

修士論文

多素子化に向けた傾斜付き積層配線を用いた 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

山口 静哉

指導教授 石崎 欣尚 教授

2015年2月19日

概要

宇宙の大部分はダークエネルギー、物質で構成されており、通常物質（バリオン）は宇宙のエネルギー密度の 4% にすぎない。その多くは観測的に未検出であり、ダークバリオンと呼ばれる。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いる。これを広視野で観測することでダークマターの構造を解明することにつながる。WHIM は OVII、OVIII の輝線吸収線を精密 X 線分光することで検出できる。しかし、現在の X 線検出器では WHIM を観測するのに十分なエネルギー分解能と視野を備えておらず、次世代のよりよい検出器が求められている。

我々のグループでは、WHIM を含む未検出のバリオン探査衛星 DIOS(Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor) への搭載を目指した、X 線検出器 TES 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 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。超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor) 型マイクロカロリメータは超伝導状態と常伝導状態間の急峻な電気抵抗の変化から、数 eV という優れたエネルギー分解能を実現することができる。これまでに 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 cm^2 の有効面積、 $500\text{ }\mu\text{m}$ 角のピクセルによる 20×20 アレイが必要である。しかしこのような大規模ピクセルの実現には、基板上の配線スペースや、ピクセル間のクロストークが問題となってくる。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 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、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、積層配線デザインは上部配線の上に TES を形成する必要があるため、TES が配線よりも厚くなくては段切れを起こしてしまう。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 程度と高くなってしまふ。さらに、配線と TES のコンタクトが悪いため、常伝導抵抗と残留抵抗が高いといった新たな問題が発生してしまった。

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、配線の上に 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。先行研究では、傾斜付き上部配線素子で製作及び評価を行い、転移温度が約 160 mK、常伝導抵抗が $500\sim 800\text{ m}\Omega$ 、残留抵抗が $1\sim 2\text{ m}\Omega$ と、問題であった転移温度・常伝導抵抗・残留抵抗を改善することができた。

本研究では上記の傾斜付き上部配線素子の断面を FIB(Focused Ion Beam)-SEM (Scanning Electron Microscope) で観察し段切れがないことを確認した後、初めて傾斜付きを用いた、積層配線 (上部配線 + 下部配線) 素子の試作を行った。cycle1 では、過去の条件だしから上部配線の厚みを 200 nm、下部配線を 100 nm、チタンを 40 nm、金を 110 nm で素子を製作し、評価を行った。その結果、超伝導転移せず、常伝導抵抗が $\sim 1\text{--}2\text{ }\Omega$ と要求値を満たさなかった。そこで、試作した素子の断面観察を行ったところ、テーパ角が急で TES が薄くなっていることを確認できた。cycle1 の結果からレジストリフローの条件を変えて cycle2 を行った。cycle1 から金の膜厚を 90 nm に変えて製作し、評価を行った。その結果、常伝導抵抗が $\sim 300\text{ m}\Omega$ と要求値を満たしたが、転移しなかった。そこで、再度転移温度の条件だしを行ったが、配線なしの基板との相関は見られなかった。その後、超伝導転移することを目的とし

て Ti/Au = 40/70 nm の膜厚で製作し、評価を継続する。また、これらの評価のためには、 ~ 100 mK という極低温で動作する冷凍機が必要であり、従来のヘリウム希釈冷凍機では冷却に 1 週間程かかり、1 度の実験に寒剤として高価な液体ヘリウムを 100 L 程度必要とする。そこで私は冷却試験を効率化するために無冷媒希釈冷凍機の立ち上げ及び性能評価を行った。これによって、1 度の冷却にかかる時間を自動運転により 3~4 日に短縮し、液体ヘリウムを消費せず実験を行うことが可能になった。

今後は傾斜付き積層配線 TES 型マイクロカロリメータで、優れたエネルギー分解能を達成することが課題である。

目次

第 1 章	序論	1
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
第 2 章	TES 型 X 線マイクロカロリメータ	17
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	20
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	25
2.7.1	開発の歴史	25
2.7.2	世界の開発状況	26
第 3 章	これまでの日本の開発状況	31
3.1	単素子の開発	31
3.1.1	TES に用いる金属の選定	31
3.1.2	自作した素子の最高性能	31
3.2	多素子の開発	33
3.2.1	自作した素子の最高性能	33

3.3	素子の製作方法	34
3.3.1	プロセスフロー	34
3.3.2	TES (Ti/Au) 成膜	34
3.3.3	裏面 Si_3N_4 膜の裏彫り	36
3.3.4	TES パターニング	38
3.3.5	Al 配線加工	40
3.3.6	Au 吸収体形成	41
3.3.7	メンブレン構造形成	41
3.4	製作現場	43
3.5	アレイ化に向けた技術課題	43
第 4 章	超伝導積層配線	45
4.1	背景	45
4.2	積層配線デザイン	46
4.3	製作プロセスの確立	46
4.4	作成した積層配線素子の性能	50
第 5 章	傾斜付き上部配線素子の試作	55
5.1	積層配線素子の問題点についての改善策	55
5.1.1	上部配線に傾斜のついた積層配線構造	55
5.2	試作プロセス及び使用装置	56
5.3	TMU 325 の試作	58
5.3.1	TMU 325 試作まとめ	58
5.4	転移温度条件出し (TMU334, 335, 336)	59
5.5	TMU 349 の試作	61
5.5.1	Al 上部配線パターニング	61
5.5.2	レジストリフロー及びイオンミリング	62
5.5.3	TES スパッタ	63
5.5.4	TES パターニング	64
5.5.5	RT 測定	66
5.5.6	TMU 349 試作まとめ	70
5.6	TMU 349 の断面観察	70
第 6 章	傾斜付き積層配線素子の試作	75
6.1	試作プロセス及び使用装置	75
6.2	試作 cycle 1	76
6.2.1	wafer01(TMU 370)	77
6.2.2	wafer05(TMU371)	79
6.3	wafer 01, 05 の断面観察	82
6.3.1	wafer 01	83
6.3.2	wafer 05	87
6.3.3	断面観察のまとめ	91
6.4	試作 cycle 2	91
6.4.1	wafer 06(TMU 389)	91
6.4.2	wafer 02(TMU 387)	91
6.4.3	cycle 2 まとめ	93

6.5	転移温度条件出し (TMU390、391、392)	94
6.6	試作 cycle 3	96
6.6.1	wafer 07 (TMU 394)	96
6.6.2	wafer 03 (TMU 393)	97
6.6.3	cycle 3 まとめ	97
6.7	AFM による傾斜観察	97
第 7 章	実験装置と性能評価方法	101
7.1	無冷媒希釈冷凍機	101
7.2	冷凍機の性能評価	105
7.2.1	冷却時間	105
7.2.2	温度ゆらぎ	106
7.3	冷凍機の測定環境整備	107
7.4	カロリメータの組み込み	110
7.5	性能評価方法	110
7.5.1	R-T 特性	110
7.5.2	臨界電流測定	110
7.5.3	SQUID に接続されていない場合	110
第 8 章	まとめと今後	113
8.1	まとめ	113
8.2	今後の改善点	114

第1章 序論

1.1 X線天文学

1.1.1 X線天文学の展開

宇宙からX線がやってくることは、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が偶然発見されたものである。この時代になって初めて観測された理由は、宇宙からのX線は地上に届かないからである。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地上に届くことはなく、上空ないし大気圏外に出なければ観測できないが、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)。

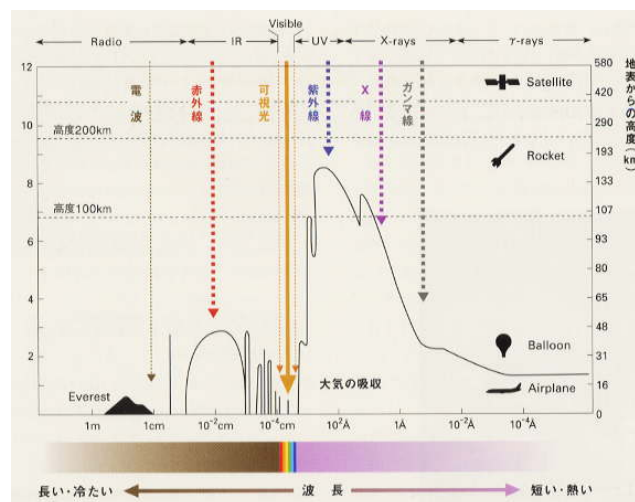


図 1.1: 宇宙空間からの電磁波が到達できる高度。

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 $> 10 \text{ keV}$ 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、2015年度に打ち上げ予定である。

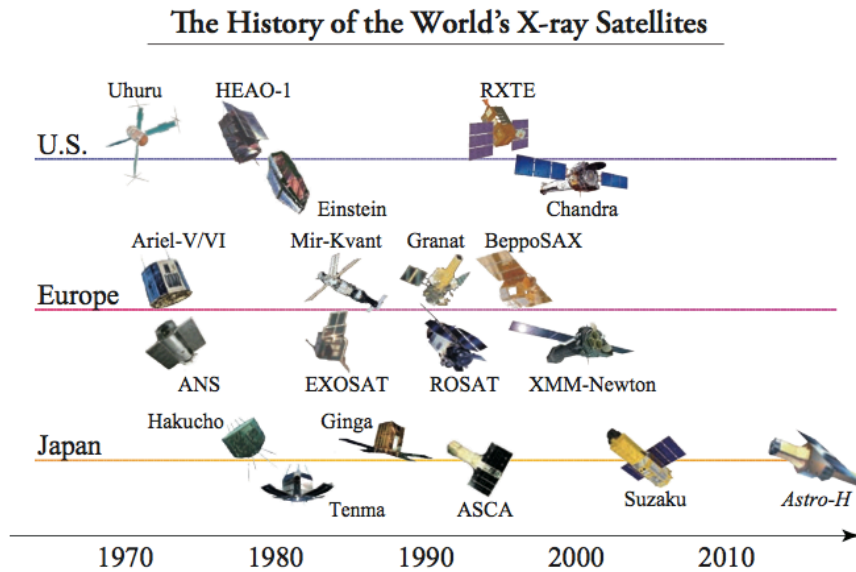


図 1.2: 世界の宇宙 X 線観測衛星の歴史。

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、ミ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・ γ 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 γ 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・ γ 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、宇宙における高エネルギー、高温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・ γ 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エネルギー、高温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。

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。以下に主な検出方法と検出器の種類を分類する (表 1.1)。

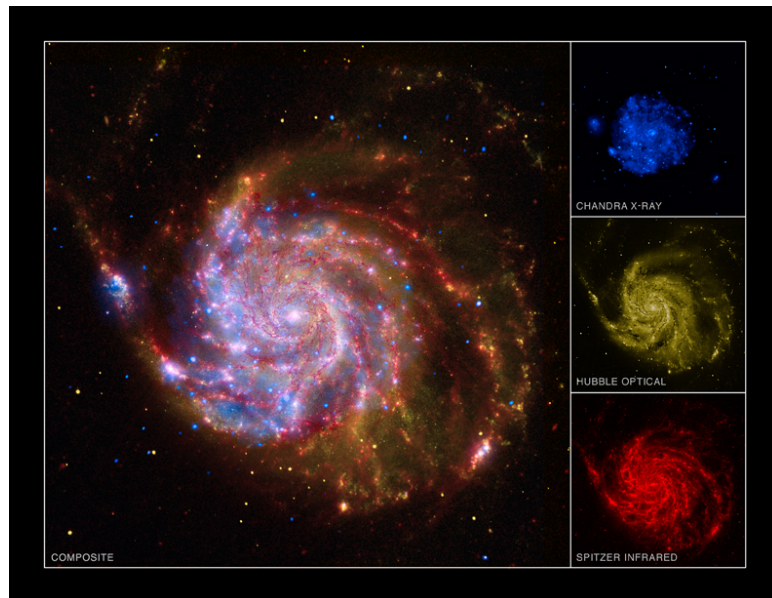


図 1.3: おおぐま座の渦巻き型銀河の各波長でのイメージ (青: X 線 (*Chandra* 衛星)、黄: 可視光 (*Hubble* 宇宙望遠鏡)、赤: 赤外線 (*Spitzer* 宇宙望遠鏡)。

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 γ 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。キャリアの

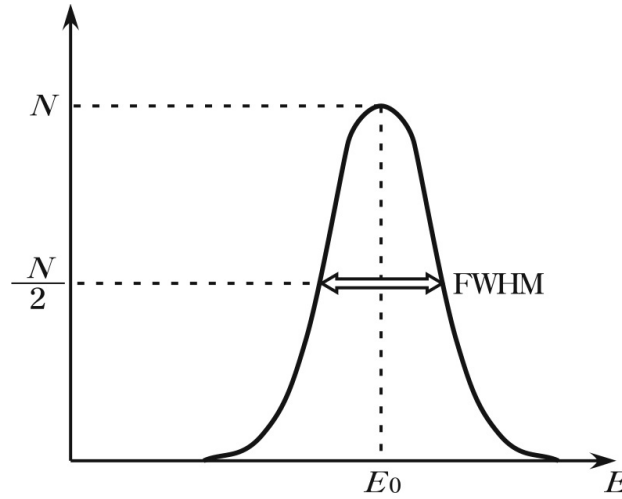


図 1.4: 単色 X 線入射時の計測スペクトル。

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 ΔE 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 ΔE 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 keV に対するエネルギー分解能は 960 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 keV に対するエネルギー分解能は 480 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。

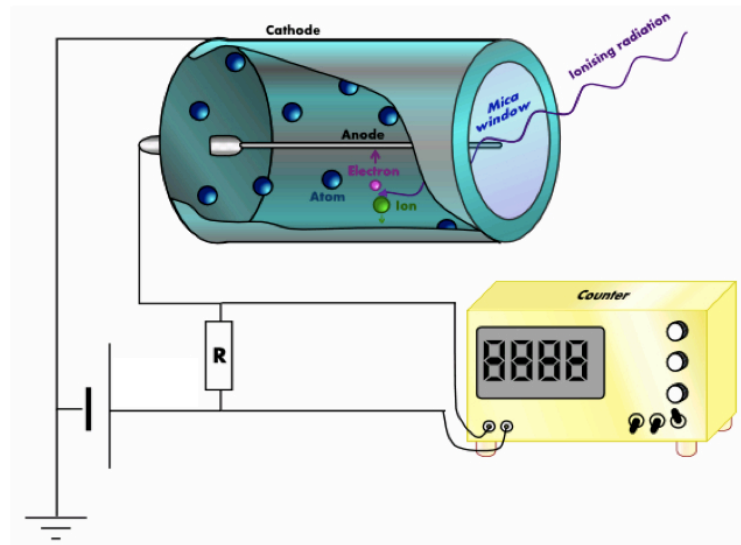


図 1.5: Geiger-Muller 計数管。

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。

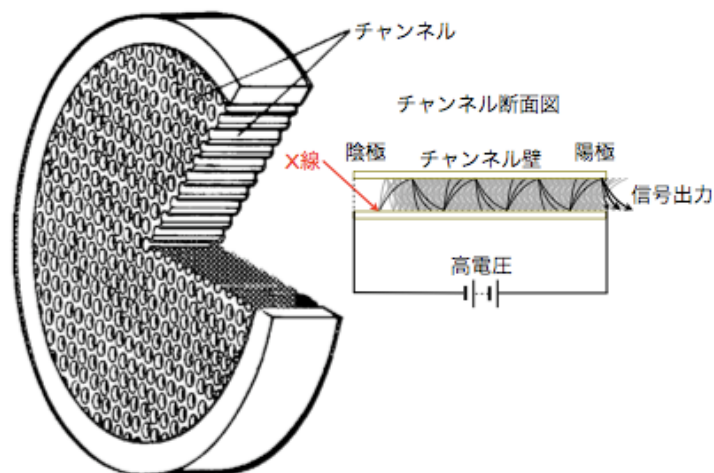


図 1.6: マイクロチャンネルプレート。

1.3.3 半導体検出器

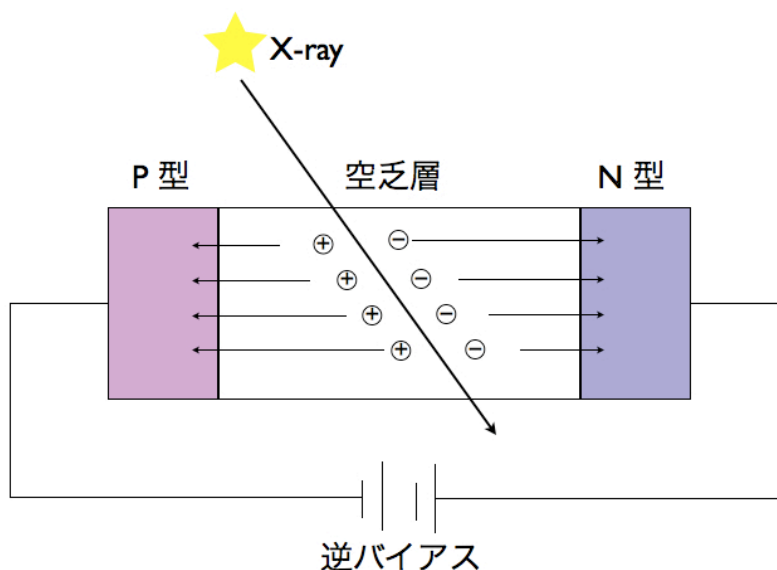


図 1.7: 半導体検出器の測定原理。

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で、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 5.9keV の X 線に対して $\Delta E_{FWHM} = \sim 120$ 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過し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、 ~ 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 ~ 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 ΔE_{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 α_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 6×6 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 α_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

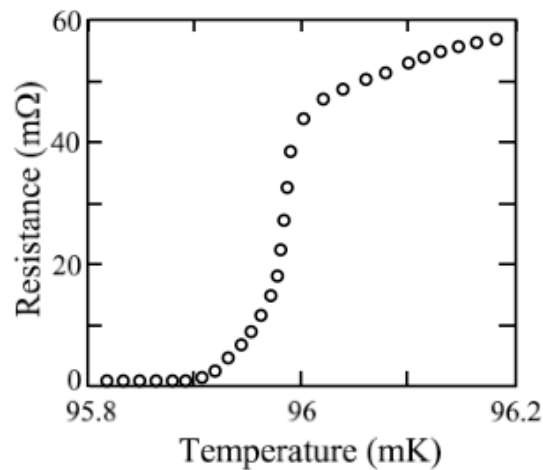


図 1.9: 超伝導薄膜の相転移端。

され、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)。常伝導金属中に磁性原子 (エルビウム Er が主流) をドーピング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。

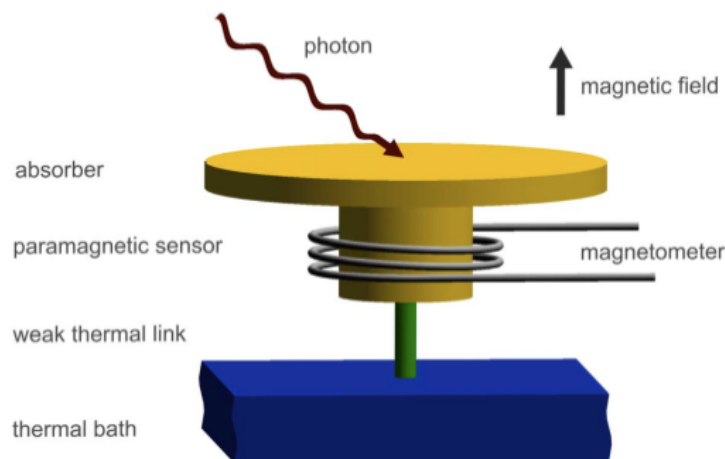


図 1.10: 金属磁気マイクロカロリメータ (MMC) の概要図。

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)。

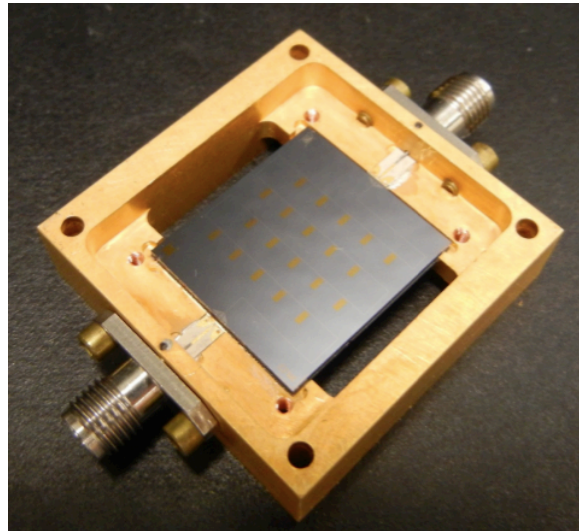


図 1.11: 動インダクタンス検出器 (KID)。

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 4% 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 - 10^7 程度のガスとなって分布していることが示唆された。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

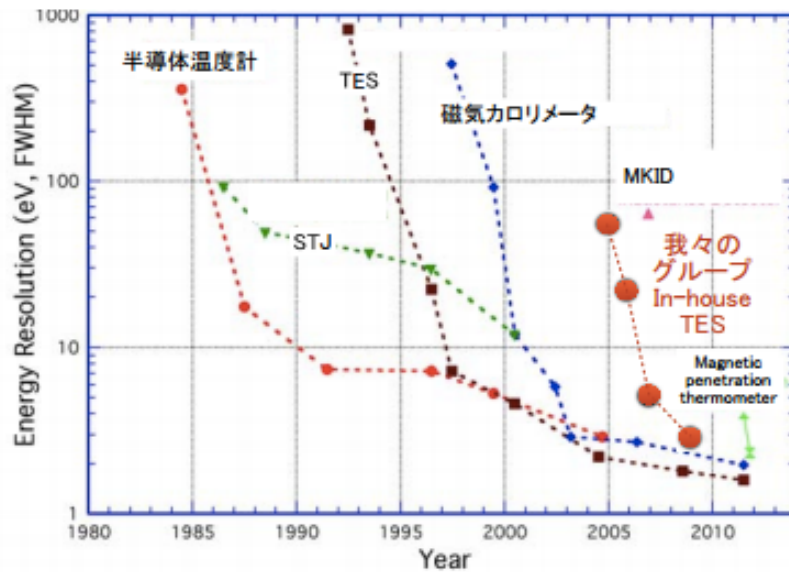


図 1.12: X 線分光検出器のエネルギー分解能の変遷。

つながるのである (図 1.13)。 10^5 - 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 - 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 からの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} /erg/cm²/sr があれば、全バリオンの 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性能は $S\Omega \sim 100$ cm²deg² となる。また、図 1.17 は DIOS の視野 × 面積、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

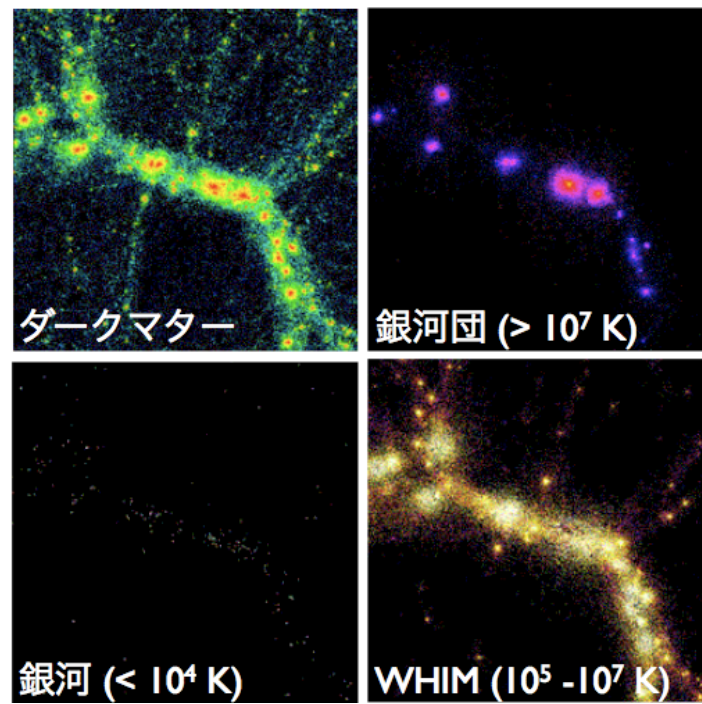


図 1.13: 流体シミュレーションによる銀河団周辺の物質分布。

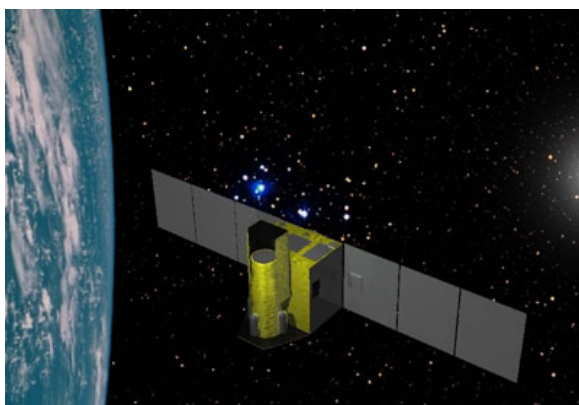


図 1.14: DIOS 衛星。

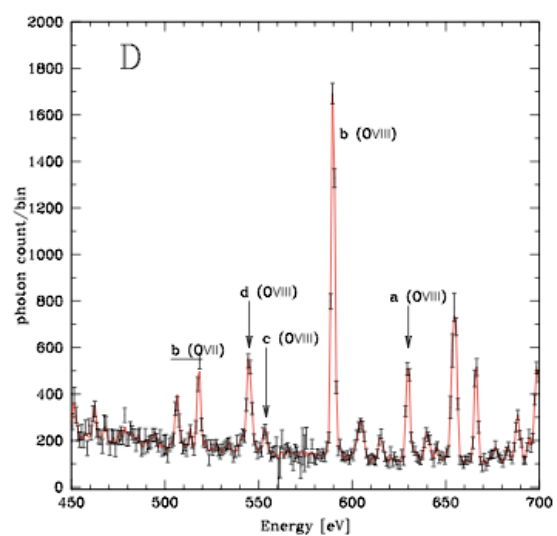


図 1.15: DIOS の 10 万秒の観測で期待される WHIM からのエネルギースペクトル。

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くなく衛星の 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 16×16 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。

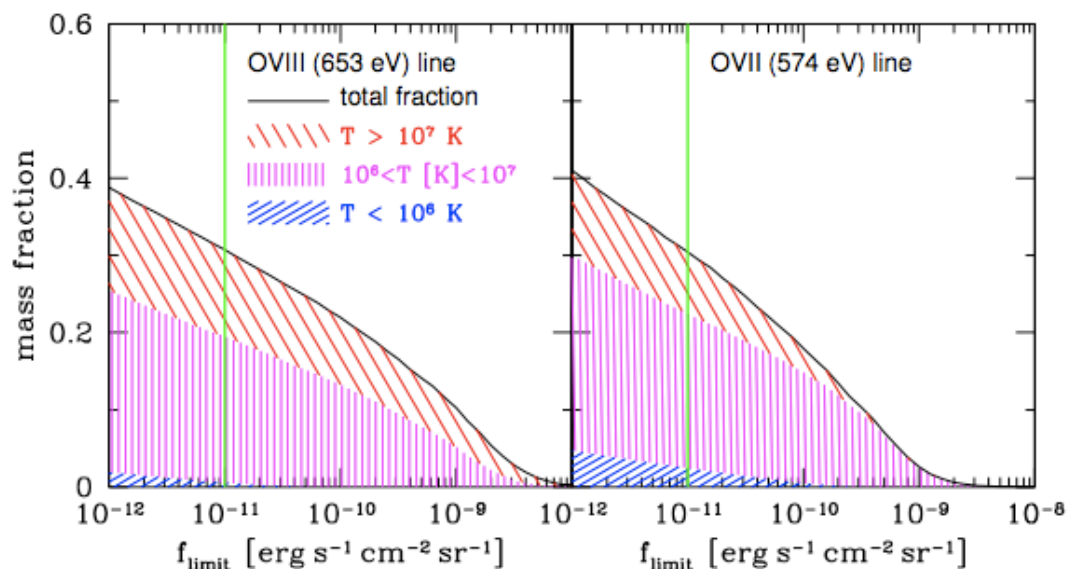


図 1.16: 2 種類の酸素輝線を使って検出できる近傍宇宙のダークバリオンの割合 (横軸: 検出器の検出限界、緑の縦線: *DIOS* の典型的な検出限界)。

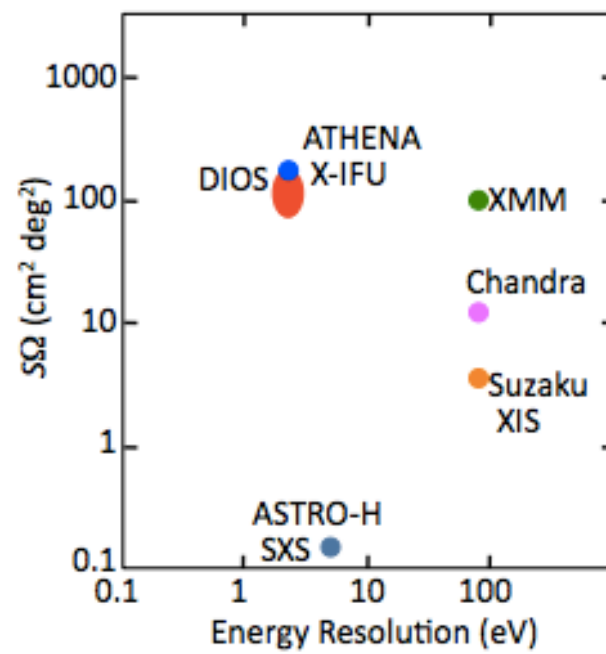


図 1.17: いろいろなミッションの広がった輝線放射に対する観測能力の比較 (縦軸: 視野 × 面積、横軸: エネルギー分解能)。

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 と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。

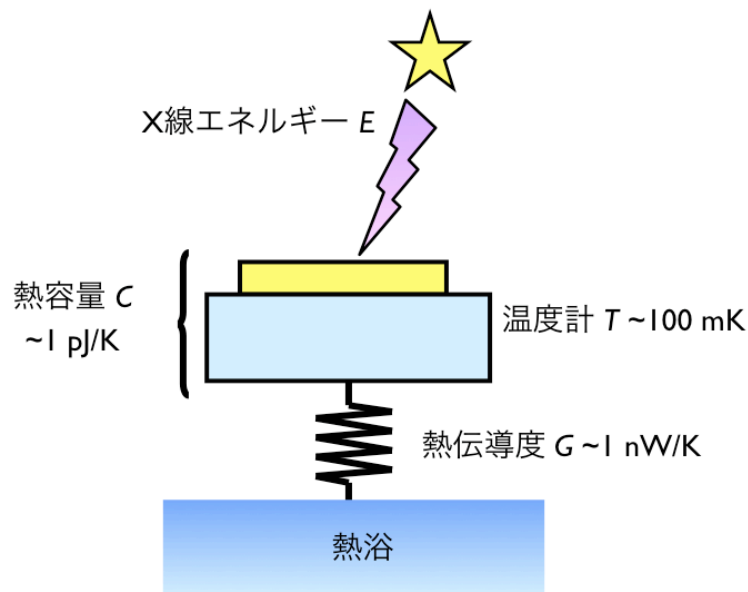


図 2.1: マイクロカロリメータの構造

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

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 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

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 α を、

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

として定義する。この値は無次元量であり、 α 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、即座にそのエネルギーのほとんどが熱に変わる。この際に生じる温度上昇 ΔT は

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

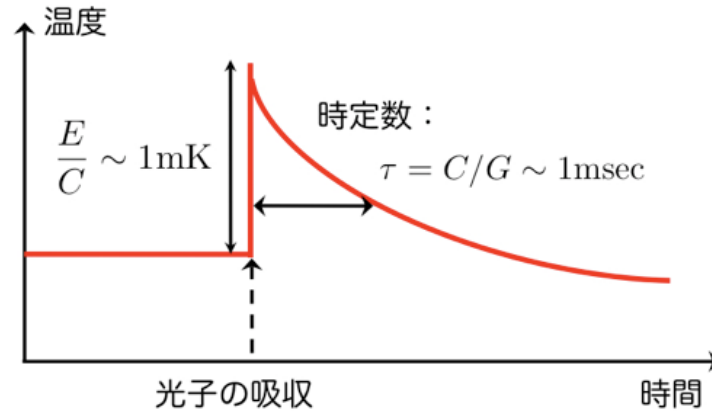


図 2.2: X 線入射によるマイクロカロリメータの温度変化。

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 τ 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 ΔT 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 ε 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 ~ 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 α 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。

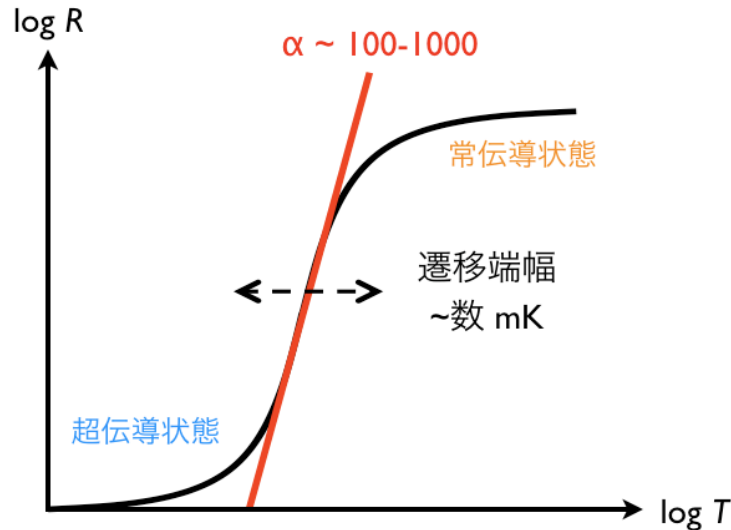


図 2.3: 相転移点付近での温度に対する抵抗の変化。

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

生ずる電氣的な熱雑音 (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。

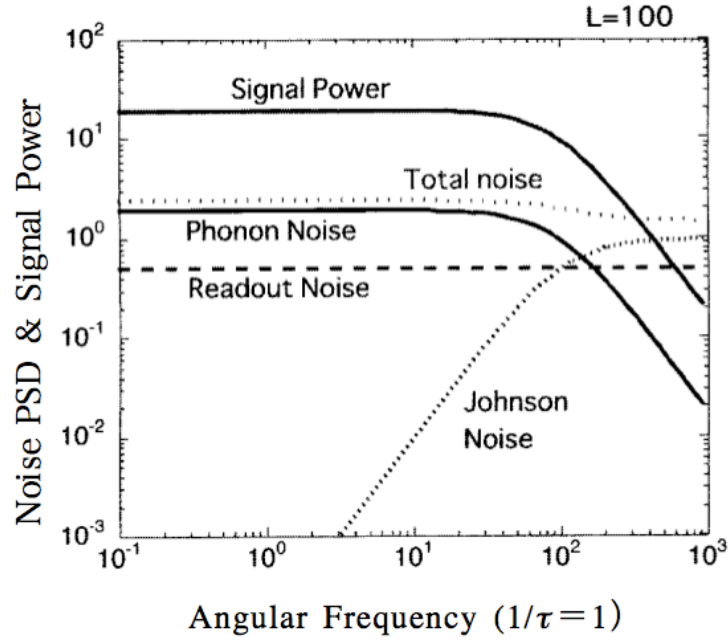


図 2.4: 理想的な TES 型 X 線マイクロカロリメータの X 線信号の電力スペクトルとノイズの電力スペクトル密度。

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、 ΔE 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。 α 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 α 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 α 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、 β 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。

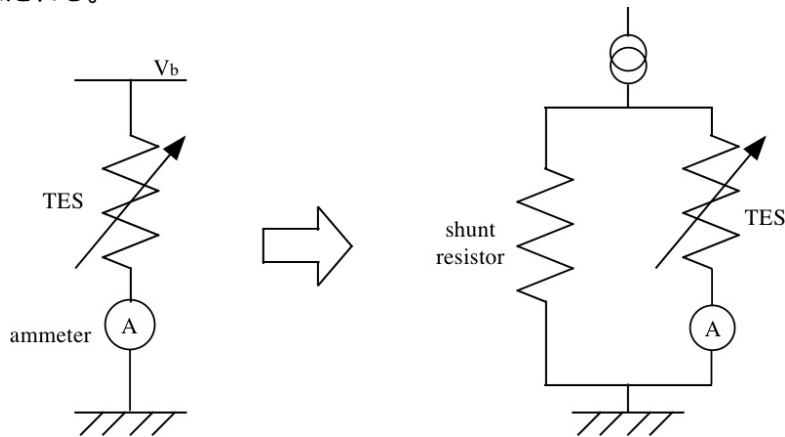


図 2.5: 左図: 定電圧バイアス 右図: シャント抵抗を使って疑似的に作る定電圧バイアス

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 ΔT 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、 τ_{eff} は

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

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 ($T_{bath}^n \ll T^n$) 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、 α 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

