

機関番号： 24403

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2007～2010

課題番号：19206104

研究課題名（和文） 微細加工超伝導検出器アレーによる中性子イメージング

研究課題名（英文） Neutron Imaging using Superconducting Detector Array

研究代表者

石田 武和（ISHIDA TAKEKAZU）

大阪府立大学・工学研究科・教授

研究者番号：00159732

研究成果の概要（和文）：

本研究では、MgB₂ 検出器中の同位体 ¹⁰B と中性子の核反応熱を利用して熱中性子を捕捉することに成功した。多チャンネル超伝導特性評価計測システムを構築しバラツキのない素子の開発に成功した。中性子照射のマシントイム 2 回の配分を受け 1 回目の予備実験に続き、2 回目の照射実験に備えたが 3 月 11 日に東日本大震災の J-PARC 被災のため追加のマシントイムが得られなかった。しかし、20ps パルスレーザーとピエゾ XYZ 走査機構を利用して、2 x 2 CH アレー素子と多チャンネル測定系の検証実験に成功した。

研究成果の概要（英文）：

We have developed an arrayed MgB₂ sensor to detect thermal neutrons. Multiple sensors are well fabricated to exhibit almost the same superconducting characteristics. We carried out the neutron irradiation experiment at J-PARC. However, the second machine time was cancelled due to huge earth quake in Japan. Instead, we succeeded in doing the laser irradiation experiment using a pulsed laser with a computer-controlled XYZ stage, and demonstrated the good characteristics using a 2x2 CH MgB₂ sensor.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	7,500,000	2,250,000	9,750,000
2008年度	15,500,000	4,650,000	20,150,000
2009年度	8,600,000	2,580,000	11,180,000
2010年度	5,000,000	1,500,000	6,500,000
年度			
総計	36,600,000	10,980,000	47,580,000

研究分野：超伝導

科研費の分科・細目：総合工学 原子力学

キーワード：①MgB₂ 素子超伝導検出器 ②中性子 ③ピエゾ式 XY 走査機構 ④ナノ領域分析電子顕微鏡 ⑤薄膜温度計 ⑥窒化クロム薄膜

1. 研究開始当初の背景

(1) 超伝導体を微細加工した超伝導検出器は空間分解能の高い検出器として大きな発展の可能性をもつ。また、¹⁰B と中性子の核反応

と組み合わせることで中性子検出器への道も拓かれている。二硼化マグネシウム MgB₂ 超伝導体中のボロン同位体 ¹⁰B との効率的な中性子核反応によるナノスケールの局所熱を

利用して、一つひとつの熱中性子をカウントできる中性子検出器となり得る。高品質のMgB₂薄膜の実現、MgB₂薄膜の微細加工技術の確立、MgB₂検出器の試作、パルスレーザーによる信号検出、最終的にMgB₂検出器による中性子捕捉が可能となる。

(2) 多チャンネル化を推進することを目標としたが、充当できる予算の額からチャンネル数の目標を2x2CHの4CHのシステムに絞り、開発することを目標に設定した。また、それぞれのチャンネルの信号処理は、アナログ方式とし、すべての信号をデジタルオシロスコープで捕捉することとした。

(3) 4CHの研究に成功すれば、将来、チャンネルを増やすことは原理的に容易に対応できることがわかる。

2. 研究の目的

(1) 本研究の目的は、MgB₂検出器や多重構造を持つアレー構造へと研究を高度化させ、中性子のイメージングに応用することである。

(2) 素子の作成技術を高度化するために、電子顕微鏡による分析を行う。また、研究用原子炉のマシントイムの確保、J-PARC完成後のマシントイムの確保することが必要である。

(3) 超伝導中性子検出器開発に当り、検出感度や効率を最適化するため、必要となる設計指針を得るため、中性子検出過程を超伝導ダイナミクスのシミュレーション手法の開発を行う。中性子検出器における熱の発生に伴う温度上昇の空間変化と時間変化を、検出器まわりの構造を取り入れて、より具体的に理論的に研究する。さらに、3次元構造の超伝導デバイスの振る舞いを微視的に研究する方法を開発する。

