

筑波大学大学院博士前期課程

数理物質科学研究科修士論文

ニュートリノ崩壊探索実験のための  
ハフニウムを用いた超伝導トンネル接合素子検出器の開発研究

武政健一  
(物理学専攻)

2009年2月



筑波大学大学院博士前期課程

数理物質科学研究科修士論文

ニュートリノ崩壊探索実験のための  
ハフニウムを用いた超伝導トンネル接合素子検出器の開発研究

武政健一  
(物理学専攻)

指導教員 金 信弘 印



## 概要

ニュートリノがディラック粒子である場合には、ニュートリノは崩壊し、光子を放出する。

ニュートリノ崩壊現象観測のシミュレーションを行った結果、崩壊の際に放出される光子を検出するには、30meV 程度のエネルギーに対して 3% 程度のエネルギー分解能をもつ遠赤外線検出器が必要であることがわかった。シミュレーションでは、各質量固有状態の質量をニュートリノ振動現象、直接測定の結果に矛盾しない値 ( $M(\nu_1) = 1\text{meV}$ ,  $M(\nu_2) = 11\text{meV}$ ,  $M(\nu_3) = 61\text{meV}$ ) に設定して、崩壊の際に放出される光子のスペクトルを計算した。シミュレーションは、この宇宙背景ニュートリノの崩壊によって生じる光子のエネルギースペクトルの検出を想定して行った。

ニュートリノが崩壊する際に発する光子のエネルギースペクトルを測定するために要求される低エネルギーの測定が可能で、高いエネルギー分解能が実現できる検出器として、ハフニウムを材料に用いた超伝導トンネル接合素子 (Superconducting Tunnel Junction : STJ) 検出器の開発を行った。

STJは放射線からのエネルギー付与によって生じた準粒子を常電流として測定し、エネルギーを測定する放射線検出器である。STJは 1nm 程の絶縁膜を二枚の超伝導体薄膜で挟んだ構造をしており、それぞれの超伝導体薄膜に信号読み出し線が接続される。

STJでは超伝導体薄膜に用いる金属にギャップエネルギーの小さいものを用いることで、エネルギー分解能の優れた検出器を作製することができる。ハフニウムを材料に用いた場合、エネルギー 30meV に対して 3.4% の分解能が実現できる。

新たな材料で STJ を作成にあたり、薄膜形成、薄膜の加工、絶縁膜形成の最適な条件の探索を行なった。

ニュートリノ崩壊探索に用いる遠赤外線検出器として世界初のハフニウム STJ の開発に挑戦し、これまでに

1. バルクと同等の相転移温度を示す Hf の成膜条件の確立。
  2. ICP エッチングによる Hf 薄膜の加工方法の確立と加工後の超伝導転移の確認。
- を実現した。絶縁膜の作成条件を決定することで、STJ を完成させることができる。



# 目次

<b>第 1 章</b>	<b>序章</b>	<b>1</b>
1.1	ニュートリノ	1
1.2	ニュートリノの歴史	1
1.3	ニュートリノの観測	3
1.4	ニュートリノ振動	3
1.4.1	概要	3
1.4.2	大気ニュートリノ振動	4
1.4.3	太陽ニュートリノ振動	5
<b>第 2 章</b>	<b>ニュートリノ崩壊の探索</b>	<b>6</b>
2.1	ニュートリノ崩壊	6
2.2	ニュートリノ崩壊の探索	7
2.3	崩壊光子の検出シミュレーション	7
2.3.1	崩壊光子のスペクトル	8
2.3.2	背景事象	8
2.3.3	シグナルと背景事象	11
2.4	実際に観測するために	11
<b>第 3 章</b>	<b>STJ 検出器</b>	<b>13</b>
3.1	概要	13
3.2	構造	14
3.3	動作原理	15
3.3.1	クーパー対	15
3.3.2	STJ の放射線検出器としての動作	15
3.4	エネルギー分解能	16
3.5	バックトンネリング	17
3.6	ニュートリノ崩壊探索への利用	18
<b>第 4 章</b>	<b>ハフニウム薄膜の作製</b>	<b>19</b>
4.1	スパッタリング法	19
4.2	ハフニウム薄膜作製条件の探索	19
4.2.1	内部応力	21
4.2.2	膜厚の制御	24
4.2.3	薄膜の冷却試験	26

<b>第 5 章</b>	<b>ハフニウム薄膜の加工</b>	<b>28</b>
5.1	フォトリソグラフィ	28
5.2	ドライエッチング (反応性イオンエッチング)	30
5.3	ウェットエッチング	30
5.4	リフトオフ	31
5.5	メタルマスク	32
5.6	ドライエッチング (ICP エッチング)	33
5.7	ハフニウム薄膜加工方法のまとめ	35
<b>第 6 章</b>	<b>トンネルバリアの作製</b>	<b>36</b>
6.1	トンネルバリア	36
6.2	メタルマスクでの STJ 作製	36
6.2.1	ハフニウム表面の酸化	38
6.2.2	上下の超伝導膜の短絡	39
6.3	ICP エッチングでの STJ 作製	39
6.4	絶縁膜作製条件の探索	40
6.4.1	酸化ハフニウムの作製条件探索	42
6.4.2	酸化アルミニウムをもちいた STJ の試作	42
6.5	絶縁膜作製条件探索のまとめ	44
<b>第 7 章</b>	<b>結論</b>	<b>46</b>



# 目次

2.1	ニュートリノ崩壊のファインマン図	6
2.2	$\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma$ の光子のエネルギー分布、エネルギー分解能0%の場合	9
2.3	2.7K 宇宙背景輻射のエネルギー分布	9
2.4	崩壊光子及び宇宙背景赤外輻射のエネルギー分布	10
2.5	崩壊光子及び宇宙背景輻射のエネルギー分布 (光子のエネルギーの立ち上がり付近の拡大図)	11
2.6	崩壊光子の立ち上がり付近での光子観測数のエネルギー微分	12
3.1	STJ の構造 (俯瞰図)	13
3.2	STJ の構造 (断面図)	14
3.3	STJ の放射線検出原理	15
3.4	STJ の I-V 特性	16
3.5	STJ の構造 (トラップ層あり)	17
3.6	バックトンネリング	18
4.1	スパッタリングの原理	20
4.2	スパッタ装置	20
4.3	基板の歪み	22
4.4	基板歪みの測定	22
4.5	基板の歪み	24
4.6	5分間スパッタリングしたときの膜厚	24
4.7	ADR の構造	26
4.8	四端子法	26
4.9	ADR の外観	27
4.10	サンプルの配置	27
4.11	冷却中の I-V 特性の変化	27
5.1	露光のしくみ	29
5.2	ハフニウム STJ のデザイン	29
5.3	ドライエッチングの概要	30
5.4	ウェットエッチングの概要	31
5.5	リフトオフの概要	31
5.6	メタルマスクの概要	32
5.7	エッチングレート測定時のカプトンテープの位置	33
5.8	ハフニウムのエッチングレート測定	34

5.9	メタルマスクで加工加工したサンプル . . . . .	35
6.1	メタルマスクでの STJ 製作過程 . . . . .	37
6.2	ICP エッチングでの STJ 製作過程 . . . . .	41
6.3	ハフニウム/アルミニウムサンプルの I-V 特性 . . . . .	43

# 表 目 次

1.1	ニュートリノの基礎特性 . . . . .	2
2.1	シミュレーションで用いる値。 . . . .	7
3.1	各種放射線検出器の特徴 . . . . .	13
3.2	STJの各部名称 . . . . .	14
3.3	各種超伝導体材料の特徴 . . . . .	16
4.1	各サンプルのパラメータと歪み . . . . .	23
4.2	最適スパッタ条件下での膜厚の分布 . . . . .	25
4.3	冷却試験に用いたサンプル . . . . .	27
5.1	ハフニウムのエッチング . . . . .	34
6.1	メタルマスクでのSTJ作製過程 . . . . .	36
6.2	ハフニウム表面酸化防止の手法 . . . . .	39
6.3	メタルマスクでのSTJ作製過程 . . . . .	40
6.4	ハフニウム絶縁膜作製条件の探索 . . . . .	42
6.5	ハフニウム/アルミニウム-STJの構造 . . . . .	43



# 第1章 序章

## 1.1 ニュートリノ

ニュートリノは素粒子の一種でレプトン (軽粒子) に分類される粒子である。

現在観測されているニュートリノには電子型、ミュー型、タウ型の3種があり、それぞれ  $\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau$  の記号で表される。これらは  $W^+ \rightarrow \nu_e + e^+$  の様に弱い相互作用をする際に對になるレプトンの名称から名づけられている。素粒子標準理論では、レプトンは以下の3世代の弱アイソスピンの2重項を構成する。

$$\begin{array}{ccc} \text{第一世代} & \text{第二世代} & \text{第三世代} \\ \left( \begin{array}{c} \nu_e \\ e^- \end{array} \right) & \left( \begin{array}{c} \nu_\mu \\ \mu^- \end{array} \right) & \left( \begin{array}{c} \nu_\tau \\ \tau^- \end{array} \right) \end{array}$$

3種のニュートリノはいずれも電荷を持たず、質量は非常に小さく直接測定では有限質量であることを示すことはできていない。そのため標準模型では質量は0として扱われていた。後にニュートリノ振動現象が観測され、3種のニュートリノの内に質量が0ではないものがあることが分かった。

反粒子は反ニュートリノ ( $\bar{\nu}$ ) と呼ばれ、電子、ミュー、タウの3種類がある。電荷を持たないため、粒子と反粒子を判別できず、粒子それ自体が反粒子である可能性がある。ニュートリノ自体が反粒子か否かは未だに解決されていない問題である。

電荷・カラー荷を持たないため電磁相互作用・強い相互作用をせず、弱い相互作用と重力相互作用のみが働く。ただし、質量が非常に小さいため重力相互作用の効果は非常に弱く、通常実験を行う上では重力相互作用は作用しないものとして扱う。実質弱い相互作用でしか作用しないに等しいため他の粒子との反応断面積が非常に小さく、他の素粒子に比べて検出のしにくい粒子である。

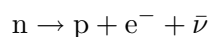
## 1.2 ニュートリノの歴史

1920年代、当時の測定ではベータ崩壊 ( $n \rightarrow p + e^-$ ) において、反応の前後でエネルギーの合計が一致しなかった。そのため、ベータ崩壊を引き起こす弱い相互作用ではエネルギー保存が成り立たないのではないかという大きな問題に直面した。

この問題を解決するために Wolfgang Ernst Pauli はベータ崩壊において、観測されない中性の粒子がエネルギーを持ち去っているとする仮説を1930年に公表した。その後、1932年に中性子が発見されたことをきっかけに、Enrico Fermi は「ベータ崩壊では原子核内の中性子が陽子と電子を放出しさらに中性の粒子も放出する。」との仮説を発表した。

電荷	0
スピン	1/2
電子ニュートリノの質量	< 2.5 eV
ミューニュートリノの質量	< 170 keV
タウニュートリノの質量	< 18 MeV
寿命	非常に長い。
電磁力	相互作用しない。
強い力	相互作用しない。
弱い力	相互作用する。
重力	相互作用する。ただし非常に弱い。

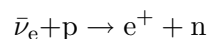
表 1.1: ニュートリノの基礎特性



この中性の粒子は Fermi によって ”中性で小さい粒子” という意味の ”Neutrino” と名付けられた。

ニュートリノの質量は非常に小さいか、もしくは 0 であると考えられた。電荷を持たず、質量が非常に小さいため、他の物質と相互作用することがほとんどなく検出は困難であった。

初めてニュートリノが観測されたのは、1953 年から 1959 年にかけて行われた Frederick Reines らの実験によってである。Reines は、原子炉から生じた多量のニュートリノビームを水にあて、水分子中の原子核とニュートリノが反応することにより生じる中性子と陽電子を観測することで、ニュートリノの存在を証明した [1]。



1962 年に、Leon Max Lederman らは米国ブルックヘブンの陽子加速器を使って大量のパイ中間子を発生させ、その崩壊で出るニュートリノの反応を調べた。その結果、電子は見られずベータ崩壊で放出される電子ニュートリノとは別のニュートリノ (ミューニュートリノ) の存在が明らかとなった [2]。その後、電子やミュー粒子と比べて質量がずっと大きいタウ粒子が見つかり [3]、それとペアになるタウニュートリノも近年検出された [4]。LEP 実験による  $Z^0$  の崩壊幅の精密測定により  $Z^0$  以下の質量を持つニュートリノは 3 種のみ考えられている [5]。

3 種のニュートリノ間の転換をニュートリノ振動と呼ぶ。このニュートリノ振動が 1998 年に Super-Kamiokande 実験において観測された [6]。ニュートリノ振動が観測されたことでそれまで 0 として扱われていたニュートリノの質量が有限の値を持つことが証明された。

## 1.3 ニュートリノの観測

ニュートリノは実質、弱い相互作用でのみ反応をするため、ニュートリノ自体を検出器で観測することは非常に難しい。

そのため、ニュートリノの相互作用に関係した他の粒子を調べることでニュートリノの情報を得る方法が一般的である。

現在のニュートリノ観測手法の1つには反応材を大量に用いてニュートリノと反応させ、反応した粒子が発するチェレンコフ光を観測する方法がある。この方法では、ニュートリノの反応断面積の小ささを補うため大量のニュートリノと大質量の検出器、高感度の検出器を用いる。反応材、例えば純水にニュートリノが入射することで水分子中の原子核と相互作用を起こし荷電粒子が放出される。その荷電粒子が水中で光速を越えた速度で進むことでチェレンコフ光を発する。そのチェレンコフ光を観測することでニュートリノについて調べるのである。入射したニュートリノのフレーバと対になる荷電粒子が放出されるため、荷電粒子が何であるかを特定できれば入射したニュートリノのフレーバが決定できる。この手法をもちいて Super-Kamiokande では入射ニュートリノの角度分布を測定し、ニュートリノ振動現象の観測に成功した。

他の例として衝突型加速器実験でのニュートリノの扱いを挙げておく。衝突型加速器実験で用いる検出器はニュートリノと相互作用を起こすほどの質量を持たないためニュートリノを観測することはできない。そこで、解析によってニュートリノの有無を判断する。衝突型加速器実験では粒子同士が正面衝突するように設計されており、粒子の横方向運動量の和は0になる。生成粒子の中にニュートリノが存在する場合、その横方向運動量は観測できないため観測された横方向運動量の和は0にならない。この横方向運動量の和の0からのずれが大きい場合に粒子衝突によってニュートリノが生成されたと判断するのである。

## 1.4 ニュートリノ振動

### 1.4.1 概要

ニュートリノに質量がある場合、3種のニュートリノ間で転換が許され、相互に移行することが可能となる。ニュートリノの3種の質量固有状態をそれぞれ  $\nu_1$ 、 $\nu_2$ 、 $\nu_3$  と呼ぶことにする。すると、実際に観測されているニュートリノはそれらの混合しているフレーバ固有状態と考えることができる。

混合が2種のニュートリノで起こっていると考えると、

$$\begin{pmatrix} \nu_\alpha \\ \nu_\beta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

このように表される。 $(\theta$ は混合角)

ニュートリノ  $\nu_\alpha$  と他のニュートリノ  $\nu_\beta$  の間で転換が起こり、最初  $\nu_\alpha$  だけであったニュートリノビームがある距離を移動した後には  $\nu_\beta$  の成分が現れる。逆に  $\nu_\beta$  成分が  $\nu_\alpha$  成分に変化することもある。このような異なるニュートリノ間での相互移行のことをニュートリノ振動と呼んでいる。

ある距離  $L$  を飛んだニュートリノ  $\nu_\alpha$  が他のニュートリノ  $\nu_\beta$  に変化する確率は以下の式で与えられる。

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) = \sin^2 2\theta \sin^2(1.27\Delta m^2 L/E) \quad (1.2)$$

$$\Delta m^2 \equiv m_2^2 - m_1^2 \text{ (eV)}$$

$\theta$ : 混合角

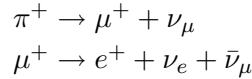
$L$ (km): ニュートリノ発生源から検出器までの距離

$E$ (GeV): ニュートリノのエネルギー

ニュートリノ振動は、種類毎のニュートリノの観測数に影響を与えるのでその効果は観測可能である。ニュートリノ振動は大気ニュートリノや太陽ニュートリノのような自然界のニュートリノ、加速器ニュートリノビームと原子炉ニュートリノのような人工的なニュートリノを用いて調べられている。

