九州大学学術情報リポジトリ Kyushu University Institutional Repository

超ウラン元素非破壊分析用TES型マイクロカロリメー タの開発

前畑, 京介 九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門

https://doi.org/10.15017/1854994

出版情報:九州大学低温センターだより.9, pp.2-5, 2015-03. 九州大学低温センター バージョン: 権利関係:

前畑京介

九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門

1. はじめに

物質から放射される特性X線のエネルギースペクトルを精度よく測定することで、物質を 構成する元素を非破壊で分析することができる。X線のエネルギースペクトル計測法には、 分光結晶や回折格子などを利用したモノクロメータにより、特定波長のX線だけが検出器に 入射するようにして計測する波長分散型スペクトル計測(WDS)法と、物質に入射したX線光 子のエネルギー付与により生成された電荷を信号として計測するエネルギー分散型スペクト ル計測(EDS)法がある¹⁾。試料から発生するX線の強度が強く、高い精度でX線検出光学系の 幾何学的配置が構築できる放射光実験施設や電子プローブ微量分析装置(EPMA)などでは、 WDS法が利用されるが、一般的な非破壊分析ではEDS法が利用される。EDS法では、検出器に 入射したX線のエネルギー付与により生成された電荷を電圧パルス信号に変換して読み出し、 X線のエネルギーに比例する検出信号のパルス波高値を計測する。通常、X線のEDSには、X線 のエネルギー付与により生成された電子-正孔対を信号電荷とする半導体検出器が使用され る。半導体検出器のエネルギー分解能はほぼ理論限界に到達しており²⁾、EDS法による分析の 精度を飛躍的に向上するためには、半導体検出器より1桁以上優れたエネルギー分可能を有 する新しい検出器の開発が必要となる。

半導体検出器より優れた検出感度とエネルギー分解能性能を達成する次世代のX線検出器 として、熱容量が十分小さくなる極低温に保持された物質に入射したX線光子のエネルギー を温度上昇として精度良く計測するマイクロカロリメータがある³⁾。マイクロカロリメータ は、X線エネルギーを熱に変換する吸収体、微小な温度上昇を計測する温度計およびX線エネ ルギー吸収による熱を冷熱浴に排熱する熱結合から構成される。超伝導薄膜の超伝導転移領 域における急激な電気抵抗変化を温度計として利用する超伝導転移端センサ(TES: superconducting transition edge sensor)型マイクロカロリメータは、エネルギー1.5keV のA1 K_aX線光子を半値幅0.87eVという非常に優れたエネルギー分解能で計測しており⁴⁾、既 に実用段階に入っている。我々は、プルトニウム(Pu)同位体などの超ウラン元素を非破壊 で分析することを目的として、原子力研究開発機構(JAEA)、宇宙航空研究開発機構宇宙科 学研究所(ISAS/JAXA)等と共同でTES型マイクロカロリメータによる超ウラン元素のLX線ス ペクトル計測に関する研究を展開している。本稿では、我々が開発したTES型マイクロカロ リメータによる²⁴¹Am、²³⁸Pu及び²³⁹Pu線源のLX線スペクトル計測の研究について紹介する。

2. TES型マイクロカロリメータの作製

マイクロカロリメータとは、吸収体に入射したX線光子のエネルギーを温度上昇に変換し、 入射エネルギーに比例した温度上昇を計測する検出器である。TES型マイクロカロリメータ では、電気抵抗が超伝導-常伝導相転移領域において非常に急峻な温度依存性を示す超伝導 薄膜を温度計として利用する。図1にTES型マイクロカロリメータのX線光子検出過程を示す。 電気抵抗 R の温度 T に対する依存性を利用した温度計感度は $\alpha = d(\ln R)/d(\ln T)$ で与えられ る。温度計感度 α はマイクロカロリメータの性能を決定する重要なパラメータであり、 α の 値が大きいほど高感度の温度計である。半導体温度計では α の値は5程度であるが、相転移 領域におけるTESの α の値は数100から1000程度と非常に大きい。TESは入力コイルLと直列

