

令和 6 年 6 月 24 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H03754

研究課題名（和文）ウィンドレス超伝導X線検出器の開発

研究課題名（英文）Development of windowless superconducting X-ray detectors

研究代表者

藤井 剛 (Fujii, Go)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・量子・AI融合技術ビジネス開発グローバル研究センター・主任研究員

研究者番号：30709598

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 8,600,000円

研究成果の概要（和文）：結晶分光器の高エネルギー分解能と半導体検出器の高検出効率を両立する究極の軟X線検出器の実現を目指し、冷却ポリキャピラリーレンズとSTJアレイX線検出素子を組み合わせたウィンドレス超伝導X線検出器の開発を実施した。ポリキャピラリーレンズを冷却した場合、X線の検出効率が低下してしまうことが分かった。この原因は、冷却に用いている冷凍機の振動などではなく、ポリキャピラリーレンズを冷やしているという本質的なところであった。そのため、ポリキャピラリーレンズとX線検出器の間にポリキャピラリーレンズとX線検出器間の視野を冷却する構造を開発した。本構造により、X線ウィンドウの数を1枚まで低減することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導X線検出器などの低温検出器は、低温で動作させる検出器であるため、熱輻射を除去するウィンドウが必須であり、このウィンドウによる効率低下は避けられないと考えられていた。今回の研究で、効率を下げることなく、熱輻射を低減する手法をいくつか開発した。この技術は、様々な低温検出器に適用可能であり、低温検出器の性能向上につながる。低温検出器は、様々な最先端分野で利用され、低温検出器の性能向上はこれまで難しかった材料分析などにつながると考えられる。

研究成果の概要（英文）：To realize ultimate soft X-ray detectors that combines high energy resolution of wavelength dispersive X-ray Spectrometers with high detection efficiency of semiconductor detectors, I have developed windowless superconducting X-ray detectors that combines a cooled polycapillary X-ray lens and STJ array X-ray detectors. It was found that the X-ray detection efficiency decreased when the polycapillary lens was cooled. This was caused not by vibration of the refrigerator used for cooling. The cause of this was not the vibration of the refrigeration machine used for cooling, but the essential point that the polycapillary lens was cooled. Therefore, I developed a structure that cools the field of view between the polycapillary lens and the X-ray detector. With this structure, we succeeded in reducing the number of X-ray windows to one.

研究分野：超伝導デバイス

キーワード：X線検出器 ウィンドウレス 超伝導 SEM-EDS

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

次世代の機能性材料として開発の進んでいる耐熱鋼、チタン合金、GaN 等では、その中に含まれる 100ppm 以下の微量な B、C、N、O、Mg 等の軽元素が各材料の機能発現に密接にかかわっている。そのため、それらの開発では、材料特性と材料中の微量軽元素の量と同時にそれらが作るナノスケール構造の関係を評価することが必須である。加速された電子、イオン、又は X 線によって励起された原子から放出される X 線を測定する事により実施される X 線分光分析は、エネルギーを選択することで材料に含まれる特定元素の量や価数等のナノスケールの構造情報の取得が可能のため、材料開発における有用なツールとして使われている。その分析では、得られた X 線スペクトル中の対象元素の X 線ピークのピーク位置 (エネルギー)、ピーク強度及び形状等を解析する必要がある。しかし、軽元素の分析では、放出される X 線のエネルギーが 2keV 以下の軟 X 線のため、通常の X 線検出に使用されているシリコンドリフト検出器 (SDD) や Si(Li) 検出器等の半導体ベースのエネルギー分散型 X 線検出器や結晶分光器を使った波長分散型 X 線検出器 (WDS) では、それぞれエネルギー分解能や検出感度の点で微量軽元素の詳細な解析は困難であった

