科学研究費助成事業

研究成果報告書



研究成果の概要(和文):固体ホウ素10Bで中性子を吸収させ、核反応により生じる 線やリチウム核のエネル ギーを熱に変換して超伝導転移端センサ(TES)で読み出す新しい超伝導中性子検出器の開発を進めた。プロトタ イプとなるスズ放射線吸収体をIr-TESの上に搭載した素子において、イオン粒子のエネルギーの計測実証を行 い、中性子核反応により生じる 線やリチウム各のエネルギーもTESで検出しうることを確かめた。そして10B中 性子吸収コンバータブロックをイリジウム(TES)上に搭載した検出素子の作製に成功した。

研究成果の概要(英文):We are developing the new neutron detector which detect the energy of alpha particle and Lithium nucleus from the nuclear reaction in the 10B neutron converter. First, using the TES coupled with a tin absorber, we demonstrated that TES can accurately measure the energy of the heavy ion. Therefore, TES is expected to detect the energy of alpha particle and Lithium nucleus which are produced in the 10B neutron converter Further, we succeeded to fabricate the TES device coupled with the 10B bulk neutron converte.

研究分野: 放射線計測

キーワード: 超伝導転移端センサ 中性子計測

E

1.研究開始当初の背景

³He を中性子コンバータとして用いた気体 中性子検出器は検出効率と中性子/ 線弁別 特性に優れ、中性子散乱実験やラジオグラフ ィーに適用するため、µ-pic、GEM、MSGC 等、イメージング性能の向上を目指した検出 器開発が進められてきた。しかしながら³He は希少資源で非常に高価であるばかりか、そ の産出量の大半を占める米国の輸出制限に より、近年は我が国や欧州において極めて入 手困難な状況にある。ゆえに³He を高圧力で 大量に封入する気体中性子検出器の運用は 困難であり、³He に代わる新規中性子コンバ ータを用いた検出技術の開発は急務となっ ている。

2.研究の目的

固体ホウ素 ¹⁰B で中性子を吸収させ、核反応 ¹⁰B(n, α)⁷Li により生じる 線やリチウム 核のエネルギーを熱に変換して超伝導転移 端センサ(TES: Transition Edge Sensor)で 読み出す新しい超伝導中性子検出技術を提 案する。

¹⁰B は中性子を吸収し、以下に示す核反応 ¹⁰B(n,α)⁷Li により 線とリチウム原子核に 変換され、2.79 MeV あるいは 2.31 MeV (励 起 ⁷Li が 線を発生した場合)のエネルギー を発生する。

 $^{10}B + n + ^{7}Li^{*} + 2.79MeV$

あるいは

 $^{10}B + n + ^{7}Li$

+2.31MeV + 線(480keV)

ここで 70 %以上の高い中性子吸収効率を 得るには、20 µm 厚以上の 10B 膜厚を必要と する。一方、上記核反応により生じる 線や リチウム核の ¹⁰B(固体)中での飛程は高々 2μm 程度であり、これらを気体検出器で検出 する場合は、¹⁰B コンバータの厚さを 線、 リチウム核の飛程以下に薄くせねばならず、 充分な検出効率を得るのは難しい。本研究で は、この 粒子やリチウム核のエネルギーが ¹⁰B コンバータ内で吸収され、熱に変換され て生じる温度上昇を TES マイクロカロリメ ータにより精密に検出させることを目指す。 TES は放射線入射に伴う温度上昇を検出 原理とし、超伝導体の超伝導転移領域におけ る急峻な温度抵抗変化を利用した高感度な 温度センサを用いて、この温度上昇を正確に 測定することにより入射放射線のエネルギ ーを精密に検出するエネルギースペクトロ メータである。本研究実施者は超伝導イリジ

ウム(Ir)を温度センサに用いた TES の開発を

行ってきた。イリジウムはバルクで 112 mK

に超伝導転移温度を有するため、検出器を

100 mK 近傍の温度にて動作させることが可

能となり、これによりセンサの熱揺らぎが低

減され優れたエネルギー分解能が期待され

る。本研究実施者はこれまでに、この Ir-TES

と重金属製バルクからなる 線吸収体を組 み合わせた検出素子により 59.5 keV の 線 に対して既存 HPGe 半導体検出器の数倍以 上に相当する 84 eV(FWHM)を実現した他、 662 keV の 線に対し世界最高の 465 eV (FWHM)の極めて優れたエネルギー分解能 を達成している。

