線を除去したときに一緒に剥がれてしまった物と思われる。元素分析を見ると下部配線 Al の上の酸化膜まで無くなっているように見える。

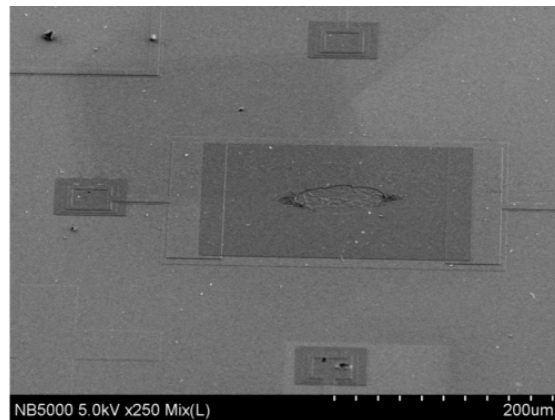


図 6.5: wafer 01 pixel ID:1010 のピクセル全体の SEM 画像。  
中心部分の窪みがボンディング痕。

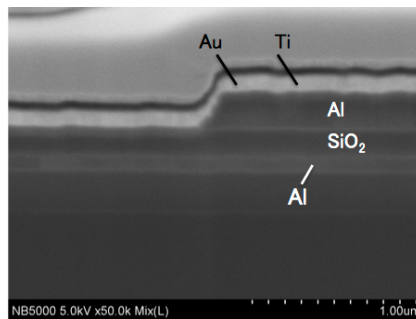
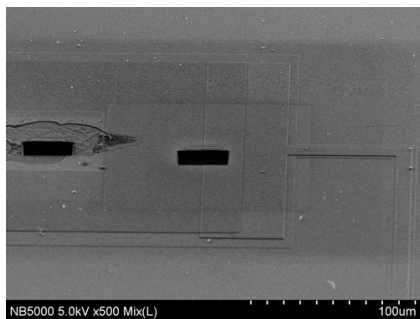


図 6.6: 上部配線 PAD 側の TES のテーパ断面図。傾斜角が大きく、チタンと金が薄くなっていることを確認できる。



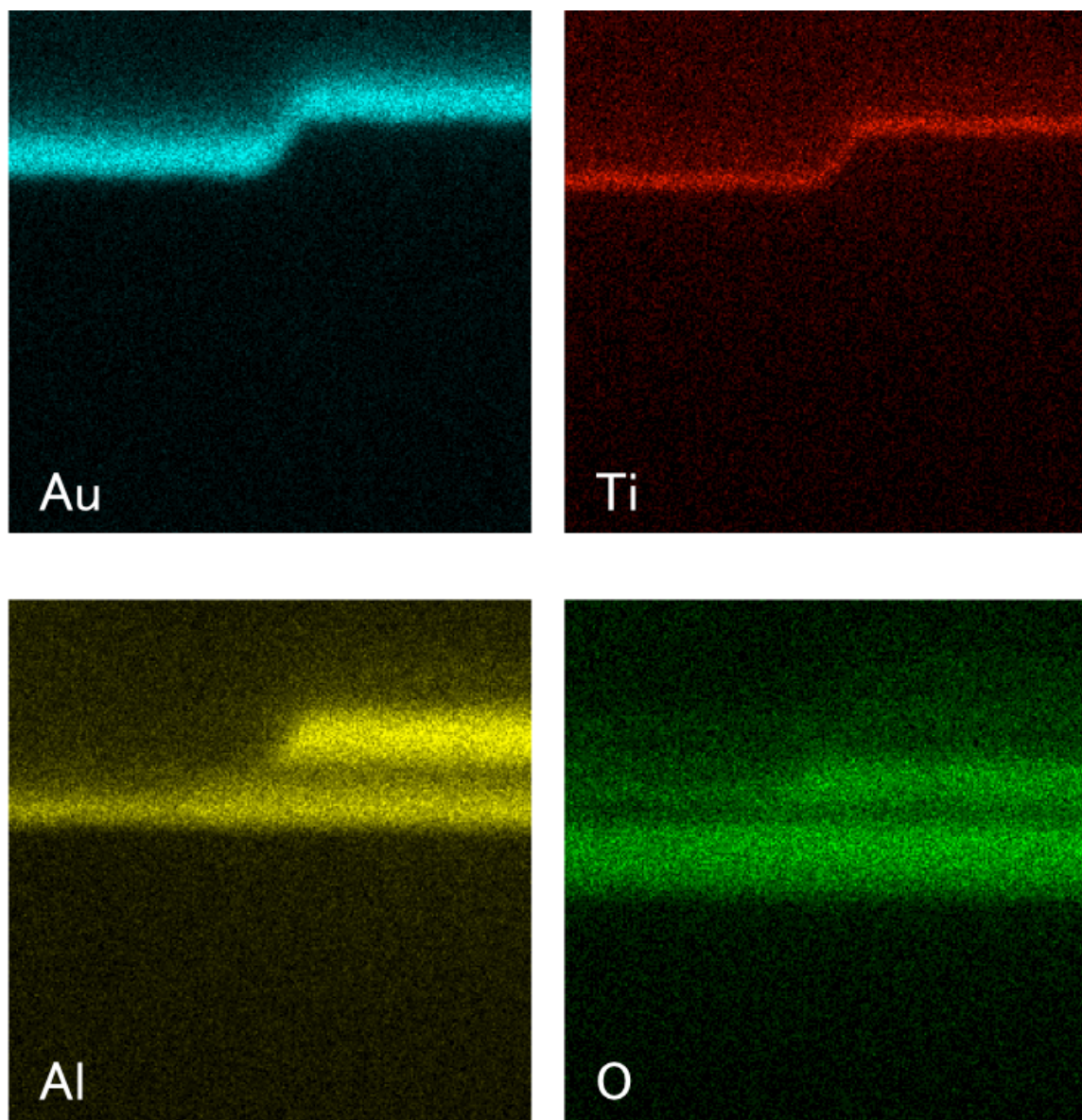


図 6.7: 上部配線 PAD 側の TES のテーパー断面の元素分析。傾斜の部分でチタンがかなり薄くなっている。



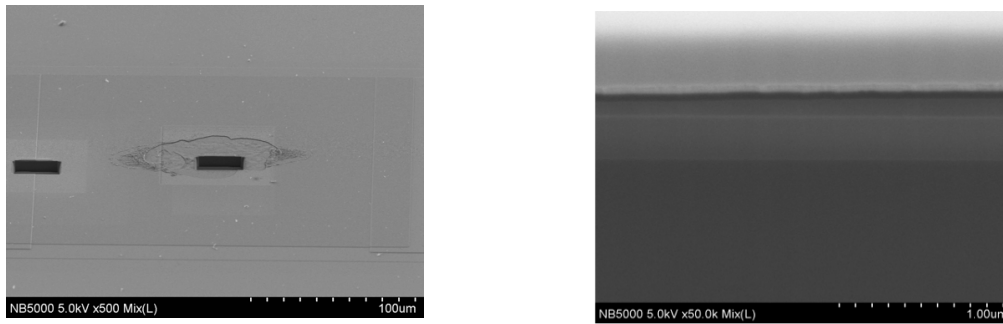


図 6.8: TES 中央部 (ボンディング痕) の断面図。チタン金が無くなっているように見える。

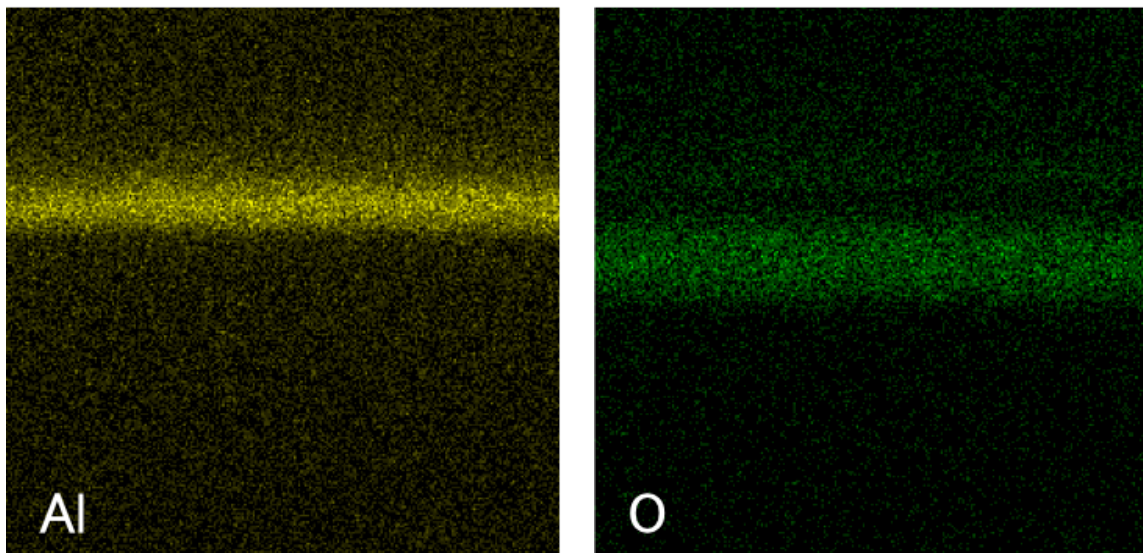


図 6.9: TES 中央部 (ボンディング痕) の断面の元素分析。下部配線 Al の上から酸化膜が無くなっているように見える。

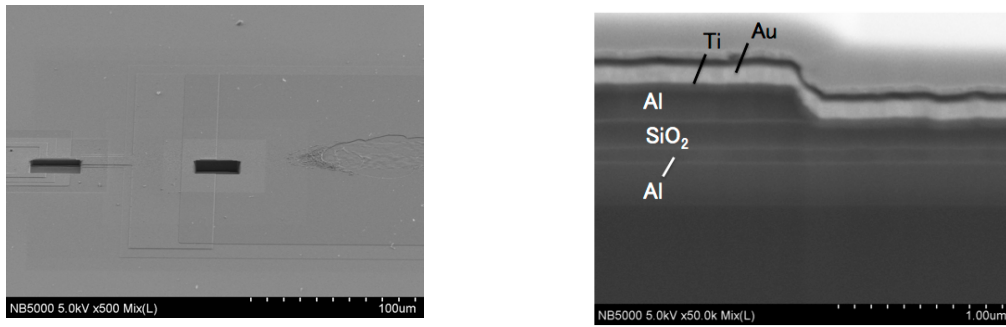


図 6.10: コンタクトホール側の TES のテーパー断面図。

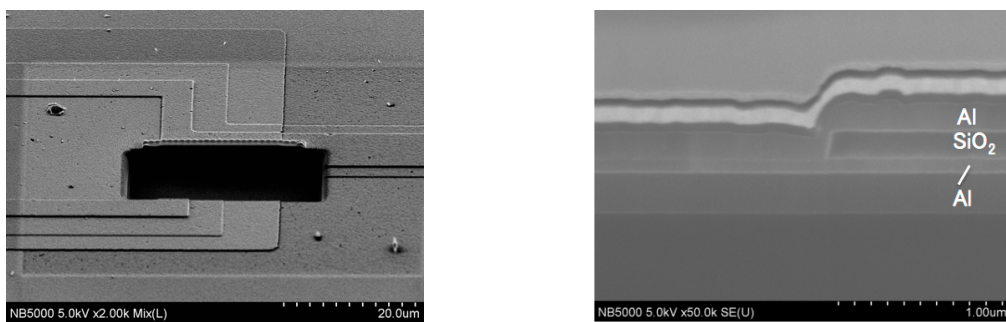


図 6.11: コンタクトホールの断面図。

## TMU 371 (wafer 05)

基板中央付近のピクセル (pixel ID: 1010) の断面を観察した。wafer 01 と同様に素子の断面観察の前に SEM でピクセル全体を撮影した。こちらもテーパーの傾斜角が大きく、チタンと金が薄くなっていることを確認できる。また、ボンディング痕のチタンと金が剥離しているように見える。

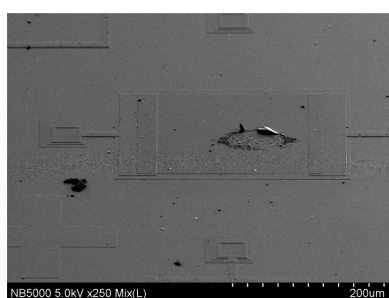


図 6.12: wafer 05 pixel ID: 1010 のピクセル全体の SEM 画像。

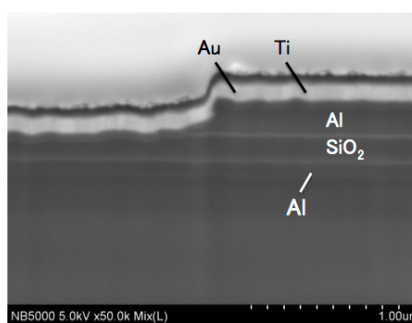
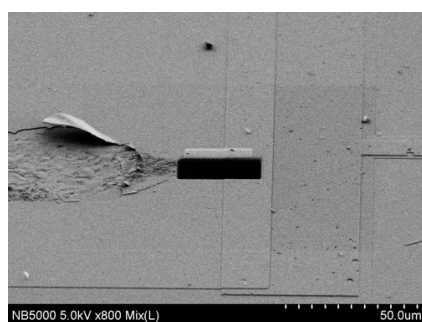


