修士論文

57Fe原子核の共鳴吸収による14.4 keV太陽アクシオン探査 に向けたTES型X線マイクロカロリメータの開発

(An Experimental Study of TES X-Ray Microcalorimeters Using the Resonance Absorption of 57Fe Nuclei to Search for 14.4 keV Solar Axions)

> 東京大学大学院 理学系研究科 物理学専攻 宇宙航空研究開発機構 (JAXA) 宇宙科学研究所 (ISAS) 宇宙物理学研究系 山崎研究室

> > 八木 雄大

指導教官: 山崎典子

令和3年1月

アクシオンの世界初観測を目指し、とくに太陽から飛来する太陽アクシオンの探査に特化した最新の X 線検出器 「超伝導転移端型X線マイクロカロリメータ」の開発を行う。宇宙物質の85%を占める正体不明の「暗黒物質」を 探すため、世界中が探査のための研究開発に取り組んでおり、なかでも最有力候補「アクシオン」に注目が集まっ ている。アクシオンは素粒子標準模型の枠組みを超える理論により予言される未知の素粒子である。アクシオンの 発見は「素粒子物理学」において新しい素粒子模型の構築に対する強い動機付けとなり、対極スケールにある「宇 宙物理学」においては、宇宙創成メカニズムの理解を大きく進展させる重要な手がかりとなる。そのため、アクシ オンの探査は現代物理学の極めて重要な課題と言える。「超伝導遷移端型 (Transition Edge Sensor)X 線マイクロ カロリメータ」(以下、TES カロリメータ) は次世代 X 線天文衛星 Athena にも搭載される最先端の熱検出器であ り、X線に高い感度をもち、最高のエネルギー分解能を誇る。しかし、従来の TES カロリメータでは太陽アクシ オンを捕らえることはできず、改良を加え特化した検出器を製作する必要がある。太陽内部で生成されたアクシ オンは地上で⁵⁷Feと反応し光子に変換され、14.4 keVのX線輝線を放射することが提唱されている (Moriyama 1995)。そこで我々は X 線を止める吸収体に ⁵⁷Fe を用い、輝線測定に強みをもつ TES カロリメータにより変換光 子を検出することを考えた。しかし、強磁性体である ⁵⁷Fe のもつ磁場が、超伝導薄膜である TES の超伝導特性 や分光性能を劣化させる恐れがある。そこで、従来は TES の直上に設置していた吸収体を、TES から離して横置 きにし、熱的にリンクさせる構造を考案した (Maehisa master's thesis 2018)。磁気と熱のシミュレーションを行 い構造の最適化をしたものの、これまで磁性体のまわりで TES カロリメータを動作させた前例はないため、実際 に磁場の影響を低減させつつ、エネルギーを効率良く伝えられる新構造の素子製作を行い、その動作実証を行う 必要がある。本修士論文では、新構造の素子製作にあたり、吸収体 Fe の熱伝導度を高めるための電析プロセスの 条件出しと、実際に試験素子の製作プロセスおよび動作実証までをまとめた。

目 次

第1章	暗黒物質の最有力候補である未知の素粒子アクシオン	1
1.1	ダークマターとは	1
1.2	ダークマターの性質	1
1.3	ダークマターの存在を示唆する観測....................................	1
	1.3.1 渦巻銀河の回転曲線	1
	1.3.2 宇宙の大規模構造の形成	2
1.4	冷たいダークマター構造形成理論	2
1.5	ダークマターの探査方法	2
1.6	ダークマター候補	7
	1.6.1 WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles)	7
	1.6.2 Supersymmetry particle (SUSY 粒子)	7
	1.6.3 ステライルニュートリノ (Sterile neutrino)	8
	1.6.4 ニュートラリーノ	9
	1.6.5 アクシオン (Axion)	10
1.7	ハローアクシオン探査	17
	1.7.1 The Axion Dark Matter eXperiment; ADMX	17
	1.7.2 The XENON Dark Matter Project	19
	1.7.3 XENON10	21
	1.7.4 XENON100	21
	1.7.5 XENON1T	22
1.8	太陽アクシオン探査	27
	1.8.1 Tokyo axion helioscope (Sumico)	27
	1.8.2 CERN Axion Solar Telescope; CAST	28
	1.8.3 カロリメータを用いた太陽アクシオン検出方法	30
第2章	太陽アクシオン探査の感度の検出器設計パラメータへの依存性	33
2.1	線スペクトルの S/N 比	33
2.2	太陽アクシオン検出の S/N 比	35
2.3	太陽アクシオン探査の感度の見積もり例	36
第3章	TES 型 X 線マイクロカロリメータの原理	39
3.1	TES 型マイクロカロリメータとは	39
	3.1.1 吸収体	39
	3.1.2 温度計	40
3.2	超伝導遷移端温度計(TES:Transition Edge Sensor)	40
3.3	電熱フィードバック (ETF: Electro Thermal Feedback)	41
	3.3.1 電熱フィードバックのもとでの温度変化に対する対応	41
	3.3.2 電熱フィードバックの一般論と電流応答性	43

3.4	固有ノイズ	5
3.5	最適フィルター処理とエネルギー分解能 4	9
3.6	吸収体と TES が有限の熱伝導度で繋がれている場合 5	0
	3.6.1 温度変化を表す方程 5	0
	3.6.2 X 線入射後の波形	2
	3.6.3 周波数応答を用いた定化	2
3.7	吸収体 Fe の磁化により生じる磁場評価のための磁気シミュレーション5	4
	3.7.1 TES カロリメータのエネルギー分解能と磁場の関係 5	4
	3.7.2 吸収体 Fe の物性値について 5	6
	3.7.3 磁性体吸収体の磁場による TES への影響について	6
3.8	横置き構造の最適化のための熱シミュレーション5	7
第4章	吸収体用 Fe 薄膜の残留抵抗測定 5	9
4.1	残留抵抗比と熱伝導率	9
4.2	Fe 吸収体薄膜の成膜方法	0
	4.2.1 成膜方法	0
	4.2.2 吸収体 Fe の最適な成膜方法について	1
4.3	残留抵抗測定	3
	4.3.1 早稲田大学による電析前プロセス	3
	4.3.2 Fe69, Fe70, Fe71, Fe72	5
	4.3.3 Fe89	6
	4.3.4 Fe99, Fe100	5
	4.3.5 考察	0
第5章	吸収体構置きのカロリメータ試験素子の性能評価 10	3
5.1	太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリメータの製作プロセス	3
0	5.1.1 使用ウェハ	3
	5.1.2 アライメントマーク形成 10	6
	5.1.3 メンブレン構造のパターン形成	8
	5.1.4 超伝導薄膜 TES の成膜プロセス	8
	5.1.5 Al 配線の成膜プロセス	9
	5.1.6 Au 熱パスの成膜プロセス	4
	5.1.7 Seed 層と吸収体 Fe の成膜プロセス	7
	5.1.8 メンブレン構造の形成プロセス	8
5.2	転移特性評価	8
	5.2.1 磁性体 Fe を成膜する前の RT 測定結果	8
	5.2.2 磁性体 Fe を成膜した後の RT 測定結果	8
5.3	線源照射によるカロリメータ動作試験	2
	5.3.1 実験セットアップ	2
	5.3.2 測定条件	2
	5.3.3 取得パルスの概形	2
第6章	まとめと今後の展望 13	7
6.1	本修士論文まとめ	7
6.2	今後の課題	8

Appendix A フォトトリソグラフィ

A.1	使用レジストとスピンコータのレシピ条件		0
-----	---------------------	--	---

140

図目次

1.1	回転曲線	3
1.2	21 cm による HI ガスの観測より得られた NGC 3198 (渦巻銀河) の回転曲線と fitting 結果	4
1.3	観測された天の川銀河 (渦巻銀河) の回転曲線	4
1.4	宇宙の Sloan Digital Sky Survey マップ	5
1.5	観測された宇宙の大規模構造	5
1.6	暗黒物質探査の3手法を示す概念図	6
1.7	場のダイナミクス	13
1.8	プリマコフ効果のダイアグラム	14
1.9	Triangle loop diagram for the effective axion-gluon interaction	16
1.10	ADMX 検出器	17
1.11	ADMX 装置の内部構造	18
1.12	ADMX による 2.66–2.81 μeV の質量範囲の探査におけるアクシオン-光子結合定数の制限	19
1.13	ADMX による 2.81–3.31 μeV の質量範囲の探査におけるアクシオン-光子結合定数の制限	20
1.14	XENON 実験の歴史	21
1.15	XENON10 の検出器の概観	22
1.16	二相型検出器の原理	23
1.17	Result on spin-independent WIMP- nucleon scattering from XENON100	24
1.18	Result on spin-independent WIMP-nucleon scattering from XENON1T	25
1.19	XENON1T 検出器を用いた暗黒物質探索結果と XENONnT での予測値	26
1.20	太陽アクシオンの生成と検出	27
1.21	東京アクシオンヘリオスコープ Sumico の装置の概略	28
1.22	$g_{a\gamma\gamma}$ に対する上限値	29
1.23	CAST ヘリオスコープの探査方法	30
1.24	CAST のアクシオンの制限	31
1.25	2017 年現在のさまざまな世界の実験によりアクシオンの制限	31
2.1	スペクトル線のポアッソン統計で決まる S/N 比を議論するための理想化したスペクトル	34
2.2	仮定したモデルパラメータによる太陽アクシオンの 3 – σ 検出限界の見積もり例	37
3.1	TES 型マイクロカロリメータの構造	40
3.2	超伝導遷移特性	41
3.3	(左) 定電圧バイアス、(右) シャント抵抗を使って擬似的に作る定電圧バイアス	43
3.4	電熱フィードバックのダイアグラム	46
3.5	ノイズ電流密度。左が $lpha=100$ 、右が $lpha=1000$ の場合を示す。実線が信号、破線がジョンソンノ	
	イズ、点線がフォノンノイズを表す。低い周波数では電熱フィードバックによってジョンソンノイ	
	ズが抑制される。・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	47
3.6	ノイズの寄与も含めた電熱フィードバックのダイアグラム	48
3.7	TES と吸収体の間に有限の熱伝導度が存在する場合のモデル	51

3.8	モデルから計算される TES の温度。横軸は時間。吸収体に X 線が入射した場合(左)と、TES	
	に X 線が入射した場合(右)を示す。 5	52
3.9	外部から磁場を印加した場合の TES の電流応答の割合を示した図	5 4
3.10	Mn-Kα (5.9 keV) の X 線パルスハイトの磁場依存性 5	55
3.11	TES マイクロカロリメータを用いた場合の Mn-Kα(5.9 keV) のエネルギースペクトル 5	55
3.12	収体を横置きにした TES カロリメータのピクセル構造模式図5	57
4.4	母ビンクト・トラーザ (香知トル)	
4.1	电析役のセットノッノ (电解セル))2 • 4
4.2	早稲田大子によるノオトリソクフノイを用いたハターン形成ノロセス)4 . 4
4.3	Fe 竜桁を行う I ユーット分のマイクロハターン t)4 . 4
4.4	RRR 測定用ハターン	94 20
4.5	Feb9 の各プロセスことの画像 R 50 の名プロセスことの画像 R 50 の名プロセスごとの画像)6 20
4.6	Fe70の各フロセスことの画像	58
4.7	Fe71の各フロセスことの画像	;9 -0
4.8	Fer2の各フロセスことの画像	<u>0</u>
4.9	Fe69のFeの厚み	'1
4.10	Fe70のFeの厚み	'1
4.11	Fe71のFeの厚み	'1
4.12	Fe72のFeの厚み	$^{\prime}2$
4.13	Fe89の電析後の Fe の画像 7	'8
4.14	Fe89 のパターニング後の画像	'9
4.15	Fe89 の Au エッチング後の画像 8	30
4.16	Fe89 の Ti エッチング後の画像 8	31
4.17	Fe89のFeの厚み	32
4.18	冷凍機冷却中の Fe89 の温度と抵抗値の変化 8	32
4.19	Fe ₂ O ₃ 粉末を用いて作成した電析浴	36
4.20	Fe99 のパターニング後の画像 8	38
4.21	Fe99 の Au エッチング後の画像 8	39
4.22	Fe99 の Ti エッチング後の画像 9)0
4.23	Fe100 のパターニング後の画像 9)1
4.24	Fe100 の Au エッチング後の画像 9)2
4.25	Fe100 の Ti エッチング後の画像)3
4.26	Fe99 の Au および Au+Ti の厚み 9) 4
4.27	Fe100 の Au および Au+Ti の厚み 9)5
4.28	Fe99のFeの厚み) 6
4.29	Fe100のFeの厚み)6
4.30	冷凍機冷却中の Fe99 と Fe100 の温度と抵抗値の変化 9)7
4.31	Fe の厚みと RRR の関係)()
4.32	Fe の厚みと室温での電気抵抗率 ρ の関係)1
51	吸収体 Fo と TFS の構置き構造をもつカロリマータの制作プロやフフロー	۸(
ย.1 -	吸水神 re C IED の傾直さ伸起てつ フルロリノースの設計ノロセムノロー	/4)と
0.2 5.9	吸水神 re C 1ED の傾直さ伸起とつ フルロックニスの裂作のよフター・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	ю ne
0.0 5 4	"双WP IT C I ED の傾目で伸起で ロンルロリクニクの (KAD	יטי דיו
0.4 5 5	フラコクマドキュシー・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	יי די
0.0 5 e	IOI-INID 衣但 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	11 10
0.0	四田路ルノノヿノニ 衣唱 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	١Ö

5.7	都立大スパッタリング装置
5.8	スパッタ成膜後の TES を形成した画像
5.9	RF マグネトロンスパッタリング装置112
5.10	Al 配線成膜の画像
5.11	SANYU 電子製の EB 蒸着装置 SVC-700LEB 114
5.12	Au 熱パス成膜の画像
5.13	早稲田大学 NTRC にある EB 蒸着装置 119
5.14	吸収体成膜プロセスの条件出しの際の試作素子で、吸収体 Fe パターニング時にレジストにシワが
	寄っているようす
5.15	Seed 層蒸着用の保護レジストパターンと Fe 成膜後の画像。
5.16	リフトオフにより、seed 層を除去した後の画像121
5.17	非接触型の UV 膜厚計
5.18	吸収体 Fe の膜厚測定
5.19	メンブレン形成プロセスで、Si が少しずつ削れていくようす
5.20	磁性体 Fe 成膜前の RT 測定結果
5.21	磁性体 Fe 成膜前後の RT 測定結果の比較
5.22	TMU537 の B の右列の素子の磁性体 Fe 成膜後の RT 測定結果
5.23	磁性体 Fe 成膜全後の RT 測定結果を A と B の 20 µm 離れた素子で比較
5.24	A と B の素子で測定できたものについて、 Fe の成膜前後での RT 結果から求める転移温度 T_c と傾
	$\mathfrak{F} \alpha = \mathrm{d} \log R / \mathrm{d} \log T$
5.25	無冷媒希釈冷凍機
5.26	TMU537 の線源照射試験セットアップ133
5.27	試験素子の上部にコリメータを設置した概形134
5.28	取得した各パルスのベースラインの平均値を時系列順に並べたもの
5.29	取得したパルスの形
A.1	スピンコータ

表目次

1.1	ダークマターの種類と特性....................................	2
3.1	Au および Fe の 100 mK での物性値見積もり	56
4.1	電解セルの電極のセットアップ	62
4.2	早稲田大学で行った Fe 電析前の Fe69, Fe70, Fe71, Fe72 基板の処理	65
4.3	Fe69, 70, 71, 72 のパルス電析条件	66
4.4	Fe69, 70, 71, 72 の Fe 電析後の宇宙研でのプロセス過程	67
4.5	Fe69, 70, 71, 72 の A_top, E_top, I_top の Fe の厚み	72
4.6	室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K) 付近での測定した seed 層と seed 層+Fe の抵抗値の平均値とそ	
	の誤差	73
4.7	Au ストライクめっきにより、seed 層のみの Au に比べて、Fe の下の seed 層 Au が 180%厚く積ま	
	れていたとしたときの、室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K) 付近での Fe の電気抵抗率とその誤差 .	74
4.8	RRR と熱伝導率 κ の比の値	74
4.9	Au ストライクめっきを考慮したときの RRR と熱伝導率 κ の比の値	75
4.10	早稲田大学で行った Fe 電析前の Fe89 基板の処理	76
4.11	Fe89 の定電流パルス電析条件	76
4.12	Fe89 の Fe 電析後の宇宙研でのプロセス過程	77
4.13	室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K)、動作点温度 (100 mK) 付近での測定した温度と、seed 層 (ch5)	
	と seed 層+Fe (ch6) の抵抗値の fig. 4.18 の black shade の範囲での平均値	83
4.14	Au ストライクめっきにより、seed 層のみの Au に比べて、Fe の下の seed 層 Au が 180%厚く積ま	
	れていたとしたときの、室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K)、動作点温度 (100 mK) 付近での測定	
	した温度と、seed 層 (ch5) と seed 層+Fe (ch6) の抵抗値の fig. 4.18 の black shade の範囲での平均値	83
4.15	RRR と熱伝導率 κ の比の値	84
4.16	Au ストライクめっきを考慮したときの RRR と熱伝導率 κ の比の値	84
4.17	早稲田大字で行った Fe 電 析 則の Fe99, Fe100 基 板 の 処 埋	85
4.18	Fe99 の定電流バルス電析条件	86
4.19	Fe100の定電位ハルス電析条件	86
4.20	Fe99 と Fe100 の Fe 電析後の手宙研でのプロセス適栓	87
4.21	Fe99 \mathcal{O} seed \mathbb{P} (Au/11) \mathcal{O} [P \mathcal{O} F 100 \mathcal{O}	94
4.22	$Fe100 \cup Seed 眉 (Au/11) \cup 序み$ 家祖 (200 K) へ 川 ウノ 泪 座 (4 K) 動 佐 占 泪 座 (100 … K) 付 に なの 測 字 し た 泪 座 k こ こ こ 1 屋 k	95
4.23	主価 (500 K) 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 シ ン ム 価 \mathcal{L} (4 K)、 助 作 点 価 \mathcal{L} (100 mK) 1 近 この 例 た し た 価 \mathcal{L} こ Seed 層 こ	00
4.94	seed 眉十 $Pe $ の私が他の Ig . 4.50 の black shade の範囲 C の十 均恒	90
4.24		99
5.1	各マイクロパターンの成膜方法とそのメリットとデメリット	104
5.2	TES (Ti/Au) 成膜のスパッタ条件	110
5.3	TES 形成パターニング。	111
5.4	Al 成膜時の TES 保護パターニング	111

5.5	Al 配線の成膜
5.6	Au 熱パス成膜のためのイメージリバーサルレジストのパターニング
5.7	Au 熱パスの蒸着プロセス
5.8	吸収体 Fe 電析の電極に使用する seed 層の成膜
5.9	ダミー基板を使用して、電流密度 -12 mA cm ⁻² での電析結果
5.10	TMU537の定電流パルス電析条件
5.11	吸収体 Fe 電析用保護パターニング
5.12	TMU537 の全素子の Fe の膜厚 125
5.13	メンブレン構造の形成プロセス
A.1	使用したレジストとカタログ上の厚み140
A.2	スピンコータのレシピ条件

第1章 暗黒物質の最有力候補である未知の素粒子ア クシオン

1.1 ダークマターとは

我々の身の回りにあるふつうの物質、いわゆるバリオンと呼ばれるものは、宇宙の中では僅かな量しか存在し ない。さまざまな研究から、宇宙の大半には我々に見える物質以外に見えないけれど何かがあると考えられてい るものが2つある。ひとつは宇宙膨張を加速するために必要な暗黒エネルギーやダークエネルギーと呼ばれるも のであり、もうひとつは宇宙の大規模構造を形成するのに必要な暗黒物質やダークマターと呼ばれるものである。 これらの実態は未検出であるが、多くの観測事実からその存在が示唆されている。現在の宇宙全体のエネルギー のうち、68%を暗黒エネルギー、27%を暗黒物質が占め、ふつうの物質であるバリオンはわずか 5%しかないと考 えられている。

現在の宇宙には数え切れないほど多数の星があり、その星々やガスの集まることで銀河になる。さらに数百から 数千の銀河の集まりを銀河群や銀河団という。このように宇宙では小さな構造が密集することで、さらに大きな 構造をつくる宇宙大規模構造が確認されている。

宇宙の大規模構造は次のように形成されると考えられている。まず、CMB (Cosmic microwave background)の 観測で確認されている微小な振幅のゆらぎである原始ゆらぎが、ダークマターの重力不安定性により成長し星や 銀河が形成され、徐々に大きな構造を作り、階層構造を形成する (Cold dark matter; CDM モデル)。すなわち、 現在の宇宙を説明するためにダークマターの存在は極めて重要である。

1.2 ダークマターの性質

宇宙大規模構造を形成するにあたって、ダークマターには必要な性質が3つある。

1. 観測に矛盾しない程度に電気的に中性な粒子

- 2. 重い粒子であり現在の宇宙 (構造形成時に) で非相対論的に運動
- 3. 崩壊する性質をもっているならば寿命は宇宙年齢以上であり安定な物質

1つ目の性質に関して、ダークマターが電気が帯びていると電磁波の観測で検出できてしまい、これまでの観測 結果に反してしまう。

2つ目の性質に関して、ダークマターが軽すぎると物質が相対論的な運動をし、束縛されないため構造形成がで きない。その質量は、太陽系近傍では~0.3GeV/cm³程度あり、これは水素原子 0.3 個分に相当する。

3つ目の性質に関して、現在の宇宙の構造形成をするには、ダークマターが存在している必要があるから、すで に崩壊してなくなってしまっていては困る。

1.3 ダークマターの存在を示唆する観測

1.3.1 渦巻銀河の回転曲線

回転曲線とは、渦巻銀河の中心からの距離によって、回転速度がどのように変化しているかを示している。

表面測光観測によると、光っている星の分布は半径が増えるに連れ、指数関数的に減少している (fig.1.1, top)。 しかし、21 cm 線による HI ガスの観測によると銀河の光る円盤をはるかに越えた領域まで、水素分子の回転速度 *v* は半径に依らずほぼ一定値であり、平坦な回転曲線を示す (fig.1.1, bottom)。また、光っている星やガスの回転 曲線では、外側の領域で観測結果と合わないことがわかる。

銀河回転の遠心力と銀河の自己重力がつりあっているとすれば、得られた実際の回転曲線から質量分布を得る ことができる。その結果、銀河円盤より外側のハロー領域に、何かしらの見えない質量が分布していることが考 えられる (fig.1.2)。これはハロー領域にダークマターが存在することを示唆している。

1.3.2 宇宙の大規模構造の形成

宇宙には星が集まってできる銀河が無数に存在しているが、その銀河やクェーサー、星間ガスの分布のしかた は無秩序ではない。銀河がとくに集まっている場所や全く存在しない場所が、石鹸の泡のように分布している。

可視光撮像分光サーベイ Sloan Digital Sky Survey (SDSS) による宇宙の map を fig.1.4 に示す。ひとつひとつ の点はすべて銀河であり、銀河が密集している場所 (赤) や少ない場所 (青)、全く存在しない場所 (黒) が複雑に 分布していることがわかる。銀河が密集しているところ (赤) は銀河群や銀河団でと呼ばれ、それらはさらに大き な超銀河団という集団をつくっている。密度の高い超銀河団は、連なった銀河でできているシート状の構造やフィ ラメント状の構造 (青) が交わるところ存在する。シートやフィラメントに囲まれ、銀河の全くない巨大な空洞領 域 (黒) はボイドと呼ばれる。

このように銀河をひとつの単位として宇宙を眺めると、小さなスケールから大きなスケールにいたるまで、どこ でも天体が群れ集まっているという描像が得られる。宇宙を非常に大きなスケールで眺めると、おびただしい数の 銀河がこの大きな宇宙の中で巨大なネットワークを形成していることがわかる。これが宇宙の大規模構造である。

宇宙の大規模構造を研究するには、数 Gpc に渡って広がる質量分布の空間非一様性を調べる必要がある。大規 模構造は、原子密度ゆらぎや構造形成、宇宙膨張のダイナミクスなどの豊富な宇宙論的情報を含んでいる。代表 的な観測手段としては、銀河赤方偏移サーベイや重力レンズ、ライマン α の森の観測などがある。

1.4 冷たいダークマター構造形成理論

宇宙初期に非相対論的な速度で運動しているダークマター粒子を冷たい暗黒物質と呼ぶ。例えば、アクシオン やニュートラリーノは冷たい暗黒物質の代表的候補である。Fig.1.5 が示しているように、冷たい暗黒物質にもと づいた宇宙の大規模構造の形成シミュレーションの結果は、実際に Two Micron All-Sky Survey (2MASS) により 観測された宇宙の構造と合致していることがわかる。そのため現在では、冷たい暗黒物質モデルがもっとも有力 視されている。

Type	Features	Example
Hot	光速に近い速度で飛び交う軽い相対論的粒子	軽いニュートリノ
Warm	光速より遅く数 1000 km/s で飛び交う非相対論的粒子	ステライルニュートリノ
Cold	光速より遅く数 100 km/s で飛び交う非相対論的粒子	アクシオン/WIMP

Tab. 1.1: ダークマターの種類と特性

1.5 ダークマターの探査方法

ダークマターは大きな質量をもち、重力相互作用をすることは、さまざまな観測結果から示唆されている。ダー クマターの性質として電磁相互作用はしないことが示唆されているが、ダークマターの候補として重力相互作用



Figure 2. Top: Luminosity profile of NGC 3198 from the photographic surface photometry of Wevers (1984). The scalelength of the disk is 2.7 kpc. Bottom: HI rotation curve (dots with error bars, Begeman 1985), and curve representing the circular velocity of light and gas (solid line). The light contribution has been computed from the luminosity profile by assuming that M/L is constant with radius; maximization of the disk mass while matching the observed rotation curve gives $M/L_B = 4.0$ (stars only). The gas contribution, which includes a correction for helium, is negligible inside 10 kpc.

Fig. 1.1: Top: NGC 3198 (渦巻銀河) の写真表面測光による光度 profile。Bottom: HI ガスの観測より得られた NGC 3198 (渦巻銀河) の回転曲線であり、solid line は light と gas の回転曲線を表す。Sancisi & van Albada (1987), Fig. 2。



Figure 3. Fit of exponential disk with maximum mass and halo to the observed rotation curve for NGC 3198 (dots with error bars) from van Albada et al. (1985). The scalelength of the disk has been taken equal to that of the light distribution (2.7 kpc). The maximum circular velocity of the disk has been somewhat reduced with respect to that in Fig. 2 to allow a halo with a non hollow core.

Fig. 1.2: 21 cm による HI ガスの観測より得られた NGC 3198 (渦巻銀河) の回転曲線と fitting 結果。銀河円盤と して最大円盤 (M/L の最大値をもつ円盤) を採用。ハロー成分を加えない限り、銀河の外側の領域で回転曲線を再 現することができない。Sancisi & van Albada (1987), Fig. 3。



Fig. 4. Model rotation curve compared with the observations. Thin lines represent the bulge, disk + rings, and dark halo components, and the thick line is the composite rotation curve. Data are the same as in figure 1.

Fig. 1.3: 観測された天の川銀河 (渦巻銀河) の回転曲線。Open triangles:HI tangent velocity method(Burton&Gordon1978); rectangles: CO tangent (Clemens 1989); reverse triangles: H I tangent (Fich et al. 1989); diamonds: CO and H II regions (Fich et al. 1989; Blitz et al. 1982); filled triangles: Demers and Battinelli (2007); circles: H I thickness (Honma and Sofue 1997a, b); big circle at 13.1 kpc: VERA-parallax, proper motion, and velocity (Honma et al. 2007). 3つの赤線は bulge (左上から伸びてる線), disk+rings (真ん中 にある線), dark halo (右下の線) components の model を表す。青線は composite model rotation curve である。 我々の銀河のハロー領域にもダークマターが存在していることがわかる。Sofue et al. (2009), Fig. 4。



Fig. 1.4: 宇宙の Sloan Digital Sky Survey マップ。それぞれの点が銀河。色は local density であり、赤は銀河が 密集する場所、青は少ない場所、黒は全く無い場所を表している。SDSS。



Fig. 1.5: Top: Two Micron All-Sky Survey (2MASS) により観測された宇宙の大規模構造。Bottom left: 熱い暗 黒物質モデルに基づいた宇宙の大規模構造の形成シミュレーション。Bottom right: 冷たい暗黒物質モデルに基づ いた宇宙の大規模構造の形成シミュレーション。Yoshida's slides/web。

の他に強い相互作用や弱い相互作用をするような粒子が考えられている。

ダークマター探査の典型的な手法を fig.1.6 に示す。矢印は時間の流れもしくは反応方向を表し、a は標準理論 粒子同士の反応 (衝突) により暗黒物質を生成する過程、b は暗黒物質粒子同士の反応により標準理論粒子を生成 する過程、c は暗黒物質粒子と標準理論粒子の反応過程を表す。過程 a は標準理論粒子を衝突させる加速器実験に 相当する。過程 b は標準理論粒子を検出することで間接的にダークマターの証拠をつかむため間接探査実験に相 当する。過程 c は暗黒物質粒子と標準理論粒子の散乱を直接調べるため直接探査実験に相当する。



Fig. 1.6: 暗黒物質探査の3手法を示す概念図。矢印は時間の流れもしくは反応方向を表す。a は標準理論粒子同 士の反応 (衝突) により暗黒物質を生成する過程、b は暗黒物質粒子同士の反応により標準理論粒子を生成する過

程、cは暗黒物質粒子と標準理論粒子の反応過程を表す。加速器の実験は a、間接探査実験は b、直接探査実験は c に相当する。松本重貴 2013 年物理学会秋季シンポジウム 資料。

近年、加速器実験や直接実験ではアプローチしづらい $\mathcal{O}(10)$ GeV (オーダー 10 GeV を表す) 以上の領域での間 接探査が活発化している。

ダークマターの探査では、次の3項目を考えて戦略を立てる必要がある。

1. どんな種類の暗黒物質を

2. どの標準理論粒子を探査針として

3. 宇宙のどこで探すか

加速器実験では戦略1を、直接探査では戦略1,2を、間接探査においては戦略1,2,3を考えて探査することが必要である。

1.6 ダークマター候補

1.6.1 WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles)

WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles) とは、極めて小さな世界を支配する力の1つである弱い力に 似た相互作用をする重い粒子の総称である。弱い力は原子核の崩壊を起こすベータ崩壊や、太陽が燃える仕組み である熱核過程の動力となる水素からヘリウムへの核融合に必要な力として知られる。WIMPs は、観測に矛盾 しない程度に電気的に中性であり、電磁気相互作用したとしてもほとんど起こさず、強い力も同様に作用しない。 そのため、直接探査には弱い相互作用を用いる必要があり、普通の物質 (キセノン) との相互作用からその証拠を つかもうとする XMASS (Xenon detector for weakly interacting MASSive particles/Xenon MASSive neutrino detector/Xenon neutrino MASS detector) 実験がある。他にも加速器による探索や、宇宙線中に直接探索する実 験、WIMP が対消滅して発生するガンマ線やニュートリノなどの二次粒子中にその痕跡を間接的に探す実験など が行われているが、これまでの探索では発見されていない。

WIMPs は基本的には2つのパラメータ「暗黒物質粒子の質量」と「標準理論粒子への対消滅反応の断面積」で 特徴付けられるシンプルなモデルである。宇宙初期の非常に高温高密度な時期には、WIMPsと標準理論粒子は同 じ熱浴中にあり、fig.1.6 の a (標準理論粒子同士の反応)、b (暗黒物質同士の反応)の両反応によって熱平衡が保 たれる。

過程 b の反応率 Γ は、(暗黒物質密度 n_{DM})²× (標準理論粒子への対消滅断面積 < σv >) に比例する。宇宙膨張 につれて数密度 n_{DM} は下がり、温度が下がるため粒子は非相対論的になる。この暗黒物質同士の反応率 (Γ) がお およそ宇宙の膨張率 (ハッブルパラメータ H) を下回り脱結合 (相互作用をしなくなる) したところで過程 b が停 止し (凍結機構; freeze-out)、暗黒物質の個数は減少しなくなり一定になる。

ここで弱い相互作用に相当する対消滅断面積 < $\sigma v > ~ O(10^{26}) \text{cm}^3/\text{s}$ を仮定しさえすれば、宇宙の温度が GeV– TeV の頃に自然に暗黒物質の個数が固定して現在の宇宙での暗黒物質密度が自然に説明される (Steigman, G., et al., 2012, Phys. Rev. D, 86, 023506)。この値は正準対消滅断面積などと呼ばれ、1 つの目安となる理論的な予言 値である。WIMPs が対消滅して生成する標準理論の粒子はモデルの詳細に依存し、さまざまなパターンやその組 み合わせが考えられる。

WIMPs は、宇宙初期の高温高密度状態で生成され、宇宙が膨張するにつれて熱平衡から外れ、宇宙の質量の大 きな部分を担うダークマターとなり、宇宙の構造形成に関与しているとされる。その質量は、電子の 100 万倍程 度 (~ 500 GeV) であり、超対称性理論で予言されるニュートラリーノなどがその候補とされている。素粒子物理 学の要請により、これまではダークマター質量が 30-3000 GeV の約二桁の質量範囲の WIMP のパラダイムに研 究が集中していた。2010 年代の実験および観測によりその制限は厳しくなり、現在 (2020 年) では WIMP 以外の 候補への関心が高まっている。

WIMPs の弱い力とは別に、極めて小さな世界を支配するもう1つの力である強い力と似た相互作用をする重い 粒子が SIMPs (Strongly Interacting Massive Particles) である。強い力はクォークどうしを結びつけて核子 (陽子 と中性子)を形成し、さらに核子どうしを結びつけて原子核を形成する力で、弱い力よりはるかに強力である。ダー クマターが持つ相互作用に関して SIMPs は WIMPs と全く異なり、質量もかなり違う。しかし SIMPs は WIMPs と同様、宇宙に存在する暗黒物質の特性と総量を説明できるうえ、WIMPs では難しい銀河レベルのダークマター の分布状況を再現できる。

また、アクシオンと呼ばれる非常に軽い素粒子で、質量は電子の約 10 億分の 1 (~ 500 μV) しかなく、WIMP よりもはるかに軽い粒子にも注目が集まっている。

1.6.2 Supersymmetry particle (SUSY 粒子)

素粒子標準理論は1960~1980年ごろに確立され、クォークや電子などの素粒子とその間の相互作用を記述する 理論である。2012年に標準模型の素粒子のなかで唯一未発見であったヒッグス粒子がLHCで発見され、標準理 論の正しさが証明された。この標準理論では、現在知られている高エネルギー実験の結果のほとんどを矛盾なく 説明することができている。しかし、標準理論には理論的に不自然な点があり、素粒子物理を記述する究極の理 論であるとは考えにくいため、新たな理論が必要になり超対称性が導入される。

超対称性理論とは、従来粒子の固有性質として区別されていたフェルミオンとボソンを対称性により、統一的に 扱う理論であり、素粒子標準理論を超える枠組みのひとつである。超対称性粒子 (Supersymmetric particle) は、 その超対称性理論によって存在が予想されている粒子である。既存の粒子に対し、スピンが 1/2 ずれただけで質 量や電荷は全く等しい素粒子が超対称性粒子となる。スピンが 1/2 ずれているため、半整数スピンをもつ既存の フェルミオンに対し未知のボソン、整数スピンをもつ既存のボソンに対し未知のフェルミオンが予想されている。 フェルミオンとボソンに対応する相方を超対称性パートナー (Supersymmetric partner) といい、これが超対称性 粒子にあたる。

超対称性粒子の中で最も軽いものは LSP (Lightest Supersymmetric Particle) と呼ばれる。超対称性の特徴的な 対称性である R-parity の保存を仮定すると、その LSP は崩壊しない安定粒子となるため、電気的に中性であり、 質量が 100 GeV 程度であればダークマターの候補となる。

現在の宇宙ではこのような粒子は観測されていないため、少なくとも現在のような低エネルギーでは超対称性 は破れており、超対称性の破れによって粒子とその超対称パートナーの質量が異なっていると考えられている。実 験での直接探索では LEP (Large Electron Positron) 加速器や Tevatron、2008 年からは CERN の加速器 LHC で も行われている。もしも超対称性理論が実際に成立しているとすれば、標準模型における各素粒子に対応する超 対称パートナーが存在して追加されるため、素粒子の種類は 2 倍になるはずであるが、現在までのところ実験で は超対称粒子はひとつも発見されていない。

1.6.3 ステライルニュートリノ (Sterile neutrino)

最近のニュートリノ振動実験の結果によって、3世代間のニュートリノ混合の詳細が明らかとなってきた。一方 で、いくつかのニュートリノ振動実験や宇宙観測の結果においては第4世代のステライル (不活性) ニュートリノ の存在を示す多数の兆候が現れており、これらを追証する実験の重要性が高まっている。

ステライルニュートリノ (sterile neutrino) は、クォークやレプトンを3世代の組としている標準理論にはない新 粒子であり、重力と弱い力で相互作用する通常のニュートリノと異なり、重力とのみ相互作用する仮説上のニュー トリノである。右手系のニュートリノおよび左手系の反ニュートリノを指すことが多いが、ステライルニュート リノが何種類あるのかはまだわかっていない。ステライルニュートリノ (右手系ニュートリノ) は、ニュートリノ の質量がゼロでないという観測結果により新たに存在が予測されるようになった。ニュートリノ実験で示唆され ている短距離振動を説明するため、3世代のアクティブニュートリノに異なる質量を持つステライルニュートリノ を1種類 (3+1) または2種類 (3+2) 加えたモデルが提唱されている。いずれのステライルニュートリノも他の3 つのニュートリノ と比較してずっと大きな1 eV 以上の質量が必要である。ステライルニュートリノは重力と相 互作用するため、もしそれらが十分に重ければ、その質量次第で冷たい暗黒物質または温かい暗黒物質の候補と 考えることができる。また、他のクォークやレプトンとは異なりステライルニュートリノ (ν_s) は弱い相互作用を 受けないため、ニュートリノ振動を通して変化するアクティブ (活性) ニュートリノ (ν_e, ν_µ, ν_τ) の数の増減を測 定することによってのみ発見が可能であると考えられている。

ニュートリノ振動の過程で、あるニュートリノが別の種類に変身し、元の一部が変身したニュートリノが検出器 にぶつかる。元のニュートリノのどれだけが他の種類に変わるかという概数は理論から分かっているため、検出 器で捕らえた元のニュートリノが理論計算値より少ないかどうかを見る。もし一部がなくなっていた場合、これ は元のニュートリノがステライルニュートリノに変わったと考えられる。中国で実施されている国際的なニュー トリノ実験であるダヤベイ (大亜湾) ニュートリノ研究では、反電子ニュートリノからの振動による変化量を見て やることで、ステライルニュートリノの証拠を見つけようとしたが発見には至らなかった。

1.6.4 ニュートラリーノ

超対称性理論では、すべての粒子に対してその超対称パートナー (supersymmetric partner) が存在する。すな わち、全てのフェルミ粒子にはボース粒子の超対称パートナーが存在し、全てのボース粒子にはフェルミ粒子の 超対称パートナーが存在するはずだとしている。電荷を持たないボース粒子である Z ボソン、光子、および中性 ヒッグス粒子の超対称パートナーである 3 つの電荷を持たないズィーノ (Z 粒子のパートナー)、フォティーノ (光 子のパートナー)、中性ヒグシーノ (中性ヒッグス粒子のパートナー) は同じ量子数を持つので混合状態を作る。こ れがニュートラリーノ (neutralino) と呼ばれるフェルミ粒子である。ニュートラリーノの詳細な性質は、それを 構成する成分 (ズィーノ、フォティーノ、中性ヒグシーノ)の混合比率に依存する。一方、電荷をもつボース粒子の パートナーはチャージーノと呼ばれるフェルミ粒子を作る。

ニュートラリーノはマヨラナ粒子であると予想されており、質量は陽子質量の 30~5000 倍 (30~5000 GeV) と 予想されている。ニュートラリーノは電荷を持たず、弱い相互作用と重力相互作用にのみ関わるため、存在したと しても観測は困難である。超対称粒子の中で一番軽ければ、電気的に中性な超対称性粒子であるニュートラリー ノが冷たい暗黒物質の候補と考えられており、WIMP の正体ではないかと言われている。ニュートラリーノはシ ンチレーション検出器や半導体検出器、または比例計数管などのガス式検出器では中性粒子を検出できないため、 捕らえる方法としては原子核との弾性散乱を使った反跳検出法による素粒子検出器が挙げられる。