本研究では、厚膜またはバルクの¹⁰B コン バータ適用による高い中性子変換効率と TESのエネルギー弁別特性を活かし、中性子 計測応用に耐えうる高検出効率と優れた中 性子/線弁別特性の実証を目指す。そして本 研究実施者がすでに確立している Ir-TES ア レイ検出システムを適用して既存中性子検 出技術では原理的に達成不可能な超高空間 分解能 20 µm を有する中性子イメージング の実現を最終的な目標とする。

3.研究の方法

本研究実施者がこれまで進めてきた「超伝 導イリジウム(Ir)を用いた TES 検出器」の開 発研究をベースとし、Ir-TES ピクセル上に固 体ホウ素 ¹⁰B 中性子コンバータを配した検出 素子を開発する。まず、中性子検出器の作製 工程の開拓を進めた。研究当初は Ir 薄膜 TES ピクセル上にスパッタリング製膜法あるい はイオンビーム真空蒸着法を駆使して固体 ホウ素 10B 中性子コンバータ層を積膜、形成 することを検討したが、これらの製膜法では 必要となる検出部以外にも発散してデポさ れるため、ターゲットから拡散した ¹⁰B の大 部分が無駄になり、製膜効率が極めて低く、 非常に高価な ¹⁰B ターゲットの適用を考える と経済的コストに見合わないと判断せざる を得なかった。それゆえ、本研究では 10Bの 板材から切り出して中性子コンバータ部を 作成し、これを TES ピクセル上に搭載する 検出器構造を考案して、検出素子を試作する こととした。また、TES 検出部において ¹⁰B(n,α)⁷Li の核反応により発生するα粒子や ⁷Li 粒子のエネルギーを正確に検出しうるこ とを実証するため、Ir-TES ピクセル上にスズ のバルクからなる放射線吸収体を搭載した 素子を試作し、これにタンデム加速器で加速 されたイオン粒子を照射して、TES でそのイ オン粒子のエネルギーを検出する実験を進 めた。試作した検出器の動作実験を行うため、 希釈冷凍機内のコールドステージ上に検出 素子と信号増幅に用いる dc-SQUID アレイ 増幅器からなる信号読み出し回路を構築し た。そして検出素子と信号読み出し回路を 100 mK 以下に冷却して、TES を駆動させて、 信号応答特性を評価した。中性子入射イベン トは ¹⁰B 中性子コンバータでの ¹⁰B(n,α)⁷Li 核反応により生じるエネルギーを検出する ことにより判別される。具体的には、TES に より得られるエネルギースペクトルは ¹⁰B(n,α)⁷Li の核反応エネルギーに対応する 2.79 MeV と 2.31 MeV に鋭いピークを持つ ことが予想される。したがって、これらエネ ルギーピークを形成するイベントが中性子 吸収によるものと結論づけられ、超伝導中性

子検出器による中性子検出を実証したことになる。さらに25 µm角のIr薄膜温度センサピクセルをベースとした超伝導中性子検出器アレイ(10×4 ピクセル)を開発する。このTESアレイの各ピクセルを全て並列バイアスで駆動させ、検出信号波形に反映されるピクセル毎の熱特性の違いを詳細な波形解析により読み出し、中性子入射ピクセルを特定する手法の確立を図る。