図 6.13: 上部配線 PAD 側の TES テーパー断面。傾斜角が大きく、一様でないことを確認できる。

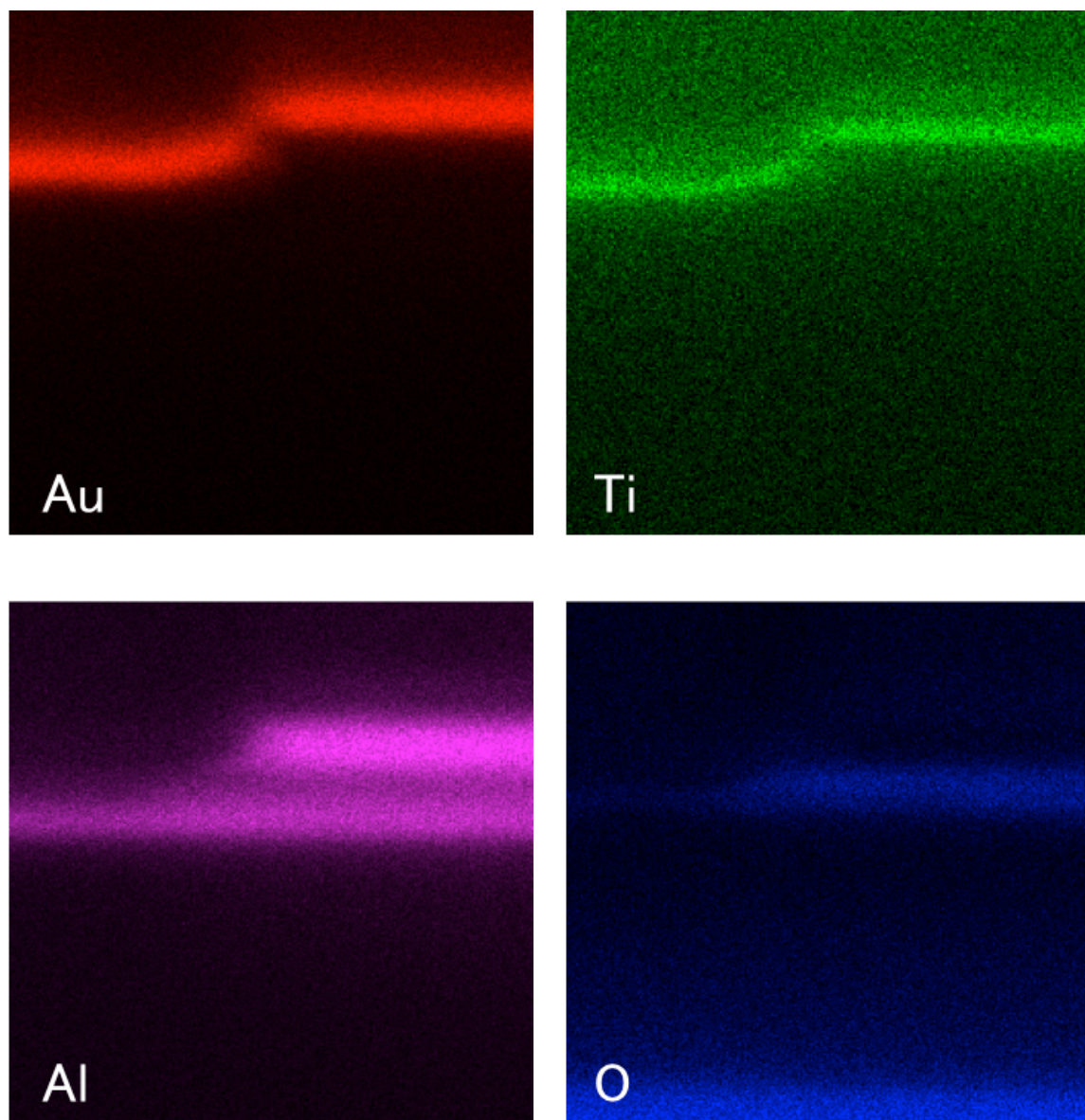


図 6.14: 上部配線 PAD 側の TES テーパー断面の元素分析の結果。チタン、金が段切れ気味か。

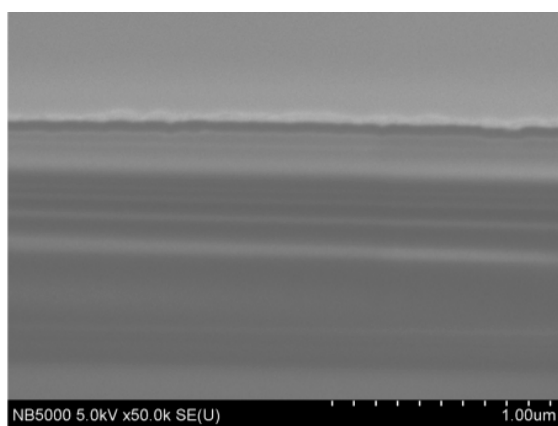


図 6.15: TES 中央部の断面を FIB-SEM で観察。

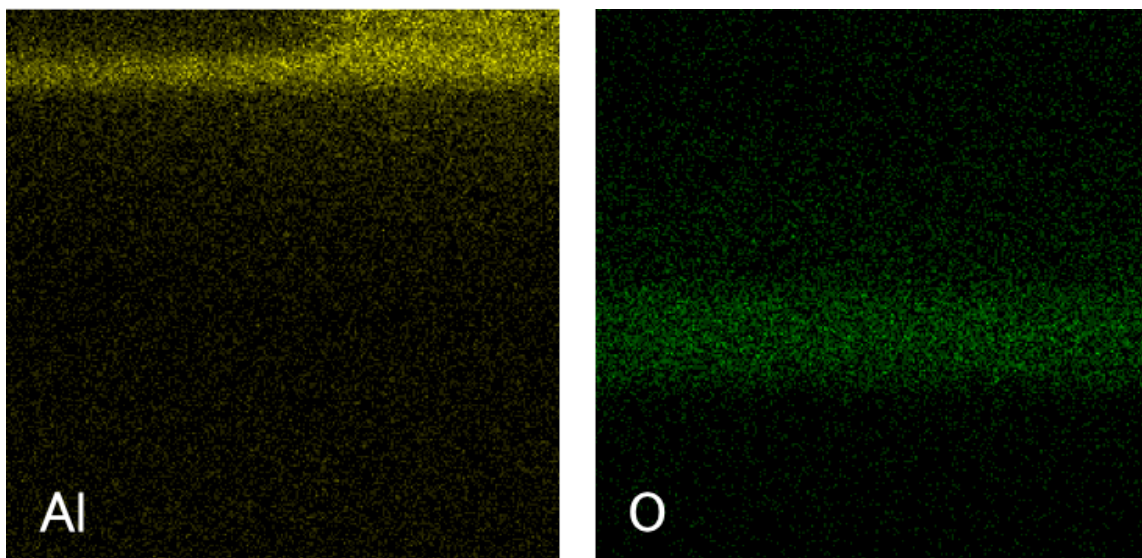


図 6.16: TES 中央部の断面の元素分析の結果。



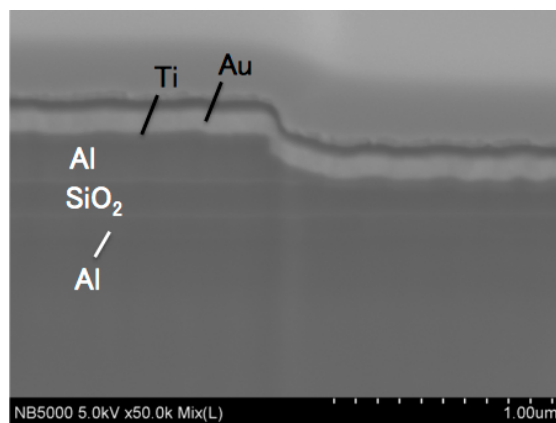


図 6.17: コンタクトホール側の TES テーパー断面を FIB-SEM で観察。

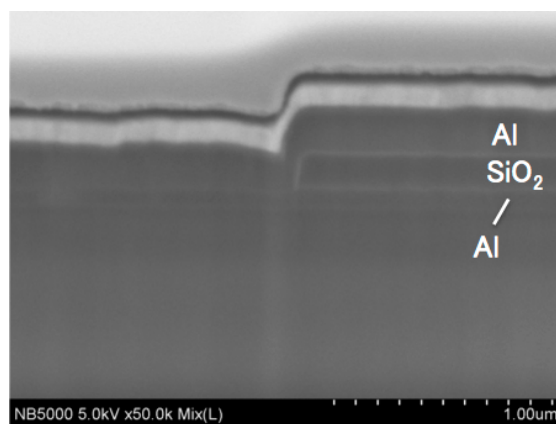


図 6.18: コンタクトホールの断面を FIB-SEM で観察。

#### 6.4.1 断面観察のまとめ

- 上部配線 PAD 側の TES テーパーの傾斜角が急である。

wafer 01, 05 とともに上部配線 PAD 側の TES テーパー角が急で、チタン金ともに薄くなっていることがわかった。これが原因で転移特性が悪くなり、常伝導抵抗値、残留抵抗値が高くなっていると考えられる。

- 配線表面の酸化膜は除去できている。

上部配線とチタンの間に酸化膜がないことから、逆スパッタによって酸化膜が除去されている。

- ボンディング痕はチタン、金が剥がれている。

ワイヤーボンディングが下部配線 Al まで達している可能性あり、TES - 下部配線 PAD 間の抵抗値が測定できない原因かもしれない。しかし、ワイヤーを取ったときに剥がれた可能性もあるので、今回の観察では特定できない。

### 6.5 原子間力顕微鏡 (AFM) 観察

#### 6.5.1 wafer 08

wafer 08(イオンミリング後、TES スパッタ前) を宇宙研の原子間力顕微鏡 (AFM; Atomic Force Microscope) で観察し、レジストリフローの条件変更後の傾斜角を確認を行った。測定箇所は中心付近の pixel の左右パッドと基板端付近の pixel の左右パッドの合計 4 箇所である。結果を図 6.19, 6.20 に示す。傾斜角が  $\sim 45^\circ$  でゆるやかに形成されていることが確認できる。この結果から、傾斜付き積層配線素子での傾斜角の問題は解決できたと思われる。しかし、配線表面や酸化膜表面に数十 nm はありそうなブツブツした突起が確認できた。TES 薄膜の厚みは数十 nm オーダーで転移温度を調節しているため、この突起が転移に悪影響を及ぼす可能性は大いに考えられる。

また、図 6.20 に示すように wafer 08 の光学顕微鏡による観察で、配線表面や絶縁膜  $\text{SiO}_2$  上に汚れが目立った。こちらは洗浄 (アセトン  $\rightarrow$  IPA  $\rightarrow$  純粋) を 2 回行ったが取り除くことができず、TES の実効的な膜厚を変化させている可能性がある。上部配線のスパッタ中の異常放電によりできたと思われる。



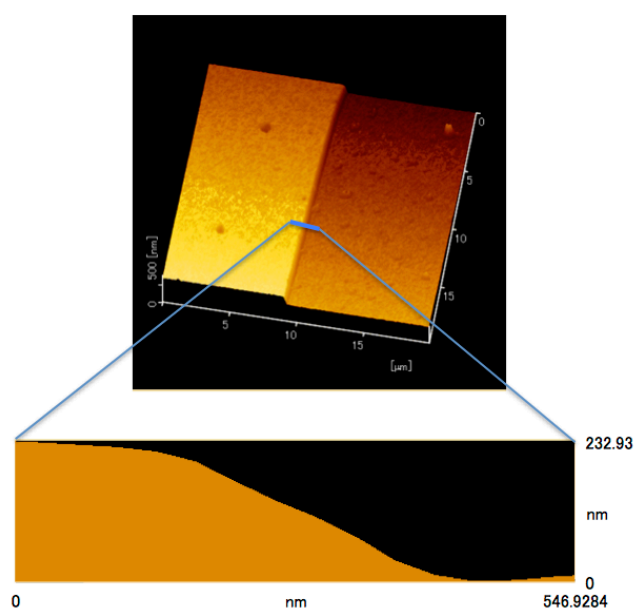
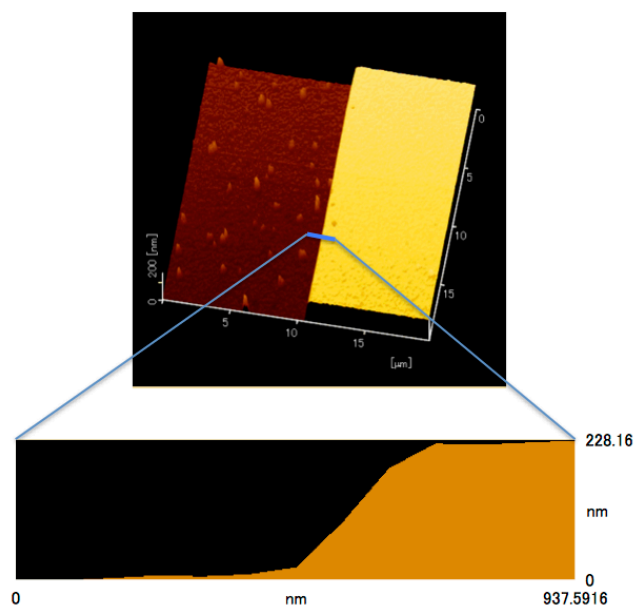


図 6.19: wafer 08 中心付近 pixel のアルミ配線傾斜の AFM 観察結果。低い部分が TES 下地となる絶縁膜表面、段差の高い部分が上部配線で、間の傾斜がきちんと  $\sim 45^\circ$  程度ついていることが確認できる。

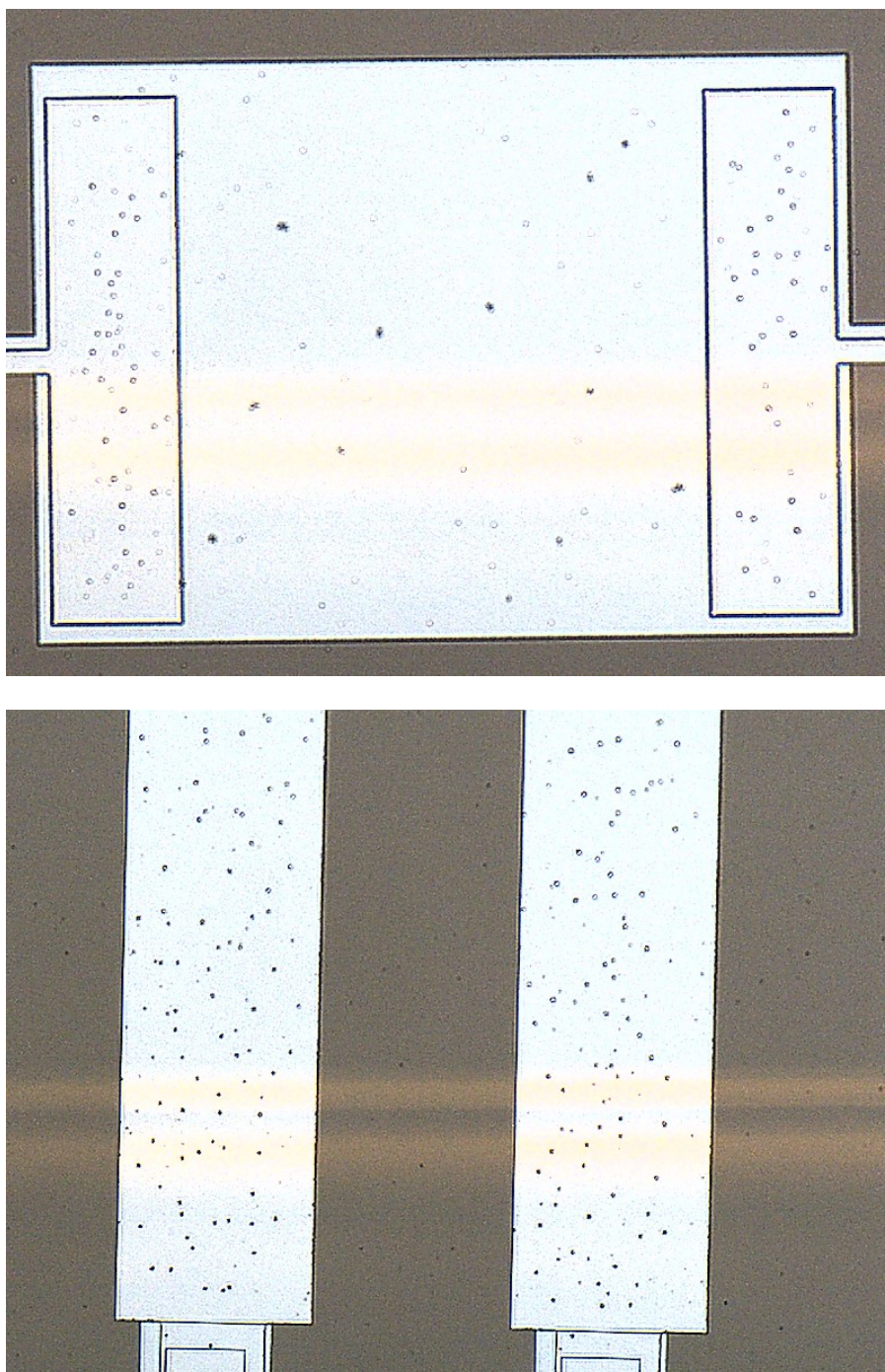


図 6.20: wafer 08 の光学顕微鏡による観察。上図がピクセル、下図がパッド部分。

## 6.6 転移温度条件出し

以前の条件出しから予想した転移温度で積層配線 TES が転移しないので、膜厚比と転移温度の条件出しを再度行った。2 cm 角の  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上に金、チタンを成膜したものを冷凍機にて冷却し、R-T 測定を行った。今回はチタンの膜厚を 40 nm で固定し、金の膜厚 70、80、100 nm の 3 種類を製作した。

R-T 測定の結果、

- 金 70 nm  $\rightarrow T_c \sim 237$  mK
- 金 80 nm  $\rightarrow T_c \sim 225$  mK
- 金 100 nm  $\rightarrow T_c \sim 167$  mK

となり、過去の条件だしに近い値になった。

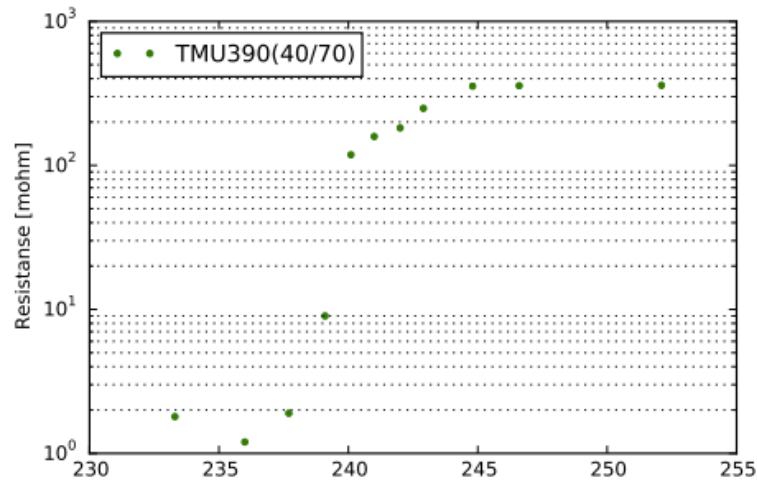


図 6.21: TMU390(Ti/Au = 40/70 nm) の R-T 測定の結果。

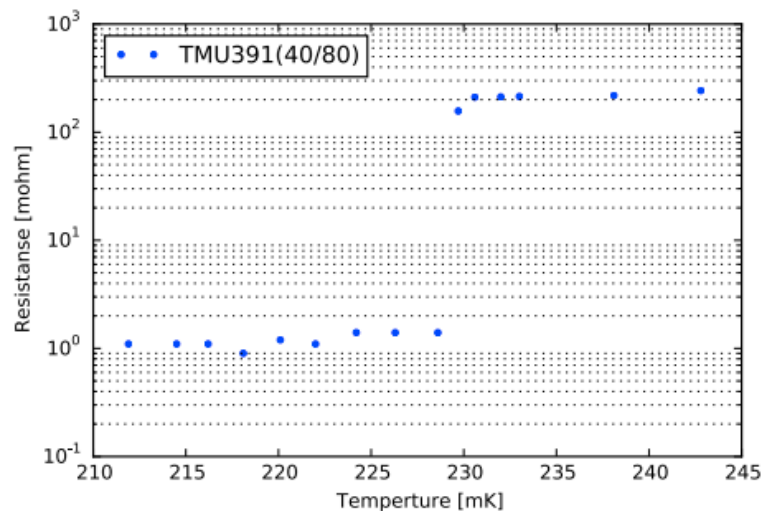


図 6.22: TMU391(Ti/Au = 40/80 nm) の R-T 測定の結果。

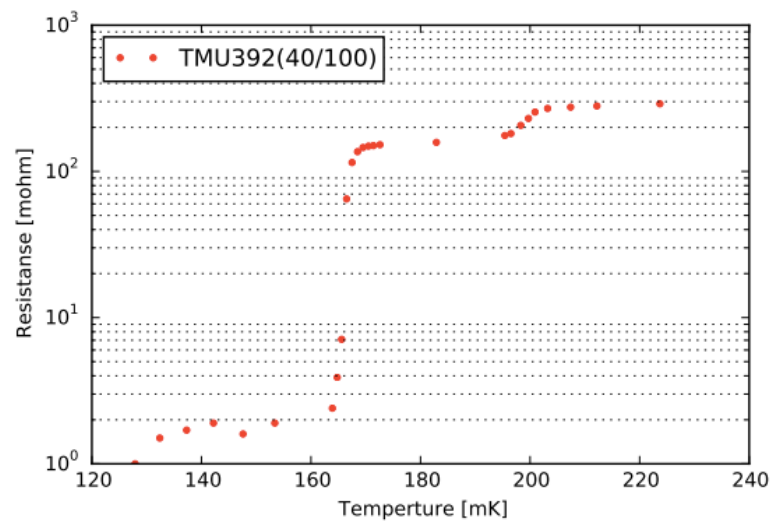


図 6.23: TMU392(Ti/Au = 40/100 nm) の R-T 測定の結果。

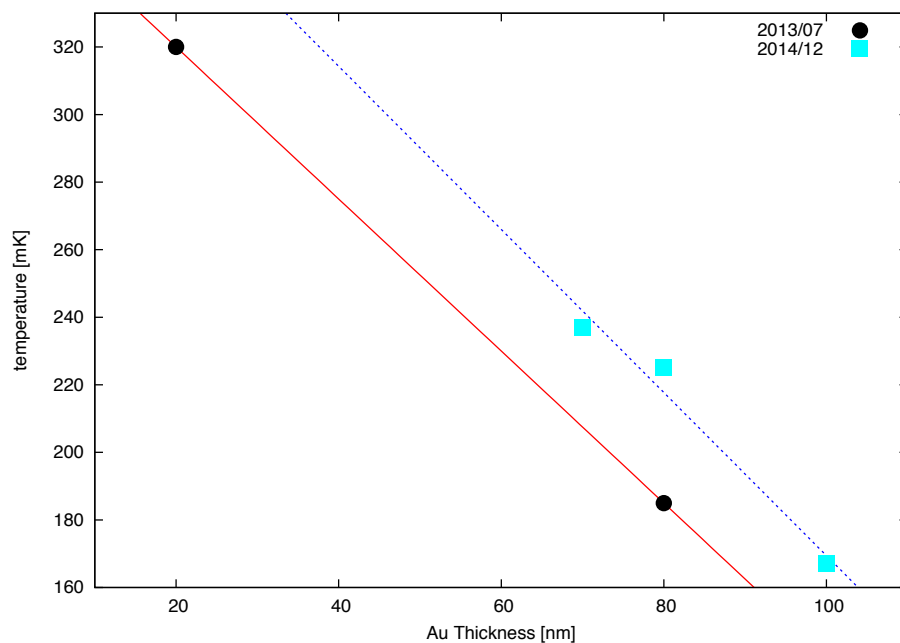


図 6.24: チタンの厚みを 40 nm に固定した時の金の厚みと転移温度  $T_c$  の関係。黒色丸が 2013 年 7 月、青色四角が 2014 年 12 月の条件だしの結果である。



