

## エネルギーを測る—II— —極低温検出器 (ジョセフソン接合)—

浮辺雅宏

産産業技術総合研究所 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1  
E-mail : ukibe-m@aist.go.jp

大久保雅隆

産産業技術総合研究所 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1  
E-mail : m.ohkubo@aist.go.jp

北島義典

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光科学研究施設  
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1, E-mail : yoshinori.kitajima@kek.jp

### 1. はじめに

極低温検出器は、通常0.5 K以下の極低温で動作し、放射線パルス個々のエネルギーを直接測定することができるエネルギー分散型検出器です。エネルギー分散型検出器としては、広く普及しているものとして、前号で紹介されている半導体検出器がありますが、極低温検出器には、半導体検出器にはまねの出来ない2つの大きな利点があります。その1つは、分光結晶を使用する波長分散分光方式に迫る、半導体検出器の数十倍という高エネルギー分解能を実現可能だということです。もう1つは、前号で触れられている半導体検出器の表面不感層に相当するものが極低温検出器には存在しないため、赤外線から $\gamma$ 線に渡る非常に広いエネルギー帯域(およそ1 eV~数 MeV)で高感度なエネルギー測定を高精度に行えるということです。

このような特徴があるため、放射光利用実験においては、特にK吸収端が数 keV以下の軟X線領域にある軽元素の蛍光X線吸収微細構造(XAFS)測定等への応用が期待されます。軟X線領域には様々な元素の吸収端が近接して存在するため、特定の元素からの蛍光X線を分離して検出するためには硬X線領域よりも高い分解能が必要になるからです。

今回は、極低温検出器のなかでも、主に、我々のグループで基礎的な実験の後<sup>1,2)</sup>、実用化を目指して開発中の超伝導トンネル接合(Superconducting Tunnel Junction: STJ)アレイ検出器について解説をしていきます。2章では主要極低温X線検出器の開発現状とSTJ検出器の動作原理、3章では我々のグループにて開発中のSTJアレイ素子と、そのアレイ素子を搭載する蛍光X線分析ステーションについて、第4章では実際にSTJ検出器により実施した蛍光収量X線吸収分光分析例について解説します。なお、この解説では、検出器で得られるX線ピークの半値幅(FWHM)をエネルギー分解能としています。

### 2. 主な極低温 X 線検出器の開発の現状

#### 2.1 極低温検出器の種類と性能

これまで、様々な種類の極低温検出器が、実用化を目指し世界各国で研究されていて、既にX線天文衛星に搭載されるなど、限られた研究用のツールとしては利用が始まっていますが、汎用計測機器としては、いくつかの解決すべき問題があります。それらの極低温検出器は、入射X線のエネルギーを検出器内でどのように電気信号に変換するかという点で、量子(非熱平衡)型と熱平衡型検出器に大別されます。つまり、検出器の温度変化と関係なく変化する励起状態を利用するものが量子型検出器であり、X線入射により生じた検出器の電子系またはフォノン系の温度上昇を利用して検出するものが熱平衡型検出器になります。一般的に、検出器の応答時間は、熱平衡型で必要とされる熱平衡状態から初期状態への回復時間の必要が無いため、量子型検出器の方が短く良好であります。一方、熱平衡型では、入射光子のエネルギーをほぼ完全に信号に変換できるためエネルギー分解能は良好であるという特徴があります。量子型検出器としては、主に超伝導トンネル接合検出器(Superconducting Tunnel Junction: STJ)、常伝導トンネル接合検出器(Normal-Insulator-Superconducting tunnel junction: NIS)、マイクロ波力学インダクタンス検出器(Microwave Kinetic Inductance Detector: MKID)が挙げられます。また、熱平衡状態型検出器としては、主に超伝導転移端カロリメーター(Transition Edge Sensor: TES)、金属磁気カロリメーター(Metallic Magnetic Calorimeter: MMC)があります。これら以外の極低温検出器も含めた低温検出器全体の研究開発現状については、最近の低温検出器国際ワークショップ議事録<sup>3)</sup>、ホームページ(本記事の最後「参考 web サイト」の1)を参照ください。

