

## 論文の内容の要旨

論文題目 超伝導転移端センサによる高エネルギー分解能  
X線マイクロカロリメータの研究

氏名 福田 大治

### 1. 緒言

超伝導を利用した極低温 X 線検出器は波長分散型 X 線検出器に匹敵する数 eV 以下の分解能を持つエネルギー分散型 X 線検出器となり得ることから、現在その開発が精力的に行われている。その一つである超伝導転移端 (TES; transition edge sensor) による X 線マイクロカロリメータは X 線入射によるフォノンの励起状態を検出原理としたものであり、従来のカロリメータの弱点であった低速な応答信号特性を改善し高い分解能を維持したまま高速化を図ることのできる検出器である。TES 検出器では、現在 4.5eV(FWHM)@5.9keV のエネルギー分解能と 500cps の計数率が実現されている。しかしながら、得られた分解能は過剰なノイズ源に制限されており、その物理的な機構は未だよく理解されていない。X 線天文学では更なる分解能の改善が求められており、もし 1eV 程度の分解能が実現できたとすると微細構造線測定による高温プラズマ診断や X 線のドップラーシフト測定による銀河団速度の高精度同定などに画期的な進展をもたらすことが期待されるため、過剰ノイズ源の解明は現在重要な検討課題となっている。さらに計数率という観点でも現状では充分でなく、蛍光 X 線分析などへの応用には一桁以上の計数率の向上が必要である。例えば数 kcps 程度の計数率特性を持った TES 検出器が開発できれば、放射光施設での高輝度 X 線源を用いた ppb オーダの微量元素分布測定、集束イオンビームを用いたリアルタイム PIXE、化学的結合状態の違いに由来する X 線エネルギーピークシフト測定による物質の電子準位構造の解明などが可能となり、そのインパクトは大きいものと予想される。

これらの背景を踏まえて本論文では数 eV 程度の分解能と数 kcps の計数率特性を持った TES X 線マイクロカロリメータの開発を目指した研究を行った。検出器の性能は、超伝導体の転移幅で代表される温度感度 ( $\alpha = d \log R / d \log T$ ) で決定され、エネルギー分解能は  $\alpha$  の平方に反比例、応答時定数は  $\alpha$  に反比例する関係がある。よって、高性能検出器の実現のためにはいかに大きな

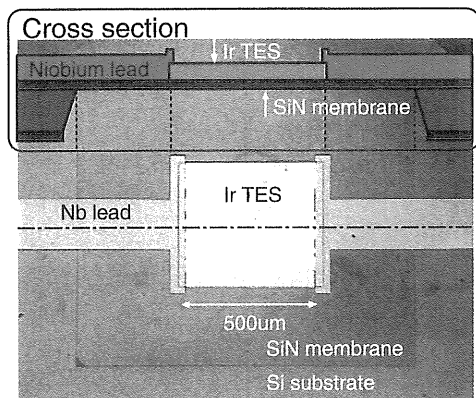


図 1: 試作した Ir-TES の顕微鏡写真と断面図

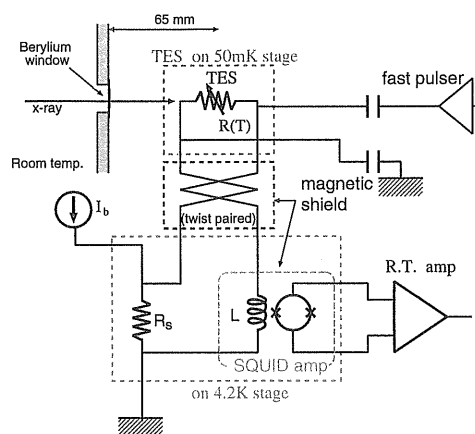


図 2: X 線信号読み出しのための測定系

$\alpha$  値を持った超伝導体を作成できるかが重要となる。本研究では、高性能な検出器の実現を目指し、必要な特性を持った素子を設計・試作するとともに X 線検出特性評価に向けた低ノイズの測定系や極低温を得るための冷凍機についてそれぞれ整備することで検出器開発に必要な総合的な取り組みを行った。また、電流印加時における臨界温度付近の超伝導体が示す特性の解明を目的として、50mK の超極低温走査型放射光顕微鏡の初めての取り組みについても検討を行った。