マヨラナ粒子 (Majorana particle)

物質を構成しているフェルミ粒子 (電子、陽子、中性子)には、通常そのペアとなる反粒子が別の粒子として存 在しディラック型フェルミ粒子 (ディラック粒子)と呼ばれる。たとえば、マイナス電荷をもつ電子の反粒子とし てプラス電荷をもつ陽電子が存在し、これらは逆符号の電荷を持つため異なる粒子である。一方で、1937 年にイ タリアのマヨラナ (E.Majorana)は、粒子と反粒子の区別がつかず同一である中性のフェルミ粒子として、マヨラ ナ型フェルミ粒子 (マヨラナ粒子)を素粒子のひとつとして理論的に予言した。

マヨラナ粒子はもともと、ニュートリノを記述するために提案されたものである。標準模型では、ニュートリノ は質量ゼロの粒子と反粒子が区別できるフェルミ粒子 (ディラック粒子) として取り扱われている。しかし、観測 により発見されたニュートリノは質量をもつが非常に小さく、ニュートリノがマヨラナ粒子の候補とされている。 もしそうであれば、二重ベータ崩壊に際してニュートリノが放出されない現象が観測されるはずであるが、まだ 観測例はなく現在も実験研究が盛んに行われている。素粒子物理学の実験ではいまだにマヨラナ粒子は確認され ていない。

超伝導体のなかにも、マヨラナ粒子と同じふるまいをする状態が存在する。超伝導体は2つの電子がクーパー 対を組んで凝縮している状態にある。超伝導体の励起状態として、電子を1つ加える励起だけでなく、その反粒 子にあたる正孔 (ホール)を1つ加える励起も可能である。正孔はまわりのクーパー対から電子を1つ 奪って対消 滅し、電子を1つ残すことができ、その逆過程も可能である。つまり超伝導体中では、電子と正孔は互いに変換 しあうことができる。このとき、粒子(電子)と反粒子(正孔)が区別できない状態が出現してもよい。実際には マヨラナ粒子の出現にはいくつかの条件が必要だが、トポロジカル超伝導体とよばれる特殊な超伝導体の表面や 渦糸中であれば、マヨラナ粒子が出現してもよいことがわかっている。このマヨラナ粒子は、超伝導体がもつ非 自明なトポロジーによって保護されているため、外部からの擾乱に対して安定であり、粒子を交換するときに非可 換統計である非アーベル量子統計という特殊な統計に従うというおもしろい性質をもつ。その性質を用いること で、環境ノイズに対して強く量子情報を安定に保つことができるトポロジカル量子コンピュータを実現できると 考えられており、近年、マヨラナ粒子がある種の超伝導体中で、準粒子として現れる可能性が指摘され、大きな注 目と期待を浴びていた。

マヨラナ粒子が出現する物理系は複数提案されており、これまで主に超伝導体の研究から実際にマヨラナ粒子 を観測したという実験結果もいくつか報告されていたが、決定的な証拠が得られたとは言い難く、論争が続いて いる。そのような中、最近、新しい物質系として磁性絶縁体が注目されている。その契機となったのはキタエフ 模型と呼ばれる理論模型の提案である。2018 年に、京都大学および東京大学、東京工業大学の研究グループは新 しい物質系として注目されている磁性絶縁体を使って実験を行ない、マヨラナ粒子が存在する決定的な証拠を得 た (nature に online 掲載)。

1.6.5 アクシオン (Axion)

アクシオンとは

アクシオンは存在が予言されながら未発見の素粒子である。わずかに質量をもつと考えられており、暗黒物質 の有力な候補である。電気的に中性であり、電子よりずっと軽く、質量は電子の約 10 億分の 1 (~ 500 µV) と考 えられている。アクシオンは連続的対称性である回転対称性の破れにともなって発生する擬南部 · ゴールドストー ンボソン (擬スカラー粒子)の一種である。

原子核の崩壊を起こしたり、核融合に必要な力である弱い相互作用では粒子と反粒子の電荷とパリティの入れ替 えにおける対称性 (CP 対称性) が保たれていない (小林・益川理論)。 原子核を一つにまとめている力である強い 相互作用では、それを記述する量子色力学 (quantum chromodynamics; QCD) の基礎方程式に、理論では決まら ない任意の角度 $\overline{\Theta}$ に比例して CP 対称性を破る項が含まれている。ところが、実験的には強い相互作用において、 CP 対称性が良い精度で保持されており、理論と実験が真逆のことを示していることから、強い相互作用の CP 問 題 (強い CP 問題) と呼ばれている。1977 年に R. ペッチャイ (Roberto Peccei) と H. クィン (Helen Quinn) は、 角度変数 $\overline{\Theta}$ を素粒子の場に関係する量とみなしてそのまわりの回転対称性を要請し、その回転対称性が破れて自 然に安定点 $\overline{\Theta} = 0$ に落ち着くことで、強い相互作用が CP 対称に保つ仕組みを提唱した (Peccei-Quinn 機構)。こ の回転対称性の破れに対応して南部・ゴールドストーンボソンの存在が同時に予言され (対称性が破れると新しい 粒子が生まれる)、その粒子のことをアクシオンと呼んでいる (1978 年に Weinberg がこの擬スカラーボソンをア クシオンと名付け、同年に Wilczek も同様の粒子を示唆した)。

素粒子物理学にとって、アクシオンの存在は QCD における強い CP 問題を解決することになり、標準理論を超 えた新たな物理を作り出すことになる。また、素粒子物理学だけでなく、対極のスケールにある宇宙物理学や天 体物理学からもその存在が期待されている。 アクシオンは、現在の宇宙の大規模構造を形成するのに必要不可欠 なダークマターの有力な候補であり、ダークマターとしてのアクシオンが発見されれば、宇宙創成メカニズムの 理解が大きく進展することになる。したがって、アクシオンの検証は現代物理学の極めて重要な課題といえる。

アクシオンは2つの光子と相互作用し、相互に変換が可能である。たとえば、光子が電場や磁場と相互作用し、 ある確率でアクシオンに転換される。これを Primakoff (プリマコフ)効果という。反対に、アクシオンから光子 への転換を逆プリマコフ効果という。この効果を用いて、アクシオンを観測しようとする研究が世界中でおこな われている。

これまでに加速器で探索するような質量1 keV 程度以上の領域はすでに除外されており、さまざまな手法による非加速器実験によって探索されているが、これまでのところ未発見である。

自発的対称性の破れ (Spontaneous symmetry breaking)

「対称性」とは「どちらでも同じ、どの向きでもいい、どの向きを向いても同じ」ことを指し、一般的に「あ る操作に対する不変性」と定義できる。例えば、図形の円は中心の周りに回転しても不変であるから回転対称性 を持つ。一方、楕円は回転対称性を持たない。しかし、図形を鏡に映す操作を考えると、円も楕円も不変に保つ ことが可能であり、どちらも左右(空間)反転対称性を持つことになる。回転は連続的な操作であるが、空間反転 は二回反転すると元に戻るという不連続な操作になる。このように、対称性には回転不変性や空間並進不変性の ような連続的な対称性と、空間反転不変性のような不連続な対称性が存在する。

自然といずれか (どちらか) を選んでしまい対称性がくずれることを「自発的対称性の破れ」という。ここでい くつか自発的対称性の破れの例を挙げる。

- 重力が一様に下向きにかかっている机に鉛筆のペン先を立てたとき軸の周りで (どの向きから見ても同じという) 対称性を保っているが、手を離すと自然とどこかの方向に倒れてしまう。これは立っている状態から、安定な方へと自発的に対称性を破っていることになる。
- 洋服を竿にかけるとき、最初の一枚目は右向きでも左向きでも好きな方向にかけることができる (どの向き でもいいという対称性)。しかし、最初に右向きにかけてしまうと、自然と向きを揃えたくなり他の洋服も 右向きにかけてしまう。最終的にすべての方向が揃ってしまい、対称性を失ってしまう。
- テーブルの上に無数の方位磁石を置き、自由な向きを向かせる。この時点では、磁石はどの向きを向いても 同じという対称性を持ち、それぞれの磁石が好きな方向を向ける。しかし、しばらくすると磁石の性質から 近くの磁石同士が集団で同じ向きに揃うようになる。
- ワインボトルの底やメキシカンハット (ワインボトル/メキシカンハット型ポテンシャル)のような、円形の 筒の中心だけが上に出っ張っている形状の中心に玉を置く。このとき、玉はどの方向から見ても同じで対称 性を保っている。しかし、底の中心は盛り上がっているため、さらに下に安定な底 (安定な状態) があるこ とになる。玉はしばらくすると、自然と、ある方向から底へと転がり落ち対称性を失う。
- 同じように人間に右利きが多いのも、心臓が左側にあるのも、本来どちらでも良かったはずであるが、生物の進化の中で自発的に(自然と)対称性が破れてきた結果である。
- 実験室の超流動や超伝導物質、冷却した原子のガス、中性子星の内部、宇宙に満ちるヒッグス粒子も自発的 対称性の破れの例である。

このように、力学の基本方程式は対称性をもつのに、そこに生じた基底状態の対称性が破れる現象を自発的対称性の破れというのである。

質量の起源はこの自発的対称性の破れである。例に挙げたように、自発的対称性が破れた方位磁石は、集団で同 じ方向を向くようになる。この上を、鉄の球が転がるとする。このとき、対称性が破れず、方位磁石の向きが揃っ ていなければ、球は軽々と自由な方向に転がることができる。しかし、磁石の方向が揃ってしまうと、鉄の球は 力を受け動きにくくなってしまう。この動きにくさ(慣性)が質量の根源である。素粒子論では、この方位磁石に あたるのがヒッグス場と呼ばれるものであり、宇宙は自発的に対称性の破れたヒッグス場で埋め尽くされている。 すなわち、宇宙ではヒッグス場が集団で同じ向きに揃っている状態なのである。この状態では、素粒子は慣性を 持つようになり動きにくくなる。これが素粒子が質量をもつメカニズムであるヒッグス機構である。つまり、素粒 子はヒッグス場の対称性が自発的に破れることで質量を獲得しているのである。

南部 · ゴールドストーンボソン (Nambu-Goldstone boson)

自発的対称性の破れに伴う無質量粒子である。物理系と破れる対称性に応じてマグノン、フォノン、アクシオン、ディラトンなどの個別の名称をもつ。

1929 年、ハイゼンベルグとパウリは、場に量子力学をあてはめる「場の量子論」を提唱した。しかし、場の量 子論には無限大の問題 (相対論を満たすが相対論的共変形式を満たさない) があった。

1948 年、朝永振一郎、ファインマン (Feynman)、シュウィンガー (Schwinger) の3人は独立に、この問題を 「くりこみ」という暫定的ながら実用的な方法によって解決した。この3人はこの功績から 1965 年にノーベル物 理学賞を受賞している。

1954 年、ヤンとミルズは、マクスウェルの電磁気理論を拡張し、非可換なゲージ理論(ヤン・ミルズ理論)を 提唱した。ヤン・ミルズ理論では、質量0のボソンは光子以外には知られていなかったが、光子の他に質量0のボ ソンが出現してしまうという大きな問題があった。

この困難を解決したのが、1960年に南部陽一郎が提唱した「自発的対称性の破れ」である。この概念は、超伝 導の研究に始まる。超伝導が発見されたのは1911年である。1957年にバーディーン、クーパー、シュリーファー の提唱する BCS 理論により、超伝導が理論的に説明された。この3人は1972 年にノーベル物理学賞を受賞する。 BCS 理論によれば、超伝導状態の物質中では、電子はクーパー対を形成してボソン化し、基底エネルギー状態に 凝集することができるようになる。電気抵抗0を流れる電流は、クーパー対の摩擦のない流れ (超流動) として理 解される。

1960年に南部陽一郎は、超伝導状態とは対称性が自発的に破れた状態であることを発見し、自発的対称性の破れを用いて BCS 理論を再構築した。対称性が自発的に破れると、南部・ゴールドストーンボソンと呼ばれる質量 0 の新しい粒子が出現することを見出した。光子は南部・ゴールドストーンボソンと絡み合って、質量を獲得する ことができる。

1964年、この自発的対称性の破れのアイディアを素粒子論に応用したのが、ヒッグスら6人の物理学者であった。理論にヒッグス場という新しい場を付け加えてやれば、質量0の南部・ゴールドストーンボソンを出現させる ことなく、対称性を自発的に破ることができる。ヒッグス粒子は、その理論のおまけとして、現れてくるのである。

1967年、ワインバーグとサラムは独立に、「ヤン・ミルズ理論+ヒッグス場」こそが、弱い力の説明を与えるこ とに気づいた。この2人は、グラショウとともに1979年にノーベル物理学賞を受賞している。ヤン・ミルズ理論 で問題となった質量0のボソンは、ヒッグス場の対称性が自発的に破れることによって質量を獲得し、ウィーク ボソンと呼ばれるものになる。こうして、弱い力は電磁気力と統合された。これを電弱統一理論(ワインバーグ・ サラム理論)という。

強い力が、ヤン=ミルズ理論によって説明されたのは、その後である。1971年にトフーフトとベルトマンが、ヤン・ミルズ理論がくりこみ可能であることを示した (1999年ノーベル賞受賞)。

1973年にポリッツァー、グロス、ウィルチェックの3人が、「漸近的自由性」(asymptotic freedom)と呼ばれる 性質を示した (2004年ノーベル賞受賞)。漸近的自由性は、場の量子論においてクォークとグルーオンの相互作用 を記述する量子色力学 (QCD)のもつ特徴であり、粒子間の距離が遠ざかるほど引力が強くなり、近距離ほど弱く なるという、強い力の特徴的な性質が説明された。クォークやグルーオンは、引き離す分だけ強い結合になるた め、クォークの閉じ込めがおこる。このため、クォークだけでなく、質量0のグルーオンも、単体では決して観 測されないのである。なお、クォーク閉じ込めの厳密な証明は、今日に至るまでなされておらず、「ヤン・ミルズ 方程式の質量ギャップ問題」と呼ばれる。2000年にアメリカ合衆国のクレイ数学研究所によって懸賞金 100万ド ルが掛けられたミレニアム問題の一つである。

Peccei-Quinn Mechanism

標準模型の QCD 理論

標準模型における強い相互作用について記述した QCD (quantum chromodynamics) のラグランジアンは、

$$\mathcal{L}_{\text{QCD}} = -\frac{1}{4} G^a_{\mu\nu} G^{\mu\nu a} + \frac{g_s^2}{32\pi^2} \bar{\Theta} G^b_{\mu\nu} \tilde{G}^{\mu\nu b}$$
(1.1)

と書ける。ここで、Gはグルーオン場強度テンソル (the gluon field-strength tensor) であり、 \tilde{G} はその双対、 g_s は QCD の結合定数、bは a color index である。第二項が CP 対称性を破る項 \mathcal{L}_{CP} であり、

$$\mathcal{L}_{\rm CP} = -\frac{\alpha_s}{8\pi} (\Theta - \arg \, \det M_q) \operatorname{Tr} \, \tilde{G}_{\mu\nu} G^{\mu\nu} = -\frac{\alpha_s}{8\pi} \bar{\Theta} \, \operatorname{Tr} \, \tilde{G}_{\mu\nu} G^{\mu\nu}, \quad (0 \le \bar{\Theta} < 2\pi)$$
(1.2)

である。ここで、 $\overline{\Theta}$ は理論からは決まらない任意の定数であり、この係数が0 でない限り強い相互作用において CP 対称性が破れてしまう。QCD の基底状態の縮退度を特徴付けるもの (characterizes degenerate QCD ground state) であり、arg det M_q はクォーク質量行列の位相 (phase of quark mass matrix) である。

また、強い相互作用の支配する現象に関係する中性子の電気双極子モーメントは、

$$|d_n| \simeq 4.5 \times 10^{-15} \overline{\Theta} e \text{ cm} \tag{1.3}$$

である。

実験

強い相互作用の支配する現象である中性子の電気双極子能率の測定結果より、中性子の電気双極子モーメント の実験による制限値は、

$$|d_n| < 2.9 \times 10^{-26} e \text{ cm} \tag{1.4}$$

である。よって、角度変数 **Θ**の制限は、

$$\bar{\Theta}| < 0.7 \times 10^{-11} \tag{1.5}$$

となる。この値は極めて小さく、よい精度で CP 対称性が保たれている。しかし、なぜこれほどまで小さいのかは 不明であった。そして、QCD において CP 対称性を破る項 (CP 非保存項) が出現するのは (強い CP 問題)、偶 然であるのか、それとも新しい物理の出現を表しているか謎であった。そこで、導入されたのが Peccei-Quinn 機 構である。

Peccei-Quinn 機構による解決策

1977 年に Peccei と Quinn によって提案されたのが Peccei-Quinn 機構であり、定数と考えられていた $\overline{\Theta}$ を dynamical variable (動的変数) と再解釈することで、強い CP を問題を解決した。再解釈することで、動的 (角度) 変数は次のようになる。

$$\bar{\Theta} \to \frac{a}{f_a} \tag{1.6}$$

ここで、*a* は擬スカラーアクシオン場 (pseudo-scalar axion field) であり、 f_a は Peccei-Quinn scale、もしくはア クシオン崩壊定数 (axion decay constant) である (相互作用の強さ $\propto 1/f_a$)。よって、 \mathcal{L}_{CP} は次のようになる。

$$\mathcal{L}_{\rm CP} \to \mathcal{L}_{a\gamma\gamma} = \frac{g_s^2}{32\pi^2} \frac{a}{f_a} G^b_{\mu\nu} \tilde{G}^{\mu\nu b}$$
(1.7)

 \mathcal{L}_{CP} によって生じたポテンシャル (質量項)は、アクシオン場 a(x)を CP 対称性を保存する最小値にすることで、 QCD においても CP 対称性は保存される。またこのとき、回転対称性 (Peccei-Quinn 広域対称性)の自発的な破 れによって生じる擬南部・ゴールドストーンボソンの存在を予言する。これがアクシオンである。



Fig. 1.7: 場のダイナミクス。アクション場 a(x) が 0 になると、 $\overline{\Theta}$ は 0 になる。小川泉 スライド。

アクシオンは摂動論的には質量は持たないが、Peccei-Quinn (PQ) 対称性は低エネルギーで破れ、非摂動効果 によってアクシオンは小さな質量を獲得する。Non-QCD の寄与がなければ、Planck scale physics からアクシオ ン質量 m_a はパイオン (パイ中間子) の質量 m_π と崩壊定数 f_π を用いて次のように書ける。

$$m_a = \frac{z^{1/2}}{1+z} m_\pi \frac{f_\pi}{f_a} = 0.6 \text{ meV} \frac{10^{10} \text{ GeV}}{f_a}$$
(1.8)

ここで、 $z = m_u/m_d$ であり、アップクォークとダウンクォークの質量比である。zの the canonical value は、0.56 であるが、z = 0.3 - -0.6の範囲でさまざまな値を取る。アクシオン質量 m_a が軽ければダークマターの候補に なり得る。また、崩壊定数 f_a は、初期振幅を決めるのに重要であり、 m_a と f_a はどちらもアクシオンの存在量を 決定するのに重要な量である。電気的に中性な擬スカラー粒子であること以外のアクシオンの性質は、Peccei – Quinn 対称性の破れのエネルギースケール f_a によって規定される。

アクシオンの相互作用

アクシオン-光子 (axions-photons) の相互作用/プリマコフ効果 (Primakoff effect)

アクシオンは2つの光子と相互作用し、相互に変換が可能である。正反応としては、eq.1.9の2光子 coupling により実光子が仮想光子である外部電場または外部磁場と相互作用し、1つの実光子から1つのアクシオンにある 小さな確率で転換される。これを Primakoff (プリマコフ)効果という。逆反応として、アクシオンが電磁場と相 互作用し実光子へ転換する逆プリマコフ (inverse Primakoff)効果もある。ちなみに、プリマコフ効果としては、 原子核の電場中でメソンが生成されることが最初に提案された。強い電磁場をもつ星間プラズマとともに熱光子 が集中する太陽のような恒星ではプリマコフ効果がはたらくため、一般にアクシオンや ALP を生成する豊富な起 源となる。

アクシオンと光子の相互作用は非常に弱く、次のように表される。

$$\mathcal{L}_{a\gamma\gamma} = \frac{g_{a\gamma\gamma}}{4} a F_{\mu\nu} \tilde{F}_{\mu\nu} = -g_{a\gamma\gamma} a \vec{E} \cdot \vec{B}$$
(1.9)

$$g_{a\gamma\gamma} = \frac{\alpha}{2\pi f_a} \left(\frac{E}{N} - \frac{2}{3} \frac{4+z}{1+z} \right) = \frac{\alpha}{2\pi} \left(\frac{E}{N} - \frac{2}{3} \frac{4+z}{1+z} \right) \frac{1+z}{z^{1/2}} \frac{m_a}{m_\pi f_\pi} \quad (\text{eq.1.8 \pounds \emptyset})$$
(1.10)

$$= \frac{\alpha}{2\pi f_a} \left(\frac{E}{N} - 1.9\right) \quad (m_\pi = 135 \text{ MeV}, f_\pi \simeq 92 \text{ MeV}, \text{ the canonical value}; z = 0.56 \text{ \& } \mathcal{D})$$
(1.11)

ここで F は電磁場強度テンソル (the electromagnetic field-strength tensor) であり、 \tilde{F} はその双対 (dual)、 \vec{E} は 電場、 \vec{B} は磁場である。また、 $g_{a\gamma\gamma}$ は結合定数 (coupling constant) であり、 α は微細構造定数、 $E \ge N$ はそれ ぞれアクシオン場に伴う軸電流 (axial current) の electromagnetic anomaly と color anomaly である。E/N はモ デルの詳細に依存する整数比であり、次の値を取る。

$$\frac{E}{N} = 0 \qquad \text{KSVZ axion (hadronic axion)}$$
(1.12)

$$=\frac{8}{3}$$
 DFSZ axion (1.13)

プリマコフ効果のダイアグラムを fig.1.8 に示す。



Figure 1.3: Diagram of the Primakoff effect.

Fig. 1.8: プリマコフ効果のダイアグラム。Cadamuro 2012, Fig.1.3。

アクシオンの質量 m_a と結合定数 $g_{a\gamma\gamma}$ は独立ではなく、eq.1.8 と eq.1.10 より、 f_a を通じて比例関係 ($m_a \propto g_{a\gamma\gamma}$) にあることがわかる。すなわち、アクシオンの制限グラフを m_a に対して $g_{a\gamma\gamma}$ で表示させると、グラフ上ではそのモデルに依存したある幅をもつ帯上の領域ができることになる。

 m_a あるいは f_a については、理論的には何も制限していないが、星の進化に及ぼすアクシオンの影響や宇宙論的な考察からおおまかな制限が付けられいる。これらの制限を統合すると、アクシオンがダークマターとして存在しているなら、その質量は 1 μ V-1 meV 程度の範囲に存在しなくてはならないことが分かっている。このようなアクシオンを暗黒物質アクシオンと呼ぶ。

また、質量がこの範囲より大きい場合は、暗黒物質候補とはならないがその存在は許される。とくに質量が1 eV程度の場合は、恒星内部の黒体放射光子とプラズマ中の電磁場が作用し、アクシオンが大量に生成されるはず である。とくにその恒星が太陽であるときに、生成されるアクシオンを太陽アクシオンと呼ぶ。この場合、アク シオンは黒体放射光子のエネルギーを反映したスペクトルを持つ。

アクシオン-電子 (axions-electrons) の相互作用

アクシオンと電子の相互作用は次のように表される。

$$\mathcal{L}_{aee} = \frac{C_e}{2f_a} \partial_\mu a \left(\bar{\Psi}_e \gamma^\mu \gamma_5 \Psi_e \right) = -ig_{aee} a \left(\bar{\Psi}_e \gamma_5 \Psi_e \right) + \cdots$$
(1.14)

$$g_{aee} \equiv \frac{C_e m_e}{f_a}, \quad (C_e = \frac{\cos^2 \beta}{3} \text{ for DFSZ axion.})$$
 (1.15)

ここで、*C_e*はモデル依存し、電子とのカップリングはハドロニックアクシオンの loop-level でのみ見られる。

アクシオン-核子 (axions-nucleons) の相互作用

アクシオンと核子の相互作用は次のように表される。

$$\mathcal{L}_{aNN} = \sum_{N=p,n} \frac{C_N}{2f_a} \partial_\mu a \left(\bar{\Psi}_N \gamma^\mu \gamma_5 \Psi_N \right) \tag{1.16}$$

アクシオン-グルーオン (axions-gluons) の相互作用

アクシオンとグルーオンの相互作用は次のように表される。

$$\mathcal{L}_{aGG} = N_{\rm DW} \frac{a}{F_a} \frac{\alpha_s}{8\pi} G_{a\mu\nu} \tilde{G}^a_{\mu\nu} = \frac{a}{f_a} \frac{\alpha_s}{8\pi} G_{a\mu\nu} \tilde{G}^a_{\mu\nu}$$
(1.17)

$$f_a = \frac{F_a}{N_{\rm DW}} \tag{1.18}$$

ここで、 f_a はアクシオンの崩壊定数、 $N_{\rm DM}$ は domain wall number である。KSVZ/hadronic axion では、Yet known heavy quarks run in the loop。DFSZ axion では、Ordinary SM quarks run in the loop であり、 $N_{\rm DM} = 3$ or 6 である。アクシオンとグルーオンの相互作用の triangle loop diagram を fig.1.9 に示す。

アクシオンの存在量

アクシオンの存在量は次のように表される。

QCD axion :
$$\Omega_a h^2 \simeq 0.14 \theta_*^2 \left(\frac{f_a}{10^{12} \text{GeV}}\right)^{1.17}$$
 (Classical axion window: $10^8 \text{GeV} \le f_a \le 10^{12} \text{GeV}$) (1.19)

$$ALP: \ \Omega_{\varphi}h^2 \simeq 0.3\theta_*^2 \left(\frac{m_{\varphi}}{1\text{eV}}\right)^{1/2} \left(\frac{f_{\varphi}}{10^{12}\text{GeV}}\right)^2 \tag{1.20}$$

どちらもダークマターの良い候補になる。



Figure 1.1: Triangle loop diagram for the effective axion-gluon interaction of equation (1.12).

Fig. 1.9: Triangle loop diagram for the effective axion-gluon interaction. Cadamuro 2012, Fig.1.1.

太陽アクシオン

強い磁場をもつ星間プラズマを伴い熱光子を大量に生成する恒星では、プリマコフ効果により光子からアクシ オンが生成されるため、アクシオンの探査に向いている。とくに太陽は我々にもっとも近い恒星である上に、こ れまでに数々の研究によりさまざまなことが明らかにされている天体である。そのため、太陽で生成されるアク シオン、すなわち、太陽アクシオンを探査することは必然的である。

太陽内部で生成された黒体放射光子とプラズマの電磁場の相互作用によりアクシオンが大量に生成されるはず である。標準太陽モデルから算出される太陽アクシオンの total luminosity は、

$$L_a = \left(\frac{g_{a\gamma\gamma}}{10^{-10} \text{GeV}^{-1}}\right)^2 1.85 \times 10^{-3} L_{\odot} \quad (L_{\odot} = 3.90 \times 10^{25} \text{W}, \text{ solar luminosity in photons})$$
(1.21)

である (Raffelt 2008)。太陽で発生したアクシオンは発生点の温度を反映して、この分布は 3.0 keV で最大値を取 り、平均エネルギー 4.2 keV の黒体放射に近いスペクトルをもつことになる。アクシオンの flux を検出するため に、SMICO や CAST のような太陽アクシオン望遠鏡が建設されてきた。これらの検出器では、強い磁場を用意 してプリマコフ効果を用いることでアクシオンを光子に変換して検出することを試みた。アクシオンは通常の物 質とは (ほとんど) 相互作用しないため、望遠鏡内に侵入することができ、内部で光子に変換してしまえば逐次検 出が可能である。

また、太場中に例外的に多く存在する⁵⁷Feが、熱的に励起されてほぼ単色のアクシオンを放出して脱励起する という過程も考えられ、そのアクシオンを実験室で⁵⁷Fe 標的で探すという方法が森山により考えられた。この場 合は、アクシオンとクォークの結合を調べていることになる。⁵⁷Fe 標的は、太陽アクシオンをメスバ ウアー効果 のように共鳴吸収し、14.4 keV のガンマ線あるいは内部転換電子を出すのでそれを探すことになる。

ハローアクシオン探査 1.7

1.7.1The Axion Dark Matter eXperiment; ADMX

The Axion Dark Matter eXperiment (ADMX) は、ワシントン大学を拠点とし、フェルミ国立加速器研究所 (Fermi National Accelerator Laboratory) が開発を行っている暗黒物質アクシオン探査のためのマイクロ波共振空 洞 (resonant microwave cavity) を用いた超高感度のハロースコープ (haloscope) である。ADMX の外観を fig.1.10 に示す。その研究開発には 30 年以上の月日が費やされ、2018 年 4 月に、ようやく ADMX は暗黒物質アクシオン の検出に要求される感度に達し、世界初で、唯一の開発に成功したことを報告した。



Inside the ADMX experiment hall at the University View of the top portion of the ADMX detector at of Washington. The ADMX detector is underground, surrounded by a magnetic field. Mark Stone/University of Washington

the University of Washington. Mark Stone/University of Washington

Fig. 1.10: 左図: ワシントン大学の ADMX 実験ホール内部。ADMX 検出器は地下にあり、磁場で覆われている。 右図: ADMX 検出器の上部外観。Univ. of Washington NEWS。

ADMX は、低ノイズの AM ラジオのような電波受信機であり、中心部にあるマイクロ波共振空洞は超伝導磁石 で覆われ、強力な磁場によって空洞内部でアクシオンから生じる光子 (マイクロ波光子)の周波数を検出するとい うものである。検出できる周波数は調整することができ、アクシオンが潜んでいる可能性のある狭い範囲に制限 した上で、シグナルを待ち構える。アクシオンは通常の物質とはほとんど相互作用しないが、強磁場で冷たく、暗 く適切にチューニングされた反射ボックスによって生じた電磁波 (マイクロ波光子) を増幅器を通して検出するこ とが可能である。

発生するマイクロ波は微弱であるため、周囲からの熱放射や機器自身のバックグランドノイズに悩まされていた。 そこで、ADMX を³He-⁴He 希釈冷凍機を用いてサブケルビンの極低温まで冷却することで熱放射 (熱雑音) を減 らし、初期に搭載されていたトランジスタ増幅器に代えて最先端の超伝導量子干渉装置増幅器 (superconducting quantum interference device amplifier; SQUID amplifier) を配備し周波数を検知することで、ADMX 自身からの ノイズを減らすことに成功した。従来のトランジスタ増幅器では、アクシオンが存在すると思われる範囲のスキャ ンを行うのに数百年が必要だったが、新しい SQUID 増幅器を使用することでわずか数年で同範囲のスキャンが可 能になり、探査スピードが飛躍的に向上した。実験装置内部の構造を fig.1.11 に示す。

1983 年、Pierre Sikivie によって axion haloscope が開発され、フロリダ大学で小さな実用試験を行った後、1995 年に Lawrence Livermore National Laboratory によって ADMX が建設された。2010 年にワシントン大学の the Center for Experimental Physics and Astrophysics (CENPA) に移動して現在にいたる。これまでに Asztalos et al. (2004) が1.9-3.3 µeV、Asztalos et al. (2010) が3.3-3.53 µeV を探査したことで、2 つベンチマークモデル のひとつにおいて 1.9-3.53 μeV の範囲を除外してきた。





A cutaway rendering of the ADMX detector, which can detect axions producing photons within its cold, dark interior. *ADMX collaboration*

Fig. 1.11: ADMX 装置の内部構造。強磁場で覆われ冷たく暗い内部で生成された光子を検出する。中心部の黄色 い部分は真空状態になった空洞であり、その周囲の赤茶色の部分が強力な磁石である。磁場生成されたマイクロ波 を空洞上部の SQUID で検知する。左図: Univ. of Washington NEWS。右図: Boutan, UCLA Dark Matter 2018 symposium, slide。 ADMX は、今後 10 年間で暗黒物質アクシオンの質量 2–20 μ eV の探査を進めることを目標にしている。2018 年にさらなる感度向上を果たしたわけだが、Du et al. (ADMX Collaboration) (2018) によるとそのときに行った 探査では、fig.1.12 にあるように 2.66–2.81 μ eV の質量範囲を調べ、その範囲のアクシオン-光子相互作用の結合定 数にさらに厳しい上限をつけ排除した。また Braine et al. (ADMX Collaboration) (2020) では、fig.1.13 のよう に 2.81–3.31 μ eV の質量範囲の探査を行い、同様に結合定数に上限をつけた。この研究により、QCD の強い CP 問題を解決するために導入されたアクシオンの2つのベンチマークモデル (KSVZ model/DFSZ model) で予言さ れる結合定数の全範囲を排除したことになる



FIG. 4. The 90% upper confidence excluded region of axion mass and photon coupling g_{ayy} . The red line indicates the limit on axionphoton coupling with the boosted Maxwell-Boltzmann line shape from the isothermal halo model [39], while the blue line indicates the limit with the N-body inspired signal [37]. Colored regions indicate the systematic uncertainty range. The region 660.16 to 660.27 MHz marked by the gray bar was vetoed due to interference as described in the text. The inset shows the results in the context of other haloscope searches.

Fig. 1.12: ADMX による 2.66–2.81 μeV の質量範囲の探査におけるアクシオン-光子結合定数の制限。Du et al. (ADMX Collaboration) 2018, Fig. 4。

1.7.2 The XENON Dark Matter Project

XENON 実験はイタリアの国立原子核物理研究所 INFN (National Institute for Nuclear Physics) による素粒 子物理学の研究でよく知られるグランサッソ国立研究所 LNGS (Gran Sasso National Laboratory) の地下実験施 設で行われている暗黒物質の直接検出を主な目的とした探査実験である。また、XENON1T からは、暗黒物質の 他にも、アクシオンや太陽ニュートリノ、ダブルベータ崩壊にも焦点を当てた多目的実験である。 XENON 実験 は国際コラボレーションであり、日本からは東京大学 Kavli IPMU や、東京大学宇宙線研究所、名古屋大学、神 戸大学が参加している。

暗黒物質の直接探索は暗黒物質粒子と標準理論粒子の反応過程により探査される。原子核が暗黒物質により反 跳されて得たエネルギー(発熱・発光・電離といった形で散逸される)を測定し、暗黒物質以外の原因で起こる背 景事象(バックグランド)と区別をする。 実験によって使用される原子はさまざまであるが、XENON 実験では 約-100°Cの低温に冷やした大質量で超高純度な液体キセノン(Xenon)を標的として用いている。ここで使用され る気体-液体ニ相型検出器の特徴として、発光信号のみでなく電離信号由来の信号も検出可能なため、ガンマ線や ベータ線起源のバックグラウンドを解析で除去することによって、感度を大きく高めている。

暗黒物質がキセノン原子核と弾性散乱する際にエネルギーの一部を落とし、液体キセノンがエネルギーに比例し



FIG. 4. 90% confidence exclusion on axion-photon coupling as a function of axion mass for the Maxwell-Boltzmann (MB) darkmatter model and *N*-body model. *Blue:* Previous limits reported in Ref. [35]. *Orange:* Previous limits reported in Ref. [22]. *Green:* Limits from this work. Darker shades indicate limits set for the MB model [22,33], and lighter shades indicate limits set for the *N*-body model [22,34].

Fig. 1.13: ADMX による 2.81–3.31 μeV の質量範囲の探査におけるアクシオン-光子結合定数の制限。Braine et al. (ADMX Collaboration) 2020, Fig. 4。

て発光する。 発光された光および電荷は液体キセノンの上下に配置された多数の光電子増倍管 (photomultiplier tube; PMT) で捉えられる。 液体キセノンを用いて、不要な放射線を遮断するため地下約 1000 m に設置し、純 粋な水で囲われた検出器中は低いバックグラウンド環境になる。これにより、わずかなシグナルを検出でき、暗黒 物質だけでなく、アクシオン、太陽ニュートリノ、ダブルベータ崩壊の検出も可能である。

液体キセノンが使用される理由は主に次の4つである。

発光量が多い

弾性散乱により検出器に与えられるエネルギーは keV スケールと非常に小さい。そのため、その事象を測 定するためには発光量の多いシンチレータが必要となるが、液体キセノンは代表的な無機シンチレータ NaI と同程度の発光量を持つ。希ガスは発光量が多い。

2. 大型化が容易

XMASS 実験や XENON1T, nT 実験ではトンスケールの液体キセノンを用いており、大質量の標的を用いることで核子との相互作用がより小さな暗黒物質の探索が可能となる。

3. 低背景事象

液体、気体、固体の各相が利用できるため、内部のバックグラウンドのもとであるウランやトリウムなどキ セノンに含まれる内部放射性物質を少なくすることが可能。

4. 高い自己遮蔽能力

キセノンは輻射長が約 2.8 cm と短く、検出器および検出器外からのガンマ線は液体キセノン内部に入ると 急速に減衰するので背景事象を効果的に減らすことが可能。

これまでの XENON 実験の歴史について fig. 1.14 に示す。



Fig. 1.14: XENON 実験の歴史。https://www.isee.nagoya-u.ac.jp/CR/research/direct_dm/, 図 1。

1.7.3 XENON10

XENON10 は 100 GeV 程度の質量をもつとされる SUSY としての WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles) の探査のための実験である。SUSY のもっとも低いパラメータスペースである 1 events/100 kg/year の探 査計画であった。XENON 実験のデザインによる実証や感度、バックグラウンドレベルを証明するためのプロト タイプ装置であった。2006 年 10 月から 2007 年 2 月までデータが取得された。XENON10 の検出器の概観を fig. 1.15 に示す。

位置検出装置である液体キセノンタイムプロジェクションチャンバー (liquid xenon time projection chambers; LXeTPC) のモジュール下部にある直径 20 cm、高さ 15 cm のシリンダーは、14 kg の超高純度の液体キセノン を入れることができる。下には 41 本の PMT が液体キセノン中に敷き詰められている。モジュール上部は、より 大きな直径をもつ円筒形の銅製容器により密閉されている。この中は気相であり 48 本の PMT や比例蛍光シンチ レーション過程を捉えるための配線が内包されている。

59 日間のデータの解析の結果、WIMP の兆候は得られなかった。この WIMP search で観測されたイベント数 は、統計的に反跳電子のバックグラウンドから予想される数と一致していた。この結果から、最小超対称標準模 型 (minimal supersymmetric standard model; MSSM) で考えられるパラメータスペースにおいて、30 GeV/ c^2 の WIMP 質量に対して spin independent WIMP-nucleon 散乱断面積が 10 × 10⁻⁴³ cm² 以下であるという制限を つけた。

1.7.4 XENON100

第二 phase の検出器として、合計 165 kg の液体キセノンを用い、62 kg を標的領域に注いだ。Time Projection Chamber (TPC) の大きさは直径 30 cm、高さ 30 cm となった。

2011 年から 2012 年に観測された最後の 224.6 日分のデータから得られた spin independent elastic WIMPnucleon 散乱断面積の制限を fig. 1.17 に示す。もっとも厳しいものは、55 GeV/ c^2 の WIMP 質量で 2×10^{-45} cm² (90% C.L.) の制限をつけている。



Fig. 1.15: XENON10 の検出器の概観。XENON10 Experiment HP。http://xenon.astro.columbia.edu/ XENON10_Experiment/

1.7.5 XENON1T

第三 phase の検出器として XENON1T は合計 3.2 t の超高純度の液体キセノンを用い、2.0 t を暗黒物質の標的 として使用した。Time Projection Chamber (TPC) の大きさは直径 1 m、高さ 1 m となり、muon による雑音を 除去するために検出器は 10 m の水槽である水チェレンコフ型検出器のなかに作られた。

XENON1T 実験は、2014 年より建設が始まり、2016 年より稼働を始め、2018 年まで実施された実験である。 XENON1T 実験は、暗黒物質の有力な候補である WIMP と通常の物質の相互作用に関して世界最高感度の暗黒 物質直接探索を達成し、もっとも厳しい制限を与えた。

XENON コラボレーションは、これまでのデータを解析し、2020 年 6 月 17 日に更なる観測結果を発表した。 暗黒物質と液体キセノンの衝突頻度は非常に稀で、観測されるほとんどの事象は検出器中に含まれている放射性物 質に由来する。そのため、XENON1T 実験の解析においては、背景事象の数を精密に評価し、得られた観測デー タと既知の背景事象との比較を行う必要がある。しかしながら、そのような背景事象の排除を行ってもなお、予 想されていた 232 個の背景事象を 53 個も上回る有意な超過事象が観測された。

この過剰な事象の原因についてはまだ完全には解明されていませんが、いくつかの可能性が考えられる。1つ めは、これまで考えられていなかった背景事象の可能性である。原子核が不安定な水素の放射性同位体であるト リチウム (1つの陽子と2つの中性子を持つ水素原子) は自然界に極微量(地上の水素の10⁻¹⁸倍)存在し、観測 された事象と似たエネルギーの電子を放出して崩壊する。1025 個のキセノン原子に対して数個のトリチウムがあ れば、観測された過剰分を説明することができる。非常に微量な存在量のため、検出器内にこのレベルのトリチ ウムが存在しているのかの決定的な答えはまだ出ていない。

2つめは、新素粒子の可能性である。実際、観測された超過分のエネルギースペクトルは、太陽で生成され たアクシオンから予想されるエネルギースペクトルに非常に良く似ている。アクシオンとは、強い相互作用の CP 対称性を保存するために提案された未知の素粒子であり、太陽中で絶えず生成されている可能性がある。太陽ア クシオン自体は暗黒物質の候補ではないが、もしアクシオンを検出できれば、素粒子物理学のみならず、天体物 理学にも大きな影響を与える可能性がある。

3つめの可能性は、私達の体を無数にすり抜けているニュートリノの新たな性質に起因するものである。もし、 ニュートリノの磁気モーメントが素粒子物理学における標準理論から予想される値よりも大きいと、この超過事 象を説明することができ、標準理論を超える理論の大きな手がかりになりえる。



Fig. 1. Principle of operation of the XENON10 two-phase IPC. A particle interaction in the liquid produces primary scintillation light (S1) and ionization electrons. The electrons drift under an electric field ε_d (about 1 kV/cm) until they are extracted from the liquid into the gas where they are accelerated by an electric field ε_e (about 10 kV/cm) producing proportional scintillation light (S2). Two arrays of photomultipliers, one in the liquid and one in the gas, detect simultaneously the S1 and S2 light signals.