代表的な極低温検出器の軟X線に対する検出性能(エネルギー分解能、応答時間、最大計数率、検出面積、動作

**Table 1** 0.1~2 keVの軟X線に対する各種検出器の性能表 NIS, MKID, MMCの分解能, 応答時間は6 keV X線に対する性能を基にした推定値。計数率, 検出面積は全て単一素子の場合の最大値

検出器名	量子 (非熱平衡) 型			熱平衡型	
	STJ	NIS	MKID	TES	MMC
エネルギー分解能 (eV)	4~15	<10	~10	1~2	~1eV
応答時間 $\tau$ ( $\mu$ sec)	1~10	~10	100	50~150	~1000
最大計数率 (cps)	10 k	~1 k	数百	数百	数十
検出面積 (mm <sup>2</sup> )	0.04	~0.1	~0.01	0.0625	~0.02
動作温度 (K)	<0.5	<0.1	~0.1	<0.1	<0.1
冷却手段	<sup>3</sup> He 冷凍機	ADR 冷凍機 希釈冷凍機	ADR 冷凍機 希釈冷凍機	ADR 冷凍機 希釈冷凍機	ADR 冷凍機 希釈冷凍機

温度) を各検出器を冷却するための手段と合わせて **Table 1** に示します<sup>4-10)</sup>。 **Table 1** から、エネルギー分解能は熱平衡型検出器が優れ、時間応答特性 (応答時間, 計数率) は量子型検出器が優れることが確認できます。

## 2.2 放射光軟 X 線分光で要求される性能

次に、軟 X 線領域で軽元素の蛍光 X 線を分光するという観点から検出器に要求される性能について述べます。

### 1) 利用エネルギー範囲

興味あるどんな元素についても研究を行うためには、少なくとも低エネルギー側はホウ素 K $\alpha$  X線の183 eV程度から高エネルギー側3 keV以上まで利用できることが必要です。また、入射光のエネルギーをスキャンする XAFS 測定のことを考えると、例えば検出器を構成する物質中に含まれる元素の吸収端前後 (あるいはまさに吸収端のところ) で検出効率に急激な変化などがないことが望まれます。

### 2) エネルギー分解能

近接する元素の蛍光 X 線が分離可能であることが最低限の条件になります。具体的には、軽元素の K $\alpha$  線のエネルギーはホウ素 (B) 183 eV/炭素 (C) 277 eV/窒素 (N) 392 eV/酸素 (O) 525 eV ですから、その差の半分以下が必須です。さらに、金属元素の L 線や M 線まで考えると、試料によっては、より近接した蛍光 X 線が存在する可能性があることになり、分解能は高ければ高い程良いということになってしまいます。実用上は、半導体検出器より分解能が1桁程度向上して20 eV以下となることが望ましいところです。

### 3) 計数率と直線性

蛍光 XAFS では、特に EXAFS の解析ということも考えれば、S/N の高い測定のために数百~数千 cps 以上の

**Table 2** 軟 X 線領域蛍光 X 線分析用検出器に対する要求性能

エネルギー分解能 (eV)	計数率 (cps)	検出面積 (mm <sup>2</sup> )
<20	>100 k	~10

計数率が望まれます。また、必要とする信号以外のバックグラウンドのことも考えると、さらに計数率の高い検出器が望ましいということになります。また、EXAFS のように、信号強度の微小な変化をとらえる実験では、検出器の直線性も重要な要素となります。もちろん何桁にも亘るとい問題ではありませんが、例えば XAFS スペクトル測定 (つまり入射光のエネルギーをスキャン) 中に注目している元素以外の元素の吸収端を通り過ぎて、その蛍光 X 線が検出器に入ってくるようになるという場合にも、微小な信号の強度が変動しないように保証されていなければなりません。また、XAFS 測定に必要な時間 (例えば1~2時間) に亘って安定に動作することも重要です。

### 4) 検出面積

軟 X 線領域では蛍光 X 線の収率が極めて小さくなりますから、大きな検出面積で立体角を大きく取れることが実用的に重要になります。これは大きすぎて困るということはありませんが、例えば10 mm<sup>2</sup>は欲しいところです。以上をまとめると **Table 2** のようになります。

