

筑波大学第一学群自然科学類

卒業論文

ニュートリノ崩壊の探索に用いる超伝導体光検出器の開発研究

堀部 忠明
(物理学専攻)

2008年 2月

筑波大学第一学群自然科学類

卒業論文

ニュートリノ崩壊の探索に用いる超伝導体光検出器の開発研究

堀部 忠明
(物理学専攻)

指導教員 金 信弘 印

概要

様々なニュートリノ振動の観測実験によりニュートリノに質量があることが判明し、質量の二乗差が測定された。しかし、ニュートリノの質量自体は未だに決定されていない。ニュートリノ崩壊を観測することができれば、ニュートリノ振動とは独立な量が測定できるので、合わせて質量を求めることができる。

ニュートリノの寿命は非常に長く、その崩壊を観測するには宇宙背景ニュートリノを用いる必要がある。宇宙背景ニュートリノの崩壊で観測される光子のエネルギー分布の特徴は、高エネルギーの端で急に落ちるところであり、これを高精度で検出することが重要である。そのためには、エネルギー 30meV 程度の遠赤外線エネルギーを一光子ごとに数%の精度で測定する必要があり、超伝導体を用いた検出器にはその可能性がある。

超伝導体光検出器として、本研究では超伝導トンネル接合素子 (Superconducting Tunnel Junction, STJ) を用いた検出器に着目した。STJ 素子は 2 枚の超伝導体の間に薄い絶縁体を挟んだ構造をしている、いわゆるジョセフソン接合素子である。超伝導体はエネルギーバンドギャップが半導体のそれよりも非常に小さいため、優れたエネルギー分解能を実現できる。ただし、現在開発されている Nb や Al を用いた STJ では、ニュートリノの崩壊光を測定するにはエネルギー分解能が不十分である。そのため、Nb, Al よりもバンドギャップの小さい Hf あるいは W を用いた STJ を開発することが必要となる。本研究では、超伝導体として Hf を用いた STJ のプロトタイプ開発を目指す。

Hf-STJ の作製に関しては、これまでに報告された例が無い。そのため、本研究では作製のために必要な、Hf 膜の成膜条件の探索、Hf 膜の加工方法の確立を目標に設定した。成膜条件に関しては、成膜の際のパラメータを変えながら Hf 膜を作製し、内部応力、表面粗さ、転移温度などの項目を測定することによって最適な条件を決定した。

また金属膜の加工には現在、ドライエッチングを用いる方法、ウェットエッチングを用いる方法、リフトオフ法などが使われているが、これらの方法が Hf 膜の加工に適用できなかったため、新たな方法を考案した。その結果、メタルマスク法を用いた Hf 加工において、Hf 膜の超伝導転移を確認し、今後の Hf-STJ 作製の足掛かりとなる結果を得ることに成功した。

目次

第1章	ニュートリノ崩壊の探索	1
1.1	ニュートリノとは	1
1.2	ニュートリノ振動	1
1.3	ニュートリノ崩壊	2
1.4	崩壊光測定のために	3
第2章	STJの基本原理	5
2.1	超伝導	5
2.1.1	歴史と概要	5
2.1.2	超伝導の特徴	5
2.1.3	クーパー対	6
2.2	STJの構造	7
2.3	開発の歴史と現状	8
2.4	放射線検出原理	8
2.5	STJの性能	9
第3章	Hf薄膜の成膜条件の探索	10
3.1	スパッタリング	10
3.2	残留内部応力	10
3.3	スパッタレート	11
3.4	AFM測定	13
3.5	転移温度測定	15
3.5.1	ADR	15
3.5.2	四端子法	17
3.5.3	転移温度測定結果	17
第4章	微細構造加工技術	19
4.1	フォトリソグラフィ	19
4.1.1	フォトレジスト	19
4.1.2	露光	20
4.1.3	現像	20
4.2	エッチング	21
4.2.1	ドライエッチング	21
4.2.2	ウェットエッチング	22

第 5 章	Hf 薄膜の加工方法の評価	23
5.1	基本的な加工方法	23
5.2	リフトオフ法	23
5.2.1	加工手順	23
5.2.2	結果と考察	24
5.3	新しい加工方法の評価	25
5.3.1	薄膜によるキャップ	25
5.3.2	メタルマスク	26
5.3.3	結果と考察	27
第 6 章	まとめ	28

目 次

1.1	$\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma$ の Feynman diagram	3
1.2	ニュートリノ崩壊で生成した光子のエネルギー分布	4
2.1	クーパー対の概念図	6
2.2	STJ の構造 (断面図)	7
2.3	作製した STJ のパターン	7
2.4	STJ の放射線検出原理	8
3.1	スパッタリングの原理	10
3.2	基板の歪みの測定原理	11
3.3	基板の歪みの測定結果	12
3.4	スパッタレートの測定結果	12
3.5	算術的平均粗さ	13
3.6	表面粗さの測定結果	14
3.7	AFM 画像	14
3.8	断熱消磁冷却原理	16
3.9	ADR の構造	17
3.10	転移温度の測定結果	18
4.1	ステッパーによる露光の仕組み	20
4.2	露光・現像の仕組み	20
4.3	RIE の概念図	21
4.4	ウェットエッチングの等方性	22
5.1	金属薄膜の基本的な加工手順	23
5.2	リフトオフ法による金属薄膜の加工手順	24
5.3	Hf 膜に応力が発生している様子	24
5.4	ウェハの端の部分	24
5.5	薄膜によるキャップをしながらのリフトオフの手順	26
5.6	メタルマスク法での加工手順	26
5.7	メタルマスク法で加工した Hf の転移測定結果	27

表 目 次

1.1	発生源ごとのニュートリノの種類	2
2.1	代表的な超伝導体のパラメータ	9
3.1	AFM 測定に用いたサンプルのパラメータ	13
3.2	転移温度測定に用いたサンプルのパラメータ	17

第1章 ニュートリノ崩壊の探索

1.1 ニュートリノとは

ニュートリノとは、1930年に Wolfgang Pauli がその存在を予言した、質量が極めて小さく、電荷がゼロ、スピンの $\frac{1}{2}$ の素粒子である。1934年には、Enrico Fermi がニュートリノの存在を仮定することによって、 β 崩壊で発生する電子のエネルギースペクトルを理論的に説明した。中性子は β 崩壊で、陽子と電子とニュートリノに崩壊する ($n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}$)。その後、1953年から1959年にかけて行われた Frederick Reines らの実験によってその存在が証明された。現在では、電子ニュートリノ、ミューニュートリノ、タウニュートリノという3種類のフレーバーが存在することが知られている。

ニュートリノは強い相互作用と電磁相互作用をせず、弱い相互作用と重力相互作用でしか反応しない。ただ質量が非常に小さいため、重力相互作用がほぼ作用せず、このため他の素粒子との反応がわずかで、透過性が非常に高い。そのため、原子核や電子との衝突を利用した観測が難しく、ごく稀にしか反応を捕らえるために高感度のセンサや大質量の反応材料を用意する必要があり、他の粒子に比べ研究の進みは遅かった。

長い間、ニュートリノの質量の精密な測定が行われてきたが、質量が0ではないという確実な実験結果は存在しなかった。そのため、ニュートリノの質量は0であると考えられるようになり、標準模型ではニュートリノの質量は0であるとした。同じく質量が0だと考えられている光子の場合には、理論のゲージ不変性によって質量が0であることが要求されている。しかし、ニュートリノの質量が0である理論的根拠は存在しない。そのため、ニュートリノは微量な質量を持つ可能性がある。

1.2 ニュートリノ振動

ニュートリノが質量を持つとすると、その中に量子状態の混在がありえるため、ニュートリノのフレーバーが電子、ミュー、タウの間で変化するニュートリノ振動と呼ばれる現象が起こる。

あるニュートリノが他のニュートリノに変化する確率 P は以下のように表される。

$$P = \sin^2 2\theta \cdot \sin^2 \left(\frac{1.27 \Delta m^2 L}{E} \right) \quad (1.1)$$

E : ニュートリノのエネルギー (GeV)

L : ニュートリノが走った距離 (km)

θ : 混合角

Δm^2 : 質量二乗差 (eV²)

1998年にスーパーカミオカンデにより大気ニュートリノ振動が観測され、ニュートリノ振動が実証された。その後、世界各国で太陽ニュートリノ、大気ニュートリノ、原子炉ニュートリノなどの振動現象が確認された。

ニュートリノの発生源	エネルギーのオーダー	個数 (/cm ² /秒)
太陽 (核融合からの ν_e)	MeV	約 6 0 0 億個
大気 (陽子やヘリウムの原子核と大気分子が衝突して生成される ν_μ, ν_e)	GeV	約 1 個
原子炉 (原子力発電所などで発生する ν_e)	MeV	約 4 0 0 万個
超新星 (電子・陽電子対などからの ν_e, ν_μ, ν_τ)	1 0 MeV	約 1 5 億個 (15 万光年離れた 1987 年の超新星の場合)
宇宙背景 (宇宙の初期にできたニュートリノ)	meV	約 1 0 兆個

表 1.1: 発生源ごとのニュートリノの種類

これらの様々なニュートリノ振動実験の観測結果によって、異なる種類のニュートリノ間の質量の二乗差が測定され、ニュートリノが質量を有していることが明らかとなった。

$$\begin{aligned} \Delta m_{23}^2 &\equiv \Delta m^2(\text{大気ニュートリノ振動}) = (1.6 \sim 3.9) \times 10^{-3} \text{ eV}^2 \\ \Delta m_{12}^2 &\equiv \Delta m^2(\text{太陽ニュートリノ振動}) = (2.5 \sim 3.3) \times 10^{-4} \text{ eV}^2 \end{aligned} \quad (1.2)$$

1.3 ニュートリノ崩壊

ニュートリノ振動の観測によってニュートリノの質量の二乗差が測定されたが、二乗差のみでは質量を決定することはできない。ニュートリノの質量自体は未だに上限を定めるまでにしか至っていないのである。

$$\begin{aligned} \text{電子ニュートリノ } (m_e) &< 2.5 \text{ eV} \\ \text{ミューニュートリノ } (m_\mu) &< 170 \text{ keV} \\ \text{タウニュートリノ } (m_\tau) &< 18 \text{ MeV} \end{aligned} \quad (1.3)$$

