

## 超伝導転移端検出器を用いた放射光 X 線分析



山田 真也\*<sup>1</sup>  
Yamada Shinya



高橋 嘉夫\*<sup>2</sup>  
Takahashi Yoshio



宇留賀朋哉\*<sup>3</sup>  
Uruga Tomoya



神代 暁\*<sup>4</sup>  
Kohjiro Satoshi

### 1 X線マイクロカロリメータの紹介

「X線マイクロカロリメータ」とは、X線の光子を熱に変換し、その量を精密に測定することで、1個ずつのX線のエネルギーを正確に計測する装置のことである。筆者らは、この装置を放射光施設 SPring-8 に持ち込み、2019年7月に初めての動作試験に成功した<sup>1)</sup>。ここでは、検出器の原理や歴史を簡単に紹介しつつ、放射光実験の結果や今後の展開について簡単に紹介したい。

基本原理は、昔からエネルギー放射能測定法の1つのカロリメトリ法として知られているものと同じであり、放射線の持つエネルギーを熱に変換し、その熱量をデジタルあるいはアナログで記録する方法である。マイクロカロリメータは中でも微弱な入力に対して動作するもの、と考えることができる。例えば、6 keV の X 線のエネルギーを 0.1% の精度で測定したい場合を考えてみる。6 keV の X 線のエネルギーは約  $10^{-15}$  [J] である。その X 線の熱を受け取った物体は温度が上昇する。現実的に計測可能なレベルとして約 1 mK と仮定する。その場合、熱容量  $C$  は  $C = \frac{E}{\Delta T}$  より、 $C = \frac{10^{-15} [J]}{1 [mK]} = 1 [pJ/K]$  となる。

つまり、熱容量が約 1 [pJ/K] の物質に X 線を吸収させることができれば、温度が 1 mK 上昇する。実際、X 線吸収体として金やビスマス等の原子番号が大きな元素を用い、厚みが数ミクロンで、幅が数 100 ミクロンとし、温度を 100 mK 程度まで下げると熱容

量（電子比熱で温度の 1 乗、格子比熱で温度の 3 乗に依存）は約 1 [pJ/K] まで下がる。6 keV の X 線に対して約 1 mK の温度上昇する系が実現できたとして、そのエネルギーを約 0.1% (6 eV@6 keV) の精度で計測したい場合は、温度上昇を 1 mK の 0.1% の約 1  $\mu$ K の精度で計測する必要がある。つまり、検出器を 100 mK 程度にまで冷やし、X 線の熱による約 1 mK の温度上昇を 1  $\mu$ K の精度で計測できる温度計を用意できれば、X 線マイクロカロリメータができ上がる、というわけである。

一見難しそうに見える技術であるが、宇宙で利用された実績がある。2016 年に打ち上げられた X 線観測衛星ひとみ (ASTRO-H) に搭載され、宇宙空間で温度揺らぎ 1  $\mu$ K の精度を実現し、エネルギー分解能約 5 eV@6 keV を達成した<sup>2)</sup>。この衛星で X 線吸収体の温度計として使われたのは、半導体マイクロカロリメータであった。この半導体の技術は、エネルギーの帯域が広く取れるメリットもあったが、信号の多重化が極めて難しく、現在では開発の主流は、超伝導から常伝導への転移を用いた超伝導転移端マイクロカロリメータ (Transition Edge sensor; TES) に移行しており、本記事の主役となる検出器である。

### 2 TES の動作原理

TES の動作原理について図 1 を用いて簡単に紹介する。TES に入射した X 線が、吸収体が吸収され

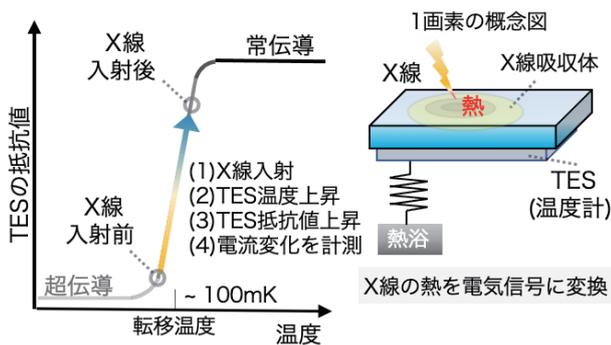


図1 (左) TESの温度と抵抗値の関係と、TESの動作方式の概念説明。(右) 1画素のTESの概念図

ると温度が上昇する。その温度上昇が、超伝導2層薄膜の”温度計”(超伝導金属に常伝導金属を重ねることで、転移温度を制御した2層薄膜)に検知されて、抵抗値が上がる。この抵抗値の変化により、回路に流れる電流が変化し、電流変化を超伝導量子干渉計(SQUID)で計測する。