4.研究成果

検出素子作成法の確立

TES 検出素子は、極薄い窒化シリコンメン ブレン上に形成された超伝導 Ir/Au 薄膜温度 センサおよびこれと熱的に接続された中性 子吸収コンバータ部から成る。検出素子の作 成においては、まず窒化シリコン膜付き両面 研磨シリコン基板上に超伝導 Ir 単一膜(超伝 導転移温度Tc=150mK)またはIr/Au薄膜超 伝導転移温度 Tc=120mK)を製膜する。Ir 膜成膜を基盤加熱せずにスパッタリング製 膜したものについては、リフトオフ法にて超 伝導薄膜温度センサの形状(20~250µm角) に成形する。ただし、Ir 膜とした面の窒化シ リコン膜との付着力を向上させるため 300 に基盤加熱して Ir をスパッタリング製膜し た場合は、BCl₃ガスを用いた反応性イオンエ ッチング法を用いて Ir 膜(あるいは Ir/Au 膜) を温度センサ形状にパターニングすること となる。続いてニオブ電極をスパッタリング 製膜およびリフトオフ法を用いて製膜・成形 する。この段階にて、Ir/Au 薄膜上に中性子 吸収コンバータを搭載する土台の役割を担 うポストをあらかじめ作成しておく。本研究 実施者はこのポスト形成において金バンプ ボンディング技術または極少量のエポキシ をIr薄膜上に滴下して直径50µm程度のポス ト(台座)を再現性よく作成する手法を確立 した。そして裏面のシリコン基板を深堀エッ チング法により除去して、窒化シリコンメン ブレン構造を完成させる。なお、中性子吸収 コンバータとして、本研究では 10B 板材をダ イシング法により1mm角立方体形状に切削 したものを適用し、これを Ir/Au 薄膜上に作 製した金バンプポストの上に搭載する。金バ ンプポストを採用した場合、高い熱伝導率を 有する金バンプにより中性子吸収コンバー タと超伝導温度センサ薄膜が接続されるこ ととなり、中性子吸収コンバータ内で核反応 により生じた温度上昇を素早く超伝導薄膜 温度センサに伝達しうる。これは従来の厚膜 レジストやエポキシ製のポストに比べてセ ンサの高感度化、応答高速化(計数率向上) を達成する独創的な技術であり、重金属線 吸収体を用いた TES センサ開発研究におい て優れた 線検出特性がすでに実証されて いる。したがって中性子吸収コンバータを金 バンプポストを介して Ir 温度センサと熱的 に強く結合させることにより、中性子吸収に より生じる¹⁰B(n,α)⁷L反応のエネルギー検出

においても優れた検出特性が期待される。

検出器冷却系と信号読み出し回路の構築

希釈冷凍機コールドステージ上に TES 検 出素子を設置し、その近傍に dc-SQUID チッ プを配して、検出素子と dc-SQUID チップ上 の入力コイル端子及びシャント抵抗をアル ミボンディングに接続することにより、超伝 導回路を構成する。シャント抵抗には、TES の常伝導抵抗値より充分低い 20 mΩの抵抗 を用いることにより、TES を疑似的な定電圧 バイアスにて駆動させる。なお、これらの検 出素子および電流読出し回路系は、冷凍機デ ュワー内に仕込まれた超伝導ニオブシール ドおよびクライオパームシールドにより磁 気的に外部環境から遮蔽されている。TES か らの電流信号は、入力コイルにより磁束に変 換されて、SQUID 増幅器により、その磁場 変化を読み出すことにより、低インピーダン スな信号読出しを行う。SQUID 増幅器から の信号は、冷凍機デュワー直上に設けられた 室温アンプでさらに増幅され、それを PC で 操作可能な SQUID 駆動エレクトロニクス系 ユニットに入れて処理し、PC 内のフラッシ ュ ADC ボードに取り込む。本研究では、中 性子コンバータ内での¹⁰B(n,α)⁷L反応により 発生する個々のα粒子が中性子コンバータ内 で吸収され、そのエネルギーが全てに熱に変 換されて TES に電流出力が生じると考えら れるため、TES 出力における一定のトリガレ ベル以上の入射信号について、その応答波形 の立ち上りから立下りまでの電流値データ 全てを一つずつ全て PC 内に取り込み、後か らオフラインで応答信号データを信号処理 解析して中性子検出イベントを特定する。

