修士論文

オーバーハング吸収体による 高効率 TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作と性能評価

(Fabrication and Evaluation of High-efficiency TES X-ray Microcalorimeters with Overhanging Absorbers)

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

宮川 陸大

指導教官: 山崎典子

令和5年1月

概要

高開口率を持つ超伝導転移端 (Transition Edge Sensor; TES) 型X線マイクロカロリメータ (TES カロリメータ)の実現に向け、Auオーバーハング構造の形成およびそれを搭載した TES カロリメータの製作と性能評価を行った。将来のX線天文衛星計画である SuperDIOS 計画では高視野で軟X線領域の酸素輝線を精密分光することで、中高温銀河間物質の空間分布を取得し、銀河間物質の化学史や宇宙の構造形成史に迫ることが期待されている。この SuperDIOS 計画で検出器として期待されているのが我々が開発を行っている TES カロリメータである。高開口率の TES カロリメータとして、オーバーハング構造を持つ吸収体の開発が必須であり、従来の問題点としては、熱拡散過程のばらつき、特殊な構造の形成の難しさがあった。

本研究では、SuperDIOS 計画の要求値をもとに設計目標を定義し、Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロ リメータの設計を示した。そして TES カロリメータの性能指標であるエネルギー分解能、飽和エネルギー、X 線吸 収効率をもとに吸収体の熱容量を $\sim 2 \, \mathrm{pJ/K}$ 、厚みの設計値を $\sim 2 \, \mu\mathrm{m}$ とした。また、TES カロリメータで重要な吸 収体の熱伝導性の観点から、2 µm の吸収体では、残留抵抗比が 9.23 以上であれば良いと見積もった。第5章では、 第4章で定義した設計目標をもとに、電極層形成用のレジストの構造、吸収体形成用のレジストの厚み、電解析出法 における残留抵抗比と厚みの条件出しを行った。その結果、レジストの構造は 2 cm 基板、本番製作用の 3inch 基板 共に要求を満たす条件を明らかにできた。電解析出法では、2 cm 基板で残留抵抗比が 20 以上となる条件を確立し、 当初の設計値よりも熱伝導性が良い素子を製作した。電解析出後の吸収体形成用レジストについては、電解溶液に触 れた部分が変質してしまい従来の有機溶剤のみによる除去はできなかったが、O2 アッシングと組み合わせることに より除去可能であることを示した。3inch 基板で Au 薄膜の厚みを 2 µm とする条件のもと吸収体の構造形成を行い、 自立した大面積吸収体の製作に成功した。形成した吸収体の中には構造が壊れているものも確認されたが、これは電 極層用のレジストを除去するために使用した有機溶剤の粘性によるものだと考えられ、基板を取り出す際に表面張力 の低減の工夫が必要である。6章では、5章での条件出しの結果をもとに、Auオーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータの製作を行った。メンブレン構造形成後の台座から基板を取り外す際に、密着性向上のためのオイルを 除去することが難しくチップの破損やカロリメータの構造が破壊されてしまうという問題があった。これを解決する には、レジストとオイルを同時に除去できる薬品を使用するか今回使用したアセトンの温度を上げることで反応性を 向上させることなど考えられる手法は多くあり、今後の課題である。今回製作した素子の一部を無冷媒型希釈冷凍機 に組み込むことで、極低温での評価試験を行った。吸収体を形成していない TES カロリメータの抵抗温度特性を測定 したところ、超伝導特性が見られ、超伝導転移温度が TES カロリメータの構造に大きく依存しないことがわかった。 これにより、少なくとも TES 自体の製作に問題がないことを示した。オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリ メータの抵抗温度特性を測定したところ、超伝導転移することを明らかにした。また、吸収体を形成していない TES カロリメータに対して超伝導転移温度が 50 mK 程度ずれていることが明らかになった。あわせて二段階に超伝導転 移している素子も確認された。

X 線照射試験によりエネルギー分解能 $\Delta E_{\rm FWHM} = 9.42 \pm 0.33$ eV @5.9 keV が得られた。要求値を満たしてい ないことが明らかとなったが、TES 自体に問題があるのか、吸収体に問題があるのかを今後切り分ける必要がある。 MnKα と MnKβ のエネルギーでは、高い感度を持ち、飽和エネルギーから決まる熱容量の下限は満たしていること がわかった。

目次

概要		i
第1章	物理背景	1
1.1	X 線精密分光	1
1.2	ダークバリオン	1
1.3	次世代の X 線検出器と天文衛星	3
1.4	我々の研究グループの TES カロリメータ開発	4
1.5	本修士論文の目的	4
第2章	X 線マイクロカロリメータの動作原理	7
2.1	X 線マイクロカロリメータ	7
2.2	吸収体	8
2.3	温度計	8
2.4	電熱フィードバック	10
2.5	X 線パルスによる TES カロリメータの応答	11
2.6	固有ノイズ....................................	14
2.7	最適フィルタ処理	14
2.8	超伝導量子干渉計を用いた読み出し系....................................	15
2.9	TES カロリメータの基本的な特性とその測定方法	18
第3章	TES 型 X 線マイクロカロリメータの吸収体	23
3.1	吸収体に求められる性能	23
3.2	吸収体開発で考慮すべき物性	23
3.3	吸収体の成膜方法	26
3.4	吸収体開発における世界の動向....................................	27
3.5	我々の研究グループの吸収体開発の現状....................................	27
3.6	電解析出 Au オーバーハング吸収体	29
第4章	Au オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロカロリメータの設計	31
4.1	SuperDIOS 計画の要求	31
4.2	設計目標	32
4.3	Au オーバーハング吸収体の構造	32
4.4	Au オーバーハング吸収体の厚み検討	32
4.5	Au の熱伝導性の検討	36
4.6	Au オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロカロリメータのデザイン	37

第5章		Au オーバーハング吸収体の製作プロセスの条件出し	43
	5.1	Au オーバーハング吸収体の製作プロセス	44
	5.2	電極層用レジストの条件出し....................................	45
	5.3	吸収体構造形成用レジストの条件出し	46
	5.4	電解析出法での Au 成膜の条件出し	48
	5.5	Au オーバーハング吸収体のテスト製作	54
	5.6	Au オーバーハング吸収体の構造形成と製作プロセスの条件出しのまとめ	58
第6章		TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作	61
	6.1	使用ウェハとウェハ洗浄	62
	6.2	アライメントマーク形成	63
	6.3	メンブレン構造パターンの形成....................................	64
	6.4	TES の成膜プロセス	65
	6.5	Nb 配線形成	66
	6.6	電極層の成膜プロセス	69
	6.7	Au オーバーハング吸収体の成膜プロセス	69
	6.8	吸収体成膜用レジストと電極層の除去	70
	6.9	メンブレン構造形成とチップ化....................................	70
	6.10	電極層成膜用レジストの除去....................................	72
	6.11	TES カロリメータ製作における問題点	73
第7章		オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロカロリメータの極低温での性能評価	75
	7.1	測定原理と実験セットアップ	75
	7.2	性能評価を行った素子の概要	81
	7.3	JAXA122 (吸収体が搭載されていない TES カロリメータ)	81
	7.4	JAXA123 (吸収体が搭載されている TES カロリメータ)	83
	7.5	JAXA120 (吸収体が搭載されている TES カロリメータ)	95
	7.6	冷却試験のまとめ	104
第8章		まとめと今後の展望	107
	8.1	製作と性能評価のまとめ	107
	8.2	結論と今後の展望	108
Append	lix A	フォトリソグラフィー	i
	A.1	レジスト塗布	i
参考文	钛		iv



1.1	柱密度で表した原子の電離状態の密度分布	2
1.2	SuperDIOS の基本性能	4
1.3	本修士論文の流れ....................................	5
2.1	X 線マイクロカロリメータの構造図	8
2.2	超伝導転移端の概略図	9
2.3	定電圧バイアスの概略図	10
2.4	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	12
2.5	X 線光子が TES カロリメータに入射したときの熱の流れ	13
2.6	dc-SQUID の模式図	16
2.7	FLL 回路の模式図	17
2.8	FLL 回路で動作させた SQUID を用いた TES カロリメータの読み出し系の模式図	18
2.9	TES カロリメータに対する四端子測定法の模式図	19
3.1	NASA/GFSC で開発された Cu と Bi を利用した多層膜吸収体を搭載した TES カロリメータ	27
3.2	NASA/GFSC で開発された Cu と Bi を利用したオーバーハング型吸収体を搭載した TES カロリメータ	28
3.3	SRON で開発された Au を利用した吸収体を搭載した TES カロリメータ	28
4.1	DIOS 計画での観測装置に対する要求値	31
4.2	オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータの概略図	33
4.3	動作温度 $T=200~{ m mK}$ のときの温度感度 $lpha$ ごとの飽和エネルギー $E_{ m sat}$ と熱容量 C 、オーバーハン	
	グ吸収体の厚み d _{overhung} 関係	34
4.4	動作温度 $T=200~{ m mK}$ のときの温度感度 $lpha$ ごとのエネルギー分解能 $\Delta E_{ m FWHM}$ と熱容量 C 、オー	
	バーハング吸収体の厚み d _{overhung} 関係	35
4.5	Au の厚みと X 線吸収効率の関係	35
4.6	Ea チップの設計図	38
4.7	Ea チップの A~D 列の TES カロリメータの設計図	39
4.8	Ea チップの E 列の TES カロリメータの設計図	39
4.9	Sa チップの設計図	40
5.1	Au オーバーハング吸収体の製作プロセスの条件出しでの流れ	43
5.2	Au オーバーハング吸収体の製作プロセスフロー	44
5.3	露光時間を変化させたときのレジストの構造	46
5.4	現像の前に2回目のベーキングを行ったときのレジストの構造	46
5.5	現像の後に2回目のベーキングを行ったときのレジストの構造	46

5.6	現像の後に2回目のベーキングを行ったときのレジスト表面の顕微鏡写真..........	47
5.7	膜厚を測定したレジストパターン	47
5.8	レジストの厚み測定結果	48
5.9	電解析出法の条件出しに用いた設計図....................................	49
5.11	電極層除去後の 2 cm 基板表面の写真	51
5.12	RRR 測定の実験セットアップ写真....................................	52
5.13	E038 と E039 の RRR 測定試験での温度と抵抗値のグラフ	52
5.14	E040 の RRR 測定試験での温度と抵抗値のグラフ	53
5.15	E042 の RRR 測定試験での温度と抵抗値のグラフ	53
5.16	mush220802a のレジスト形成後の顕微鏡写真	54
5.17	SEED211216b と mush220802a のレジスト形成時のベーキング後の比較	55
5.18	吸収体形成用レジスト成膜後にパターンが壊れてしまった mush220602 と mush220802a の顕微鏡写真	56
5.19	吸収体形成用レジスト成膜後にパターンが壊れなかった mush220902 の顕微鏡写真	56
5.20	mush220802a での吸収体形成用レジストの膜厚測定結果	57
5.21	吸収体形成用レジストの除去....................................	58
5.22	電極層形成用レジストの除去....................................	59
5.23	Au オーバーハング吸収体の構造形成後の光学顕微鏡写真	59
5.24	Au オーバーハング吸収体の構造形成後の SEM 画像	60
6.1	Au オーバーハンクを拾載した TES 型 X 線マイクロカロリメータの模式図	61
6.2	TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作フロー	62
6.3	表面と裏面に形成したアライメントマークの様子	63
6.4		64
6.5	任友精密上業製の誘導結合ブラズマ (Inductively Coupled Plasma; ICP)-RIE 装置	64
6.6	アライメントマーク形成とメンブレン構造形成	65
6.7	TES パターニングの概要	66
6.8	日本シード研究所製 TES 薄膜製作装置	66
6.9	接触式段差計である DEKTAK 6M	67
6.10	Au/Ti エッチング後の TES パターンの様子	67
6.11	Nb 配線形成のプロセスの機略図	67
6.12	Nb 配線形成のプロセスの様子。左: LOR10B と AZ ECI3027 を塗布してパターン形成を行った後の	
	TES 表面。TES の左右および下部の色が異なる部分が現像されておりレジストが塗られていない部	
	分になっている。右: Nb を成膜し、RemoverPG でレジストと Nb をリフトオフした後の TES 表面。	
	配線パターン部分のみに Nb が残り、その他の部分はレジストが除去されているため SiN _x が見えて	
	いる。	68
6.13	国立天文台にある Nb スパッタ装置	68
6.14	電極層成膜用パターン形成後の TES 表面	69
6.15	電極層 (Au/Ti) 成膜後の TES 表面の顕微鏡写真	69
6.16	Al 台座に固定した基板	71
6.17	裏面から見たメンブレン構造形成後の TES の顕微鏡写真	71
6.18	完成した TES カロリメータ素子の様子	72
6.19	完成した素子の顕微鏡写真....................................	72

6.20	完成した素子を走査型電子顕微鏡で撮影した写真.................................	73
7.1	評価手法と対応する性能	76
7.2	無冷媒希釈冷凍機	76
7.3	RT 特性の極低温ステージ測定セットアップ	77
7.4	JAXA123 Ea4 の極低温ステージの写真	79
7.5	冷凍機に極低温ステージを組み込んだ写真	79
7.6	冷却試験での測定環境	80
7.7	SQUID を用いた TES カロリメータの測定回路系の概略図	80
7.8	JAXA122 Ea3 の D2、T2 の顕微鏡写真	81
7.9	JAXA122の RT 特性	82
7.10	JAXA123 Ea4 の T1、A1、D1 の顕微鏡写真	83
7.11	JAXA123 Ea4 の T1、A1、D1 の RT 特性の測定結果	84
7.12	JAXA123 Ea4 T1 の IV 特性の測定結果と得られる物理量の関係	85
7.13	JAXA123 Ea4 A1 の IV 特性の測定結果と得られる物理量の関係	86
7.14	JAXA123 Ea4 D1 の IV 特性の測定結果と得られる物理量の関係	87
7.15	JAXA123 Ea4 の IV 特性から得られる RT 特性	88
7.16	JAXA123 Ea4 D1 で得られた X 線パルスの波形	90
7.17	JAXA123 Ea4 A1 の X 線パルスのベースラインの揺らぎと波高値	90
7.18	JAXA123 Ea4 A1 の X 線パルスのベースラインの揺らぎと波高値	91
7.19	JAXA123 Ea4 A1 の立ち上がり時間と立ち下がり時間の分布	91
7.20	JAXA123 Ea4 D1 の立ち上がり時間と立ち下がり時間の分布	92
7.21	JAXA123 Ea4 A1 と D1 の立ち上がり時間の分布の比較	93
7.22	冷却試験後の JAXA123 Ea4 A1 と T1 の顕微鏡写真	94
7.23	JAXA120 Ea4 D3 の RT 特性の測定結果	96
7.24	JAXA120 Ea4 D3 の IV 特性の測定結果	97
7.25	JAXA120 Ea4 D3 の IV 特性の測定結果から描いた RT 特性	98
7.26	JAXA120 Ea4 D3 で測定した X 線の平均パルスと平均ノイズ	99
7.27	JAXA120 Ea4 D3 で測定した SN 比とそれを逆フーリエ変換したテンプレート	100
7.28	MnKα と MnKβ に対して導出したエネルギー分解能	100
7.29	パルスの波高値と立ち上がり時間の関係....................................	102
7.30	本測定で得られたノイズデータのエネルギースペクトル	102
7.31	X 線パルスを取得したときの熱浴温度	103
7.32	吸収体厚が $300~nm$ の Au ステム型吸収体を搭載した TES カロリメータの ${ m MnK}lpha$ と ${ m MnK}eta$ のエネ	
	ルギーと PHA の関係	103
7.33	JAXA120 Ea4 D3 の $MnK\alpha$ と $MnK\beta$ のエネルギーと PHA の関係	104
A.1	スピンコーター	ii

表目次

4.1	本製作における TES カロリメータの設計目標	40
4.2	本製作における TES カロリメータの設計詳細	41
4.3	検証マトリックス	41
5.1	本章で行った条件出しと詳細....................................	44
5.2	電極層用レジストの成膜条件....................................	45
5.3	2 cm 基板における吸収体構造形成用レジストの成膜条件と膜厚測定結果	47
5.4	Au の電解析出条件	50
5.5	成膜条件と室温 (300 K) とヘリウム温度 (4 K) での抵抗値の測定結果と計算した RRR の結果	51
5.6	電極層形成用レジストの成膜条件	55
5.7	吸収体形成用レジストの成膜条件	56
5.8	3ich 基板での Au の電解析出条件	57
6.1	Au オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作プロセスフロー	62
6.2	Au オーバーハング吸収体成膜での電解析出条件	70
6.3	TES-HighSpeed レシピ	71
7.1	性能評価を行った素子の概要	81
7.2	JAXA122Ea4 の RT 特性のフィッティング結果	82
7.3	JAXA123 Ea4 の定電圧バイアス下での超伝導転移温度	83
7.4	JAXA123 Ea4 各素子の超伝導転移温度 $T_{\rm c}$ 、TES カロリメータと熱浴間の熱伝導度 G_0 、熱伝導度の	
	温度依存性のべき n	88
7.5	X 線照射試験でのバイアス条件	88
7.6	JAXA123 Ea4 A1 と D1 の製作結果と測定結果からの計算した動作点における設計値	89
7.7	性能評価を行った素子の概要	95
7.8	JAXA120 Ea4 D3 の RT 特性のフィッティング結果	95
7.9	JAXA120 Ea4 D3 の超伝導転移温度 T_c 、TES カロリメータと熱浴間の熱伝導度 G_0 、熱伝導度の温 度体を性のべき π	06
7 10	反因于且のべて n · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	00
7.10	JAAA120 Eat D5 A 標業和政策でのパイノス来日 $IA YA 123 E_0 A A 1 > D1 の制作結果>測完結果からの計算した動作占における設計値$	00
/.11	JAAA125 Eat AI C DI の表下和木と例定和木がらの可昇した動下点におりる改可阻	99
8.1	性能評価の結果と検証マトリックス	107
A.1	使用したレジストとカタログスペック	i
A.2	スピンコーターのレシピ条件....................................	ii

第1章

物理背景

1.1 X 線精密分光

自ら光を放出し輝く星を恒星といい、銀河は恒星の集まりからなる。そして、銀河は銀河団という集団を形成する。 銀河団の重力ポテンシャルは電磁波で観測することができない暗黒物質により形成されていると考えられており、銀 河はこのポテンシャルに束縛されている。また、銀河団内の空間は銀河団の重力ポテンシャルに束縛された 10⁸ K 程 度の高温ガスに満たされており、その総重量は個々の銀河の質量和よりも大きい。高温ガス内には重元素が存在して おり、銀河風として放出される星間物質と大きく関わりがある。さらに、銀河団同士は衝突合体を繰り返し、より大 きな銀河団となる。宇宙は、以上のように小さな構造が集まることで大規模な構造を作り出すため、宇宙進化の理解 には、天体の進化と互いの関連を観測的に見極めることが重要となる。

宇宙の観測においては様々な波長帯の光が利用されている。その中で、特に波長が~10⁻¹¹-10⁻⁸ m ほどである 電磁波を X 線と呼ぶ。X 線は高い物質透過力を持つが、地球の大気を透過することはできない。そこで、観測ロケッ トや人工衛星によって地球大気外に観測装置を運ぶことで観測が行われる。宇宙で観測される X 線は高エネルギー電 子によるシンクロトロン放射や逆コンプトン散乱によって、あるいは高温物質からの熱制動放射や黒体放射によって 生み出される。したがって、宇宙の高エネルギー現象を捉えるには適した電磁波であるといえる。また、エネルギー が 100 eV から 10 keV の間には、宇宙に存在する主要な重元素である炭素、窒素、酸素、ネオン、マグネシウム、シ リコン、硫黄、アルゴン、カルシウム、鉄等の K 輝線、K 吸収端が存在するため、重元素の量を知るためにも X 線は 有用である。さらに、これらの輝線のエネルギーシフトおよび輝線幅はこれらの元素を含むガスの運動状態を知るの にも有効である。以上から、X 線による精密分光観測は、宇宙の高エネルギー現象を解き明かすのに重要な手段の一 つである。

1.2 ダークバリオン

現在では、宇宙に存在する全バリオンの量は A – – CDM モデルのもとで詳細に調べられている。NASA の WMAP 衛星や ESA の Planck 衛星での宇宙マイクロ波背景放射観測を中心とした、様々な観測事実から現在の宇宙を構成す る物質のうちおよそ 5% がバリオンである。星や銀河、銀河団ガスとして存在するバリオンの観測は様々な波長で進 められてきたが、半分程度は直接観測されていない。これらの直接観測されていないバリオンのことはダークバリオ ン (ミッシングバリオン) と呼ばれている。

ダークバリオンの一部は [1], [2] の宇宙流体シミュレーションにより、10⁵–10⁷ K のフィラメント状に分布した ガスとなって存在することが示唆されている。この希薄なガスを中高温銀河間物質 (Warm Hot Intergalactic Medium; WHIM) と呼ぶ。WHIM は他の温度帯のガスよりも暗黒物質の分布をトレースしていることが、[3] の数値シミュレー ションで示されており、WHIM の空間分布を明らかにすることができれば、暗黒物質の謎へ迫ることができる。



Figure 5: The ion fraction distributions, represented as column densities for a total gas column of 10^{19} cm⁻² and metallicities of 0.1 Z_{\odot} . The UV lines are effective at detecting absorbing gas for T < 5×10⁵ K and currently have significantly better sensitivity than the X-ray OVII K α and OVIII K α lines, which are good diagnostics for gas temperatures in the range $0.5-5\times10^6$ K. Absorption by OVII, OVIII and NeIX have been detected at z = 0, probably because of the higher metallicity of Galactic halo gas. The NVII line (dotted), which has a hyperfine line in the radio region, is also shown.

図 1.1: ガスの柱密度を 10¹⁹ cm⁻²、金属量を太陽の 10% と仮定したときの原子の電離状態の柱密度分布 [4]

 10^5-10^7 K の WHIM は図 1.1 のように電離酸素 (OVI, OVII, OVIII) の組成比が最も大きい。これらの輝線吸収 線を観測するために、紫外線や X 線領域において WHIM 探索が行われてきた。しかし、紫外光による OVI Lya の 吸収線観測、WHIM の背景にブレーザーなどの点光源が必要となり、観測位置が制限されてしまう。一方 X 線によ る OVII, OVII の輝線吸収線の観測を通じて、WHIM の空間分布を明らかにすることができる。WHIM の空間分布 を明らかにするためには、エネルギー分解能と視野の両立が必要であるが、現在の X 線天文衛星ではこれらを両立す るものは存在しない。そこで、WHIM の空間分布やダークバリオン、暗黒物質の謎へ迫るためには次世代の X 線天 文衛星が求められる。

1.3 次世代の X 線検出器と天文衛星

1.3.1 X線検出器

銀河団の高温ガスの熱運動速度は 100–1000 km/s であり、乱流や銀河団の合体による高温ガスの内部運動の速度 も同程度と考えられているため、これらの内部構造を知るためには 100 km/s の速度が分離できるエネルギー分解能 が必要である。また、プラズマの精密な運動状態を知るためには、各輝線の微細構造を分解できるエネルギー分解能 を持つことが求められる。微細構造が分解できない場合、プラズマの状態によって輝線の中心エネルギーが変わるこ とでエネルギーの決定精度が制限される。100 km/s の運動によって起こるドップラーシフトは、6.7 keV の鉄輝線に 対して 2.2 eV である。これは運動状態によってエネルギーのシフトもしくは輝線の広がりとして検出されるため、天 体およびガスの運動を正確に知るためには、6 keV の X 線に対するエネルギー分解能として数 eV ($E/\Delta E > 1000$) が求められる。

エネルギーを測定する X 線検出器には様々な種類があり、代表的なものに電荷結合素子 (Charge Coupled Device; CCD) 検出器、マイクロカロリメータがある。CCD 検出器は個々のピクセルが半導体基板からなる。X 線の入射に よって生じた電子とホールのペアのうち、電子を読み出すことで電子数に対応する X 線のエネルギーを見積もる。生 成した電子は印加電圧によってドリフトされ、バケツリレー方式で隣のピクセルへ次々に転送されることで信号を読 み出す。エネルギー分解能は 数 100 eV である。新たな X 線精密検出器として、X 線マイクロカロリメータがある。 X 線マイクロカロリメータは X 線の入射による素子の温度上昇からもとの X 線のエネルギーを見積もる検出器であ り、極低温 (~ 100 mK) において高いエネルギー分解能 (数 eV) を達成可能な検出器である。2016 年に打ち上げられ たひとみ衛星や 2023 年度打ち上げ予定の XRISM 衛星には半導体温度計型 X 線マイクロカロリメータが用いられて いる。さらに次世代の検出器として、温度計の感度がさらに良い超伝導転移端 (Transition Edge Sensor; TES) 型 X 線 マイクロカロリメータ (TES カロリメータ) の開発が我々の研究グループを含めて世界中で進められている。後述する WHIM の空間分布の観測を目指した SuperDIOS 計画はこの TES 型 X 線マイクロカロリメータの搭載が予定されて いる。

1.3.2 SuperDIOS 計画

X 線によって WHIM の空間分布を観測するために、軟 X 線精密分光ミッションである SuperDIOS (Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor) 計画が進められている。SuperDIOS 計画は、DIOS 計画の後継であり、宇宙に広がる 電離した銀河間物質からの酸素輝線検出を通じて WHIM の空間分布を明らかにし、ダークバリオンの物理的性質を 探ることを主たる目的としたものである。酸素輝線である OVII (561 eV, 568 eV, 574 eV) と OVIII (653 eV) を精 密分光することで赤方偏移 0 < z < 0.3 の範囲に存在する 10^5 – 10^7 K の WHIM を直接検出する。これによって可 視光での銀河の赤方偏移サーベイや X 線の銀河団観測と相補的関係となることが期待されている。同時に、OVII と OVIII の輝線吸収強度比、輝線の微細構造と輝線幅から、銀河団物質の化学史、ガスの加熱機構、運動状態等も明らか にする。幅広い視野を利用した X 線精密分光観測により、WHIM の 3 次元マッピングを目指している。SuperDIOS 計画では、数 eV のエネルギー分解能を持つ TES カロリメータを約 30,000 画素搭載予定であり、視野は $1^\circ \times 1^\circ$ 、 0.6 keV での有効面積は > 1000 cm² が見込まれている。図 1.2 に 2022 年時点での SuperDIOS 計画の要求について 示す [5]。

Weight	2,000–3,000 kg
Launch vehicle	H2 or H3
Area at 0.6 keV	> 1,000 cm ²
Focal length	about 3.5 m
Angular resolution	~15 arcsec
Field of View	~1 degree
type of calorimeter	Transition Edge sensor (TES)
number of pixels	~ 30,000
cooling system	Cryogen-free cooling chain with mechanical Joule-Thomson cryocoolers
Signal readout	Microwave SQUID multiplexer (MW-MUX)
Field of View	~1 degree
Option	Gamma-ray burst monitor

図 1.2: SuperDIOS の基本性能 [5]

1.4 我々の研究グループの TES カロリメータ開発

TES カロリメータの開発には我々の研究グループも取り組んでおり、2009 年には、5.9 keV の X 線に対して半値 全幅で 2.8 eV のエネルギー分解能を達成している [6]。しかし、従来の TES カロリメータの X 線吸収体は TES より も小さいため、検出器として重要な開口率を向上させることはできない。そこで、TES よりも広い面積を持ち、外側 に張り出した構造である吸収体 (マッシュルーム型吸収体)の開発が進められきた。マッシュルーム型吸収体は検出器 の開口率を向上させることが可能であるが、問題となる点が三つある。1 つ目は吸収体のサイズが大きくなると素子 の熱容量が大きくなるため、エネルギー分解能の追求には不利となる点である。2 つ目は面積が広いと吸収体内部で の熱拡散過程がばらつきやすくなり、X 線パルスのばらつきを引き起こすためエネルギー分解能が劣化しやすい点で ある。3 つ目は、吸収体を笠のように張り出させるという特殊な形状のため、構造形成が非常に難しい点である。

1.5 本修士論文の目的

次世代の X 線天文衛星に搭載させるための X 線検出器はエネルギー分解能、視野、開口率などの性能を両立させ る必要がある。我々の研究グループでは、次世代の X 線精密分光器である TES カロリメータの開発に取り組み、発 展を目指してきた。開口率の飛躍的向上を目的としたマッシュルーム型吸収体は、熱容量の増大および熱拡散過程の ばらつき、特殊な構造形成の難しさなどの問題を抱えている。

本修士論文では、TES よりも大面積の吸収体として、外側に張り出した吸収体を複数の柱で支えて自立させる構造 である"オーバーハング吸収体"の形成とそれを搭載した TES カロリメータの製作・性能評価を行う。4 章では、X 線 天文衛星への搭載を見据え、SuperDIOS 計画の要求値に準じて TES カロリメータの性能を決定した。そして要求を 満たす吸収体の厚み検討をエネルギー分解能や飽和エネルギー、熱拡散過程を加味して行った。その後、熱伝導性向 上のための電解析出法の導入を含めて吸収体構造の形成のための条件出しを行い、Au オーバーハング吸収体のテスト 製作を行った (5 章)。6 章では、条件出しの結果をもとにオーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータを製作 することで、製作プロセスの検証を行った。その結果、チップ化の段階にプロセスの改善の余地があることがわかっ た。製作を行ったいくつかの素子のうち、極低温環境下で性能評価試験を行った (7 章)。以下図 1.3 に本修士論文の 流れをまとめる。



第2章

X線マイクロカロリメータの動作原理

2.1 X線マイクロカロリメータ

X線マイクロカロリメータは、吸収体に入射した X線光子1個1個による素子の温度上昇を測定することで X線 エネルギーを高精度で測定可能な検出器である。動作温度は極低温 (~ 100 mK) であり、熱雑音を低減することに よって高いエネルギー分解能を実現する。