信号伝搬を律速しているのは、熱伝搬の速度である。これを速くするには、熱伝導を良くして、素早く排熱すれば良い。一方、1発のX線のエネルギーを精密に計測するためには、熱が抵抗変化に十分に交換され、かつそれを時系列で多数回観測した方が良く、良好なエネルギー分解能を保つには、この条件を満足する程度にまでしか、排熱速度は上げられない。一般的には、TESのX線信号のパルスの時定数は数 $\mu$ 秒からミリ秒程度で、一般的なガス検出器等に比べると遅い。

その代わりに、熱を検出しているため、X線のみならず、電磁場、 $\alpha$ 線、そして非荷電粒子の検出も可能である。例えば、理化学研究所の極低温リングRICEでは、中性分子の質量分析器としてTESが使われている<sup>3)</sup>。ダークマターを非弾性散乱で検出する実験等、基礎物理の研究にも使われている。

TESの作製方法は、Si基板に超伝導配線を配置し、ピクセル化した超伝導薄膜を成膜して、その上にX線の吸収体を置く。最後に、X線吸収体の背面の一部をドライエッチングで削ることでメンブレン化し、Si基板を削ることで熱伝導を悪くさせる。実際はもう少し複雑であるが、例えば産総研が有する超伝導デバイス試作施設(CRAVITY)であれば自前で設計・作製ができるため、実験の用途やニーズに応じて、TESをカスタマイズできる。

原理的に可能なエネルギー分解能は、フォノン数の揺らぎを持って概算できる。フォノン数  $\frac{CT}{kT} = \frac{c}{k}$  (kはボルツマン定数)である。よって、フォノン数揺らぎによるエネルギー分解能は  $kT\sqrt{N} = \sqrt{kT^2C}$  とかける(この定義は1 $\sigma$ の揺らぎなので、FWHM表記だと2.355倍になる)。つまり、温度が低いほど、熱容量が小さいほどエネルギー分解能が良い。実際は、環境ノイズや振動等も影響を与えるので、防振やノイズ対策は重要となる。信号はX線パルスの時系列データに対して、最適化フィルタ処理を行うことで、信号ノイズ比を最大化してエネルギーに比例する量を得ることができる。

### 3 TESの基礎性能

SPring-8で取得されたTESの基礎性能について紹介したい。使用したTESは米国NIST製の240素子のシステムである<sup>4)</sup>。X線は4 $\mu$ m厚のBiで光電吸収される。10 keV以下のX線が吸収体まで入射すれば、ほぼ100%の効率で熱に変換できるが、X線がTESの吸収体に届く前に、空気やBe窓等があると、その分だけ効率が下がる。空気をヘリウムに置換、入射窓を工夫することで検出効率は高めることができるが、検出器は100 mKに冷えているため、真空窓と輻射シールドは必要となる。

1つの素子のエネルギーと最適化フィルタ後の値の関係を図2に示す。放射光からのX線をCr, Co, Cu, Ge, Brを混合した試料に照射し、発せられた蛍光X線をTESで計測して、エネルギー較正を行う。エネルギー分解能はCuのK $\alpha_1$ , K $\alpha_2$ が分離できるレベルが達成できている。

240画素ごとのエネルギー分解能の分布を、図3に示した。実際の物理的な素子の配置と同じスケールに対応しており、素子ごとに分解能(@6 keV)を評価している。素子ごとに微妙な個性があるため、素子ごとにエネルギースケールを構築している。1画素のサイズは約300 $\mu$ m角である。1画素が大きいほど受光面積が大きくなるが、その分だけ熱容量も大きくなり、エネルギー分解能は劣化する。そこで、小型TESを多画素備えることで総受光面積を稼ぐ手法がとられる。この場合、多画素TES信号の読出配線を画素ごとに設けると、配線数と共に増

