宇宙X線観測を目指した マグネティックカロリメータの研究

東京都立大学 理学研究科 物理学専攻 修士課程 宇宙物理実験研究室

指導教官 大橋 隆哉

佐藤 浩介

2004年2月18日

我々は将来の宇宙 X 線、 線観測を目指し、マグネティックカロリメータ (MC)の開発を行なって いる。MCとは、エネルギー入射時の温度上昇を磁化の変化として測定するマイクロカロリメータで ある。半導体検出器のバンドギャップに相当するものとして、ゼーマン効果による電子スピンのエネ ルギー準位のスプリット $\epsilon = g\mu_B J_Z H$ (g:Lande のg因子、 μ_B :ボーア磁子、 J_Z :電子の各運動量)を 用いており、それが $\mu eV(H/1 mT)$ のオーダと非常に小さいために、優れたエネルギー分解能を期待 することができる。また、微小な磁化の変化を低温下で SQUID(超伝導量子干渉計)を用いて測定す ることで、低ノイズな読み出し回路も可能である。MCのメリットとしては、熱平衡における統計力 学的な量である磁化を用いているので巨視的な量で考えればよいこと、素子製作が比較的容易である こと、広いエネルギー範囲で分解能が非常に良く線形性を保つことがあげられる。特にセンサー部分 に金属を使用し、熱化を早めたものをメタリックマグネティックカロリメータ (MMC)と呼び、我々 は金にエルビウムを熔融した Au:Er 系素子を用いて開発を進めている。

まず、Au:Er 素子を赤外線加熱器を用いて、混入物の少ないクリーンな環境で熔融し、製作した。 濃度については、rf-SQUID 装置を用いて、低温下でも磁気モーメントを測定することにより、その データをフィッティングをすることで決定した。素子を 20 mg 程度に分割した場合の濃度のむらはファ クターで 2 程度であった。上のようにして測定した素子を厚さ 0.08 mm 程度の薄板にし、0.4 mm 四 方で重量が 0.2 mg 程度の小片に切断した。こうして製作した Au:Er 素子を希釈冷凍機により 100 mK 以下に冷却し、磁場を印加した。温度 80 mK で、濃度 3000 ppm、印加磁場 0.1 mT、ピックアップ コイル 20 巻きを仮定すると、5.5 MeV の α 線が入射した際に、素子の磁化の変化が SQUID に伝達 され、500 mV 程度の波高値をもつパルスが予想される。実際には、7 mV 程度のパルスが検出され た。これは MMC のパルスとしては、日本で初めてものもであり、世界的にも Heidelberg-Brown大、 NIST 等のグループについで 3 番目である。このパルスは、外部磁場への依存性等などから、放射線 に対するパルスであるとは考えられるものの、予想よりは小さく、この理由としては、磁場とパルス 波高値の関係から推定される Er 濃度が rf-SQUID による測定時よりも大きいことが考えられる。ま た今回の実験装置による、磁化変化の SQUID への伝達効率が非常に悪いこと、ノイズの影響が大き いことなどの理由から、エネルギー分解能が議論できるレベルには達していない。これらの問題を踏 まえ、今後の開発での素子の製作手法の見直し、SQUID を含めた測定系の最適化を考察する。

本論文では、MCのAu:Er系素子の製作と評価、信号の検出過程と解釈、および今後の見通しについて報告する。

目 次

| 第1章 | はじめに | |
|-----|---------------------------|--|
| 1.1 | 1 X 線天文学 | |
| | 1.1.1 X 線天文学の展開 8 | |
| | 1.1.2 X線で宇宙をみると 8 | |
| | 1.1.3 高性能 X 線分光による物理 10 | |
| 1.2 | 放射線検出器の概略 | |
| 1.3 | X 線検出器 | |
| | 1.3.1 ガス検出器 | |
| | 1.3.2 半導体検出器 | |
| | 1.3.3 X線 CCD | |
| | 1.3.4 超伝導トンネル接合検出器15 | |
| | 1.3.5 カロリメータ | |
| 1.4 | 本論文の目的 | |
| | | |
| 第2章 | マグネティックカロリメータの原理 19 | |
| 2.1 | X 線マイクロカロリメータの原理 19 | |
| | 2.1.1 X 線マイクロカロリメータの構造 | |
| | 2.1.2 カロリメータの代表的なパラメータ 20 | |
| | 2.1.3 エネルギー分解能の熱力学的な限界 21 | |
| 2.2 | マグネティックカロリメータの原理と構造22 | |
| | 2.2.1 MC 開発の歴史と実績 23 | |
| 2.3 | MMC の利点と問題点 | |
| | 2.3.1 構造上の利点 24 | |
| | 2.3.2 非常に高い線形性 | |
| | 2.3.3 MMCのノイズ 24 | |
| | 2.3.4 素子製作上の制限:RKKY 相互作用 | |
| | 2.3.5 読みだし系の問題 | |
| 2.4 | MMC の性能を決めるパラメータ 26 | |
| | 2.4.1 磁化と磁化率 | |
| | 2.4.2 エントロピー | |
| | 2.4.3 比熱 | |