X 線マイクロカロリメータの概略図を図 2.1 に示す。X 線マイクロカロリメータは、吸収体、温度計、熱リンク、 熱浴から構成されている。吸収体に入射した光子は光電効果によって吸収され、そのエネルギーが熱に変化する。入 射する光子のエネルギー E に対して、素子の温度変化 ΔT は、X 線マイクロカロリメータの吸収体と温度計の熱容 量を C とすると、

$$\Delta T = \frac{E}{C} \tag{2.1}$$

と書ける。この温度変化を温度計の抵抗変化として測定する。温度計部分は熱リンクで極低温の熱浴に繋がれてい る。それにより、吸収体で発生した熱は温度計部分に伝わった後、熱リンクを通り熱浴に逃げ、素子自体はゆっくり と元の定常状態に戻る。熱リンクの熱伝導度が*G* であるとき、素子の温度変化の時間変化は

$$C\frac{d\Delta T}{dt} = -G\Delta T \tag{2.2}$$

で表される。したがって、素子の温度上昇は

$$\Delta T \propto \exp\left(-t/\tau_{\rm the}\right) \tag{2.3}$$

で書くことができ、時定数

$$\tau_{\rm the} = \frac{C}{G} \tag{2.4}$$

で指数関数的に減衰する。

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大きく制限される。素子の温度をT、ボルツマン定数を $k_{\rm B}$ とすると、吸収体と温度計中のフォノン数は $N_{\rm ph} \sim CT/k_{\rm B}T = C/k_{\rm B}$ と書けるため、素子の熱揺らぎ ΔU は

$$\Delta U \sim \sqrt{N_{\rm ph}} k_{\rm B} T = \sqrt{k_{\rm B} T^2 C} \tag{2.5}$$

で表される。より一般的な X 線マイクロカロリメータの固有なエネルギー分解能は半値全幅 (Full Width Half Maximam; FWHM) で、

$$\Delta E_{\rm FWHM} = 2.35\xi \sqrt{k_{\rm B}T^2C} \tag{2.6}$$

と書ける [7]。ただし、 ξ は温度計の感度や動作条件によって決まるパラメータであり、温度感度 α に対して $\xi \sim 1/\sqrt{\alpha}$ の依存性を持つ。熱容量の温度依存性と式 (2.6) から、エネルギー分解能は温度に比例し、極低温 (~ 100 mK) で非常に高いエネルギー分解能が達成されることがわかる。



low temperature heat sink (~ 100 mK)

図 2.1: X 線マイクロカロリメータの構造図。

2.2 吸収体

吸収体に入射した X 線光子は光電効果によって吸収される。エネルギー分解能は式 (2.6) で書けるため、吸収体の 熱容量 C を小さくする、つまり吸収体の大きさを小さくすればエネルギー分解能は向上する。一方、X 線光子に対す る開口率を向上させるためには、吸収体の大きさを大きくする必要がある。吸収体の大きさはこれらのトレードオフ で決まる。

吸収体の選択には、熱化と熱拡散を考慮する必要がある。ここでの熱化とは X 線光子が入射した吸収体が一様な温 度になることであり、熱拡散とは吸収体で発生した熱が吸収体から温度計までに拡散することである。熱化や熱拡散 が遅いと、熱が吸収体から温度計に伝達するまでに他の部分から逃げてしまうため、エネルギー分解能が悪化する。 また、X 線の吸収位置によって熱化や熱拡散の過程がばらつくと、入射イベントごとに観測される波形にばらつきが 生じ、SN 比とは別にエネルギー分解能が悪化することに繋がる。熱化や熱拡散過程を一様にするためには、温度計 にエネルギーが移動する前に吸収体内部で熱化や熱拡散が一様に起こる必要がある。

以上より、吸収体として用いる物質は高い吸収効率、小さい熱容量、熱化と熱拡散過程の一様性の条件を満たすことが必要となる。

2.3 温度計

X線マイクロカロリメータにおける温度計では、物質の抵抗値が温度によって変化することを利用する。温度計の 感度は以下で定義される無次元量 α によって記述される。

$$\alpha \equiv \frac{d\log R}{d\log T} = \frac{T}{R} \frac{dR}{dT}$$
(2.7)

ここで、Tは温度計の温度、RはTにおける抵抗値である。

温度計の感度 α を大きくすれば、微小な温度変化に対して大きな抵抗変化を測定できるためエネルギー分解能を向 上させることが可能である。 X線マイクロカロリメータの温度計には半導体や金属を用いたものがある。

2.3.1 半導体温度計

半導体温度計は、半導体サーミスタの抵抗値の温度依存性を利用した温度計である。例えば、Si に不純物をドープ することで極低温での高い温度感度を実現する。半導体サーミスタは温度が低くなるに従い、抵抗値が大きくなると いう特徴を持つ。半導体温度計の典型的な温度感度は $|\alpha| \sim 6$ である。2023 年度打ち上げ予定である XRISM (X-Ray Imaging and Spectroscopy Mission) 衛星に搭載される *Resolve* では 6 × 6 画素の半導体温度計を用いた X 線マイクロ カロリメータが搭載される予定であり、要求性能は 7 eV(FWHM)@6 keV となっている [8]。

2.3.2 転移端型温度計

転移端型温度計 (Transition Edge Sensor; TES) とは金属の超伝導特性を利用した温度計である。図 2.2 に金属の超 伝導転移端の概略図を示す。超伝導転移は典型的に数 mK という非常に狭い温度範囲で起こり、超伝導転移端前後の 抵抗は急激に変化するため、式 (2.7) で定義した温度計の感度は 1000 にも達する。これにより、TES を用いた X 線 マイクロカロリメータ (TES 型 X 線マイクロカロリメータ; 以下 TES カロリメータ) は従来の半導体温度計からなる X 線マイクロ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。TES カロ リメータでは、吸収体の熱容量に対してマージンを取ることができるため、熱化の速い常伝導金属を使用したり、大 きな吸収体を用いて開口率を大きくすることができる。



図 2.2: 超伝導転移端の概略図。

TES カロリメータでは、TES の超伝導臨界温度 (*T*_c) で動作温度が決定する。このため、高いエネルギー分解能を 実現する上では TES 自体の *T*_c を制御することが重要である。TES の *T*_c の制御には、TES を金属の二層薄膜にする ことによる近接効果が用いられている。

近接効果とは、超伝導体に対して常伝導体を接合させると、超伝導体に存在するクーパー対が常伝導体に漏れ込む ことで金属単体よりも T_c が下がる効果である。

2.4 電熱フィードバック

TES は温度計として高い感度を持っているが、感度を持つ温度域が数 mK と非常に狭い。つまり TES カロリメー タの動作温度を TES の超伝導転移端中に保つ必要がある。このため、TES カロリメータに対して、電気的に強い フィードバックをかける。これを電熱フィードバック (Electro-Thermal Feedback; ETF) と呼ぶ [9]。

本節では、電熱フィードバック下における TES カロリメータの動作について述べる。

2.4.1 電熱フィードバック下での温度変化に対する応答

図 2.3(a) に示すように TES に対して定電圧をかける場合 (定電圧バイアス) を考える。熱入力によって TES の温度 が上昇すると、TES の超伝導転移端上で抵抗値は急激に増加する。抵抗値の増加に伴い、定電圧バイアス下のため電 流は減少し、ジュール発熱も低下する。このように、熱入力に対して、温度を下げる方向にジュール発熱量が変化し 強い負のフィードバックが働くため、素子の温度が安定に保たれる。実際には、室温系での配線抵抗のため TES と並 列に数 mΩ 程度のシャント抵抗を繋ぐことで擬似的に定電圧バイアスを実現する (図 2.3(b))。以下では理想的な定電 圧バイアスで TES カロリメータが動作している場合を考える。熱伝導度 *G* は、発熱量 *P* と温度 *T* を用いて

$$G \equiv \frac{dP}{dT} \tag{2.8}$$

で定義される。一般的な熱伝導度は温度依存性を持ち、

$$G = G_0 T^{n-1} (2.9)$$

という関係がある。電子が熱伝導を担う場合はn = 2、格子振動が熱伝導度を担う場合にはn = 4となる。熱浴と TES の間の熱伝導度について考えると一般的に TES の温度 T と熱浴の温度 T_{bath} の間には $T \gg T_{\text{bath}}$ の関係がある ので、熱浴との熱伝導度による熱の流れは

$$P = \int_{T_{\text{bath}}}^{T} G \, dT = \frac{G_0}{n} (T^n - T_{\text{bath}}^n) \tag{2.10}$$

と式 (2.8)を積分することで得られる。

TES へのバイアス電圧を $V_{\rm b}$ 、平衡状態 ($T = T_0$) での抵抗値を R_0 とすると、TES におけるジュール発熱 $P_{\rm b} = V_{\rm b}^2/R_0$ は、TES カロリメータから熱浴へ流れる熱量と釣り合っているので、

$$P_{\rm b} = P \Rightarrow P_{\rm b} = \frac{G_0}{n} (T^n - T^n_{\rm bath}) \tag{2.11}$$



図 2.3: 定電圧バイアスの概略図。(a) 理想的な定電圧バイアス。(b) シャント抵抗を用いて擬似的に作り出した定電圧バイアス。

と書ける。微小な温度上昇 $\Delta T \equiv T - T_0$ で素子の温度が T になったとき、内部エネルギーの変化と熱量の収支が等 しいことから

$$C\frac{dT}{dt} = \frac{V_{\rm b}^2}{R(T)} - \frac{G_0}{n}(T^n - T_{\rm bath}^n)$$
(2.12)

が成り立つ。温度上昇 ΔT は一次近似で

$$C\frac{d\Delta T}{dt} \sim -\frac{V_{\rm b}^2}{R_0^2} \Delta R - G_0 T^{n-1} \Delta T$$
(2.13)

$$=\frac{P_{\rm b}\alpha}{T}\Delta T - G(T)\Delta T \tag{2.14}$$

となる。ただし、 ΔR は温度上昇に伴う抵抗値の変化を表す。式 (2.14)の解は、

$$\Delta T = \Delta T_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}}\right) \tag{2.15}$$

と書ける。ここで、_{7eff}は TES への熱流入を考慮した実行的な温度変化に対する時定数 (有効時定数) であり

$$\tau_{\rm eff} \equiv \frac{C/G}{1 + \frac{P_{\rm b}\alpha}{GT}} = \frac{\tau_{\rm the}}{1 + \frac{P_{\rm b}\alpha}{GT}}$$
(2.16)

式 (2.11) から $au_{
m eff}$ は

$$\tau_{\rm eff} = \frac{\tau_{\rm the}}{1 + \frac{\alpha}{n} \left\{ 1 - \left(\frac{T_{\rm bath}}{T}\right)^n \right\}}$$
(2.17)

と書くことができ、熱浴の温度が TES の温度よりも十分に低い場合は

$$\tau_{\rm eff} \sim \frac{\tau_{\rm the}}{1 + \frac{\alpha}{n}} \tag{2.18}$$

と近似できる。式 (2.18) から、温度計の感度 α が大きい場合は、電熱フィードバックによって有効時定数が小さくな るため、X 線光子に対する TES カロリメータの応答速度が速くなることがわかる。また、電熱フィードバック下に おいて X 線光子のエネルギーは X 線光子が入射した時の電流値と平衡状態での電流値の変化 Δ*I* として読み出され、 式 (2.7) を用いると

$$\Delta I = \frac{V_{\rm b}}{R(T_0 + \Delta T)} - \frac{V_{\rm b}}{R(T_0)} \sim -\frac{\Delta R}{R} I \sim -\alpha \frac{E}{CT} I$$
(2.19)

となる。

2.5 X線パルスによる TES カロリメータの応答

以下では、吸収体と TES の間の熱伝導度が有限の場合を考える。このとき、吸収体と TES は図 2.4 のようなモデ ルで表される。吸収体で吸収された X 線によるエネルギーは熱に変換されたあと、TES に伝わるまでに有限の時間 がかかり、それまでの時間は吸収体と TES の間に温度差が生じる。



low temperature heat sink (~ 100 mK)

2.5.1 温度変化を表す方程式

図 2.4 のように、TES の熱容量と温度をそれぞれ C_{TES} 、 T_{TES} 、吸収体の熱容量と温度をそれぞれ C_{abs} 、 T_{abs} とし、TES と熱浴間の熱伝導度を G_1 、吸収体と TES 間の熱伝導度を G_2 とする。

$$\frac{d\Delta T_{\rm abs}}{dt} = -\frac{G_2}{C_{\rm abs}} (\Delta T_{\rm abs} - \Delta T_{\rm TES})$$
(2.20)

$$\frac{d\Delta T_{\rm TES}}{dt} = -\frac{G_1}{C_{\rm TES}} \Delta T_{\rm TES} - \frac{G_2}{C_{\rm TES}} (\Delta T_{\rm abs} - T_{\rm TES}) - \frac{P_b \alpha}{C_{\rm TES} T_{\rm TES}} \Delta T_{\rm TES}$$
(2.21)

ここで、式 (2.21)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。これらの式を変形すると

$$\frac{d}{dt}(\Delta T_{\rm abs} - \Delta T_{\rm TES}) = -\left(\frac{G_2}{C_{\rm abs}} + \frac{G_2}{C_{\rm TES}}\right)(\Delta T_{\rm abs} - \Delta T_{\rm TES}) + \frac{G_1}{C_{\rm TES}}\left(1 + \frac{\alpha P_{\rm b}}{G_1 T_{\rm TES}}\right)\Delta T_{\rm abs}$$
(2.22)

$$\frac{d}{dt} \left(\Delta T_{\text{TES}} + \frac{C_{\text{abs}}}{C_{\text{TES}}} \Delta T_{\text{abs}} \right) = -\frac{G_1}{C_{\text{TES}}} \left(1 + \frac{\alpha P_{\text{b}}}{G_1 T_{\text{TES}}} \right) \Delta T_{\text{TES}}$$
(2.23)

となる。系全体の温度が変化する時間に比べ十分短い時間で $\Delta T_{\rm abs}$ は $\Delta T_{\rm TES}$ に一致すると仮定すると、 $G_2 \ll G_1(1 + \alpha P_{\rm b}/G_1T_{\rm TES})$ を満たす。これより、式 (2.22)の右辺第二項は無視でき、

$$\frac{d}{dt}(\Delta T_{\rm abs} - \Delta T_{\rm TES}) = -\left(\frac{G_2}{C_{\rm abs}} + \frac{G_2}{C_{\rm TES}}\right)(\Delta T_{\rm abs} - \Delta T_{\rm TES})$$
(2.24)

と書ける。ここで、

$$\frac{1}{C_{\rm int}} \equiv \frac{1}{C_{\rm TES}} + \frac{1}{C_{\rm abs}}$$
(2.25)

と定義すると、式 (2.24)の解は

$$(\Delta T_{\rm abs} - \Delta T_{\rm TES}) \propto \exp\left[-\left(\frac{G_2}{C_{\rm int}}\right)t\right]$$
 (2.26)

となり、時定数 *τ*2 は

$$\tau_2 = \frac{G_2}{C_{\text{int}}} = \frac{C_{\text{TES}}C_{\text{abs}}}{(C_{\text{TES}} + C_{\text{abs}})G_2}$$
(2.27)

図 2.4: 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

で書ける。つまり、TES に熱が伝わってから τ_2 だけ時間が経つと、吸収体と TES の温度が一致する。 τ_2 経過後は $\Delta T_{\rm abs} \rightarrow \Delta T_{\rm TES}$ となるので、式 (2.21) より

$$\left(1 + \frac{C_{\rm abs}}{C_{\rm TES}}\right) \frac{d}{dt} \Delta T_{\rm TES} = -\frac{G_1}{C_{\rm TES}} \left(1 + \frac{\alpha P_{\rm b}}{G_1 T_{\rm TES}}\right) \Delta T_{\rm TES}$$
(2.28)

$$\frac{d}{dt}\Delta T_{\rm TES} = -\frac{G_1}{C_{\rm TES} + C_{\rm abs}} \left(1 + \frac{\alpha P_{\rm b}}{G_1 T_{\rm TES}}\right) \Delta T_{\rm TES}$$
(2.29)

(2.30)

となり、これを満たす ΔT_{TES} は

$$\Delta T_{\rm TES} \propto \exp\left[-\frac{G_1}{C_{\rm TES} + C_{\rm abs}} \left(1 + \frac{\alpha P_{\rm b}}{G_1 T_{\rm TES}}\right)\right]$$
(2.31)

である。従って時定数 τ1 は

$$\tau_{1} = \frac{C_{\text{TES}} + C_{\text{abs}}}{G_{1}} \frac{1}{1 + \frac{\alpha P_{\text{b}}}{G_{1} T_{\text{TES}}}}$$
(2.32)

となる。これにより、吸収体と TES の温度が一致してから時定数 τ_1 で定常状態に戻る。この τ_1 は TES カロリメータの有効時定数に対応する。

2.5.2 X線入射後の波形

X線が吸収体に入射して吸収された場合と TES に入射して吸収された場合の波形について考える。X線光子の入 射による温度変化は出力電流の変化に対応するため、吸収体と TES の温度変化について議論する。

エネルギー E の X 線が吸収体に入射した場合、吸収体の温度は $\Delta T_{abs} = E/C_{abs}$ だけ上昇する。その熱は時定数 τ_2 (式 (2.27)) で吸収体から TES に伝わりそれぞれの温度は等しくなる。その後時定数 τ_1 (式 (2.32)) で TES と吸収体 は定常状態へ戻る。これより、TES の温度はまず時定数 τ_2 で立ち上がり、時定数 τ_1 で定常状態になるので、TES の 温度変化 ΔT_{TES} は

$$\Delta T_{\text{TES}} \propto \left[-\exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right]$$
 (2.33)

に従って変化する。



図 2.5: X 線光子が TES カロリメータに入射したときの熱の流れ。(a): 吸収体に X 線光子が入射した場合。(b): TES に X 線光子 が入射した場合。

次にエネルギー *E* の X 線が TES に入射した場合、TES の温度は $\Delta T_{\text{TES}} = E/C_{\text{TES}}$ だけ上昇する。 τ_2 経過後に 吸収体の温度と一致し、時定数 τ_1 で定常状態に戻る。つまり、TES の温度は時定数 τ_2 で減衰し、吸収体の温度と一 致した後、時定数 τ_1 で減衰して定常状態となる。これより、TES の温度変化 ΔT_{TES} は

$$\Delta T_{\text{TES}} \propto \left[\exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right]$$
 (2.34)

となる。

2.6 固有ノイズ

TES カロリメータのエネルギー分解能を見積もるためには、測定に伴うノイズを評価する必要がある。ノイズに は、バックグラウンドの放射、熱浴の熱揺らぎ、外部磁場、1/f 揺らぎなど様々な起源のものが存在する。X 線マイ クロカロリメータには2種類の固有ノイズが存在する。一つは温度計の抵抗内部の電子の不規則な熱運動によって生 じるジョンソンノイズである。もう一つは、熱浴と TES との間の熱伝導度が有限であるために発生するフォノンノイ ズである。これらのノイズは X 線マイクロカロリメータを使う上では避けることができず、原理的なエネルギー分解 能はこれらによって制限される。

2.7 最適フィルタ処理

X線マイクロカロリメータは、原理的に高いエネルギー分解能を達成することができるが、実際にはパルス波形が ノイズによって変形されるために、単純にパルスのピーク値をとっただけでは良いエネルギー分解能を得ることがで きない。そこで一般的には、以下で示すような最適フィルタ処理を利用することで、ノイズによる影響を取り除くこ とができる。最適フィルタ処理では測定で得られた X線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。

測定により得られたパルスを D(t) とし、周波数空間でこのパルス D(f) が

$$D(f) = A \times M(f) + N(f)$$
(2.35)

と表されるとする。ただし、*M*(*f*) は理想的なパルス (モデルパルス)、*N*(*f*) はノイズのスペクトルである。また *A* は振幅を表し、X 線パルスが相似形と仮定すると、全てのパルスは *A* × *M*(*f*) と書ける。実際に得られたパルスとモ デルパルスの差が小さくなるように、振幅 *A* の値を最小二乗法で決定することを考える。実際に測定で得られたパル スとモデルパルスの差を

$$\chi^{2} \equiv \int \frac{|D(f) - A \times M(f)|^{2}}{|N(f)|^{2}} df$$
(2.36)

と定義すると、 χ^2 を最小にする A は

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{DM^* + D^*M}{2N^2} df}{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{|M|^2}{|N|^2} df}$$
(2.37)

で与えられる。ただし、 D^* は D の複素共役を表す。D(f) と M(f) は実関数のフーリエ成分であるので、一般的に $D(-f) = D(f)^*$ 、 $M(-f) = M(f)^*$ を満たす。従って

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D(f)M(f)^*}{2|N|^2} df = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{M(f)D(f)^*}{2|N|^2} df$$
(2.38)

が成り立つので、A は

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{DM^{*}}{|N|^{2}} df}{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{|M|^{2}}{|N|^{2}} df} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D}{M} \left|\frac{M}{N}\right|^{2} df}{\int_{-\infty}^{\infty} \left|\frac{M}{N}\right|^{2} df}$$
(2.39)

となる。式 (2.39) から A は SN 比 $[M(f)/N(f)]^2$ を重みとした場合の D(f)/M(f) の平均値となっており、

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} D(t) \mathscr{F}^{-1} \left(\frac{M(f)}{|N(f)|^2}\right) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} \left|\frac{M}{N}\right|^2 df}$$
(2.40)

と変形できる。ここで、 \mathscr{F}^{-1} は逆フーリエ変換を表し、 $T(t) \equiv \mathscr{F}^{-1}(M(f)/|N(f)|^2)$ を最適フィルタ処理のテンプレートと呼ぶ。これより、テンプレートを用いるとパルスの高さ *H* は

$$H = \text{Const.} \int_{-\infty}^{\infty} D(t)T(t) dt$$
(2.41)

または、離散的なデータ点に対して

$$H = \text{Const.} \sum_{i} D_i(t) T_i(t)$$
(2.42)

となる。ただし、Const. は最適な規格化定数、*D_i* と *T_i* はそれぞれデジタル化されたパルスデータとテンプレートで ある。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) を用 いれば良い。

最適フィルタ処理を施した場合のエネルギー分解能は式 (2.36)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、雑音等価電力 NEP を用いて

$$\Delta E_{\rm rms} = \left(\int_0^\infty \frac{4}{\text{NEP}^2(f)} \, df \right)^{-1/2} \tag{2.43}$$

と表される。

2.8 超伝導量子干渉計を用いた読み出し系

TES カロリメータの電流変化を読み出すには、低インピーダンスな電流計が必要である。そこで、微小な磁束の変 化量を利用した超伝導量子干渉計 (Superconductiong Quantum Interference Device; SQUID) を TES カロリメータ読 み出し系の回路に電流計として組み込む。

2.8.1 dc-SQUID

SQUID は超伝導体におけるクーパー対の波動関数の干渉を原理としている。2 つの超伝導体の間を弱く結合させる と、クーパー対の波動関数が漏れ込み、超伝導電流が流れる。このように超伝導体を弱く結合させた素子をジョセフ ソン接合といい、dc-SQUID は 2 つのジョセフソン接合を並列に並べたリング状の素子である。図 2.6 に dc-SQUID の模式図を示す。2 つのジョセフソン接合の位相差をそれぞれ θ_1 、 θ_2 、SQUID への印加電流を I_B 、2 つのジョセフ ソン接合に流れる電流をそれぞれ I_1 、 I_2 としている。



図 2.6: dc-SQUID の模式図。

2つの接合間の位相差とリングを貫く磁束の間には

$$\theta_2 - \theta_1 = 2\pi \frac{\Phi}{\phi_0} \tag{2.44}$$

の関係がある。ここで、 Φ はリングを貫く磁束、 ϕ_0 は磁束量子でプランク定数hと電気素量eから

$$\phi_0 = \frac{h}{2e} \sim 2.07 \times 10^{-15} \text{ Wb}$$
(2.45)

と定義される定数である。ジョセフソン接合が超伝導状態であるとき、SQUID へのバイアス電流 IB は

$$I_{\rm B} = I_0 \cos\left(\pi \frac{\Phi_{\rm exp}}{\phi_0}\right) \sin\left(\theta_1 - \pi \frac{\Phi_{\rm exp}}{\phi_0}\right)$$
(2.46)

と書ける。ただし、 I_0 はジョセフソン接合の臨界電流、 Φ_{exp} は外部磁束である。したがって、SQUID が超伝導状態である最大の電流、つまり SQUID の臨界電流 I_c は

$$I_{\rm c} = 2I_0 \left| \cos \left(\pi \frac{\Phi_{\rm exp}}{\phi_0} \right) \right| \tag{2.47}$$

となる。このように、SQUID の臨界電流は外部磁場の関数となる。2*I*₀ よりも大きな印加電流で SQUID を動作さ せることで、臨界電流が変化し、外部磁束変化に対する応答として出力電圧が変化するようになる。このことから、 SQUID の隣に磁束を入力するためにコイルを置くことによって、SQUID を感度の高い電流計として扱うことが可能 になる。

2.8.2 磁束固定ループ

SQUID は外部磁束に対して、周期的な応答をするため動作点が少しでもずれると増幅率が大きく変化し応答が非 線形になる。そのため、一般的にはフィードバックをかけ、SQUID を貫く磁束が一定に保たれるようにする。この ことを磁束固定ループ (Flux-Locked Loop; FLL) という。

図 2.7 は磁束固定ループを動作させるための回路図を示す。SQUID の出力はフィードバック抵抗を介して、磁気 的に結合したフィードバックコイルに戻される。フィードバック量は、フィードバックコイルの作る磁束 Φ_{FB} と SQUID の出力 V_{out} から $\Phi_{\text{FB}}/V_{\text{out}}$ と書ける。ここで SQUID とフィードバックコイルの相互インダクタンス M_{FB} とフィードバック抵抗の抵抗値 R_{FB} を用いて、

$$\frac{\Phi_{\rm FB}}{V_{\rm out}} = \frac{M_{\rm FB}}{R_{\rm FB}} \tag{2.48}$$

と書き直すことができる。SQUID を貫く磁束を作り出すコイルを入力コイルとする。入力コイルを流れる電流 *I*_{in} が 作る磁束 Φ_{in} は入力コイルと SQUID の間の相互インダクタンスを *M*_{in} として、

$$\Phi_{\rm in} = M_{\rm in} I_{\rm in} \tag{2.49}$$

である。したがって、FLL を用いたときの電流電圧変換係数 Ξ は

$$\Xi = \frac{M_{\rm in}}{M_{\rm FB}} R_{\rm FB} \tag{2.50}$$

で書ける。FLL 回路を含む SQUID を用いた TES カロリメータの読み出し系の模式図を図 2.8 に示す。

2.8.3 SQUID アレイ

dc SQUID を直列にアレイ化し、同位相で動作させると、それぞれの SQUID からの出力が加算されるため、大き な出力を作り出すアンプとして使用できる。これを dc SQUID アレイと呼ぶ。単に SQUID を直列にアレイ化するだ けでは、入力コイルのインピーダンスが大きくなってしまうため、並列化も行い、自己インダクタンスを下げること で、低インピーダンスにする。



図 2.7: FLL 回路の模式図。



図 2.8: FLL 回路で動作させた SQUID を用いた TES カロリメータの読み出し系の模式図。

2.9 TES カロリメータの基本的な特性とその測定方法

2.9.1 抵抗温度特性

TES カロリメータの温度 T と抵抗値 R の関係を抵抗温度特性 (RT 特性) という。RT 特性を調べることで TES カ ロリメータの転移温度 T_c がわかり、TES の感度 α を計算することができる。測定する際には、ジュール発熱により 素子の温度が上昇し熱浴と TES カロリメータの間に温度勾配が生じないように、TES カロリメータに流す電流を大 きくしないようにする。抵抗値の温度変化を適切な関数でフィッティングすることによって転移温度 T_c 、転移温度で の抵抗値 R_c 、感度 α を計算する。

RT 特性の測定方法は二種類あり、一つ目は TES カロリメータにある電流を流し、その両端に生じる電圧を測定す ることで抵抗値を見積もる手法である。この手法では、配線による抵抗による影響を小さくするために図 2.9 で示す 四端子法で測定する。この方法では、TES カロリメータに正のフィードバックがかかるために、熱浴の温度揺らぎに 対して TES カロリメータの温度が不安定になるという欠点があるが、抵抗値の絶対値を求めることができるという利 点がある。二つ目は TES カロリメータに定電圧をかけ、電流の変化を SQUID 電流計で測定する方法である。TES に 対して並列にシャント抵抗を繋げ、一定の電流を流して測定を行う (図 2.8)。欠点として、TES の抵抗値がシャント 抵抗に対する相対的な値しか求められないことが挙げられる。しかし、TES カロリメータ自体に負のフィードバック をかけることができるため、熱浴の温度揺らぎに対して安定して測定を行うことができる利点がある。SQUID の出 力電圧 *V*out から計算される TES の抵抗値 *R*TES は、流す電流 *I*b、シャント抵抗 *R*s と式 (2.50)の電流電圧変換係数 三を用いて

$$R_{\rm TES} = \left(\Xi \frac{I_{\rm b}}{V_{\rm out}} - 1\right) R_{\rm s} \tag{2.51}$$

と計算することができる。



図 2.9: TES カロリメータに対する四端子測定法の模式図。

2.9.2 電流電圧特性

熱浴温度 T_{bath} を一定のもとで、TES の両端にかかる電圧 V と TES に流れる電流 I の関係を電流電圧特性 (IV 特性) という。バイアス電流 I_{b} を変化させたときの SQUID 出力から TES への流れる電流を測定する。このとき、TES の抵抗 R_{TES} 、TES に流れる電流 I_{TES} とシャント抵抗 R_{s} の間には

$$R_{\rm TES} = \left(\frac{I_{\rm b}}{I_{\rm TES}} - 1\right) R_{\rm s} \tag{2.52}$$

関係があるため、既知であるシャント抵抗の値を代入することで、各測定点の抵抗を求められる。TES の電圧 V_{TES} はオームの法則 V = RI から計算できるため、TES の電圧と電流の関係を求められる。

IV 特性では、TES と熱浴の熱伝導度 G、熱伝導度の温度依存性のべき n、温度感度 α を求めることができる。ここでは、TES の超伝導転移端において G は一定とみなせるとして、転移温度での熱伝導度 $G(T_c)$ で代表させる。

熱伝導度 G と熱伝導度の温度依存性のべき n

熱伝導度は異なる熱浴温度 T_{bath} において IV 特性を求めることで計算することが可能である。TES の温度 T に対して、ジュール発熱 P_{b} と熱浴の熱伝導の釣り合いは、式 (2.11) に対して $G = G_0 T^n$ として

$$P_{\rm b} = \frac{GT}{n} \left[1 - \left(\frac{T_{\rm bath}}{T} \right)^n \right] \tag{2.53}$$

と書ける。これにより、二つ以上の熱浴温度 T_{bath} に対して、ジュール発熱 P_{b} を求めることで熱伝導度 G と熱伝導 度の温度依存性のべき n をフィッティングにより求めることができる。 $T - T_{\text{bath}}$ が TES の超伝導転移幅 (~ mK)

よりも十分大きいならば、T は TES の抵抗によらず一定であるとみなせるので、式 (2.53) は

$$P_{\rm b} \sim \frac{GT_{\rm c}}{n} \left[1 - \left(\frac{T_{\rm bath}}{T_{\rm c}}\right)^n \right]$$
 (2.54)