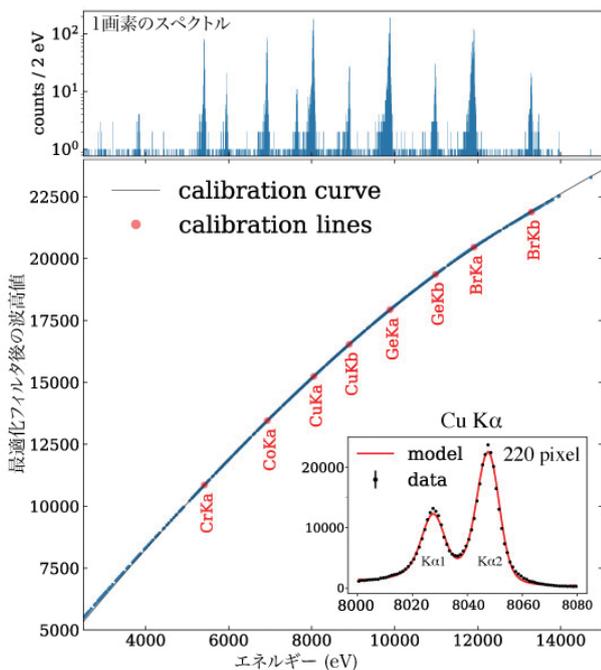


図2 1画素のエネルギー校正の例とCuK $\alpha$ 線の例

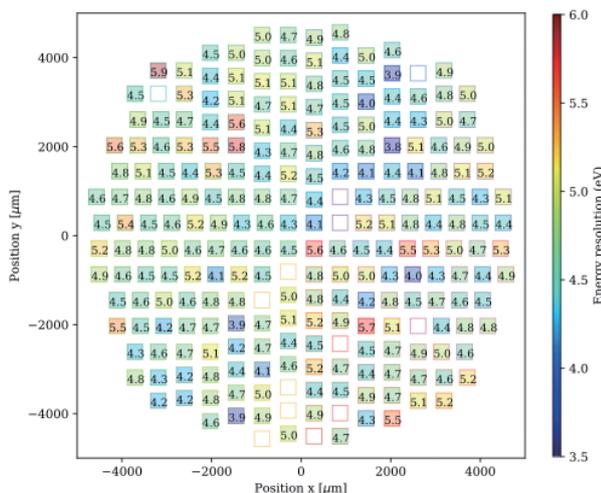


図3 SPing-8で実測された240画素TESのエネルギー分解能@6 keV

実際の物理的な配置に即して表示している

大する室温から極低温への流入熱を除去するため、冷却能力、体積、消費電力の高い極低温冷凍機を備えた分析器とならざるを得ない。これは、宇宙環境等の応用では許容されない。この対策として、多数の読出配線を極低温下で1本にまとめた多重読出回路の開発が、多画素TES実現のための鍵技術の1つとされる。

#### 4 SPing-8でのTES利用と蛍光XAFS応用

筆者らは2019年に初めてSPing-8のビームラインBL37XUにTESを持ち込み、利用することに成功した<sup>1)</sup>。その時のセットアップを図4に示した。入射X線の光軸に試料を配置し、蛍光X線を対面方向に配置したTESとSDD(シリコンドリフト検出器)で同時に計測する。蛍光XAFS(X-ray Absorption Fine Structure)法とは、X線を物質に照射した際に発生する様々な波長の蛍光X線を分析して、その物質に含まれる元素や種類、化学状態を調べる方法である。これまでは、検出効率の高い半導体検出器を用いるとエネルギー分解能が不足し、エネルギー分解能の良い結晶分光器を用いると検出効率が低くなることがジレンマであった。TESを用いることで、エネルギー分解能を維持しつつ、検出効率も高めることができる。

図5に標準試料(SRM610: 61の微量元素をドープしたガラス標準試料)を計測したスペクトルの比較を示す。SDDでは分離不可能な輝線が分離でき、分光結晶法では困難な広域に渡るX線スペクトルを一挙に取得できているのが分かる。

この他、蛍光XAFSを環境試料中の微量元素の化学状態分析に応用することにも成功した。特に気候変動に関係する海洋エアロゾル中の微量な鉄の化学状態分析や、有害物質の挙動解析で重要なヒ素と共存する鉛の化学状態分析等、従来法では困難であった分析が可能となり、蛍光XAFSの適用範囲

