

シリコン3次元微細加工を応用した超高感度原子センサ素子の開発

Utilising Microfabrication for Atomic Sensors

京都大学大学院工学研究科マイクロエンジニアリング専攻 助教 平井 義和

Department of Micro Engineering, Kyoto University, Yoshikazu HIRAI

要旨

レーザ光とアルカリ金属の量子力学効果を使って、脳や心臓の生体磁気を高感度に測定する小型原子磁気センサや自動運転用のジャイロセンサ、さらにIoT社会における莫大な情報に正確な時刻データを与える小型原子時計が注目されている。これらの原子センサの素子部である「ガスセル」は、シリコンとガラスで作製した小型の容器にアルカリ金属とバッファガスを封入・封止して作製する。本研究では、センサ心臓部とも呼ばれるガスセルの高性能化を目的に、シリコンの3次元微細加工を応用した新しいウェハレベルのガスセル作製技術を開発した。また実用的なガスセル作製技術へ展開するために、ガスセル内の残留ガス種とその圧力変動を測定する装置と分析法を構築し、提案した作製技術が長期間の性能安定性へ寄与できることを確認した。

1. はじめに

近年、脳や心臓の生体磁気を高感度に測定する原子磁気センサや、高精度な時刻同期と低消費電力を達成できる原子時計の小型化に関わる研究開発が世界で進められている[1]。例えば図1は、CPT (Coherent Population Trapping) 共鳴方式に基づく小型原子時計の量子部を模式的に表したものである。構成要素の中でセンサ素子的な役割をする「ガスセル」は、シリコンとガラスを陽極接合して作製した小型の容器にアルカリ金属 (Cs, Rb) と緩衝ガス (Ne, Ar, N₂) を封入したものである。これに特定の周波数のレーザ光を照射した際に起こる CPT 共鳴を利用して周波数基準を得る[2]。小型原子時計の応用先では、長期に渡る周波数安定度が重要な性能となる。そのためガスセルの高性能化に向けては、ガスセルへのアルカリ金属封入とガスセル内の圧力変動を抑えることが可能な作製技術の確立が望まれる。

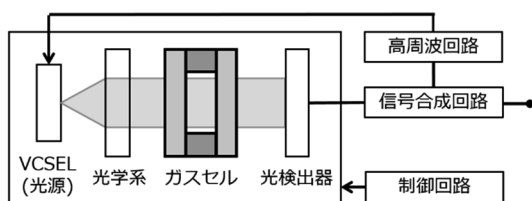


図1 小型原子時計の量子部

これまでに、半導体微細加工技術を使った様々なガスセル作製法が提案されてきた[3]。近年では市販の Cs ディスペンサをガスセルに封止し、これをレーザ光で局所加熱して Cs を生成する方法が幅広く利用されている[4]。これに対して我々は、Cs 生成試薬の1つであるアジ化セシウム (CsN₃) と多孔質アルミナを使った Cs 生成源を開発した[5]。本生成源は、マイクロサイズの気孔を多数含有するアルミナ基板に CsN₃ 水溶液を滴下して乾燥させ、気孔構造の表面に CsN₃ 結晶を担持したものである[6]。これを約 310 °C に加熱して CsN₃ を分解すると、高効率に Cs が生成できる[5]。一方で、試料チャンバ内に残存した Cs 生成源が「異物」となって圧力変動 (残留ガスの放出・吸着) の要因となり、長期の周波数安定度の低下を引き起こす問題があった (図2)。

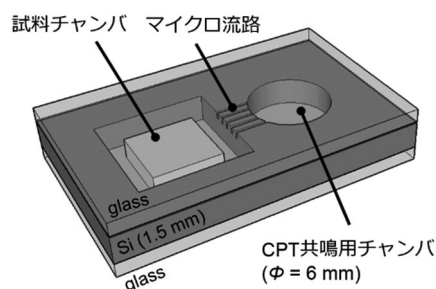


図2 小型ガスセルの模式図

本研究では、Cs 生成源に起因するガスセル内の圧力変動を抑えるため、多孔質アルミナの気孔をガスセルの構成材料と同じシリコンの3次元微細構造で模倣する(図3)。これにより、ガスセル内のCs生成源からの脱ガスと長期間の圧力変動を抑えられ、周波数安定度の向上が期待される。本稿では、シリコンの3次元微細加工で作製したCs生成源とそれを使ったウェハレベルのガスセル作製技術を報告する。また、実用的なガスセル作製技術へ展開するために、ガスセル内の残留ガス種とその分圧を質量分析計で測定し、提案した作製技術の有用性を議論する。