と近似できる。従って、熱浴温度 T_{bath} が一定ならば TES の抵抗値によらずジュール発熱 P_b が一定とみなすことができる。

ループゲイン \mathcal{L} と温度感度 α

TES カロリメータの周波数0におけるインピーダンスを

$$Z = \frac{dV}{dI} \tag{2.55}$$

と定義する。ただし、*V* と *I* はそれぞれ TES カロリメータに印加した電圧と電流である。このとき、TES カロリ メータの発熱量 *P*_b と抵抗値 *R* はインピーダンスを用いて

$$\frac{d\ln P_{\rm b}}{d\ln R} = \frac{d\ln(IV)}{d\ln(V/I)} = \frac{\frac{dV}{dI} + \frac{V}{I}}{\frac{dV}{dI} - \frac{V}{I}} = \frac{Z+R}{Z-R}$$
(2.56)

また、TES カロリメータの発熱量 Pb と抵抗値 R の間には

$$\frac{d\ln P_{\rm b}}{d\ln R} = \frac{R}{P_{\rm b}} \frac{dP_{\rm b}}{dT} \frac{dT}{dR} = \frac{T}{P_{\rm b}} \frac{dP_{\rm b}}{dT} \frac{d\ln T}{d\ln R}$$
(2.57)

という関係がある。定常状態の熱伝導度 G と温度感度 α はそれぞれ

$$G = \frac{dP_{\rm b}}{dT} \tag{2.58}$$

$$\alpha = \frac{d\ln R}{d\ln T} \tag{2.59}$$

と書くことができるので、

$$\frac{d\ln P_{\rm b}}{d\ln R} = \frac{TG}{P_{\rm b}\alpha} = \frac{1}{\mathcal{L}}$$
(2.60)

と表される。ここで、Lを

$$\mathcal{L} \equiv \frac{\alpha P_{\rm b}}{G_1 T_{\rm TES}} \tag{2.61}$$

と定義し、一般的なフィードバック理論の類推から TES カロリメータのループゲインと呼ぶ。TES カロリメータの ループゲインは IV 特性から得られる *R* と *Z* を用いて

$$\mathcal{L} = \frac{Z - R}{Z + R} \tag{2.62}$$

と得られる。また、ループゲインと温度感度 α の間には

$$\mathcal{L} = \frac{P_{\rm b}\alpha}{GT} \sim \frac{P_{\rm b}\alpha}{GT_{\rm c}} \Rightarrow \alpha = \frac{\mathcal{L}GT_{\rm c}}{P_{\rm b}}$$
(2.63)

という関係があるので、IV 測定を通じて得られたループゲイン *L* および、TES カロリメータの発熱量 *P*_b、熱伝導度 *G*、超伝導転移温度 *T*_c から温度感度 *α* を求めることができる。

Ⅳ 測定時の RT 特性と温度感度 α

平衡状態での TES カロリメータのジュール発熱 Pb と熱浴に流れる熱の釣り合いは

$$P_{\rm b} = \frac{G}{n} (T^n - T^n_{\rm bath}) \tag{2.64}$$

と書ける。ただし、T は TES カロリメータの温度、T_{bath} は熱浴の温度を示す。式 (2.64) を変形すると

$$T = \left(T_{\text{bath}}^n + \frac{nP_{\text{b}}}{G_0}\right)^{1/n}$$
(2.65)

となる。これにより、IV 特性の各点でのジュール発熱 P_{0} から TES カロリメータの温度 T を計算することができる。 TES カロリメータの抵抗値 R と温度 T で IV 測定から RT 特性を得ることができ、そのデータから温度感度である α を求められる。

2.9.3 パルス特性

TES カロリメータに入射した X 線光子による応答をパルス特性という。これにより、TES カロリメータのエネル ギー分解能 ΔE を知ることができる。ある動作温度 T でエネルギー E の X 線が入射したときの TES カロリメータ の電流変化 ΔI は温度感度 α と熱容量 C を用いて、

$$\Delta I = -\frac{\alpha E}{CT}I\tag{2.66}$$

と書ける。また、X 線光子が入射した TES カロリメータが定常状態へ戻るまでの時定数 7eff は式 (2.16) から

$$\tau_{\rm eff} = \frac{C/G}{1 + \frac{P_{\rm b}\alpha}{GT}} = \frac{C/G}{1 + \mathcal{L}}$$
(2.67)

と書けるので、X 線パルスによる、信号の立ち下がり時間を測定することができれば、2.9.2 節の IV 測定から得られた TES カロリメータの熱伝導度 G とループゲイン L から、熱容量を見積もることができる。

第3章

TES 型 X 線マイクロカロリメータの吸収体

超伝導転移端 (Transition Edge Sensor; TES) 型 X 線マイクロカロリメータ (以下、TES カロリメータ) において、X 線を熱に変換する部分である吸収体には様々な観点から性能が要求される。本章では、吸収体に求められる性能を天 文学分野への利用という観点からまとめる。次に、性能を実現するために吸収体として考慮すべき物性や吸収体成膜 方法について概説する。最後に吸収体開発における世界の動向と我々の研究グループの現状についてまとめる。

3.1 吸収体に求められる性能

3.1.1 受光面積と画素数

ひとみ衛星の後継機であり、2023 年度打ち上げ予定である XRISM (X-Ray Imaging and Spectroscopy Mission) 衛 星に搭載される半導体マイクロカロリメータの *Resolve* は、画素間の大きさを含んで 640 μ m の画素が 6 × 6 画素並 ぶ。検出器全体の大きさである受光面積は 3.8 mm 角であり、視野になおすと 2.9' × 2.9' である。これらの性能は広 がった天体に対しては十分ではなく、2030 年代の将来ミッションである Athena では視野 5' × 5'、SuperDIOS では視 野 1° × 1° が検討されている。

ー画素の大きさを大きくすると、画素数を増やすことなく大きな受光面積を達成することができるが、望遠鏡の角 度分解能から決まる大きさを超えると撮像能力が低下する。また、素子自体の大きさに伴い熱容量が大きくなるため、 原理的なエネルギーが劣化する。併せて、吸収体内部での熱拡散の過程がばらつきを持つことにつながり、X 線パル スのばらつきに直結するためエネルギー分解能の劣化を引き起こす。このことから、一素子の大きさをあまり大きく することができない。

3.1.2 開口率

天体からやってくる X 線光子の数は非常に少ないため、それらを効率的に観測するためには開口率も考慮する必要 がある。マイクロカロリメータでは各画素への配線や素子と熱浴を熱的に切り離す構造 (メンブレン構造) に場所が不 可欠である。これらは、X 線光子が検出できない領域 (デッドスペース) になるばかりではなく、信号のバックグラウ ンドが増加する要因になりうる。しかし、TES 全体を覆うように吸収体を成膜すると、TES 自体が超伝導にならな い。X 線吸収体により開口率を向上させるには、デッドスペースを覆える三次元構造が期待される。

3.2 吸収体開発で考慮すべき物性

吸収体には入射した X 線エネルギーを全て吸収し、熱損失なく TES に伝える必要がある。そのため、吸収体として用いる物質は「X 線の阻止能が高く」、「比熱が小さく」、「熱化・熱拡散が速い」ことを同時に満たすものが適して

いる。本節では、吸収体として利用する場合の物質の種類や物理量、結晶構造を含めた物性における観点で吸収体に ついて概説する。

3.2.1 物質の導電性による分類

物質は、導電性が高い導体、導電性が低い絶縁体、中間に対応する半導体に分類できる。吸収体として利用する上 で、物質の種類に応じた特徴を挙げる。

絶縁体と半導体においては、X 線光子の光電吸収により生成された電子が価電子帯と伝導帯の間にあるバンド ギャップの不純物準位に捕捉されるために、準安定状態となってしまう。このことより、熱化が不完全となったり、 熱拡散の過程にばらつきが見られる。常伝導金属については、X 線のエネルギーの担い手である伝導電子と金属内の 電子が電子-電子相互作用を起こすことで、数 ns という非常に早いスケールで熱化する。また、熱拡散過程も伝導電 子が担うため非常に早い。そのため、熱化や熱拡散過程という観点では非常に有利である。しかし、電子比熱が大き いという欠点がある。そのため良い分光性能を得るために熱容量を小さくするという観点では、吸収体の大きさに制 限が生まれる。超伝導金属は、超伝導転移温度よりも十分低い温度で電子比熱が指数関数的に小さくなるためデバイ 温度が高い超伝導体を用いれば、比熱を小さくしつつ高いエネルギー検出効率を実現できる。しかし、超伝導転移温 度よりも低温では、準粒子の寿命が長くなり、一般的に熱化が非常に遅くなる。金属と非金属の間の性質を持つ半金 属は、電子比熱が小さいため熱容量が小さいまま吸収体の大きさを大きくすることが可能である。また、熱化が非常 に早いという特徴を持つ。

以上から、吸収体としては金属であるスズ (Sn)、金 (Au)、銅 (Cu)、半導体であるテルル化水銀 (HgTe)、半金属で あるビスマス (Bi) が用いられていることが多い。XRISM 衛星に搭載される *Resolve* では、吸収体として HgTe が利 用されている。将来ミッションを見据えた TES カロリメータアレイ用吸収体としては、熱容量を抑えながら大きさを 大きくできる半金属の Bi が期待されている。

3.2.2 X線吸収率

TES カロリメータにおいて入射した X 線はほとんどの場合、吸収体内で光電吸収され熱に変換される。光電効果 が起こる確率 *p*PE は入射 X 線のエネルギーを *E*、物質の原子番号を *Z* とすると、近似的に

$$p_{\rm PE} \propto \frac{Z^x}{E^{3.5}} \tag{3.1}$$

と書くことができる。原子番号の指数は X 線のエネルギーにより変化し、 $x = 3 \sim 5$ である。式 (3.1) より、原子番号が大きい、つまり電子が多い金属ほど光電効果が起こりやすく吸収体で吸収されやすい。X 線吸収率は入射する X 線のエネルギーに対する関数として書くことができる。また、ある X 線のエネルギーに対する X 線吸収率 Γ は物質の厚みの関数として書くことができ、物質に固有の線吸収係数を μ [cm⁻¹]、厚みを d[cm] と書くと、

$$\Gamma = 1 - \exp(-\mu d) \tag{3.2}$$

となる。このように同じ物質でも厚いほど X 線吸収率を上昇させることができる。TES カロリメータにおける吸収 体で X 線を効率良く止めるには原子番号の大きさと厚さが要求される。
3.2.3 熱容量

熱浴温度より TES カロリメータの温度が十分に低い場合、ボルツマン定数を $k_{\rm B}$ 、温度を T、熱容量を C と書く と、TES カロリメータの原理的なエネルギー分解能 $\Delta E_{\rm FWHM}$ は

$$\Delta E_{\rm FWHM} = 2.35 \xi \sqrt{k_{\rm B} T^2 C} \qquad (3.3)$$
$$\xi \sim 2 \sqrt{\sqrt{n/2}/\alpha}$$

と書ける [10]。ただし、熱伝導率 $\kappa \propto T^{n-1}$ の温度依存性のべきを n、温度感度を α とした。このことから、高いエネルギー分解能を実現するには、TES カロリメータ全体の熱容量を抑えることが不可欠となり、それは吸収体開発とは切り離せない。TES カロリメータの場合は、TES のダイナミックレンジから熱容量に制限が付く。典型的な条件として、高い感度を維持できる最大のエネルギー (飽和エネルギー) $E_{\rm sat}$ を 10 keV、TES の温度感度 α を 50、熱伝導率 $\kappa \propto T^{n-1}$ の温度依存性のべき n = 3、超伝導臨界温度 $T_{\rm c} \sim 150$ mK を仮定して熱容量の最小値 $C_{\rm min}$ について求めると、

$$C_{\rm min} = \frac{\alpha E_{\rm sat}}{T} = 0.53 \,\mathrm{pJ/K} \left(\frac{\alpha}{50}\right) \left(\frac{E_{\rm sat}}{10 \,\mathrm{keV}}\right) \left(\frac{T}{0.15 \,\mathrm{K}}\right)^{-1}$$
(3.4)

となる。一方、熱容量の上限値は熱力学的なエネルギー分解能から付けることができる。例えば、同様な仮定のもと 熱力学的なエネルギー分解能を半値全幅 (Full Width Half Maximam; FWHM) で 5 eV 以下にするには、式 (3.3) から、 熱容量の上限は *C*_{max} ~ 3.8 pJ/K となる。

3.2.4 熱化の速さ

X線光子が吸収体に光電吸収され、エネルギーが熱に変換することを熱化と呼ぶ。X線マイクロカロリメータの吸 収体では、入射した光子のエネルギーが全て熱に変換し、全て温度計で測定することが望ましい。しかし、X線のエ ネルギーの一部が不純物準位や電子・ホール対、クーパー対に蓄えられ、電子やフォノンが担う熱への変換の妨げに なることがあり、熱化時間が遅くなる場合がある。熱化の速さが TES カロリメータのエネルギー分解能に与える影響 は、X線パルスの応答速度との比較によって決まり、X線パルスの立ち上がり時定数や立ち下がり時定数よりも十分 速く熱への変換が起こる必要がある。例えば、半導体を吸収体としたマイクロカロリメータでは、入射 X線光子によ るエネルギーの一部が電子・ホール対の生成に用いられる。これらの数は統計的に揺らいでおり、寿命がカロリメー タの有効時定数 _{7eff} よりも長いと、温度計に入力される熱自体が揺らぐことに繋がる。このことにより、同一エネル ギーの X線光子でも、熱の大きさの違いを引き起こすことになるため、熱化が遅いとエネルギー分解能の劣化を引き 起こしてしまうため、吸収体としては熱化の速いものが要求される。

3.2.5 熱伝導性

式 (2.27)、式 (2.32)、式 (2.33) で示されるように、X 線光子に対する TES カロリメータの応答の時定数は熱伝導度 に依存する。特に、信号の立ち上がり時定数 τ_2 は吸収体の熱伝導度に依存するため、吸収体自体の熱伝導性が悪いと X 線が吸収された位置によって立ち上がりの速度にばらつきが生じ、エネルギー分解能の劣化に繋がる。この影響に ついては、立ち上がり時定数が信号の立ち下がり時定数 $\tau_{\text{eff}} \sim 100 \, \mu \text{s}$ に比べて十分短いならば無視できる。また、信 号の読み出し速度によりパルスの立ち上がり速度が制限される場合、ばらつきの影響は無視できる。SQUID を用い た TES カロリメータの場合、信号に対する回路の応答速度は SQUID の入力コイルの自己インダクタンス L_{in} と TES カロリメータの動作温度での抵抗 R_{TES} で決まる時定数 $\tau_{\text{SQUID}} = L_{\text{in}}/R_{\text{TES}} = 1.3 \, \mu \text{s} (L/40 \text{ nH})(R/30 \text{ m}\Omega)^{-1}$ に より原理的に制限される。これらのことから、熱伝導性で決まる信号の立ち上がり速度としては、1 μs オーダーの短 い立ち上がり時定数が要求される。

一般的に信号の立ち上がり速度を決める重要な要素に、吸収体から TES への熱の伝達の仕方がある。入射した X 線のエネルギーは吸収体における電子系およびフォノン系に伝えられる。TES では電子の温度を測定しているため、 TES の電子系に熱を伝える必要がある。吸収体から TES へ熱を伝達する上では、電子–電子、電子–フォノン、フォノ ン–フォノン同士の相互作用が起こる。TES カロリメータでは、X 線のエネルギーを光電吸収で生じた一次電子、吸 収体内の電子系、TES の電子系の順で伝えることが望ましい。このため、TES カロリメータの吸収体としては、電子 比熱の高い常伝導金属が用いられてきた。

熱伝導性が高い吸収体を成膜する上で不純物の少なさや物質の結晶構造が重要である。複雑な結晶構造や格子欠陥 を持つ物質では、フォノンの散乱が起こるため、熱輸送が阻害され熱伝導性の低下を招く。吸収体は不純物や格子欠 陥が少なくなるように成膜する必要がある。不純物や格子欠陥の濃度を評価する指標の一つに式 (3.5) で定義する残 留抵抗比 (Residual Resitivity Ratio; RRR) がある。

$$RRR = \frac{\rho_{300K}}{\rho_{4K}}$$
(3.5)

ここで、ρ_{300K} と ρ_{4K} はそれぞれ室温 (300 K) とヘリウム温度 (4 K) の電気抵抗率を表す。極低温における電子の平 均自由行程は不純物や格子欠陥による散乱により決まり、これには温度依存性はないため、電気抵抗値はほとんど変 化しない。そのため、RRR は成膜した金属薄膜の不純物や格子欠陥の濃度を評価する指標になり、RRR の値が大き いほど不純物や格子欠陥が少ないことを示す。

3.2.6 内部応力

マイクロマシニングでの吸収体の構造形成においては、薄膜内部の応力を考慮すべき場合がある。薄膜形成時にお ける基板は非熱的平衡状態であり、原子からなる無数の島構造が合体を繰り返して成長するので、内部応力が残留し やすい。例えば、後述する真空蒸着法で成膜される金属薄膜では縮もうとする応力 (引張応力)が残留しやすい。

3.3 吸収体の成膜方法

金属薄膜の成膜には様々な手法がある。その中で吸収体の成膜方法としては、真空蒸着法、スパッタ法、電解析出 法が多く用いられる。

3.3.1 真空蒸着法

高真空にしたチャンバーの中で、薄膜に使用する材料を加熱し蒸発させその蒸発分子を基板で凝着させることで薄 膜形成する方法を真空蒸着法という。真空蒸着装置内は基板、材料、膜厚や成膜レートを調整するための膜厚計から なる。蒸発源には抵抗加熱式、高周波加熱式、電子銃加熱式などがある。抵抗加熱式はWやMoのような高融点金 属に電力を印加することで発生するジュール発熱によって材料を加熱する。高周波加熱式は主に大量に蒸発させる際 に利用され、材料を入れたるつぼの周りにある高周波コイルによって誘導加熱する方式である。電子銃加熱式では、 電子線に磁場をかけることで偏向させて電子をるつぼに入っている材料に当て、その電子のエネルギーにより材料を 加熱する方式である。宇宙科学研究所では、抵抗加熱式と電子銃加熱式を兼ね備えた真空蒸着装置を有している。

3.3.2 スパッタリング法

固体の表面に高エネルギーのイオンが衝突すると、表面の原子が飛び出す現象をスパッタ現象という。これらの原 子に対向して基板を設置すると、飛び出した原子を堆積させて薄膜を形成することができる。真空蒸着法に比べると 薄膜間の密着性が高く、成膜レートが一定であるという特徴を持つ。反面、薄膜生成速度が遅いために、厚い薄膜の 生成には向いていない。また、プラズマの発生に利用するスパッタガスが材料に取り込まれることがあるため、純粋 な金属膜の成膜は難しい。

3.3.3 電解析出法

電解溶液中に陰極となる基板と陽極となる金属を浸し、電流を流すことによって、溶液中の金属イオンを還元して 基板に析出させる手法を電解析出法という。常温・大気圧で成膜でき、大面積で厚い金属薄膜を成膜可能である。た だし、電解溶液中に含まれる添加剤や有機物が不純物として薄膜に取り込まれることがある。

3.4 吸収体開発における世界の動向

National Aeronautics and Space Administration/Goddard Space Flight Center (NASA/GSFC) では、Mo/Au や Mo/Cu の二層薄膜を用いて TES の製作を行っている。半金属である Bi と熱伝導性の高い Cu を組み合わせて図 3.1 や図 3.2 のように TES に対して外側に張り出した構造であるマッシュルーム型吸収体開発が進められてきた。Bi や Cu の成 膜には主に真空蒸着法が使われている。



Figure 1. Schematic of the absorber. (a) Top view. (b) Side view of old design. (c) Side view of new design.

Netherlands Institute for Space Research (SRON) では、Ti/Au の二層薄膜を用いて TES の製作を行っている。電解 析出法で Au を成膜することで吸収体形成が行われている。2021 年には図 3.3 のように複数の柱で吸収体を支える構 造において柱と TES の間の距離に応じた TES への影響などが報告されている [13]。

3.5 我々の研究グループの吸収体開発の現状

我々の研究グループでも様々な金属を用いて吸収体の開発が行われてきた。

図 3.1: NASA/GFSC で開発された Cu と Bi を利用した多層膜吸収体 [11]



Fig. 1. As scanning Election interolocity (clearly image) and the about the Each raised square paid is an absorber suspended above the substrate. The indented "T" shapes are the connections from the absorbers to the TES thermometers.





FIG. 1. (a) Schematic of the layout of the TESs. We vary only two aspects of the design: the diameter of the absorber stem D and the spacing between the bilayer and the stem X. (b) Overhead view of the four different designs studied: a single design with $D = 10 \ \mu m$ and $X = 0 \ \mu m$ and three designs with $D = 5 \ \mu m$ and varying spacing, X = 0, 5, and $10 \ \mu m$. The green structures are the niobium leads. (c) Close-up view of the connection between the absorber stems and the bilayer for the $D = 10 \ \mu m$ (top) and $D = 5 \ \mu m$ (bottom) designs.

図 3.3: SRON で開発された Au を利用した吸収体を搭載した TES カロリメータ [13]

3.5.1 Au を用いた吸収体

3.2.5 節の通り、TES カロリメータでは一般的に常伝導金属で高い熱伝導性を持つ Au が使われることが多い。我々の研究グループでは真空蒸着法を用いて Au 吸収体の製作が行われてきた。2009 年に TES 中心に TES よりも小さい形状 (以下ステム型吸収体と呼ぶ)の Au 吸収体を搭載した TES カロリメータでは、単一のピクセルで 2.8 eV (FWHM) @5.9 keV のエネルギー分解能を達成した [6]。

また、真空蒸着法における Au マッシュルーム型吸収体の開発も進められてきた。しかし、Au が柔らかいことによ り、構造形成時にマッシュルーム型吸収体の構造を保つことが出来なかった。このことにより、真空蒸着法において Au マッシュルーム型吸収体を製作するには、構造安定性のために Au を厚く積む (> 5 μm) ことが必要であることが わかった。また真空蒸着法で Au を厚く積むにはレジストと TES に長時間熱負荷をかけることになり、レジストの除 去が難しいことが明らかになった [14]。

3.5.2 Bi を用いた吸収体

Bi は半金属の中で原子番号が大きいため、X 線の阻止能 (式 (3.1)) が高いかつ、電子比熱が小さいため吸収体を大きくしても熱容量を抑えることができる。我々の研究グループでは、真空蒸着法と電解析出法のそれぞれで Bi の吸

収体の開発が行われてきた。

真空蒸着法を用いた厚み 1 μm の Bi ステム型吸収体を搭載した TES カロリメータでは、2004 年に 19.6 eV (FWHM) @5.9 keV のエネルギー分解能が達成されている。真空蒸着法を用いた Bi マッシュルーム型吸収体 (厚み 10 μm) では、切断面の観察から多くの空孔が見られたことや、厚み方向で膜質が異なっていたことが明らかになって いる。併せて吸収体の角が下に膨れて基板に接触するという問題も報告されている [15]。

電解析出法を用いた Bi マッシュルーム型吸収体は 2004 年に構造形成と素子アレイ化に成功しており、約 70% の 開口率を実現している。しかし、常温と極低温 (100 mK) の間の熱サイクルで吸収体を電解析出法で成膜するための 電極層と吸収体が剥離してしまうという問題点があった。また、X 線照射試験の結果、Bi の熱拡散の速度が遅いため X 線パルスの立ち下がり時間に二つの時定数成分を持つことによりエネルギー分解能が制限される問題が報告されて いる。

3.5.3 Cuを用いた吸収体

2013 年には電解析出法で成膜した Cu が真空蒸着法やスパッタ法で成膜した Cu や Au に比べ 5 倍程度熱伝導性が 良いことが示唆され、マッシュルーム型吸収体の研究が行われた。従来からの問題点であったマッシュルーム型吸収 体の自立の難しさを、基板と吸収体の間に SiO₂ のスペーサーを入れることで解決を図り、最終的に電解析出法で成 膜した Cu で構造形成まで成功した。しかし、極低温で Cu マッシュルーム型吸収体を搭載した TES カロリメータが 転移しないという問題が起き、原因として Cu の応力が考えられている [16]。

3.5.4 多層膜吸収体

電子比熱を抑えながら高い X 線阻止能を持つ半金属の Bi と熱伝導が良い金属を組み合わせた多層膜吸収体の開発 が行われた。2015 年には、別々に Cu と Bi を電解析出させることで多層膜吸収体を搭載した TES カロリメータの製 作に成功しており、X 線照射試験において 15.06 eV(FWHM)@5.9 keV のエネルギー分解能が得られている。このエ ネルギー分解能は設計上の値より悪く、X 線の入射位置によるパルスのばらつきが原因の一つであると考えられてい る。Cu と Bi を混合した電解溶液で成膜することで、界面における密着度を向上させる必要性が示唆されている [17]。

3.6 電解析出 Au オーバーハング吸収体

従来我々の研究グループにおけるマッシュルーム型吸収体は、一つの柱に対して TES よりも大きい面積で張り出し た形として開発が進められてきた。そのため、Au を用いたマッシュルーム型吸収体の構造形成において笠部分が垂 れてしまうという問題が報告されている。そこで、今回我々は複数の足で吸収体を支える"オーバーハング"構造を持 つ吸収体の開発を行う。支えの数を多くすることで、配線などのデッドスペースを覆う大面積吸収体を自立させる。 また、SRON により電解析出法で成膜した Au が RRR ~ 30 と高い熱伝導性を持つことが報告されており [18]、これ は我々の電解析出法で成膜した Cu に比べて約 3 倍熱伝導性が良い。そこで、我々も電解析出法での Au 成膜環境を 導入することで従来主流だった真空蒸着した Au および電解析出した Cu よりも良い熱伝導性を実現することを目標 とする。Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータの設計値については 4 章でまとめ、5 章で電解析出 法環境の導入および条件出しを含めた Au オーバーハング吸収体の製作プロセスについて報告する。

第4章

Au オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロ カロリメータの設計

TES 型 X 線マイクロカロリメータの性能指標には、X 線帯域、吸収効率、開口率、飽和エネルギー、エネルギー分解能がある。これらは吸収体の材質や熱容量、TES の動作温度、温度感度などによって決まるが、互いにトレードオフの関係がある。実際に TES 型 X 線マイクロカロリメータを設計する上では、要求に合わせて最適なパラメータを決定する必要がある。本章では、はじめに SuperDIOS 計画における検出器の要求値をまとめる。続いて、製作を行う TES カロリメータの設計目標を検討する。性能指標のトレードオフの関係から熱容量と吸収体の厚みに、熱拡散過程から残留抵抗比にそれぞれ制限をつける。最後に Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータにおける デザインについて示す。

4.1 SuperDIOS 計画の要求

SuperDIOS 計画では酸素輝線である OVII (561 eV, 568 eV, 574 eV) と OVIII (653 eV) を精密分光することが見 据えられている。検出器としては、TES カロリメータを 30,000 画素アレイ化したものを搭載する予定である。エネ ルギー分解能は $E/\Delta E > 1000$ が期待されている [5]。ここで E は X 線のエネルギー、 ΔE はあるエネルギーでの エネルギー分解能を示す。つまり、5.9 keV の X 線に対しては 5.9 eV 以下のエネルギー分解能が要求されているこ とになる。また、前計画の DIOS 計画ではエネルギー分解能は半値全幅で < 5 eV、X 線帯域は 0.1–1.5 keV が要求 されていた [19]。図 4.1 に DIOS 計画の要求値を示す。

DIOS	
Effective area	$> 100 \text{ cm}^2$
Field of view	50′ diameter
$S\Omega$	$\sim 100 \text{ cm}^2 \text{ deg}^2$
Angular resolution	3' (16 × 16 pixels)
Energy resolution	< 5 eV (FWHM)
Energy range	0.1–1.5 keV
Observing life	> 5 yr

Table 1. Parameters of the observing instruments on board

図 4.1: DIOS 計画での観測装置に対する要求値 [19]

4.2 設計目標

用途に応じた要求を満たす素子を作るためには、各種のパラメータを検討する必要がある。SuperDIOS 計画で搭載 される検出器の要求をもとに、どのような素子製作を行うかを設計目標として掲げる。

まず、X 線吸収効率について、SuperDIOS は酸素輝線というエネルギーが低い領域に着目した軟 X 線精密分光を 目的としているため、比較的エネルギーが低い領域で高い吸収効率を保つことが要求される。式 (3.2) から厚みが厚 いほど高い吸収効率となる。TES カロリメータの X 線吸収効率 Γ について $\Gamma \sim 1$ (< 5 keV) を想定して製作を行 う。次に、TES カロリメータのパラメータである飽和エネルギーについて検討する。飽和エネルギーは熱容量と温度 に対して式 (3.4) の依存性を持つので動作温度を上げ、熱容量を増やすことで高い飽和エネルギーを持つ TES カロリ メータとなる。DIOS 計画では、X 線帯域は 1.5 keV までであったが、軟 X 線を含む数 keV の領域で感度を持たせる ために、本製作では 10 keV 以下として製作を行うこととする。最後にエネルギー分解能については 5 eV@5.9 keV 以下を実現する TES カロリメータを目標とする。これは、SuperDIOS 計画で搭載される検出器に対する要求である $E/\Delta E > 1000$ を満たしうる。式 (3.3) から高エネルギー分解能を実現するには、低い動作温度かつ熱容量を小さく することが非常に有効である。以上より、TES カロリメータには、X 線吸収効率、飽和エネルギー、エネルギー分解 能という観点での素子設計が必要であり、これらは主に動作温度、熱容量によって決まる。TES カロリメータの X 線 吸収効率および飽和エネルギーとエネルギー分解能は熱容量という観点でトレードオフの関係がある。

4.3 Au オーバーハング吸収体の構造

3.6 節のように、従来我々の研究グループにおいては大面積吸収体を一つの柱で支えていたため、笠部分が垂れて しまうという問題点があった。そこで、本研究では複数の柱で大面積吸収体を支える構造の開発を進める。図 4.2 に オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータの概略図を示す。TES については、従来開発を行ってきたもの が 180 µm 角であったのに対して今回は 100 µm 角に変更した。これは TES 自体の熱容量を減らすことにつながる。 オーバーハング吸収体は、複数の柱で支えられることにより、配線や素子と熱浴を熱的に切り離す構造 (メンブレン 構造)を上から笠状に覆い、かつ配線と電気的に接続しないように数 µm の中空を持つ構造となっている。外側の柱 は基板に繋がっている。詳細な設計を行うには、 4.2 節で定義される設計目標に応じた吸収体の厚みを検討する必要 がある。 4.4 節では、TES カロリメータの 3 つの性能の観点から製作に最適な吸収体の厚みを見積もる。

