

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：82645

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23473

研究課題名（和文）TES型精密X線分光器を用いた「はやぶさ2」帰還試料の微小水和物探査に向けた研究

研究課題名（英文）Study of a high resolution X-ray spectroscopic system towards exploration of a small amount of hydrate in "Hayabusa2" samples

研究代表者

林 佑（HAYASHI, Tasuku）

国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・宇宙航空プロジェクト研究員

研究者番号：00846842

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、隕石中の水和物探査のため、分光性能を一桁向上可能なTES型X線マイクロカロリメータのX線吸収体の大型化に向けた開発を行なった。大型化で重要なキーテクノロジーとなるマッシュルーム型吸収体を成立させるには電解析出方法を用いたAuの成膜技術が必要であり、電解析出環境の導入から行い、安定した成膜条件の確立を行った。さらに、析出させたAuのSEM観察から表面荒さを抑えたAu薄膜の成膜に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発しているX線分光器は走査透過型電子顕微鏡の元素分析を行うために開発している。地球外物質のマイクロ分析を可能とし、我々の太陽系の形成過程から水や有機物の起源を明らかにすることができるだけでなく、透過型電子顕微鏡は材料研究やバイオテクノロジーなどの最先端テクノロジーの研究開発において、重要な分析方法の一つとなる。

研究成果の概要（英文）：I have been developing a TES type X-ray microcalorimeter array with a large absorber for the exploration of hydrates and organics in astromaterials. In order to improve the effective area, I adopted a mushroom type absorber that can be cover on the dead space between TES and TES. For realize the mushroom absorber, I have built a gold electroplating environment. I optimized the electroplating condition for TES absorber and got the stable electroplating conditions. I confirmed that the surface of gold film is flat by SEM.

研究分野：宇宙物理学

キーワード：STEM 地球外物質 X線分光器 メッキ環境

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

太陽系形成過程の解明は、今日の地球の有機物や水がどのように来たかを解明する手がかりとなる。太陽系の形成当時(原始太陽系)に生成され、惑星に取り込まれることなく星間空間に存在する地球外物質のみが、原始太陽系の状態や進化の過程を直接分析することを可能にする。

「はやぶさ」や「はやぶさ2」に代表される地球外物質のサンプルリターンにより、こうした重要な地球外物質の分析が可能となってきた。地球外物質はその内部にサブマイクロスケールの微細構造を持ち、その分析方法の一つに高い空間分解能を持つ走査透過型電子顕微鏡(STEM)とエネルギー分散型分析器(EDS)を組み合わせた、元素マッピングおよび定量分析がある。Le Guillou+2014らは、非晶質珪酸塩を多く含む数少ない隕石のひとつであるCR3コンドライト隕石のSTEM-EDSを用いた元素の定量分析を行なった。その結果からケイ素に対し酸素のX線強度比が10%以上過剰であることを示し、これが水和によるH<sub>2</sub>O由来であると主張した。しかし、EDS分析で使用される半導体検出器の分光性能は120 eVであり、低エネルギー帯域での複数の近接する特性X線の分離や、バックグラウンドとなる連続X線と特性X線の分離が困難である。そのため定量分析の系統誤差が10~80%程度になり、非晶質珪酸塩の水和物を優位に証明することが難しいのが現状である。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、EDSの $\Delta E$ を改善し定量分析の系統誤差を抑え、地球外物質中の水和物や有機物の含有量を精密に定量分析を行い、太陽系形成過程への寄与を解き明かす。

X線検出器の $\Delta E$ を飛躍的に改善するX線検出器として、超伝導遷移端型X線マイクロカロリメータ(TESカロリメータ)がある。TESカロリメータはX線を吸収する吸収体と、温度上昇

を測定するTES温度計、熱浴との温度差を保つ熱リンクの構造に分けられる(図1)。TESカロリメータは、熱雑音の低い極低温(~100 mK)で動作させ、原理的な $\Delta E$ は5.9 keVのX線に対して半値幅全幅(FWHM)で2 eVを切る。優れた $\Delta E$ だけでなく、SDDと同様のエネルギー帯域、検出効率が期待でき、次世代のSTEM-EDSシステムにおいて最も有望なX線検出器である。私は、STEM-EDSに最適化した64素子TES-EDSの開発を行い、ほぼ全元素の特性X線帯域(0.2-15 keV)で $\Delta E \sim 6$  eVを達成した。また、 $\Delta E$ の向上により連続成分による系統誤差の影響を従来の10%以上から1%未満に抑えることを可能にした。このTES-EDS分析装置は世界で一台しか存在せず、この装置での地球外物質の分析結果は、炭素や酸素などの微量元素に注目している「はやぶさ2」を始めとするサンプルリターンミッションにおいて、学術的に独創的な結果を得ることが可能である。

一方で、TES-EDSの計数率は僅か数100 cps (=count/s)であり、統計誤差を抑えるには長時間の分析が必要となる。長時間の分析は電子線による試料の劣化を引き起こし、特性X線の