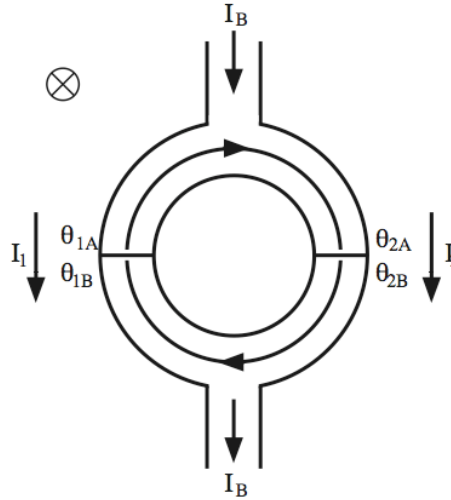


図 2.6: dc-SQUID の模式図

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、 θ_1 と θ_2 はそれぞれのジョセフソン接合での位相差、 Φ はリングを貫く磁束、 Φ_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

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

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。

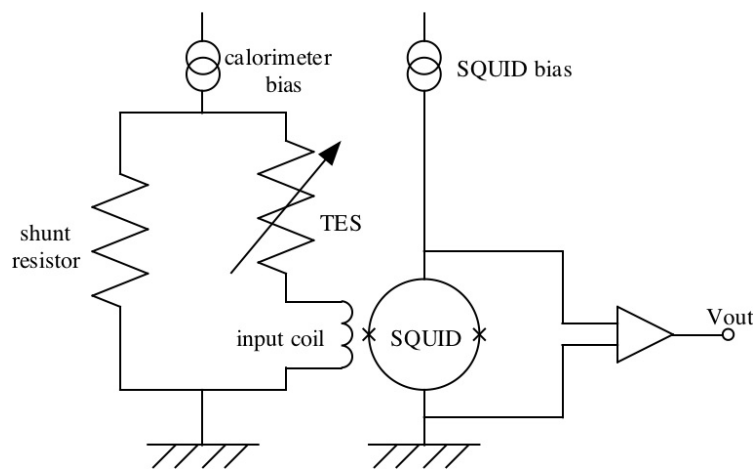


図 2.7: SQUID を用いたカロリメータの読み出し系

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通る電流を利用し、温度変化による抵抗の変化から赤外線の信号を検出した。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通る電流を利用し、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 Ω 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 NASA/GSFC をはじめ、様々な機関で行われている。NASA/GSFC では、TES である超伝導金属に Mo、常伝導金属に Au を使用した二層薄膜の構造を採用している。多くのミッションへ向けた素子開発をしており、中でも太陽フレアからの X 線ジェット観測に向けた TES カロリメータで $\Delta E_{\text{FWHM}}=1.6 \text{ eV}@5.9 \text{ keV}$ という世界最高性能を達成している。デザインは 32×32 ピクセルのアレイ素子で、 $35 \mu\text{m}$ 角の TES の上に Au のマッシュルーム吸収体が $4.5 \mu\text{m}$ の厚さで形成されている。図 2.8 に最高性能を出した素子の写真を示す。また図 2.9 が 5.9 keV の X 線を照射した際のエネルギースペクトルである。

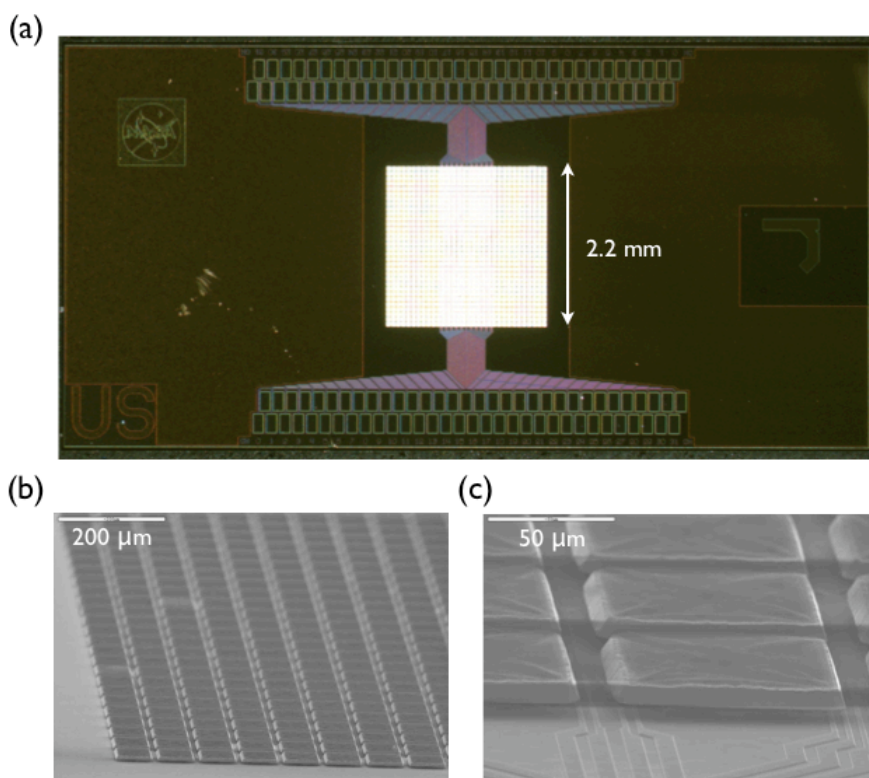


図 2.8: 世界最高のエネルギー分解能を持つ GSFC/NASA の TES カロリメータ。(a) 32×32 ピクセルアレイの全体像。(b) TES カロリメータの SEM イメージ。(c) (b) の拡大イメージ。

アメリカの NIST (National Institute of Standards and Technology) でも TES カロリメータの開発がなされており、こちらでは TES に Mo と Cu の 2 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、 $\Delta E_{\text{FWHM}}=2.4 \text{ eV}$ という高性能を達成している。また、こちらではより高いエネルギー帯域である γ 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 mm 角の Sn が吸収体として形成されている。こちらは 103 keV の γ 線を照射し、 $\Delta E_{\text{FWHM}}=42 \text{ eV}$ を達成している。図 2.10 に NIST の中で最高性能である TES カロリメータの写真とエネルギースペクトルを示す。図 2.11 には γ 線カロリメータの写真とスペクトルを示す。

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。

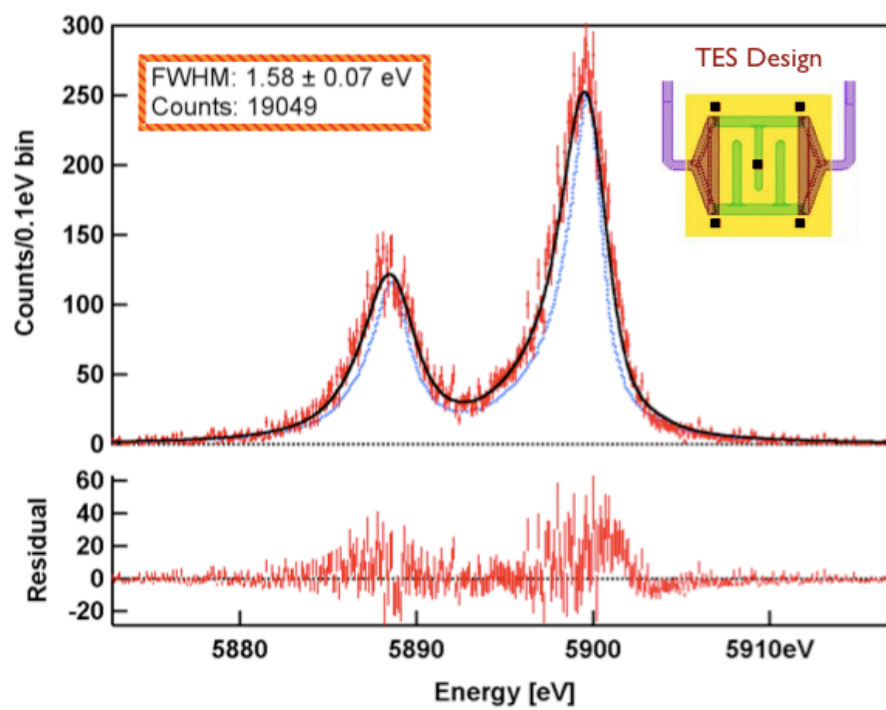


図 2.9: GCSF/NASA の TES カロリメータに X 線を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

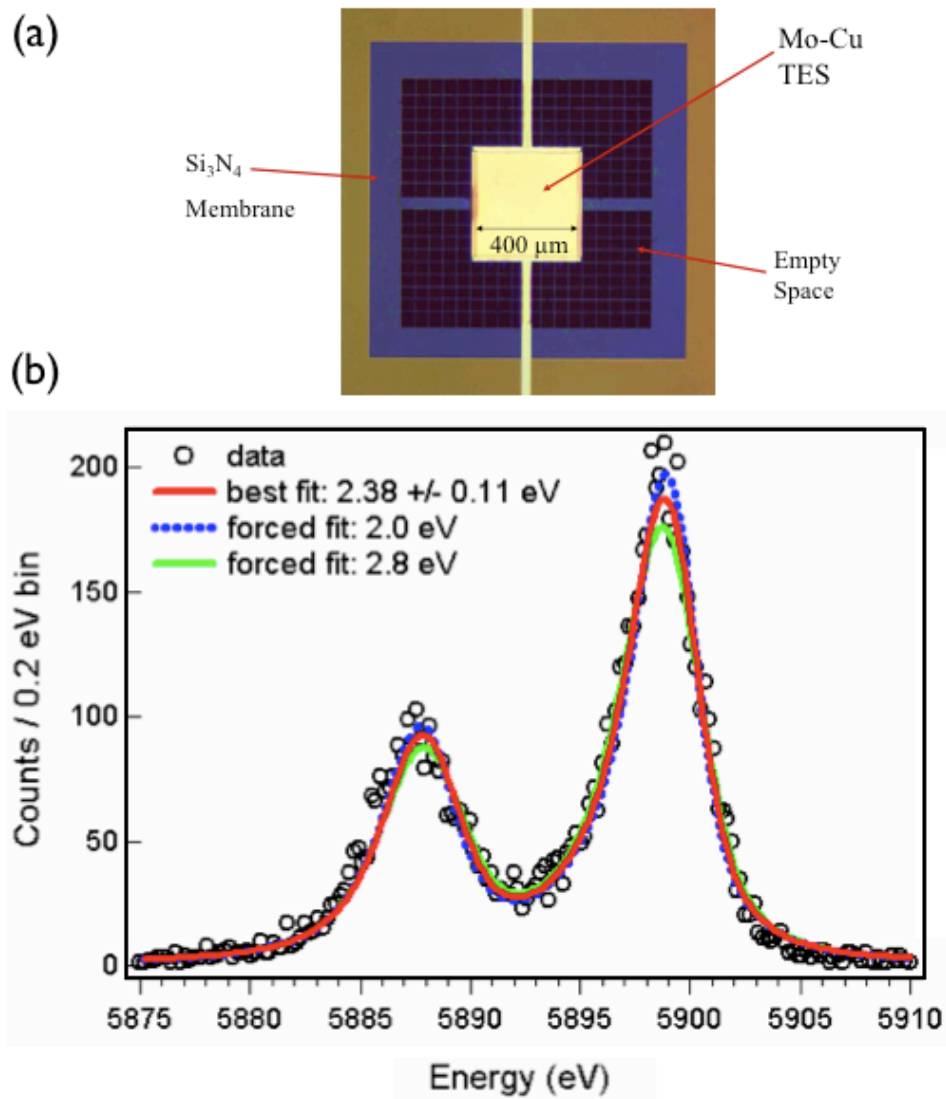


図 2.10: (a) NIST の TES カロリメータ。 (b) X 線を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

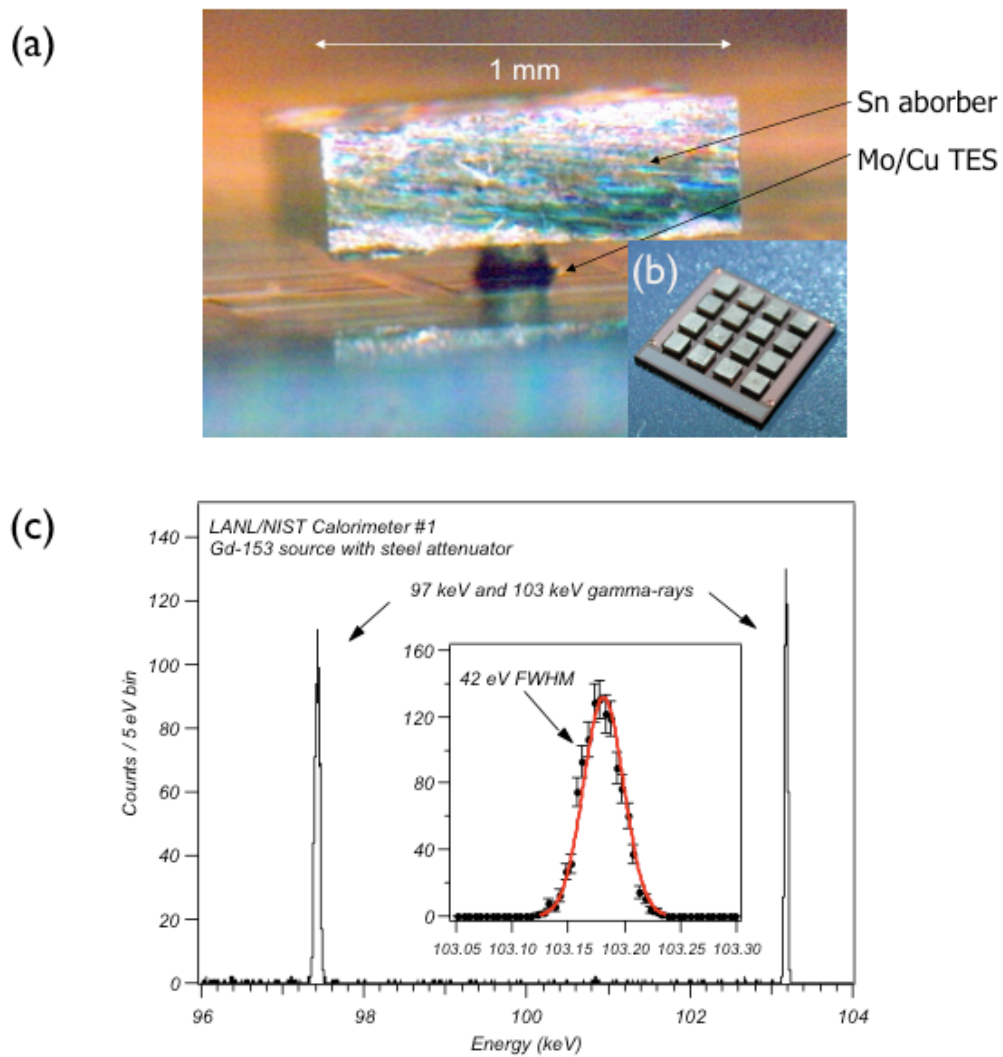


図 2.11: (a) TES 型 線カロリメータの 1 ピクセルの写真。 (b) 線カロリメータの全体像。 (c) 線を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

第3章 これまでの日本の開発状況

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単ピクセル素子、多ピクセル素子の開発結果を述べる。

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 4×4 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 ~ 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であるが、現実的には α 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 α 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また、単体金属に多い。

上記に理由で、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。このため、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 ~ 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効果がある。この効果は「近接効果」と呼ばれている。この 2 つの効果を用いることによって、 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 自作した素子の最高性能

これまでに自作した $200 \mu\text{m}$ 角の TES カロリメータ素子 (TMU146-4d) では、5.9keV の X 線に対して $\Delta E_{\text{FWHM}} = 2.8$ 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 $\Delta E_{\text{FWHM}} = 1.6$ 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。

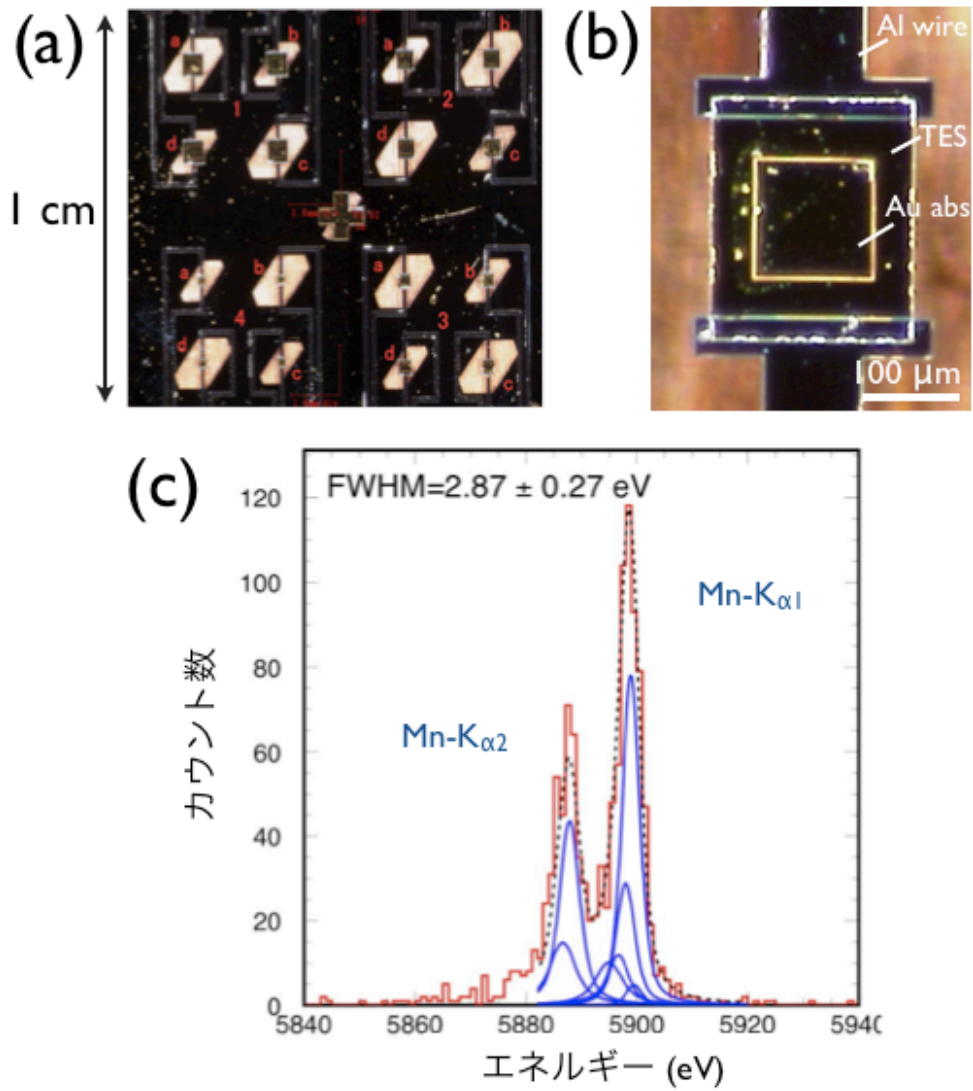


図 3.1: 自作した最高性能素子 (TMU146-4d)。(a) 16 ピクセル全体。(b) 1 ピクセルの拡大写真。(c) Mn-K α を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

3.2 多素子の開発

3.2.1 自作した素子の最高性能

衛星搭載を目的とし、 16×16 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。この 256 ピクセル素子に 5.9keV の X 線を照射し、 $\Delta E_{\text{FWHM}} = 4.4 \text{ eV}$ 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)。

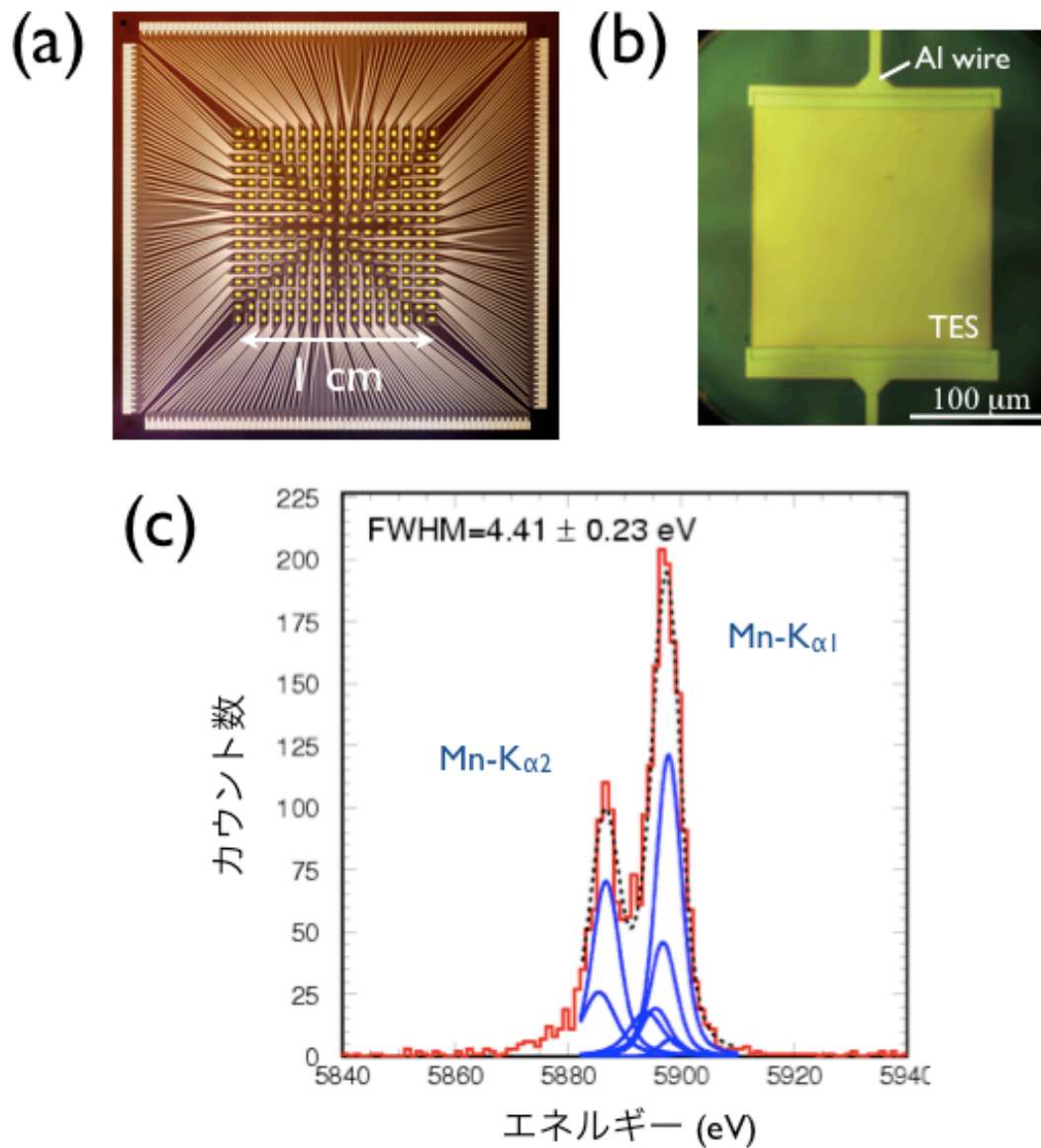


図 3.2: MHI 素子。(a) 基板全体図。(b) 1 ピクセルの拡大写真。(c) Mn-K α を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

3.3 素子の製作方法

上記の性能を出した素子の製作には MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) 技術を利用している。MEMS はシリコンプロセス技術を用いることにより、デバイスの小型化はもちろんのこと、多数のマイクロデバイスをサブミクロンの精度で製作することが可能であり、医療・バイオ分野、各種センサ分野など幅広い分野への研究開発が活発に行われている。

ここでは精密加工性に優れた MEMS 技術を用いた素子の製作過程を述べる。

3.3.1 プロセスフロー

TES カロリメータ素子の製作工程は以下のような 6 段階で構成されている。

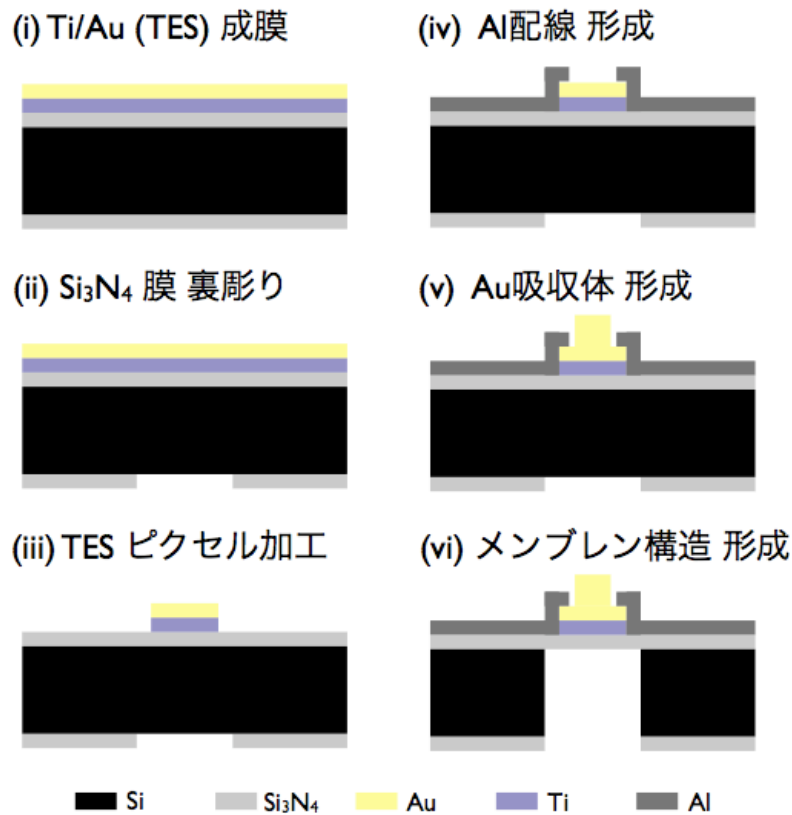


図 3.3: 素子製作の流れ。

3.3.2 TES (Ti/Au) 成膜

TES カロリメータ素子製作では、両面窒化膜 (Si₃N₄ 膜) 付きの Si (110) 基板を使用しており、窒化膜は主にオランダの C2V 社に依頼し 4inch の Si ウエハー上に成膜してもらっている。Si 基板の厚さは 300 μm 、窒化膜は 400 nm となっている (図 3.4)。素子製作にはこの 4inch の窒化膜付き Si 基板を ISAS にあるダイサーで 2 cm 角にダイシングし利用する (図 3.5)。

まず、この 2 cm 角の Si 基板上に TES 部分となる Ti と Au をスパッタリング法により成膜する。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。装置は首都大が所有する ULVAC 社製の超伝導薄膜成膜装置を使用する (図 3.6)。 $\sim 10^{-6}$ 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

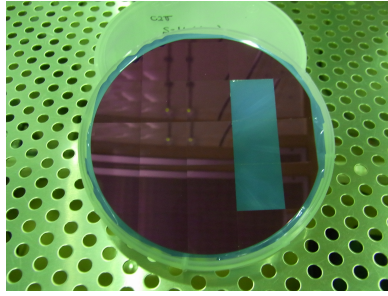


図 3.4: 4inch Si 基板。

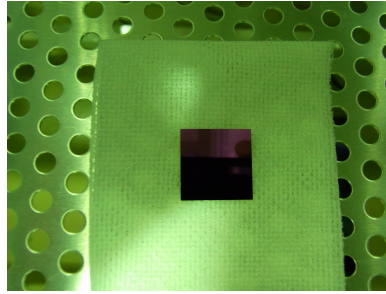


図 3.5: Ti/Au 成膜前の 2 cm 角 Si 基板。

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 DC マグネトロンスパッタによって Ti と Au の薄膜を成膜することが出来、準備室と成膜室の 2 つで構成されている。成膜室の真空度は $\sim 1 \times 10^{-8}$ Pa まで到達可能であるが、経年劣化等により現在は $\sim 10^{-7}$ Pa 程度となっている。スパッタ装置の仕様は表 3.1 に示す。前章で述べたように、この TES の転移温度がカロリメータの動作温度に効いてくるので、最適な動作温度である $\sim 100 - 150$ mK で TES が転移温度するように、Ti/Au の膜厚を最適化しなくてはならない。図 3.6 は使用したスパッタ装置である。準備室と成膜室と分かれており、準備室では板を交換した

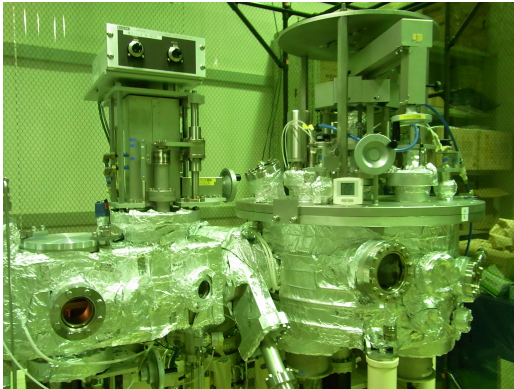


図 3.6: Ti/Au スパッタ装置。

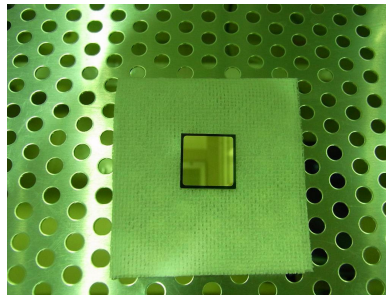


図 3.7: Ti/Au が成膜された Si 基板。

表 3.1: Ti/Au スパッタ装置の仕様。

準備室 到達真空度	$\sim 1 \times 10^{-6}$ Pa
準備室 基板収容枚数	$\phi 2$ インチが 3 枚
成膜室 到達真空度	$\sim 1 \times 10^{-8}$ Pa
成膜室 基板収容枚数	$\phi 2$ インチが 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 Au 191.3 nm/min
膜厚分布	± 5 %以内

り逆スパッタを行い、成膜室では Ti と Au をスパッタする。準備室と成膜室はゲートバルブを挟んでつ

ながっており、成膜室を大気にさらすことなく準備室を開けて基板の交換を行う事が出来る。この為、成膜室は高真空対応となっており $\sim 1 \times 10^{-7}$ Pa まで到達し、不純物の少ないクリーンな環境で成膜する事が出来る。なお、このスパッタ装置はクリーンブースの中に置かれ、基板交換で準備室を開ける時に入るダストの量を最小限に抑えてある。

3.3.3 裏面 Si_3N_4 膜の裏彫り

次に、Si 基板の裏面にある Si_3N_4 膜を DRIE (Deep Reactive Ion Etching) という方法で除去する。

これはメンブレン構造形成のための 1 プロセスである。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、 Si_3N_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。 Si_3N_4 膜のみにするためには、基板の Si 部分を除去しなくてはならないが、この工程は一番最後の KOH によるウェットエッチングで行う。だが、 Si_3N_4 膜は KOH にはほとんど腐食されないので、予め除去しておかなければならない。

そこで登場するのが RIE (反応性イオンエッチング) 法である。RIE 法では、イオンの物理的なスパッタ効果と、ラジカルの化学的なエッチング効果の相乗効果によって、異方性に優れたドライエッチングを行うことが可能である。装置は宇宙研のクリーンルーム内にある三菱重機製の誘導結合プラズマ (Inductively Coupled Plasma: ICP) 式 RIE 装置を使用しており、エッチングガスは C_4F_8 、 SF_6 の 2 種類である (図 3.8)。



図 3.8: ICP 式 RIE 装置。

DRIE 法で裏彫りをする前に、まず Si_3N_4 膜上に裏彫りする形にパターンニングを行う必要がある。裏側の Si_3N_4 膜にスピコーター (図 6.1) でポジ型レジスト S1818G を薄膜状かつ均一に塗布し、さらに基板との密着性を高めるために 115℃ に熱せられたベーキングオーブン (図 3.10) で 2 分半バークを行う。この際、TES を DRIE のエッチングガスから保護する為に TES 側にもレジスト S1818G を塗布しておく。レジストには ROHM & HAAS 社製のポジ型レジスト Shipley series S1818G を使用しており、感光性を持ち、フォトリソグラフィ工程で使用するフォトレジストである。この疎水性のフォトレジストは基板との密着性が悪いため、予めプライマーとよばれる親和剤 HMDS (ヘキサメチレンジシラン) を基板に塗布しておき、その後レジストを塗布する (図 3.11)。

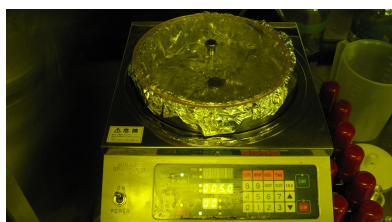


図 3.9: スピコーター。 図 3.10: ベーキングオーブン。 図 3.11: HMDS とレジスト。

次に、レジストを均一に塗布した基板に、フォトマスクと呼ばれる遮光パターンを通して露光し、フォトレジストに DRIE を施すデザインを転写する。装置は宇宙研にあるミカサ社製マスクアライナー MA-101 (紫外線露光) を使用している (図 3.12)。その後、基板を東京応化社製現像液 NMD-3 (ポジ型レジスト用現像液) に浸し、現像する。感光されたレジストが溶解性となって現像液の樹脂と共に溶失し、パターンができる仕組みである。

以下にレジスト S1818G のフォトリソグラフィーの条件をまとめる。

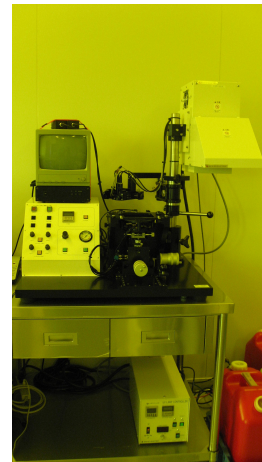


図 3.12: アライナー。

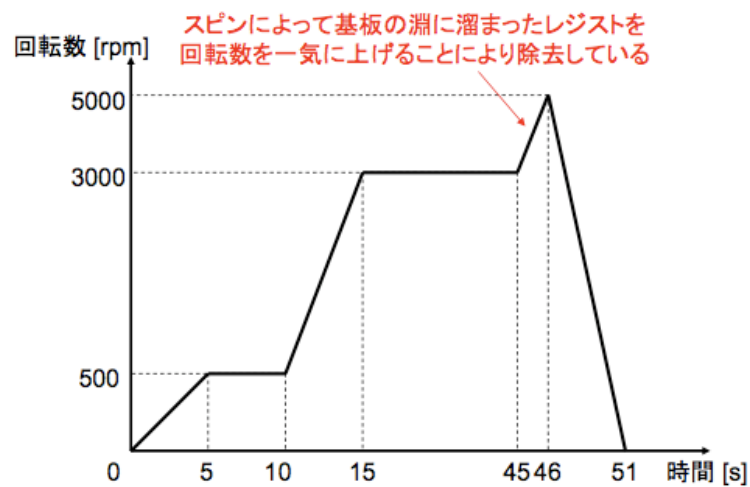


図 3.13: S1818G でのスピナーの回転数。

表 3.2: レジスト S1818G のリソの条件。

スピナー	3000 rpm , 30 s
ベーク	115 , 150 s
アライナー露光時間	5 s
現像時間	~ 180 s

このパターニングされた基板を RIE 装置 (図 3.8) に組み込み、ドライエッチングによって Si_3N_4 膜を掘り、最後にアセトンでレジストを除去すれば裏彫り終了である。

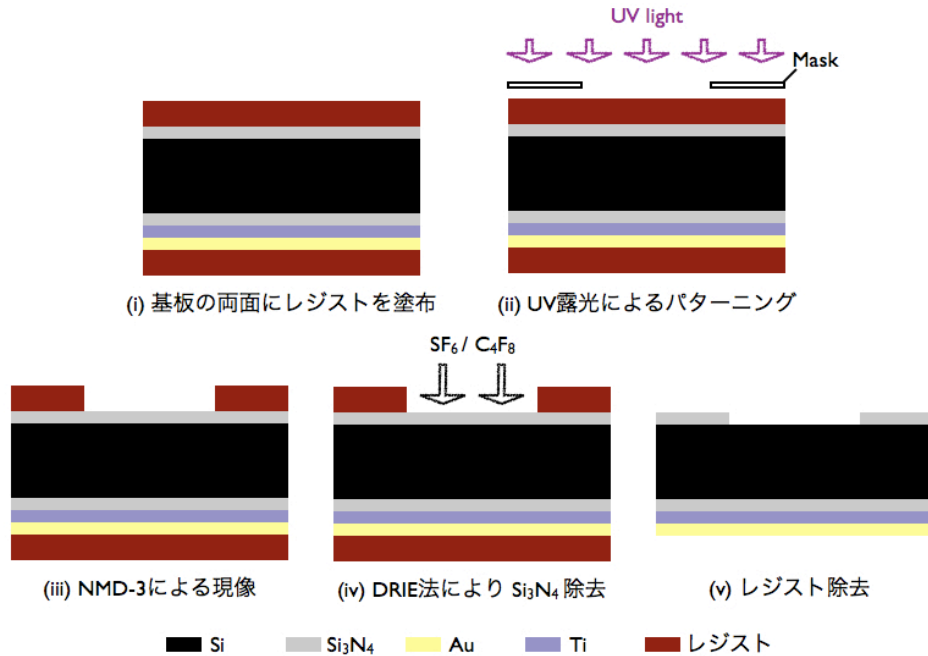


図 3.14: 裏面 Si_3N_4 膜 除去プロセスフロー。

3.3.4 TES パターニング

次は TES のピクセル加工である。こちらでも裏彫りと同様に、フォトリソグラフィーによってパターニングし、ウェットエッチングによって Ti と Au を加工する。フォトリソグラフィーによるパターニングの方法は DRIE 法による裏彫り時と同様で、HMDM・レジスト S1818G を Si 基板の TES 側に塗布し、ベーキングオーブンで固化させ、マスクアライナーで露光する。現像液 (NMD-3) に浸し、余分なレジストを除去、レジスト上に TES のパターンを転写させる。フォトリソグラフィーの各工程のレシピは表 3.2 の通りである。