## 第7章 表面粗さ改善積層配線素子

### 7.1 表面粗さ

宇宙研 AFM による wafer 08 の傾斜観察時、TES 表面に数十 nm の凹凸が確認できた。TES では超伝導薄膜を数十 nm の膜厚に設定する事で転移温度を調整しているため、この凹凸が転移特性や転移温度に悪影響を引き起こしている可能性が考えられる。先行研究 [7] によると、超伝導 - 常伝導の二層薄膜において超伝導薄膜表面が極度に荒れている場合、平坦な薄膜に比べて転移温度が低くなるとある。

$$\frac{\Delta T_c}{T_c} = -\frac{\gamma^2 \pi^2}{4} \frac{\xi^2(0)}{d^2} \quad (7.1)$$

チタンと金の界面が荒れていたために TES の転移温度が冷凍機の最低到達温度を下回り、R-T 測定で転移を確認できなかったというのは十分考えられる。チタンを膜付けする下地部分の表面粗さを改善する必要がある。

### 7.2 Al 配線構造再現基板

TES pixel 部の下地の絶縁膜 TEOS-SiO<sub>2</sub> の表面粗さが悪くなる原因は配線構造の成膜にあるのかエッチングにあるのかを特定する必要がある。検証のためシリコン基板の上に下部配線、絶縁膜、TES をスパッタして R-T 測定を行ない、 $T_c$  の条件出しを行なった。なお、通常の転移温度の条件出しでは窒化膜酸化膜つきシリコン基板上に TES べた膜を成膜し、冷凍機での R-T 測定を行なっている。

ベアシリコン基板に Al 薄膜 100 nm を成膜後、下部配線パターニングを行なう事無く絶縁層 (TEOS-SiO<sub>2</sub>)180 nm を成膜した基板 (TEOS-SiO<sub>2</sub>/Al/Si) と、ベアシリコン基板に絶縁膜 (TEOS-SiO<sub>2</sub>)180 nm のみを成膜した基板 (TEOS-SiO<sub>2</sub>/Si) とを用意した。産総研では cycle 1 として 3 月 4 日に 3 枚ずつ製作し、cycle 2 として 3 月 20 日に 3 枚ずつ製作して首都大に搬送した。この pixel 再現基板に、

1. AFM で表面粗さを観察
2. スパッタリング法で Ti/Au 薄膜を成膜
3. べた膜状態での R-T 測定

を行なった。

これらのプロセスは、TEOS-SiO<sub>2</sub>/Al/Si 構造の基板と TEOS-SiO<sub>2</sub>/Si 構造の基板をそれぞれ 1 枚ずつ、同条件下で製作を進めた。

#### 7.2.1 $T_c$ 条件出し (TMU 398~401, 418, 419)

TEOS-SiO<sub>2</sub>/Al/Si 基板は合計 4 枚、TEOS-SiO<sub>2</sub>/Si 基板は合計 2 枚製作した。4 月頃、各 2 枚の基板を製作し R-T 測定を行なったところ、TEOS-SiO<sub>2</sub>/Al/Si 基板の TES はどちらも転移せず TEOS-SiO<sub>2</sub>/Si 基板の TES はどちらも転移した。このときの TEOS-SiO<sub>2</sub>/Al/Si 基板の TES はどちらも常伝導抵抗

100~300 m $\Omega$  のままで、温度を上げてても急激な温度変化は見られなかった。しかし、7 月頃に再び製作した cycle 2 TEOS-SiO<sub>2</sub>/Al/Si 基板 2 枚ではどちらも転移を確認できた。これは、cycle 1 基板製作時に産総研のアルミスパッタ装置が不調だった事や首都大での TES スパッタ技術が未熟だった事が原因と思われる。

転移した 4 枚の基板の膜厚と転移温度の関係をみると、今年 4 月や昨年 12 月、2013 年 7 月に行なった条件出しの結果と大きな違いは見られない。よって、積層配線にしたとき転移が確認できない原因は、成膜プロセスではなくエッチングプロセスにあると思われる。

表 7.1: 下部 Al 薄膜 R-T 測定まとめ

| 基板 ID  | 基板構造                         | TES 成膜日 | Ti/Au の膜厚 | 転移温度 $T_c$ [mK] |
|--------|------------------------------|---------|-----------|-----------------|
| TMU399 | TEOS-SiO <sub>2</sub> /Si    | 4/18    | 40/100    | ~170            |
| TMU400 | TEOS-SiO <sub>2</sub> /Si    | 4/25    | 40/100    | ~170            |
| TMU398 | TEOS-SiO <sub>2</sub> /Al/Si | 4/18    | 40/100    | ×               |
| TMU401 | TEOS-SiO <sub>2</sub> /Al/Si | 4/27    | 40/100    | ×               |
| TMU418 | TEOS-SiO <sub>2</sub> /Al/Si | 7/11    | 40/80     | ~200            |
| TMU419 | TEOS-SiO <sub>2</sub> /Al/Si | 7/12    | 40/120    | ~150            |

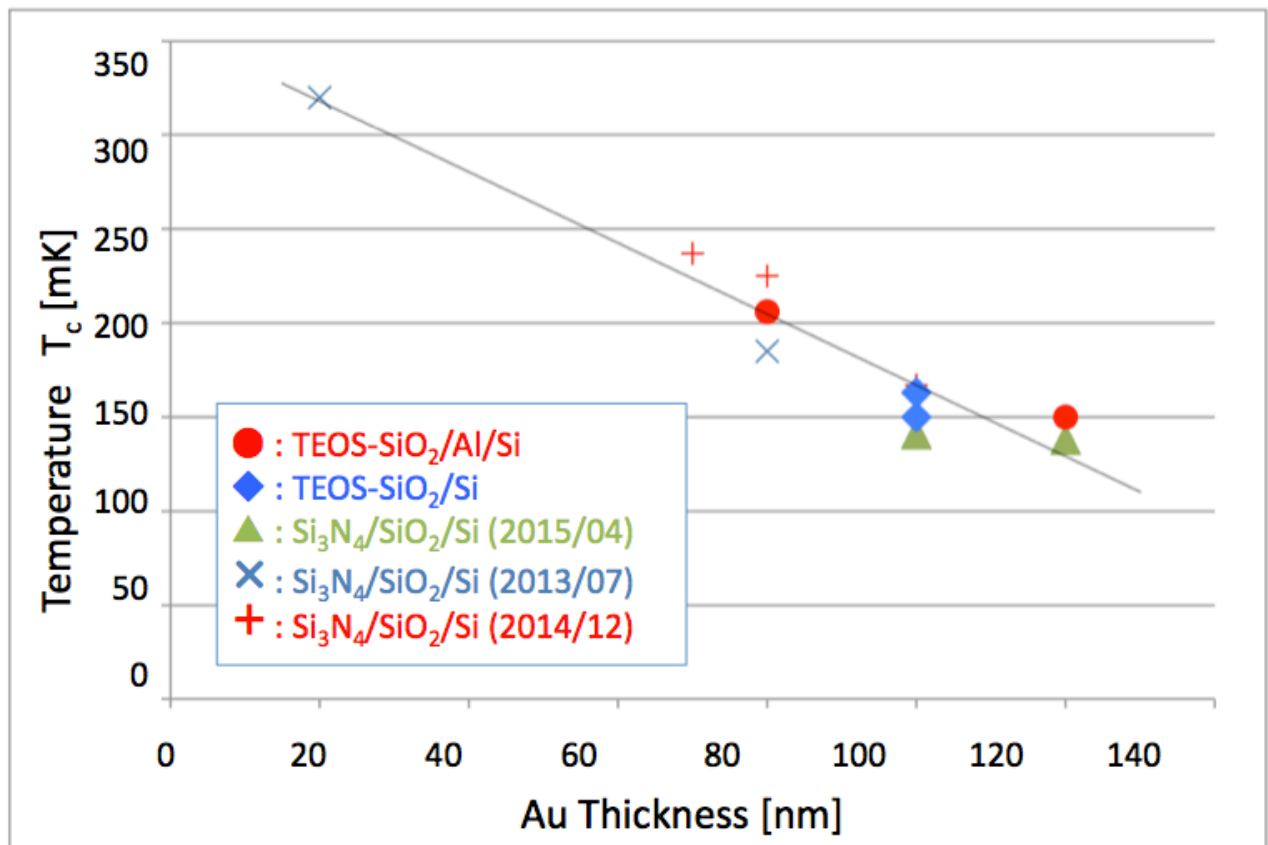


図 7.1:  $T_c$  条件出し。直線は全ての点で線形近似を行ったもの。



## 7.3 レジスト溶液変更

wafer 07 や wafer 08 の基板表面に視認できるほどの大きさの点状の汚れが転移を妨げている可能性があるため、これを改善した。汚れは配線外の酸化膜上にも確認できたが上部配線の上に特に多く確認されたため、上部配線のエッチング行程に原因があると考えた。

これまで配線構造製作時は産総研所有のレジスト PFI-68 を使用していたが、レジストリフローの際にレジストがこびりついてしまい、エッチング後に何度も洗浄することがあった。これを解消するため、宇宙研所有のレジスト S1818G を産総研に送り、上部配線エッチング時にはこちらを使用してもらった。S1818G は PFI-68 に比べて粘度がゆるく、リフローによる焦げ付きも起こりにくいのではないかと考えた。

### 7.3.1 リフロープロセス最適化 (wafer09~13)

wafer 09~11 はレジストリフローの最適化を行なったため基板表面が少し汚れている。また、wafer 12,13 は下部配線でもレジストリフローと 45° イオンミリングを行なっている。

レジスト変更前の wafer 08 と変更後の wafer 13 を比べてみると表面のブツブツとした汚れが減少していることがわかる。wafer 13 の画像は keyence 社製 VHX-5000 で撮影したもので、上 2 枚が明視野、下 2 枚が暗視野である。汚れの改善が確認できたので、wafer 13 以降の積層配線基板もこの S1818G レジストを用いる事とした。

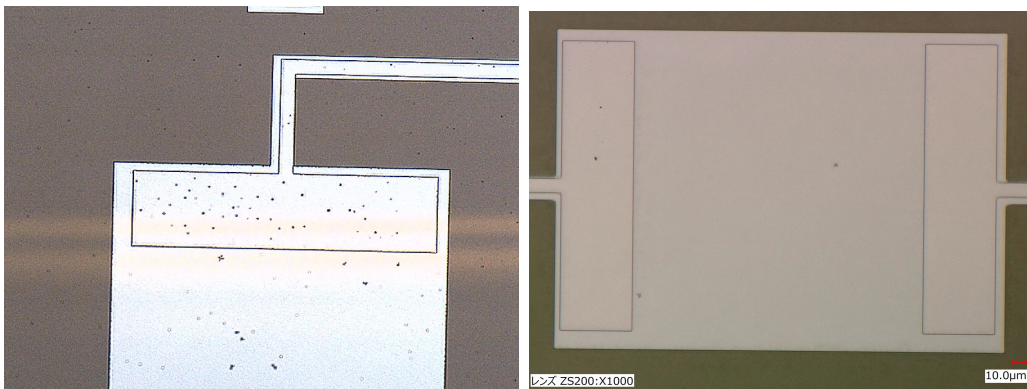


図 7.2: アルミ配線の光学顕微鏡観察。左: wafer 08(変更前)、右: wafer13(変更後)。レジスト変更後汚れが減少している。

## 7.4 ニオブ配線素子

これまで配線の素材をアルミニウムに採用していた理由は、ニオブよりも粒径が小さいのでデポジット後の表面の粗さもより良いものになると予想したからである。しかし、デポジット後の表面粗さよりもエッチング後の粗さを重視するべきだとわかった以上、これを見直す必要がある。

産総研ではアルミのエッチングにはイオンミリング法を用いているが、ニオブのエッチングには  $\text{SF}_6$  ガスを用いた RIE 法を用いている。 $\text{SF}_6$  ガスは  $\text{SiO}_2$  と反応しにくいいため、ニオブに比べて絶縁膜のエッチングレートは著しく低くなり、絶縁膜をオーバーエッチングしても表面が荒れにくい。

### 7.4.1 Nb 配線構造再現基板

Al と同様、TES pixel 部の下地の配線構造を再現した基板を製作した。より配線構造を再現するため、今回は窒化膜酸化膜付きのシリコン基板の上に Nb 薄膜 100 nm を成膜後、下部配線パターニングを行なう事無く絶縁層 (TEOS- $\text{SiO}_2$ ) 180 nm を成膜した基板を用意した。産総研ダイシングソーで一枚の基板から 2 cm 角の素子 4 枚を切り出したものを首都大に配送した。この時切り出した 2cm 角の素子の外側のあまりの部分も条件出しに使用した。宇宙研 AFM にて表面粗さを測定し、首都大スパッタ装置で TES 薄膜 (Ti/Au) をスパッタした。R-T 測定はベタ膜状態で行なった。なお、素子番号 1, 2, 3 は TES スパッタ後に基板の端部分にて粗さ測定を行ったので実際より悪い値が出ている。

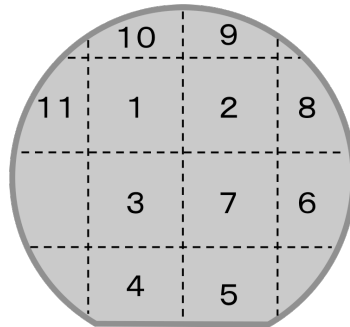


図 7.3: ニオブ条件出しに使用した素子番号。

表 7.2: 下部 Nb 薄膜 R-T 測定まとめ。

| 基板 ID  | 素子番号 | 表面粗さ (RMS) [nm] | TES 成膜日   | Ti/Au の膜厚 [nm] | 転移温度 $T_c$ [mK] |
|--------|------|-----------------|-----------|----------------|-----------------|
| TMU408 | 1    | 1.39            | 2015/6/8  | 40/100         | $\leq 110$      |
| TMU409 | 2    | 1.88            | 2015/6/9  | 40/80          | 230             |
| TMU410 | 3    | 2.47            | 2015/6/9  | 40/70          | 285             |
| TMU411 | 4    | 0.43            | 2015/6/16 | 40/90          | $\leq 104$      |
| TMU412 | 5    | 0.37            | 2015/6/18 | 40/100         | 222             |
| TMU413 | 7    | 0.86            | 2015/6/18 | 50/100         | 285             |
| TMU414 | 8    | 0.70            | 2015/6/25 | 50/150         | 175             |
| TMU415 | 9    | 0.58            | 2015/6/26 | 50/125         | 267             |
| TMU416 | 10   | 0.65            | 2015/6/26 | 40/120         | $\leq 96.2$     |