Fig. 1.16: 二相型検出器の原理。左上図: XENON10 Experiment HP。http://xenon.astro.columbia.edu/ XENON10_Experiment/。右上図: 検出器は液層と蒸気の気層からなり、上下に並べられた PMT によって信号が 読み出される。S1 と S2 の時間差は電離電子の移動時間に相当し、Z 方向の位置情報となる。 山下雅樹, 研究紹 介, 図 3。http://www.jahep.org/hepnews/2008/Vol27No2-2008.7.8.9Yamashita.pdf。左下図: Aprile et al. (2011), fig. 1。右下図: Evan slides。



FIG. 3 (color online). Result on spin-independent WIMPnucleon scattering from XENON100: The expected sensitivity of this run is shown by the dark (green) and light (yellow) band $[1\sigma (2\sigma)]$ and the resulting exclusion limit (90% C.L.) by the solid blue line. For comparison, other experimental limits (90% C.L.) and detection claims (2σ) are also shown [19–22], together with the regions $(1\sigma/2\sigma)$ preferred by supersymmetric models [18].

Fig. 1.17: Result on spin-independent WIMP- nucleon scattering from XENON100 $_{\circ}$ XENON100 Collaboration (2012), fig. 3.

今回観測された超過事象は、上記に挙げた3つの可能性のうち、太陽アクシオンからの信号と最も良く一致 している。統計的には、太陽アクシオン仮説の有意性は3.5σで、観測された超過が統計的なゆらぎによるもので ある可能性が約2/10,000の確率であることを意味する。この有意性は高いものの、太陽アクシオンが存在すると 結論づけるには十分ではない。トリチウムとニュートリノの磁気モーメント仮説の有意性はいずれも3.2σに相当 し、どちらかに起因している可能性もある。

XENON コラボレーションは現在、次期計画である XENONnT 実験に向けて検出器をアップグレードして いる。XENONnT 検出器は、XENON1T 検出器の約3倍の液体キセノンを使用し、XENON1T 実験よりも背景 事象の低減を達成することが可能になる。XENONnT 実験で得られる、より高感度なデータを用いることで、今 回示された事象超過が単なる統計的な偶然なのか、これまで考慮していなかった背景事象によるものなのか、あ るいは既知の物理学を超えた新しい素粒子や相互作用によるものなのか、明らかになると期待される。



FIG. 5. 90% confidence level upper limit on σ_{SI} from this work (thick black line) with the 1σ (green) and 2σ (yellow) sensitivity bands. Previous results from LUX [6] and PandaX-II [7] are shown for comparison. The inset shows these limits and corresponding $\pm 1\sigma$ bands normalized to the median of this work's sensitivity band. The normalized median of the PandaX-II sensitivity band is shown as a dotted line.

Fig. 1.18: Result on spin-independent WIMP-nucleon scattering from XENON1T_o XENON Collaboration (2018), fig. 5_o



Fig. 1.19: XENON1T 検出器を用いた暗黒物質探索結果と XENONnT での予測値。横軸は暗黒物質の質量、縦軸 は暗黒物質と核子との相互作用の断面積を表す。名古屋大学 宇宙線研究部 HP, 図 3。
1.8.1 Tokyo axion helioscope (Sumico)

Tokyo axion helioscope は東京大学の箕輪研究室で製作された太陽追尾装置を搭載した世界で最初のアクシオ ンヘリオスコープであり、Sumico の愛称で呼ばれている。太陽アクシオンの探査方法としては、超伝導コイルで 発生させた強力な磁場で、太陽から飛来したアクシオンを逆プリマコフ効果により実光子に変換し、X 線線検出 器で検知するとうい仕組みである。太陽アクシオンの生成と地球での検出方法を fig.1.20 に示す。また、超伝導コ イル、X 線検出器、追尾装置から構成される東京アクシオンへリオスコープ Sumico の装置の概略を fig.1.22 に示 す。直冷式超伝導電磁石は 2 台の Gifford – McMahon 冷凍機により直接 5-6 K に冷却されるためヘリウムなど の寒剤を必要としない。4 T の磁場を発生させることができ、円筒は約 3 m である。X 線検出器には浜松ホトニク スのフォトダイオードを 16 個使用している。これは本来、光検出器であるが、X 線検出にも有効である。検出器 は放射熱シールド上に装着されており、温度 60 K で動作させている。追尾装置はいわゆる経緯儀で、コ イルの 入っている約 3 m 長の円筒形真空容器を鉛直軸の周りに 360 度、仰角で –28 度から +28 度まで動かすことがで きる。この範囲を動かすことで、東京では大体 1 日のうち 50%の時間は太陽を追尾することができる。夜であっ ても地球の裏にある太陽を追尾でき、地球を通り抜けてきたアクシオンを探査できる。残りの 50%はバックグラ ウンド測定をすることになる。



図1 太陽アクシオンの生成と検出.

Fig. 1.20: 太陽アクシオンの生成と検出。秋元祐希/蓑輪 眞 日本物理学会誌 2010.1, 図 1。

Sumico の探査目標であるアクシオン質量 m_a としては 1 eV 程度であり、暗黒物質候補とはならないが太陽で 大量に生成されているとされるものである。太陽内部の黒体放射光子の平均エネルギー 4.2 keV に近い X 線帯域 アクシオンスペクトルがターゲットになるため、X 線検出器を使用している。このような太陽アクシオン探査の はじまりは、1992 年に行われた Lazarus らの実験からである。このアクシオン-光子の変換確率 (変換効率) は単 純に表すと、

$$P_{a \to \gamma} = \left(\frac{g_{a\gamma\gamma}BL}{2}\right)^2 \left(\frac{\sin(qL/2)}{qL/2}\right)^2 \tag{1.22}$$

となる。ここで、Bは磁場の強さ、Lは磁場領域の長さである。また、qは磁場領域における光子の有効質量 m_{γ} とアクシオン質量によって決定される磁場への運動量移行であり、

$$q \equiv \sqrt{\omega^2 - m_\gamma^2} - \sqrt{\omega^2 - m_a^2} \simeq \frac{\left|m_\gamma^2 - m_a^2\right|}{2\omega}$$
(1.23)

で表される。ここで、 E_{γ} は光子のエネルギーである。光子の質量 m_{γ} は、真空中では0であるから、アクシオン 質量 m_a が0に近い場合には、 $q \sim 0$ となり、変換確率は $P_{a \rightarrow \gamma} = (g_{a \gamma \gamma} BL/2)^2$ となることから、磁場の全領域が



Fig. 1.21: 東京アクシオンヘリオスコープ Sumico の装置の概略。超伝導コイル、X 線検出器、追尾装置から構成 される。左図: 秋元祐希/蓑輪 眞 日本物理学会誌 2010.1, 図 2。右図: RESCEU HP。

変換に有効になる。しかし、アクシオン質量が大きくなると有限の*q*になることから、coherence?が失われ変換確 率が小さくなってしまう。

そこで、この場合には、水素やヘリウムなどの媒質 (バッファーガス) を磁場領域に充填することで、本来0で あった光子の質量を有効的に有限にする。このとき光子の有効質量は、

$$m_{\gamma} \simeq \left(\frac{4\pi\alpha n_e}{m_e}\right)^{1/2} = 28.9\sqrt{\frac{Z}{A}\varrho}$$
 (1.24)

となる。ここで、 m_e は電子の質量、 n_e はバッファーガス中の電子数密度、 α は微細構造定数、Z は原子番号、A はバッファーガスの質量、 ϱ はバッファーガスの密度 (g/cm³) である。この光子の有効質量をアクシオンの質量 に合わせて調節することで、qを0 にすることができ、coherence を回復することができる。

Sumico において、質量 1 eV のアクシオンに感度をもつようにするには、ヘリウムバッファーガスの圧力を常 温で 13 気圧以上にする必要があったが、ヘリウム温度は超伝導コイルと同じ 5 K 程度まで下げることによって、 低い圧力でこれを実現した。

Sumico の実験はこれまでに Phase I, II, III まで行われている。Phase I (1998) では、 $m_a < 0.03$ eV の領域 に対して $g_{a\gamma\gamma} < 6.0 \times 10^{-10}$ GeV⁻¹ という上限値を得た。これは世界で初の系統的太陽アクシオン観測実験 であり、のちの CAST に大きな影響を与えた。Phase II (2002) では、 $0.05 < m_a < 0.27$ eV の領域に対して $g_{a\gamma\gamma} < 6.8-10.9 \times 10^{-10}$ GeV⁻¹ という上限値を得た。その後、CERN の LHC の変更電磁石を利用した太陽 アクシオン観測装置 CAST が作られた。 Phase III (2008 時点) では、 $0.84 < m_a < 1.00$ eV の領域に対して $g_{a\gamma\gamma} < 5.6-13.4 \times 10^{-10}$ GeV⁻¹ の制限を得ている。これは preferred axion models (モデル依存のある幅を持っ た帯状の領域) に対して磁場変換による太陽アクシオン探索実験としては世界で初めて制限をつけたものとなって いる。

Sumicoにはもう一つ、大きな真空槽と光子検出器からなる太陽 hidden photon 探索装置を搭載している。Hidden photon は超弦理論に基づく素粒子の標準模型の拡張理論で存在が予言されている粒子であり、やはり太陽の中や宇宙空間で光子からニュートリノ振動のように振動して作られると考えられています。太陽アクシオン同様に、太陽の方向から飛来してきた hidden photon が実験室の真空槽の中で再び光子に転換された後に検出することになる。

1.8.2 CERN Axion Solar Telescope; CAST

CAST (CERN Axion Solar Telescope) は、CERN の LHC (Large Hadron Collider) の偏向用超伝導双極磁石 (dipole magnet) を利用している Sumico より高感度の太陽アクシオン観測装置である。アクシオンの変換方法や



Fig. 4. The left figure is the exclusion plot on $g_{a\gamma\gamma}$ to m_a . The new limit and the previous ones [11,12] are plotted in solid lines. Dashed lines are the limit by Lazarus et al. [18], the limit by CAST experiment [24], the limit by SOLAX experiment [19], the limit by COSME experiment [20], the limit by DAMA experiment [21], the limit inferred from the solar age consideration, and the helioseismological bound. The hatched area corresponds to the preferred axion models [26]. The right figure shows the magnified view of the new limit.

Fig. 1.22: *g_{aγγ}*に対する上限値。上図: Inoue et al. 2008, Journal of Physics、Fig.3。中図: 秋元祐希/蓑輪 眞 日本物理学会誌 2010.1, 図 3。下図: Inoue et al. 2008, Phys. Rev. B、Fig.4

検出方法は Smico と同じように、太陽からきたアクシオンを電磁石の磁場で光子に変換し、X 線検出器で検出す るというものである。CAST の探査方法と装置外観を fig.1.23 に示す。

磁場は9T発生させることができ、長さ9.26 m であり、どちらも Sumico を上回っている。これらは eq.1.22 にあるように、アクシオン-光子の変換確率に大きく関わる量である。太陽中でアクシオンを生成する確率は $g_{a\gamma\gamma}^2$ に比例するため、eq.1.22 と掛け合わせると、 $g_{a\gamma\gamma}$ につけられる上限値は $(1/BL)^{1/2}$ に比例するため、CAST の 方が感度が高くなることがわかる。ただし、望遠鏡の可動範囲は仰角 ±8 度、方位角 ±40 度と Sumico に比べて 限定されている。CAST は、2002 年より磁場領域を真空にした実験を始め、2003 年からデータをアクシオン探査 のデータを取り始めた。2004 年に発表した結果では、 $m_a < 0.02$ eV の領域において、Sumico に対して約 1/7 の $g_{a\gamma\gamma} < 8.8 \times 10^{-11}$ GeV⁻¹ という制限をつけている。



Figure 1 Sketch of the CAST helioscope at CERN to search for solar axions. These hypothetical low-mass bosons are produced in the Sun by Primakoff scattering on charged particles and converted back to X-rays by the same process in the *B*-field of an LHC test magnet. The two straight conversion pipes have a cross-section of 14.5 cm² each. The magnet can move by $\pm 8^{\circ}$ vertically and $\pm 40^{\circ}$ horizontally, enough to follow the Sun for about 1.5 h at dawn and dusk with each end of the magnet, where separate detection systems can search for axions at sunrise and sunset, respectively. The sunrise system is equipped with an X-ray telescope (XRT) to focus the signal on a small detector area, strongly increasing signal to noise. Our new results were achieved thanks to an XRT specifically built for CAST and improved low-noise X-ray detectors.

Fig. 1.23: CAST ヘリオスコープの探査方法。CAST collaboration 2017, Fig. 1。

ヘリオスコープ (helioscope: 太陽望遠鏡) の中では、CAST がもっとも強い制限を与え、次のパラメータスペー スを除外する結果を得た (Cadamuro 2012)。

$$m_a = 0.39 - 0.64 \text{eV}$$
 (1.25)

$$f_a = 9.8 \times 10^6 - 1.6 \times 10^7 \text{GeV} \tag{1.26}$$

2015 年までの観測の解析による CAST のアクシオンの制限を fig.1.24 に、CAST と世界のアクシオン実験による制限の比較を fig.1.25 に示す。

1.8.3 カロリメータを用いた太陽アクシオン検出方法

磁気双極子遷移を持つ原子核と反応する太陽アクシオンの線スペクトル検出は、連続スペクトル検出を行う大 規模な実験と比べて、比較的小さな規模の table - top 実験で可能である。これまでに ⁵⁷Fe、⁷Li、⁸³Kr、の原子 核の励起による線スペクトル検出実験が行われ、上限値が得られている。Namba らによって行われた ⁵⁷Fe と半 導体検出器を用いた実験では、厚さ 25 μ m の ⁵⁷Fe 薄板の直近に γ 線検出器を置き、太陽アクシオン+ ⁵⁷Fe で 放射される 14.4 keV の γ 線検出を試みた。しかし γ 線の変換効率は小さく、更に薄膜へ自己吸収されてしまい、 検出効率が1%程度まで下がり、自然放射線によるバックグラウンドに埋もれてしまう。

そこで我々の研究室では、自己吸収されるエネルギーを熱としてカロリメータで捉えようと試みて、太陽アクシオンの検出に⁵⁷Fe と TES(Transition Edge Sensor) 型マイクロカロリメーターを組み合わせた検出器が考案した。ここで太陽中心に存在する磁気双極子遷移の原子核の候補の中で⁵⁷Fe を使用する理由は、安定金属の同位体であり、微細加工プロセスによって直接 TES に成膜することが出来るためである。TES 型マイクロカロリ



Figure 21 CAST excluded region (95% CD) in the $m_a - g_{ay}$ -plane. Solid red black line: Envelope of all CAST results from 2003-2011 data¹¹⁻¹⁶. Solid red line: Exclusion from the data here presented. Diagonal yellow band: Typical QCD axion models (upper and lower bounds set according to a prescription given in ref. 49). Diagonal green line: The benchmark KSVZ axion model with E/N=0, where $g_{ay} = (E/N-1.92) \alpha/(2\pi f_a)$, with f_a the axion decay constant.

Fig. 1.24: CAST のアクシオンの制限。これまでの 2003-2011 年の結果と 2013-2015 年のデータを使用した今回 の 2017 年の結果 (This work) が示されている。CAST collaboration 2017, Fig. 2。



Figure 6 | Constraints on the two-photon coupling g_{ay} of axions and similar particles depending on their mass m_a. Apart from the CAST limits updated with the result presented here, we show the results from the previous helioscope Sumico and the best limit from the Bragg technique (DAMA). Moreover, we show the latest limits from the laser propagation experiments OSQAR and PVLAS, high-energy photon propagation in astrophysical *B*-fields (H.E.S.S.), the SN1987A observation, and telescope limits for cosmic axion decay lines. Horizontal dashed lines provide limits from properties of the Sun and the energy loss of horizontal branch (HB) stars. The vertical dashed line denotes the cosmic hot dark-matter (HDM) limit which only applies to QCD axions. The haloscope limits assume that axions are the galactic dark matter. The yellow band of QCD axion models and the green KSVZ line are as in Fig. 2.

Fig. 1.25: 2017 年現在のさまざまな世界の実験によりアクシオンの制限。CAST collaboration 2017, Fig. 6。

メータを用いれば、従来の太陽アクシオンの検出方法よりも2つの理由で検出感度の向上が期待できる。第一の 理由は、検出効率の問題である。⁵⁷Fe とアクシオンの反応で生成される 14.4 keV の γ 線の変換効率は 9% 程度 で、残りは conversion 電子と低エネルギーの X 線として放出される。この conversion 電子と X 線は薄膜中に自 己吸収されてしまい、半導体検出器では捉えることが出来ない。また γ 線自身も一部自己吸収されてしまい、自 然放射線によるノイズの高く、これらの理由から検出効率は 1 % 程度であった。一方で TES 型マイクロカロリ メータを用いて熱として捉えた場合、⁵⁷Fe 吸収体に自己吸収される X 線等を熱として検出することが可能とな る。conversion 電子と L 殻以下の X 線は全て自己吸収され、14.4 keV の γ 線と K 殻 X 線はどちらも 60 % の 確率で ⁵⁷Fe 薄膜自身に自己吸収され、残りは外へ放出される。この自己吸収されたエネルギーを捉えるため、検 出効率は 87 % まで高めることが可能となる。第二の理由は、TES のエネルギー分解能が優れていることにある。 太陽アクシオンの検出感度を高めるためには、⁵⁷Fe の量が重要である。だが ⁵⁷Fe の量が大きくなると荷電粒子 バックグラウンドが大きくなり、検出感度に影響を及ぼす。しかし検出器自体のエネルギー分解能が優れている場 合、バックグラウンドイベントレートによる影響は軽減され、検出した信号イベントによって検出感度を決定す ることが出来る。

しかし、TES と ⁵⁷Fe を組み合わせたカロリメータには、単素子では受容面積が小さく検出感度が低いという 問題と、磁性体である ⁵⁷Fe から発せられる磁場による TES の超伝導遷移特性に影響を与えエネルギー分解能を 悪化させてしまう問題が挙げられる。前者は例えば 1 万程度に多素子化し、また、マイクロ波を用いた信号多重 化による数ピクセルの信号読み出し技術を用いることで、高い検出感度の達成することが出来る。後者に関して は、磁性体を TES に組み合わせたという前例がなく、磁気シミュレーションによる見積もりや、実際に磁性体と 組み合わせた試作素子製作を行い、磁性体を設置することが出来る最短距離を検証する必要がある。先行研究で は、シミュレーションによる磁性体 ⁵⁷Fe を吸収体として TES に組み合わせるための検出器の構造が提案された (Maehisa master's thesis 2018)。

本研究では、先行研究で得られた TES カロリメータの構造について、熱的なシミュレーションを行い、現在の 太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリメータのデザインで、どれだけのエネルギー分解能が達成できるか 評価を行い、エネルギー分解能と設計パラメータの依存性を整理し、その最適化を行う。そして磁性体を吸収体と した場合の TES への影響を調査するために、Fe 吸収体を取り付けた試作素子の製作を行い、磁性体による TES の超伝導遷移特性への影響について評価を行なう。

第2章 太陽アクシオン探査の感度の検出器設計パラ メータへの依存性

本章では、太陽アクシオン線スペクトルのポアッソン統計による S/N 比が、検出器パラメータにどのように依 存するかを議論する。

2.1 線スペクトルのS/N比

まず、解析的に簡単に扱うために、fig. 2.1 のように理想化したスペクトルを考える。信号は線スペクトルに含まれるカウント数Sであるが、実験から直接求められるのは、エネルギー幅 δE のカウント数S+Bであるので、線スペクトルの推定値 \bar{S} は以下のように求める必要がある。

$$\bar{S} = S + B - \bar{B} \tag{2.1}$$

ここで、 *B*はエネルギー幅 δ*E* に含まれるバックグラウンドの推定値であるが、これは、線スペクトルのまわり のスペクトルから推定する必要がある。fig. 2.1 では、バックグラウンドは一定と考えて良いので、線スペクトル の両側の合わせて、*k*δ*E* に相当するエネルギー幅のスペクトルから推定するものとする。

推定値 \bar{S} のポアッソン統計による揺らぎを、 $\sigma(S)$ とすると

$$\sigma(S)^2 = S + B + \sigma(B)^2 \tag{2.2}$$

である。ここで、 $\sigma(B)$ は推定値 \bar{B} に対するポアッソン統計による揺らぎであり、

$$\sigma(B)^2 = \frac{B}{k} \tag{2.3}$$

である。従って、S/N比は、

$$S/N = \frac{S}{\sqrt{S + B(1 + \epsilon)}} \tag{2.4}$$

とかける。ここで、

$$\epsilon = \frac{1}{k} \tag{2.5}$$

である。 S/N 比はさらに

$$S/N = \frac{\sqrt{S}}{\sqrt{1 + \frac{\Delta E}{\delta W}a(1+\epsilon)}}$$
(2.6)

と書き直すことができる。ここで、 $b \in \text{counts/keV}$ の単位でのバックグランドレベルとして (従って、 $B = b\delta E$)、 δW は、

$$\delta W = \frac{S}{b} \tag{2.7}$$

と定義される、天文学において、線スペクトルの等価幅と呼ばれる量である。すなわち、線スペクトルのカウント数と、バックグラウンドのカウント数が同じになるエネルギー幅である。また、Δ*E*を検出器エネルギー分解能の半値幅 (FWHM) として、

$$\delta E = a\Delta E \tag{2.8}$$



Energy (keV)

Fig. 2.1: スペクトル線のポアッソン統計で決まる S/N 比を議論するための理想化したスペクトル。S、B はそれ ぞれ信号となる線スペクトルの強度とバックグラウンドである。スペクトルの両側の二つの領域は B の推定値 B を求めるために使用するスペクトルの領域である。

とおいた。 従って、S/N 比は信号のポアッソン統計 √S に加えて、線スペクトルの等価幅とエネルギー分解能の 比で決まることになる。

 $a(1+\epsilon)$ は1のオーダーの定数であるので、等価幅に比べて検出器のエネルギー分解能が良い(つまり、 ΔE が小さい)場合には、バックグラウンドは無視することができて(つまり S >> B である)、

$$S/N \sim \sqrt{S}$$
 (2.9)

である。これは X 線天文学においては、photon limit と呼ばれる場合である。 等価幅に比べて検出器のエネル ギー分解能が悪い場合には、S/N 比は、その比の分だけ悪化する。

$$S/N \sim \frac{\sqrt{S}}{\sqrt{\frac{\Delta E}{\delta W}a(1+\epsilon)}}$$
(2.10)

これは background limit と呼ばれる。

実際に実験で得られるスペクトルは複雑な形をしており、なんらかのモデルフィットを行なってバックグラウンドと線スペクトルを分離する必要がある。その場合でも、本質的には上記の議論と同様に、統計的な揺らぎがモデルパラメータの推定値にはいってくるはずであり、S/N比は、S, ΔE , δW に対して eq. (2.6) と同じ依存性を持つはずである。その際、 $a(1+\epsilon)$ に相当する値は、バッックグラウンドのエネルギー依存性、複数の線スペクトルがある場合にはそれらがどのくら混んで存在しているかなどに依存するが、いずれにしても1のオーダーの量である。以下では、簡単のため、この fudge factor を 2.5 (a = 2, k = 4 に相当)とおいて議論する。すなわち、

$$S/N = \frac{S}{\sqrt{S + b\Delta E\eta}}, \quad \eta = 2.5 \tag{2.11}$$

とする。

2.2 太陽アクシオン検出のS/N比

⁵⁷Fe による太陽アクシオンの変換レートは、Moriyama (1995) により

$$R = 3 \times 10^2 \text{ day}^{-1} \text{ kg}^{-1} \left(\frac{10^6 \text{GeV}}{f_{\text{a}}}\right)^4 C^4$$
(2.12)

と与えられる。ここで、

$$C = 1.9 \frac{3F - D + 2S}{3} + (D + F) \frac{1 - z}{1 + z}$$
(2.13)

であり、ここでは、D = 0.77, F = 0.48, S = 0.68, z = 0.56とする。また、 f_a はアクシオンの coupling energy であり、QCD アクシオンでは質量と以下のように結びついている。

$$m_{\rm a} = 1 \text{ eV} \frac{\sqrt{z}}{1+z} \frac{1.3 \times 10^7 \text{GeV}}{f_{\rm a}}$$
 (2.14)

観測時間をT、変換物質の質量をM、検出効率を α 、とすると、

$$S = RTM\alpha \tag{2.15}$$

である。薄膜の検出器ではバックグラウンドレートは検出面積に比例するので、単位エネルギー,単位時間、単位 面積当たりのバックグラウンドレートをβとすると、

$$b = \frac{\beta T M}{t} \tag{2.16}$$

と書ける。ここで、変換物質の厚みを t とした。

S/N 比が3になる R は、eq. (2.11) から S を解いて、

$$R = \frac{\sqrt{9\beta\eta T M \Delta E/t + (9/2)^2} + 9/2}{T M \alpha}$$
(2.17)

と表される。 $9\beta TM\Delta E/t << (9/2)^2$ の場合は、photon limit であり、S/N 比が3になる R は、変換物資の質量 と観測時間に反比例して小さくなる。つまり、これらに比例して感度が高くなる。一方、 $9\beta TM\Delta E/t >> (9/2)^2$ の場合には background limit であり、感度は変換物資の質量と観測時間それぞれのルートに比例する。

? を見ると、半導体検出器を使った実験では background limit になっていることがわかる。一方、マイクロカ ロリメータを使うと ΔE が小さいことから photon limit にすることができる可能性がある。マイクロカロリメー タを使う場合には、半導体検出器に比べて α を大きくできるが、M は小さくなる。しかし、photon limit では、 9 $\beta\eta TM\Delta E/t$ の項が, $(9/2)^2$ に比べて無視できるほど小さいので, background limit よりも感度が高く, また α が 大きい方が感度も高い。これらによって M の小ささを補うことができると期待される。

一方、マイクロカロリメータの高いエネルギー分解能を維持しつつ、大きな*M*を実現するには、ピクセル化に よる分割が必須となる。実験としては、同じ*M*で分割数が少ない方が簡単になる。しかし、そのためにピクセル が大きくなりエネルギー分解能が低下するので、ピクセルの大きさとの間でトレードオフが必要となる。マイク ロカロリメータの理想的なエネルギー分解能は

$$\Delta E = 2.35\xi \sqrt{CT^2 k_{\rm B}} \tag{2.18}$$

で与えられる。ここで、 $T, k_{\rm B}$ はそれぞれ、マイクロカロリメータの動作温度とボルツマン定数、また、 ξ はマイクロカロリメータを構成する材料の熱伝導度の温度依存性などで決まる1のオーダーのパラメータである。C は動作点でのマイクロカロリメータの熱容量であるので、ピクセル数をnとすれば、 $C \propto M/n$ である。従って、pをある定数として

$$R = \frac{\sqrt{9\beta\eta T M^{3/2} p t^{-1} n^{-1/2} + (9/2)^2} + 9/2}{T M \alpha}$$
(2.19)

となり、background limit では R は $M^{-1/4}$ となる。つまり、エネルギー分解能を犠牲にして質量を大きくした方 がよい、ということを意味する。しかし、現実的なエネルギー分解能には eq. (2.18) 以外の要素も寄与し、特に、 素子が大きい場合には、エネルギー量子を吸収した後に TES に熱が伝わるまでの時間が、TES と熱リンクの熱伝 導度と電熱フィードバックで決まる素子本来のパルス波形の長さ(次章参照)に比べて無視できなくなると、信 号波形のエネルギー量子の吸収位置依存性、パルス高さが低くなることによる S/N の低下によって、エネルギー 分解能は急激に劣化する。素子の大きさを L として、この要因によるエネルギー分解能の悪化を $\Delta E \propto L^{\gamma}$ とお くと、熱伝導の時間尺度は $\propto L^2$ であるので、 $\gamma > 2$ であると予想される。従って、

$$R = \frac{\sqrt{9\beta\eta T M t^{-1} [p^2(M/n) + q^2(M/n)^{\gamma}]^{1/2} + (9/2)^2 + 9/2}}{T M \alpha}$$
(2.20)

と予想され、 $(M/n)^{\gamma}$ の項が効き始める M/n よりも少し小さいところに、background limit の場合のエネル ギー分解能と変換物質質量の最適な値が存在するはずである。

鉄を量子エネルギー変換物質として用いた TES 型マイクロカロリメータは前例がなく、エネルギー分解能の素 子の大きさへの依存性は、最終的には素子を試作して確認する必要がある。本論文では、その前のステップとし て、鉄の極低温物性値の文献データに基づいて、TES 型マイクロカロリメータの応答を熱シミュレーションによ り確認する。次に、そのシミュレーション結果を、TES 型マイクロカロリメータの設計にフィードバックしてプ ロセス設計を行う。これらにに先立って、本章の残りの部分で、これまでの議論に基づいた簡単な感度見積もりを 行う。

2.3 太陽アクシオン探査の感度の見積もり例

金をX線吸収体(X線量子エネルギーの変換物質)として用いたX線マイクロカロリメータでは、吸収体の大き さが200µm程度までは、X線吸収位置依存性によるエネルギー分解能の低下は見えられない。一方、鉄は金に比 べて、比熱が大きくかつ熱伝導度も低い。そこで、1ピクセルあたりの変換物質の大きさを、100µm角と150µm 角の場合を考え、どちらも厚さは10µmとする。この時エネルギー分解能を、

$$\Delta E = \sqrt{(7 \text{ eV})^2 (L/100\mu\text{m})^2 + (7 \text{ eV})^2 (L/100\mu\text{m})^8}$$
(2.21)

とモデル化する。

実験室での我々の TES 型マイクロカロリメータの測定実績では、バックグラウンドレートは、 5.8×10^{-2} c/s/cm²/keV である。しかし、anti-coincidence detector を備えた衛星用 X 線マイクロカロリメータ (XRS) では、 2.0×10^{-3} c/s/cm²/keV が達成されている (Kelley et al. 2007 ?)。そこで、anti-coincidence detector を備えることを前提とした、大きめの値として、 1×10^{-2} c/s/cm²/keV を設定する。以上のパラメータを用いて、 100μ m 角と 150μ m 角の素子の感度を見積もった結果を fig. 2.2 に示す。 100μ m 角については、XRS と同等まで バックグラウンドを下げた場合(ノミナルモデルの 20%)も示した。

現在、我々の研究室が物質・材料研究機構 (NIMS) などと共同開発した X 線マイクロ分析用の TES 型 X 線マ イクロカロリメータシステムでは 64 画素の読み出し系を実現している。そこで、64 画素の素子の実現性は非常に 高いと考えて、最小画素数を 64 とした。一方、2028 年の打ち上げをめざして開発がすすんでいる ATENA 衛星 の TES 型 X 線マイクロカロリメータを用いた観測装置では MHz 帯の周波数多重化により 3000 画素を読み出そ うとしている。さらに、我々の研究室が産業技術総合研究所 (AIST) とさらに将来の宇宙 X 線観測をめざして共 同で研究しているマイクロ波を用いた信号多重化システムでは、100k 画素以上をめざしている。そこで、素子数 の範囲として、最大 1M 画素までを考慮した。

 $100\mu m$ 角画素の場合は、ノミナルモデルのバックグラウンドの場合も 64 画素では photon limit になっており、 3- σ 限界は、画素数nの増加とともに、1/nに比例して小さくなる。しかし、nが大きくなると background limit になり、3- σ 限界の下がり方はゆっくりになる。150 μm 角画素の場合は、64 画素においても background limit であるが、Mが大きい分だけ、同じバックグラウンドレートの 100 μm 角画素よりも感度が高いことがわかる。こ



Fig. 2.2: 本節で仮定したモデルパラメータによる太陽アクシオンの $3 - \sigma$ 検出限界の見積もり例。縦軸右側にそれをアクシオン質量 m_a に焼き直した値も示した。 $100\mu m$ 角のピクセルで 64 ピクセルの場合は photon limit であるが、素子数が増えると background limit に近づき、ピクセル数が増えた際の検出限界は下がり方が次第に緩やかになる。64 ピクセルの素子で、現状のベストの値である $m_a < 251 \text{ eV}$ 程度、あるいは、それよりも高い感度を実現できる可能性があることを示唆している。

の時の感度は、アクシオンの下限質量としては 200eV に相当し、これまでの最良の値である 251eV よりもよい値 が得られると予想される。

以上の結果から、より具体的な素子の設計を進めて、より詳細な検討を行う価値が十分にあると結論する。

第3章 TES型X線マイクロカロリメータの原理

3.1 TES 型マイクロカロリメータとは

TES 型マイクロカロリメータとは、入射光子のエネルギーを熱として捉え、素子の温度上昇から光子を検出す る非分散型の分光検出器である。TES は超伝導遷移時の急激な電気抵抗の変化を利用した温度計で、 $\alpha = \frac{\text{dlog}T}{\text{dlog}R}$ で定義される温度計の感度 α は 1000 に達する。熱雑音の低い極低温 (~100 mK) で動作させることで、原理的に は ~ 1 eV の高いエネルギー分解能を達成することが出来る。TES カロリメータは fig. 3.1 のような構造であり、 吸収体、温度計 (TES)、サーマルリンク、熱浴から構成されている。吸収体に入射した X 線は光電効果によって 吸収され、そのエネルギーは熱に変換される。この時入射 X 線のエネルギー E に対する温度変化 ΔT は、カロ リメータの熱容量を C とした時、

$$\Delta T = \frac{E}{C} \tag{3.1}$$

と書ける。温度計はこの微弱な温度変化を抵抗値の変化として測定する。またカロリメータは熱浴 (100 mK) と弱 いサーマルリンクで繋がっており、吸収体で発生した熱はサーマルリンクを通じて熱浴へと逃げていき、ゆっくり と定常状態に戻る。これは

$$C\frac{\mathrm{d}\Delta T}{\mathrm{d}t} = -G\Delta T \tag{3.2}$$

のように表される。ただし G はサーマルリンクの熱伝導度である。したがって、素子の温度上昇は時定数

$$\tau_0 = \frac{C}{G} \tag{3.3}$$

で指数関数的に減衰していく。X 線マイクロカロリメータのエネルギー分解能は素子の熱揺らぎによって制限される。カロリメータピクセル中のフォノン数は *N* ~ *CT*/*k*_B*T* = *C*/*K*_B と書けるので、素子の熱揺らぎは、

$$\Delta U \sim \sqrt{N} k_{\rm B} T = \sqrt{K_{\rm B} T^2 C} \tag{3.4}$$

となる。一般的には、X 線マイクロカロリメータの intrinsic なエネルギー分解能は

$$\Delta E_{\rm FWHM} = 2.35\xi \sqrt{k_{\rm B}T^2C} \tag{3.5}$$

と書ける?。ただし *ξ* は温度計の感度や動作条件などによって決まるパラメータである。熱容量の温度依存性を考慮すると、エネルギー分解能は温度に強く依存し、極低温 (~ 0.1 K) で非常に高いエネルギー分解能が達成されることが分かる。

3.1.1 吸収体

X 線は光電効果によって吸収体内部で吸収される。エネルギー分解能を向上させるためには、(3.5) から分かる ように、熱容量 C を小さく、つまり吸収体を小さくすれば良い。一方で、検出効率を高くするためには、吸収体 を大きくし光子の受光面積を増やす必要がある。吸収体の大きさはこれらのトレードオフで決定する。これとは 別に、吸収体の重要な性質として、熱化(thermalization)、熱拡散(diffusion)の早さがある。熱化、熱拡散が遅 いとカロリメータに伝わる前に熱が逃げてしまい、エネルギー分解能が悪くなる。また吸収体の X 線入射位置に よって、熱化、熱拡散過程がバラついてしまうと、イベントごとの波形のばらつきが生じ、S/N 比とは別にエネ



Fig. 3.1: TES 型マイクロカロリメータの構造

ルギー分解能を悪化させてしまう。熱化、熱拡散過程を一様にするには、カロリメータ にエネルギーが移動する までに吸収体内で熱化、熱拡散が一様に起こる必要がある。これらから吸収体として用いるべき物質は、高い吸 収効率、小さい熱容量、高い熱拡散率、を満たすものが望ましい。従来の TES 型マイクロカロリメータでは、ス ズ、ビスマス、金、銅などがよく用いられる。太陽アクシオン探査の吸収体に用いる ⁵⁷Fe の物性値については?? 節に記載する。

3.1.2 温度計

温度計は、半導体や金属の抵抗値が温度に依存して変化することを利用したものである。温度計の感度 α (無次 元)を、

$$\alpha = \frac{\mathrm{dlog}R}{\mathrm{dlog}T} = \frac{T}{R}\frac{dR}{dT}$$
(3.6)

と定義する。T は温度計の温度、R は温度計の抵抗値である。温度計の感度 α を大きくすれば、カロリメータの エネルギー分解能を改善することが出来る。半導体温度計を用いた Astro-h や XRISM で使用される半導体型 X 線マイクロカロリメータでは ~ 6 であるが、次節で述べる超伝導端遷移を用いた温度計 TES では感度 α を高い 数値にすることが出来る。

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

遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor) とは、超伝導 - 常伝導遷移端の急激な抵抗変化を利用した温度 計である。超伝導遷移は典型的には数 mK という非常に狭い温度範囲で起こり、fig. 3.2 で定義される温度計の感 度 α は 1000 にも達する。そのため、TES を用いたカロリメータは従来の半導体温度計のカロリメータに比べ、 原理的には 1 桁以上もエネルギー分解能を改善することが可能である。それゆえ、TES カロリメータでは吸収体 の熱容量の大きさに対するマージンが大きくなり、熱化の早い常伝導金属を使用したり、大きな吸収体を用いて受 光面積を増やすといったことも可能になる。TES を用いる場合、カロリメータの動作温度は TES の遷移温度に 保たなければならない。そのため、動作温度は TES の遷移温度によって決まってしまう。しかし、TES は二層 薄膜構造することで近接効果 (proximity effect) による臨界温度のコントロールが可能である。近接効果とは、超



Fig. 3.2: 超伝導遷移特性

伝導体に常伝導体を接触させるとクーパー対が常伝導体に漏れ出し、膜厚の比に依存して超伝導体の臨界温度が 下がる効果である。

3.3 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、感度を持つ温度域が非常に狭い (~ mK) ため、動作点を 遷移端中に保つ必要がある。これは TES の定電圧バイアスを作動させ、強いフィードバックをかけることで実現 する。これを電熱フィードバック (ETF: Electro-Thermal-Feedback)と呼ぶ?。本節では電熱フィードバック中 のカロリメータの動作について述べる。

