総 説

極低温・超伝導を用いた新計測原理の放射線センサー†

石橋健二

九州大学工学部応用原子核工学科

812 福岡市東区箱崎 6-10-1

Key Words: superconducting, cryogenic, sensor, radiation, X-ray, tunnel junction, calorimeter

1. はじめに

一般に放射線検出器を低温にすると、良い性能が得られることが多い。たとえば、シリコンやゲルマニウムによる半導体検出器は、液体窒素温度で良いエネルギー分解能になる。一方、ある種の金属または酸化物は極低温で超伝導状態になる。このような極低温の現象を利用すると、特長のある検出器が得られる可能性がある。もし、半導体検出器よりも1桁良いエネルギー分解能の検出器が実用化されれば、X線や γ 線による原子または原子核の同定が容易になるなど、高分解能測定を通じ多くの分野で有効に利用されるであろう。

極低温または超伝導現象を用いた放射線センサーに関してレビュー^{1),2)}が発表されている。本稿ではこれらの放射線センサーについて測定原理を中心に紹介する。

2. 薄膜の常伝導転移

よく知られているように、超伝導体は零電圧で電流を流すことができる。超伝導体には、超伝導状態で流せる最大電流(臨界電流)、超伝導状態から常伝導状態に遷移する温度(転移温度)、および超伝導状態が保たれる最大磁場(臨界磁場)などの特性値がある。超伝導薄膜を転移温度より少し低い温度に保った状態で、臨界電流に近い超伝導電流を流しておくとする。そして、これに放射線を入射させると、その部分の温度が上昇し薄膜を超伝導から常伝導の状態に転移できる。

このとき、常伝導電流による電圧が生じるので、これによって放射線を検出できる。

この方法では約40年前に、窒化ニオブ(NbN)膜に α 線を入射させ、電圧信号を観察した実験³⁾が報告されている。窒化ニオブは、厚さ $6\mu\text{m}$ 、幅 0.4mm 、長さ 3.5mm であり、 α 線測定は 15.5K の温度で行われた。この研究が超伝導体によって放射線を測定した最初の実験である。この方法では放射線が入射したかどうかの弁別はできるが、原理的に、放射線のエネルギースペクトルを得ることは困難である。この弁別の目的だけなら超伝導体を用いなくても他に手軽な測定方法は多くあるので、常伝導転移の方法はあまり実用的とは思われていなかった。

一方、近年では集積回路の発展に伴って、フォトリソグラフィ法による微細加工技術が向上してきた。この方法を用いて、厚さ $0.4\text{--}0.8\mu\text{m}$ 、幅 $0.2\text{--}1.5\mu\text{m}$ 、長さ 3.5mm のニオブ薄膜を作製し、 4.2K の温度で 5.9keV のX線が測定⁴⁾された。図1にこの信号波形を示す。上が電圧波形を表し、下が電流波形を示す。時間幅は $0.1\mu\text{s}/\text{ビン}$ でありかなり高速で応答している。その後、この研究は進められ、薄膜材料としてアルミニウムを用い $1.3\text{--}1.4\text{K}$ の温度で測定する場合⁵⁾には、放射線に対する感度がより高くなることが示された。フォトリソグラフィ法を用いると微細な薄膜が多数作製可能であるので、X線の二次元のイメージングに適用できる可能性がある。

一方、一般に高純度物質の比熱は、極低温にすると急激に減少する。そこで、転移温度が可能な限り低い超伝導体を用いて、液体ヘリウム温度よりもはるかに低い極低温で測定すると、温度変化による放射線の検出ができる。チタンは転移温度が 0.312K である。フォトリソグラフィ法によって幅 $2\mu\text{m}$ の細長いチタン薄膜を単結晶シリコンの上に配置して、 0.3K の温

† Radiation Sensors with New Measurement Principles Based on Cryogenic or Superconductive Phenomena, Kenji ISHIBASHI: Department of Nuclear Engineering, Kyushu University, 10-1, Hakozaki 6-chome, Higashi-ku, Fukuoka-shi 812.