## 2. 単一超伝導体による検出器開発

高速・高エネルギー分解能の実現を目指し、本研究では単一の超伝導体であるイリジウム (Ir; 原子番号 77) を TES として用いた検出器の開発を行った。Ir は白金系に属する元素であり 112 mK の極低温に超伝導転移を持つ。また、その化学的な安定性から超伝導転移温度や常伝導抵抗値などが経時変化を受けず安定度の高い検出システムとなり得ることが期待される。しかしながら、Ir は Si 基板との親和性の悪さから容易に剥離しやすい問題点があるため、Ir を TES として適用した研究例は極めて少ないものとなっている。本研究で

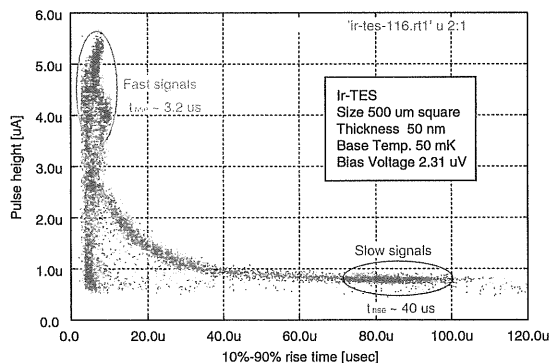


図 3: 波高値と立ち上がり時間の関係

は、Ir の成膜時に 900K にまで基板加熱することでこの問題の解決に成功した。図 1 に試作した素子の顕微鏡写真とその断面図を示す。Ir 素子の大きさは  $500 \mu\text{m}^2$ 、厚さは 50 nm である。素子の作成は主として工学部 10 号館にて行い、スパッタリング装置、フォトリソグラフィーによるパターンニング、反応性イオンエッチングなどを適宜使用して作成している。図 2 には X 線信号検出のための測定系を示す。TES 検出器は希釈冷凍機内のコールドステージ上に設置され 50mK まで冷却される。TES には擬似的に定電圧バイアスを印加し、TES で発生する Joule 加熱を電熱的にフィードバック (ETF; ElectroThermal feedback) させることで温度を超伝導転移領域に安定に保持させる。X 線は冷凍機外側の Be 窓から入射され、77K, 4.2K, 1K, 50mK の各温度槽に設置したアルミマイラによる輻射シールドを経て検出器へと到達する。X 線入射に伴う検出器の信号は  $\sim \mu\text{A}$  の電流変化となって現れることになるが、この測定には超伝導量子干渉素子 (SQUID) を直列に並べた SSA (Series SQUID array) を電流アンプとして適用した。本研究で用いた SSA は産業技術総合研究所にて製作されたものであり、電流電圧変換係数は 600V/A、等価電流ノイズは

1kHz で  $20 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ (入力 open)、帯域は 500 kHz である。作成した Ir 超伝導薄膜の超伝導転移温度は 134 mK であり検出器としてほぼ理想的な温度に転移を持つことを確認した。素子の電流電圧特性を測定した結果から検出器特性を予測すると、温度感度  $\alpha$  は 120 程度が見込め、エネルギー分解能、応答時定数ともに良好な X 線検出器特性を期待できる結果となった。一方、 $^{55}\text{Fe}$  線源を用いた X 線応答性能評価実験では、極めて複雑な応答信号波形が観測された。図 3 に信号波形の立ち上がり時間と波高値の関係を示す。波高値は立ち上がり時間に依存して変化し、波高スペクトルを大きく劣化させることが分かる。信号は大別して立ち上りが速く波高値が大きいものと、立ち上りが遅く波高値が低いものの二つの群に分けることが出来、さらにこれらのグループ間を連続的に変化するものが存在している。立ち上がり時間が速い信号の応答時定数は  $60 \mu\text{sec}$  であり、一部の信号についてはほぼ設計通りの動作をしていることが分かった。立ち上がり時間は入射した X 線のエネルギーが素子内を熱拡散するのに必要な時間と関連があるため、この結果は X 線入射位置により素子応答が異なっていることを示唆するものである。本検出器のエネルギー分解能は、速い立ち上がり時間を持つ信号群のみでスペクトル構成をしても  $180\text{eV}$  であり、電流電圧特性から予測されるものとは大幅に異なる結果となった。