質量を決定するためには、ニュートリノ振動とは独立な事象を観測することが必要である。

ニュートリノ崩壊を観測することができればニュートリノ振動とは独立な量が得られるので、これらを合わせる事でニュートリノの質量を決定することができる。

ニュートリノがディラック・ニュートリノである場合、ニュートリノは $\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma$ と崩壊する (図 1.1)。

標準理論の範囲内では、この寿命は 10^{35} 年程度と長くニュートリノ崩壊の観測は極めて難しいが、右巻き Weak Boson W_R が存在する場合にはこのニュートリノ崩壊幅は大き

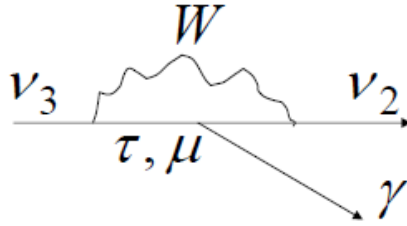


図 1.1: $\nu_3 \rightarrow \nu_2 + \gamma$ の Feynman diagram

くなり, 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るとニュートリノの寿命は最小で 10^{17} 年程度となる。

このような長寿命のニュートリノの崩壊を測定するには非常に多くのニュートリノが必要であり, 全空間に $110 \text{ 個}/\text{cm}^3$ の密度で存在するといわれている宇宙背景ニュートリノが崩壊の際に生じる光子を検出できる可能性が最も大きいニュートリノ源である (表 1.2)。

ニュートリノ振動から得られているニュートリノの質量の 2 乗差と矛盾しないニュートリノ質量として $m_3 = 55 \text{ meV}$, $m_2 = 10 \text{ meV}$ を仮定すると, ニュートリノ崩壊で生成される光子のエネルギー $E_0 = (m_3^2 - m_2^2)/2m_3$ は 27 meV となり, これは温度 1.9 K でプランク分布するニュートリノ・エネルギーの影響をほとんど受けない。ただし実際に観測される光子のエネルギー E はドップラー効果によって Red shift z がない場合のエネルギー E_0 に比べて $E = E_0/(1+z)$ だけ小さくなる。Red shift z と宇宙年齢 t との間には、

$$t(z) = \frac{2}{3H_0} \frac{1}{(1+z)^{1.5}} \quad (1.4)$$

$H_0 = 530 \text{ km} \cdot \text{sec}^{-1} \cdot \text{Mpc}^{-1}$: ハッブル定数

の関係が (宇宙が平坦な場合) 成り立つので, 宇宙背景ニュートリノの崩壊で観測される光子のエネルギーの分布は (図 1.2) のように広がる [2]。

1.4 崩壊光測定のために

図 1.2 からわかるように, 宇宙背景ニュートリノの崩壊光子の信号分布の特徴は高エネルギーの端で急に落ちるところである。ニュートリノ崩壊の探索はこの特徴的なエネルギースペクトルを観測することを目標とする。このエネルギースペクトルを背景事象のスペクトルと分離するためには, エネルギーを高精度で測定することが必要となる。そのためにはエネルギー 30 meV 程度の遠赤外線を一光子ごとに数% の精度で測定できる検出器が必要である。

次章以降で詳しく説明するが, 超伝導トンネル接合素子 (Superconducting Tunnel Junction) を用いた検出器にはその可能性がある。

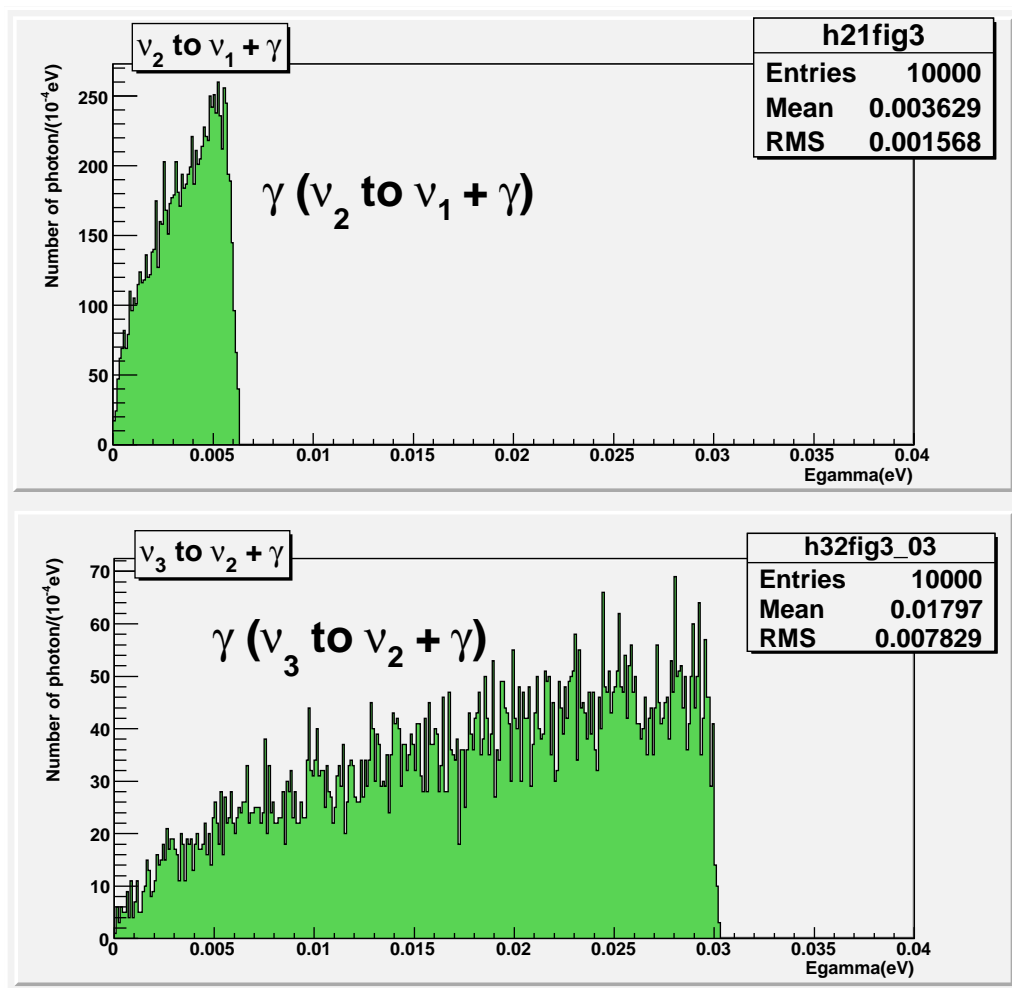


図 1.2: ニュートリノ崩壊で生成した光子のエネルギー分布

第2章 STJの基本原理

2.1 超伝導

2.1.1 歴史と概要

多くの金属の電気抵抗は、試料を十分低い温度に冷やすと突然に消失する。超伝導と呼ばれるこの現象は Leiden の Kamerlingh Onnes によって 1911 年に発見された [4]。彼が液体ヘリウムの生成に成功してから 3 年後のことである。転移温度 T_c で、試料は普通の電気抵抗の状態から超伝導状態へと相転移する。

その後、様々な研究者によって理論・実験の両面から研究がなされ、1957 年に発表された Bardeen, Cooper, Schrieffer らの BCS 理論 [5] により、超伝導現象の基本的なメカニズムが解明された。

2.1.2 超伝導の特徴

超伝導には電気抵抗が消失する以外にも、様々な興味深い特徴がある。ここではその中の代表的なものについて簡単に説明する。

完全導電性

電気抵抗がゼロのため、一度流し始めた電流が永続する。少なくとも一年以上減衰することなく流れ続けることが観測されている。超伝導のもっとも基本的な特徴として広く知られている。

マイスナー効果

マイスナー効果は、1933 年に Meissner と Ochsenfeld によって確立された [6]。超伝導体を磁場中に置いたまま転移温度以下に冷却すると、はじめに存在した磁束は超伝導体から排除される。この現象をマイスナー効果あるいは完全反磁性と呼ぶ。完全導電性と並んで超伝導の 2 大特長であり、この効果が確認されない限り超伝導とは認定されない。転移温度以下で完全導電性のみを示す物質を完全導体、それに加えて完全反磁性も示す物体を超伝導体と区別する。

ジョセフソン効果

ジョセフソン効果とは、絶縁体を間に挟んだ2つの超伝導体の間に超伝導電子対のトンネル効果によって超伝導電流が流れる現象である。1962年に Josephson によって理論的に導かれ [7]、ベル研究所の Anderson と Rowell によって実験的に検証された。2つの超伝導体の間に挟まれた絶縁体には超伝導状態を表す波動関数の位相差に比例した電流が流れる。

ジョセフソン効果を示す接合をジョセフソン接合と呼び、それを電子デバイスとして扱う場合にはジョセフソン素子と呼ぶ。本研究で扱う STJ もトンネル接合を用いたジョセフソン素子の一種である。

臨界磁場

十分に強い磁場を加えると超伝導状態は消失してしまう。超伝導状態を消失するのに必要な閾値を臨界磁場と呼び、 H_c で表す。臨界磁場は温度に比例して、転移温度では臨界磁場はゼロである。

2.1.3 クーパー対

超伝導状態を実現するためには電子系が何らかの凝集状態にある必要がある。しかし電子はフェルミ粒子であり、パウリの排他律からくる制限により、そのままでは凝集できない。超伝導状態を実現するためには、2つの電子が対となってボソン化し、最低エネルギー状態に集団で凝集(ボーズ凝縮とみなせる状態)する必要がある。このためには、電子同士が互いに斥力を及ぼし合う状態から、何らかの有効な引力が電子同士に働く状態になる必要がある。BCS理論では、図2.1のように電子-格子相互作用を介して電子同士がフォノンを仮想的に交換(あるいはフォノンを介して運動量を交換)することによって、電子同士に引力が働くと考える。この引力によって生じる電子対(スピンは互いに逆向き、かつ対の全運動量がゼロ)を、クーパー対という。