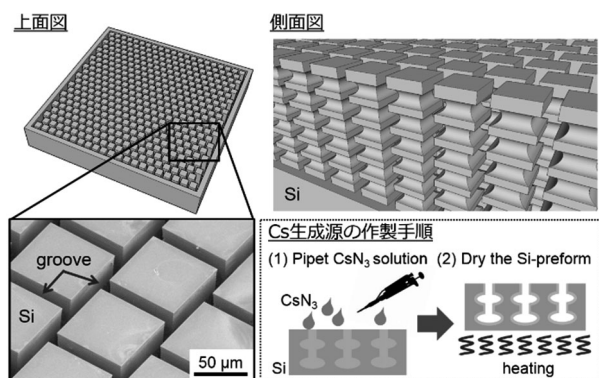


図3 シリコン製Cs生成源

2. シリコン製アルカリ金属生成源

Cs 生成試薬である CsN₃ の分解反応は、以下の化学式で表される。ガスセル内で CsN₃ を分解すると、Cs 生成と同時に緩衝ガスの N₂ も生成・封入できる特徴を有する。

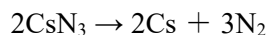


図3に示したシリコンの3次元微細構造は、高アスペクト比加工に用いられるシリコンドライエッチング技術(Deep Reactive Ion Etching: DRIE)を応用した。DRIEはシリコンの等方性エッチングステップと側面保護膜の形成ステップを繰り返しながら厚さ方向にエッチングし、垂直な溝を形成する加工技術である。このプロセスシーケンスの途中に凹形状を形成する等方性エッチングを追加することで、深溝構造の側壁に数十 μm の凸凹構造を形成する(図4) [7]。作製したシリコンの3次元微細構造へ CsN₃ 水

溶液を滴下し、凸凹の表面に沿うように CsN₃ を析出して Cs 生成源とする。以下にシリコン深溝の凸凹構造の作製プロセスの詳細を示す。

1. DRIE のマスク材となる Cr を電子線蒸着で成膜
2. フトリソグラフィで深溝構造となる部分をパターンニング
3. フォトレジストをマスク材として Cr をエッチング
4. DRIE でシリコンの厚さ方向にエッチングを行い、深溝構造を形成
5. 深溝構造の底面の保護膜を除去
6. 等方性ドライエッチングで凹部を形成
7. 凹部に保護膜を形成
8. 底面の保護膜を除去した後、DRIEにより深溝構造を厚さ方向にさらに形成
9. 連続した凸凹構造を厚さ方向に形成するため、5~8のプロセスを繰り返す

作製したシリコンの3次元微細構造と CsN₃ が析出した様子を走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)で観察した結果を図5に示す。60 μm 程度の凸凹が、深溝構造の側壁に形成できている。この3次元微細構造に CsN₃ 水溶液を滴下した。その結果、深溝構造の内部まで CsN₃ 水溶液が浸透し、凸凹構造の表面に沿って CsN₃ を析出させることができた。

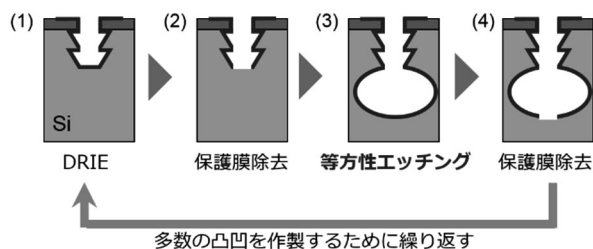


図4 シリコンの3次元微細構造の作製方法

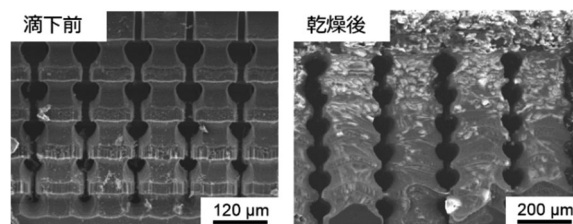


図5 Cs生成源のSEM写真

3. ガスセル作製技術

Cs 生成源を用いたウェハレベルのガスセル作製技術の実証には、市販の Cs ディスペンサーを使った小型ガスセルでの標準デザインとなっている 2 チャンバ方式を採用した (図 2)。小型ガスセルのチャンバ部の厚さ (光路長) は 1.5 mm とし、Cs 生成源を入れる試料チャンバと CPT 共鳴用チャンバはマイクロ流路で接続されている。本研究のマイクロ流路は幅 30 μm 、深さ約 500 μm とし、DRIE のマイクロローディング効果[8]を用いて両チャンバと同時に作製した。Cs 生成源から生成した Cs は、このマイクロ流路を通して CPT チャンバに供給される。