#### 1.4.2 大気ニュートリノ振動

宇宙線はすべての方向から一様に、地球に降り注いでいる。宇宙線（主に陽子）が大気と衝突することで中間子やミュー粒子、 $\gamma$ 線が生じる。そのパイ中間子やミュー粒子が崩壊することによって電子ニュートリノやミューニュートリノが生成される。



これらの宇宙線が大気と反応することで生成されたニュートリノは大気ニュートリノと呼ばれている。地表で観測すると、上方からの大気ニュートリノと下方からの大気ニュートリノでは、飛行距離に地球の直径程度の差が生じる。そのため大気ニュートリノの入射方向とそのフレーバーを調べることでニュートリノ振動現象を調べることができる。

代表的な大気ニュートリノ実験として Super-Kamiokande 実験 (SK 実験) が挙げられる。SK 実験では 50000 トンの水を反応材として用いてニュートリノとの相互作用で生じたミュー粒子のチェレンコフ光を観測する。その結果、ミューニュートリノの入射数には上下方向で明らかな違いが現れている。これによってニュートリノ振動現象の存在が示された。

また、質量自乗差とニュートリノ振動の混合角が測定された [6]。

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{混合角 (大気ニュートリノ): } \sin^2(2\theta_{23}) > 0.92 \text{ (90\%CL)} \\ \Delta m_{23}^2 \equiv m_3^2 - m_2^2 = \Delta m^2(\text{大気ニュートリノ}) = (1.6 \sim 3.9) \times 10^{-3} \text{eV}^2 \text{ (90\%CL)} \end{array} \right\} \quad (1.3)$$

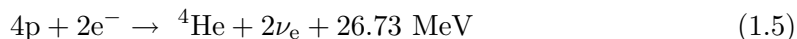
また、人工のニュートリノを用いた K2K 実験 [7]、MINOS 実験 [8] といったニュートリノ振動実験によってもニュートリノ振動が観測されている。K2K 実験によって測定された質量自乗差を式 1.4 に示した。

$$\left\{ \Delta m_{23}^2 = (1.9 \sim 3.5) \times 10^{-3} \text{eV}^2 \text{ (90\%CL)} \right\} \quad (1.4)$$



### 1.4.3 太陽ニュートリノ振動

Bahcall and Pinsonneault による 2004 年版の標準太陽モデル (BP04 SSM) [9] によると、太陽は水素原子核 (=陽子)4 個からヘリウム原子核 1 個と電子ニュートリノ 2 個及びエネルギーを生成する核融合反応により輝いていると考えられている。その反応を以下に示す。



この反応で生じる電子ニュートリノは「太陽ニュートリノ」と呼ばれる。太陽が毎秒放出しているエネルギーの測定から、毎秒何個の  ${}^4\text{He}$  が作られているかがわかる。ひいては、毎秒何個のニュートリノが放出されているかがわかる。

太陽ニュートリノの測定が行われた結果、観測された太陽ニュートリノの数は太陽の出しているエネルギーから予測される値に比べ半分以下でしかないことがわかった。その現象は電子ニュートリノが太陽から地球へ到達する間にニュートリノ振動を起こし他のニュートリノへ転換したのだと考えられた。また、原子炉で生じる反電子ニュートリノの測定結果は太陽ニュートリノ振動の測定結果とよく一致した。

SK 実験や SNO 実験らの実験によって、太陽ニュートリノ振動のパラメータは 95%CL で次のように求まった [6] [10]。

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{混合角 (太陽ニュートリノ): } 0.25 < \tan^2(\theta) < 0.9 \\ \text{質量の自乗差: } 2.5 \times 10^{-5} \text{eV}^2 < \Delta m_{12}^2 < 3.3 \times 10^{-4} \text{eV}^2 \end{array} \right\} \quad (1.6)$$

## 第2章 ニュートリノ崩壊の探索

### 2.1 ニュートリノ崩壊

ニュートリノがディラック粒子である場合にはニュートリノは  $\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma$  と崩壊する (図 2.1)。質量の大きい質量固有状態から質量の小さい固有状態へと崩壊を起こし、その際に光子を放出する。

寿命は標準理論の範囲内では  $10^{35}$  年程であるが、右巻き Weak Boson ( $W_R$ ) の存在を仮定すると崩壊幅が大きくなり最小で  $10^{17}$  年程になる。現在の  $W_R$  の質量下限および  $W_R$  と  $W_L$  の混合角の上限を用いて計算すると寿命は式 2.1 の様になる。

$$\left\{ \begin{array}{l} \nu_3 \text{の寿命} = 1.4 \times 10^{17} \sim 4.3 \times 10^{35} \text{years} \\ \nu_2 \text{の寿命} = 2.7 \times 10^{26} \sim 4.5 \times 10^{39} \text{years} \end{array} \right\} \quad (2.1)$$

ここでニュートリノの質量は  $m(\nu_3) = 61\text{meV}$ ,  $m(\nu_2) = 11\text{meV}$ ,  $m(\nu_1) = 1\text{meV}$  として計算している。これらの値は質量の直接測定およびニュートリノ振動実験で測定された質量自乗差に矛盾しないように選んだ。

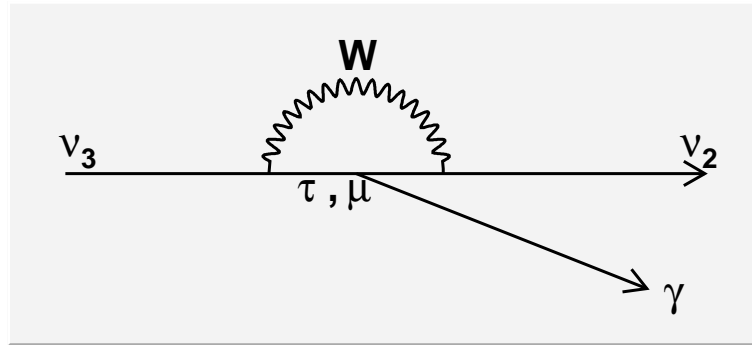


図 2.1: ニュートリノ崩壊のファインマン図

この崩壊の際に放出される光子のエネルギーはニュートリノの質量によって決まる。静止しているニュートリノが崩壊した場合の光子のエネルギーは

$$E_\gamma = \frac{m_3^2 - m_2^2}{2m_3} \quad (2.2)$$

である。

右辺の分子は質量自乗差になっているので、ニュートリノ振動実験で測定された値が代入できる。つまり、この光子のエネルギーが測定できればニュートリノの質量を決定することができるのである。

本研究でのニュートリノ崩壊の探索は崩壊の際に放出される光子の観測を指す。

## 2.2 ニュートリノ崩壊の探索

ニュートリノの寿命が非常に長いため、ニュートリノ崩壊の探索を行う上で多量のニュートリノが必要となる。そこで、本研究では宇宙背景ニュートリノを観測対象とする。宇宙背景ニュートリノは全空間に密度  $200 \text{ 個/cm}^3$ 、温度  $1.9\text{K}(0.6\text{meV})$  で存在すると予言されている。

宇宙背景ニュートリノからの光子を検出するために、検出器には望遠鏡を用いて宇宙空間の暗部のスペクトルを測定する。

## 2.3 崩壊光子の検出シミュレーション

崩壊光子が受ける影響を考慮して、エネルギースペクトルの検出シミュレーションを行った。ここで光子が受ける影響とは、

1. 宇宙背景ニュートリノが  $0.6\text{meV}$  で運動していることによる光子のエネルギースペクトルの滲み。
  2. 赤方偏移の効果でエネルギーが低い方へシフトする。
- である。

シミュレーションで各パラメータを表 2.1 に示した。なお、測定期間は 1 週間とした。 $\nu_2$  の崩壊は寿命が長いため光子の観測数が少なく、背景事象に紛れてしまう。そのため、以降では  $\nu_3$  の崩壊のみを扱う。

宇宙背景ニュートリノの密度	$\rho = 2 \times 10^8 \text{ m}^{-3}$
宇宙背景ニュートリノのエネルギー	$0.6 \text{ meV}$
$\nu_2$ の寿命	$\tau = 2.7 \times 10^{26} \text{ year}$
$\nu_3$ の寿命	$\tau = 1.4 \times 10^{17} \text{ year}$
$\nu_1$ の質量	$1 \text{ meV}$
$\nu_2$ の質量	$11 \text{ meV}$
$\nu_3$ の質量	$61 \text{ meV}$
$E_\gamma(\nu_2 \rightarrow \nu_1 + \gamma)$	$6 \text{ meV}$
$E_\gamma(\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma)$	$30 \text{ meV}$
$\gamma(\nu_2 \rightarrow \nu_1 + \gamma)$ の観測数	$40 \text{ year}^{-1}$
$\gamma(\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma)$ の観測数	$7.7 \times 10^{10} \text{ year}^{-1}$
望遠鏡の直径	$20 \text{ cm}$
望遠鏡の視野	$0.5^\circ$
検出器のエネルギー分解能	$0\%、1\%、2\%、4\%、5\%$

表 2.1: シミュレーションで用いる値。

### 2.3.1 崩壊光子のスペクトル

静止したニュートリノが崩壊した場合には崩壊前後の質量差によって決まる一定のエネルギーの光子を放出する。崩壊光子のエネルギースペクトルに影響を与える現象として、2つの現象があげられる。

1つめは宇宙背景ニュートリノが運動エネルギーを持っていることによる影響である。宇宙背景ニュートリノは0.6meVのエネルギーを持っているのでその影響で放出される光子のエネルギースペクトルは滲む。しかし、光子のエネルギーは30meVを想定しているため、この現象ではほとんど影響を受けない。

2つめは宇宙膨張による赤方偏移の影響である。宇宙膨張による赤方偏移の影響で光子のエネルギーは低い方へとシフトする。赤方偏移 $z$ と光源の速度 $v$ の間には、 $z = \sqrt{\frac{1+v/c}{1-v/c}} - 1 = \sqrt{\frac{1+\beta}{1-\beta}} - 1$ の関係が成り立ち、赤方偏移では周波数 $\nu$ を $\nu' = \nu \sqrt{\frac{1-\beta}{1+\beta}}$ に変える。そのため元のエネルギーが $E_0$ の光子が赤方偏移した場合、観測されるエネルギー $E_\gamma$ は

$$E_\gamma = \frac{E_0}{1+z} \quad (2.3)$$

と変化する。なお、遠方ほど $z$ の値は大きくなるため、遠方から来る光子ほど観測されるエネルギーは小さくなる。

0.6meVのエネルギーをもつニュートリノの崩壊に加えて、より大きいエネルギーをもつニュートリノの崩壊についても考慮すべきである。現在の背景ニュートリノのもつエネルギーは0.6meVだが、ビッグバン直後に生成されたニュートリノはもっと大きなエネルギーを持っていた。そのため、過去に崩壊したニュートリノの崩壊光子は0.6meVより大きいエネルギーによる影響を受けているはずである。

過去に起きた崩壊で放出された光子が観測される場合、光子は赤方偏移の影響を大きく受ける。そのため、大きく滲んだ光子は観測されるスペクトルの低エネルギー方向のテールに多く含まれることとなる。

これらを考慮すると観測される光子のスペクトルは図 2.2 の様になる。エネルギースペクトルの高い方で鋭く立ち上がり、低いほうへテールをひく形状をしている。

### 2.3.2 背景事象

ここでは観測の際に現れるバックグラウンドについて考察する。本研究では宇宙空間の放射線の観測を想定しているため、宇宙背景輻射が観測の際のバックグラウンドとなる。宇宙背景輻射は宇宙空間の全域からほぼ均等に観測される様々な周波数の電磁波の放射を指す。ニュートリノの崩壊によって生じる光子を測定する上で背景事象となりうる宇宙背景放射として、図 2.3 の様にプランク分布をしている2.7K宇宙背景輻射と星間ガス起原と考えられる遠赤外線～赤外線領域の宇宙背景赤外放射があげられる。

ニュートリノ崩壊の光子のスペクトルがバックグラウンドがある中で観測可能か評価を行う。2.7K宇宙背景輻射は0.7meVにピークをもつプランク分布をしている。ニュートリノの崩壊光子のエネルギースペクトルの立ち上がりがある30meV付近では非常に小さくなっており、ニュートリノの崩壊を観測する上では問題にならない。

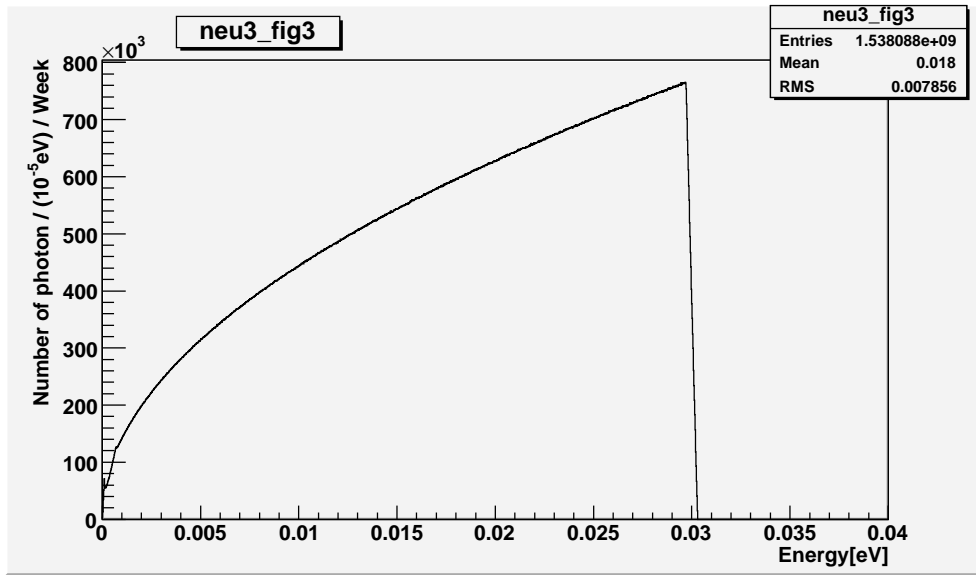


図 2.2:  $\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma$  の光子のエネルギー分布、エネルギー分解能 0% の場合

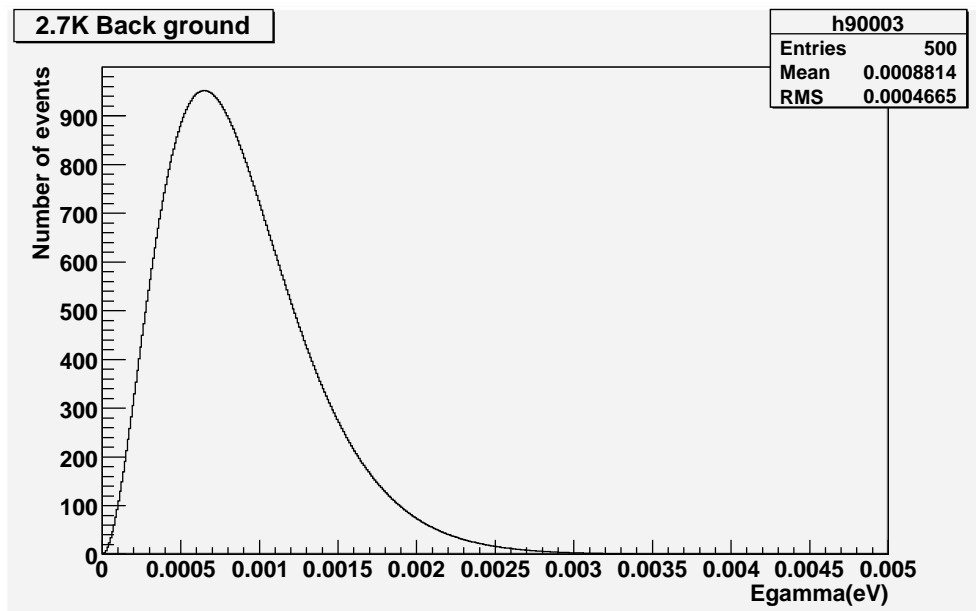


図 2.3: 2.7K 宇宙背景放射のエネルギー分布

宇宙背景赤外輻射のエネルギースペクトルは COBE(Cosmic Background Explorer) 実験のデータを元にフィットを行ったものを使用する。COBE 実験には DIRBE と FIRAS という2つの検出器が用いられている [11]。図 2.4 に崩壊光子および宇宙背景赤外輻射のエネルギースペクトルを示す。図 2.4 の DIRBE darksky、FIRAS darksky はそれぞれ DIRBE、FIRAS で得られたもっとも暗い点での背景輻射の上限値である。DIRBE residual は観測された高い銀緯での値から黄道光、黄道の放射、星の光、星間物質起源の放射を排除した値である [12]。DIRBE residual に対して2つのプランク分布と定数でフィットを行い、それをバックグラウンドとして扱った。バックグラウンドにはフィットした関数に対して  $\sqrt{N}$  の揺らぎを与えている。