| | 2.4.4 磁化の温度変化 | 31 |
|-----|---|----|
| | 2.4.5 素子のパラメータを決める関係式 | 32 |
| 2.5 | 典型的なパラメータ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ | 32 |
| | 2.5.1 典型的なパラメータ依存性 | 33 |
| 第3章 | Au:Er 素子の製作と評価 | 34 |
| 3.1 | 素子に使用する元素の選定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ | 34 |
| | 3.1.1 エルビウム (Er) の特性 | 35 |
| 3.2 | Au:Er 素子の製作 | 35 |
| | 3.2.1 装置 | 35 |
| | 3.2.2 素子製作 | 36 |
| 3.3 | 製作した素子の評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ | 37 |
| | 3.3.1 都立大共用 rf-SQUID 装置 | 37 |
| | 3.3.2 データのフィッティング | 38 |
| | 3.3.3 Au 箔の測定とデータのフィット | 38 |
| | 3.3.4 Au:Er 素子の測定とデータのフィット | 41 |
| 第4章 | 今回の実験装置と予想される出力 | 43 |
| 4.1 | 冷却系 | 43 |
| | 4.1.1 希釈冷凍機 | 43 |
| | 4.1.2 印加磁場のための機構 | 45 |
| 4.2 | SQUID : Superconducting QUantum Interference Device | 45 |
| | 4.2.1 dc-SQUID の原理 | 45 |
| | 4.2.2 今回使用した SQUID の性能 | 47 |
| | 4.2.3 SQUID noise | 47 |
| 4.3 | 実験セットアップ................................... | 49 |
| | 4.3.1 Au:Er 素子と素子台とピックアップコイル | 49 |
| | 4.3.2 組み込みと内部回路 | 51 |
| | 4.3.3 直列抵抗と内部配線を入れた時の周波数特性 | 51 |
| | 4.3.4 電流 (電圧) 源 | 53 |
| | 4.3.5 測定機器 | 53 |
| 4.4 | 予想される出力 | 54 |
| 第5章 | 測定結果 | 58 |
| 5.1 | 実験の経過 | 58 |
| | 5.1.1 第一回目: 2003 年 12 月 14-17 日 | 58 |
| | 5.1.2 第二回目: 2003 年 12 月 17-20 日 | 58 |
| | 5.1.3 第三回目: 12月 20-24日 | 59 |

| | | 5.1.4 | 第四回目:2004 年 1 月 14-16 日:線源なし | 60 |
|--------|------------------------|---|--|--|
| | 5.2 | パルスの | D取得 | 60 |
| | 5.3 | ノイズン | スペクトルの測定 | 62 |
| | 5.4 | 取得し1 | たデータの解析 | 64 |
| 第 | 6章 | 考察 | | 68 |
| | 6.1 | 測定結果 | 果の評価 | 68 |
| | | 6.1.1 | パルスの立ち上がり時間と減衰の時定数 | 68 |
| | | 6.1.2 | カウントレート | 68 |
| | | 6.1.3 | 波高値について | 68 |
| | | | | |
| 第 | 7章 | まとめ。 | と今後の課題 | 70 |
| 第 | 7章 7.1 | まとめ。 まとめ | と今後の課題 | 70 70 |
| 第 | 7章 7.1 7.2 | まとめ。 まとめ 今後の話 | と今後の課題 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ | 70 70 70 |
| 第 | 7章 7.1 7.2 | まとめ。 まとめ 今後の記 7.2.1 | と今後の課題 | 70 70 70 70 |
| 第 | 7章 7.1 7.2 | まとめ。 まとめ 今後の話 7.2.1 7.2.2 | と今後の課題 | 70 70 70 70 70 71 |
| 第 | 7章 7.1 7.2 | まとめ。 まとめ 今後の話 7.2.1 7.2.2 7.2.3 | と今後の課題 | 70 70 70 70 71 71 |
| 第 | 7章 7.1 7.2 | まとめ。 まとめ 今後の語 7.2.1 7.2.2 7.2.3 7.2.4 | と今後の課題 課題 濃度と均一性の制御 素子の形状 SQUID 関連 温度揺らぎの制御 | 70 70 70 70 71 71 71 |
| 第 付 | 7章 7.1 7.2 録A | まとめ。 まとめ 今後の 7.2.1 7.2.2 7.2.3 7.2.4 希釈冷 | と今後の課題 課題 濃度と均一性の制御 素子の形状 SQUID 関連 温度揺らぎの制御 東機用素子台の設計図 | 70 70 70 70 71 71 71 71 72 |

