

【公開版】

平成28年度
戦略的基盤技術高度化・連携支援事業
戦略的基盤技術高度化支援事業

「高い検出効率と高速性を兼ね備えたエネルギー超高分解能X線検出器
システムの開発」

研究開発成果等報告書

平成29年5月

担当局 近畿経済産業局
補助事業者 株式会社テクノエックス
補助事業者 国立研究開発法人理化学研究所

目 次

第1章 研究開発の概要	-----	3
1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標	-----	3
1-2 研究体制	-----	4
1-3 成果概要	-----	6
1-4 当該研究開発の連絡窓口	-----	8
第2章 本論	-----	9
2-1. 他の高分解能超伝導体検出器との特徴の比較	-----	9
2-2. 補助事業の具体的内容	-----	12
2-3. 補助事業の成果及びその効果	-----	21
第3章 全体総括	-----	24

第 1 章 研究開発の概要

1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

エネルギー分解能の優れた X 線検出器は、材料分析や環境分析などでの基本的かつ重要な手段であり、蛍光 X 線分析装置、分析電子顕微鏡、粒子線励起 X 線 (PIXE) 分析などの分析装置で半導体検出器が広く用いられている。しかしながら、多くの応用において半導体検出器のエネルギー分解能は不十分であり、異なる元素からの特性 X 線が識別できないことが頻繁に生じる。また軽元素の定量分析も困難である。しかも、半導体検出器のエネルギー分解能 (128eV@5.9keV 程度) は既に半導体材料から生じる理論限界 (検出器中で放射線によって励起される電子の数の統計的揺らぎによる限界 120eV 程度) に近く、大幅な分解能向上の余地は殆ど無い。

半導体検出器より優れたエネルギー分解能が可能な放射線検出器として、マイクロカロリメーターの 1 つである TES (超伝導遷移端センサー) や超伝導単接合検出器が世界中で研究されている。エネルギー分解能では半導体検出器を 10 倍あるいはそれ以上優れた性能が得られているものの、検出効率や計数率では半導体検出器に百倍あるいはそれ以上も劣るために超高エネルギー分解能が得られてから約 20 年以上も経つにもかかわらず実用化されていない。半導体検出器に匹敵する検出効率と高い計数率が可能で定量分析の高い精度を得るに適しており、かつ使用の容易な実用性の高いエネルギー超高分解能検出器システムの開発を目指す。

研究目標：

従来の X 線用高分解能半導体検出器よりも数倍以上優れたエネルギー分解能を半導体検出器と同等な高検出効率と高検出効率の超伝導直列接合検出器で実現する。超伝導直列接合検出器素子と冷凍機及び信号処理回路からなる取扱いの容易な高性能検出器システムを開発する。それらにより、世界初の実用性の高いエネルギー高分解能 X 線検出器システムとする。

サブテーマごとの当初目標：

【1. 超伝導直列接合検出器素子の高性能化課題への対応】

【1-1】検出器素子の大有効面積化

有効面積を 10mm²以上に大面積化

【1-2】超伝導トンネル接合の特性改善による検出器素子の信号電荷増大とノイズ低減

従来と比べて信号電荷を5倍以上、ノイズを0.8倍以下

【1-3】検出器素子構造改良による性能向上

ノイズを0.8倍以下

【1-4】Ta系接合による信号電荷増大

信号電荷を約2倍

【2. 信号処理システムの高性能化課題への対応】

【2-1】信号処理回路の改良開発

20eV@5.9keVのエネルギー分解能のための低ノイズ化と取扱いの容易化

【2-2】信号処理ソフトの改良開発

20eV@5.9keVのエネルギー分解能への対応と取扱いの容易化

【3. 冷凍機の改造とスノート構造の開発課題への対応】

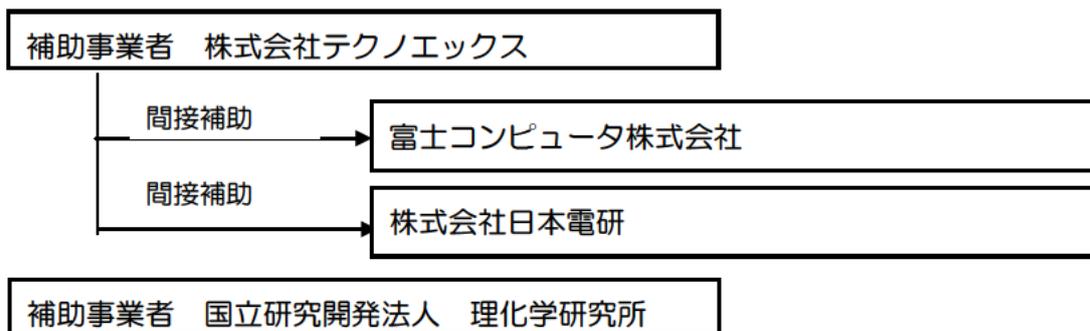
【3-1】冷凍機改造とスノート構造の開発

信号処理初段回路等内蔵とスノート取付けのための冷凍機改造とスノート構造の開発

1-2 研究体制

(研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者)

(1) 履行体制図



(2) 管理員、研究員及び補助員

【補助事業者】 株式会社テクノエックス

管理員

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
石井 秀司	社長室・イノベーション担当	【1】【2】【3】
石田 美亮	技術部・次長	【1】【2】【3】

【公開版】

研究員

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
倉門 雅彦	社長室・特任研究員	【1】
石井 秀司	社長室・イノベーション担当	【2】
清水 裕行	技術部・グループリーダー	【2-1】
林 雄一	技術部	【2-1】 【3】
北内 延弘	技術部・次長	【2-2】
飯塚 泰治	技術部・次長	【2-1】

補助員

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
坂元 耕三	業務管理部・研究補助員	【1】

【間接補助事業者】

研究員

富士コンピュータ株式会社

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
宮崎 成生	ソリューション部・部長	【2-2】
塩入谷 浩一	ソリューション部・課長	【2-2】

株式会社日本電研

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
小山田 勉	技術	【2-1】
山本 由弘	技術	【2-1】
西本 昭男	技術	【2-1】

【補助事業者】 国立研究開発法人 理化学研究所

研究員

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
大谷 知行	テラヘルツイメージング研究チーム・ チームリーダー	【1-2】 【1-4】
美馬 寛	テラヘルツイメージング研究チーム・ 特別研究員	【1-2】 【1-4】

補助員

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
古川 昇	テラヘルツイメージング研究チーム・ 研究支援パートタイマー	【1-2】【1-4】

1-3 成果概要

各サブテーマでの実施結果等は以下の通り。

【1. 超伝導直列接合検出器素子の高性能化課題への対応】

【1-1】検出器素子の大有効面積化

目標：有効面積を 10mm²以上に大面積化

達成状況：

検出器特性の改善のための新構造素子（6mm×6mm）作製のためのフォトマスクを設計、これを用いて素子試作を行ない、有効面積の拡大に寄与した。その一方でX線レンズによってX線を検出器素子の中心に集光する方式に変更したため、大面積化の必要性が無くなり、本事業での大面積化は大型素子化素子の作製までで完了とした。

【1-2】超伝導トンネル接合の特性改善による検出器素子の信号電荷増大とノイズ低減

目標：信号電荷を 5 倍以上、ノイズを 0.8 倍以下

達成状況：

素子構造や製造プロセスの改良を理化学研究所とテクノエックスとの共同で進め、本事業前の約 4 倍の信号電荷を得ることができた。ノイズについては 0.79 倍を達成した