図1 ニオブ薄膜の常伝導転移で得られた 6 keV の X 線の波形⁴⁾
測定温度は 4.2 K であり、上側が電圧波形、下側が電流波形を示す。両波形とも中央の水平線が零点であるが、電流波形は負極性となっている。時間軸は $0.1 \mu\text{s}/\text{ビン}$ である。

図2 単結晶シリコン上に作成された細いチタン薄膜のパターン(上)と 60 keV γ 線によって測定されたスペクトル分布(下)⁶⁾
上図で黒く見えるのがチタン薄膜であり、その線幅は $2 \mu\text{m}$ 、間隔は $3 \mu\text{m}$ である。本来はもっと横に長い、上図では中央部で斜めにカットして短く表現してある。

度で 60 keV の γ 線のエネルギースペクトル⁶⁾が測定された。この検出器のチタン薄膜パターンと、実験で得られたスペクトルを図2に示す。この実験では、放射線

がチタン薄膜と直接に相互作用して信号を発生するわけではない。放射線は単結晶シリコンの中でエネルギーを付与し、それによって生成した格子振動量子(フォノン)がシリコンの表面まで伝わってくる。超伝導薄膜を転移温度近くに保ち臨界電流に近い超伝導電流を流しておくと、このフォノンによって薄膜に常伝導転移が起こり信号が観察できる。この場合、パターン化した長尺の薄膜がフォノン検出器として動作し、エネルギースペクトルが得られた。この検出器は、転移端センサー(transition edge sensor)と呼ばれている。

3. 微粉末の常伝導転移

超伝導体の微粉末に臨界磁場より少し低い磁場をかけておくと、入射放射線との相互作用による温度上昇で微粉末を常伝導転移させることができる。このとき、図3の上図に示すように、それまで超伝導体のマイスナー効果によって微粉末から排除されていた磁場が、この常伝導転移のときに微粉末の内部に入りこむ⁷⁾。そこで、図3の下図のように、磁束変化をピックアップコイルによって測定⁸⁾すると放射線が検出できることになる。これは、インジウム微粉末を用いてニュートリノを測定するために考案された方法である。図4にスズの微粉末に ^{57}Co γ 線 (122, 136 keV) を照射した場合の測定結果⁹⁾を示す。同図で印加磁場 $H_0 \sim 110$ のときに、照射時(実線)と非照射時(破線)の場合の計数率の差が顕著である。5.9 keV の X 線でもかなり良い結果が得られている。磁束変化を感度よく測定するために、超伝導量子干渉デバイス(SQUID)を使用することも検討⁹⁾されている。微粉末の超伝導転移による方法では、エネルギー分解能を高くすることよりも、多量の微粉末を用い有効体積の大きな検出器にすることが志向されている。

4. トンネル接合を用いた準粒子検出

半導体検出器などの放射線検出器に放射線が入射すると、多数の自由電子が生成され信号として収集される。この収集電子の数を N とすると、その統計的揺らぎは近似的に $\sqrt{N}$ 程度になる。したがって、収集電子の個数の相対的な揺らぎは約 $\sqrt{N}/N$ となり、これによって検出器の基本的なエネルギー分解能が決まってくる。もし、収集電子の数 N を多くできれば、相対的な揺らぎが減少し、エネルギー分解能が向上することになる。半導体検出器の場合、収集電子1個の生成に必要なエネルギーは 3-4 eV であり、これによって収集電子の数が制限されている。

図3 微粉末の常伝導転移に伴う磁束侵入(上)⁷⁾とピックアップコイルによる検出(下)

図4 スズの微粉末の常伝導転移によって得られた計数率の印加磁場依存性⁹⁾
実線は照射時、破線は非照射時を示す。測定温度は0.4 Kである。

超伝導体/絶縁体/超伝導体の構造(S/I/S)は超伝導体における代表的なトンネル接合である。超伝導体のエネルギーギャップ(2Δ)の大きさはmeV程度であり、半導体のエネルギーギャップより約3桁小さい。超伝導体中で放射線がエネルギーを付与すると、超伝導電子対(クーパー対)が壊されて多数の準粒子(自由電子)が生成されるが、この個数Nは半導体の場合の自由電子の数より約3桁多くなることが予想される。トンネル接合を用いれば、図5の上図に示すようにこの準粒子だけにトンネル障壁を透過(トンネル効

果)させ、それを収集し信号とすることが出来る。そこで、トンネル接合による放射線検出器では収集電子の相対的な揺らぎが少なくなり、入射放射線のエネルギーを半導体検出器より1桁程度高い分解能で測定できる可能性がある。