図目次

| 1.1 | 太陽コロナの X 線像 | 9 |
|------|--|----|
| 1.2 | Cyg X-1 の位置の光学写真 (+ 印が伴星) | 9 |
| 1.3 | 単色 X 線入射時に観測されるエネルギースペクトル | 12 |
| 1.4 | 比例計数管の模式図 | 13 |
| 1.5 | フォトダイオード検出器の模式図 | 14 |
| 1.6 | The Astro-E2 satellite | 18 |
| 2.1 | カロリメータの構造のモデル.................................... | 20 |
| 2.2 | マグネティックカロリメータの概念図 | 23 |
| 2.3 | Heidrberg-Brown 大の分解能 3.4 eV @ 5.9 keV [8] | 25 |
| 2.4 | Au:Er の信号波高の線形性 [5] | 25 |
| 2.5 | 温度と比熱の関係:ショットキー型 | 31 |
| 3.1 | 磁場とエネルギー準位の関係 | 35 |
| 3.2 | 赤外線加熱器 | 37 |
| 3.3 | 赤外線加熱器の内部と加熱台・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ | 37 |
| 3.4 | 都立大共用 rf-SQUID 装置 | 38 |
| 3.5 | rf-SQUID の試量挿入部 | 38 |
| 3.6 | Au 箔 の磁化 | 39 |
| 3.7 | Au $\mathbf{\hat{n}}$ fit polynominal (1.5T-4T) \ldots | 40 |
| 3.8 | Au $\mathbf{\hat{n}}$ fit polynomial + tanh | 40 |
| 3.9 | #29の分割 | 41 |
| 3.10 | #29 分割後の ppm の比較 | 41 |
| 3.11 | #29 分割後のヒストグラム | 42 |
| 3.12 | #34 素子 | 42 |
| 4.1 | 都立大希釈冷凍機.................................... | 44 |
| 4.2 | 希釈冷凍機の内部模式図.................................... | 44 |
| 4.3 | IVC 内部の構造 | 44 |
| 4.4 | dc-SQUID | 46 |
| 4.5 | SQUIDの等価回路 | 46 |
| 4.6 | SQUID 顕微鏡写真 | 48 |

| 4.7 | FRP 実装基盤上の配線図 | 48 |
|------|---|----|
| 4.8 | Au:Er 素子 顕微鏡写真 | 49 |
| 4.9 | 素子台と Au:Er 素子 | 49 |
| 4.10 | ピックアップコイル | 50 |
| 4.11 | ピックアップコイルと素子台................................. | 50 |
| 4.12 | ピックアップコイルと素子台 上............................... | 50 |
| 4.13 | ピックアップコイルと素子台 横................................ | 50 |
| 4.14 | 素子台と線源と温度計 | 51 |
| 4.15 | 実際のセットアップの模式図................................. | 51 |
| 4.16 | 希釈への組み込み図 上................................... | 51 |
| 4.17 | 希釈への組み込み図 横.................................... | 51 |
| 4.18 | 回路図 | 52 |
| 4.19 | 電池駆動レギュレーター | 54 |
| 4.20 | レギュレーター回路図 | 54 |
| 4.21 | 測定機器 | 54 |
| 4.22 | 測定機器の配置図.................................... | 54 |
| 4.23 | / 0 vs B 80 mK | 56 |
| 4.24 | / 0 vs B 120 mK | 56 |
| 4.25 | PH vs B 80 mK | 56 |
| 4.26 | PH vs B 120 mK | 56 |
| 5.1 | パルスの典型的な形 @ 80 mK,0.1 mT | 61 |
| 5.2 | パルスの典型的な形 @ 120 mK,0.1 mT | 61 |
| 5.3 | 平均パルス @ 80 mK,0.1 mT | 61 |
| 5.4 | 平均パルス @ 120 mK,0.1 mT | 61 |
| 5.5 | 76 mK 0.2 mT | 62 |
| 5.6 | 118 mK 0.05 mT | 62 |
| 5.7 | 200 mK 0.05 mT | 62 |
| 5.8 | 83 mK 0.1 mT | 62 |
| 5.9 | 127 mK 0.05 mT | 63 |
| 5.10 | 120 mK 0.05 mT | 63 |
| 5.11 | 直列抵抗を入れた後のノイズスペクトルとジョンソンノイズの理論線からフィットし | |
| | たカットオフ周波数 | 63 |
| 5.12 | 80 mK、0.1 mT の時ののベースラインのゆらぎ | 65 |
| 5.13 | 80 mK、0.1 mT の時のエネルギースペクトル | 65 |
| 5.14 | 80 mK、0.2 mT の時のベースラインのゆらぎ | 65 |
| 5.15 | 80 mK、0.2 mT の時のエネルギースペクトル | 65 |
| | | |

| 5.16 | 80 mK、0.4 mT の時のベースラインのゆらぎ | 66 |
|--------------|------------------------------------|----------|
| 5.17 | 80 mK、0.4 mT の時のエネルギースペクトル | 66 |
| 5.18 | 80 mK、0.5 mT の時のベースラインのゆらぎ | 66 |
| 5.19 | 80 mK、0.5 mT の時のエネルギースペクトル | 66 |
| 5.20 | 120 mK、0.1 mT の時のベースラインのゆらぎ | 67 |
| 5.21 | 120 mK、0.1 mT の時のエネルギースペクトル | 67 |
| $6.1 \\ 6.2$ | PH vs B @ 80,120 mK での測定値 | 59 69 |
| A.1 | 希釈冷凍機用素子台設計図 1 | 73 |
| A.2 | 希釈冷凍機用素子台設計図 2 | 74 |
| B.1 | Heプローブ設計図 1 | 76 |
| B.2 | Heプローブ設計図 2 | 77 |
| B.3 | Heプローブ設計図 補足 | 78 |