#### 4. 極低温走査型放射光顕微鏡 (LTSSM) による位置依存性評価

前節での実験結果から検出器の応答は素子の X 線入射位置に依存していることが推定された。これについて明らかにするためには、微小に絞った X 線ビームで素子上を走査し各位置での素子応答を測定する極低温走査型放射光顕微鏡による手法が有効である。そこで、本研究では希釈冷凍機を放射光源からのビームライン上に設置し、 $50\text{mK}$  の極低温にある素子に直接 X 線を照射できるシステムの開発を行い素子特性の評価を行った。 $\phi 20 \mu\text{m}$  のコリメート X 線を照射した場合の素子応答はエネルギー分解能  $14.7\text{eV}@3\text{keV}$  を達成し、照射領域を限定すれば分解能の改善が見られることが分かった。一方、X 線を素子に照射しながら応答信号波形の波高値の位置依存性を測定した結果を図 4 に示す。波高値は X 線の入射位置に依存して変化することが本手法により初めて明らかとなった。さらに、波高値が最大となる位置 (図中矢印) はバイアス電圧を低下させるとともに右へと移動していることが分かる。バイアス電圧は検出器動作点における抵抗値とは反比例の関係があり、また波高値は  $\alpha$  に比例するため、上記の結果は  $R$  の減少とともに  $\alpha$  が最大となる位置が右に移動していることに相当する。このことは、素子内部は超伝導相 (S) と常伝導 (N) の二相に分離しており、1. 波高値が最大となる位置が SN 境界を示す、2. その位置から右側は常伝導状態となっている、3. その長さが抵抗値を表す、と考えると定性的な一致を見ることになる。

