

令和 6 年 6 月 5 日現在

機関番号：32686

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K14548

研究課題名（和文）地球外物質の微小水和物探査を目指した超精密X線分光器TESカロリメータの開発

研究課題名（英文）Development of a transition edge sensor (TES) x-ray microcalorimeter toward exploring trace hydrated minerals in astromaterials

研究代表者

林 佑 (Hayashi, Tasuku)

立教大学・理学部・助教

研究者番号：00846842

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、超伝導遷移型X線マイクロカロリメータ(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率・有効面積を改善し、TES-EDSを用いて地球外物質の分析を実現することを目指している。有効面積の飛躍的な改善のために、デッドスペースである配線スペースを覆うような突き出した吸収体構造を持つマッシュルーム型吸収体を採用し、高い熱伝導率を得られるメッキ環境を導入し、日本で初めて製作に成功した。低温での動作実証の結果、エネルギー分解能は10 eV程度と要求されているエネルギー分解能も達成しており、地球外物質分析の実現に向けて大きく前進した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、サブマイクロスケールでの地球外物質の定量分析を目指し、低温検出器システムの開発を行ってきた。従来の定量分析システムでは、エネルギー分解能が120 eVと近接する特性X線のピーク分離や微量な元素の検出が困難であり、定量分析の精度にも課題があった。本研究で開発するTES-EDSシステムでは、エネルギーを2桁以上向上可能であり、地球外物質の分析で重要となる微量分析も可能となり、学術的意義は大きい。さらに、この分析システム材料分析やバイオテクノロジーなどの幅広い分野への応用が期待されており、社会的意義も大きい。

研究成果の概要（英文）：In this research, we aim to improve the aperture ratio and effective area of the superconducting transition-edge sensor (TES) X-ray microcalorimeter without degrading its energy bandwidth and spectral performance, thereby enabling the analysis of extraterrestrial materials using TES-EDS. To achieve a significant improvement in the effective area, we adopted a mushroom-shaped absorber structure that protrudes to cover the wiring space, which is considered dead space. We introduced a plating environment that ensures high thermal conductivity and successfully manufactured the device for the first time in Japan. Operational verification at low temperatures demonstrated an energy resolution of approximately 10 eV, meeting the required energy resolution and marking significant progress toward the analysis of extraterrestrial materials.

研究分野：X線天文学

キーワード：X線 極低温検出器 地球外物質

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地球へ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H₂O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(SDD)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。

3. 研究の方法

本研究では大有効面積と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した(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(ΔE)の劣化につながる($\Delta E \propto \sqrt{C}$)。そこで、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った。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なった。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。研究代表者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、その特性を生かし、外側に低エネルギーに特化した熱容

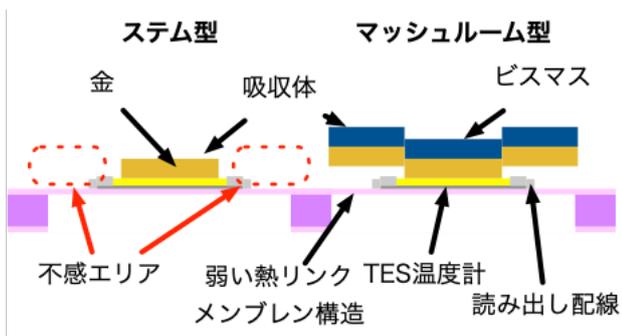


図1. 左：従来型(ステム型)吸収体の概念図、
右：マッシュルーム型吸収体の概念図

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した。有効面積を変えることなく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(T.Hayashi+2019)。

4. 研究成果

(1) X線集光素子(X線ポリキャピラリー)に最適化したデザイン

本システムは、走査透過型電子顕微鏡(STEM)の薄膜サンプルから TES-EDS システムまでの距離が 30 cm 程度離れており、立体角を増大させるために X 線集光素子を採用している。X 線集光素子は、入射 X 線のエネルギーに依存した透過効率を持つため、検出器面での TES カロリメータの素子の配置の最適化による有効面積の増大が必須である。本研究では、高野博士が開発したレイトレイシングを用いた X 線集光素子のシミュレーターを用いて、0.1-15 keV までのエネルギー帯域で、検出器面でのエネルギー毎の X 線マップをシミュレートし、検出器面での素子配置の最適化を行なった。その結果、外側の 32 素子(8 素子×4 角)で X 線の入射が無いことを加味し当初予定していた 256 素子から 224 素子とした素子は配置に変更しデザインを行なった。224 素子でのシミュレーションの結果、従来の 64 素子のシステムに対して、有効立体角(立体角×TES の吸収体面積)を最大 10 倍の改善することを確認した。