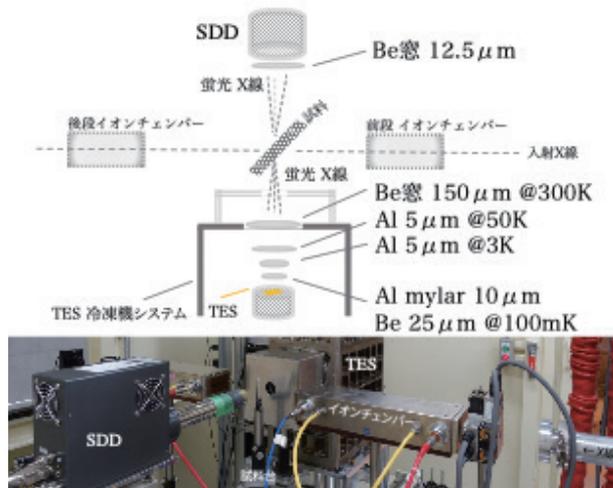


図4 SPing-8でTESを利用する例

ビーム軸に直行する方向から、蛍光X線をTESで測定する

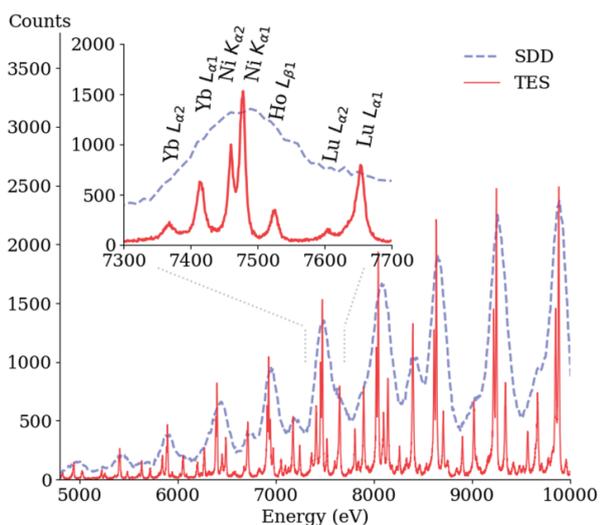


図5 SPring-8で得た標準試料のTESとSDDのスペクトル

が格段に広がったと考えている。

## 5 今後の展開

TESの登場により、広いエネルギー範囲にわたって、高いエネルギー分解能で計測する際の時間が、飛躍的に短縮される。試料損傷の大幅低減の実現も可能になる。また、TESの技術は日進月歩で進化しており、高速化や大有効面積化が進んでいる。多画素化に必要な技術は、筆者らが用いたTESシステムは既にレガシーなシステムに成りつつある。マイクロ波の共振器を用いた新しい多画素読み出しシステムが世界的に急ピッチで進められており、筆者ら後塵を拝することのないように開発を進めている<sup>5)</sup>。

将来的に、環境試料・宇宙化学試料・生物試料中の超微量元素の化学状態分析へ応用が期待される。今後、より高いエネルギー分解能を実現することで、蛍光XAFS法の1つであるHERFD-XANES法

(High-Energy-Resolution Fluorescence Detected X-ray Absorption Near Edge Structure)のように、特定の蛍光X線の波長を細かく分離する方法において、従来は分光結晶により観測帯域が限られていたものが、TESのような非分散型の分光器を用いることで、広帯域で効率の良い計測が可能になる。筆者らは、今後も技術の成熟化を推し進め、宇宙観測、原子分子物理、核物理等の基礎科学、様々な非破壊分析や医療応用等、世の中に幅広く役立つ研究に発展させたいと考えている。

## 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 (JP16H02190, JP18H05458, JP18H03714, JP18H01260, JP18H03713, JP18H03892, JP17H06455, JP20K20527 and JP19K21884) の助成及び、RIKEN Pioneering Project: Evolution of Matter in the Universe に支援いただきました。SPring-8 BL37XU 担当の新田清文博士と関澤央輝博士及び技術スタッフの皆様のご協力に感謝いたします。

## 参考文献

- 1) Yamada, S., *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.*, **91**, 013103 (2021)
- 2) The quiescent intracluster medium in the core of the Perseus cluster, Hitomi Collaboration, *Nature*, **535**, 117-121 (2016)
- 3) Y. Nakano, *et al.*, *STORJ* **17**, 10.7566/JSPSCP.35.011006 (2018)
- 4) Joel N Ullom and Douglas A Bennett, *Supercond. Sci. Technol.*, **28**, 084003 (2015)
- 5) Y. Nakashima, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **117**, 122601 (2020)

(\*<sup>1</sup> 立教大学理学部, \*<sup>2</sup> 東京大学大学院理学系研究科, \*<sup>3</sup> 高輝度光科学研究センター (JASRI), \*<sup>4</sup> 産業技術総合研究所デバイス技術研究部門)