に接続され、シャント抵抗 R_sはTESとに並 列に接続されている。この回路に直流電流 I_0 を通電すると、 R_s とTESとに、それぞ れ、*I*_s及び*I*_{TFS}の電流が流れる。このと き、TESには定電圧V_Rが印加されるように R_s の値を R_{TFS} より充分に小さくする。TES 素子内のジュール発熱 $P_{R} = V_{R}^{2} / R_{TES}$ と温度 T₀の冷熱浴にコンダクタンスGを介して流 れる熱流とのバランスで動作温度が決まる。 入射X線が吸収されることにより素子の温度 が ΔT 上昇し、TESの電気抵抗を ΔR だけ増 加するので、コイルLを流れる Impsの変化 に比例する磁束の変化 Δφ が超伝導量子干渉 素子(SQUID)を使った増幅器により電圧パル スとして出力される。このとき、TESの電気 抵抗の急激な増加に伴い、定電圧が印加さ れているTESのジュール発熱は急激に減少す るので、コンダクタンスを介して熱浴へ流 れる熱流による冷却が強くなり、TESの電気 抵抗値が、の動作点へ回復する速度が増加 する。このような負のフィードバックを電 熱フィードバックと呼ぶ。電熱フィードバッ クで動作しているTES型マイクロカロリメー タのエネルギー分解能は、半値幅で

 $\Delta E = 2.35 \sqrt{k_B C T^2 \sqrt{8n} / \alpha}$ で与えられる⁵⁾。 ここで、 k_B はボルツマン定数、CはTES型

マイクロカロリメータの実効的熱容量、T は動作温度であり、nは3から5の間の値を とる定数である。

我々は、Pu同位体や²⁴¹Amなどの超ウラン 元素から放射されるエネルギーが10keVから 20keVのLX線を半値幅50eVのエネルギー分解 能で検出するためのTES型マイクロカロリメー タを開発している。TESは近接効果により相 転移温度が200mK近傍になるようにAuとTiの 膜厚をそれぞれ、120nm及び50nmとするAu/Ti の2層薄膜である。入射X線に対する有感面



図1 TES型マイクロカロリメータの動作概念



図2 マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロ リメータの構造概念

表1 マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロ リメータのの構成要素と幾何学的寸法

Elements	Dimensions
Au absorber thickness	5 μm
Au absorber surface area	$160 \mu\mathrm{m} \times 160 \mu\mathrm{m}$
Au absorber stem area	$100 \mu\mathrm{m} \times 100 \mu\mathrm{m}$
Ta ₂ O ₅ layer thickness	100 nm
Ta ₂ O ₅ layer perimeter	$180 \mu\mathrm{m} imes 180 \mu\mathrm{m}$
TES bilayer thickness	120 nm (Ti)/50 nm (Au)
TES surface area	$200 \mu\mathrm{m} \times 200 \mu\mathrm{m}$
SiN_x membrane thickness	1 μm
SiN _x membrane surface area	$400 \mu\mathrm{m} \times 400 \mu\mathrm{m}$



図3 試作した4ピクセル配置マッシュ ルーム吸収体TES型マイクロカロリメータ

積を広くし、エネルギーが20keVのLX線光子を 50%の効率で吸収するために、厚さ5µmのAuの マッシュルーム形状吸収体とした。マッシュルー ム形状吸収体は、傘部の変形によりTESの性能 が劣化する場合がある。そこで、我々は、TES と吸収体傘部との間に挿入した絶縁体層による 吸収体傘部の支持構造を考案した。絶縁体層に より傘部が支持されているマッシュルーム吸収 体TES型マイクロカロリメータの構造概念を図2 に示す。マッシュルーム吸収体TES型マイクロ カロリメータの構成要素と幾何学的寸法を表1 に示す。表1に示すように、目標のエネルギー 分解能を達成するために有感面積は160μm角と なり、実用的な有感面積を得るためには多ピク セル化が要求される。そこで、図3に示すよう に、4ピクセル配置のマッシュルーム吸収体TES 型マイクロカロリメータを試作した。