4.4 Au オーバーハング吸収体の厚み検討

はじめに図 4.2 から実際の TES カロリメータの熱容量の概算を行う。次に 4.2 節での要求を満たすために、飽和エ ネルギー、エネルギー分解能、X 線吸収効率と熱容量の関係を計算し、今回の製作における Au オーバーハング吸収 体の厚みの設計値を見積もる。

4.4.1 TES カロリメータの熱容量

実際の TES カロリメータのサイズから熱容量を計算する。バルクの Ti と Au の比熱の温度依存性を

$$c_{\rm Ti} = 2.5T^3 + 97T \left[\rm JK^{-1}m^{-3} \right]$$
(4.1)

$$c_{\rm Au} = 42T^3 + 68T \left[\rm JK^{-1}m^{-3} \right]$$
(4.2)

と仮定する。

まず、TES の熱容量について見積もる。面積を A_{TES}、Ti の厚みを d_{Ti}、Au の厚みを d_{Au}、動作温度を T とする

と、T = 200 mK での Ti 部分の熱容量 C_{Ti} と Au 部分の熱容量 C_{Au} は

$$C_{\rm Ti} = 9.71 \times 10^{-15} \, \rm{JK}^{-1} \left(\frac{A_{\rm TES}}{100 \times 100 \, \mu \rm{m}^2} \right) \left(\frac{d_{\rm Ti}}{50 \, \rm{nm}} \right)$$
(4.3)

$$C_{\rm Au} = 1.39 \times 10^{-14} \,\mathrm{JK}^{-1} \left(\frac{A_{\rm TES}}{100 \times 100 \,\mu\mathrm{m}^2} \right) \left(\frac{d_{\rm Au}}{100 \,\mathrm{nm}} \right) \tag{4.4}$$

(4.5)

次にオーバーハング吸収体の熱容量について、オーバーハング形状となっている部分の熱容量 C_{overhung} は、面積を A_{overhung} 、厚みを d_{overhung} と書くと

$$C_{\text{overhung}} = 1.88 \times 10^{-12} \text{ JK}^{-1} \left(\frac{A_{\text{overhung}}}{260 \times 260 \ \mu\text{m}^2} \right) \left(\frac{d_{\text{overhung}}}{2 \ \mu\text{m}} \right)$$
(4.6)

と表すことができる。また、柱部分の熱容量 C_{pillar} は、柱の直径を D_{pillar} 、厚みを d_{pillar} とすると

$$C_{\text{pillar}} = 1.89 \times 10^{-14} \text{ JK}^{-1} \left(\frac{D_{\text{pillar}}}{12 \,\mu\text{m}}\right)^2 \left(\frac{d_{\text{pillar}}}{2 \,\mu\text{m}}\right)$$
(4.7)

となる。

以上より吸収体のオーバーハング部分が TES カロリメータ全体の熱容量の大部分を担うことがわかる。そのため、 以下の議論ではオーバーハング吸収体部分の熱容量に対して要求性能を満たす吸収体の厚みの検討を行う。



図 4.2: オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータの概略図。

4.4.2 飽和エネルギーとエネルギー分解能から制限される熱容量と吸収体の厚み

TES カロリメータの飽和エネルギー E_{sat} は、式 (2.66) から

$$E_{\rm sat} \sim \frac{CT}{\alpha}$$
 (4.8)

と書くことができる。ここで、*C* と *T* はそれぞれ TES カロリメータの熱容量と温度である。10 keV までの X 線に 対して飽和させることなく測定することができる TES カロリメータの吸収体の厚みを検討する。図 4.3 に超伝導転移 温度が 200 mK のときの飽和エネルギー E_{sat} と熱容量 *C*、オーバーハング吸収体の厚み d_{overhung} の関係をそれぞれ 示す。ただし、温度感度 α については典型的な値として α = 50,100,150,200 を仮定した。次に、TES カロリメータ の原理的なエネルギー分解能を半値全幅 (Full Width Half Maximum; FWHM) で式 (3.3) とし、超伝導転移温度が 200 mK のときのエネルギー分解能 ΔE_{FWHM} と熱容量 *C*、オーバーハング吸収体の厚み d_{overhung} の関係を図 4.4 に示 す。同様に温度感度については、 α = 50,100,150,200 を仮定した。

以上から、飽和エネルギーとエネルギー分解能の観点でオーバーハング吸収体の厚みを見積もる。動作温度 (超伝 導転移温度)を 200 mK、温度感度 $\alpha \sim 50$ を仮定する。10 keV の飽和エネルギーを持ち、かつエネルギー分解能を 5 eV (FWHM) 以下とする場合、図 4.3 と図 4.4 から厚みの上限値はエネルギー分解能から制限される。エネルギー分 解能が 5 eV (FWHM) 以下となる熱容量の上限値 C_{max} とオーバーハング吸収体の厚み d_{max} は式 (3.3) から

$$C_{\rm max} \sim 2.14 \text{ pJ/K} \tag{4.9}$$

$$d_{\rm max} \sim 2.27 \ \mu {\rm m} \tag{4.10}$$

と見積もることができる。これにより、オーバーハング吸収体の厚みとしては ~ 2.27 μm 以下であることが求めら れる。

4.4.3 X線吸収効率から制限される熱容量と吸収体の厚み

4.4.2 節において、10 keV の飽和エネルギーを保持しながら、エネルギー分解能が 5 eV (FWHM) 以下となる Au オーバーハング吸収体の厚みは、~ 2 μm 以下と見積もることができた。本節では、物質の厚みに対応する X 線吸収 効率の関係から、設計目標である TES カロリメータの X 線吸収効率 q_e ~ 1(< 5 keV) を満たすかを検討する。



図 4.3: 超伝導転移温度 $T_c = 200 \text{ mK}$ のときの温度感度 α ごとの飽和エネルギー E_{sat} と熱容量 C、オーバーハング吸収体の厚み d_{overhung} の関係。左: 飽和エネルギー E_{sat} と熱容量 C を示す。右: 飽和エネルギー E_{sat} とオーバーハング吸収体の厚み d_{overhung} を示す。



図 4.4: 動作温度 T = 200 mK のときの温度感度 α ごとのエネルギー分解能 ΔE_{FWHM} と熱容量 C、オーバーハング吸収体の厚 み d_{overhung} 関係。ただし、熱伝導度のべき数は n = 3 を仮定している。



図 4.5: Au の厚みと X 線吸収効率の関係。左: 入射 X 線に対する Au の線吸収係数 μ の関係。右: Au の厚みごとのエネルギーと X 線吸収効率の関係。厚みが大きくなるほど、より高エネルギーの X 線も阻止できることがわかる。

X 線吸収効率 Γ は物質の厚みを d、物質の線吸収係数を μ と書くと、

$$\Gamma = 1 - \exp(-\mu d) \tag{4.11}$$

と表される。図 4.5 に X 線のエネルギーと Au の線吸収係数の関係および、X 線のエネルギーと吸収効率を Au の厚 みごとに計算した結果を示す。図 4.5 右から Au の厚みが 2 μ m 程度であるとき、X 線吸収効率 $q_e \sim 1 (< 5 \text{ keV})$ を 概ね満たすことがわかる。

以上の議論より、今回の設計目標である 10 keV の飽和エネルギーと X 線吸収効率 $q_e \sim 1(<5 \text{ keV})$ を保持しなが ら、エネルギー分解能が 5 eV@5.9 keV 以下を満たすために、最適な Au オーバーハング吸収体の厚みとして $\sim 2 \, \mu \text{m}$ とした。

4.5 Au の熱伝導性の検討

設計目標を達成しうるオーバーハング吸収体の厚みを、飽和エネルギー、エネルギー分解能、X 線吸収効率の観 点から決定した。次に、オーバーハング吸収体における熱拡散過程から要求される残留抵抗比 (Residual Resistivity Ratio; RRR)を計算する。我々の TES カロリメータと測定環境において X 線パルスの立ち上がり時定数は典型的に ~ 3 µs である [17]。これは、立ち下がり時定数である数 100 µs に対して十分に早い。そこで今回 RRR の要求とし ては、従来の TES カロリメータの立ち上がり時定数のオーダーである数 µs を実現するように決定する。

RRR は 4 K での電気抵抗率 ρ_{4K} と常温での電気抵抗率 ρ_{300K} の比

$$RRR = \frac{\rho_{300K}}{\rho_{4K}} \tag{4.12}$$

として定義される (式 (3.5))。 ある長さ x を熱が拡散するのに必要な時間尺度 Tdiff は、拡散方程式から

$$\tau_{\rm diff} = \frac{c}{\kappa} x^2 \tag{4.13}$$

と表すことができる。ただし、*c* と κ はそれぞれ熱が伝達する物質の比熱と熱伝導率である。また、低温での熱伝導 率と電気抵抗率の関係はウィーデマン・フランツ則

$$\kappa = \frac{L_n T}{\rho}$$

$$L_n = 2.45 \times 10^{-8} \text{ W}\Omega \text{K}^{-2}$$

$$(4.14)$$

として知られている。極低温において電気抵抗率が変化しない ($\rho_{200mK} \sim \rho_{4K}$) と仮定すると、200 mK での熱伝導率 κ_{200mK} は、

$$\kappa_{200\rm{mK}} = \frac{0.2\,\rm{K}}{4\,\rm{K}} \kappa_{4\rm{K}} \tag{4.15}$$

と書くことができる。300 K での熱伝導率 κ_{300K} と $\text{RRR} = \rho_{300K}/\rho_{4K}$ を用いると

$$\kappa_{200\text{mK}} = \frac{200 \text{ mK}}{300 \text{ K}} \frac{\rho_{300\text{K}}}{\rho_{4\text{K}}} \kappa_{300\text{K}} = \frac{200 \text{ mK}}{300 \text{ K}} \times \text{RRR} \times \kappa_{300\text{K}}$$
(4.16)

と表される。これより、式 (4.13) は、RRR、200 mK での比熱 c_{200mK}、300 K での電気抵抗率 ρ_{300K} を用いて

$$\tau_{\rm diff} = 5 \times \frac{c_{\rm 200mK} \rho_{\rm 300K}}{L_n} \frac{x^2}{\rm RRR}$$

$$\tag{4.17}$$

となる。これを RRR について解くと

$$RRR = 5 \times \frac{c_{200mK} \rho_{300K}}{L_n} \frac{x^2}{\tau_{diff}}$$
(4.18)

となり、この式 (4.18) から要求される Au の RRR を見積もる。比熱の温度依存性を式 (4.1) と仮定すると 200 mK での Au の比熱は

$$c_{200\rm{mK}} = 13.9 \,\rm{Jm}^{-3}\rm{K}^{-1} \tag{4.19}$$

と見積もられる。また、室温での Au の電気抵抗率を $\rho \sim 2.4 \times 10^{-8} \,\Omega \cdot m$ とする。吸収体での熱拡散のスケールを $\tau_{\text{diff}} < 1 \,\mu s$ 、吸収体の大きさを 260 μm 角とすると要求される RRR は

$$\operatorname{RRR} \gtrsim 9.23 \left(\frac{\tau_{\operatorname{diff}}}{1\,\mu\mathrm{s}}\right)^{-1} \left(\frac{x}{260\sqrt{2}\,\mu\mathrm{m}}\right)^2 \tag{4.20}$$

となる。これより 200 mK で動作させる TES カロリメータについて Au の RRR の要求値は ~ 10 以上と見積もるこ とができた。実際の製作においてはこの要求値を超える Au の成膜が求められる。

4.6 Au オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロカロリメータのデザイン

今回製作を行う TES カロリメータの 1 ピクセルの概要図の基本は図 4.2 に示したとおりである。製作は 3inch の Si + SiN_x 基板で行い、その中には 2 種類のチップが含まれている。

ーつは TES の形や吸収体構造の違いによるプロセスおよび TES カロリメータとしての性能を評価するためのチッ プであり、本修士論文では Ea チップと呼ぶ。もう一つは、計 224 素子からなる TES カロリメータアレイチップであ り、本修士論文では Sa チップと呼ぶ。3inch 基板上には、Ea チップが 5 枚 (Ea1~Ea5)、Sa チップが 4 枚 (Sa1~Sa4) 形成される。

図 4.6 に Ea チップの設計図を示す。Ea チップのサイズは 15mm × 9.5 mm であり、中心部に 25 素子 (図中赤枠) と外側に 2 素子 (図中青枠)の TES カロリメータが作られる。中心部の TES カロリメータは 5 × 5 で配列されてお り、各素子は A~E と 1~5 というアルファベットと数字の組み合わせでラベル付けされている。

A~D 列の TES カロリメータは吸収体構造の評価用である。図 4.7 に各列の TES カロリメータの構造設計図を示 す。図中の正方形部分は 100 × 100 μm² の TES であり、TES に対して配線が接続されている (図中紫)。また青丸部 分はオーバーハング吸収体を支えるための柱の断面図である。A 列は直径が 12 μm の計 6 本の柱で吸収体を支え、 TES の直上は2本の柱が形成される。配線に電流を流して TES カロリメータとして動作させる際に、吸収体に電流 が流れることを防ぐために、TES 直上の2本の柱は等電位を満たすように配置されている。B 列は TES の直上にあ る柱が直径 20 μm で、メンブレン構造に繋がっている 4 本の柱が直径 12 μm であり、計5 本の柱で吸収体構造を支 える。C列はB列と同様な構造となっており、TES直上にある柱が12μmで、メンブレン構造に繋がっている4本 の柱が直径 20 μm である。D 列は A 列と同様な構造となっているが、TES の形状と柱の接続部分が異なっている。 TES は正方形から数 µm 飛び出した形となっており、その部分に柱が接続する形となっている。歩留まりを考慮して A~D 列はそれぞれ 1~5 まで同じ形状の TES カロリメータとなっている。Ea チップ E 列は TES の構造による違い を評価するための TES カロリメータとなっており、図 4.8 に E 列の TES カロリメータの設計図を示す。E1 は TES が 50 µm の部分と 5 µm のライン部分から構成されており、直径 10 µm の柱 5 本で支えられる吸収体が 4 つ並ぶ形 となっている。E2 は TES が 10 μm の幅で円形部分と直線部分で構成されており、吸収体とは中心部分でのみ接触す る。E3 は TES が 100 μ m 角から切り抜かれている形で、線幅は 20 μ m となっている。E4 は TES が 20 \times 80 μ m² の 長方形となっており、長方形に対して飛び出した部分で吸収体と接触している。E5 は幅 10 μm の TES が S 字のよ うになっており、中心部の2本の柱で吸収体と繋がれている。Ea チップには外側に2素子 (図中青枠)の TES カロリ メータがあり、これらは吸収体構造を持たず、吸収体の有無による TES カロリメータの評価用となっている。

各素子は読み出しのための幅 10 μ m の配線とボンディング用のパッド (140 × 400 μ m²) が 2 つあり、これらは Nb で形成される。他にも、各プロセスで成膜される薄膜の厚みを測定するためのパターン (図 4.6 上部の長方形部分 (200 × 1500 μ m²)) が設計されている。



図 4.6: Ea チップの設計図。図上部: Ea チップ全体図。チップサイズは 15mm × 9.5 mm であり、中心部に 25 素子 (図中赤枠) と 外側に 2 素子 (図中青枠) の TES カロリメータが配置されている。また、チップ上部には各プロセスで成膜した薄膜の膜厚 測定用パターンがあり、外側には、RRR 測定用のパターンが形成される。図左下: 吸収体が搭載されていない TES カロリ メータの拡大図。図の正方形部分が TES を示している。その外側には Nb 配線が接続されており、長方形状のボンディン グパッドに繋がる。図右下: 中心部の拡大図。オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータが 5 × 5 で配列されて いる。それぞれの素子の大きな正方形部分が吸収体の面積を表す。各素子は Nb 配線でボンディングパッドまで接続されて いる。



図 4.7: Ea チップの A~D 列の TES カロリメータの設計図。左から A、B、C, D の順で並んでいる。正方形部分は 100 × 100 μm の TES であり、TES に対して線幅が 10 μm の Nb 配線が接続されている (図中紫)。A から D では、吸収体を支える柱の 太さと本数および位置が異なっている。



図 4.8: Ea チップの E 列の TES カロリメータの設計図。左から E1、E2、E3、E4、E5 と並んでいる。E1 は TES が 50 μ m の部分 と 5 μ m のライン部分から構成されており、直径 10 μ m の柱 5 本で支えられる吸収体が 4 つ並ぶ形となっている。E2 は TES が 10 μ m の幅で円形部分と直線部分で構成されており、吸収体とは中心部分でのみ接触する。E3 は TES が 100 μ m 角から切り抜かれている形で、線幅は 20 μ m となっている。E4 は TES が 20 × 80 μ m² の長方形となっており、長方形に 対して飛び出した部分で吸収体と接触している。E5 は幅 10 μ m の TES が S 字のようになっており、中心部の 2 本の柱で 吸収体と繋がれている。

図 4.6 に Sa チップの設計図を示す。Sa チップのサイズは 15mm × 19 mm であり、中心部に 224 素子の TES カロ リメータが形成されている。TES カロリメータの 1 素子は Ea チップの A 列と同じ構造となっている。本製作におい ては、幅 5 µm の Nb 配線が 64 素子のみに接続されており、将来的に積層配線技術と組み合わせることで 224 素子に 拡大する予定である。各配線には、Ea チップ同様に 140 × 400 µm² のボンディングパッドが形成される。

本製作では、RRR が 10 以上となるよう、熱伝導性の高い金属膜を成膜可能な電解析出法でオーバーハング吸収体 の成膜を行う。これにより、製作プロセス中に電流を流すための電極層を Au と Ti で成膜する。それぞれの薄膜の目 標厚みは Au/Ti = 100 /30 nm である。表 4.1 に設計目標、表 4.2 に Ea (A~D 列) チップと Sa チップの設計詳細に ついて示す。Ea チップの E 列については、本文を参照されたい。

今回の設計目標と性能評価試験を表形式にまとめたもの(検証マトリックス)を表 4.3 に示す。ここでは、上位要求 として設計目標、下位要求として設計目標に関わる物理量を定めている。また横軸は必要な評価方法についてまとめ ている。縦軸方向に表を見るとすべての要求を十分に評価できることがわかる。本修士論文では、この検証マトリッ クスに従って評価を行う。



図 4.9: Sa チップの設計図。チップサイズは 15mm × 19 mm であり、中心部に 224 素子の TES カロリメータが配置されている。 本製作では 64 素子に対して、線幅が 5 μm の Nb 配線が繋がっている。TES カロリメータの 1 素子は Ea チップと同じ構 造となっており、260 × 260 μm² の吸収体を直径が 12 μm の柱 6 本で支える構造となっている。

項目	目標
X 線吸収効率 $Γ$	$\sim 1 \; (< 5 \; \mathrm{keV})$
エネルギー分解能 $\Delta E_{ m FWHM}$	$<5\:\mathrm{eV}$ @5.9 keV
飽和エネルギー $E_{ m sat}$	> 10 keV
立ち上がり時定数 _{7diff}	$\sim 1 \ \mu s$
吸収体厚み d	$\sim 2 \mu {\rm m}$
吸収体 RRR	>9.23

表 4.1: 本製作における TES カロリメータの設計目標。

項目		Ea(A~D列)	Sa
チップ	サイズ	$15~\mathrm{mm}\times9.5~\mathrm{mm}$	$15~\mathrm{mm}\times19~\mathrm{mm}$
TES (Au/Ti)	サイズ	$100 \; \mu \mathrm{m} \times 100 \; \mu \mathrm{m}$	$100 \; \mu \mathrm{m} \times 100 \; \mu \mathrm{m}$
Nb 配線	幅	$10~\mu{ m m}$	$5~\mu{ m m}$
	ピッチ	$10~\mu{ m m}$	$5~\mu{ m m}$
	厚み	$150 \ \mathrm{nm}$	$150 \ \mathrm{nm}$
吸収体 (柱)	厚み	$\sim 2~\mu{ m m}$	$\sim 2 \mu{\rm m}$
	直径	A: $12 \ \mu m \times 6$	$12 \ \mu \mathrm{m} \times 6$
		B : $12 \ \mu \text{m} \times 4 + 20 \ \mu \text{m} \times 1$	
		C: 20 μ m × 4 + 12 μ m × 1	
		D: $12 \ \mu m \times 6$	
吸収体 (オーバーハング)	厚み	$\sim 2 \ \mu { m m}$	$\sim 2 \mu{\rm m}$
	サイズ	$260\;\mu\mathrm{m}\times260\;\mu\mathrm{m}$	$260~\mu{\rm m}\times260~\mu{\rm m}$
電極層 (Au/Ti)	厚み	$\rm Au/Ti = 100 \; nm/30 \; nm$	$\mathrm{Au/Ti} = 100 \; \mathrm{nm}/30 \; \mathrm{nm}$
メンブレン構造	サイズ	$300 \; \mu \mathrm{m} \times 300 \; \mu \mathrm{m}$	$300~\mu{\rm m}\times300~\mu{\rm m}$

表 4.2: 本製作における TES カロリメータの設計詳細。

表 4.3: 設計目標と性能評価試験をまとめた検証マトリックス。上位要求として設計目標、下位要求として設計目標に関わる物理 量を定めている。横軸は必要な評価方法についてまとめている。エネルギー分解能の値は本論では上位要求として扱って いるが、ここでは測定との対応をわかりやすくするために下位要求として扱っている。

性能評価語	式験	吸収体の)条件出し	カロリメータ製作	極低温での性	生能評価
上位要求	下位要求	測定膜厚	RRR 測定	画像	抵抗温度特性	X 線照射
オーバーハング構造				\checkmark		
エネルギー分解能	$\Delta E < 5 \; \mathrm{eV}$					\checkmark
	$\alpha > 50$				\checkmark	
	$T_{\rm c} < 200 \ {\rm mK}$				\checkmark	
	$d\sim 2\;\mu{\rm m}$	\checkmark				
	RRR > 9.23		\checkmark			\checkmark
	熱容量	\checkmark				\checkmark
X 線吸収効率	$d\sim 2\;\mu{\rm m}$	\checkmark				
飽和エネルギー	パルス波高値					\checkmark
	$d\sim 2\;\mu{\rm m}$	\checkmark				\checkmark
	熱容量	\checkmark				

第5章

Au オーバーハング吸収体の製作プロセスの条 件出し

4 章で検討した条件のうち、条件を満たす薄膜を成膜するには複数回成膜を行い、膜厚測定や残留抵抗比 (Residual Resistivity Ratio; RRR)の測定の結果を製作プロセスにフィードバックすることが必要となる。この一連の作業を本修士論文では条件出しと呼ぶ。本章では、設計目標を満たす Au オーバーハング吸収体の構造形成を目指して製作プロセス確立のための条件出しを行う。具体的には、熱伝導性を向上させるために導入した電解析出法での Au 膜厚および熱伝導性の向上に向けた条件出しと、吸収体を形成するためのレジスト構造と厚みの条件出しに特化している。その後確立した条件で Au オーバーハング吸収体を成膜し、4 章で制限をつけた膜厚になっているか、自立した構造を持っているかについて確認を行う。はじめに Au オーバーハング吸収体の製作プロセスの詳細について示す。次に 2 cm 基板での電極層用レジスト、吸収体構造形成用レジスト、Au 薄膜製作について製作条件と評価結果を報告する。最後に、6 章で記載の Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータの製作に向けた条件出し結果をまとめる。本章の流れについて、図 5.1 に示す。



•

図 5.1: Au オーバーハング吸収体の製作プロセスの条件出しでの流れ



7. Remove Under-Laver Resist

図 5.2: Au オーバーハング吸収体の製作プロセスフロー。ただし、縦横比はわかりやすくするために誇張して描いてある。

5.1 Au オーバーハング吸収体の製作プロセス

従来我々が開発を行ってきたマッシュルーム型吸収体に代表される大面積吸収体は、レジストで吸収体を支える構造を作り出し、吸収体形成後に支えのレジストを除去することで構造形成を行ってきた。本製作でも同様なプロセスで製作を行う。図 5.2 に Au オーバーハング吸収体の構造形成のための製作プロセスを示す。吸収体を電解析出法で成膜するには、基板全体に電流を流すための電極層を成膜する必要がある。まず、電極層成膜のためのパターンをレジストで形成する。このときのレジストの厚みはオーバーハング吸収体が持つ中空構造の高さとなる。電極層が段切れを起こさないようにパターン境界部分はなだらかな構造 (テーパー構造) であることが要求される。次に真空蒸着法で電極層 (Au/Ti)を成膜する。その後、吸収体の構造形成のためのパターンを作る。このときのレジストの厚みは吸収体の厚み (本製作では 2 µm) よりも厚いことが要求される。オーバーハング吸収体は電解析出法で成膜を行う。続いて、吸収体構造形成用レジスト、電極層の除去を行う。最後に吸収体を支えている下層の電極層用レジストを除去することで、Au オーバーハング吸収体の構造形成を実現する。本章で条件出しが必要なプロセス番号は#1、#3、#4である。表 5.1 に条件出しが必要なプロセスと詳細を示す。

番号	項目	詳細	本章での節番号
#1	電極層成膜用レジストの条件出し	電極層が段切れを起こさないテーパー構造形成	5.2 節
#3	吸収体形成用レジストの条件出し	吸収体膜厚よりも厚いレジスト条件の確立	5.3 節
#4	電解析出法における条件出し	残留抵抗比 > 10 の Au 成膜条件の確立	5.4 節
		膜厚 > 2 μ m	5.5 節

表 5.1: 本章で行った条件出しと詳細

	ep03	ep05	ep06	ep07	ep08	ep09
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6
AZECI3027	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6
Baking	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$
	2m 30s					
Exposure	15s	15s	15s	15s	15s	15s
Leaving	-	-	1m 39s	1m 35s	-	-
Baking	-	-	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$	-	-
	-	-	2m 30s	1m 30s	-	-
Developing	5m 34s	6m 05s	11m 18s	5m 15s	3m 46s	3m 37s
Baking	-	-	-	-	$135^{\circ}\mathrm{C}$	$135^{\circ}\mathrm{C}$
	-	-	-	-	1m	3m

表 5.2: 電極層用レジストの成膜条件 (SEED211014a を切り分けた 2cm 基板を使用した)。

5.2 電極層用レジストの条件出し

5.2.1 目的

電極層については厚みが薄いため、薄い金属薄膜を均一に成膜できる真空蒸着法を用いる。電極層成膜の前にはレジストを塗布することで、電解析出後にオーバーハング吸収体の柱の部分となるパターンを形成する。この電極層成 膜用レジストパターンは、電極層が断切れを起こさないように形成する必要があり、テーパー構造が求められる。本 節では、Au オーバーハング吸収体を成膜するのに必要なレジストパターンの条件出しを行った結果について報告す る。他の節同様に2 cm 基板で条件出しを行い、最終的に3 inch 基板で検証を行った。3 inch 基板での検証結果につい ては 5.5 節でまとめる。

5.2.2 レジスト成膜条件と結果

レジストの成膜条件について表 5.2 に示す。吸収体が垂れて Nb 配線やメンブレン構造と接触しないよう数 µm の 中空構造をもたせるために ~ 2.7 µm の厚みで成膜可能である AZ ECI3027 をレジストとして使用した。露光時間を 長くすることで、レジストが受け取る光量が増えるため一般的にレジストパターンが広がる。このことを利用して、 テーパー構造をつくることができないかと考えた。そこで、露光時間が 15 秒のものと 18 秒のもので膜厚分布が変 化しているかを調べた。これらの膜厚分布の結果を図 5.3 に示す。ただし、横軸スケールは二つのグラフで異なって いる。パターン部分の境界には有意な変化が見られないことがわかる。次に、レジストに対して熱をかけ、収縮させ ることで構造の変化を見ることを考えた。そこで、露光と現像の間に 2 回目のベーキングを入れたときの変化につい て、1 回目のベーキングと同じ時間で同じ温度の場合 (ep06) と同じ温度で時間を 1 分 30 秒短いときの構造の変化を 図 5.4 に示す。これらについても横軸のスケールが異なっているので注意が必要である。構造上大きな変化は確認で きなかった。続いて、現像後にレジストに対して熱をかけることで構造の変化の確認を行った。現像をおこなった後 に 135°C で 1 分ベーキングを行ったもの (ep08) と 135°C で 3 分ベーキングを行ったもの (ep09) を図 5.5 に示す。 これらについても横軸のスケールが異なっているので注意が必要である。どちらについてもレジスト上になだらかな 構造が見えることがわかった。また図 5.6 にこれらのパターン表面の顕微鏡写真を示す。顕微鏡写真からも現像後に



図 5.3: 露光時間を変化させたときのレジストの構造。ただし、横軸スケールが異なっていることに注意が必要である。左: 露光時間が 15 秒の場合。右: 露光時間が 18 秒の場合。有意な構造の変化は見られない。



図 5.4: 現像の前に2回目のベーキングを行ったときのレジストの構造。



図 5.5: 現像の後に2回目のベーキングを行ったときのレジストの構造

2 cm 基板でテーパー構造を作るためには現像の後にベーキングを追加でおこなう必要があることがわかった。時間に ついては 5.5 節において 3inch 基板で改めて議論した。

5.3 吸収体構造形成用レジストの条件出し

5.3.1 目的

レジストを塗布する際、面積が大きいほどスピンコータの遠心力が大きくなるため、膜厚が薄くなる。そこで、今回のレジスト条件出しにおいては、まず 3inch 基板から 9 枚切り出すことができる 2 cm 基板を用いて、レジスト膜厚~5 µm を成膜できる条件を確立させる。3inch 基板で同条件で成膜した際の膜厚を測定し、吸収体膜厚~2 µm を満たすかを確認する。3inch 基板で成膜を行った結果については、5.5 節に示す。



図 5.6: 現像の後に2回目のベーキングを行ったときのレジスト表面の顕微鏡写真

表 5.3: 2 cm 基板における吸収体構造形成用レジストの成膜条件と膜厚測定結果。レジストの膜厚は触針式の段差計である Dektak 6M を用いて測定した。