適用するパルス管搭載寒剤フリー希釈冷 凍機は、冷却のために液体ヘリウム、液体窒 素等を大量に必要とする従来型の冷却装置 に比べて、格段に安全性と冷却性能の安定性 に優れており、わずか数回のボタン操作のみ で全自動で室温から100mK以下の極低温状 態まで冷却可能な装置である。しかしながら、 これまでの 線検出用 TES の開発研究によ り、特にマイクロデバイスとしては極めて大 きく重い重金属バルク製放射線吸収体を搭 載した TES において、希釈冷凍機プレクー リングを担うパルス管から冷凍機のコール ドステージ上に伝播する機械的振動が大き なノイズ源となることが判明している。そし て本研究における大型の ¹⁰B 中性子吸収コン バータを搭載した TES 素子においてもこれ と同様のノイズ発生が予想される。そこでこ の機械的振動によるノイズを抑制するため、 まずパルス管において振動源となるモータ ーのみを分離した新しい低振動タイプの物 に換装すると共に、パルス管コールドヘッド を希釈冷凍機冷却部から浮かせて溶接ベロ ーで接続し、空気バネでパルス管本体を吊り 上げて保持すると共に、パルス管コールドへ ッドと冷凍機4Kステージ間を複数の柔らか

い銅線で熱的に接続し、パルス管と希釈冷凍 機冷却部の固定脚をも分離して設置するな どの様々な工夫を施すことにより、冷却装置 由来の機械振動起因のノイズ低減に努めた。

TES による粒子検出実証

本研究での中性子 TES 検出器において高い 検出特性を実現するためには、まず ¹⁰B(n, α)⁷L で生じる α 粒子のエネルギーを TES により高い精度で検出することが必要不 可欠である。そこで本研究では、確立した TES 素子構造の粒子検出特性を評価するべく、ま ず、¹⁰Bの代わりに 0.5 mm 角のスズのバル クから成る放射線吸収体を搭載した検出素 子を作製し、これを用いて東京大学タンデム 加速器(MALT)で発生する炭素ビームを TES に 照射してその入射応答を調べる実験を試み た。加速器からのビームポートと希釈冷凍機 の放射線入射ポートを直結し、加速器で発生 した炭素イオン¹⁴Cをコールドステージ上の TES に照射した。ただし、加速器から入射さ れる 14C は TES 素子のスズ吸収体部に到達す るまでに、冷凍機デュワー内の 50 K、4 K、 0.9 K、0.1 K 各温度での熱輻射シールド上に 開けられたアルミマイラ層の窓を透過する こととなり、各アルミマイラ層透過時に入射 イオンのエネルギーは減速されることとな る。SRIM 計算コードによる入射イオンのエ ネルギーロスを計算した結果、加速器で発生 した¹⁴C⁺⁴および¹⁴C⁺⁵各ビームの冷凍機侵入 前のエネルギーがそれぞれ 24 MeV および 29 MeV を想定すると、これらのイオンは熱 シールドアルミマイラ窓を透過して TES に吸 収される直前にそれぞれ 3.5 MeV および 10.5 MeV まで減速されているものと推定さ れた(図1参照)。このような入射体系にお いてタンデム加速器からの14C+4および14C+5 ビームを TES に入射したところ、いずれの ビームにおいてもその応答として先がつぶ







図 2:¹ スズ放射線吸収体を搭載した TES による ¹⁴C イオン粒子の検出

れて平らになった入射信号波形が得られた (図2参照)。これは TES の熱容量が小さく てイオン入射による温度上昇が大きくなり、 センサの温度が超伝導転移領域を飛び越え て飽和し、超伝導薄膜センサは完全に常伝導 状態に移行した後、しばらく時間が経過して センサの冷却が進むと再びセンサの温度は 超伝導転移領域内に再突入して、そして元の バイアス点に帰還するような挙動を示して いるものと考えられる。ただし、イオンが持 つ加速エネルギーの違いが入射応答信号の 飽和波形の長さ(飽和時間)に反映されるこ とが確かめられ、これにより TES が入射し た個々の粒子のエネルギーを精密に弁別し ていることが実証された (図2参照)。以上 の結果より、¹⁰B 中性子吸収コンバータを搭 載した TES 検出素子においても、中性子吸収 により生じるα粒子は、それぞれ 2.31 MeV および 2.79 MeV なので、上記の ¹⁴C イオン 検出と同様の検出信号が得られ、しかもその 入射信号の飽和時間を計測することにより、 中性子吸収に起因した入射応答を高い精度 にて弁別することが可能と考えられる。