(4) MgB₂素子を中性子検出器として利用するためには素子を超電導転移温度に精密に制御する必要がある。このため高感度低熱容量の温度計を素子近辺に形成する必要がある。メンブレン上にMgB₂素子を形成する場合は直接温度計をメンブレン上に形状することが要求されるため再現性のよい低温用温度計開発が制御のためには必須である。MgB₂素子は中性子に暴露されるため同時に温度計も中性子に暴露される。このため放射線暴露に強い構造が必要である。中性子検出器に使用するための室温から低温まで強磁場中でも測定することの出来る温度計を開発する。

(5) 本研究課題で目標とする中性子検出器の心臓部ともいえるMgB₂薄膜の膜質の高性能化をはかる。また、その技術の実証のために能動素子としてジョセフソン接合の作製を試み、その特性を評価する。

3. 研究の方法

(1) 超伝導体中の同位体¹⁰Bと中性子の核反応熱を利用して熱中性子を捕捉する実験は頻繁には行うことができない。そのために中性子による核反応熱で

はなく、20psパルスレーザーによる局所熱源を素子に付与する手法を発展させた。これにより、中性子照射のマシントイムに縛られることなくMgB₂素子の実験が可能となった。更に、図1に示すように、

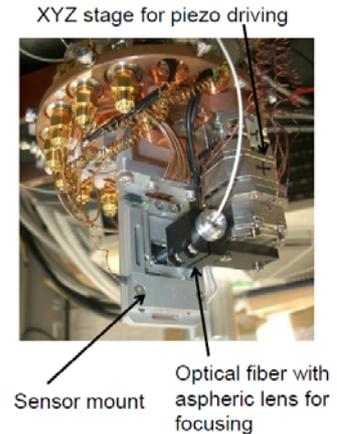


図1 MgB₂素子マウントと
ピエゾ駆動機構（低温部）

MgB₂素子の空間分解能を知るためにピエゾ方式XYZ駆動ステージ走査機構を製作した。

(2) 図2に素子の写真示すように、1x4CH、2x2CHの多チャンネル測定システムの開発試験ができるようにした。多チャンネルの素子では、作製後多素子の超伝導特性を評価することが必要であるがひとつの素子

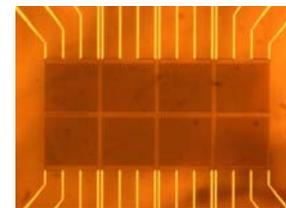


図2 2CH MgB₂素子の写真。1x4CH、あるいは、2x2CHの素子として利用。

ごとに行うと時間がかかる。デジタルボルトメータ、スキャナカード、多チャンネル電源による特性評価計測システムを構築し、素子作製から評価までのサイクル時間を数日に短縮することを目的とした。

(3) 中性子照射実験については、2回分のマシントイムの配分を受け、現地調査を行い第1回目の照射実験を行った。

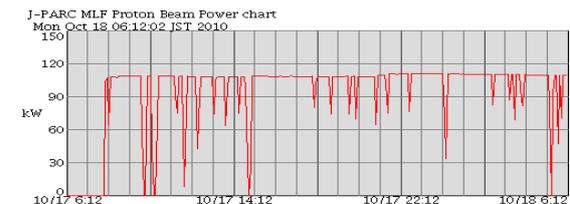


図3 J-PARCにおける中性子ビームの安定性。数日間のスケールでは不安定性がある。

3に示すようにビームが常に安定して出るわけではないなど困難が認められた。

(4) 2度目の中性子照射実験に備え、J-PARC センターにてオフビーム実験を行い、図4に示すように遮蔽効果の高いセミリジッドケーブルの使用、コモンモード雑音低減化のため差動増幅器の使用による雑音低減を実施した。3月11日に東日本大震災のためにJ-PARCが被災して予定していた第2回目のマシンタイムを得ることが絶望的となった。

(5) LaB_6 を用いた磁気カロリメーター方式の中性子検出器の基礎研究も実施して、高品質単結晶の加工を行った。

(6) 3次元有限要素法による Bogoliubov-de

Gennes 方程式による

検出器の準粒子非平衡ダイナミクス、ナ

ノ領域分析手法による

結晶内の欠陥ループの分析電顕観察、

MgB_2 のマルチバンド

超伝導を記述する時間依存ギンツブルク・ランダウ方程式の導出を行った。

(7) スパッタリングによる高品質で平滑な MgB_2 薄膜、 NbN 薄膜の成膜、10nm の膜厚で $T_c=20\text{K}$ の MgB_2 薄膜の開発を実施した。