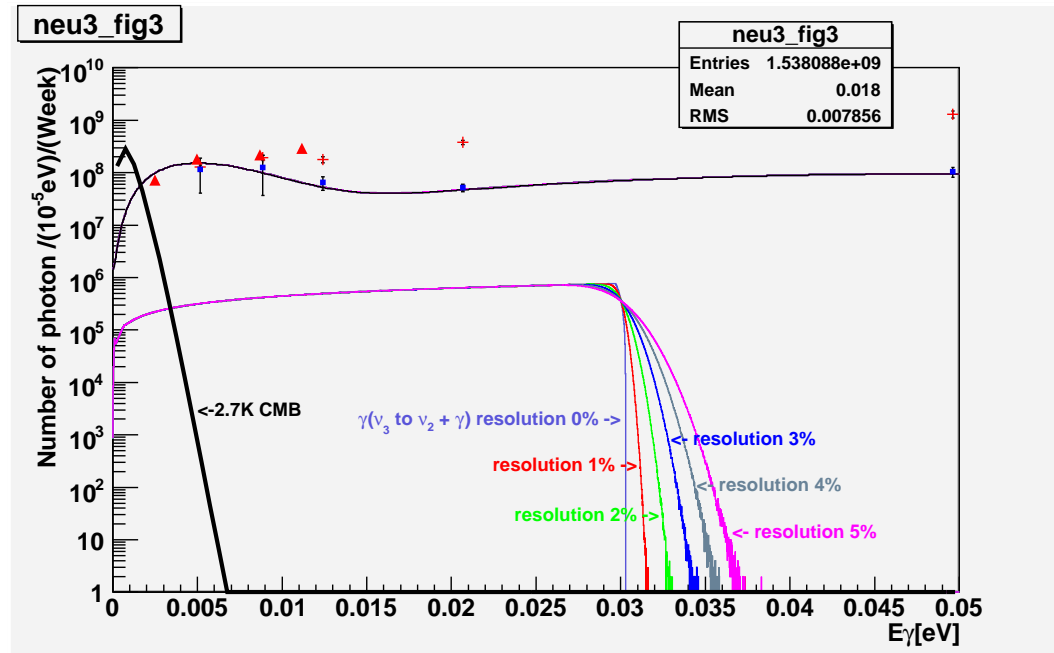


図 2.4: 崩壊光子及び宇宙背景赤外輻射のエネルギー分布  
 赤三角:DIRBE dark sky  
 赤十字:FIRAS dark sky  
 青四角:DIRBE residual

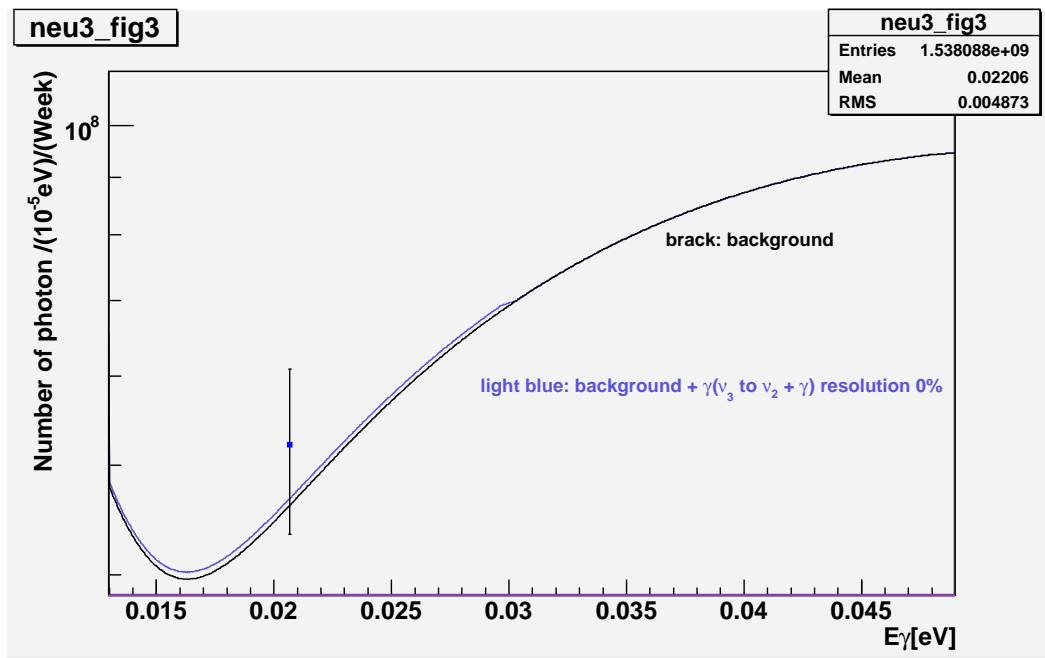


図 2.5: 崩壊光子及び宇宙背景輻射のエネルギー分布 (光子のエネルギーの立ち上がり付近の拡大図)

### 2.3.3 シグナルと背景事象

崩壊光子と宇宙背景赤外輻射のエネルギースペクトルを比較すると、崩壊光子のシグナルは背景事象と比べて  $10^2$  程度小さい (図 2.4)。図 2.5 に崩壊光子の立ち上がり付近でのエネルギースペクトルを示した。

信号の有無を判断するためにシグナル+バックグラウンドのスペクトルを微分したものを図 2.6 に示す。検出器のエネルギー分解能を 0%、1%、2%、3%、4%、5% としたプロットをそれぞれ作成した。この図 2.6 の谷の位置が崩壊光子の立ち上がりの位置である。エネルギー分解能が 3% 以下の場合にはスペクトルの谷が確認できるがそれより分解能の悪い場合には谷が確認できず、崩壊光子の立ち上がり位置が判断できない。そのため、ニュートリノ崩壊の探索には 30meV 程度のエネルギーに対して 3% 以下のエネルギー分解能を持つ検出器が必要となる。

## 2.4 実際に観測するために

シミュレーションの結果、ニュートリノ崩壊によって生じる光子のエネルギースペクトルを観測するには、30meV 程度のエネルギーに対して 3% 程度のエネルギー分解能を持つ検出器が必要となることが分かった。また、エネルギー微分をするために検出器は連続エネルギースペクトルを測れる必要がある。

これらの条件を満たす検出器として超伝導トンネル接合素子 (STJ) 検出器があげられる。STJ 検出器は材料に用いる金属によってエネルギー分解能が変わり、材料によっては

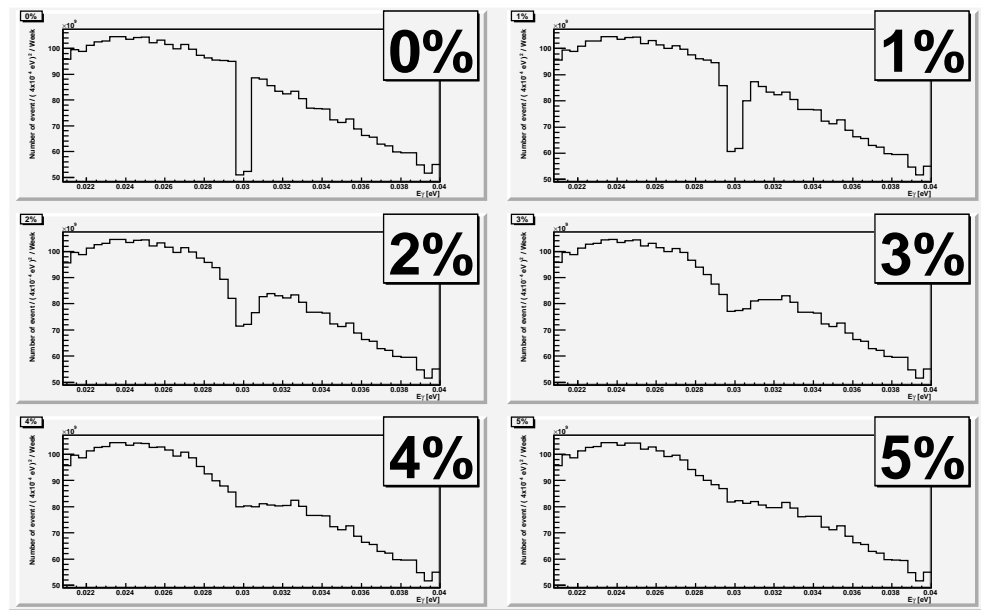


図 2.6: 崩壊光子の立ち上がり付近での光子観測数のエネルギー微分  
 縦軸:観測数のエネルギー微分  
 横軸:光子のエネルギー (eV)  
 図の右上の数字は検出器のエネルギー分解能の値を示している。

非常に優れたエネルギー分解能を実現できる。

本研究ではニュートリノ崩壊探索実験に使用する検出器として STJ 検出器を想定し、要求される性能を満たす STJ 検出器の開発を行った。



## 第3章 STJ検出器

### 3.1 概要

超伝導トンネル接合素子 (Superconducting Tunnel Junction : STJ) 検出器とは極低温環境下で動作する放射線検出器である。数 nm 程の絶縁膜を2枚の超伝導膜ではさんだ構造のジョセフソン接合素子の一種である (図 3.1)。放射線の入射によって生じた準粒子がトンネル効果で絶縁膜を通り抜けることで電流信号となる。原理的には赤外線から  $\gamma$  線までの放射線に対して感度がある。

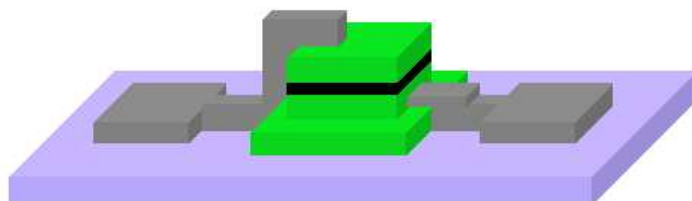


図 3.1: STJ の構造 (俯瞰図)

緑：超伝導膜      黒：絶縁膜  
灰：読み出し配線      紫：基板

現在、放射線計測実験において、エネルギー分解能の優れた検出器としてシリコンやゲルマニウムといった半導体検出器が主流であるが、半導体検出器は既に半導体材料固有の性質により今まで以上の性能の向上は望めない。STJ 検出器は半導体検出器と比較して高分解能・高速・広帯域を特徴とする検出器として現在までに優れた実験データを示している (表 3.1) [13]。

検出器	エネルギー分解能 (実験データ)	速度	エネルギー帯域
シンチレータ	数 100eV	数 10000cps	数 10keV 以上
半導体検出器	130eV	3000cps	数 eV から数 MeV
超伝導検出器	30eV(Nb 超伝導体)	10000cps	数 eV から数 MeV

表 3.1: 各種放射線検出器の特徴

## 3.2 構造

STJ 検出器は超伝導膜/絶縁膜/超伝導膜という構造になっており、上下の超伝導膜から読み出し用の配線が接続されている (図 3.2)。素子の大きさは  $20\mu\text{m}\times 20\mu\text{m}$  ( $20\mu\text{m}$  角)、 $100\mu\text{m}$  角、 $200\mu\text{m}$  角などがよく用いられる。厚さは全体で  $500\text{nm}$  程度となる。各部の名称と一般的な膜厚を表 3.2 に示した。

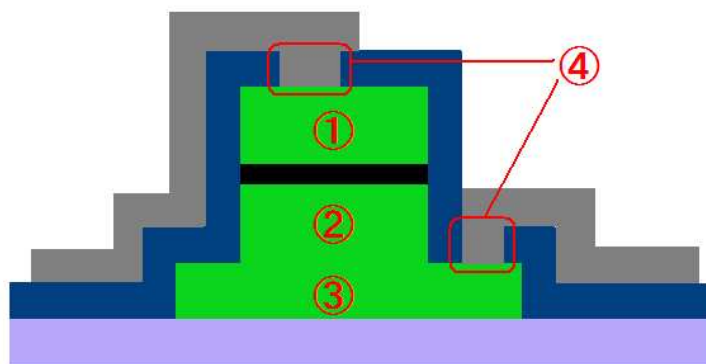


図 3.2: STJ の構造 (断面図)

緑：超伝導膜      黒：絶縁膜  
 灰：読み出し配線      青：絶縁用  $\text{SiO}_2$   
 紫：基板

部位		名称	説明
超伝導膜	1	上部 Junction Define(JD)	厚さ $200\text{nm}$ 程度
	2	下部 JD	厚さ $100\text{nm}$ 程度
	3	Under Layer(UL)	厚さ $200\text{nm}$ 程度 Wire 接続のため JD より大きく作られている
絶縁膜		トンネルバリア	厚さ $1\text{nm}$ 程度
$\text{SiO}_2$			厚さ $500\text{nm}$ 程度 全体を覆うことで上下 JD の短絡を防ぐ
	4	Contact Hole	Wire と超伝導膜の接触点
読み出し線		Wire	厚さ $600\text{nm}$ 程度

表 3.2: STJ の各部名称  
 2 列目の数字は図 3.2 中の数字と対応している。

### 3.3 動作原理

#### 3.3.1 クーパー対

クーパー対は超伝導体中に存在する電子対のことである。超伝導とは極低温環境下で電気抵抗が消失するなどの特異な現象のことを指す。超伝導体には電気抵抗が0になる他に、物質内部から磁力線が排除されるマイスナー効果など特徴的な現象が起こる。

超伝導状態が実現するためには電子が凝縮状態にある必要がある。電子はフェルミ粒子であるためパウリの排他律によりそのままでは凝縮することはできない。電子が凝縮するためには電子2つが1組となりボソンとして扱えるようになる必要がある。しかし、電子同士は斥力を及ぼし合うので何らかの引力が電子同士を引き合わせているはずである。電子同士がフォノンを仮想的に交換することで電子同士に引力が働くと考えることができる。この引力で引き合っている電子対をクーパー対という。クーパー対の電子は互いに逆向きのスピンを持ち、全運動量は0である。

#### 3.3.2 STJの放射線検出器としての動作

X線などの光子が超伝導膜に入射すると光電効果で吸収される。この際に超伝導膜に与えられたエネルギーにより、超伝導膜中でフォノンの励起やクーパー対の解離による準粒子(=電子)の生成が起こる。フォノン系と準粒子系は密接に関係しており、フォノンがクーパー対を解離することが可能であるし、準粒子がフォノンを励起することもある。これらの入射光子のエネルギーによって生成された多数の準粒子は量子力学的トンネル効果で絶縁膜を通り抜け、もう一方の超伝導体へと移行する確率をもち、常伝導電流として観測できる(図 3.3)。STJの電流電圧(I-V)特性の形状を図 3.4に示す。

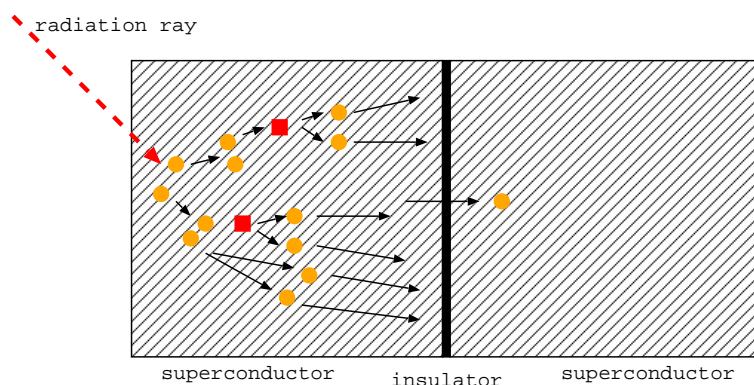


図 3.3: STJの放射線検出原理

図中の黄丸は電子を、赤四角はフォノンを表わしている。

$\gamma$ 線などのエネルギーの高い光子は透過力が大きくなるためSTJ検出器の超伝導膜での吸収確率の低さが問題となる。しかし、フォノン系の励起も検出に貢献することからSTJの下基板に吸収させる方法が有効となる。基板内で吸収されたエネルギーがそこでフォノンの励起を引き起こし、それがSTJの下部超伝導膜にまで拡散しクーパー対の解離を