¹⁰B 中性性コンバータ搭載 TES 素子の作製 で確立した中性子 TES 検出器作製プロセ スに基づき、1mm 角の立方体形状に切削さ れた ¹⁰B 中性子吸収コンバータを 1μm 厚の 窒化シリコンメンプレン上に製膜されてい



図 3:¹⁰B 中性子吸収コンバータを搭載した TES 検出素子

る Ir-TES に搭載した検出素子の作製に成功 した。中性子吸収コンバータを支えるポスト は金バンプポストとエポキシポストの2通り について作製プロセスを進めた。このうち金 バンプポストを用いた素子は、最後工程であ る中性子吸収体搭載時に窒化シリコンメン プレンを破損させてしまい、完成には至らな かったが、エポキシポストを用いた検出素子 においては、図3の写真に示すとおり完成さ せることができた。

今後の見通し

超伝導 Ir 薄膜製膜に用いるスパッタリン グ装置の経年劣化に伴う不調とその大規模 改修作業、および希釈冷凍機冷却性能の不調 等、予期せぬトラブルが重なり、検出器作製、 および評価のスケジュールが一時的に滞っ たが、その後、それらのトラブルは改善され、 ようやくプロトタイプとなるスズ吸収体付 TES 素子によるイオン粒子の精密計測を実 証し、そして、¹⁰B 中性子吸収コンバータ付 き TES 素子を完成させるに至った。現在、 試作した中性子吸収コンバータ付き TES 検 出素子を希釈冷凍機にセットして、電気特性 評価を進めており、動作が確認されれば、 ²⁵²Cf 中性子源を用いた中性子計測実証を進 める予定である。

なお本研究の最終目標である、高空間分解 能を実現しうるアレイ検出器を実現するた めには、ピクセルの小型化が必要となるが、 ¹⁰Bの中性子吸収反応に伴い発生するα粒子 のエネルギーが高いため、TESの入射信号は より顕著に飽和することが予想される。この ような飽和時間の遅延が、バックグランドの γ線カウントをも考慮した場合、中性子計測の 計数率特性にどの程度影響を及ぼすのかに ついてさらに検討を進める必要がある。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

Masashi Ohno, Tomoya Irimatsugawa, Hiroyuki Takahashi, Chiko Otani, Takashi Yasumune, Koji Takasaki, Chikara lto. Takashi Ohnishi. Shin-ichi Koyama, Shuichi Hatakeyama, R.M. Thushara Damayanthi, "Superconducting Transition Edge Sensor for Gamma-ray Spectroscopy", TRANSACTIONS IEICE ELECTRONICS, INVITED PAPER, 査読有, E100-C No.3, 2017, 283-290

DOI:10.1587/transele.E100.C.283

S. Hatakeyama, T. Irimatsugawaw, <u>M</u>, <u>Ohno</u>, H. Takahashi, Damayanthi, C. Otani, T. Maekawa, "Development of Hard X-ay and Gamma-ray Detector with Transition Edge, Sensor, for Nuclear Material Analysis", IEEE TRANSACTIONS ON SUPERCONDUCTIVITY, 査読有, Vol.25, 2015, 2101603, DOI:10.1109/TRSC.2014.2374873

T. Irimatsugawa, S. Hatakeyama, <u>M. Ohno,</u> H. Takahashi, C. Otani, T. Maekawa, "High Energy Gamma-ray Spectroscopy Using Transition Edge Sensor with a superconducting bulk tantalum absorber", IEEE TRANSACTIONS ON SUPERCONDUCTIVITY, 査読有, Vol.25, 2015, 2101303, DOI:10.1109/TRSC.2014.2380173

[学会発表](計12件)

入松川知也、平山文紀、佐藤昭、山森弘 毅、永沢秀一、福田大治、日高睦夫、佐 藤泰、神代暁、<u>大野雅史</u>、高橋浩之、"TES マイクロ波読出による 線光子検出"、 第 64 回応用物理学会春季学術講演会、 2017 年 3 月 14 日~2017 年 3 月 17 日、パ シフィコ横浜、神奈川

三浦義隆、入松川知也、石井裕也、<u>大野</u> <u>雅史</u>、高橋浩之、"単一超伝導 Ir を用い た極小 TES の開発"、第64回応用物理学 会春季学術講演会、2017 年3月14日~ 2017 年3月17日、パシフィコ横浜、神奈 川