**Table 1** と **2** の比較より、どの検出器においても、エネルギー分解能は各検出器で理論的に予想される値の数倍程度が実験的に達成されているので問題なくクリアしてはいますが、計数率, 検出面積は共にいずれの検出器も1~2桁以上低く、多数の素子を集積させたアレイ素子としなければ、必要な性能を満たすことが出来ないことが分かります。しかし、アレイ化した場合、検出面積, 計数率が増大する反面、信号取得系の複雑化に加えて、極低温検出器ならではの問題として、配線からの熱流入により検出器の冷却が困難となる可能性や極低温実装の問題があるため、アレイ内の素子数も最小限に抑える必要があります。その点で比較すると、STJ 検出器は、各検出器内では最小のアレイ数である100素子程度で必要な計数率性能を満たし、検出面積も高エネルギー分解能が必要とされる場合に一般的に使用されるシリコンドリフト検出器 (Silicon Drift Detector: SDD: 前号3.2にて解説) の面積 (>10 mm<sup>2</sup>) を超えることは出来ないが、それに迫る値4 mm<sup>2</sup>を実現可能であるので有望です。そのため、我々が整備中の軟 X 線蛍光分析用実験ステーション用検出器としては、STJ アレイ検出器を採用することとしました。また、現在整備中の分析装置と同様の9~36素子のSTJアレイ検出器を使用したものが米国パークレーの放射光施設 (Advanced Light Source) の磁気生物化学分光用設備 (Magnetic and biochemical spectroscopy, 「参考 Web サイト」の2) に設置され、新規シンチレーター候補物質中の酸化状態分析や

MgB<sub>2</sub> のフェルミ面の構造解析に既に利用されるなど、その汎用計測機器としての運用が開始されています<sup>11,12)</sup>。

### 3. STJ アレイ検出器

#### 3.1 STJ 検出器の動作原理

STJ アレイ検出器の構成要素である STJ 検出素子とは、いわゆる Josephson (トンネル) 接合で、その構造は 2 枚の超伝導電極を 1 nm 程度の絶縁層で隔てたサンドイッチ構造となっています。その X 線検出の原理は次のようになります。

- 1) 入射 X 線が、光電効果により超伝導電極内に 2 次電子、特性 X 線を生成する。
- 2) 生成された 2 次電子は、電離作用・電子散乱等により電極内で、多数の超伝導体中のクーパー対 (超伝導状態で形成される電子対) を破壊、超伝導エネルギーギャップ ( $2\Delta$ : 超伝導状態で超伝導金属のフェルミ面近傍に生じるエネルギーギャップ) の半分の大きさ ( $\Delta$ ) のエネルギーを持つ準粒子 (電子・正孔) を生成する。(高いエネルギーを持つ電子・正孔は 2) を繰り返す。)
- 3) 生成された励起準粒子は、Josephson 接合を  $2\Delta/e$  以下の電圧領域にバイアスすることにより、トンネル電流 (絶縁層によって隔てられた電極間をトンネル効果によって流れる電流) の増加分として取り出され、X 線パルス信号を発生する。

このように、STJ 検出器の信号生成過程も、半導体検出器で空乏層に入射した X 線により電子・正孔対が発生することと原理的には同じで、生成準粒子数は、入射 X 線のエネルギーに比例します。違いは、半導体検出器では電場により生成電子・正孔対を収集し検出信号と出来るが、超伝導体中には電場がないため電場により生成準粒子を収集できないことです。そのため、準粒子トラッピング<sup>13)</sup>で増幅されたトンネル電流が使われます。加えて、動作時には、熱的に励起される準粒子をゼロにするために、トンネル接合に用いる超伝導体の転移温度の10分の1以下の温度 (Nb/Al 系 STJ では 0.5 K 以下) にし、かつジョセフソン電流 (STJ のトンネル層をクーパー対がトンネリングすることにより流れる電流) を抑制する為に 100 Gauss 程度の磁場を素子のトンネル層に平行に印可する必要があります。これらの制約はありますが、STJ 検出器の利点は、 $\epsilon$  値 (準粒子 1 個を生成するために必要なエネルギー) が Nb 系 STJ 検出器では約 3 meV と半導体の Si の場合の 3.6 eV に比べて約 1000 分の 1 と極めて小さいことです。そのため、STJ 検出器では同じエネルギーの X 線に対して得られる電子数が半導体検出器の約 1000 倍となる結果、STJ 検出器は半導体検出器より原理的には 30 倍の高エネルギー分解能を実現可能です<sup>14)</sup>。エネルギー分解能は入射エネルギーの 1/2 乗に比例するので、理