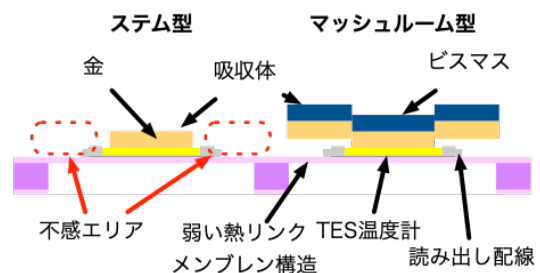


図1. 左：従来型(STEM型)吸収体の概念図、  
右：マッシュルーム型吸収体の概念図

強度の時間変動が定量分析において大きな系統誤差となる。この時間変動を抑えるには ~ 5 kcps 以上の計数率を実現する必要がある。しかし、現状の TES カロリメータの吸収体は TES 温度計よりも小さいサイズの吸収体(ステム型)であり、8 × 8 素子での有効面積は 1 mm<sup>2</sup> で開口効率は僅か 10%である(図 1 左)。地球外物質の分析には、TES カロリメータの有効面積の拡大と 100%近い開口効率が必要不可欠である。

### 3. 研究の方法

本研究では、TES カロリメータのエネルギー帯域・分光性能を劣化させることなく、TES カロリメータの開口効率・有効面積・低エネルギーX線への感度を改善し、TES-EDS を用いて地球外物質の分析を実現する。

大有効面積と 100% 近い開口効率を達成するために、数百素子のアレイ化と素子間の不感エリアを覆うことが可能なマッシュルーム型構造の吸収体を採用する(図 1 右)。吸収体の大型化は素子の熱容量が増大し、分光性能( $\Delta E$ )の劣化につながる( $\Delta E \propto \sqrt{C}$ )。そこで私は、分光性能と X 線吸収効率(X線の吸収効率  $\propto$  原子番号  $Z$ )を損なうことなく、両立することが可能な二層マッシュルーム型吸収体の開発を行う。これは、金に比べ 100 倍比熱が小さく熱容量を抑えることが可能な半金属のビスマス( $Z=83$ )と、ビスマスの熱伝導性を補う薄い金を下層に成膜する二層吸収体である(図 1 右)。

低エネルギーX線への感度の改善には、TES-EDS システムで使われる試料から TES への X 線集光を目的とした X 線集光素子(X線ポリキャピラリー)の特性を生かしたデザインを行う。X 線集光素子の反射率はエネルギー依存性を持ち、TES カロリメータ上での集光サイズもエネルギー依存性を持つ。私の研究グループでは、低エネルギーの X 線は高エネルギーの X 線に比べ、集光サイズが大きいことを実験的に調べた。そこで、私はその特性を生かし、外側に低エネルギーに特化した熱容量の小さい TES を配置し、中心に従来通りの TES を配置する全く新しいデザインを採用する。有効面積を変えずに熱容量を抑える吸収体をデザインし、低エネルギー側での分光性能を約 3 倍改善し、検出効率を約 1.7 倍( $\propto \sqrt{3}$ )改善することが可能である。

### 4. 研究成果

この実現に向け、本年度は 9 倍の有効面積と 90%の開口効率を持つマッシュルーム型吸収体 TES カロリメータの開発を行うべく、最初の段階として TES カロリメータが無い状態で、マッシュルーム型吸収体の構造形成試験を試みた。従来マッシュルーム型吸収体製作には、蒸着法を用いていたが、蒸着時の熱負荷によりマッシュルーム下層のフォトレジストが変性し、除去するのが困難であった。その改善のため、製作プロセスで熱負荷が小さく済む電析法による変更を検討し、オランダの宇宙機関である SRON で実際に電析法を用いてマッシュルーム型吸収体の構造形成試験を行い、フォトレジストの除去が可能であることを確認した(図 2)。

この結果を踏まえ2年目には、宇宙研で電析プロセスを可能とするためのメッキ環境を0から立ち上げた。電極には白金電極を、金メッキ浴には安定したメッキ条件が出せるピュアゴールド、温度コントロールはスタラー機能付きのホットプレートを用いた。構築した電析環境を用いて、金の成膜条件である電流値や電析時間の最適化を行い安定した析出の条件出しを行った。最適化した条件で成膜した金の表面分析のために走査電子顕微鏡(SEM)を用いて分析し、蒸着と比べより表面荒さを抑えた金を成膜できることを確認した(図3)。この条件で今後はマッシュルーム型吸収体の製作を進めていく予定である。