基板 ID	defalt	SEED210915a ep01	SEED210915a ep02	SEED210915a ep03	SEED210915a ep04
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6	#0-6
AZECI3027	#19-22	#19-22	#19-22	#19-22	#19-22
	3000rpm	1200rpm	800rpm	800rpm	500rpm
	40sec	40sec	40sec	40sec	40sec
Baking	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$115^{\circ}\mathrm{C}$	$100^{\circ}\mathrm{C}$	$100^{\circ}\mathrm{C}$
	2m 30s				
Leaving	-	14m 30s	6m 30s	15m 01s	18m 11s
Exposure	15s	15s	15s	15s	15s
Developing	-	2m 42s	2m 21s	6m 3s	2m 04s
膜厚 [μm]	~ 2.7	4.311 ± 0.004	5.150 ± 0.004	5.82 ± 0.17	5.681 ± 0.014



図 5.7: 膜厚を測定したレジストパターン。色の濃い部分にレジストが塗布されている。左: SEED210915a ep01 の膜厚測定箇所。 右: SEED210915a ep02~4 の膜厚測定箇所。

5.3.2 レジスト成膜条件と膜厚測定結果

使用レジストは AZ ECI3027 で、膜厚が ~ 2.7 μ m と比較的膜厚が大きく、条件が確立されているものを使用した。 レジストを厚く成膜するには、スピンコータの回転数を下げることが効果的である。そこで、従来回転数を 3000rpm にして成膜していた部分を 1200rpm、800rpm、500rpm と変化させたときの膜厚を測定することで最適な回転数を確 立する。表 5.3 はレジスト成膜条件と膜厚計算結果である。ただし、詳細なレシピについては、Appendix.A に示す。 また、図 5.7 に膜厚測定を行ったレジストパターン、図 5.8 に膜厚測定結果を示す。これらの結果から、ep02、ep03、 ep04 の回転数で、レジスト膜厚が > 5 μ m を満たすことがわかった。本製作では、最も厚みが大きかった ep03 の結 果を 2 cm 基板での最適な条件とした。



図 5.8: レジストの厚み測定結果。各測定結果は左上: ep01、右上: ep02、左下: ep03、右下: ep04 である。各測定では測定パター ンおよびスケールが異なっている。

5.4 電解析出法での Au 成膜の条件出し

5.4.1 目的

本製作では熱伝導性の良い薄膜を、TES カロリメータに熱負荷をかけずに成膜することができる電解析出法を用い て成膜を行う。電解析出環境の導入および条件出しの結果を本節で報告する。製作にあたっては[18]の条件を参考に した。

5.4.2 電解析出法での Au 成膜

電解溶液中に浸した陽極と陰極に電圧をかけると、両極間に流れる電流により陰極で還元反応が起こる。陽イオン が陰極の表面で電子を受け取ると、金属単体が析出する。この一連の反応を利用して金属膜を成膜する手法を電解析 出法と呼ぶ。金の酸化還元電位を以下に示す。

$$Au^{+} + e^{-} \rightarrow Au + \dots + 1.69 V$$

$$(5.1)$$

電解析出法を用いると、厚い膜を常温で成膜できることや TES に熱負荷をかけずに成膜できる利点がある。しかし、 電解溶液中の不純物が薄膜に混入することやスパッタ法や電子ビーム法よりも膜厚制御が難しいという欠点がある。

5.4.3 電解析出前のプロセス

電解析出法を行う前のフォトリソグラフィによるパターン形成のプロセスについてまとめる。フォトリソグラフィ の詳細については、Appendix.A に記載した。電極層を成膜したのち、成膜しない部分を保護するために感光性材料 であるレジストで保護を行う。



図 5.9: 電解析出法の条件出しに用いた設計図。図中心付近のピンク色に塗られた部分に Au が析出される。

まず、真空蒸着装置を用いて、3inch の SiO₂ 基板に Ti 薄膜を形成後、Au 薄膜を形成した。A その後基板を 2 cm 角基板を 9 枚ずつ切り出し (ダイシング) を行った。2 cm 角電極層 (Au/Ti 薄膜) 付き基板に対し、レジストをスピン コータで塗布し、フォトリソグラフィによるパターン形成を行った。図 5.9 は電解析出用パターンであり、設計上の 成膜面積は ~ 1.12 × 10⁻¹ cm² である。

5.4.4 電解析出環境のセットアップ

本製作で用いた電解析出法のセットアップを図 5.10 に示す。直流電源として ADVANTEST DC VOLTAGE CURRENT SOURCE/MONITOR TR6143 を使用した (図 5.10 左)。電解溶液には Techni Gold 25 ES RTU を使用して おり、溶液の温度を一定に保ちながら、拡散を行うためヒーター付きの攪拌機の温度を 60°C、回転数を 300 rpm に 設定して成膜を行った。陽極には Ti/Pt メッシュ、Au が析出される陰極には電極層である Au/Ti 薄膜がついた基板を クリップで固定した。

5.4.5 成膜結果

今回の条件出しにおいては、E038、E039、E040、E042 の計 4 枚の 2 cm 基板を使用した。各基板の電解析出条件 について、表 5.4 に示す。E038 と E039 では電流密度を等しくしたときの時間による熱伝導性の違い、E039 と E040 では電流密度を半分にし、時間を 2 倍にすることでおおよそ同じ膜厚に対して電流密度による熱伝導性の違いの確認 を目的に成膜を行った。電解析出法での Au の成膜後には電極層をウェットエッチングによって除去を行った。Au は AURUM-302 (関東化学)、Ti は 60°C に温めた 30% 過酸化水素 (和光純薬) を利用した。電極層を除去した後の E040 の基板表面写真を図 5.11 に示す。膜厚の測定には、Veeco 社製の触針式段差計である Dektak 6M で測定を使用した。

5.4.6 残留抵抗比の測定

ある物質の電気抵抗率 ρは、物質の断面積 Α、長さ l、抵抗値 R を用いて

$$\rho = R \frac{A}{l} \tag{5.2}$$

と書くことができる。RRR は、式 (3.5) のように

$$RRR = \frac{\rho_{300K}}{\rho_{4K}}$$
(5.3)



図 5.10: 電解析出環境の実験セットアップの写真。左: 電流を流すために使用した直流電源 (ADVANTEST DC VOLTAGE CURRENT SOURCE/MONITOR TR6143)。右: 電解析出部の詳細写真。陽極には Ti/Pt のメッシュを配置し、陰極には析 出させるための基板を長手ブスバーによって固定している。また、電解溶液はヒーター付き攪拌機で温めながら攪拌して いる。

表 5.4: Au の電解析出条件。計4枚の基板で電流密度を変化させながら成膜を行った。厚みは触針式の段差計である Dektak 6M で測定を行った。

基板 ID	E038	E039	E040	E042
電流密度 $[mA/cm^2]$	1.25	1.25	0.63	0.63
電流 [mA]	0.140	0.140	0.070	0.070
成膜時間 [min]	60	35	70	70
測定膜厚 [μm]	3.64	2.51	2.40	2.06

表 5.5: 室温 (300 K) とヘリウム温度 (4 K) での抵抗値の測定結果と計算した RRR の結果。RRR の不確かさについては、各抵抗値 の不確かさを伝播させて 1σ の不確かさをつけている [20]。

基板 ID	E038	E039	E040	E042-1	E042-2
電流密度 [mA/cm ²]	1.25	1.25	0.63	0.63	0.63
電流 [mA]	0.140	0.140	0.070	0.070	0.070
成膜時間 [min]	60	35	70	70	70
測定膜厚 [µm]	3.64	2.51	2.40	2.06	2.07
室温での抵抗値 [mΩ]	61.5413	103.702	90.9307	98.8475	97.4863
4 K での抵抗値 [mΩ]	4.41484	12.0894	3.64226	4.27643	4.11929
RRR	13.940 ± 0.014	8.558 ± 0.004	24.97 ± 0.03	23.11 ± 0.10	23.67 ± 0.10

と室温 (300 K) とヘリウム温度 (4 K) での電気抵抗率の比で表される。これより、測定している物質の大きさが変化 しないと仮定すると RRR は

$$RRR = \frac{R_{300K} \frac{A}{l}}{R_{4K} \frac{A}{l}} = \frac{R_{300K}}{R_{4K}}$$
(5.4)

となり、単純な抵抗値の比として計算できる。このことは、RRR は物質の大きさに依存せず、測定しやすいパターン で抵抗値を測定できることを意味する。無冷媒機械式冷凍機である Gifford-MacMahon (GM) 冷凍機を利用して、測 定した常温での抵抗値と4K での抵抗値の比をとることで RRR の計算を行った。図 5.12 に測定時のセットアップの 写真を示す。ステージは熱伝導性の良い銅板からなり、シール配線と測定用素子はワニスで接着されている。また、 シール配線と測定用素子は Al ワイヤボンディングで電気的につながっていており、ステージ配線と冷凍機内の配線 は FPC コネクタにより接続されている。冷却中のステージ温度は酸化ルテニウム抵抗温度センサー RuOx を使用し ている。温度の測定には LakeShore 社製の AC レジスタンスブリッジ 370 型、素子の抵抗値の測定には LakeShore 社 製の AC レジスタンスブリッジ 372 型を用いた。

図 5.13 から図 5.15 に冷却試験での温度と素子の抵抗値の測定結果を示す。また、室温 (300 K) とヘリウム温度 (4 K) での抵抗値の測定結果および RRR の計算結果を表 5.5 に示す。この表から同じ電流密度でも、膜厚が大きい方が RRR が大きい傾向がある。これについては、電解析出法では成膜金属が徐々に成長するして大きな結晶構造を形成 するため、膜厚が大きい方が格子欠陥の少ない薄膜になるためと考えられる。

以上の結果から、TES カロリメータの要求から見積もられる RRR の条件である RRR > 10 を超える熱伝導性を 持つ Au 薄膜の製作を行うことができ、再現性も確認された。3inch 基板での Au オーバーハング吸収体の製作条件と



図 5.11: 電極層除去後の基板表面の写真

しては E040 の条件が最適であることが見込まれる。



図 5.12: RRR 測定の実験セットアップの写真。



図 5.13: E038 と E039 の RRR 測定試験での温度と抵抗値のグラフ



図 5.14: E040 の RRR 測定試験での温度と抵抗値のグラフ



図 5.15: E042 の RRR 測定試験での温度と抵抗値のグラフ

5.4.7 熱拡散時間の見積もり

電解析出法における条件出しから RRR > 20 を安定的に得られる条件を明らかにできた。 4.5 節の式 (4.17) から RRR > 20 のときに得られる熱拡散時間の再見積もりを行う。200 mK における熱拡散時間 τ_{diff} と RRR の関係は 式 (4.20) となっているので、 τ_{diff} について解くと

$$\frac{\tau_{\text{diff}}}{1\ \mu\text{s}} \lesssim \frac{9.23}{20} \left(\frac{x}{260\sqrt{2}\ \mu\text{m}}\right)^2$$

$$\tau_{\text{diff}} \lesssim 0.46\ \mu\text{s} \left(\frac{x}{260\sqrt{2}\ \mu\text{m}}\right)^2 \tag{5.5}$$

となる。このことより、吸収体での熱拡散時間のスケールは ~ 0.46 μs と見積もられる。

5.5 Au オーバーハング吸収体のテスト製作

前節までで、2 cm 基板を使ったときのレジストや Au 薄膜の成膜条件について検討してきた。本節では 2 cm 基板 での条件を 3inch での製作に適応しプロセスを進める上での問題点の洗い出しを行う。

5.5.1 電極層形成用レジストの成膜

2 cm 基板での条件出しの結果から、電極層形成用のレジストに対しては、現像の後 135°C での追加のベーキング が有効と期待できる。成膜条件については、使用しているレジストである AZ ECI3027 について、露光前と露光後の 2 回ベーキングが必要であることがわかったため、ベーキングは合計 3 回というレシピに変更した。また、2 cm 基板 ではレジストが ~ 2.7 µm の厚みで成膜されていたが、3 inch 基板で成膜を行ったところ半分程度の厚みでしか成膜 されていなかった。それに応じて電極層形成用レジストの回転数条件についても調節を行った。電極層形成用レジス トのプロセスで条件を変化させたものを表 5.6 に示す。

3 つの基板については、SEED211216b と mush220902 が同じ条件、mush220802a がベーキングの時間を長くした ものである。レジスト形成後の基板表面を図 5.16、図 5.17 に示す。これらは実際に電極層を成膜した後、Au の電解 析出ができた。つまり電極層は段切れを起こしていなかった。以上から 3inch 基板でも現像後に 135°C のプロセスを 組み込んだ。



図 5.16: mush220802a のレジスト形成後の顕微鏡写真。左: 最後のベーキングを行う前。右: 最後のベーキングを行った後。最後 のベーキングの前後でレジストの縁が丸みを帯びていることが確認できる。

基板	SEED211216b	mush220802a	mush220902
HMDS	#0-6	#0-6	#0-6
AZ ECI3027	#0-6	#0-6	#0-6_1500
Baking	$90^{\circ}\mathrm{C}$	$90^{\circ}\mathrm{C}$	$90^{\circ}C$
	1m	1m 30s	1m
Exposure	15s	15s	15s
Baking	$110^{\circ}\mathrm{C}$	$110^{\circ}\mathrm{C}$	$110^{\circ}\mathrm{C}$
	1m	1m 30s	1m
Developing	41m	15m 01s	48m 57s
Baking	$135^{\circ}\mathrm{C}$	$135^{\circ}\mathrm{C}$	$135^{\circ}\mathrm{C}$
	3m	5m	3m

表 5.6: 電極層形成用レジストの成膜条件



図 5.17: SEED211216b と mush220802a のレジスト形成時のベーキング後の比較。左: SEED211216b の様子。右: SEED211216b の様子。どちらも柱の周りになだらかな輪郭がみられている。

5.5.2 吸収体形成用レジストの成膜

2cm 基板で条件出しを行った結果を参考に、新たに条件を変更しながら吸収体形成用レジストの成膜を行った結果 について報告する。表 5.7 に設定した条件について示す。mush220622 では、AZ ECI3027 の仕様に従い露光前後に ベーキングを行ったところ図 5.18 左のようにパターンが崩れてしまった。厚いレジストを成膜した際に、十分な乾燥 が足りなかったと考え mush220802a では、乾燥時間を 3 時間以上確保したが、図 5.18 右のように吸収体の柱構造の 形成部分に収縮した部分が見られた。以上の 2 つの結果から、露光後のベーキングでは、レジストに残留しているガ スを抜くため、レジスト全体が収縮しパターンの破壊に繋がると考え、mush220902 では露光後のベーキングを行わ なかった。その結果、一部分でしわが見られるものの、パターン自体が崩れるようなことは起こらなかった (図 5.19)。 これらの結果から、吸収体形成用のレジストでは露光後のベーキングは行わないプロセスで進める必要があることが わかった。

基板	mush220622	mush220802a	mush220902
HMDS	#0-6	#0-6	-
AZ ECI3027	#19-22	#19-22	#19-22
Baking	$100^{\circ}\mathrm{C}$	$100^{\circ}\mathrm{C}$	$100^{\circ}\mathrm{C}$
	1m 30s	1m 30s	1m 30s
Exposure	15s	15s	15s
Baking	$110^{\circ}\mathrm{C}$	$110^{\circ}\mathrm{C}$	-
	1m 30s	1m 30s	-
Developing	5m 13s	7m 23s	5m

表 5.7: 吸収体形成用レジストの成膜条件



図 5.18: 吸収体形成用レジスト成膜後にパターンが壊れてしまった mush220602 と mush220802a の顕微鏡写真。左: mush220622。 右: mush220802a



図 5.19: 吸収体形成用レジスト成膜後にパターンが壊れなかった mush220902 の顕微鏡写真。



図 5.20: mush220802a での吸収体形成用レジストの膜厚測定結果

表 5.8: 3ich 基板での Au の電解析出条件。計4枚の基板で、時間を変化させながら成膜を行った。膜厚の測定には、触針式の段差 計である Dektak 6M を使用した。

基板 ID	E044	E048
電流密度 $[mA/cm^2]$	0.63	0.63
電流 [mA]	0.552	0.552
成膜時間	25min 6s	42min
測定膜厚 [μm]	1.092 ± 0.006	1.961 ± 0.003

また、mush220802a の膜厚測定結果を図 5.20 に示す。この測定結果から、吸収体形成用レジストの膜厚は 3.74±0.01 μ m だった。2 cm 基板での条件出しでの結果よりも 1 μ m 程度薄くなる結果となったが、吸収体の膜厚の 設計値 ~ 2 μ m に対して厚いといえるため、膜厚の条件としては適切であると考えた。

5.5.3 吸収体の膜厚に対する電解析出法の条件出し

2 cm 基板で RRR ~ 25 となる条件については確立することができた。そこで、RRR ~ 25 という結果が得られて いる電流密度を保ちながら 3inch 基板へ Au を電解析出させ、膜厚を時間制御することを考える。TES カロリメータ 製作用基板の電解析出面積は ~ 8.77 × 10⁻¹ cm² である。RRR ~ 25 が得られている電流密度である 0.63 mA/cm² を用いて、流す電流値は 0.552 mA とした。表 5.8 に基板ごとに変化させた電解析出条件と膜厚測定結果を示す。こ の測定は吸収体形成用レジストを除去した後に行っており、この段階では電極層が付いている。E048 の結果からお よそ 2 μ m の厚みとなっていることがわかる。次に吸収体形成後の電極層除去で 100 nm の Au が削られることを想 定し、時間のみ 44 分に変更したものを製作した (E054)。Au 成膜後に Au のエッチングを行い、膜厚を測定したとこ ろ、1.95 ± 0.03 が得られた。これらの結果から、3inch の基板に対して電解析出法で Au の成膜を行う際の条件とし ては、E054 の条件が適しており、TES カロリメータの製作にも採用した。

5.5.4 吸収体形成用レジスト除去プロセス

Au オーバーハング吸収体の構造形成は、図 5.2 に示すように、電解析出法で Au を成膜した後、吸収体形成用レジ ストの除去を行う必要がある。吸収体形成用のレジストに用いた AZECI3027 は有機溶剤であるアセトンや 2-プロパ ノール (isopropanol; IPA) に溶解するため、ガラス製の瓶に縦置きしながらアセトン、IPA、純水の順に洗浄を行った ところ、図 5.21 左のように基板表面にレジストが残留した。これについては、電解析出法で用いている電解溶液であ る Techni Gold 25 ES RTU とレジストが接触面で反応することで、レジストが有機溶剤に溶けない性質を持つと考え た。そこで、プラズマを用いた O₂ アッシングプロセスを取り入れた。O₂ アッシングは、有機物の表面に O₂ プラズ マを照射することで、有機物に含まれる炭素と結合させ、二酸化炭素として気化させる処理 (灰化) である。O₂ アッ シングはレジストを除去するのに有効であるが、長時間行うと熱によりかえってレジストが固着したり、TES カロリ メータに対し負荷をかけてしまう。そこで今回は O₂ アッシングと有機溶剤による除去を組み合わせた。基板の裏面 にオイルを塗り、Al 製の台座に固定し O₂ を行ったあと、アセトン、IPA、純水の順に洗浄を行った。ただし、基板 に熱負荷がかからないように 3~5 分ずつ O₂ アッシングを行った。その結果、図 5.21 右のように表面のレジストを 除去できた。基板表面にしわが寄っていることがわかる。これは、電極層の下部にある電極層形成用のレジストが熱 により収縮しているためである。一度に長い時間をかけて O₂ アッシングを行うと、熱負荷がかかりやすいと考え、 TES カロリメータの製作では最大でも 3 分のアッシングプロセスを繰り返すこととした。



図 5.21: 吸収体形成用レジストの除去。左: アセトン、IPA、純水で1分ずつ浸したあとの基板表面の顕微鏡写真。黄色やピンク色に見える部分がレジストの残留部分である。右: O2 アッシングを合計 19分行ったあとの基板表面の顕微鏡写真。黄色やピンク色に見えるレジスト部分は除去できていることが確認できる。吸収体間にしわのようなものが寄っていることが確認できるが、これは長時間の O2 アッシングにより、電極層の下層にあるレジストに熱負荷がかかることで収縮しているためである。

5.5.5 電極層形成用レジスト除去プロセス

電極層をウェットエッチングで除去した後には、電極層形成用のレジストを除去する必要があり、吸収体の中空構 造を保つために重要なプロセスとなる (図 5.2)。吸収体形成用レジスト同様に、有機溶剤のアセトンに浸して除去を 試みたところ図 5.22 左のようにピンク色の残留部分が基板全体に見られた。これについて、O₂ アッシングを 10 分 間行ったが除去することはできなかった。そこで、異なる有機溶剤である RemoverPG を用いることとした。異なる 基板で 3 日程度 RemoverPG の中で浸した後に、O₂ アッシングを行った後の顕微鏡写真が図 5.22 右である。一部分 で吸収体間に汚れのようなものが見られたが、基板全体としては、レジストを除去できていた。TES カロリメータの 製作では、RemoverPG を用いて電極層形成用のレジストの除去を行う。

5.6 Au オーバーハング吸収体の構造形成と製作プロセスの条件出しのまとめ

この節では、本章で行った吸収体製作のための条件出しの結果を用いて吸収体構造を形成した結果について報告す る。その後、製作プロセスについてまとめる。

5.6.1 Au オーバーハング吸収体の構造形成

Au オーバーハング吸収体の構造形成後の顕微鏡写真を図 5.23 に示す。図 5.23 左については、吸収体部分が外れる ことなく形成されていることがわかる。図 5.23 右については、吸収体部分が外れていることがわかるこれについて



図 5.22: 電極層形成用レジストの除去。左: アセトンに浸した後、O₂ アッシングを 10 分間行ったときの顕微鏡写真。基板表面に レジストのようなものが残留している。右: 異なる基板で 3 日程度 RemoverPG の中で浸した後、O₂ アッシングを 10 分 間行ったときの顕微鏡写真。吸収体の間に汚れが見られるもののその他の部分では残留物が見られないことがわかる。



図 5.23: Au オーバーハング吸収体の構造形成後の光学顕微鏡写真。左: 吸収体構造が綺麗に形成されている部分。右: 吸収体構造 が外れている部分。

は、RemoverPG の粘性が原因であると考えられる。溶液の粘性が高いと基板を浸す際や引き上げる際に表面張力が 働く。これを防ぐためには、基板を液面に対してなるべく傾けながらゆっくり取り扱うことや、RemoverPG に対して 純水を加えることで希釈し、表面張力を低減する工夫が必要である。図 5.24 に走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope; SEM) で撮影した基板表面の写真を示す。ただし、図 5.23 とは異なる部分である。図 5.24 左は Ea チッ プとなる領域の全体図である。周りに汚れのようなものが見えるものの、吸収体付近には確認できないことから、 TES カロリメータの製作においては大きな問題にならないと考えられる。図 5.24 中央は、左図の吸収体の一部分を 拡大したものである。柱部分を支えに SEM でも確認できるほどに隙間が開いていることがわかる。図 5.24 右は、異 なる場所で撮影した SEM 画像である。図中には吸収体自立しているもの、剥がれかかっているもの、笠部分が垂れ て潰れているものが確認できる。剥がれかかっているものものについては、先述と同様な RemoverPG の粘性による 問題が考えられるため、表面張力の低減に工夫が必要である。笠部分が垂れて潰れているものについては柱部分の厚 みが足りず、自立できていないことが考えられる。これら二つの問題点については、Au オーバーハング吸収体形成の 歩留まり向上への今後の課題とした。

5.6.2 吸収体製作プロセスの条件のまとめ

本章では、4 章で明らかにした設計目標を満たすために、電極層形成用レジストの構造、吸収体形成用レジストの 厚み、電解析出法での Au の RRR と厚みの条件出しを行った。その後、3inch 基板で吸収体構造を形成した。その結 果、4 章で制限をつけた厚みを概ね満たすことができ、構造についても自立していることを確認することができた。 電極層形成用のレジストの条件出しでは、2cm 基板で行った現像後のベーキングによるテーパー構造形成が 3inch



図 5.24: Au オーバーハング吸収体の構造形成後の SEM 画像

基板でも有効であることを示し、電極層の形成のためのレジストの製作条件を確立した。吸収体形成用のレジストの 条件については、露光前後でベーキングを行うと、レジストが収縮するためパターンの破壊に繋がったが、露光後の ベーキングを行わないことによってパターンを破壊せずにレジストを形成することができた。膜厚については、3inch 基板において、少なくとも 3.74±0.01 μ m の厚みが確保されており、2 μ m の吸収体を析出させる上では十分な膜 厚であると考えられる。電解析出法については、Au の電解析出システムの構築を行った。定電流密度 0.63 mA/cm² 下で ~ 2 μ m の膜厚の Au を成膜すると 20 以上の RRR が得られており再現性も確認されている。これは設計目標 の 10 以上を満たしており、TES カロリメータの吸収体としては十分である。また、RRR > 20 での熱拡散速度は ~ 0.46 μ s 以下であることが見込まれる。膜厚については、RRR > 20 の電流密度で 2 μ m の条件を確立した。

3inch 基板での Au オーバーハング吸収体の構造形成については、吸収体形成用レジストと電極層形成用レジスト の除去プロセスについてそれぞれ検証を行った。吸収体形成用レジストについては、有機溶剤を用いた除去とプラズ マを用いた O₂ アッシングを組み合わせて行うことが有効であり、電極層のレジストに熱負荷を与えないために一回 の O₂ アッシングは3分程度とした。電極層形成用レジストについては、従来使用しているアセトンではレジストが 膜状に残ってしまうという問題が確認されたため、新たに有機溶剤である RemoverPG を利用した。その結果、レジ スト残留部分はあるものの、膜状に残ることはなくなった。吸収体構造を SEM 画像で見たところ、吸収体が柱を支 えに浮いていることが確認できた。これにより、オーバーハング構造の吸収体の製作に成功したと言える。吸収体が 剥がれかかっているものや笠が垂れているものも同時に確認されたが、これは使用している溶剤の粘性により壊れた り、柱の厚みが薄いことが原因であると考えられる。これらは吸収体製作の歩留まり改善のために解決すべき課題と した。本章で得られた条件出しの結果を用いて、6章で実際の TES カロリメータに成膜する。
第6章

TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作

この章では、5章で開発したオーバーハング吸収体を超伝導転移端 (Transition Edge Sensor; TES)X 線マイクロカロ リメータ (以下、TES カロリメータ) の製作プロセス中に組み込み、実際に製作と検証を行った結果を示す。金属薄膜 形成に際して、真空蒸着法、スパッタ法、電解析出法と 3 種類の成膜手法を用いるため、各プロセスを通さなければ あらわにならない不具合や問題点が生じる可能性も考慮しなければならない。そこで、製作プロセスを初めから終わ りまで通すことで問題点の洗い出しも並行して行う。図 6.1 に今回製作を行った Au オーバーハング吸収体を搭載し た TES カロリメータの模式図を示す。また図 6.2 に TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作プロセスの概略図お よび、表 6.1 に製作プロセスの内容を示す。製作では、多くのプロセスを半導体製作でも利用されるフォトリソグラ フィーによって進めている。詳しくは Appendix.A を参照されたい。



図 6.1: Au オーバーハングを搭載した TES 型 X 線マイクロカロリメータの模式図。縦横比のスケールは正しいものではなく誇張 して描いてある。

#	プロセス内容	形成方法
1	3inch ウェハ両面アライメントマーク形成	ドライエッチング
	裏面メンブレン領域の SiO ₂ /SiN _x の除去	ドライエッチング + ウェットエッチング
2	TES(Au/Ti) 成膜	真空蒸着法
	TES パターニング	ウェットエッチング
3	配線用パターニング	
	配線用 Nb 成膜	スパッタ法
	配線形成	リフトオフ
4	電極層成膜用レジストパターニング	
	電極層 (Au/Ti) 成膜	真空蒸着法
5	吸収体成膜用レジストパターニング	
	吸収体 (Au) 成膜	電解析出法
6	吸収体成膜用レジスト除去	
	電極層除去	ウェットエッチング
7	裏面メンブレン形成・チップ化	ドライエッチング
8	電極層成膜用レジスト除去	

表 6.1: Au オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作プロセスフロー



図 6.2: TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作フロー (縦横比のスケールは正しいものではなく、わかりやすいように誇張して描いている。)

6.1 使用ウェハとウェハ洗浄

TES カロリメータ製作には、両面に酸化膜 (SiO₂ = 0.5 μ m) と窒化膜 (SiN_x = 1.0 μ m) が成膜された 300 μ m の 3inch Si ウェハを使用した。TES カロリメータの素子は熱浴との熱接触を悪くする必要があり、製作の最終段階で裏 面から素子周辺の Si を削り、SiN_x 上に素子が形成される構造 (メンブレン構造) により達成される。SiN_x は低圧下 における気相での化学反応による薄膜成長法 (Low Pressure Chemical Vaper Deposition; LPCVD) により成膜される。



図 6.3: 表面と裏面に形成したアライメントマークの様子。左: オス型のアライメントマーク。後述するウェハ裏面の SiO₂ 除去後の様子。右: メス型のアライメントマーク。ウェハ表面の現像後の様子。

このプロセスでは、700°C~800°C の温度で式 (6.1) に示すようなジクロロシランとアンモニアによる反応が用いら れており、膜の均質性が高いことが利点である。

$$3\mathrm{SiCl}_2\mathrm{H}_2 + 4\mathrm{NH}_3 \rightarrow \mathrm{Si}_3\mathrm{N}_4 + 6\mathrm{HCl} + 6\mathrm{H}_2 \tag{6.1}$$

SiO₂ は Si よりもドライエッチングによる反応性が乏しいことを利用して Si を削る際のストッパーとしての役割を 担う。

プロセス中のウェハ洗浄には、有機溶剤であるアセトンと 2-プロパノール (isopropanol; IPA) を利用した。洗浄 のプロセスはウェハ上のパーティクルが再びウェハに付着するのを防ぐためにガラス製の瓶に縦置きし、アセトン、 IPA、純水の順に浸すことで行った。TES 成膜前には、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を利用し洗浄効果を高めた。TES 成膜後は Au/Ti 薄膜の合金化を防ぐために超音波洗浄機を利 用していない。

6.2 アライメントマーク形成

3inch ウェハの両面に、製作時のパターニングの位置合わせの目安になるアライメントマークを形成する。アライ メントマークは図 6.3 に示すようにオス型とメス型の二種類からなる。両面にプロセスを重ねていく段階では、マス クにあるアライメントマークと基板にあるアライメントマークを合わせ込むことで、高精度に位置を決定する。その 他にも TES カロリメータ素子をチップ化した後に向きを定義するための"JAXA"マークやチップ化の際のガイドライ ン、チップの ID やチップ内素子のマトリックス番号もこの段階で形成する。裏面のアライメントマークはメンブレ ン構造の位置を決定する上で必要不可欠であるため、主にプロセスを重ねるときに使用する表面アライメントマーク とずれてしまうと、TES カロリメータ素子の直下にメンブレン構造を形成することができない。そのため、両面のア ライメントマークは数 μm の精度で一致させる必要がある。そこで、図 6.4 に示す両面露光アライナー装置の両面の カメラを見ながら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ーによる保護レジストパターンと、イオン反応性エッチング (Reactive Ion Etching; RIE) によるドライエッチングプロセスで形成される。本製作では、住友精密工業製の誘導結合プラズマ (Inductively Coupled Plasma; ICP)-RIE 装置 (図 6.5) 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 0.1 µm 程度であるが、このアライメントマークはメンブレン構造パターニングと TES パ ターニングのみに必要であり、TES の厚みは ~ 150 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。アライメント形成と後述するメンブレン構造形成について図 6.6 に示す。