表目次

| 1.1 | 検出器の性能比較.................................... | 15 |
|-----|--|----|
| 2.1 | 基礎物理定数 | 32 |
| 3.1 | 金 (Au) とエルビウム (Erbium:Er) の基礎的なデータ | 34 |
| 3.2 | 熔融前の典型的な試料の量.................................... | 36 |
| 3.3 | Au の帯磁率:フィット毎のまとめ | 40 |
| 3.4 | 素子のパラメータ.................................... | 42 |
| 4.1 | 420-SSA SQUID 素子パラメータの設計値 (SII のデータによる) | 48 |
| 4.2 | 回路のパラメータの実測値.................................. | 52 |
| 4.3 | 見積りのパラメータ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ | 56 |
| 5.1 | 実験の経過と変更点のまとめ................................... | 60 |

第1章 はじめに

1.1 X 線天文学

1.1.1 X線天文学の展開

宇宙からやってくる X 線の観測は、1962 年にアメリカの Giacconi らによる観測ロケットにより、 全天で最も明るい X 線源である Sco X-1 が偶然発見されたことにはじまる。この時代になって初め て観測された理由は、宇宙からの X 線は地球大気によって完全に吸収されるためである。これを受 けて、1960 年代には小型の観測ロケットにより X 線天体について断片的な知識が集められ始めたが、 1970 年に世界初の X 線天文衛星 Uhuru(米) が登場し、全天走査の結果約 400 個の X 線天体をリスト アップすることで研究は大きく飛躍した。その後は各国のそれぞれ特徴を持った観測器が次々に打ち 上げられ、それらの幅広い活躍により X 線という波長は宇宙物理学にとって不可欠な窓として確立さ れてきた。現在では、ブラックホール、中性子星、超新星残骸、活動銀河核、銀河団などを筆頭に、 ほとんどすべての天体が多かれ少なかれ X 線を出していることが知られ、カタログ化された X 線天 体は 10 万個以上にも達している。

日本では、1979年に日本初のX線天文衛星「はくちょう」が打ち上げられ、その後「てんま」、「ぎんが」、「あすか (*ASCA*)」と4つの衛星が続き、多くの成果を挙げてきている。また、2005年には ASRTO-E2 衛星の打ち上げも予定されている。

1.1.2 X線で宇宙をみると

X線で宇宙をみることで、どのような物理を知ることが可能となってきたのか、以下に3つの代表的な例を挙げて述べる。

太陽を取り巻くコロナの存在は、皆既日食を通じて古来より知られており、その正体は電離気体で あろうと考えられていた。しかし、コロナ自体はほとんど X 線しか放射しておらず、コロナが数百万 度という高温であり、太陽磁場により閉じ込められ、磁力線の繋ぎかえで刻々と加熱されているとい う科学的な本質は、大気圏外からの X 線観測によりようやく明らかになったものである。図 1.1 に 「ようこう」が X 線でとらえた太陽の画像を示す。温度 6000 K の太陽表面の上空に、なぜこの様な高 温コロナが存在するのか、そこには重大な物理学が含まれているのでは、と考えさせられるものであ る。さらに 1980 年代始めの *Einstein* 天文台は、多くの星が X 線を出しており、従って星も太陽と同 じようにコロナを有することを発見した。X 線の眼を利用することで、コロナが太陽特有のものでは なく、広く恒星に共通するものであると分かった。恒星を学ぶにあたって地球から最も近い太陽は、 手近な実験フィールドの一つであると言える。



図 1.1: 太陽コロナの X 線像

図 1.2: Cyg X-1の位置の光学写真 (+印が伴星)

現代では Cyg X-1 など 20 個余りの天体が、ブラックホールと普通の星との近接連星であると知ら れている。図 1.2 は Cyg X-1 の伴星を可視光で見たものを示している。この星は可視光では見えない 天体により、5.6 日の周期で振り回されており、この見えない相手こそが太陽の 10 倍の質量を持つブ ラックホールであるとわかってきた。しかし、この伴星の方はどこにでもある何の変哲もない星であ るので、この位置から強烈な X 線が放射されているという情報がなければ、この伴星に「見えない相 手」が存在することなど永久に知られずに終ったと考えることもできる。すなわち、ブラックホール が観測的に発見できるのは、そこに吸い込まれる高温ガスが断末魔の悲鳴として X 線を放射するお かげである。ブラックホールという概念は、Einstein の一般相対論の予言するところであり、もしこ うしてブラックホールの実証が得られていなかったなら、一般相対論の信用もその分だけ割り引かれ ていた可能性もある。