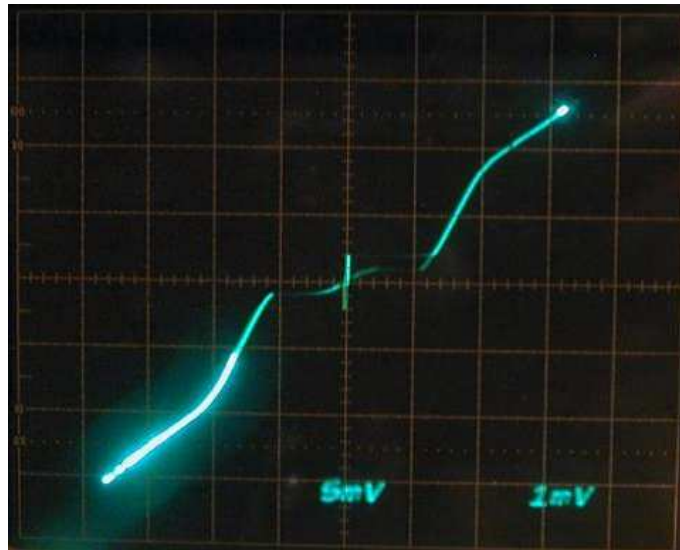


図 3.4: STJ の I-V 特性  
 試作したニオブ/アルミニウム STJ の I-V 特性。  
 縦軸:電流 [5mA/div]  
 横軸:電圧 [1mV/div]

引き起こす。このような動作をする STJ 検出器を基板吸収型 STJ 検出器と呼ぶ。

STJ 検出器を動作させるためには絶縁膜と平行に磁場をかける必要がある。これは放射線の入射と無関係に流れるジョセフソン電流を抑制するためである。磁場をかけ、上下の超伝導膜の量子力学的相関を失わせることで抑制することができる。

### 3.4 エネルギー分解能

STJ 検出器はクーバー対の解離によって生じた準粒子を信号として収集する。収集できる準粒子が多いほどエネルギー分解能が向上する。1つのクーバー対を解離するために必要なエネルギーを  $\epsilon$  とすると、エネルギー  $E$  をもつ放射線が入射した場合には検出器が収集できる準粒子数は  $E/\epsilon$  で表される。つまり  $\epsilon$  が小さいほど多くの準粒子を収集することができる。この  $\epsilon$  は超伝導体材料によって異なり  $\Delta$ (エネルギーギャップ) の 1.7 倍となっている。

表 3.3 にいくつかの超伝導体材料の特徴を示す。

	Sn	Nb	Al	Hf	W
超伝導転移温度 (K)	3.75	9.2	1.19	0.165	0.015
エネルギーギャップ (meV)	0.57	1.55	0.172	0.020	0.0025
コヒーレンス長 ( $\mu\text{m}$ )	0.23	0.038	1.6	9.7	

表 3.3: 各種超伝導体材料の特徴

エネルギー分解能は次の式で表される。

$$\text{FWHM} = 2.35\sqrt{(1.7\Delta)FE} \quad (3.1)$$

$\Delta$  : エネルギーギャップ

F : Fano factor

E : 放射線のエネルギー

式 3.1、表 3.3 を見て分かる通り超伝導転移温度の低い物質ほど  $\Delta$  が小さく、エネルギー分解能の優れた STJ 検出器の作製が可能となる。

### 3.5 バックトンネリング

基本的な STJ 検出器の構造は超伝導膜/絶縁膜/超伝導膜であるが、ギャップエネルギーの小さな超伝導体を絶縁膜に隣接して積層することで準粒子のトンネル確率を上げることが可能である。この信号増幅を行う層を追加した STJ の構造を図 3.5 に示した。増幅のために追加する層は超伝導膜に用いている材料よりもギャップエネルギーの小さいものを用いる。厚さは超伝導膜 200nm に対して 50nm 程である。

この構造にした場合準粒子の分布がトンネル障壁付近に偏る (トラップする) ことになりトンネル確率が上がることになる (図 3.5)。この信号増幅はバックトンネリングと呼ばれている。アルミ/ニオブ STJ の場合はアルミをトラップ層に用いることで、ニオブのみの STJ に比べて 10 倍程度信号の増幅が確認された。この増幅によりエネルギー分解能を向上させることができる。

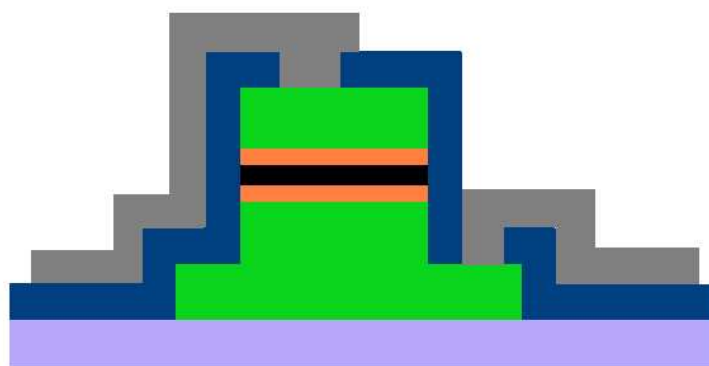


図 3.5: STJ の構造 (トラップ層あり)

緑 : 超伝導膜	黒 : 絶縁膜
橙 : トラップ層	灰 : 読み出し配線
青 : 絶縁用 SiO <sub>2</sub>	紫 : 基板

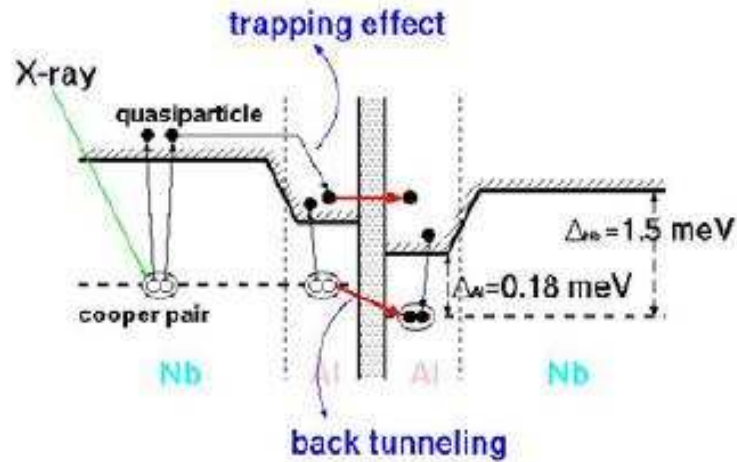


図 3.6: バックトンネリング  
Nb/Al-STJ の場合のバックトンネリング [14]。  
縦がエネルギー準位、横が位置を表している。

### 3.6 ニュートリノ崩壊探索への利用

STJ 検出器は高分解能、広いエネルギー帯域を持つ検出器であるが、現在作製されているニオブやアルミニウムを超伝導体材料に用いたものではニュートリノ崩壊探索に使用するにはエネルギー分解能が要求を満たしていない。

そのためエネルギー 30meV 程の光子に対して 3%程度の分解能をもつ STJ 検出器を実現するため、超伝導体材料にハフニウムを用いた STJ 検出器を作製する。最終的には信号増幅のためにハフニウム/タングステン/絶縁膜/タングステン/ハフニウムという構造の STJ 検出器作製が目標となる。ハフニウム/タングステン STJ を作製する前段階として、ハフニウム/絶縁膜/ハフニウムという構造の STJ の作製を行い、その完成後にタングステンによるトラップ層の追加を行う。

ハフニウム/絶縁膜/ハフニウム構造の STJ 検出器の作製について次章以降で説明する。

## 第4章 ハフニウム薄膜の作製

STJ 検出器は薄膜の成膜・絶縁膜の作製・薄膜の加工を行うことで製作される。超伝導体材料に応じてそれぞれに適した条件を探索する必要がある。ハフニウムを用いた STJ は世界でも作製されたという報告がなく、完成すれば世界初だが、そのため作成に関する条件を一から確立する必要がある。ハフニウムの各種条件は探索されていないため成膜・絶縁膜作製・加工の条件の探索を行う必要があり、理化学研究所 (和光市) の所有するクリーンルームでサンプルの作製・測定を行った。

この章では薄膜の作製について記述する。薄膜形成の方法は多岐にわたるが本研究ではスパッタリング法を用いて薄膜を形成する。スパッタリング法で STJ 作製にもっとも適したハフニウム薄膜を作製できるスパッタ条件の探索を行った。

### 4.1 スパッタリング法

スパッタリング法は気相成長法・物理的方法に属する薄膜形成方法である。高エネルギーの粒子をターゲットとよぶ薄膜の母材にたたきつけ、母材の構成原子がターゲットから叩き出されて基板に堆積させる (図 4.1)。

本研究で用いたスパッタ装置はマグネトロンスパッタ装置である。マグネトロンスパッタではターゲットである母材金属の陰極と薄膜を堆積させる基板をのせた陽極が対向して真空チェンバー内に入っている。アルゴンガスなどの不活性ガスをチェンバー内に入れ陰極と陽極の間に直流電流を流すとグロー放電が起こる。グロー放電に伴って不活性ガスがプラズマ化し、正に帯電したイオンが陰極のターゲットに衝突することでターゲット表面の構成原子を叩き出す。このはじき出されたターゲットの原子が基板上に堆積する。マグネトロンスパッタが他のスパッタ法と異なる点はターゲット裏面に磁石が設置されている点である。これによりターゲット表面に平行な磁界を発生させ、イオンがターゲットに衝突した際にターゲット表面から叩き出された 2 次電子をローレンツ力でとらえてサイクロトロン運動させることで不活性ガスのイオン化を促進できる。これにより低い圧力で大電流密度放電が可能となりスパッタリング速度を上げることができる。また、2 次電子がターゲット表面の磁界にとらわれるために基板の温度上昇が緩和される。これらのことから低温・高速スパッタとも呼ばれている。

### 4.2 ハフニウム薄膜作製条件の探索

薄膜を作製する場合には要求する特性を示すことはもちろん、再現性や生産性を考慮しなければならない。その場合、内部応力や膜厚の制御などの問題を検討する必要がある。これらはスパッタリングの際の各種パラメータによって変化する。スパッタリングを行う

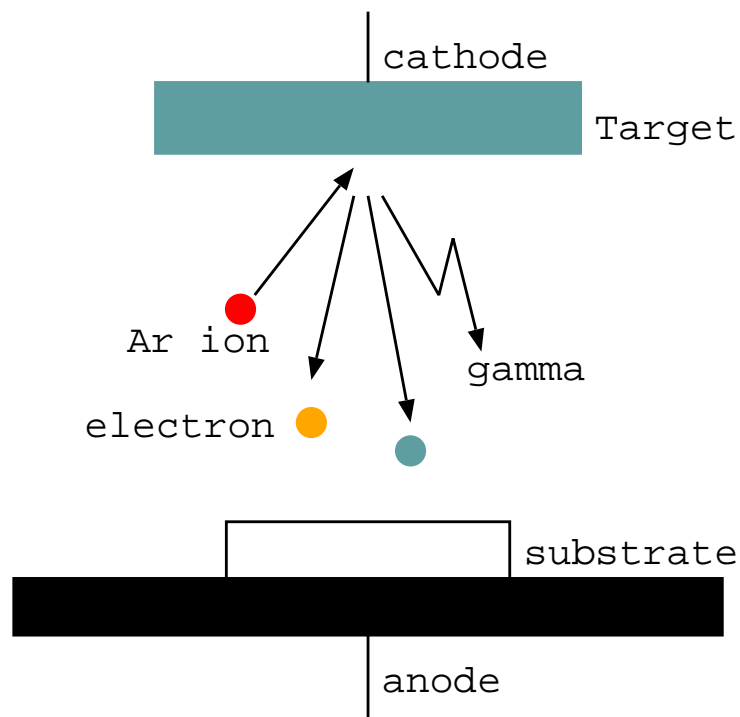


図 4.1: スパッタリングの原理



図 4.2: スパッタ装置



際に設定するパラメータを以下に示す。

- 不活性ガスの種類・圧力・流量
- 投入パワー (陽極・陰極間にかかる電力)
- T/S(基板とターゲット間の距離)
- 基板の温度

異なるパラメータでサンプルを作製し、薄膜の特性の測定を行った。

#### 4.2.1 内部応力

薄膜形成の過程で飛来する原子は基板表面上を移動しながら固定されるが多くの場合十分に安定な位置まで到達しないうちに固定される。こうした原子がひずみと内部応力を生じさせる。

また、基板と薄膜の熱膨張率の違いからも応力が発生する。スパッタリング中は原子の衝突によって基板の温度が上がるため、スパッタリング終了後に基板の温度が下がると基板と薄膜は収縮するがその程度が異なるために歪みが発生する。

内部応力は薄膜の成長様式に依存した密度変化や基板と薄膜の熱膨張率の違いといった原因から発生する。

内部応力が非常に大きい場合には膜が基板から剥離するといった不具合が起こる。

STJ 作製においては内部応力が大きい場合、エッチングの際に絶縁膜の破損などの不具合を引き起こす可能性がある。STJ 作製では薄膜を加工する際に、一部をのぞき薄膜をエッチングする。この時に基板全体はかかっていた応力から開放されて元の形に戻ろうとする。この変形により基板上に残った薄膜に負荷がかかり、絶縁膜の破損などの不具合を引き起こす。

そのため内部応力の小さい薄膜を作製できるスパッタ条件を調べる必要がある。

内部応力はスパッタリング前後の基板の変形にみることができる。薄膜は内部応力の大きさに応じて基板を変形させるので、スパッタリング前後の基板の変形を調べることで内部応力の大きさを知ることができる。

次のようにしてスパッタ前後での基板の歪みの変化を測定することができる。

1. 基板の歪みの初期値を測定する。
2. ハフニウムをスパッタする。
3. スパッタ後の基板の歪みを測定する。
4. スパッタ前後の基板の歪みの変化を計算する。

ただし、本研究では内部応力の測定と同時に、薄膜の形成速度の測定も行ったため少々方法が異なる。スパッタ前に基板の歪みの初期値を測定した後に、基板上の一部にカプトンテープを貼りつけておく。スパッタ後にカプトンテープを剥がすことで薄膜の堆積しない領域をつくる。カプトンテープの配置は図 4.4 に橙色で示している。

基板の歪みは図 4.4 に矢印で示したように、基板を段差計でスキャンすることで測定す

る。図 4.4 の数字はスキャンを行う順序を示している。1・2はスパッタ前に、3・4はスパッタ後に行うスキャンを示している。基板を横断したスキャンを行い、基板の両端を結んだ直線とピークとの距離を歪みとして扱った(図 4.3)。

スパッタの前後での歪みの差をとり、堆積した薄膜 100nm あたりの変化に規格化し、それをスパッタによる基板の歪みとする。

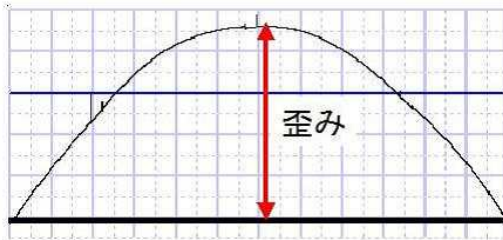


図 4.3: 基板の歪み

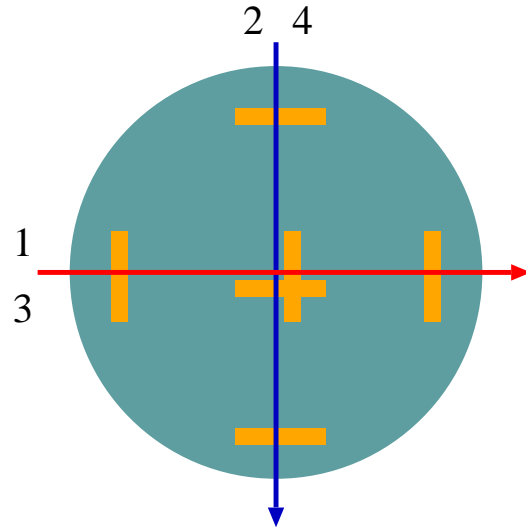


図 4.4: 基板歪みの測定

表 4.1、図 4.5 に作製したサンプルのパラメータと歪み測定の結果を示した。

なお、作製したサンプルはいずれも T/S が 130mm、不活性ガスは Ar ガスを流量 50sccm、スパッタ時間 5 分で作製している。

Ar ガスの圧力と投入パワーは各サンプル毎に変えて作製を行った。Ar ガスの圧力を 0.7 ~ 4.0Pa、投入パワーを 200 ~ 600W の範囲で変えたサンプルを作製し、基板の歪みの変化を測定することで内部応力を調べた