【1-3】検出器素子構造改良による性能向上

目標：ノイズを 0.8 倍以下

達成状況：

微細化と素子構造の改良により、相対的にノイズを 0.79 倍とし、0.8 倍以下を達成した。

上記、【1-2】と【1-3】の検出器素子特性改善と構造改良により従来（44.5eV）より小さいノイズ（27eV）を得ることに成功したが、冷凍機内に設置する極低温プリアンプの完成が遅れたことなどにより、実際の高分解能蛍光 X 線実測データを得るには至らなかった。

【1-4】 Ta 系接合による信号電荷増大

目標：信号電荷を約2倍

達成状況：

まだリーク電流が大きいなどの欠点はあるものの、同じ条件で作製した従来の Nb 系接合の検出器と比べて3倍以上大きな信号電荷が得られた。しかしながら中間評価において、主体技術である Nb 系接合に集中するように助言があり、本事業においては Ta 系接合を用いた検出器の開発は中断し、本事業後の課題とした。

【2. 信号処理システムの高性能化課題への対応】

【2-1】 信号処理回路の改良開発

目標：20eV@5.9keV のエネルギー高分解能への対応と位置依存性補正を含めた信号波高の高速計測（20kcps/秒）への対応および取扱いの容易化

達成状況：

冷凍機内の低温部に設置できる4チャンネルの信号対応の前増幅器（プリアンプ）を開発した。プリアンプ出力信号の処理のために XGLab 社の TRAVIATA モジュールを導入し、超伝導直列接合検出器で必要となる位置依存性補正のためのデータが取得できるように LIST モードで使えるように改良した（【2-2】信号処理ソフトとの共同作業）。

【2-2】 信号処理ソフトの改良開発

目標：20eV@5.9keV の高エネルギー分解能対応と位置依存性補正を含めた高速計測（20kcps）対応と取扱いの容易化

達成状況：

TRAVIATA の LIST モードで得たデータから入射位置依存性を補正しスペクトルデータ

【公開版】

を得る処理を作成した。また、信号波高の位置依存性補正の精度向上のために新たな位置依存性補正方式を開発した。位置依存性補正を高速化するためのプログラムの改良を行い、補正計算の速度は約 3.5 万個/秒から 15 万個/秒へと大幅に改善した。

【3. 冷凍機の改造とスノート構造の開発課題への対応】

【3-1】冷凍機改造とスノート構造の開発

目標：信号処理初段回路等内蔵とスノート取付けのための冷凍機改造とスノート構造の開発
達成状況：

使いやすさと信頼性および高性能化を同時に達成できるポリキャピラリーX線レンズ方式のスノートを開発した。

冷凍機内にプリアンプ回路を取付けられるように冷凍機を改造した。また、冷凍機下部にはポリキャピラリーX線レンズとX線レンズ用スノートおよび簡易評価装置を取付けられるように改造した。試作した簡易評価装置は、低エネルギーX線も測定できるように真空対応とし、試料の位置調整もできる構造にした。

1-4 当該研究開発の連絡窓口

株式会社テクノエックス 社長室イノベーション担当 石井秀司

電話 06-6323-1100 FAX06-6323-7770 E-mail : ishii@techno-x.co.jp

第2章 本論

2-1. 他の高分解能超伝導検出器との特徴の比較

半導体検出器より優れたエネルギー分解能を持つ新規な放射線検出器として超伝導遷移端センサー（Transition Edge Sensor: TES）と超伝導トンネル接合検出器などがある。

TES は放射線が入射したことによる温度変化の大きさから放射線のエネルギーを測定するカロリメータである。エネルギー分解能は半導体検出器の 10 倍以上も優れている。しかし、X線用の TES はエネルギー分解能が優れているものの、半導体検出器と比べて検出効率が数百分の 1 以下、可能な計数率も数百分の 1 以下と低い。例えば蛍光 X 線分析などの特性 X 線を用いた材料の定量分析では、定量分析の精度は測定したい特性 X 線の数のルートに比例して向上するため（例えば、1%の精度を得るためにはそのエネルギーの X 線が 1 万個程度が必要であり、0.1%の精度のためには 100 万個程度が必要）、エネルギー分解能は優れていても可能な計数率が低ければ同じ測定時間で得られる定量分析の精度は半導体検出器の 10 分の 1 以下と低い。そのため、高い定量分析精度のために高検出効率と高計数率を必要とすることの多い分析分野でのカロリメータの実用化には問題が多い。実際、半導体検出器のエネルギー分解能より 10 倍以上も優れたエネルギー超高分解能は TES で 20 年近くも前に実現されたにもかかわらず、分析分野では殆ど実用化されていない。

他所で研究開発されている超伝導トンネル接合検出器は、超伝導トンネル接合で直接に X 線を吸収させて X 線を検出する超伝導単接合検出器である。超伝導単接合検出器では、半導体検出器に近い高計数率が可能であり、且つ半導体検出器より優れたエネルギー分解能（例えば、29eV@5.9keV (Nb 系接合)）が得られている。100 個の超伝導トンネル接合を用いたアレイ検出器も開発されており、低エネルギー X 線用の検出器としては実用性も高い。しかしながら、下記のような欠点がある。

1. 面積が小さくて検出効率が低い（半導体検出器の 1/250 以下）。
2. 6keV の X 線の吸収効率は 10%程度に過ぎない（半導体検出器の 1/10 程度）。
3. エネルギーの範囲（ダイナミックレンジ）が狭い。
4. 例えば、5.9keV の X 線に対する（ピーク/バックグラウンド）比（P/B）は 100 程度と小さい。
5. X 線は接合の上から照射されるが、エネルギーが大きいと上部電極を通り抜け

【公開版】

て下部電極で吸収されることもある。下部電極と上部電極では厚さなどの特性が異なるため、発生する信号の大きさが異なり、エネルギースペクトル上では1つのエネルギーに対して2つのピークが現れ、分析を複雑にする。

超伝導単接合検出器では、上記2~5の理由によって測定対象のX線としてはエネルギーが1~2keV程度以下に限られてきており、しかもそれらの低エネルギーX線に対しても、上記1の理由によって、検出効率は半導体検出器の数百分の1以下と小さい。これらの理由により、半導体検出器のエネルギー分解能より数倍も優れたエネルギー分解能が実現されているにもかかわらず、使用できる分野は限られると考えられる。

検出効率や計数率が優れていることが求められることの多い分析分野では、検出効率と計数率が半導体検出器と同程度であって且つエネルギー高分解能の検出器こそが求められていると考えられる。

超伝導直列接合検出器は(株)テクノエックスのオリジナルの技術であり、その研究開発を行っているのは世界でもテクノエックスだけである。これまで他所で超伝導直列接合検出器の研究開発が行われてきていない理由としては、それに特有の技術が必要なことと他の超伝導検出器と比べるとエネルギー分解能が劣るために注目されなかったことが考えられる。有効面積が1mm²、厚さが400μm (Si)の超伝導直列接合検出器(基板表面に下部電極の面積が45μm角の超伝導トンネル接合を約2000個配置)で、半導体検出器より約2倍優れたエネルギー分解能(63.5eV@5.9keV)と8000という大きなピーク対バックグラウンド比が得られており、また約2万個/秒の計数率に相当する信号電荷収集時間2μsが得られている。半導体検出器と比べて特性X線での元素分離能はかなり優れている(図参照)。

