

論文の内容の要旨

Ir-TES ピクセルを用いた X 線イメージングマイクロカロリメータ

大野 雅史

放射線利用は原子炉、核物理、核化学、宇宙線計測等の産業、科学分野から医療に至るまで多岐に渡るが、これを可能にしたのは放射線計測技術の進歩によるところが大きい。計測技術の向上は単にデータの質的向上に留まらず、ライフサイエンス等、急速に進展しつつある領域において新たな分野を切り開く可能性を秘めている。特に X 線計測におけるエネルギー分解能とイメージング能力の向上は今後の先端科学技術の発展に必要不可欠である。これまで X 線検出には Si や Ge 等の半導体検出器や CCD (電荷結合素子) が広く用いられてきたが、これらの中でエネルギー分解能が優れている半導体検出器でも放射線入射で生成する電子正孔対数の統計的な揺らぎにより、理論的なエネルギー分解能は $100\text{eV}@5.9\text{keV}$ 程度が限度である。なお回折格子を通したスリット光を検出する方式はより良い分解能が得られる一方、効率を数桁以上犠牲にしており応用範囲は限られてしまう。近年、Spring-8 の完成で線源の高輝度、高性能化は飛躍的に進歩したが、このような放射光利用による蛍光 X 線化学結合状態分析では、 10keV 以上のエネルギー領域で 1eV 以下という超高エネルギー分解能が要求され、従来の X 線検出技術では到底太刀打ちできない。

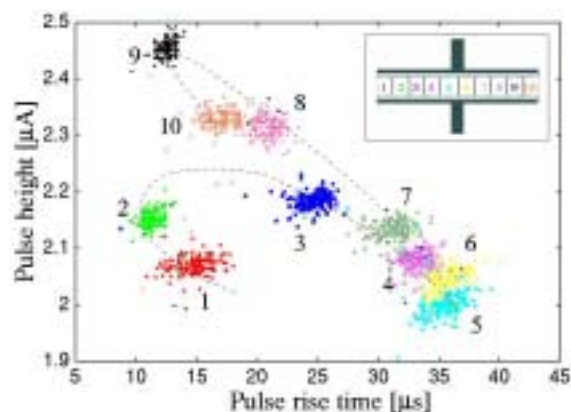
そこで、本論文では放射光を用いた化学分析や生体計測、さらに X 線天体観測等、既存の検出器性能では不十分な先端科学領域からの要求に応えるべく超高エネルギー分解能とイメージングを両立させる革新的な検出技術の確立を目指し、超伝導体を用いたマイクロカロリメータの開発研究を行なった。超伝導体の急峻な転移領域を利用した温度計 (TES : Transition Edge Sensor) と電熱フィードバック (ETF : Electro Thermal Feedback) を組み合わせた X 線マイクロカロリメータは近赤外から 20keV 程度の X 線にいたる広範囲のエネルギー領域で優れたエネルギー分解能と高計数率の両方を実現する検出器である。本論文では温度センサーにイリジウム (Ir) 薄膜を用いたマイクロカロリメータを試作し、X 線入射応答特性を評価した。イリジウムは 112mK に超伝導転移温度を持ち、化学的に安定で、しかも原子番号が大きく X 線吸収効率が非常に高いなど優れた特性を有している。検出素子はマグネトロンスパッタリング法、フォトリソグラフィーや反応性イオンエッチング法などの微細加工技術を用いて作製される。なおマイクロカロリメータでは温度センサー内で X 線入射によるエネルギーが十分に熱化され検出可能な温度パルスを生じさせるために、センサーと外部の系との間を弱い熱リンクで接続することが必要である。本研究では、Ir 薄膜が極薄い窒化シリコンメンブレンに吊り上げられるような構造を用いることで適度な熱コンダクタンスを実現した。作成素子では 134mK 付近で極めて急峻な転移特性が得られ、転移温度近傍で TES に定電圧バイアスを与えると自己加熱によるフィードバックが作用して、

超伝導転移領域内で素子を安定に動作させることができた。X線入射に伴う ETF-TES の抵抗変化は微弱な電流変化として低インピーダンスの信号読み出し法により検出されるが、本研究では電流変化を磁束に変換し超伝導量子磁束干渉素子 (SQUID) を 200 個直列に接続した増幅器で読み出す方式を開発した。このような検出システムを用いて $500\ \mu\text{m}$ 角の正形状 Ir-TES の全面に ^{55}Fe からの X 線を照射して応答特性を評価した結果、ほぼ単色の X 線を計測しているにもかかわらず検出パルスの波高値や立上り時間等に大きなばらつきが生じ、エネルギー分解能を著しく劣化させていることがわかった。この波形のばらつきをさらに詳しく調べるためにシンクロトロン放射光を 3keV に単色化して $20\ \mu\text{m}$ 径にコリメートした X 線マイクロビームを用いて TES を走査し、応答特性を評価したところ、応答信号の波高値や立上り時間は TES 内の X 線入射位置に強く依存することが明らかになった。特に TES 内の電流の向きと平行にスキャンした場合の位置依存性が著しく、しかもバイアス電圧を変化させると高い波高値を示す X 線入射位置が移動することが判明した。このような現象は Ir 薄膜の熱伝導が低いために TES 内部に温度分布が生じ超伝導/常伝導相に相分離していると考えられる。したがって高エネルギー分解能を達成するには TES 内部の温度勾配をなるべく小さくし、単色の X 線入射に対しては波形のばらつきを無くすことが必要である。そこで TES 内の温度勾配を抑制するための手法を検討した結果、TES 薄膜の熱伝導性をあげる方法と TES の電極間隔を狭める手法が有効であることがわかり、それぞれの手法によって TES の熱特性の改善を試みた。