3.3.1 電熱フィードバックのもとでの温度変化に対する対応

fig. 3.3 (左) に示す様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。 実際には室温からの配線抵抗があるため、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 (fig. 3.3 (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

$$G \equiv \mathrm{d}P/\mathrm{d}T\tag{3.7}$$

で定義される。一般的に熱伝導度は温度依存性を持ち、

$$G = G_0 T^{n-1} (3.8)$$

と温度に対するべき n を用いて表される。電子が熱伝導度を担う場合 n = 2、格子振動が熱伝導度を担う場合 n = 4となる。熱浴と TES との間の熱伝導度を考える。一般に $T \gg T_{\text{bath}}$ であるので、熱浴との熱伝導度によ

る熱の流れは

$$P = \int_{T_{\text{bath}}}^{T} G \mathrm{d}T = \frac{G_0}{n} (T^n - T_{\text{bath}}^n)$$
(3.9)

と (3.7) 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釣り合っているので、

$$P_b = \frac{G_0}{n} (T_0^n - T_{\text{bath}}^n)$$
(3.10)

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、

$$C\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}t} = \frac{V_b^2}{R(T)} - \frac{G_0}{n}(T^n - T_{\mathrm{bath}}^n)$$
(3.11)

が成り立つ。温度上昇 ΔT は 1 次の近似で

$$C\frac{\mathrm{d}\Delta T}{\mathrm{d}t} \sim -\frac{V_b^2}{R_0^2}\Delta R - G_0 T^{n-1}\Delta T$$
$$= -\frac{P_b\alpha}{T}\Delta T - G\Delta T$$

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。(3.11)の解は、

$$\Delta T = \Delta T_0 \exp(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}}) \tag{3.12}$$

と書ける。ただし、

$$\tau_{\rm eff} = \frac{C/G}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}}$$
(3.13)

は有効時定数である。(3.10) と (3.13) より、_{7eff} は

$$\tau_{\text{eff}} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n} \left(1 - \left(\frac{T_{\text{bath}}}{T}\right)^n\right)} \tag{3.14}$$

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 $(T_{hath}^n \ll T^n)$ は、

$$\tau_{\rm eff} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n}} \approx \frac{n}{\alpha} \tau_0 \tag{3.15}$$

と近似できる。ただし、(eq. 3.15) 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、

$$\Delta I = \frac{V_b}{R(T_0 + \Delta T)} - \frac{V_b}{R(T_0)}$$
(3.16)

$$\simeq -\frac{\Delta R}{R}I\tag{3.17}$$

$$\simeq -\alpha \frac{E}{CT}I \tag{3.18}$$

となる。



Fig. 3.3: (左) 定電圧バイアス、(右) シャント抵抗を使って擬似的に作る定電圧バイアス

3.3.2 電熱フィードバックの一般論と電流応答性

定電圧バイアスで動作するカロリメータに、時間に依存する微小なパワー $\delta Pe^{i\omega t}$ が入射したときの応答について考える。系の応答は線形であり、入射 $\delta Pe^{i\omega t}$ に対する温度変化は $\delta Te^{i\omega t}$ で表されるとする。フィードバックがかかってないときは、

$$P_{bgd} + \delta P e^{i\omega t} = \overline{G}(T - T_{\text{bath}}) + G\delta T e^{i\omega t} + i\omega C\delta T e^{i\omega t}$$
(3.19)

が成り立つ。ただし Pbad はバックグラウンドパワー、G は平均の熱伝導度である。定常状態では、

$$P_{bgd} = \overline{G}(T - T_{bath}) \tag{3.20}$$

である。(3.19)と(3.20)より *δT* は *δP* を用いて、

$$\delta T = \frac{1}{G} \frac{1}{1 + i\omega\tau_0} \delta P \tag{3.21}$$

と表せれる。ここで、 $\tau_0 = C/G$ は系の固有時定数である。

電熱フィードバックがかかった状態では、エネルギー保存のは、

$$P_{bgd} + \delta P e^{i\omega t} + P_b + \delta P e^{i\omega t} = \overline{G}(T - T_{bath}) + G\delta T e^{i\omega t} + i\omega C\delta T e^{i\omega t}$$
(3.22)

となる。また定電圧バイアスでは以下の関係が成り立つ。

$$\delta P_b e^{i\omega t} = \frac{\mathrm{d}P_b}{\mathrm{d}I} \delta I e^{i\omega t} = V_b \delta I e^{i\omega t}$$
(3.23)

$$\delta I e^{i\omega t} = \frac{\mathrm{d}I}{\mathrm{d}R} \delta R e^{i\omega t} = \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}R} (\frac{V_b}{R}) \delta R e^{i\omega t} = -\frac{V_b}{R^2} \delta R e^{i\omega t}$$
(3.24)

$$\delta R e^{i\omega t} = \frac{\mathrm{d}R}{\mathrm{d}T} \delta T e^{i\omega t} = \alpha \frac{R}{T} \delta T e^{i\omega t}$$
(3.25)

これらを使うと (eq. 3.22) は、

$$P_{bgd} + \delta P e^{i\omega t} + \frac{V_b^2}{R} - \frac{V_b^2}{R^2} \frac{dR}{dT} \delta T e^{i\omega t} = \overline{G}(T - T_{\text{bath}}) + G\delta T e^{i\omega t} + i\omega C\delta T e^{i\omega t}$$
(3.26)

と書き換えられる。(eq. 3.26)の解は、

$$\delta T e^{i\omega t} = \frac{1}{\alpha \frac{P_b}{T} + G + i\omega C} \delta P e^{i\omega} t$$
(3.27)

$$= \frac{1}{G} \frac{1}{1 + \frac{\alpha P_b}{GT}} \frac{1}{1 + i\omega \tau_{\text{eff}}} \delta P e^{i\omega t}$$
(3.28)

(3.29)

$$\tau_{\rm eff} \equiv \frac{1}{1 + \frac{\alpha P}{GT}} \frac{C}{G}$$
(3.30)

は、電熱フィードバックがかかった状態での実効的な時定数である。一般的にフィードバックの理論に当てはめると、電熱フィードバックの系は fig. 3.4 のように表すことができる。フィードバック量 b と系のループゲイン $\mathcal{L}(\omega)$ はそれぞれ、

$$b = -V_b \tag{3.31}$$

$$\mathcal{L}(\omega) = \frac{1}{G(1+i\omega\tau_0)} \times \alpha \frac{R}{T} \times (-\frac{I}{R}) \times (-V_b) = \frac{\alpha P_b}{GT} \frac{1}{1+i\omega\tau_0} \equiv \frac{\mathcal{L}_0}{1+i\omega\tau_0}$$
(3.32)

と書ける。ただし、

$$\mathcal{L}_0 \equiv \frac{\alpha P_b}{GT} \tag{3.33}$$

は周波数0のループゲインである。ループを閉じた場合の伝達関数

$$S_I(\omega) \equiv \frac{\alpha P_b}{GT} \tag{3.34}$$

は *L*(*ω*) を使って、

$$S_I(\omega) = \frac{1}{b} \frac{\mathcal{L}(\omega)}{1 + \mathcal{L}(\omega)}$$
(3.35)

$$= -\frac{1}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1 + i\omega\tau_0}$$
(3.36)

$$= -\frac{1}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1} \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}}$$
(3.37)

と書ける。ただし、

$$\tau_{\rm eff} \equiv \frac{\tau}{\mathcal{L}_0 + 1} \tag{3.38}$$

である。ループゲインが十分に大きい場合 ($\mathcal{L}_0 \gg 1$) は、

$$S_I(\omega) = -\frac{1}{V_b} \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}}$$
(3.39)

となる。さらに $\omega \ll 1/\tau_{\text{eff}}$ を満たす周波数範囲では、

$$S_I = -\frac{1}{V_b} \tag{3.40}$$

と表され、電圧 V_b の逆数になる。 $S_I(\omega)$ のことを特に電流応答性 (current responsivity)と呼ぶ。入力 $P(t) = E\delta(t)$ に対する応答は、以下のように計算される。角周波数空間 ($-\infty < \omega < +\infty$)での入力は、

$$P(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E\delta(t) e^{i\omega t} dt \qquad (3.41)$$

$$= \frac{E}{2\pi} \tag{3.42}$$

であるので、出力はそれに電流応答性をかけて、

$$I(\omega) = S_I(\omega)P(\omega) \tag{3.43}$$

$$-\frac{E}{2\pi V_b}\frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0+1}\frac{1}{1+i\omega\tau_{\text{eff}}}\tag{3.44}$$

と表される。これを逆フーリエ変換して時間軸に戻すと、

$$I(t) = \int_{\infty}^{-\infty} I(\omega) e^{-i\omega t} d\omega$$
(3.45)

$$= -\frac{1}{2\pi} \frac{E}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1} \int_{\infty}^{-\infty}$$
(3.46)

$$= -\frac{E}{V_b \tau_{\text{eff}}} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1} \exp(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}})$$
(3.47)

$$= -\frac{\alpha E}{CT} I_0 \exp(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}})$$
(3.48)

となり、(eq. 3.16) と一致する。ただし、 I_0 は平衡状態で TES を流れる電流である。一方で、入力 $P(t) = E\delta(t)$ による温度上昇は周波数空間で、

$$\Delta T(\omega) = \frac{1}{G(1+i\omega\tau_0)} \frac{1}{1+\mathcal{L}(\omega)} P(\omega)$$
(3.49)

$$= \frac{1}{2\pi} \frac{E}{G} \frac{1}{1 + \mathcal{L}_0} \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}}$$
(3.50)

と書けるので、時間軸に直すと、

$$\Delta T(t) = \int_{\infty}^{-\infty} \Delta T(\omega) e^{-i\omega t} d\omega$$
(3.51)

$$= \frac{1}{2\pi} \frac{E}{G} \frac{1}{\mathcal{L}_0 + 1} \int_{\infty}^{-\infty} \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}}$$
(3.52)

$$= \frac{E}{G\tau_{\text{eff}}} \frac{1}{\mathcal{L}_0 + 1} \exp(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}})$$
(3.53)

$$= \frac{E}{C} \exp(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}}) \tag{3.54}$$

である。ループゲインが一定であるとみなせる時、(eq. 3.47)より、

$$\int V_b I(t)dt = -\frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1}E\tag{3.55}$$

したがって、X 線入射に伴うジュール発熱の積分量は入射エネルギー *E* に比例することになる。入射エネルギー のうち $\mathcal{L}_0/(\mathcal{L}_0+1)$ はジュール発熱の変化で補償され、 $1/(\mathcal{L}+1)$ が熱浴に逃げていくことになる。特に $\mathcal{L}_0 \gg 1$ の場合は X 線入射に伴うジュール発熱の変化の積分量は入射エネルギーに一致する。

3.4 固有ノイズ

エネルギー分解能を見積もるためにはノイズレベルを評価しなければならない。ノイズには、バックグラウンドの放射、熱浴の温度揺らぎ、外部磁場、1/ f ノイズ、rf ノイズなど様々な起源のものが存在する。その中でも、ジョンソンノイズとフォノンノイズは X 線マイクロカロリメータを使う限り避けることができず、原理的なエネルギー分解能はこれらで制限される。本節では、ジョンソンノイズとフォノンノイズについて述べる。ここでは、理想的な定電圧バイアスの場合を定化する。

マイクロカロリメータには2種類の固有ノイズ源がある。1つは、温度計の抵抗で発生するジョンソンノイズ、 もう1つは熱浴と熱伝導度が有限であるために発生する熱揺らぎ(フォノンノイズ)である。fig. 3.6 は、これら



Fig. 3.4: 電熱フィードバックのダイアグラム

のノイズの寄与も含めた電熱フィードバックのダイアグラムである。フォノンノイズは熱起源であるので、信号 と同じ部分に入力される。これに対して、ジョンソンノイズは TES カロリメータの抵抗に起因するので、フォノ ンノイズとは伝達の仕方が異なる。微小な熱揺らぎ *δP*_{ph} がもたらす電流の揺らぎは、

$$\delta I_{\rm ph} = -\frac{I}{V_b} \frac{\mathcal{L}(\omega)}{1 + \mathcal{L}(\omega)} \delta P_{\rm ph}$$
(3.56)

である。これよりフォノンノイズの電流密度は、

$$\delta I_{\rm ph} = |S_I|^2 \delta P_{\rm ph}^2 \tag{3.57}$$

$$= \frac{1}{V_b^2} (\frac{\mathcal{L}_{\prime}}{\mathcal{L}+1}) \frac{1}{1+\omega^2 \tau_{\text{eff}}^2} \delta P_{\text{ph}}^2$$
(3.58)

となる。?によると、フォノンノイズのパワースペクトル密度は $0 \le f \le \infty$ 空間で、

$$\delta p_n^2 = 4k_B G T^2 \frac{\int_{T_{\text{bath}}}^T \left(\frac{t\kappa(t)}{T\kappa(T)}\right)^2 dt}{\int_{T_{\text{bath}}}^T \left(\frac{\kappa(t)}{\kappa(T)}\right) dt}$$
(3.59)

$$\equiv 4k_B G T^2 \Gamma \tag{3.60}$$

と表される。ただし、 $\kappa(T)$ はサーマルリンクを構成する物質の熱伝導率である。 $\theta \equiv T_{\text{bath}}/T$ とし、 $\kappa(T)$ は $\kappa(T_{\text{bath}})\theta^{-(n-1)}$ と表されると仮定すると、 Γ は、

$$\Gamma = \frac{n}{2n+1} \frac{1 - \theta^{(2n+1)}}{1 - \theta^n}$$
(3.61)

となる。(eq. 3.59)を(eq. 3.57)に代入すると、フォノンノイズの電流密度は、

$$\delta I_{ph}^2 = 4k_B G T^2 \Gamma |S_I|^2 \tag{3.62}$$

$$= \frac{4k_B G T^2 \Gamma}{b^2} (\frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1})^2 \frac{1}{1 + \omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}$$
(3.63)

$$= \frac{4k_B G T^2 \Gamma}{V_b^2} (\frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1})^2 \frac{1}{1 + \omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}$$
(3.64)

(3.65)

一方で、ジョンソンノイズ δV_J による電流揺らぎ δI_J^0 は、

$$\delta I_J^0 = \frac{\delta V_J}{R} \tag{3.66}$$

であり、この揺らぎが系に入力されると、出力の揺らぎは、

$$\delta I_J = \frac{1}{1 + \mathcal{L}(\omega)} \delta I_J^0 \tag{3.67}$$

$$= \frac{\frac{1}{\mathcal{L}_0+1} + i\omega\tau_{\text{eff}}}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}} \frac{\delta V_J}{R}$$
(3.68)

$$= \frac{1}{\mathcal{L}_0 + 1} \frac{1 + i\omega\tau_0}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}} \frac{\delta V_J}{R}$$
(3.69)

となる。ジョンソンノイズの電圧密度は $0\leq f\leq\infty$ 空間では、 $\delta V_J^2=4k_BTR$ と与えられるので、出力電流密度は、

$$\delta I_J^2 = \frac{4k_B T}{R} (\frac{1}{\mathcal{L}_0 + 1})^2 \left| \frac{1 + i\omega\tau_0}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}} \right|^2$$
(3.71)

$$= \frac{4k_BT}{R} (\frac{1}{\mathcal{L}_0 + 1})^2 \frac{1 + i\omega^2 \tau_0^2}{1 + i\omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}$$
(3.72)

$$= \begin{cases} \frac{4k_BT}{R} (\frac{1}{\mathcal{L}_0+1})^2 & if \quad \omega \ll \tau_0^{-1} \\ \frac{4k_BT}{R} & if \quad \omega \gg \tau_{\text{eff}}^{-1} \end{cases}$$
(3.73)

となる。これより $\omega \ll \tau_0^{-1}$ の周波数範囲では、ジョンソンノイズは電熱フィードバックによって抑制され、 $\omega \gg \tau_{\text{eff}}^{-1}$ の周波数範囲では元の値に戻ることがわかる。



Fig. 3.5: ノイズ電流密度。左が $\alpha = 100$ 、右が $\alpha = 1000$ の場合を示す。実線が信号、破線がジョンソンノイズ、 点線がフォノンノイズを表す。低い周波数では電熱フィードバックによってジョンソンノイズが抑制される。

これらすべての電流密度は自乗和によって与えられ、 $0 \leq f < \infty$ 空間では、

$$\delta I^2 = \delta I_J^2 + \delta I_{ph}^2 \tag{3.74}$$

$$= \frac{4k_BT}{R} (\frac{1}{\mathcal{L}_0 + 1})^2 \frac{1 + \omega^2 \tau_0^2}{1 + \omega^2 \tau_{\text{eff}}^2} + 4k_B T G \Gamma^2 \frac{1}{V_b^2} (\frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1})^2 \frac{1}{1 + \omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}$$
(3.75)

$$= \frac{4k_BT}{R} \frac{\frac{1+\Gamma\alpha\mathcal{L}_0}{(\mathcal{L}_0+1)^2} + \omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}{1+\omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}$$
(3.76)

となる。これは、強い電熱フィードバックの極限では、

$$\delta I^2 = \frac{4k_B T}{R} \frac{n/2 + \omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}{1 + \omega^2 \tau_{\text{eff}}^2}$$
(3.77)

となる。fig. 3.5 にノイズ電流密度と信号の周波数関数特性を示す。フォノンノイズとジョンソンノイズの関係を 見るために両者の比を取ると、

$$\frac{\delta I_{ph}^2}{\delta I_J^2} = \frac{\alpha \mathcal{L}_0 \Gamma}{1 + \omega^2 \tau_0^2} \tag{3.78}$$

したがって、低い周波数ではジョンソンノイズが抑制され、フォノンノイズが $\alpha \mathcal{L}_0 \Gamma$ 倍だけ大きいが、 $\omega > \tau_0^{-1}$ ではジョンソンノイズの寄与が大きくなり始め、 $\omega \gg \tau_{\text{eff}}^{-1}$ ではジョンソンノイズが支配的になる。一方、パルス とフォノンノイズの比は、

$$\frac{\delta P_{\text{signal}}^2}{\delta P_n} = \frac{2E^2}{4k_B G T^2 \Gamma} \tag{3.79}$$

となり、周波数に依存しない。これは両者が全く同じ周波数特性をもつためである。 (eq. 3.47) と (eq. 3.73) より、ジョンソンノイズは電流応答性 S_I を用いて

$$\delta I_J^2 = \frac{4k_B T}{R} \frac{b^2 (1 + \omega^2 \tau_0^2)}{\mathcal{L}_0^2} |S_I|^2 \tag{3.80}$$

と書ける。(eq. 3.62) と (eq. 3.73) から、固有ノイズは

$$\delta I^2 = \frac{4k_B T}{R} \frac{1 + \omega^2 \tau_0^2}{\mathcal{L}_0^2} b^2 |S_I|^2 + 4k_B G T^2 \Gamma |S_I|^2$$
(3.81)

となる。雑音等価パワー (noise equivalent power) NEP(f) は、信号のパワーと NEP(f) の比が S/N 比となる 値として定義され、

$$NEP(f)^2 = \left|\frac{\delta I}{S_I}\right|^2 \tag{3.82}$$

と計算される。固有ノイズに対する NEP(f) は

$$NEP(f)^2 = \left|\frac{\delta I}{S_I}\right|^2 \tag{3.83}$$

$$= \frac{4k_BT}{R} \frac{b^2}{\mathcal{L}_0^2} \frac{b^2}{\mathcal{L}^2} (1 + (2\pi f)^2 \tau_0^2 + \frac{\mathcal{L}_0^2}{b^2} RGT\Gamma)$$
(3.84)

$$= 4k_b T P_b \left(\frac{1 + (2\pi f)^2 \tau_0^2}{\mathcal{L}_0^2}\right) + \frac{\alpha \Gamma}{\mathcal{L}_0}$$
(3.85)

Johnson noise $\Delta V_{\rm I} = (4kTR)^{1/2}$

となる。

Fig. 3.6: ノイズの寄与も含めた電熱フィードバックのダイアグラム

3.5 最適フィルター処理とエネルギー分解能

X線マイクロカロリメータは、原理的には非常に高いエネルギー分解能を達成することができる。しかし、実際にはパルス波形がノイズによって変形されるため単純にパルスのピーク値を取っただけではよい分解能を得る ことが出来ない。一般的には最適フィルタ処理を行うことで、この誤差を小さくできると考えられている。最適 フィルタ処理では全てのパルスが相似形であることを仮定して以下のようにエネルギーを決定する。測定によって 得られたパルスを D(t) として、周波数空間では、

$$D(f) = A \times M(f) + N(f) \tag{3.86}$$

のように表せられるとする。ただし M(f) と N(f) はそれぞれ理想的なパルス(電流応答性 S_I と同等のもので、 ここではモデルパルスと呼ぶ)とノイズのスペクトルであり、A は振幅を表す。 相似形を仮定しているので、 $A \times M(f)$ と書ける。実際に得られたパルスとモデルパルスの差が少なくなるように、振幅 A の値を最小自乗法 によって決定する。実際に得られたパルスとモデルパルスの差を、

$$\chi^{2} = \int \frac{|D(f) - A \times M(f)|^{2}}{|N(f)|^{2}}$$
(3.87)

と定義すると、 χ^2 を最小にする A は、

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{DM^* + D^*M}{2|N|^2} df}{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{|M|^2}{|N|^2} df}$$
(3.88)

で与えられる。 $D(f) \ge M(f)$ は実関数のフーリエ成分であるから、 $D(-f) = D(f)^*$ 、 $M(-f) = M(f)^*$ を満たす。したがって、

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D(f)M(f)^*}{2|N|^2} df = -\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D(-f)M(-f)^*}{2|N|^2} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{M(f)D(f)^*}{2|N|^2} df$$
(3.89)

が成り立つので、Aは

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{DM^*}{|N|^2} df}{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{|M|^2}{|N|^2} df}$$
(3.90)

あるいは、

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D}{M} \left|\frac{M}{N}\right|^2 df}{\int_{-\infty}^{\infty} \left|\frac{M}{N}\right|^2 df}$$
(3.91)

となる。(3.91) から、A は S/N 比 $[N(f)/B(f)]^2$ を重みとした場合の D(f)/M(f) の平均値担っていることがわ かる。(3.91) はさらに

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} D(t) \mathcal{F}^{-1}\left(\frac{M(f)}{|N(f)|^2}\right) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} \left|\frac{M}{N}\right|^2 df}$$
(3.92)

と変形できる。ただし、 F^{-1} は逆フーリエ変換を表し、 $T(t) \equiv F^{-1}(\frac{M(f)}{|N(f)|^2})$ を最適フィルタのテンプレートと呼ぶことにする。したがってテンプレートを用いるとパルスハイト H は

$$H = \int_{-\infty}^{\infty} D(t)T(t)dt$$
(3.93)

あるいは離散的なデータ点に対して

$$H = N \sum_{i} D_i(t) T_i(t) \tag{3.94}$$

となる。ただし、N は最適な規格化定数、 $D_i(t)$ と $T_i(t)$ はそれぞれデジタイズされたパルスデータとテンプレートである。最適フィルターテンプレートを作成するためのモデルパルスとしては、実際に得られた X 線パルスの平

均(平均パルスと呼ぶ)を用いればよい。最適フィルタ処理を施した場合のエネルギー分解能の限界 (1 σ エラー) は、(3.87) の χ^2 が最適値より1 だけ増える A の変化分で計算でき、これは雑音等価パワー NEP(f) を用いて

$$\Delta E_{\rm rms} = \left(\int_0^\infty \frac{4df}{NEP^2(f)}\right)^{-\frac{1}{1}}$$
(3.95)

と表される?。固有ノイズによるエネルギー分解能を計算する。(3.83)を(3.95)に代入するとエネルギー分解能は

$$\Delta E_{\rm rms} = \left(\int_0^\infty \frac{4df}{\frac{4k_B T}{R} \frac{b^2}{\mathcal{L}_0^2} \left((1 + (2\pi f)^2 \tau_0^2) + \frac{\mathcal{L}_0^2}{b^2} RGT\Gamma \right)} \right)^{-\frac{1}{2}}$$
(3.96)

$$= \sqrt{\frac{4k_BT}{R} \frac{b^2}{\mathcal{L}_0^2} \tau_0^2} \sqrt{1 + \frac{\mathcal{L}_0^2}{b^2} RGT\Gamma}$$
(3.97)

$$= \sqrt{4k_B T^2 C \frac{b^2}{RGT \mathcal{L}_0^2}} \sqrt{1 + \frac{\mathcal{L}_0^2}{b^2} RGT\Gamma}$$
(3.98)

$$\sigma = 2\sqrt{\frac{b^2}{RGT\mathcal{L}_0^2}}\sqrt{1 + \frac{\Gamma}{\frac{b^2}{RGT\mathcal{L}_0^2}}}$$
(3.99)

と定義すると、エネルギー分解能は半値全幅(FWHM)で

$$\Delta E_{\rm FWHM} = 2.35\sigma \sqrt{k_B T^2 C} \tag{3.100}$$

となる。(3.100) に (eq. 3.31) と (eq. 3.33) を代入すると、

$$\sigma = 2\sqrt{\frac{1}{\alpha \mathcal{L}_0}\sqrt{1 + \alpha \mathcal{L}_0 \Gamma}}$$
(3.101)

のように書ける。 $T_{\text{bath}} \ll T$ の場合は、 $\Gamma \sim 1/2$ 、 $P_b \sim GT/n$ 、 $\mathcal{L}_0 \sim \alpha/n$ であり、 $\sigma = 2\sqrt{\sqrt{n/2}/\alpha}$ となる。 α が大きい場合は、固有ノイズにようなエネルギー分解能は $\alpha^{-1/2}$ に比例してよくなることがわかる。例えば $\alpha \sim 1000$ では σ が 0.1 以下にもなる。実際は読み出し系ノイズ、熱浴の温度揺らぎ、これらとは別の原因不明な ノイズなどによりエネルギー分解能が制限されることがあり、一般的にはエネルギー分解能は (3.100) とは異なる 依存性を持つ。また、パルス波系がイベントごとにばらつく場合には、 S/N 比から計算されるエネルギー分解能 より実際のエネルギー分解能は劣化する。

3.6 吸収体と TES が有限の熱伝導度で繋がれている場合

吸収体と TES の間の熱伝導度が有限の場合を考える。この場合、TES と吸収体は fig. 3.7 のようなモデルで表 される。このような場合、吸収体で生じたエネルギーが TES に伝わるまでに有限の時間がかかり、それまでの時 間は TES と吸収体に温度差が生じる。また、TES と吸収体の熱伝導度 *G*₂ に伴い熱揺らぎによるノイズが発生 する。

3.6.1 温度変化を表す方程

この系での熱の流れを表す微分方程は、

$$\frac{d\Delta T_2}{dt} = -\frac{G_2}{C_2} (\Delta T_2 - \Delta T) \tag{3.102}$$



Fig. 3.7: TES と吸収体の間に有限の熱伝導度が存在する場合のモデル

$$\frac{d\Delta T_1}{dt} = -\frac{G_1}{C_1}\Delta T_1 + \frac{G_2}{C_2}(\Delta T_2 - \Delta T_1) - \frac{P_b\alpha}{C_1T_1}\Delta T_1$$
(3.103)

のようになる。ただし、 G_1 は TES と熱浴間の熱伝導度、 G_2 は TES と吸収体間の熱伝導度、 C_1 、 T_1 は TES の熱容量と温度を、 C_2 、 T_2 は吸収体の熱容量と温度を示す。ここで、(3.103)の最後の項は電熱フィードバックによるジュール発熱の変化を表す。これらのを変形すると、

$$\frac{d}{dt}(\Delta T_2 - \Delta T_1) = -(\frac{G_2}{C_2} + \frac{G_2}{C_1})(\Delta T_2 - \Delta T_1) + \frac{G_1}{C_1}(1 + \mathcal{L}_0)\Delta T$$
(3.104)

$$\frac{d}{dt}(\Delta T_1 + \frac{C_2}{C_1}\Delta T_2) = -\frac{G_1}{C_1}\Delta T_1$$
(3.105)

となる。ここで系全体の温度が変化する時間に比べて、 ΔT_2 は短い時間で ΔT_1 に一致すると仮定する。すなわち $G_2 \gg G_1(1 + \mathcal{L}_0)$ が成り立つとする。すると (3.103) の右辺第二項は無視することが出来る。

$$\frac{d}{dt}(\Delta T_2 - \Delta T_1) = -(\frac{G_2}{C_2} + \frac{G_2}{C_1})(\Delta T_2 - \Delta T_1)$$
(3.106)

となる。このは簡単に解くことができ、

$$\Delta T_2 - \Delta T_1 \propto \exp[-(\frac{G_2}{C_{\text{int}}})t]$$
(3.107)

となる。ここで、 C_{int} は、

$$\frac{1}{C_{\rm int}} = \frac{1}{C_1} + \frac{1}{C_1} \tag{3.108}$$

で定義した。したがって時定数 τ2 は

$$\tau_2 = \frac{C_{\text{int}}}{G_2} = \frac{CC_2}{(C+C_2)G_2} \tag{3.109}$$

となる。 au_2 経過後は $\Delta T_2
ightarrow \Delta T_1$ となるので、(3.105)より

$$(1 + \frac{C_2}{C_1})\frac{d}{dt}\Delta T_1 = -\frac{G_1}{C_1}(1 + \mathcal{L}_0)\Delta T_1$$
(3.110)

$$\frac{d}{dt}\Delta T_1 = -\frac{G_1}{C_1 + C_2} (1 + \mathcal{L})\Delta T_1$$
(3.111)

$$\Delta T_1 \propto \exp(-\frac{G_1}{C_1 + C_2}(1 + \mathcal{L}_0)t)$$
 (3.112)

と計算できる。したがって時定数 r1 は

$$\tau_1 = \frac{C_1 + C_2}{G} \frac{1}{1 + \mathcal{L}_0} \tag{3.113}$$

となる。以上より TES と吸収体の温度は時定数 $\tau_2 = C_{int}/G_2$ の後に一致し、その後は時定数 $\tau_1 = \frac{C+C_2}{G(1+\mathcal{L})}$ で定 常状態の温度に戻っていくことになる。この τ_1 はカロリメータの有効時定数に対応する。

3.6.2 X 線入射後の波形

X 線に吸収体が吸収された場合、TES で吸収された場合の温度変化をそれぞれ考える。温度変化は出力電流の 変化に対応するので、TES の出力波形を考えることに相当する。X 線が吸収体に入射すると、吸収体の温度は、 $\Delta T_2 = E/C_2$ だけ上昇する。その熱は、時定数 τ_2 で吸収体から TES に流入する。その後、時定数 τ_1 で TES 、 吸収体の温度は定常状態の温度に戻る。このことから、 TES の温度は、まず時定数 τ_2 の指数関数で立ち上がり、 時定数 τ_1 で定常状態に戻る。そこで、TES の温度は、

$$\Delta T_1 \propto \left(\exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\right) \tag{3.114}$$

となる。一方、X 線が TES に入射した場合、TES の温度がまず $\Delta T_1 = E/C_1$ だけ上昇する。その熱は、時定数 τ_2 で吸収体に移動し、TES と吸収体の温度が等しくなった後に時定数 τ_1 で両者の温度は定常状態の温度に戻る。 そこで、TES の温度はまず τ_2 で減衰し、吸収体と温度が等しくなった後に τ_1 で減衰すると考えられる。 TES の温度は、

$$\Delta T_2 \propto \left(\exp(-\frac{t}{\tau_1}) + \exp(-\frac{t}{\tau_2})\right) \tag{3.115}$$

となる。次に微分方程を数値的に解くと、 $C_2/C_1 = 4$ 、 $\tau_2/\tau_1 = 20$ とした時の、吸収体に X 線が入射した場合 (t = 0 で $\Delta T_1 = 0$ 、 $\Delta T_2 = E/C_2$)の TES の温度変化を fig. 3.8(左) に、TES に入射した場合(t = 0 で $\Delta T_1 = E/C_1$ 、 $\Delta T_2 = 0$)を fig. 3.8(右) に示す。この波形は上の考察と良くあっている。



Fig. 3.8: モデルから計算される TES の温度。横軸は時間。吸収体に X 線が入射した場合(左)と、TES に X 線が入射した場合(右)を示す。

3.6.3 周波数応答を用いた定化

次に TES の周波数応答を用いて、吸収体に X 線が入射した際の波形を考える。3.3.2 節では、TES への熱入 力は入射 X 線エネルギー E がデルタ関数的に入射するとして $P(t) = E\delta(t)$ とした。吸収体と TES の間に有限 の熱伝導度が存在する場合、熱入力は

$$P(t) = \frac{E}{\tau_2} \exp(-\frac{t}{\tau_2}) (t \ge 0)$$
(3.116)

だと考えればよい。ただし吸収体に X 線が入射した時刻を t = 0 とする。3.3.2 節と同様に計算を行うと、周波 数空間での熱入力 $P(\omega)$ は、

$$P(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \frac{E}{\tau_2} \exp(-\frac{t}{\tau_2}) e^{-i\omega t} dt = \frac{E}{2\pi} \frac{1}{1 + i\omega\tau_2}$$
(3.117)

となり、周波数空間での出力電流 $I(\omega)$ は、

$$I(\omega) = P(\omega)S_I(\omega) \tag{3.118}$$

$$= -\frac{E}{2\pi} \frac{1}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1} \frac{1}{1 + i\omega\tau_2} \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}}$$
(3.119)

と表される。これを逆フーリエ変換をして実空間に戻すと、

$$I(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega)e^{i\omega t}d\omega$$
(3.120)

$$= -\frac{E}{2\pi} \frac{1}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{1 + i\omega\tau_2} \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\text{eff}}} e^{i\omega t} d\omega$$
(3.121)

$$= \frac{E}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1} \frac{1}{\tau_{\text{eff}} - \tau_2} (\exp(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}}) - \exp(-\frac{t}{\tau_2}))$$
(3.122)

と表される。これは時刻t=0では最大値を取らず、

$$t_{\rm peak} = \ln \frac{\tau_{\rm eff}}{\tau_2} (\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_{\rm eff}})^{-1}$$
(3.123)

となる。 t_{peak} で最大値をとる。また、

$$\int V_b I(t)dt = -\frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1}E\tag{3.124}$$

となり、(eq. 3.55) と同様 $\mathcal{L}_0 \gg 1$ では X 線エネルギーに一致することがわかる。

3.7 吸収体 Fe の磁化により生じる磁場評価のための磁気シミュレーション

3.7.1 TES カロリメータのエネルギー分解能と磁場の関係

超伝導薄膜を温度計として用いる TES 型マイクロカロリメータは、薄膜面を垂直方向に貫く磁場の大きさが μ T (10 mG)のオーダーに対して感度を持つことがわかっている (Hijmering et al. 2012)。一般に超伝導体の超伝 導特性は磁場による影響を受ける。磁場による影響を受けると超伝導金属を用いる TES の温度計としての特性が 変化し、超伝導遷移温度が低下する。これと同時に、遷移端の抵抗と温度の相関関係が変化することで温度計感度 に相当する $\alpha = d \ln R / d \ln T$ が小さくなりエネルギー分解能が劣化することが予測される。また、TES の抵抗変化 の読み出し配線には超伝導金属を使用している。TES 型マイクロカロリメータの動作中は、超伝導配線がある抵抗値を持つので、超伝導-常伝導-超伝導となり、 SNS 構造の Josephson junction になっている。そのため TES に磁場が印加されると Josephson 電流が生じて雑音源になる。

fig. 3.9 に TES を極低温で動作させつつ、薄膜面に垂直方向、水平方向に磁場を印加した場合の、TES を流れ る電流の変化の例を示す。これは SPICA 衛星の SAFARI の TES ボロメータであるが、 TES としては我々と 同じ Ti/Au の二層薄膜を使用している。垂直方向に磁場が印加された場合は 10 mG の磁場を印加すると電流値 が 2% 変化するのに対して、水平方向に 20 mG 大きさの磁場が印加された場合の電流変化は 0.2% 以下であった (Hijmering et al. 2012)。ボロメータとしての応答特性の評価のため、TES の一定の電流値に対して変化分を評価 しているが、カロリメータの場合はパルス波形の入力信号がきた場合の影響について評価する必要がある。



Fig. 3.9: 外部から磁場を印加した場合の TES の電流応答の割合を示した図。左が TES に対して垂直に磁場を、 右が水平方向に磁場を印加した場合を示す。プロットマークの違いは TES の動作抵抗の違いを示す。ノーマル抵 抗に対して ($R_n = 103 \text{ m}\Omega$) に対して 9 ~ 57% まで動作点を変化させている。標準的な動作点は黒線である ($R = 0.3 R_n$)。(Hijmering et al. 2012)

我々の研究グループが開発してきた Ti/Au の二層薄膜を使用した TES カロリメータについても、これまでの 研究で磁場に対する応答が調査されてきた。Mn-Kα (5.9 keV)のX 線照射試験において、TES 電流のパルスハ イトの磁場依存性を fig. 3.10 に示す。 Ishisaki et al. (2008)の設計では異なる二つの TES カロリメータについ て、それぞれ外部磁場がパルスハイトに及ぼす影響を比較している。どちらの場合も 300 μ T で TES 出力信号は 半分以下になっている。磁場のパルスに及ぼす影響が小さい TES を用いて、磁場強度が 0 μ T、 200 μ T、 300 μ T の場合のエネルギースペクトルとエネルギー分解能を fig. 3.11 に示す。エネルギースペクトルから推定した エネルギー分解能はそれぞれプロットから、9.8 eV、12.5 eV、24.8 eV であった。 これは fig. 3.10 のパルスハ イトの減少分とコンシステントな結果である。このため、TES 型マイクロカロリメータの高エネルギー分解能を 達成させるには、理想的には磁場のないことが望ましく、我々の研究グループの TES で 10 eV 以下の分解能を 目指す場合は、垂直に貫く磁場を 100 μ T 以下にする必要がある。



Fig. 3.10: Mn-Kα (5.9 keV) の X 線パルスハイトの磁場依存性。二つのプロットは設計パラメータ (Ti /Au の厚 み、大きさなど)の違いを表す。(Ishisaki et al. 2008)



Fig. 3.11: TES マイクロカロリメータを用いた場合の Mn-K α (5.9 keV) のエネルギースペクトル。印加磁場の強度を左から 0 μ T、200 μ T、300 μ Tの場合を示す。赤線はデータ、青線はスペクトルの微細構造を示す。得られたエネルギー分解能は、9.8 eV、12.5 eV、24.8 eV であった。(Ishisaki et al. 2008)

3.7.2 吸収体 Fe の物性値について

TES 型 X 線マイクロカロリメータでは Au を X 線吸収体として用いるが、本研究で用いる Fe は磁化を持ち、 Au と比べ余分な自由度があるため、その自由度の分だけ比熱が大きいことになる。マイクロカロリメータのエネ ルギー分解能は熱容量 C の 1/2 乗に比例するので、比熱が大きすぎると 10 eV ほどの高いエネルギー分解能の 達成が難しくなってしまう。本節では、マイクロカロリメータの中でも重要な比熱と熱伝導度を文献値から調べ熱 容量を見積もり、10 eV のエネルギー分解能を得るために必要な吸収体の大きさを記載する。

Fe の比熱は、1 K から 10 K までの文献データが存在する (Brookhaven National Laboratory selected cryogenic data notebook 1980)。これを温度の多項式でフィットすると、

$$C_{\rm Fe} = 0.911 \times 10^{-4} (T/K) + 1.97 \times 10^{-7} (T/K)^3 J/(gK)$$
(3.125)

となり低温ではフォノンの寄与(T^3)は小さくなり、電子比熱(T)が大きく影響することが分かる。また Au の 比熱も 3 K から 15 K の実測値?が存在し、

$$C_{\rm Au} = 0.729(T/K) + 0.4504(T/K)^3 - 0.0048(T/K)^5 mJ/(molK)$$
(3.126)

という近似式が与えられている。これらの近似式を用いることで tab. 3.1 のように極低温での熱容量を見積もる ことが出来る。

Tab. 3.1: Au および H	Feの	100 mK	での物性値見積もり。
--------------------	-----	---------	------------

		Au	${\rm Fe}$
密度	g/cc	19.32	7.874
比熱 (100 mK)	J/(g K)	3.72×10^{-7}	9.11×10^{-6}
吸収体 厚み	$\mu { m m}$	1	5
吸収体 表面積	$\mu { m m}$	150×150	150×150
質量	g	4.35×10^{-7}	8.86×10^{-7}
熱容量	J/K	1.62×10^{-13}	8.07×10^{-12}