クーパー対を構成する電子は、STJ検出器において電荷キャリアーとして重要な役割を果たす。

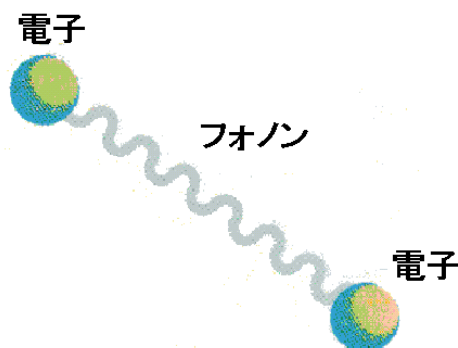
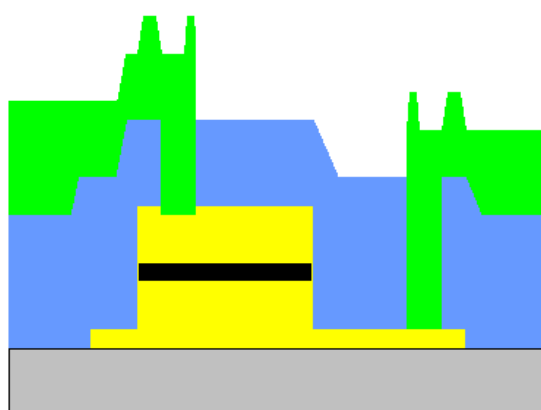


図 2.1: クーパー対の概念図

2.2 STJの構造

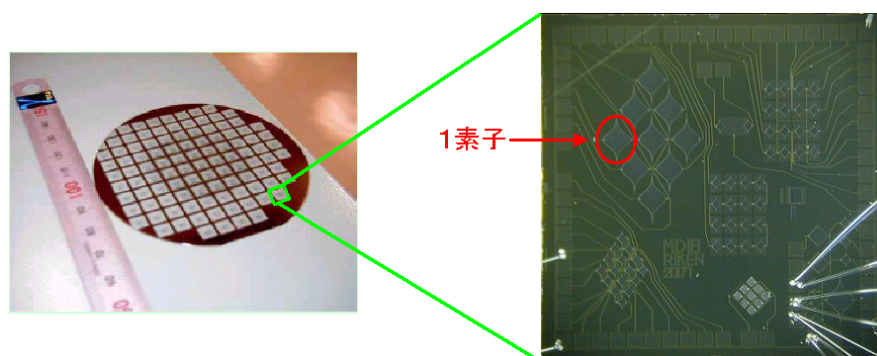
STJ素子は、シリコンやサファイアなどの基板の上に構築される。構造としては、厚さ数100nm、面積 $50 \sim 300 \mu\text{m}^2$ の2枚の超伝導体の間に厚さ数nmの薄い絶縁体を挟んだ、いわゆるジョセフソン接合素子である(図2.2)。検出効率を高くすることを考えれば吸収層の厚みや面積が大きいことが望ましいが、層が厚いとトンネル確率が減り、面積が大きすぎると素子の容量が大きくなってノイズの原因となる。実際に検出器として用いる場合には、図2.2のように、信号読み出し用のNbや、絶縁用の SiO_2 を取り付ける。

実際に作製したパターンは図2.3のようになっていて、その中の一つ一つがSTJとなっている。



図の黄色部分が超伝導体。黒部分が絶縁体。
緑部分が読み出し配線用Nb。青部分が絶縁用 SiO_2 。
灰色部分が基板。

図 2.2: STJの構造(断面図)



右図のチップは $5\text{mm} \times 5\text{mm}$ でその中の一つ一つがSTJになっている

図 2.3: 作製したSTJのパターン

2.3 開発の歴史と現状

STJによって放射線が検出できることが最初に報告されたのは1969年である [8]。そのとき用いられた接合は Sn/SnOx/Sn で、入射された放射線は γ 線であった。これをきっかけにいくつかのグループで研究がスタートし、1986年にはX線の検出に成功したことが報告された [9]。その際用いられた接合はやはり Sn 系の素子である。

その後、Sn系の素子に代わり、熱サイクルに強いNb系の素子へと研究対象が移行していった。Nbは比較的転移温度が高い(表 2.1) ので、簡易な冷却装置で済むということもあり研究対象の主流になっていった。そしてまた、さらにエネルギーギャップの小さいAlをNbと絶縁体の間に挟むことによって検出効率をあげるという工夫も考案された。

2.4 放射線検出原理

STJを冷却し、絶縁体を挟んでいる電極を超伝導状態にする。超伝導状態にある金属内には、電子がペアとなったクーパー対が存在する。このクーパー対がなんらかの作用により解離されて単独状態になった電子のことを準粒子 (quasiparticle) と呼ぶ。

放射線がSTJの超伝導体電極に入射すると、光電吸収により電子が生成される。その電子をきっかけにクーパー対の解離が繰り返されて大量の準粒子を生成する。そうして発生した準粒子(電子)がトンネル効果により絶縁体を超えてもう一方の超伝導体電極へと流れ込み、信号電荷として検出される(図 2.4)。

その際、超伝導体のエネルギーギャップが数 meV と半導体のそれよりも 1/1000 程度であることからフォノンによる準粒子の励起も効率的に行われる。したがって電荷キャリアーとなる準粒子の数が膨大になる。これが優れたエネルギー分解能となる理由である。

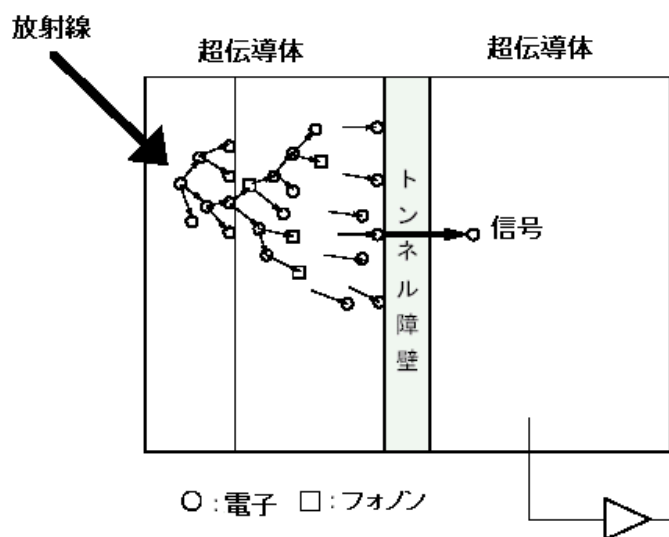


図 2.4: STJ の放射線検出原理

2.5 STJ の性能

STJ 検出器のエネルギー分解能はクーパー対の解離エネルギー ($1.7\Delta^1$) に依存して、

$$\delta E_{FWHM} = 2.35\sqrt{(1.7\Delta)FE}$$

で与えられる。ここで Δ は超伝導体のバンドギャップ、 F はファノ因子²、 E は入射放射線のエネルギーである。超伝導体として Nb ($1.7\Delta = 2.6$ meV) を用いた場合、 $E = 5.9$ keV の入射放射線に対して $\delta E_{FWHM} = 4.3$ eV と半導体検出器³に比べて非常に良いエネルギー分解能を持つことがわかる。

また素子自体が検出器となっているため、不感領域が存在しない。そのため低エネルギーフォトン・荷電粒子のエネルギー測定が可能である。

STJ 素子を検出器として動作させる際には超伝導体の転移温度 T_c 以下に冷却させる必要があるが、ノイズの原因の1つである熱励起によるトンネル電流を抑える目的からなるべく低温で使うことが要求される。転移温度のおよそ 1/10 に冷却するのが望ましい。また、電圧が 0 のときに流れるジョセフソン電流を抑制するために、数 10 Gauss の磁場を STJ の絶縁膜と並行に印加する必要がある。高エネルギー分解能の実現という側面からは、バンドギャップが小さい超伝導体を使用することが望ましいが、そうすると要求される動作温度がより低温となり扱いが簡便でなくなるといった問題も出てくる。表 2.1 に代表的な超伝導体の T_c 、 Δ 等を示した。

超伝導体	原子番号	T_c (K)	Δ (meV)	H_c (Gauss)
Sn	50	3.72	0.57	105
Nb	41	9.20	1.550	1980
Al	13	1.14	0.172	105
Hf	72	0.165	0.020	13
W	74	0.015	0.0025	1.15

表 2.1: 代表的な超伝導体のパラメータ

現在までに開発されている Nb や Al を用いた STJ は、半導体検出器等に比べると非常に良いエネルギー分解能を持っているが、ニュートリノの崩壊光を測定するためには不十分である。そのため、Nb, Al よりもバンドギャップの小さい Hf あるいは W を用いた STJ を開発することが必要となる。

本研究では超伝導体として Hf を用いた STJ のプロトタイプ開発を目指す。Hf 薄膜が超伝導転移すること [12] と、酸化 Hf (HfO_x) を絶縁膜として用いた STJ の開発 [13] に関しては既に報告されているため、Hf/HfO_x/Hf という構造の STJ は実現可能である。

¹ 準粒子の励起過程をモンテカルロ法でシミュレーションすることにより得られた [10]。

² 電荷キャリアーの生成過程が完全な Poisson 分布にはならないため、その補正をするための因子。ファノ因子の値は物質によって異なり、Nb の場合は $F = 0.22$ となる。

³ 半導体の場合には、バンドギャップを E_g 、1 つの電荷キャリアーを生成するのに必要なエネルギーを ϵ とすると $\epsilon = 2.8E_g + 0.5$ という関係がある [11]。Si を用いた場合、 $\delta E_{FWHM} = 116$ eV @ 5.9 KeV となる。

第3章 Hf薄膜の成膜条件の探索

超伝導体として Hf を用いた STJ の開発は今までに前例が無い。そのため作製にあたり、Hf 薄膜を成膜する条件を評価する必要がある。Hf 薄膜の成膜には、スパッタリングという方法を用いた。どのような条件でスパッタリングを行えば、最適な膜を得られるかを探索した。

3.1 スパッタリング

金属薄膜を生成するための技術である。図 3.1 のように、真空チャンバー内に薄膜としてつきたい金属をターゲットとして設置し高電圧をかけ、イオン化させた Ar ガスを衝突させる。するとターゲット表面の原子がはじき飛ばされ、基板に到達して付着することで成膜することができる。

本研究では、基板とターゲット間の距離を 130(mm) に、Ar ガスの流量を 50(cc/min.) に固定し、Ar ガスの圧力 (Pa) と高電圧 (投入パワー, W) をパラメータとして変化させながら様々な膜を作製し、その特性を評価した。