宇宙で最も巨大な天体は「銀河団」であり、これまで1万個ほどが知られている。一つの銀河団は、 数百個の銀河が重力で引き合っており、それらの銀河はどれも星々の大集合であるので、銀河団は結 局のところ星から成っていると考えるのが自然である。ところが実際には、星の数倍の総量を持つ高 温ガス(プラズマあるいはコロナ)が、銀河団の空間を満たしており、広がったX線を放射している。 まさにこの銀河団の高温ガスこそ、宇宙で最も優勢なバリオンの姿だったのである。しかしながら、 銀河団の広大な空間にはこうした星やガスを集めたよりも10倍も多い正体不明の暗黒物質が分布し ている。その正体は恐らく未知の重い粒子であろうと考えられており、X線の観測により暗黒物質が あらゆる銀河団に付随することが確立されてきている。すなわちX線観測が、銀河団とはまず第一 義的には巨大な暗黒物質の塊であり、そこに重力で断熱圧縮された大量の高温ガスが閉じ込められて おり、その極一部が冷えて銀河や星になっているという描像を明らかにしてきたわけである。

このような3つの例を挙げるだけでも、X線によって得られる宇宙の情報が、現代の自然観に根本 的なインパクトを持っていることが分かる。また、宇宙ではいたるとこでX線が発生しており、それ らのX線は「熱いところはますます熱く、冷たいところはますます冷たくなる」という宇宙の基本的 な性質を最も的確に映し出す鏡となっている。

第1章 はじめに

1.1.3 高性能 X 線分光による物理

以下に高いエネルギー分解能を有する検出器によって、初めて可能となる X 線天文学について簡 単に述べる。

微細構造線を用いた高温プラズマ診断

これまでの検出器のエネルギー分解能 (> 100 eV) では輝線の分離が不十分であり、各元素がその 種類と遷移前後の電子状態の違いを反映した共鳴線、禁制線、衛星線などといった各々エネルギーの 異なる輝線を出す、これらの微細構造のブレンドとして認識せざるを得なかった。しかしながら、エ ネルギー分解能が~数 eV という能力を持つ検出器であれば、輝線を分離することが可能となり、こ れらのブレンドによる不定性が無くなり、観測対象の物理状態や運動状態についての正確な診断が可 能となる。例えば、元素の存在比と同時に個々の元素の電離度の異なるイオンの存在比を知ることが 可能であり、X 線源の温度を正確に求めることができる。また、微細構造線の広がりからイオンの熱 運動の速度を測定でき、イオンの温度とあわせて、プラズマの進化を深く理解するする上で重要な情 報を得ることが可能となる。例を挙げると、超新星残骸からのスペクトルを広く詳しく調べること で、超新星の分類や星の進化論に大きく貢献しうる。

輝線を用いた運動学

可視光や電波では高い精度で運動を測定できるが、高温プラズマのマクロな運動や X 線星自体の 運動は、X 線でのみ可能である。輝線を分離できると、そこからドップラーシフトや輝線幅から天体 の運動を直接測定することが可能となる。また、1 eV の精度で輝線エネルギーが測定できれば、固 有運動で約 10 km/s、ハッブル (Hubble)の法則を適用して遠方銀河の距離を決める場合に 1 Mpc よ りも良い精度が得られる。また、鉄の K α_1 と K α_2 とを分離可能なため、X 線連星系の伴星の視線速 度まで決定できる。これにより、ブラックホール、中性子星、白色矮星などの連星系の公転速度を測 定することで、高密度星の質量を詳しく求めることが可能となる。

低密度物質探查

低密度 X 線連星やクエーサーなどのスペクトルに特徴の少ない X 線源を背景として、X 線スペク トル中の吸収端構造から星間物質や銀河物質の重元素の組成や物理状態を探ることが可能である。吸 収端のエネルギーの違いから、気体/固体の分離だけではなく、さらに分解能が高くなれば、吸収端 から約1 eV の範囲に渡って存在する EXAFS(Extended X-ray Absorption Fine Structure) による固 体の状態診断が可能となり、宇宙の化学史に強い制限を設けることとなる。

1.2 放射線検出器の概略

放射線の検出器には様々なものが存在する。そのどれもが、放射線により物質中に与えられたエネ ルギーが電子・原子・分子の相互作用の多数回の繰り返しを通じて、多くの原子・分子に分配されて いく物理過程、または結果を利用して放射線を検出するものである。以下に検出原理ごとに分類をし て一般な例を挙げる。

- 熱的準安定状態からの外部刺激による相転移など
 ・・・・ 霧箱、泡箱、スパークチェンバー
 飛跡の検出に用いる。
- 化学反応
 ・・・・ 写真、原子核乾板
 線量、飛跡の検出に用いる。
- 電子・イオン対 (電子・正孔対)の生成
 ・・・・ガス検出器 (電離箱、比例計数管、GM 計数管)
 ・・・・半導体検出器 (表面障壁型、拡散接合型、リチウムドリフト型)
 ・・・・ CCD: Charge Coupled Device
- シンチレーション (励起状態からの発光)
 主に光電子増倍管 (photomultiplier) と組み合わせて用いられる。
 ・・・・ 無機シンチレータ、有機シンチレータ、液体シンチレータ
- チェレンコフ光
 相対論的速度の荷電粒子検出