22 サンプルを測定した結果、HfO<sub>2</sub>(投入パワー 300W、Ar ガス圧力 1.5Pa で作製したサンプル) が歪みの変化が最も小さかった。これを最適な条件として以降の加工条件の探索・絶縁膜作製条件の探索の際の薄膜作製に用いた。

投入パワー [W]	Ar ガスの圧力 [Pa]	歪み [ $\mu\text{m}/100\text{nm}$ ]	平均の成膜速度 [nm/5 分]	サンプル名
200	0.7	-17.22	41.6	Hf013
	1.5	3.793	47.4	Hf014
	2.1	-5.755	41.3	Hf017
	3.0	-4.693	31.8	Hf015
	4.0	-7.190	22.6	Hf016
300	0.7	3.069	64.5	Hf001
	1.1	0.563	69.0	Hf018
	1.5	0.035	76.5	Hf002
	3.0	-2.451	63.3	Hf003
	4.0	-2.233	60.5	Hf004
350	0.7	-5.422	76.7	Hf019
	1.5	-0.965	86.2	Hf020
	2.1	-0.379	86.5	Hf022
400	0.7	-17.22	80.8	Hf009
	1.5	-6.044	82.3	Hf010
	2.1	-1.010	95.2	Hf021
	3.0	-1.483	77.5	Hf011
	4.0	-1.977	67.7	Hf012
600	0.7	-21.69	134.0	Hf005
	1.5	-11.89	143.5	Hf006
	3.0	-1.304	131.3	Hf007
	4.0	-1.027	116.8	Hf008

表 4.1: 各サンプルのパラメータと歪み

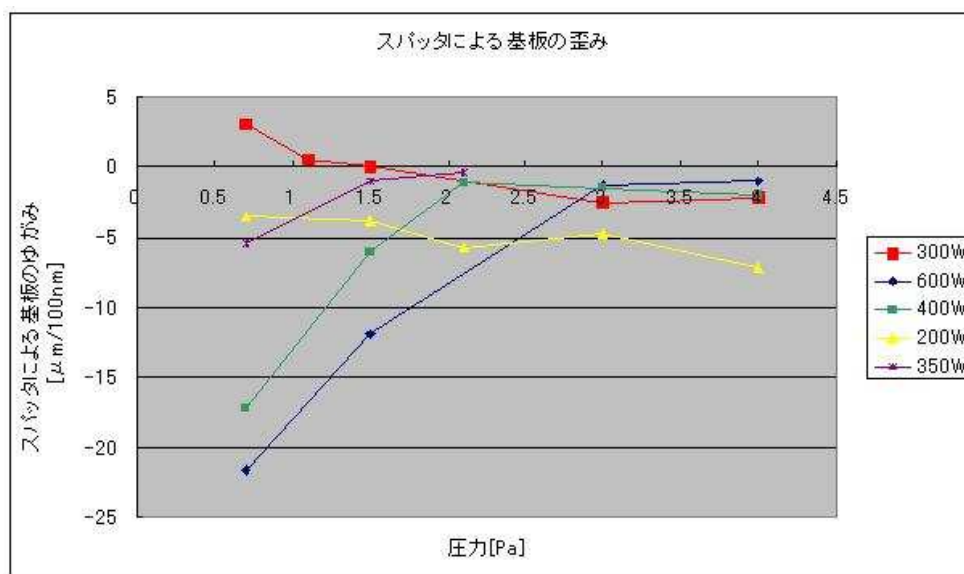


図 4.5: 基板の歪み

#### 4.2.2 膜厚の制御

過不足ない厚さの薄膜を作製するにはスパッタ時の膜厚の制御が必要不可欠である。そこで内部応力の測定と同時に膜厚・成膜速度の測定を行った。図 4.4 に示した通り基板にカプトンテープを貼ることでハフニウムが堆積しない部分をつくることで段差計で膜厚の測定が可能となる。カプトンテープを基板の中心付近と外周付近に貼ることで膜厚の分布を比較できるようにした。各スパッタリング条件で5分間スパッタリングをしたときの膜厚を図 4.6 に示した。

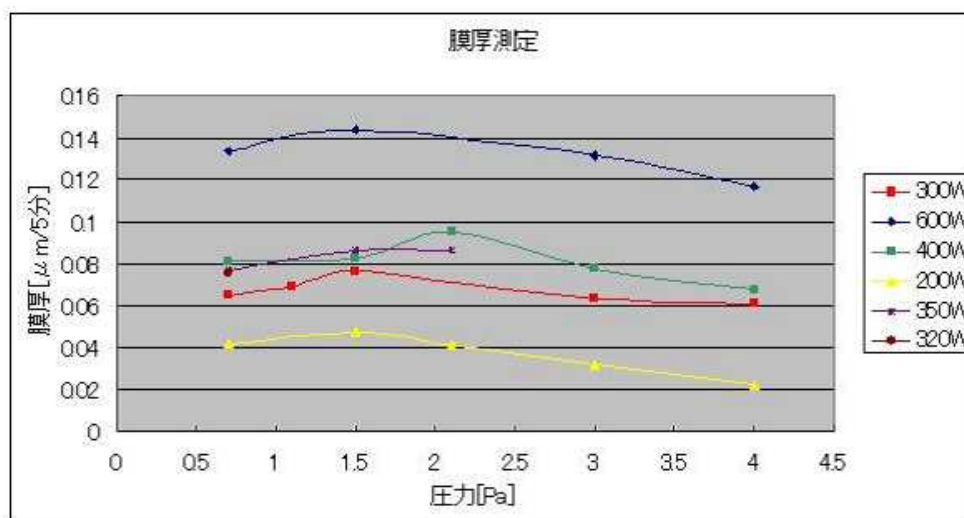


図 4.6: 5分間スパッタリングしたときの膜厚

一枚の基板上に複数の素子を同時に作製するため基板上の各場所での膜厚は均一でなければならぬ。同一基板上での膜厚の分布については、内部応力を調べた結果得られた最適スパッタ条件 Hf002(投入パワー=300W、Ar ガス圧力・流量=1.5Pa・50sccm、T/S=130mm) についてのみ記述する。表 4.2 に基板中心付近と外周付近での膜厚を示した。表 4.2 は Hf002 とそれと同じ条件で作製したサンプル (Hf025) の測定結果である。

基板全体を通して膜厚の分布は 5%以内に収まっており、素子作製上問題ないことがわかった。2つのサンプル間で同様の結果を示していることから再現性があることが示された。また、この測定結果から最適スパッタ条件での平均成膜速度が 15.64nm/分であることが分かった。

位置	サンプル名	膜厚 [nm] (5 分間スパッタ)
基板中央付近	Hf002	73
	Hf025	79、82
基板外周付近	Hf002	76、79、78、76
	Hf025	85、73、78、81

表 4.2: 最適スパッタ条件下での膜厚の分布

### 4.2.3 薄膜の冷却試験

作製したハフニウム薄膜をバルクの相転移温度以下に冷却し、超伝導状態に相転移を  
するか調べた。

サンプルを断熱消磁冷凍機 (Adiabatic Demagnetization Refrigerator, ADR) で冷却し、  
四端子法でサンプルの I-V 特性を測定した。

ADR は常磁性体を冷媒として、磁場を用いて温度とエントロピーのカルノーサイクル  
を作りだして冷却する磁気冷凍機である [15]。ADR の内部構造を図 4.7 に、外観を図 4.9  
に示した。detector stage に設置したサンプルを図 4.10 に示した。中央付近の赤丸内の  
3 チップがサンプルである。

四端子法は図 4.8 に示した通り、電流端子と電圧測定端子を別に設置する方法である。  
二端子法では電流電極と試料表面との間では界面現象のために接触抵抗と呼ばれる電圧降  
下が起こる。四端子法では、電流印加端子と電圧測定端子とを分離することにより、接触  
抵抗の影響を取り除き、高精度な測定が可能となる。

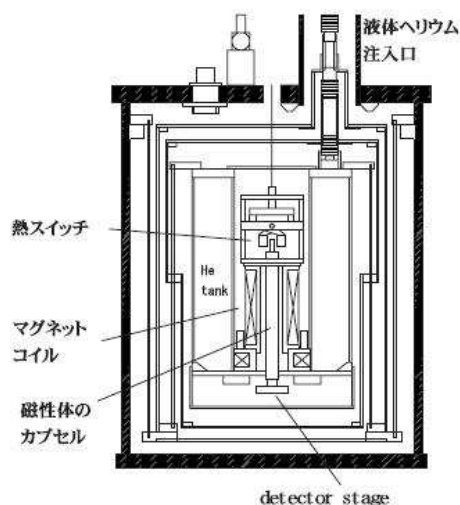


図 4.7: ADR の構造

篠崎慶亮氏修士論文より転載。

冷却試験に用いたサンプルを表 4.3 に示した。また、典型的な冷却中の I-V 特性の変化  
を図 4.11 に示した。

測定の結果、同じ条件で成膜した膜でも膜厚の違いで相転移の有無の違いがあらわれた。  
すべてのサンプルが同様のことを示しており、相転移をするには一定以上の膜厚が必要で  
あることが分かった。のちに 300W, 1.5Pa の条件で膜厚 200nm のサンプルを作製・冷却を  
行ったところ超伝導状態に相転移をしたので、確実に超伝導転移するためには少なくとも  
200nm 以上の膜厚をもつ必要があることがわかった。

内部応力の異なるサンプルを複数冷却を行ったが、それぞれの相転移温度が異なってい  
た。複数サンプル中で最もバルクの相転移温度 165mK に近い相転移温度を示したのは内  
部応力の一番小さいサンプルであった。また、内部応力の一番小さくなる作製条件で基板  
を 300 度に加熱しながら成膜したものはバルクとほぼ同じ相転移温度を示しており、これ  
が STJ を作製する上で最も適した薄膜形成条件であるといえる。

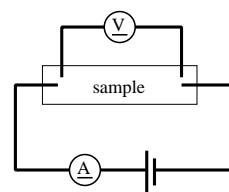


図 4.8: 四端子法



図 4.9: ADR の外観



図 4.10: サンプルの配置  
ADR の detector stage を撮影した。  
赤丸内にサンプルが3つ配置されている。

サンプル名	作製条件	膜厚	相転移温度 $T_c$
Hf002	300W, 1.5Pa, 室温成膜	77nm	相転移せず
Hf026	同上	300nm	153mK
Hf029	300W, 1.5Pa, 300 度加熱	300nm	166mK
Hf005	600W, 0.7Pa, 室温成膜	134nm	相転移せず
Hf027	同上	300nm	373mK
Hf008	600W, 4.0Pa, 室温成膜	117nm	相転移せず
Hf028	同上	300nm	相転移せず

表 4.3: 冷却試験に用いたサンプル

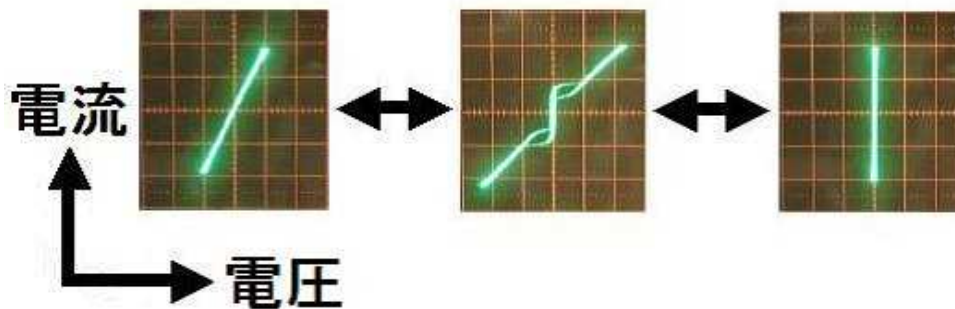


図 4.11: 冷却中の I-V 特性の変化

左から常伝導状態、相転移中、超伝導状態の I-V 特性。

横軸: 電圧 [200 $\mu$ V/div]

縦軸: 電流 [左: 2 $\mu$ V/div , 中央・右: 20 $\mu$ V/div]

## 第5章 ハフニウム薄膜の加工

薄膜の加工方法には様々な方法が存在する。前章で決定した条件で成膜したハフニウム薄膜に適した加工方法の探索を行った。

本研究で調べた加工方法は以下の通りである。

- ドライエッチング (化学反応)
- ウェットエッチング
- リフトオフ
- メタルマスク
- ドライエッチング (ICP エッチング)

最初に、すべての加工方法に共通して使われるフォトリソグラフィ技術について説明する。

### 5.1 フォトリソグラフィ

フォトリソグラフィとは、感光性物質を薄膜上に薄く塗布し、それを形成したいパターンを用いて露光することで、薄膜上に微細なパターンを形成する技術である。

基板上にフォトレジストと呼ばれる感光性有機物質を塗布し、露光装置を用いてレチクルと呼ばれるフォトマスクに描かれた素子のパターン状に光を当てる。その後、現像液に浸すことで光のあたった部分のみ溶け出し、フォトマスクに描かれた形状のフォトレジストを作製できる。フォトレジストにはポジ型とネガ型があり、ポジ型は現像液では溶けないが光があたった部分が溶けるように変質する。また、ネガ型は光のあたった部分のみ現像液で溶けないように変質する。

このフォトリソグラフィではフォトマスクとレジストを密着させることで等倍のパターンを作製する方法と実寸より大きいフォトマスクで縮小投影露光する方法がある。縮小投影露光ではステージの移動・露光をくり返すことで基板上に同一パターンを複数露光することが出来る。

工程を次に示す。

1. コート：基板上に液状のフォトレジストを滴らし、回転させて均一の厚さに広げる。
2. プリバーク：基板を加熱し、フォトレジストを固化する。
3. 露光：フォトマスクを使い、フォトレジストの特定部にのみ光を当て、反応させる。
4. 現像：露光した基板を現像液に浸し、余計な部分のフォトレジストを溶かす。

パターンニング後のフォトレジストはアセトンに浸すことで溶けるので不要になった時に容易に除去ができる。



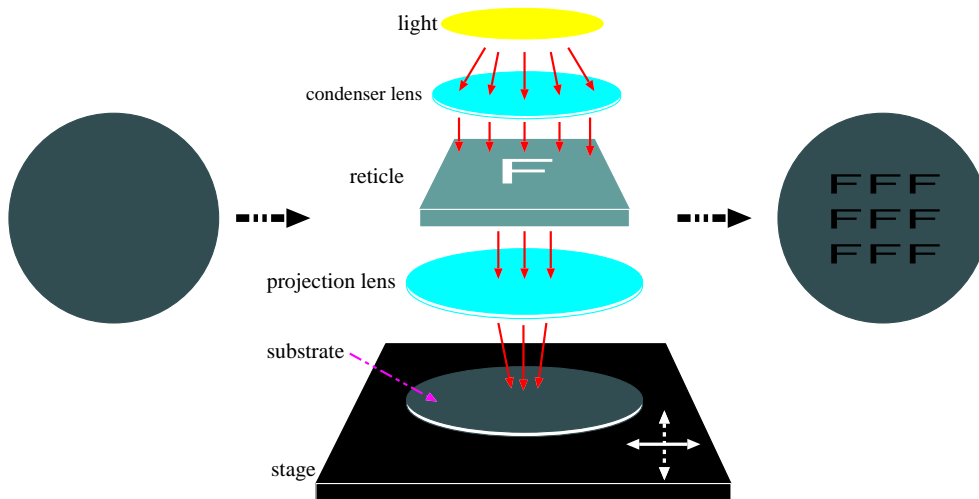


図 5.1: 露光のしくみ

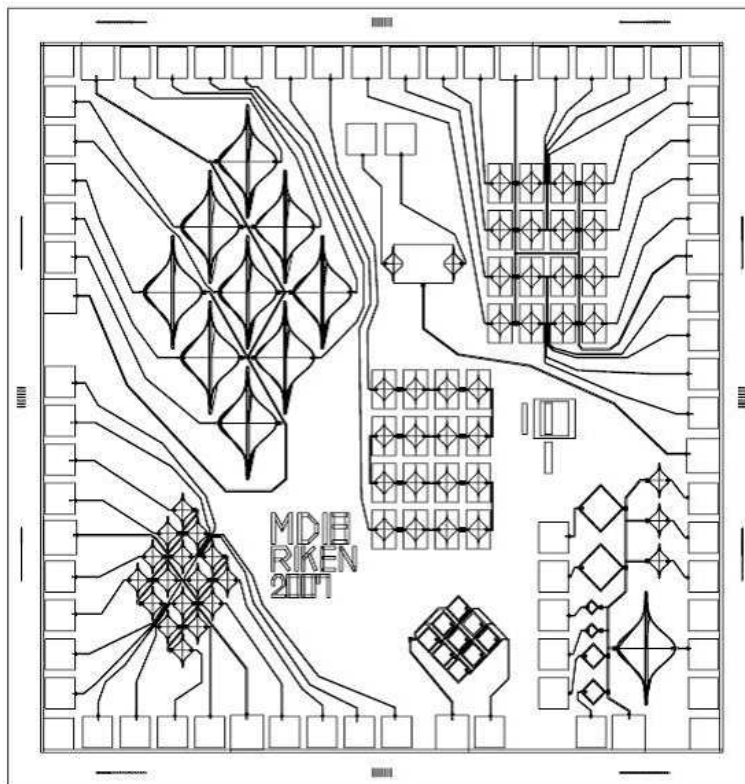


図 5.2: ハフニウム STJ のデザイン

## 5.2 ドライエッチング (反応性イオンエッチング)

ドライエッチングは反応性の気体イオン、ラジカルによって材料をエッチングする方法である。主に化学反応によるエッチングを指す。エッチングガスを流し、ガスに電磁波などを与えプラズマ化する。同時に基板を置く陰極に高周波電圧を印加することで基板とプラズマ間に自己バイアス電位が生じ、プラズマ中のイオンやラジカルが試料めがけて加速され衝突する。電極に垂直にガスが入射するのでエッチングが垂直に進んで行く。また、化学反応での生成物が膜の側壁にへばりつき側方へのエッチングを抑える働きもある。そのため、微細加工に向いている。このように垂直に削れていくエッチングを異方性エッチングと呼ぶ。