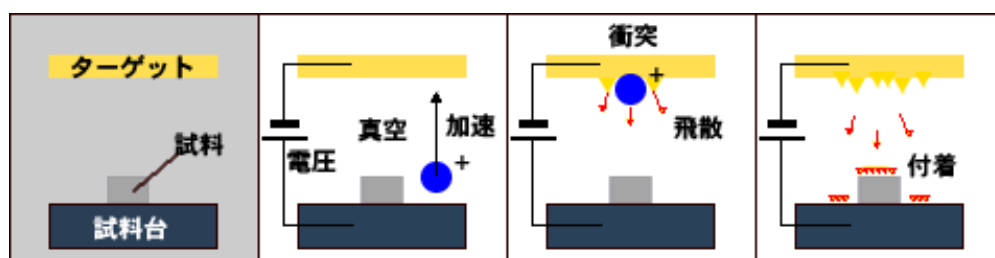


図 3.1: スパッタリングの原理

3.2 残留内部応力

基板上に成長した薄膜には、一般に非常に大きな応力が生じている。これらの応力は成膜中に生ずる薄膜の成長様式に依存した密度変化に伴って発生したり、基板と薄膜の熱膨張係数の違いにより発生したりする。またスパッタリングにより成膜した薄膜に生ずる圧縮応力のように成膜方法に依存して生ずる応力も存在する。

残留内部応力は物性に影響を及ぼし、膜としての特性を損なう可能性がある。基板上に成長した薄膜に応力が生じると、その応力の大きさに応じて基板ごと湾曲する。そのため、なるべく基板の歪みが小さくなるようなスパッタ条件を探索する必要がある。

基板の歪みは段差計を用いて測定した。原理としては、図 3.2 左のように段差計でスキャンを行う。ここで、①,②はスパッタ前、③,④はスパッタ後である。スキャン結果は図 3.2 右のようになる。この図において、基板の端を結んだ直線とピーク位置との縦方向の距離を歪みとした。以上のように歪みを測定し、③と①、④と②の差を求め、これをさらに 100nm あたりの膜厚で規格化した。このように規格化することで、膜厚の差による影響を取り除くことができる。それらを平均したものを最終的なスパッタ前後の基板の歪みの差とした。

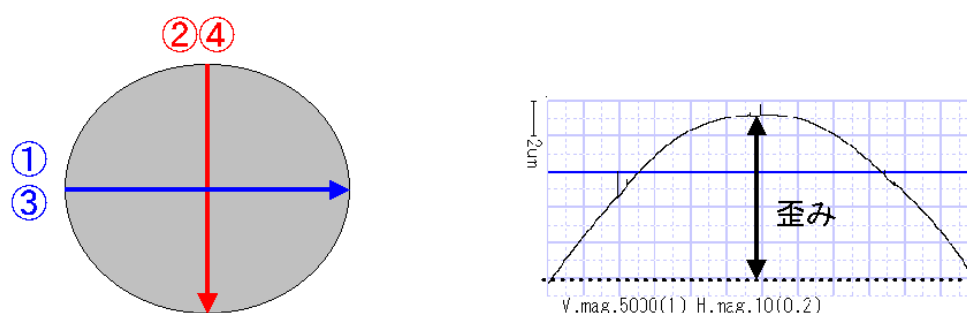


図 3.2: 基板の歪みの測定原理

スパッタの際のパワー、圧力を変えながら多数のサンプルを作製し、上述のようにして求めたスパッタ前後の基板の歪みの差をまとめたものが図 3.3 である。

これより 300W のパワーでスパッタしたときが、基板の歪みが小さいのがわかる。また、600W, 400W など高いパワーで、かつ圧力が低いと歪みが大きくなっている。そして 300W, 1.5Pa の条件でスパッタしたときに、最も基板の歪みが小さくなることがわかった。

3.3 スパッタレート

Hf を過不足ない膜厚に成膜する為には、スパッタ時間に対してどのくらいの厚さの膜ができるか、という割合を知ることが必要となる。単位時間当たりのスパッタ時間に対する膜圧をスパッタレートと呼ぶ。

スパッタレートの測定方法としては、基板の一部にカプトンテープを貼った状態でスパッタし、その後テープを剥がす。テープが貼ってあった部分はスパッタされていないので、その部分とスパッタされた部分の段差を段差計を用いて測定することで、スパッタ時間に対して、どのくらいの厚さの膜ができたかを評価することができる。

図 3.4 はスパッタレートの測定結果を示したものである。最も歪みの少ない、300W, 1.5Pa では、15.3(nm/分) という値が得られた。

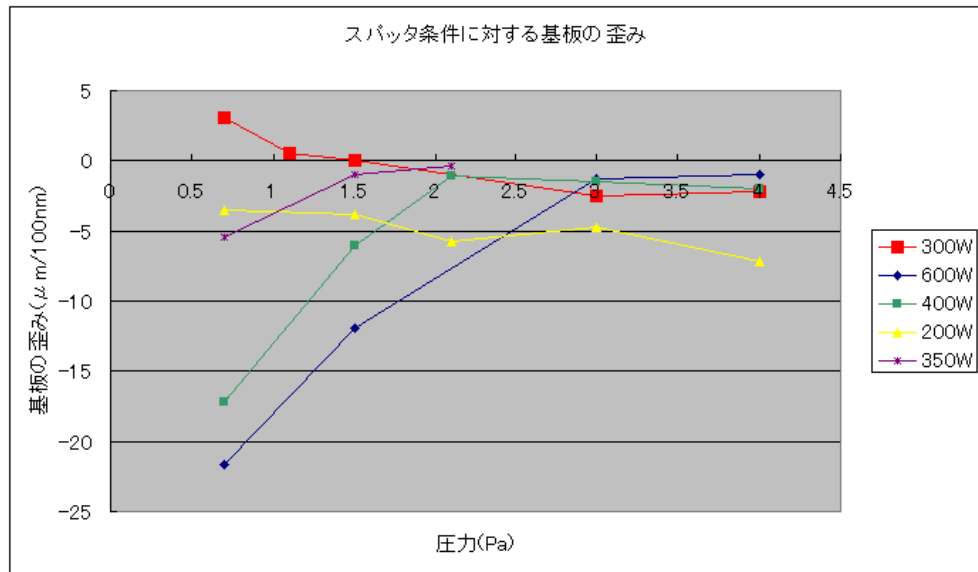


図 3.3: 基板の歪みの測定結果

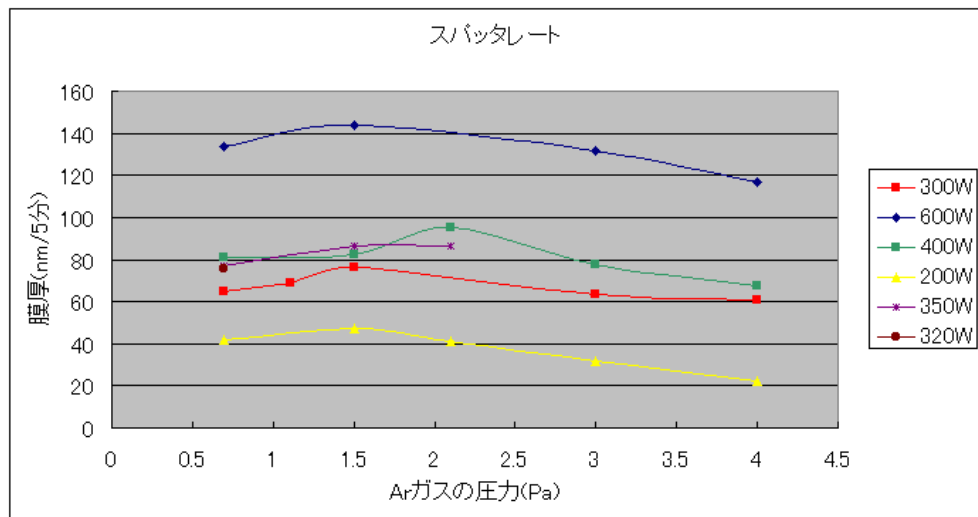


図 3.4: スパッタレートの測定結果

3.4 AFM測定

原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope, AFM) を用いてスパッタ後の表面の粗さ、粒の大きさなどを測定した。AFMは、走査型プローブ顕微鏡の一種である。その名の通り、試料と探針の原子間にはたらく力を検出して表面の状態を測定する。

原子間力はあらゆる物質の間に働くため容易に試料を観察することができる。そのため、探針と試料表面間に流れるトンネル電流を利用する STM とは異なり、絶縁性試料の測定も可能である。また導電性コーティングなどの前処理や装置内の真空を必要とすることもない。このため、大気中や液体中、または高温～低温など様々な環境で、生体試料などを自然に近い状態で測定できる。

測定は、内部応力を調べたサンプルの中から 6 つを選んで行った。それぞれのサンプルのパラメータは以下の通りである。

Sample No.	投入パワー (W)	圧力 (Pa)	基板の歪み ($\mu\text{m}/100\text{nm}$)
Hf-002	300	1.5	0.0349
Hf-005	600	0.7	-21.7
Hf-008	600	4.0	-1.03
Hf-020	350	1.5	-0.965
Hf-022	350	2.1	-0.379
Hf-000	300	1.0	-