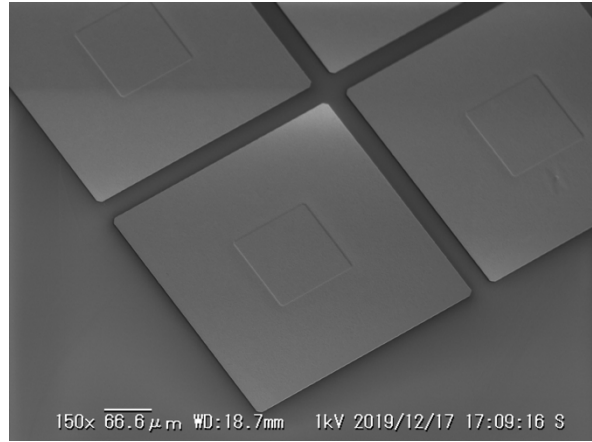


図2: SRON のメッキ環境で成膜し、宇宙研で構造形成したマッシュルーム型吸収体

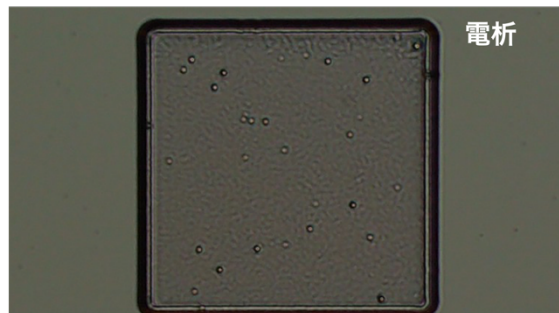
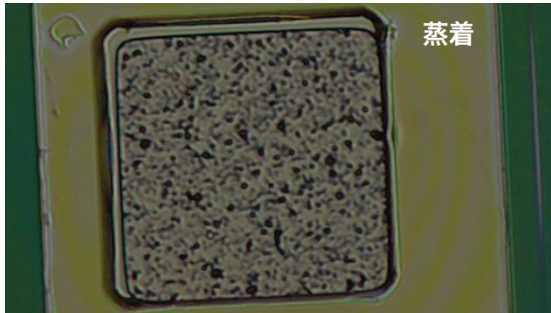


図3 左: 蒸着法で成膜した金薄膜(2um)、右: メッキ法で成膜した金薄膜(3um)。

低エネルギーX線への感度の改善のために、ポリキャピラリーのモンテカルシミュレーションを行い、低エネルギーX線が外側でより広がることを確認し、テストチップとして、8箇所到低エネルギー用として吸収体を薄くした素子を配置したデバイスを製作し、低エネルギーX線で設計通りの感度の向上があることを確認した(図4)。

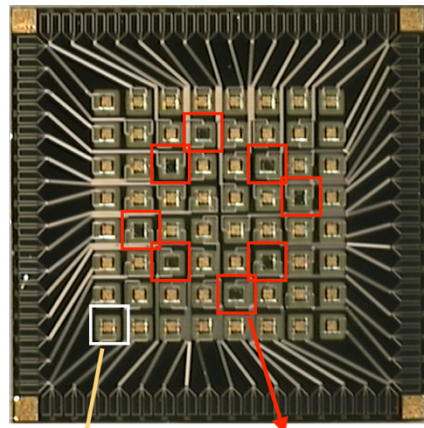
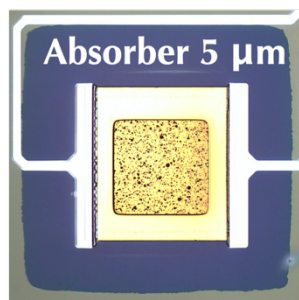
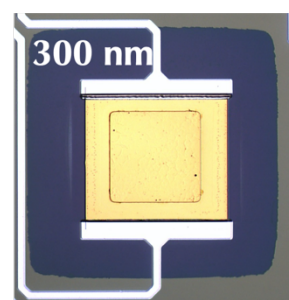


図4 上: テストとして製作した64素子 TES カロリメータ、左下: 従来の吸収体、厚みが5umで15keVまでX線を70%以上で吸収可能、右下: 低エネルギーに特化した素子、吸収体の厚みを300nmと薄くすることで熱容量を減らし分光性を改善した。

**High energy band  
Thick absorber**



**Low energy band  
Thin absorber**



5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Tasuku Hayashi, Haruka Muramatsu, Ryohei Konno, Noriko Y. Yamasaki, Kazuhisa Mitsuda, Akira Takano, Keisuke Maehata and Toru Hara	4. 巻 199
2. 論文標題 A Concept Design of TES X-ray Microcalorimeter Array with Different Thickness Absorber Toward the Observation from 50 eV to 15 keV for STEM EDS	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Low Temperature Physics	6. 最初と最後の頁 908 915
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10909-019-02326-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Tasuku Hayashi
2. 発表標題 A study of TES X-ray microcalorimeter array with different absorber thickness towards the observation from 50 eV to 15 keV for STEM-EDS
3. 学会等名 Low Temperature Detectors 18th（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tasuku Hayashi
2. 発表標題 Developments of TES array and the detector stage towards the observation from 100 eV to 15 keV for STEM
3. 学会等名 The 32nd International Symposium on Superconductivity（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tasuku Hayashi
2. 発表標題 Developments of TES Array towards the Observation from 100 eV to 15 keV for STEM-EDS
3. 学会等名 13th Superconducting SFQ VLSI Workshop（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 林 佑
2. 発表標題 50 eVから15 keVの特性X線を用いたナノスケール構造中の精密定量分析を目指したTES型X線マイクロカロリメータの開発
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2019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
---------	---------