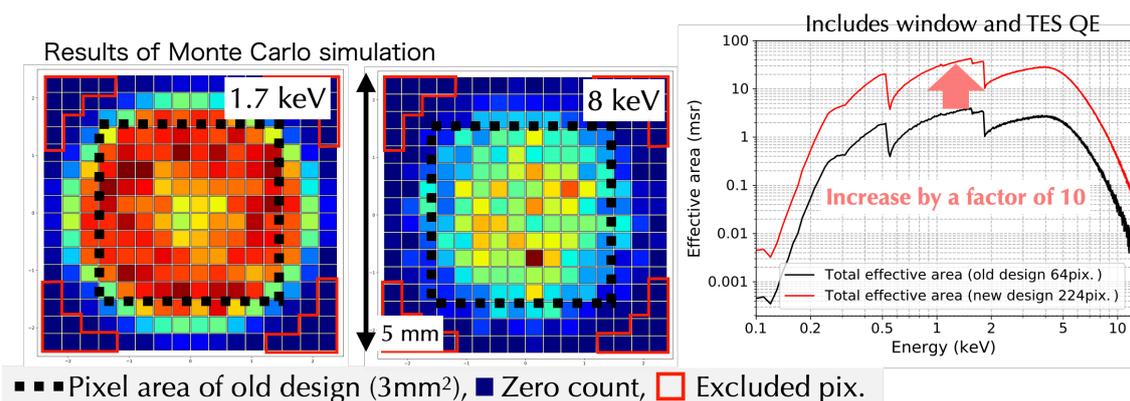


図 2. 左:シミュレーションにより 1.7 keV と 8 keV でシミュレートした 256 素子上の X 線光子マップ、青色から赤色にかけてカウント数が高くなっていく。右: 0.1-15 keV のエネルギー帯域での有効立体角(立体角×TES の吸収体面積)、赤線が 224 素子、黒線が従来開発していた 64 素子システム。

(2) 熱伝導率の高い金薄膜の製作環境の構築とマッシュルーム型吸収体 TES の製作

TES カロリメータの有効面積と開口効率の増大には、TES カロリメータの配線スペースのようなデットスペースを覆うような吸収体の開発が必須である。一方で、吸収体の大型化はその吸収体への入射位置による位置依存性によってエネルギー分解能が劣化することが知られている。そこで、本研究では位置依存性を抑えるために、高い熱伝導率を持つ薄膜を成膜可能なメッキ環境を導入した。評価には、極低温での熱伝導率の指標として、室温(300 K)抵抗と低温(4 K)抵抗の比である RRR を用いて行う。構築したメッキシステムを用いて、さまざまな条件で成膜し RRR を測定した結果(図 3 左)、いくつかの条件で目標である 20 以上の RRR を得られた(他の成膜方法である蒸着では RRR~3 程度)。本研究では、20~25 の得られる環境を用いてマッシュルーム型吸収体の薄膜金属を成膜した。

マッシュルーム型吸収体では、配線スペースを覆うような 3 次元構造であり、製作には

3次元フォトリソグラフィ技術を用いて、制作を行なった。従来までのプロセスでは、立体構造となることからマッシュルーム型吸収体の下部にあるフォトレジストを除去するのが難しかったが、フォトレジストの種類やバッキング温度などのさまざま条件を変え、除去可能な条件を整えた結果、日本で初めてマッシュルーム型吸収体 TES カロリメータの開発に成功した(図3右)。

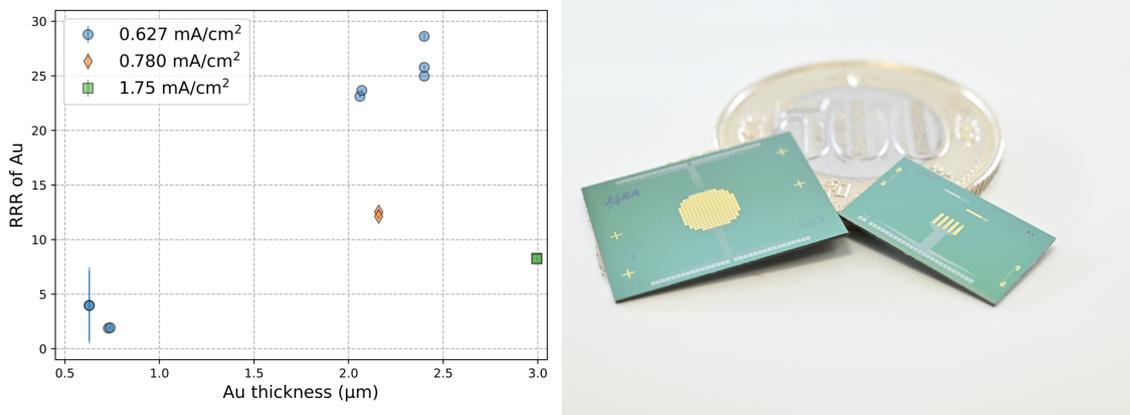


図3. 左: RRR と厚みの関係図、色の違いが流す電流密度の違い。電流密度を最適化し適切な厚みにすることで、 $RRR > 20$ 以上を達成した。右: 製作した素子の写真、大きさのスケールを分かりやすくするために 500 円玉と一緒に撮影した。右のチップが 224 素子チップ(評価のために配線数は 64 素子)で、左のチップは 5×5 の評価用チップである。