表 3.1: AFM 測定に用いたサンプルのパラメータ

表面粗さ

Hf 薄膜を成膜したとき、その表面が粗いとジャンク션을形成するのに不都合である。そのため粗さが小さくなるような条件を探索する。

粗さを表す値としては、算術的平均粗さ R_a などがある。算術的平均粗さとは、粗さ曲線からその平均線の方向に基準長さだけを抜き取り、この抜き取り部分の平均線の方向に X 軸を、縦倍率の方向に Y 軸を取り、粗さ曲線を $y = f(x)$ であらわしたときに、

$$R_a = \frac{1}{l} \int_0^l |f(x)| dx$$

で求められる値を nm で表したものをいう (図 3.5)。

表面粗さの測定結果を図 3.6 に示す。

図 3.6 より、表面粗さは圧力に大きく依存しており、圧力が大きいと粗さも大きくなることがわかる。

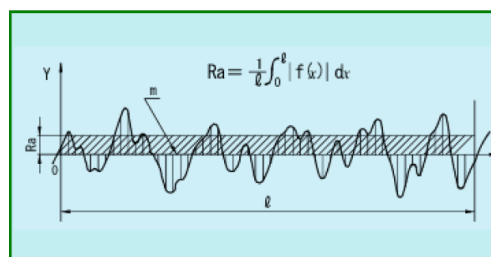


図 3.5: 算術的平均粗さ

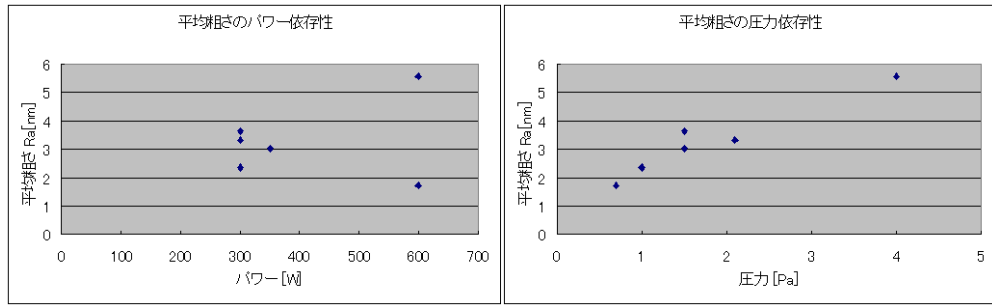
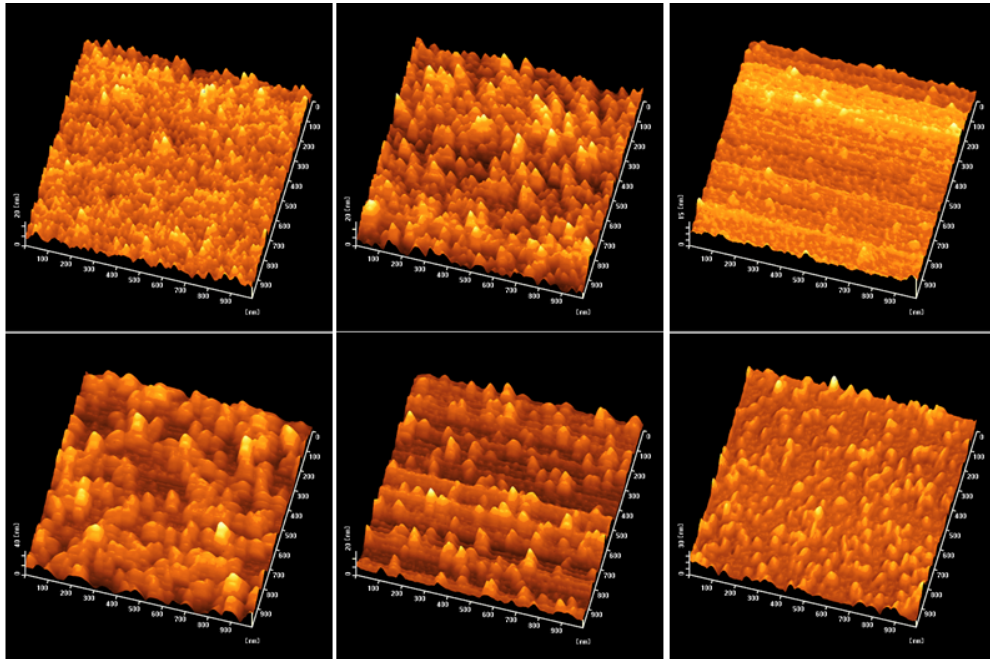


図 3.6: 表面粗さの測定結果

粒の大きさと形状

室温でのスパッタリングによって成膜した金属は、一般に単結晶にならず、多数の粒 (Grain) ができる。粒の大きさや形状は、物性に影響を及ぼす。

Hf に関しては、どのような大きさ、形状のものが良い性質を持った膜であるかが不明であるため、今後の指標として粒の大きさや形状を測定した。図 3.7 に、AFM 測定によって得られた表面の 3D 画像を示す。測定した範囲は、 $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ の範囲である。



上段左から、Hf-000, Hf-002, Hf-005
下段左から、Hf-008, Hf-020, Hf-022

図 3.7: AFM 画像

3.5 転移温度測定

3.5.1 ADR

STJを検出器として動作させるためには、素子に用いられている超伝導体の転移温度以下に冷却する必要がある。STJを冷却するためのクライオスタットとして、本研究では断熱消磁冷凍機 (Adiabatic Demagnetization Refrigerator, ADR) を用いた。

磁性体の磁気モーメントは温度がよほど低くない限り、あらゆる方向を向いている状態である。そこへ外部から強い磁場を加えることで磁気モーメントの向きが一方向に揃い、エントロピーが低下する。その後、断熱した状況下で外部磁場を取り除いていく。するとエントロピーが一定に保たれたまま、磁場の減少に伴い温度が低下していく。

断熱消磁冷却原理

上記の断熱消磁過程を熱力学的に扱うと、次のようになる。
はじめに磁性体のエントロピーは、スピン量子量を J とすれば、

$$S = R \left[\alpha \coth \alpha - (2J + 1) \alpha \coth(2J + 1) \alpha + \log \frac{\sinh(2J + 1) \alpha}{\sinh \alpha} \right] \quad (3.1)$$

磁化 M は、原子数を N とすると、

$$M = Ng\mu_B \left[\frac{2J + 1}{2} \coth \left(\frac{2J + 1}{2} \alpha \right) - \frac{1}{2} \coth \frac{\alpha}{2} \right] \quad (3.2)$$

で表される。ここで、 $\alpha = \frac{g\mu_B H}{k_B T}$ 、 g は g -因子、 μ_B はボーア磁子、 R は気体定数 ($R = 8.134 \text{ J/K} \cdot \text{mol}$) である。

(3.1) 式、(3.2) 式は、 $\alpha \ll 1$ の極限では、

$$M = \frac{CH}{T} ; C = \frac{Ng^2\mu_B^2 J(J + 1)}{3k_B} \quad (3.3)$$

$$S = R \left[\log(2J + 1) - \frac{CH^2}{2T^2} \right] \quad (3.4)$$

となる。(3.3) 式は磁化率 $\chi = M/H$ のキュリー-ワヘールの法則を表す。 C はキュリー定数。

また、一般に磁場 H の下で常磁性体の吸収する熱量 dQ と磁化 dM の間には、次の関係式が成立する。

$$dQ = TdS = dU - HdM \quad (3.5)$$

これから

$$dS = \frac{C_H}{T} dT + \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H dH \quad (3.6)$$

を得る。ここで C_H は磁場一定下での比熱である。

< 等温磁化過程 >

温度が $T_0 K$ のとき、温度を保ったまま磁場をかけ、磁場 $H = 0$ の状態から $H = H_1$ へ等温磁化すると、その過程でのエントロピーの変化は (3.4) 式から、

$$\delta S = S(T_0, H_1) - S(T_0, 0) = -\frac{CH_1^2}{2T^2} \quad (3.7)$$

であり、 δS だけエントロピーが減る。その分を磁化熱として $T\delta S = \frac{CH_1^2}{2T}$ 放出する。

< 断熱消磁過程 >

(3.6) 式において、断熱可逆変化 $dS = 0$ を考えると、消磁による温度変化は、

$$\left(\frac{\partial T}{\partial H}\right)_S = -\frac{T}{C_H} \left(\frac{\partial M}{\partial T}\right)_H \quad (3.8)$$

となる。常磁性体では $\left(\frac{\partial M}{\partial T}\right)_H < 0$ であるから、 $\left(\frac{\partial T}{\partial H}\right)_S > 0$ で消磁によって温度は下降する。

また、断熱条件下で磁場を $H_1 \rightarrow H_2 (H_2 < H_1)$ へと弱めていくに従って、エントロピーが一定なことから、

$$\frac{CH_1^2}{2T_0^2} = \frac{CH_2^2}{2T_2^2} \quad (3.9)$$

が成り立ち、温度が $\frac{H_1}{T_0} = \frac{H_2}{T_2} = const$ を満たしながら $T_2 < T_0$ へ下がることになる (図 3.8)。

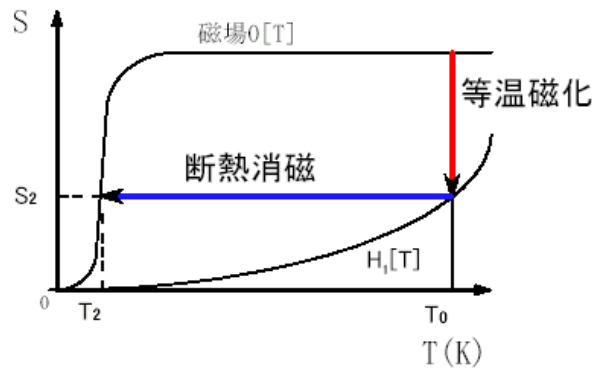
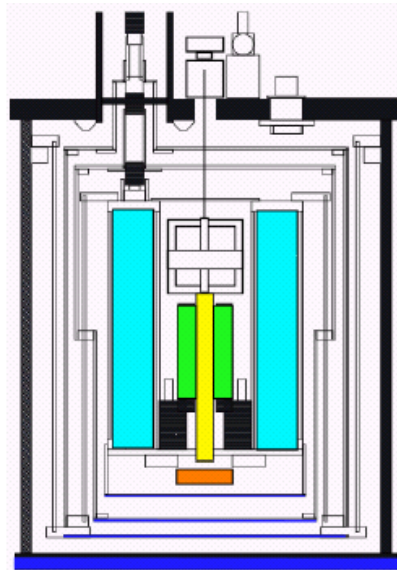


図 3.8: 断熱消磁冷却原理

ADR の構造

ADR は図 3.9 のような構造になっている。ヘリウムタンクをあらかじめ液体窒素で予冷した後、液体窒素を追い出してから液体ヘリウムをトランスファーしてソルトピルを 4.2K に冷却する。その後、上で記述した等温磁化・断熱消磁を行うことで、Hf サンプルを最低温度まで導く。超伝導マグネットコイルは、等温磁化、断熱消磁の際に磁場を生じさせるコイルである。