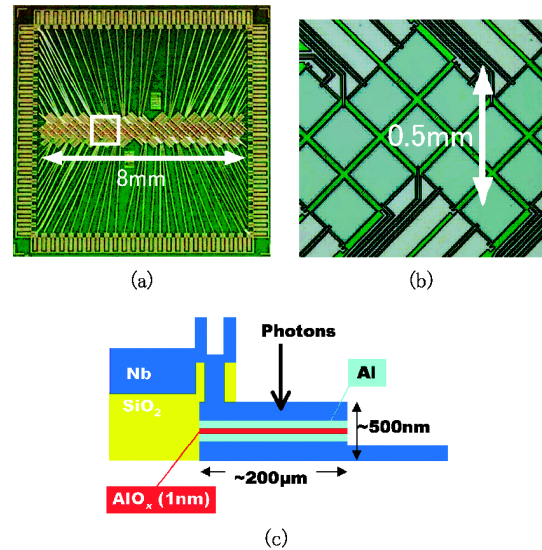


Fig. 1 Nb/Al STJ アレイ検出素子写真。検出部のサイズ:  $8 \times 0.5$  mm。(a) 全体写真 (b) (a) 内白線正方形内の拡大写真 (c) 断面図。

想的には 2 keV 以下の軟 X 線に対しては Nb 系 STJ 検出器で 2.5~6.3 eV が可能です。高エネルギー分解能を得られる反面、検出器としての応答時間は、準粒子の寿命で制限されるため、半導体検出器の約 100 倍程度 ( $\sim \mu\text{sec}$ ) と長くなります。

#### 3.2 STJ アレイ検出器の検出性能

我々が開発している STJ アレイ検出器の概要・検出性能は以下のようなものです<sup>15)</sup>。アレイ検出素子は、素子の大きさが  $200 \times 200 \mu\text{m}$  の Nb/Al STJ 素子 100 個から構成されており、全体で  $4 \text{ mm}^2$  の検出面積となっています (Fig. 1)。STJ 素子自体の構造は Nb/Al/AlO<sub>x</sub>/Al/Nb とトンネル層である AlO<sub>x</sub> 層の上下で対称な構造であり、Nb, Al 層の厚さはそれぞれ、100~200, 30~70 nm となっています。

次にその性能ですが、 $100 \times 100 \mu\text{m}$  の大きさの STJ 素子を例に述べていくこととします。まずエネルギー分解能の X 線エネルギー依存性、検出器出力のエネルギー線形性は Fig. 2 のようになります。Fig. 2 より、本検出器のエネルギー分解能は 1 keV を超えるエネルギーの X 線に対しては 20 eV を超えてしまうが、1 keV 以下の X 線に対しては 20 eV 以下のエネルギー分解能を実現し、要求性能をほぼ満たし、また同じエネルギー領域で、通常使用される SDD のエネルギー分解能 90~100 eV に比べて、数倍のエネルギー分解能を持つことが分かります。加えて、エネルギー線形性も良好であることも分かります。

さらに 400 eV の X 線に対するエネルギー分解能の計数率依存性は Fig. 3 に示すように、計数率が増加するにつれて分解能が劣化するが、その劣化度合いは最良値の 30%