2. 研究の目的

2keV 以下の軟 X 線領域において、エネルギー分散型 X 線検出器ではあるが、波長分散型検出器に匹敵する高エネルギー分解能を可能とした超伝導トンネル接合 (STJ) を 100 個集積した STJ アレイ X 線検出器を開発、走査電子顕微鏡 (SEM) に応用し、SiC、耐熱鋼等の微量軽元素分析に適用した。この分析装置を SC-SEM と呼ぶ。SC-SEM では、STJ アレイ X 線検出器とポリキャピラリーレンズを組み合わせた超伝導 X 線検出器システムを開発し、エネルギー分解能 $5\text{eV}@400\text{eV}$ 、効率 $10\text{msr}@\text{N-K}\alpha(393\text{eV})$ と、軟 X 線に対して WDS と同程度のエネルギー分解能と SDD の 1/10 程度の効率を同時に実現した。超伝導 X 線検出器は原理的に、超高効率と高エネルギー分解能を両立できる可能性を秘めているが、超伝導 X 線検出器の性能を担保するために、室温からの黒体輻射光子を除去する X 線ウィンドウが必須であり、これが効率を 1 桁程度低下させており、超伝導 X 線検出器の最大のボトルネックとなっている。軟 X 線に対して、数 eV の高エネルギー分解能と 100msr 程度の高効率を両立する究極の X 線検出器の実現を目指し、冷却ポリキャピラリーレンズと STJ を組み合わせたウィンドレス超伝導 X 線検出器を開発する。

3. 研究の方法

まずは、スターリング冷凍機を用いたポリキャピラリーレンズを冷却する単独のシステムを開発し、冷却テストなどを実施する。この構造は、スターリング冷凍機からの振動がポリキャピラリーレンズに伝わらないような工夫を行う。その後、この冷却ポリキャピラリーレンズシステムを SC-SEM に搭載し、X 線検出効率やエネルギー分解能などの X 線検出器の基本的な特性評価を実施する。

4. 研究成果

提案構造の実現に向けて、この構造のプロトタイプを開発し、特性評価を行い、問題点の抽出を行った。まず、冷却能力および振動の影響などを考慮し、レンズを冷却するための冷凍機を選定を行った。その後、振動の影響、熱の侵入、荷重などを考慮して、小型のスターリング冷凍機、レンズ、レンズ移動機構を組み合わせるための構造の設計を行った。冷凍機とレンズの部分は、振動は伝えにくいですが、熱伝導は良い構造として、銅の網線で接続した。また、レンズとレンズ移動機構は、精密な制御ができる機構で有り、かつ熱伝導が悪い構造とするため、銅とステンレスを溶接したパイプを用いる構造とした。最後に、設計した構造を作製、冷却ポリキャピラリーレンズ構造の組み上げを実施した。本構造の冷却テストを実施し、200K 以下まで冷却できていることを確認した。熱負荷が無い状態においては、60K 以下まで冷却できており、レンズ保持機構側からの熱流入が大きかったと予想される。

次に、開発したスターリング冷凍機を用いた冷却ポリキャピラリーレンズシステムを走査電子顕微鏡、超伝導 X 線検出器と組み合わせたシステムを構築した (図 1)。まず、ポリキャピラリーレンズの温度変化に対する効率の変化を調べた (図 2)。冷却開始時のポリキャピラリーレンズが冷えていない状態では、通常時と同程度の効率であった。これは、スターリング冷凍機の振動等の影響による X 線光学系への悪影響が無いシステムを構築できていることを示している。しかし、レンズの温度が低下するに従い、X 線検出効率の低下が見られた。最大で 50% 程度の低下が発生した。一方で、長時間の冷却での効率の低下などは起きておらず、低下の原因は、冷却によるレンズへのガス吸着などが影響していないと考えられる。