TES のウェットエッチングではエッチング液 (エッチャント) に、Ti は 60℃ に加熱した 35 % の過酸化水素水、Au は関東化学社製の AURUM-101 というヨウ素系溶液を使用している。それぞれのエッチング反応とレートは表 3.3 に示す。まず Au のエッチングを数十秒ほど行い (膜厚に準ずる)、次に Ti エッチングを約 3 時間行う。Ti のエッチングが長丁場である理由は、サイドのオーバーエッチングに時間がかかるためである。Ti のサイドをエッチングし、Au のオーバーハング構造にすることによって、超伝導金属の Ti が常伝導金属である Au に上から覆われ、側壁を流れる電流が超伝導転移特性に寄与する影響を打ち消す効果を示すのである (図 3.16)。最後にレジストをアセトンで除去し、TES のパターニングは完了する。

表 3.3: Ti/Au エッチャント。

Ti etchant	60 , H ₂ O ₂
Ti etching rate	13 nm/min
Ti chemical eq.	$\text{Ti} + 2\text{H}_2\text{O}_2 + 4\text{H}^+ \rightarrow 4\text{H}_2\text{O} + \text{Ti}^{4+}$
Au etchant	常温 , AURUM-101
Au etching rate	500 nm/min
Au chemical eq.	$2\text{Au} + 3\text{KI}_3 \rightarrow \text{KI} + 2\text{AuI} \cdot \text{KI}_3$

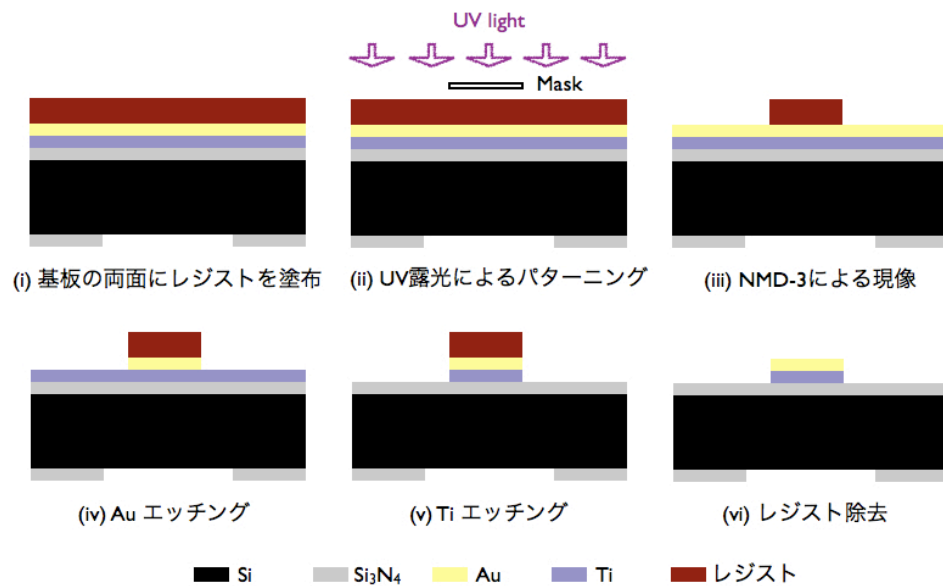


図 3.15: TES パターニングのプロセスフロー。

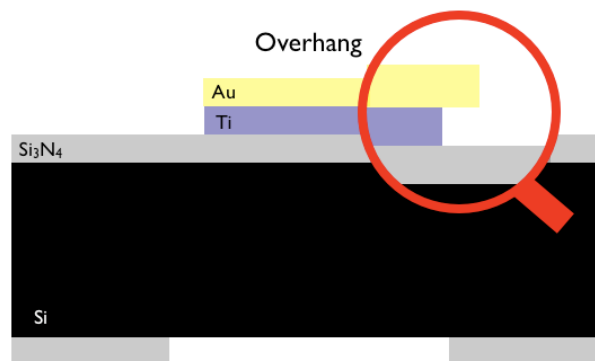


図 3.16: Ti/Au のオーバーハング構造。

3.3.5 Al 配線加工

TES カロリメータでは、TES と SUQUID 間の配線は超伝導で電気抵抗がゼロになることが必要である。そこで、転移温度が 1.2 K である Al を配線に使用し、宇宙研にある CANON-ANELVA 社製 L-210S-FH 装置 により RF マグネトロンスパッタリングを施し、Al 配線を形成する。

表 3.4: Al スパッタ装置の仕様。

成膜室 到達真空度	$\sim 10^{-5}$ Pa
スパッタ時の Ar 圧力	11.7 sccm
成膜速度	200 nm/min

スパッタ原理は Ti/Au スパッタと同じであるが、こちらではプロセスプラズマにおける電界付与の方法として、周波数が 13.56MHz の高周波電界を利用している。高周波放電は電極が絶縁体であっても放電が持続されるので、成膜レートが比較的速く、安定した成膜ができる。スパッタ装置の仕様は表 3.4 に記す。手順としては、TES のパターニングと同様に、フォトリソグラフィーにより Al 配線のパターンをレジストに転写し、その後 Al をスパッタで ~ 200 nm 堆積させ、アセトンによるリフトオフ法でレジストと共に不要な場所の Al を除去し TES の配線が形成される。

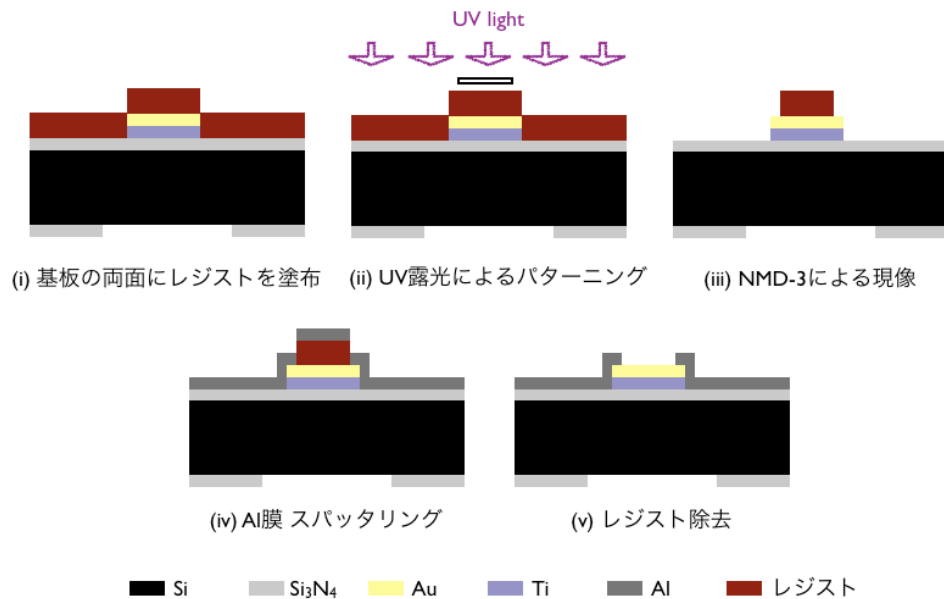


図 3.17: Al 配線形成プロセスフロー。

3.3.6 Au 吸収体形成

表 3.5: 電子ビーム蒸着装置の仕様

成膜室 到達真空度	$\sim 10^{-5}$ Pa
成膜速度	数 10 ～ 数 100 nm/min

TES カロリメータでは、X 線の検出効率を上げるために吸収体として TES の上に Au を成膜している。成膜方法は宇宙研にある SANYU 電子製 EB 蒸着装置 SVC-700LEB による電子ビーム (EB) 真空蒸着法である (図 3.18)。EB 蒸着法とは高真空中で電子ビームをターゲット (蒸着物質) に照射して加熱、気化し、これを基板上に堆積する方法である。汎用される抵抗加熱と比べ、ターゲットのみを局所的に加熱するので、高真空度を保ちつつ、高蒸着レートで膜質の良い金属薄膜が堆積可能である。EB 蒸着装置の仕様は表 3.5 に記す。手順としては、TES や配線のパターニングと同じで、フォトリソグラフィーにより吸収体のパターンをレジストに転写し、その後 Au を EB 蒸着でお好みの膜厚分堆積させ、アセトンによるリフトオフ法でレジストと共に不要な場所の Au を除去し、吸収体が形成される。



図 3.18: EB 蒸着機

3.3.7 メンブレン構造形成

最後は吸収体の熱を熱浴へ排熱するサーマルリンク部分となるメンブレンを形成する。メンブレンは Si_3N_4 膜のみの構造であるため、基板の Si の部分を KOH 33 wt-% 溶液を用いてウェットエッチングを行う。単結晶 Si をアルカリ水溶液でエッチングすると常に一定の形状が得られる事が知られており、Si の結晶異方性エッチングと呼ばれている。結晶異方性エッチングは、結晶面の原子密度の違いや、各方位における Si 原子が有している不対電子の数の違いによって結晶面のエッチングの速度の違いを利用した技術である。Si 結晶は、薬品の種類と濃度などのエッチング条件を選ぶと (111) 面のエッチング速度を (100) 面のエッチング速度に比べて非常に小さくすることができるので、この違いを利用して (111) 面だけを残すことが可能である。本研究で利用している Si 基板は結晶面が (110) 面であるので、(111) 面が 90° 傾斜しており、垂直な側壁をもつ溝を形成でき、33 %の KOH 水溶液を 80°C に加熱してエッチングを 3 ～ 4 時間行う。

手順としては、TES を保護するためにレジスト S1818G を TES 側にスピンコートしてから KOH エッチングに臨む。しかし KOH は強アルカリでほとんどの金属やレジストなど溶かしてしまうので、エッチングする際は基板の TES やアルミ配線が付いている表面を KOH から守る必要がある。そこでシュノーケル形をした治具に基板表面を密閉するようにセットし、350 rpm で対流した KOH 水溶液内に浸す (図 3.20)。Si と水酸化イオンの半反応式は以下の通りである。



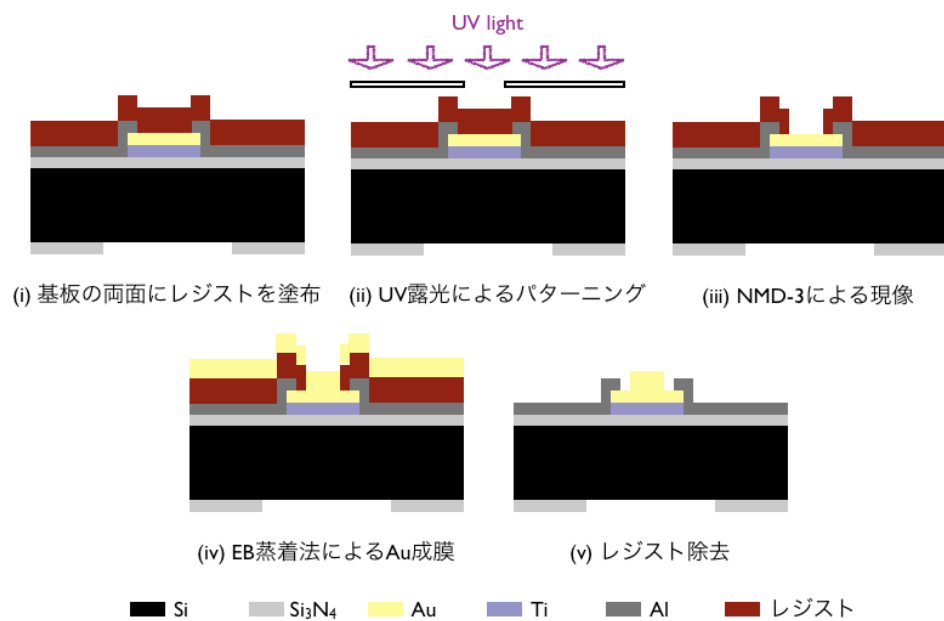


図 3.19: Au 吸収体形成プロセスフロー。

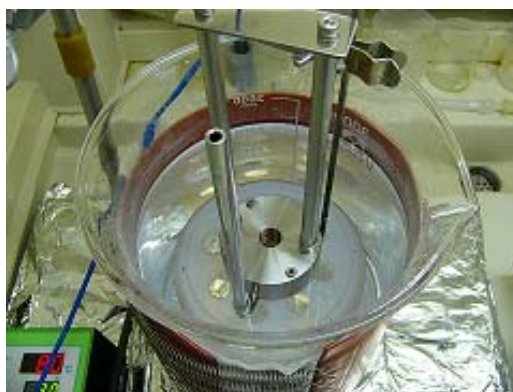


図 3.20: KOH エッチングのセットアップ。

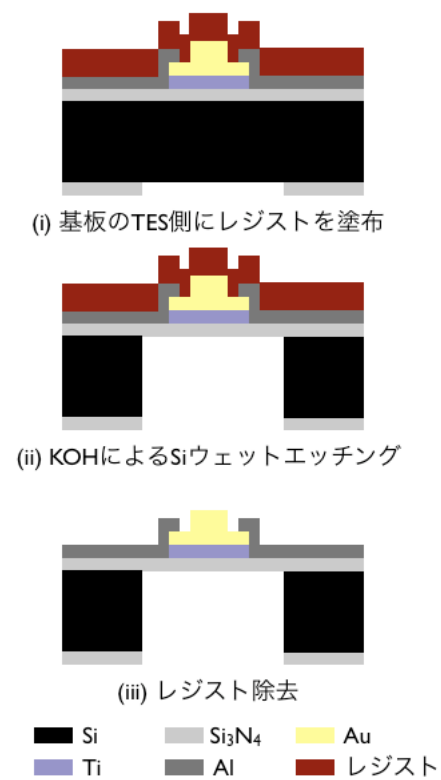


図 3.21: メンブレン形成プロセス。

3.4 製作現場

精密機器を製作するにあたって、塵埃などが存在する空間では、回路の短絡や欠損、また質の良いものを作ることができない。そこで、クリーンルームという空気清浄度が確保された部屋で作業している。空気清浄度は、1立方フィートあたりの空気に粒径 $0.5\ \mu\text{m}$ 以上の塵埃がいくつあるか表すものであり、実際に使用している宇宙研のクリーンルームはクラス 100 である。クラス 100 は、100 個/cf であり、非常に高いクリーン度が保たれている。

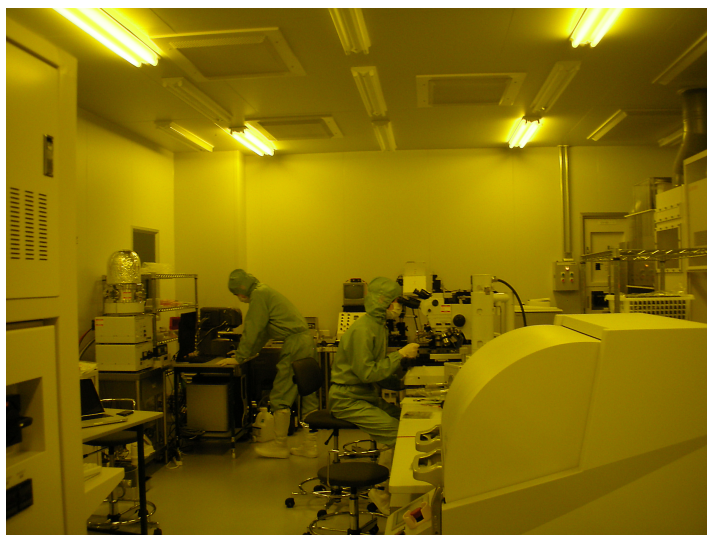


図 3.22: 実際に使用している宇宙研クリーンルーム。

3.5 アレイ化に向けた技術課題

これまでの製作プロセスを経て自作した素子でも十分高性能ではあるが、衛星に搭載するには撮像能力が不十分である。衛星搭載を目指すためには、素子をたくさん並べてアレイ化し、X線の受光面積を拡大する必要がある。このような大規模な TES カロリメータアレイの実現には製作面でいくつかの技術課題が挙げられる。具体的には「アレイ化に適したデザインと製作プロセスの確立」と「アレイ化に伴った読み出し配線の形成」である。また、1ピクセルあたりの受光面積の拡大も要求される。この方法には「マッシュルーム型吸収体 (TES 上に張り出しオーバーハング構造)」が採用されており、現在チーム内で開発中である。また、読み出しシステムの開発も必要である。TES カロリメータは極低温で動作するため、アレイ化では配線からの熱流入、またシステムが複雑になることが問題となる。これらの問題を解決するために、極低温で複数の信号をまとめて読み出す「信号多重化技術」が必要不可欠であり、こちらもチーム内で開発している。

第4章 超伝導積層配線

4.1 背景

我々のグループではこれまでに、 1 cm^2 の面積中に $200\text{ }\mu\text{m}$ 角のピクセルを 16×16 のアレイの素子についてエネルギー分解能 $\Delta E_{\text{FWHM}}=4.4\text{ eV}$ を得た。この素子は 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 4.1）。DIOS の要求する有効面積 1 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 20×20 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

単層配線ではこれまでに製作した 16×16 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う可能性がある。

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こし、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。

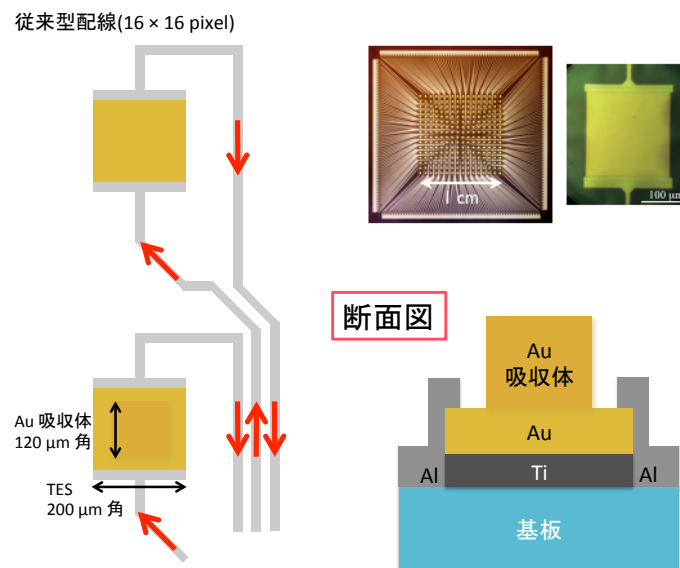


図 4.1: 従来の 16×16 アレイデザイン

4.2 積層配線デザイン

前節で述べた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 4.2 に積層配線デザイン図、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。

積層配線の形成はセイコーインスツル株式会社（以下、SHI 社）及びエスアイアイ・ナノテクノロジー社（以下、SHI NT 社）に依頼し、図 4.3 に示すように 1 枚の $\phi 4$ inch シリコンウェハから 2 cm 角 4×4 ピクセルアレイ基板が導通用・TES 付け用が各 2 枚、2 cm 角 16×16 ピクセルアレイ基板が導通用・TES 付け用が各 1 枚、3.5 cm 角 20×20 ピクセルアレイ基板が導通用・TES 付け用が各 1 枚、計 8 枚切り出せるようになっている。上部配線と下部配線の厚さはそれぞれ 50 nm と 100 nm である。選定の結果、配線は超伝導体であるアルミを採用し、約 1.2 K で超伝導転移する。上下配線のコンタクト部分には、同じく超伝導体であるニオブ ($T_c \sim 9.2$ K) を使用している。

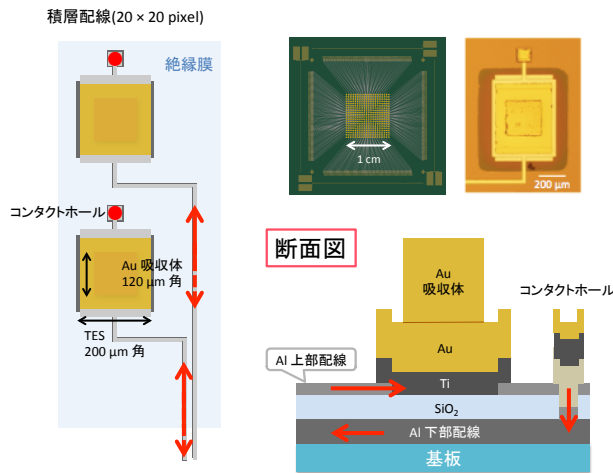


図 4.2: 積層配線 20 × 20 アレイデザイン

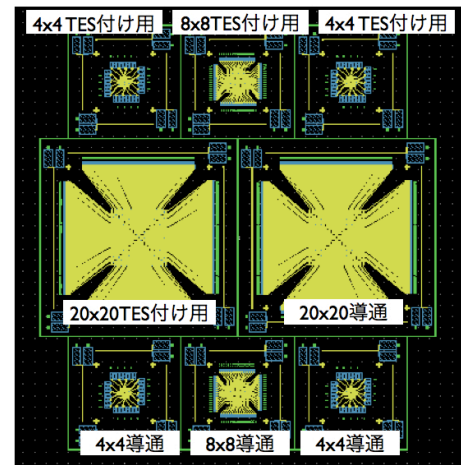


図 4.3: 積層配線マスクデザイン

アレイサイズ	4×4	8×8	20×20
TES サイズ [μm 角]	200	200	200
ピクセルピッチ [μm]	500	500	500
上部配線幅 [μm]	20	20	10
下部配線幅 [μm]	30	30	15
上部配線厚み [nm]	50	50	50
下部配線厚み [nm]	100	100	100

表 4.1: 積層配線デザインの各パラメータ

4.3 製作プロセスの確立

最終的に DIOS に搭載するためには 20×20 アレイが必要であるが、4×4 または 16×16 アレイを用いて試作を行うことで以下の製作プロセスを確立した。

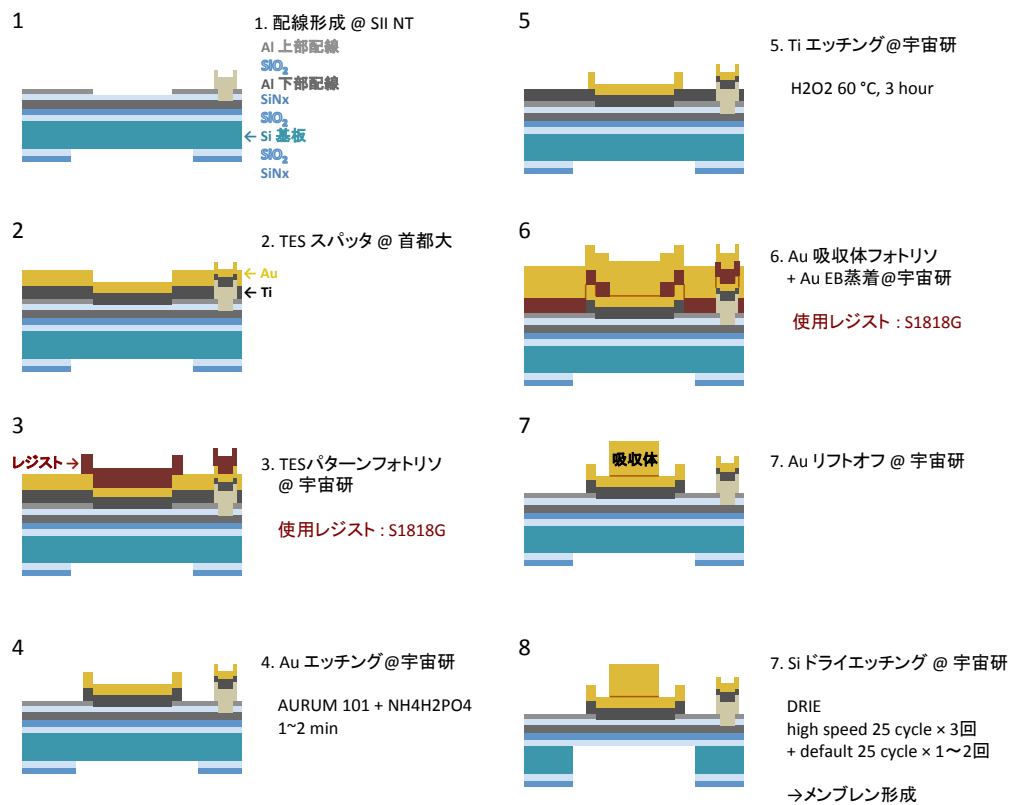


図 4.4: 積層配線素子の製作プロセスフロー

1. 積層配線の形成

SII 社にて、まず 4 inch シリコンウェハの両面に酸化膜及び窒化膜を成膜する。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。次に、配線構造を形成する。スパッタリング法を用い 100 nm の厚さのアルミ薄膜を形成した後、混酸アルミという酢酸・硝酸・リン酸の混ざったエッチャントにてエッチングし下部配線パターンを形成する。その上層に絶縁膜となる SiO_2 を 150 nm 成膜し、コンタクトホール部分は反応性イオンエッチング (Reactive Ion Etching: RIE) 法を用いて膜の除去を行う。上部アルミ配線については下部配線と同様に、50 nm 成膜した後に混酸アルミにてエッチングを行い、パターンを形成する。最後に、コンタクトホールの強化のためにニオブを成膜する。絶縁膜が 150 nm の厚さに対し上部配線が 50 nm と薄いので、被覆性の悪い上下配線のコンタクトを補強する役割となる。スパッタリング法で成膜し、リフトオフ法 (不要部分を保護し、その上に金属を成膜。保護膜を除去するとパターンが残る方法) を用いてパターンを形成する。

また、基板裏面のピクセルの真下に当たる部分は $300 \times 350 \mu\text{m}$ に酸化膜・窒化膜を除去し、シリコンを露出させておく。これがメンブレン構造を形成する際のガイドとなる。

SII 社から首都大に発送された後、宇宙研のダイサーにて 2 cm 角あるいは 3.5 cm 角の適切なサイズにダイシングを行う。

2. スパッタによる TES 薄膜の形成

首都大のスパッタリング装置にて TES の成膜を行う。まず、 $5 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 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、積層配線ではアルミ配線が既に形成されており、アルミ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 $1 \times 10^{-7} \text{ Pa}$ 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。

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、チタンの厚さは 100 nm 必要となる。膜厚比と転移温度の関係から従来はチタンが 40 nm、金が 80 nm の膜厚比 2 が転移温度が $\sim 100 \text{ mK}$ と最適であったが、積層配線を製作する上でチタンを 100 nm と厚くしたことで、金もその 2 倍の 200 nm 成膜する必要がある。しかし、チタンを厚くしたことにより、薄膜の近接効果が効きづらくなってしまい転移温度が $T_c \sim 250 \text{ mK}$ と要求値よりかなり高くなってしまう。

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。

必要ならばスパッタを行った後に全面に TES が成膜された状態 (ベタ膜状態) で RT 測定を行い、転移温度などの特性を確認する。

3. TES パターンフォトリソグラフィー

宇宙研 MEMS クリーンルームにて作業を行う。アセトン・イソプロパノール (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 HMDS 及びレジスト S1818G を基板全体に均一に塗布し、2 分半ベーキング、3 分乾燥させる。両面アライナーにてマスクと基板四隅にあるアライメントマーク (十字) を合わせた後、紫外光を 5 秒間照射する。使用するマスクは、次プロセスでエッチングを行うため、TES が乗る部分がクロムでパターンニングしてあるものである。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 分浸けるとレジストによる TES パターンが形成される。

4. エッチングによる金のパターンニング

金のエッチャントである AURUM 101 にアルミを保護するためのリン酸二水素アンモニウムを飽和量 ($3 \text{ mol/l} = 17.25 \text{ g}$) 混ぜたものを、積層配線素子用のエッチャントとして用いる。本来ならば金のエッチングには AURUM 101 で充分であるが、配線に用いているアルミが AURUM 101 に耐性がなく腐食してしまう。従来の単層配線であれば TES のパターンニング後にアルミ配線を形成していたため問題はなかったが、積層配線ではアルミを保護するためのリン酸塩が必要となってくる。この積層配線用エッチャントに数十秒 (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。エッチャントから取り出した後は純水にて洗浄を行う。

5. エッチングによるチタンのパターンニング

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ている。レジストを除去しても、TES パターン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。この中にディッパーを用いて基板を固定し 3 時間浸す。従来のプロセスと同様、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、数時間かけることでチタンの側面もエッチングし金を被覆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。

6. 吸収体パターンフォトリソグラフィ及び金の蒸着

プロセス 3 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 5 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 $1 \mu\text{m}$ 成膜する。

7. 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。吸収体は熱に弱いので、以降は超音波洗浄機は使用しない。

8. DRIE によるメンブレン構造の形成

従来はメンブレン形成に KOH エッチングを行っていたが、ピクセル数が増え密集化した素子に対しては、KOH エッチングで形成されるシリコン結晶面に沿った斜方形のメンブレンではスペースの効率が悪くなってしまう。そのため積層配線素子に対しては、側面の垂直性の高い DRIE 法を採用した。宇宙研 MEMS クリーンルームにある ICP(Inductively Coupled Plasma) 装置を用いる。

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。ただし、この方法では素子表面とアルミを直接接着しているので取り外す際などに配線やピクセルに擦り傷ができてしまう。そのため、今後は素子とアルミ台座の間にシリコンウェハなど表面が滑らかなものを挟むなど、改良が必要である。

エッチングは TES high speed を 25 cycle \times 3 回、TES default を 25 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 4.2 に示す。

レシピ名	SF ₆ 時間 (E : エッチング)	C ₄ 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 \rightarrow E \rightarrow P	4.2 μ m
TES default	3 s	2.5 s	E \rightarrow P	0.4 μ m

表 4.2: 使用した DRIE エッチングレシピ

4.4 作成した積層配線素子の性能

DIOS に搭載 するためには歩留まりが 90% 以上、TES の転移温度が ~ 100 mK、TES の超伝導転移がシャープであり常伝導抵抗は数 100 Ω 、超伝導転移後の残留抵抗が数 m Ω 以下、臨界電流が 100 μ A 以上、エネルギー分解能は 5 eV 以下が要求される。配線の材質、TES の膜厚、金のエッチャント、メンブレン構造のためのエッチングレシピなど問題を一つずつ解決していき、要求値を満たす様な積層配線 TES 型マイクロカロリメータの製作プロセスを確立した。

確立されたプロセスで製作された 4 \times 4 ピクセルアレイによる素子 TMU284 の RT 測定をした結果、歩留まりは 94%、常伝導抵抗は ~ 153 m Ω 、残留抵抗は 0.28 m Ω と要求値を満たしていた。臨界電流が 30 μ A とやや低かった他、転移温度が ~ 260 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 の膜厚をチタンが 100 nm、金が 200 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、TMU284 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。エネルギー分解能は ~ 100 eV と高く、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。

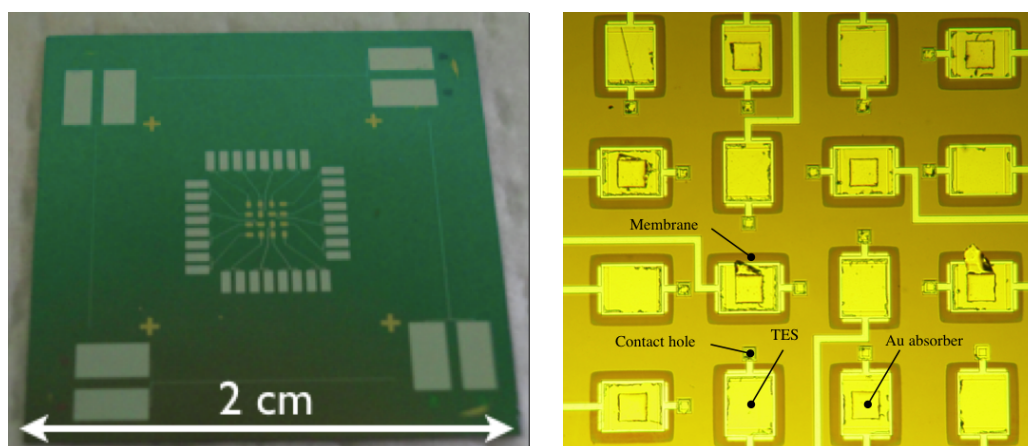


図 4.5: TMU284 の完成後、全体像 (左) 及びピクセル部分の光学顕微鏡写真 (右)

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 TMU293 は、TMU283 の結果を受け

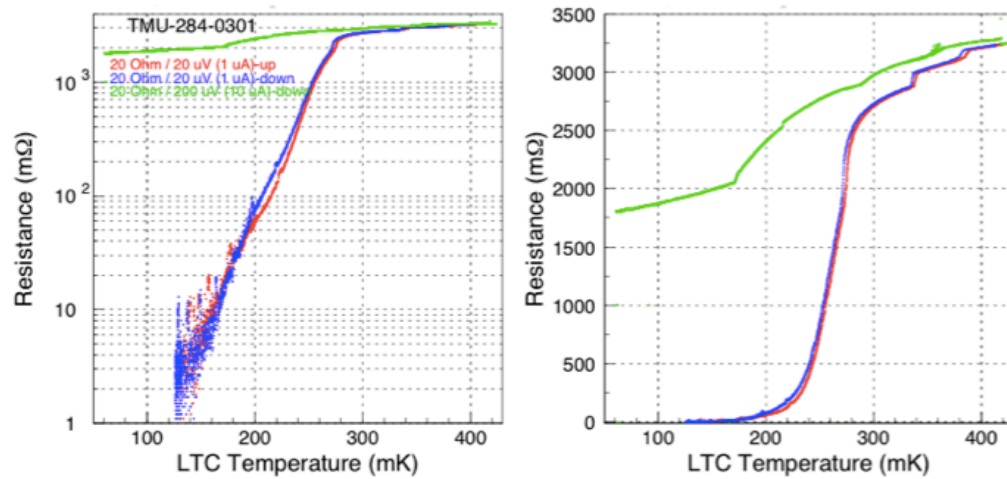


図 4.6: TMU284 pixel ID:0301 の RT 測定の結果。左は対数スケール、右は線形スケールである。

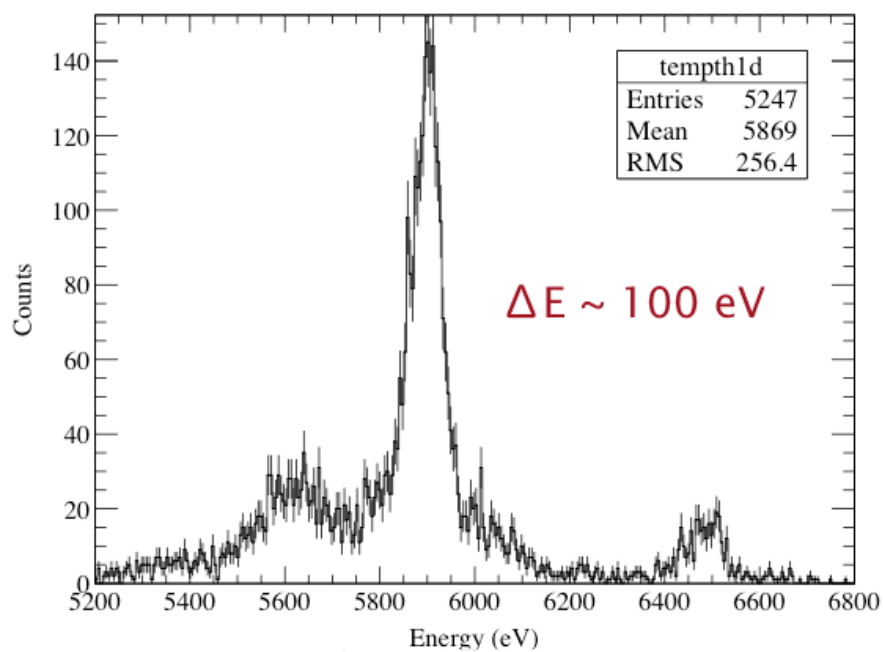


図 4.7: TMU284 で得た 5.9 keV の鉄 55 線源に対する X 線信号

TES の膜厚はチタンが 100 nm、金が 250 nm と膜厚比を高くしたが転移温度は 245 mK と依然高いままであった。また、常伝導抵抗は $9\ \Omega$ 、残留抵抗も $20\ m\Omega$ 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。