(3) 製作した素子の性能評価とその結果

希釈冷凍機を用いて 100 mK 程度まで冷却し、製作した評価チップの性能評価を行い、その結果、エネルギー分解能として、目標である 10 eV 以下のエネルギー分解能を達成した(図4右)。また、吸収体の位置依存性がないことを確認するために、ノイズだけの分解能であるベースライン分解能とエネルギー分解能を比較した結果、ベースライン分解能が 8.19 eV であるの対し、エネルギー分解能が 8.23 ± 0.64 eV と誤差範囲で一致することから波形の位置依存性がないことも確認した。

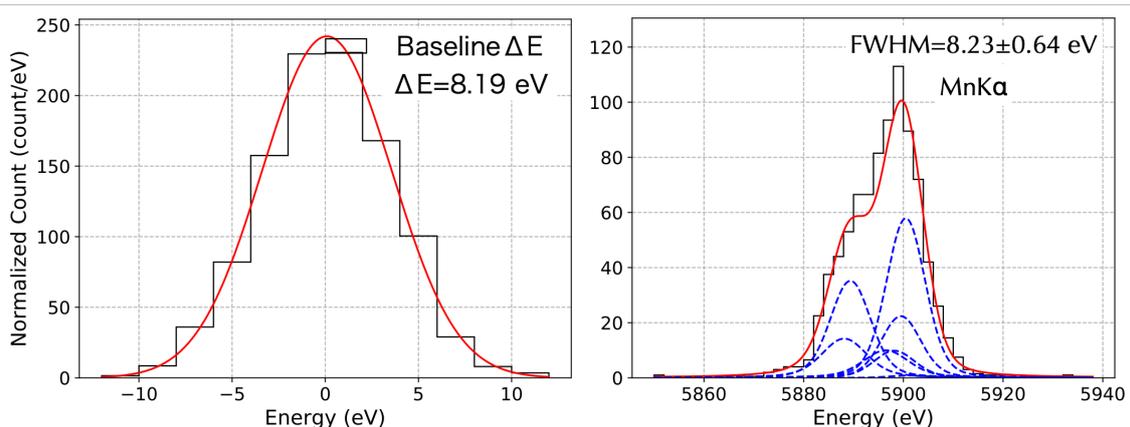


図4. 左: ベースライン分解能。右: MnK α でのエネルギースペクトルであり、青線は MnK α の微細構造ラインのモデル、赤線が合算したモデルである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Yagi Y., Konno R., Hayashi T., Tanaka K., Yamasaki N. Y., Mitsuda K., Sato R., Saito M., Homma T., Nishida Y., Mori S., Iyamoto N., Hara T.	4. 巻 -
2. 論文標題 Performance of TES X-Ray Microcalorimeters Designed for 14.4-keV Solar Axion Search	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Low Temperature Physics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10909-023-02942-w	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 -

1. 著者名 Yagi Yuta, Hayashi Tasuku, Tanaka Keita, Miyagawa Rikuta, Ota Ryo, Yamasaki Noriko Y., Mitsuda Kazuhisa, Yoshida Nao, Saito Mikiko, Homma Takayuki	4. 巻 33
2. 論文標題 Fabrication of a 64-Pixel TES Microcalorimeter Array With Iron Absorbers Uniquely Designed for 14.4-keV Solar Axion Search	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity	6. 最初と最後の頁 1~5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TASC.2023.3254488	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8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Tasuku Hayashi, Rikuta Miyagawa, Yuta Yagi, Keita Tanaka, Ryo Ota, Noriko Y. Yamasaki, Kazuhisa Mitsuda, Keisuke Maehata and Toru Hara
2. 発表標題 Design and development of a 224-pixel TES X-ray microcalorimeter system for microanalysis with STEM
3. 学会等名 The 20th International Conference on Low Temperature Detectors（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuta Yagi, Keita Tanaka, Ryo Ota, Tasuku Hayashi, Noriko Y. Yamasaki, Kazuhisa Mitsuda, Mikiko Saito, and Takayuki Homma
2. 発表標題 Evaluation and Experimental Setup of TES Microcalorimeter with Iron Absorber for Solar Axion Search
3. 学会等名 The 20th International Conference on Low Temperature Detectors（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Tasuku Hayashi
2. 発表標題 Development of a 240-pixel TES X-ray microcalorimeter array for STEM-EDS
3. 学会等名 Applied Superconductivity Conference 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 林 佑
2. 発表標題 精密X線分光分析に向けた大規模なTES型X線マイクロカロリメータシステムの開発
3. 学会等名 日本天文学会 2023年春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Tasuku Hayashi
2. 発表標題 A quantitative study in STEM-EDS with a broadband TES X-ray microcalorimeter toward astromaterials analysis
3. 学会等名 19th International Workshop on Low Temperature Detectors (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 林佑
2. 発表標題 地球外物質分析のためのTES型X線マイクロ カロリメータを用いた定量分析手法の開発
3. 学会等名 第82回 応用物理学会 秋季学術講演会 オンライン開催
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tasuku Hayashi
2. 発表標題 A developments of 64-pixel TES on energy dispersive X-ray spectroscopy system for STEM
3. 学会等名 Applied Superconductivity Conference 2020 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 林 佑
2. 発表標題 サブマイクロスケールでの地球外物質分析を目指した広帯域での検出効率 向上を可能とする 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 2021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
---------	---------