(8) 電子顕微鏡による分析、研究用原子炉のマシンタイムの確保、J-PARC 完成後のマシンタイムの確保することが必要である。

(9) 超伝導中性子検出器開発に当り、検出感度や効率を最適化するため、必要となる設計指針を得るため、中性子検出過程を超伝導ダイナミクスのシミュレーションを行った。

(10) 中性子検出器における熱の発生に伴う温度上昇の空間変化と時間変化を、検出器まわりの構造を取り入れて、より具体的に理論的に研究する。さらに、3次元構造の超伝導デバイスの振る舞いを微視的に研究する方法を開発する。

(11) MgB_2 素子を中性子検出器として利用するためには素子を超電導転移温度に精密に制御する必要がある。このため高感度低熱容量の温度計を素子近辺に形成する必要がある。メンブレン上に MgB_2 素子を形成する場合は直接温度計をメンブレン上に形状することが要求されるため再現性のよい低温用温度計開発が制御のためには必須である。 MgB_2 素子は中性子に暴露されるため同時に温度計も中性子照射される。このため放射線照射に強い構造が必要である。中性子検出器に使用するための室温から低温まで強磁場中でも測定することの出来る温度計を開発した。



図4 J-PARCにおけるセミリジッド配線を用いた測定系。

(12) 本研究課題で目標とする中性子検出器の心臓部といえる MgB_2 薄膜の膜質の高性能化をはかる。また、能動素子としてジョセフソン接合の作製を試み、その特性を評価する。

(13) 超高分解能分析電顕及び付設イオン加速器と低速イオンビームエッチング及びイオンビームスパッタ蒸着機能付設超高真空蒸着装置を用いて、各種薄膜形成条件とイオン照射に伴う固体損傷の素過程を調べた。

(14) 中性子検出過程をシミュレーションするため、核反応エネルギー放出後の超伝導状態を時間依存のギンツブルク・ランダウ方程式、マックスウエル方程式、熱拡散方程式を連立させ、その時間発展をシミュレートした。

(15) 中性子検出器における温度の空間変化と時間変化を、検出器まわりの構造を取り入れて、より具体的に理論的に研究するために、有限要素法を用いて任意形状で、様々な物質からなるデバイスにおける熱伝導の様子をシミュレーションする方法を開発する。

(16) 3次元構造を持つ超伝導体の電子状態を求めるために、3次元の有限要素法と Bogoliubov-de Gennes 方程式を用いたシミュレーション方法を開発する。

(17) CrN は反強磁性体半導体であり、heavy-dope することで室温から極低温まで適度な TCR と磁場不感性を同時に付与することができる可能性がある。rf-sputter で成膜条件を最適化することで極低温用温度計としての評価を行った。電気抵抗の温度依存性より VRH が電気伝導のメカニズムであることが分かった。

(18) 開発する温度計は、室温から低温まで強磁場中でも測定できる必要がある。そこで、電気抵抗率の温度変化により温度測定を行うことが出来かつ磁気抵抗も小さいことが期待される Cr-N 薄膜の諸特性を調べることで研究・開発を進めた。

(19) Cr-N 薄膜は RF マグネトロンスパッタ法に成膜を行った。窒素流量比、RF パワー等のスパッタ条件が Cr-N 薄膜の電気特性や組成比等に与える影響を調べ、温度計としての最適な性質を持つ Cr-N の成膜条件を探索した。

(20) また、強磁場中で温度誤差が生じないためには、磁気抵抗が十分小さいことが重要となる。そこで、室温及び低温における磁気抵抗の測定も行った。

(21) MgB_2 薄膜は共蒸着法及びカルーセル型スパッタリング装置を用い、後の熱処理が必要ない作成プロセスを確立する。また、同一真空中で超伝導膜、絶縁膜、金属膜を連続成膜し、ジョセフソン接合を作成する。

4. 研究成果

(1) 上述のLabVIEWプログラムについてはソフトウェアの開発に成功した。素子は図5のようにパッケージに対してワイヤボンディングした。図1に示すように、冷凍機の低温ステージには、XYZのピエゾ駆動方式のステージを実装した。2次元XY走査の例として図6に45x36 μm 素子に関して走査イメージを示している。この場合は、レーザーを焦点からずらして測定している。図6の等高線は、MgB₂素子にパルスレーザースポットを照射した場合に得られるパルス信号の波高値(電圧)をX-Y平面上に等高線として整理したものである。45x36 μm のMgB₂素子の形状を反映した形がしっかりと見えていることが分かる。