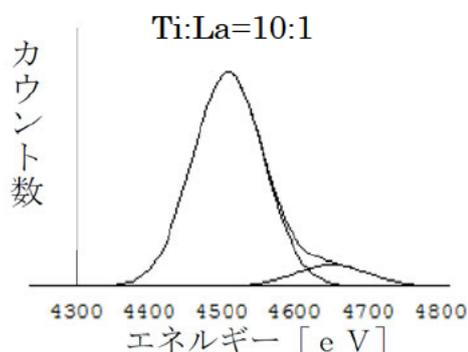


図 1. Ti(K α),La(L α)の計算によるスペクトル
半導体検出器 (SDD) に相当

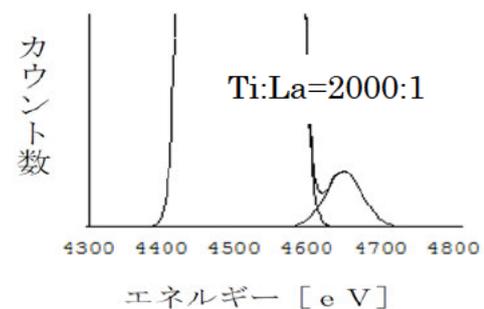


図 2. Ti(K α),La(L α)の計算によるスペクトル
事業開始前の分解能に相当

超伝導直列接合検出器には次のような実用化に適した特徴がある。

1. 超伝導トンネル接合を直列に接続することによって、接合の総面積を増加させたときの静電容量の増加の影響を抑制する。それによって従来の TES や超伝導単接合検出器と比べて大面積化が可能になる。
2. 超伝導トンネル接合を形成した単結晶基板の裏側に X 線を吸収させるため、基板が吸収体となり、吸収体の厚さは数 100 μm 以上となる。このために、従来最良分解能の半導体検出器 (SDD) と同等の高い吸収効率になる。
3. X 線を厚い単結晶基板で吸収してそのエネルギーをフォノンに変換し、そのフォノンを基板の表面に設けた数千個の超伝導トンネル接合に吸収させて電子を励起させるため、超伝導電極中での励起電子の密度は低く、単接合検出器に比べると少なくとも数 100 倍は高いエネルギーまで信号波高の直線性は良いと予想される。(実際、5.5MeV の α 粒子も測定できている。) X 線では 44keV まで直線性を確認済みであり、ダイナミックレンジが広く、SDD などの従来の半導体検出器を利用してきた分析への応用が可能である。
4. 厚い単結晶基板で X 線を吸収するため、X 線は基板の深くで吸収される確率が高くなり、励起された電子の一部が膜の表面から飛び出してしまう確率は小さくなる。その確率は半導体検出器と殆ど同じになると予想され、エネルギー分解能が良い分だけピーク対バックグラウンド比 (P/B) は半導体検出器より良くなると思われる。そのため、例えば微量成分元素の検出に有利。
5. X 線は常に基板で吸収され、発生したフォノンは必ず下部電極に吸収されるため、2重ピークは発生しない。
6. X 線およびはるかに高エネルギーの α 粒子に対しても信号の時定数として 2 μs の時定数が得られており、毎秒 2 万個までの高い計数率の測定の可能性を有している。しかも、量子型検出器であり、大面積化しても検出器の応答速度には殆ど影響が無いことを確認済み。

本事業では超伝導直列接合検出器のエネルギー分解能は他の超伝導体検出器に比べると劣るものの、上記の特徴を活かして実用性の高い「高い検出効率と高速性を兼ね備えたエネルギー超高分解能 X 線検出器システムの開発」を目指すべく提案を行ない、開発を行なった。

2-2. 補助事業の具体的内容

システム全体の概要と超伝導直列接合検出器素子の構造の例と原理等を示す。

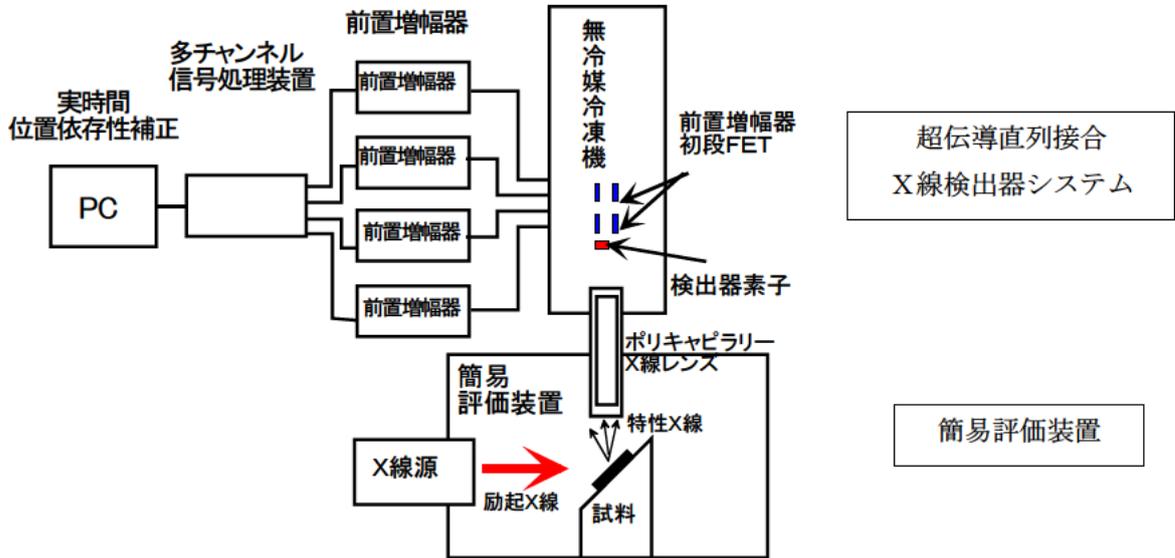
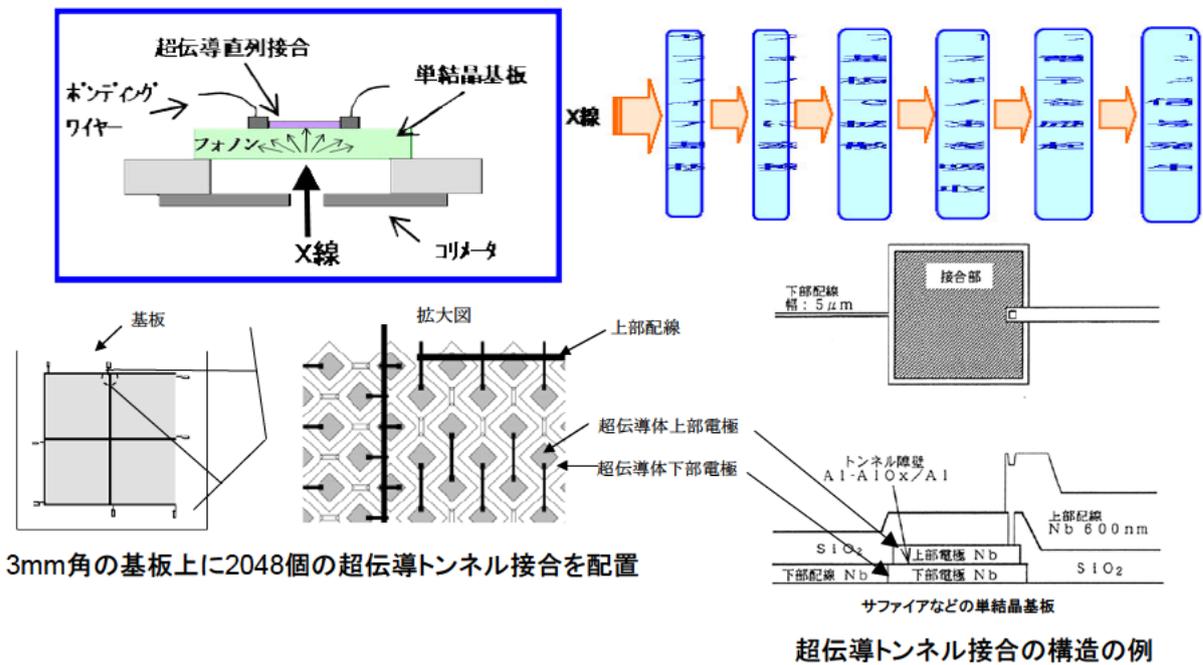