3. TES型マイクロカロリメータの特性

SQUID増幅器チップ個数の都合上、試作した4 ピクセル配置マッシュルーム吸収体TES型マイ クロカロリメータのピクセルpx1からpx3に、直 流バイアス電流 I_0 として10 μ Aを通電し、TESの 電気抵抗温度依存性(R-T曲線)を測定し た。測定で得られたpx1からpx3の3ピクセルに ついてのR-T曲線を図4に示す。図4より得ら れた転移温度、転移温度幅、常伝導抵抗値及び 感度 α を表2に示す。冷熱浴温度 T_b を80mKに保 持して、直流バイアス電流 I_0 とTESを流れる電 流 I_{TES} に対応するSQUID増幅器出力電圧との関 係(I-V曲線)を測定した。図5はpx3のI-V曲線の測定結果を示す。図5のI-V曲線では、



図4 マッシュルーム吸収体TES型マイク ロカロリメータのpx1からpx3の*R*-T曲線

表2 マッシュルーム吸収体TES型マイクロ カロリメータのpx1からpx3の転移温度 T_c 、 転移温度幅 ΔT_{trn} 、常伝導抵抗値 R_N 及び感度 α



バイアス電流 I_0 が0から120µAまでの範囲と300µA以上の領域の直線は、TESがそれぞれ、超 伝導状態と常伝導状態にあることに対応し、バイアス電流が120µAから300µAの範囲の曲線 は、TESが相転移領域にあり電熱フィードバックによりTESの温度が安定に保持されているこ とを示す。図6は冷熱浴温度 T_b を80mKにおける常伝導抵抗値で規格化したTESの電気抵抗値 R_{TES}/R_N の直流バイアス電流 I_0 依存性の測定結果を示す。図6より、試作した4ピクセル配 置マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロリメータのpx1からpx3のピクセルは、ほぼ同等 の検出器動作特性を有することを確認した。

4.²⁴¹Am、²³⁸Pu及び²³⁹Pu混合線源のLX線に対する応答測定

検出信号処理回路系が多ピクセル同時動作 に対応できないため、4ピクセル配置マッシュ ルーム吸収体TES型マイクロカロリメータの px2のLX線に対する応答を測定した。LX線源 には²⁴¹Am、²³⁸Pu及び²³⁹Pu混合線源を使用し た。この混合線源からは、²⁴¹Am、²³⁸Pu及び ²³⁹Puの α 崩壊に伴うNp LX線とU LX線が放射 される。4ピクセル配置マッシュルーム吸収 体TES型マイクロカロリメータのpx2の冷熱浴 温度 T_b を80mKに保持し、 R_{TFS}/R_N の値が0.3

になるように直流バイアス電流 I。を設定して

動作したときの検出信号パルスを記録した。 記録した検出信号パルスの波高値から得られ たエネルギースペクトルを図7に示す。図7の エネルギースペクトルでは、エネルギーが 17.222keVのU L $_{\beta 1}$ X線ピークとエネルギーが 17.751keVのNp L $_{\beta 1}$ X線ピークに対するエネル ギー分解能がともに半値幅で39.2eVであった。 ²⁴¹Am 線源とPu同位体線源を同時に計測して 得られたL X線スペクトルでは、Np L X線とU L X線の主要なピークが明確に同定でき、Am とPu元素の弁別が可能であることがわかる。

5. まとめ

4ピクセル配置マッシュルーム吸収体TES型 マイクロカロリメータを試作した。²⁴¹Am、 ²³⁸Pu及び²³⁹Pu混合線源のLX線をTES型マイク ロカロリメータでスペクトル計測することに より、²⁴¹AmとPu同位体の非破壊分析が可能で あることを示した。

参考文献

- J. Goldstein et al., J. Michael, Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis, 3rd ed. (Springer, New York, 2003), pp. 297–353.
- G. Knoll, Radiation Detection and Measurement, 4th ed. (John Wiley & Sons, Hoboken, 2010), p. 476.
- 3) G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement 4th ed., John Wiley & Sons. Inc. Hoboken, 2010, pp. 742-747.
- 4) S. R. Bandler et al., IEEE Trans. Appl. Supercond., 23, 2013, 2100705.
- 5) K. D. Irwin, Appl. Phys. Lett., 66, pp. 1998–2000, 1995.



図6 マッシュルーム吸収体TES型マイク ロカロリメータのpx1からpx3の*R*_{TES}/*R*_Nの *I*₀依存性の測定結果



図7 マッシュルーム吸収体TES型マイクロ カロリメータのpx2で計測した²⁴¹Am、²³⁸Pu 及び²³⁹Pu混合線源から放射されるLX線のエ ネルギースペクトル