図の水色部分がヘリウムタンク。黄色部分がソルトピル。
オレンジ部分が detector table。黄緑部分が超伝導マグネットコイル。

図 3.9: ADR の構造

3.5.2 四端子法

Hf 薄膜の超伝導転移を確認するために抵抗を測定する必要があるが、電気抵抗が非常に小さいものを測定する場合、測定に用いる端子と試料との接触面にある抵抗が無視できなくなる。この接触抵抗の問題を回避する方法が、四端子測定法である。

今回のように薄膜の抵抗を測定したい場合は、4つの端子を薄膜に接続し、1組の端子で試料に電流 I を流す。この電流によってもう1組の端子間に生じた電圧降下 V を測定する。これからオームの法則 $R = V/I$ により、抵抗 R を求めることができる。

3.5.3 転移温度測定結果

転移温度測定には、表 3.2 のような条件のサンプルを用いた。Sample1 が最も基板の歪みが小さい条件、Sample4 が 1 と同条件で 300 に加熱しながらスパッタしたもの、Sample2 は比較的歪みが小さいもの、Sample3 は歪みが大きいものである。

Sample No.	投入パワー (W)	圧力 (Pa)	基板の歪み ($\mu\text{m}/\text{nm}$)
1	300	1.5	0.035
2	600	0.7	-21.7
3	600	4.0	-1.03
4	300	1.5	-0.379

4 は 300 で加熱しながらスパッタした

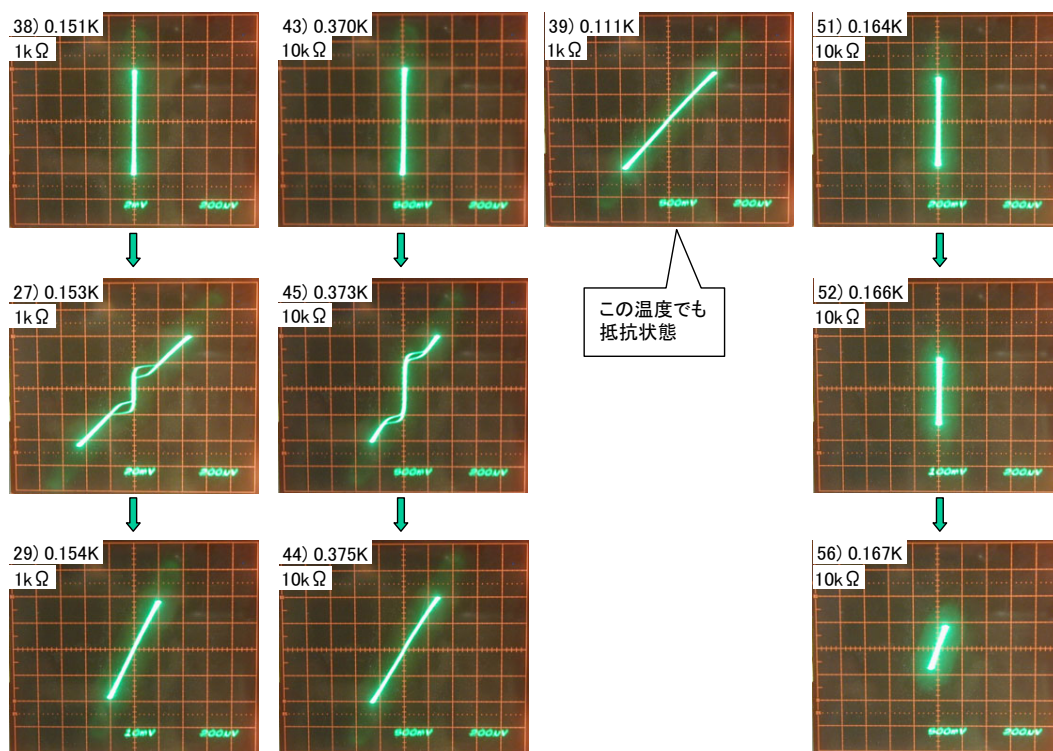
表 3.2: 転移温度測定に用いたサンプルのパラメータ

これらのサンプルを ADR で冷却し、四端子法で抵抗を測定した。その結果をまとめたものが、図 3.10 である。左から 3 番目 (Sample3) 以外は超伝導転移を示しており、一番上の段の写真がその様子である。その後、転移が破れているのが中段の写真で、一番下の段の写真では常伝導に戻っているのがわかる。

ここから得られた転移温度 T_c をまとめると、以下ようになる。

- Sample1 0.153K
- Sample2 0.373K
- Sample3 転移せず
- Sample4 0.166K

文献値では、バルク Hf の転移温度は $T_c = 165\text{mK}$ である。よって Sample4 は、ほぼこれに一致し、Sample1 も近い値が得られた。歪みの小さいものが良い特性を示しているのがわかる。Sample2 は歪みが大きく、転移温度も大きく異なっている。Sample3 は比較的歪みが小さいが、超伝導転移をしなかった。



左から順に Sample1, 2, 3, 4 の測定結果である (横軸：電圧, 縦軸：電流)

図 3.10: 転移温度の測定結果

以上の測定により、投入パワー 300W, Ar ガスの圧力 1.5Pa の条件でスパッタしたときに、最も残留内部応力が小さく、粗さも比較的小さく、転移温度はバルク Hf のものに近いことがわかった。よって、今後 STJ を作製する際には、この条件で成膜を行う。この条件でのスパッタレートは、15.3(nm/分) である。

第4章 微細構造加工技術

図 2.3 に示したように、STJ 素子は $5\text{mm} \times 5\text{mm}$ の面積の中に微細な構造を有している。そのため、作製には微細なパターンを加工する技術が必要となる。微細なパターンを形成するために用いるのが、フォトリソグラフィという技術である。

スパッタリングによる薄膜の成膜，フォトリソグラフィによるパターン形成，エッチングによる薄膜の加工を繰り返すことで素子を作製することができる。

4.1 フォトリソグラフィ

フォトリソグラフィとは、感光性の物質（フォトレジスト）を露光・現像することで、微細なパターンを形成する技術である。金属を微細なパターンに加工する際には欠かせない技術であり、主に IC, LSI などの半導体デバイスの作製に広く用いられている。

4.1.1 フォトレジスト

フォトレジストとは、光によって溶解性などの物性が変化する感光性の樹脂のことである。物質の表面に塗布され、後に続くエッチングなどの処理から物質表面を保護することから、「レジスト」(resist) の名がある。

フォトレジストは光との反応方法からネガ型とポジ型に分けられる。

ネガ型

もともとは現像液に対して溶解する性質を持っているが、露光されると溶解性が低下する。そのため、露光後に現像液に浸けると露光された部分だけが残る。本研究ではネガレジストとして東京応化工業製の OMR-85 を使用した。

ポジ型

ネガ型とは逆に、もともと現像液に対して不溶性を持っているが、露光されると溶解性が増大する。そのため、露光後に現像液に浸けると露光部分が除去される。本研究ではポジレジストとして東京応化工業製の OFPR-800LB を使用した。

また、素子の作製はフォトレジストの感光を防ぐ為に、波長の長い黄色い照明を使用したクリーンルームで行われる。本研究における素子作製は、全て理化学研究所内のクリーンルームにて行なった。

4.1.2 露光

フォトリソに光を照射して反応させる。このとき欲しいパターンの形状を描いたマスク（レチクルと呼ぶ）を用い、光を照射する部分を制御することで必要なパターンをレジスト上に描く。レチクルに描かれたパターンは実寸よりも大きく、それをステッパーという装置を用いて縮小投影露光する。

実際に素子を作製する際には、複数のレチクルを交換しながら異なったパターンをウェハ上に繰り返し露光し、図 2.2 のような構造を形成していく。サブミクロンレベルの微細な線によるパターンを繰り返し露光するため、ステッパーには非常に正確な重ね合わせ精度が要求される。

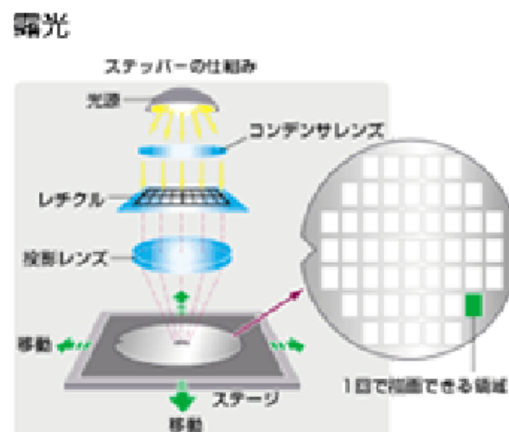


図 4.1: ステッパーによる露光の仕組み

4.1.3 現像

露光したウェハを現像液につけ、不要部分のレジストを除去する。これによってウェハ上にレジストによるパターンが現れる。ネガレジストの現像には有機溶剤を、ポジレジストの現像にはアルカリ溶液をそれぞれ現像液として使用することが多い。

図 4.2 にフォトリソグラフィによるパターンニング原理を示す。

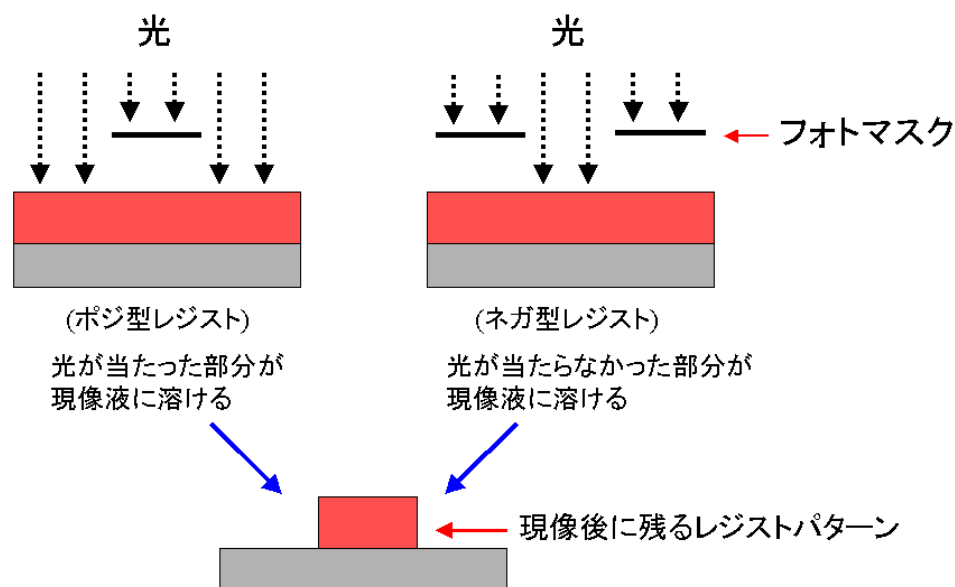


図 4.2: 露光・現像の仕組み

4.2 エッチング

エッチングとは、不要な部分の金属を除去するための技術である。パターン状に露光・現像したレジストが金属薄膜上に乗っている状態でエッチングすることで、必要な部分だけを残し、金属薄膜をパターン状に加工することができる。またエッチングにはドライエッチングとウェットエッチングという2種類の方法がある。