図 3. 超伝導直列接合X線検出器システムと簡易評価装置



3mm角の基板上に2048個の超伝導トンネル接合を配置

超伝導トンネル接合の構造の例

図 4. 超伝導直列接合検出器の構造の例と原理

【1. 超伝導直列接合検出器素子の高性能化課題への対応】

【1-1】検出器素子の大有効面積化

超伝導膜の成膜条件と素子加工条件などを改善することによって信号電荷量を、従来の $3\text{mm}\times 3\text{mm}$ 基板上に作製した素子を用いて 5.9keV のX線に対して 70eV 程度の分解能が得られたときの約4倍にすることが出来るようになってきた。有効面積を10倍にするには $6\text{mm}\times 6\text{mm}$ 基板上に素子を作製して中心の約 $3.2\text{mm}\times 3.2\text{mm}$ を有効面積に出来れば良い。ノイズは面積のルートに比例するため、素子面積を4倍にして有効面積を10倍にするには信号対雑音比 (S/N) が2倍になればよい。その条件は満足できるようになってきている。しかしながら、性能向上のために、本事業では、当初の検出器素子を分析装置の中に挿入する方式から分析装置内で発生したX線をポリキャピラリーX線レンズで集め、冷凍機内に設置した超伝導直列接合素子の中央に集光する方式に計画を変更した。そのため、本事業では大面積素子の必要性が無くなった。将来的には、ポリキャピラリーX線レンズの利用が難しい高エネルギーX線などの検出のために検出器素子の大面積化にも取り組む予定である。

【1-2】超伝導トンネル接合の特性改善による検出器素子の信号電荷増大とノイズ低減

素子構造や成膜時の膜ストレス低減やトンネル障壁の薄膜化など製造プロセスの改良を理化学研究所とテクノエックスとの共同で進め、本事業前の約4倍大きな信号電荷を得た。同じプリアンプで測定した場合で、 5.9keV のX線に対するプリアンプ出力は本事業前は 20mV 程度であったが、最近では 80mV 程度の出力が得られている（下図参照）。

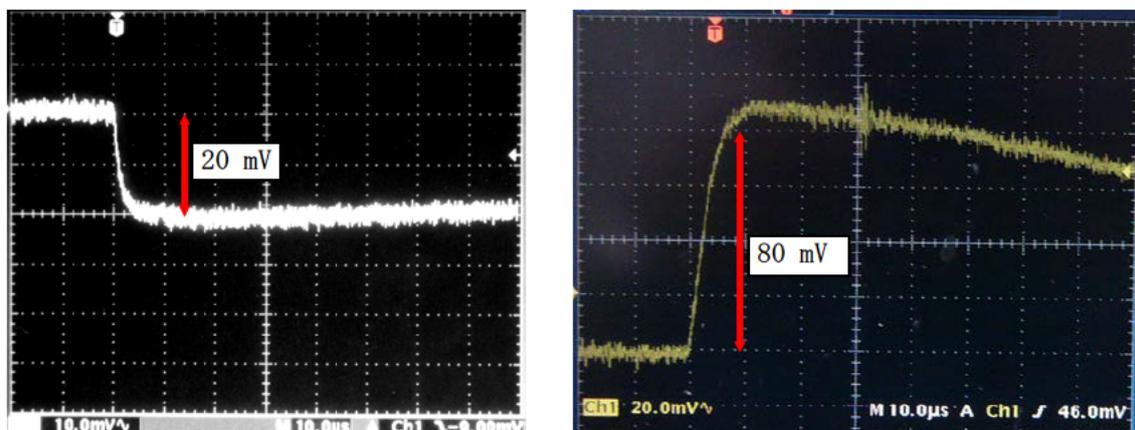


図5. 本事業の前（左）と後（右）でのプリアンプ出力の波形 (^{55}Fe)

出力の極性が異なっているのは単にバイアス電圧の極性が異なっていたため。これらの測定では、それぞれの 4 つの直列接合は基板上でボンディングワイヤーで直列に接続され、検出器から 1 つの出力のみが取り出されている。

【1-3】検出器素子構造改良による性能向上

次図に作製した検出器素子の 1 例の写真を示す。図に示した素子は、 $3\text{mm}\times 3\text{mm}\times 0.4\text{mm}$ のシリコン基板の表面に下部電極の面積が $45\mu\text{m}\times 45\mu\text{m}$ 、上部電極の面積が $25\mu\text{m}\times 25\mu\text{m}$ の超伝導トンネル接合を直列に 16 個接続し、それを更に 32 個並列に接続したものを 4 つ形成して作製されている。それらの 4 つはそれぞれ別々に信号を取り出すことができるようになっている。超伝導トンネル接合の総数は 2048 個である。

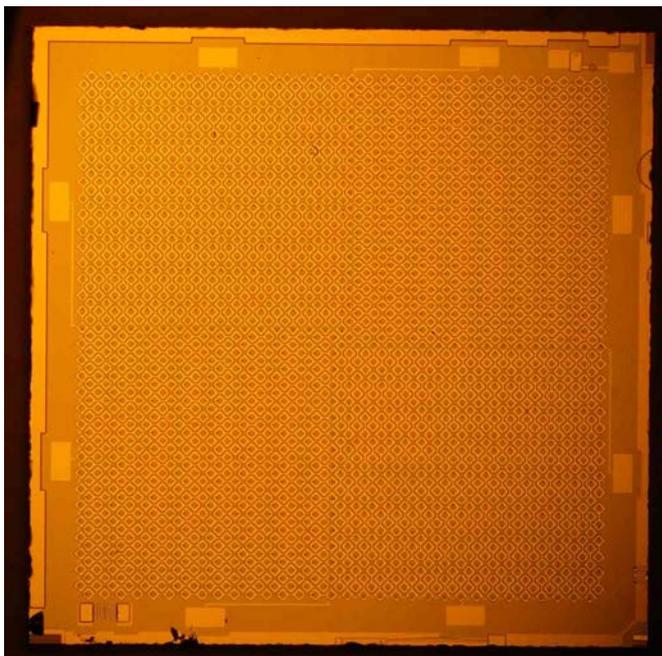


図 6. シリコン基板上に 16 直列×32 並列の 4 つの直列接合を形成して作製した検出器素子。信号が取り出せるように各直列接合は 2 つのボンディングパッド（グラウンド用と信号用）につながっている。