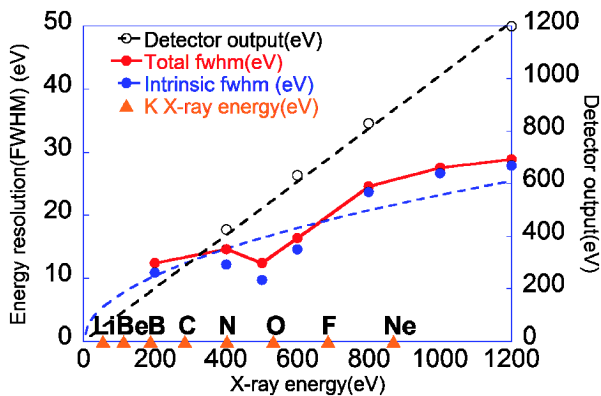


Fig. 2 1.2 keV以下のX線に対するエネルギー分解能 (FWHM) のエネルギー依存性と検出器出力線形性。検出素子サイズは $100 \times 100 \mu\text{m}$ 。点線はそれぞれ検出器出力と固有エネルギー分解能の近似曲線です。エネルギー軸上の点はLi-Ne各元素の特性X線エネルギーを示す。全エネルギー分解能よりバルサー分解能を二乗則で除いたものを固有分解能とした。

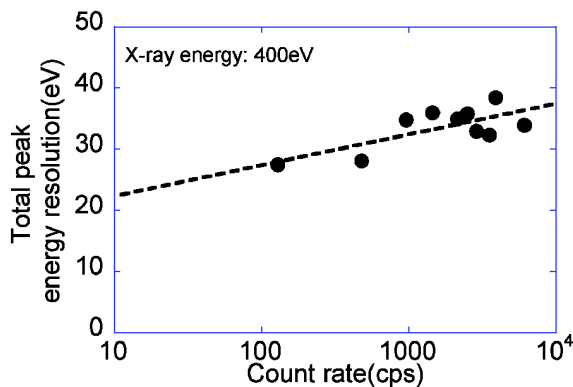


Fig. 3 Nb/Al STJ 検出器のエネルギー分解能の計数率依存性。検出素子サイズ： $100 \times 100 \mu\text{m}$ 。点線は近似曲線です。

Table 3 開発中のNb/Al STJ アレイ検出器の検出性能

エネルギー分解能 (eV)	最大計数率 (cps)	検出面積 ( $\text{mm}^2$ )
30	1 M	4

以内に抑えられていることが分かります。

検出面積を大きく $200 \times 200 \mu\text{m}$ とすると (Fig. 1のアレイ検出器の1素子のサイズ), 回路雑音などの増加などにより,  $100 \times 100 \mu\text{m}$ の大きさのSTJ検出器よりも若干エネルギー分解能が低下するが, その場合でも30 eV程度のエネルギー分解能は得られるため, 検出面積の増大を重視し, 現在は素子のサイズとして $200 \times 200 \mu\text{m}$ を採用しています。最後に, 現在軟X線領域での蛍光X線分析用に開発中のNb/Al STJアレイ検出器の検出性能をTable 3にまとめます。

### 3.3 蛍光X線分析用ステーションの周辺機器

本章では, 上記のSTJアレイ検出器の軟X線領域 (0.1~3 keV) でのエネルギー分散分光 (特に蛍光X線分析) への応用を目指し, 現在我々のグループで高エネルギー加速器研究機構・放射光科学研究施設 (KEK・PF) BL-11A (「参考Webサイト」の3)に設置するべく整備を進めている軟X線蛍光分析用実験ステーションについて解説することになります。本ステーションは, 主に極低温を実現するための冷凍機, エネルギースペクトル測定用計測回路, 測定用チャンバーからなります。以下各部の概要を説明します。

#### 1) 冷凍機 (クライオスタット)

パルスチューブ冷凍器と $^3\text{He}$ の蒸発による気化熱を組み合わせて, 液体ヘリウムなどの冷媒を用いることなく, 0.3 Kまで冷却可能で, その保持時間は約80時間です。最も冷える0.3 Kの冷却ステージは, 冷凍機本体より50 cm程度側面に突き出た部分に有り, その面積はおよそ $10 \text{cm}^2$ です。

また, クライオスタット内部の信号取り出し用配線は, 100本あり, アレイ検出器の100素子から独立して信号を取得します。配線経路の熱流入の低減のため, 室温側から0.3 Kの冷却ステージまでNbTi線の超伝導ツイストペアを使用します。