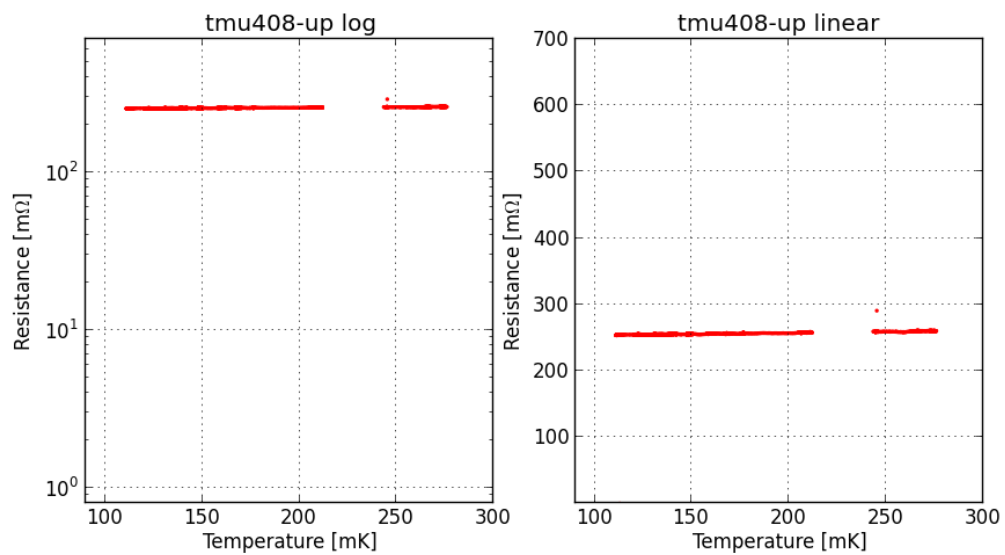


図 7.4: TMU 408 R-T 図。転移が確認できなかったため温度上昇時のみ。

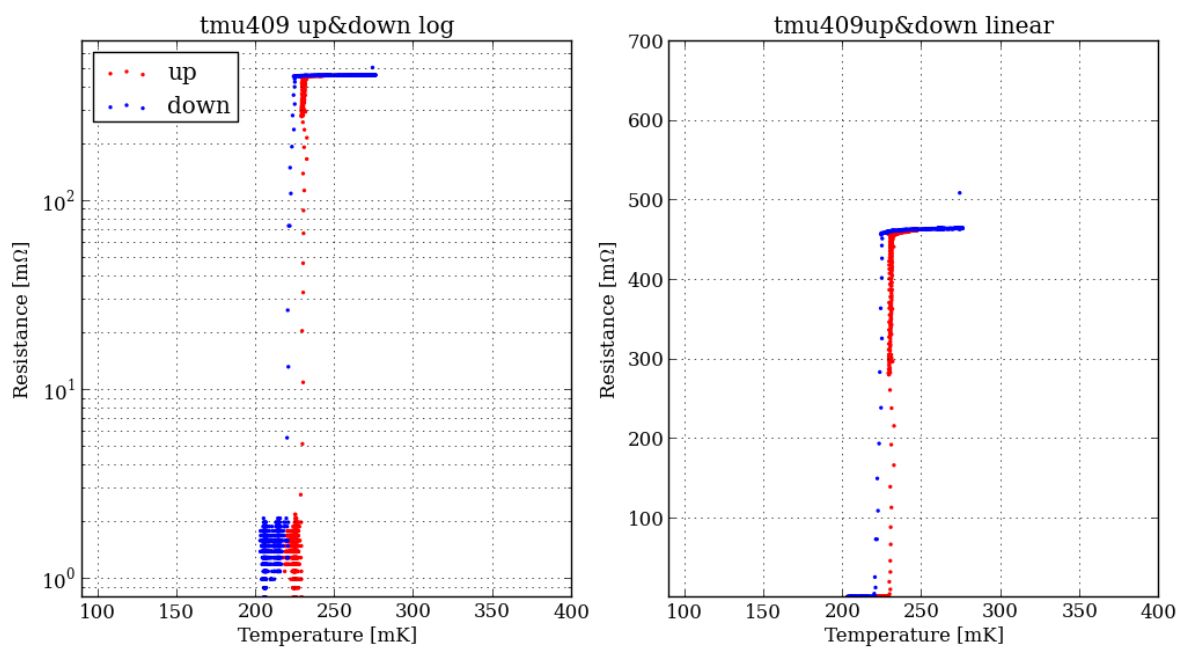


図 7.5: TMU 409 R-T 図。赤: 温度上昇、青: 温度下降。

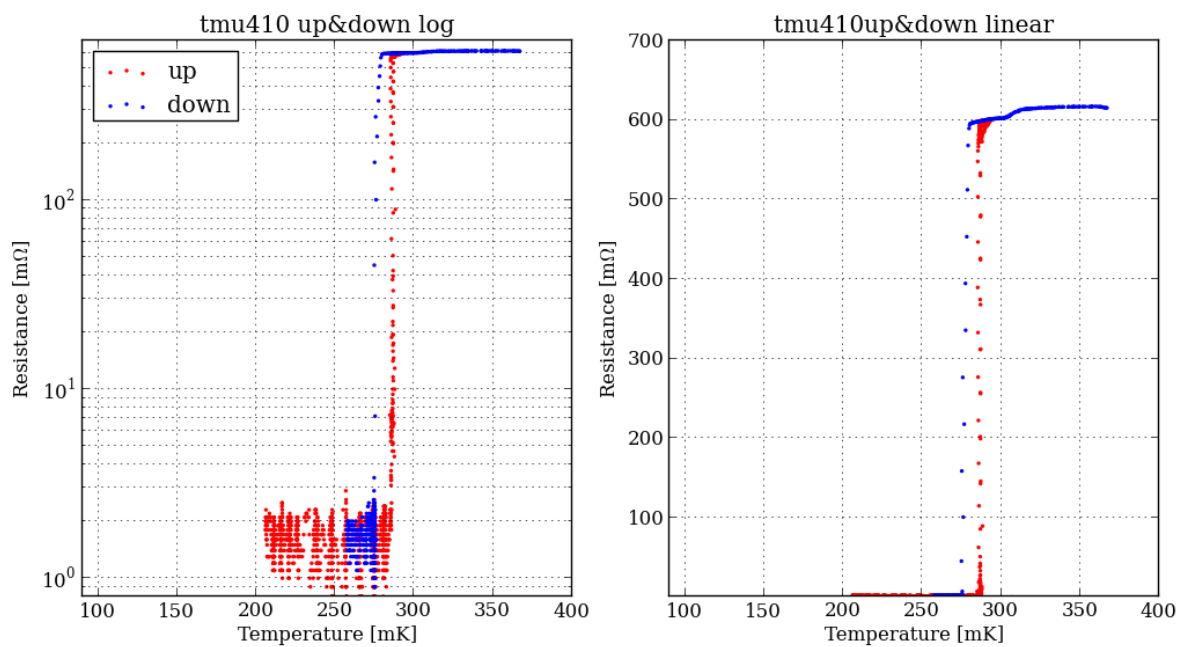


図 7.6: TMU410 R-T 図。赤: 温度上昇、青: 温度下降。

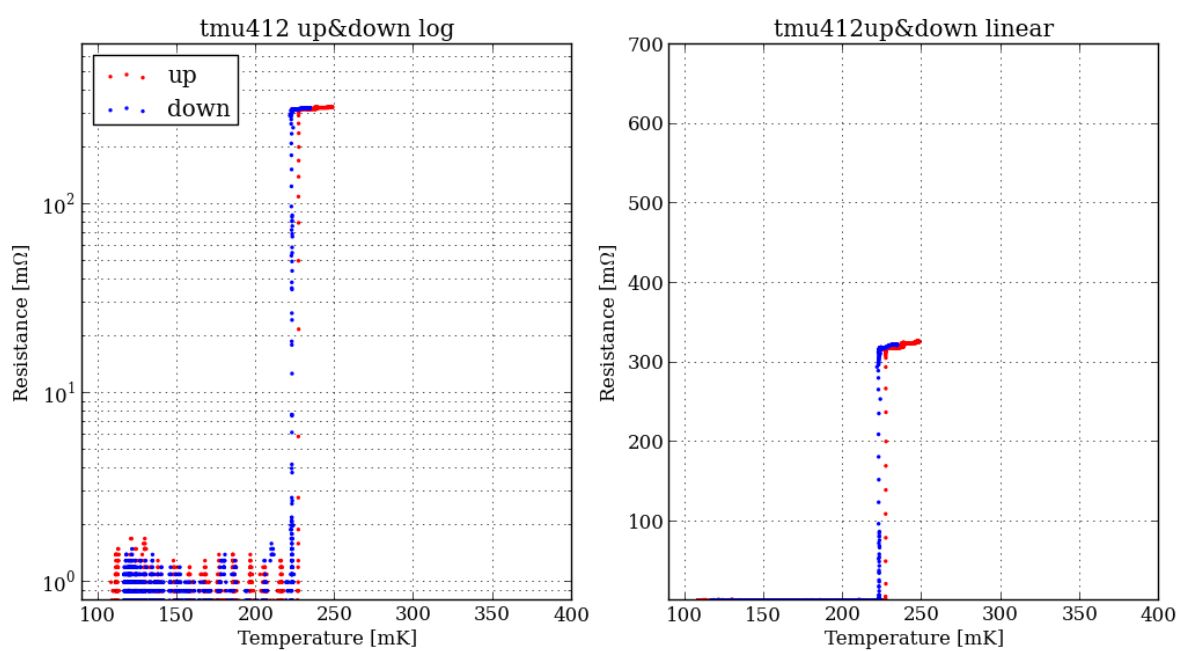


図 7.7: TMU412 R-T 図。赤: 温度上昇、青: 温度下降。

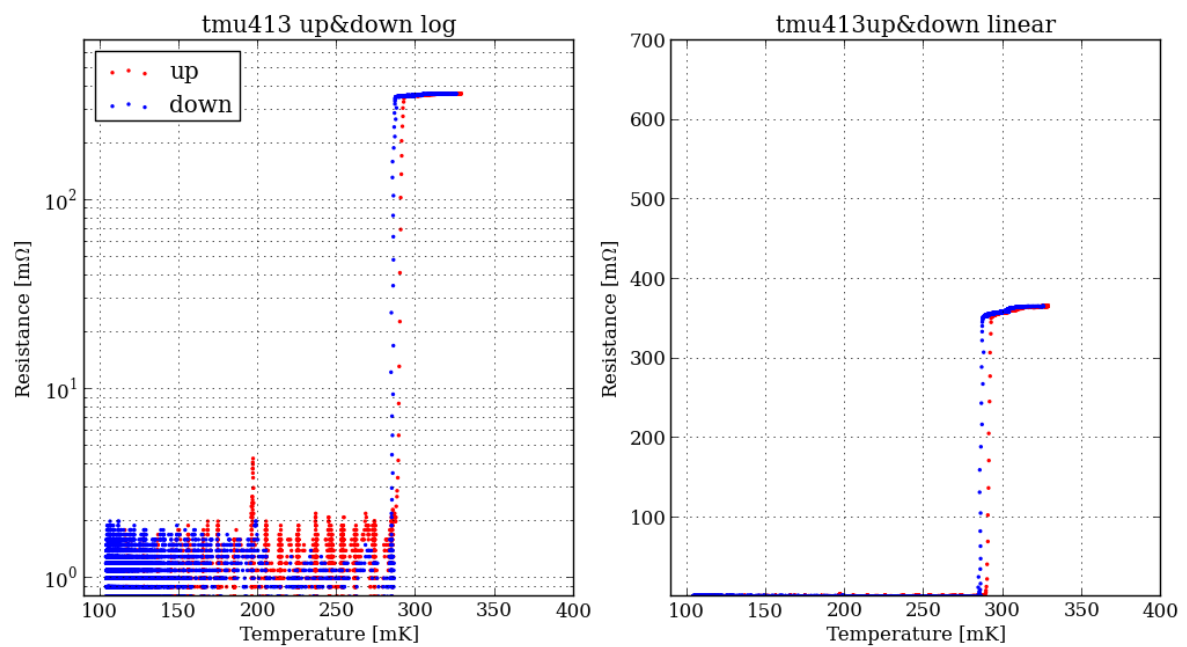


図 7.8: TMU 413 R-T 図。赤: 温度上昇、青: 温度下降。

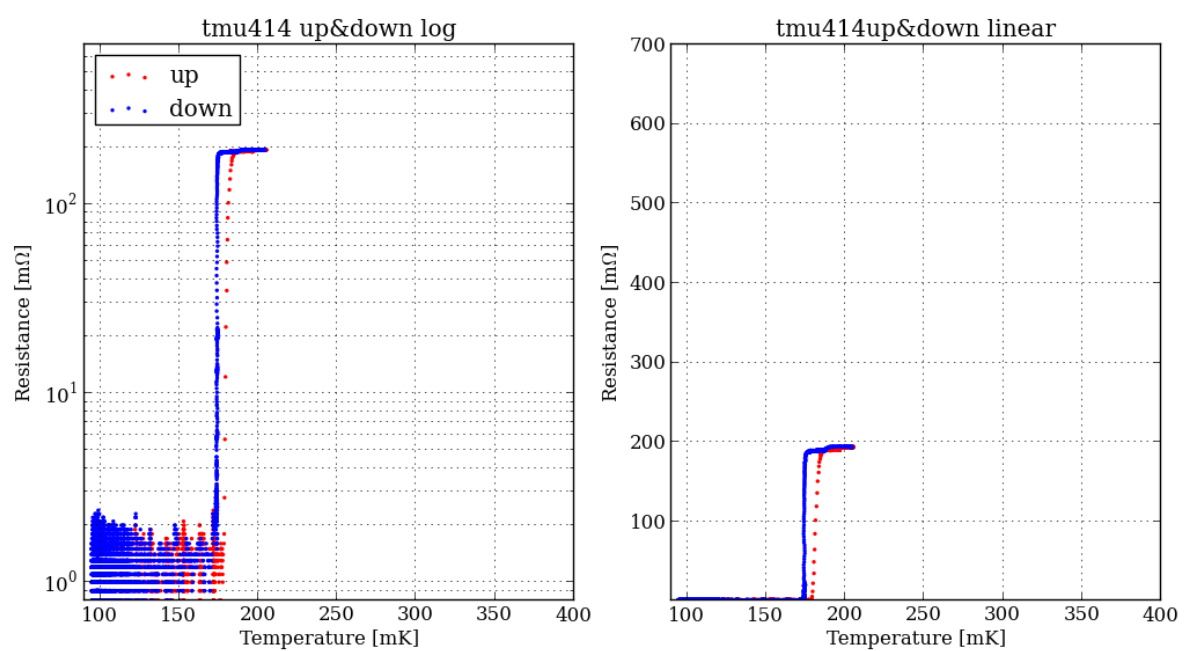


図 7.9: TMU 414 R-T 図。赤: 温度上昇、青: 温度下降。

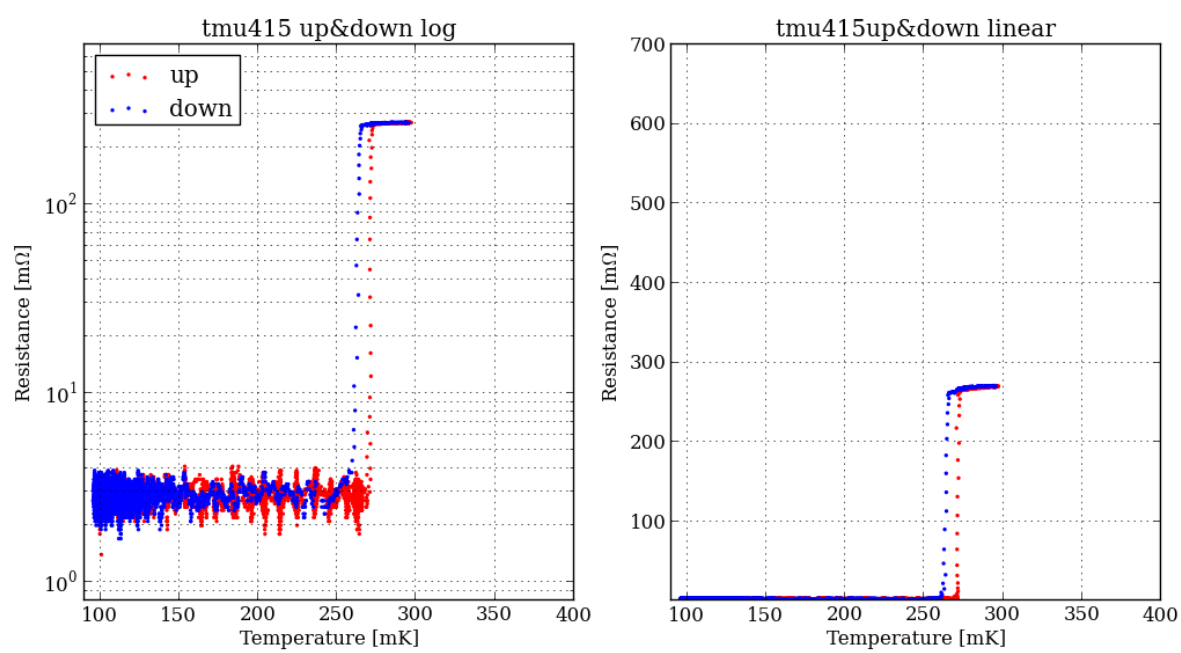


図 7.10: TMU 415 R-T 図。赤: 温度上昇、青: 温度下降。

これまで行ってきた転移温度条件出しの結果と今回のニオブ基板の条件出しの結果を図 7.11 にプロットした。青点が窒化膜酸化膜基板、Al 薄膜基板、TEOS-SiO<sub>2</sub> 基板に膜付けした TES の膜厚比 - 転移温度の関係で、ほとんど一直線上に分布している。しかし、赤点でプロットした今回の Nb 薄膜基板の条件出しでは別の直線上に分布しているように見える。これが、切り出したウェハのみの特性なのか、ニオブ薄膜基板がすべてこうなるのかは不明である。

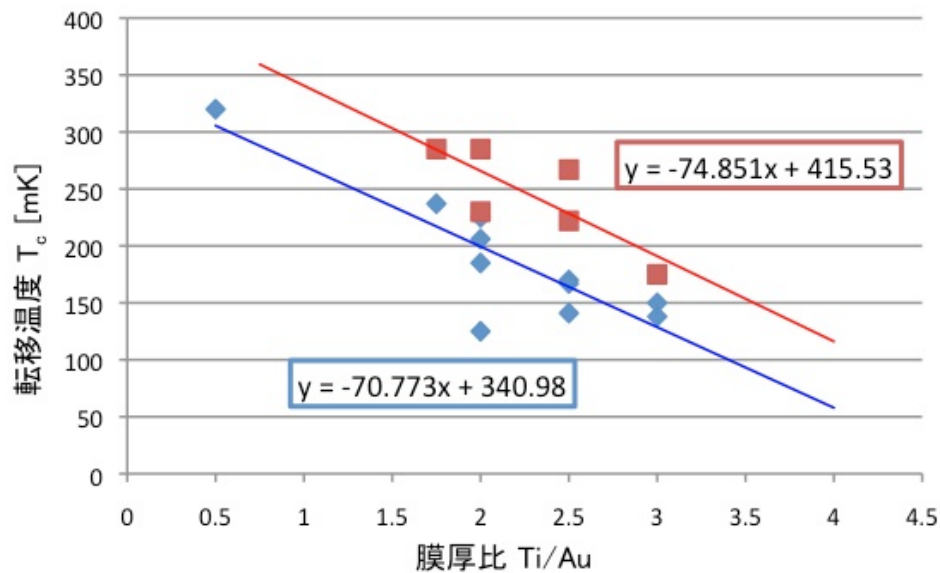


図 7.11: 膜厚比と転移温度の関係。赤: 今回行った Nb 薄膜の条件出し、青: これまでの条件出し。



## 7.5 ニオブ積層配線基板

材質をニオブに変えた積層配線基板を製作した。製作プロセスの詳細は §4 を参照。ニオブ配線なので下部配線のエッチングには ULVAC 社製反応性イオン (RIE) エッチング装置 CE-300R で  $\text{SF}_6$  ガスを使用し、上部配線のエッチングには傾斜 (テーパ) をつけるためイオンミリング装置を用いた。