これに関する最初の実験¹⁰⁾は、20年前にα線をスズのトンネル接合に入射させて行われた。当時の実験では、初期の常伝導転移による測定と同じように、α線入射による信号が判別できる程度であった。その後、この実験は京都大学化学研究所¹¹⁾でも行われ、研究の進展がみられた。1985年にTwerenboldとZehnder¹²⁾は、スズを用いて1辺の長さ100 μmの正方形(100 μm²)をした良好なトンネル接合を製作した。この素子を図5の下図に示す。0.3 Kの温度で5.9 keVのX線が測定され、半値幅(FWHM) 67 eVのエネルギー分解能が得られた。その後、リード線を細くし改良された素子により得られたスペクトル¹³⁾を図6に示す。このエネルギー分解能は41 eVと、Si(Li)検出器より約3倍良い値である。その後引き続いて接合の改良がなされ、半値幅37 eVが得られたようである²⁾。しかしながら、これらの値はスズのエネルギーギャップか

図5 放射線による準粒子トンネリングの機構(上)と製作されたスズのトンネル接合(下)¹²⁾
上図で U_B は接合への印加電圧を示す。

図6 スズのトンネル接合による5.9 keV ^{55}Mn X線(^{55}Fe 線源)のスペクトル¹³⁾
測定温度は0.4K

ら予想される理想的な値よりもまだ数倍大きい値にとどまっている。このようなスズのトンネル素子は室温に保存中に時間とともに特性が悪くなることや、室温から極低温までの熱サイクルによって特性の劣化が起こるなどの欠点がある。

一方、近年、コンピュータ用の回路素子として、ニオブ系トンネル接合(ジョセフソン素子)が開発されてきた。この接合はフォトリソグラフィ法による製作に適しており、接合の性能の再現性や、保存取扱いの耐久性に富む。しかしながら、ニオブ系トンネル接合は、ニオブ自体の特性から漏れ電流が生じやすい特性^{14), 15)}があった。しかし、製作方法の工夫によってニオブ系トンネル接合でもX線が検出できることが実証^{15)~17)}された。さらに、X線検出特性はニオブの単結晶化¹⁸⁾などで性能が向上しつつある。トンネル接合

による準粒子検出については、この他に、より革新的な方法も提案^{19), 20)}されている。

5. フォノンを媒介としたトンネル接合による測定

前節と似た方法であるが、この場合、放射線は超伝導薄膜と直接に相互作用しない。その代わり、単結晶シリコンなどの基盤にそのエネルギーを付与し多くのフォノンを生成する。このフォノンが伝播してトンネル接合に達するとトンネル電流を誘起するので、この電流を測ると放射線が検出できる。この方法による実験^{21), 22)}が報告されており、図7の左図に試作された検出器と実験結果²²⁾を示す。シリコン基盤の上にアルミニウムのトンネル接合が三つ作製された。実験では、下方からは5.5 MeV α 線が大小二つの孔を通して入射された。同図の右図に、測定で得られたスペクトルの例を示す。右図では二つのピークが現れている。パルス波高が小さい方の鋭いピークは、小さい孔($\phi=0.2\text{mm}$)から入射した α 線によって生成したフォノンがシリコン結晶の[001]方向に沿って伝播して誘起した信号である。波高の高いなだらかなピークは、大きい孔($\phi=0.3\text{mm}$)から入射した α 線により生じたフォノンによる信号である。[001]方向に沿ってフォノンが伝播する場合には、フォノン伝播の集束効果²³⁾が現れ、低い波高ではあるが鋭いピークとなっている。

この方法では、今のところ、生成したフォノンがトンネル接合に到達し準粒子をトンネルさせる確率は全体としてあまり高くない。したがって、高分解能測定に向いているとは言えないが、検出器の体積を比較的大きくし易いという利点がある。

図7 シリコン基盤上に作製されたアルミニウムのトンネル接合による実験(左)とトンネル接合No.1によって得られたスペクトル(右)²²⁾

図8 カロリーメータの構造²⁴⁾

シリコン下部の温度計の長さは0.8mm、電流リードを兼ねるアルミニウム線の長さは2mmである。

6. 高温超伝導体の利用

近年発見された酸化物超伝導体は高温超伝導体として注目を集めている。とくにタリウム系(Tl-Ba-Ca-Cu-O)では、約125 Kの高い転移温度が得られている。通常、超伝導体のエネルギーギャップは転移温度に比例する。そこで酸化物超伝導体のエネルギーギャップは金属の超伝導体より一桁程度高くなり、この点では放射線測定における利点はないことになる。一方、SQUIDのように磁束の量子効果を利用して放射線を測定する場合には、将来、高温超伝導体が利用できる可能性がある。しかしながら、熱雑音は温度の平方根に比例して大きくなるので、この点では不利になるといえる。