積層配線を用いた TES 型マイクロカロリメータを製作するにあたり、TES の膜厚を薄くし転移温度を下げる、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である。次章では、上記の問題を改善するためのプロセスあるいは構造の変更案を述べる。

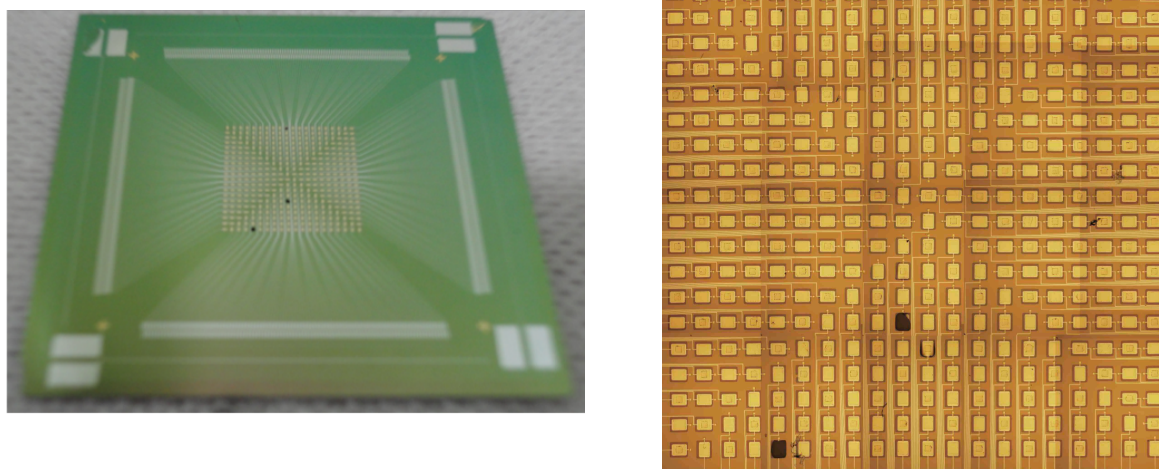


図 4.8: TMU293 の完成後、全体像 (左) 及びピクセル部分の光学顕微鏡写真 (右)

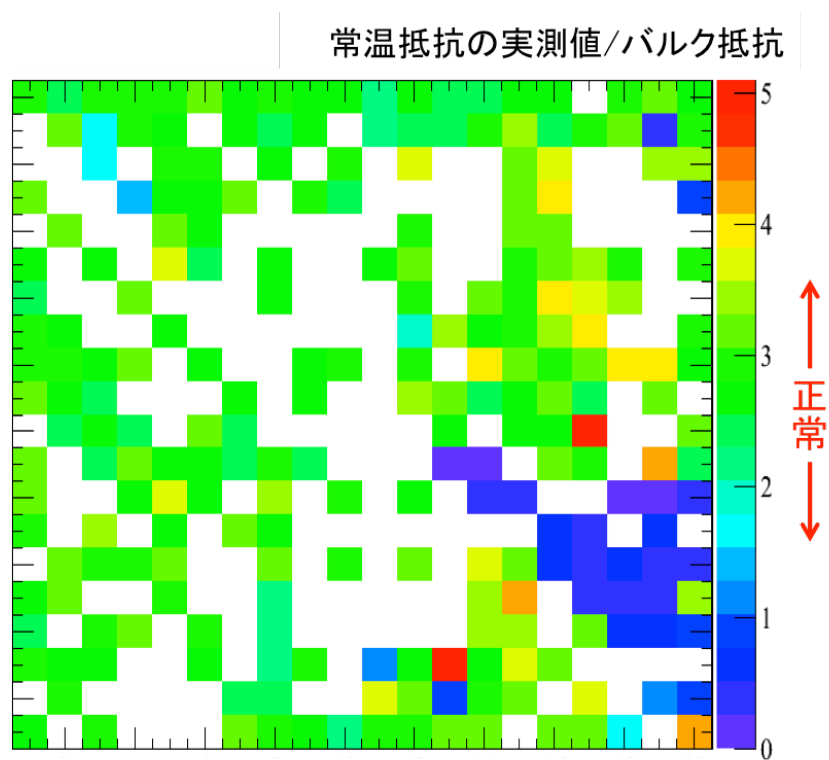


図 4.9: TMU293 完成後の上部配線パッド-下部配線パッド間の室温抵抗の実測値マップ。白く抜けているマスは導通していなかったピクセルである。

第5章 傾斜付き上部配線素子の試作

5.1 積層配線素子の問題点についての改善策

前章で述べた積層配線素子の問題点を解決するために、製作プロセス及び構造を見直した素子の試作及び評価を行う。

1. 上部配線側面に傾斜を付ける
2. 上部配線パターン間を絶縁膜で埋める
3. TES と上下配線の形成順序を逆にする

これらの案についての製作方法及びメリット・デメリットは以下に示す。産業技術総合研究所 (以下、産総研) の超伝導計測デバイスグループとの共同開発を行う上で、装置のサイズ制限などから製作実現性についても考慮する必要がある。

5.1.1 上部配線に傾斜のついた積層配線構造

図 右にあるように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る。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ダレさせた (リフロー) 上で、イオンビーム軸に対し 45° 程度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 (図)。

この構造を採用するメリットとしては、積層配線の製作プロセス (図 4.4) の 1 においてレジストリフローを挟み上部配線の形成方法をイオンミリング法に変更するだけであるので、配線デザイン及び以降のプロセスを変更する必要がなく簡単に試作・評価が行える。

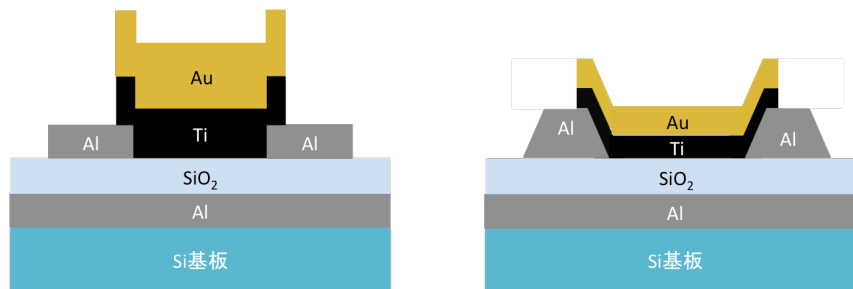


図 5.1: 従来の積層配線素子 (左) 及び傾斜付き積層配線素子 (右) のピクセル部分断面図

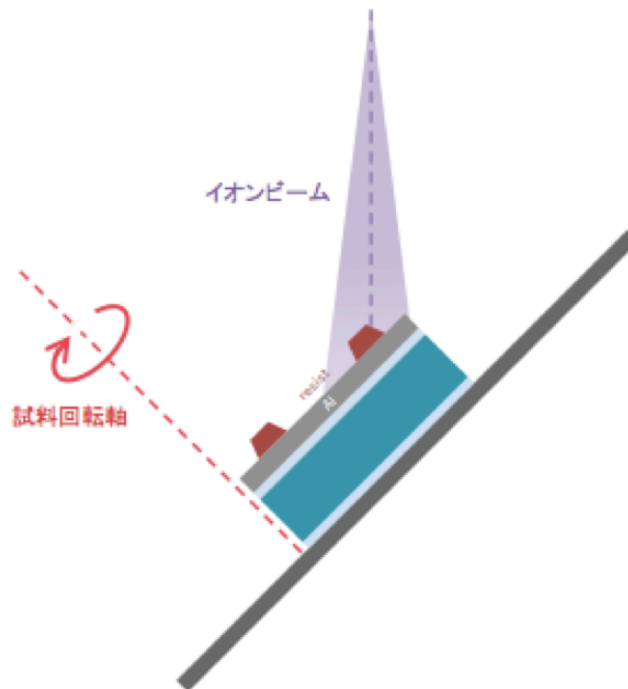


図 5.2: イオンミリング法による傾斜付き配線の形成方法

5.2 試作プロセス及び使用装置

まずイオンミリングによって上部配線にテーパをつけた素子が TES カロリメータとして動作するかを確認するために、産総研と共同で試作を行う。この試作では常伝導抵抗及び残留抵抗が正常であること、また配線と TES 部分がコンタクト出来ていることを確認するため、上部配線のみを形成した。

1. Al 成膜

図 5.3 1 にあるように、3 inch シリコンウェハ (シリコン厚み 300 μm 、酸化膜厚み 300 nm) 上にアルミを産総研にてスパッタリング法によって成膜する。その後ウェハをダイサーにて 3.5 cm 角にダイシングし、ID(以下、産総研 ID) をつける。

2. 上部配線パターンフォトリソグラフィ

宇宙研にてレジスト S1818G を使用し上部配線パターンを形成する。使用したマスクは従来の積層配線素子の製作プロセスにおいて Al 上部配線を形成する際に使用したのと同じである。プライマー HMDS・レジストを基板表面全体に均一に塗布した後 115°C で 2 分半プリバークし、3 分乾燥させる。その後両面アライメント装置にて 3.5 cm 角 TES 付け用アルミ上部配線パターンをアライメントし、紫外光を 5 秒間照射する。シャレ中で現像液 NMD-3 を用いてレジストが抜けきるまで現像し、シャレで純水 (流水) で洗浄を行う。

3. レジストリフロー

産総研にて基板全体に熱を加えレジストをダレさせる (リフロー)。レジストの種類によって必要な温度・時間が変わってくるため、条件出しが必要である。

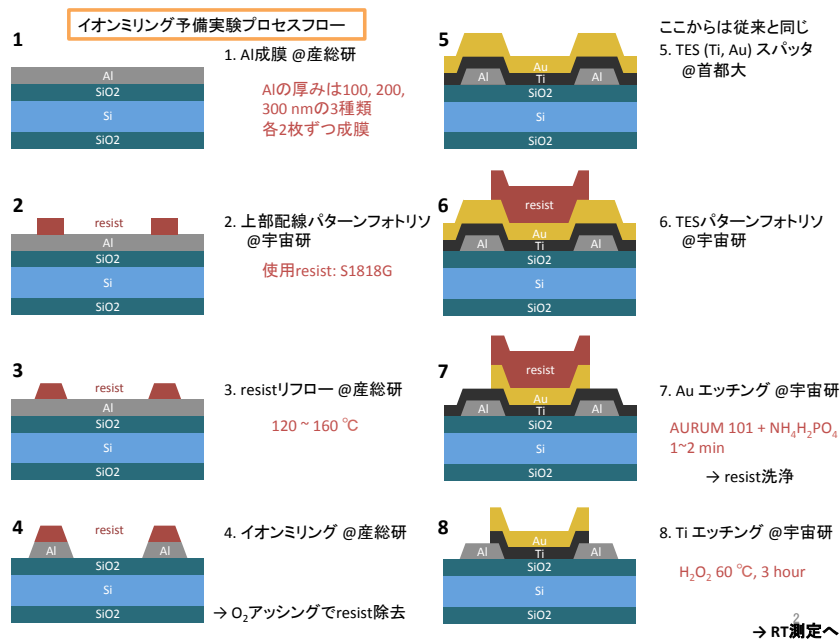


図 5.3: 傾斜付き上部配線を用いた試作の製作プロセスフロー

4. イオンミリング

イオンミリング法によってアルミを削り、傾斜付き上部配線を形成する。産総研のレートは ~ 25 nm/min であり、削れ具合を見て都度時間を短縮・延長する。その後 O₂ アッシング → アセトン超音波洗浄 → IPA リンスによってレジスト除去を行うが、サイクルあるいは素子によって方法を変えているのでそれぞれの項目に記載する。

5. スパッタによる TES 薄膜の形成

以降のプロセスは従来の積層配線用のプロセス (4.3) と基本的に同じである。

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。今回の試作ではチタンと金の膜厚比は最適な転移温度を調べるため、チタンの膜厚は 40 nm に固定し、金の膜厚を 80~130 nm の間でサイクルによって変えた。首都大スパッタ装置にて成膜した基板には全て ID(以下、首都大 ID) を通し番号でつけている。

6. TES パターンフォトリソグラフィ

宇宙研にてレジスト S1818G を使用し TES パターンを形成する。このプロセスにおいても使用したマスクは従来の積層配線素子の製作プロセスにおいて TES を形成する際に使用したものと同じである。

7. エッチングによる金のパターンニング

ヨウ素系溶液である AURUM 101 を 50 ml とアルミを保護するための二酸化リン酸アンモニウムを飽和量の 3 mol/l(17.25 g) 混ぜ合わせたものをエッチャントとして用いる。リン酸塩の溶け残りがあるとアルミがしっかりと保護されないため、本試作ではマグネチックスターラーを用い完全に溶解させる。エッチャントとテフロン十字形磁気攪拌子を 50 ml ビーカーに入れ、60°C に設定したマグネチックスターラーにて十分に攪拌した後、エッチャントを常温に戻しピンセットで掴んだまま素子を 1~2 分ほど浸け、金が溶け残っていないことを確認した後引き上げ、純水で洗浄する。エッチングレートは過去の条件だしから 2.2 nm/sec である。

8. エッチングによるチタンのパターンニング

テフロン製ディッパーに基板を図 5.6 の様に固定し、60°C に湯煎・保温した過酸化水溶液 (35%) の中に 3 時間浸し、取り出した後純水にて洗浄する。

9. RT 測定

完成した素子を希釈冷凍機あるいは無冷媒希釈冷凍機内で 100 mK 以下の極低温まで冷却し、常伝導状態から超伝導状態への遷移特性、特に転移温度と抵抗値を測定する。

5.3 TMU 325 の試作

過去の結果から、リフロー温度を 120°C に設定。この温度ではレジストがダレすぎることはなく、各配線も分離されていた。イオンミリングを 9 分行った後も配線は綺麗に分離していた。Al 100 nm -1 と同様、ミリング後のレジスト除去には O₂ アッシングの後アセトン超音波洗浄、IPA リンスを行った。レジストの上部配線パターンニング以降のどこかのプロセスにおいて、ピンセットの様なものでついた引っかき傷によって複数箇所が断線してしまっていた。

この素子も転移温度が ~100 mK になる様に、チタン及び金の膜厚をそれぞれ 40 及び 130 nm に設定しスパッタを行った。完成後の SEM 観察 (図 5.14) ではアルミ上部配線と TES のコンタクトは取れているように見えた。希釈冷凍機にて RT 測定を行った結果、アルミの超伝導転移は見られたものの、TES の超伝導転移は見られなかった (図 5.15)。TES の転移温度が冷凍機の最低到達温度 ~93 mK を下回っていると考えられた。この測定においては超伝導転移後の残留抵抗は測定できなかったが、常伝導抵抗が ~220 mΩ と要求を満たしていた。これらの結果から、上部配線に傾斜を付けることにより、まずは配線と TES 間で導通していること及び常伝導抵抗が正常値であることを確認できた。

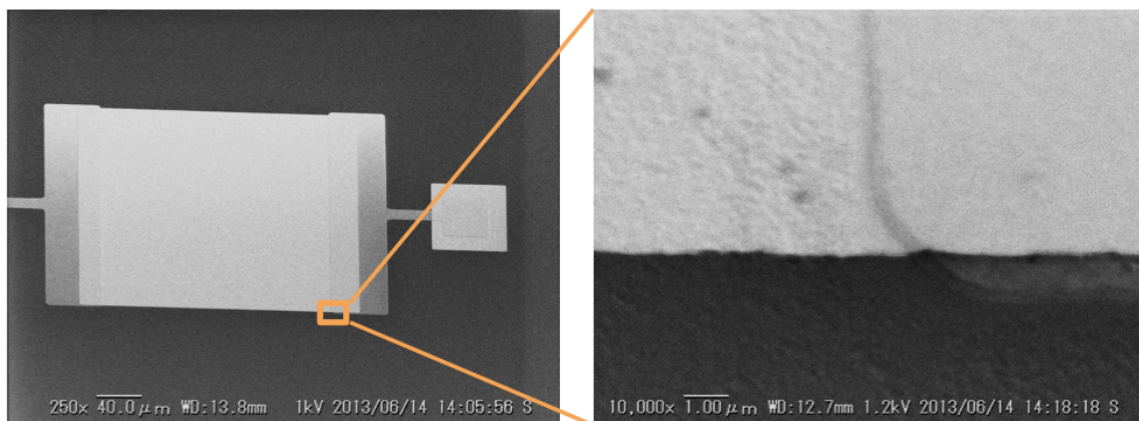


図 5.4: Al 200 nm -1 の完成後 SEM 写真。左: ピクセル部分全体像。白色部分が金 (TES 表面)、薄い灰色部分がアルミ上部配線。右: 上部配線と TES のコンタクト部分拡大 SEM 写真。

5.3.1 TMU 325 試作まとめ

レジストリフロー時に 120°C に温度を設定し 20 分間加熱した。その結果レジストが近接したパターンと融合することなく、~120°C が適切な温度であったと言える。

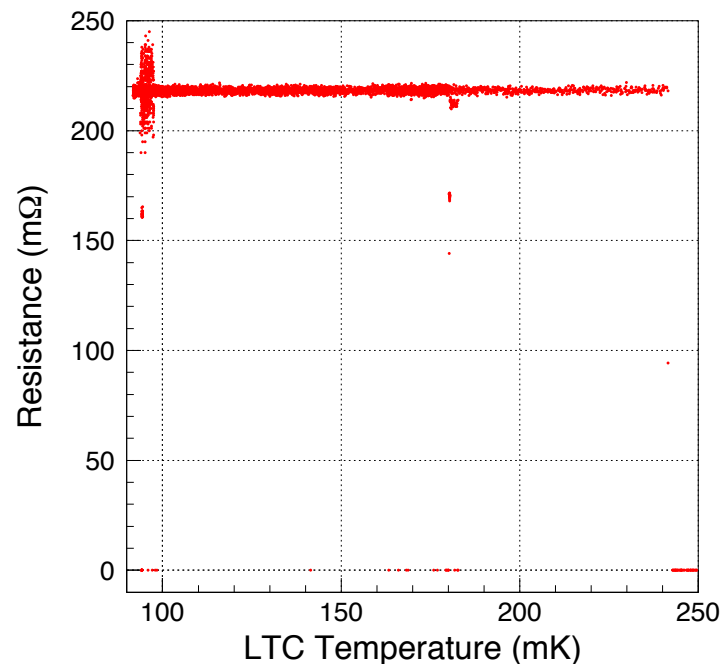


図 5.5: TMU 325 pixel ID:0820 の RT 測定結果

また、チタンを 40 nm、金を 130 nm で成膜した。上部配線が 200 nm とチタンに対し厚いにも関わらず、SEM 観察の結果段切れを起こしている様には見えない上にパッド - ピクセル間も導通していた。RT 測定の結果、常伝導抵抗が $\sim 220 \text{ m}\Omega$ と正常な値であることから、TES 膜厚を薄くしても上部配線とのコンタクトがとれていることが確認できた。しかし、想定転移温度 $\sim 100 \text{ mK}$ であったが、冷凍機の最低到達温度 $\sim 93 \text{ mK}$ まで冷却しても転移を確認できなかった。超伝導転移および残留抵抗の確認を行わない限り傾斜付き配線の採用について評価ができないため、次サイクルでは想定転移温度を $\sim 150 \text{ mK}$ と確実に転移が見える様引き上げて製作を行う。

5.4 転移温度条件出し (TMU334, 335, 336)

2 cm 角のシリコン基板上に TES を成膜したものを、希釈冷凍機にて冷却し転移温度を測定した。今回の条件出しでは、チタンの膜厚は 40 nm と固定した上で金の膜厚を 20, 80, 100 nm と 3 種類用意した。C2V 社の両面窒化膜付きシリコン基板上にチタンを 40 nm、金を 80 nm 成膜した TMU334 は、単層配線型の時代に転移温度が $\sim 100 \text{ mK}$ で最適であった膜厚に揃えた。同じく C2V 社の両面窒化膜付きシリコン基板上にチタンを 40 nm、金を 20 nm 成膜した TMU335 は、チタンの転移特性に異常がないか確認する為のものである。両面に酸化膜及び窒化膜のついたシリコン基板上にチタンを 40 nm、金を 100 nm 成膜した TMU336 は、従来型の積層配線時代に転移温度が最も低く ($\sim 250 \text{ mK}$) 最適であった、チタンに対する金の膜厚比を 2.5(当時はチタンが 100 nm、金が 250 nm) に揃えた。

同時期に成膜した 3 枚を同時に測定した結果及び以前の条件出し結果をプロットし、近似直線を引いたものが図 5.23 である。緑色バツ印が 2013 年 7 月の今回の結果であり、青丸印と赤菱形印がそれぞれ 2012 年 7 月に九州大学 ADR、2013 年 1 月に首都大希釈冷凍機にて測定をした結果である。ただし、赤菱形印はチタン、金、チタンと三層になっているものである。金の厚みが 20 nm と 80 nm の素子はそれぞれ 320 mK と 185 mK で超伝導転移が確認できたが、100 nm の厚みの素子は転移が冷凍機の最低到達温度 130 mK まで確認できず、転移温度は 130 mK 以下であると考えられる。

今回のように希釈冷凍機では最低到達温度が 100 mK 以上と、素子の転移温度の要求値よりも高くなってしまうことがある。超伝導転移が見られないと試作としての評価を行うことができないため、次

のサイクル 2 での設定転移温度は 150~160 mK と、希釈冷凍機の冷却能力から余裕を見た温度に設定することにした。今回の条件出し結果から、そのために必要な膜厚はチタンが 40 nm で金は 90 nm とした。

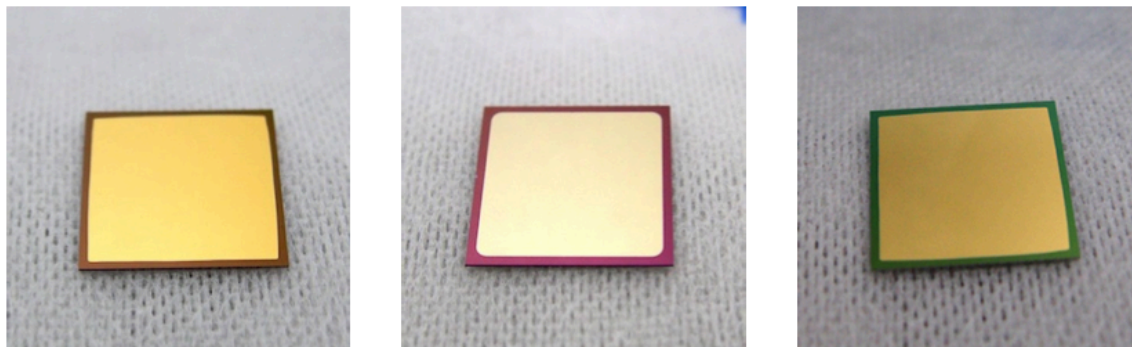


図 5.6: 転移温度条件出しに使用した素子 TMU 334(左)、TMU 335(中)、TMU 336(右)

date	T_{min} [mK]	ID	膜厚 (Ti/Au) [nm]	T_c [mK]	残留抵抗 [$m\Omega$]	常伝導抵抗 [$m\Omega$]
2013/07/15	~130	TMU 334	40/80	~185	2	285
		TMU 335	40/20	~320	3	1800
		TMU 336	40/100	<130	-	192

表 5.1: 転移温度条件出しの結果

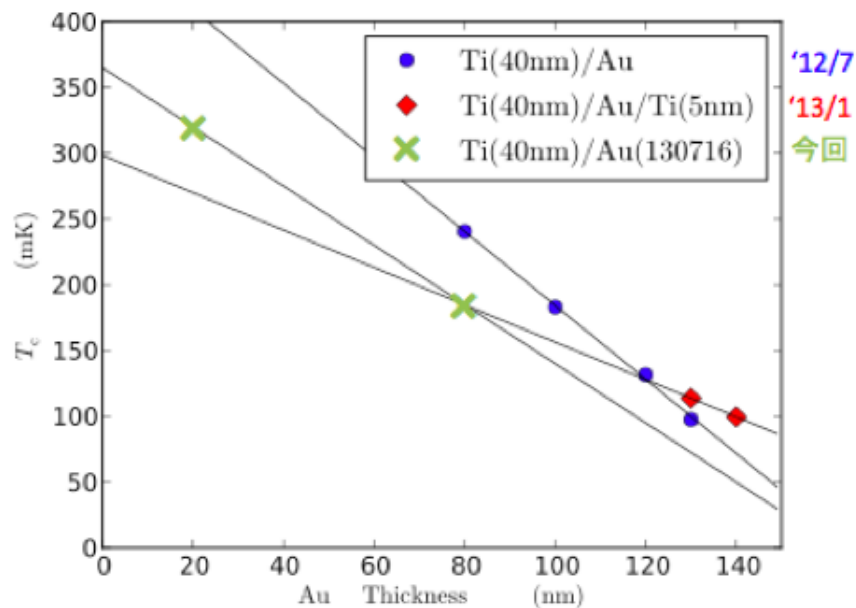


図 5.7: チタンの厚みを 40 nm に固定した時の、金の厚みと転移温度 T_c の関係。緑色バツ印が今回得られた条件出しの結果 である。

5.5 TMU 349 の試作

5.5.1 Al 上部配線パターンニング

プロセス前に超音波洗浄後、窒素ガンで乾燥させた。露光時間は 5 秒、現像は 8 分 37 秒、洗浄は 7 分 30 秒行った。光学顕微鏡での観察ではほとんどコンタミは見られなかったが、コレジストが薄く残っているように赤みがかって見えた。レジストパターン周囲にザラつきは見られなかった。

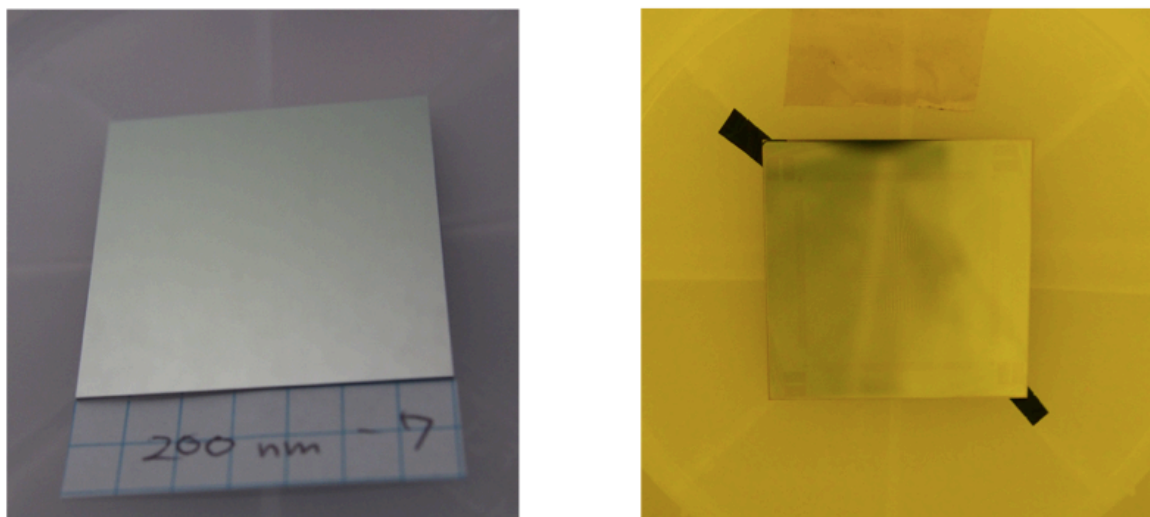


図 5.8: TMU 349 のアルミベタ膜状態 (左) 及び上部配線用レジストパターンニングを行った後 (右)

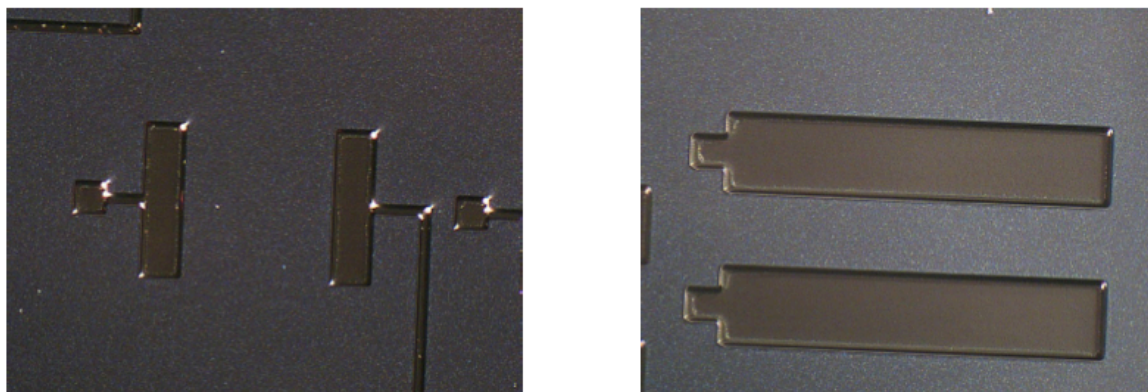


図 5.9: TMU 349 の上部配線用レジストパターニング後、光学顕微鏡写真。左: ピクセル部分。右: パッド部分

5.5.2 レジストリフロー及びイオンミリング

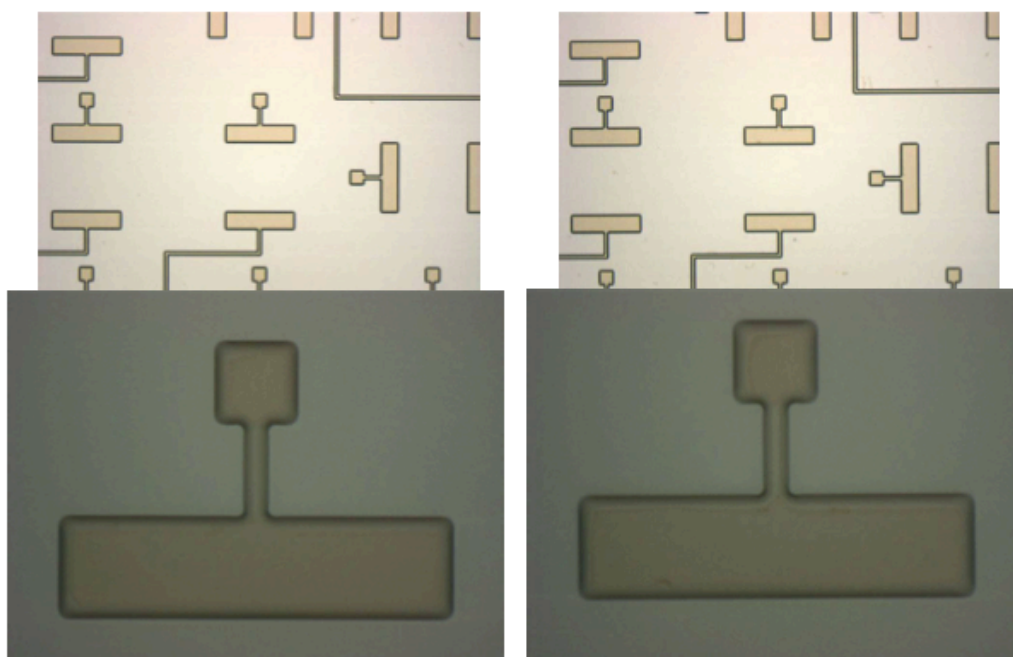


図 5.10: TMU 349 のレジストリフロー前 (左) 及びリフロー後 (右) の光学顕微鏡写真

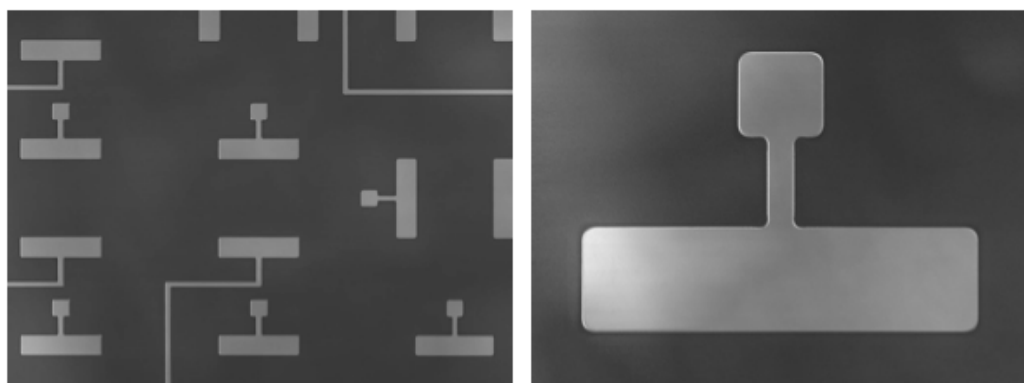


図 5.11: TMU 349 のイオンミリング後のレーザー顕微鏡写真

5.5.3 TES スパッタ

Ti/Au = 40/90 nm で成膜した。作業中に特に問題もなく、綺麗に成膜できた。成膜後に無冷媒希釈冷凍機にて RT 測定を行い、 ~ 170 mK で超伝導転移を確認した。また、常伝導抵抗・残留抵抗ともにそれぞれ $150 \sim 220$ m Ω $2 \sim 3$ m Ω と正常値であった。なお、3 チャンネルとも TES 膜上にボンディングしている。

date	T_{min} [mK]	Ch	T_c [mK]	R [m Ω] @150 mK	R [m Ω] @200 mK
2013/11/26	94	1	~ 170	2	220
		3	~ 175	2	216
		4	~ 170	3	159

表 5.2: TMU 349 の TES ベタ膜状態での RT 測定の結果

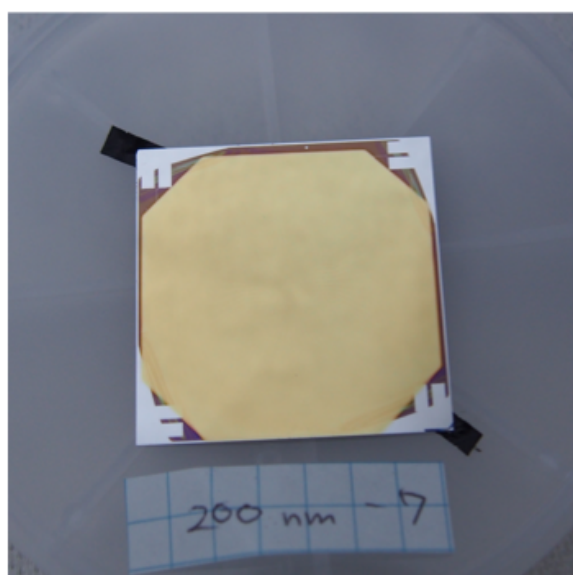


図 5.12: TMU 349 の TES スパッタ後

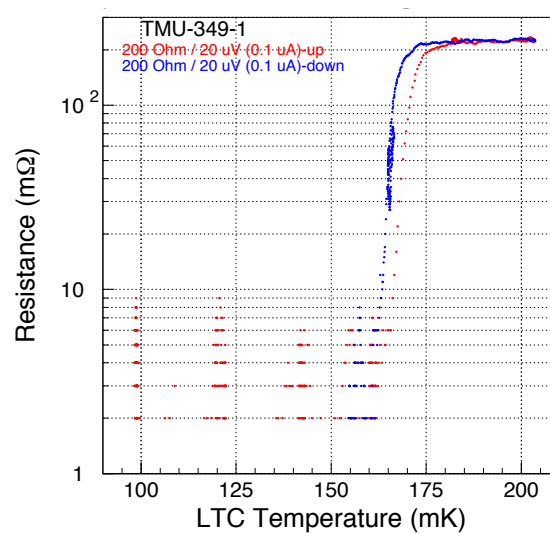


図 5.13: TMU 349 の TES ベタ膜状態での RT 測定の結果 (Ch.1)

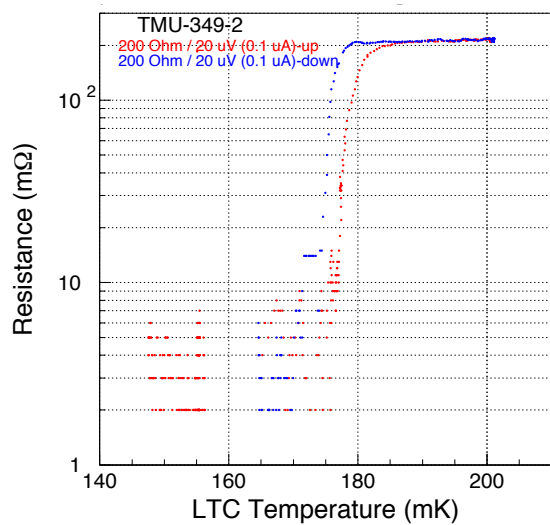


図 5.14: TMU 349 の TES ベタ膜状態での RT 測定の結果 (Ch.3)