これまで製作してきた X 線マイクロカロリメータから、10 eV のエネルギー分解能を得るために必要な X 線吸収 体の熱容量は C \leq 8 pJ / K (100 mK) であることが分かっている。 Fe 吸収体の場合、体積が 150×150×5 μ m³ ~ 100 × 100 × 10 μ m³ を満たせばよい。

3.7.3 磁性体吸収体の磁場による TES への影響について

本研究では、アクシオンの吸収体として強磁性体である ⁵⁷Fe を使用する。強磁性体は磁化 M が磁場の強さ H に対してヒステリシスを持つため、外部磁場が印加していない状態でも磁場を発生する。従来の TES 型 X 線マ イクロカロリメータは、吸収体を TES の上に直接とりつける構造を取っている。しかし、この構造では強磁性体 を吸収体とした場合、TES が受ける磁場の量が大きくなり、 超伝導遷移特性に影響を及ぼす。そのため何らかの 方法で磁場の影響を抑える必要がある。磁気シールドを用いた磁場の遮蔽は、TES の上に吸収体を置く構造をと る限り不可能である。コイルを各カロリメータに取り付けて、TES 上の磁場を打ち消すよう方法も考えられるが、 最終的に多素子することを考慮すると磁場の制御が煩雑となるため難しい。そのため、先行研究では TES を貫く Fe 吸収体で生じる磁場の強度が低くなるまで物理的に離し、吸収体と TES を Au の熱を運ぶための構造(以下、 熱パスと呼ぶ)で接続する設計が考案された (Maehisa master's thesis 2018)。この方式であれば、必要に応じて Fe 吸収体付近に磁気シールドを配置することも可能となる。 この構造について、TES が Fe 吸収体の磁場の影 響を無視できるのに必要な吸収体 - TES 間の距離について磁気的なシミュレーションが行われ、30 μ m 離せば問 題ないという結果が得られている (fig. 3.12)。



Fig. 3.12: 吸収体を横置きにした TES カロリメータのピクセル構造模式図。長さはスケール通りではない。Left: 吸収体を TES の直上においた従来の TES カロリメータ。Right: 太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリ メータの設計案 (Maehisa master's thesis 2018)。下側から Si をエッチングすることで、メンブレン構造を形成し、 恣意的に熱伝導を悪くし、熱が熱浴に逃げていくよりも先に、吸収体 Fe から熱パスを通って TES まで、熱が伝 わるようにする。

3.8 横置き構造の最適化のための熱シミュレーション

太陽アクシオン探査用 TES カロリメータは、磁気的な問題だけでなく熱的な問題についても検討する必要があ る。TES の上に吸収体が直接設置される従来の構造であれば、吸収体で生じた熱は全て TES を通過して熱浴に 逃げていく。しかし、 TES と Fe 吸収体を離し、その間を熱パスで接続する場合、吸収体で発生した一部の熱は TES に伝達する前に熱パスから熱浴に逃げることが考えられる。熱浴から逃げる熱によって TES の検出する熱 の大きさが異なる場合、出力パルスの波形に影響を及ぼしエネルギー分解能を劣化させる可能性がある。我々の 研究室では、吸収体と TES を離して設置したカロリメータを製作した実績はなく、位置依存性の有無や、検出器 として動作が可能であるか分からない。そのため、現在のアクシオン探査用の TES カロリメータの構造について 熱シミュレーションを行い、TES カロリメータ構造の最適化と十分なエネルギー分解能を達成するための理想的 な各要素の物性値について最適化する必要がある。以下の内容は、Konno et al. (2019) と Konno master's thesis (2020) で行われた熱シミュレーションの結果である。

熱シミュレーションによって、太陽アクシオン探査用 TES カロリメータの構造の最適化、吸収体のアクシオン 入射位置依存性による TES のエネルギー分解能の影響を調べた。熱パスの厚みは厚くするほど熱伝導度は良くな るが、熱容量とのトレードオフから厚くしすぎると TES に伝わる熱が減少することが分かった。このトレードオ フを考慮し、熱パスの厚みの上限値を 5 µm とした。

熱パスの幅は、狭くするほど TES に伝達する熱を減少させパルスハイトを低くするため、ある程度まで幅を大 きくした方がよい。しかし、幅を大きくすると熱容量の増加と熱浴との接触面積が増える。今回は、吸収体と同 じ幅である 100 µm まで大きくすることにした。

熱パスの長さは熱容量を減らしつつ熱伝導度を向上させ、熱浴との接触面積を減らせるため、 TES のエネル ギー分解能を高める点からすると可能な限り短くした方が良い。しかし、磁気的な問題があるため、シミュレー ションだけでは確定することは出来ない。実験的に吸収体設置可能最短距離を検証して、その後に熱パスの長さ を決定する必要がある。

次に、アクシオン探査 TES カロリメータの達成できるエネルギー分解能を、シミュレーションから計算した。

吸収体への熱入射位置依存性は、1 つのノードに熱入力した時 TES が 10 eV のエネルギー分解能を持つと仮定し て、吸収体上で熱入力が分配された場合と比較すると、位置依存性による効果で 32 eV 程エネルギー分解能が劣 化することが分かった。半導体検出器のもつエネルギー分解能(~200 eV)に比べれば十分小さいが、TES のエ ネルギー分解能劣化するほど、マイクロカロリメータの利点を失ってしまうので、位置依存性によるエネルギー 分解能への影響を抑えるため、2 つのシミュレーションを行いカロリメータ構造の最適化を検討した。初めに熱 パスの幅を狭め、TES への熱流量を制限し TES に伝わる熱を均一にする方法を検討した。元の TES モデルで得 られたエネルギー分解能がより悪化してしまった。これは、熱パスの幅を狭めることで TES に伝達する熱が均一 化される効果を期待したが、熱浴へ逃げる熱が多くエネルギー分解能が劣化したと考えられる。

次に吸収体の熱伝導度の値を大きくし TES まで経路の熱拡散率を向上させることで、位置依存性によるエネル ギー分解能への影響を抑えることが出来ないか試みた。吸収体の熱伝導度を2倍にした場合、位置依存性による エネルギー分解能の劣化は 23.3 eV 、吸収体の熱伝導度を3倍にした場合には、エネルギー分解能の劣化は 16.8 eV にまで減少した。以上から熱入力位置依存性によるエネルギー分解能の劣化を抑えるためには、TES までの熱 伝導度を高くすることが重要であることが分かった。シミュレーションで使用した Fe の熱伝導率は、実験的に求 めた数値である。低温における熱伝導度は成膜手法に依存するので、 Fe 薄膜の成膜手法を検討する必要がある。

第4章 吸収体用Fe薄膜の残留抵抗測定

熱シミュレーションの結果、アクシオンの入射位置依存性によりエネルギー分解能が ~ 30 eV に劣化すること が分かった。これは入射位置から TES までの熱伝導率を高くすることで、エネルギー分解能の劣化を抑えること が出来る。そのため 10 eV 程度のエネルギー分解能を達成するためには、 Fe 吸収体の熱伝導率を向上させる必 要がある。熱シミュレーションでは、100 mK での熱伝導率 κ を 0.1 W/K/m として、シミュレーションを行った ため、少なくてもこれ以上の熱伝導率をもつ素子を製作したい。

このためには電気抵抗率 (比抵抗) の小さい Fe 薄膜形成が必要になる。低温における熱伝導率は成膜手法に依存し、自作膜では不定であるため、素子を作成し、測定する必要がある。本章では、極低温における Fe の熱伝導 率を推定するため、測定用の Fe 薄膜を製作し残留抵抗測定を行う。100 mK での熱伝導率 κ を 0.1 W/K/m 以上 を達成するためには、RRR (residual resistivity ratio、残留抵抗比) としては、3.74 以上をもつ素子の製作が必要 になる。

初めに極低温の熱伝導率の計算方法について述べ、Fe 薄膜の成膜方法および成膜条件を示したのち、冷却試験の結果から得られた残留抵抗比をまとめる。Fe 薄膜の成膜は、早稲田大学 本間研究室と共同で行い、Fe 成膜プロセスは、早稲田大学ナノ・ライフ創新研究機構 (Research Organization for Nano & Life Innovation) ナノテクノロジー研究センター (Nano Technology Research Center; NTRC) で行った。製作した素子は、宇宙科学研究所で冷却試験行い、残留抵抗比を求めた。

薄膜の厚みや抵抗値を用いた計算では、誤差を1σで揃えている。

4.1 残留抵抗比と熱伝導率

TES カロリメータの吸収体には優れた熱伝導率 κ (W/K) を持つものが好ましい。これは吸収体の熱拡散過程 がエネルギー分解能に影響を与えるためである。吸収体の熱容量を C (J/K) とした時、ある長さスケール x を熱 が拡散するのに必要な時間尺度は τ は

$$\tau = \frac{C}{\kappa}x\tag{4.1}$$

と見積もることが出来る。

熱伝導率が小さいと熱拡散に時間がかかり、吸収体から TES に熱が拡散しきらず、入射位置によってパルス波 形が変わってしまう。太陽アクシオン探査用の TES カロリメータは、吸収体と TES が離れた構造であるため熱 拡散の速度が遅いと位置依存性による影響が大きくなると考えられる。そのため、可能な限り極低温における熱 伝導率の高い Fe 吸収体を成膜する必要がある。

電気抵抗率は、抵抗値 Rと抵抗の長さ l、幅 w、厚み d、もしくは断面積 A を用いて次式で与えられる。

$$R = \rho \frac{l}{A} = \rho \frac{l}{wd} \ (\Omega) \tag{4.2}$$

$$\rho = R \frac{A}{l} = R \frac{wd}{l} \; (\Omega \; \mathrm{m}) \tag{4.3}$$

RRR (residual resistivity ratio、残留抵抗比) は、一般に室温 (300 K) とヘリウム温度 (4 K) での電気抵抗率 (比抵抗) ρ の比で表される。

$$RRR_{300K/4K} = \frac{\rho_{300K}}{\rho_{4K}}$$
(4.4)

温度が異なっていても、測定している物質の厚み d、長さ l、幅 w は変わらなければ、RRR は

$$\operatorname{RRR}_{300\mathrm{K}/4\mathrm{K}} = \frac{\rho_{300\mathrm{K}}}{\rho_{4\mathrm{K}}} = \frac{R_{300\mathrm{K}}\frac{wd}{l}}{R_{4\mathrm{K}}\frac{wd}{l}} = \frac{R_{300\mathrm{K}}}{R_{4\mathrm{K}}}$$
(4.5)

のように、抵抗値の比として計算することができ、物質のサイズに関係なく値を求めることができる。

ウィーデマンフランツ則 (Wiedemann-Franz law) によると、電気抵抗率 ρ と熱伝導率 κ には温度 T を用いて、次のような関係がある。

$$\kappa \rho = L_n T \tag{4.6}$$

ここで L_n はローレンツ数と呼ばれる定数

$$L_n = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e}\right)^2 = 2.44 \times 10^{-8} \text{ W}\Omega/\text{K}^2$$
(4.7)

である。金属の場合、熱伝導率 κ と電気伝導率 $\sigma = 1/\rho$ は自由電子の流れに起因することから、このような関係 が成り立つとされている。ただし、一部の金属では電子同士の相互作用が強いため、この関係を満たさない場合 がある。

この関係を使えば、室温とヘリウム温度での熱伝導率 κの比は、

$$\frac{\kappa_{4\rm K}}{\kappa_{300\rm K}} = \frac{L_n \times 4K/\rho_{4\rm K}}{L_n \times 300K/\rho_{300\rm K}} = \frac{\rho_{300\rm K}}{\rho_{4\rm K}} \frac{4\rm K}{300\rm K} = \rm RRR_{300\rm K/4\rm K} \frac{4\rm K}{300\rm K}$$
(4.8)

と表され、RRR から計算することができる。

測定した抵抗値 R の比を取ることで、eq. 4.3 に含まれる測定する物質の大きさ (w, l, d) の誤差の影響を考える 必要が無くなる。また、100 mK での熱伝導率 κ_{100mK} は、

$$\kappa_{100\rm{mK}} = \rm{RRR}_{300\rm{K}/100\rm{mK}} \frac{100\rm{mK}}{300\rm{K}} \times \kappa_{300\rm{K}}$$
(4.9)

と計算できることから、Fe 吸収体において、極低温状態で高い熱伝導を達成するためには、RRR の値と κ_{300K} の 値の積が大きい Fe 薄膜を形成する必要がある。すなわち、極低温で電気抵抗率 ρ_{100mK} が小さい Fe 薄膜を作れば よい。

RRRの測定では、薄膜の形状に関係無く計算ができるため、カロリメータ用のパターンである必要はない。そのため、測定の上で都合の良い形状を用いることができる。

測定した seed 層+Fe の抵抗値は、測定した seed 層の抵抗値と、未知の Fe の抵抗値の並列な合成抵抗であるから、測定した抵抗値 R_{seed} および R_{seed+Fe} を用いて Fe のみの抵抗値を次のように計算することができる。

$$\frac{1}{R_{\text{seed+Fe}}} = \frac{1}{R_{\text{seed}}} + \frac{1}{R_{\text{Fe}}}$$
(4.10)

$$R_{\rm Fe} = \frac{R_{\rm seed}R_{\rm seed+Fe}}{R_{\rm seed+Fe}}$$
(4.11)

よって、Fe の抵抗値の誤差は、2 つの抵抗値 (*R*_{seed}, *R*_{seed+Fe})の平均値の標準偏差が伝播することで求まる。ただし、この計算は、純粋な seed 層の概形と Fe パターン下の seed 層の概形が同じであることが前提であり、そうでない場合は補正が必要である。

Fe の抵抗値を求めたら、eq. 4.3 から Fe の電気抵抗率 $\rho_{\rm Fe}$ を計算する。

4.2 Fe吸収体薄膜の成膜方法

4.2.1 成膜方法

金属薄膜を製作するプロセスには、スパッタ法、真空蒸着法、電解析出法がある。本研究において Fe を成膜す るのに最適な手法を検討する。

電子ビーム蒸着法

蒸着法とは高真空のチャンバー内で、成膜したい試料を加熱し蒸発させ、その蒸着分子が基板に衝突し凝着す ることで薄膜を生成する方法である。試料を加熱させるための蒸発源は抵抗加熱式、高周波加熱式、電子加熱式 などがあり、宇宙研は電子ビーム加熱式の蒸着装置を有している。これは試料のみを加熱するため同じ蒸着法の 抵抗加熱式と比べて、高い温度の融点を持つ金属を蒸着する事が可能である。しかし 基板に大きな熱負荷が加え られるため、TES 型カロリメータ製作においては二層薄膜界面で合金化が起き、TES の超伝導遷移特性に影響を 及ぼす可能性がある。

スパッタ法

個体表面の原子に当たるイオンのエネルギーが閾値以上の場合に、試料の原子が飛び出す現象をスパッタリン グ現象と呼ぶ。この現象で飛び出てきた原子を基板に蓄積させることで薄膜を製作するのがスパッタ法である。他 の成膜方法と比べると基板と薄膜間の密着力に優れており、成膜速度が一定であるため膜厚制御に優れている。原 理的には膜厚を数 ~ 10⁻¹⁰ m で調整することが可能であるが、厚い金属膜の成膜には向いていない。一方で、プ ラズマの発生に使用するスパッタガスがスパッタ中に試料に取り込まれやすく、純粋な金属膜の生成は難しい。

電解析出 (電析)法

電解溶液中の金属イオンを還元し、作用極とした基板に対象の試料を析出させる成膜方法である。上記2つの 成膜方法とは異なり室温 · 大気圧で成膜することが可能で、50℃程度の溶液に浸けるだけなので、TES への熱に よる負荷は他の成膜方法に比べてほとんど無い。しかし、電解溶液中に導入する添加剤などが不純物として薄膜 中に取りこまれる場合がある。

4.2.2 吸収体 Fe の最適な成膜方法について

真空蒸着法 · スパッタ法では、膜厚のコントロールが比較的に容易く、密着性の高い金属膜が生成しやすい利点 がある。ただし、蒸着法は基板に長時間の熱負荷がかけられるため、TES の二層薄膜界面の原子の合金化を促す ことによる超伝導転移特性への影響が懸念される。また、アクシオン探査で TES に取り付ける ⁵⁷Fe は 70 万円/g と非常に高価である。蒸着、スパッタではチャンバー内に試料が散布し、基板全面に成膜が行われるため、要求 されるパターン面積外にも成膜され、莫大なコストがかかり、非効率的である。しかし、電析法であれば、溶液中 で不要箇所を保護することで、必要な被メッキ箇所だけに堆積可能であり、⁵⁷Fe を溶かした溶液を還元すること も可能である。これまでの経験から、電析で製作した薄膜はスパッタや蒸着で製作した薄膜と比べて、高い残留 抵抗比の薄膜を製作することができる。これらの点から、太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリメータに Fe 吸収体を成膜するには、電析法が適していると考えられる。本研究では、通常の電析より高い残留抵抗比の達 成が期待できるパルス電析法という成膜方法を用いる。

パルス電解析出 (電析)法

電解析出 (電析) 法は、成膜したい物質を含む電解溶液にアノードとカソードを浸して電圧をかけることで、陰 極付近で金属イオンが電子を受け取ることで起きる還元反応を利用した成膜法であり、一般的な電析法では、被 メッキ側に常に電流を流し続けることで薄膜形成を行う。しかし従来の方法では、メッキの析出過程で気泡として 水素が発生し、これが薄膜中へと入り込むことで膜厚制御や密着性の向上を阻害を引き起こす。また、水素発生 は電流効率を低下させ、Fe 薄膜の引張応力の増加および表面粗さの増加させる。Fe は水素を吸収しやすいため、 薄膜が脆くなり、水素脆化の恐れがある。 パルス電析法では常に電流を流さずに、電流を流す on-time と、電流を流さない off-time を交互に繰り返すこ とでメッキを成膜する方法であり、水素発生が抑制され、膜の平滑性と密着性の向上、応力低減の効果が期待でき る。電流を流さない off-time が短いほど均一で密着性の良好な薄膜を形成することができる。電析時には on-time 5 s に対し、off-time 100 ms 以下で薄膜が形成できることが確認できている。ms オーダーの off-time の差でも、 Fe の腐食具合に差異が生じる。パルス電析は水素発生を抑制するため、通常の電析よりも緻密で均一な膜を形成 しやすく薄膜の比抵抗を低減することが可能である。また、作用極表面における Fe イオンの拡散が促進されるた め、平滑かつ緻密な電析膜が形成できる。

電析法による電極反応

電析を行う際の電極のセットアップを tab. 4.11 に、電析浴を含めた電解セルを fig. 4.1 に示す。電析浴の各電 極での反応は以下の通りである。

·FeCl₂浴での電極反応

作用極 (Working Electrode; W.E.) [還元反応] = TES 基板での反応

金属析出:
$$Fe^{2+} + 2e^{-} \rightarrow Fe$$
 (4.12)

競合反応:
$$2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2 \uparrow$$
 (4.13)

$$Fe^{2+} \to Fe^{3+} + e^{-}$$
 (4.14)

$$2\mathrm{Cl}^- \to \mathrm{Cl}_2 \uparrow + 2\mathrm{e}^- \tag{4.15}$$

$$2\mathrm{H}_2\mathrm{O} \to \mathrm{O}_2 \uparrow + 4\mathrm{H}^+ + 4\mathrm{e}^- \tag{4.16}$$



Fig. 4.1: 電析浴のセットアップ (電解セル)。
4.3 残留抵抗測定

早稲田大学本間研究室と共同で、濃度や電析時間を変え、さまざまな電析条件でFe電析を行い、冷却試験により薄膜の特性評価を行ってきた。以下では、実際に製作した各素子の製作過程や抵抗値測定についてまとめてある。Fe69-72 は、電析浴に FeCl₂ を使用し、Fe 濃度は 1.00 M (モーラーと読み、mol/L を意味する。)のもとで電析を行った。Fe89 は電析浴に FeCl₂ を使用し、Fe 濃度を 1/20 まで下げ、少ない Fe の量で電析を行っている。Fe99 は電析浴に FeCl₂ を使用し、定電流パルス電析を行ったあとにアニールをして、密着度を上げている。Fe100 では、溶液に初めて Fe₂O₃ 粉末を使用して、電析を行った。溶液には、pH 緩衝剤として H₃BO₃ と、導電率を上げるために支持電解質として NH₄Cl を入れている。これらはめっきに影響しない。それぞれ膜厚がばらばらであるが、これは電析による膜厚制御が確立されていないためであり、同じ条件でも僅かな電流値のずれ等により、膜厚が変動してしまう。カロリメータ化する際の m く表となる Fe の厚みは 5 um であり、5 um にコントロールできるように電析の条件出しをおこなっていく。

電析できる条件の模索のため、まずは連続膜での電析を行い、成膜できることが確認できたら、マイクロパター ンの電析に移る。連続膜の電析では、電解集中が起こらないが、マイクロパターンの電析では被メッキ面積が小 さいために、電解集中が起こり安くなる。すでに連続膜での条件出しは完了しているため、以下紹介する試験素 子では、マイクロパターンの電析になる。

また、電析の制御方法として、電位制御と電流制御がある。条件の洗い出しでは、基本的に電位制御で行って から、成膜ができていることを確認した後、電流制御の条件出しを行う。FeCl₂ 浴では、電流制御まで進んでいる が、Fe₂O₃ 浴を用いた Fe100 は、電位制御による条件出しの段階である。今後、電流制御条件の洗い出しを行い、 アニールまでを行う予定である。

冷却中の基板の温度モニターには、酸化ルテニウム抵抗温度センサー RuOx (東陽テクニカ RX-102A-BR) を 使用している。このセンサーは 50mK-40K で標準温度カーブがある。また、放射線耐性に優れており、1K 以下 での磁場による影響が小さいという特長がある。LR-700 や AC レジスタンスブリッジ 370 型と 372 型 (AC370、 AC372) を共に用いて希釈冷凍機の極低温の温度モニターが行える。

早稲田大学の膜厚測定には、KLA-Tenchore 社製 触針式段差計 P-15 を使用し、宇宙研では、Veeco 社製 触針 式薄膜段差計 Dektak 6M を使用している。

4.3.1 早稲田大学による電析前プロセス

電析を行う前のフォトリソグラフィによる Fe パターン形成プロセスについてまとめる。

EB 蒸着装置(EBX-6D, ULVAC)を用いて、4 inch の熱酸化膜付き Si ウェハ上に Ti 層 10 nm 形成後、さら に Au 層を 100 nm 形成した。これらは Fe を電析をするための電極となる seed 層となる。この蒸着済みウェハに 保護レジストの TSMR-V90-27cp をスピンコータで塗布し、ホットプレート上にて 100 ℃で 2 min ベークして安 定化させた。

その後、Si ブレードによるダイシング(ダイシングソー; DAD321, Disco)で、ウェハ1枚につき 35 mm 角 基板を4枚ずつ切りだした。切りだした 35 mm 角基板は、それぞれアセトンによる超音波洗浄の後、IPA、純水 の順に用いて洗い、乾燥させた。35 mm 角 Au/Ti 基板に厚膜レジストの PSMR-LA900 をスピンコータで塗布 し、ホットプレート上にて 90 ℃で 3 min ベーク後、Thermo vac 内にて 120 ℃で 30 min 保持し安定化させた。 Thermo vac から取り出した後、室温にて放冷させた。

厚膜レジストを張った 35 mm 角基板に対し、フォトリソグラフィによるマイクロパターン形成を行った。露光時間は 50 s、現像は P7G に 7 min 30 s 浸漬した。現像後、純水で洗浄し乾燥させた。フォトリソグラフィを用いたパターン形成プロセスを fig. 4.2 に示す。また、fig. 4.3 にマイクロパターンを示す。ただし、実際の 35 mm 角の基板上には、このパターンが 3×3 個 (上段左から A, B, C、中段左から D, E, F、下段左から G, H, I と ID 付けする) 並んでいる。

抵抗測定は、fig. 4.4 にある二つの素子を一セットととして行う。左側が Fe 電析の電極として使用する seed 層 のみのパターン、右側が seed 層の上に Fe が電析されているパターンであり、この二つの抵抗値から、Fe の純粋 な抵抗値を計算することになる。電析により成膜した Fe パターンの測定箇所は、長さ *l* = 1000 um、幅 *w* = 100 um であり、Al 配線の bonding 位置によるサイズの誤差は無視できるとする。



Fig. 4.2: 早稲田大学によるフォトリソグラフィを用いたパターン形成プロセス。

1 mm × 1	00 μm
1.5 mm × 100 μm	100 μm × 100 μm
	2 mm × 100 μm

Fig. 4.3: Fe 電析を行う 1 ユニット分のマイクロパターン。ただし、実際の 35 mm 角の基板上には、このパター ンが 3×3 個並んでいる。



Fig. 4.4: RRR 測定用パターン。左側が seed 層のみのパターン、右側が seed 層の上に Fe が電析されているパターン。1 ユニット分のマイクロパターンの上下部に図のようなパターンができる。下の図は断面を見ている。

電析による Fe 薄膜の形成は、電気化学測定装置(ガルバノスタット/ポテンショスタット)(HZ-7000, 北斗電工)を用いて行った。

4.3.2 Fe69, Fe70, Fe71, Fe72

Fabrications

早稲田大学で行った Fe69, 70, 71, 72 の電析前処理を tab. 4.2 に、電流密度制御によるパルス電析条件を tab. 4.3 に示す。

電析前処理の O₂ アッシングは、Fe 電析を行う箇所の seed 層 Au の表面をきれいにするために行い、塩酸で洗 うことで Au 上に残っている僅かなレジストを完全に除去することができる。この際、O₂ アッシングで表面をき れいにしたことで、塩酸で溶けるようになる。塩酸洗浄により、パターン外の保護レジストもわずかに溶かして しまうが、~10 μm 程度のレジストが塗布されているため、影響は極めて小さい。

Au ストライクめっきは、Fe を電析する箇所の基板表面 (seed 層の Au) を粗くして、電析時の Fe 薄膜の密着性 を向上させるために行っている。しかしながら、Au ストライクめっきを行うと厚み 100 nm の Au に対して、80% 程度の Au がさらに積まれるため、Fe パターン下の seed 層の Au のみ厚くなり、eq. 4.11 で要求される仮定が崩 れてしまう。そのため、電気抵抗率や RRR 等の計算には、Au ストライクめっきの影響も考慮する必要がある。 ただし、80%程度の Au がさらに積まれたのは、ある素子で確認しただけであるため、今回製作したすべての素子 でそうであるとは言えない。そのため、Au ストライクめっきの影響も考慮した場合の計算値は、参考となる値で あり、おおよそ補正なしと補正ありの値の間に含まれるとする。

早稲田大学での電析プロセス後の宇宙研でのプロセス過程を tab. 4.4 に示す。まず Au/Ti の seed 層エッチン グ用の保護レジスト塗布 (パターニング) を行い、seed 層エッチングを行った。ダイシング用保護レジストを両面 に塗布し、35mm 角から、5mm 角にダイシングを行った。また、レジストの塗布時に使用するスピンコータのレ シピ番号 (#) と条件については、appx. A.1 に示す。

Tab. 4.2: 早稲田大学で行った Fe 電析前の Fe69, Fe70, Fe71, Fe72 基板の処理。

	時間
O2 アッシング	$3 \mathrm{m}$
塩酸洗浄	$1 \mathrm{~m}~ 30 \mathrm{~s}$
シアン溶液浸漬	$10 \mathrm{~s}$
Au ストライクめっき	20 s

Fe69, 70, 71, 72 の Fe 電析後の seed 層パターニング、seed 層の余分な部分の Au エッチング、Ti エッチングの ようすを fig. 4.5、fig. 4.6、fig. 4.7、fig. 4.8 に示す。

Fe69 の素子において、Fe 電析用の保護レジストが電析時の電界集中によって変質し、アセトン/IPA/純水の ウェット洗浄では、Fe パターンまわりのレジストが除去できていなかった。変質したレジストは、Fe 電析後に ウェット洗浄および O₂ アッシングを行うことで、除去できると思われるが、Fe が剥がれ落ちる可能性と手間の点 から、今回はレジスト除去に固執しなかった。RRR 測定時に大きく影響を及ぼしていることが無い限り、このレ ジストは残っていても問題ない。ただし、多くのレジストが残り、きれいな素子が少なくなると、測定できる素子 が少なくなってしまう。

Tab. 4.3: Fe69, 70, 71, 7	2のパルス電析条件。	
Fe69, Fe70, Fe71, Fe72	2のパルス電析条件	
Fe 濃度(FeCl ₂ 浴)	1.00 M	
H ₃ BO ₃ 濃度	$0.4\text{-}0.5~\mathrm{M}$	
NH ₄ Cl 濃度	1.9 M	
温度	50 °C	
	Fe69 -14	
電 法家庄 (ma∧ / ama2)	Fe70 -16	
电机雷度 (IIIA/CIII ⁻)	Fe71 -16	
	Fe72 -16	
on time - off time	$5~\mathrm{s}$ - $10~\mathrm{ms}$	
	Fe69~2 min	
い 人司	Fe70~3~min	
on time 合計	$Fe71 \ 3 \min$	
	$Fe72 \ 3 \min$	
$_{\rm pH}$	1.50	
撹拌	300 rpm	



Fig. 4.5: Fe69 の各プロセスごとの画像。上から順に電析後、Au etching 後、Ti etching 後の画像。Left: A。 Middle: E。 Right: I。

Tab. 4.4: Fe69, 70, 71, 72 の Fe 電析後の宇宙研でのプロセス過程。順に seed 層エッチング用の保護、seed 層エッチング、ダイシング用保護の過程である。

Resist coating to etch Au/Ti					
	Fe69	Fe70	Fe71	Fe72	
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6	
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6	
Baking	$100\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2m30s			
Leaving	17m16s	22m24s	32m58s	37m22s	
Exposure	10s	10s	10s	10s	
Developing/TMAH	15m00s	15m00s + 2m00s	15m00s+2m00s	15m00s	

Au/Ti etching (seed layers Au/Ti = 100/10 nm)

	Fe69	Fe70	Fe71	Fe72	
*Au etching/AURUM 302	8m00s	5m00s	5m00s	5m00s	
Acetone/IPA/Pure water	1m each	1m each	1m each	1m each	
**Ti etching/H2O2	$60~^\circ\!\!C$ / $5m00s$	$60~^{\circ}\mathrm{C}$ / $5\mathrm{m}00\mathrm{s}$	$60~\degree$ / $5m00s$	$60~^\circ C$ / $5m00 s$	

* Au etching rate: 25 nm/min

** Ti etching rate: 3 nm/min

Resist coating to dice							
	Fe69 Fe70 Fe71 Fe72						
Head side							
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6			
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6			
Baking	$100\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2m30s			
Tail side							
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6			
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6			
Baking	$100\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^{\circ}\!\!\mathrm{C}}\xspace$ / 2m30s	$100\ensuremath{^{\circ}\!\mathrm{C}}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^{\circ}\!\!\!C}$ / 2m30s			



Fig. 4.6: Fe70 の各プロセスごとの画像。上から順に電析後、Au etching 後、Ti etching 後の画像。Left: A。 Middle: E。 Right: I。



Fig. 4.7: Fe71 の各プロセスごとの画像。上から順に電析後、Au etching 後、Ti etching 後の画像。Left: A。 Middle: E。 Right: I。



Fig. 4.8: Fe72 の各プロセスごとの画像。上から順に電析後、Au etching 後、Ti etching 後の画像。Left: A。 Middle: E。 Right: I。

Fe の厚み

Fe69、Fe70、Fe71、Fe72 の Fe の厚みを fig. 4.9、fig. 4.10、fig. 4.11、fig. 4.12 に示す。Dektak を用いて、A, E, I の各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように測定した。Fe の厚みは μ m オーダーであるため、Dektak を用いることによる系統誤差は無視できる。Dektak の測定精度は nm オーダーであり、 um オーダー の Fe を測定する際にはほぼ系統誤差は無視できるはずである。測定された凹凸は実際のものと考え、細かい厚さむらを平均値と誤差で示す。

それぞれ A, E, I の 3 箇所の厚みの測定から平均値と誤差をまとめたものを tab. 4.5 に示す。これらの誤差は、 測定値のばらつき度合いを表す標準偏差であり、不偏分散のルートをとったものを 1σ で示した。



Fig. 4.9: Fe69 の Fe の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように測 定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。Left: A。 Middle: E。 Right: I。



Fig. 4.10: Fe70 の Fe の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように測 定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。Left: A。 Middle: E。 Right: I。



Fig. 4.11: Fe71 の Fe の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように測 定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。Left: A。 Middle: E。 Right: I。



Fig. 4.12: Fe72 の Fe の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように測定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。Left: A。 Middle:
E。 Right: I。

Tab. 4.5: Fe69, 70, 71, 72 の A_top, E_top, I_top の Fe の厚み。それぞれの chip で厚みの平均と測定値の標準偏 差を求めた。

	A_top (μ m)	$E_{-}top (\mu m)$	I_top (μm)	Mean (μm)
Fe69	0.578	0.611	0.497	0.562 ± 0.059
$\mathrm{Fe70}$	1.459	1.351	2.519	1.776 ± 0.645
Fe71	0.929	1.045	0.846	0.940 ± 0.100
Fe72	0.701	0.704	0.716	0.707 ± 0.008

冷凍機冷却中の温度と抵抗値および RRR の計算

希釈冷凍機を用いて冷却し、冷却開始時の室温と 3He 循環前のヘリウム温度で LR-700 を用いて抵抗値を測定 した。いずれの素子も四端子測定法により、読み出しを行っている。温度は測定 chip と同じ銅板上の RuOx の抵 抗値から変換して計測している。抵抗値の測定は各素子で 10 回記録し、その平均値と平均値の標準偏差を 1σ で 求めた。

Fe の電気抵抗率 ρ の誤差は、Fe の抵抗値 R_{Fe} の誤差と Fe69, 70,71,72 の厚み (tab. 4.5) $d = 0.562 \pm 0.059$ μ m、1.776 ± 0.645 μ m、0.940 ± 0.100 μ m、0.707 ± 0.008 μ m の測定値の標準偏差の伝播から求まる。電気抵 抗率の計算の誤差伝播では、Fe の厚み の測定値の標準偏差および、Fe のみの抵抗値の誤差を使用していること になる。Fe の電気抵抗率の誤差のうち、 Fe の抵抗値の誤差に比べ、Fe の厚みの誤差の方が大きく、寄与してい るのは Fe の厚みからくる誤差である。

各温度で測定した seed 層+Fe の抵抗値および seed 層の抵抗値と、測定値から計算した Fe の抵抗値および電気 抵抗率を tab. 4.6 に示す。ここでは、Au ストライクめっきによる Fe パターン下の seed 層の Au が、seed 層のみ の Au の厚みより厚く積まれている影響は無視している。

Au ストライクめっきにより、seed 層のみの Au に比べて、Fe の下の seed 層 Au が 180%厚く積まれていたとしたときの、Fe の電気抵抗率については、tab. 4.7 に示した。このとき、Fe の下にある seed 層の抵抗値を次のように補正している。

$$R_{\text{seed}}(\text{under Fe}) = \rho \frac{l}{w} \frac{1}{d \times 180\%} = R_{\text{seed}} \frac{1}{180\%}$$
 (4.17)

ただし、補正した Fe の下にある seed 層の抵抗値を R_{seed} (under Fe)、測定した seed 層の抵抗値を R_{seed} として いる。

Au ストライクめっきの影響を無視した場合の、室温付近とヘリウム温度付近での電気抵抗率 ρ の比をとった RRR と、そこから得られる熱伝導率 κ の比を tab. 4.8 に示す。Au ストライクめっきにより、Fe の下の seed 層 の Au が 180%厚く積まれているとしたときの RRR と熱伝導率 κ の比 tab. 4.9 に示す。 Tab. 4.6: 室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K) 付近での測定した seed 層と seed 層+Fe の抵抗値の平均値とその誤 差を 1 σ で評価した。また、これらの平均値から計算した Fe のみの抵抗値および電気抵抗率も示してある。ただ し、室温では RuOx の感度がないため、室温温度計での温度とする。電気抵抗率の計算では、Fe パターンの長さ 1000 um、幅 100 um、および Dektak の測定から求めた Fe69, 70,71,72 の厚み $d = 0.562 \pm 0.059 \ \mu m$ 、1.776 $\pm 0.645 \ \mu m$ 、0.940 $\pm 0.100 \ \mu m$ 、0.707 $\pm 0.008 \ \mu m$ (誤差は測定値の標準偏差)を用いた。温度と seed 層および seed 層+Fe の抵抗値の平均値の誤差は平均値の標準偏差を用いている。そのため、Fe のみの抵抗値の計算は測定した 2 種類の抵抗値から計算するので、誤差伝播により誤差が求まる。電気抵抗率の計算の誤差伝播では、Fe の厚みの測定値の標準偏差および、Fe のみの抵抗値の誤差を使用していることになる。Fe の電気抵抗率の誤差のうち、大きく寄与しているのは Fe の厚みからくる誤差である。

${ m Fe69-D_bottom}$				
Temperature	Seed layer	Seed layer $+$ Iron	Iron resistance	Iron electrical resistivity
(K)	resistance (Ω)	resistance (Ω)	(Ω)	$(\times 10^{-7}~\Omega~{\rm m})$
296 ± 3	$3.8131(8) \pm 0.0000(3)$	0.85917 ± 0.00001	$1.1090(6) \pm 0.0000(1)$	0.623 ± 0.065
4.1 ± 0.1	1.082920 ± 0.000002	0.212020 ± 0.000004	0.263636 ± 0.000007	0.148 ± 0.015

${ m Fe70-I_bottom}$				
Temperature	Seed layer	Seed layer + Iron	Iron resistance	Iron electrical resistivity
(K)	resistance (Ω)	resistance (Ω)	(Ω)	$(\times 10^{-7}~\Omega$ m)
296 ± 3	3.50613 ± 0.00002	0.71338 ± 0.00001	$0.89561(1) \pm 0.0000(1)$	1.59 ± 0.58
4.1 ± 0.1	0.98326 ± 0.00002	$0.15651(8)\pm 0.00000(3)$	$0.18615(0) \pm 0.00000(5)$	0.331 ± 0.120

$Fe71-B_{top}$				
Temperature	Seed layer	Seed layer $+$ Iron	Iron resistance	Iron electrical resistivity
(K)	resistance (Ω)	resistance (Ω)	(Ω)	$(\times 10^{-7}~\Omega~{\rm m})$
296 ± 3	3.7091 ± 0.0147	0.91481 ± 0.00002	1.2143 ± 0.0016	1.14 ± 0.12
4.1 ± 0.1	$1.0661(5) \pm 0.0000(2)$	0.21204 ± 0.00001	$0.26468(9) \pm 0.00000(1)$	0.249 ± 0.027

Fe72-G_top Temperature Seed layer Seed layer + Iron Iron resistance Iron electrical resistivity $(\times 10^{-7} \Omega m)$ (\mathbf{K}) resistance (Ω) resistance (Ω) (Ω) 3.6378 ± 0.0001 296 ± 3 0.85482 ± 0.00001 0.790 ± 0.009 1.1174 ± 0.0002 0.19800 ± 0.00001 0.24561 ± 0.00001 0.174 ± 0.002 4.1 ± 0.1 1.0215 ± 0.00001

Tab. 4.7: Au ストライクめっきにより、seed 層のみの Au に比べて、Fe の下の seed 層 Au が 180%厚く積まれて いたとしたときの、室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K) 付近での Fe の電気抵抗率とその誤差を 1σ で評価した。 Fe69-D_bottom

Temperature (K)	Iron electrical resistivity (×10 ⁻⁷ Ω m)
296 ± 3	0.812 ± 0.085
4.1 ± 0.1	0.184 ± 0.019
	Fe70-I_bottom
Temperature (K)	Iron electrical resistivity (×10 ⁻⁷ Ω m)
296 ± 3	2.00 ± 0.73
4.1 ± 0.1	0.390 ± 0.014
	Fe71-B_top
Temperature (K)	Iron electrical resistivity (×10 ⁻⁷ Ω m)
296 ± 3	1.55 ± 0.17
4.1 ± 0.1	0.310 ± 0.033
	Fe72-G_top
Temperature (K)	Iron electrical resistivity (×10 ⁻⁷ Ω m)
296 ± 3	1.05 ± 0.01
4.1 ± 0.1	0.215 ± 0.002