薄膜の上にレジストを素子の形状にパターニングした状態でエッチングすることでレジストのない部分のみを削ることができる (図 5.3)。

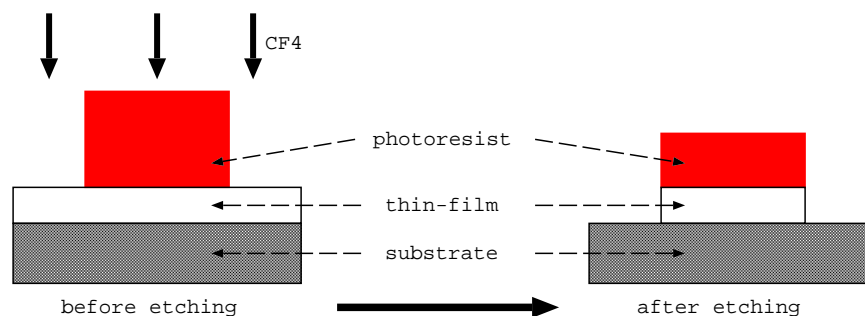


図 5.3: ドライエッチングの概要

微細加工が可能な加工方法でニオブやアルミニウムを用いた STJ の作製には主にこの方法が用いられている。その際には  $\text{CF}_4$  ガスをエッチングガスとして使用している。

ハフニウム薄膜に対してドライエッチングを行ったが、削れていないか、あるいは非常に削れる速度が遅いかのいずれかで、STJ の作製には用いることができなかった。

## 5.3 ウェットエッチング

ウェットエッチングは目的の金属等を腐食溶解する性質をもつ液体を用いたエッチングである。塩酸や硝酸、王水のような酸あるいは水酸化ナトリウムといったアルカリ性の液体に浸すことで薄膜を溶かし落とす。しかし、液体による化学反応は等方的なのでフォトレジストをパターニングした薄膜であっても横方向からのエッチングが進んでしまう (図 5.4)。場合によってはフォトレジストの下にも腐食が進んでいく。そのため、精度の高い微細加工は難しく STJ の作製には適していない。

ハフニウム薄膜に対して塩酸、硝酸、王液、水酸化ナトリウム溶液をそれぞれ用いてウェットエッチングを行ったが、加工を行うことはできなかった。

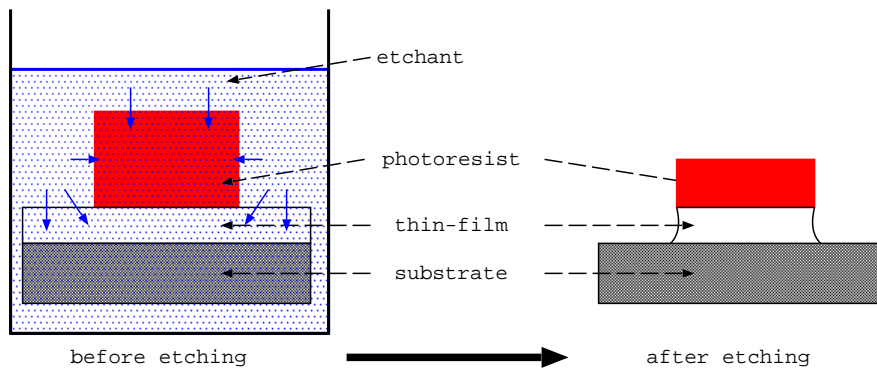


図 5.4: ウェットエッチングの概要

## 5.4 リフトオフ

リフトオフは薄膜を剥がし落とすことで加工を行う方法である。リフトオフではあらかじめレジストを素子とは逆の形にパターニングしておき、その上に薄膜を形成する。その後、レジストを溶かし、超音波洗浄による衝撃を与えることでレジスト上に堆積していた薄膜を剥がし落とす手法である (図 5.5)。

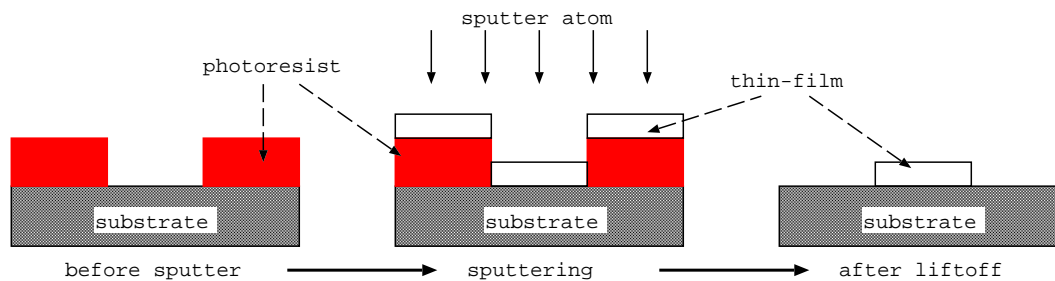


図 5.5: リフトオフの概要

この方法ではエッチングのし難い頑大な薄膜であっても加工ができるという利点があるが、衝撃で薄膜を剥がしているため精度の高い加工は行えない。また、スパッタの際にレジストを予め塗布しておくため、基板加熱を行うとレジストが焦げてしまう。そのため、加熱を行いながらの薄膜形成ができない。

ハフニウムに対してリフトオフで加工を行ったところ、薄膜のパターニングには成功した。そこで、加工した薄膜上にニオブ配線を作製し冷却試験を行った。4端子法で I-V 特性を測定したところ、薄膜は超伝導転移を示さなかった。これは、薄膜形成時にフォトレジストが薄膜中に混入したことが原因と考えられる。リフトオフでは膜の特性は要求を満たしていなかったが形状の加工には成功した。そこで、フォトレジストを使用しないリフトオフであるメタルマスクでの加工を行った。

## 5.5 メタルマスク

メタルマスクはフォトレジストの代わりに金属を用いるリフトオフである。あらかじめアルミニウム薄膜をスパッタし、素子とは逆の形にエッチングしておく。この金属で作った素子と逆の形をした型はメタルマスクと呼ばれている。その上からハフニウム薄膜を堆積させ、その後に酸やアルカリ性の液に漬けてアルミニウムを溶かす。そして、超音波洗浄を行うことでアルミニウム上に堆積していた不要な薄膜を剥がし落とす(図 5.6)。

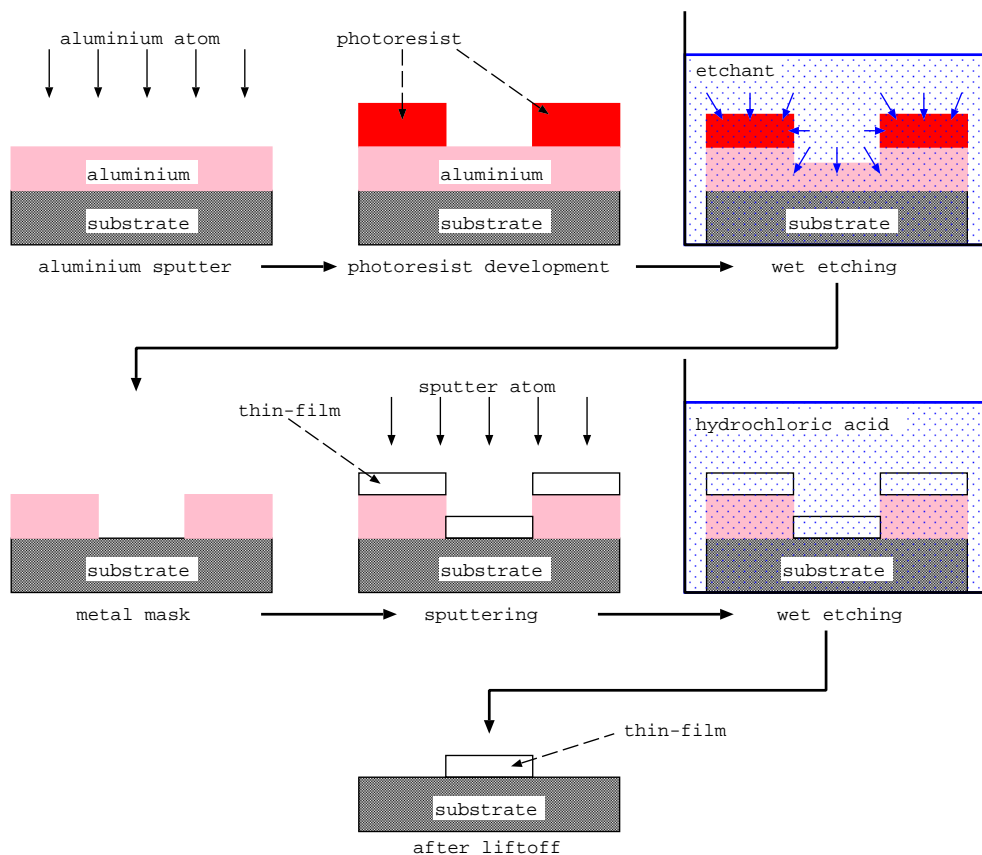


図 5.6: メタルマスクの概要

この方法では加工する薄膜はアルミニウムを溶かし落とす際に用いる酸あるいはアルカリで溶けてしまわないことが必要条件である。ハフニウムはウェットエッチングを試した際に酸、アルカリのいずれでも溶かすことができなかったため、この条件を満たしている。メタルマスクの作製はウェットエッチングで行った。

ハフニウム薄膜をメタルマスクで加工したところ、形状の加工に成功した。薄膜にワイヤーボンディングで読み出し線を接続し、冷却を行ったところ超伝導転移が確認できた。ただし、この加工法ではアルミニウムを溶かす際にハフニウム表面が酸化されてしまい、酸化部分が抵抗になってしまう。薄膜にワイヤーボンディングをする場合には酸化部分を突き破りハフニウムまで到達できるが、ニオブをスパッタ・エッチングして配線を作る場合にはニオブとハフニウムの間に酸化部分が入り抵抗になってしまう。この問題の解決手

段は次章に記述する。

## 5.6 ドライエッチング (ICP エッチング)

5.2 で述べた反応性エッチングに比べて高密度のプラズマを発生させ、かつ独立したバイアスによってイオンを基板に導くことが可能な ICP エッチング装置を用いてハフニウムのエッチングを試みた。この場合、反応性エッチングに加えてエネルギーの高いイオンによる物理エッチング過程も同時に予想され、基板の温度が上がりやすい。そのため、エッチングを 1 分間行う毎に 1 分間の冷却期間を設けた。

この方法によってハフニウム薄膜をエッチングしたところ加工に成功した。ニオブやアルミニウムと同様にハフニウムをドライエッチングで加工することが可能となったため、現行の STJ と同様の作製過程をもって検出器作製が行えることとなった。

エッチング速度の測定を以下の手順で行った。薄膜作製後に基板の一部にカプトンテープを張り付ける。テープを貼り付けた状態でエッチングを行い、その後テープを剥がし段差計で表面をスキャンする。テープを貼り付けた部分はエッチングされないのむき出しの部分との段差で削れた膜厚が分かる。CF<sub>4</sub> ガスを圧力 1Pa でエッチングガスに用いて、プラズマ生成用電源を 100W、バイアス印加用電源を 40W としてエッチングを行った。同一基板上に 7 箇所カプトンテープを貼り (図 5.7)、3 分エッチングをした後に 2 枚剥がし段差を測定、その後に 3 分エッチングし 2 枚、さらに 3 分エッチングを行った後に 3 枚剥がし段差の測定を行った。

図 5.8、表 5.1 に結果を示した。測定結果はエッチングされる膜厚が時間に比例することを示しており、削れる速度 (エッチングレート) は 30.3nm/分である。このハフニウムのエッチングレートに対して同条件でのフォトレジストのエッチングレートは 317nm/分である。本研究で作製する STJ では、ハフニウムの厚さは 600nm 程であるのに対して、フォトレジストは 1 回でおよそ 2000nm 程塗布される。3 回レジストを塗布することでハフニウムを削りきることができるため STJ 作製に用いるうえで充分実用的なエッチングレートである。

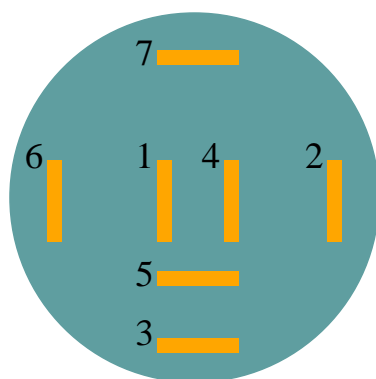


図 5.7: エッチングレート測定時のカプトンテープの位置

エッチング時間	測定箇所	削れた厚さ
3分	1	100nm
	2	98nm
6分	3	180nm
	4	190nm
9分	5	278nm
	6	228nm
	7	258nm

表 5.1: ハフニウムのエッチング

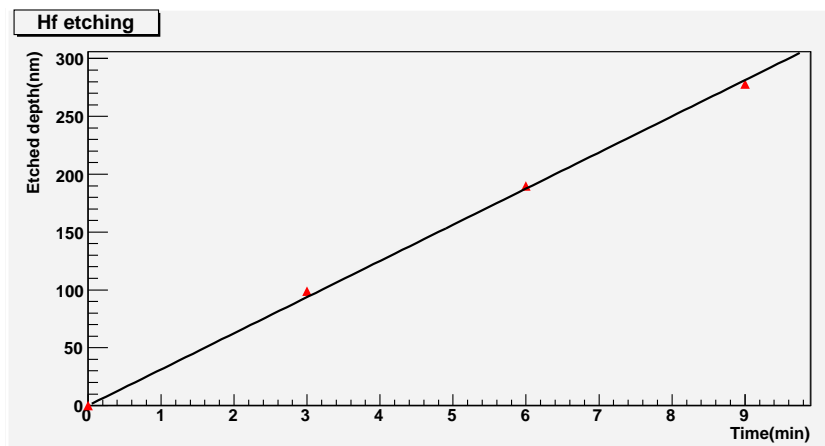


図 5.8: ハフニウムのエッチングレート測定

## 5.7 ハフニウム薄膜加工方法のまとめ

ハフニウム薄膜の加工方法として反応性イオンエッチング、ウェットエッチング、リフトオフ、メタルマスク、ICP エッチングを試したところ、メタルマスクと ICP エッチングでは超伝導転移が可能な薄膜を特性を損なわずに加工することが可能であることが分かった。加工後のハフニウム薄膜の写真を図 5.9 に示した。