ー般には、 $40 \text{ eV} \sim 20 \text{ keV}(30 \sim 0.05 \text{ nm})$ のエネルギー (波長)領域である X 線の検出には光電効 果が利用され、硬 X 線から γ 線の領域ではコンプトン効果や電子対生成が有効となる。

上に挙げたような特徴を有する検出器の中から、X線の検出に適したものを選択する必要がある。 また、天体からのX線を観測する際には地球大気によるX線の吸収があるために地上での観測は不 可能である。そのため人工衛星に搭載しての観測が現在では主流であり、これらの検出器には、大き さ・寿命・耐久性などの制限が与えられることとなる。また、X線以外の成分(バックグラウンド)、 例えば紫外線、荷電粒子、宇宙線にも感度を持っているため微弱なX線を検出する場合には、これら の除去も重要な機能となる。検出器には、放射線の入射位置、エネルギーあるいは運動量、その他偏 光などを測定するものがあるが、本論文では、エネルギーの精度のよい測定を重視している。

そこでエネルギー分解能について一般論を述べる。

エネルギー E₀の単色の X 線が入射した際に得られるエネルギースペクトルを図 1.3 に示す。情報 キャリアの揺らぎや読み出しシステムによるノイズなどの影響により、単色 X 線を入射した場合で あっても得られるスペクトルは必ず有限の幅を有する。この幅をエネルギー分解能と呼び、半値幅



図 1.3: 単色 X 線入射時に観測されるエネルギースペクトル

(FWHM: Full Width at Half Maximum)で表す。一般に X 線検出器では、X 線入射時の検出器との相互作用によって生じる電子、イオン、正孔、フォノンなどのキャリアを収集して入射エネルギーを測定する。検出器に1つの光子が入射し、生成した情報キャリアが N 個であったとする。ここで、情報キャリアの生成は ポアソン (Poisson)統計に従うとし、情報キャリア生成に必要なエネルギーは入射 X 線光子のエネルギー E_0 に比べて充分に小さく、情報キャリア数 N が充分に大きい場合には、図 1.3 に示す応答関数はガウス (Gauss)分布となる。その標準偏差は $\sigma = \sqrt{N}$ であり、半値幅は FWHM = 2.35 \sqrt{N} で表されることとなる。これより、情報キャリア数の統計揺らぎによって決まるエネルギー分解能 ΔE は、

$$\Delta E_{\rm FWHM} = \frac{2.35 \ E_0}{\sqrt{N}} \tag{1.1}$$

と表される。しかし、実際には情報キャリアの生成はポアソン分布に完全には従わないので、実際の エネルギー分解能の限界は、

$$\Delta E_{\rm real} = 2.35 \ E_0 \sqrt{\frac{F}{N}} \tag{1.2}$$

と表される。ここで F は Fano 因子と呼ばれるポアソン統計からのずれを定量化するために導入され た係数であり一般に $F \leq 1$ である。

以下に、実際に人工衛星に搭載された X 線検出器の例を挙げ、検出原理について簡単に説明を行い、エネルギー分解能についても言及する。そして、従来の電子・イオン対 (電子・正孔対)の生成を利用した検出器では $\Delta E < 10 \text{ eV}$ を到達することは不可能であることを述べ、超伝導トンネル接合検出器とカロリメータであれば理論的に $\Delta E < 10 \text{ eV}$ を到達可能であることを示す。



図 1.4: 比例計数管の模式図

1.3 X線検出器

1.3.1 ガス検出器

比例係数管 (PC: Propotional Counter) は図 1.4 に示すように、円筒または角筒を陰極とし、細い 芯線を陽極として高電圧を印加し前置増幅器を通してパルス信号を取り出す検出器である。

放射線がガス中を通過する際に、ガスを電離して一次電子とイオンを生成する。それぞれ電場によ り加速されるが、質量の違いから電子の方がより速く移動する。加速を受けた一次電子がガスのイオ ン化ポテンシャルを超えるエネルギーを得ると、一次電子によるガスののイオン化が生じ二次電子を イオンの対ができる。これを繰り返すことで入射エネルギーに比例した個数の電子が生成され、電極 へ達することとなる。この電子増幅過程を電子なだれと呼ぶ。

筒の中には希ガスと有機ガスの混合ガスを流すか密封する。筒の一部を切り取り X 線透過率の高 い薄膜を取り付けて X 線の入射窓にする。芯線には直径 20~100 μ m のタングステン線が主に用いら れ、混合ガスとしては Ar 90 % + CH₄ 10 % の PR(P-10) ガスがよく使用される。X 線入射窓の膜に は Be、Al、Ti の金属薄膜やポリプロピレン、マイラー、カプトン等のプラスチック薄膜が用いられ る。印加する電圧はガスの種類や圧力にもよるが、1500~3000 V である。出力パルス電圧は 1 mV ~1 V、時間幅は 10~100 μ s 程度である。検出効率は窓膜の透過率とガスの吸収率によって決まる。