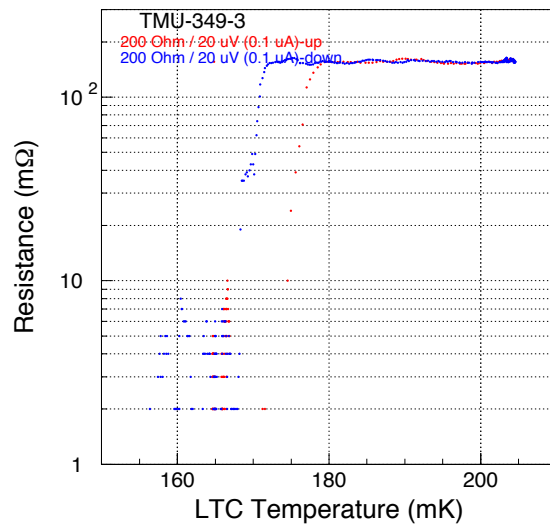


図 5.15: TMU 349 の TES ベタ膜状態での RT 測定の結果 (Ch.4)

5.5.4 TES パターニング

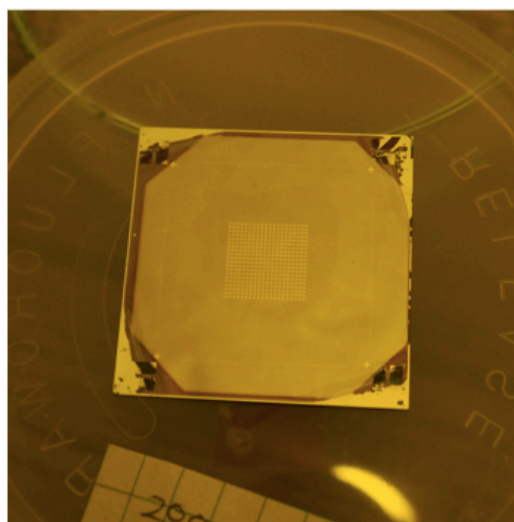
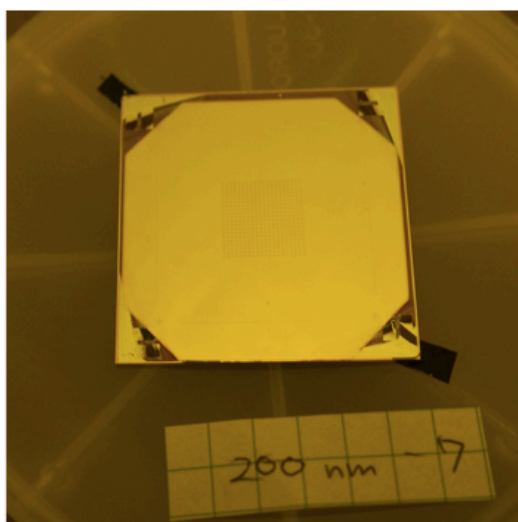


図 5.16: TMU 349 の TES 用レジストパターニング後 (左) 及び金エッチング後 (右)

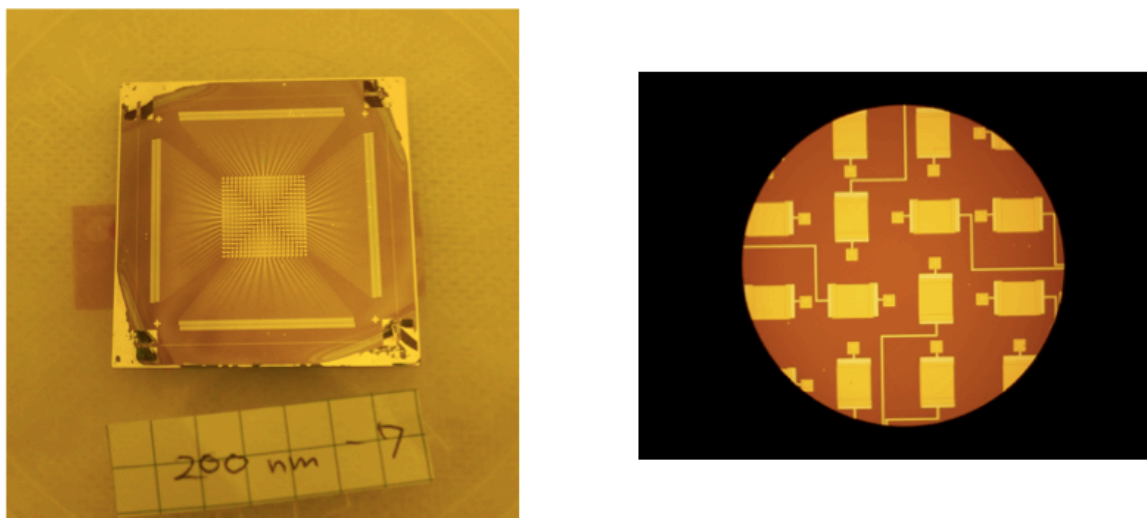


図 5.17: TMU 349 の完成後 (左) 及びピクセル中心部の光学顕微鏡写真 (右)

5.5.5 RT 測定

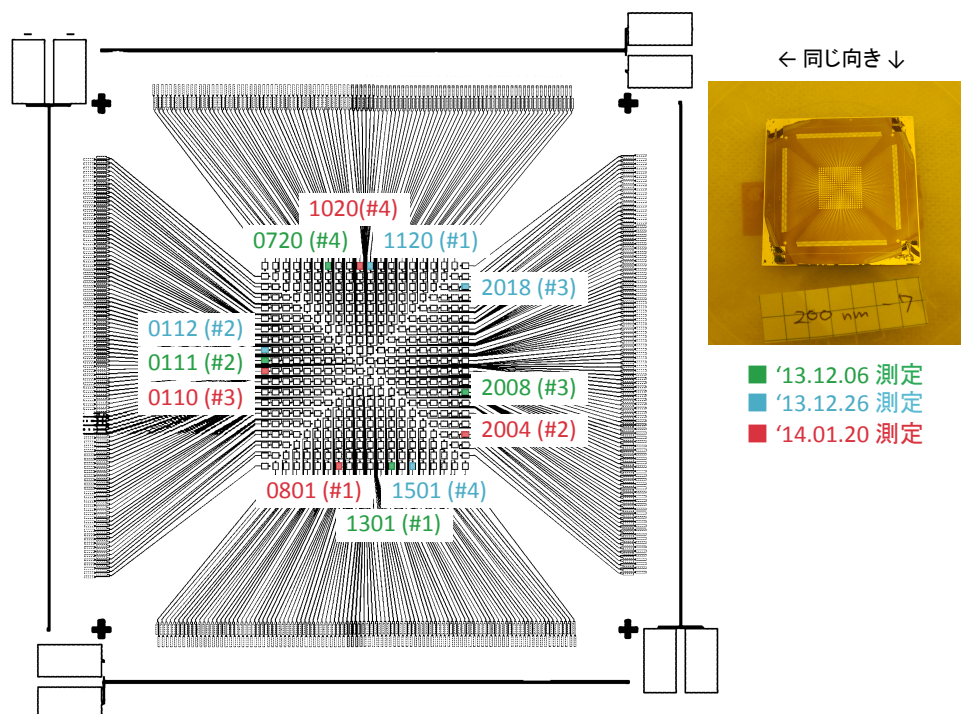


図 5.18: TMU 349 の RT 測定をしたピクセル一覧



図 5.19: TMU 349 の RT 測定時のボンディング箇所

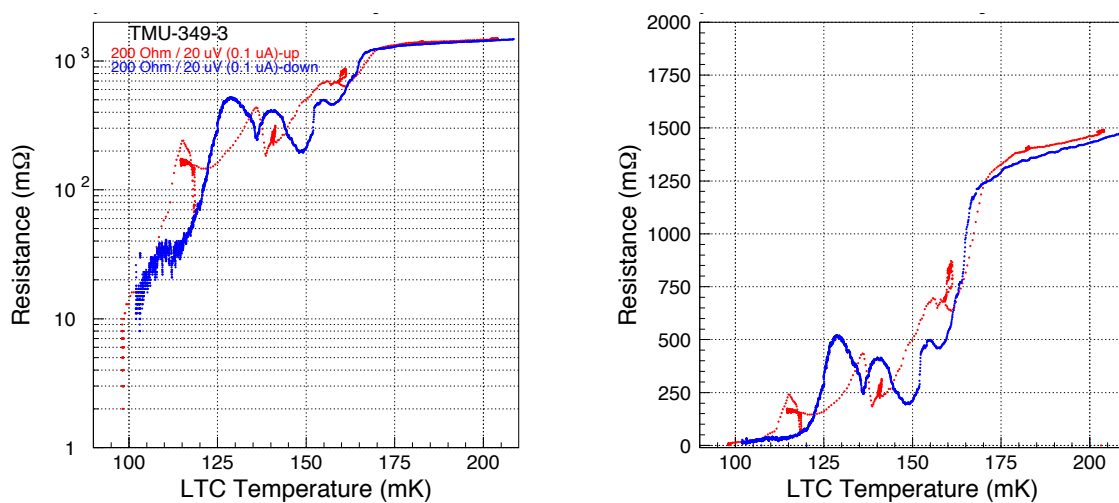


図 5.20: TMU 349 pixel ID: 2008 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

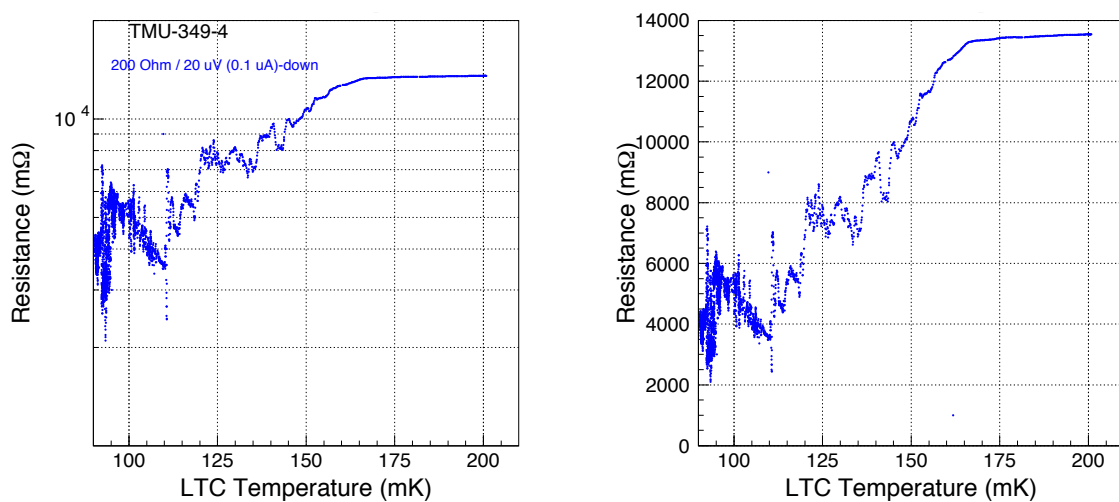


図 5.21: TMU 349 pixel ID: 0720 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

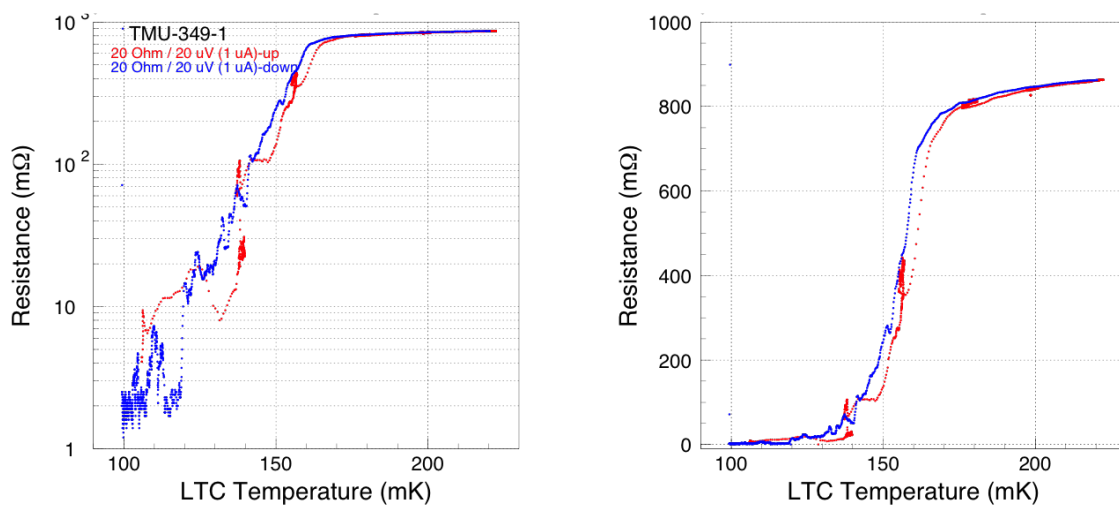


図 5.22: TMU 349 pixel ID: 1120 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

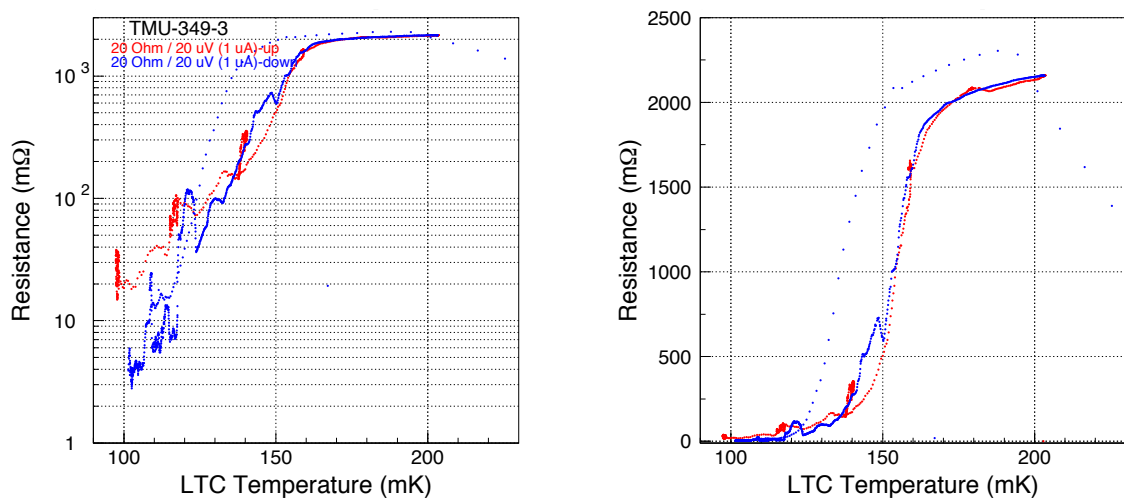


図 5.23: TMU 349 pixel ID: 2018 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

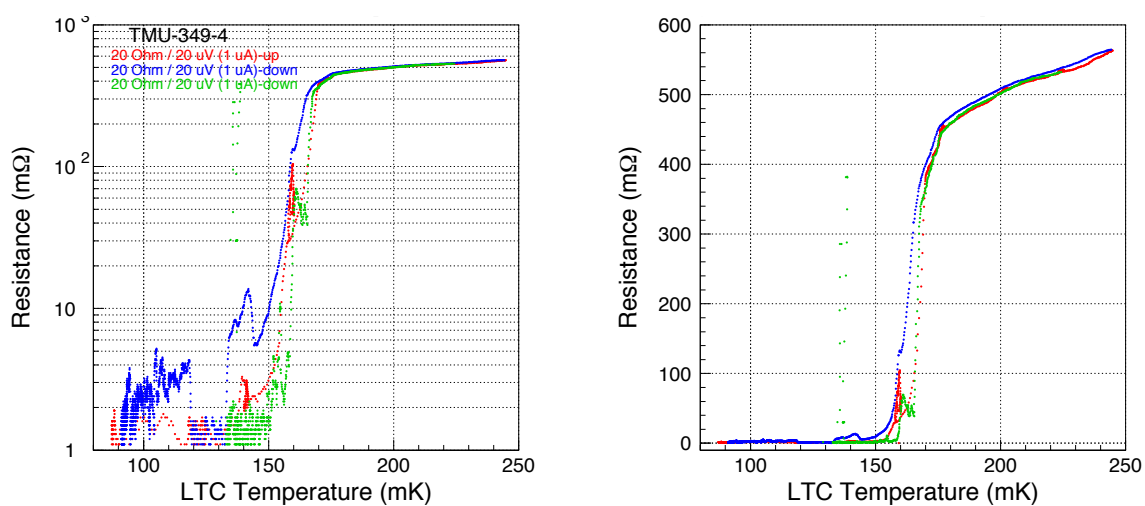


図 5.24: TMU 349 pixel ID: 1501 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

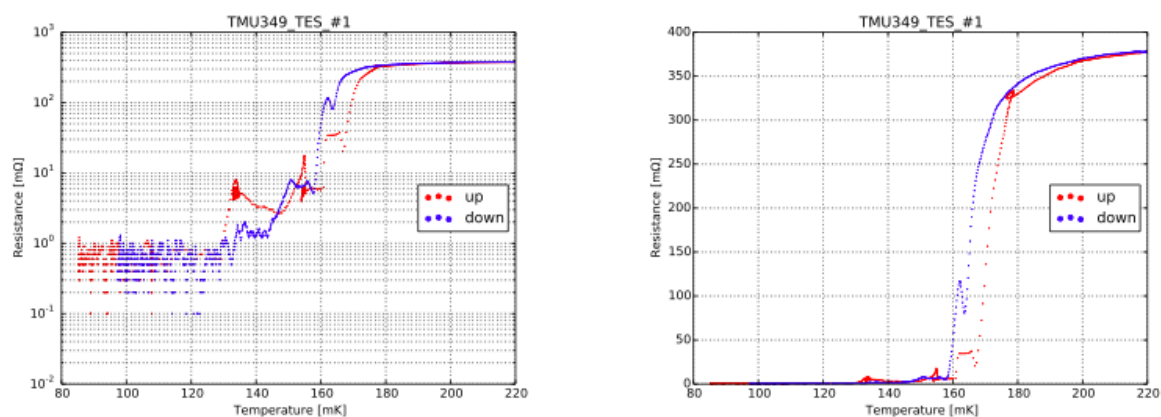


図 5.25: TMU 349 pixel ID: 0801 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

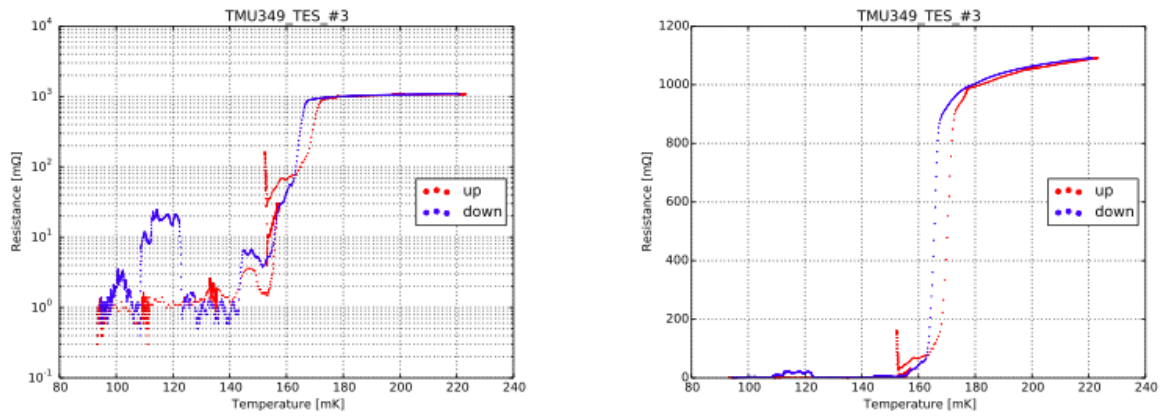


図 5.26: TMU 349 pixel ID: 0110 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

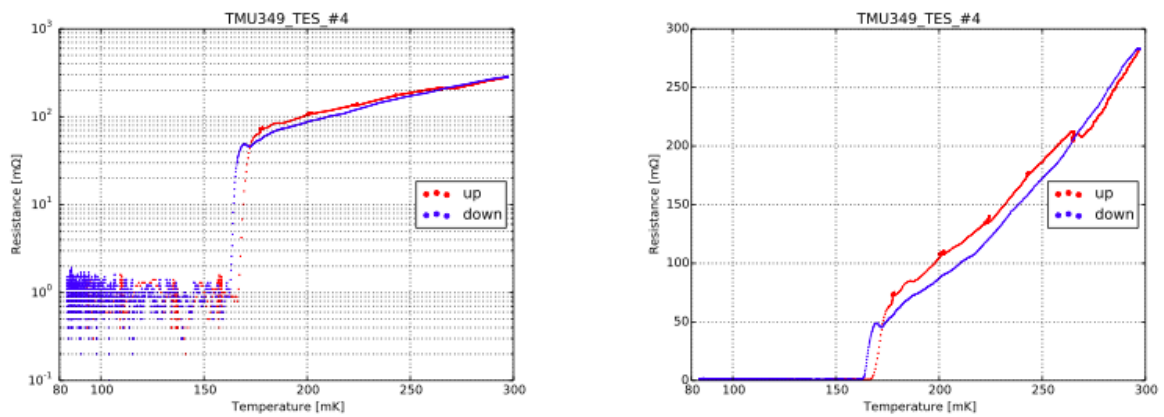


図 5.27: TMU 349 pixel ID: 1020 の RT 測定結果。左はリニア、右はログスケールである。

date	T_{min} [mK]	Ch	pixel ID	T_c [mK]	残留抵抗 [m Ω]	常伝導抵抗 [m Ω]	I_c [μ A]
2013/12/06	~ 88	1	1301	-	-	-	-
		2	0111	-	-	-	-
		3	2008	~ 170	~ 20	1.5×10^3 @200mK	未測定
		4	0720	~ 160	~ 60	1.4×10^4 @200mK	未測定
2013/12/26	~ 85	1	1120	~ 160	2 @85mK	842 @200mK	< 30
		2	0112	-	-	-	-
		3	2018	~ 160	~ 4 @85mK	2.1×10^3 @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	1.1×10^3 @220mK	未測定
		4	1020	~ 170	~ 1 @90mK	134 @220mK	未測定

表 5.3: TMU 349 の RT 測定全 3 回のまとめ

5.5.6 TMU 349 試作まとめ

TES の膜厚を $\text{Ti}/\text{Au} = 40/90$ nm で超伝導転移を確認し、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。この結果から、従来の積層配線素子より配線を厚く TES を薄くした傾斜付き配線素子が TES 型マイクロカロリメータとして基本的な動作をすることが確認できた。また、RT 測定時にボンディングを行う箇所によって抵抗値の不定性があるため、傾斜付き上部配線を用いた積層配線素子の製作を行い、上下パッド間で抵抗値を測定し評価する必要がある。

5.6 TMU 349 の断面観察

前の節で TMU 325 の RT の超伝導転移を確認し、常伝導抵抗・残留抵抗ともに従来の積層配線素子から改善した。この節では 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ことを確認する。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。断面を観察したピクセルは pixel ID:1020、観察位置は 1. 上部配線 - TES、2. TES 中央部、3. TES - コンタクトホール、4. コンタクトホールの 4 箇所である (図 5.28)。また、TES - コンタクトホールに関しては eds(Energy Dispersive X-ray Spectrometer) による元素分析も行った。

1. 上部配線 - TES、3. TES - コンタクトホールの断面観察から、配線 - TES の間に段切れがなく、正常に配線上に TES が成膜できていることを確認できる。元素分析の結果からもチタン、金ともに段切れがないことを確認できる。今回の断面観察と前の節の RT 測定の結果から傾斜付き上部配線素子のプロセスを確立したと言えるだろう。

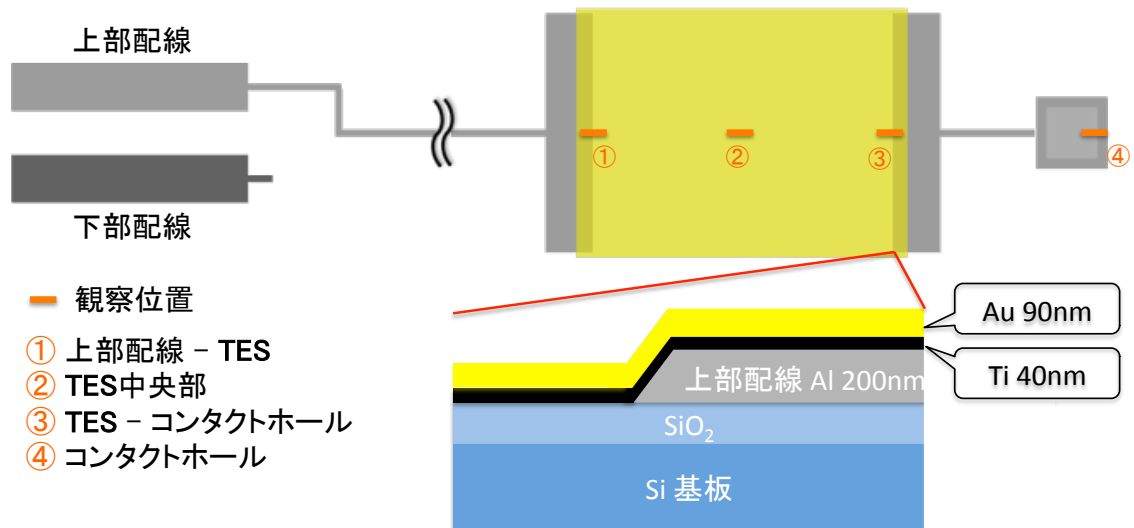


図 5.28: TMU 349 pixel ID: 1020 の断面観察の測定位置。

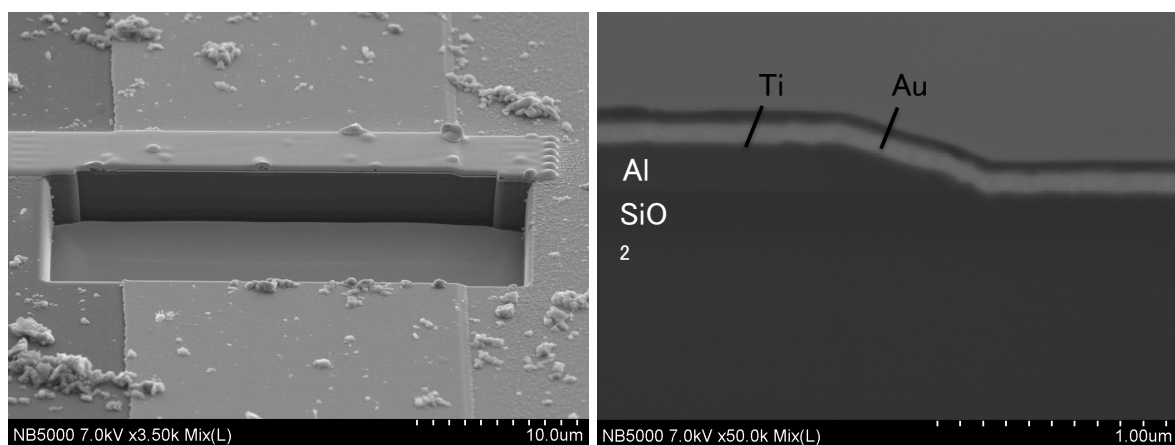


図 5.29: 上部配線 - TES の断面図。段切れがなく、キレイに傾斜付き配線の上に TES が成膜できていることを確認できる。

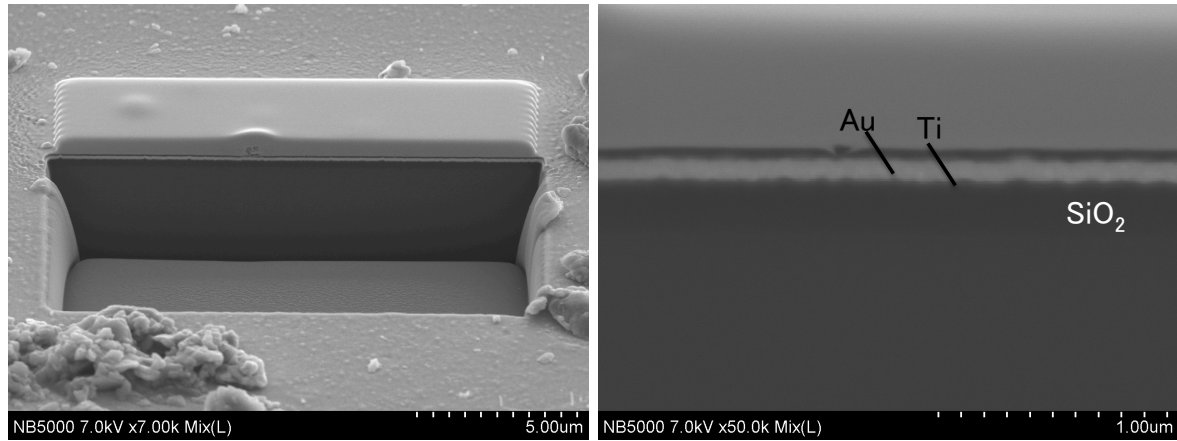


図 5.30: TES 中央部の断面図。段切れがなく、キレイに傾斜付き配線の上に TES が成膜できていることを確認できる。

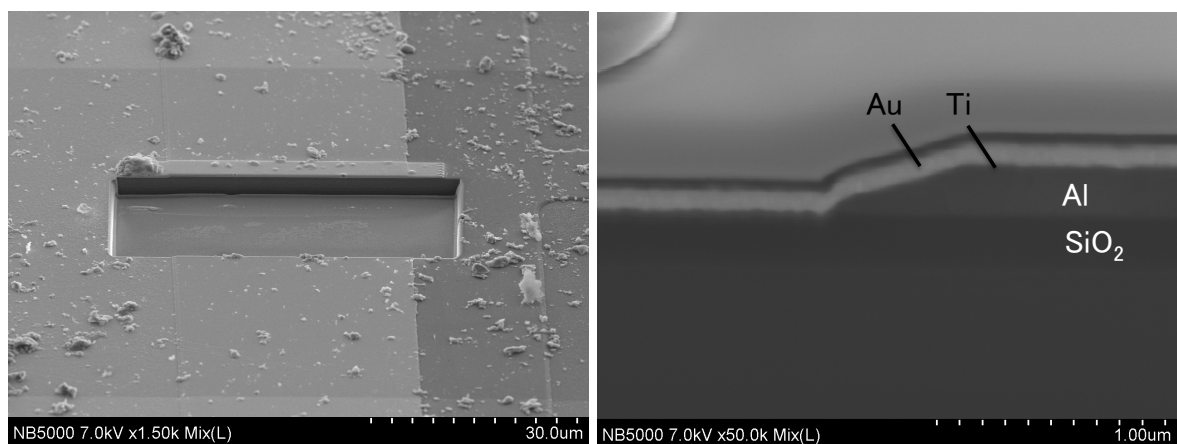


図 5.31: TES - コンタクトホールの断面図。段切れは見られない。

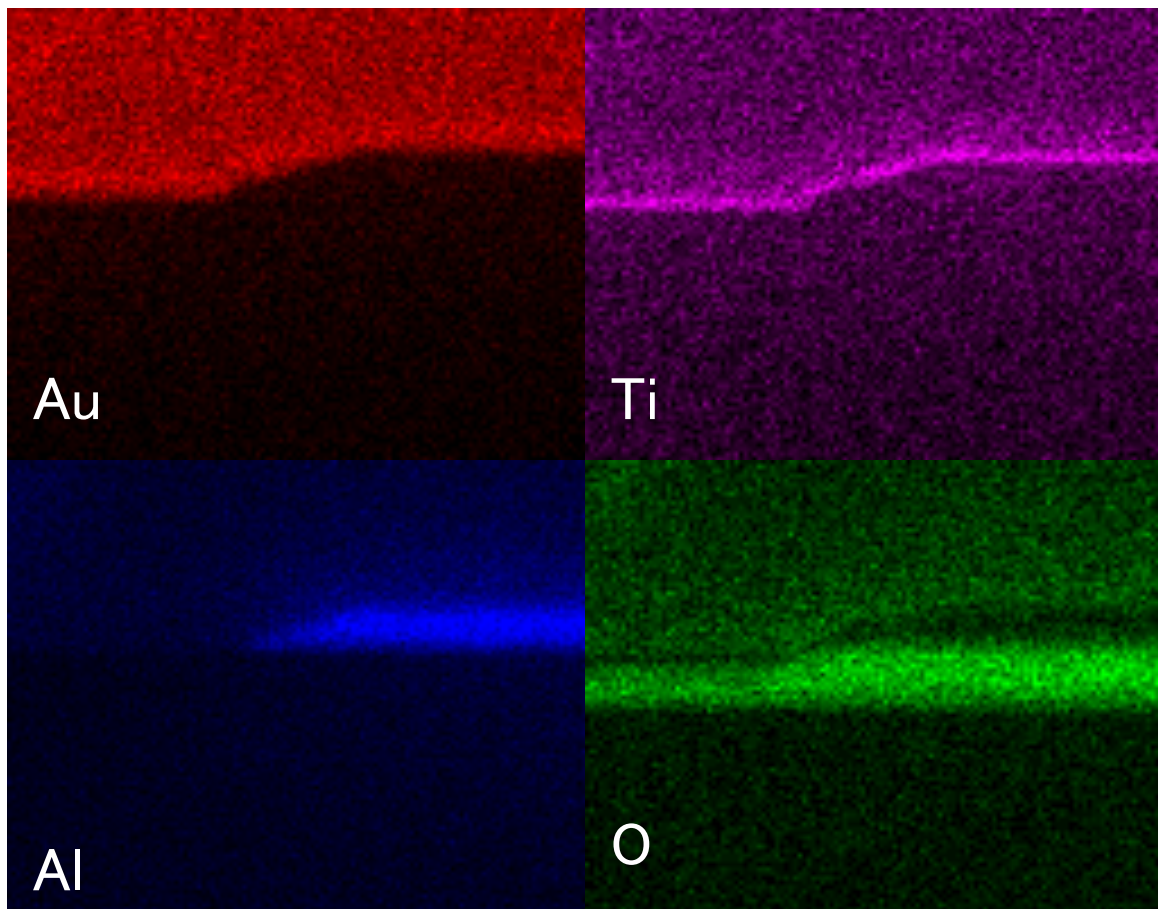


図 5.32: TES - コンタクトホール断面の元素分析。チタン、金ともに段切れがないことを確認できる。

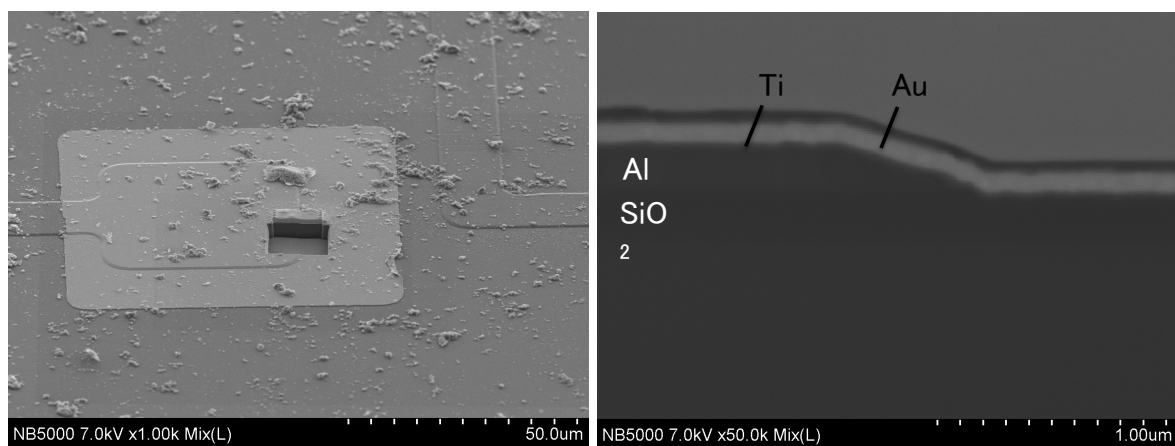


図 5.33: コンタクトホール断面図。

第6章 傾斜付き積層配線素子の試作

前の章で傾斜付き上部配線素子のプロセスを確立した。そこで、傾斜付き積層配線素子を製作し TES 型マイクロカロリメータとして基本的な動作をすることが確認することで積層配線素子でのプロセスを確立することがこの節の目的である。

6.1 試作プロセス及び使用装置

前回の試作までは配線パターンニングは宇宙研で行っていたが、今回の試作から産総研で行う。これによりイオンミリングまでのプロセスは産総研で行われ、スパッタによる TES 薄膜の形成以降のプロセスを首都大、宇宙研で行う。(§5.2 参照)

1. Al 成膜

§5.2 プロセス 1 参照。

2. 配線パターンフォトリソグラフィー

今回から産総研で行われる。使用したマスクは従来の積層配線素子のパターンではなく、新しいパターンのものである。

3. レジストリフロー

§5.2 プロセス 3 参照。

4. イオンミリング

§5.2 プロセス 4 参照。

5. スパッタによる TES 薄膜の形成

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。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. TES パターンフォトリソグラフィー