4.2.1 ドライエッチング

エッチングガスをプラズマ化させて試料をエッチングする方法である。

特徴としては、

- 微細加工に強い
- 装置が高価
- フォトリソとの選択性が高い

などが挙げられる。

Ar ガスなどでイオンあるいはプラズマを作り、物理的にスパッタすることで金属を削る方法をスパッタエッチングと呼び、 CF_4 ガスなどを用いてプラズマを作り、イオン、ラジカルによる化学的な反応でエッチングを行う方法を反応性エッチングと呼ぶ。

本研究では、 CF_4 ガスをプラズマ化させ、同時に試料とプラズマの間にバイアス電圧を与えることでスパッタリングと化学反応を同時に起こす、反応性イオンエッチング (Reactive Ion Etching, RIE) という方法を用いて加工を行った。バイアスが印加されているので、図 4.3 のようにイオンは基板に対して垂直に入射する。これを利用して異方性を出すことができる。そのため RIE は、微細加工に適した高い精度でのエッチングが行えることで知られている。

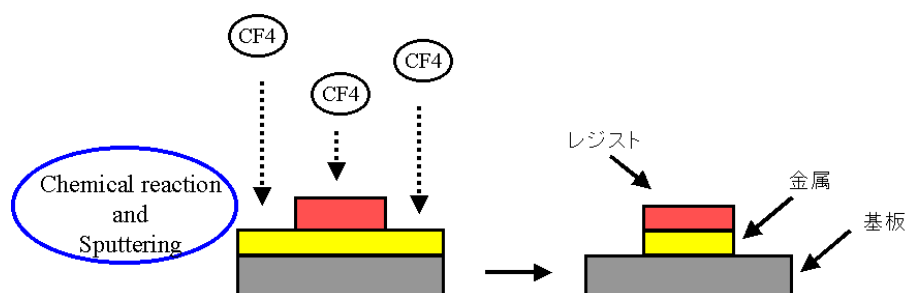
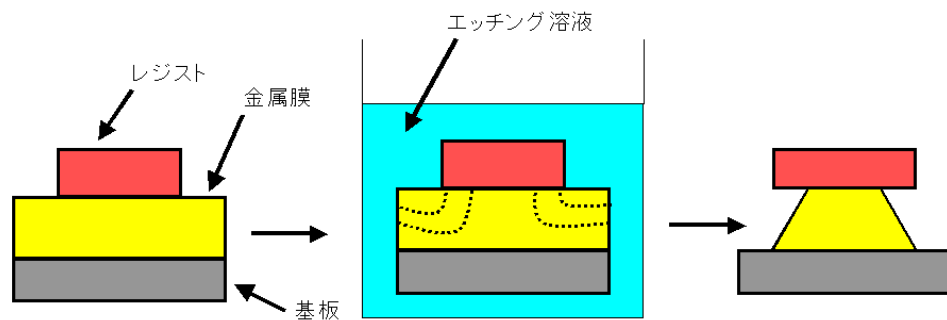


図 4.3: RIE の概念図

4.2.2 ウェットエッチング

金属を腐食溶解する性質を持つ液体の薬品を使ったエッチングである。エッチング溶液として硝酸や王水を用い、これらの溶液に浸けることでレジストの無い部分を溶解させる。

ドライエッチングに比べた長所としては、一度に大量の基板が処理できることや、装置や薬品の価格が安いことが挙げられる。またウェットエッチングの最大の特徴は、図 4.4 のようにエッチングが等方的であることである。そのため、表面上に異物があるときの異物の除去、表面を平坦にする、厚いものを薄くしたいときの高速加工などに優れているが、今回のような微細加工には、あまり向いていない。



ウェットエッチングは等方的であるため
レジストの下の部分も除去されてしまう

図 4.4: ウェットエッチングの等方性

第5章 Hf薄膜の加工方法の評価

5.1 基本的な加工方法

STJ素子のような金属による微細構造を作製する場合、通常はドライエッチングを用いて金属薄膜の加工を行う。その場合の手順を図5.1に示した。具体的には以下の様な工程で加工する。

1. 基板に金属薄膜をスパッタ
2. フォトリソグを塗布
3. 露光・現像によりパターンを形成
4. エッチングにより全体を削る
(レジストのある部分はレジストに保護され、レジストの無い部分は金属薄膜が削れる)
5. 残ったフォトリソグを剥離液により除去

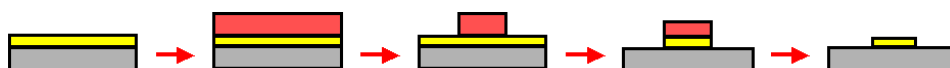


図 5.1: 金属薄膜の基本的な加工手順

しかしドライエッチングではHf薄膜を削ることができず、加工することができなかった。またウェットエッチングによるエッチングも行ったがHfを溶かすことができず、ドライエッチングと同様に加工することができなかった。

5.2 リフトオフ法

5.2.1 加工手順

エッチングによりHf薄膜を加工できなかったため、リフトオフという方法での加工を試みた。リフトオフを用いる場合の手順を図5.2に示した。具体的には以下の様な工程で加工する。

1. 基板にフォトレジストを塗布
2. 露光・現像によりパターンを形成
(エッチングを用いる場合とはレジストを残すパターンが反転)
3. 金属薄膜をスパッタ
4. 上に乗った金属ごとレジストを除去



図 5.2: リフトオフ法による金属薄膜の加工手順

図 5.1, 図 5.2 を見てもわかるように、エッチングを用いる場合とリフトオフを用いる場合では、現像後のレジストのパターンが逆にならなければいけない。そのため、フォトレジストの型 (ネガ・ポジ) を変えるか、マスク部分を反転させたレチクルを用いる必要がある。

5.2.2 結果と考察

リフトオフ法では、Hf 薄膜をパターン状に加工することには成功した。しかし、この方法で加工した Hf は転移温度以下に冷却しても超伝導転移をしなかった。リフトオフ法で加工した Hf が超伝導転移しなかった原因として、3つの可能性を考えた。

1つ目は、パターニングしたレジストがある状態で Hf をスパッタしているため、Hf 薄膜に強い応力が発生している、ということである (図 5.3)。この可能性を確かめるために、ウェハの端の方にできるパターニングの無い部分 (図 5.4) を冷却して転移測定を行ったが、この部分も超伝導転移を起こさなかった。そのため、応力が直接の原因であることは否定された。

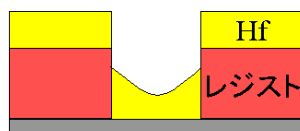


図 5.3: Hf 膜に応力が発生している様子

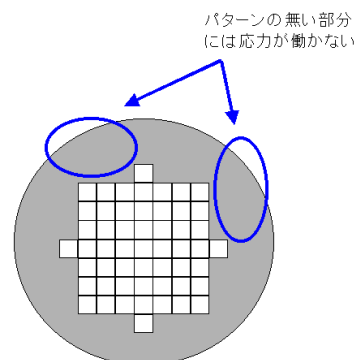


図 5.4: ウェハの端の部分

2つ目は、レジストのある状態で Hf をスパッタしているため、その際にレジストが蒸発して飛散し、Hf 中に不純物として混入しているということである。そして3つ目は、絶縁用の SiO₂ 中の酸素が Hf 薄膜に混入し、Hf を酸化しているということである。この2つの原因を確かめるため、以下の様なサンプルを作製した。

- ①リフトオフによる加工後、直接読み出し配線用 Nb を形成
- ②リフトオフによる加工後、SiO₂ 絶縁膜を成膜し、その後で直接読み出し配線用 Nb を形成
- ③上記と同じ条件で Hf 単膜を成膜

①が超伝導転移を起こさなければリフトオフそのものに原因があり、①が超伝導転移して②がしなければ SiO₂ に原因があると考えられることができる。この3つのサンプルを同時に冷却し、超伝導転移するかを確認したところ、③の Hf 単膜のみが超伝導転移を起こした。そのため、リフトオフ時にレジストが混入しているという可能性が1番高いと考えられた。

5.3 新しい加工方法の評価

リフトオフ法により、微細構造を形成することには成功した。しかし、この方法で加工した Hf は超伝導転移をしなかった。超伝導転移しない原因として、Hf をスパッタする際にレジストが混入している可能性が高いと考えられたので、それを防ぐような加工方法を試みた。

5.3.1 薄膜によるキャップ

Hf をスパッタするときレジストが飛散するのを防ぐため、レジストをパターニングした後に薄膜をスパッタすることでキャップをするという方法を試みた。具体的な行程は以下の通りである。

1. 基板にレジストを塗布し、露光・現像してパターンを形成
2. キャップ用の薄膜をスパッタ
3. レジストを塗布し、露光・現像してパターンを形成
4. エッチングにより中の薄膜を削る
5. アッシング¹により上のレジストのみ除去
6. Hf をスパッタ
7. 上に乗っている薄膜および Hf ごとレジストを除去

¹CF₄ ガスではなく O₂ ガスを用いてエッチングすることにより、有機物であるレジストのみを燃焼(灰化, Ashing)させる。エッチングと同様にイオンは上から垂直に入射するため、薄膜の上にあるレジストだけを除去することができる。