### 7.5.1 イオンミリング条件変更 (wafer 14~16)

wafer 14~16 ではさらに TES 下地部分の表面粗さを改善するため上部配線イオンミリングの条件を変えた。上部配線のエッチング時にイオンミリングの角度をゆるやかにすればそれだけフラックスも下がるので、エッチングレートが低くなると思われる。イオンビームを正面から受けた場合のニオブのエッチングレートは  $\sim 25 \text{ nm/min}$  で、 $45^\circ$  傾けた場合は  $\sim 12 \text{ nm/min}$  である。

### 7.5.2 wafer 14

wafer 14 は上部 Nb 200 nm を  $45^\circ$  の角度で 22 min イオンミリングエッチングを行なって Nb 薄膜が削りきれていることを目視で確認した。基板を洗浄して産総研 AFM で表面観察を行なったところ、 $S_q=6.2 \text{ nm}$  だった。さらに  $80^\circ$  の角度でイオンミリングエッチングを 3 min 行ない、洗浄後に再度 AFM 観察を行なうと  $S_q=3.944 \text{ nm}$ 、さらに 3 min 行なって洗浄し AFM 観察を行なうと  $S_q=3.583 \text{ nm}$  と  $45^\circ$  イオンミリングから改善しているように見えた。この後、同じ基板で  $85^\circ$  の角度でのイオンミリングエッチングを行なって同様に AFM 観察を行なったところこれも表面粗さが改善されていたが、実は基板表面にコンタミネーションが起きていたことが後に判明した。

#### 低角度イオンミリングによるコンタミネーション

イオンミリング法によるエッチングでは装置内部のステンレスやホルダのアルミニウムもイオンビームによって削れて素子表面に蒸着してしまう。後に説明するイオンミリング後に RIE 法でエッチングする手法を行った時、 $45^\circ$  のイオンミリングエッチング後には正常に RIE できるが  $85^\circ$  のイオンミリングエッチングの後では全く RIE のエッチングが進まないという問題が起きた。

普段使用しているように基板表面をビーム正面に向けてエッチングする場合や、そこから  $45^\circ$  傾けた状態のエッチングではエッチングレートが Fe, Al のデポジットレートをエッチングレートが上回っており問題は起きなかった。しかし  $85^\circ$  のイオンミリングエッチングを行なうと基板表面に酸化アルミや酸化鉄が蒸着されてしまうようである。

ニオブ薄膜上のアルミはごく薄い Al 薄膜でも被膜性が高いことが知られており、フッ化物が高融点でエッチングされないため RIE 法でのエッチングが起きなかった。また鉄も同様にフッ化物がエッチングされず、ホルダをアルミからステンレスに変えても同様の現象が起きたことから  $85^\circ$  イオンミリングでは高い被膜性を示すようである。

#### wafer 14 の性能評価

wafer 14 に保護用のレジストを塗布し、3.5 cm 角にダイシングカットして首都大に配送した。宇宙研にて AFM 測定を行なったところ、RMS で 2.0~2.4 nm と産総研 AFM より多少良い値がでた。

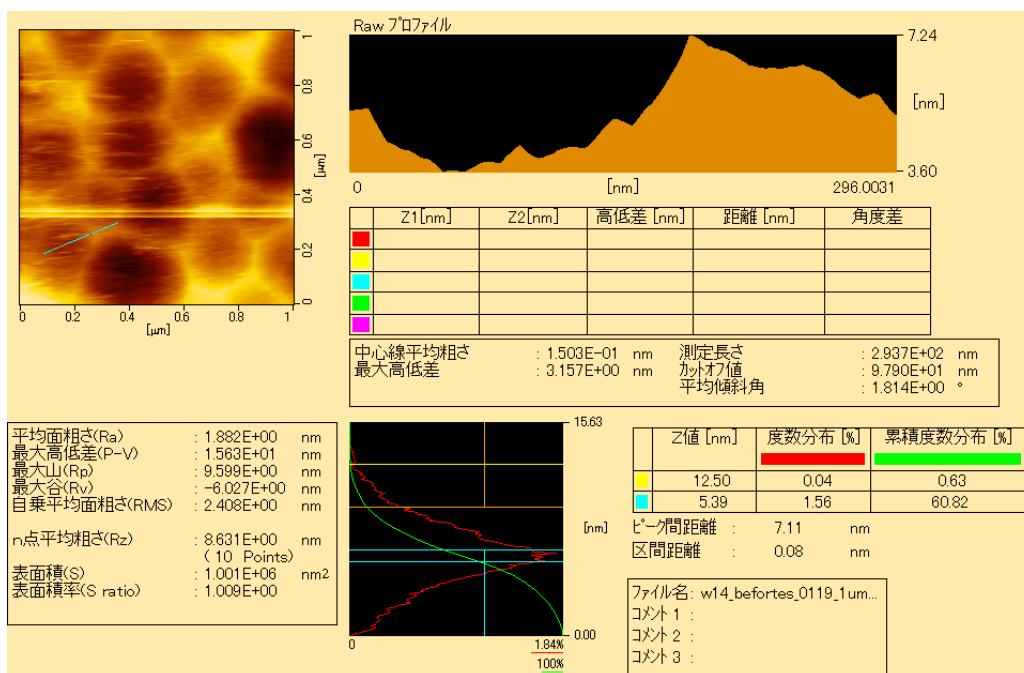


図 7.12: wafer 14 の宇宙研 AFM での表面荒さ観察。観測箇所は TES の下地。

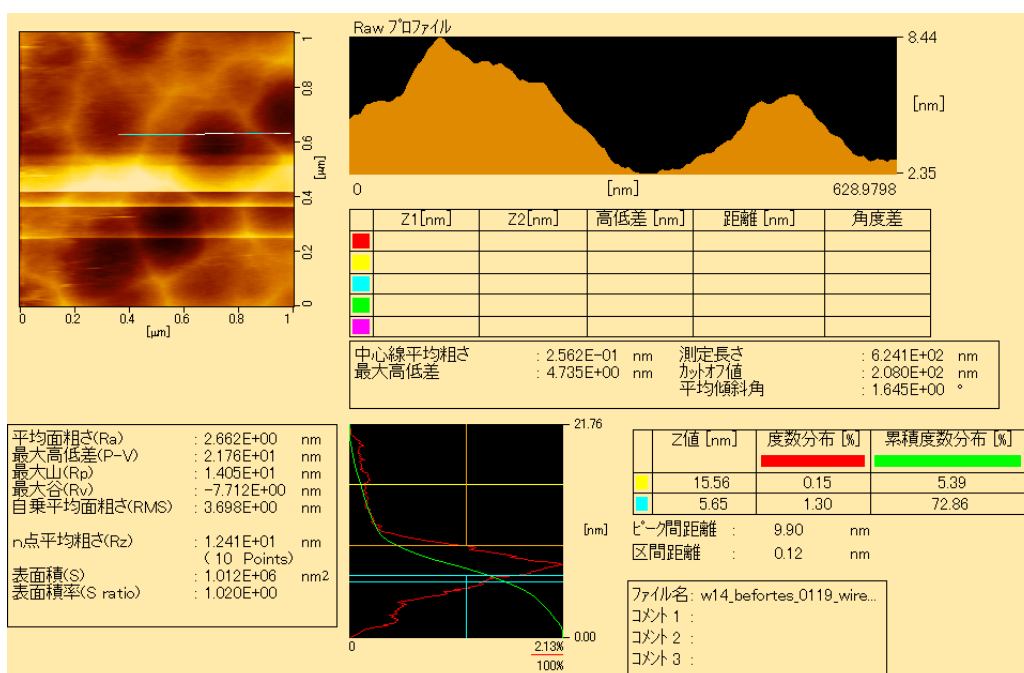


図 7.13: wafer 14 の宇宙研 AFM での表面荒さ観察。観測箇所は上部ニオブ配線。

首都大スパッタ装置にてチタン、金を膜厚  $\text{Ti}/\text{Au} = 50/125 \text{ nm}$  と理想膜厚 ( $40/80 \text{ nm}$ ) より厚めに成膜した。これはチタンを厚くすればその分、金との界面が平坦になり、転移温度の変化が緩和されることを予想したものである。

TES べた膜の、ピクセルを上部配線が覆っている部分にワイヤボンディングしたものを 2 チャンネル R-T 測定した。また、ピクセル部でなく配線の無い箇所にも 2 チャンネル、さらに外側の配線構造がベタ膜で再現されている箇所にも 1 チャンネルとり、R-T 測定を行った。

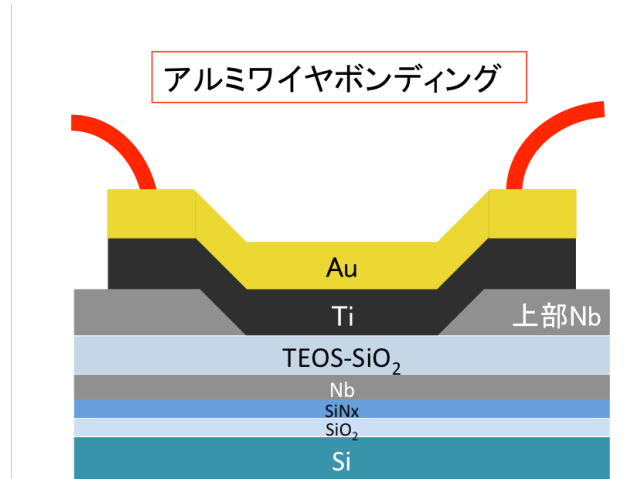


図 7.14: ピクセル上アルミワイヤボンディングの模式図。

表 7.3: wafer 14 R-T 測定まとめ。

| 測定箇所             | 配線構造  | 抵抗値 [ $\text{m}\Omega$ ] |
|------------------|---|--------------------------|
| pixel ID: 0220   | Nb/TEOS-SiO <sub>2</sub> /Nb/Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /SiO <sub>2</sub> /Si | 40~49                    |
| pixel ID: 1819   | Nb/TEOS-SiO <sub>2</sub> /Nb/Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /SiO <sub>2</sub> /Si | ~36                      |
| pixel 外 (Nb 無し)  | TEOS-SiO <sub>2</sub> /Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /SiO <sub>2</sub> /Si       | ~110                     |
| pixel 外 (Nb 膜在り) | Nb/TEOS-SiO <sub>2</sub> /Nb/Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /SiO <sub>2</sub> /Si | 2                        |

首都大の希釈冷凍機で 102 mK まで冷やしたが超伝導転移は確認できなかった。膜厚比は 2.5 なので、Nb 薄膜での条件出しから予想される転移温度は ~220 mK 付近である。測定箇所によって抵抗値は異なるが、どのチャンネルも 102 mK → 1000 mK の温度変化の間、抵抗値に変化は無かった。今回の測定は 1  $\mu\text{A}$  のバイアス電流で行っており、臨界電流を破れないかと 3, 10  $\mu\text{A}$  の電流を流してみたがやはり抵抗値に変化は無かった。

TES 下地がコンタミネーションで汚れている事が転移に悪影響を及ぼしていると思われる。

### 7.5.3 wafer 15, 16

wafer 15, 16 では  $45^\circ$  イオンミリングのエッチング時間を減らしてから低角度のイオンミリングを行なう事で粗さの改善を狙った。イオンミリングを  $45^\circ$ : 8 min,  $70^\circ$ : 12 min,  $80^\circ$ : 5 min,  $85^\circ$ : 5 min 行い、以降  $85^\circ$  イオンミリングを 5 min 刻みで計 80 min 行なったが絶縁膜表面が露出しなかった。その後、 $80^\circ$  イオンミリング 60 min 行なうもこれも削りきれず、 $75^\circ$ : 15 min のエッチングで表面が露出した。おそらくコンタミネーションのデポジットレートをイオンミリングのエッチングレートが上回る閾値が  $75^\circ$  付近にあると思われる。

各エッチング毎に AFM 観察を行ないつつプロセスを進めた。 $80^\circ$ ,  $85^\circ$  エッチング終了時の表面粗さは  $S_q \sim 1.2$  nm であったがこれは基板表面で鉄やアルミのデポジットが起きたため粗さが改善されたものと思われる。エッチング終了時の表面粗さは  $S_q=4.899$  nm と悪化しているが、これは  $75^\circ$  のイオンミリングで基板表面のコンタミが除去され正常なエッチングが起きたためと思われる。