宇宙研にて S1818G を素子のに塗布し、2.5 分ベーキング固化させ、マスクアライナーで露光する。現像液 (NMD-3) に浸し、余分なレジストを除去、レジスト上に TES のパターンを転写させる。このプロセスにおいて使用したマスクも新しいパターンのものである。図 6.1 にスピコーター、図 6.2 にベーキングの様子、図 6.3 にマスクアライナーを示す。

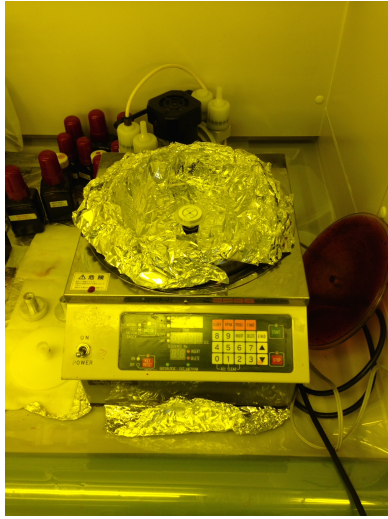


図 6.1: スピンコーター

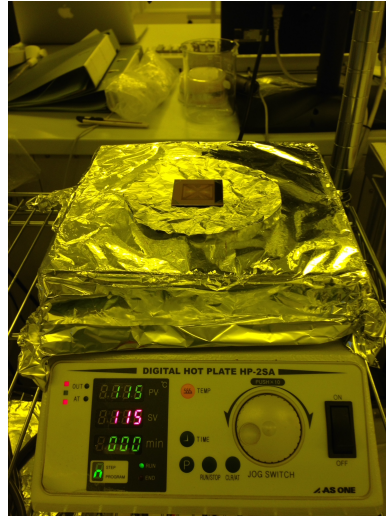


図 6.2: ベーキングの様子。

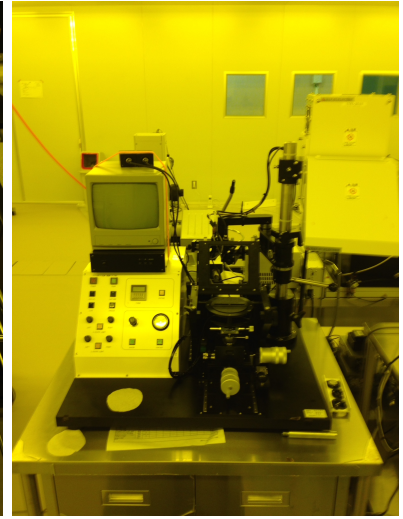


図 6.3: マスクアライナー

7. エッチングによる金のパターンニング

§5.2 プロセス 7 参照。

8. エッチングによるチタンのパターンニング

§5.2 プロセス 8 参照。

9. RT 測定

冷凍機にて極低温まで冷却し、常伝導状態から超伝導状態への遷移特性、転移温度と抵抗値を測定する。

6.2 試作 cycle 1

産総研のプロセスで本番用基板が 2 枚 (wafer04,05)、練習用基板が 3 枚 (wafer01,02,03) の計 5 枚を製作した。本番用基板は $\text{SiO}_2/\text{SiN}/\text{Si}$ 基板上に作られているが、練習用基板は SiO_2/Si テスト基板上に作られているため、うまくメンブレンにならない可能性が高く、主にプロセスの事前確認用に使用した。上部配線 Al の膜厚はすべて 200 nm、四隅のピクセルは導通確認用で TES のパターンが無く Al 配線のみである。このうち、wafer01,05 はプロセス 5 以降も進めた。

表 6.1: cycle1 で製作した基板の膜厚

基板 ID	上部/下部配線の膜厚	絶縁膜 (SiO_2) の膜厚	基板の表面膜	Ti/Au の膜厚
wafer01	200/100 nm	180 nm	SiO_2/Si	40/110 nm
wafer02	200/100 nm	180 nm	SiO_2/Si	40/90 nm (cycle2 で試作)
wafer03	200/100 nm	180 nm	SiO_2/Si	40/70 nm (cycle3 で試作)
wafer04	200/100 nm	180 nm	$\text{SiO}_2/\text{SiN}/\text{Si}$	
wafer05	200/100 nm	180 nm	$\text{SiO}_2/\text{SiN}/\text{Si}$	40/110 nm

6.2.1 wafer01(TMU 370)

四隅のピクセルで導通の確認を行った後、プロセス 5 を行った。転移温度は $\sim 150\text{mK}$ を狙うため、過去の条件だから $\text{Ti/Au} = 40/110\text{ nm}$ とした。逆スパッタは 150 W で 3 分間行った。スパッタ後、希釈冷凍機で RT 測定を行った結果 (図 6.5)、測定した 3 ピクセルで転移温度にばらつきがあり、膜厚にばらつきがあると考えられた。

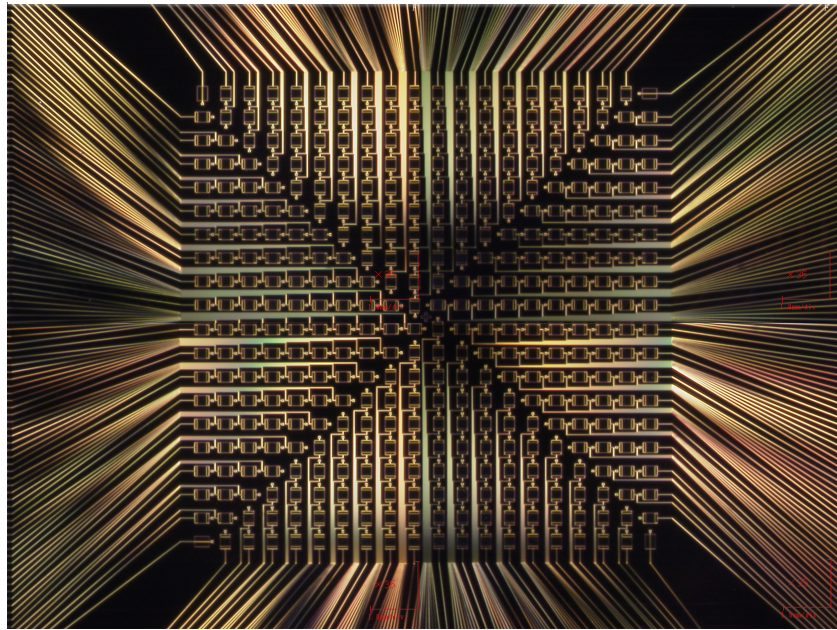


図 6.4: wafer01 の未加工、光学顕微鏡写真。

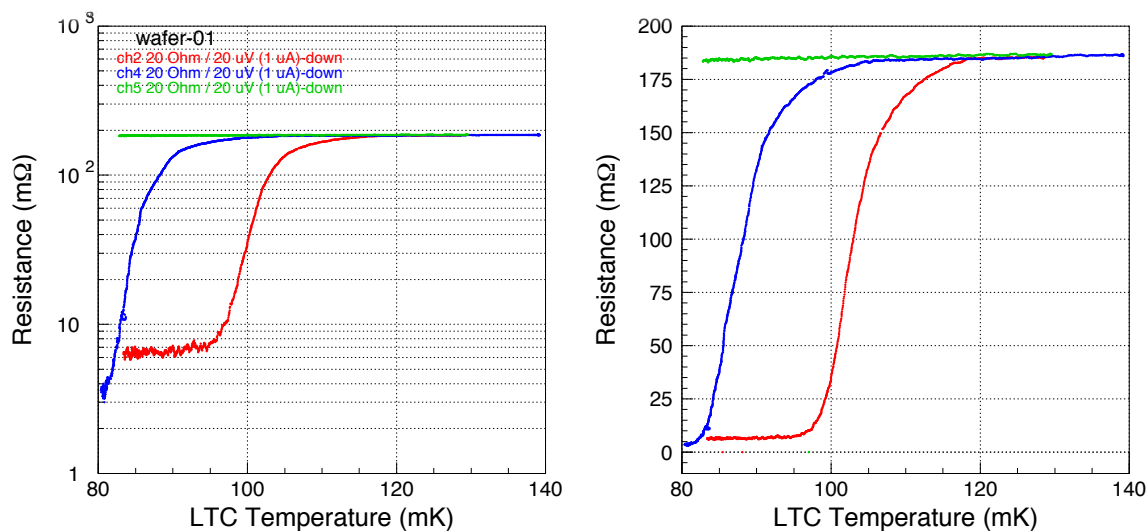


図 6.5: wafer01 のスパッタ後の RT 測定結果。

プロセス 6 では、基板とマスクの接触や現像の際にレジストがすべて流れるといった問題が発生した。以前の基板に比べて素子とレジストの接着が弱いと考えられる。エッチング後に SEM 観察をしたところ、TES の端の部分が溶けている様に見えた。(図 6.2.1) 冷凍機にて RT 測定を行った結果 (図 6.7)、常伝導抵抗が 1-2 Ω 、残留抵抗が 100-1000 m Ω 、転移温度が \sim 180 mK であり、どれも要求値より高かった。また、転移特性が非常に悪かった。

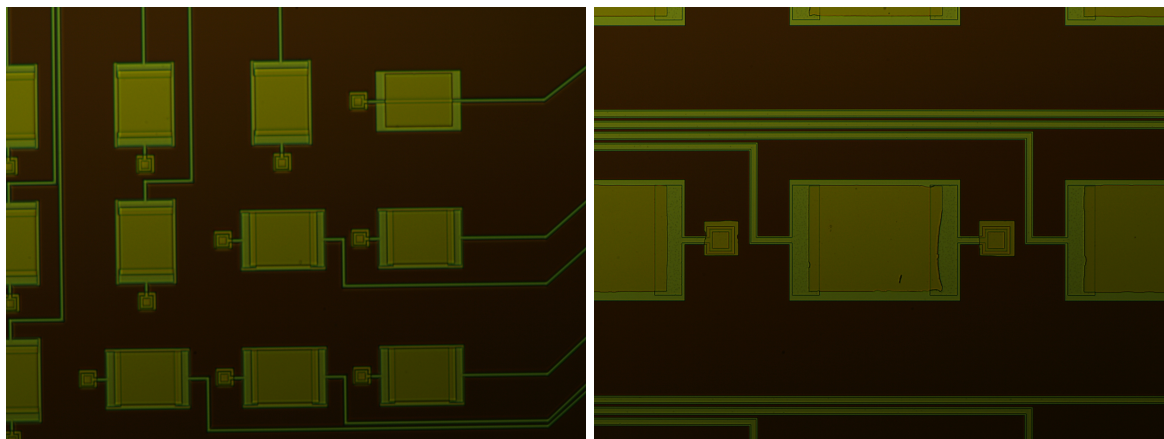


図 6.6: wafer01 のエッチング後の、光学顕微鏡写真。

抵抗値が高い部分を特定するため、上部配線 - TES、TES - 下部配線に切り分けて RT 測定を行った結果、上部配線 - TES の抵抗値は上部配線 - 下部配線の抵抗値の半分程度であったが、TES - 下部配線は数 m Ω 程度とかなり低かった (図 6.12)。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。

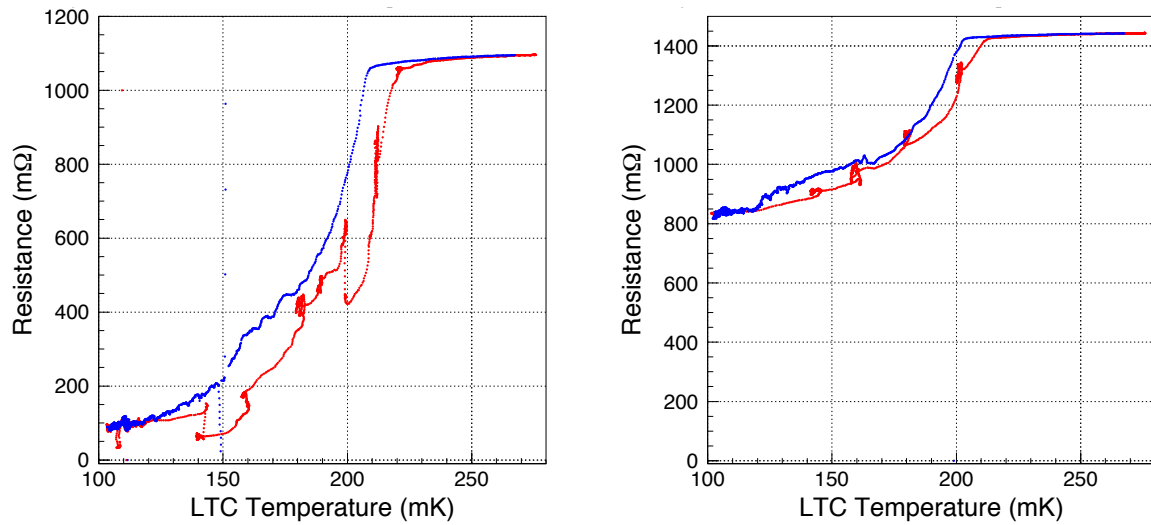


図 6.7: wafer01 のパターニング後の RT 測定結果。左が pixel ID:1010、右が pixel ID:1901、赤が温度上昇時、青が温度下降時。

6.2.2 wafer05(TMU371)

四隅のピクセルで RT 測定を行った結果 (図 6.9)、正常な Al 転移が見られた。TES の膜厚は Ti/Au = 40/110 nm とし、wafer 01 と同様にプロセスを進めた。プロセス 7 の金エッチング後に Al 配線にダメージが見られた。(図 6.11) wafer 01 のエッチング後にエッチャントを使い回したために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。パターニング後の RT 測定の結果 (図 6.10)、転移は確認できず、常伝導抵抗も $\sim 1 \Omega$ と高かった。

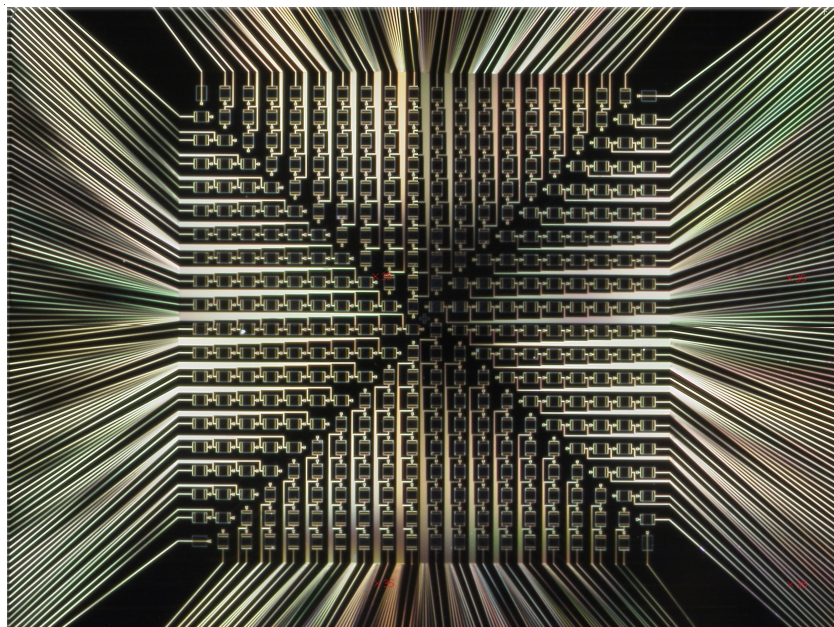


図 6.8: wafer05 の未加工、光学顕微鏡写真。

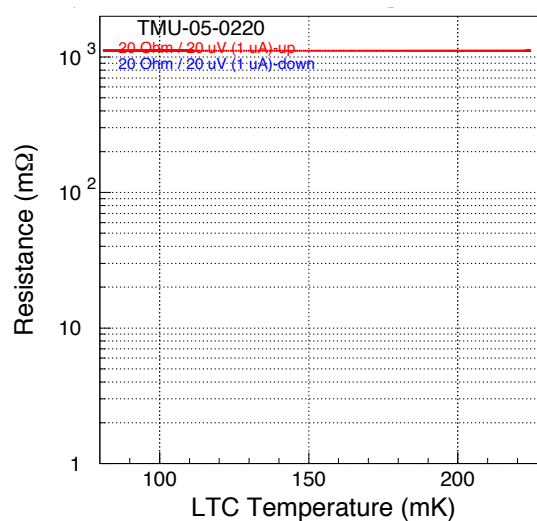
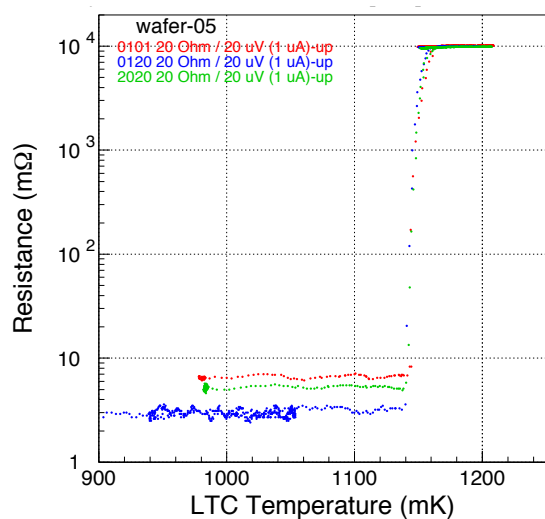


図 6.9: wafer05 の未加工での RT 測定結果。図 6.10: wafer05 のパターニング後の RT 測定
赤が pixel ID:0101、青が pixel ID:0120、緑が pixel ID:0220。
pixel ID:2020。

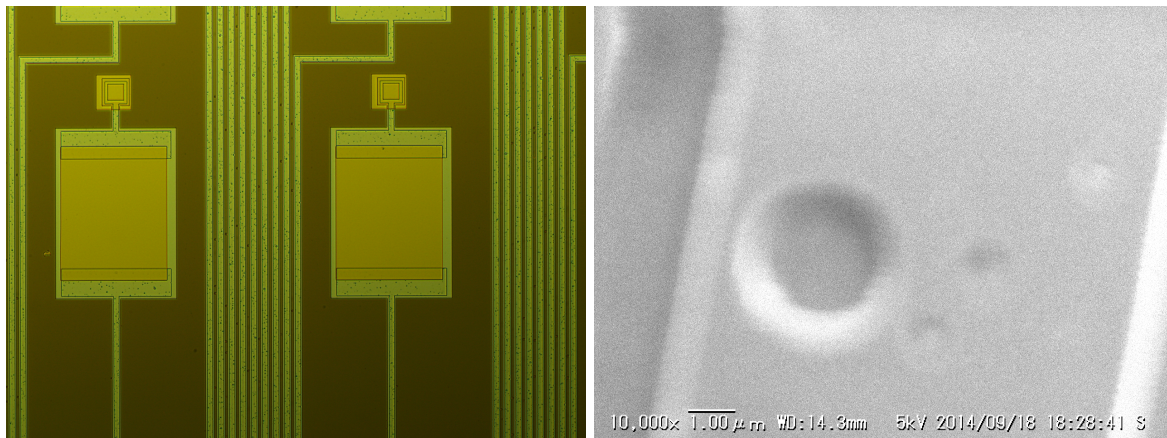


図 6.11: wafer06 のエッチング後 (左) 及び配線 (右) の光学顕微鏡写真。アルミ配線に穴のようなダメージを確認できる。

wafer 01 と同じく上部配線 - TES、TES - 下部配線に切り分けて RT 測定を行った結果、超伝導転移は見られず、TES - 下部配線の抵抗値は数 $\text{m}\Omega$ 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 (図 6.12)。

基板	測定日	状態	ID	T_c [mK]	残留抵抗[m Ω]	常伝導抵抗[m Ω]	I_c [A]
wafer01 SiO ₂ /Si Ti/Au =40/110	2014.0718	スパッタ後	0120付近	~105	~7	~200	-
			0101付近	~90	~3	~200	-
			2001付近	<80?	-	~200	-
	2014.0818	パターニング 後(上-下)	1010	100-200	~70	~1.10 $\times 10^3$	10-30 μ
			2019	100-200	~762	~1.44 $\times 10^3$	<10 μ
			2002	100-200	~1.25 $\times 10^3$	~1.43 $\times 10^3$	-
	2014.0822	パターニング 後(上-TES, TES-下)	1010(上-TES)	~220	~33	~630	<30 μ
			2002(上-TES)	100-200	~745	~900	-
			0102(TES-下)	転移しない	-	~3.3 $\times 10^3$	-
			2019(TES-下)	転移しない	-	~5	-
wafer05 SiO ₂ /SiN/Si Ti/Au =40/110	2014.0711	未加工	0101	~1.15 $\times 10^3$ (Al)	~7	~1.4 $\times 10^3$	<300 μ
			0120	~1.15 $\times 10^3$ (Al)	~3	~1.4 $\times 10^3$	>1m
			2020	~1.15 $\times 10^3$ (Al)	~5	~1.4 $\times 10^3$	>1m
	2014.08.0 5	パターニング 後(上-下)	0220	転移しない	-	~1.11 $\times 10^3$	-
			1010	転移しない	-	~1.79 $\times 10^3$	-
			0504	転移しない	-	~2.00 $\times 10^3$	-
			1901	転移しない	-	~1.64 $\times 10^3$	-
	2014.08.1 4	パターニング 後(上-TES, TES-下)	0504(上-TES)	転移しない	-	~436	-
			1903(上-TES)	転移しない	-	~410	-
			1010(TES-下)	転移しない	-	~4	-
			1901(TES-下)	転移しない	-	~6	-

図 6.12: cycle 1 の RT 測定のパラメーター一覧

6.3 wafer 01, 05 の断面観察

cycle1 では §5 で改善された常伝導抵抗、残留抵抗、転移温度がいずれも要求値を満たさなかった。そこで、FIB-SEM を用いて wafer 01 と wafer 05 の断面を観察し、原因がないか探る。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。観察位置は 1. 上部配線 - TES、2. TES 中央部 (ボンディング痕)、3. TES - コンタクトホール、4. コンタクトホールの 4 箇所である (図 6.13)。また、上部配線 - TES、TES 中央部に関しては EDS(Energy Dispersive X-ray Spectrometer) による元素分析も行った。

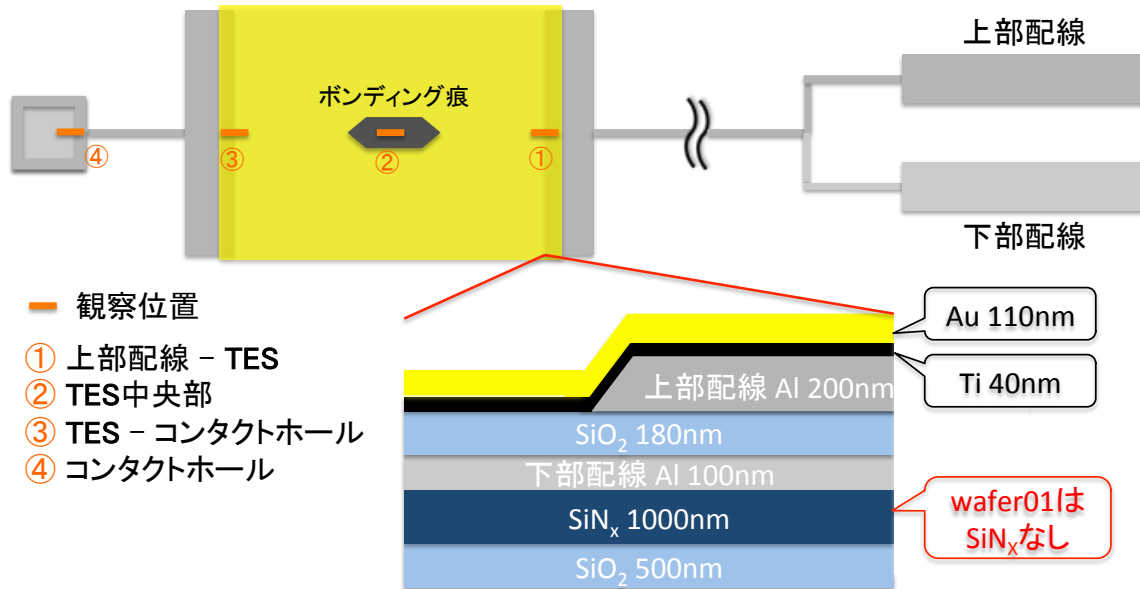


図 6.13: FIB-SEM による断面観察の測定位置。

6.3.1 wafer 01

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。

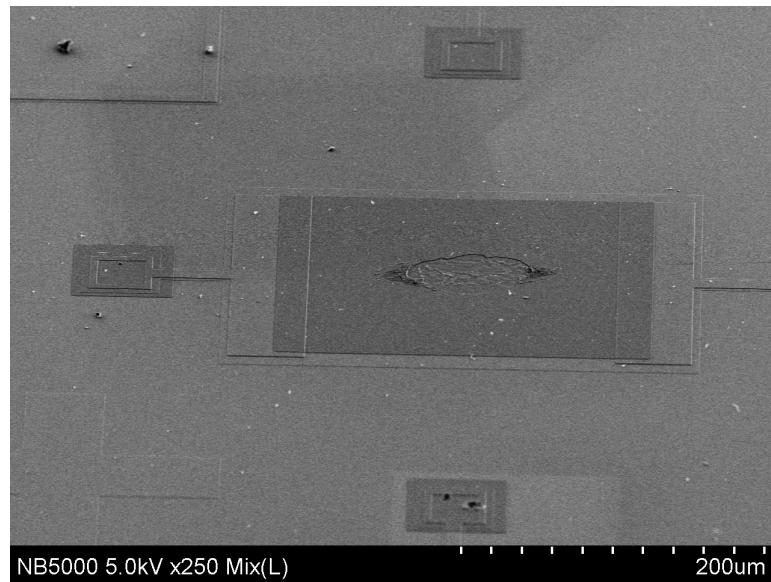


図 6.14: wafer 01 pixel ID:1010 のピクセル全体の SEM 画像。
中心部分の窪みがボンディング痕。

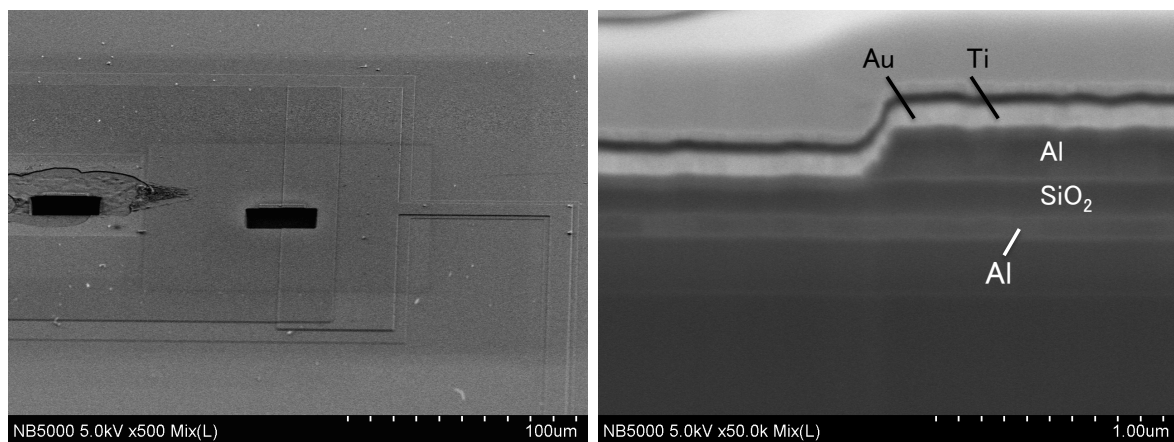


図 6.15: 上部配線 - TES の断面図。傾斜角が大きく、チタンと金が薄くなっていることを確認できる。

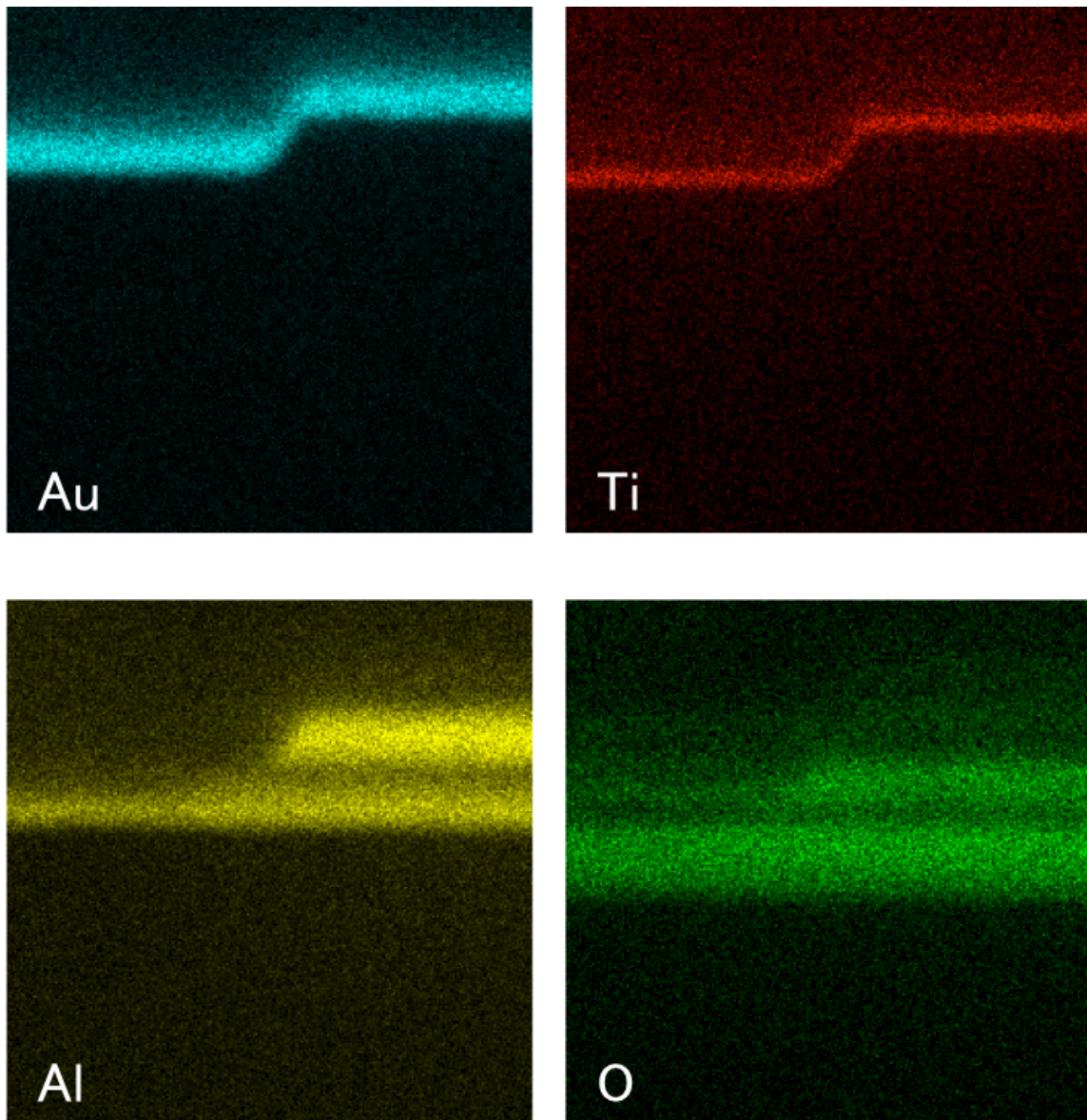


図 6.16: 上部配線 - TES の断面の元素分析。傾斜の部分でチタンがかなり薄くなっている。

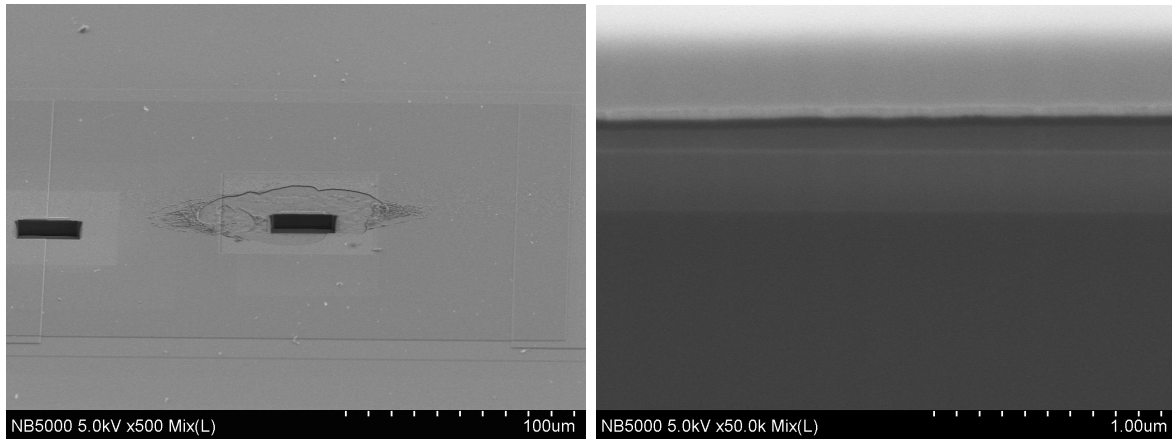


図 6.17: TES 中央部 (ボンディング痕) の断面図。チタンと金は成膜されていないように見える。

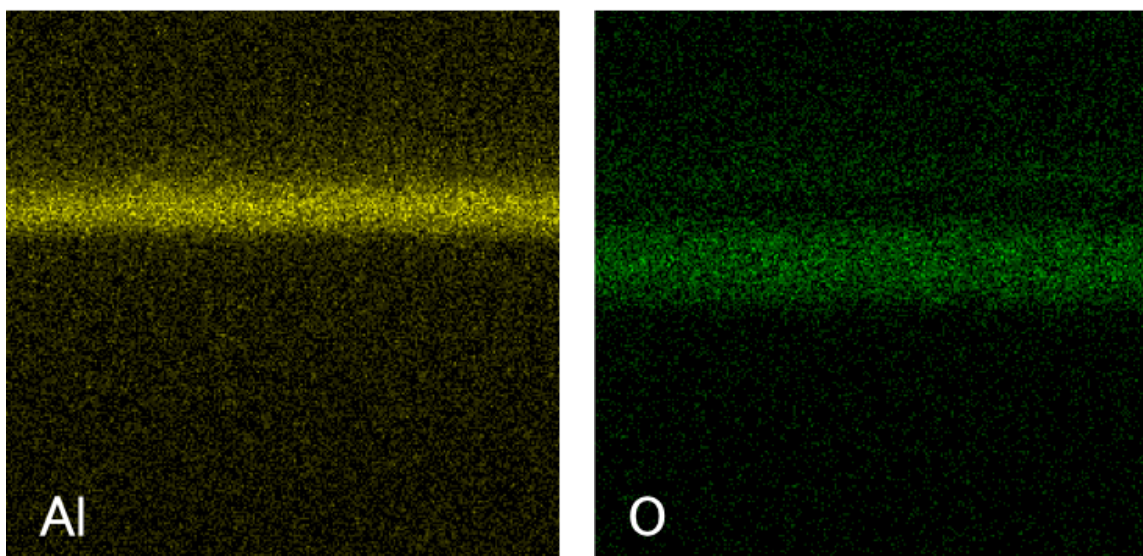


図 6.18: TES 中央部 (ボンディング痕) の断面の元素分析。下部配線 Al の上に酸化膜はないように見える。

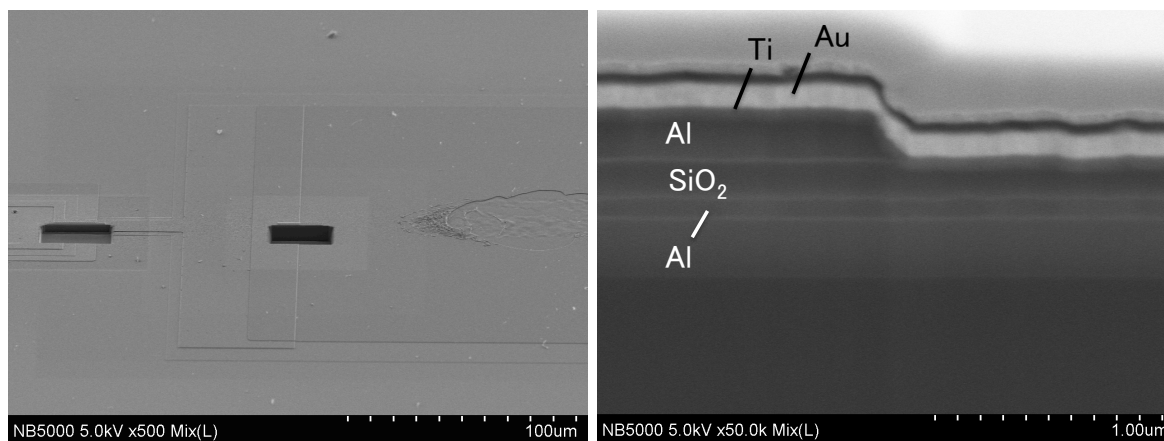


図 6.19: TES - コンタクトホールの断面図。

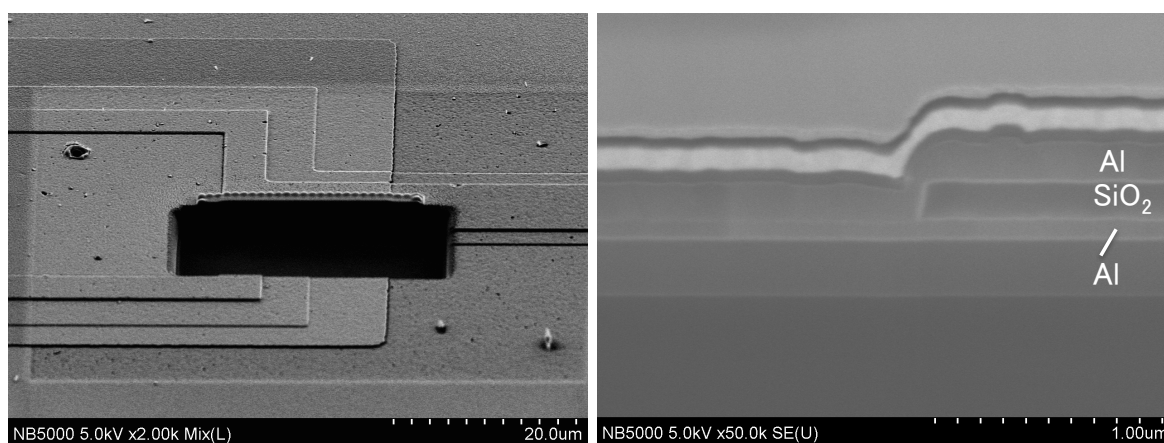


図 6.20: コンタクトホールの断面図。

6.3.2 wafer 05

pixel ID:1010 の断面を観察した。wafer 05 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。