まず、TES の熱伝導性を向上させるために Ir 上に Au を製膜したデバイスを開発した。本デバイスでは近接効果により Ir 単体にくらべ超伝導転移温度の低下が予想されるが、Ir と Au の膜厚比を調節することで超伝導転移を 108mK 付近で生じさせられることがわかった。そこで Ir/Au からなる $200\ \mu\text{m}$ 角の TES を製作し、素子全面に ^{55}Fe からの X 線を照射して応答特性を調べたところエネルギー分解能は格段に向上して 9.4eV を達成することができた。得られたエネルギースペクトルでは Mn の $K\alpha 1(5899\text{eV})$ と $K\alpha 2(5888\text{eV})$ のピークを分離できる迄に至っている。

次に TES の電極間隔を狭めた Ir-TES の開発も進めた。計算によると厚さ 50nm の Ir 膜では電極間隔を $200\ \mu\text{m}$ 以下にすれば超伝導/常伝導相分離が起きないと予測されている。そこで本研究では 1.3mm 角の窒化シリコンメンブレン上に厚さ 100nm の単一イリジウム薄膜からなる大きさ $80\times 160\ \mu\text{m}$ のピクセルを 8 個あるいは 10 個を一行に並列接続したデバイスを開発した。本素子では全ピクセルを同時に定電圧バイアスして、1 個の SQUID アレイで信号を読み出す。まず、素子全面に ^{55}Fe からの X 線を照射して応答特性を調べたところ $500\ \mu\text{m}$ 角のデバイスに比べて波形のばらつきは大きく低減したが、測定波形はいくつかのタイプにわかれることがわかった。応答波形を詳細に解析してみるとそれらはピクセル数と同じ数程度に分類することができ、これは波形が入射ピクセル毎に変化している

ことを強く示唆している。なお入射 X 線のエネルギーは電流波形を積分することにより高精度に検出できることが確認された。そこで本素子の入射ピクセル位置依存性を調べるために $20\ \mu\text{m}$ 径にコリメートした 3keV の X 線マイクロビームを用いて TES を走査して応答信号を評価したところ期待どおり波形とピクセル入射には強い相関が認められた。そして応答信号の立上り時間、立下り時間および波高値をもとに信号分布を見ることで明確に入射ピクセルを特定できることが



図：ピクセル入射毎の応答信号立上り時間と波高値に対する応答信号分布

明らかになった（右図参照）。なお、ピクセルごとに波形が異なる原因は各ピクセルの温度（バイアスポイント）が超伝導転移領域内で微妙に異なっていることによると考えられる。また、本素子では 3keV の X 線入射に対しても応答波形は先がつぶれた形を示すことがわかった。これは 1 ピクセルあたりの熱容量が小さいため 3keV 程度のエネルギー入射でも入射ピクセルは飽和し、転移領域を飛び越え完全な常伝導に移行して電流変化に寄与しなくなるによるものである。したがってこのような波形では波高値は入射エネルギーに比例しないことになり、これまでの TES 信号検出において飽和波形は敬遠されるのが常識であった。しかし本素子では飽和波形による波高値は逆にそれぞれのピクセルのバイアスポイントのわずかなずれを反映した値を示すことになり、これが入射ピクセルを同定する上で有意な情報となりうることが証明された。ゆえにピクセル Ir-**TES** は応答波形の立上り時間、立下り時間に加えて波高値を利用することで精度の高い入射ピクセルの決定を行なうことが可能である。10 ピクセル 1 次元アレイ素子では全ピクセルの入射位置の特定と同時に各ピクセルで $26\text{eV}\sim 29\text{eV}$ (FWHM) のエネルギー分解能を実現した。現在、主に天文応用を目的とした大規模 TES アレイの開発が諸外国でも精力的に進められている。しかし SQUID マルチプレクス技術を用いた信号読み出し系はイメージングピクセル数の点で回路の複雑化が避けられず、いまだに大規模 TES アレイはもちろん 2 個の TES を同時に動作させて位置読み出しと高エネルギー分解能の両立を図ることさえ達成されていない。このような現状で本論文の 10 ピクセル Ir-**TES** アレイはイメージング性能を有する TES として世界トップレベルの性能を達成しているといえる。なお本研究ではこの 1 次元 Ir-**TES** アレイをさらに発展させて、 $40\ \mu\text{m}$ 角のピクセル 10 個を 2 列に並べた 2 次元ピクセルイメージングアレイ素子の試作も試みている。現在、15 ピクセル以上の入射位置特定が実現できることは明らかになっているが、全ピクセルの特定には至っていない。しかしながらピクセル配置を最適化することでこれも可能になるものと思われる。