図 6.4: 両面露光アライナー装置。



図 6.5: 住友精密工業製の誘導結合プラズマ (Inductively Coupled Plasma; ICP)-RIE 装置。アライメントマーク形成時のドライエッ チングや後述するレジスト除去時の O₂ アッシングで利用した。

6.3 メンブレン構造パターンの形成

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、ウェハ裏面の SiN_x を ICP-RIE 装置を用いて、等方ドライエッチングする。ドライエッチ



図 6.6: アライメントマーク形成とメンブレン構造形成

ングの際のマスクとしては、レジスト (AZ ECI3027) を利用した。その後むき出しになった SiO₂ をバッファードフッ 酸 (Pure Etch ZE255) に浸すことで除去する。TES カロリメータ素子の形成後に、SiN_x と SiO₂ の除去を行うと、熱 負荷やフッ酸処理による反応で TES 自体の超伝導特性に影響を与える恐れがあるため、あらかじめメンブレン構造パ ターンの形成を行う。

TES や吸収体の成膜が完了した後、ICP-RIE 装置を用いて、裏面から Si をドライエッチングで除去することで、メ ンブレン構造を形成する (6.9 節)。

6.4 TES の成膜プロセス

TES の成膜プロセスについて図 6.7 に示す。TES となる Ti および Au の二層薄膜は日本シード研究所製の TES 薄 膜製作装置 (図 6.8) を用いて成膜した。真空蒸着法では、真空チャンバー内に基板と蒸着源を置き、蒸着源を加熱す ることによって蒸発させ、基板上での凝着により薄膜を形成する。本装置において、Ti については電子線で加熱する ことで蒸発させる電子銃加熱方式、Au については抵抗器のジュール発熱によって加熱することで蒸発させる抵抗加 熱方式が採用されている。

TES の加工はウェットエッチングによって行った。Au に対しては、ヨウ素系溶液である AURUM-302(関東化学 製) を用いた。Au のエッチングレートは 2 s/nm として目標膜厚から溶液に浸す時間を計算した。Au のエッチング 後にウェハ洗浄と同様にアセトン、IPA、純水の順で TES パターニング用レジストを除去し、接触式の段差計である DEKTAK 6M(図 6.9) を用いて Au の厚みを測定した。Au のエッチングの反応の一例を式 (6.2) に示す [21]。ただし、 Au とヨウ素系溶液の反応については十分解明されていない。

$$2Au + 3KI_3 \rightarrow KI + 2AuI \cdot KI_3 \tag{6.2}$$

Ti のウェットエッチングには 60°C に加熱した 30% 過酸化水素水 (和光純薬製) を用いた。Ti のエッチングレートは 5.25 s/nm として、目標膜厚から浸す時間を計算した。Ti のエッチング後は前述同様に DEKTAK 6M で Au と Ti の 合計膜厚を測定した。超伝導金属である Ti の上に常伝導金属である Au が乗っていない部分があると二層薄膜構造が できずに、超伝導転移温度が薄膜上で異なってしまうことが考えられ、薄膜の端と中心部分で超伝導転移温度が異な る場合、電気的な超過ノイズが現れることがわかっている。そこで、常伝導金属である Au を張り出した構造にする ために Ti のサイドエッチングを行った。Ti サイドエッチングレートは 0.34 ~ 0.47 nm/s であることがわかっている ため、追加で 15 分程度 60°C の過酸化水素水に浸した。Ti のエッチングの反応を式 (6.3) に示す。

$$Ti + 2H_2O_2 + 4H^+ \rightarrow 4H_2O + Ti^{4+}$$
 (6.3)



図 6.7: TES パターニングの概要



図 6.8: 日本シード研究所製 TES 薄膜製作装置。

6.5 Nb 配線形成

Nb 配線の形成はリフトオフにより行った。図 6.11 に Nb 配線形成のプロセスを描いた概略図を示す。まず、図 6.12 のように配線部分のパターニングを行う。配線部分のパターニングには、リフトオフに必要なアンダーカット構造を 作るために、露光部分が現像で残るイメージリバーサルレジストである LOR10B を一層目、その上に AZ ECI3012 を 使用した。現像にはテトラメチルアンモニウム=ヒドロキシド (TMAH) 2.38%(多摩化学工業) を利用した。ただし原 液ではエッチングレートが高いため、パターンが壊れてしまうことを防ぐために TMAH(2.38%) と純水を 3:2 の割合 で希釈したものを現像液として用いた。

Nb 薄膜は国立天文台にある Nb スパッタ装置で成膜を行った。基板全体に Nb を成膜後、RemoverPG に 1–2 日程 度浸けることで Nb のリフトオフを行った。引き上げる際に Nb が基板表面に残ることがあるため、スポイトで水流 を作り、Nb を引き剥がしてから基板の引き上げを行った。



図 6.9: 接触式段差計である DEKTAK 6M。



図 6.10: Au/Ti エッチング後の TES パターンの様子。中心部分、および左右に見えている正方形が TES で Au/Ti の二層薄膜と なっている。その他の部分については基板表面の Au と Ti がエッチングされ、SiN_x がむき出しになっている。



図 6.11: Nb 配線形成のプロセスの概略図。ただし、縦横比のスケールは正しいものではなく誇張して描いてある。



図 6.12: Nb 配線形成のプロセスの様子。左: LOR10B と AZ ECI3027 を塗布してパターン形成を行った後の TES 表面。TES の 左右および下部の色が異なる部分が現像されておりレジストが塗られていない部分になっている。右: Nb を成膜し、 RemoverPG でレジストと Nb をリフトオフした後の TES 表面。配線パターン部分のみに Nb が残り、その他の部分はレ ジストが除去されているため SiN_x が見えている。



図 6.13: 国立天文台にある Nb スパッタ装置。



図 6.14: 電極層成膜用パターン形成後の TES 表面。TES の内部と周りにある丸い領域のみレジストがついておらず、周りより窪 んでいる。吸収体成膜後は、この丸い領域が柱となり吸収体構造を支える。左: パターン形成直後の顕微鏡写真。右: ハー ドベーキングを行った後の顕微鏡写真。丸い領域の輪郭がなだらかになっているため、濃く見えている。



図 6.15: 電極層 (Au/Ti) 成膜後の TES 表面の顕微鏡写真。全面に Au が成膜されているが、電極層成膜用レジストでのパターン形成時の窪みにより、柱部分となる丸い領域が見えている。

6.6 電極層の成膜プロセス

Nb 配線の形成後、基板に柱状のパターンを形成する。5 章での条件出しの結果を用いており、厚みを 2.7 μm に 調整した AZ ECI3027 をレジストとして使用した。また、電極層の段切れを防ぐために、レジストの現像後にホット プレートを用いて 135°C の温度で 5 分間ベーキング (ハードベーキング) を行うことで、パターン境界部分をなだら かにした。図 6.14 に電極層成膜用パターン形成後の TES 表面の顕微鏡写真を示す。TES 付近の丸い部分について はレジストが現像液によって除去され、周りより窪んでいる。このパターンに電極層を成膜することによって柱の ついた吸収体構造を形成することができる。さらに、ハードベーキングを行ったことにより、パターン周りの輪郭 がなだらかになり、濃く見えていることがわかる。今回電極層には Au を使用し、TES との密着性を考慮して Ti を TES と電極層の間に成膜した。成膜には、日本シード研究所製 TES 薄膜製作装置 (図 6.8) を利用しており、厚みは Ti/Au = 30 nm/100 nm とした。

電極層成膜後の TES 表面の様子を図 6.15 に示す。全面に Au が蒸着されているが、レジストでのパターン形成で 窪みを作っているため、丸い領域が引き続き見える。

6.7 Au オーバーハング吸収体の成膜プロセス

電極層を成膜後に、吸収体成膜用パターンを形成し、電解析出させる。今回 Au を ~ 2 μ m の厚みで成膜すること を目標とするために、~ 4 μ m に調整したレシピで AZ ECI3027 を塗布した。その後、電極層表面のパーティクル を除去するために UV 光で表面を 5 分間アッシングした。電解析出用の浴には、Techni Gold 25 ES RTU を用いた。 表 6.2 に電解析出の際の条件を示す (詳細は 5.5.3 節)。

溶液	Techni Gold 25 ES RTU
電流密度	$0.63 \mathrm{mA/cm^2}$
成膜面積	$0.8767 \mathrm{~cm^2}$
電流	$0.552 \mathrm{~mA}$
温度	$60^{\circ}\mathrm{C}$
回転数	300 rpm
時間	44 min

表 6.2: Au オーバーハング吸収体成膜での電解析出条件。

6.8 吸収体成膜用レジストと電極層の除去

吸収体形成用のレジストを除去することで、電極層をむき出しにした後、電極層を除去する。O₂ アッシングでは、 熱によって固着したレジストを除去可能であるが、電極層下のレジストが熱でダメージを受けるという欠点がある。 そこで、5.5.4 節 O₂ アッシングとアセトンの二つの手法を組み合わせて吸収体形成用レジストの除去を行った。その 後、TES の成膜プロセス (6.4 節) と同様に、電極層の Au を AURUM-302、Ti を 30% 過酸化水素水でウェットエッ チングした。

6.9 メンブレン構造形成とチップ化

熱浴と TES の熱伝導度を調整するために、メンブレン構造を形成する。メンブレン構造形成前に、表面はレジスト で保護した。レジストとして、アセトンに溶解しない LOR10B を塗布した上から、~ 20 µm の厚みで積むことがで きる AZP4620 を塗布した。ここで、アセトンに溶解しないレジストを利用する理由は、メンブレン構造形成時に使 用する台座からチップを剥がす際に、アセトンを利用するため完全にチップを剥がす前に保護レジストが剥がれてし まうことを防ぐためである。また、厚みが~ 20 µm のレジストは台座とチップの間のスペーサーとしての役割を果た す。基板は図 6.16 のようにメンブレン構造を掘る面を上に向けて AI 製の台座に固定する。AI 台座と基板の間には、 密着性を向上させるために拡散ポンプオイルを 1 滴垂らし接着させている。これにより、ICP-RIE 装置内で効率よく 基板が冷却され、エッチングの過剰な進行を止めることが可能である。また、AI 台座には基板を囲うようにカプトン テープを貼り付けている。これは、ブラック Si を防ぐためである。ブラック Si とは、拡散ポンプオイルが基板と AI 台座から漏れ出すことによって Si をマスクしてしまうことでドライエッチングが進みにくい領域のことである。

メンブレン構造形成のプロセスは Deep-RIE プロセスを用いており、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。エッチングガスは SF₆ を用いており、真空チャンバー内で高電圧・高周波数の変動磁 場が印加されることで F ラジカルが生成される。基板は陰極にセットされるため、F ラジカルが加速され衝突するこ とでスパッタ現象を引き起こし基板に含まれる Si 原子が飛び出す。Si 原子は F ラジカルと結合し、SiF₄ となって気 化することによりエッチング反応が進む。側壁へのエッチングを防ぐためにテフロン系ガスである C₄F₈ を導入し、 側壁を保護する。これらのプロセスを繰り返すことで、狭い領域を深く掘り進める高アスペクトエッチングを行うこ とが可能である。一般的に Si と SiN_x と SiO₂ への SF₆ の反応性は Si > SiN_x ≫ SiO₂ であるため、基板の SiO₂ は ドライエッチングのストッパーとしての役割を果たす。

エッチングレシピを表 6.3 に示す。このレシピのエッチングレートは 3.5 µm/1 cycle であり、使用したウェハの Si が 300 µm であることから約 90cycles レシピを繰り返した。基板の Si の厚みにはばらつきがあるため、最終的には 光学顕微鏡で SiN_x に対する Si の深さを測定することで、レシピのサイクル数の微調整を行った。



図 6.16: Al 台座に固定した基板。

図 6.17 にメンブレン構造形成後の TES カロリメータを裏面から見た様子を示す。基板裏面の Si がエッチングさ れているため、裏面から TES と TES に繋がる Nb 配線が確認できる。また、オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータについては、吸収体構造を支えるための柱部分についても見ることができる。メンブレン構造の形成 後は、各チップの境界部分も Si が削られており SiO₂ と SiN_x 膜だけがついている状態となっている。4inch サイズ のシャーレにいれたアセトン内で Al 台座からチップを外し、各チップを分離させた。保護レジストがアセトンに溶 解し、吸収体と拡散ポンプオイルが接着してしまうという問題があったため、本製作では、アセトンに溶解しない LOR10B を塗布した上から、~ 20 µm の厚みのレジストを塗布したが、基板と拡散ポンプオイルが密着することで チップが剥がせず、チップ表面の荒れやメンブレン構造の破壊、力のかけすぎによるチップの破壊が起こった。Al 台 座ごとホットプレートで 100°C に温めることでチップを剥がす手法も導入したが、根本的な解決には至らなかった。 これについては、6.11 節で詳しく議論する。

			0 1		
	Gas	Power/W	Time/s	Flow rate/sccm	Pressure/Pa
Etching	SF_6	2600	3.0	550.0	9.0
Etching(boost)	SF_6	2600	6.4	550.0	18.0
Passivation	$\mathrm{C}_4\mathrm{F}_8$	1000	3.0	400.0	8.0





図 6.17: 裏面から見たメンブレン構造形成後の TES の顕微鏡写真。基板裏面の Si が削られており、SiO₂ と SiN_x だけとなってい るため、TES 構造が見える。左: オーバーハング吸収体を搭載した TES の様子。中心に正方形の TES と配線が形成され ている。また、メンブレン構造の四角にはオーバーハング吸収体を支える柱が確認できる。右: 吸収体を形成していない TES の様子。中心に TES の構造を確認することができる。

6.10 電極層成膜用レジストの除去

最後に、メンブレン構造形成時のレジストと電極層成膜用のレジストの除去を行った。除去には Nb 配線形成時 (6.5 節)にも使用した RemoverPG を利用し、約3日間浸した。これにより、メンブレン形成用の保護レジストである LOR10B と AZP4620、および電極層成膜用のレジストである AZ ECI3027 を同時に除去可能である。電極層成膜用 レジストを除去した後の完成した素子を図 6.18 に示す。図 6.19 は完成した素子の顕微鏡写真であり、左と中央はそ れぞれ Ea チップと Sa チップの Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータである。吸収体構造を支え る柱部分を確認できる。また、右は Ea チップの吸収体を搭載していない TES カロリメータである。TES カロリメー タの周りの色が変わっている部分がメンブレン構造である。また、図 6.20 に製作した TES カロリメータを走査型電 子顕微鏡で撮影した写真を示す。これらの図から Au オーバーハング吸収体が柱を支えにして浮いており、その下を Nb で形成した配線が通っている様子を確認できた。これをもって Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリ メータの製作に成功したと言える。



図 6.18: 完成した TES カロリメータ素子の様子 (JAXA110)。



図 6.19: 完成した素子の顕微鏡写真 (JAXA110)。



図 6.20: 完成した素子を走査型電子顕微鏡で撮影した写真。

6.11 TES カロリメータ製作における問題点

5 章で行った条件出しの結果をもとに、実際に Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータの製作を行 うことで製作プロセスの検証を行った。その結果、Au オーバーハング吸収体は柱を支えに浮いていることが確認で き、開口率の向上を実現する TES よりも大面積の吸収体形成に成功した。

本製作において問題となった部分は、メンブレン構造形成後に TES カロリメータチップを AI 台座から剥がす工程 である。AI 台座と基板の間の密着性を向上させるために使用した拡散ポンプオイルによって、チップを剥がすことが 困難となった。これを改善するための具体案としては 2 つ考えており、1 つは、オイルとレジストを同時に除去する ために、アセトンの温度を上げることで反応性を向上させる、または、別の溶剤使用することである。現状、オイル よりもレジストの方がアセトンに溶解しやすいため、オイルが除去される前に保護レジストが溶け出し、オイルと基 板が張り付いて剥がれないことが起きていると考えられる。そこで、同時に除去することができれば、~ 20 µm のス ペーサーを利用して基板を剥がすことができると考えられる。2 つ目は、スペーサーとして利用するレジストの厚み を厚くすることである。より厚く成膜できるレジストを使用するか同じレジストを層状に重ねることで、オイルと基 板の間に十分なスペースを作ることができ、容易に剥がすことができると考えられる。

第7章

オーバーハング吸収体 TES 型 X 線マイクロカ ロリメータの極低温での性能評価

検出器の製作においては、設計目標を満たした検出器が製作されているか、劣化しているならどのような性能と なっているのか、性能劣化を引き起こす要因は何かを明らかにし、製作プロセスにフィードバックする必要がある。 本章では、6章で製作した超伝導転移端 (Transition Edge Sensor; TES) 型 X 線マイクロカロリメータ (以下、TES カ ロリメータ) を冷却し、性能評価を行った結果について示す。図 7.1 に本修士論文で行った評価と対応する TES カロ リメータの性能について示す。構造と残留抵抗比の測定は、すでに 5 章で報告済みである。本製作における性能評価 のうち、冷却試験で行うことは、「1.TES カロリメータが超伝導転移をしめすことの確認」、「2. TES カロリメータの 物理量の算出」、「3. エネルギー分解能の測定」「4. X 線信号により飽和していないことの確認」である。1 について は熱浴の温度と TES カロリメータの抵抗値を測定する抵抗温度 (RT) 特性により行う。2 については、電流電圧 (IV) 特性の測定により、TES カロリメータと熱浴の間の熱伝導度を求める。そして TES カロリメータを動作させるのに 適切な点 (動作点)を確認する。3 と 4 については、X 線源からの X 線を TES カロリメータに照射する X 線照射試験 によって、実際の X 線によるパルスを取得することで、立ち上がり時定数および立ち下がり時定数のばらつきや TES カロリメータの末れルギー分解能を測定する。設計値と製作して得られる値との比較を行い、性能試験から得られる TES カロリメータの課題について明らかにする。

7.1 測定原理と実験セットアップ

今回の実験では、極低温への冷却に 2014 年 5 月に納入された無冷媒希釈冷凍機を利用した。装置の外観を図 7.2 に示す。無冷媒希釈冷凍機は無冷媒機械式冷凍機である Gifford-MacMahon (GM) 冷凍機と希釈冷凍機を組み合わせ たものであり、最低到達温度は 70 mK 程度である。また、RT 特性と IV 特性の測定は X 線照射試験中に行うことが 可能であり、実験セットアップも同様のものである。

7.1.1 RT 特性の測定

2.9.1 節のように、TES カロリメータの温度 *T* と抵抗値 *R* の関係である RT 特性を測定することで、TES カロリ メータの転移温度 *T*_c と温度感度 α を求めることができる。測定方法は 2 種類あり、1 つ目は TES カロリメータに電 流を流しそのときの電圧を測定する四端子法である。2 つ目は TES カロリメータに対して並列にシャント抵抗を入れ ることで擬似的な定電圧バイアス下で測定する方法である。各測定方法の詳細は 2.9.1 節に示した。

四端子法でのセットアップを図 7.3 に示す。極低温ステージは銅板からなり、シール配線と TES カロリメータは極低温ステージにワニスで接着されている。また、冷却中のステージ温度は酸化ルテニウム抵抗温度センサー RuOx を使用している。各素子および温度計とシール配線は Al ワイヤボンディングにより電気的に接続されていて、ステー



図 7.1: 評価手法と対応する性能



図 7.2: 無冷媒希釈冷凍機

ジ上部にある FPC コネクタにより冷凍機内部の配線に結ばれる。冷凍機内部の配線は室温系の AC レジスタンスブ リッジ 370 型 (LakeShore 社製、以下 LS370) と AC レジスタンスブリッジ 372 型 (LakeShore 社製、以下 LS372) に 接続されている。温度計のモニターには LS370、抵抗値のモニターには LS372 を用いている。LS372 では、測定抵 抗レンジと印加する電圧を設定することができ、これによって TES カロリメータに流れる電流を制御できる。

TES カロリメータに対して並列にシャント抵抗を入れて RT 特性を測定するセットアップを図 7.3 右に示す。四端 子法でのセットアップ同様に、極低温ステージは銅板からなり、シール配線と TES カロリメータ、酸化ルテニウム



図 7.3: RT 特性の極低温ステージ測定セットアップ。左: 四端子法で RT 特性を測定する場合。右: シャント抵抗を用いて定電圧 バイアス下で RT 特性を測定する場合のセットアップ。この極低温ステージでは、後述する IV 特性および X 線源照射試験 でもおなじものを使用する。

抵抗温度センサー RuOx はワニスで接着されている。四端子法と異なる部分は極低温ステージに超伝導量子干渉計 (Superconductiong Quantum Interference Device; SQUID) が搭載されている点である。本実験の SQUID には J32 型 を用いている。これは SQUID チップに、グラジオメータ型の dc-SQUID の 32 段アレイ、入力コイル、フィードバッ クコイル、フィードバック抵抗、シャント抵抗がまとめられている。また、シール配線と SQUID、および SQUID と TES カロリメータは Al ワイヤボンディングで接続されているため、電気的に繋がっている。温度計のモニターには LS370 を使用した。SQUID と繋がる冷凍機内部の配線は室温系の Magnicon に接続され、直流バイアスと SQUID の 制御を行う。このセットアップについては後述する IV 特性の測定 (7.1.2 節) および X 線源照射試験 (7.1.3 節) と同 じものである。SQUID の出力電圧 V_{out} はデジタル電圧計である 34461A 61/2 Digit Multimeter (KEYSIGHT 社製) を 利用して読み出しを行った。式 (2.52) のように、TES カロリメータの抵抗値 R_{TES} は、SQUID の出力電圧 V_{out} と シャント抵抗 R_{s} 、TES カロリメータへのバイアス電流 I_{b} 、電流電圧変換係数 Ξ を用いて

$$R = \left(\Xi \frac{I_{\rm b}}{V_{\rm out}} - 1\right) R_{\rm s} \tag{7.1}$$

と書けるため、TES カロリメータに流す電流に対する SQUID の出力電圧を測定することで抵抗値を得ることができ る。異なる熱浴温度に対して、以上の測定を行うことで、TES カロリメータの RT 特性が得られる。

7.1.2 IV 特性の測定

SQUID の出力電圧 Vout と TES カロリメータに流れる電流 ITES の間には、

$$V_{\rm out} = \Xi I_{\rm TES} \tag{7.2}$$

の関係がある。ただし、 Ξ は電圧電流変換係数である。また、TES カロリメータの抵抗 R_{TES} はシャント抵抗 R_{sh} から

$$R_{\rm TES} = \left(\frac{I_{\rm bias}}{I_{\rm TES}} - 1\right) R_{\rm sh} \tag{7.3}$$

となり、TES カロリメータの電圧 V_{TES} はオームの法則 V = RI から計算される。TES カロリメータのジュール発 熱 $P_{\text{b}} = I_{\text{TES}}V_{\text{TES}}$ と熱浴への熱流出が釣り合っていると仮定すると

$$P_{\rm b} = I_{\rm TES} V_{\rm TES} = \frac{G_0}{n} (T^n - T^n_{\rm bath})$$
(7.4)

が成り立つ。ただし、熱伝導度 G に対して、温度依存性を $G = G_0 T^n$ を仮定しており、TES カロリメータの温度を T、熱浴の温度を T_{bath} とした。TES カロリメータが超伝導転移温度 T_c で動作しているとき

$$P_{\rm b} = I_{\rm TES} V_{\rm TES} \sim \frac{G_0}{n} (T_{\rm c}^n - T_{\rm bath}^n)$$
(7.5)

と近似できるので、複数の熱浴温度で I_{bias} と V_{out} の関係を測定すれば、TES カロリメータと熱浴の間の熱伝導度 G を求めることができる。また、ジュール発熱による影響を差し引いた TES カロリメータの温度 T_{TES} は

$$T_{\rm TES} = \left(T_{\rm bath}^n + \frac{nP_{\rm b}}{G_0}\right)^{1/n} \tag{7.6}$$

と計算できるので、TES カロリメータの温度に対する抵抗値の関係、すなわち RT 特性を IV 特性の測定から得るこ とができる。実際の測定では、熱浴温度が一定のもとで TES カロリメータを常伝導となる程度の電流を流し、電流値 (バイアス電流 *I*_{bias}) を下げていったときの SQUID 出力電圧を記録する。

7.1.3 X 線照射試験

エネルギーが E の X 線パルスが入射したときの TES カロリメータの電流変化 ΔI は

$$\Delta I = -\frac{\alpha E}{CT}I\tag{7.7}$$

と書くことができる (式 (2.19))。このとき *α、C、T* はそれぞれ TES カロリメータの温度感度、熱容量、温度を表す。 また、信号の立ち下がり時定数 *τ*_{fall} は式 (2.67) と同じく、

$$\tau_{\rm fall} = \frac{C/G}{1 + \alpha/n} \sim \frac{nC}{\alpha G} \tag{7.8}$$

となる。ここで最後は $\alpha/n \gg 1$ の場合である。IV 特性の測定から得られた α 、熱伝導度 G、熱伝導度の温度依存性 のべきである n から、熱容量 C を見積もることができる。

X 線照射試験での極低温ステージのセットアップは、RT 特性や IV 特性の測定と同じ図 7.3 であり、TES カロリ メータから 5 mm 程度の高さに ⁵⁵Fe (5.9 keV, 6.5 keV) 線源を設置した。図 7.5 に極低温ステージを冷凍機に組み込 んだ際のセットアップ写真を示す。また、図 7.6 に X 線照射試験での実験セットアップ、および図 7.7 に SQUID を用 いた際の TES カロリメータの測定回路系を示す。SQUID と TES カロリメータへのバイアスは Magnicon で行った。



図 7.4: JAXA123 Ea4 の極低温ステージの写真。左: ステージ表面の写真。TES カロリメータ (JAXA123 Ea4)、SQUID、温度計、 シール配線はワニスで固定されており、それぞれは Al ワイヤボンディングで電気的に接続されている。中央: 極低温ス テージを上面から見た写真。線源を入れた穴から各ピクセルの吸収体が見える。右: ⁵⁵Fe 線源を取り付けた後の極低温ス テージを横から見た写真。線源は TES カロリメータから ~ 5 mm 離して取り付けた。



図 7.5: 冷凍機に極低温ステージを組み込んだ写真。下部に線源と TES カロリメータが搭載されており、シール基板と冷凍機配線 は上部の FPC コネクタにより接続されている。



図 7.6: 冷却試験での測定環境



図 7.7: SQUID を用いた TES カロリメータの測定回路系の概略図

7.2 性能評価を行った素子の概要

本製作で性能評価を行った素子の概要について表 7.1 に示す。JAXA122 については、JAXA123 と同時に TES (Au/Ti)を成膜した基板であり、Au オーバーハング吸収体が搭載されていない。これは、吸収体が搭載されていない 場合の TES カロリメータの転移特性を知るためである。JAXA123 については Au オーバーハング吸収体が形成され ており、TES の膜厚が異なるため、近接効果による転移温度の違いを確認する目的がある。JAXA122 は吸収体を搭 載していないため、四端子法での RT 特性試験のみ行った。JAXA123 は定電圧バイアス下での RT 特性試験、IV 特 性試験、X 線源照射試験を行った。以下では基板ごとに性能評価試験の結果を示す。

基板	項目	JAXA122	JAXA123
基板情報	TES 膜厚 (Au/Ti) [nm]	97.8/56.1	96.6/60.6
	想定転移温度 [mK]	310	320
	測定 Au 吸収体膜厚 [µm]	-	1.966 ± 0.004
	Nb 配線膜厚 [nm]	150	150
性能評価試驗		721 岱	7 4 1 倅
	运动通过文书工	1.3.1 別	/.4.1 即
	電流電圧特性	- -	7.4.1 助 7.4.2 節
	電流電圧特性 X線照射試験	- - -	7.4.1 的 7.4.2 節 7.4.3 節

表	7.1:	性能評	価を行・	った素子の)概要
~			. زایت اسا		

7.3 JAXA122 (吸収体が搭載されていない TES カロリメータ)

7.3.1 RT 特性

JAXA122 Ea4 の A3、D2、T2 (図 7.8) について冷凍機に組み込み冷却を行ったが、A3 は冷却中に Al ワイヤボン ディングが外れてしまったことにより、RT 特性の測定を行ったのは D2、T2 のみである。それぞれ 100 μm 角の TES から構成されており、D2 は正方形から外側に飛び出た構造を持つ。

四端子法で測定した JAXA122 の RT 特性について図 7.9 に示す。TES カロリメータには 30 μA の電流を流した。 ここで実線は、超伝導体の超伝導付近の抵抗変化を表す経験則的なモデル

$$R(T) = \frac{R_1}{1 + \exp\left(-(T - T_c)/T_1\right)} \times \frac{1}{1 + \exp\left(-(T - T_c)/T_2\right)} + R_2$$
(7.9)

を用いてフィッティングを行った結果である。ただし、臨界温度での抵抗値 R_c と常伝導状態での抵抗値 R_n をそれ



図 7.8: JAXA122 Ea3 の D2、T2 の顕微鏡写真。左: D2 の顕微鏡写真。右: T2 の顕微鏡写真。

ぞれ

$$R_{\rm c} = \frac{1}{4}R_1 + R_2 \tag{7.10}$$

$$R_{\rm n} = R_1 + R_2 \tag{7.11}$$

としている。また、フィッティングパラメータの結果について表 7.2 に示す。

これらの結果から、今回製作した素子で超伝導転移が確認され、少なくとも TES と Nb 配線までの製作プロセスに 問題がないことが示された。また、T2 と D2 の比較から超伝導転移温度は不確かさの範囲内には収まっていないもの の大きな違いがないことが確認された。100 μ m 角の正方形の TES に対して数 μ m 程度の形の変化は転移温度に影響 を及ぼさない。今回の超伝導転移温度は $T_c = 310$ mK を想定していたが、60 mK 程度異なることがわかった。これ には TES のアスペクト比が関係していると考えられる。TES のアスペクト比が小さいと超伝導配線からの波動関数 の染み込みの影響を受けやすくなり、アスペクト比が大きいとその影響を受けにくいとされており、実験的にも転移 温度に変化があることは確認されている [22]。我々の TES の膜厚と超伝導転移温度の条件は 2 mm × 0.2 mm とアス ペクト比の高いパターンで決定してきた。そのため、その条件を 100 μ m 角に適用した場合に転移温度にズレが生じ ると考えられる。Ea チップの E 列には異なるアスペクト比の TES が形成されるため、アスペクト比と超伝導転移温 度の違いは今後測定可能であり、詳細については課題とする。