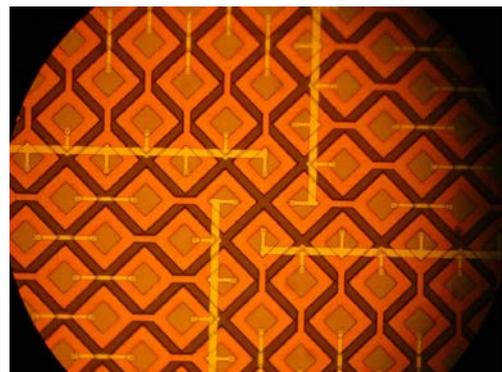


図 7. 左図素子中央部の顕微鏡写真。下部電極、上部電極および上部配線が見える。なお、赤っぽいのは単に写真の問題であり、実物は赤くはない。

超伝導トンネル接合の面積は上部電極の面積で決まり、一方、信号を発生させるために基板からのフォノンを吸収させるのは下部電極である。下部電極の面積に対するトンネル接合の面積の割合が大きい方がトンネル効果で信号電荷を取り出しやすい反面、トンネル接合の面積が大きいとそこを流れる電流が大きくなり易いのと同時に静電容量も大きくなり、検出器自体が発生するノイズが大きくなる。上部電極と下部電極の面積および配置する超伝導トンネル接合面積の数を色々と変えた検出器素子を試作し、 ^{55}Fe からのX線をそれらの素子で測定して信号の大きさSとノイズNを測定した。

例を次に示すように

	信号の大きさ	ノイズの大きさ (半値幅)	S/N
従来素子	763 チャンネル	7.96 チャンネル	95.9
新規素子	591 チャンネル	4.86 チャンネル	121.7

接合の総面積を小さくした素子で、信号電荷は小さくなっているものの、ノイズはそれ以上に小さくなり、S/N は従来素子より 1.27 倍に大きくなっている。素子構造の改良によって相対的にノイズを 0.8 倍（上記例では、79%）にできた。

【1-4】Ta 系接合による信号電荷増大

Ta 系接合を用いた素子の作製のため、低ストレスとなる Ta 成膜最適条件の探索中、検出素子として利用可能なレベルの素子作製を現時点でも達成。

Ta のエネルギーギャップは Nb のその約 1/2 と小さい。そのため、Ta 系超伝導トンネル接合を用いた超伝導直列接合検出器では Nb 系超伝導トンネル接合を用いたものに比べて 2 倍大きな信号電荷が得られると期待できる。ノイズが同じであれば 2 倍大きな信号対雑音比 (S/N) が可能であり、eV で考えたノイズは Nb の場合の 1/2 になる可能性がある。そのため、H27 年には Nb 系超伝導トンネル接合に加えて Ta 系超伝導トンネル接合を用いた超伝導直列接合検出器の開発も開始した。

Ta 系超伝導トンネル接合の開発を理化学研究所とテクノエックスの共同で行った。超伝導トンネル接合の作製では、超伝導膜の成膜時に膜に発生するストレス（応力）が小さいことが重要であり、ストレスが大きいとリーク電流が大きくなりやすいことが知られている。そのため、また特に Ta は硬くてストレスを発生しやすいと考えられるため、スパッタリング装置で Ta 膜を成膜するときの Ta 膜のストレスを小さくするスパッタリング条件の探索

【公開版】

から始めた。ガス圧以外のパラメータは固定して、スパッタリングのときの Ar のガス圧をパラメータとしてストレスが小さくなる条件を探索して求めた。どちらもそれぞれの低ストレス条件で成膜し、同じ酸化条件で作製した Nb 系超伝導直列接合検出器と Ta 系超伝導直列接合検出器で以下のような結果が得られている。

- トンネル障壁の常伝導抵抗値：どちらも $7.8\mu\Omega\text{cm}^2$ (Nb, Ta)
- I-V特性上での電流が 20 nA のときのバイアス電圧値：
30mV (Nb)、12.5mV (Ta)
- 信号波高：
2.8mV (Nb)、14.2mV (Ta)
- ノイズ (パルサー半値幅)： 1300eV (Nb)、 180eV (Ta)

すなわち、トンネル障壁の酸化条件は等しいためにトンネル障壁の抵抗値は等しい。通常はバイアス電圧が大きいほど信号電圧は大きくなるが、Ta 系超伝導直列接合検出器ではバイアス電圧が小さいにもかかわらず Nb 系超伝導直列接合検出器より信号が大きく、その結果として S/N もかなり大きく、小さいノイズ値 (eV) が得られた。Ta 系超伝導直列接合検出器は超高分解能を実現するのに適していることが分かった。しかしながら、まだ優れたエネルギー分解能が得られておらず、中間評価で、まずは実績のある Nb 系接合に集中した方が良いのではないかとアドバイスを受けたため、Ta 系接合の研究開発は Nb 系接合で実績が得られてから再度取り組むことにした。

【2. 信号処理システムの高性能化課題への対応】

【2-1】信号処理回路の改良開発

超伝導直列接合検出器は冷凍機の中に設置して冷却して使用する。検出器素子と信号処理のための前置増幅器 (プリアンプ) が離れているとその間をつなぐ配線の静電容量が大きくなる。信号電圧の大きさは検出器素子と配線等の静電容量の大きさの和に反比例するため、ノイズの影響を小さくするには静電容量はできるだけ小さい必要がある。配線を検出器素子から室温部までのばすと配線の静電容量は検出器素子の静電容量よりも大きくなってしまい、ノイズが大きくなってしまう。それを改善するには、プリアンプの初段 FET を冷凍機の中の検出器素子の近くに設置でき

【公開版】

るプリアンプが必要になる。冷凍機内に設置して低温で作動するようにした超伝導直列接合検出器専用の 4 チャンネルの信号を処理できるプリアンプを開発した。

プリアンプヘッドは冷凍機内に設置して冷却テストを行い、プリアンプが正常に作動することを確認した。ただし、このプリアンプが冷凍機の熱負担を大きくすることが分かった。そのため、プリアンプ開発の第二段階として、プリアンプヘッドとプリアンプ本体を冷凍機内に配置でき、しかも発熱を小さくしたプリアンプを開発した。プリアンプヘッドの FET を冷却すると温度によって特性が変化するが、その特性に応じてバイアス条件を調整できるコントローラーを室温の冷凍機上部に設置し、FET の温度に応じてバイアス条件を調整してプリアンプを低ノイズ化するための調整をできるようにした。図 8 に冷凍機の上に取り付けたコントローラーの写真を示す。プリアンプの検出器素子への近接化による信号配線の静電容量低減と FET 冷却による FET 自体のノイズの低減により、室温に設置して低温の検出器素子と配線で接続する方式のプリアンプを用いた場合と比べてプリアンプノイズの検出器出力への寄与を約 50%低減することができた。