<u>Masashi Ohno,</u> "Heavy ion detection by superconducting transition edge sensor", Internatinal Workshop on Superconducting Sensors and Detectors, 2016年11月14日~2016年11月17日, AIST, Tsukuba, Ibaraki, Japan,

<u>大野雅史</u>、入松川知也、細野米一、高橋 浩之、三宅泰斗、松崎浩之、"重粒子検出 のための超伝導転移端センサの開発"、第 77回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年9月13日~2016年9月16日、朱鷺メ ッセ、新潟

T. Irimatsugawa, F. Hirayama, S. Kojiro, A. Sato, S. Nagasawa, D. Fukuda, M, Hidaka, Y. Sato. <u>M. Ohno,</u> H. Takahashi, "Study of Nb and NbN Resonators at 0.1 K for Low-noise Microwave SQUID Multiplexers", Applied Superconductivity Conference 2016, 2016年9月4日~2016年9月9日、 コロラド州、米国

大野雅史、"TES マイクロカロリメータの 開発とイオンビーム計測"、日本学術振興 会第 186 委員会第 19 回研究会(招待講演)、 2016 年 5 月 19 日、東京大学、東京

大野雅史、"超伝導転移端センサを用いた

線超精密分光の開拓 "、日本学術振興会 第 146 委員会第 95 回研究会(招待講演) 2016 年 4 月 21 日、学士会館、東京

入松川知也、平山文紀、神代暁、<u>大野雅</u> 史、高橋浩之、安宗貴志、高崎浩司、伊 藤主税、"超伝導転移端センサによる 線 超精密分光"、日本原子力学会北関東支 部若手研究者発表会、2016年4月15日、 茨城県東海村

<u>Masashi Ohno,</u> Tomoya Irimatsugawa, Shuichi Hatakeyama, Hiroyuki Takahashi, "Superconducting transition edge sensor for heavy ion detection", 16th international Workshop on Low Temperature detectors, 2015 年 7 月 20 日~2015 年 7 月 24 日、グルノーブル、仏 国

大野雅史、超伝導転移端マイクロカロリ メータによる高精度放射線計測、第 109 回日本医学物理学会学術大会ランチタイ ムレクチャー(招待講演) 2015 年 4 月 17日、パシフィコ横浜、神奈川県横浜市

T. Irimatsugawa, S. Hatakeyama, <u>M. Ohno,</u> H. Takahashi, C. Otani, T. Maekawa, "High Energy Gamma-ray Spectroscopy Using Transition Edge Sensor with a superconducting bulk tantalum absorber", Applied Superconductivity Conference (ASC2014), 2014 年 8 月 10 日 ~2014 年 8 月 15 日、Charlotte, NC, USA

S. Hatakeyama, T. Irimatsugawaw, <u>M</u>, <u>Ohno</u>, H. Takahashi, Damayanthi, C. Otani, T. Maekawa, "Development of Hard X-ay and Gamma-ray Detector with Transition Edge, Sensor, for Nuclear Material Analysis", Applied Superconductivity Conference (ASC2014), 2014 年 8 月 10 日 ~ 2014 年 8 月 15 日、Charlotte, NC, USA

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件) なし

取得状況(計0件) なし

〔その他〕 特になし

6.研究組織 (1)研究代表者 大野 雅史(Ohno, Masashi) 東京大学・大学院工学系研究科・准教授 研究者番号:90391896

(2)研究分担者 なし

(3)連携研究者 なし

(4)研究協力者
畠山 修一(Hatakeyama, Shuichi)
東京大学・大学院工学系研究科・博士課程

入松川 知也(Irimatsugawa, Tomoya) 東京大学・大学院工学系研究科・博士課程

三浦 義隆 (Miura, Yoshitaka) 東京大学・大学院工学系研究科・博士課程

三宅 泰斗 (Miyake, Yasuto) 東京大学・大学院工学系研究科・博士課程

松崎 浩之(Matsuzaki, Hiroyuki) 東京大学・大学院工学系研究科・教授

高橋 浩之(Takahashi, Hiroyuki) 東京大学・大学院工学系研究科・教授