

## 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：

# 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

## 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<sup>1)</sup>。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<sup>2)</sup>、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解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<sup>3)</sup>。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Al K $\alpha$ X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<sup>4)</sup>、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<sup>241</sup>Am、<sup>238</sup>Pu及び<sup>239</sup>Pu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  $\alpha$  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、 $\alpha$  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  $\alpha$  の値は5程度であるが、相転移領域におけるTESの  $\alpha$  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  $I_{TES}$  の電流が流れる。このとき、TESには定電圧  $V_B$  が印加されるように  $R_s$  の値を  $R_{TES}$  より充分に小さくする。TES素子内のジュール発熱  $P_B = V_B^2 / R_{TES}$  と温度  $T_b$  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  $\Delta T$  上昇し、TESの電気抵抗を  $\Delta R$  だけ増加するので、コイル  $L$  を流れる  $I_{TES}$  の変化に比例する磁束の変化  $\Delta\phi$  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

$$\Delta E = 2.35 \sqrt{k_B C T^2 \sqrt{8n} / \alpha} \text{ で与えられる}^5)。$$

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 $^{241}\text{Am}$ 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

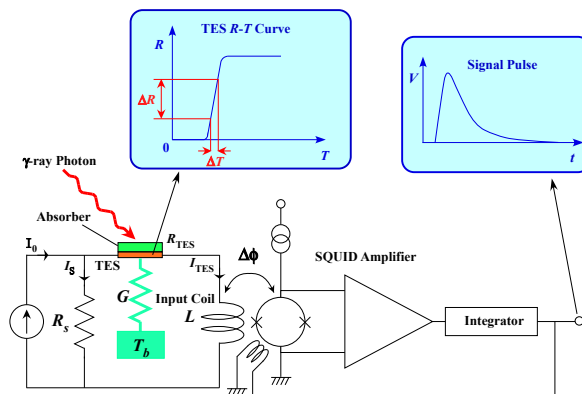


図1 TES型マイクロカロリメータの動作概念

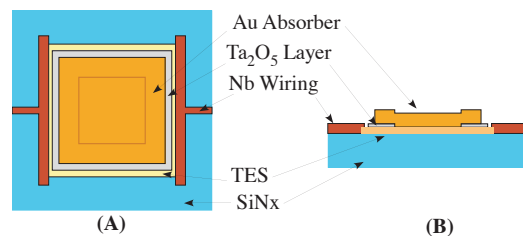


図2 マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロリメータの構造概念

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構成要素と幾何学的寸法

Elements	Dimensions
Au absorber thickness	5 $\mu\text{m}$
Au absorber surface area	160 $\mu\text{m}$ $\times$ 160 $\mu\text{m}$
Au absorber stem area	100 $\mu\text{m}$ $\times$ 100 $\mu\text{m}$
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> layer thickness	100 nm
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> layer perimeter	180 $\mu\text{m}$ $\times$ 180 $\mu\text{m}$
TES bilayer thickness	120 nm (Ti)/50 nm (Au)
TES surface area	200 $\mu\text{m}$ $\times$ 200 $\mu\text{m}$
SiN <sub>x</sub> membrane thickness	1 $\mu\text{m}$
SiN <sub>x</sub> membrane surface area	400 $\mu\text{m}$ $\times$ 400 $\mu\text{m}$

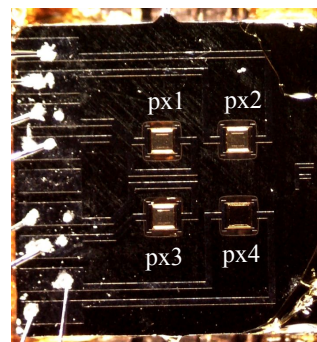


図3 試作した4ピクセル配置マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロリメータ

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5 $\mu\text{m}$ 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160 $\mu\text{m}^2$ 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 $\mu\text{A}$ を通电し、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 $\alpha$ 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 $I_{\text{TES}}$ 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、

バイアス電流 $I_0$ が0から120 $\mu\text{A}$ までの範囲と300 $\mu\text{A}$ 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120 $\mu\text{A}$ から300 $\mu\text{A}$ 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