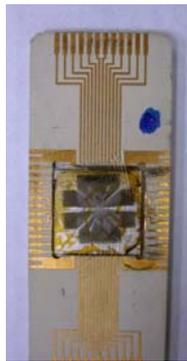


図5 MgB₂素子のパッケージへの実装。

(2) ここで、パルス信号は低雑音前置増幅器を用いて増幅し、焦点方向のZ軸の値は、4250 μm に固定している。X軸の駆動範囲は2760 μm から2890 μm であり、ステップ幅は5 μm

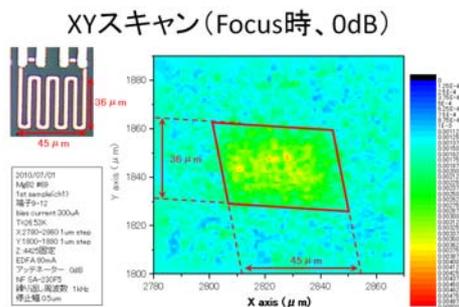


図6 45x36 μm MgB₂ 検出器に対して超短パルスレーザーを照射して応答を確かめた。等高線は、検出されたパルス波高値に対応する。

mである。Y軸は、1770 μm から1900 μm であり、5 μm 幅で走査している。照射レーザーパルス波高値はEDFA増幅器の電流値を80mA、光学減衰器のゲインを-0dBに設定している。このように評価までの目標であった2次元走査機構は1 μm 以下という十分な位置精度で制御が可能であることが分かった。

(3) 素子の作成技術の高度化に関連して、ナノ領域分析手法の開発を目的に、高温下でネオンイオンを安定化ジルコニア単結晶内に30kVで注入し、形成された欠陥ループを分析電顕を用いて観察・分析し、照射により形成された欠陥は{100}、{110}、{1

11}、{112}の各面に沿って形成されていることと、これら欠陥が、数nmの微小

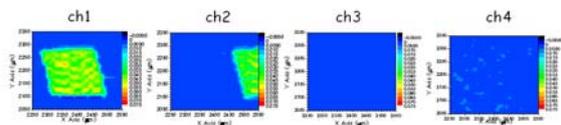


図7 45x36 μm MgB₂ 検出器の4CHに対して超短パルスレーザーを照射して4CH同時測定をして応答を確かめた。高い空間分解能を有することが分かる。

なバブルにより形成されていることを明らかにした。

(4) また、資料作成のためにドライエッチングのメカニズムも研究した。シリコン基板上に高配向性薄膜の製作を目指し、基板前処理に低エネルギーイオン照射スパッタリングを行い、エッチング(基板洗浄)に最適なエネルギー値の決定を行った。その結果、1keV以下のエネルギーでも適切なアニール(約750度)を行うことで、エッチングで導入された基板内欠陥が回復することを明らかにした。さらに、この基板上に、鉄シリサイド薄膜を作製し、X線と電子顕微鏡を用いてその膜構造を、AFMで表面モルホロジーを調べ、ホモエピ成長領域が存在することを明らかにした。

(5) MgB₂ 検出器のリアルなシミュレーションを行うため、超伝導ダイナミクス等のシミュレーション手法を2バンドモデルへ拡張した。具体的には、理論的枠組みを構築し、必要となる方程式を導出した。また、理論的にそのダイナミクスを解析し、2バンドによる特異な振る舞いを明らかにした。

(6) 有限要素法と熱伝導方程式を用いたシミュレーション方法で、中性子検出器の温度の時間変化を求めた。特に、メンブレン構造で温度上昇が高くなることをシミュレーションで示すことができた。また、それに伴う検出器の抵抗変化を求め、実験と合う結果が得られた。3次元のナノサイズの超伝導デバイスの電子構造を求めるプログラムを完成させ、いくつかの超伝導体の構造における電子構造を求めることができた。