なお、wafer 15, 16 には TES スパッタを行っていない。

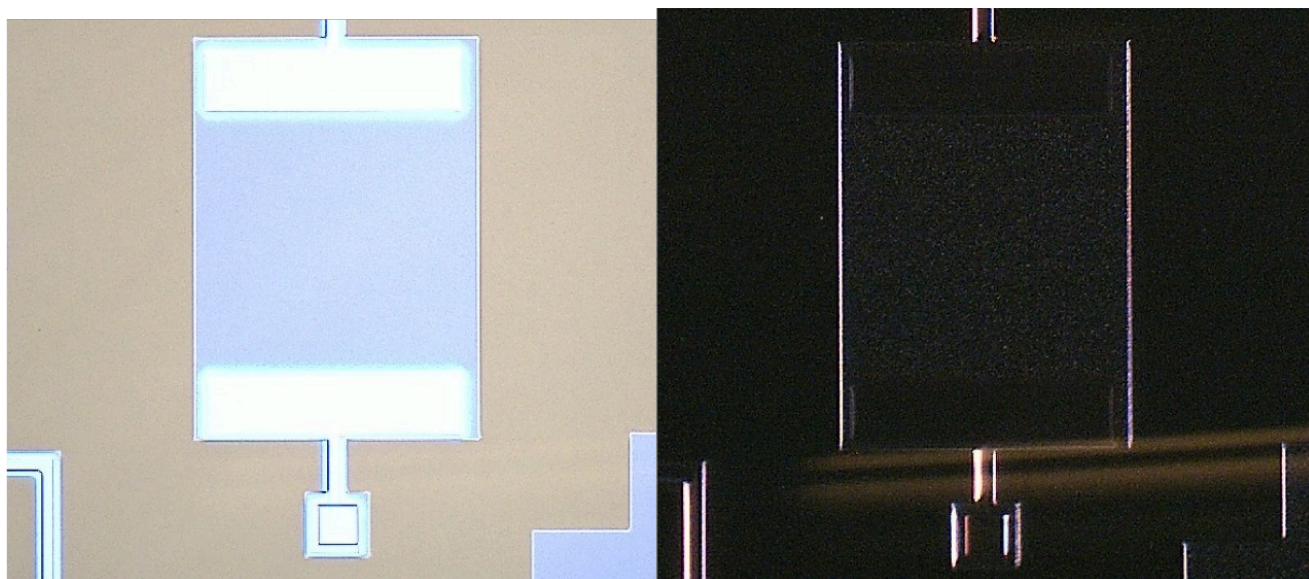


図 7.15: wafer 15 のピクセルの光学顕微鏡での観察写真。左: 明視野、右: 暗視野。

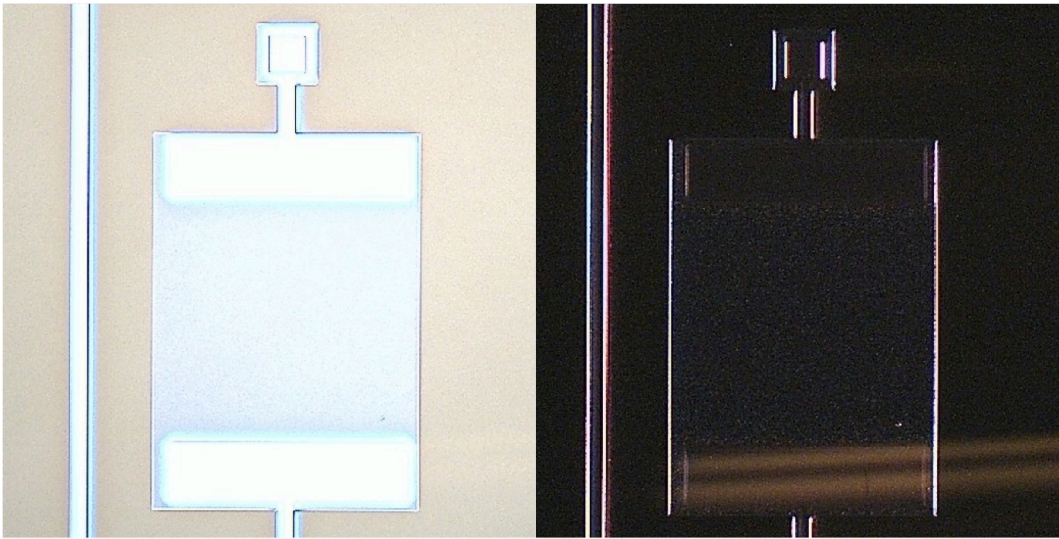


図 7.16: wafer 16 のピクセルの光学顕微鏡での観察写真。左: 明視野、右: 暗視野。

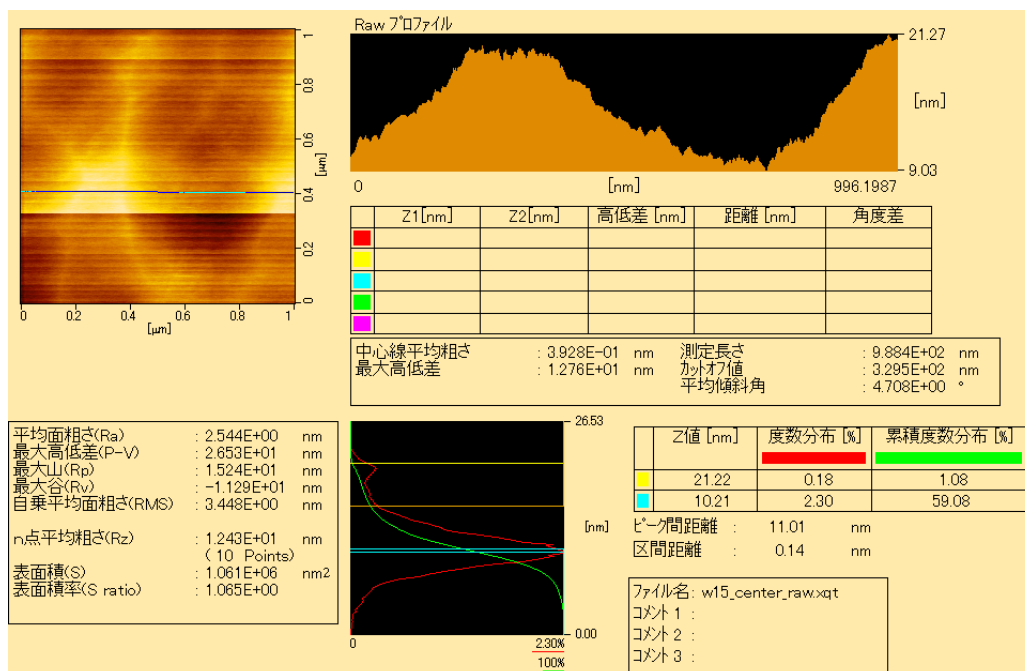


図 7.17: wafer 15 TES の下地部分の宇宙研 AFM での表面荒さ観察。

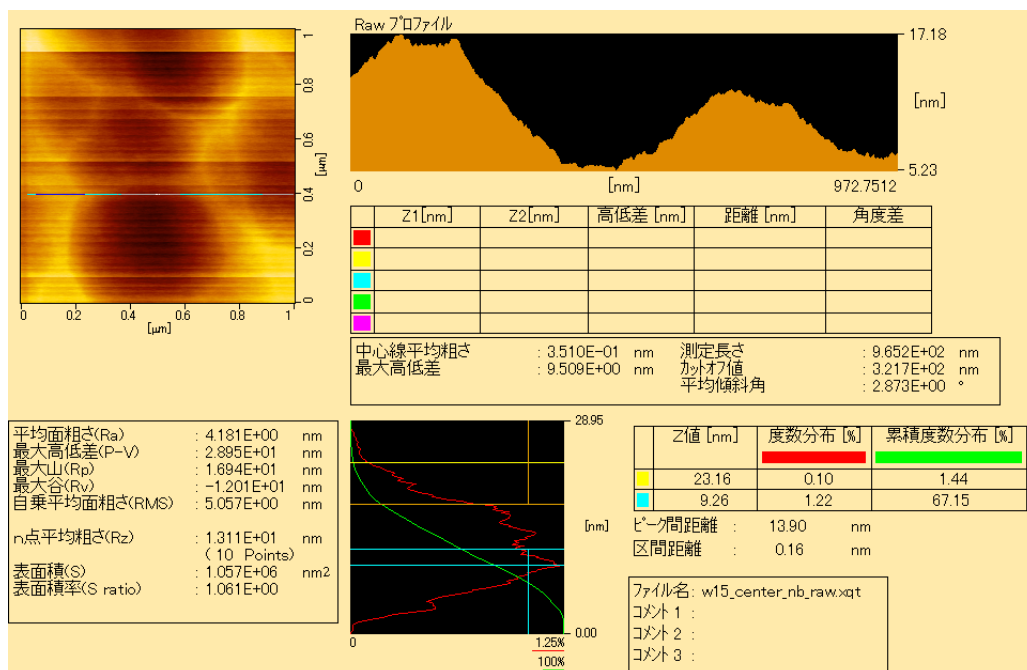


図 7.18: wafer 15 ニオブ配線上の宇宙研 AFM での表面荒さ観察。



## RIE ジャストエッチ条件出し (wafer 17~22)

wafer 17 ではイオンミリングでテーパ形成後、RIE で Nb 薄膜を削りきる事で表面粗さの改善を狙った。この基板から首都大チームが産総研に出向いて作業に立ち会い、配線構造形成プロセスを見学するようになった。

ベアシリコン基板に Nb 100 nm を成膜しパターニングを行なったが、表面に酸化膜  $\text{SiO}_2$  が無いため RIE から保護されず、予定より 1  $\mu\text{m}$  近くも削れてしまっていた。絶縁膜  $\text{SiO}_2$  を 180 nm 成膜しコンタクトホールを形成、上部配線用 Nb 薄膜を成膜したがこの日は産総研のスパッタ装置の条件が変わっていたらしく、Nb は 170 nm 程度しか成膜されていなかった。上部配線のイオンミリングは  $45^\circ$ : 15 min,  $85^\circ$ : 5 min 行った。この時点ではまだコンタミネーションに気づいていなかったため、このあと RIE を計 120 sec 行った。この RIE では基板表面にアルミ、鉄の保護膜があるので RIE ではほとんど削れていない。

3.5 cm 角にダイシングカットし首都大に搬送した。

産総研での AFM 観察では  $S_q \sim 1$  nm 程度であったが、宇宙研 AFM では  $\text{RMS}=2.131$  nm であった。また、小さな穴のような物が確認できる。傾斜 (テーパ) がきちんと  $45^\circ$  程度ついていることも確認した。

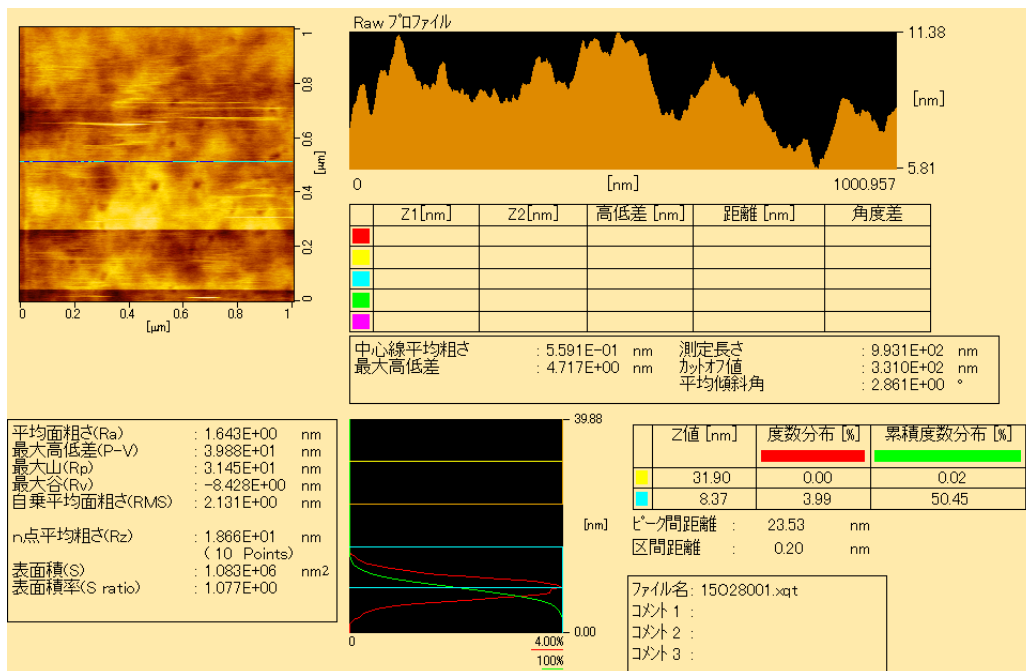


図 7.19: wafer 17 の宇宙研 AFM での表面荒さ観察。観測箇所は TES 下地。

首都大スパッタ装置でチタン、金を膜厚  $\text{Ti}/\text{Au}=40/80$  nm 成膜した。今回は転移温度を前回より高くするため膜厚比を 2 に設定し、転移温度は  $\sim 200$  mK と予想した。

## wafer17 ベタ膜 R-T 測定

今回は全てのチャンネルでピクセル上にワイヤボンディングを行った。希釈冷凍機の最低到達温度は 116 mK と転移予想温度を下回っていたが、超伝導転移は確認できなかった。測定した 4 ピクセル (pixel ID: 0910, 0219, 0202, 1920) のうち、pixel ID: 0219 のみ  $\sim 100$  m $\Omega$  で、他 3 ピクセルはどれも 200~250 m $\Omega$  と高い抵抗値を示し、温度を 117 mK  $\rightarrow$  250 mK と変化させても一定のままだった。



## wafer 18

wafer 18 もイオンミリング後に RIE を行なう事で TES 下地部分の表面粗さの改善を図った。wafer 17 の反省を活かして窒化膜酸化膜付きの 3 inch シリコン基板を使用した。下部配線用 Nb を 100 nm 成膜しパターンニング、絶縁膜  $\text{SiO}_2$  を 180 nm 成膜しコンタクトホール形成、上部配線用 Nb を 200 nm 成膜するところまでは正規のプロセス通り進めた。イオンミリングを  $45^\circ$ : 10 min,  $85^\circ$ : 15 min 行なってから RIE を行なおうとしたところで失敗し、コンタミの存在に気がついた。

基板表面がアルミや鉄で被膜されていることが RIE エッチングできない原因なので、 $45^\circ$  のイオンミリングエッチングを行なえば表面のコンタミネーションを除去することができる。別基板の条件出しで、 $85^\circ$  イオンミリングの後でも  $45^\circ$  イオンミリングを 1 min 程度行なえば正常に RIE エッチングでニオブが削れる事がわかった。wafer 18 に再度上部配線用フォトリソパターンを作成し、 $45^\circ$  イオンミリングを 1 min だけ行った。その後 RIE を 85 sec 行って上部 Nb 膜の除去を目視で確認した。

産総研にて AFM 観察を行なったが、大きなデコボコが確認できた。これは最初の  $85^\circ$  イオンミリング後の RIE 時にエッチングを数百 sec 行なったことでコンタミネーションの隙間から深い谷が形成されていたのではないかとと思われる。デコボコ以外の比較的平坦な部分の粗さもおそらく  $S_q \sim 6$  nm 程度だと思われる。

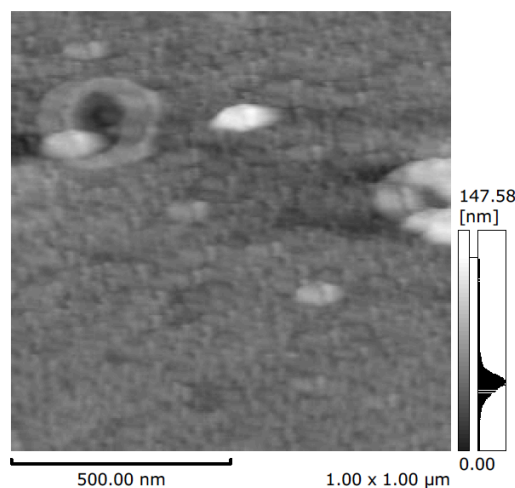


図 7.20: wafer 18 TES 下地部分の AFM 観察結果。装置は産総研のもの。

## 7.5.4 wafer 19,20

wafer 18 製作時に同時進行で行なったイオンミリングと RIE の条件出しに使用した基板をそのままプロセスを進め、wafer 19, 20 と名付けた。上部配線用 Nb 薄膜のスパッタまでは、§4 の製作プロセスとほとんど同様の作業を行った。ただ、下部配線エッチングに S1818G レジストを使用している。

wafer 19 は  $45^\circ$  イオンミリング 10 min、RIE 85 sec で上部 Nb 薄膜を削りきった。wafer 20 は鉄によるコンタミネーションが本当に起きているのか確認するためイオンミリングの基板ホルダをアルミからステンレスに変更し、 $45^\circ$  イオンミリング 10 min と  $85^\circ$  イオンミリング 15 min を行い、その後の RIE でニオブがエッチングされない事を確認してから再び  $45^\circ$  イオンミリングを 1 min 行なって表面のコンタミを除去した。その後 wafer 20 は RIE を短めに 65 sec 行ない、wafer 19 との違いを AFM で観察した。

wafer 19 の表面粗さは産総研 AFM で  $S_q=6.6$  nm と非常に悪い結果になった。これは RIE によるオーバーエッチングが長過ぎたためと思われる。

### イオンミリングと RIE による上部配線ジャストエッチ

45° イオンミリングを 10 min 行なう事で Nb は 120 nm 程度削れるので、残り 80 nm を RIE でエッチングする必要がある。Nb 薄膜のエッチングに使用している RIE 装置 CE-300R のエッチングレートはおよそ 3.1 nm/sec と予想されていた。またイオンミリング終了後に空気中で Nb 表面が酸化するため、その酸化ニオブ層の除去に 20 sec 程度のエッチングが余計に必要であるという経験則から、Nb 80 nm のエッチングには 46 sec 程度必要と考えられる。ただし、後の wafer 21, 22 の製作時にこのエッチングレートの条件出しを行いこの数値が正確でない事がわかった。

RIE エッチング時はフッ化ガスの発光量の減少値でエッチングの具合を判断しており、実際に wafer 19 の RIE エッチングでは 40 sec 経過した時点でフッ化ガスの発光量の減少は止まりエッチングが終了しているようにみえた。その後の 40 sec がオーバーエッチングに費やされているため、これが wafer 19 の表面粗さが悪くなった原因と考えた。

wafer 20 はこのオーバーエッチの時間を半分の 20 sec にするため RIE エッチング時間を 65 sec に設定したところ、wafer 19 と同様に 40 sec を経過した辺りでフッ化ガスの発光量の減少が終わった。目視で Nb 薄膜が削りきれている事を確認し、AFM 観察を行なった。表面粗さは  $S_q=2.759$  nm と非常に良い値であった。

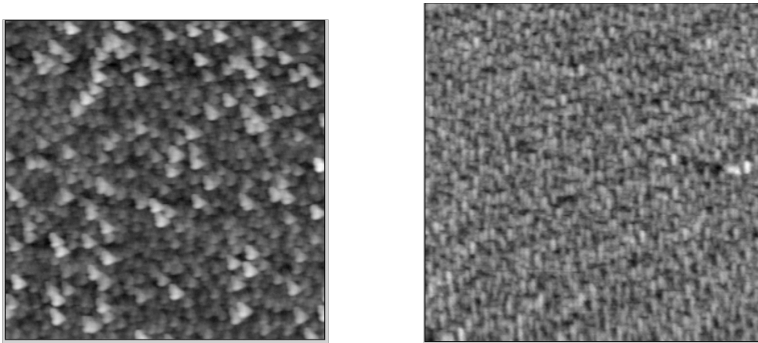


図 7.21: 産総研 AFM による表面観察。左: wafer 19、右: wafer 20。

## wafer 20 R-T 測定

wafer 20 を 3.5 cm 角にダイシングカットし、首都大に持ち帰った。

宇宙研 AFM で表面粗さを観察すると、RMS(二乗平均平方根高さ)=1.5 nm であった (図 7.22)。

首都大にて TES を Ti/Au=50/100 nm スパッタした。これは、過去の条件出しにおけるデータが最も多い膜厚比 Ti/Au=2 であり、かつチタンを少し厚めに設定するためである。転移温度は 120~270 mK 程度を予想していた。

希釈冷凍機に組み込み、112 mK まで冷やしたが転移は確認できなかった。ピクセル上のニオブにワイヤボンディングしたものを 3 チャンネル、配線外の部分を 2 チャンネル測定した。ピクセル上では 20 mΩ、配線外では 220~250 mΩ の抵抗値のままアルミワイヤの転移点 ~1.2 K まで変化しなかった。