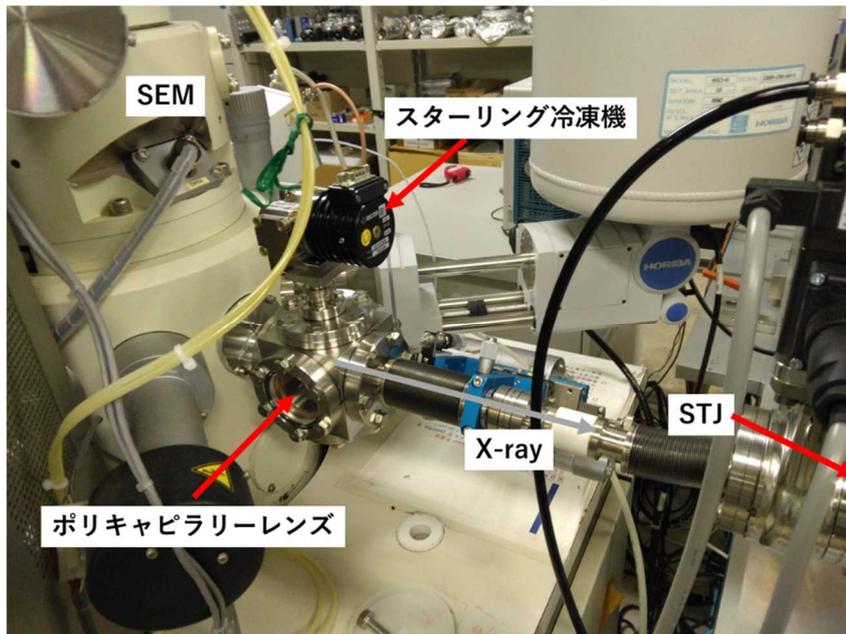


図1. 冷却ポリキャピラリーレンズシステムを搭載したシステム

次に、ポリキャピラリーレンズの温度変化に対する Al の K 線に対するエネルギー分解能を評価した (図 2)。冷却開始前の時点で、通常と同程度のエネルギー分解能を達成していた。また、温度が低下した場合においても、大きなエネルギー分解能の変動は見られなかった。

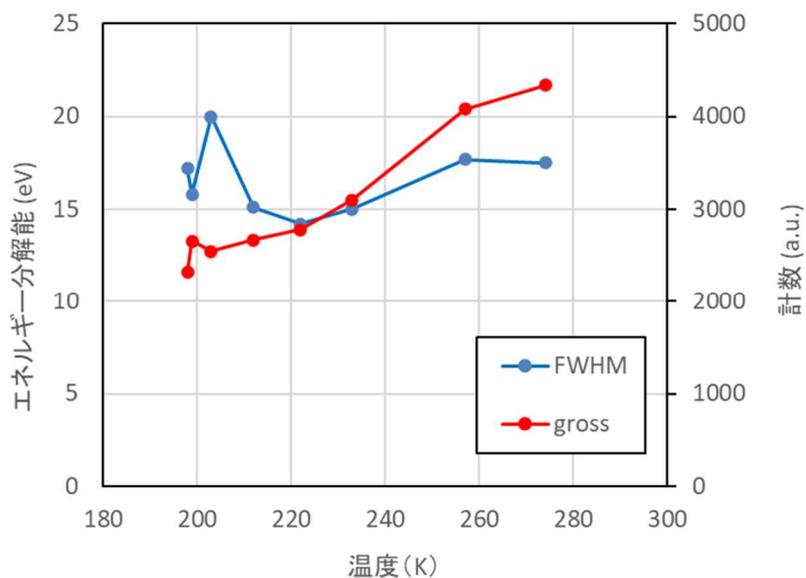


図2. 温度に対する計数とエネルギー分解能の変化

X 線の検出効率が低下してしまう原因は、冷却に用いている冷凍機の振動などではなく、ポリキャピラリーレンズを冷やしているという本質的なところであったため、装置の改善などで改善することが見込めないため、ポリキャピラリーレンズ自体を冷却するのではなく、ポリキャピラリーレンズと X 線検出器の間にポリキャピラリーレンズと X 線検出器間の視野を冷却するための筒を配置する構造を開発した。また、黒体輻射の STJ への影響を低減するため、超伝導検出素子として、STJ アレイ X 線検出素子表面にアパーチャー構造を作製した素子を用いた。これらの工夫により、4K ステージに開口径 10 mm のポリイミドとアルミニウムの極薄複合膜からなる X 線ウィンドウを 1 枚設置した状態で、問題なく検出器動作することを確認した。

これらの結果から、今後、検出器上のアパーチャー構造 (0.3 K) や 4K ステージ上のアパーチャー構造をより最適化することで、ウィンドレス化は可能であると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Fujii Go	4. 巻 29
2. 論文標題 Stability Evaluation of Superconducting X-ray Detectors for SEM-EDS Analyzer	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Microscopy and Microanalysis	6. 最初と最後の頁 493 ~ 494
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/micmic/ozad067.234	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Go Fujii
2. 発表標題 Stability evaluation of superconducting X-ray detectors for SEM-EDS analyzer
3. 学会等名 Microscopy and Microanalysis 2023（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 藤井剛
2. 発表標題 超伝導X線検出器付き低加速SEMの安定性評価
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第79回学術講演会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------