(7) RFスパッタで成膜したCrN薄膜は300Kから1.8Kまで絶対感度が1に近い感度を有した10Tまでの磁場下で磁場に依存しない温度計になることが分かった。絶対感度が1に近い値になることから1.8K~300Kまで温度分解能は1mKより良い。これによりMgB₂中性子検出器の温度制御用の温度計として使用できることが分かった。

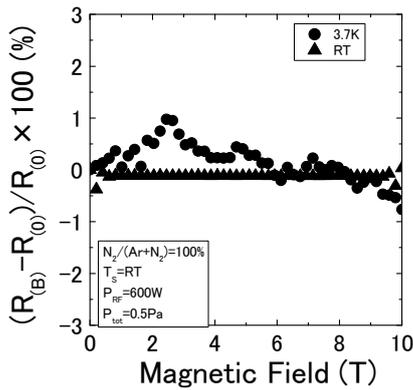


図8 Cr-N 薄膜の室温と低温における磁気抵抗の変化率

(8) MgB₂ 薄膜の作成条件の最適化をはかり、高いMgの蒸気圧のもとでのMgB₂ 薄膜成膜が、高い臨界温度を示す薄膜作成に有効であることを見出した。この知見のもと、基板温度340 °C、Mg蒸着レート31 nm/s、B蒸着レート0.5 nm/sのもと、38Kの臨界温度を示す薄膜の作成に成功した。40Kにおける抵抗率は30 μΩ cm、残留抵抗比は1.54であった。

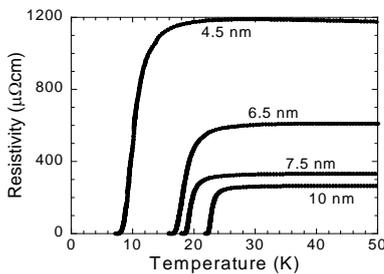


図9 MgB₂ 膜の超伝導転移の膜厚依存性

(9) 最適化された成膜条件のもと、超伝導特性の膜厚依存性を調べたところ、4.5nmの膜厚でも超伝導特性を示す薄膜が得られた(図9)。これは我々の作成するMgB₂ 薄膜が格子拡散型の検出器として応用が期待できることを示唆した結果である。

(10) MgB₂ 薄膜を用いて積層型ジョセフソン接合の試作を行った。MgB₂/Al/AlN/MgB₂ 構造を同一真空内で成膜し、接合角10 μmと20 μmの素子を作成したところ、図10に示すように、理論とほぼ一致する電流電圧特性が得られた。MgB₂ 薄膜を用いて作成した積層型ジョセフソン接合の報告は他ではなく、MgB₂ 薄膜のエレクトロニクス応用の可能性を示唆する結果である。

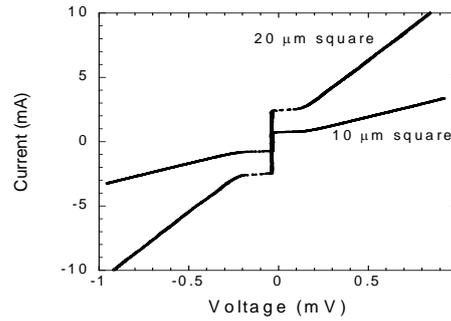


図10 MgB₂ 膜の Josephson 接合と特性。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 36 件)

1. K. Arai, Y. Akita, I. Yagi, T. Yotsuya, H. Shimakage, S. Miki, Z. Wang, K. Satoh, M. Uno, T. Ishida, Scanning laser microscopy of an MgB₂ superconducting sensor, Physica C, 査読有、470、2010、S1023-S1024
2. Takekazu Ishida, Kohei Arai, Yukio Akit a, Mitsunori Miyanari, Yusuke Minami, Tsutomu Yotsuya, Masaru Kato, Kazuo Satoh, Mayumi Uno, Hisashi Shimakage, Shigehito Miki, Scanning laser microscope for imaging nanostructured superconductors, Physica C, 査読有、470、2010、730-733
3. T. Ishida, K. Arai, Y. Akita, I. Yagi, T. Yotsuya, K. Satoh, M. Uno, H. Shimakage, S. Miki, Z. Wang, M. Kato, M. Machida and K. Hojo, Scanning pulsed laser imaging of current-biased MgB₂ Detector, AIP Conference Proceedings, 査読有、1185、2009、302~305
4. H. Shimakage, and Z. Wang, Fabrication of Over-Damped Josephson Junctions With MgB₂/Al/AlN/MgB₂ Structures, IEEE Transaction on Applied Superconductivity, 査読有、19、2009、265-268
5. S. Noguchi, A. Kuribayashi, T. Oba, H. Iriuda, Y. Harada, M. Yoshizawa, S. Miki, H. Shimakage, Z. Wang, K. Satoh, T. Yotsuya and T. Ishida, Systematic characterization of upper critical fields for MgB₂ thin films by means of the two-band superconducting theory, Supercond. Sci.