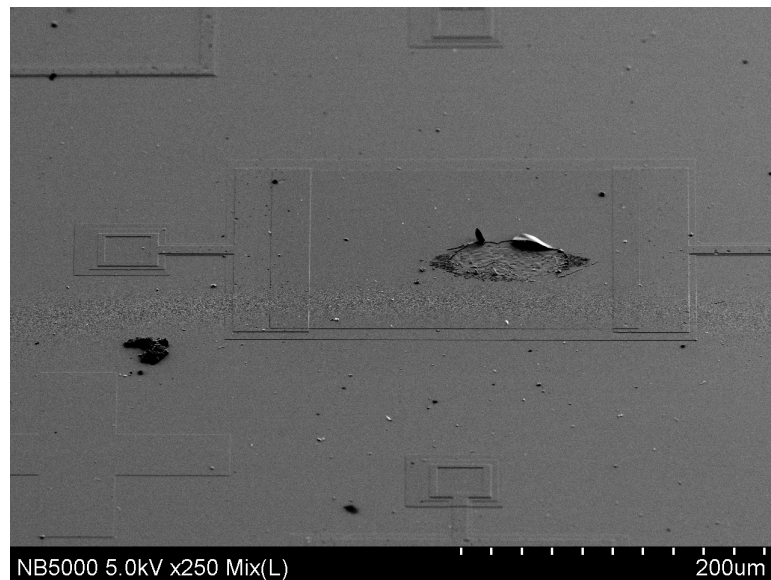


図 6.21: wafer 05 pixel ID:1010 のピクセル全体の SEM 画像。
中心部分の窪みがボンディング痕。

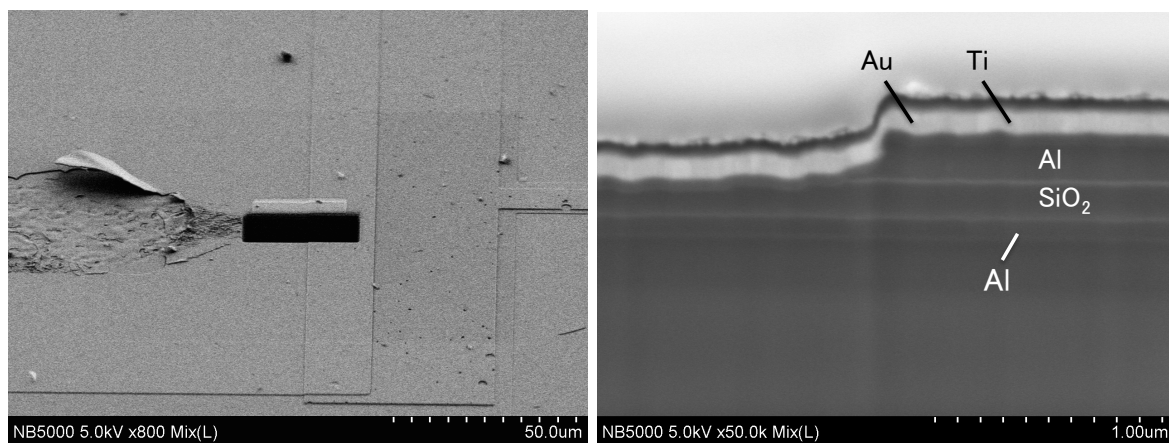


図 6.22: 上部配線 - TES の断面図。傾斜角が大きく、一様でないことを確認できる。

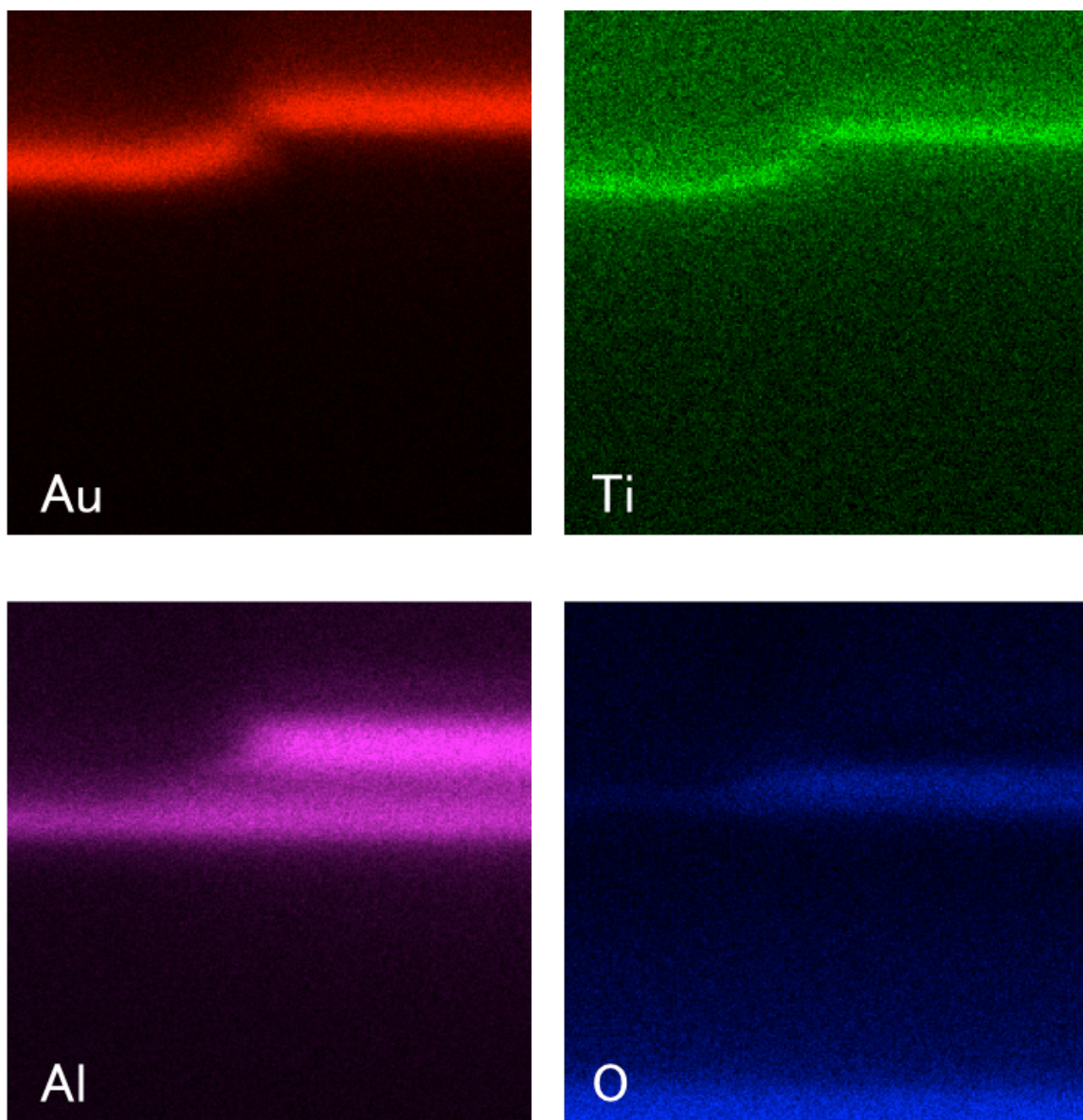


図 6.23: 上部配線 - TES の断面の元素分析。チタン、金が段切れ気味に見える。

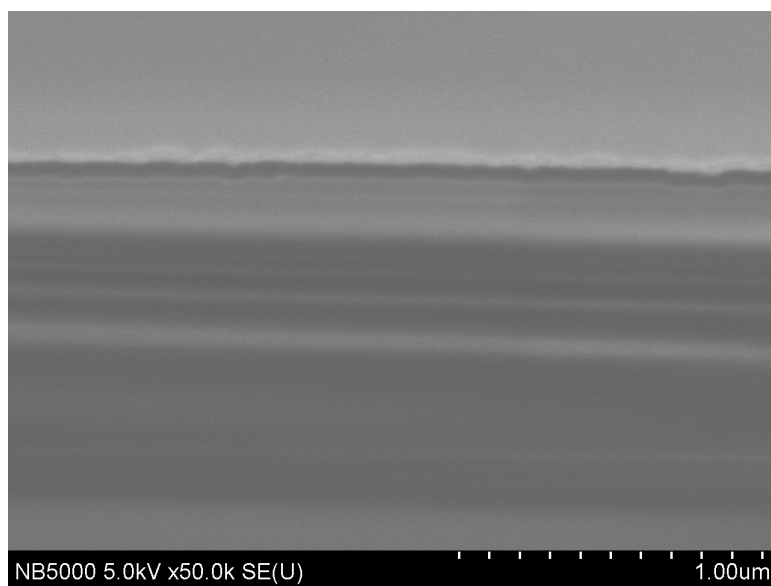


図 6.24: wafer05 pixel ID:1010 の TES 中央部の断面を FIB-SEM で観察。

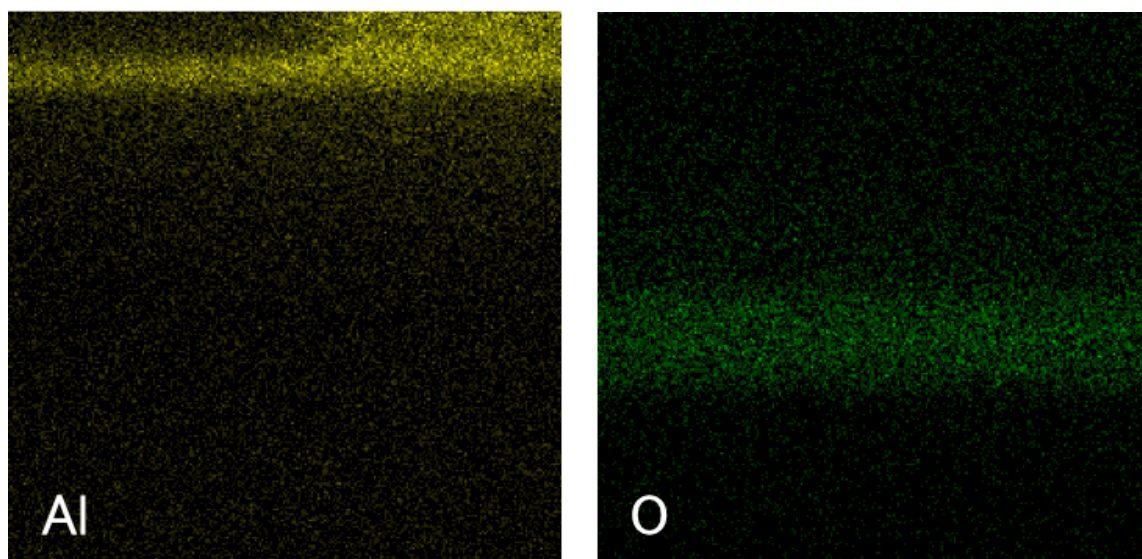


図 6.25: wafer05 pixel ID:1010 の TES 中央部の断面の元素分析。

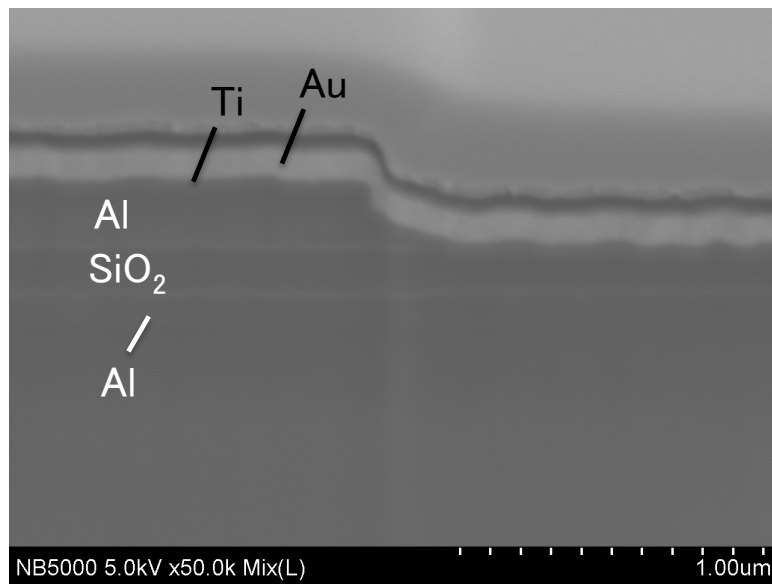


図 6.26: wafer05 pixel ID:1010 の TES - コンタクトホールの断面を FIB-SEM で観察。

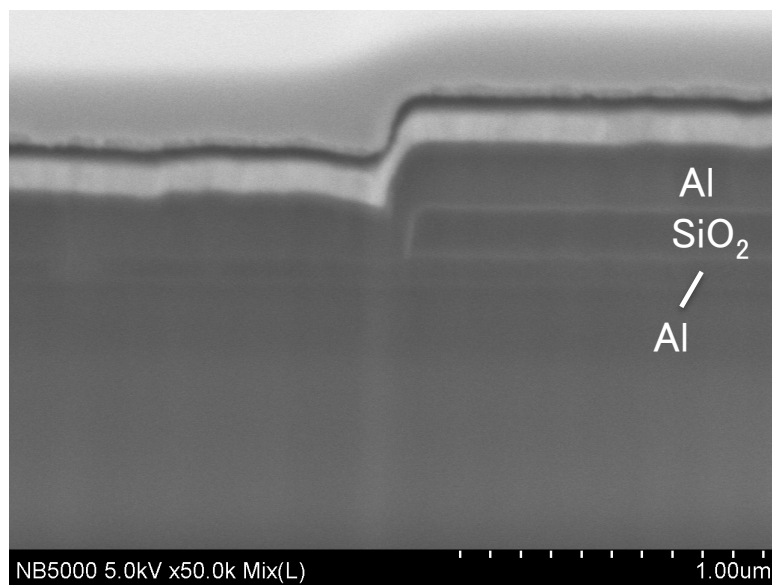


図 6.27: wafer05 pixel ID:1010 のコンタクトホールの断面を FIB-SEM で観察。

6.3.3 断面観察のまとめ

1. 上部配線 - TES のテーパー角が急である。

wafer 01、05 とともに上部配線 - TES のテーパー角が急で、チタン、金が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、常伝導、残留抵抗が高くなっていると考えられる。

2. 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。

3. 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。

6.4 試作 cycle 2

cycle1 の結果を受けて、cycle2 ではパラメーターを以下の様に変更した。

- レジストリフローの条件を変更 (180℃、20 min)
- TES の膜厚 Ti/Au = 40/90 nm

新たに産総研でプロセス 1~4 まで行い、wafer 06、07、08 を製作した。3 枚とも SiO₂/SiN/Si 基板上に作られている。

表 6.2: cycle2,3 で製作した基板の膜厚

基板 ID	上部/下部配線の膜厚	絶縁膜 (SiO ₂) の膜厚	基板の表面膜	Ti/Au の膜厚
wafer06	200/100 nm	180 nm	SiO ₂ /SiN/Si	40/90 nm
wafer07	200/100 nm	180 nm	SiO ₂ /SiN/Si	40/70 nm (cycle3 で試作)
wafer08	200/100 nm	180 nm	SiO ₂ /SiN/Si	

6.4.1 wafer 06(TMU 389)

スパッタは Ti/Au = 40/90 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 5 分 15 秒行った。金エッチングを前回の膜厚 (110 nm) と同じ時間 (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いた (図 6.28)。

冷凍機にて RT 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 ~300 mΩ と改善できた (図)。

6.4.2 wafer 02(TMU 387)

cycle2 のピクセル確認用として試作を行った。パラメーターはすべて wafer 06 と同じだが、RT 測定は行わなかった。エッチング後に wafer 06 と同様に配線にダメージが見られ、一部ピクセルには水滴のようなものが見られた (図 6.29)。

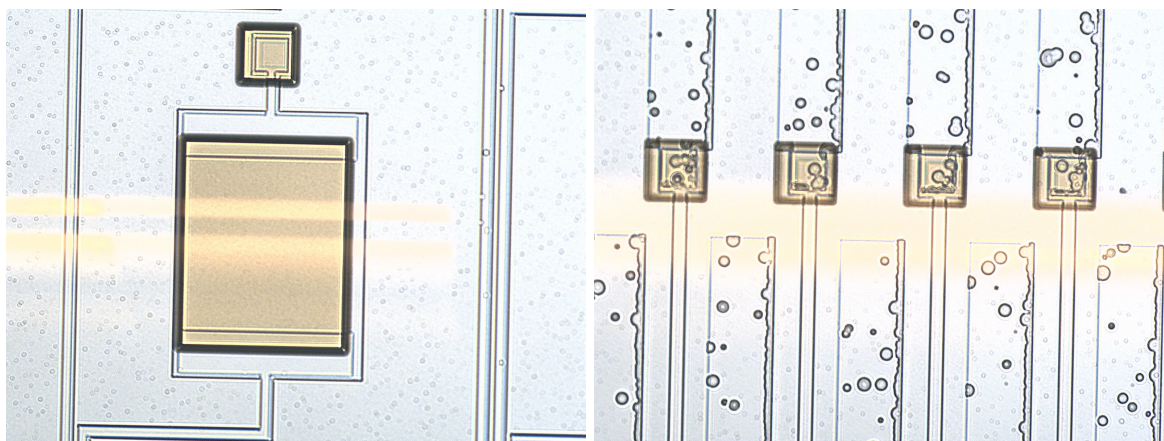


図 6.28: wafer 06 の Au, Ti エッチング後のピクセル (左) 及びパッド (右) の光学顕微鏡写真。所々配線にダメージが見られる。

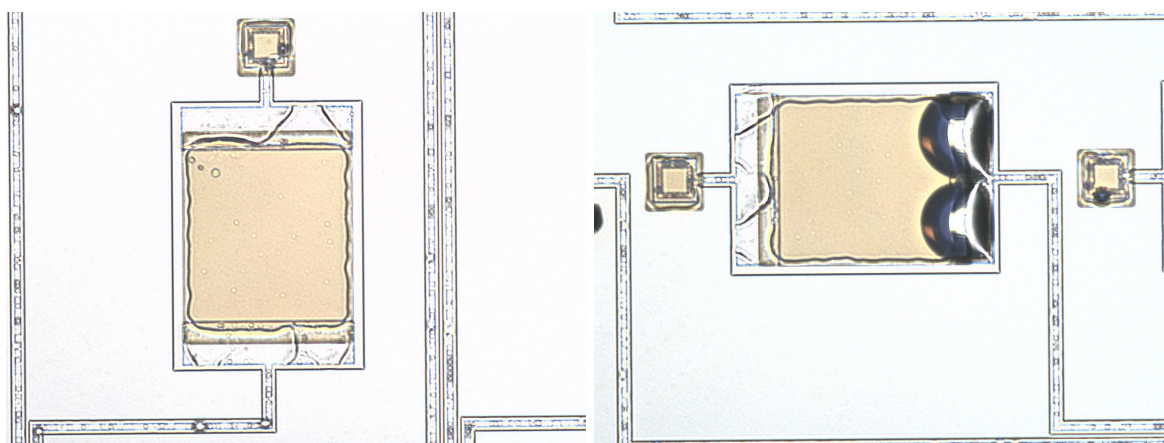


図 6.29: wafer 02 の Au エッチング後のピクセルの光学顕微鏡写真。配線にダメージが見られ (左)、一部ピクセルには水滴のようなもの残っている (右)。

6.4.3 cycle 2 まとめ

パラメーター後の RT 測定で常伝導抵抗を改善することができたが、転移は見られなかった。原因として 2 点挙げられる。

1. 転移温度が低すぎる。

宇宙研 A 棟 6F の Dektak で TES の膜厚を測定したところ、目標値から大きくズレていないことが確認できた (図 6.30)。過去の条件だしでは、Ti/Au = 40/90 nm の転移温度は 160-170 mK であったが、レートが変わっている可能性がある。

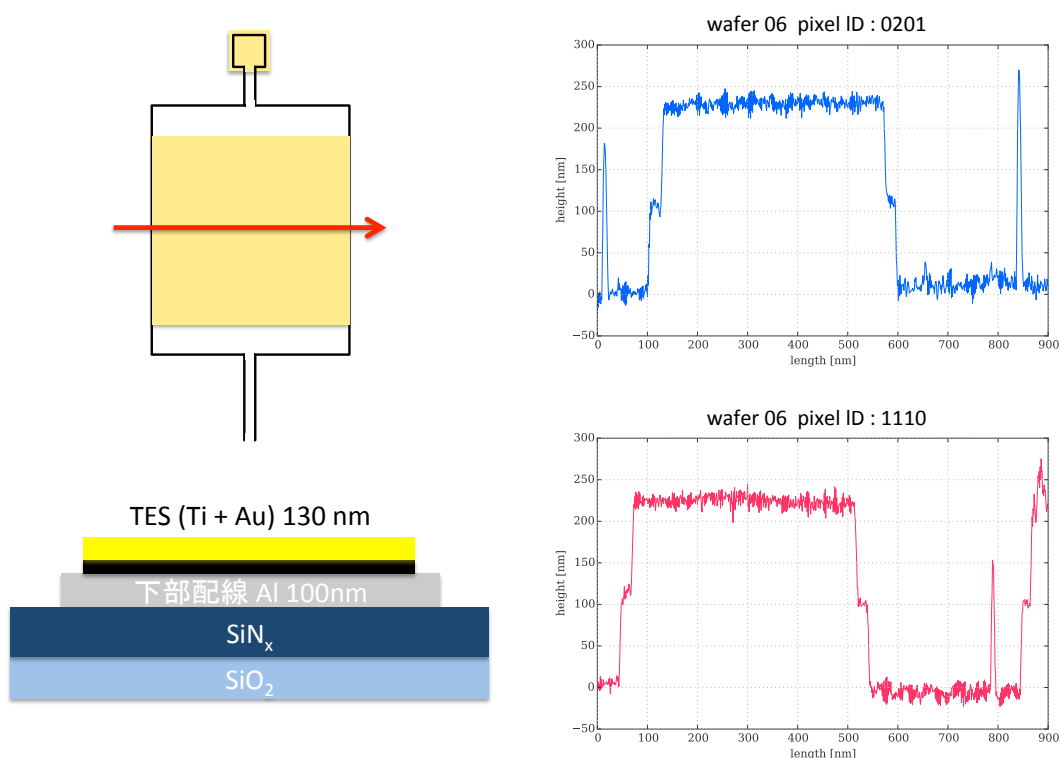


図 6.30: wafer06 のピクセル部分の膜厚を Dektak で測定。TES (Ti+Au) の膜厚は ~130 nm と確認できる。

2. 上部配線のダメージ

金エッチング後に上部配線にダメージが見られた。これが原因で転移特性が著しく悪くなり、転移しなかったとも考えられるが、常伝導抵抗が低いことから可能性は低い。

3. 段切れを起こしている

cycle 1 からレジストリフローの条件を変更したが、cycle 2 の基板でも Al 配線 - TES の間で段切れを起こしている可能性がある。

上記の可能性を踏まえ、次のサイクルの前に改めて TES 膜厚と転移温度の条件出しを行う必要がある。

6.5 転移温度条件出し (TMU390、391、392)

2 cm 角の $\text{SiO}_2/\text{SiN}/\text{Si}$ 基板上に金、チタンを成膜したものを冷凍機にて冷却し、RT 測定した。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。RT 測定の結果、転移温度は $\text{Au} = 70 \text{ nm}$ の素子が $\sim 237 \text{ mK}$ 、 $\text{Au} = 80 \text{ nm}$ の素子が $\sim 225 \text{ mK}$ 、 $\text{Au} = 100 \text{ nm}$ の素子が $\sim 167 \text{ mK}$ と過去の条件だしに近い値になった。

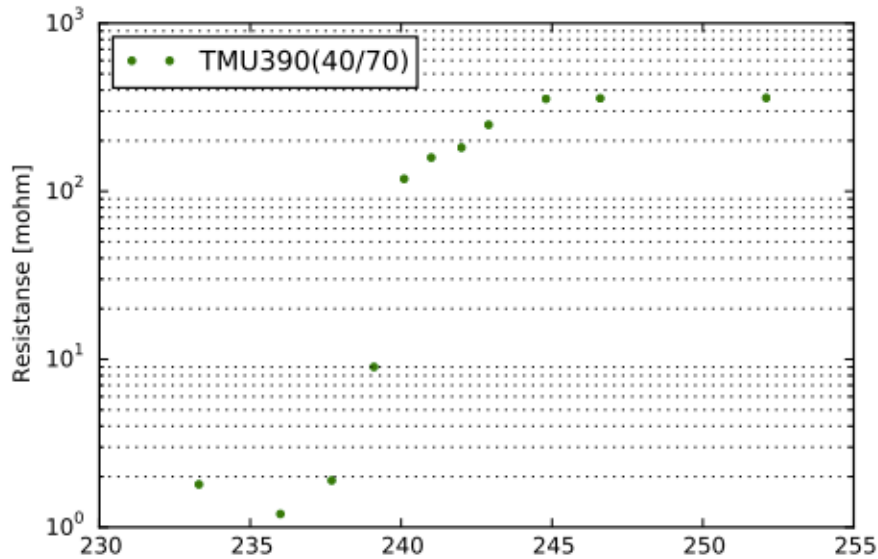


図 6.31: TMU390 (Ti/Au = 40/70 nm) の RT 測定の結果。

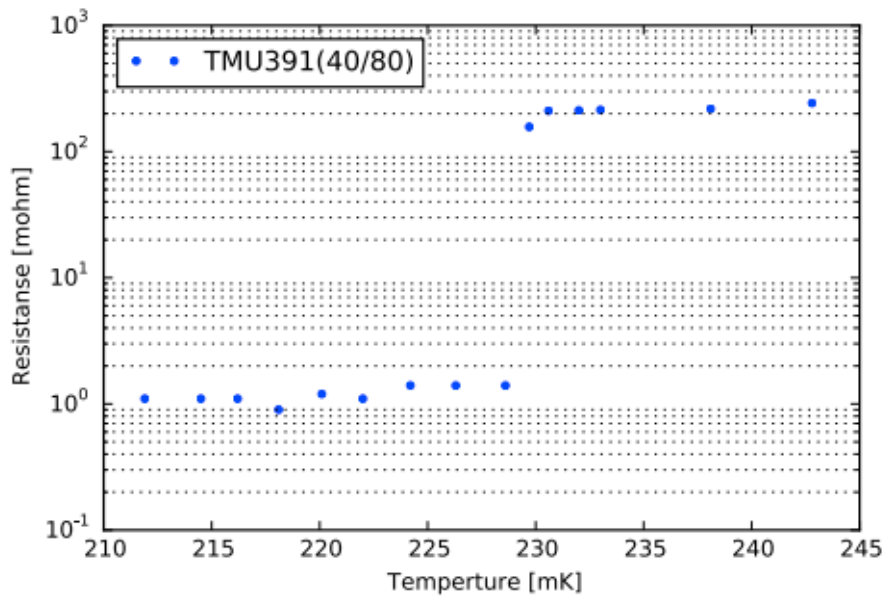


図 6.32: TMU391 (Ti/Au = 40/80 nm) の RT 測定の結果。

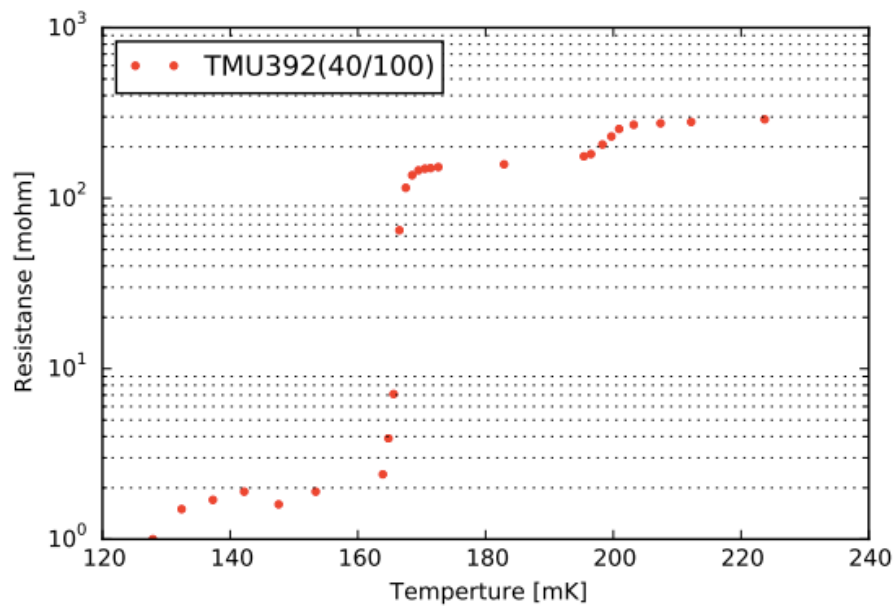


図 6.33: TMU392 (Ti/Au = 40/100 nm) の RT 測定の結果。

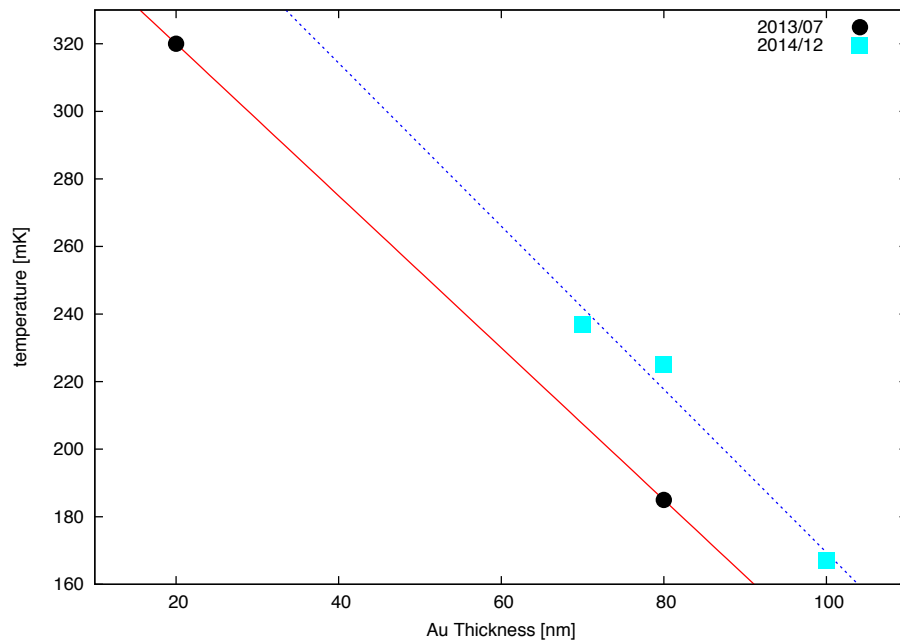


図 6.34: チタンの厚みを 40 nm に固定した時の、金の厚みと転移温度 T_c の関係。青色四角が 2013 年 7 月、黒色丸が今回の条件だしの結果である。

6.6 試作 cycle 3

cycle 2 の結果を受けて、cycle 3 では超伝導転移の確認を目的とし、TES の膜厚を $\text{Ti}/\text{Au} = 40/90$ nm に設定した。使用する素子は wafer 07 に加え、プロセス確認用に SiO_2/Si 基板の wafer 03 も製作を進める。

6.6.1 wafer 07 (TMU 394)

NMD-3 による現像でパターンが流れてしまい、3 回やり直した。3 回目の現像は 2 分 47 秒行った。Au エッチングはエッチングレート 2.2 nm/sec に従い、32 秒行った。Au 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。

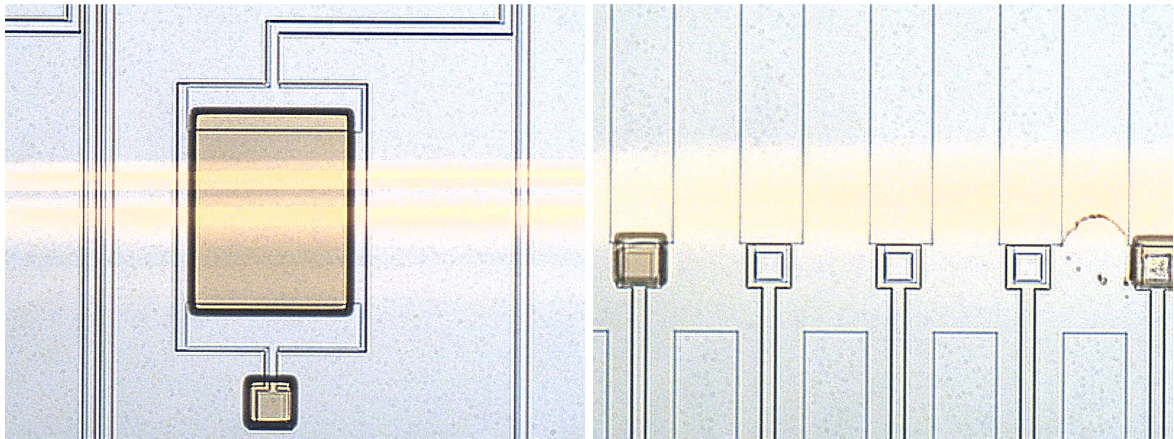


図 6.35: wafer 07 の TES パターニング後 (エッチング前) のピクセル (左) 及びパッド (右) の光学顕微鏡写真。ピクセルは正常にパターニングされているが、パッドの一部はパターンが抜けている。

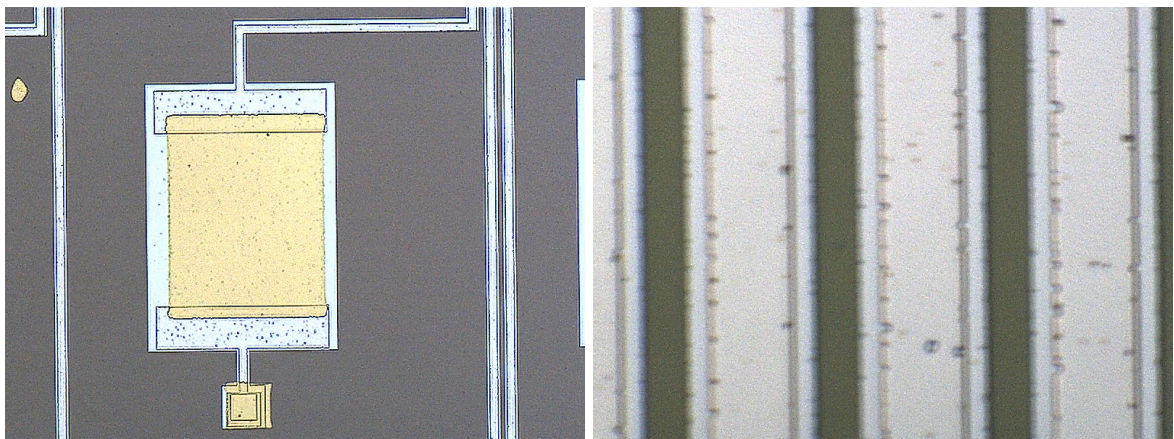


図 6.36: wafer 07 の Au, Ti エッチング後のピクセル (左) 及び配線 (右) の光学顕微鏡写真。配線の一部がダメージを受けている。

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

6.6.2 wafer 03 (TMU 393)

NMD-3 による現像で wafer 07 と同様にパターンが流れるという問題が発生し、3 回やり直した。3 回目の現像は 4 分 21 秒行った。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、プロセスを進めた。Au エッチングは wafer 07 と同様に 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。