7. 極低温におけるカロリーメータ

極低温では高純度物質の比熱（格子比熱）は温度の3乗に比例して急速に減少する。そこで、極低温にすれば入射放射線によって容易に温度上昇が起こり、温度計で測定することが可能となる。この測定原理はカロリーメータであり、超伝導現象を利用しない。図8に検出器の構造²⁴⁾を示す。X線はHgCdTe吸収体で熱に変換され、シリコンの下部に作製された半導体ダイオード温度計で信号に変換される。温度上昇は、検出器の熱容量とリー

ド線による熱の逃げで決まる。極低温では高純度シリコン自体の比熱は非常に小さくなるが、接着剤、温度計などの熱容量はあまり減少しない。そこで高純度シリコン以外の部分の熱容量も充分考慮する必要がある。この検出器では、極低温で半導体温度計を高感度にするとともに、リード線の形状や長さを最適化する工夫もなされた。これを用いて温度80 mKにおいて測定が行われ、5.9 keV X線に対し最高17 eVのエネルギー分解能が得られた。最近では、このような素子をひとつの基盤上に12個配置した検出器²⁵⁾も製作されている。

図9の下図に¹⁵⁸Tb線源によるX線のスペクトル²⁵⁾を示す。このときの測定温度は0.098 Kである。上図には同じ線源に対するSi(Li)検出器の測定結果を示す。下図のカロリーメータの結果は、Si(Li)検出器の場合より数倍小さい半値幅となっており、格段に情報に富んでいることが分かる。しかしながら、この方法

図9 ¹⁵⁸Tb線源に対するSi(Li)検出器のスペクトル(上)とカロリーメータのスペクトル(下)²⁵⁾

では温度変化を計測するので、信号パルスの幅が ms 程度と長くなる。また、0.1 K 程度の温度は液体 ^3He の減圧だけでは達成できないので、 ^3He 希釈冷凍機が必要となる。

同じく温度変化を測定する方法であるが、10.7 g の大きな高純度ゲルマニウムを30 mK に冷却して、MeV 領域の γ 線が測定された例²⁶⁾がある。この場合には市販のゲルマニウムダイオード温度計が使用された。エネルギー分解能としては半値幅 70 keV が得られたが、この値は γ 線エネルギーにはあまり依存しなかったと報告されている。このように大きな検出器をより高分解能で動作させるには、一層低い温度が必要とされる。

一方、半導体ダイオード温度計を用いずに、強誘電体の誘電率の温度変化から信号を得る方法²⁷⁾も検討された。この方法では、強誘電体によるキャパシターをサファイア等に取り付け極低温にしておく。サファイアが放射線を吸収して温度上昇すると誘電率の温度変化からキャパシタンスが変化する。あらかじめキャパシターにバイアス電圧をかけておくとそれに応じた電荷が蓄積されるので、このキャパシタンスの変化によって電荷の変化分の信号が発生することになる。強誘電体としては、 SrTiO_3 が想定された。温度 0.3 K の条件では X 線に対して、20 eV 以下の分解能が得られると予想された。

8. ま と め

極低温を利用した放射線センサーでは、イメージング用、高分解能用、ニュートリノ検出用などのために種々の方法が試みられている。近年では、多くの場合、集積回路用のフォトリソグラフィ技術を用いて、微細加工や高性能化が図られている。準粒子トンネリングによる方法や極低温カロリメータの方法では、すでに半導体検出器を上回る高分解能が実験的に確認されている。かなり近い将来に、極低温を用いた実用的な検出器が市販されると予想される。