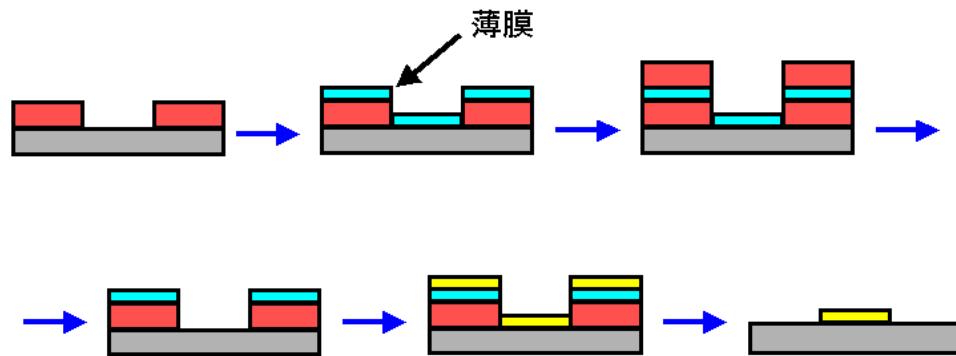


図 5.5: 薄膜によるキャップをしながらのリフトオフの手順

5.3.2 メタルマスク

薄膜によるキャップと同様にレジストの混入を防ぐために、メタルマスクを用いる方法を試みた。この方法では金属を使ってパターンを作り、そこへ Hf をスパッタする。その後で塩酸などを用いてマスクの金属を溶かし、リフトオフと同様の効果を得る。Hf が塩酸で溶けないことは、ウェットエッチングを試みたときに確認済みである。具体的な行程は以下の通りである。

1. 基板にレジストを塗布し、露光・現像してパターンを形成
2. マスク用の金属をスパッタ
3. レジストを除去して、金属のパターンを形成
4. Hf をスパッタ
5. 塩酸で金属を溶かす。上に乗っている Hf も除去される

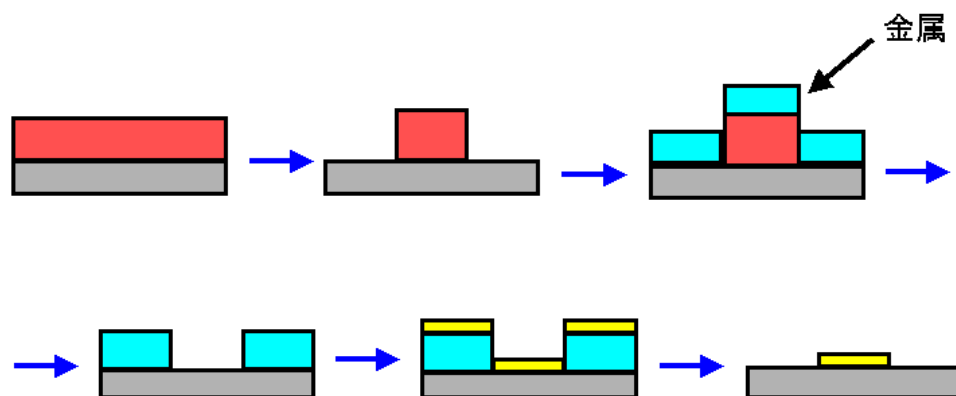


図 5.6: メタルマスク法での加工手順

5.3.3 結果と考察

薄膜によるキャップ

この方法ではキャップに用いる薄膜によって、転移特性が異なった。

キャップに Nb を用いた場合、転移温度 2.15K で超伝導転移した。これは、キャップに用いた Nb が残留もしくは Hf に混入して、Hf の転移温度 0.165K が Nb の転移温度 9.20K によって引き上げられていると考えられる。超伝導転移は確認できたが、Hf の転移温度よりは大幅に高く、Hf-STJ の作製には適用できない。

キャップに SiO₂ を用いた場合、弱い超伝導転移を示した。超伝導転移はしていたが、微弱な電流 (200nA) を流しただけで転移が破れるという結果だった。そのため、これについても STJ には適用することはできない。

また、キャップに Al₂O₃ を用いた場合は、超伝導転移をしなかった。

以上より薄膜でキャップをする方法は、用いる薄膜により異なる特性を示すが、今回試みた方法の中で、STJ 作製に適用できるものは無かった。

メタルマスク

メタルマスク法では、マスク用金属に Al を用いてサンプルを作製した。このサンプルは、転移温度 0.116K で超伝導転移をした (図 5.7)。これは、バルク Hf の転移温度 0.165K よりは若干低い温度だが、STJ として使用できる可能性がある。転移温度が低くなった要因としては、残留応力が働いていることなどが考えられ、成膜条件を変えることで膜特性が向上する可能性がある。

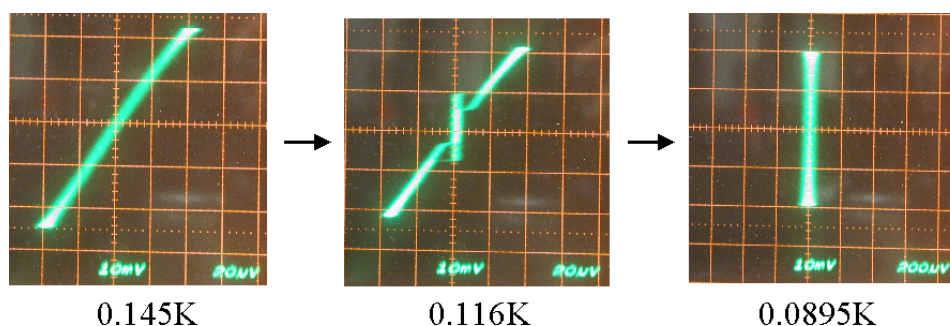


図 5.7: メタルマスク法で加工した Hf の転移測定結果

今後、この方法を用いて Hf-STJ のプロトタイプ開発を行う。また同時に、この方法でさらに良い膜特性を得られるような成膜条件を探索していく。

第6章 まとめ

ニュートリノ崩壊光のエネルギーを測定することで、ニュートリノ振動とは独立な量が測定できるので、これらを合わせて質量を求めることができる。ニュートリノの寿命は非常に長いので、観測には宇宙背景ニュートリノを用いる。宇宙背景ニュートリノの崩壊光のスペクトルは鋭く落ちる特徴を持っており、その特徴を高精度で検出することが重要である。そのためには 30meV 程の遠赤外線エネルギーを一光子ごとに数%の精度で測定できる検出器が必要となる。

優れたエネルギー分解能を持つ検出器として注目したのが、超伝導トンネル接合素子 (STJ) 検出器である。ただし、現時点で開発されている STJ ではニュートリノ崩壊光を観測できるだけの性能を持っていないため、新型の STJ を開発する必要がある。

本研究で開発を目指したのが、超伝導体として Hf を用いた STJ である。Hf-STJ の作製にあたり、Hf 薄膜の成膜条件、Hf 薄膜の加工方法を調べる必要がある。成膜条件は、残留内部応力、表面粗さ、転移温度などを測定することにより、投入パワー 300W, Ar ガスの圧力 1.5Pa という条件が、最適な成膜条件であることが決定できた。

また加工方法に関しては、エッチングでは Hf 膜を加工することができなかった。リフトオフ法では、Hf をパターン状に加工することには成功したが、この方法で加工した膜は超伝導転移をしなかった。リフトオフ法に加工した膜が転移しなかった理由として、フォトレジストが Hf に混入していることが考えられたので、それを防ぐような方法を考案した。

薄膜でキャップをしてから Hf をスパッタする方法では、キャップに用いる薄膜によって加工後の Hf が様々な特性を示したが、STJ として用いることができるようなものはできなかった。

Al を用いたメタルマスク法では、加工後の Hf が超伝導転移を示した。バルク Hf の転移温度よりは若干低い温度だったが、STJ として使用できる可能性がある。今後、この方法を用いて Hf-STJ のプロトタイプ開発を行う。また同時に、この方法でさらに良い膜特性を得られるような成膜条件を探索していく。

謝辞

本研究を進めるにあたり、指導教員の金信弘教授に大変お世話になりました。先生の適切なご指導は、研究を進める上での大きな支えとなりました。

また、受川史彦教授, 原和彦先生, 丸山和純先生, 武内勇司先生には数多くの助言を頂き、大変感謝しております。

STJ 作製に関しては、理化学研究所の佐藤広海さんに丁寧に指導していただきました。お忙しい中、本論文についても助言をしてくださり、ありがとうございました。

事務の神代和子さん, 研究室の皆様にも心より感謝いたします。特に一緒に研究を行ってきた武政健一君には様々な面で助けていただきました。

最後に、精神的・経済的に支えてくれた家族・両親に感謝いたします。

参考文献

- [1] 原康夫, 『素粒子物理学』, 裳華房 (2003)
- [2] 武政健一, 卒業論文 『ニュートリノ崩壊の探索』, 筑波大学 (2007)
- [3] 宇野良清, 津屋昇, 新関駒二郎, 森田章, 山下次郎, 『キッテル 固体物理学入門(上)』, 丸善株式会社 (2005)
- [4] H.Kamerlingh Onnes, Leiden Commun. 120b, 122b, 124c (1911)
- [5] J.Bardeen, L.N.Cooper, J.R.Schrieffer, *Phys. Rev.*, 108, 1175(1957)
- [6] W.Meissner, R.Ochsenfeld, *Naturwissenschaften*, 21, 787(1933)
- [7] B.D.Josephson, *Phys. Lett.*, 1,251(1962)
- [8] Wood,G.H., White, B.L., *Appl. Phys. Lett.*, 15, 237(1969)
- [9] Twerenbold,D., *Europhys. Lett.*, 1, 209(1986)
- [10] Kurakado.M, *Nucl. Instr. Meth.*, A196,275(1982)
- [11] Klein.C.A, *J. Appl. Phys.*, 39, 2029(1967)
- [12] S.Kraft, et al., Proc. of SPIE Conf. on EUV, X-Ray, and Gamma-Ray Instrum. for Astronomy IX, SPIE Vol. 3445, 226 (1998)
- [13] Morohashi.S, et al., "High-quality Nb/HfO_x/Nb Josephson Junction" *Appl. Phys. Lett.*, 60, 3039-3041 (1992)
- [14] 金原燦, 河野彰夫, 生地文也, 馬場茂, 『薄膜の力学的特性評価技術』, リアライズ社 (1992)
- [15] 麻蒔立男, 『超微細加工の基礎』, 日刊工業新聞社 (2001)
- [16] 赤松清, 『感光性樹脂の基礎と実用』, シーエムシー (2001)