小型ガスセルの作製プロセスを図 6 に示す。本プロセスでは、Cs 生成源が入ったガスセルをガラスで真空封止する 2 回目の陽極接合の温度と CsN₃ の分解温度の整合性が重要となる。つまり一般的な陽極接合におけるガラスとシリコンの接合温度は約 400 °C であり、このプロセスではガスセルを封止する前の約 315 °C で CsN₃ の分解反応が起こる。そこでこの問題を解決するために、O₂ プラズマおよび N₂ プラズマで構成されるシーケンシャルプロセスによる表面活性化処理を適用し、シリコンとガラスを約 350 °C で陽極接合した[9]。

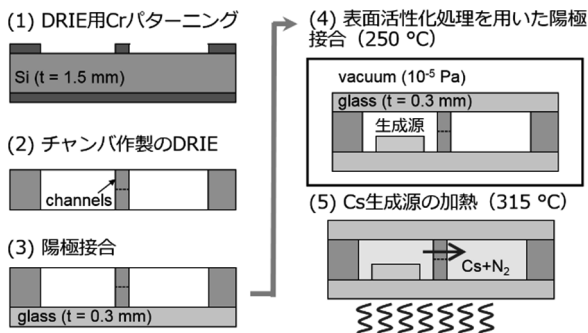


図 6 ガスセル作製プロセス

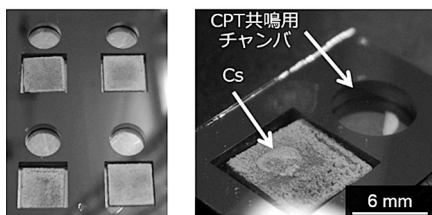


図 7 作製したガスセルの写真

図 7 にウェハレベルで作製した小型ガスセルを示す。これらを約 315 °C で 15 分程度、ホットプレートで加熱すると、Cs 生成を確認した。先行研究の CsN₃ を使った方法では、500 °C 以上の加熱や数時間の UV 照射が必要であったことから、本研究のガスセル作製技術は飛躍的に Cs 生成の低温かつ短時間が可能となった。さらにガスセルの小型化を目標に、シリコンの 3 次元微細構造をガスセル周辺のシリコン部に直接加工する検討も行った。その結果、Cs 生成源を CPT 共鳴用チャンバの周囲に配置した構造を、前述した作製プロセスとほぼ同様の手順で作製できることを確認した。

4. ガスセル内の残留ガス分圧測定

本研究のガスセル作製技術が圧力変動の抑制に有効であることを実証するため、ガスセル内の残留ガス種とその分圧を「ガスセル分圧測定装置」を構築して測定した (図 8)。本装置は、真空チャンバ内にヒーター付ステージと破断器が設置されており、この破断器で CPT 共鳴用チャンバのガラス窓を破壊する。ガスセルから放出された残留ガスの分圧を四重極型質量分析計で測定する。測定手順を以下に示す。

1. 真空チャンバ内の加熱ヒーター付ステージにガスセルをセット
2. バックグラウンドノイズとなる測定装置内の残留ガスを除去するために、チャンバおよび配管などを 200 °C でベーキング
3. ヒーターでガスセルを 80 °C に加熱保持
4. ガスセルのガラス窓を破壊し、質量分析計で分圧を測定
5. 測定した分圧変化を時間積分することで、ガスセル内の残留ガス量を算出