メタルマスク、ICP エッチングともに加工を行うと相転移温度が加工前よりも低くなる傾向があるようである。そのため、相転移温度がバルクのハフニウムに近くなるように 300 度に加熱をしながらのスパッタリングを行うこととした。

リフトオフ加工では剥がし落とすために微細な加工にはあまり向いていない。そのため、微細加工が必要なハフニウムを用いた STJ の製作に用いる手段としては ICP エッチングが最も適していると考えられる。

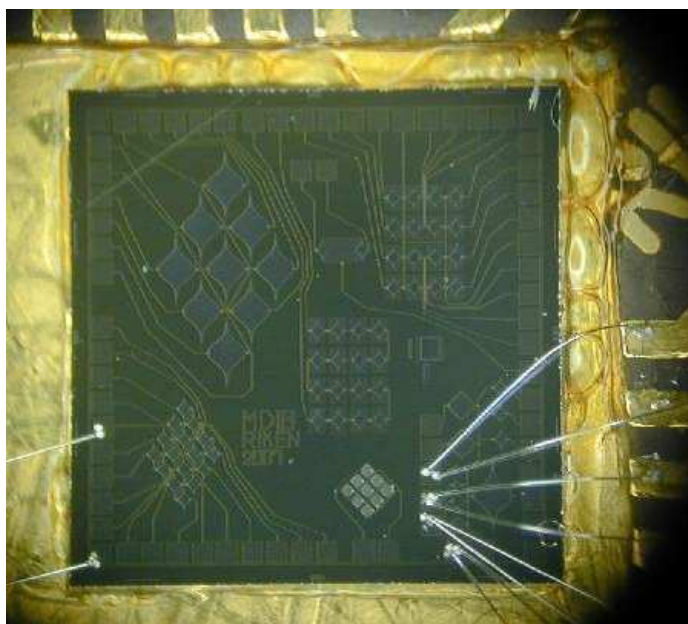


図 5.9: メタルマスクで加工加工したサンプル

メタルマスクで加工を行なった大きさ 5mm × 5mm のサンプル。  
全体に SiO<sub>2</sub> が塗布されており、読み出し用のニオブ配線が配置してある。  
銀色の線はアルミニウム製の読み出し線である。

## 第6章 トンネルバリアの作製

### 6.1 トンネルバリア

ハフニウム薄膜の成膜・加工条件が測定によって決定された。STJを作る上で必要な情報の残り一つ、絶縁膜の作製条件の探索を行う。

この絶縁膜の存在によってジョセフソン素子としての特性が現れるため、これの形成は非常に重要である。作製条件が適切でない場合、絶縁膜に微小な穴(ピンホール)が発生するなどして、もれ電流の発生などの不具合が起こる。絶縁膜は超伝導体の表面を厚さ1~2nm程度酸化させることで形成する。

今回用いた手法は、超伝導膜として用いるハフニウムの表面を酸化する方法とハフニウムを成膜後にアルミニウムを薄く成膜し、それを酸化する方法の2種類である。酸化は基板を圧力を制御した酸素中に置いておくことで行う。

適切な絶縁膜ができているかはSTJとしての構造をつくり冷却しI-V特性を調べてみなければ分からないため、酸化条件を変えながらSTJの作製・冷却試験を行った。

ハフニウムの加工にはメタルマスクとICPエッチングの2種類の加工方法が使えるのでそれぞれの方法を用いてSTJの試作を行った。トンネルバリア作製条件探索の前にそれぞれの方法について説明する。

### 6.2 メタルマスクでのSTJ作製

メタルマスクを用いた場合のSTJ作製工程を表6.1、図6.2に示す。この工程は作業を簡略化させるためにUL、SiO<sub>2</sub>、読み出し用配線の作製を省略し、読み出しはワイヤーボンディングしたアルミニウムワイヤーで行った。

作製箇所	工程	詳細
下部ベタ領域	ハフニウムをスパッタ。	ULに相当するベタ膜を作製。
JD	AlでJD反転型メタルマスクを形成。 ハフニウムをスパッタ。 ハフニウム表面を酸化。 ハフニウムをスパッタ。 Alを溶かしリフトオフを行う。	下部JD部分を作製。 トンネルバリアを作製。 上部JD部分を作製。 不要なHfを除去。
読み出し線	下部ベタ領域とJDにそれぞれワイヤーボンディングを行う。	表面の酸化膜をボンディングで破り導通をとる。

表 6.1: メタルマスクでのSTJ作製過程



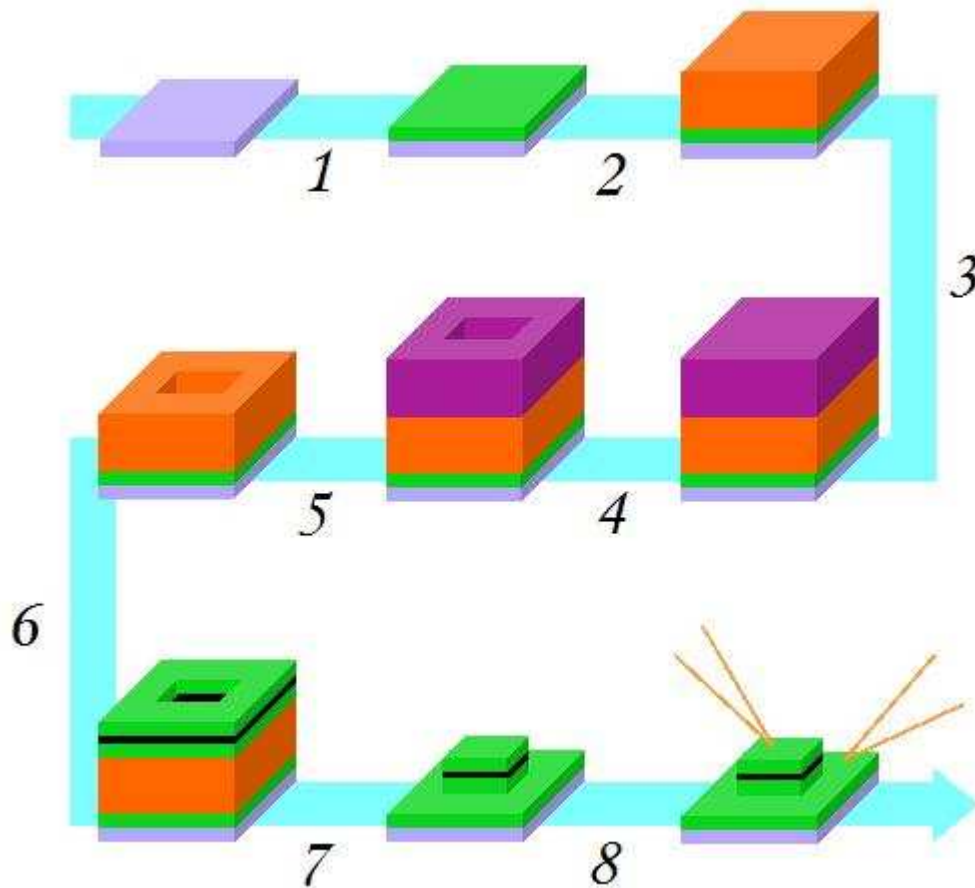


図 6.1: メタルマスクでの STJ 製作過程

灰:基板            緑:ハフニウム  
 橙:アルミニウム   紫:レジスト

図の数字と作業工程の対応を以下に示す。

1. Hf をスパッタ。
2. Al をスパッタ。
3. レジストを塗布。
4. レジストを JD 反転パターンで露光・現像。
5. Al をウェットエッチング・レジスト除去。
6. Hf スパッタ、Hf 酸化、Hf スパッタ。
7. Al 乗っている Hf ごと溶かし落とす。
8. 酸化膜の上下にワイヤーボンディングで配線を付ける。

メタルマスクを用いて STJ を作製する上で主に 2 つの問題点が見つかった。

1. メタルマスク作製時およびリフトオフ時にハフニウム薄膜表面が酸化する。
2. 超伝導膜/絶縁膜/超伝導膜を作製した後のリフトオフの際に上下の超伝導膜が接触・短絡する可能性がある。

### 6.2.1 ハフニウム表面の酸化

メタルマスクを用いて STJ を作ったところ、極低温下に冷却したにもかかわらず、サンプルに大きな抵抗が存在していた。下部ベタ領域と JD との接触面で酸化ハフニウムによる抵抗が発生している可能性がある。これは、メタルマスク作製時 (図 6.2-5) に下部ベタ領域のハフニウム表面が酸化されることが原因の様である。メタルマスクを作製するためにエッチング液に基板をつけると、フォトレジストの乗っていない部分のアルミニウムが溶けだし、溶けきると同時にハフニウムがエッチング液に触れて酸化され始める。

この酸化はアルミニウムをスパッタする前に、アルミニウムを溶かす部分の真下に当たる部分にレジストをパターンニングしておくことで回避できる。アルミニウムが溶けきったあとでもレジストがあることで、ハフニウムがエッチング液に接触しないようにするのである。また、表面の酸化はリフトオフをする際にも発生する。こちらはエッチング液を使った場合、酸化を防ぐことはできない。レジストをパターンニングをしてもリフトオフの際に行う超音波洗浄でレジストが剥がれ落ちてしまうのである。

リフトオフ時の酸化を解決する手段として、あらかじめハフニウム表面に処置を施しておく手法とアルカリ性溶液でリフトオフを行う手法を試した。

ハフニウム表面に行う処理は、あらかじめ表面を窒化しておく方法と表面に金を薄くスパッタしておく方法の 2 種類である。窒化させる方法ではリフトオフをする前にハフニウム表面に窒化ハフニウムを作り、酸化ハフニウムができることを防ぐ手法である。窒化ハフニウムはハフニウムに比べて相転移温度が上昇するものの、超伝導状態に相転移する物質なので表面が窒化しても STJ として機能するはずである。

金をスパッタする方法は金を薄膜表面に成膜しておくことで酸から薄膜を保護する手法である。金は酸化による腐食に強い耐性をもっているため、酸化防止に向いている。ただし相転移をしない金属なので、極低温下でも金そのものが抵抗になってしまう。近接効果でハフニウム薄膜の相転移温度が引き下げられるといった問題が生じるため STJ 作製には向いているとは言えない。

これらの表面に行う処置を施したサンプルを作製・冷却したが、酸化による抵抗が存在しており、表面に処理をすることで酸化を防ぐ方法は有効ではないことが分かった。

次に、酸化の原因であるエッチング液を使わず、アルカリ性溶液でリフトオフを行う手法を試した。アルカリ性溶液には水酸化ナトリウム溶液とフォトレジストを現像する際に用いる現像液の 2 種類を使った。

水酸化ナトリウム溶液ではリフトオフに成功したが、冷却試験を行ったサンプルの相転移温度が極端に低くなっていた (91mK)。現像液ではリフトオフに成功し、かつ冷却試験を行ったサンプルは抵抗 0 の超伝導転移を示した (相転移温度は 105mK 以上)。現像液をリフトオフ及びメタルマスクの作製に用いることで酸化を防ぐことができるようになった。

そのため、それまでワイヤーボンディングで行っていた信号読み出しをニオブの配線で行えるようになった。

表 6.2 に酸化防止の手法とその結果についてまとめた。

手法	結果
レジストによる保護	メタルマスク作製には有効。 リフトオフには使えない。
Hf 表面を窒化しておく	超伝導状態にならないため不可。
Hf 表面に Au をスパッタ	超伝導状態にならないため不可。
NaOH でリフトオフ	酸化防止には成功したものの 相転移温度が極端に低い。
現像液でリフトオフ	酸化防止に成功。 相転移温度に問題無し。

表 6.2: ハフニウム表面酸化防止の手法

### 6.2.2 上下の超伝導膜の短絡

メタルマスクで加工する場合、ハフニウム薄膜はリフトオフの際に衝撃で剥がしとられるために、微細な加工に向いているとは言い難い。特に超伝導膜/絶縁膜/超伝導膜の構造を作った直後のリフトオフでは、剥がし落とす際に薄膜がめくれる等して、上下の超伝導膜同士が短絡してしまうといった不具合が起こり得る。

計算上必要な膜厚ができる酸化条件(酸素 0.1Torr、6 分間)で STJ を作製したが冷却試験を行ったところ抵抗 0 の単なるハフニウム薄膜としての特性しか示していなかった。その原因として、上下超伝導膜の短絡が疑われた。そこで、確実に抵抗となりうる非常に厚い絶縁膜を作りその I-V をみることで上下の短絡の有無を判断することとした。十分な厚さの絶縁膜の作製条件として 30Torr、1 時間の酸化を行った。

しかし、この条件で作製したサンプルも抵抗が 0 で単なる超伝導状態のハフニウム薄膜としての特性を示していた。そのため、上下の短絡が起こっていると考えられる。

ただし、ハフニウム薄膜が酸素中に置いただけでは十分に酸化しない可能性があるため必ず短絡が起こっているとは断定できない。しかし、メタルマスクでの製作が短絡の危険を孕んでいるのは確かなので、ICP エッチングでの製作を主に行っていくこととなった。

## 6.3 ICP エッチングでの STJ 作製

STJ の作製には通常、化学反応でのドライエッチングを用いるのが主流である。ハフニウムでは化学反応でのエッチングは行えなかったが、それとほぼ同じような特徴を持つ ICP エッチングが可能であることが分かったので、今後は ICP エッチングで STJ の製作を進めていく。

メタルマスクで発生していた表面酸化や上下の超伝導膜の短絡といった問題は ICP エッ

チングでは起こらないので、STJを作るのに有効な方法である。

この方法でSTJを作る過程を表 6.3、図 6.3 に示す。ULとJDを分割してスパッタ・エッチングするメタルマスクと違い、この方法ではULとJD部分を同時に成膜するため膜の一体化において優れている。

作製箇所	工程	詳細
JD	ハフニウムをスパッタ。 ハフニウム表面を酸化。 ハフニウムをスパッタ。 レジストでJDのパターニングを行う。 絶縁膜から数十nm下の位置までエッチングを行う。	ULと下部JD部分のハフニウムを成膜。 トンネルバリアの形成。 上部JD部分のハフニウムを成膜。 JDの作製。
UL	レジストでULのパターニングを行う。 残りのハフニウムをエッチングする。	ULの作製。
CH	SiO <sub>2</sub> をスパッタ。  レジストでCHのパターニングを行う。 JDに到達するまでエッチングを行う。	上下JDの短絡を防ぐため SiO <sub>2</sub> を全体に成膜。 CHの作製。
Wire	Nbをスパッタ。 レジストでWireのパターニングを行う。 SiO <sub>2</sub> に到達するまでエッチングを行う。	Wireの製作。

表 6.3: メタルマスクでのSTJ作製過程

## 6.4 絶縁膜作製条件の探索

メタルマスクでSTJを試作した結果から、メタルマスクはHf-STJ作製には不向きであると考えられる。逆にICPエッチングでは不都合な点は無いように思われるので、絶縁膜の作製条件の探索にはICPエッチングを用いることとした。

絶縁膜はサンプルを酸素中に置いておき、表面を酸化をさせることで作製する。絶縁膜に使う材料としてハフニウムとアルミニウムを使用した。

ハフニウムを酸化し絶縁膜として用いる場合には、スパッタ後にそのまま酸化を行うため工程が簡単で済む、またJD内にハフニウム以外の不純物の混入が起きにくい点で優れている。ただし、ハフニウムの酸化条件が分かっていないため、それを調べる必要がある。

アルミニウムを酸化して絶縁膜に用いる場合には、下部JDのハフニウムをスパッタした直後にアルミニウムをスパッタ・酸化を行う。こちらは既にニオブ/アルミニウム型のSTJの絶縁膜として使用されており、酸化条件が把握されているために絶縁膜を作る上では信頼性が高い。