Tab. 4.8: RRR と熱伝導率 κ の比の値。それぞれ室温の値に対するヘリウム温度、極低温での値の比を計算して いる。RRR の誤差は各温度での抵抗値の測定誤差影響を受け、熱伝導率ではさらに温度の測定誤差の影響を受け ている。

${ m Fe69-D_bottom}$					
$RRR_{296K/4.1K}$	$4.207 \pm 0.000(1)$	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0583 ± 0.0015		
	Fe70-1	Loottom			
$RRR_{296K/4.1K}$	$4.811 \pm 0.000(1)$	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0666 ± 0.0018		
	Fe71	-B_top			
RRR _{296K/4.1K}	4.588 ± 0.006	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0635 ± 0.0017		
$\rm Fe72\text{-}G_{-}top$					
RRR _{296K/4.1K}	4.549 ± 0.001	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0630 ± 0.0017		

Tab. 4.9: Au ストライクめっきを考慮したときの RRR と熱伝導率 κ の比の値。室温の値に対するヘリウム温度 での値の比を計算している。RRR の誤差は各温度での抵抗値の測定誤差影響を受け、熱伝導率ではさらに温度の 測定誤差の影響を受けている。Au ストライクめっきにより、Fe の下の seed 層の Au が 180%厚く積まれていると する。

	Fe69-1	D_bottom	
$RRR_{296K/4.1K}$	$4.415 \pm 0.000(2)$	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0611 ± 0.0016
	Fe70-	I_bottom	
$RRR_{296K/4.1K}$	$5.131 \pm 0.000(2)$	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0710 ± 0.0019
	Fe7	1-B_top	
$RRR_{296K/4.1K}$	4.981 ± 0.028	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0690 ± 0.0019
	Fe7	2-G_top	
$RRR_{296K/4.1K}$	4.871 ± 0.001	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0675 ± 0.0018

4.3.3 Fe89

Fabrications

早稲田大学で行った Fe89 の電析前処理を tab. 4.10 に、定電流パルス電析条件を tab. 4.11 に示す。マスキン グテープを用いて基板-ジグ接触部のカバーをした状態で電析を行った (電界集中条件)。そのため、めっき面積が 小さくなり、わずかな電流の流れやすさ/流れにくさで膜厚が変わってきてしまう可能性が高くなる。また、電析 に用いる水溶液である電析浴中の Fe 濃度は、0.05 M であり、Fe69-72 で行っていた 1 M に比べ、濃度が 1/20 に なっている。太陽アクシオン探査に使用する 57Fe は高価であるため、濃度のより薄い溶液で電析ができるように なれば、効率的に素子製作を行うことができる。

電析前処理の O₂ アッシングは、Fe 電析を行う箇所の seed 層 Au の表面をきれいにするために行い、塩酸で洗 うことで Au 上に残っている僅かなレジストを完全に除去することができる。この際、O₂ アッシングで表面をき れいにしたことで、塩酸で溶けるようになる。塩酸洗浄により、パターン外の保護レジストもわずかに溶かして しまうが、~10 μm 程度のレジストが塗布されているため、影響は極めて小さい。

Fe89 のプロセスにおいても、Au ストライクめっきを行っているため、電気抵抗率や RRR 等の計算には、Au ストライクめっきの影響も考慮する必要がある。

早稲田大学での電析プロセス後の宇宙研でのプロセス過程を tab. 4.12 に示す。まず Au/Ti の seed 層エッチン グ用の保護レジスト塗布 (パターニング) を行い、seed 層エッチングを行った。ダイシング用保護レジストを両面 に塗布し、35mm 角から、5mm 角にダイシングを行った。

Tab. 4.10: 早稲田大学で行った Fe 電析前の Fe89 基板の処理。

	時間
O2 アッシング	$3 \mathrm{m}$
塩酸洗浄	$1 \mathrm{~m}~ 30 \mathrm{~s}$
シアン溶液浸漬	$10 \mathrm{~s}$
Au ストライクめっき	$20 \mathrm{~s}$

Tab. 4.11: Fe89 の定電流パルス電析条件。早稲田大学で測定した平均膜厚は 3.5 μm である。

Fe89 の定電流パル	~ス電析条件
Fe 濃度(FeCl ₂ 浴)	$0.05 \ \mathrm{M}$
H ₃ BO ₃ 濃度	$0.4 {\rm M}$
NH ₄ Cl 濃度	$1.9 {\rm M}$
温度	50 °C
面積	$6.39\times 10^6~\mu\mathrm{m}^2$
電流値(定電流)	-35 mA
on time - off time	$5~\mathrm{s}$ - $10~\mathrm{ms}$
on time 合計	$8~{\rm min}~00~{\rm s}$
pH(HCl aq で調整)	1.50
撹拌	$300 \mathrm{rpm}$

Fe89 の Fe 電析後の Fe パターン、seed 層パターニング、seed 層の余分な部分の Au エッチング、Ti エッチング のようすを fig. 4.13, fig. 4.14, fig. 4.15, fig. 4.16 に示す。

いずれの素子においても、Fe 電析用の保護レジストが電析時の電界集中によって変質し、アセトン/IPA/純水 のウェット洗浄では、Fe パターンまわりのレジストが除去できていない。変質したレジストは、Fe 電析後にウェッ Tab. 4.12: Fe89 の Fe 電析後の宇宙研でのプロセス過程。順に seed 層エッチング用の保護、seed 層エッチング、 ダイシング用保護の過程である。

•	
Resist coating to e	etch Au/Ti
	Fe89
HMDS	#0-6
Resisting/AZ ECI 3027	#0-6
Baking	$100\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 2m30s
Leaving	84m
Exposure	15s
Developing/TMAH	15m+5m+5m
Au/Ti etching (seed layers A	Au/Ti = 100/10 nm
	Fe89
*Au etching/AURUM 302	4m30s
Acetone/IPA/Pure water	1m each
**Ti etching/H2O2	$60~^\circ\!\!\mathrm{C}$ / $3\mathrm{m}20\mathrm{s}$
* Au etching rate: 25 nm/m	in
** Ti etching rate: 3 nm/mi	n
Resist coating	to dice
	Fe89
Head side	
HMDS	#0-6
Resisting/AZ ECI 3012 $$	#0-6
Baking	$100\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 2m30s
Tail side	
HMDS	#0-6

#0-6 100 °C / 2m30s

Resisting/AZ ECI 3012

Baking

ト洗浄および O₂ アッシングを行うことで、除去できると思われるが、Fe が剥がれ落ちる可能性と手間の点から、 今回はレジスト除去に固執しなかった。



Fig. 4.13: Fe89 の電析後の Fe の画像。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.

Fe の厚み

Fe89 の Fe の厚みを fig. 4.17 に示す。Dektak を用いて、各 chip (A から I まで) の中心右側にあるパターンの 細い部分を横切るように測定した。A から順に Fe の厚みは有効数字 3 桁で 4.11, 3.46, 3.89, 3.42, 3.67, 3.47, 3.42, 3.26, 3.52 um であった。これらの平均をとると厚みは 3.58±0.27 um となる。この誤差は、測定値のばらつき度 合いを表す標準偏差であり、不偏分散のルートをとったものである。

冷凍機冷却中の温度と抵抗値の変化および RRR の計算

冷凍機を冷却し始めてから最低温度に到達するまでの冷凍機および測定基板の温度と測定素子の抵抗値を fig. 4.18 に示す。冷凍機および測定基板の温度は Lake Shore AC370 で、測定素子の抵抗値は AC372 で測定した。RRR (residual resistivity ratio)の計算に必要な 300 K、4K および動作点付近の 100 mK での抵抗値の計算に使用した 範囲を black shade で示した。冷却時には Axion TES (TMU537) と Fe89 基板を別々の銅板で組み込んでおり、 ch9 は Axion TES chips 上の RuOx の温度、ch13 は Fe89 chips 上の RuOx の温度を示している。しかし、ch13 は測定できておらず、以下の計算で参考とする温度は ch13 の RuOx の温度を使用する。

冷却開始時の温度は 296 K (1 つ目の black shade) であり、3He 循環前に 4 K (2 つ目の black shade) に到達し、 循環後の最低到達温度は 95 mK (3 つ目の black shade) である。 それぞれ black shade の範囲は温度が安定して



Fig. 4.14: Fe89 のパターニング後の画像。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.15: Fe89 の Au エッチング後の画像。Au のエッチングには、エッチングレート 25 nm/min の AURUM302 を使用し、4 分のエッチングを行った。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.16: Fe89 の Ti エッチング後の画像。Ti のエッチングには、エッチングレート 3 nm/min の 60 度に温めた 過酸化水素水を使用し、3 分 20 秒のエッチングを行った。ただし、この時点では Fe パターン上のレジストは落と していない。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.17: Fe89 の Fe の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように 測定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.18: 冷凍機冷却中の Fe89 の温度と抵抗値の変化。top: 温度計 RuOx の温度。bottom: 素子の抵抗値。Fe89 が組み込まれており、ch5 が E_top_left の seed 層のみの素子、ch6 が R_top_right の seed 層と Fe が成膜されてい る素子である。RRR の計算のために使用した範囲を black shade で示した。左から順に室温付近、4K 付近、100 mK 付近での範囲である。

おり、この範囲で温度および抵抗値の平均をとり、計算に用いる。計算した値を tab. 4.14 に示す。温度の平均値の誤差は平均値の標準偏差である。

また、ch5 で測定された seed 層 (Ti/Au) のみの抵抗値 R_{seed} および、ch6 で測定された seed 層+Fe の抵抗値 $R_{\text{seed}+\text{Fe}}$ の誤差も平均値の標準偏差である。ch6 で測定した seed 層+Fe の抵抗値は、ch5 で測定した seed 層の抵抗値と、Fe の抵抗値の並列な合成抵抗であるから、ch5, 6 で測定した値を用いて Fe のみの抵抗値を計算すること ができる。

Fe の電気抵抗率 ρ の誤差は、Fe の抵抗値 R_{Fe} の誤差と Fe の厚み $d = 3.58 \pm 0.27$ um の測定値の標準偏差の伝播から求まる。Fe の抵抗値に比べ、Fe の厚みの誤差の方が大きく、電気抵抗率の誤差で大きく寄与するのは Fe の厚みの誤差になる。

計算から求まった Fe の抵抗値 R_{Fe} は、0.5753 ± 0.0003 Ω (at 287.56 ± 0.16 K)、0.123665 ± 0.000007 Ω (at 4.0971±0.0003 K)、0.110161±0.000003 Ω (at 96.03±0.05 mK) である。また、Fe の電気抵抗率 ρ_{Fe} は、(2.059±0.153)×10⁻⁷ Ω m (at 296±3 K)、(0.4427±0.0330)×10⁻⁷ Ω m (at 4.0971±0.0003 K)、(0.3944±0.0294)×10⁻⁷ Ω m (at 96.03±0.05 mK) である。

Tab. 4.13: 室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K)、動作点温度 (100 mK) 付近での測定した温度と、seed 層 (ch5) と seed 層+Fe (ch6) の抵抗値の fig. 4.18 の black shade の範囲での平均値。また、これらの平均値から計算した Fe のみの抵抗値および電気抵抗率も示してある。

Temperature	Seed layer	Seed layer + Iron	Iron resistance	Iron electrical resistivity
(K)	resistance (Ω)	resistance (Ω)	(Ω)	$(\times 10^{-7}~\Omega$ m)
296 ± 3	3.5361 ± 0.0009	0.4948 ± 0.0002	0.5753 ± 0.0003	2.059 ± 0.153
4.0971 ± 0.0003	1.148405 ± 0.000006	0.111643 ± 0.000006	0.123665 ± 0.000007	0.4427 ± 0.0330
0.09603 ± 0.00005	1.130104 ± 0.000002	0.100376 ± 0.000002	0.110161 ± 0.000003	0.3944 ± 0.0294

Tab. 4.14: Au ストライクめっきにより、seed 層のみの Au に比べて、Fe の下の seed 層 Au が 180%厚く積まれ ていたとしたときの、室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K)、動作点温度 (100 mK) 付近での測定した温度と、seed 層 (ch5) と seed 層+Fe (ch6) の抵抗値の fig. 4.18 の black shade の範囲での平均値。また、これらの平均値から 計算した Fe のみの抵抗値および電気抵抗率も示してある。電気抵抗率の計算では、Fe パターンの長さ 1000 um、 幅 100 um、および Dektak の測定から求めた厚み 3.58 ± 0.27 um (誤差は測定値の標準偏差) を用いた。温度と seed 層および seed 層+Fe の抵抗値の平均値の誤差は平均値の標準偏差を用いている。そのため、Fe のみの抵抗 値の計算は測定した 2 種類の抵抗値から計算するので、誤差伝播により誤差が求まる。電気抵抗率の計算の誤差 伝播では、Fe の厚みの測定値の標準偏差および、Fe のみの抵抗値の誤差を使用していることになる。Fe の電気抵 抗率の誤差のうち、大きく寄与しているのは Fe の厚みからくる誤差である。

Temperature (K)	Iron electrical resistivity (×10 ⁻⁷ Ω m)
296 ± 3	2.37 ± 0.18
4.0971 ± 0.0003	0.484 ± 0.036
0.09603 ± 0.00005	0.428 ± 0.032

Au ストライクめっきの影響を無視した場合の、室温付近とヘリウム温度付近もしくは動作点温度付近での電気 抵抗率 ρ の比をとった RRR と、そこから得られる熱伝導率 κ の比を tab. 4.15 に示す。Au ストライクめっきに より、Fe の下の seed 層の Au が 180%厚く積まれているとしたときの RRR と熱伝導率 κ の比 tab. 4.16 に示す。 Tab. 4.15: RRR と熱伝導率 κ の比の値。それぞれ 296 K での値に対する 4.1 K、96 mK での値の比を計算して いる。RRR の誤差は各温度での抵抗値の測定誤差影響を受け、熱伝導率ではさらに温度の測定誤差の影響を受け ている。

$RRR_{296K/4.1K}$	4.652 ± 0.002	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.06439 ± 0.00065
$RRR_{296K/96mK}$	5.222 ± 0.002	$\kappa_{ m 96mK}/\kappa_{ m 296K}$	0.001694 ± 0.000017

Tab. 4.16: Au ストライクめっきを考慮したときの RRR と熱伝導率 κ の比の値。それぞれ室温の値に対するヘリ ウム温度、極低温での値の比を計算している。RRR の誤差は各温度での抵抗値の測定誤差影響を受け、熱伝導率 ではさらに温度の測定誤差の影響を受けている。Au ストライクめっきにより、Fe の下の seed 層の Au が 180%厚 く積まれているとする。

$RRR_{296K/4.1K}$	4.887 ± 0.003	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.06765 ± 0.00069
$RRR_{296K/96mK}$	5.535 ± 0.003	$\kappa_{96\mathrm{mK}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.001796 ± 0.000018

4.3.4 Fe99, Fe100

Fabrications

早稲田大学で行った Fe99 の定電流パルス電析条件を tab. 4.18 に示す。Fe99 のみ、電析後に 150 ℃でアニーリング処理を行った。早稲田大学で測定した膜厚は、Fe99 が 2.5 μm であった。

Fe99 を含め、これまで電析試験を行ってきた素子では、⁵6Fe をはじめさまざまな同位体鉄を含む FeCl₂ 塩化鉄 (II) 粉末を使用していたが、実際のアクシオン探査用の⁵7Fe を含む Fe₂O₃ 酸化鉄 (III) 試薬での電析に向けた練 習として、Fe100 では、⁵6Fe だけを含む Fe₂O₃ 酸化鉄 (III) 試薬を用いて電析を行った。初めて Fe₂O₃ 浴を使用 した Fe100 では、FeCl₂ から切り替えたことで、Fe の膜厚制御を行うための電析条件の調整が一から行う必要が あるため、膜厚が制御ができず、目標の 5 μ m には届かず、薄い膜になっている。Fe100 の定電位パルス電析条件 を tab. 4.19 に示す。早稲田大学で測定した膜厚は、Fe99 が 2.5 μ m、Fe100 が 0.75 μ m であった。また、Fe99 と Fe100 の電析前処理を tab. 4.17 に示す。

Fe100 の製作にあたり、Fe₂O₃ を用いて Fe 濃度が約 0.05 M の電析浴を作成した。手順としては、約 10 mL の 塩酸に 0.2 g 程度ずつ Fe₂O₃ 粉末を溶かし、完全に溶解後、H₃BO₃ を 0.4 M、NH₄Cl を 1.9 M を加え、Fe 濃度 約 0.05 M の組成で 250 mL の水溶液にした (fig. 4.19)。 0.2 g を溶かすのに 6 時間程度かかるため、浴の製作に 3 日程度かかる。pH は NaOH を用いて 1.50 に調整したが、この pH の調整も難儀である。電析時の pH は 1.50 に制御している。FeCl₂ では、pH 調整を開始する段階で、pH が 3 程度の値をとっているため、HCl aq で pH を 下げる必要がある。一方、Fe₂O₃ は、pH 調整を開始する段階で、pH が \sim 0 程度であり、NaOH aq で pH を上げ る必要がる。Fe₂O₃ の pH が極端に低いのは、Fe₂O₃ が水に溶けないため、HCl aq を用いて溶かしているためで ある (FeCl₂ は水に溶ける)。

Au ストライクめっきをしなくても、Fe 薄膜が剥がれないことを確認できたため、Fe99 と Fe100 では Au スト ライクめっきを行っていない。このため、Fe パターン下の seed 層の Au を含め、基板上で seed 層の膜厚を同等 に保つことができ、Au ストライクめっきによる膜厚の補正を行う必要がなくなる。

早稲田大学での電析プロセス後の宇宙研でのプロセス過程を tab. 4.20 に示す。まず Au/Ti の seed 層エッチン グ用の保護レジスト塗布 (パターニング) を行い、seed 層エッチングを行った。ダイシング用保護レジストを両面 に塗布し、35mm 角から、5mm 角にダイシングを行った。

Tab. 4.17: 早稲田大学で行った Fe 電析前の Fe99, Fe100 基板の処理。シアン溶液浸漬と Au ストライクめっきは 行っていない。

	時間
O2 アッシング	$3 \mathrm{m}$
塩酸洗浄	$1 \mathrm{~m}~ 30 \mathrm{~s}$

Fe99 の Fe 電析後の seed 層パターニング、seed 層の余分な部分の Au エッチング、Ti エッチングのようすを fig. 4.20, fig. 4.21 に示す。fig. 4.22 に示す。同様に、Fe100 の Fe 電析後の seed 層パターニング、seed 層の余分な部分の Au エッチング、Ti エッチングのようすを fig. 4.23, fig. 4.24, fig. 4.25 に示す。

いずれの素子においても、Fe 電析用の保護レジストが電析時の電界集中によって変質し、アセトン/IPA/純水の ウェット洗浄では、Fe パターンまわりのレジストが除去できておらず、サイドエッチングにより、できる限り seed 層を除去できるように、長めにエッチングを行った。それでも完全に除去はできず、Fe パターンまわりには seed 層やレジストが残留している。変質したレジストは、Fe 電析後にウェット洗浄および O₂ アッシングを行うこと で、除去できると思われるが、Fe が剥がれ落ちる可能性と手間の点から、今回はレジスト除去に固執しなかった。

Tab. 4.18: Fe99 の定電流パルス電析条件。電 析後に 150 ℃でアニーリング処理を行った。 早稲田大学で測定した膜厚は 2.5 µm である。

	10: 2:0 pm eus
Fe99 の定電流パル	ス電析条件
Fe 濃度(FeCl ₂ 浴)	0.05 M
H ₃ BO ₃ 濃度	$0.4 {\rm M}$
NH ₄ Cl 濃度	$1.9 {\rm M}$
温度	50 °C
電流値(定電流)	-30 mA
印加電位	約 -1.0 V
on time - off time	$5~{\rm s}$ - $10~{\rm ms}$
on time 合計	$7~{\rm min}~30~{\rm s}$
pH(HCl aq で調整)	1.50
撹拌	$300 \mathrm{rpm}$
アニーリング処理	150 ℃ / 1 h

Tab. 4.19: Fe100 の定電位パルス電析条件。 電析後のアニーリング処理は行わっていない。 早稲田大学で測定した膜厚は 0.75 μm である。

Fe100 の定電位パルス	、電析条件
Fe 濃度(Fe ₂ O ₃ 浴)	0.1 M
H ₃ BO ₃ 濃度	$0.4 {\rm M}$
NH ₄ Cl 濃度	$2.0 \ \mathrm{M}$
温度	50 °C
印加電位(定電位)	-1.0 V
on time - off time	$5~\mathrm{s}$ - $10~\mathrm{ms}$
on time 合計	$8 \min$
pH(NaOH aq で調整)	1.50
撹拌	$300 \mathrm{rpm}$



Fig. 4.19: Fe₂O₃ 粉末を用いて作成した電析浴。

シンク用体設の過性でのる。		
Res	sist coating to etch Au/T	li
	Fe #99 w/ annealing	Fe #100 w/o annealing
HMDS	#0-6	#0-6
Resisting/AZ ECI 3027	#0-6	#0-6
Baking	100 °C / 2m30s	100 °C / 2m30s

15m50s

15s

15m00s

26m30s

15s

15m00s

Tab. 4.20: Fe99 と Fe100 の Fe 電析後の宇宙研でのプロセス過程。順に seed 層エッチング用の保護、seed 層エッチング、ダイシング用保護の過程である。

Au/Ti etching (seed layers $Au/Ti = 100/10$ h

	Fe #99 w/ annealing	Fe #100 w/o annealing
*Au etching/AURUM 302	4m30s + 2m00s	4m30s + 30s
Acetone/IPA/Pure water	1 min each	1 min each
**Ti etching/H2O2	$60~^{\circ}\mathrm{C}$ / $3\mathrm{m}40\mathrm{s}$	$60~\degree$ / $3m40s$
dia an an f		

* Au etching rate: 25 nm/min

Leaving Exposure

Developing/TMAH

** Ti etching rate: 3 nm/min

	Resist coating to dice	
	Fe #99 w/ annealing	Fe #100 w/o annealing
Head side		
HMDS	#0-6	#0-6
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6
Baking	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^{\circ}\!\mathrm{C}}\xspace$ / 2m30s
Tail side		
HMDS	#0-6	#0-6
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6
Baking	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2m30s	$100\ensuremath{^{\circ}\!\!\mathrm{C}}\xspace$ / 2m30s



Fig. 4.20: Fe99 のパターニング後の画像。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.21: Fe99 の Au エッチング後の画像。Au のエッチングには、エッチングレート 25 nm/min の AURUM302 を使用し、6 分 30 秒のエッチングを行った。電析時に変質した Fe パターン周りのレジスト下の Au seed をエッチ ングするため、長めに浸けた。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.22: Fe99 の Ti エッチング後の画像。Ti のエッチングには、エッチングレート 3 nm/min の 60 度に温めた 過酸化水素水を使用し、3 分 40 秒のエッチングを行った。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.23: Fe100 のパターニング後の画像。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.24: Fe100の Au エッチング後の画像。Au のエッチングには、エッチングレート 25 nm/min の AURUM302 を使用し、5分のエッチングを行った。電析時に変質した Fe パターン周りのレジスト下の Au seed をエッチング するため、長めに浸けた。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.



Fig. 4.25: Fe100 の Ti エッチング後の画像。Ti のエッチングには、エッチングレート 3 nm/min の 60 度に温め た過酸化水素水を使用し、3 分 40 秒のエッチングを行った。Top: A, B, C. Middle: D, E, F. Bottom: G, H, I.

seed 層の厚み

Fe99 と Fe100 の Au および Au+Ti の厚みを fig. 4.26, fig. 4.27 に示す。Dektak を用いて、対角線の各 chip (A, E, I) の中心左側にあるパターンの細い部分を横切るように測定した。測定した Fe99 と Fe100 の厚みはそれぞ れ、tab. 4.21, tab. 4.22 にまとめてある。Au etching の後に膜厚測定を行うと、Au の厚みが分かる。また、そ の後、Fe の保護レジストを除去し、Ti etching を行い、膜厚測定を行うと、Au+Ti の厚みが分かる。これらの誤 差は、不偏分散とする。よって、Au+Ti の厚みから、Au の厚みを差し引けば、Ti の厚みが求まる。ここで、Ti の厚みの誤差は、A, E, I それぞれでの差分値の分散ではなく、Au および Au+Ti の厚みの誤差の影響を加味でき るように、Au と Au+Ti の膜厚平均の誤差伝播から求めた。すなわち、Au, Au+Ti, Ti の厚みの誤差をそれぞれ $\sigma_{Au}, \sigma_{Au+Ti}, \sigma_{Ti}$ とすると、

$$\sigma_{\rm Au}^2 + \sigma_{\rm Au+Ti}^2 = \sigma_{\rm Ti}^2 \tag{4.18}$$

となる。

Dektak の測定では、+0.3 nm の系統誤差があることがわかっている。そのため、Au と Au+Ti の膜厚測定で は、系統誤差を加味する必要がある。ただし、Ti の膜厚については、Au と Au+Ti の厚みの差分をとっているた め、系統誤差は影響しなくなる。



Fig. 4.26: Fe99 の Au および Au+Ti の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を 横切るように測定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで厚みを計算している。Top: A, E, I (Au etching 後). Bottom: A, E, I (Au/Ti etching 後)。

Tab. 4.21: Fe99の seed 層 (Au/Ti)の厚み。Tiの厚みは、Au+Tiの厚みから、Auの厚みを差し引き求めた。

	А	Ε	Ι	$\mathrm{Mean} \pm \sigma + \sigma_{\mathrm{sys}}$
Au (nm)	99.6	97.2	92.9	$96.6{\pm}3.4{+}0.3$
Au+Ti (nm)	115.0	108.8	109.3	$111.0 \pm 3.4 + 0.3$
Ti (nm)	15.4	11.6	16.4	$14.5 {\pm} 4.8$

Fe の厚み

Fe99 と Fe100 の Fe の厚みを fig. 4.28, fig. 4.29 に示す。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように測定した。Fe99 の Fe の厚みは、A, D, E, G の順に 3.26, 2.88, 2.67, 2.47 μm であっ



Fig. 4.27: Fe100 の Au および Au+Ti の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分 を横切るように測定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。 Top: A, E, I (Au etching 後). Bottom: A, E, I (Au/Ti etching 後)。

Tab. 4.22: Fe100の seed 層 (Au/Ti)の厚み。Tiの厚みは、Au+Tiの厚みから、Auの厚みを差し引き求めた。

	А	Е	Ι	$\mathrm{Mean} \pm \sigma + \sigma_\mathrm{sys}$
Au (nm)	95.2	96.0	96.8	$96.0 {\pm} 0.8 {+} 0.3$
Au+Ti (nm)	115.1	109.2	109.6	$111.3 \pm 3.3 + 0.3$
Ti (nm)	19.9	13.2	12.8	15.3 ± 3.4

た。これらの平均をとると厚みは、 $2.82 \pm 0.34 \ \mu m$ となる。また、Fe100 の Fe の厚みは、B, C, F, H, I の順に 1.29, 1.06, 1.14, 1.14, 1.09 \ \mum であった。これらの平均をとると厚みは、 $1.14 \pm 0.09 \ \mu m$ となる。これらの誤差 は、測定値のばらつき度合いを表す標準偏差であり、不偏分散のルートをとったものである。早稲田大学の Fe 膜 厚測定では、Fe99、Fe100 それぞれ、 $2.5 \ \mu m$ 、 $0.75 \ \mu m$ である。Fe99 は誤差の範囲で一致しているが、Fe100 は 宇宙研では厚く測定されている。

また、Feの厚みは μm オーダーであるため、Dektak を用いることによる系統誤差は無視できる。

冷凍機冷却中の温度と抵抗値の変化および RRR の計算

冷凍機を冷却し始めてから最低温度に到達するまでの冷凍機および測定基板の温度と測定素子の抵抗値を fig. 4.30 に示す。冷凍機および測定基板の温度は Lake Shore AC370 で、測定素子の抵抗値は AC372 で測定した。RRR (residual resistivity ratio) の計算に必要な 300 K、4K および動作点付近の 100 mK での抵抗値の計算に使用した 範囲を black shade で示した。ただし、室温で温度計 RuOX は感度を持たないため、室内温度計で測定した 296 K を冷却開始時の温度とし、誤差は±3 K とする。また、ch9 が測定 chip と同じ銅板上の RuOx の温度を示して いる。

冷却開始時の温度は 296±3 K (1 つ目の black shade) であり、3He 循環前に 4 K (2 つ目の black shade) に到達 し、循環後の最低到達温度は 103 mK (3 つ目の black shade) である。 それぞれ black shade の範囲は温度が安定 しており、この範囲で温度および抵抗値の平均をとり、計算に用いる。計算した値を tab. 4.23 に示す。温度の平 均値の誤差は平均値の標準偏差である。ただし、ch4 は AC372 の不具合によりデータ取得回数が他の ch に比べて 少なく、測定誤差が大きくなっている。Fe99、Fe100 は Au ストライクめっきをしていないため、seed 層の Au の 厚みに補正を加える必要がない。



Fig. 4.28: Fe99 の Fe の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように 測定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。Top: A, D, E. Bottom: G。



Fig. 4.29: Fe100 の Fe の厚み。Dektak を用いて、各 chip の中心右側にあるパターンの細い部分を横切るように 測定した。測定点が赤で、黒い部分の平均値を取り、差し引くことで Fe の厚みを計算している。Top: B, C, F. Bottom: H, I。



Fig. 4.30: 冷凍機冷却中の Fe99 と Fe100 の温度と抵抗値の変化。top: 温度計 RuOx の温度。bottom: 素子の抵抗値。Fe99 と Fe100 が組み込まれており、Fe99 の A_top の seed 層と seed 層+Fe の素子がそれぞれ ch1, 2、Fe99 の E_top の seed 層と seed 層+Fe の素子がそれぞれ ch3, 4、Fe100 の A_top の seed 層と seed 層+Fe の素子がそれ ぞれ ch5, 6 の抵抗値を測定している。ただし、ch3 は冷却中に Al 配線不良が起こり、4 K および 100 mK での抵抗値が測定できていない。RRR の計算のために使用した範囲を black shade で示した。左から順に室温付近、4K 付近、100 mK 付近での範囲である。

また、奇数 ch で測定された seed 層 (Ti/Au) のみの抵抗値 R_{seed} および、偶数 ch で測定された seed 層+Fe の 抵抗値 $R_{\text{seed+Fe}}$ の誤差も平均値の標準偏差である。偶数 ch で測定した seed 層+Fe の抵抗値は、奇数 ch で測定し た seed 層の抵抗値と、Fe の抵抗値の並列な合成抵抗であるから、測定した抵抗値 R_{seed} および $R_{\text{seed+Fe}}$ を用い て Fe のみの抵抗値を計算することができる。

Fe の電気抵抗率 ρ の誤差は、Fe の抵抗値 R_{Fe} の誤差と Fe99 と Fe100 の厚み $d = 2.82 \pm 0.34$ um と $d = 1.14 \pm 0.09$ um の測定値の標準偏差の伝播から求まる。Fe の抵抗値に比べ、Fe の厚みの誤差の方が大きく、電気抵抗率の誤 差で大きく寄与するのは Fe の厚みの誤差になる。

室温付近とヘリウム温度付近もしくは動作点温度付近での電気抵抗率 ρ の比をとった RRR と、そこから得られる熱伝導率 κ の比を tab. 4.24 に示す。

Tab. 4.23: 室温 (300 K)、ヘリウム温度 (4 K)、動作点温度 (100 mK) 付近での測定した温度と、seed 層と seed 層+Fe の抵抗値の fig. 4.30 の black shade の範囲での平均値。また、これらの平均値から計算した Fe のみの抵抗値および電気抵抗率も示してある。ただし、室温では RuOx の感度がないため、室温温度計での温度とする。電気抵抗率の計算では、Fe パターンの長さ 1000 um、幅 100 um、および Dektak の測定から求めた Fe99 と Fe100 の 厚み $d = 2.82 \pm 0.34$ um $2 d = 1.14 \pm 0.09$ um (誤差は測定値の標準偏差)を用いた。温度と seed 層および seed 層+Fe の抵抗値の可設置は平均値の標準偏差を用いている。そのため、Fe のみの抵抗値の計算は測定した 2 種類の抵抗値から計算するので、誤差伝播により誤差が求まる。電気抵抗率の計算の誤差伝播では、Fe の厚み の測定値の標準偏差および、Fe のみの抵抗値の誤差を使用していることになる。Fe の電気抵抗率の誤差のうち、大きく寄与しているのは Fe の厚みからくる誤差である。ただし、Fe99-E_bottom については、冷却中に配線不良 が起こったため、seed 層の抵抗値は室温でのみ測定されている。この室温での Fe99-E_bottom の seed 層の抵抗値 は、同じ基板中にある Fe99-A_top 2 - 2.07%のずれしかないため、seed 層のみの抵抗値については基板内で同程 度とみなし、Fe99-E_bottom の Fe の抵抗値および電気抵抗率の計算には、Fe99-A_top で測定した seed 層のみの 抵抗値を使用した。このときに生じる -2.07% の系統誤差を統計誤差とは別に誤差第二項として表示した。

		Fe99-A_top		
Temperature	Seed layer	Seed layer $+$ Iron	Iron resistance	Iron electrical resistivity
(K)	resistance (Ω)	resistance (Ω)	(Ω)	$(\times 10^{-7}~\Omega~{\rm m})$
296 ± 3	3.9171 ± 0.0002	0.95708 ± 0.00005	1.26654 ± 0.00009	3.57 ± 0.43
4.1139 ± 0.0002	1.225190 ± 0.000006	0.314994 ± 0.000006	0.42400 ± 0.00001	1.20 ± 0.14
0.10354 ± 0.00007	1.21839 ± 0.00001	0.30639 ± 0.00001	0.40933 ± 0.00002	1.15 ± 0.14

$Fe99-E_bottom$				
Temperature	Seed layer	Seed layer $+$ Iron	Iron resistance	Iron electrical resistivity
(K)	resistance (Ω)	resistance (Ω)	(Ω)	$(\times 10^{-7}~\Omega~{\rm m})$
296 ± 3	3.8376 ± 0.0001	1.13647 ± 0.00004	1.61462 ± 0.00009	4.55 ± 0.54
4.1139 ± 0.0002	-	0.227 ± 0.015	$0.279 \pm 0.023 + 0.001$	$0.787 \pm 0.114 + 0.000(4)$
0.10354 ± 0.00007	-	0.159 ± 0.041	$0.183 \pm 0.057 + 0.002$	$0.516 \pm 0.173 + 0.000(7)$

tıvıty
-
Tab. 4.24: R

RR と熱伝導率 κ の比の値]RRR と熱伝導率 κ の比の値]RRR と熱伝導率 κ の比の値。それぞれ室温の値に対する ヘリウム温度、極低温での値の比を計算している。RRR の誤差は各温度での抵抗値の測定誤差影響を受け、熱伝 導率ではさらに温度の測定誤差の影響を受けている。Fe99-E_bottomの計算では、ヘリウム温度、極低温で Fe99-E_bottom の seed 層の抵抗値の代わりに、同じ基板中にある Fe99-A_top の抵抗値を使用したため、このと きに生じる系統誤差を誤差第二項として表示してある。

		$Fe99-A_top$	
$RRR_{296K/4.1K}$	2.987 ± 0.0002	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0415 ± 0.0004
$\rm RRR_{296K/104mK}$	3.0942 ± 0.0003	$\kappa_{104\mathrm{mK}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.00108 ± 0.00001
		$Fe99-E_bottom$	
$RRR_{296K/4.1K}$	$5.79 \pm 0.47 - 0.03$	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	$0.0805 \pm 0.0066 - 0.0004$
$\mathrm{RRR}_{\mathrm{296K}/\mathrm{104mK}}$	$8.82 \pm 2.77 - 0.12$	$\kappa_{104\mathrm{mK}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	$0.00308 \pm 0.00097 - 0.00004$
		$Fe100-I_bottom$	
$RRR_{296K/4.1K}$	2.2723 ± 0.0002	$\kappa_{4.1\mathrm{K}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.0316 ± 0.0003
$\rm RRR_{296K/104mK}$	2.28213 ± 0.0005	$\kappa_{104\mathrm{mK}}/\kappa_{296\mathrm{K}}$	0.000798 ± 0.000008

4.3.5 考察

電析条件や膜厚をさまざまに変えながら電析を行ってきた。ここまでに説明した Fe69-72、Fe89、Fe99、Fe100 の Fe 膜厚と RRR の関係を fig. 4.31 に、Fe 膜厚と電気抵抗率 ρ の関係を fig. 4.32 に示す。RRR は室温とヘリウ ム温度での電気抵抗率の比の値を示している。 ρ は室温での値を示している。Fe69-72 は Fe 濃度 (FeCl₂) が 1.00M の電析浴を使用し、Fe89 と Fe99 は Fe 濃度 (Fe₂) が 0.05M の電析浴を使用している。ただし、Fe99 は電析後にア ニールを行っている。Fe69-72, Fe89 は Au ストライクめっきを行っているため、この影響を補正した場合の RRR の値も表示している。Au ストライクめっきにより 80%程度の Au がさらに積まれたのは、ある素子で確認しただ けであるため、計算値は、参考となる値であり、実際の値は補正なしと補正ありの値の間には含まれると考える ことにする。また、Fe100 は Fe 濃度 (Fe₂O₃) が 1.00M の電析浴を使用している。

Fig. 4.31 をみると、Fe69-72 は、Au ストライクめっきの影響の補正の有無に関わらず、Fe の膜厚が大きくなるにつれて、RRR が向上しているようにみえる。ただし、Fe69 のみ電析の on time 合計時間と電流密度の条件が 異なる (tab. 4.3)。それ以外については、電析時間と電流密度は同じであるが、RRR にばらつきがある。膜厚が 大きくなると RRR が変わるというのは、なにかの見かけの効果である可能性があるが、いまのところ分かってい ない。

また、室温とヘリウム温度の両方で、厚みが大きいほど、電気抵抗率 ρ (tab. 4.8, tab. 4.9) は大きな値になっ ている。電気抵抗率は物性値であるから、厚みによって値が変化するのは不自然である。Fe の厚みが大きくなる と密度が小さくなり、電気抵抗率が大きくなっている可能性が考えられる。



Fig. 4.31: Fe の厚みと RRR の関係。RRR は室温とヘリウム温度での電気抵抗率の比の値を示している。Fe69-72 は Fe 濃度 (FeCl₂) が 1.00M の電析浴を使用し、Fe89 と Fe99 は Fe 濃度 (Fe₂) が 0.05M の電析浴を使用している。 ただし、Fe99 は電析後にアニールを行っている。Fe69-72, Fe89 は Au ストライクめっきを行っているため、この 影響を補正した場合の RRR の値も表示している。また、Fe100 は Fe 濃度 (Fe₂O₃) が 1.00M の電析浴を使用して いる。Fe 膜厚の誤差は、厚みの測定値の標準偏差の 1 σ であり、RRR の誤差は、測定した抵抗値の平均値の標準 偏差から伝播した 1 σ の誤差である。

電析浴 (FeCl₂ 浴) の Fe 濃度の違い

Fe69-72 は、電析浴の Fe 濃度 (FeCl₂ 浴) が 1.00 M (mol/L) であったが、Fe89, 99 では、0.05 M まで濃度を下 げて電析を行った。電析浴の Fe のうち、一部が電析により基板上に析出される。そのため、同程度の厚みの電析 を行う場合、濃度の低い溶液を使用した方が、Fe を無駄に使用せず、効率的に電析を行うことができる。今回の



Fig. 4.32: Fe の厚みと室温での電気抵抗率 ρ の関係。Fe69-72 は Fe 濃度 (FeCl₂) が 1.00M の電析浴を使用し、 Fe89 と Fe99 は Fe 濃度 (Fe₂) が 0.05M の電析浴を使用している。ただし、Fe99 は電析後にアニールを行ってい る。Fe69-72, Fe89 は Au ストライクめっきを行っているため、この影響を補正した場合の RRR の値も表示して いる。また、Fe100 は Fe 濃度 (Fe₂O₃) が 1.00M の電析浴を使用している。Fe 膜厚の誤差は、厚みの測定値の標 準偏差の 1 σ であり、 ρ の誤差は、測定した抵抗値の平均値の標準偏差と Fe 膜厚の誤差から伝播した 1 σ の誤差で ある。

RRR 測定用の素子では、自然界で最も存在量が多い同位体鉄 ⁵6Fe を用いて電析を行ったが、実際の太陽アクシ オン探査に使用する ⁵7Fe は、70 万円/g 程度と非常に高価であるため、電析浴の Fe 濃度を下げて電析を行うこと ができるかは重要なポイントになる。