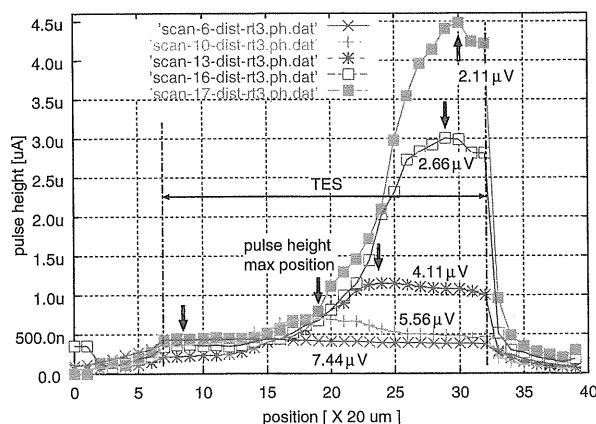


図 4: 位置応答分布のバイアス電圧依存性

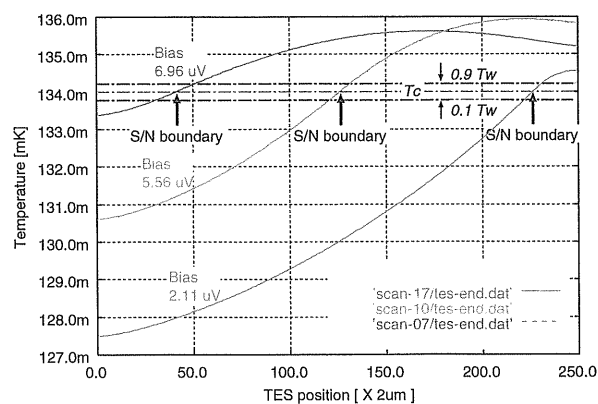


図 5: 数値計算による素子内部温度分布

そこで、この素子内部の超伝導/常伝導相分離モデルについて検証を行うため、熱伝導方程式をもとに素子内部の温度分布に関する考察を行った。図5に数値計算により得られた素子内部の温度分布を示す。内部にはTESの超伝導転移幅以上の温度差が存在し、超伝導/常伝導への相分離が起こり得ることが分かる。このような超伝導/常伝導の相分離はTESの熱伝導率、厚さ、検出器の熱コンダクタンスの三つのパラメータで記述される熱緩和長 $\eta$ (thermal healing length)に関連があり、 $\eta$ で代表される検出器内部温度分布が超伝導の転移幅よりも大きくなるときに分離が生じることを理論的にも明らかにした。また、X線を入射したときの波高値に関する依存性についても数値計算により求め、LTSSMの結果と良好に一致する結果を得た。図4の非対称な位置分布は素子端部の境界が断熱条件であることに由来し、分布は中心に対し可換な遷移を起こすことも実験と数値計算により明らかにした。以上の結果、Irを用いた素子の複雑なX線応答特性は超伝導/常伝導の相分離が原因であることを明らかにした。

## 5. 近接二重層を用いた検出器開発

Irによる素子で見られた超伝導/常伝導の相分離は、検出器特性としては本来望ましいものでなく高エネルギー分解能を得るためにはX線の入射位置に依存せず均一な応答となる必要がある。そこで、相分離を起こさない検出器パラメータを持った素子を設計し、その特性を評価するものとした。本素子では、熱伝導率特性の向上を狙い、Irの上にAuの常伝導金属層をのせたIr/Auからなる近接二重層をTESとして用いた。電流電圧特性から本素子の超伝導転移温度は109 mK、温度感度 $\alpha$ は30となり、 $\alpha$ はやや低い値にとどまったものの良好な検出器特性が期待できることが分かった。図6に $^{55}\text{Fe}$ 線源からのX線を照射したときのエネルギースペクトルを示す。X線応答特性は大幅に改善され、エネルギー分解能は5899 eVのX線に対し14.1 eV(FWHM)を達成した。このエネルギー分解能は主としてX線の熱拡散過程の違いに由来したノイズに支配されると考えられるため、今後、熱拡散長と超伝導転移温度に関してIr/Auの厚さの最適化を行えば更なる分解能の向上が見込めると考えている。

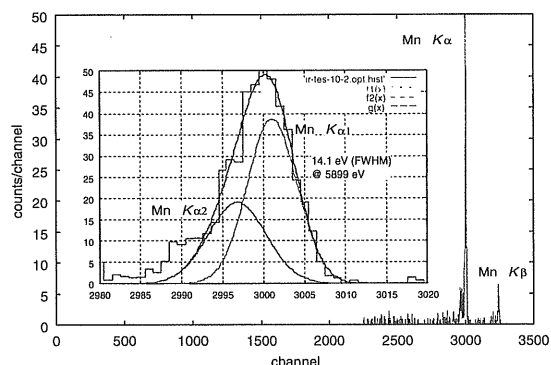


図6: Ir/Au TESによる $^{55}\text{Fe}$ 線源からのX線エネルギースペクトル

## 6. 結言

本研究では、高速・高エネルギー分解能超伝導転移型X線マイクロカロリメータの実現を目指してその開発研究を行った。単一超伝導体イリジウムが示す優れた超伝導転移特性に着目しこれをTESとして開発した素子では複雑なX線信号応答特性となる結果となった。この原因を特定するため極低温放射光顕微鏡の手法を用いて解析を行った結果、素子の複雑な応答は素子内の超伝導/常伝導への相分離過程に由来していることが明らかとなった。超伝導/常伝導境界にX線が入射した場合の応答はエネルギー分解能14.7eV@3keV、応答時定数60  $\mu\text{sec}$ となり応答時定数に関してはほぼ設計通りの動作をしていることが分かった。しかしながら、検出器全面に渡って均一な応答を得るためには相分離を抑制することが不可欠であり、そのためには素子の熱伝導率、厚さ、熱コンダクタンスが満たすべき条件が存在することを明らかにした。この知見をもとに製作したIr/Auの近接二重層による素子では14.1eV@5899eVのエネルギー分解能を達成し、本理論の有効性を検証することができた。