文 献

- 1) Barone, A., Stefano, S.D. and Gray, K.E.: *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.*, **A 235**, 254-265 (1985)
- 2) Sadoulet, B.: *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, **35**, 47-54 (1988)
- 3) Andrews, D.H., Fowler, R.D. and Williams, M.C.: *Phys. Rev.*, **76**, 154-155 (1949)
- 4) Gabutti, A., Wagner, R.G., Gray, K.E., Kampwirth, R.T. and Ono, R.H.: *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.*, **A 278**, 425-430 (1989)
- 5) Gabutti, A., Gray, K.E., Wagner, R.G. and Ono, H.: *ibid.*, **A 289**, 274-282 (1990)
- 6) Young, B.Y., Cabrera, B., Kee, A.T., Martoff, C.J., Neuhauser, B. and McVittie, J.P.: *IEEE Trans. on Magn.*, **25**, 1347-1350 (1989)
- 7) Pretzl, K.P.: "Superconductive Particle Detectors", (Barone, A. ed.), pp.213-240, World Scientific, Singapore (1988)
- 8) Boniface, J., Ditta, J., Gonzalez-Merstres, L., Massonnet, L., Meylan, D. and Perret-Gallix, D.: *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.*, **A 279**, 376-381 (1989)
- 9) Turrel, B.G., Legros, M., Silva, A. Da, Kotlicki, A. and Drukier, A.K.: *ibid.*, **A 289**, 512-517 (1990)
- 10) Wood, G.H. and White, B.L.: *Can. J. Phys.*, **51**, 2032-2046 (1973)
- 11) Kurakado, M. and Mazaki, H.: *Phys. Rev.*, **B 22**, 168-173 (1980)
- 12) Twerenbold, D. and Zehnder, A.: *J. Appl. Phys.*, **61**, 1-7 (1987)
- 13) Rothmund, W. and Zehnder, A.: "Superconductive Particle Detectors", (Barone, A. ed.), pp.52-65, World Scientific, Singapore (1988)
- 14) Ishibashi, K., Takeno, K., Oae, Y., Sakae, T., Matsumoto, Y., Katase, A., Takada, S., Akoh, H. and Nakagawa, H.: *IEEE Trans. on Magn.*, **25**, 1354-1357 (1989)
- 15) Kurakado, M. and Matsumura, A.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28**, L459-L461 (1989)
- 16) Ishibashi, K., Takeno, K., Mori, K., Sakae, T., Matsumoto, Y., Katase, A., Takada, S., Nakagawa, H., Aoyagi, M., Akoh, H. and Kohjiro, S.: "Advances in Superconductivity II" (Proc. ISS '89, Ishiguro, T. and Kajimura, K., eds.) pp. 1029-1032, Springer-Verlag, Tokyo (1990)
- 17) Gare, P., Engelhardt, D., Peacock, A., Twerenbold, D. and Lumley, J.: *IEEE Trans. on Magn.*, **25**, 1351-1353 (1989)
- 18) Kurakado, M., Takahashi, T. and Matsumura,

- A.: *Appl. Phys. Lett.*, **57**, 1933-1935 (1990)
- 19) Ishibashi, K., Matsumoto, Y., Sakae, T. and Katase, A.: *Nucl. Instrum. and Meth.*, **227**, 483-488 (1984)
- 20) Evetts, J.E., James, J.H., Lumley, J.M., Morris, G.W., Somekh, R.E., Booth, N.E., Goldie, D.J., Hawes, B.M., Hukin, D.A., Lloyd, J.L., Patel, C., and Salmon, G.L.: *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.*, **A 264**, 41-47 (1985)
- 21) Peterreins, Th., Probst, F., Feilitzsch, F.V., Mossbauer, R.L. and Kraus, H.: *Phys. Lett. B*, **202**, 161-167 (1988)
- 22) Peterreins, Th., Probst, F., Feilitzsch, F.V. and Kraus, H.: *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, **35**, 70-72 (1988)
- 23) Cabrera, B., Martoff, J. and Neuhauser, B.: *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.*, **A 275**, 97-111 (1989)
- 24) McCammon, D., Juda, M., Zhang, J., Holt, S.S., Kelley, R.L., Moseley, S.H. and Szymkowiak, A.E.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **26**, Suppl. 26-3, 2084-2091 (1987)
- 25) Szymkowiak, A., Kelley, R., Madejski, G., Moseley, H., Schoelkopf, R., Edwards, B., Juda, M., McCammon, D., Skinner, M. and Zhang, J.: *Rev. Sci. Instrum.*, **60**, 1557-1560 (1989)
- 26) Alessandrello, A., Brofferio, C., Camin, D.V., Fiorini, E. and Giuliani, A.: *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, **36**, 141-145 (1989)
- 27) Silver, E.H., Labov, S.E., Goulding, F., Maden, N., Landis, D. and Beeman, J.: *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.*, **A 277**, 657-663 (1989)
-