6.6.3 cycle 3 まとめ

wafer 07, 03 の試作及び評価を行った結果の問題点を以下にまとめる。

1. 超伝導転移しない。

金の膜厚を 70 nm (条件だしでは転移温度 ~ 237 mK) でスパッタしたにも関わらず、超伝導転移しなかった。cycle 1 で SiO_2/Si 基板の転移は確認でき、cycle 1, 2, 3 ではいずれも $\text{SiO}_2/\text{SiN}/\text{Si}$ 基板は転移していない。窒化膜が超伝導転移に何らかの影響を与えている可能性がある。

2. 現像でパターンが流れる。

cycle 1, 2 でも現像でパターンが流れてしまう問題があり、今回も発生した。TES とレジストの接着が弱いと考えられるため、今後条件だしを行い、使用するレジスト、ベーキング時間、露光時間、現像液などを最適化する必要がある。

3. 配線がダメージを受ける。

Au エッチング後に配線にダメージが見られた。cycle 1, 2 ではエッチング液の使い回し、エッチング時間の間違い、二酸化リン酸アンモニウムが完全に溶けきっていなかったといった理由が考えられたが、今回も起こったため、条件だしが必要である。

6.7 AFM による傾斜観察

cycle 2,3 の結果を受け、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 6.37, 6.39 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、図に示すように wafer 08 の光学顕微鏡による観察で、配線表面や絶縁膜 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) 2 セット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。

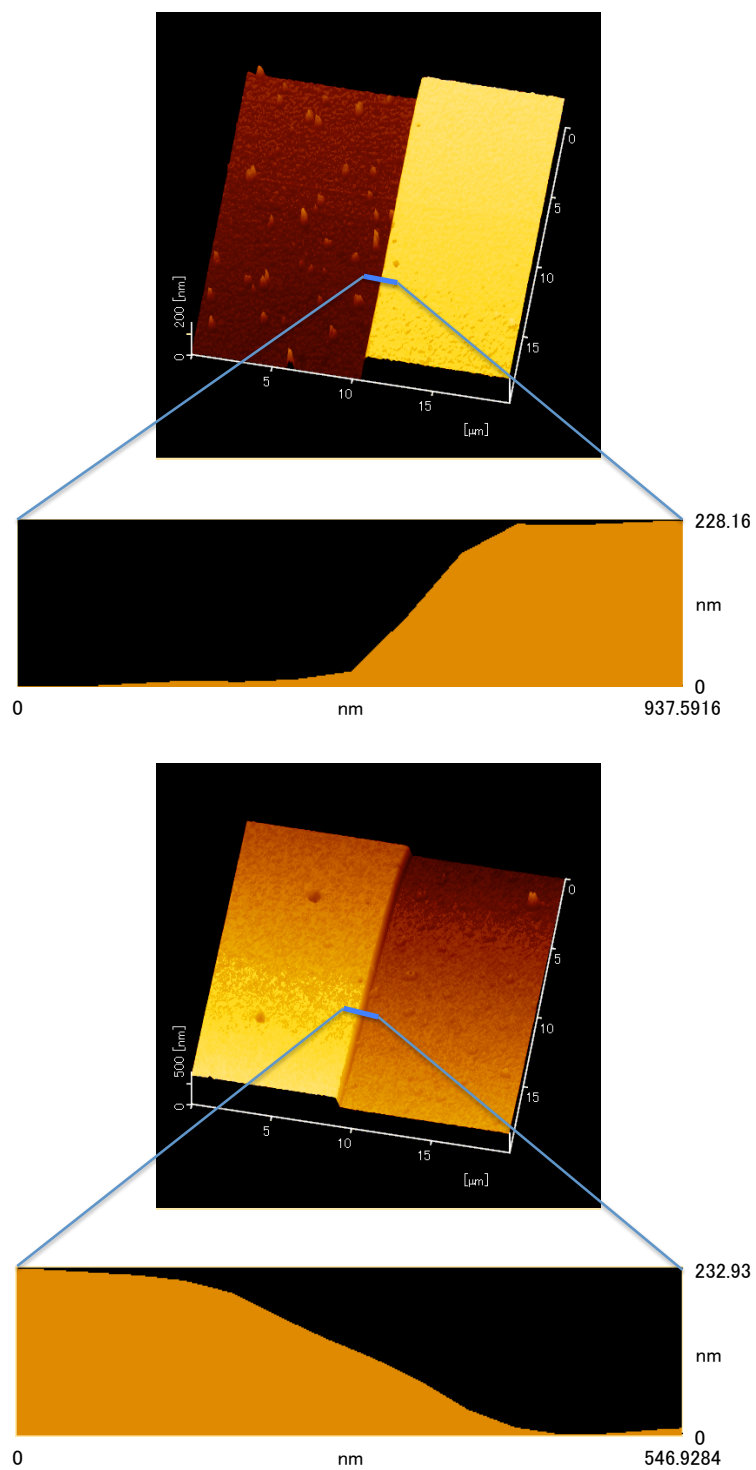


図 6.37: wafer 08 中心付近 pixel のアルミ配線傾斜の AFM 観察結果。

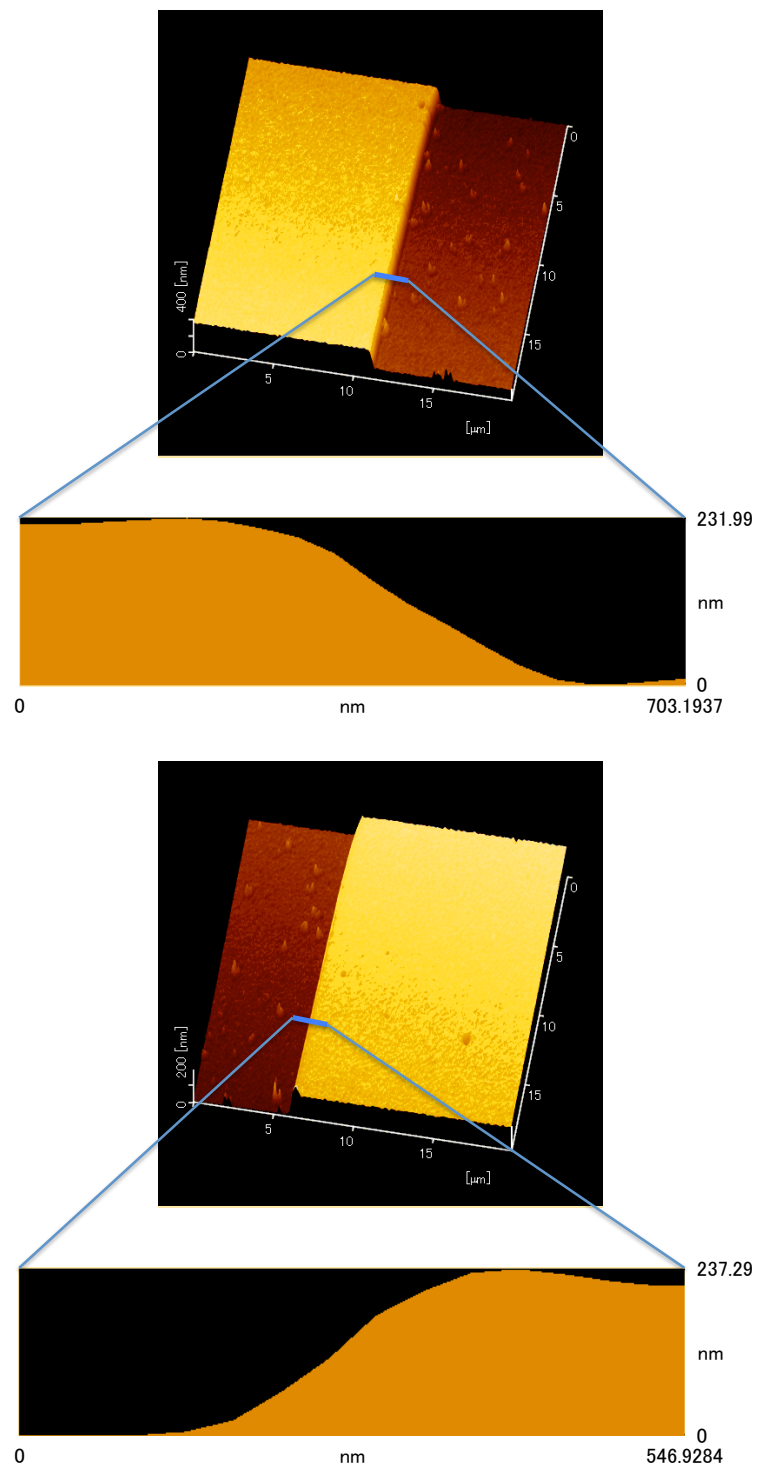


図 6.38: wafer 08 基板端付近 pixel のアルミ配線傾斜の AFM 観察結果。

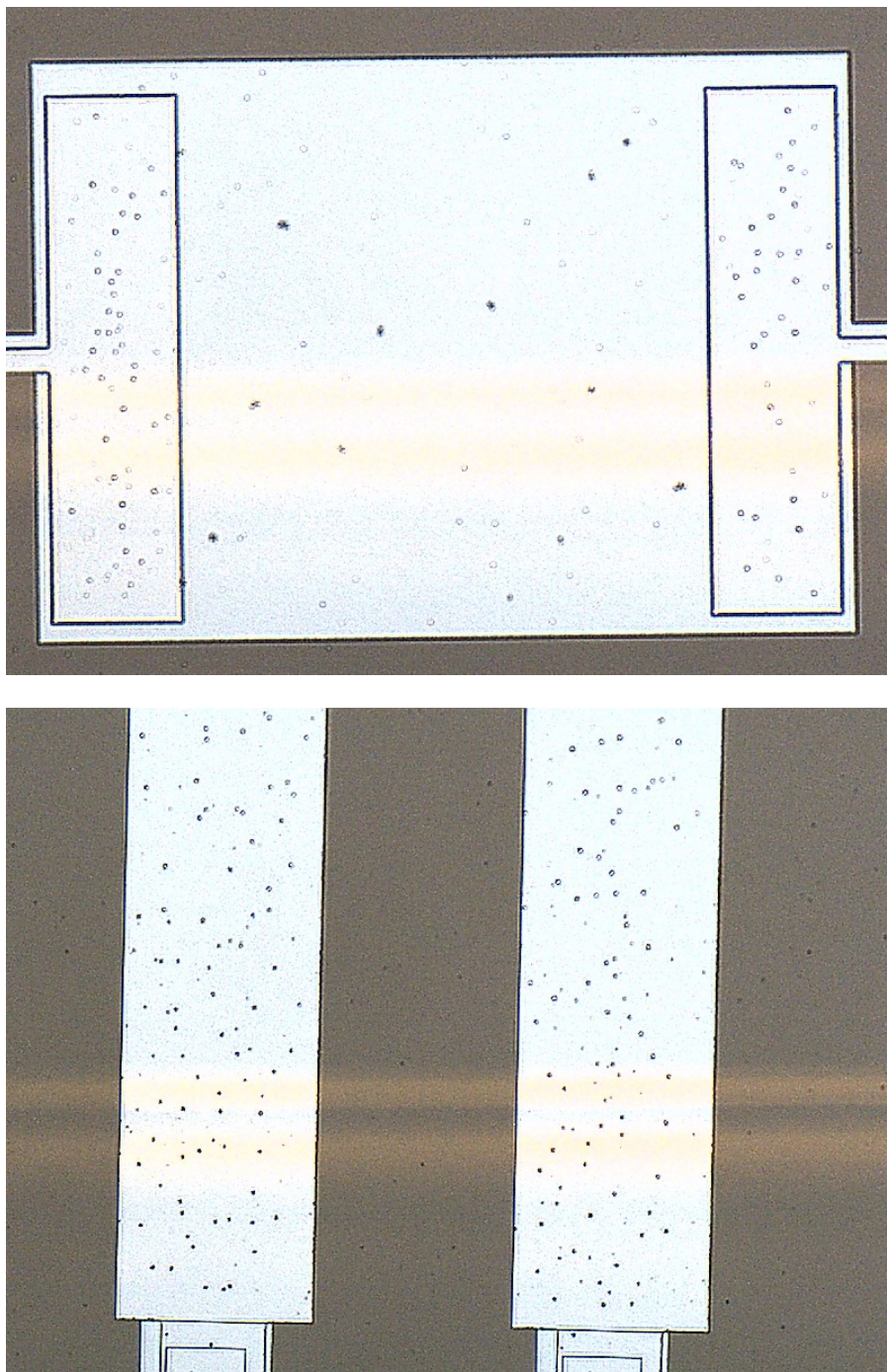


図 6.39: wafer 08 の光学顕微鏡による観察。上図がピクセル、下図がパッド部分。上部配線及び絶縁膜 SiO_2 上に汚れが見える。

第7章 実験装置と性能評価方法

7.1 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、 ~ 100 mK 以下の冷凍能力をもつ冷凍機が必要である。この冷凍機として、希釈冷凍機を使用した。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。 ^3He - ^4He 希釈冷凍機の冷却は、液体 ^3He と液体 ^4He との混合希釈によってなされる。 ^3He - ^4He 混合液 (mixture) は、0.87 K 以下で超流動性を示さない ^3He 含量の多い ^3He -濃厚層 (concentrated phase) と超流動性を示す ^3He 含量の少ない ^3He -希薄層 (dilution phase) とに分離する。冷却は、 ^3He -濃厚相と ^3He -希薄相中の ^3He のエントロピーの違いを利用するもので、 ^3He -濃厚相から ^3He -希薄相へ ^3He が混入するときに吸熱がおこる。

使用した希釈冷凍機は、大陽日酸 TS-3H100-GM 型希釈冷凍機 (図 7.1) で、高さ 96.1 cm、直径 25.4 cm の円柱形をしている。低温にシール部を持たずサンプル交換が容易であり、液体 He の代わりに 4KGM 冷凍機を同じ真空断熱容器内に設置し 4.2K の低温を作ることで、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 100mK 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 ~ 80 mK である。

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 ϕ 、1K 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
	同軸ケーブル 室温導入部のみ、配線は無し
	配線 48 本 (LOOM ワイヤー 12 ペア 2 セット)

冷凍機ユニット

4KGM 冷凍機	型式	SDRK408
	最低到達温度	4.2K 以下
	冷凍能力 (1st)	30W @ 40K
	冷凍能力 (2nd)	1W @ 4.2K
	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	7~10L/min
	メンテナンスサイクル	30000 時間



図 7.1: 無冷媒希釈冷凍機

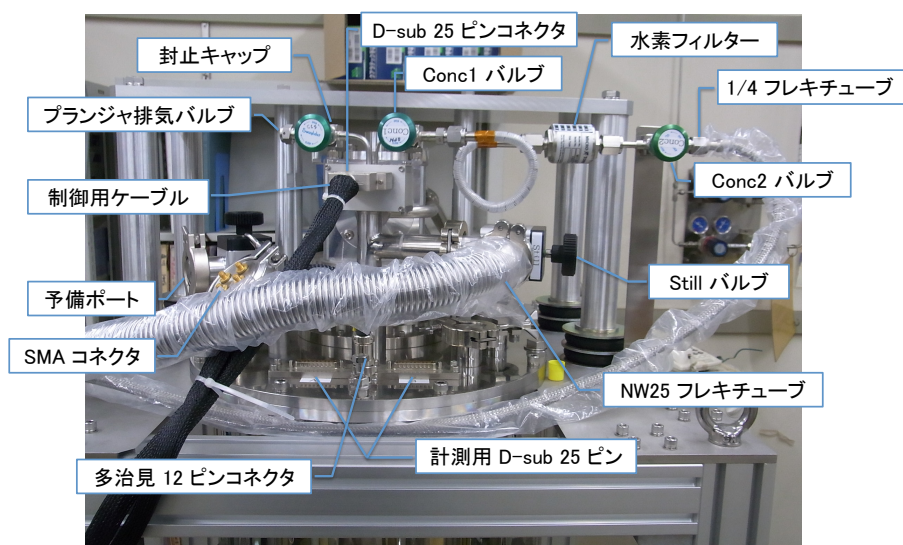


図 7.2: 冷凍機の名義

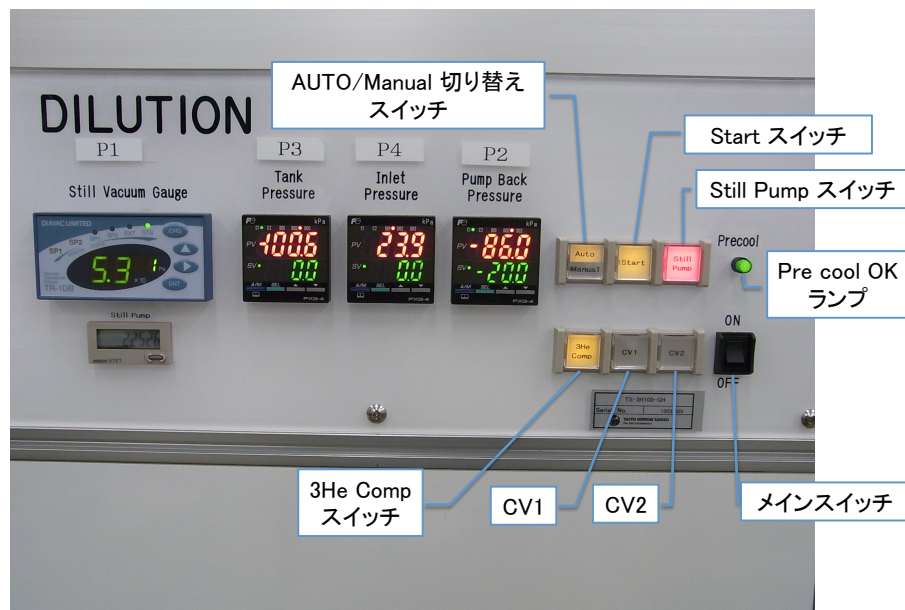


図 7.3: 冷凍機の操作スイッチ



図 7.4: 冷凍機の液体窒素トラップ

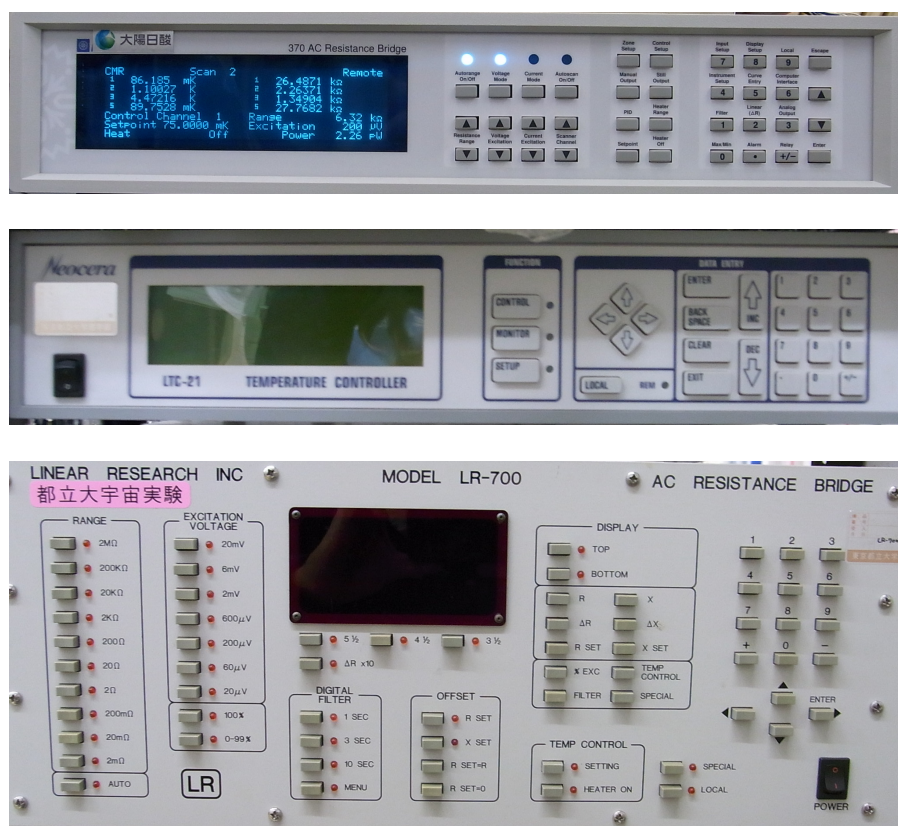


図 7.5: 測定に用いる機器。上から Lake Shore 370 (温度モニター、ヒーターの制御)、LTC-21 (素子の温度測定)、LR-700 (素子の抵抗測定)。

7.2 冷凍機の性能評価

測定時に得られたデータをもとに新希釈冷凍機の性能を評価する。以下の結果は実際にカロリメータを組み込んで測定する際の目安になる。

7.2.1 冷却時間

表 7.2 は過去 10 回の測定で Mixing Chamber が最低温度付近 (~ 120 mK) に到達するまでの所要時間、図 7.6 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 7.7 に 2015 年 1 月 10 日の各ステージの温度変化を示す。

表 7.1: 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

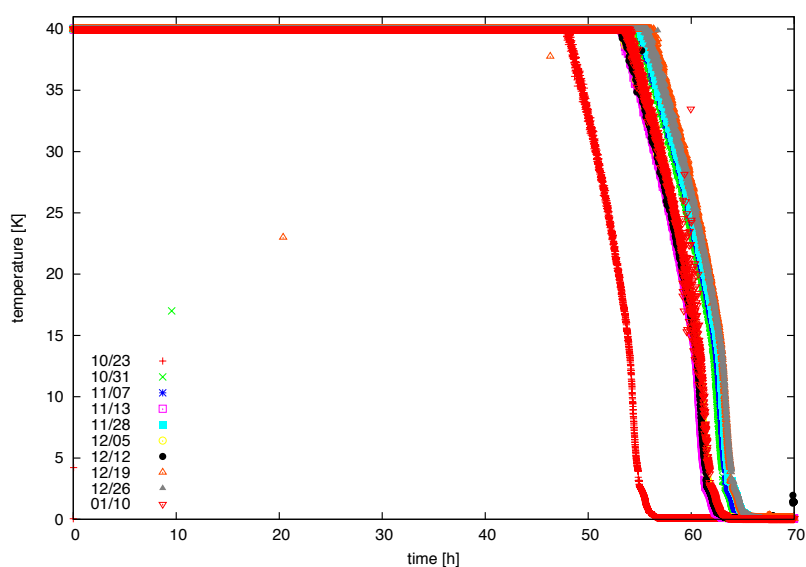


図 7.6: 過去 10 回の測定での Mixing Chamber の温度変化。

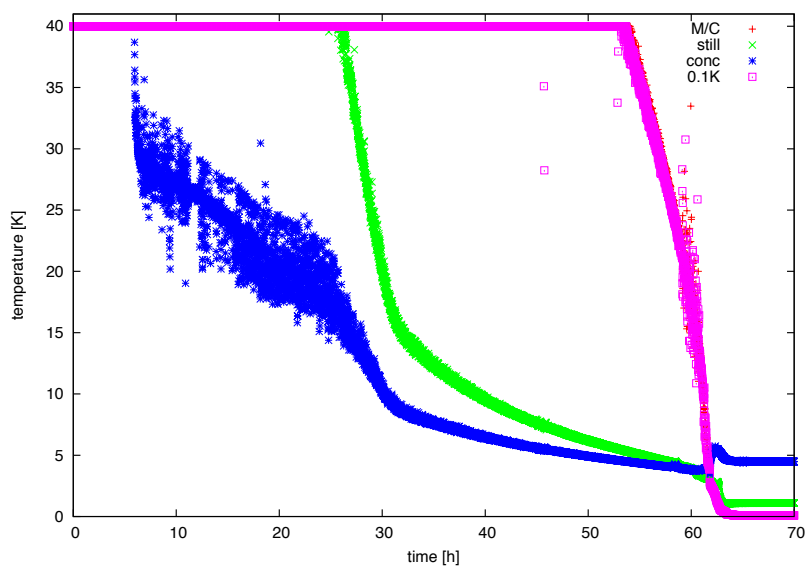


図 7.7: 各ステージの温度変化

7.2.2 温度ゆらぎ

図 7.8 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 ~ 0.4 mK である。

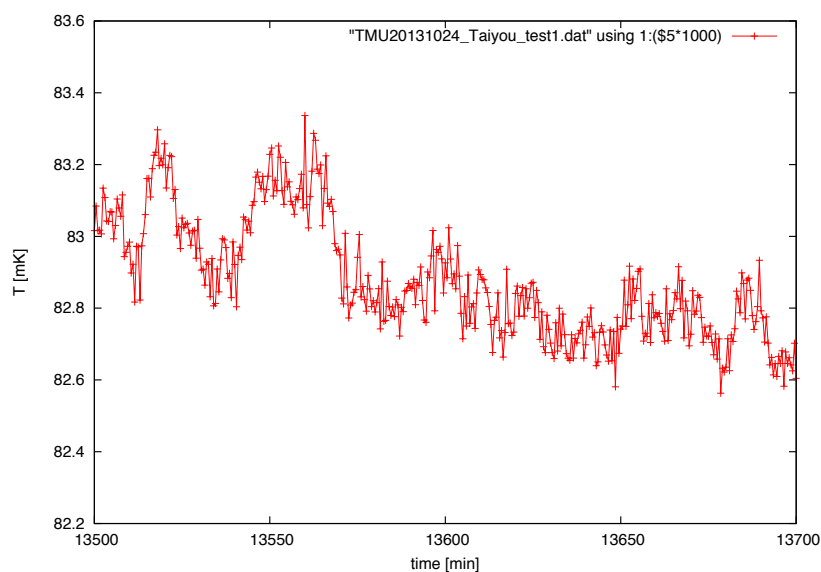


図 7.8: 低温ステージの 200 分の温度ゆらぎ

7.3 冷凍機の測定環境整備

この節では、無冷媒希釈冷凍機での測定のための環境整備について説明する。過去に起こった問題を挙げ、改善方法や考察について書かれている。

表 7.2 は冷凍機の Mixing Chamber、極低温ステージ、素子ホルダーの最低到達温度を表している。2013 年 10 月 22 日の測定のセットアップ (図 7.9 左) では、配線とステージ外側の 0.1K フランジが接触していたため、490 mK までしか冷えなかったと考えられた。その後の測定では、図 7.9 中央のようなセットアップに変更し、素子ホルダーとステージの間に真空グリス APIEZON-N を薄く塗ることにした。これによりステージとの熱接触を良くして、 ~ 100 mK という極低温まで冷やすことを可能にした。さらに、測定可能なチャンネル数を増やすために新たに読み出しボックスと極低温ステージに接続する micro D-sub を製作し、図 7.9 右のようなセットアップに変更した。これで最大 11 チャンネルの読み出しが可能になり、micro D-sub をコンパクトにすることでスペースを削減した。D-sub Pin の対応については表 7.3 に示す。今後、空いたスペースを活用してコイルを組み込んだ測定など新たな測定が可能になるかもしれない。

表 7.2: 各ステージでの最低到達温度

測定日	Mixing Chamber [mK]	極低温ステージ [mK]	素子ホルダー [mK]
2013/10/22	85.48	100.47	490
2013/10/28	77.50	81.37	131
2013/11/ 2	76.43	79.24	83.7
2013/11/12	76.31	79.20	82.5
2013/11/18	77.38	80.44	97.0
2013/11/26	76.97	79.93	99.0
2013/12/ 2	77.18	80.52	110
2013/12/ 6	77.50	81.00	94.7
2013/12/13	77.43	80.70	87.0
2014/ 1/14	76.85	80.17	104

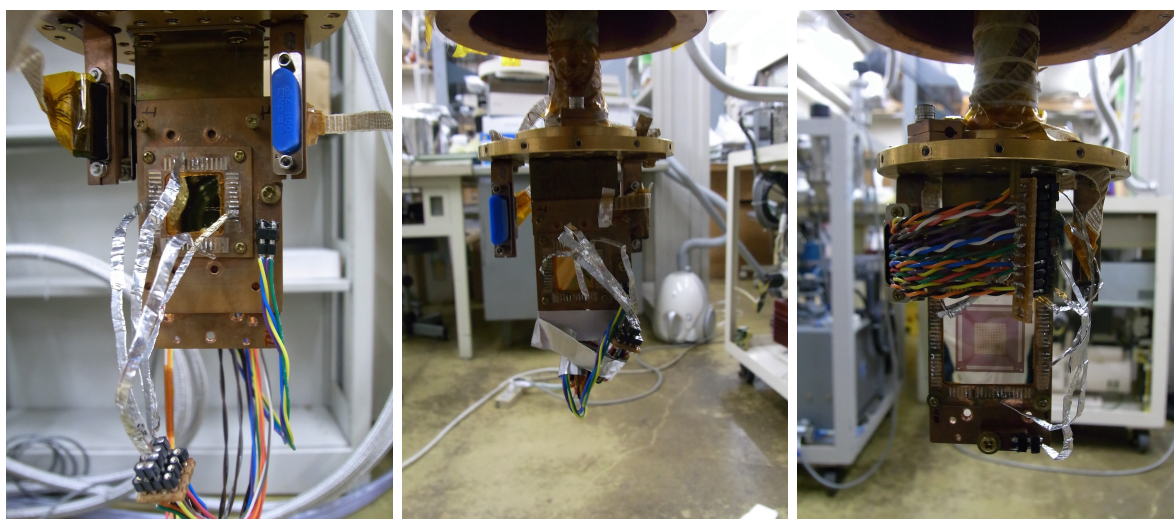


図 7.9: 素子スペースのセットアップ。左から古い順になっている。

表 7.3: D-sub Pin 対応表

	0.1 K ステージ コネクタ	計測線 1000 mm	トップフランジ D-sub 25Pin	micro D-sub 25Pin		読み出し ボックス
A,B 共通	1	ペア	1	1	V+	ch1
	14		14	14	V-	
	2	ペア	2	2	I+	
	15		15	15	I-	
	3	ペア	3	3	V+	ch2
	16		16	16	V-	
	4	ペア	4	4	I+	
	17		17	17	I-	
	5	ペア	5	5	V+	ch3
	18		18	18	V-	
	6	ペア	6	6	I+	
	19		19	19	I-	
	7	ペア	7	7	V+	ch4
	20		20	20	V-	
	8	ペア	8	8	I+	
	21		21	21	I-	
	9	ペア	9	9	V+	ch5
	22		22	22	V-	
	10	ペア	10	10	I+	
	23		23	23	I-	
	11	ペア	11	11	V+	ch6
	24		24	24	V-	
	12	ペア	12	12	I+	
	25		25	25	I-	
	13		13	13	未接続	

7.4 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、ホルダそのものと、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に、真空グリス APIEZON-N をうすく塗る場合もある。

カロリメータと Au 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ーンをを用いて行っている。図 に写真を示す。ボンディングワイヤーには ϕ 25 μm 、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 α を用いて接着し、ホルダーとの電氣的な接触はない。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 ϕ 97 μm 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。この配線は、抵抗測定 (R-T 測定) の際には、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 RuO₂ 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は小さいとして、ここの温度を TES の温度とみなして測定を行う。

7.5 性能評価方法

以下では素子の性能評価のために行った測定について説明する。

7.5.1 R-T 特性

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 RuO₂ 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。

7.5.2 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から常伝導状態へ移行する。この電流の最大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。

7.5.3 SQUID に接続されていない場合

また、正攻法ではないが、LR700 を用いた方法もある。SQUID に接続されていないチャンネルの場合、LTC controler 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。

第8章 まとめと今後

8.1 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 cm^2 の有効面積に $500\text{ }\mu\text{m}$ 角のピクセルの 20×20 アレイが必要である。先行研究では配線を SiO_2 の絶縁膜を挟んで重ね合わせ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、従来の積層配線で問題となっていた TES の段切れ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、上部配線のための試作を行った。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を良くし、配線はより厚くし傷耐性を高く、TES はより薄くすることで常伝導・残留抵抗が高い、歩留まりが悪いといった問題点の解決を図った。

本研究では、上記の試作素子を FIB (Focused Ion Beam) -SEM (Scanning Electron Microscope) を用いて断面観察を行った。その結果、上部配線端に段切れがなく、正常に TES が成膜できていることを確認した。この結果から、傾斜付き素子のプロセスを確立したと考え、新たに傾斜付き配線を用いた素子で積層配線素子を試作し、RT 測定による評価を行った。先行研究の結果から、上部配線の厚みを 200 nm 、下部配線の厚みを 100 nm 、TES 下層のチタンを 40 nm と固定した上で TES 上層の金を変えて試作した。cycle 1 では転移温度 $\sim 120\text{ mK}$ を狙い、金の厚みを 110 nm に設定した。しかし、冷凍機にて冷却し評価したところ、常伝導抵抗、残留抵抗ともに高く、超伝導転移しなかった。この結果を受けて、試作した素子の断面観察をしたところ、上部配線端の傾斜角が大きすぎるため TES がかなり薄くなっていることを確認した。そこで、cycle 2,3 ではレジストリフローの条件を変更し、確実に転移を確認するため、金の厚みを 90 nm 、 70 nm に設定して製作及び評価した。試作した素子を SEM で観察すると、配線にダメージが見られた。RT 測定の結果、常伝導抵抗が $\sim 300\text{ m}\Omega$ と正常値であったものの、超伝導転移は確認できなかった。

以上の結果から、私は傾斜付き配線を用いた積層配線素子の製作に成功し、従来の積層配線素子で問題となっていた常伝導抵抗を改善することができたが、超伝導転移を確認することはできなかった。

また、上記のような素子の評価をするためには $\sim 100\text{ mK}$ 程度まで冷却できる冷凍機が必要である。従来の冷凍機では冷却に 1 週間程かかり、1 度の実験に高価な液体ヘリウムを 100 L 程度必要とする。私は冷却試験を効率的にできるように、無冷媒希釈冷凍機の立ち上げ及び環境整備を行った。しかし、冷凍機導入当初は素子が 400 mK 程度までしか冷えなかった。そこで、低温ステージのセットアップを改善することで 100 mK 以下まで冷却することを可能にした。また、ステージの配線や読み出しボックスを製作し、一度に測定できるチャンネル数を 3 チャンネルから 11 チャンネルに増やすことに成功した。このように無冷媒希釈冷凍機の導入により、従来の冷凍機に比べて短時間に多くのチャンネルを測定できるようになり、効率的になったと言える。

8.2 今後の改善点

1. cycle 2,3 の試作ではいずれも超伝導転移を確認できなかった。常伝導抵抗は正常であったため、配線に問題はないと思われる。また、AFM による観察では傾斜角が $\sim 45^\circ$ と正常に傾斜が形成されていたが、基板表面に汚れが確認できた。これは TES の実効的な膜厚を変化させるため、転移特性に影響を与える可能性がある。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ので、今後条件だしを行うことで改善できる。
2. 現像でレジストがすべて流れてしまうことが度々起こった。TES とレジストの接着が弱いことが原因と考えられる。この点に関しては使用するレジスト、ベーキング時間、露光時間、現像液などの条件だしを行う必要がある。また、Au エッチングの際に配線がダメージを受けてしまった。この点に関してもエッチング時間などを再度条件だしする必要がある。
3. 冷凍機の温度ゆらぎを測定したところ、TES の信号を読み出す際の要求値 $\Delta T < 100 \mu\text{K}$ よりも大きくなっていた。今後 X 線照射試験を行うときに TES の分解能を制限してしまうので、改善が必要である。

参考文献

- [1] K. D. Irwin and G. C. Hilton, 2005 Topics in Appl. Phys. 99, 63
- [2] T. Ohashi et al., 2010 SPIE J. 7732, 77321S
- [3] Fleischmann, L. et al., 2009, J. P. Conf., 150
- [4] Kelley, R. L. et al., 2007, PASJ, 59, 77
- [5] D. Moore et al., 2011, LTD14
- [6] S. J. Smith et al., 2011, LTD14
- [7] H. Akamatsu et al., 2009 AIP Conf. Proc. 1185, 195
- [8] Y. Ezoe et al., 2009 AIP Conf. Proc.1185, 60
- [9] Y. Ezoe et al., 2011 IEEE Trans. Appl. Supercond. 21, 246
- [10] K. C. Suetal., 2008 CS MANTECH Conference
- [11] S. Oishi et al., 2011, LTD14
- [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., 2014 IEEE, 6, 1
- [15] 関東化学株式会社, 2006, 公開特許公報, P2006-291341A
- [16] 加藤 勝, 2004, 金属エッチング液
- [17] 吉武 宏, 2009, 修士論文, 東京大学
- [18] 関谷 典央, 2011, 修士論文, 東京大学
- [19] 大石 詩穂子, 2012, 修士論文, 首都大学東京
- [20] 榎島 陽介, 2013, 修士論文, 首都大学東京
- [21] 信川 久実子, 2013, 修士論文, 京都大学
- [22] 飯島 律子, 2014, 修士論文, 首都大学東京
- [23] 江副 祐一郎, 2014, 超電導 Web21
- [24] 草野 英二, 「はじめての薄膜製作技術」, 工業調査会
- [25] 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

-
- [26] 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
- [27] 「超電導・低温工学ハンドブック 低温工学協会編」, オーム社