Au ストライクめっきの影響を考慮した場合、Fe 濃度が 1.00 M の Fe69-72 の RRR_{296K/4.1K} は 4.4-5.1 程度であ り、Fe 濃度が 0.05 M の Fe89 は 4.9 程度であり、濃度の薄い電析浴でも RRR としては同等の電析ができている ことがわかる。ただし、Fe 濃度が 1.00 M の電析では、膜厚と RRR は線形のような関係があるため、Fe89 と同 等の膜厚では、RRR がさらに高いことが予想される。そのため、同じ Fe 膜厚では、濃度の高い電析浴を用いた 方が、RRR の高い素子を製作できると考えられる。

電析浴に Fe₂O₃ 粉末を用いた電析

Fe100 以外では、⁵⁶Fe をはじめさまざまな同位体鉄を含む FeCl₂ 塩化鉄 (II) 粉末を使用していたが、実際のア クシオン探査用の ⁵⁷Fe を含む Fe₂O₃ 酸化鉄 (III) 試薬での電析に向けた練習として、Fe100 では、⁵⁶Fe だけを含 む Fe₂O₃ 酸化鉄 (III) 試薬を用いて電析を行った。FeCl₂ 浴の電析結果より、電析浴の Fe 濃度は低くても十分な 電析ができることがわかったので、Fe₂O₃ 浴を用いた電析でも Fe 濃度 0.1 M と低い濃度での製作をしている。

Tab. 4.31 をみると、Fe100 の RRR~2.3 は、同程度の厚みをもつ Fe69-72 の RRR~4.4-5.1 程度に比べると、大きく下回った値になっている。電析は電流を流して、還元反応により析出させているため、Fe の価数が異なる 2 価の FeCl₂ 浴と 3 価の Fe₂O₃ 浴では、析出の化学反応機構が異なる。Fe₂O₃ 浴では、FeCl₂ 浴に比べ、結晶性が悪くなるため、電気抵抗率 ρ が大きくなり (fig. 4.32)、RRR が低くなっていると考えられる。

今後の課題として、この Fe₂O₃ 浴を用いた電析でも、RRR~5 程度を目指す必要がある。膜厚の制御とともに、 電析を高い pH で行ったり、添加剤を変えるなど水溶液の条件を変更することで、RRR を向上させることを考え ている。

Fe パターン周りのレジストの固着

多数の素子の Fe パターン周りにおいて、Fe 電析用の保護レジストが電析時の電界集中によって結晶構造が変わ り変質し、アセトン/IPA/純水のウェット洗浄では、レジストが除去できていない。変質したレジストは、Fe 電析 後に O₂ アッシングもしくは CO₂ を用いた方法により、除去できると思われるが、Fe が剥がれ落ちる可能性と手 間の点から、今回は行っていない。

アニールを行うことで、Feと seed 層の密着度が上がり、O₂ アッシングを行っても剥がれにくくなるものの、 アッシングにより、Fe が酸化されると腐食応力が働くようになり、取れやすくなる可能性がある。アニールをし ていても、強い応力がかかってしまうと剥がれ落ちる可能性が十分にある。

今後の課題として、電析中に Fe パターン周りにどの程度の熱がかかっているか温度センサーを用いて温度モニ タリングすることで確認する。また、Fe パターンのレジストは TMER-LA900 を用いて 11um 程度の厚みになる ように塗布しているが、レジストを AZP シリーズに変えて電析してみることで同様の固着が起こるか確認する。

第5章 吸収体横置きのカロリメータ試験素子の性能 評価

前章では、Fe 薄膜の熱伝導度を高めるため、Fe 成膜について、さまざまな電析条件により RRR 評価用素子を 製作、極低温における熱伝導度の推定を行った。本章では、ここまでで得られた磁気シミュレーション、熱シミュ レーションの結果および、RRR の測定結果をもとに、実際に吸収体 Fe と TES を横置きにした新構造のカロリ メータの試験素子製作を行った。これまで吸収体に磁性をもつ物質を用いて、横置きの構造の素子を製作した前 例がないため、実際の素子を製作し、シミュレーションの結果と比較しながら、さらなる構造の最適化を目指す 必要がある。Fe と TES が近づくことで、TES の分光性能がどの程度劣化するのかや、吸収体 Fe で X 線を検出 し、カロリメータとして機能し得るかを検証し、吸収体 Fe と TES 間の設置可能最短距離を実験的に確立するの が目的である。

まず、太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリメータの製作プロセスについて述べ、次に TES の転移特 性評価と X 線源を用いた照射試験の結果についてまとめる。

5.1 太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリメータの製作プロセス

これまでに得られた熱/磁気シミュレーションにより最適化した構造をもとに吸収体 Fe と TES の横置きのカロ リメータの試験素子を製作した。この試験素子は、さらなる構造の最適化が目的であり、一つの 35mm 角の基板 上に、10mm 角の A と B の全く同じ 2 つのパターン配列ができ、A と B それぞれに吸収体 Fe と TES の距離を 0, 20, 60, 100, 200, 300, 500 µm 離した素子があり、線源照射しカロリメータとして機能させ、取得パルスの形 状から、Fe の持つ磁化の影響を許容できる距離を確定することができる。吸収体 Fe と TES の横置き構造をもつ カロリメータの製作プロセスフローを fig. 5.1 に示す。まずフォトリソグラフィを行うための、アライメントマー クと裏面のメンブレン領域のパターニングを行う。その後、超伝導薄膜となる Ti と Au をスパッタ法により成膜、 Al 配線をスパッタ法により成膜、吸収体と TES をつなぐ熱パスとなる Au を蒸着法により成膜、吸収体 Fe の電 析時に電極となる seed 層 (Ti/Au)の成膜、吸収体 Fe の電析法による成膜を行う。最後に裏面の Si をドライエッ チングで削ることで、メンブレン構造を形成する。実際の素子のようすを fig. 5.2 に示す。こうして製作される吸 収体 Fe と TES の横置き構造をもつカロリメータの模式図を fig. 5.3 に示す。また、それぞれのマイクロパターン の成膜方法とそのメリット/デメリットを tab. 5.1 に示す。

5.1.1 使用ウェハ

素子製作は両面に SiO₂ / SiN_x = 0.5 / 1.0 μ m の膜付きの厚さ 300 μ m の4 inch Si ウェハーを使用した。カ ロリメータ素子は最終的に熱浴(Si 基板)と弱い熱伝導度で繋がるような構造を形成する。この構造は製作の最 終段階で裏面から素子周辺の Si をドライエッチングで削り、窒化膜上に素子が形成されている構造にすることで 達成される。酸化膜は Si をドライエッチングで削る際のストッパーとして Si と窒化膜の間に成膜してある。ド ライエッチングを過剰に行ったとしても、酸化膜はエッチングレートが低いため、貫通することはない。窒化膜 は、低圧下において気相での化学反応による薄膜成長法、LPCVD(Low Pressure Chemical Vapor Deposition) によって成膜されている。このプロセスによる窒化膜の成長では、700 ~ 800 °C の温度でジクロロシランとアン



Fig. 5.1: 吸収体 Fe と TES の横置き構造をもつカロリメータの製作プロセスフロー。

	電子ビーム蒸着法	スパッタ法	電解析出法
成膜方法	高真空チャンバー内で 試料を加熱して 蒸発させ凝着させる	イオン化した 不活性Arガスを印加した 電圧により試料表面に衝 突させ、叩き出した粒子 を堆積させる	溶液中の金属イオンが 電極で電子を受けとり 析出する還元反応を 利用する
メリット	・膜厚が制御しやすい ・密着性が高い	・膜厚が制御しやすい ・密着性が高い	 ・被メッキ部分にのみ 成膜可能 ・高い熱伝導率 ・熱負荷が小さい
デメリット	・チャンバー全体に散布 ・長時間の熱負荷 ・低い熱伝導率	・チャンバー全体に散布 ・低い熱伝導率 ・nmレベルの成膜	 ・膜厚が制御が難しい ・添加剤等の不純物が 混ざる
使用プロセス	✦ Au熱パス ✦ seed層	✦ TES ✦ AI 配線	◆ 吸収体Fe

Tab. 5.1: 各っっっっっs マイクロパターンの成膜方法とそのメリットとデメリット。



Fig. 5.2: 吸収体 Fe と TES の横置き構造をもつカロリメータの製作のようす。



Fig. 5.3: 吸収体 Fe と TES の横置き構造をもつカロリメータの模式図。

モニアによる以下の反応が一般的に用いられ、膜の均一性が良い事が利点として挙げられる。化学反応式は以下の(??)式の通りである。

$$3\mathrm{SiCl}_2\mathrm{H}_2 + 4\mathrm{NH}_3 \to \mathrm{Si}_3\mathrm{N}_4 + 6\mathrm{HCl} + 6\mathrm{H}_2 \tag{5.1}$$

プロセス中のウェハの洗浄はアセトン、IPA、純水の順に浸けて行っている。超音波洗浄機を用いることで、 超音波の物理的洗浄作用と洗浄液の化学的溶解作用により、洗浄効果を高めることができるが、TES 成膜後は migration による Ti/Au 二層薄膜界面の合金化を懸念し、超音波洗浄は行わない。合金化が進んでしまうと TES の転移特性に影響を与え、再現性のある素子製作が困難になる。

5.1.2 アライメントマーク形成

以降のプロセスでのマスクの位置合わせのために、4 inch ウェハーの両面にアライメントマークを形成する。ア ライメントマークは十字のマークで (fig. 5.4)、両面のプロセスを進めるために必要であり、それ以外にも素子を チップ化した後に向きを定義するための "JAXA" マーク、形成する熱パスの長さの記載、そして 35 mm 角基板 にダイシングするためのガイド線も同時に形成する。また、表面と裏面のアライメントマークは、表裏のずれを無 くすため、数 μ m 以内で一致させる必要があるので、アライメントマークの位置は両面露光アライナー装置 (fig. 5.6)の表裏のカメラを見ながら、アライメント位置の調整を行った。アライメントマークはフォトリソグラフィ による保護レジストパターンと、RIE(Reactive Ion Etching) によるドライエッチングプロセスで形成される。今 回の製作では住友精密工業製の ICP (Inductively Coupled Plasma、誘導結合プラズマ)-RIE 装置 (fig. 5.5)を使 用して、窒化膜の除去を行った。窒化膜のみの除去のため、アライメントマークの深さは 0.5 μ m 程度であるが、 このアライメントはメンブレンパターンと TES パターンのみに必要であり (以降のアライメントマークはプロセ スを行うたびに重ね書きされていくため)、TES の厚みは ~ 100 nm 程度であることからレジストパターニング の際に、アライメントマークが見えないということはない。





Fig. 5.4: アライメントマーク。この十字のマークが基板上の上下左右に配置されている。これ以降のプロセスで マスクパターンの位置の決定は、このマークを目印に行う。マスク上の四方にもある十字のアライメントマーク を基板のマークと重ねるようにして、位置合わせをすることで、上下左右のずれと回転角のずれを低減すること ができる。Right: アライメントマークに TES のマスクパターンを重ねたもの。



Fig. 5.5: ICP (Inductively Coupled Plasma、誘導結合プラズマ)-RIE (Reactive Ion Etching) 装置。ドライエッ チングに使用する。



Fig. 5.6: 両面露光アライナー装置。

5.1.3 メンブレン構造のパターン形成

メンブレン構造のパターン形成は、エッチングガスによるドライエッチングと、エッチング溶液によるウェット エッチングで行う。まず、裏面の SiN_x を ICP (Inductively Coupled Plasma、誘導結合プラズマ)-RIE (Reactive Ion Etching) 装置を用いてドライエッチングし、SiO₂ をバッファードフッ酸を用いてウェットエッチングで除去 する。

TES 形成後に窒化膜と酸化膜の除去を行うと、熱やフッ酸処理によって TES の超伝導特性に影響を与える恐れがあるため、Ti / Au 成膜前にあらかじめ窒化膜と酸化膜のエッチングプロセスを行う。

TES や吸収体の成膜を終えた後、最終的には同じく ICP-RIE 装置を用いて、裏面から Si をドライエッチング することで、メンブレン構造を形成する。

5.1.4 超伝導薄膜 TES の成膜プロセス

TES となる Ti と Au の二層薄膜構造を首都大の DC マグネトロンスパッタリング装置 (fig. 5.7) を用いて成 膜する。圧力が 10⁻⁸ Pa の高真空チャンバー内で Si 基板とターゲットを対向させ、Ar ガス中でターゲットに負 の高電圧を印加してグロー放電を発生させる。その際、一部の Ar ガスが正イオンとなり、負の電位のターゲット に衝突し原子を叩き出す。スパッタ法では、この叩き出された原子を基板上に堆積させることで薄膜にする。

しかし、DC スパッタでは成膜した金属がスパッタガスと反応することや、成膜の際に薄膜中に閉じ込められ、 また試料も高温のプラズマにさらされ損傷を受ける可能性があるという欠点がある。対してマグネトロンスパッ タは、ターゲット裏にセットされた磁石の磁場により、プラズマをターゲット付近に遮蔽する事が可能となる。こ れにより試料付近にプラズマが発生せず、基板と成膜した金属へのダメージを軽減している。TES の超伝導転移 温度は超伝導金属と常伝導金属の間で生じる近接効果を利用して制御しているため、二層薄膜間は密に接してい る事が望ましい。そこで、まず 他物質との密着性が良い Ti をスパッタし、Ti のゲッター効果によりチャンバー 内をきれいにする。その後 同一のチャンバー内で Au のスパッタを行う。Ti スパッタ後から基板を搬送し、Au スパッタの開始にかかる時間は 2 ~ 3 分程度である。Ti と Au の密着性を上げるため、できるだけ速やかに搬送 する必要がある。

TES のスパッタ成膜のプロセスを tab. 5.2 に示す。3 枚の試験素子を製作し、それぞれ TMU536, 537, 538 と ID 付けしてある。スパッタ装置の膜厚の再現性と、厚みによる転移温度の違いを見るために、TMU536 と TMU537 は、Ti/Au=40/90 nm の膜厚に、TMU538 は 40/100 nm の膜厚を目標に成膜を行った。 TES のパターニングプロセスを tab. 5.3 に示す。TES の加工は薬品を用いたウェットエッチングで行う。Au と Ti のエッチャントには、それぞれ AURUM302 と湯煎して 60 ℃にした過酸化水素水 H₂O₂ を使用した。超伝 導金属である Ti が Au に覆われていない箇所が存在すると、二層薄膜構造が形成できず薄膜内の超伝導転移温度 が均一にならないことが考えられる。薄膜の端側で中央部分より転移温度が高くなっている場合、電気的な超過 ノイズが大きくなる。薄膜内での超伝導遷移温度を一様にするため、Ti のエッチング時間を 3 時間と長めに設定 し、サイドエッチングを十分に行うことで下層の Ti より上層の Au が張り出しているオーバーハング構造を形成 する。スパッタ成膜後に、Ti / Au をエッチングし、180 μm 角 TES を形成した画像を fig. 5.8 に示す。本製作で 使用しているマスクパターンは、Fe 吸収体の設置距離を変えるため、素子毎に製作する熱パスの長さが異なって おり、基板上に表示されている長さは、Fe 成膜後の Fe と TES の距離を表している。



Fig. 5.7: 都立大スパッタリング装置。TES となる Ti/Au の成膜を行う。

5.1.5 Al 配線の成膜プロセス

TES から基板上をはしる Al 配線は、スパッタにより成膜し、エッチングすることで形成する。Al は 1.2K で超 伝導になるため、カロリメータの動作温度では抵抗値を持たなくなり、発熱しなくなるため、配線の材料として 適切である。





Fig. 5.8: Left: スパッタ成膜後の TES パターニング。中央黄色の箇所がレジストで TES のパターンを形成してい る。周りの白い部分は成膜した Au が見えており、この状態でエッチングを行うことで、レジスト塗布箇所以外の Au や Ti が除去できる。Right: Ti / Au をエッチングし、180 μm 角の TES を形成した画像。正方形の部分が、 レジストで保護した箇所であり、この部分のみに Au/Ti の TES が残っている。

Tab. 5.2: TES (Ti/Au) 成膜のスパッタ条件。都立大の DC マグネトロンスパッタリング装置を使用した。

	TMU536	TMU537	TMU538
Ti/Au	40 / 00 pm	40 / 90 pm	40 / 100 nm
target thickness	40 / 90 mm	40 / 90 mm	40 / 100 mm
	Time: 5 m	Time: 3 m	Time: 3 m
Pre-sputtering	Ar gas: 11.7 sccm/0.145 Pa	Ar gas: 11.7 sccm/0.145 Pa	Ar gas: 11.7 sccm/0.151 Pa
	Applied voltage: 300 W/402 V	Applied voltage: 300 W/399 V	Applied voltage: $300 \text{ W}/398 \text{ V}$
Ti sputtering	Pressure: 0.148 Pa	Pressure: 0.148 Pa	Pressure: 0.151 Pa
(Rate:	Time: 40 s	Time: 40 s	Time: 40 s
59.5 nm/min)	Applied voltage: 388 V	Applied voltage: 387 V	Applied voltage: 387 V
Carrying	00	00	00
from Ti to Au zone	90 S	90 S	90 S
	Time: 1 m	Time: 1m	Time: 1m
Pre-sputtering	Ar gas: 11.7 sccm/0.150 Pa	Ar gas: 11.7 sccm/0.145 Pa	Ar gas: 11.7 sccm/0.151 Pa
	Applied voltage: $150 \text{ W}/517 \text{ V}$	Applied voltage: $150 \text{ W}/517 \text{ V}$	Applied voltage: $150 \text{ W}/517 \text{ V}$
Au sputtering	Pressure: 0.149 Pa	Pressure: 0.150 Pa	Pressure: 0.150 Pa
(Rate:	Time: 31 s	Time: 31 s	Time: 35 s
167.4 nm/min)	Applied voltage: 498 V	Applied voltage: 498 V	Applied voltage: 498 V

TES sputtering (at TMU)

110

TES patterning (mask: TES)				
	TMU536	TMU537	TMU538	
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6	#0-6	
Baking	$100\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 2 m 30 s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2 m 30 s	100 °C / 2 m 30 s	
Leaving	$90~\mathrm{m}~30~\mathrm{s}$	$48~\mathrm{m}~32~\mathrm{s}$	$77~\mathrm{m}~13~\mathrm{s}$	
Exposure	$7 \mathrm{s}$	$7 \mathrm{s}$	$7 \mathrm{s}$	
Developing/TMAH	$20~\mathrm{m}$ + $10~\mathrm{m}$	$30 \mathrm{m}$	$30 \mathrm{m}$	
Au etching/AURUM302	$4~\mathrm{m}~30~\mathrm{s}$	$4~\mathrm{m}~30~\mathrm{s}$	$5~\mathrm{m}~00~\mathrm{s}$	
Acetone/IPA/Pure water	1 m each	1 m each	1 m each	
Ti etching (including side-etch) /H2O2	$60\ensuremath{^\circ C}$ / 180 m	$60\ensuremath{^\circ C}$ / 180 m	$60\ensuremath{^\circ C}$ / 180 m	

Tab. 5.3: TES 形成パターニング。

Al 配線は TES の両端に接続するため、TES 中央部はレジストで保護する (fig. 5.10, bottom-right)。プロセス を tab. 5.4 に示す。

次に、RF (radio frequency) マグネトロンスパッタリング装置 (CANON ANELVA 社製 L-210-FH (fig. 5.11)) によって Al を基板全体に成膜する。プロセスを (tab. 5.5) に示す。Al の成膜前には逆スパッタを行い、保護レジ ストが塗布されていない部分 (Al 配線が乗る部分) の TES の Au を取り除いている。逆スパッタを行わずに Au の上から Al 配線を成膜した場合、TES の遷移特性が変化することが我々のグループの過去の研究から分かって いる Hayashi master's thesis (2015)。これは Al / Au / Ti が超伝導 / 常伝導 / 超伝導の構造になっていること が原因であり、本プロセスではこの現象を防ぐために、成膜前に逆スパッタで Al 配線を形成する箇所の Au を全 て削った。逆スパッタレートは、印加電圧 50 W の時、1.0 nm /sec である。逆スパッタでは熱負荷による TES への影響やレジスト発泡現象および変質が考えられる。そのため、逆スパッタで印加する電圧は最大 50 W、一回 に逆スパッタを行う時間は最大 30 秒とし、インターバルを3 分間あけた。

印加電圧として 13.56 MHz の高周波電源を用いる RF (Radio Frequency) スパッタでは、プラズマ中のイオン は重いため電圧の時間変化に不感となっており、電子のみが運動を制限される。このためターゲット表面が正電位 のときは電子が引き寄せられるものの、負電位に転じてもイオンは動けず、電子ばかりが集まることでターゲット は平均的に負電位になる。RF スパッタでは安定した高プラズマ出力を得られるため、早い成膜レートを実現する ことができ、宇宙研の装置では 1 分間のスパッタで 115 nm の Al が堆積される。Al 成膜後、配線レジストパター ンを塗布し、レジスト現像液の TMAH で現像を行う。Al は現像液でエッチングされるので、レジスト現像後に Al 配線パターンが形成される (fig. ??, bottom-left))。その後、TES の保護レジスト除去を行う必要があるが、 Al スパッタの熱負荷によってレジストが変質してしまい、アセトン洗浄では除去することが難しくなる。そこで、 ICP-RIE 装置による O₂ アッシングを行い、灰化させることでレジストを除去している (fig. ??, bottom-right)。

Tab. 5.4:	Al 成膜時の	TES 保護パタ	ィーニング。	Al 成膜時に、	TES 剖	『分を保護す	るためにレジス	トを塗布する。
		TES	protecting	patterning (r	nask: C	OV VER2)		

1	01 0	(/
	TMU536	TMU537	TMU538
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6	#0-6
Baking	$100~{\rm °C}$ / 2 m 30 s	$100\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 2 m 30 s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2 m 30 s
Leaving	${\sim}28~{\rm m}$	$55 \mathrm{m}$	$85 \mathrm{m}$
Exposure	10 s	$10 \mathrm{\ s}$	10 s
Developing/TMAH	$15 \mathrm{m}$	$15 \mathrm{m}$	19 m



Fig. 5.9: RF マグネトロンスパッタリング装置 (CANON ANELVA 社製 L-210-FH)。

Tab. 5.5: Al 配線の成膜。RF アルミスパッタ装置を用いて、115 nm 厚程度の Al 配線を形成した。Al 成膜時の スパッタにより、TES の保護レジストが変質し、アセトン洗浄では除去できなくなるため、ICP-RIE 装置を用い て、O₂ アッシングを行った。

	0, 1	0.	/
	TMU536	TMU537	TMU538
Bias sputtering	$30{+}30{+}30$ s	$30{+}30{+}20{+}20$ s	30 + 30 + 20 + 20 s
Al sputtering	60 g	60 g	60 g
(Rate: 115 nm/m)	00 8	00 \$	00 8
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6	#0-6
Baking	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 2 m 30 s	100 °C / 2 m 30 s	$100~{\rm °C}$ / 2 m 30 s
Leaving	$36 \mathrm{~m}~51 \mathrm{s}$	$17~\mathrm{m}~44~\mathrm{s}$	$37~\mathrm{m}~49~\mathrm{s}$
Exposure	$10 \mathrm{~s}$	10 s	10 s
Developing	$13 \mathrm{~m}~51 \mathrm{~s}$	10 m 45 s + 22 s	$9~\mathrm{m}~21~\mathrm{s}$
Acetone/IPA/Pure water	1 m each	1 m each	1 m each
	Time: 5 m	Time: 5 m	Time: 5 m
1st O2 ashing	He leak: 5.536 Pa/min	He leak: 5.269 Pa/min	He leak: 4.802 Pa/min
	Chiller temp.: 10 $^{\circ}\mathrm{C}$	Chiller temp.: 10 $^{\circ}\mathrm{C}$	Chiller temp.: 10 $^{\circ}\mathrm{C}$
	Time: 5 m	Time: 5 m	
2nd O2 ashing	He leak: 3.068 Pa/min	He leak: 4.268 Pa/min	-
	Chiller temp.: 10 $^{\circ}$ C	Chiller temp.: 10 ℃	







Fig. 5.10: Top: Al 成膜前の TES 中央部の保護パターン。レジストで覆われていない TES の両端にある表面の Au を逆スパッタにより剥がし、むき出しの Ti に直接接合するように、Al 配線が乗る。Bottom-left: Al 配線を成 膜し、エッチングし、アセトン洗浄した後。アセトン洗浄だけでは、TES 上の熱変質した保護レジストが完全に は除去できていないことが分かる。Bottom-right: TES 上の保護レジストを O₂ アッシングにより、完全に除去し た後の画像。

5.1.6 Au 熱パスの成膜プロセス

横置きにする Fe 吸収体と TES を熱的に接続するための Au の熱パスを、蒸着法を用いて形成する。Au 熱パス のパターン形成では、通常のレジストとは異なるイメージリバーサルレジストを使用する。イメージリバーサル レジストは、通常のレジストと異なり、紫外線露光箇所がエッチングされないようになり、Au パスが成膜される 部分のみがエッチングされ、穴が空くような形になる (fig. 5.12, top)。イメージリバーサルレジストはアセトン 洗浄では落とすことができないため、除去の際には AZ remover を使用する必要がある。イメージリバーサルレジ ストを使用した Au 熱パスパターニングのプロセスを tab. 5.6 に示す。

イメージリバーサルレジストを用いたパターン形成時に、使用すべきフォトマスクを誤ったために、TMU536 と TMU538 の Al 配線を溶かしてしまった。

蒸着装置は SANYU 電子製の EB (Electron Beam) 蒸着装置 SVC-700LEB (fig. 5.11) を使用した。Au 熱パ スの成膜プロセスを tab. 5.7 に示す。始めに 10⁻⁴ Pa の高真空下でフィラメントを高温に加熱し、熱電子を放出 させる。熱電子の挙動はフィラメントを加熱するフィラメント電流、電子を飛ばすための電圧、固定されたマグ ネットによるローレンツ力で電子の出力と軌道が制御されている。このようにして加速、集束した電子線を成膜 物質の入った坩堝に照射すると、照射された箇所が局所的に加熱され成膜物質が蒸発し、坩堝 (るつぼ)の対面に 配置した基板に蒸発した原子が堆積されることで、薄膜の形成が行われる。堆積する物質の膜厚は、水晶振動子 の圧電効果を利用した膜厚計を用いることで、蒸着中に膜厚を確認することが出来る。Al スパッタと同様に熱負 荷による TES の特性への影響が考えられるため、成膜プロセスを複数回に分けて行ない、長時間熱にかけ続けな いようにした。

熱シミュレーションの結果から、熱パスの厚みの最適化を行い上限値を 5 μm とした。熱負荷を考慮して複数 回に蒸着プロセスを分割しているが、5 μm の厚みの熱パスを堆積するには、長時間の蒸着を行う必要がある。本 製作では TES への熱負荷を考慮して、熱パスの目標厚みは 2 μm とし、蒸着プロセスを 2 回に分けて熱パス形成 を行なった。 2 度目の蒸着の前に、基板を冷却するためのインターバルを 30 分設けている。

太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリメータの構造上、熱パスを Si 基板上に直接成膜する必要がある。 しかし、試作段階で Si 基板と Au の密着性が悪く、直接成膜すると Si に蒸着した部分の熱パスが剥離してしまっ た。本製作では、まず Ti (~ 10 nm) を Au と Si の間に成膜し、密着力を高めることで剥離を防ぐことにした。 前面に Au の成膜をした画像を fig. 5.12, bottom-left に示す。

熱パスを形成後、基板を 長時間 AZ remover 302 に漬け、不要箇所の Au の下にあるイメージリバーサルレジ ストを溶かすことで、Au を浮かせるリフトオフをすることで除去した (fig. 5.12, bottom-right)。



Fig. 5.11: SANYU 電子製の EB (Electron Beam) 蒸着装置 SVC-700LEB。



Fig. 5.12: Top: Au 成膜前のイメージリバーサルレジストのパターン。Fe と TES が 20 μ m と 60 μ m 離れている パターンであり、囲われた内部が Au 成膜される。Bottom-left: 蒸着により全面に Au が成膜された後の画像。左 側は 60, 100, 200, 300, 0 μ m 離れている熱パスで、右側は 60, 100, 200, 300, 500 μ m 離れている熱パスになる。 ただし、写真の下側に 20 μ m 離れているパターンも存在する。Bottom-right: 成膜した Au をリフトオフにより、除去した後の画像。TES に重なるようにして、長方形の Au 熱パスが形成されている。

Tab. 5.6: Au 熱パス成膜のためのイメージリバーサルレジストのパターニング。イメージリバーサルレジストは、 通常のレジストと異なり、露光箇所がエッチングされないようになり、Au パスが成膜される部分のみがエッチン グされ、穴が空くような形になる。

Au path image reversal resist patterning (mask: STEM MR-0555-00-00016-3)				
	TMU536	TMU537	TMU538	
1st	ma	ask: STEM (incorrect mas	sk)	
Pre-baking (on Al sheet)	100 °C / 10 m 00 s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / $10\ensuremath{\mathrm{m}}$ 00 s	100 °C / 10 m 00 s	
Leaving	$6 \mathrm{m}$	$10~\mathrm{m}~54~\mathrm{s}$	$10~\mathrm{m}~33~\mathrm{s}$	
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	
Resisting/AZ 5200 NJ	#40-44	#40-44	#40-44	
Post-baking (on Cu sheet)	$100~{\rm ^{\circ}C}$ / $15~{\rm m}$ 00 s	$100\ensuremath{^\circ C}$ / 15 m 00 s	$100\ensuremath{^{\circ}\!\!\!C}\xspace$ / $15\ensuremath{\mathrm{m}}\xspace$ 00 s	
Leaving	$22~\mathrm{m}~23~\mathrm{s}$	$16~\mathrm{m}~53~\mathrm{s}$	$15 \mathrm{~m}~31 \mathrm{~s}$	
Exposure	2 s	2 s	$2 \mathrm{s}$	
	$80\ensuremath{^\circ C}$ / 1 m 00 s	$80\ensuremath{^\circ C}$ / 1 m 00 s	$80\ensuremath{^\circ C}$ / 1 m 00 s	
Reversal-baking	\downarrow (2 m 51 s)	\downarrow (3 m 10 s)	\downarrow (2 m 51 s)	
(on Al[top] and	$90~{\rm °C}$ / 1 m 00 s	$90\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 1 m 00 s	$90\ensuremath{^\circ}\ensuremath{\mathbb{C}}$ / 1 m 00 s	
Cu[bottom] sheets)	\downarrow (2 m 29 s)	\downarrow (2 m 40 s)	\downarrow (2 m 29 s)	
	100 °C / 1 m 00 s	100 °C / 1 m 00 s	100 °C / 1 m 00 s	
Leaving	$19~\mathrm{m}~20~\mathrm{s}$	-	$18~\mathrm{m}~28~\mathrm{s}$	
Exposure	9 s	-	9 s	
Leaving	$2 \mathrm{~m}~ 29 \mathrm{~s}$	-	$2~\mathrm{m}~29~\mathrm{s}$	
Developing/TMAH	Al wires were melted	-	Al wires were melted	
Acetone/IPA/Pure water	-	1 m each	-	
2nd	mask: STEM	M MR-0555-00-00016-3 (co	prrect mask)	

Acetone/IPA/Pure water	-	1 m each	-
2nd	mask:	STEM MR-0555-00-00016-3 (correct n	nask)
Pre-baking	-	$100\ensuremath{^\circ C}$ / $10\ensuremath{\mathrm{m}}$ 00 s	-
Leaving	-	6 m 30 s	-
HMDS	-	#0-6	-
Resisting/AZ ECI 3012	-	#40-44	-
Post-baking	-	$100~{\rm °C}$ / 15 m 00 s	-
Leaving	-	$22~\mathrm{m}~03~\mathrm{s}$	-
Exposure	-	2 s	-
		$80\ensuremath{^\circ C}$ / 1 m 00 s	
Reversal-baking		\downarrow (3 m 10 s)	
(on Al[top] and	-	$90~{\rm °C}$ / 1 m 00 s	-
Cu[bottom] sheets)		\downarrow (2 m 40 s + 10 m 35 s)	
		100 °C / 1 m 00 s	
Leaving	-	$15 \mathrm{~m}~00 \mathrm{~s}$	-
Eurogung		${\sim}15~{ m s}$	
Exposure	-	(自動で止まらなかった)	-
Leaving	-	$15 \mathrm{~m}$	-
		$1 \mathrm{~m}~04 \mathrm{~s}$	
Developing/TMAH	-	+ 4 m 23 s	-

116

 $+~2~\mathrm{m}$ 30 s

Tab. 5.7: Au 熱パスの蒸着プロセス。Si 基板と Au 熱パスの密着性を高めるために、Ti を薄く蒸着してから Au を成膜した。Ti と Au 成膜時の坩堝にはアルミナを使用した。坩堝の種類によって、成膜の速度が変わる。また、不要部分の Au は AZ remover を使用して、レジストごとリフトオフしている。

Au nath vapor deposition

nu paul vapor deposition				
	TMU536	TMU537	TMU538	
Ti/Au target thickness	-	$10~\mathrm{nm}$ / $2~\mathrm{um}$	-	
Ti vapor deposition (Rate: 0.01075 kÅ/nm)	-	0.1075 kÅ	-	
Au vapor deposition (Rate: 0.015153 kÅ/nm)	-	$30.307 \text{ k}\text{\AA}$	-	
Lifting off/AZ REMOVER 700	-	$19 \ h$	-	
Acetone/IPA/Pure water	-	$1 \mathrm{m}$ each	-	

5.1.7 Seed 層と吸収体 Fe の成膜プロセス

ここでは、電析するための作用極として必要な seed 層用のパターニングを行い、蒸着により seed 層 (Ti/Au) を成膜する。その後、吸収体 Fe 電析用のパターニングを行い、電析により Fe を析出させ、成膜を行う。成膜を 余分な seed 層を除去する。これらのプロセスは完全に確立できておらず、Al 配線が形成できなかった TMU536 と TMU538 の素子を条件出し用として用いながら、製作を行った。

吸収体成膜プロセスの条件出しの際の試作素子では、Fe 吸収体用レジストパターンを塗布した後に seed 層に シワのようなものが出来てしまった (fig. 5.14, middle)。 Fe を成膜後にレジストおよび seed 層の除去を試みた が、シワの箇所が原因のためか綺麗にリフトオフすることが出来ず、基板上に残留してしまった。 これは Fe 吸 収体電析パターンレジストのベイキングプロセスの際に、下層の seed 層パターンレジストが熱によって収縮した ことで seed 層に圧力が掛かり、現像箇所を中心にシワが発生したと考えた。そこで、seed 層レジストパターンに 使用するレジストのベーキングプロセスの温度を高くし、より水分を飛ばし固めることで、レジストに熱耐性を 持たせることで、シワの発生を防ごうと試みた。seed 層のレジストパターンではベーキングを 115℃ / 2 min 30 sec、Fe 吸収体用のレジストパターンは 100℃/2 min 30 sec で行った。しかしながら、シワの発生を防ぐことが 出来なかった。

シワの発生の原因は不明であるが、吸収体成膜用レジストパターニングにシワが生じても、現像自体はできて いるため、吸収体 Fe の電析には影響を与えない。シワの発生原因と対策については、ひとまず保留し、プロセス を進めることにした。

まず、seed 層用の保護パターニングを行う。Au 熱パスの端に吸収体を形成するため、この部分のみ穴のあいて いるパターンを形成する。保護パターニング後の画像をを fig. 5.15 の top に示す。ほとんどの素子は、レジスト により、シワが見えなくなっているが、一部の素子では、レジストの上からでもシワができていることが確認でき る。パターニングと seed 層の成膜プロセスを tab. 5.8 に示す。

seed 層は Ti / Au で構成され、seed 層の成膜には早稲田大学のナノテクノロジー研究センター (Nano Technology Research Center: NTRC) にある EB 蒸着装置 (fig. 5.13) を用いた。同時に 6 枚の基板の成膜が可能であり、 蒸着中は基板を設置した円盤が回転することで、均一に成膜を行うことができる。seed 層の膜厚は Ti / Au = 10/100 nm を想定しており、NTRC の蒸着装置は自動で膜厚コントロールを行ってくれる。

Seed 層を全面に蒸着した後、先程使用した seed 層用保護マスクパターンを用いて、吸収体 Fe の電析パターン を形成した。プロセスを tab. 5.11 に示す。Seed 層は電析時の電極として使用するため、全面に残したまま、基 板の端から電気を流すことで、必要部分にのみ Fe の電析を行った。電析後の画像を fig. 5.15 の top に、Fe 電析 用の保護レジストを除去した後の画像を fig. 5.15 の bottom に示す。保護レジストを除去すると、やはり seed 層 にシワや気泡のようなものができていることが分かる。また、アセトン洗浄では、レジスト (茶色く見えるもの) が完全に除去できていないことが分かる。RRR 用の素子でもあったように、電析により、レジストが変質してし まっていることが考えられる。

TMU 素子の電析は、RRR 素子の Fe69-72 の電析をもとにして行っている。そのため、電析条件は、最新の条件ではなく、Fe69-72 に似た条件、すなわち塩化鉄を用いて 1.0 M の濃い溶液を使用して電析を行っている。Fe 吸収体の電析面積は、RRR 測定用パターンと比べて被メッキ面積が非常に狭い。そのため、電界集中が発生し目標の膜厚に制御することが難しい。そこで、電析面積が同等である練習用のダミー基板をいくつか用意し、それを用いて電析時間と形成される平均膜厚の相関を調査した。電析中の水素発生を抑制する条件は、電流密度が -12 mA cm⁻² 以下の時であり、この電流密度の時の電析時間と Fe 膜厚の関係を tab. 5.9 に示す。 しかし、水素発生は抑制できるものの-10 mA cm⁻² 程度になると、うまく電析ができなかった。

また膜厚を増やそうと on time 合計が 20 min 以上の場合、治具と基板の接触部分の電析によって固着され、基 板をジグから取り外せなくなり、取り外しの際に割れてしまった (TMU538)。TMU537 では、治具と基板の接触 部周辺をマスキングテープで覆い、電析による基板とジグの接着を防ぐ手法をとった。しかし Fe 吸収体を電析 するマイクロパターンが µm オーダーであるのに対して、マスキングテープで覆ったジグとの接触部分の面積は mm オーダーである。ダミー基板を用いた電析条件出しのときに比べ、電析面積が大きく減少することになり電 流密度 -12 mA cm⁻² では、電流値が小さすぎるために Fe 電析が出来なくなってしまった。TMU537 では、電 流密度を調整しながら、Fe 吸収体を成膜した。TMU537 の電析条件を tab. 5.10 に示す。Fe の電析は、通常 1 回 で行うが、TMU537 では、ダミー基板から被メッキ面積が変わったために、予定していた条件での一回の電析で は、予定の膜厚に達しず、直ちにももう一度電析を行った。そのため、一度目と二度目の薄膜の間がわずかに酸化 されており、密着度が弱まっている。そのため、Fe が取れてはいないもののでいくつかの素子ではめくれ上がっ てしまっている。

Fe 成膜後、電極として使用した seed 層をエッチングにより除去する必要がある。Seed 層上部の変質したレジ ストは、ICP-RIE 装置を用いて、O₂ アッシングを行うことで、除去できることが分かっているが、O₂ アッシン グを行うことで、成膜した Fe が酸化され脆くなってしまい、Fe が取れやすくなってしまう。TMU536 は、この方 法で、レジストを除去したが、やはりアッシングにより、Fe が数個剥がれてしまった。その後、seed 層は、ウェッ トエッチングによって、除去した。エッチング中にも、いくつかの Fe が剥がれ落ちてしまった。

そこで、TMU537 では、seed 層上のレジストは、アセトン洗浄してできるだけ、除去した後に、seed 層下のレジストごと seed 層をリフトオフすることにした。1 日以上 AZ remover に浸け、seed 層を剥がしたが、Fe はひとつも取れることはなかった。

リフトオフでは Fe が剥がれることはなかったが、RRR 測定素子である Fe99 で行ったように、Fe 成膜後にア ニールを行うことで、Fe の密着度を高めることができることから、今後のカロリメータ用パターンの電析では、 アニールをし、より強固な成膜をするようにする。