#### 2) エネルギースペクトル測定用計測回路

基本的に, 計測回路は前号半導体検出器の解説に記載のものと同様で, プリアンプ, 波形整形アンプ, 信号取得装置 (MCA) からなります。以下それぞれ述べることにします。

##### ・プリアンプ, 波形整形アンプ

バイパス回路内蔵のチャージアンプと波形整形アンプを使用します。1モジュール当たり, プリアンプで10チャンネル, 波形整形アンプで16チャンネルの入力が可能となっており, それぞれ10個, および7個のモジュールを使用して100素子からの信号を処理します。

##### ・信号取得装置

信号取得は, 波形整形アンプの出力波形をADCによりデジタル化します。ADCユニットには1ユニット当たり16チャンネルの信号を入力可能です。ユニット全体は, VMEモジュールとなっており, 外部の制御用PCにより操作が可能となっています。

#### 3) 測定用チャンバー

試料を交換するためのロードロックチャンバーと, 試料にPFからのX線を照射する照射用チャンバーからなります。分析可能な試料のサイズは $25 \times 30 \text{mm}$ 以下です。照射用チャンバー内部は,  $5 \times 10^{-8} \text{Pa}$ 以下の真空度にすることが可能です。また照射チャンバーに冷凍機を接続して測定を実施します。その際の室温の測定試料と0.3 Kのアレイ検出器の距離は最小14 mmとすることができま

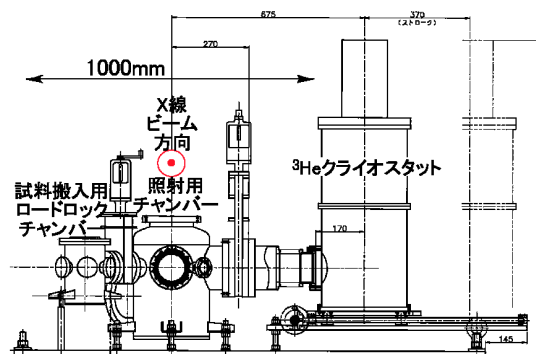
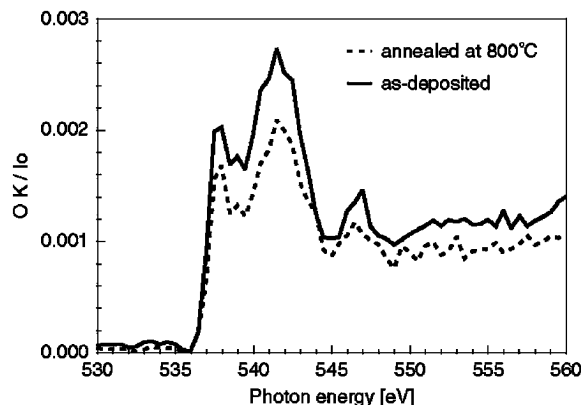


Fig. 4 冷凍機と測定用チャンバーの設置図

Fig. 5 HfAl 酸化物の酸素 K 吸収端近傍での XANES スペクトル<sup>17)</sup>

す。最も近づけたときの、検出器の立体角は0.16 sr となり、アメリカ バークレーの放射光施設（Advanced Light Source）にある STJ アレイ検出器のよりも大きな立体角を実現しています<sup>12)</sup>。

整備中の冷凍機と測定用チャンバーは Fig. 4 のようになっています。本測定ステーションは、本年度中に KEK・PF への設置を終了させ、来年度より試用を開始する予定です。

#### 4. STJ 検出器を用いた軟 X 線領域での蛍光 X 線分析例

STJ 検出器を用いた軟 X 線領域の X 線を対象とした X 線分析、特に X 線吸収分光（X-ray absorption spectroscopy）測定が既に幾つか行われ、同検出器の X 線吸収分光への応用の可能性が確認されています<sup>11,12,16,17)</sup>。