その後も温度を上昇させると、~6 K で急激な抵抗変化を確認できた。~9 K での転移はニオブ薄膜の転移点ではないかと思われる。

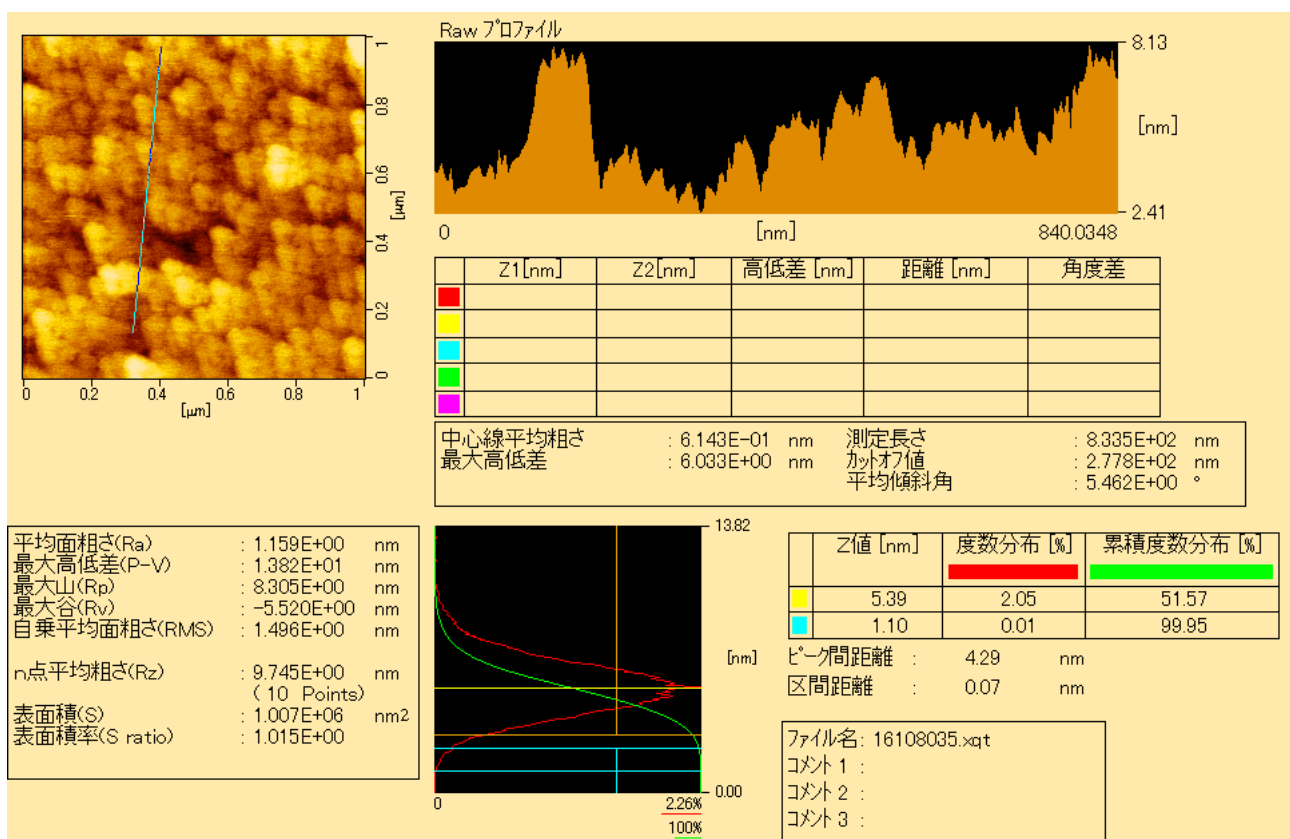


図 7.22: wafer 20 TES 下地部分の宇宙研 AFM による表面観察。

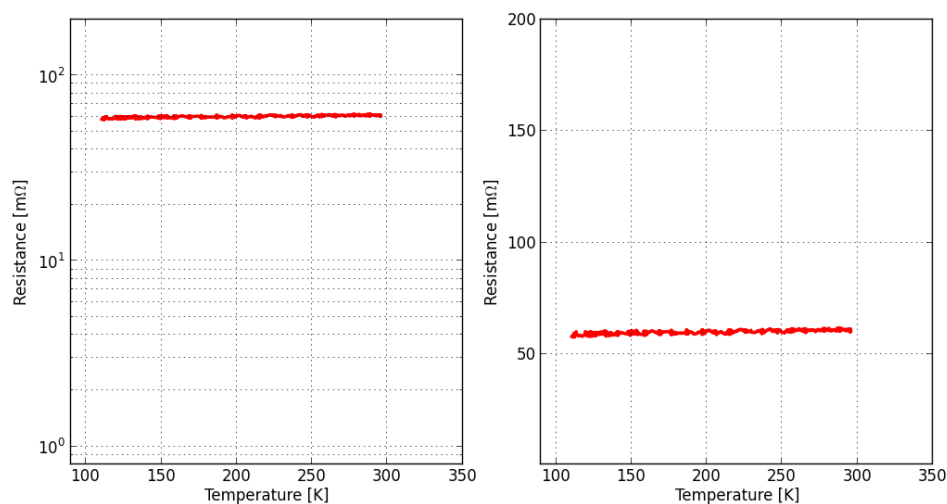


図 7.23: 極低温 (112~300 mK) での wafer 20 ピクセルチャンネル R-T 測定結果。抵抗値は変化しなかった。

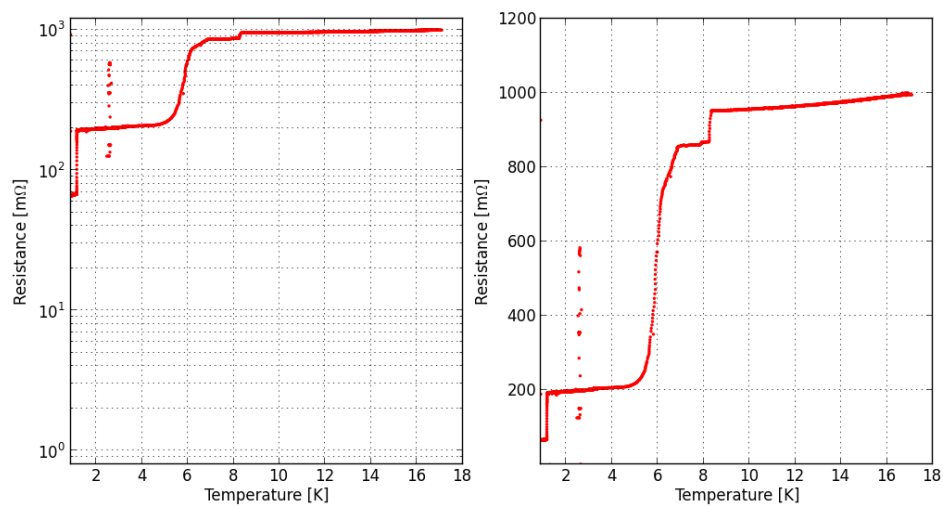


図 7.24: 低温 (0.9~30 K) での wafer 20 ピクセルチャンネル R-T 測定結果。1.2 K, 6 K, 9 K で抵抗値が急激に変化している。

### 7.5.5 wafer 21,22

wafer 21, 22 は実際に首都大チームの手で装置を動かして基板製作を行った。

イオンミリング後の RIE のエッチング時間を減らし Nb 薄膜が削りきれの瞬間を狙った。両基板の上部配線エッチングは、あらかじめ 45° イオンミリングを 10 min 行ってから、それぞれの条件を変更した。

#### wafer 21

wafer 21 では RIE エッチングを 40 sec 行った。目視では削りきれているように見えたが、産総研マイクロブローバーで基板表面の絶縁をチェックしたところ導通してしまい、表面にニオブ薄膜がまだ残っている事を確認した。

RIE 装置から取り出した時点でニオブ薄膜表面が自然酸化してしまうため、この酸化ニオブ層を除去するためのエッチング時間が余計に必要となる。そこで、小刻みに RIE とブローバーでの絶縁チェックを繰り返す事で酸化ニオブ層の除去に必要なエッチング時間とジャストエッチまでのエッチング時間の条件出しを行った。

まず wafer 21 に RIE を 5 sec 追加で行いマイクロブローバーで確認すると抵抗値は変化していたが今回も導通していた。次に 10 sec 追加でエッチングし再びマイクロブローバーで確認すると、今度は絶縁が確認できた。

#### wafer 22

この結果を参考に、45° イオンミリング 10 min と 40 sec の RIE で削りきれなかった Nb 層は 5 ~10 sec の RIE エッチングでちょうど削りきれると予想した。そこで、wafer 22 は RIE エッチングを 50 sec 行う事とした。フッ化ガスの発光量が元の数値に戻ると同時にちょうどエッチングが終了した。マイクロブローバーでも絶縁が確認でき、光学顕微鏡でも配線が綺麗にパターンニング出来ているように見える。O<sub>2</sub> アッシングと洗浄を行い産総研にて AFM 観察を行った。

wafer 22 の表面粗さは  $S_q=3.790$  nm という値で、wafer 20 より良い値ではなかったが正常なプロセスを進めた基板のなかでは最も良い値となった。イオンミリング後に RIE を行うプロセスではジャストエッチングであればあるほど表面粗さが良いはずなので、このプロセスでこれ以上の改善は難しいと思われる。

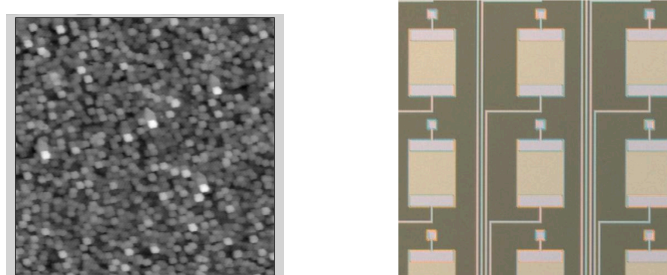


図 7.25: wafer 22 の写真。左: AFM、右: 光学顕微鏡。

wafer 22 べた膜 R-T 測定

#### 7.5.6 ニオブ積層配線基板まとめ

1. 未だテーパー付き積層配線での超伝導転移は確認できない。  
確実に表面粗さは改善しているが、未だに超伝導転移は確認できない。もっと TES を厚く成膜する必要があるかもしれない。
2. 低い抵抗値のまま変化しない。  
これまではアルミのワイヤボンディングが下部配線まで貫通したため起きる現象だと考えていたが、あまりにも頻度が多い。全く別の現象が見えているのかもしれない。

## 第8章 CMP 研磨試作基板

さらなる表面粗さ改善のため、CMP(chemical mechanical polishing) 研磨という技術を用いて配線表面の平滑化を行った。上面図でのデザインやピクセルの配置は変更していないが、配線間が絶縁膜  $\text{SiO}_2$  で埋まっていることがこれまでと異なる。また、段切れの心配が無いのでテーパをつける必要がなく、ニオブ上部配線は RIE のみでエッチングした。

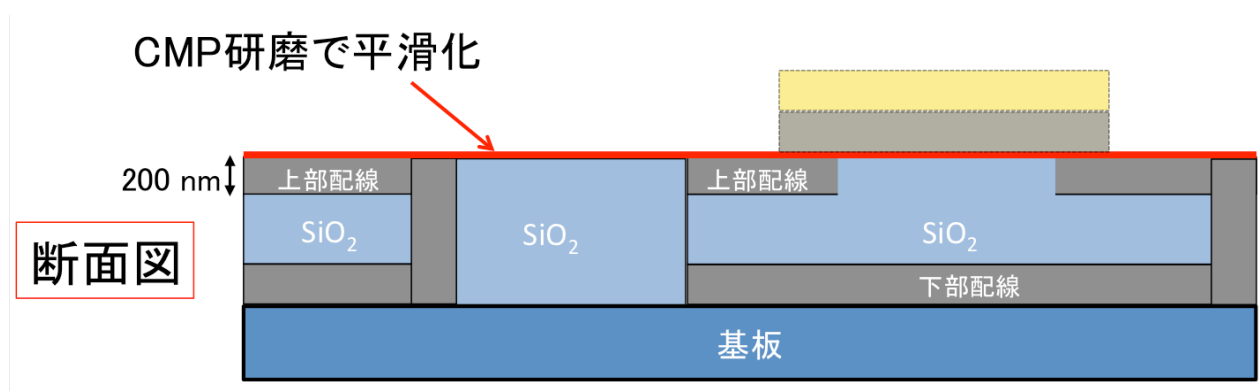


図 8.1: CMP 研磨基板断面模式図。

### 8.1 CMP 研磨

CMP 研磨とは、研磨剤の持つ化学作用で対象表面を溶かし、機械的研磨によって平滑化する技術である。今回行った試作プロセスでは上部配線パターニング後、再び全面に酸化膜  $\text{SiO}_2$  を成膜した。その後 CMP 研磨による平滑化を行って上部配線と酸化膜の高さを合わせた。配線による段差を考慮する必要がなくなるため、配線の厚みを自由に変える事が出来、TES を薄くすることも出来る。今回試作した基板は、配線構造までは産総研にて製作し、表面の研磨は株式会社 D-process に依頼した。

これまではパーティクルが基板表面を汚すのではないかと予想して CMP 研磨をプロセスに組み込む事は避けていた。D-process とミーティングを行ったところ、1 nm 以上のパーティクルであれば 8 インチ基板で 30 個程度で済むとのことであった。またこのミーティングでは二乗平均平方根粗さで 1 nm 以下の達成は十分可能という説明を受けた。

CMP 研磨ではディッシングと呼ばれるへこみが生じてしまう。しかしディッシングは滑らかなへこみなので、配線、絶縁層のコンタクトが悪くなる事はないとのこと。今回のプロセスでは最大 10 nm の高低差に抑えることを目標に設定した。

### 8.2 CMP 研磨基板試作プロセス

ディッシングが生じるため、配線上の酸化膜・上部配線を前もって分厚く成膜する必要がある。D-process 側からの要請では配線上酸化膜  $\text{SiO}_2$  を 600 nm 以上、配線を 400~500 nm 以上 (Nb, Al どちらも同様)



の厚みが必要との事であった。

#### 1. 下部配線・絶縁膜成膜、エッチング

下部配線、絶縁膜についてはこれまで通りのプロセス (§4 参照) で製作した。下部配線は 100 nm、絶縁膜は 180 nm である。

#### 2. 上部配線は Nb 500 nm を成膜

スパッタリング装置はこれまでと同じものを使用、スパッタ時間を 129 sec(200 nm) から 337 sec(500 nm) へ増やした。テーパをつける必要がないので、産総研所有の PFI-68 レジスト溶液を使用した。露光は  $160 \text{ mJ/cm}^2$  に設定、レジストリフローも行う必要は無い。RIE で 220 sec エッチングし、削れているかは目視で確認した。

#### 3. 配線上に酸化膜 $\text{SiO}_2$ 成膜

配線間の絶縁膜  $\text{SiO}_2$  と同様のスパッタリング装置を用いて成膜した。膜厚は念のため 800 nm と厚めに設定した。スパッタ時間は 36 min にも及んだ。

#### 4. D-process へ配送

今回は 5 枚の基板を製作、CMP 研磨を依頼した。行程としては上部酸化膜を加工し上部配線を露出させる一次研磨、露出した上部配線と上部酸化膜の段差を調整する二次研磨の二つがある。懸念されていたディッシングは 9~17 nm 程度に収まっていた。

宇宙研での AFM 観察では RMS  $\sim 0.4 \text{ nm}$  程度と目標の二乗平均平方根 1 nm 以下を達成していた (図 8.2)。

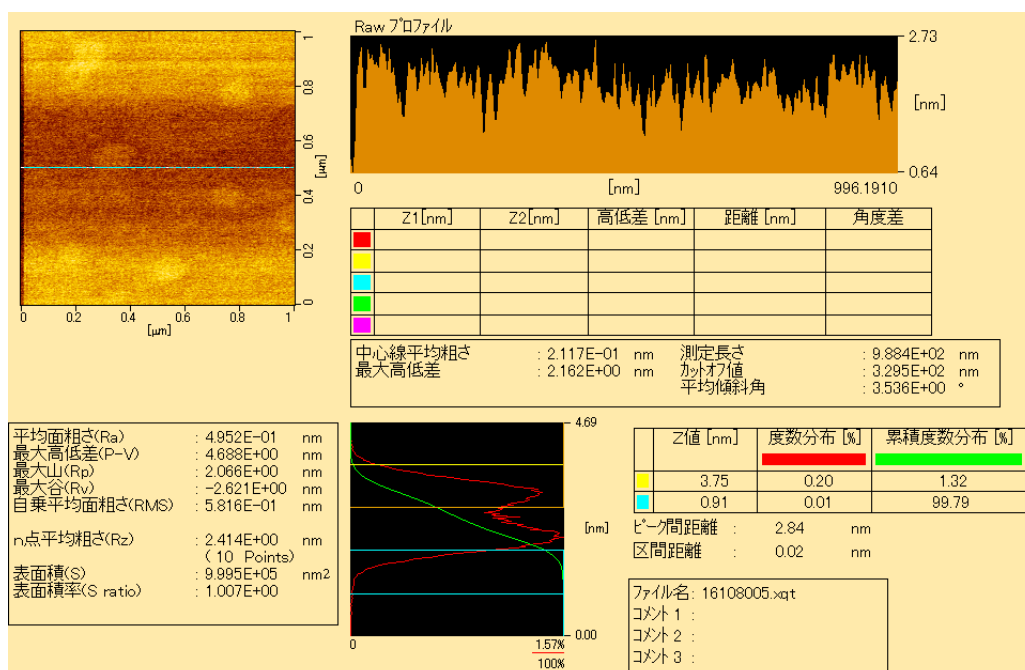


図 8.2: CMP 研磨試作基板 (CMP03) の AFM 観察結果。RMS は 0.4~0.6 程度。

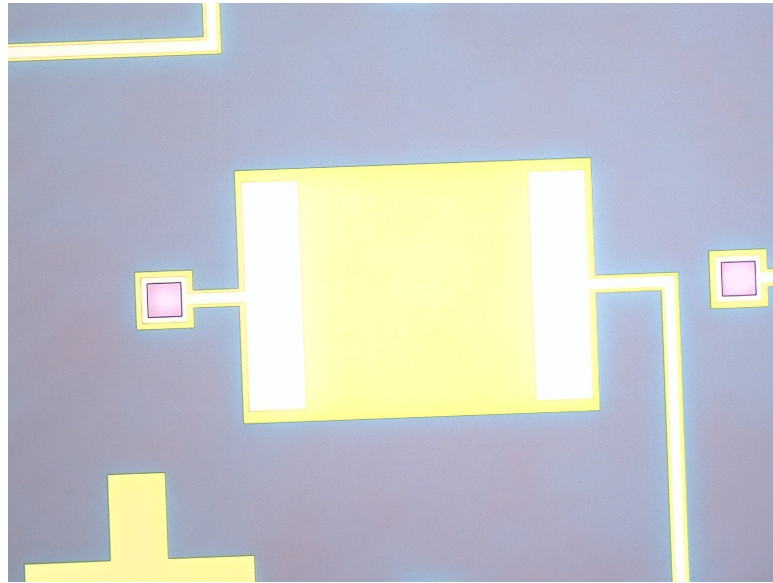


図 8.3: CMP 研磨試作基板 (CMP03) の光学顕微鏡観察結果。

## 8.3 RT 測定

### CMP 03

TES は膜厚 Ti/Au=50/100 nm で成膜した。TES パターニング前はピクセル上の上部配線間を 2 チャンネル、配線の無いべた膜箇所を 2 チャンネル測定した。TES パターニング後は導通ピクセル一つを含む 3 チャンネルで測定できた。

表 8.1: CMP03 RT 結果まとめ

|           | pixel ID | 極低温での抵抗値 [m ] | 転移の有無 |
|-----------|----------|---------------|-------|
| パターニング加工前 | 0203     | 58.6          | 転移せず  |
|           | 0118     | 60.6          | 転移せず  |
|           | 配線外      | 214.6         | 転移せず  |
|           | 配線外      | 148.4         | 転移せず  |
| パターニング加工後 | 0101(導通) | 2.4           | 転移せず  |
|           | 1901     | 249.9         | 転移せず  |
|           | 1810     | 247.6         | 転移せず  |