$R_{\text{TES}} / R_N$ 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。

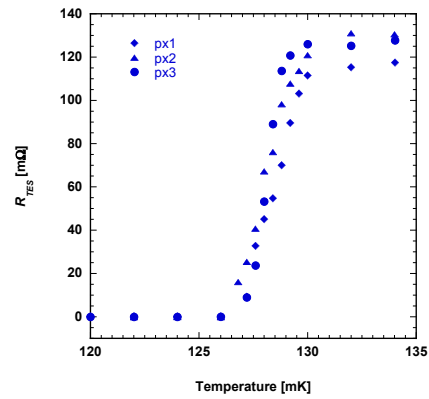


図4 マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロリメータのpx1からpx3の $R-T$ 曲線

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 $\Delta T_{trn}$ 、常伝導抵抗値 $R_N$ 及び感度 $\alpha$

px	$T_c$ (mK)	$\Delta T_{trn}$ (mK)	$R_N$ (m $\Omega$ )	$\alpha$ at 128 mK
1	128.4	2.8	115	102
2	128.0	2.8	130	160
3	127.6	2.4	125	260

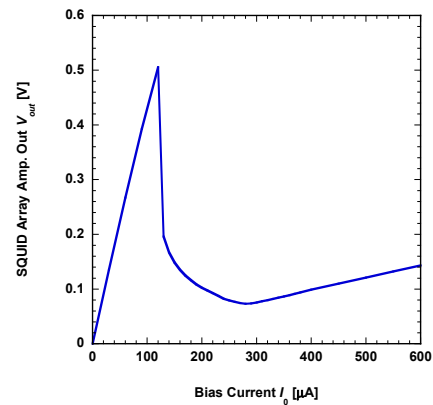


図5 マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロリメータpx3の $I-V$ 曲線

#### 4. $^{241}\text{Am}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239}\text{Pu}$ 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 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239}\text{Pu}$ 混合線源を使用した。この混合線源からは、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239}\text{Pu}$ の $\alpha$ 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、 $R_{\text{TES}}/R_N$ の値が0.3

になるように直流バイアス電流 $I_0$ 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。 $^{241}\text{Am}$ 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。 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239}\text{Pu}$ 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、 $^{241}\text{Am}$ 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

- 1) J. Goldstein et al., J. Michael, Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis, 3rd ed. (Springer, New York, 2003), pp. 297–353.
- 2) 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.

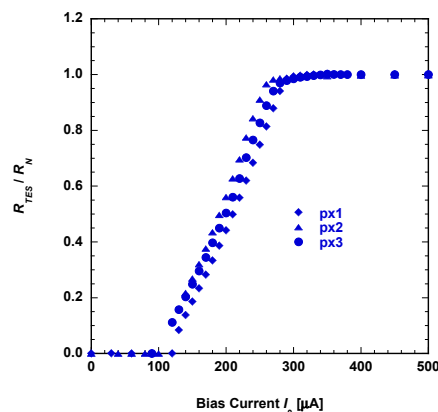


図6 マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロリメータのpx1からpx3の $R_{\text{TES}}/R_N$ の $I_0$ 依存性の測定結果

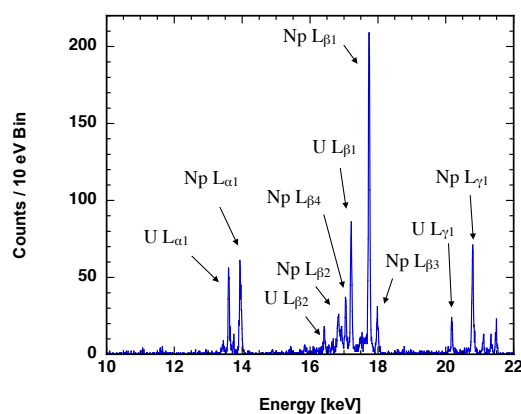


図7 マッシュルーム吸収体TES型マイクロカロリメータのpx2で計測した $^{241}\text{Am}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239}\text{Pu}$ 混合線源から放射されるLX線のエネルギースペクトル