その中で当グループが実施した測定例について紹介します。本測定では高誘電率（high k）絶縁膜材料候補である HfAl 金属酸化物の評価のため、原子（特に酸素原子）の配置、電子状態の分析をしました。通常は、半導体検出器では 524.6 eV の酸素 K $\alpha$  X 線を十分な精度で測定することが出来ないため、全電子取量法を用いて測定していますが、同手法を用いるためには試料表面を測定前に真空中で洗浄処理し清浄面を出現させる必要がある等、実験上幾つかの困難な点があります。そこで、STJ 検出器を用いて試料からの酸素 K $\alpha$  X 線を直接測定し、酸素原子について XANES 測定を行いました。得られた XANES スペクトルは Fig. 5 のようになりました。

統計精度の点で若干劣るものの、前処理無しで全電子取量法で得られたものとはほぼ同様のスペクトルが得られています。また、成膜直後と 800 度でのアニール後で酸化物の構造、電気伝導特性に大きな違いが無いことも確認できました。

#### 5. おわりに

これまでに述べたように、極低温 X 線検出器、特に STJ 検出器が、軟 X 線領域で高分解能・高効率の検出器として実用化されれば、既存の検出器では見ることが困難であった世界を測定することが可能になります。その応用分野は、環境中に存在するイオウや塩素の状態分析、固体表面上での有機分子の反応の追跡、半導体中の不純物としての窒素やリンの局所構造解析、生体関連物質中のリンやイオウの存在状態の観測など、様々に考えられます。このように軽元素が重要な役割を果たしていると考えられている物質系の研究において、高分解能の X 線検出器が拓く分野は数多くあると期待されます。また本稿では触れませんでした、TES、STJ 検出器本体に厚膜金属 X 線吸収体を組み合わせることで硬 X 線に対応した硬 X 線検出用超伝導検出器<sup>18-21)</sup>の開発も進められており、将来的には 1 eV から数 100 keV という非常に広いエネルギー範囲にわたる高度な X 線計測が可能になることが期待されます。

#### 参考文献

- 1) 大久保雅隆：応用物理 72(8), 1057 (2003).
- 2) 大久保雅隆, 浮辺雅宏：日本原子力学会誌 46(2), 45 (2004).
- 3) Proceedings of the 12<sup>th</sup> International Workshop on Low Temperature Detectors (LTD12), J. Low Temp. Phys., 151 (2008).
- 4) S. Friedrich: J. Synchrotron Rad. 13, 159 (2006).
- 5) J. B. le Grand et al.: Appl. Phys. Lett. 73, 1295 (1998).
- 6) M. Nahum et al.: Appl. Phys. Lett. 66, 3203 (1995).
- 7) A. Benjamin et al.: Appl. Phys. Lett. 89, 222507 (2006).
- 8) L. Gottardi et al.: J. Low Temp. Phys. 151, 106 (2008).
- 9) A. Fleischmann et al.: Nucl. Instr. Meth. A520, 27 (2004).
- 10) N. Iyomoto et al.: J. Low Temp. Phys. 151, 406 (2008).
- 11) S. Friedrich et al.: IEEE Trans. Appl. Supercond., 17, 351 (2007).
- 12) S. Friedrich et al.: IEEE Trans. Appl. Supercond., 13, 1114 (2003).

- 
- 13) N. Booth: Appl. Phys. Lett. 50, 293 (1987).
  - 14) M. Kurakado: Nucl. Inst. Method. 196, 275 (1982).
  - 15) M. Ukibe et al.: J. Low Temp. Phys. 151, 316 (2008).
  - 16) M. Ohkubo et al.: Nucl. Inst. Method. A 559, 731 (2006).
  - 17) P. Fons et al., Phys. Rev. Lett. 96, 045504 (2006).
  - 18) S. Friedrich: Nucl. Instr. Meth. A 579, 157 (2007).
  - 19) T. Miyazaki et al.: IEEE Trans. Appl. Supercond. 13, 630 (2003).
  - 20) M. Huber et al.: Nucl. Inst. Method. A 520, 234 (2004).
  - 21) M. Ukibe et al.: X-ray Spectrom. 36, 260 (2007).

#### 参考 Web サイト

---

1. 低温検出器国際ワークショップ : <http://www.ltd12.org/>
2. Advanced Light Source:  
<http://www-als.lbl.gov/als/techspecs/bl4.0.2.html>
3. KEK-PF BL-11A:  
<http://pfwww.kek.jp/sxspec/sx/bl11a.html>