エネルギー分解能は一次電子と二次電子の数の揺らぎで決まる。比例係数管では特に二次電子の数の揺らぎが大きく、一般にエネルギー分解能は悪い。入射 X 線エネルギーを *E*₀、一つの中性ガスを 電離しイオン対を生成するのに必要なエネルギーを *W* とし、二次電子の数の揺らぎの影響を加味し 式 1.2 を書き換えると、エネルギー分解能 Δ*E* は、

$$\Delta E = 2.35\sqrt{E_0 W(F+b)} \tag{1.3}$$

と表される。ここでbは電子なだれの理論的予想から導かれる定数であり、0.4 < b < 0.7程度の値を 持つ。比例係数管での典型的な値としては、W = 35 eV、F = 0.20、b = 0.6である。これを上の式 に代入すると、6 keVに対するエネルギー分解能は 960 eV となる。 一方、ガス蛍光比例係数管 (GSPC: Gas Scintillation Propotioanl Counter) では一次電子で中性ガスを励気させ、これが基底状態に戻る際に放出する光子を利用したもので、電子なだれを生じることがないため比例係数管よりも高いエネルギー分解能を達成することが可能である。代表的なガス蛍光比例係数管での値 W = 35 eV、F = 0.20を用いると、6 keV に対するエネルギー分解能は 480 eV となる。この値は X 線天文衛星 ASCA に搭載されていた GIS(Gas Imaging Spectrometer)のエネルギー分解能にほぼ一致する。

1.3.2 半導体検出器



図 1.5: フォトダイオード検出器の模式図

半導体ダイオード検出器あるいは単に固体検出器 (SSD: Solid-State Detector) とも呼ばれる。こ の検出器の基本的情報キャリアは X 線から変換された一次電子であり、入射 X 線にそって電子・正 孔対が生じる。これを検出器内部に印加した電圧によって収集して電気信号として読み出すのが基本 的な検出原理である。次に述べる X 線 CCD も広義では半導体検出器であるが、ここでは放射線検出 器として比較的歴史のあるリチウムドリフト型シリコン Si(Li) 検出器と、最近になって急速に発展し てきたテルル化カドミウム亜鉛 CdZnTe 検出器について簡単に述べる。

半導体検出器の構造を図 1.5 に示す。pn 接合に逆バイアスをかけると空乏領域が形成され、この 領域にて X 線が吸収され電子・正孔対がその行路に沿って生じる。例えば、1 µm あたり 80 対 (最小 電離状態にある荷電粒子の場合)の割合で生じる。電極に印加されたバイアス電圧によりこの有感領 域に強い電場が生じており、電子・正孔対はこの電場により分離・収集される。図中 i で示されてい る領域は真性 (intrinsic)領域となっており、高い絶縁性を示し電荷収集のための高いバイアスを安定 してかけることが可能である。つまりこの領域が有感領域となっている。

Siの場合この領域の厚みは数 mm まで可能であり、通常ここに数 100~数 1000 V のバイアスを かけて用いる。半導体検出器の時間分解能は、有感領域を電子または正孔が移動する速さで決まり、 2 mm 厚を例にとれば 10~100 nm 程度になる。一つの情報キャリアを生じるのに必要なエネルギー W は、半導体検出器では Si で平均 3.65 eV、Ge で平均 2.96 eV とガス検出器に比べ 1/10 であり高 いエネルギー分解能が期待される。Si を用いた半導体検出器のファノ因子 F の典型的な値は 0.1 であ る。従って式 1.3 を用いると 60 keV に対するエネルギー分解能は 1.1 keV という値を得る。しかし ながら実際には、半導体検出器のエネルギー分解能は前置増幅器の雑音レベルで決まってしまう。

ASTRO-E2 搭載 HXD(Hard X-ray Detector) による観測帯域のうち低エネルギー側を受け持つ PIN 型シリコン半導体検出器では、2 mm 厚のシリコン PIN フォトダイオード素子を 2 枚重ねにし、 有効厚みを 4 mm として用いる。前置増幅器の雑音を抑えるため低温に冷却して用いる。-20 °C で 達成できる 10~80 keV に対するエネルギー分解能は約 4 keV であり、エネルギーの下限で約 10 keV である。

1.3.3 X線 CCD

ビデオカメラとして多用される CCD は X 線計測にも有用であり、位置およびエネルギー分解能と もに優れた撮像型検出器として用いられている。X 線 CCD カメラは、一つ一つの小さな半導体検出 器をモザイク状に並べることにより、前置増幅器からみた静電容量を小さくし、増幅器の雑音レベル を下げることに成功した検出器である。*ASCA* に搭載された SIS(Solid-State Imaging Spectrometer) では、6 keV に対して 120 eV のエネルギー分解能を達成しており、これは理論的な限界値に近いも のである。

| | エネルギー帯域 | エネルギー分解能 | 位置分解能 | 時間分解能 |
|--------------|-----------------------------|-----------------------------|-------------------------|---------------------|
| 比例計数管 | 40 eV \sim 40 keV | $1.1~{\rm keV}@6~{\rm keV}$ | $0.1 \sim 1 \text{ mm}$ | $10 \ \mu s$ |
| 蛍光比例計数管 | $0.2~\sim~40~{\rm keV}$ | $480~{\rm eV}@6~{\rm keV}$ | 0.1 ~ 1 mm | 100 μs |
| 半導体検出器 | $0.2~\sim~100~{\rm keV}$ | $150~{\rm eV}@6~{\rm keV}$ | — | $10 \ \mu s$ |
| X線CCD | 40 eV $\sim~20~{\rm keV}$ | $150~{\rm eV}@6~{\rm keV}$ | 10 ~ 20 $\mu {\rm m}$ | $100 \mathrm{\ ms}$ |
| 半導体温度計カロリメータ | $0.5 \sim 20 \ {\rm keV}$ | $6~{\rm eV}@6~{\rm keV}$ | $1 \mathrm{mm}$ | $10 \mathrm{\ ms}$ |