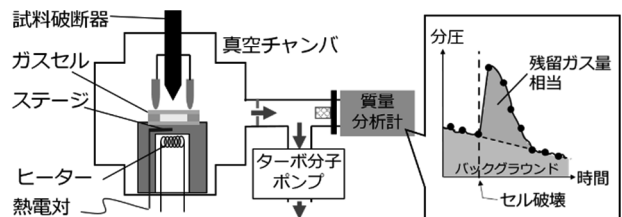


図 8 ガスセル分圧測定装置の概要

本研究では、陽極接合時に生成される O_2 、緩衝ガスである N_2 、Cs と反応する H_2O の 3 種類の分圧を測定した。具体例として、シリコンの 3 次元微細構造 (CsN₃ の滴下無し) を封止したガスセルでの測定結果を図 9 に示す。セル破壊前後で N_2 の分圧が変化しており、残留ガスとして N_2 が主に検出された。一方、 H_2O と O_2 の変化は小さく、バックグラウンドとの区別がつかない程度であった。測定結果を分析してガスセル内の分圧に換算すると、 N_2 は 9.8 Pa、 O_2 は 0.1 Pa であり、 H_2O については変化が非常に小さく検出できなかった。同様に、我々が先行研究で用いた多孔質アルミナの生成源を封入したガスセル、また生成源を封入していない (未封入) ガスセルで測定した残留ガス量を表 1 にまとめる。なお表中の N.D. は Not Detectable の略であり、測定中の分圧変化が小さかったこと、または分析しても測定装置の検出限界である 0.1 Pa 未満となったことを意味する。

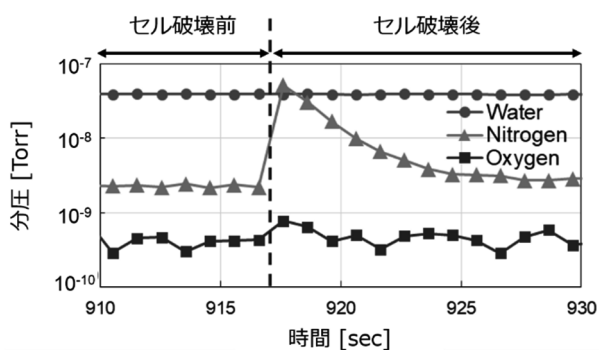


図 9 分圧測定の結果 (シリコン構造体)

表 1 残留ガス量のまとめ

ガス種	分圧 [Pa]		
	シリコン	アルミナ	未封入
N_2	8.6	3973.4	1.0
O_2	N.D.	0.6	N.D.
H_2O	N.D.	6.3	N.D.

まず未封入のガスセルの結果をみると、 N_2 の分圧は約 1 Pa と小さく、 O_2 と H_2O についても 0.1 Pa 未満と小さかった。ゆえに Cs 生成源を封止した他のガスセルとの比較から、主な脱ガス源は、シリコンや多孔質アルミナの 3 次元

微細構造体である。

次にシリコンの 3 次元微細構造を封入したガスセルの残留ガス量は、 O_2 と H_2O が 0.1 Pa 未満と極めて少なかった。これらのガス種は Cs と容易に化学反応し、ガスセル内に封入・封止された Cs の原子密度を減らす要因となるものである。したがってシリコンを Cs 生成源の基材に用いれば、残留ガスとの化学反応によって Cs が消費されることを抑制し、安定した原子密度を得ることが可能である。

また先行研究の一般的な陽極接合で作製したガスセルの残留ガス量の分析結果では、本研究の結果と比較して約 3 桁も高い O_2 が報告されている[10]。陽極接合においては、一般にガラス中に含まれる Na_2O の酸素原子が接合反応に関わるため、 O_2 が残留ガスとして発生する[11]。一方、本研究のハイブリッド接合は接合に必要な酸素原子をプラズマにて供給するので、 O_2 の発生を抑えられる。したがって本研究の測定結果において O_2 分圧が比較的小さかったのは、ハイブリッド接合によるものと判断できる。

最後に、残留ガスとしての N_2 は数 Pa であった。本研究で作製したガスセルは光路長 1.5 mm (ガスセル作製用 Si 基板の厚さ)、直径 6 mm の光学窓を有しており、理論的に最高の周波数安定性が得られる N_2 は 25 kPa 程度である。したがって、Cs 生成と同時に生成された所望の緩衝ガス (N_2) 圧に対して脱ガスによる数 Pa の N_2 の変動は極めて小さいので、周波数安定度への影響は小さいといえる。

以上の議論から、本研究のガスセル作製技術はガスセル内の残留ガスを低減でき、原子センサの周波数安定性の向上に有用であることが明らかになった。さらにウェハレベルで作製した複数のガスセルを用いて、別途、同様の分圧測定と分析を行った結果、約 1 ヶ月間の N_2 、 O_2 、 H_2O の圧力変動は小さく、ガスセル内のシリコン製 Cs 生成源の長期的な周波数安定性への影響は小さいことも明らかになった。