酸化ハフニウムの作製条件探索と酸化アルミニウムでのSTJ試作を行った。

STJの構造ができているか判断するためにI-Vの形状と磁場をかけた場合のI-Vの変化

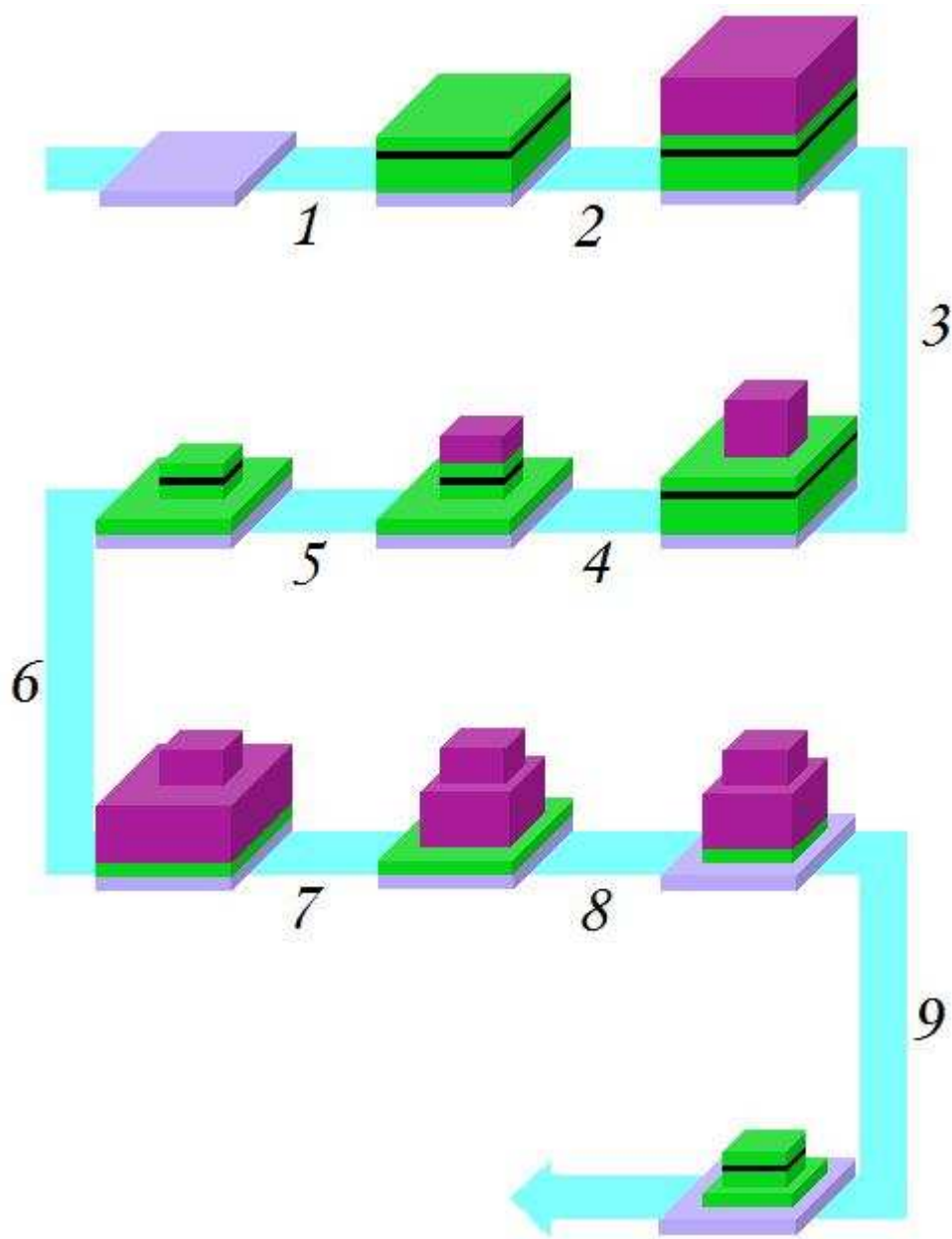


図 6.2: ICP エッチングでの STJ 製作過程

灰:基板 緑:ハフニウム

紫:レジスト

図の数字と作業工程の対応を以下に示す。

1. Hf スパッタ。Hf 酸化。Hf スパッタ。
2. レジスト塗布。
3. レジストを JD パターンに露光・現像。
4. エッチング。
5. レジスト除去。

6. レジスト塗布。
7. レジストを UL パターンに露光・現像。
8. エッチング。
9. レジスト除去。

この後、SiO<sub>2</sub> スパッタ・Nb-Wire の作製を行う。

を調べた。STJとしての構造ができていた場合には図 3.4 の様な形状の I-V 特性が得られるはずである。また、ジョセフソン電流は磁場をかけることで抑制されるためサンプルに磁場をかけて I-V の形状に変化があれば STJ ができているはずである。

#### 6.4.1 酸化ハフニウムの作製条件探索

JD 下部のハフニウム表面を酸化させることで絶縁膜を作製することを目標としてサンプルの試作を行った。ここでは、ICP エッチング以外の方法で試作したサンプルについても扱う。表 6.4 にこれまでに試した酸化ハフニウム膜作製条件とその測定結果についてまとめた。メタルマスクで作製したサンプルは必要以上の時間で酸化を行ったにも関わらず抵抗が 0 の単なるハフニウム薄膜としての特性を示した。絶縁膜の上下にあるハフニウム薄膜同士が短絡していることが原因だと考えられる。

ICP エッチングで作製したサンプルは 30Torr,1 時間の酸化では抵抗としての特性しか示さなかった。5Torr,12 分の酸化では抵抗成分はあるが温度を上昇させたところ 100 数十 mK で I-V に変化が見られたため、ハフニウム薄膜は超伝導状態になっている様である。

酸化ハフニウム 作製条件	STJ 作製方法	測定時の温度	磁場への反応	結果
0.1Torr,2 分	メタルマスク	104mK	変化なし	超伝導状態、抵抗 0
30Torr,1 時間	メタルマスク	105mK	変化なし	超伝導状態、抵抗 0
5Torr,12 分	ICP エッチング	92mK	変化なし	抵抗成分はあるが ハフニウムは相転移 している模様。
30Torr,1 時間	ICP エッチング	88mK	変化なし	大きな抵抗。

表 6.4: ハフニウム絶縁膜作製条件の探索

#### 6.4.2 酸化アルミニウムをもちいた STJ の試作

ハフニウムを酸化して絶縁膜に用いる方法とは別に、アルミニウムを酸化して絶縁膜に用いる方法で STJ の試作を行った。アルミニウムは 30Torr,1 時間の条件で酸化を行った。この酸化条件はニオブ/アルミニウム STJ の作製において使われている条件を使用した。

この条件で作製したサンプルを冷却したところ、超伝導転移はしているが STJ の構造にはなっていなかった(図 6.3)。冷却をしても抵抗値が残ったままだったが、温度上昇によって I-V の形状が変化したため、ハフニウム膜が超伝導状態になっていることは確認できた。磁場をかけたが I-V の形状に変化がなかったため、STJ の構造になっていないことが分かった。

このサンプルの抵抗値とニオブ/アルミニウム STJ の抵抗値を比較する。ニオブ/アルミニウム STJ では STJ の構造ができていたので、絶縁膜部分のみの抵抗値を知ることができる。30Torr,1 時間の酸化を行った場合、アルミニウムの絶縁膜の単位面積あたりの抵抗値は  $13.7\mu\Omega\cdot\text{cm}^2$  である。それに対して今回作製したサンプルの単位面積あたりの抵抗

部位	素材, 厚さ
UL	ハフニウム 150nm
下部 JD	ハフニウム 150nm + アルミニウム 5nm
絶縁膜	酸化アルミニウム 5nm
上部 JD	アルミニウム 10nm + ハフニウム 300nm
絶縁用 SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub> 500nm
読み出し線	ニオブ 900nm

表 6.5: ハフニウム/アルミニウム-STJ の構造

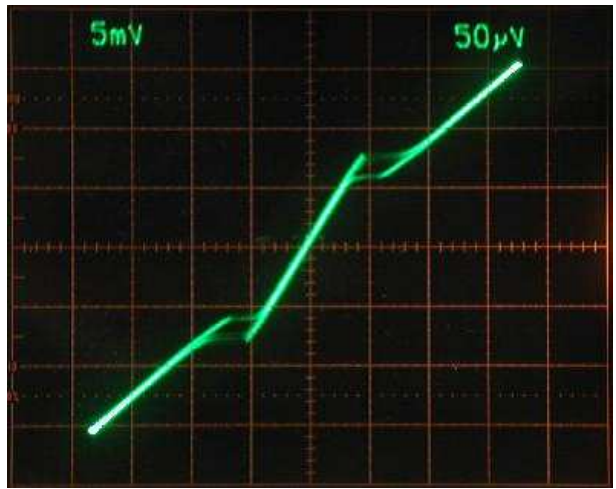


図 6.3: ハフニウム/アルミニウムサンプルの I-V 特性

縦軸:  $5\mu\text{A}/\text{div}$

横軸:  $50\mu\text{V}/\text{div}$

値は  $625\mu\Omega\cdot\text{cm}^2$  と非常に大きい。この原因として考えられる事は、絶縁膜が上手くできていないこととアルミニウム上にスパッタリングしたハフニウムが相転移していないことである。

このサンプルではハフニウム薄膜をスパッタリングする際に 300 度に加熱を行っているが、上部 JD のハフニウムをスパッタリングする際に加熱が作製した絶縁膜に悪影響を与えている可能性がある。

また、ハフニウム薄膜はスパッタリングする下部の物質によって影響を受けることが分かっている。現在、ハフニウムのスパッタリングに用いている条件でシリコン基板上では 160mK 程度で超伝導転移をする薄膜が形成されるが、同じ条件でサファイア基板上にスパッタリングすると超伝導転移を示さなくなる。そのため、アルミニウム上で超伝導転移を示さなくなっている可能性がある。

## 6.5 絶縁膜作製条件探索のまとめ

絶縁膜の作製方法として、ハフニウムを酸化する方法とアルミニウムをスパッタ・酸化する方法の 2 通りの方法を試した。いずれの方法でも現在は STJ としての特性を示すことはなかった。

絶縁膜を形成する上で今後確認・改善していくべき点として以下のものがあげられる。

1. ハフニウムの酸化条件の探索。
2. アルミニウム上でのハフニウム薄膜の状態の確認
3. 加熱をすることによる絶縁膜への影響。

これらを確認・改善することで絶縁膜形成の研究は前進するはずである。

これらを調べるために、

1. ニオブ/ハフニウム STJ の作製。
2. ハフニウム/アルミニウム STJ の上部 JD のみの I-V 特性を調べる。
3. 加熱を行わずに STJ の作製を行い I-V 特性を調べる。

を行う。

ニオブ/ハフニウム STJ では、絶縁膜に酸化ハフニウムを用いる。酸化条件を変えながら作製し、I-V 特性を調べることで酸化ハフニウムの作製条件を探索する。ニオブ/酸化ハフニウム/ニオブという STJ の作製例は過去の論文で報告されているため [16]、その条件を元に酸化条件の探索を行なう。ニオブは加工がしやすく、また相転移温度が 9.2K なのでハフニウムを用いる場合に比べて作製・冷却に必要な期間が短縮できる。酸化条件を変えた複数のサンプルを作製・測定するため、期間の短縮ができるこの手法は非常に有効である。また、ニオブ/ハフニウム STJ のハフニウム膜厚を徐々に増やしていくことで、ハフニウム単体の STJ に近づけていくことが可能である。

アルミニウム上のハフニウム膜の I-V 特性の把握ができればハフニウム/アルミニウム STJ の作製に大きく前進することができる。現在のスパッタリング条件で作製したハフニ



ウム膜がアルミニウム上で超伝導転移を示さない場合には、アルミニウム上で超伝導転移するスパッタリング条件を探索することで問題を解決することができる。

## 第7章 結論

ニュートリノ崩壊は、崩壊が起こる際に放出される光子を測定することで観測することができる。崩壊光の測定をシミュレーションした結果、観測に用いる検出器には、30meVほどの遠赤外線エネルギーを一光子毎に数%の精度で測定できる性能が求められる。

条件を満たす高いエネルギー分解能をもつ検出器の候補として超伝導トンネル接合素子(STJ)を用いた検出器があげられる。ただし、現時点で製作されているSTJでは条件を満たす性能を有していないので、新型のSTJを開発することが必要である。要求を満たす性能を有する検出器を実現するために、ハフニウムを超伝導体として用いるSTJの開発を行った。

サンプルの作成・冷却してのI-V特性測定を繰り返すことで、ハフニウム薄膜のスパッタリング条件・加工条件を決定した。

スパッタリングはマグネトロンスパッタ装置を用いて、アルゴンガス 50sccm・1.5Pa、投入パワー 300W、基板-ターゲット間距離 130mm、基板温度 300 度でシリコン基板上にスパッタリングすることで特性のよいハフニウム薄膜が形成できることが分かった。

加工方法にはメタルマスク、またはICPエッチングを用いることで加工できることが分かった。微細加工に適している点から加工にはICPエッチングを用いることとした。ICPエッチングでは、エッチングガスにCF<sub>4</sub>ガスを圧力1Paで用いて、プラズマ生成用電源を100W、バイアス印加用電源を40Wとしてエッチングを行った。この条件でのエッチングレートは30.3nm/分であった。

絶縁膜の作成条件の探索を行ったが、現在のところ絶縁膜の上手くできたサンプルはない。絶縁膜の作成条件の決定が今後の課題である。酸化ハフニウムを絶縁膜として用いるニオブ/ハフニウムSTJを作製することでハフニウム絶縁膜の作製条件の探索を行なう。

以上をまとめると、ニュートリノ崩壊探索に用いる遠赤外線検出器として世界初のハフニウムSTJの作製に挑戦し、これまでに、

1. バルクと同等の転移温度を示すハフニウムの成膜条件の確立。
  2. メタルマスク法およびICPエッチングによるハフニウム薄膜の加工と加工後の超伝導転移の確認。
- を実現した。

次の課題として、

1. 絶縁膜形成条件の確立
  2. 絶縁膜上のハフニウムの超伝導転移確認
- を実施し、ハフニウムSTJの実現を目指す。

# 謝辞

本研究を進めるにあたり、ご指導いただきました金信弘教授をはじめとする素粒子実験室の先生方に深く感謝を致します。

理化学研究所の佐藤広海さんには STJ の作製を一から指導していただく等、大変お世話になりました。大変感謝しております。

理化学研究所放射線研究室の方々、埼玉大学の方々、一緒に本研究に携わった堀部忠明君、金海英さんには作業を進める上で様々な協力を頂きました。

共に講義を受け、互いの研究を話合った同級生の生野利典君、須藤裕司君、秦野博光君、目黒立真君には研究を進める上で沢山の刺激を頂きました。研究室の皆様に感謝致します。

最後に、精神面、経済面で支援をくださった両親に深く感謝を致します。

## 参考文献

- [1] F. Reines and C.L.Cowan : Phys.Rev 92(1953) 830, Phys.Rev 113(1959) 273。
- [2] G. Danby *etal.* : Phys.Rev.Lett.9(1962) 36。
- [3] Perl, M. L. Evidence for Anomalous Lepton Production in  $e^+ - e^-$  Annihilation, Phys.Rev.Lett.35(1489)。
- [4] K. Kodama *etal.* : Phys.Lett.B504(2001) 218。
- [5] 長島 順清:素粒子の世代 (「素粒子物理学ハンドブック」内の項目)。
- [6] Super-Kamiokande web page, <http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/sk/index.html>
- [7] M. H. Ahn *etal.* : Measurement of Neutrino Oscillation by the K2K Experiment, Phys.Rev.D74: 072003
- [8] Andrew Blake : Neutrino Oscillation Results from MINOS, Journal of physics : conference series 120 (2008) 052041
- [9] J. N. Bahcall and M. H. Pinsonneault : Phys.Rev.Lett. 92, 121301 (2004)
- [10] SNO web page, <http://www.sno.phy.queensu.ca/>
- [11] COBE web page, <http://www.astroarts.co.jp/news/1998/01/980114COBE/index-j.html>
- [12] Ch.Leinert *etal.* :”The 1997 reference of diffuse night sky brightness” Astron.Astrophys.Suppl.Ser.127,1-99 (1998)。
- [13] 田井野 徹 : Al系STJ素子を用いた超高性能フォトン検出器の作製に関する研究
- [14] 佐藤 広海 : KEK 測定器開発室セミナー 2006年2月24日 <http://rd.kek.jp/events.html>
- [15] 篠崎 慶亮 : 断熱消磁冷凍機を用いた極低温 X線検出器動作環境の構築
- [16] S.Morohashi,T.Imamura,and S.Hasuo : High-quality Nb/HfO<sub>x</sub>-Hf/Nb Josephson junction, Appi.Phys.Lett., vol 60, pp. 3039-3041, 1992
- [17] 堀部 忠明 : ニュートリノ崩壊の探索に用いる超伝導体光検出機の開発研究
- [18] 武政 健一 : ニュートリノ崩壊の探索