結果、全てのピクセルにおいて 110~390 mK の間では超伝導転移は確認できなかった。TES パターニング前の pixel 部分で  $\sim 60 \text{ m}\Omega$  と低い抵抗値になったのは、ワイヤボンディングが下部配線と導通しているのではないかとと思われる。この、下部配線と導通している疑いのあるピクセルの 1.15 K でのアルミ転移、8.25 K 付近でのニオブ転移の様子をパターニング後の導通ピクセルと比較した (図 8.4)。6, 8 K 付近でニオブの二段転移が起きている点や抵抗の変動値が異なるが、転移温度に関しては似た結果に見える。

パターニング前の配線の無い部分でも転移が確認出来なかった事や、その抵抗値がパターニング後の常伝導抵抗値と近い値であることから、TES 全体がそもそも転移していない。表面の粗さは十分改善されているので、他の何らかの要因によって転移温度が下がってしまっていると思われる。どの程度まで転移温度が低下しているのか特定する必要がある。

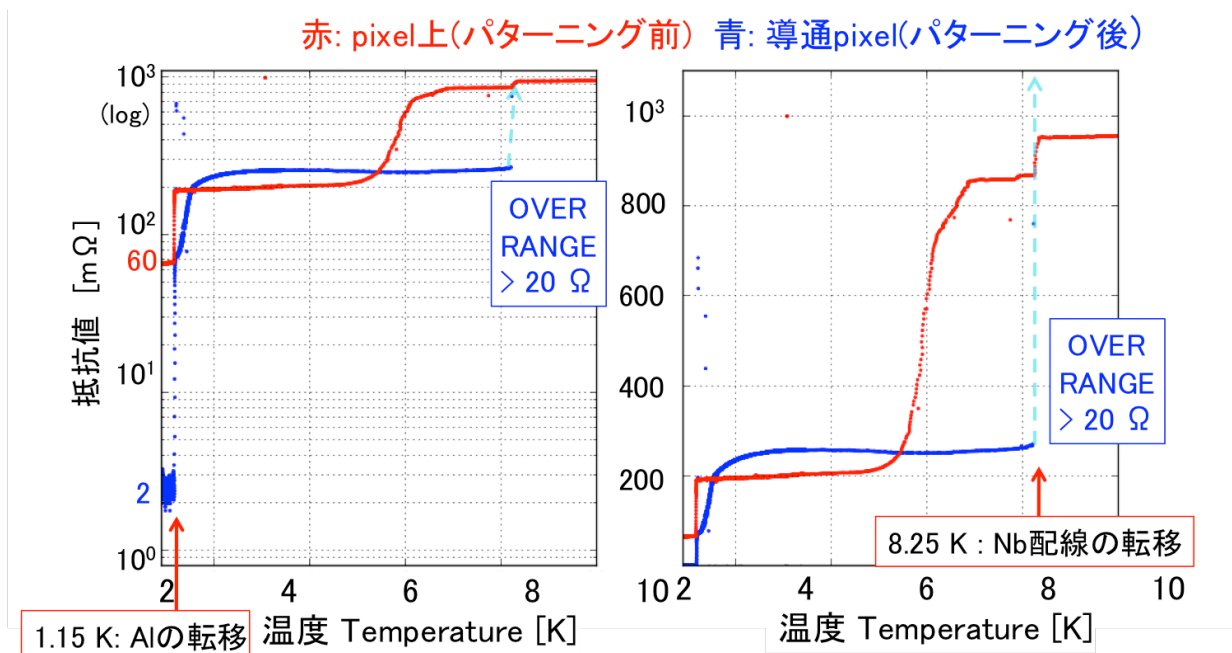


図 8.4: CMP 03 のワイヤボンディング貫通の疑いのあるピクセルと導通ピクセルの R-T 図比較。

#### CMP 04

CMP 03 の結果をふまえ、TES 膜厚 Ti/Au=100/20 nm で成膜した。チタンを数百 nm と分厚く成膜する事で近接効果を効きづらくし、高い転移温度に合わせる事で超伝導転移の確認を優先する手法である。チタンは酸化しやすいので、保護のために表面に薄く金を成膜した。また、バルクなチタンの転移温度は 390 mK なので、予想転移温度も ~390 mK である。

パターニング前は配線外を 1 チャンネル、導通ピクセルを 2 チャンネル、普通のピクセルを 2 チャンネル測定した。導通ピクセルは配線 PAD の先にボンディングしたが、普通のピクセルではピクセルを挟む上部配線部分にボンディングした。パターニング後は導通ピクセルと普通のピクセルを 1 チャンネルずつ測定した。

表 8.2: CMP04 RT 結果まとめ

|           | pixel ID | 極低温での抵抗値 [mΩ] | 転移の有無 |
|-----------|----------|---------------|-------|
| パターニング加工前 | 2001(導通) | 76.8          | 転移せず  |
|           | 2020(導通) | 243.7         | 転移せず  |
|           | 1919     | 99.0          | 転移せず  |
|           | 0219     | 3.5           | 転移せず  |
|           | 配線外      | 767.6         | 転移せず  |
| パターニング加工後 | 2020(導通) | 5.0           | 転移せず  |
|           | 1110     | 996.7         | 転移せず  |

パターニング前の R-T 測定では抵抗値がバラバラの値をとっていた。

- pixel ID: 0219

3.5 mΩ と非常に低い値をとっていたが、温度上昇させても転移は確認できなかった。冷凍機を止めて温度を 100 K 以上まで上げて数 mΩ のままであった (9.3 mΩ @101 K)。その後の R-T 測定でもこのチャンネルは同様の異常を示していたため、冷凍機内部で導通している可能性が高いと

思われる。

- pixel ID: 1919

これまで、極低温で数十  $\text{m}\Omega$  という抵抗値をとり、超伝導転移が見られない場合はワイヤボンディングが下部配線と導通しているものと判断していた。今回は TES をかなり分厚く成膜しているので、常伝導抵抗値は高い値になると思われる。99  $\text{m}\Omega$  という抵抗値はこの TES の常伝導抵抗値としては低すぎるため、超伝導転移した下部配線の抵抗値とワイヤボンディング-下部配線間の微小な TES の抵抗値が加算された値ではないかと思われる。

もしくは、これまでワイヤボンディングと下部配線が導通していると考えていたこの現象が別の要因で起きているのかもしれない。

- 導通ピクセル ID: 2020, 2001

導通ピクセルなのに抵抗値が数  $\text{m}\Omega$  程度でないのは、表面を TES ベタ膜が覆っているからである。pixel ID: 2020, 2001 で抵抗値に大きな違いがある原因は不明である。

- 配線外ベタ膜

パターニング後の R-T 測定の結果を見てもわかるように、今回の TES の常伝導抵抗は数百  $\text{m}\Omega$  程度であるとわかる。配線の有無に関係なく TES 全体が転移していないと思われる。

パターニング後も転移しなかったことから、ベタ膜での R-T 測定が問題を生じさせているという可能性は消えた。

### 8.3.1 CMP 研磨試作素子まとめ

- 超伝導転移は確認できない。

確実に表面粗さは改善したが、未だに超伝導転移は確認できない。粗さ以外の要素が効いていると思われる。

- ワイヤボンディングの貫通？

これまでも数回起きていたが、頻度が多すぎる。対策を考える必要がある。



## 第9章 まとめと今後

### 9.1 まとめ

私は DIOS 衛星搭載を目指した TES 型 X 線マイクロカロリメータの開発を行った。DIOS の要求値を満たすには  $1\text{ cm}^2$  の有効面積に  $500\text{ }\mu\text{m}$  角のピクセルの  $20\times 20$  アレイが必要である。先行研究では  $\text{SiO}_2$  の絶縁膜を挟んで配線を重ねた超伝導積層配線を製作し、TES のエッチャントやメンブレン構造形成方法などの改善を行い積層配線素子の製作プロセスを確立した。さらに、従来の積層配線で生じた TES の段切れ、配線の傷、常伝導・残留抵抗が高い、歩留まりが悪いといった問題を解決するため上部配線側面に傾斜をつけた傾斜付き積層配線を採用した。を防ぐためのイオンミリング法による傾斜付き積層配線を採用し、製作プロセスの確立を目指した。上部配線に傾斜を付けることで、TES と上部配線のコンタクトが良くなり、配線をより厚く、TES をより薄くする事ができる。これにより、配線の傷耐性が高まり、TES の常伝導・残留抵抗を低くする事が可能になったが、積層配線素子の正常な超伝導転移は未だ確認できていない。

本研究では、原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope) を用いて昨年度試作した積層配線基板の表面観察を行った。その結果、上部配線の傾斜は高さ  $200\text{ nm}$ 、幅  $\sim 200\text{ nm}$  程度あり、狙い通り  $45^\circ$  以下の傾斜がついている事を確認した。同時に、TES の下地となる絶縁膜表面に数十  $\text{nm}$  程度の突起上のデコボコが存在する事も観察できた。TES 自体が数十～数百  $\text{nm}$  の膜厚なので、このデコボコが超伝導転移に悪影響を及ぼしている可能性が高いと考え、配線構造製作プロセスの改善を行った。

まず、転移に悪影響を及ぼしている製作プロセスを特定するため、ピクセル部分の配線と TES の積層構造をべた膜状態で再現した。シリコンウェハに絶縁膜を成膜した基板と、シリコンと絶縁膜の間にアルミ箔膜  $100\text{ nm}$  を成膜した基板を製作し、TES 下層のチタン  $40\text{ nm}$ 、TES 上層の金  $80\sim 100\text{ nm}$  を成膜した。希釈冷凍機にて冷却し R-T 測定を行ったところ、どちらの素子も予想転移温度付近で正常な超伝導転移を確認できた。この結果から、基板表面に凹凸をつくり、正常な超伝導転移を妨げている要因は配線や絶縁膜のエッチング行程にあると考えた。また、産業技術総合研究所で使用するレジスト溶液を PFI-68 から以前から宇宙科学研究所にて使用していた S1818G に変更する事で、以前から光学顕微鏡で観察されていた配線表面の汚れを減少させる事に成功した。

基板の配線に用いる素材をアルミからニオブに変更する事で、エッチング後の表面粗さの改善を図った。ニオブのエッチングに使用する RIE 法に対して絶縁膜 ( $\text{SiO}_2$ ) がエッチング耐性を持っているため、イオンミリングで削りきる場合よりジャストエッチでの表面粗さが改善すると考えた。アルミと同様に、ピクセル部の配線構造をニオブ薄膜で再現した基板を製作し、TES ベた膜の R-T 測定を行うことで、超伝導転移を確認できなくなる境界が二乗平均平方根粗さ  $S_q \sim 1\text{ nm}$  付近に存在する事を特定した。基板製作プロセス終了後の表面粗さ  $S_q \sim 1\text{ nm}$  を目指すため、上部配線エッチングまではこれまでのプロセス通り進め、レジストリフローとイオンミリングを行って  $\sim 45^\circ$  の傾斜をつけてから RIE でニオブを削りきる、という新たなプロセスの確立を進めた。その結果、アルミ積層配線基板では  $S_q \sim 6\text{ nm}$  であった表面粗さを、wafer 20 では  $S_q \sim 2\text{ nm}$ 、wafer 22 では  $S_q \sim 3\text{ nm}$  と改善する事が出来た。しかし、wafer 20 にチタン  $50\text{ nm}$ 、金  $100\text{ nm}$  成膜しても超伝導転移は確認できなかった。

また、CMP 研磨で表面を平滑化した積層配線基板を製作したが、こちらも超伝導転移は確認できなかった。

本年度の TES 型マイクロカロリメータの製作において、表面粗さ改善を目指したニオブ積層配線の製作プロセスを確立することはできたが、正常な超伝導転移を確認する事が出来なかった。

## 9.2 今後

- $T_c$  の低下

先行研究では、二層薄膜 TES の界面が荒れる事で転移温度  $T_c$  が低下するとある。傾斜付き積層配線基板では未だ超伝導転移が確認できていないため、具体的にどれだけ  $T_c$  が低下しているかわかっていない。確実に超伝導転移を確認するため、チタンの厚みを  $\sim 100$  nm まで厚くして R-T 測定を行うことが必要と思われる。

- アルミワイヤボンディングの貫通

これまで積層配線基板に TES ベタ膜を成膜しピクセル上に直接ワイヤボンディングを行うことで R-T 測定を行った際に、アルミワイヤが下部配線まで貫通してしまっていると思われる様な抵抗値の挙動を数回確認している。ボンディングマシンのパワーが強すぎるためと思われる。もしくは、ベタ膜ではピクセル上にボンディングしてもパターニング後とは異なる挙動をする可能性も考えられる。今後は、きちんと TES のパターニングを行ってから R-T 測定を行う必要があると思われる。



## 参考文献

- [1] K. D. Irwin and G. C. Hilton, 2005 Topics in Appl. Phys. 99, 63
- [2] Fleischmann, L. et al., 2009, J. P. Conf., 150
- [3] Kelley, R. L. et al., 2007, PASJ, 59, 77
- [4] D. Moore et al., 2011, LTD14
- [5] S. J. Smith et al., 2011, LTD14
- [6] K. C. Suetal., 2008 CS MANTECH Conference
- [7] R.G.Mints et al., 1998, PhysRevB.57.10318
- [8] D.A.Bennett, R.D.Horansky, D.R.Schmidt, A.S.Hoover, R.Winkler et al., 2012, Rev. Sci. Instrum. 83, 093113
- [9] H. Akamatsu et al., 2009 AIP Conf. Proc. 1185, 195
- [10] S. Oishi et al., 2011, LTD14
- [11] T. Ohashi et al., 2010 SPIE J. 7732, 77321S
- [12] T. Ohashi, et al., 2014 SPIE, 9144, 91442Q
- [13] S. Yamada et al., 2014 J Low Temp Phys, 176, 314
- [14] Y. Ezoe et al., 2009 AIP Conf. Proc.1185, 60
- [15] Y. Ezoe et al., 2011 IEEE Trans. Appl. Supercond. 21, 246
- [16] Y. Ezoe et al., 2014 IEEE, 6, 1
- [17] 江副 祐一郎, 2014, 超電導 Web21
- [18] Y. Ezoe et al., 2015 IEEE Trans. Appl. Supercond, 25, 2100805
- [19] 関東化学株式会社, 2006, 公開特許公報, P2006-291341A
- [20] 加藤 勝, 2004, 金属エッチング液
- [21] 吉武 宏, 2009, 修士論文, 東京大学
- [22] 関谷 典央, 2011, 修士論文, 東京大学
- [23] 大石 詩穂子, 2012, 修士論文, 首都大学東京
- [24] 榎島 陽介, 2013, 修士論文, 首都大学東京

- [25] 信川 久実子, 2013, 修士論文, 京都大学
- [26] 飯島 律子, 2014, 修士論文, 首都大学東京
- [27] 山口 静哉, 2015, 修士論文, 首都大学東京
- [28] 草野 英二, 「はじめての薄膜製作技術」, 工業調査会
- [29] 近藤 英一, 「機械・材料系のためのマイクロ・ナノ加工の原理」, 共立出版
- [30] 松葉博則, 「超電導工学 ―現象と工学への応用―」, 東京電機大学出版局
- [31] 「超電導・低温工学ハンドブック 低温工学協会編」, オーム社

## 謝辞

まず、この修士論文を書くにあたって、多くの方の指導と助けがなければとても書き上げる事は出来なかったと思います。大橋先生、江副先生、石崎先生、山田さん、野田さん、小波さん、瀬田さん、Magnus Axelsson、先輩方、同期のみんな、後輩達、宇宙研の方々、理研の方々、産総研の佐藤さん、日高さん、感謝してもしきれません。皆さんありがとうございました。

2年前の冬の院試で大橋先生に拾っていただかなければ、今の自分は無かったでしょう。当時の私は自暴自棄になっており、鬱病一步手前までいっていたと思います。この研究室の明るい空気に触れる事で楽しい2年間を送る事が出来ました。

1年目は主にAGNの解析を進め、山田さんや野田さんには相当お世話になりました。知識も技術も無かった自分に懇切丁寧に指導していただいたおかげで、未熟ながらもプログラミングが上達したように思います。また、秋のスイス・イギリス出張では荷物持ちと称し付いて行きながら自身がお荷物となっていました。竜野さん、岡田さん、Chris Done 教授等多くの方にご迷惑をおかけして、自分の能力不足を嘆きましたが、とても楽しい2週間でした。

2年目からは本格的にTESに取り組むようになり、江添先生、石崎先生の指導を受ける事が増えました。元々は実験系の研究をやりたくて理科大を飛び出したので、TESの作業はやること全てが新鮮でワクワクさせられました。ただ実際は就活に忙しく、作業の大部分を後輩達に任せてしまったことが残念です。特に黒丸君、鈴木君は僕が居ない間にTESの条件出し等多くの作業ををやっていただき、この修論を書く上での大きな基盤を築いてくれました。スパッタ行程の引き継ぎができなかったためここでもお荷物となった私を懸命に支え、宇宙研のカードキーすら持っていない無能な先輩の偉そうな指示に従いつづけ、挙げ句実験の結果はそいつに持って行かれるなんて環境によくぞ耐えてくれました。僕には無理です、本当に感謝しています。来年は右も左もわからない4年生と外部のM1が入ってくるので、今後のTESチームの環境は君たちの好きなように作り上げる事が出来ると思います。諸々の苦難にめげないようがんばって下さい。

その他研究室の先輩後輩、同期のみんな、小波さん、Magnass、瀬田さんには一人一人謝辞を書いている時間がもう無いのでまとめさせてもらいます。大橋研はとにかく飲み会が多く、その全てが明るくいつも盛り上がっていて毎回楽しかったです。皆さんにシェフと呼ばれ料理の準備に奔走するのは悪い気分じゃなかったです。

繰り返しになりますが、関わって下さった全ての方々のおかげで今の自分があり、この修論があり、来年の進路も手に入れる事ができました。この研究室で得た経験を今後の仕事で活かしていけることが何よりの誇りです。社会に出てからもがんばって生きていきたいと思います。ありがとうございました。

本研究に使用されたデバイスは、(独)産業技術総合研究所(AIST)の超伝導クリーンルームCRAVITYにおいて作製された。