TMU537 に成膜した Fe の膜厚測定は、成膜した Fe を剥がさないようにするため、非接触型の UV 膜厚計を用 いた (fig. 5.17)。35mm 角の基板上に、10mm 角の A と B の全く同じ 2 つのパターン配列ができ、A と B それぞ れの左列に吸収体 Fe と TES の距離を 0, 20,60,100, 200,300 μm 離れた素子、右列に 20,60,100,200,300, 500 μm 離した素子が配置されている。一部の素子膜厚測定のようすを fig. 5.18 に示す。これらの素子は、のちに パルス取得試験で使用した。TMU537 にある全素子の膜厚を tab. 5.12 に示す。平均膜厚は 4.6±1.2 μm である。

5.1.8 メンブレン構造の形成プロセス

最後に熱浴と TES の熱伝導度を調整するためにメンブレンを形成する。メンブレン形成前に表面はレジストで 保護した。メンブレン化のプロセスは D(Deep)-RIE を用い、反応部分における Si 側面の垂直性を保つ高アスペ クトエッチングを行った。TES-High speed レシピは非常に激しいエッチングレシピとなっており、Si であれば 1 サイクルで 3.7 μm 程度掘ること ができる。このウェハの Si は 300 μm 厚であるから、TES-Highspeed レシピで



Fig. 5.13: 早稲田大学 NTRC にある EB 蒸着装置。同時に 6 枚の基板の成膜が可能であり、蒸着中は基板を設置 した円盤が回転することで、均一に成膜を行うことができる。



Fig. 5.14: 吸収体成膜プロセスの条件出しの際の試作素子で、吸収体 Fe パターニング時にレジストにシワが寄って いるようす。Left: 吸収体 Fe パターニング後の画像。Middle: 吸収体 Fe を電析により成膜した後の画像。Right: リフトオフにより Seed 層を除去した後の画像。



Fig. 5.15: Top: Seed 層蒸着用の保護レジストパターン。それぞれ吸収体と TES の距離が 20 µm と 60 µm 離した 素子になる。Au 熱パス上の端に 100 µm 角の穴があいており、ここに seed 層が蒸着される。 Middle: Seed 層を 蒸着後に吸収体レジストパターニングを行い、Fe 電析を行った画像。下段に一部の素子で、seed 層にシワが寄っ ている画像を示す。Bottom: Fe 電析用ほぼレジストをアセトン洗浄により除去した後の画像。アセトン洗浄では、 レジスト (茶色く見えるもの) が完全に除去できていないことが分かる。



Fig. 5.16: リフトオフにより、seed 層を除去した後の画像。Top: fig. 5.15 で示したものと同様の素子。seed 層が きれいに除去できている。Bottom: 異なる素子。リフトオフがうまくいかず、seed 層がパターン周りに残留して いる。



Fig. 5.17: 非接触型の UV 膜厚計。成膜した吸収体 Fe を剥がさないようにするため、接触型ではなく、非接触型の膜厚計を使用した。

Tab. 5.8: 吸収体 Fe 電析の電極に使用する seed 層の成膜。保護レジストのパターニングプロセスの条件出しを行 うために、Al 配線形成に失敗した TMU536 と TMU538 を使用した。条件だしの後、Al 配線形成ができている TMU537を用いて、パターニングを行った。また、TMU536と TMU538においても、今後の Fe 電析のプロセス 練習用に使用できるため、アセトン洗浄により、一度パターニングを落とし、再度適切な条件でパターニングを 行った。

Seed layer patterning (mask: ABS, black type)				
	TMU536	TMU537	TMU538	
Setting conditions				
HMDS	#0-6	-	#0-6	
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	-	#0-6	
Baking	115 °C / 2 m 30 s	-	115 °C / 2 m 30 s	
Leaving	$19~\mathrm{m}~38~\mathrm{s}$	-	$15~{\rm m}$ 04 s	
Exposure	8 s	-	8 s	
Developing/TMAH	$22~\mathrm{m}+5~\mathrm{m}$	-	$22~\mathrm{m}+5~\mathrm{m}$	
Acetone/IPA/Pure water	1 m each	-	1 m each	
Real product				
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	
Resisting/AZ ECI 3012	#0-6	#0-6	#0-6	
Baking	115 °C / 2 m 30 s	115 °C / 2 m 30 s	115 °C / 2 m 30 s	
Leaving	$13 \mathrm{~m}~26 \mathrm{~s}$	$22~\mathrm{m}~57~\mathrm{s}$	$11~{\rm m}~20~{\rm s}$	
Exposure	10 s	10 s	10 s	
Developing/TMAH	$10~{\rm m}~04~{\rm s}$	11 m 00 s + 5 m 30 s	$10~{\rm m}~06~{\rm s}$	
Seed layer deposition	Target thickness	Target thickness	Target thickness	
(at Waseda univ.)	$\mathrm{Ti}/\mathrm{Au}{=}10/100~\mathrm{nm}$	$\mathrm{Ti}/\mathrm{Au}{=}10/100~\mathrm{nm}$	$\mathrm{Ti}/\mathrm{Au}{=}10/100~\mathrm{nm}$	

ab. 5.9:	メミー基板を使用して	- 、 電 流 密 度 -12 n	nA cm - での電	竹結り
	on time 合計 (min)	平均膜厚 (μm)	印加電圧 (V)	
	2	0.4 程度	-0.85	
	10	1.8	-0.83	
	20	7 程度	-0.83	
	25	10	-0.84	

Tab. 5.9: ダミー基板を使用して、電流密度 -12 mA cm⁻² での電析結果。

TMU537 の定電流パ	TMU537 の定電流パルス電析条件		
参照極	Ag/AgCl		
作用極	TES 基板		
対極	Pt メッシュ		
Fe 濃度(FeCl ₂ 浴)	1.0 M		
H ₃ BO ₃ 濃度	$0.4 {\rm M}$		
NH ₄ Cl 濃度	$1.9 {\rm M}$		
温度	$50 \ ^{\circ}\mathrm{C}$		
電流值(定電流)	-16 mA		
on time - off time	$5~{\rm s}$ - $10~{\rm ms}$		
on time 合計	150 s + 180 s		
pH(HCl aq で調整)	1.50		
撹拌	$300 \mathrm{rpm}$		
O2 アッシング	1 m		
塩酸洗浄	$1m \ 30 \ s$		

Tab. 5.10: TMU537 の定電流パルス電析条件。FeCl₂ 浴を用いて 1.0 M で電析を行っている。



Fig. 5.18: 吸収体 Fe の膜厚測定。左図の水色の線上で平均厚みを測定している。Top: A の左側にある Fe と TES が 20 μm 離れている素子。Fe の厚みは 5.0 μm。Bottom: B の右側にある Fe と TES が 20 μm 離れている素子。Fe の厚みは 3.2 μm。

Tab. 5.11: 吸収体 Fe 電析用保護パターニング。Seed 層形成用のマスクパターンと同様のマスクを使用して、パ ターニングを行った。吸収体電析部分のみ穴のあいたレジストパターンで、成膜した seed 層を挟むようにするこ とで、基板の端から電気を流すことで、穴のあいている部分のみに Fe を電析することができる。TMU538 は、電 析により治具と基板の間にも Fe が析出したために、治具にくっついてしまい、取り外しの際に割れてしまった。 Fe patterning (mask: ABS, black type)

		, , ,	
	TMU536	TMU537	TMU538
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6
Resisting/AZP 4620	#81-84	#81-84	#81-84
Baking	100 °C / 3 m 00 s	100 °C / 3 m 00 s	100 $^{\circ}\mathrm{C}$ / 3 m 00 s
Leaving	$31 \mathrm{~m}~14 \mathrm{~s}$	$28~\mathrm{m}~20~\mathrm{s}$	$32~\mathrm{m}~30~\mathrm{s}$
Exposure	$36 {\rm ~s} {\rm ~(464~h/255~W)}$	36 s (466 h/255 W)	$36 {\rm ~s} (464 {\rm ~h}/255 {\rm ~W})$
Developing/TMAH	$10~\mathrm{m}~30~\mathrm{s}$	$10~\mathrm{m}~30~\mathrm{s}$	$10~{\rm m}~30~{\rm s}$
Fe electrodeposition (at Waseda univ.)	Target ${\sim}5~{\rm um}$	Target ${\sim}5~{\rm um}$	Target $\sim 5 \text{ um}$ (Broken)
Acetone/IPA/Pure water	$3 \mathrm{m}$ each	$3 \mathrm{m}$ each	-
1st O2 ashing	Time: 3 m He leak: 1.734 Pa/min Chiller temp.: 0 ℃	-	-
HMO2CLEAN	Time: 5 m He leak: - Pa/min Chiller temp.: 0 $^{\circ}$ C	-	-
2nd O2 ashing	Time: 5 m He leak: 1.734 Pa/min Chiller temp.: 0 ℃	-	-
Au etching/AURUM302	$5 \mathrm{~m}~00 \mathrm{~s}$	-	-
Ti etching/H2O2	60 °C / 5 m	-	-
Acetone/IPA/Pure water	$3 \mathrm{m}$ each	-	-
Lifting off/AZ REMOVER700	-	26 h 32 m	

Tab. 5.12: TMU537 の全素子の Fe の膜厚。非接触型の UV laser を使用して測定した。平均膜厚は 4.6 ± 1.2 μm である。

Position	Fe thickness (um)
A_left_0um	4.4
$A_{left_{300um}}$	8.2
$A_{left_{200um}}$	3.5
$A_{left_{100um}}$	4.1
A_left_60um	4.0
A_left_20um	5.0
A_right_500um	4.8
A_right_300um	4.1
A_right_200um	5.0
A_right_100um	5.3
A_right_60um	4.3
A_right_20um	4.3
B_{left_0um}	6.6
$B_{left_{300um}}$	4.8
B_{left_200um}	4.3
B_{left_100um}	3.0
B_{left_60um}	3.0
B_{left_20um}	2.2
$B_{left_{500um}}$	4.0
$B_{left_{300um}}$	4.4
B_{left_200um}	5.5
B_{left_100um}	5.1
B_{left_60um}	5.9
B_{left_20um}	4.7

25 cycle を 3 回に分けて合計 75 cycle かけて Si を約 290 μ m 程度掘る。その後、光学顕微鏡で深さを測定しな がら 3 cycle かけて基板内全体で綺麗に掘れるまで行った。メンブレン構造の形成プロセスを tab. 5.13 に示す。 また、エッチングのようすを fig. 5.19 に示す。75 cycle が終わると裏から TES 構造が見えるようになる。

メンブレン化のプロセスにおいて、基板は平面電極のカソードに配置され、エッチングガスが導入された状態 で、対向電極アノードと基板のあるカソードの間に高周波電圧が印加され、電極間にプラズマが発生する。発生し た電子はイオンに比べて移動度が大きいため、対極電極と平面電極に集まる。対向電極はアースされているため、 電位が変わらないが、平面電極はコンデンサを介することで、マイナス電位を持ち、これによりプラスの電荷を もつイオンが平面電極をたたくことで、エッチングが進行する。ドライエッチングのエッチングガスとして導入 される SF₆ は、ICP-RIE 装置のチャンバ内で高電圧、高周波数の変動磁場が印加されることで温度が 10⁴ K に 達し、誘導結合プラズマ (ICP) となり、ラジカル F* を生成する。生成された F* は、電極間の電位差によって 加速し、基板と衝突する。F 原子の衝突によって基板表面ではスパッタリングが起こり、Si 原子同士の結合手が F* と反応する化学プロセスが同時進行するので、最終的に SiF₄ となって気化する。メンブレン形成では、異方 性を高めるため、Bosch プロセスを行っている。エッチングガス SF₆ と保護ガス C₄F₈ を数秒単位で交互に導入 し、エッチングした側壁に保護ガスを付着させることで、側面へのエッチングを防ぎ、垂直な穴形状にエッチン グすることを可能にしている。穴の垂直性や側壁の面粗さはガス流量、サイクルタイム、エッチング圧力、プラ ズマソースパワーなどによって決定する。目的とする形状の要求によって、調整が必要になる。一般に SF₆ との 反応速度は Si > SiN_x ≫ SiO₂ となっており、窒化膜を除去する場合、長時間のエッチングにかける必要がある ので基板への熱負荷が大きくなる。

	TMU536	TMU537	TMU538			
HMDS	-	#0-6	-			
Resisting/AZ ECI 3012	-	#0-6	-			
Baking	-	105 °C / 2 m 30 s	-			
		Recipe: TES-High speed				
		Cycle: 25				
1st Dry etching	-	Time: 5 m 19 s $$	-			
		He leak: 3.001 Pa/min				
		Chiller temp.: 0.0 $^{\circ}\mathrm{C}$				
		Recipe: TES-High speed				
		Cycle: 25				
2nd Dry etching	-	Time: 5 m 19 s $$	-			
		He leak: 3.535 Pa/min				
		Chiller temp.: 0.0 $^{\circ}\mathrm{C}$				
		Recipe: TES-High speed				
		Cycle: 25				
3rd Dry etching	-	Time: $5 \text{ m } 19 \text{ s}$	-			
		He leak: 2.801 Pa/min				
		Chiller temp.: 0.0 $^{\circ}\mathrm{C}$				
		Recipe: TES-High speed				
		Cycle: 3				
4th Dry etching	-	Time: 38 s	-			
		He leak: 2.534 Pa/min				
		Chiller temp.: 0.0 $^{\circ}\mathrm{C}$				

Tab. 5.13: メンブレン構造の形成プロセス。ICP-RIE 装置を用いて、少しずつエッチングを行っていく。 Membrane structure formation



Fig. 5.19: メンブレン形成プロセスで、Si が少しずつ削れていくようす。順に、エッチング前、TES-high speed 25cycle、50cycle、75cycle、78cycle、レジスト除去後の正面の画像である。75cycle が終わると裏から TES 構造 が見えるようになる。

5.2 転移特性評価

磁性体である Fe を吸収体として用い、超伝導薄膜である TES の近傍に配置したときに、転移特性にどのよう な影響を与えるか確かめるために、TES 形成後の吸収体 Fe がない状態と Fe 成膜後の抵抗と温度の関係 (RT カー ブ)の測定を行い比較する。TMU537 の 35 mm 角基板には、同タイプの 1 mm 角のチップが入っていて、第 2 象 限にあるものを A、第 4 象限にあるものを B とする。グラフ中の 2 や 4 は、この象限を指している。

5.2.1 磁性体 Fe を成膜する前の RT 測定結果

磁性体である Fe が TES に与える影響を調べるために、まず Fe を成膜する前の抵抗と温度の関係を測定した。 TMU537 の A の左列の TES に流す電流値を変えたときの RT 測定結果を fig. 5.20 に示す。いずれにしても 210 mK 程度で転移していることが分かる。



Fig. 5.20: 磁性体 Fe 成膜前の RT 測定結果。TMU537 の A の左列の素子について測定した。Left: TES に流す電 流値を 10 μA にしたときの RT カーブ。Right: 30 μA にしたときの RT カーブ。

5.2.2 磁性体 Fe を成膜した後の RT 測定結果

磁性対である Fe を成膜した後の抵抗と温度の関係を測定した。TMU537 の A の左列の素子の測定を行ったが、 20 μ m 距離が離れた素子を除いて、本来抵抗値がゼロであるはずの超伝導抵抗値が 100 mΩ を超えており、不自 然な結果を得た。測定上の問題である可能性もあるが、原因は分かっていない。20 μ m 距離が離れた素子のみ超 伝導抵抗値が 3 mΩ 程度であった。超伝導抵抗が不自然であっても、転移が確認できた 20, 60,100 μ m 離れた素 子での測定結果を fig. 5.21 に示す。

20 μ m 距離が離れた素子でのみ Fe 成膜前後で超伝導抵抗値が同程度である。Fe 成膜後の 30 μ A 流した場合に は、210 mK と 230 mK あたりで、二段転移のようなものが確認できる。Fe 成膜により、転移温度 T_c は、5 mK 程度高い方にずれている。

TMU537 の B の右列の素子を用いて、TES に 1 と 3 μ A 流したときの RT 測定結果を fig. 5.22 に示す。20 μ m (赤) 60 μ m (青) 離れた素子のみでしか転移が確認できない。TMU537 の B の右列については、Fe 成膜前に RT 測定測定を行っていないため、磁性による転移特性の変化を見ることはできないが、A と同じ基板中にある素子 であるから、Fe 成膜前の RT は A の結果を参考にすれば十分である。磁性体 Fe 成膜全後の RT 測定結果を A と B の 20 μ m 離れた素子で比較したものを fig. 5.23 に示す。A の左列の 20 μ m 離れた素子と B の右列の 20 μ m 離 れた素子を比較しているが、A では 10, 30 μ A 流していて、B では 1 μ A しか流れていないことに注意が必要であ

る。常伝導抵抗値に違いがみられるものの、転移温度 T_c は、いずれも 210-215 mK である。A の成膜前に比べて、 T_c が 2 mK 程度下がっている。

A と B の素子で測定できたものについて、Fe の成膜前後での RT 結果から求める転移温度 T_c と傾き $\alpha = d\log R/d\log T$ を fig. 5.24 に示す。測定が変わると経験的に温度の絶対値は ±5 mK 程度ずれる。そのため、転移 温度は誤差が ±5 mK あるとして誤差棒を表示している。ただし、Fe 成膜後の A 左列の 60 μ は、超伝導抵抗値 が高いため、 α について注意が必要である。また、ここで表示した T_c と α は、自然対数で RT を表示した際の転 移点と傾きから求めた値である。そのため、常用対数で RT を表示した際の値とはわずかに異なることに注意が 必要である。Fe 成膜以前に RT を測定した A の左列 (2.left) に対して、Fe 成膜後の A の左列 (2.left) は、転移 温度が 5 mK 以内で上がり、B の右列 (4.right) は、5 mK 以内で転移温度が下がっている。傾き α は、A の左列 (2.left) は 50 程度緩くなり (感度劣化)、B の右列 (4.right) は 50 程度急になっている (感度向上)。きちんと測定 できて、比較対象となる素子数が少なく、磁性体により超伝導特性にどのような影響を与えるか決定的なことは、明らかにできないが、測定できた一部の素子の結果から、 T_c は ±5 mK の変化、 α は ±50 程度の変化が生じるこ とが分かった。



Fig. 5.21: 磁性体 Fe 成膜前後の RT 測定結果の比較。TMU537 の A の左列の素子を用いて、TES に 10 と 30 μA 流したときの RT カーブである。赤: 20 μm 離れた素子。青: 60 μm 離れた素子。緑: 100 μm 離れた素子。各グ ラフで色が薄い線が Fe 成膜前、濃い線が成膜後の測定値である。



Fig. 5.22: 磁性体 Fe 成膜後の RT 測定結果。TMU537 の B の右列の素子を用いて、TES に 1 と 3 μA 流したとき の RT カーブである。20 μm (赤) 60 μm (青) 離れた素子のみでしか転移が確認できない。



Fig. 5.23: 磁性体 Fe 成膜全後の RT 測定結果を A と B の 20 μm 離れた素子で比較。A の左列の 20 μm 離れた素 子と B の右列の 20 μm 離れた素子を比較しているが、流す電流値が異なることに注意が必要。



Fig. 5.24: A と B の素子で測定できたものについて、Fe の成膜前後での RT 結果から求める転移温度 T_c と傾き $\alpha = d \ln R/d \ln T$ 。転移温度は誤差が ±5 mK あるとして誤差棒を表示している。ただし、Fe 成膜後の A 左列の 60 μ は、超伝導抵抗値が高いため、 α について注意が必要である。また、ここで表示した T_c と α は、自然対数で RT を表示した際の転移点と傾きから求めた値である。そのため、常用対数で RT を表示した際の値とはわずかに 異なることに注意が必要である。

5.3 線源照射によるカロリメータ動作試験

製作した吸収体横置きカロリメータ TMU537 に、吸収体に X 線を照射させ、カロリメータとして機能しシグナ ルを読み出せるか試験した。取得パルスの解析は未了であり、どの箇所でのイベントを捉えているかが明らかに なっていない。ここでは、取得したパルスの概形までを紹介する。

5.3.1 実験セットアップ

今回の実験で用いた無冷媒希釈冷凍機は 2014 年 5 月に納品されたものである。冷凍機の外観を fig. 5.25 に示 す。 この冷凍機は無冷媒機械式冷凍機と希釈冷凍機を組み合わせたもので、最低到達温度は 60 mK であるが、 現在冷却能力が低下し、100 mK 程度までしか冷却できない。測定には銅板 にシール配線と SQUID、TES をワ ニスで接着し、配線と SQUID、SQUID と TES は全て Al ボンディングで電気的 に繋がっている。TES から 5 mm 程度の高さ場所に ⁵⁵Fe 線源 (5.9 keV, 6.5 keV) を設置した。ステージ上の配線と冷凍機は FPC コネクタに より繋げている (fig. 5.26)。ステージ上に設置した温度計は RuOx を用いた。この温度計は較正されていないた め温度の算出には標準曲線を用いた。一般的に標準カーブとの温度計のズレは最大でも 5 mK 程度であるため、 今回測定する温度が数百 mK であることを考えると問題にはならない。 パルスの取得にはデジタルオシロスコー プ YOKOGAWA DL-700 を用いた。

線源照射試験は、seed 層がきれいにリフトオフできている TMU537 の B (第四象限) の右列にある Fe と TES が 20 μm 離れた素子を用い、熱浴温度 130 mK、TES バイアス 370 μA の状態で行った。

吸収体 Fe に X 線を照射させるために、Fe と同程度 (~100 μ m) の穴のあいたコリメータをセットした (fig. 5.27)。コリメータは 380 μ m の厚みの Si 基板であり、X 線源線をほとんど透過しない。そのため、穴のあいた部分から X 線の大半が入射することになる。コリメータは 625 μ m の厚みの台座に載せ、コリメータの穴が吸収体 Fe の真上にくるようにセットする。カロリメータ基板の Fe までを含めた厚みは 310 μ m 程度であり、コリメータ の穴から Fe 表面までは、315 μ m 程度離れていることになる。線源は、コリメータから数 mm 離れた上部にあり、 直径 3 mm 程度あるため、コリメータの穴に対して無限平面からの線源入射とみなすことができる。

コリメータの穴から Fe 表面まで距離があるため、入射した線源は広がりを持ち、カロリメータ基板の Fe のサ イズからさらに 80 µm 程度離れた部分まで放射が当たる。本来、吸収体にのみ放射を当てることで、吸収体イベ ントを捉えることが目的であったが、放射が広がりを持つことで、吸収体だけでなく、Au 熱パスや TES、メンブ レンにも X 線が当たる可能性がある。そのため、どの位置でイベントが起こっているかを区別することが難しく なっている。

5.3.2 測定条件

取得した各パルスのベースラインの平均値を時系列順に並べたものを fig. 5.28 に示す。

5.3.3 取得パルスの概形

取得したパルスは、1301 データあり、ダウンサンプルしない場合、それぞれのデータは 416666 のデータ点を 持っている。取得したパルスの主な概形を fig. 5.29 に示す。1301 データのうち 603 データは、トリガーに引っか かってしまったノイズデータであり、解析には使用しない。残りの 698 データがパルスの形をしており、そのうち 378 データは立ち上がりの遅いものと速いものがあるパルスで、320 データはスパイクをもつパルスで、スパイク の立ち下がり後には、スパイクのないパルスのように緩やかにたち下がっていく。図中の左から順に、ノイズ、立 ち上がりの遅いパルス、立ち上がりの速いパルス、スパイクをもつパルスである。

吸収体を横置きにした TES カロリメータにより、イベントをパルスとして、捉えられているものの、従来の TES カロリメータでは見られない、立ち上がりの遅いパルスやスパイクをもったパルスが確認された。TES や熱パス、



Fig. 5.25: 無冷媒希釈冷凍機



Fig. 5.26: TMU537 の線源照射試験セットアップ。



Fig. 5.27: 試験素子の上部にコリメータを設置した概形。コリメータは 380 μm の厚みの Si 基板であり、X 線源 線をほとんど透過しない。コリメータは 625 μm の厚みの台座に載せ、コリメータの穴が吸収体 Fe の真上にくる ようにセットする。カロリメータ基板の Fe までの厚みは 310 μm 程度であり、コリメータの穴から Fe 表面まで は、315 μm 程度離れていることになる。


Fig. 5.28: Top: 取得した各パルスのベースラインの平均値を時系列順に並べたもの。Bottom-left: 拡大図。Bottomright: ベースラインの平均値の分布。後半になるとベースラインが下がっていることが分かる。

吸収体の物質の違いにより、熱容量 C や熱伝導度 G が異なると、立ち上がりや立ち下がりの時定数 ($\tau \sim C/G$) が変わることが、パルス波形の違いとなって現れていることを解析によって明らかにする必要がある。



Fig. 5.29: 取得したパルスの形。縦軸:電圧 (V)、横軸:時間 (msec) である。左から順に、ノイズ、立ち上がりの遅 いパルス、立ち上がりの速いパルス、スパイクをもつパルスである。

第6章 まとめと今後の展望

6.1 本修士論文まとめ

宇宙物質の 85%を占める正体不明の「暗黒物質」は、現在の宇宙の大規模構造の形成過程を説明する上で極め て重要である。世界中が探査のための研究開発に取り組んでおり真剣に暗黒物質を探す時代にいよいよ突入し、最 有力候補のひとつであるアクシオンの探査に注目が集まっている。素粒子標準理論では、強い力を記述する量子色 力学に CP 対称性を破る項が含まれているが、実験的には CP 対称性が良い精度で保たれており、その機構は明 らかではない。この問題を解決し得るのが 標準理論を超えた新素粒子「アクシオン」であり、その発見は「素粒 子物理学」にとって新しい素粒子模型の構築に対する強い動機付けとなる (Peccei and Quinn 1977), (Weinberg, Wilczek 1978)。また、対極のスケールにある「宇宙物理学」において、暗黒物質アクシオンの発見は宇宙創成メ カニズムの理解を大きく進展させる重要な手がかりとなる。そのため、アクシオンの探査は現代物理学の極めて 重要な課題と言える。

アクシオンは電気的に中性でふつうの物質とはほとんど相互作用しないため、如何にして検出するかが問題に なる。アクシオンは光子が磁場と作用することで変換され出現する (プリマコフ変換)。 そこでこの変換の逆反応 を利用できれば、宇宙から地球へ飛来したアクシオンを磁場中で光子に変換し検出することができる。 近年この 逆変換を用いたアクシオン検出器が世界中で開発されている。

比較的軽い暗黒物質アクシオンの大型実験として、ワシントン大学/フェルミ研究所の国際コラボ レーション による「ADMX (Axion Dark Matter eXperiment)」(ADMX Collaboration 2018) やスタンフォード大学/SLAC のコンソーシアムで現在製作中の「DM (Dark Matter) Radio」(Chaudhuri 2019) がある。これらの実験ではア クシオンの質量に合わせて探査周波数をチューニングできる。しかし、根本的な問題として膨大な質量範囲を探 査する必要があり、アクシオンの検出を困難にしていた。

そこで着目しているのが太陽アクシオン探査である。太陽は熱光子を大量に生成し、強い内部磁場と反応しア クシオンが大量に生成され、探査天体として最適である。さらに太陽の放射量はよくわかっているため、反応率 測定の系統誤差を大きく削減できる。太陽アクシオンは質量が大きく暗黒物質候補にはならないものの、その反 応率や結合定数などから暗黒物質アクシオンの特性に対しても強い制限を与えられる。

我々のグループでは、太陽アクシオン探査に特化した超伝導転移端型マイクロカロリメータ (Transition Edge Sensor; TES カロリメ ータ) の開発を行ってきた。アクシオン検出には磁場の代わりに、黒体放射光子により太陽中に多く存在する ⁵⁷Fe が熱的に励起し、単色 14.4 keV のアクシオンを放出して脱励起するという磁気双極子 遷移を用いる (Moriyama 1995)。大半の原子核遷移は MeV 帯域だが、⁵⁷Fe は第一励起エネルギーが X 線帯域の 14.4 keV であり、X 線で高エネルギー分解能をもち輝線の測定に強みをもつ TES カロリメー タにはうってつけ である。過去に同様の検出方法で、X 線半導体検出器を用いた実験が行われたが、 感度が低く検出には至らず、 質量制限 m_a <216 eV を得た ((Namba 2007)。TES カロリメータであれ ば、特長である高エネルギー分解能を 活かすことで 60 倍以上の感度向上が実現できる。

TES カロリメータは極低温で高エネルギー分解能を誇る最新の X 線熱検出器であり、高い検出感度での観測が 実現できる。本探査では 14.4 keV のアクシオンを、磁場の代わりに吸収体 ⁵⁷Fe で共鳴させ光子に変換する。そ の光子のエネルギーを吸収体で熱に変え、熱の微小な温度上昇を超伝導遷移端における急激な抵抗値変化として 測定する。TES は超伝導遷移を利用した温度計であるため、磁場に対して感度を持っており、 Fe で生じる磁場の 影響を受けることが予想される。Maehisa master's thesis (2018) では、TES と吸収体 Fe を離して横置きに、配 置し熱パスで熱的に強く接続する構造が考案された。

まず、従来と異なる太陽アクシオン探査用 TES 型マイクロカロリメータの構造について、吸収体で捉えた熱を TES に伝達するための熱パスの形状の最適化について検討を行ない、アクシオン入射位置依存性を受けて TES のエネルギー分解能が劣化しないか、熱シミュレーションによって確認した。熱パスのサイズは、熱伝導度と熱容 量などのトレードオフを考慮して、厚みの上限値を 5 μm に、幅は 100 μm 程度の大きさを持たせることにした。 熱パスの長さは可能な限り短い方が TES のエネルギー分解能の観点から望ましいが、熱パスを短くしすぎると Fe の発する磁場が TES の転移特性に影響を与える恐れがある。長さは、熱シミュレーションだけでは確定するこ とが出来ないため、試験素子を製作し、冷却試験を行い実験的に吸収体設置可能最短距離を確定する必要がある。

また、現在の TES カロリメータデザインではアクシオン入射位置依存性によって、TES の持つエネルギー分 解能(~10 eV)を 32eV ほど劣化させることが分かった (Konno et al. 2019)。吸収体 Fe の熱伝導度を増加さ せ、TES までの熱伝導度を向上させることで、発生した熱の拡散を早くすることを考えた。熱伝導度を2倍にし た場合、位置依存性による劣化は 23.3 eV に、3倍にした場合はエネルギー分解能の劣化は 16.8 eV まで減少し た。すなわち、吸収体の熱伝導度を向上させることで位置依存性によるエネルギー分解能の劣化は低減すること が出来ることが分かった (Konno master's thesis 2020)。

高い熱伝導度を持つ Fe 吸収体を製作する必要があることが分かったため、極低温における Fe 薄膜の熱伝導度の推定を行なった。通常の電析法よりも緻密で均一な薄膜を形成しやすい、パルス電析法を用いることで Fe 薄膜の熱伝導度の改善を試みた。100 mK での熱伝導率 κ を熱シミュレーションで用いた値 0.1 W/K/m 以上を達成するためには、RRR (residual resistivity ratio、残留抵抗比)としては、3.74 以上をもつ素子の製作が必要であった。パルス電析で製作することで Fe 薄膜の残留抵抗比 RRR は 4.5-5.0 程度で、最大で 5.8 の素子を製作することができ、シミュレーションで想定していたよりも熱伝導の良い素子を製作することに成功した。

次に、パルス電析法を用いて吸収体を成膜し、カロリメータ化の試作を行った。従来の TES 型マイクロカロリ メータと異なり、熱パスの形成と電析用の seed 層を形成する必要がある。seed 層の形成まで問題はなかったが、 その後の Fe 吸収体レジストパターンを塗布すると熱パスを中心に seed 層にシワや気泡のようなものが発生した。 吸収体の成膜の際に、長時間の電析を行うと治具と TES 基板の接触部に析出した Fe によってくっついてしまい、 基板を取り外すことが出来なくなってしまった。これを防ぐため接触部分をマスキングテープで覆い接着を防ぐ ことにしたが、被メッキ面積が大きく減少したことで電析条件が変化してしまい、膜厚をコントロールした Fe 吸 収体の形成は困難となった。また Fe 吸収体成膜後、本製作ではリフトオフプロセスによる seed 層の除去を選択 したが、いくつかの素子で seed 層の完全な除去ができず残留してしまった。いくつかの問題が生じたものの吸収 体 Fe を TES に取り付けた横置きのカロリメータ素子の製作に成功した。

吸収体成膜前後で TES の抵抗と温度の測定を行い、磁性体が超伝導薄膜である TES に与える転移特性への影響を調べた。吸収体成膜前後の素子で RT カーブが確認できたものが少ないが、磁性体の影響を受けたとしても、 転移温度は、±5 mK 程度しか変化しておらず、傾きは ±50 程度変わることが分かった。その他に、吸収体成膜 途中のプロセスで、基板に熱が加わったために、転移温度が変わった可能性も考えられる。

製作した吸収体を横置きにした TES カロリメータを用いて、線源照射試験を行ったところ、大きく3 種類のパルス (立ち上がりの遅いパルス、立ち上がりの速いパルス、スパイクをもつパルス) を取得することができた。吸収体を直上に設置した従来の TES カロリメータでは、見られなかった立ち上がりの遅いパルスやスパイクをもったパルスが観測され、TES か吸収体か熱パスのいずれでおきたイベントなのかを立ち上がりや立ち下がりの時定数から考察する必要がある。

6.2 今後の課題

エネルギー分解能 10 eV 以下およ び検出効率 80%以上を目指し、新型 TES カロリメータの開発と観測に必要 な冷凍機と多素子読み出し系の構築を行う。TES カロリメータの性能から算出すると 64 素子で半導体検出器の 得た制限を上回り、アクシオン検出の可能性がある。太陽アクシオン探査までの段階別の目標を以下のように立 て順次達成していく。 まず、吸収体 ⁵⁷Fe の電析プロセスを確立し、単素子カロリメータの動作実証を行う。次に、多素子アレイ化 用の設計を行い、16 素子 TES カロリメータの製作と多素子読み出し用の冷凍機構築を行い、試験観測を開始す る。何が系統誤差となるかを評価し必要な観測時間を見積もる。また、所属研究室で開発された世界一の同時読み 出し数を誇る同軸マイクロ波読み出し系を希釈冷凍機に搭載し、多素子読み出しができるような環境を構築する (Nakashima et al. 2020)。試験測定時には、適切なスペクトル解析を行うために、放射線源を用いてエネルギー 較正を行う。

64 素子 TES カロリメータでは、半導体検出器の上限感度を上回ると予想しているが、エネルギー較正曲線等 の系統誤差を試験観測で見積もることで、素子配置の改良、検出器の向き調節、観測時間等の最適化にフィード バックする。 最適化した情報をもとに本試験に向けた素子製作を進める改良を加えた上で 64 素子の TES カロリ メータを製作し、太陽アクシオン検出を目指した本観測を始める。得られたデータ解析を慎重に行い、アクシオ ン検出もしくは制限をつける。

Appendix A フォトリソグラフィ

A.1 使用レジストとスピンコータのレシピ条件

製作プロセスで使用したレジストと厚みを tab.A.1 に示す。レジストを塗布する際に、全面に均一に厚みを制御 するためのスピンコータ (fig. A.1) のレシピ条件を tab.A.2 に示す。使用するレジストに合わせて、それぞれ回転 時間や回転速度を最適化してある。

Tab. A.1: 使用したレジストとカタログ上の厚み。		
レジスト名	厚み(カタログスペック)	使用プロセス
AZ ECI 3012	$1.2~\mu{ m m}$	TES 形成、Al 配線現像、seed 層蒸着
AZ ECI 3027	$2.7~\mu{ m m}$	ダイシング保護
AZP 4620	$7.0~\mu{ m m}$	吸収体生成
AZ 5200 NJ	$7.0~\mu{ m m}$	熱パス



Fig. A.1: スピンコータ。

Tab. A.2: スピンコータのレシビ条件。			
Recipe number	Time	Rotation speed	
	$0 \rightarrow 5 \text{ sec}$	$0\to 500~{\rm rpm}$	
	$5 \rightarrow 10 \text{ sec}$	$500 \mathrm{rpm}$	
#0-6	$10 \rightarrow 15 \text{ sec}$	$500 \rightarrow 3000 ~\rm rpm$	
	$15 \rightarrow 45 \text{ sec}$	$3000 \mathrm{rpm}$	
	$45 \rightarrow 50 \text{ sec}$	$3000 \rightarrow 0~\mathrm{rpm}$	
	$0 \rightarrow 5 \text{ sec}$	$0 \rightarrow 300 \text{ rpm}$	
-#40.44	$5 \rightarrow 45 \text{ sec}$	$300 \mathrm{rpm}$	
#40-44	$45 \rightarrow 46 \text{ sec}$	$2000~\rm rpm$	
	$46 \rightarrow 51 \text{ sec}$	$2000 \rightarrow 0~\mathrm{rpm}$	
	$0 \rightarrow 5 \text{ sec}$	$0 \rightarrow 500 \text{ rpm}$	
<i>#</i> 01 0 <i>1</i>	$5 \rightarrow 15 \text{ sec}$	$500 \mathrm{rpm}$	
#01-84	$15 \rightarrow 55 \text{ sec}$	1200 rpm	
	$55 \rightarrow 56.5 \mathrm{sec}$	4000 rpm	

Tab. A.2: スピンコータのレシピ条件。

References

- Peccei, R. D. and Quinn, Helen R., 1977, Phys. Rev. Lett. 38, 25, 1440; Peccei, R. D. and Quinn, Helen R., 1977, Phys. Rev. D. 16, 1791.
- Weinberg, S., 1978, Phys. Rev. Lett. 40, 223; Wilczek, F., 1978, Phys. Rev. Lett. 40, 279.
- Sikivie, P., 1983, Phys. Rev. Lett. 51, 1415.
- XENON Collaboration, 2020, arXiv:2006.09721v2
- ADMX Collaboration, 2018, Phys. Rev. Lett. 120, 151301.
- Chaudhuri, S., et al. 2019, arXiv:1904.05806v1
- Van Bibber, K., et al. 1989, Phys. Rev. D 39. 2089.
- Moriyama, S., 1995, Phys. Rev. Lett, 75. 3222-3225.
- CAST Collaboration., Anastassopoulos, V., Aune, S. et al., Nature Phys 13, 584-590.
- Engel, J., Seckel, D. Hayes, A. C., Phys. Rev. Lett. 65, 960, 1990
- Raffelt, G.G., Lect. Notes Phys. 741, 51, 2008
- Ishisaki, Y., et al. 2008, Journal of Low Temperature Physics, 151(1):131-137.
- Gavrilyuk, Y.M., Gangapshev, A.N., Derbin, A.V. et al., 2015, Jetp Lett. 101:664.
- Hijmering, R. A., et al. 2012, Journal of Low Temperature Physics, 167:242-247.
- Jensen, J E, Tuttle, W A, Stewart, R B, Brechna, H, and Prodell, A G. Brookhaven National Laboratory selected cryogenic data notebook: Volume 1, Sections 1-9. United States: N. p., 1980. Web.
- Kent D. Irwin. Phonon-mediated particle detection using superconducting tungsten transition-edge sensors. PhD thesis, Stanford University, 1995.
- L. L. Isaacs. Journal of Chemical Physics, 43(307), 1965.
- S H Moseley, J. C. Mather, and D McCammon. 1984, 56(5):1257-1262.
- Namba, T., 2007, Phys. Lett. B, 645:398-401.
- John C. Mather. Bolometer noise: nonequilibrium theory. Applied Optics, 21(6):1125-1129, March 1982.
- Konno, R., et al. 2019, Journal of Low Temperature Physics, 199:654-662.
- Nakashima, Y., et al. 2020, Applied Physics Letters 117:12
- Tomotaka Yoshino. 超伝導遷移端型 X 線マイクロカロリメータの熱数学モデルの構築と設計の最適化. Master's thesis, University of Tokyo, 2005.

- Akira Chiba. TES 型 X 線マイクロカロリメータアレイの実用化に向けた低音フロントエンド部の開発. Master's thesis, University of Tokyo, 2015.
- Tasuku Hayashi. TES 型 X 線マイクロカロリメータアレイの検出効率向上を目指した多層膜 X 線吸収体の研究. Master's thesis, University of Tokyo, 2015.
- Keisei Maehisa. 太陽アクシオン探査をめざした TES 型マイクロカロリメータの基礎的研究. Master's Thesis, University of Tokyo, 2018.
- Ryohei Konno. 太陽アクシオン探査に特化した 57Fe 吸収体を持つ TES 型マイクロカロリメータの研究. Master's Thesis, Kitasato University, 2020.