図 8. 開発したプリアンプコントローラー

プリアンプ出力を信号処理するためのシステムでは、下記ブロック図にあるように、XG Lab 社の TRAVIATA モジュールを使用した。ただし、TRAVIATA では、X 線発生の際の各イベントにおける 4 チャンネルのそれぞれのエネルギーを検出することはできないため、TRAVIATA の動作モードとして、LIST モードの機能を追加してもらい、このモードでは、各イベント発生時に、時刻・チャンネル・エネルギーのデータを PC へ出力させるようにした。LIST モードにて得たデータに対して位置補正処理を行い、スペクトルを得るようにした。

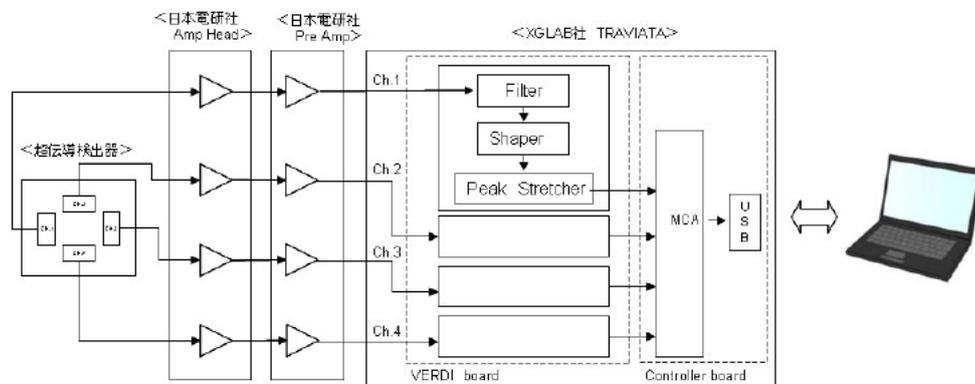


図9. TRAVIATAモジュールを用いた信号処理システム

計測系システムを1つの信号処理ユニットとし、小型で使いやすいシステムとして運用できるようにした。開発した信号処理ユニットを図10に示す。



図10. TRAVIATAモジュールを組み込んだ信号処理ユニット

【2-2】信号処理ソフトの改良開発

信号処理については、位置依存性補正プログラムおよび信号等の通信のためのライブラリを作成した。TRAVIATA から LIST モードでデータを取得し検出位置に対するスペクトルを生成できるようにした。このライブラリを弊社の主な装置のアプリケーションソフトに組み込むことで波形処理をピーク同定まで行いスペクトル表示できるようにした。

位置依存性補正方式は超伝導直列接合検出器でエネルギー高分解能を得るのに非常に有用

【公開版】

な手段である。補正の精度をさらに向上させるように改良した信号の大きさの入射位置依存性の補正アルゴリズムを新たに開発した。また、従来の位置依存性補正プログラムはビジュアルベースで作成されていたが、C++でプログラムを作成して計算を高速化した。新しい補正方式で放射性同位元素 ^{55}Fe からのX線を測定したデータの位置依存性の補正を実施した例を図に示す。位置依存性補正によってエネルギー分解能が大幅に向上しており、補正が正しく行なわれていることが分かる。更に、補正計算の速度は約 3.5 万個/秒から 15 万個/秒へと大幅に改善された。

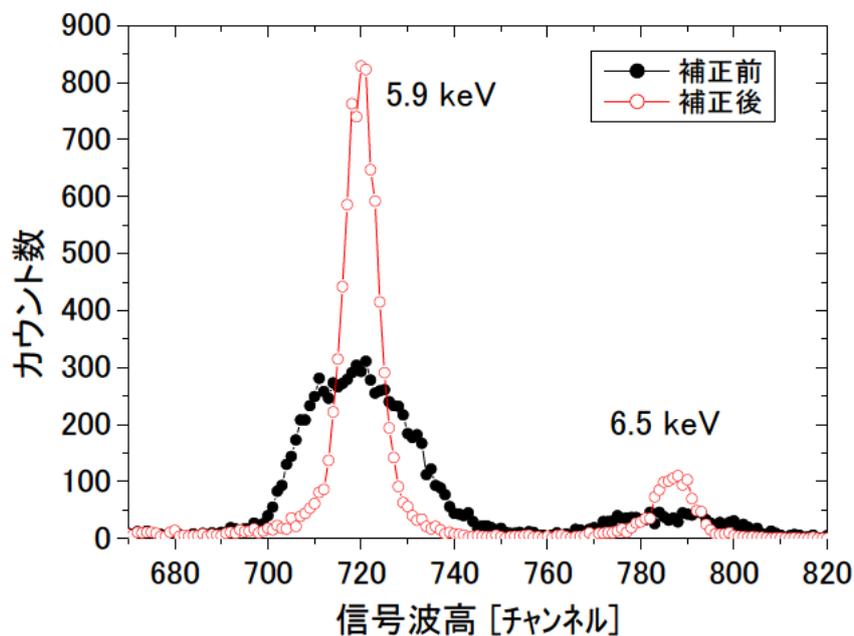


図 11. 位置依存性補正前後のスペクトル

【3. 冷凍機の改造とスノート構造の開発課題への対応】

【3-1】冷凍機改造とスノート構造の開発

超伝導遷移端センサー (TES) は通常 0.1K 程度の温度に冷却されて使用されるし、超伝導単接合検出器や超伝導直列接合検出器は、0.3K 程度以下の温度に冷却して使用される。以前はそのような低温を得るには先ずは液体ヘリウム 4 (^4He) を使用して 2~4K 程度の温度を生成することが必要であったが、最近ではパルスチューブ冷凍機などの機械式冷凍機で液体ヘリウム無で 3K 程度の低温を得ることが可能であり、液体窒素や液体ヘリウムなどを供給することなく、検出器を極低温に冷却することが可能になっている。スイッチをオンするだけで全自動で約 0.3K まで検出器

【公開版】

素子を冷却することができるように、本研究開発においても冷凍機としては液体窒素や液体ヘリウム の供給とその後の冷却作業も必要としないパルスチューブ冷凍機を利用した無冷媒全自動ヘリウム 3 冷凍機を採用した。なお、無冷媒全自動ヘリウム 3 冷凍機には、使用の簡便さに加えて、冷却水用のチラーを含めて電力のみでの動作が可能であり、液体ヘリウムを用いた冷却より遥かに安価な 24 時間で数千円の費用のみで全自動冷却が可能であるという実用上の大きな利点もある。ヘリウム 3 ガスを装置内に封入して利用する冷凍機は構造が単純であって、故障が少ないという利点もある。

無冷媒全自動ヘリウム 3 冷凍機自体は、超伝導単接合検出器用にも使われた例はあったが、超伝導直列接合検出器ではプリアンプの出力信号の電圧が超伝導単接合検出器に比べて数十分の 1 と小さいため、機械式冷凍機の発生する機械的振動や電氣的ノイズに対する対策が非常に重要であった。プリアンプにも冷凍機からのノイズに対する対策を行った。対策前には 5.9keV の X 線の信号の観測さえ困難であったが、防振対策や良好なグラウンドの設置、電磁シールドなどのノイズ対策を行うことにより、機械式冷凍機であるパルスチューブ冷凍機に起因するノイズのエネルギー分解能への影響を殆ど無くすことに成功した。