図 7.9: JAXA122 の RT 特性。ピンク色は JAXA122 Ea4 D2 を表し、黒色は JAXA122 Ea4 T2 を表している。どちらも超伝導転 移を示している。

表 7.2: JAXA122Ea4 の RT 特性のフィッティング結果。*T*_c は超伝導転移温度、*R*_c と *R*_n はそれぞれ式 (7.10) と式 (7.11) で定義 される物理量である。

チップ	$T_{\rm c} \; [{\rm mK}]$	$R_{\rm c} \; [{\rm m}\Omega]$	$R_{\rm n} \; [{\rm m}\Omega]$	$T_1 [\mathrm{mK}]$	$T_2 [\mathrm{mK}]$
Ch4 D2	372.41 ± 0.17	16.10 ± 0.09	63.62 ± 0.14	5.104 ± 0.018	0.41 ± 0.13
Ch6 T2	374.643 ± 0.005	16.35 ± 0.04	64.88 ± 0.06	0.1203 ± 0.009	1.077 ± 0.016

7.4 JAXA123 (吸収体が搭載されている TES カロリメータ)

Au オーバーハング吸収体を搭載した JAXA123 Ea4 の T1、A1、D1 について冷凍機に組み込み、冷却を行った。ただし、T1 については、オーバーハング吸収体は形成されていない。図 7.10 に素子表面の写真を示す。

7.4.1 RT 特性

SQUID を用いて定電圧バイアス下で RT 特性の測定を行った結果を図 7.11 に示す。この結果により、Au オーバー ハング吸収体を搭載した TES カロリメータの超伝導転移が確認できた。ただし T1 と D1 については、比較的シャー プな転移であることが確認できたが、A1 については二段階の転移となっていた。このため、式 (7.9) を用いたフィッ ティングは T1 と D1 にのみ適用した。このフィッティングから求められた超伝導転移温度を表 7.3 に示す。また、T1 と D1 を比較すると、超伝導転移温度が 20 mK 程度異なっている。A1 が二段階に転移していた理由として考えられ るのは、Au オーバーハング吸収体が形成されたこと、または、超伝導配線と TES の間に常伝導体が挟まれているこ とである。前者については、同じチップの D1 が超伝導転移していることから考えにくい。後者は、以前我々の研究 グループで、AI 配線形成後の TES で二段階転移が確認されたが、TES の Au と配線が接着していたことで超伝導・ 常伝導・超伝導の結合を形成していることによるものだと明らかになった。そこで配線が乗る領域にある Au を削る ことで二段階転移の問題は解決された [17]。今回、常伝導体として配線と TES の間に挟みこまれる恐れがあるのは、 Nb 配線形成時のレジストである。配線が残る部分はレジストが除去されている必要があるが、現像時間が短いと目 に見えないレジストが残りうる。我々は目視でレジストが除去されているかを判別していたが、より正確に基板上の 有機物を除去するには終点検出器が搭載された反応性イオンエッチング装置で定量的なアッシングを行うか、十分に 長い時間アッシングを行うことで解決すると考えられる。

7.4.2 IV 特性

熱浴温度 210 mK-320 mK において、TES へのバイアス電流 $I_{\text{TES bias}}$ を変化させたときの SQUID の出力電圧 V_{SQUID} を測定した。ここでは、各素子ごとに IV 特性と得られるカロリメータの物理量についてまとめる。

図 7.12 から図 7.14 に各素子で測定した IV 特性とそれから得られるカロリメータの物理量の関係を示す。(a) は TES へのバイアス電流 *I*_{TES bias} を変化させたときの SQUID の出力電圧 *V*_{SQUID} の関係を測定した結果である。(b) は、SQUID の出力電圧から計算される TES カロリメータに流れる電流 *I*_{TES} と式 (7.3) から計算された抵抗値およ



図 7.10: JAXA123 Ea4 の T1、A1、D1 の顕微鏡写真。左から T1、1、D1 の順となっている。

$I_{\rm b} \left[\mu {\rm A} \right]$	T1 $T_{\rm c} \; [{\rm mK}]$	Al $T_{\rm c} \; [{\rm mK}]$	D1 $T_{\rm c}$ [mK]
10	327.491 ± 0.015	-	347.91 ± 0.04
30	326.975 ± 0.014	-	347.51 ± 0.03

表 7.3: JAXA123Ea4 の定電圧バイアス下での超伝導転移温度



図 7.11: JAXA123 Ea4 の T1、A1、D1 の RT 特性の測定結果。上: T1、左: A1、右: D1 の結果である。赤と青の点はそれぞれ、 TES カロリメータに電流を 30 µA、10 µA 流したときの測定結果であり、実線は式 (7.9) でフィッティングを行った結果 である。 いずれの素子についても超伝導転移を確認することができた。A1 については、二段階に転移していることが 確認された。

びオームの法則から求めた TES カロリメータの電圧 V_{TES} の関係である。電流が小さいところでは TES カロリメー タは超伝導状態であるため、傾きが非常に大きく、電流が大きいところでは常伝導状態であることから一定の傾きを 持つ。間の曲線は超伝導転移端を表している。熱浴温度が低いほど超伝導状態を破壊するのに大きな電流が必要であ る。この結果から超伝導状態の TES カロリメータの抵抗は非常に小さいことがわかり、これは RT 特性の測定と矛盾 がない。(c) は TES カロリメータでの発熱を P_b = *I*_{TES}*V*_{TES} から計算し、TES カロリメータの抵抗値との関係に表 したグラフである。温度ごとに抵抗値に対する発熱量は一定であることがわかる。(d) は熱浴温度と TES カロリメー タの発熱量を表したグラフである。(c) において、熱浴温度に対して発熱量が一定であったことから灰色の領域で平均 をとったものを発熱量としている。図中にはエラーバーも描かれているが、小さいため見ることはできない。また、 赤の実線は式 (7.5) でフィッティングを行った結果を示している。表 7.4 にフィッティングパラメータを示す。これ らのパラメータと式 (7.6) から発熱量を差し引いた TES カロリメータの温度 *T*_{TES} がわかるため、抵抗値との関係で ある RT 特性を図 7.15 に示す。図 7.15 上が T1、左が A1、右が D1 の結果を表しており、定電圧バイアス下での RT 特性と同様に、A1 のみ二段階に超伝導転移していることがわかる。



図 7.12: JAXA123 Ea4 T1 の IV 特性の測定結果と得られる物理量の関係。寒色から暖色に向かって熱浴温度を高く変化させてお り、熱浴温度は 230 mK から 320 mK に変化させている。(a): TES カロリメータへのバイアス電流と SQUID の出力電 圧。(b): TES カロリメータの電流と TES カロリメータの電圧の関係。電圧が低いときには抵抗値が非常に小さく、超伝 導転移していることが確認できる。(c): TES カロリメータの抵抗と TES カロリメータでの発熱量。灰色部分の領域で発 熱量の平均をとり、各熱浴温度での発熱量の代表値とした。(d): 熱浴温度と TES カロリメータでの発熱量の関係。各点 は (c) での発熱量の代表値を表している。エラーバーをつけているが小さく確認できない。赤実線は式 (7.5) によるフィッ ティング結果を示している。



図 7.13: JAXA123 Ea4 A1 の IV 特性の測定結果と得られる物理量の関係。寒色から暖色に向かって熱浴温度を高く変化させてお り、熱浴温度は 230 mK から 320 mK に変化させている。(a): TES カロリメータへのバイアス電流と SQUID の出力電 圧。(b): TES カロリメータの電流と TES カロリメータの電圧の関係。電圧が低いときには抵抗値が非常に小さく、超伝 導転移していることが確認できる。(c): TES カロリメータの抵抗と TES カロリメータでの発熱量。灰色部分の領域で発 熱量の平均をとり、各熱浴温度での発熱量の代表値とした。(d): 熱浴温度と TES カロリメータでの発熱量の関係。各点 は (c) での発熱量の代表値を表している。エラーバーをつけているが小さく確認できない。赤実線は式 (7.5) によるフィッ ティング結果を示している。



図 7.14: JAXA123 Ea4 D1 の IV 特性の測定結果と得られる物理量の関係。寒色から暖色に向かって熱浴温度を高く変化させてお り、熱浴温度は 230 mK から 320 mK に変化させている。(a): TES カロリメータへのバイアス電流と SQUID の出力電 圧。(b): TES カロリメータの電流と TES カロリメータの電圧の関係。電圧が低いときには抵抗値が非常に小さく、超伝 導転移していることが確認できる。(c): TES カロリメータの抵抗と TES カロリメータでの発熱量。灰色部分の領域で発 熱量の平均をとり、各熱浴温度での発熱量の代表値とした。(d): 熱浴温度と TES カロリメータでの発熱量の関係。各点 は (c) での発熱量の代表値を表している。エラーバーをつけているが小さく確認できない。赤実線は式 (7.5) によるフィッ ティング結果を示している。



図 7.15: JAXA123 Ea4 の IV 特性から得られる RT 特性。上: T1、左: A1、右: D1 の結果を示している。

表 7.4: JAXA123 Ea4 各素子の超伝導転移温度 T_c、TES カロリメータと熱浴間の熱伝導度 G₀、熱伝導度の温度依存性のべき n

	$T_{\rm c}\;[{\rm mK}]$	$G_0 \; [\mathrm{nW/K}]$	n
T1	328.8 ± 0.4	55 ± 8	3.53 ± 0.11
A1	354.4 ± 0.8	75 ± 11	3.61 ± 0.12
D1	347.7 ± 0.7	86 ± 11	3.76 ± 0.11

7.4.3 X 線照射試験

Au オーバーハング吸収体が搭載されている JAXA123 Ea4 A1、D1 について X 線照射試験を行った。熱浴温度は 250 mK である。また、TES カロリメータの動作点は IV 特性の測定結果から温度感度 α が大きく、安定している点 とした。表 7.5 に今回測定を行ったバイアス条件について示す。また、改めて 4 章で行った議論と同様に、製作した TES カロリメータの構造と IV 特性の測定結果から得られた値をもとに、熱容量、エネルギー分解能、飽和エネルギー について再度見積もる。熱容量には、式 (4.1) と式 (4.6)、エネルギー分解能には式 (3.3)、飽和エネルギーには式 (4.8) を利用した。また、TES カロリメータの熱容量は大部分が Au オーバーハング吸収体が担っていると仮定しており、吸収体面積は $A = 260 \times 260 \ \mu m^2$ 、厚みは表 7.1 から $d = 1.996 \ \mu m$ である。また、動作点における TES カロリメー

素子	SQUID 印加電流 Ibias [µA] Vbias [µV]	TES カロリメータ印加電流 I _{TES bias} [µA]	
A1	18.003	700.04	564.93
D1	18.003	700.04	610.02

表 7.5: X 線照射試験でのバイアス条件

素子	$T_{\rm TES} [{\rm mK}]$	n	α	$C [\mathrm{pJ/K}]$	$\Delta E_{\rm FWHM} [eV]$	$E_{\rm sat} [{\rm keV}]$
A1	341	3.61	35	3.30	13.4	202
D1	345	3.75	96	3.34	8.21	74.9

表 7.6: JAXA123 Ea4 A1 と D1 の製作結果と測定結果からの計算した動作点における設計値

タの温度 T_{TES} 、熱伝導度の温度依存性のべき n、温度感度 α は IV 特性の測定結果から計算している。これらの計算 から、飽和エネルギーについては当初の想定の 10 keV は大きく上回る性能を示している。また Au の厚みが ~ 2 μ m であったことから、4 章での図 4.5 と同じになるため、X 線吸収効率 ~ 1 (5 keV) を概ね満たしていると考えられる。 エネルギー分解能については、当初の値である半値全幅で $\Delta E_{\text{FWHM}} = 5 \text{ eV}$ @5.9 keV に対して満たさないことがわ かった。これについては、超伝導転移温度におよそ 150 mK の差があるためである。今回の X 線照射試験について は、エネルギー分解能に寄与する点として、パルスの立ち上がり時間がばらつかないか (熱伝導性)、パルスの立ち下 がり時間からの計算される熱容量の確認に主軸を置いて測定を行った。

A1 については、7417 データ、D1 については 1985 データを取得した測定結果を示す。それぞれのデータは解析 前に X 線パルスごとのオフセットを計算し、差し引くことでベースラインを補正している。図 7.16 に得られた信号 波形について示す。横軸は時間、縦軸は SQUID の出力電圧を表している。X 線パルスが TES カロリメータに入射 すると超伝導転移端の上で抵抗が上昇する。定電圧パイアスで動作させている場合、TES カロリメータに流れる電 流が小さくなるため、SQUID の出力電圧も小さくなる。そのため、ベースラインに対して下向きに X 線パルスは取 得される。また、得られた X 線パルスに対して、波高値を SQUID の出力電圧が最小となる値と定義する。波高値の 20%-80% の領域に対して、パルスの立ち上がりと立ち下がりの時間差をそれぞれ、立ち上がり時定数 $\tau_{\rm rise}$ と立ち下 がり時定数 $\tau_{\rm fall}$ とした。図中の赤線はそれぞれ波高値の 20%-80% の線、オレンジ色で描かれた部分は、立ち上がり 時間を計算した領域を示している。パルスの最も低いところよりも短い (長い)時間部分を 1000000 点で分割し波高 値の 20%-80% に対応する時間差を立ち上がり (立ち下がり)時間として計算した。図 7.17、図 7.18 に A1 と D1 そ れぞれの X 線パルスのベースラインの揺らぎと波高値の分布について示す。また、立ち上がり時定数 $\tau_{\rm rise}$ と立ち下 がり時定数 $\tau_{\rm fall}$ について、A1 は図 7.19、D1 は図 7.20 に示す。



図 7.16: JAXA123 Ea4 D1 で得られた X 線パルスの波形。縦軸は SQUID の出力電圧、横軸は時間を示している。また、赤線は波 高値の 20%–80% の分布を示しており、オレンジで塗られている部分は立ち上がり時間の計算に利用した領域を示してい る。



図 7.17: JAXA123 Ea4 A1 の X 線パルスのベースラインの揺らぎと波高値。左: ベースラインの分布。右: パルスの波高値の分布



図 7.18: JAXA123 Ea4 A1 の X 線パルスのベースラインの揺らぎと波高値。左: ベースラインの分布。右: パルスの波高値の分布



図 7.19: JAXA123 Ea4 A1 の立ち上がり時間と立ち下がり時間の分布。(a): 横軸は立ち上がり時間 τ_{rise} 、縦軸は立ち下がり時間 τ_{fall} を示す。これらの間に相関は見られない。(b): 立ち上がり時間 τ_{rise} の分布。(c): 立ち下がり時間 τ_{fall} の分布。図中には、分布の平均値と標準偏差を記載している。



図 7.20: JAXA123 Ea4 D1 の立ち上がり時間と立ち下がり時間の分布。(a): 横軸は立ち上がり時間 τ_{rise} 、縦軸は立ち下がり時間 τ_{fall} を示す。これらの間に相関は見られない。(b): 立ち上がり時間 τ_{rise} の分布。(c): 立ち下がり時間 τ_{fall} の分布。A1 同様に、図中には、分布の平均値と標準偏差を記載している。

7.4.4 議論

構造ごとに得られた立ち上がり時間と立ち下がり時間について議論を行う。図 7.19 と図 7.20 から立ち上がり時間 と立ち下がり時間の間には相関はないことがわかった。また、立ち上がり時間は ~ 1 μ s の幅を持っているものの一 定であり、複数の分布が存在していない。熱拡散過程にばらつきがあり、X 線入射位置に依存性がある場合、立ち上 がり時間が複数の分布を持つ可能性が考えられる。以上から、熱拡散過程のばらつきは防がれており、今回製作した 素子の残留抵抗比としては十分であることがわかった。次に立ち上がり時間について、同じグラフに描いたものを 図 7.21 に示す。ただし、イベント数が異なるために縦軸のカウント数は正規化している。A1 の立ち上がり時間は $\tau_{rise} = 22.472 \ \mu$ s、D1 の立ち上がり時間は $\tau_{rise} = 21.312 \ \mu$ s と計算された。ここでの不確かさはそれぞれの分布の標 準偏差 σ をイベント数 N の平方根で割った平均値の標準不確かさ (σ/\sqrt{N}) としている。しかし、この解析では、パ ルスの波高値によって立ち上がり時間が変化してしまう可能性があり、解析手法の再検証が必要である。また TES カ ロリメータの電気的応答の違いについては、構造の違いによって電流への感度が異なっている可能性がある。今後検 証を行うには、これらのインピーダンスを測定するか、電気的・熱的なシミュレーションによる応答と比較する必要 がある。



図 7.21: JAXA123 Ea4 A1 と D1 の立ち上がり時間の分布の比較。ただし、イベント数が異なるために、縦軸はイベント数で規格 化している。青線が A1、オレンジ線が D1 を示している。平均値の標準不確かさを考慮すると、A1 の立ち上がり時間は τ_{rise} = 22.4718 ± 0.0002 µs、D1 の立ち上がり時間は τ_{rise} = 21.3124 ± 0.0008 µs である。

次に立ち下がり時間について、平均値の標準不確かさを考慮すると A1 が $\tau_{fall} = 881.31 \pm 0.01 \ \mu s$ 、D2 が $\tau_{fall} = 502.64 \pm 0.03 \ \mu s$ と有意に異なっている。これは動作点が異なることによる、電熱フィードバックの違いが見 られていると考えられる。熱浴の温度が TES の温度よりも十分に低い場合は、電熱フィードバックを考慮した TES カロリメータの有効時定数 τ_{eff} は

$$\tau_{\rm eff} = \frac{C/G}{1 + \alpha/n} \tag{7.12}$$

である。動作点が異なると動作温度、熱伝導度、温度感度が変わるため、有効時定数が変化する。いま、A1 と D1 の 見積もられる時定数の比は

$$\frac{\tau_{A1}}{\tau_{D1}} \sim \frac{\frac{n_{A1}}{G_{A1}(n_{A1} + \alpha_{A1})}}{\frac{n_{D1}}{G_{D1}(n_{D1} + \alpha_{D1})}}$$
(7.13)

である。ただし、 $G = G_0 T^{n-1}$ である。これらに表 7.6 の動作点における物理量を代入すると、3.04 となる。一方測 定から得られた D1 と A1 の時定数の比は 1.7534 であり、およそ 1.7 倍異なる。これについては、計算に使用してい る $n \ge G_0$ の不確かさを考える必要がある。これらのパラメータは強く相関しているため、コントアを書いて計算を 行う必要がある。

また、式 (7.12) を用いて A1 と D1 の熱容量について見積もると、A1 の熱容量は $C \sim 42.7 \text{ pJ/K}$ 、D1 の熱容量は 61.61 pJ/K だった。これは、表 7.6 と比較すると A1 がおよそ 14 倍、D1 がおよそ 18 倍異なっている。これについ ても n、 G_0 の相関が強くありそれぞれ不確かさを持っているため詳細な議論はできないが、少なくとも最適推定値を 用いて行なった計算ではバルクの Au に匹敵する熱容量を持っていると考えられる。

7.4.5 冷却後のチップ表面について

測定に使用したチップの昇温後の様子を図 7.22 に示す。図 7.10 と比較するとオーバーハング吸収体は少なくとも 1 度の常温と極低温間の熱サイクルで外れなかったため、吸収体自体の強度についても問題はないことがわかった。





図 7.22: 冷却試験後の JAXA123 Ea4 A1 と T1 の顕微鏡写真

7.4.6 JAXA123 Ea4 の測定結果のまとめ

Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータ (A1, D1) について超伝導転移していることが確認された。 搭載されていない TES (T1) と比較すると超伝導転移温度に 20 mK 程度差があることがわかっているがこれについて は原因が明らかになっていない。また、A1 では二段階に超伝導転移することが明らかになった。これは超伝導配線 と TES の間に常伝導体が挟まることで起きることが過去の結果から示唆され、今回は配線形成時に残留しているレジ ストなどの有機物が原因であると考えられる。この問題については、終点検出器を搭載したアッシング装置の利用や 長時間のアッシングなどで解決される見込みである。IV 測定からは、それぞれの TES カロリメータの超伝導転移温 度、熱伝導度をフィッティングにより求めることができた。今後解析により、立ち下がり時間と熱容量の関係を詳細 に議論する必要がある。

X 線照射試験では、Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータで X 線パルスを取得することができ た。立ち上がり時間は~1µs の幅が確認されたものの、一定であることがわかった。これにより、X 線吸収位置に よる依存性は小さいと言える。A1 と D1 の二つの素子で X 線パルスに対する立ち上がり時間と立ち下がり時間の観 点で議論を行った。今回の解析は波高値と時間の間に相関を持つ可能性があるため、解析の再検証と電熱シミュレー ションを行う必要がある。立ち下がり時間については二つの素子の間に有意な違いが見られたが、これは動作点の違 いによる電熱フィードバックのかかり方による違いであると考えている。測定結果と動作点情報から得られる立ち下 がり時間を比較するとオーダーで一致していることは確認できた。n と G₀ が強く相関を持つため、コントアを描く ことで詳細な議論を行う必要がある。

今回の結果から TES カロリメータの性能であるエネルギー分解能に寄与する部分で、熱拡散過程がばらつきが小さいことが確認できた。このことは、今回製作を行った素子の熱伝導性は十分であることを示している。また、極低温

と常温間の熱サイクルで Au オーバーハング吸収体の構造が壊れないことを示すことができた。

7.5 JAXA120 (吸収体が搭載されている TES カロリメータ)

JAXA123 では、エネルギー分解能の劣化に寄与する熱拡散過程のばらつきがないことを確認できたが、転移温度が 高いことによりエネルギー分解能自体の評価には至らなかった。本節では、超伝導転移温度が低い素子について性能 評価を行った結果を示す。ここでの確認事項はエネルギー分解能の算出と飽和エネルギーの評価である。測定したパ ルスを最適フィルタ処理 (2.7 節) することでエネルギースペクトルを取得した。また、飽和エネルギーについては、 測定で得られた MnKα と MnKβ のエネルギーと Pulse Height Amplitude (PHA) の比を計算することでエネルギーが 異なる輝線に対する TES カロリメータの応答という観点から評価を行った。性能評価を行った素子は JAXA120 Ea4 D3 であり、基板情報の詳細は表 7.7 に示す。

基板	項目	JAXA120
基板情報	TES 膜厚 (Au/Ti)[nm]	154.5/52.6
	想定転移温度 [mK]	250
	測定 Au 吸収体膜厚 [µm]	2.018 ± 0.005
	Nb 配線膜厚 [nm]	150
性能評価試験	抵抗温度特性	7.5.1 節
	電流電圧特性	7.5.2 節
	X 線照射試験	7.5.3 節

表 7.7: 性能評価を行った素子の概要。

7.5.1 RT 特性

四端子法で測定した RT 特性の測定結果を図 7.23 に示す。また式 (7.9) を用いてフィッティングを行った結果について表 7.8 に記載した。この結果から超伝導転移温度は 167 mK ということがわかった。

7.5.2 IV 特性

JAXA120 Ea4 D3 について IV 特性の測定を行った結果を図 7.24 に示す。図右下の TES カロリメータの発熱量 P_b と熱浴温度 T_{bath} 間の関係を式 (7.5) でフィッティングした時のフィッティングパラメータについて、表 7.9 に示す。 このフィッティングパラメータと式 (7.6) から計算した TES カロリメータの抵抗値と温度の関係である RT 特性を 図 7.25 に示す。熱浴温度が高くなっても TES カロリメータへの電流が小さい部分では超伝導状態となっていること を確認したが、これについては原因は明らかになっていない。今回 X 線を照射したところ、パルスは取得できたこと から X 線照射試験では、常伝導抵抗の 20%-30% 付近で安定した動作を示すバイアス電流を流すことにした。

表 7.8: JAXA120 Ea4 D3 の RT 特性のフィッティング結果。*T*_c は超伝導転移温度、*R*_c と *R*_n はそれぞれ式 (7.10) と式 (7.11) で 定義される物理量である。

チップ	$T_{\rm c} \; [{\rm mK}]$	$R_{\rm c} \left[{\rm m} \Omega \right]$	$R_{\rm n} \left[{\rm m} \Omega \right]$	$T_1 [\mathrm{mK}]$	$T_2 [\mathrm{mK}]$
Ch3 D3	167.40 ± 0.04	5.77 ± 0.03	23.16 ± 0.13	55.2 ± 1.4	1.03 ± 0.04



図 7.23: JAXA120 Ea4 D3 の RT 特性の測定結果。超伝導転移していることが確認できた。超伝導転移端付近で二段転移している ことがわかる。また、常伝導では温度上昇に伴って抵抗値が増加していたことがわかった。

表 7.9: JAXA120 Ea4 D3 の超伝導転移温度 T_c、TES カロリメータと熱浴間の熱伝導度 G₀、熱伝導度の温度依存性のべき n

	$T_{\rm c} \; [{\rm mK}]$	$G_0 [{\rm nW/K}]$	n
D3	174.2 ± 0.5	97 ± 27	3.71 ± 0.14


図 7.24: JAXA120 Ea4 D3 の IV 特性の測定結果。寒色から暖色に向かって熱浴温度を高く変化させており、熱浴温度は 85 mK から 170 mK に変化させている。(a): TES カロリメータへのバイアス電流と SQUID の出力電圧。(b): TES カロリメータの 電流と TES カロリメータの電圧の関係。電圧が低いときには抵抗値が非常に小さく、超伝導転移していることが確認で きる。(c): TES カロリメータの抵抗と TES カロリメータでの発熱量。灰色部分の領域で発熱量の平均をとり、各熱浴温 度での発熱量の代表値とした。(d): 熱浴温度と TES カロリメータでの発熱量の関係。各点は (c) での発熱量の代表値を表 している。エラーバーをつけているが小さく確認できない。赤実線は式 (7.5) によるフィッティング結果を示している。



図 7.25: JAXA120 Ea4 D3 の IV 特性の測定結果から描いた RT 特性。寒色から暖色に向かって熱浴温度を高く変化させており、 85 mK から 170 mK の結果を示している。独立に測定を行った RT 特性の結果 (図 7.23) と同様に常伝導付近は抵抗が上 昇していることがわかった。

7.5.3 X 線照射試験

JAXA120 Ea4 D3 について X 線照射試験を行った。熱浴温度は 120 mK とした。また、TES カロリメータの動作 点としては、IV 特性の測定結果から動作抵抗の 20%–30% 付近で安定する点を探すことで設定した。表 7.10 に X 線 照射試験でのバイアス条件について示す。また、JAXA123 同様、動作点での TES カロリメータの情報と、構造から 得られる熱容量、エネルギー分解能、飽和エネルギーについて示す。

表 7.10: JAXA120 Ea4 D3 X 線照射試験でのバイアス条件

素子	SQUID 印加電流 Ibias[µA]	$V_{ m b}[\mu { m V}]$	TES カロリメータ印加電流 I _{TES bias} [µA]
D3	16.003	999.81	185.03

図 7.26 から図 7.27 に取得したパルスを平均化した平均パルス、パルス取得時のノイズを平均化した平均ノイズ、 これらから得られる SN 比のパワースペクトル、SN 比のパワースペクトルを逆フーリエ変換したテンプレートにつ いて示す。



図 7.26: JAXA120 Ea4 D3 で測定した X 線の平均パルスと平均ノイズ。左: 取得したパルスを平均化した平均パルス。右: 取得したパルスの前半 50% をノイズとしたときの平均化したノイズ。

これらを用いて ⁵⁵Fe 線源から放出される MnK α (5.9 keV) と MnK β (6.5 keV) の輝線についてエネルギー分解能 を導出した。その結果、エネルギー分解能は $\Delta E_{\text{FWHM}} = 9.42 \pm 0.33$ eV @5.9 keV が得られた。

表 7	.11: JA	XA12	3 Ea4	- A1	と D1	の製作	乍結果	ミと i	則定約	結果オ	から	の計	算し	た動	作,	気に	おけ	る説	計値
-	キフ		r	T 7 1				γr	т /т	71	A T	-		Γπτ	1	-	[1	T 7]	_

素子	$T_{\rm TES} [{\rm mK}]$	n	α	$C \left[\mathrm{pJ/K} \right]$	$\Delta E_{\rm FWHM} [eV]$	$E_{\rm sat} [\rm keV]$
D3	176	3.71	37	1.66	4.74	49.3



図 7.27: JAXA120 Ea4 D3 で測定した SN 比とそれを逆フーリエ変換したテンプレート。左: 横軸を周波数、縦軸を SN 比である。 高周波に従って SN 比が小さくなっている。右: 周波数空間で描かれた SN 比を時間空間に逆フーリエ変換したもの。



図 7.28: MnKα と MnKβ に対して導出したエネルギー分解能。左: MnKα 輝線に対するフィッティングの結果。微細構造を含めてフォークト関数でフィッティングを行った結果 E_{FWHM} = 9.42±0.33 eV と得られた。右: MnKβ 輝線に対する フィッティングの結果。微細構造を含めてフォークト関数でフィッティングを行った結果 E_{FWHM} = 11.32±1.32 eV と 得られた。

7.5.4 議論

本節では、実験で得られたエネルギー分解能と飽和エネルギーについて議論を行う。エネルギー分解能について、 設計目標では $\Delta E_{\rm FWHM} < 5 \, {\rm eV}$ @5.9 keV と設定しており、バルクの比熱から計算したエネルギー分解能は 4.74 eV だったが、測定からは $\Delta E_{\rm FWHM} = 9.42 \pm 0.33 \, {\rm eV}$ @5.9 keV となり、要求を満たしていないことが明らかになった。 ノイズデータから計算されるエネルギー分解能 (ベースライン分解能) を求める。これは X 線のエネルギーが 0 eV で あるときの揺らぎを示している。ノイズデータに対して最適フィルタ処理を適用すると、ノイズデータの波高値の分 布を計算できる。これをパルスから導出した PHA と E の関係式によってエネルギーに変換することでベースライン に対するエネルギースペクトルが求められる。これをガウス関数でフィッティングしたときの半値全幅をベースライ ン分解能 $\Delta E_{\rm bl}$ と定義する。

本測定から得られたノイズデータをテンプレート図 7.27 を用いて最適フィルタ処理することで得られたエネルギー スペクトルを図 7.30 に示す。この結果から ΔE_{bl} = 7.05 eV であることがわかった。測定した MnKα のエネルギー に対するエネルギー分解能と比較する。