Technol.、査読有、22、2009、055004-1-7
他

[学会発表] (計 135 件)

1. K. Arai, H. Suematsu, M. Kato, M. Machida and T. Ishida, Voltage signals reproduced by simulations due to hot spot in current-biased superconducting detectors., The 22nd International Symposium on Superconductivity (ISS2009)、2009年11月4日、エポカルつくば (茨城県)
2. T. Ishida, K. Arai, Y. Akita, I. Yagi, T. Yotsuya, H. Shimakage, S. Miki, Z. Wang, Scanning Image of Irradiating Focused Pulsed Laser onto Current-Biased Stripline Superconducting Sensor (招待講演)、2009 East Asia Symposium on Superconductor Electronics (EASSE2009)、2009年10月12日、Nanjing University, Nanjing (中国)
3. T. Ishida, K. Arai, Y. Akita, I. Yagi, T. Yotsuya, K. Satoh, M. Uno, H. Shimakage, S. Miki, Z. Wang, M. Kato, M. Machida and K. Hojo, Scanning pulsed laser imaging of current-biased MgB₂ Detector, 13th International Workshop on Low Temperature Detectors Stanford/SLAC、2009年7月21日、スタンフォード (アメリカ)
4. 秋田幸男, 新井康平, 八木行太郎, 島影尚, 三木茂人, 王鎮, 四谷任, 石田武和、走査型パルスレーザー励起による超伝導検出器の位置依存性 II、日本物理学会第65回年次大会、2010年3月23日、岡山大学 (岡山県)

他

[図書] (計 1 件)

1. 石田武和、MgB₂超伝導中性子検出器の実現に向けて、化学と工業、査読無、59、2008、648-653

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称：測温抗体及びそれを用いた温度計
発明者：四谷任、田中峰雄、石田武和
権利者：大阪府立大学
種類：特願
番号：2010-1044921
出願年月日：H22. 4. 28

国内外の別：国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石田 武和 (ISHIDA TAKEKAZU)
大阪府立大学・工学研究科・教授
研究者番号：00159732

(2) 研究分担者

野口 悟 (NOGUCHI SATORU)
大阪府立大学・工学研究科・准教授
研究者番号：70180718

川又 修一 (KAWAMATA SHUICHI)
大阪府立大学・工学研究科・准教授
研究者番号：50211868

北條 喜一

(独) 日本原子力研究開発機構・先端基礎
研究センター・研究嘱託 (常勤)

研究者番号：40133318

町田 昌彦 (MACHIDA MASAHIKO)

(独) 日本原子力研究開発機構・システム
計算科学センター・シミュレーション技術
開発室長

研究者番号：60360434

加藤 勝 (KATO MASARU)

大阪府立大学・工学研究科・准教授

研究者番号：90204495

四谷 任 (YOTSUYA TSUTOMU)

大阪府立大学・21世紀科学研究機構・特認
教授

研究者番号：70393296

佐藤 和郎 (SATO KAZUO)

大阪府立産業技術総合研究所・情報電子
部・主任研究員

研究者番号：30315163

宇野 (音羽) 真由美 (UNO (OTOWA) MAYUMI)

大阪府立産業技術総合研究所・情報電子
部・主任研究員

研究者番号：90393298

王 鎮 (WANG ZHEN)

(独) 情報通信研究機構・未来 ICT 研究セ
ンター・グループリーダー

研究者番号：70359090

島影 尚 (SHIMAKAGE HISASHI)

茨城大学・工学部・電気電子工学科・教授
研究者番号：80359091

(3) 連携研究者

篠原 武尚 (SHINOHARA TAKENAO)

(独) 日本原子力研究開発機構・J-PARC セ
ンター 物質・生命科学ディビジョン・研
究員

研究者番号：90425629