冷凍機にプリアンプを内蔵できるように改造した。また、冷凍機下部にはポリキャピラリー X 線レンズと簡易評価装置を取付けられるように改造した。

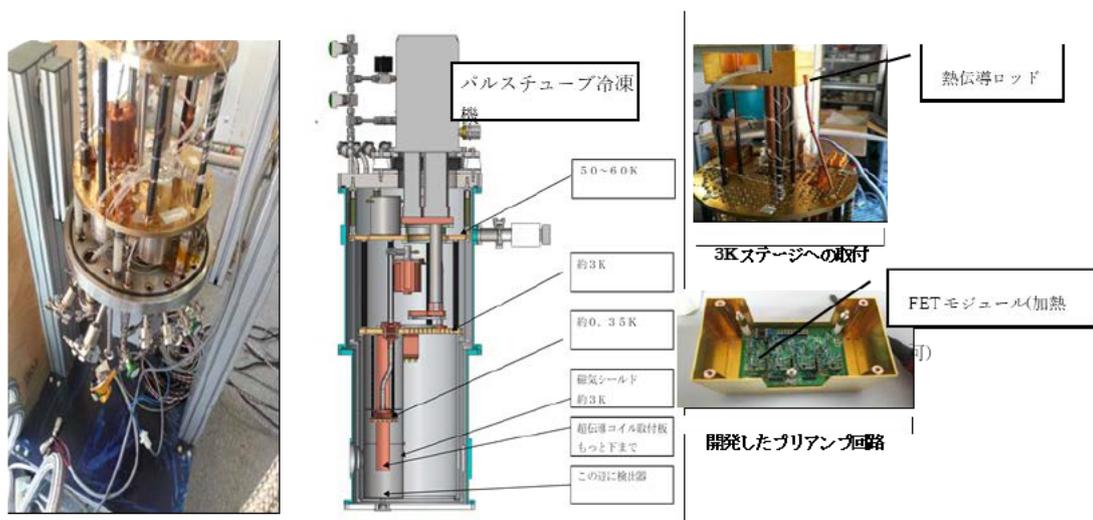


図 12. He-3 冷凍機の構造とプリアンプ回路の様子

左端写真では冷凍機は作業のために上下反転させてある。

また、簡易評価装置は軽元素からの低エネルギー特性X線にも対応できる。試料は真空容器中の位置調整可能な試料台の上に乗せ、カメラで見ながら位置を調整することができるようにした。試料から発生した特性X線は前記のポリキャピラリーX線レンズを通して冷凍機の内部に導かれ、超伝導直列接合検出器素子に集光して照射できるようになっている。使いやすさと信頼性および高性能化を同時に達成できるポリキャピラリーX線レンズ方式への変更を実施したことで、当初案より性能が向上した。



図 13. 簡易評価装置の 3D 図面と写真



図 14. 簡易評価装置を組み込んだ超伝導検出器。左図；全体。右図：測定部拡大

2-3. 補助事業の成果及びその効果

【1. 超伝導直列接合検出器素子の高性能化課題への対応】

【1-1】検出器素子の大有効面積化

信号電荷増大とノイズの低減によって大面積化の条件が整ってきた。大面積可のためのフォトマスクを作製した。有効面積を 10mm^2 以上にするのが可能になった。

【1-2】超伝導トンネル接合の特性改善による検出器素子の信号電荷増大とノイズ低減
成果及びその効果：

超伝導体膜の成膜条件と素子加工条件などを改善し、約 4 倍の信号電荷強度を達成。信号対雑音比の向上により超高分解能が可能になる。

【1-3】検出器素子構造改良による性能向上

成果及びその効果：

信号対雑音比 (S/N) は従来より 1.27 倍大きくなった。微細化によって相対的にノイズを 0.8 倍にできた。高分解能の向上が可能になる。

【1-4】Ta 系接合による信号電荷増大

成果及びその効果：

同じ条件で作製した Nb 系接合と比べて信号電荷が約 5 倍大きく、S/N が 6 倍大きい Ta 系接合検出器が作製できた。今後、トンネル障壁を薄くして信号電荷を増大させれば、Ta 系接合を用いた超伝導直列接合検出器が超高分解能器として有望であることが分かった。Ta 系接合を用いた超伝導直列接合検出器は、信号電荷が大きくなる代わりに Nb 系に比べて低速（数倍から 10 倍程度）であることも分かった。それでも TES などのカロリメータと比べれば数十倍高速であり、将来的には超高分解能になることが期待できる。高分解能化は Nb 系接合を用いた超伝導直列接合検出器の開発の後に再度取り組む予定である。

【2. 信号処理システムの高性能化課題への対応】

【2-1】信号処理回路の改良開発

成果及びその効果：

冷凍機に搭載して低温下で正常に動作するプリアンプを開発した。検出器素子とプリアンプ間の配線の静電容量の低減の効果も含めて、プリアンプのノイズが半減した。これはエネルギー高分解能の向上を可能にする。また、プリアンプ出力後の 4 チャンネル信号処理システムの開発も行なった。得られたスペクトルに対する波形整形などのパラメータもパソコンから指定できるようになり、測定の精度を向上させるとともに取扱いも容易になった。

【2-2】信号処理ソフトの改良開発

成果及びその効果：

新しい方式の位置依存性補正ソフトを開発し、位置依存性補正の精度を向上させた。また、高速化のためのソフトの改良も行い、補正計算の速度を約 3.5 万個/秒から 15 万個/秒へと大幅に改善した。カロリメータ（100 個/秒程度）との大きな差異である高速性をさらに向上させることによって超伝導直列接合検出器の優位性と実用性の高さを確立できた。高速の信号処理が可能のため、将来は検出器の多素子化への対応も可能となると考えられる。

【3. 冷凍機の改造とスノート構造の開発課題への対応】

【3-1】冷凍機改造とスノート構造の開発

成果及びその効果：

冷凍機関係の改造と関係各種部材の組込を行なった。冷凍機は超伝導直列接合検出器に対する大きな外来ノイズ減になったが、防振対策や電氣的ノイズのシールドなどの対策を行ない、殆ど問題にならない程度までノイズを低減した。これにより、無冷媒全自動ヘリウム3冷凍機が超伝導直列接合検出器用の冷凍機として使用できるようになった。使いやすさと信頼性および高性能化を同時に達成できるポリキャピラリーX線レンズ方式のスノートおよび試料位置調整機構を設計、製作して冷凍機に組込んだ。これによって検出効率の高い分析が可能になると同時に微小部や微小粒子などの分析も可能になった。

以上の本事業での開発成果により、半導体検出器 SDD の理論限界 120eV を超える超伝導直列接合検出素子を用いた蛍光 X 線分析装置としての試作を実施した。この成果により、高エネルギー分解能での蛍光 X 線測定は可能となった。ただし汎用機としての製品化のためには極低温プリアンプのより安定な動作確保やシステム全体でのノイズ低減等が必要であり、このための改良を今後実施し、製品化を行う予定である。

第3章 全体総括

超伝導直列接合検出器の従来エネルギー分解能にはノイズの影響が大きかった。例えば、5.9keVのX線に対して63.5eVのエネルギー分解能が得られたときのノイズの大きさは45.5eVであった。超伝導直列接合検出器の場合には放射線の入射位置による信号の大きさの変動を補正する必要があるが、ノイズはエネルギー分解能を直接劣化させるだけでなく、信号の大きさの補正の精度を劣化させることによってもエネルギー分解能を悪くする。そのため、上記の63.5eVの分解能の大部分はノイズの影響である可能性がある。ノイズの主要な原因としては、検出器素子自体が発生するノイズとプリアンプが発生するノイズがある。プリアンプが発生しているノイズは検出器素子を取り付けないときのノイズを測定することによって評価できる。その割合は検出器素子に依存するが、上記の例では、それらの2種類のノイズの寄与は同程度であった。そのため、両方のノイズを小さくすることが高分解能化には必要であった。