吸収体の熱拡散過程がエネルギー分解能に影響しているかを検討する。吸収体内の熱拡散が遅い場合、X 線入射位置 に依存性が見えるために波高値と立ち上がり時間に相関が見られる。今回エネルギー分解能の算出に利用した MnKα 相当のエネルギーに対応する波高値と立ち上がり時間の間の関係を確認する。パルス波高値とそのときの立ち上がり 時間を図 7.29 に示す。波高値 ph のうち、MnKα 相当のエネルギーに対応するパルス、630 mV < ph < 670 mV を 抜き出して立ち上がり時間を示したものが図 7.29 右上である。そのうち、1.25 μ s < τ _{rise} < 1.45 μ s の部分を拡大し たものが図 7.29 下である。この分布からは波高値と立ち上がり時間の間に強い相関は確認できない。このことから X 線の入射位置の依存性は小さいと考えられる。

続いて測定中の熱浴温度の揺らぎを考える。図 7.31 にパルス取得中に 300 点記録した熱浴温度 (120 mK) の温度 揺らぎとそれをヒストグラムに表したものを示す。熱浴温度は T_{bath} = 120.00 ± 0.05 mK だった。温度揺らぎが引 き起こす X 線パルスの波高値のばらつきによるエネルギー分解能は [23] によると

$$\frac{\Delta E}{E} = 2.35n \frac{\theta^{n-1}}{1-\theta^n} \frac{\Delta T_{\text{bath}}}{T}$$
(7.14)

と表される。ただし、 $\theta \equiv T_{\text{bath}}/T$ と定義した。IV 測定から得られた動作点での TES カロリメータの温度 T = 0.176 K, n = 3.71、熱浴温度 $T_{\text{bath}} = 120.00 \pm 0.05 \text{ mK}$ を代入すると、 $\Delta E \sim 7.18 \text{ eV}$ が得られた。少なくと も熱浴の揺らぎによる X 線パルスのばらつきは大きく、TES カロリメータ自体のエネルギー分解能に関する詳細な 議論は難しいことがわかったため、今後の課題である。

また、ベースライン分解能 $\Delta E_{\rm bl}$ が 5 eV 以下ではないため、TES カロリメータ自体に改善すべきことがある。こ れは、現状吸収体プロセスを経た TES の性能によるものなのか、吸収体を搭載した TES であるからか、吸収体自体 に問題があるのかについて切り分けができていない。これらの問題を切り分ける必要がある。本製作においては、設 計目標の前提として、 $\alpha > 50$ を掲げていたが、今回製作した素子 $\alpha \sim 37$ であった。IV 特性の測定による不定性は あるものの今後性能向上の見込みがあることを示す。例えば、TES の性能の改善の観点では、超伝導転移温度を下げ ることが必要である。TES カロリメータの動作温度自体を今より低くできれば、熱容量の低減につながりベースライ ン分解能の改善が見込まれる。超伝導転移温度を下げるには、TES の Au/Ti 二層薄膜の膜厚を変化させることで近接 効果を調整することが重要であるが、制御は容易ではない。条件出しを継続し、超伝導転移温度を制御することが課 題である。あわせて今回得られたパルスの波高値を利用して電熱シミュレーションを行うことで X 線入射位置のばら つきを今後評価することが必要である。TES の性能向上を目指しながら電熱シミュレーションを両立させることが今 後の課題である。

次に飽和エネルギーについて議論する。設計目標では 10 keV 以上の飽和エネルギーを設定した。実際に 10 keV 以



図 7.29: パルスの波高値と立ち上がり時間の関係。右上: 測定したパルスの波高値 (ph)。右上: 波高値のうち 630 mV < ph < 670 mV 部分の立ち上がり時間を取り出したときの立ち上がり時間と波高値の関係。グラフ中の数字は立ち上がり時間の 平均値と標準偏差を示している。下: 1.25 μs < τ_{rise} < 1.45 μs を拡大した部分。立ち上がり時間に対して波高値の間に は大きな依存性は確認できなかった。



図 7.30: 本測定で得られたノイズデータのエネルギースペクトル

上飽和エネルギーがあるかという議論については、10 keV の X 線を照射しないと明らかにできない。そこで今回の X 線照射試験で使用した ⁵⁵Fe から放出される MnKα と MnKβ の二つのエネルギーが異なる輝線を用いて少なくと も 6.5 keV の X 線に対して TES カロリメータが飽和していないかどうかについて検討する。

3.2.3 節で言及した通り、飽和エネルギーは TES カロリメータが高感度を維持できる最大のエネルギーであるため、飽和エネルギー以上の X 線を検出すると X 線パルスの波形が変わってしまう。最適フィルタ処理の全ての波形が相似形であるという前提が崩れ、分解能が劣化してしまう。実際に最適フィルタ処理を行い、PHA を算出すると飽



図 7.31: X 線パルスを取得したときの熱浴温度

和していない場合に比べて PHA が低くなる。例として、図 7.32 に吸収体厚が 300 nm (0.05 pJ/K) の Au ステム型 吸収体を搭載した TES カロリメータ [24] の $MnK\alpha$ と $MnK\beta$ の既知エネルギーと PHA の関係を示す。このように、 飽和エネルギーが小さい場合 $MnK\alpha$ に対して $MnK\beta$ のエネルギーと PHA の関係は線形ではない。



図 7.32: 吸収体厚が 300nm (0.05 pJ/K) の Au ステム型吸収体を搭載した TES カロリメータ [24] の MnKα と MnKβ のエネル ギーと PHA の関係

図 7.33 に今回測定を行った素子の MnK α と MnK β の既知エネルギーと PHA の関係を示す。MnK α の (*E*, PHA) と原点を結ぶ直線の傾きは、PHA(MnK α)/*E*(MnK α) で書ける。この直線に MnK β の (*E*, PHA) が乗る場合、

$$PHA(MnK\beta) = \frac{PHA(MnK\alpha)}{E(MnK\alpha)} \times E(MnK\beta)$$
(7.15)

$$1 = \frac{\text{PHA}(\text{MnK}\alpha)/\text{PHA}(\text{MnK}\beta)}{E(\text{MnK}\alpha)/E(\text{MnK}\beta)}$$
(7.16)

となる。この両辺の逆数をとったものを輝線に対する PHA の線形性を式 (7.17) として定義する。

$$L = \frac{\text{PHA (MnK\beta)/PHA (MnK\alpha)}}{E (\text{MnK\beta})/E (\text{MnK\alpha})}$$
(7.17)



図 7.33: JAXA120 Ea4 D3 の $MnK\alpha$ と $MnK\beta$ のエネルギーと PHA の関係

PHA に完全な線形性が見られる場合、これらの値は 1 となる。飽和している場合 PHA(MnK β) は小さくなるため、 L は 1 よりも小さくなる。今回の測定では L ~ 0.99 であることがわかった。これより MnK β のエネルギー以下では 飽和して線形性が崩れてはいないことが示せた。

最後に、パルスの立ち下がり時間を式 (7.12) に代入すると熱容量は *C* ~ 6.7 pJ/K となった。これを表 7.11 の構 造からの熱容量と比較すると約4倍異なる。これも JAXA123 の素子同様にバルクの熱容量に匹敵している可能性を 示唆している。熱容量の高さで阻止能を賄うことができれば、X 線吸収効率から決まっている吸収体の厚みについて 薄くできる。これによって TES カロリメータ自体の熱容量を低下することにつながり、エネルギー分解能の向上も期 待できる。

7.5.5 JAXA120 Ea4 D3 の測定結果のまとめ

超伝導転移温度が ~ 170 mK である JAXA120 について、5.9 keV の X 線に対して $\Delta E = 9.42 \pm 0.33$ eV のエネ ルギー分解能が得られた。また、飽和エネルギーに対する評価として 5.9 keV と 6.5 keV 輝線における PHA とエネ ルギーの関係の線形性式 (7.17) から少なくとも 6.5 keV までのエネルギーに対して TES カロリメータが高い感度を 持っていることを示すことができた。今回要求値である $\Delta E < 5$ eV @5.9 keV を得ることができなかった。ベース ライン分解能を計算したところ $\Delta E_{\rm bl} = 7.05$ eV だった。これは TES カロリメータの超伝導転移温度を下げること で、熱容量の低減に繋がり改善されると考えられ、TES の二層薄膜と近接効果による超伝導転移温度の制御が課題で ある。あわせて、電熱シミュレーションによる熱拡散過程のばらつきの評価も行う必要がある。また、実際のエネル ギー分解能とベースライン分解能の差 $\Delta E_{\rm diff} ~ 6.25$ eV は熱浴の温度揺らぎで X 線パルスの波高値がばらついてい ることによると考えられる。

7.6 冷却試験のまとめ

本冷却試験では、まず Au オーバーハング吸収体が搭載されていない TES カロリメータ (JAXA122) が超伝導特性 を持ち、T と D の二つの構造で超伝導転移温度が大きく変わらないことを示した。次に Au オーバーハング吸収体 を搭載した TES カロリメータ (JAXA123, JAXA120) がそれぞれ転移温度 ~ 350 mK、~ 170 mK で超伝導転移する ことを確認した。JAXA123 では吸収体構造による違い (A と D) で立ち上がり時間に有意な違いがあることが確認さ れ、今後解析の再検証と電熱シミュレーションによる確認が必要である。JAXA120 では、X 線照射試験によりエネ ルギー分解能 $\Delta E_{\rm FWHM} = 9.42 \pm 0.33$ eV @5.9 keV が得られ、要求を満たしていないことが明らかになった。今後 超伝導転移温度を下げた TES を成膜することで改善が予想される。また、熱揺らぎによる X 線パルスの違いは大き く、TES カロリメータ自体のエネルギー分解能には言及できなかった。MnK α と MnK β のエネルギーでは、高い感 度を持ち、飽和エネルギーから決まる熱容量の下限は満たしていることがわかった。同一基板でも吸収体を搭載した もの (D) と搭載していないもの (T) の間で転移温度が変化する理由については明らかにすることはできなかった。

第8章

まとめと今後の展望

8.1 製作と性能評価のまとめ

4 章で示した検証マトリックスと今回の測定結果をまとめたものを表 8.1 に示す。吸収体の条件出しについて、測 定膜厚は~2μmを制御できており、安定的に達成している。また、残留抵抗比 (Residual Resistivity Ratio; RRR) に ついても、条件出しの結果から > 20 を超える条件が得られている。TES カロリメータ製作での走査型電子顕微鏡の 画像から、Au オーバーハング吸収体は中空構造を確かに持っていることを確認した。極低温での性能評価について は抵抗温度特性の測定から温度感度 α > 50 を満たす素子もあれば、満たさない素子も確認され、特にエネルギー分 解能の評価を行った素子では、満たしていないことを確認した。X 線照射試験については、エネルギー分解能が半値 全幅で 5 eV を満たさないことが確認されている。合わせて、熱容量については、別の測定で値を算出し、議論するこ とが必要である。以上から、詳細な測定を行うことが必要な部分は明らかになったものの吸収体構造としては概ね要 件を満たしていることを明らかにした。達成したものの詳細と今後の課題については 8.2 節にまとめている。

表 8.1: 性能評価の結果と検証マトリックス。上位要求として設計目標、下位要求として設計目標に関わる物理量を定めている。横 軸は必要な評価方法についてまとめている。エネルギー分解能の値は本論では上位要求として扱っているが、ここでは測 定との対応をわかりやすくするために下位要求として扱っている。○は本製作で達成できた指標、△は部分的に達成でき たものと詳細な測定が必要な指標、×は達成できなかった指標を示す。

性能評価語	吸収体の	条件出し	カロリメータ製作	極低温での	極低温での性能評価		
上位要求	下位要求	測定膜厚	RRR 測定	画像	抵抗温度特性	X 線照射	
オーバーハング構造				0			
エネルギー分解能	$\Delta E < 5 \; \mathrm{eV}$					×	
	$\alpha > 50$				\triangle		
	$T_{\rm c} < 200 \ {\rm mK}$				0		
	$d\sim 2\;\mu{\rm m}$	0					
	RRR > 9.23		0			0	
	熱容量	0				Δ	
X 線吸収効率	$d\sim 2~\mu{ m m}$	0					
飽和エネルギー	パルス波高値					Δ	
	$d \sim 2 \mu \mathrm{m}$	0					
	熱容量	0				Δ	

8.2 結論と今後の展望

本修士論文では、高開口率を持つ TES 型 X 線マイクロカロリメータ (TES カロリメータ)の実現に向け、Au オー バーハング構造の形成およびそれを搭載した TES カロリメータの製作と性能評価を行った。将来の X 線天文衛星計 画である SuperDIOS 計画では広視野で軟 X 線領域の酸素輝線を精密分光することで、中高温銀河間物質の空間分布 を取得し、銀河間物質の化学史や宇宙の構造形成史に迫ることが期待されている。本研究では、SuperDIOS 計画の要 求値に準じて、半値全幅 (Full Width Half Maximum; FWHM) で 5 eV 以下のエネルギー分解能、10 keV 以上の飽和 エネルギー、5 keV 以下の X 線に対して約 1 の X 線吸収効率を併せ持つ素子を設計目標とした。高開口率の TES カ ロリメータとしてはオーバーハング構造を持つ吸収体の開発が必須であり、従来の問題点としては、熱拡散過程のば らつき、特殊な構造の形成の難しさがあった。また吸収体の厚みや熱容量は TES カロリメータの性能に関わってお り、性能指標であるエネルギー分解能、飽和エネルギー、X 線吸収効率は互いにトレードオフの関係がある。そこで、 これらの関係から最適な設計値を探す必要があった。本修士論文の吸収体製作において以下を達成した。

- ・TES として超伝導転移温度 $T_c \sim 200 \text{ mK}$ と温度感度 $\alpha \sim 50$ を仮定し、設計目標を達成するために、性能 指標の観点から最適な熱容量 ~ 2.14 pJ/K と厚み ~ 2.27 μm を算出し、熱拡散過程の要求から残留抵抗比 (Residual Resistivity Ratio; RRR) に 9.23 以上という制限をつけた。
- 高い RRR を達成するために新たに Au の電解析出環境を導入し、RRR ~ 25 を達成する Au 薄膜の製作に成功した。
- ・開口率~80%である自立した Au オーバーハング吸収体を持つ TES カロリメータの構造形成に成功し、厚みについても膜厚測定結果から~2 µm で制御できている。その後の冷却試験でも吸収体が壊れず、構造としての強度も十分である。
- •構造形成で問題となっていた吸収体下のレジスト除去では従来プロセスから溶剤を変更し、除去可能となった。
- 製作したオーバーハング吸収体 TES カロリメータ (JAXA120, JAXA123) は転移温度 ~ 350 mK と ~ 170 mK で超伝導特性を示すことを確認した。

また、超伝導転移を確認した素子に対し⁵⁵Fe を用いた X 線照射試験を行い、設計目標であるエネルギー分解能、飽 和エネルギーの評価と X 線パルスの立ち上がり時間から吸収体構造の違い (A と D) の評価を行った結果、以下を確 認した。

- 超伝導転移温度が ~ 170mK の素子 (JAXA120) について、 $\Delta E_{\text{FWHM}} \sim 9.5 \text{ eV}$ を達成した。
- X 線パルスの立ち上がり時間は ~ 1 µs 程度で一定であり、複数の分布が確認されていないことから X 線入射 位置の依存性は小さい。
- ・ 飽和エネルギーの評価方法として、MnKα と MnKβ の波高値の線形性

$$\frac{\text{PHA}(\text{MnK}\beta)/\text{PHA}(\text{MnK}\alpha)}{E(\text{MnK}\beta)/E(\text{MnK}\alpha)}$$
(8.1)

を導入し、99% であることを確認した。少なくとも 6.5 keV の X 線に対しては飽和せず熱容量は設計値程度 には大きい。

- 一方で製作面と性能面では課題が明らかになった。製作面で明らかになった課題とその今後について以下に示す。
 - メンブレン構造形成後に台座から剥がせない問題や形成した吸収体の中には笠が垂れていたり、潰れたりしている問題があった。前者については、溶剤の変更や反応性の向上など、解決へのアプローチは多くある。後者については溶剤の粘性による影響が主な原因と考えられ、粘性を低減させるような工夫が必要である。

- ・想定していた超伝導転移温度と異なる転移温度で転移しているため、今後も TES 自体の製作条件の洗い出しを 続ける必要がある。また、TES のアスペクト比や熱負荷により超伝導転移温度が異なることが確認されている ため、これらの影響を加味する必要がある。
- 製作した一部の素子に二段階の超伝導転移が確認された。超伝導配線と TES の間にレジストなどの残留物が あることが考えられる。今後は基板表面のクリーニングの時間を従来より長くしたり、終点検出器を用いて定 量的に行ったりすることで解決を図る。
- また、性能面で明らかになった課題とその今後について以下に示す。
 - 要求している分解能である △E_{FWHM} < 5 eV を達成することができなかった。この原因については、吸収体 製作プロセスを経た TES 自体によるものなのか、吸収体を搭載したことによるものなのか、吸収体自体による ものなのか現状ではわかっていない。今後はこれらの切り分けが必要であり、TES 自体の性能向上とともに電 熱シミュレーションによる位置依存性の確認など、製作とシミュレーションの双方から確認が必要である。
 - JAXA123 では構造設計から計算した熱容量とX線パルスの立ち下がり時定数から計算した熱容量の間には約10倍程度異なっていた。測定した熱伝導度G₀とnの不確かさを考慮することで説明できる可能性があるため、今後詳細な議論をする。
 - ・吸収体構造による立ち上がり時間の違いについて、TES カロリメータの電気的応答を理解するにはインピーダンス測定や電熱シミュレーションが必要となる。今後はこれらによって構造間の違いを説明し、吸収体構造の最適化を行う。

今後は本研究で明らかになった製作および性能の問題を解決することで、要求を満たす TES カロリメータの製作を行う。その後吸収体を支える柱の太さや本数、TES の形を変えるなど構造の違いによる評価を実測とシミュレーションの両面から行う予定である。また、同時に開発が行われている積層配線技術と組み合わせることで Au オーバーハング吸収体を搭載した TES カロリメータを 224 画素まで拡大したアレイを実現させる。今回のオーバーハング吸収体の製作は TES カロリメータの宇宙分野への応用に向けた要素技術の一つである。アレイ化にはさらなる評価が必要になるが、SuperDIOS 衛星への搭載、中高温銀河間物質の観測、さらにはダークバリオン検出につながると考えられる。

Appendix A

フォトリソグラフィー

フォトリソグラフィーは光を利用して微細加工を行う技術で、半導体製作で主に使用されている。本修士論文の TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作においては、このフォトリソグラフィーによる微細加工が大部分を占めて いる。

A.1 レジスト塗布

レジストとは感光性を持つ有機材料で、フォトリソグラフィーにおいては後工程で利用する酸やアルカリに対する マスクとして利用される。レジストには光があたったところのみ化学処理できるようになるポジ型と、光が当たっ たところのみ硬化して化学処理に強くなるネガ型がある。レジストは基板上に均一に塗布することが望まれるため、 図 A.1 で示すスピンコーターという機械を利用する。スピンコーターでは、レジストを一面に塗布した基板を中心に 設置させて回転させることで、遠心力を利用してレジストを薄く均一に塗布することができる。レジストの膜厚はス ピンコーターの回転数とレジストの粘性によって決まる。例えばレジストを厚く塗布する際には、高粘度のレジスト を利用するか、低速で回転塗布することで実現できる。表 A.1 に使用したレジストのカタログスペックと用途につい て示す。また、レジスト塗布の際に利用したスピンコーターの条件について表 A.2 に示す。

種別	厚み (カタログ)	使用プロセス
AZECI3012	$1.2 \mu \mathrm{m}$	TES 形成
AZECI3027	$2.7 \mu \mathrm{m}$	電極層・吸収体形成
AZP4620	$7.0 \ \mu \mathrm{m}$	メンブレン形成時保護用
LOR10B	-	Nb 配線形成用

表 A.1: 使用したレジストとカタログスペック



図 A.1: スピンコーター

#	Time	Rotation Speed
#0_6_*	$0 \rightarrow 5 \mathrm{s}$	$0 \rightarrow 500 \mathrm{rpm}$
	$5 \rightarrow 10 \mathrm{s}$	500rpm
	$10 \rightarrow 15 \mathrm{s}$	$500 \rightarrow * \mathrm{rpm}$
	$15 \to 45 \mathrm{s}$	* rpm
	$45 \rightarrow 50 \mathrm{s}$	*→0 rpm
	End	0 rpm
#19_22	$0 \rightarrow 10 \mathrm{s}$	500rpm
	$10 \to 50 \mathrm{s}$	800rpm
	$50 \rightarrow 50.5 \mathrm{s}$	4000 rpm
	End	0 rpm

表 A.2: スピンコーターのレシピ条件



- Renyue Cen and Jeremiah P. Ostriker. Where are the Baryons? *The Astrophysical Journal*, Vol. 514, No. 1, pp. 1–6, March 1999. arXiv:astro-ph/9806281.
- [2] Renyue Cen and Jeremiah P. Ostriker. Where Are the Baryons? II: Feedback Effects. *The Astrophysical Journal*, Vol. 650, No. 2, pp. 560–572, October 2006. arXiv:astro-ph/0601008.
- [3] Kohji Yoshikawa, Klaus Dolag, Yasushi Suto, Shin Sasaki, Noriko Y. Yamasaki, Takaya Ohashi, Kazuhisa Mitsuda, Yuzuru Tawara, Ryuichi Fujimoto, Tae Furusho, Akihiro Furuzawa, Manabu Ishida, Yoshitaka Ishisaki, and Yoh Takei. Locating the Warm–Hot Intergalactic Medium in the Simulated Local Universe. *Publications of the Astronomical Society of Japan*, Vol. 56, No. 6, pp. 939–957, December 2004.
- [4] Joel N. Bregman. The Search for the Missing Baryons at Low Redshift. *Annual Review of Astronomy and Astrophysics*, Vol. 45, No. 1, pp. 221–259, September 2007. arXiv:0706.1787 [astro-ph].
- [5] K. Sato, N. Y. Yamasaki, M. Ishida, Y. Maeda, K. Mitsuda, Y. Ishisaki, Y. Fujita, Y. Ezoe, I. Mitsuishi, Y. Tawara, K. Osato, N. Kawai, K. Matsushita, D. Nagai, K. Yoshikawa, R. Fujimoto, T. G. Tsuru, N. Ota, S. Yamada, Y. Ichinohe, Y. Uchida, and Y. Nakashima. Super DIOS Project for Exploring "Dark Baryon". *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 209, No. 5-6, pp. 971–979, December 2022.
- [6] H. Akamatsu, Y. Abe, K. Ishikawa, Y. Ishisaki, Y. Ezoe, T. Ohashi, Y. Takei, N. Y. Yamasaki, K. Mitsuda, R. Maeda, Betty Young, Blas Cabrera, and Aaron Miller. Impedance measurement and excess-noise behavior of a Ti/Au bilayer TES calorimeter. pp. 195–198, Stanford (California), 2009.
- [7] S. H. Moseley, J. C. Mather, and D. McCammon. Thermal detectors as x ray spectrometers. *Journal of Applied Physics*, Vol. 56, No. 5, pp. 1257–1262, September 1984.
- [8] Makoto S. Tashiro. XRISM: X-ray imaging and spectroscopy mission. *International Journal of Modern Physics D*, Vol. 31, No. 02, p. 2230001, January 2022.
- [9] K. D. Irwin, G. C. Hilton, D. A. Wollman, and John M. Martinis. X ray detection using a superconducting transition edge sensor microcalorimeter with electrothermal feedback. *Applied Physics Letters*, Vol. 69, No. 13, pp. 1945–1947, September 1996.
- [10] K.D. Irwin and G.C. Hilton. *Transition-Edge Sensors*, pp. 63–150. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2005.
- [11] Naoko Iyomoto, John E. Sadleir, Enectali Figueroa-Feliciano, Tarek Saab, Simon R. Bandler, Caroline A. Kilbourne, James A. Chervenak, Dorothy Talley, Fred M. Finkbeiner, Regis P. Brekosky, Mark A. Lindeman, Richard L. Kelley, Frederick S. Porter, and Kevin R. Boyce. Optimization of x-ray absorbers for TES microcalorimeters. p. 145, USA, September 2004.
- [12] J. P. Hays-Wehle, P. J. Lowell, D. R. Schmidt, G. C. Hilton, D. A. Rudman, D. S. Swetz, and J. N. Ullom. An Overhanging Absorber for TES X-Ray Focal Planes. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, Vol. 27, No. 4, pp. 1–4, June 2017.
- [13] M. de Wit, L. Gottardi, E. Taralli, K. Nagayoshi, M.L. Ridder, H. Akamatsu, M.P. Bruijn, R.W.M. Hoogeveen,

J. van der Kuur, K. Ravensberg, D. Vaccaro, J.-R. Gao, and J.-W.A. den Herder. Impact of the Absorber-Coupling Design for Transition-Edge-Sensor X-Ray Calorimeters. *Physical Review Applied*, Vol. 16, No. 4, p. 044059, October 2021.

- [14] Hiroshi Yoshitake. TES 型 X 線マイクロカロリメータのアレイ化と分高性能向上に関する研究. Master's thesis, 東京大学, 2009.
- [15] Kiyonori Yoshida. ビスマス吸収体を用いた TES 型 X 線マイクロカロリメータの製作と性能評価. Master's thesis, 東京大学, 2005.
- [16] Kenichiro Nagayoshi. 検出効率の飛躍的向上を目指したマッシュルーム型吸収体 TES 型 X マイクロカロリメー タの開発. Master's thesis, 東京大学, 2013.
- [17] 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, 東京大学, 2015.
- [18] K. Nagayoshi, M. L. Ridder, M. P. Bruijn, L. Gottardi, E. Taralli, P. Khosropanah, H. Akamatsu, S. Visser, and J.-R. Gao. Development of a Ti/Au TES Microcalorimeter Array as a Backup Sensor for the Athena/X-IFU Instrument. *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 199, No. 3-4, pp. 943–948, May 2020.
- [19] T. Ohashi, M. Ishida, S. Sasaki, Y. Ishisaki, K. Mitsuda, N. Y. Yamasaki, R. Fujimoto, Y. Takei, Y. Tawara, A. Furuzawa, Y. Suto, Y. Yoshikawa, H. Kawayara, N. Kawai, T. G. Tsuru, K. Matsushita, and T. Kitayama. DIOS: the diffuse intergalactic oxygen surveyor. p. 62660G, Orlando, Florida, USA, June 2006.
- [20] Yuta Yagi, Tasuku Hayashi, Keita Tanaka, Rikuta Miyagawa, Ryo Ota, Noriko Y. Yamasaki, Kazuhisa Mitsuda, Nao Yoshida, Mikiko Saito, and Takayuki Homma. Fabrication of a 64-pixel tes microcalorimeter array with iron absorbers uniquely designed for 14.4-kev solar axion search. IEEE Trans. Appl. Supercond., 2023.
- [21] Masaru KATO. 金属エッチング液 etching solution for metal. Technical report, 関東化学株式会社, 2004.
- [22] E. Taralli, L. Gottardi, K. Nagayoshi, M. Ridder, S. Visser, P. Khosropanah, H. Akamatsu, J. van der Kuur, M. Bruijn, and J. R. Gao. Characterization of High Aspect-Ratio TiAu TES X-ray Microcalorimeter Array Under AC Bias. *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 199, No. 1-2, pp. 80–87, April 2020.
- [23] Yoh Takei. 超伝導遷移端 (TES 型)X 線マイクロカロリメータの熱的、電気的応答とノイズ原因の物理的考察. Master's thesis, 東京大学, 2004.
- [24] Tasuku Hayashi, Haruka Muramatsu, Ryohei Konno, Noriko Y. Yamasaki, Kazuhisa Mitsuda, Akira Takano, Keisuke Maehata, and Toru Hara. A Concept Design of TES X-ray Microcalorimeter Array with Different Thickness Absorber Toward the Observation from 50 eV to 15 keV for STEM-EDS. *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 199, No. 3-4, pp. 908–915, May 2020.

謝辞

本修士論文を執筆するにあたり、多くの方々にご指導とご協力をいただきました。素子製作においては国立天文 台・先端技術センターの Nb スパッタ装置、走査型透過顕微鏡を使用させていただきました。また、宇宙科学研究所 宇宙ナノエレクトロニクスクリーンルーム (ナノエレ CR) を使用しました。

指導教員である山崎典子先生には、日頃の研究室ミーティングを通じて実験や研究の方針についてご指導いただき ました。質問をした際にも私がわかるまで何度も丁寧にお教えいただき、解決すべき問題の整理など研究に対する姿 勢についても学ばせていただきました。就職活動に関することや雑談など研究以外でも大変お世話になりました。山 崎研究室で関わってくださった皆様にも多くお世話になりました。林佑さんには、実験について右も左もわからない 私に、実験の進め方や製作へのフィードバック、研究への考え方など本当に多くのことを一から教えていただきまし た。また議論や質問に対していつも優しく丁寧に対応していただきました。高久諒太さんには、宇宙研にいらした際 に研究発表する上で大事な心得をお教えいただきました。八木雄大さんには、実験操作について実際に教えていただ いたり、解決すべき課題についての相談に乗っていただきました。的確でかつ丁寧なご意見によって大学院生として の成長の機会につながりました。田中圭太さんとは、同じ大学の出身という繋がりもあり公私ともによくしていただ きました。ときには愚痴にも近いような相談にいつでも乗っていただき、多くの助言をいただきました。太田瞭くん とは今年度から実験を一緒に行い、議論をする機会が多くありました。秘書の高橋紀子さんには不自由なく研究生活 を送ることができるように多くのサポートをいただきました。山崎研究室で2年間を過ごすことができ本当によかっ たです。

満田和久先生、伊豫本直子先生、伊豫本研究室の皆様には、主にミーティングでお世話になりました。質問してい ただくことで議論を深めることができ、異なった視点で研究を進めることができました。ナノエレ CR の正光義則さ んには、クリーンルーム内の装置の利用方法をお教えいただいたり、私が安全に実験を進められるようにサポートい ただきました。宇宙科学研究所の同期である栗原明稀さん、蜂須賀大暁さん、星篤志さん、中野遼さん、吉田南さん、 宮本明日香さんには特にお世話になりました。研究で行き詰まったときにする雑談は楽しく、研究室内に同期がいな い私にとって大きな繋がりでした。

最後に、ここまで不自由なく育ててくれた父と母、弟に感謝申し上げ、謝辞とかえさせていただきます。