5. まとめ

CPT 共鳴方式に基づく原子センサ用小型ガス

セルのウェハレベル加工技術として、シリコンの3次元微細構造にCsN₃を析出したCs生成源を開発し、作製した小型ガスセル内の残留ガス種と圧力変動を評価した。シリコン製のCs生成源は、従来のガスセル作製技術よりも低温かつ短時間でCsをガスセル内に封入・封止できることを確認した。またガスセル内の残留ガス種とその分圧を分析した結果、ガスセル性能に影響するN₂、O₂、H₂Oの分圧は10 Pa未満と少量であり、その圧力変動は小さいことを明らかにした。したがって、本手法は原子センサの周波数安定度の向上に貢献できるガスセル作製技術であるとともに、産業応用上の有用性が高いものであるといえる。

謝辞

本研究の一部は、公益財団法人京都技術科学センターによる研究助成、また文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業（京都大学微細加工プラットフォーム）の支援を受けて実施された。

参考文献

- [1] J. Kitching, *Appl. Phys. Rev.*, vol. 5, 031302, 2018.
- [2] J. Kitching, S. Knappe, and L. Hollberg, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 81, pp. 553–555, 2002.
- [3] P. Knapkiewicz, *Micromachines*, vol. 10, 25, 2019.
- [4] M. Hasegawa, R.K. Chutani, C. Gorecki, R. Boudot, P. Dziuban, V. Giordano, S. Clatot, and L. Mauri, *Sens. Actuators, A*, vol. 167, pp.594–601, 2011.
- [5] Y. Hirai, K. Terashima, K. Nakamura, T. Tsuchiya, and O. Tabata, in *Proc. of Transducers 2017*, pp.431–434.
- [6] K. Ban, Y. Hirai, K. Tsujimoto, A. Terao, N. Mizutani, T. Kobayashi, and O. Tabata, *J. Vac. Sci. Technol. A*, vol. 34, 061601, 2016.
- [7] H.T.M. Pham, J. Wei, C.R. de Boer, and P.M. Sarro, in *Proc. of Transducers 2007*, pp.497–500.
- [8] R.K. Chutani, M. Hasegawa, V. Maurice, N. Passilly, and C. Gorecki, *Sens. Actuators, A*, vol. 208, pp.66–72, 2014.
- [9] M.M.R. Howlader, S. Suehara, H. Takagi, T.H. Kim, R. Maeda, and T. Suga, *IEEE Trans. on Adv. Pac.*, vol. 29, pp.448–456, 2006.
- [10] M. Hasegawa, R. K. Chutani, R. Boudot, L. Mauri, C. Gorecki, X. Liu, and N. Passilly, *J. Micromech. Microeng.*, vol. 23, 055022, 2013.
- [11] S. Mack, H. Baumann, U. Gösele, H. Werner, and R. Schlögl, *J. Electrochem. Soc.*, vol. 144, pp.1106–1111, 1997.

研究成果発表

- (1) Y. Hirai, K. Nakamura, Y. Kimoto, T. Tsuchiya, O. Tabata, “Alkali Metal Dispenser Utilizing Scalloped Silicon Groove for Microfabricated Vapor Cells”, The 2018 IEEE International Frequency Control Symposium (IFCS 2018), Olympic Valley, CA USA (May 22-24, 2018), ThP27.
- (2) Y. Hirai, K. Nakamura, Y. Kimoto, T. Tsuchiya, O. Tabata, “Low-temperature Alkali Metal Production Utilizing Scalloped Silicon Grooves for Microfabricated Alkali Vapor Cells”, The 9th Asia-Pacific Conference of Transducers and Micro-Nano Technology (APCOT 2018), Hong Kong (June 25-27, 2018), 94.
- (3) 木元雄一, 中村克生, 平井義和, 土屋智由, 田畑修, “Si製アルカリ金属生成源を用いた小型原子時計用ガスセルプロセスの開発”, 第28回マイクロエレクトロニクスシンポジウム, エレクトロニクス実装学会, 吹田 (2018年9月6日~7日), pp.311-314.
- (4) K. Nakamura, Y. Kimoto, Y. Hirai, T. Tsuchiya, O. Tabata, “Microfabrication of Alkali Vapor Cells with Lower the Outgassing and Temperature Utilizing Silicon 3D Structure”, The 32nd IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (IEEE MEMS 2019), Seoul, Korea (January 27-31, 2019), pp.350–353.