プリアンプノイズの影響を低減するためには、初段FETの選択、冷却による発生ノイズの低減、および検出器素子への近接化によるFET検出器素子間の配線の静電容量の低減を行い、プリアンプの発生するノイズの影響は半減させることができた。

信号電荷が大きくなれば、ノイズの影響は相対的に小さくなる。検出器素子の発生する信号電荷を大きくするための素子改良と検出器ノイズを小さくするための素子の改良も進めた。上部電極の面積だけでなく、下部電極の面積も色々と変えてそれらの組み合わせによるS/Nへの影響も調べた。また、超伝導膜の成膜条件なども色々と変えて信号電荷量をできるだけ大きくなるように改良してきた。本事業の結果、冷凍機の外に室温作動プリアンプを置き、プリアンプと冷凍機内の検出器素子とを配線でつなぐ従来の方式でも27eVという低ノイズが得られた。

従来、特に低エネルギーのX線に対しては、エネルギー分解能へのノイズの影響が大きかった。低ノイズ化はエネルギー分解能の向上につながるが、特にノイズの影響の大きい低エネルギーX線に関しては、大幅な分離能の改善に直結し得る。従来のノイズが比較的大きかったときには、ノイズの小さいSDDと比べた場合には低エネルギーX線に対する分離能の違いは比較的小さかったが、44.5eVから27eVへの低ノイズ化だけでも低エネルギーX線に関してもSDDに対する優位性が大きく拡大する（次図参照）。

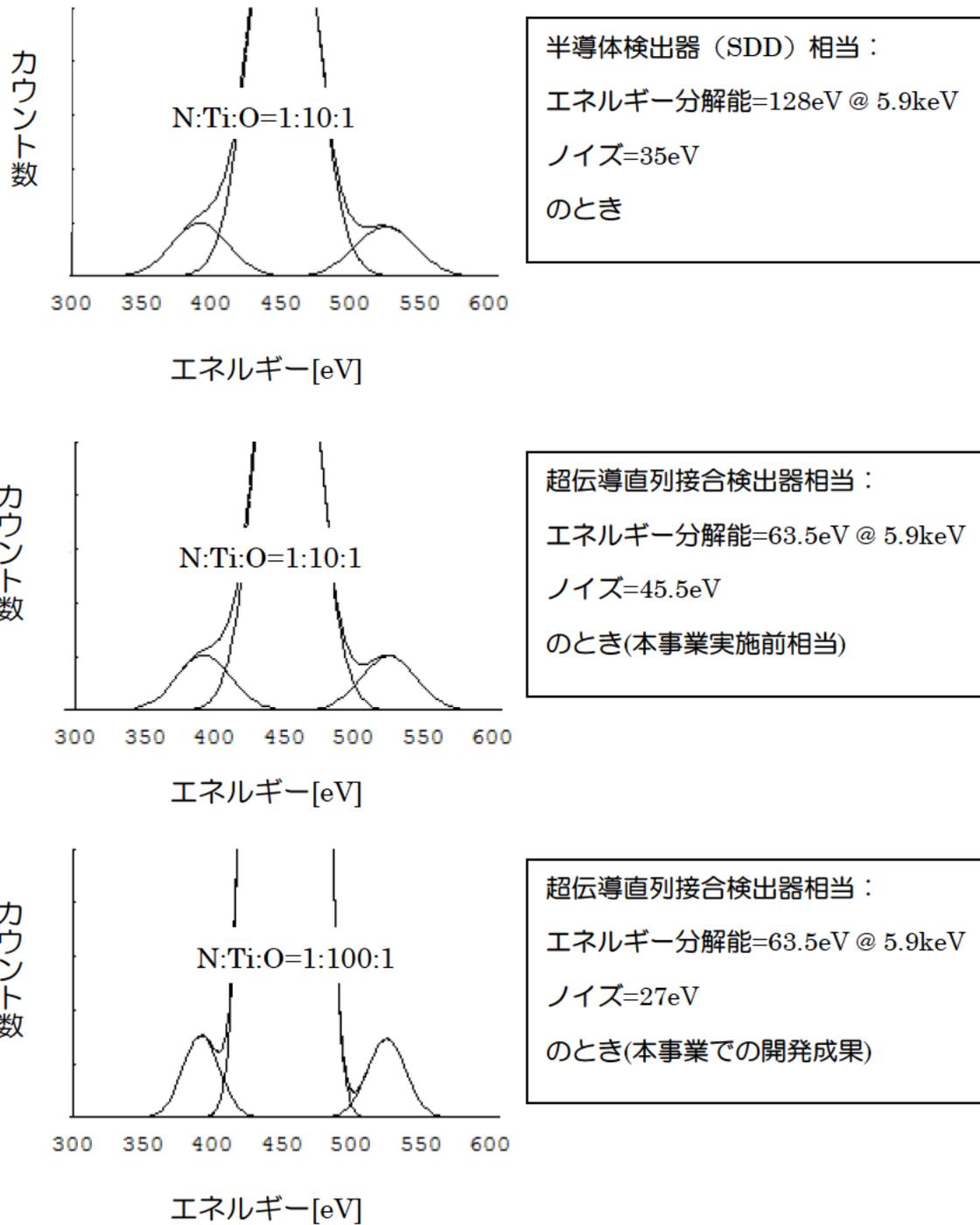


図 15. 低エネルギーX線に対するスペクトルの比較

窒素の $K\alpha$ 、チタンの $L\alpha$ 、酸素の $K\alpha$ X線が共存する場合の計算によるスペクトルの比較

【公開版】

現在まで半導体検出器よりも数十倍も優れたエネルギー超高分解能が可能な TES が注目されて世界中で研究開発されている。しかしながら、可能な計数率は SDD と比べると数百倍から千倍程度低いため、定量分析の精度は低い。定量分析の精度の高い実用性の高い検出器であるためには、エネルギー分解能が優れているだけでは不十分である。分析に関する多くの応用においては、検出効率、高速性（計数率）、エネルギー分解能全てにおいてバランスの取れた高性能が求められる。本事業によって超伝導直列接合検出器素子の設計や作製プロセスを改善することができ、これまでの素子と比べて信号対雑音比を向上させた検出素子を開発した。無冷媒全自動ヘリウム 3 冷凍機の導入と改造、また信号処理回路、ソフト、検出器評価装置などもそれぞれ実用的な試作装置を構築することができた。超伝導直列接合検出器を利用した検出器システムの実用性の高さが示された。その結果、近年中に超伝導体検出器システムの販売を開始する予定である。

なお、本事業期間中に国内研究会で 3 件(うち 1 件招待講演)の発表を行なった。また、H27 年度には全反射蛍光 X 線の国際会議(TXRF2015、米国)で招待講演をおこない、H28 年度にはスペインで開催された放射線イメージング検出器関係の国際会議（18th iWORiD）でも招待講演を行った。論文発表も 2 件行っている。