表 1.1: 検出器の性能比較

1.3.4 超伝導トンネル接合検出器

超伝導トンネル接合検出器 (STJ: Superconducting Tunnel Junction) は、2枚の超伝導対で薄い 絶縁膜を挟んだ構造をしている。STJ 素子にて X 線が光電吸収される際に生成された光電子がクー パー (Cooper) 対を破壊して準粒子 (単独の電子)を作る。STJ ではトンネル効果で絶縁体を通過した 準粒子を信号として検出する。超伝導現象を利用するため、~4K の極低温にて動作させる必要があ る。超伝導状態にある電子が常伝導状態となるのに必要なエネルギー、すなわちクーパー対を一つ破 壊するのに必要なエネルギーは数 meV である。エネルギー分解能の限界は情報キャリア数の統計揺 らぎによって決まるので、STJ の分解能は半導体検出器に比べ数十倍も良くなると考えられ、原理的 には~4 eV のエネルギー分解能を達成することが可能である。 1.3.5 カロリメータ

カロリメータ (ボロメータ) とは X 線のエネルギーを電子や光子に変換するのではなく、そのエネ ルギーを素子の微小な温度上昇 (~ 数 mK) として測定する検出器である。そのエネルギー分解能は 入射エネルギーに依存することなく、素子内のフォノン数の揺らぎ等によって決まり、極低温に冷却 することで飛躍的に向上する。また、この温度上昇を検出するのに用いる温度計の性能により、カロ リメータのエネルギー分解能も左右される。次章にて詳しく述べるが、温度計の感度を α とすると 理想的なエネルギー分解能は $\Delta E \propto 1/\sqrt{\alpha}$ という関係がある。従って、温度計の感度 α が大きいほ ど理論的なエネルギー分解能の限界が小さくなる。以下に温度計の種類によるカロリメータの分類を 行う。

半導体温度計カロリメータ

シリコンに不純物を 10¹⁸ – 10¹⁹ cm⁻³ 程度ドープした半導体温度計を利用したカロリメータである。エネルギー分解能は、熱揺らぎであるフォノンノイズと熱雑音であるジョンソンノイズで決まり、 それに読み出し系のノイズが加算される。

ASTRO-E2に搭載される XRS(X-Ray Spectrometer)では動作温度 65 mK でエネルギー分解能 ~ 6 eV である。 6×6 の合計 32 個の素子が並んでおり、全体として約 $3.5 \times 3.5 \text{ mm}^2$ の面積を有し簡単な 撮像も可能である。XRS では X 線の吸収体として熱容量と熱化で特に優れている水銀テルル (HgTe) を用いている。半導体温度計の感度は $|\alpha| < 6$ である。

TES 型カロリメータ

半導体温度計よりもさらに感度の高い温度計として超伝導遷移端での温度に対する抵抗値の急激 な変化を用いた TES(Transition Edge Sensor)がある。原理的には温度計の感度 ~> 1000 も可能で あり、半導体温度計カロリメータの理論的限界を一桁以上上回ることが可能な検出器である。エネル ギー分解能は半導体温度計カロリメータ同様、熱力学的なゆらぎと抵抗の熱雑音であるジョンソンノ イズで決まり、それに読み出し系のノイズが加算される。

Irwin (1995)([13]) によって提唱された電熱フィードバックを用いることで熱力学的なゆらぎより もよいエネルギー分解能が達成可能であり、単純な原理に基づくと分解能は 1 eV を達成可能である。 しかし、超伝導遷移は二次相転移であるため、critical slowing down によって超伝導遷移端付近にお ける抵抗値のゆらぎが大きくなる。現状では、このゆらぎ (余剰ノイズ)によって分解能が制限され ている。

現状では、米国の NIST とオランダの SRON それぞれにおいて温度 93 mK、96 mK で共にエネ ルギー分解能 (FWHM) 4.5 eV を達成している。また、当研究室、宇宙科学研究所、早稲田大学のグ ループでも温度 151 mK で分解能 6.6 eV を達成している。([19]、[20]) マグネティックカロリメータ

上記の二種類のカロリメータは素子の温度上昇を抵抗値の変化として読み出すものであるが、マグ ネティックカロリメータは温度上昇を常磁性体の磁化の変化として測定する検出器である。温度変化 δT に対する磁化の変化 δM は、

$$\delta M = \frac{\partial M}{\partial T} \delta T \tag{1.4}$$

と表わせる。この磁化変化を高感度磁束計である SQUID(超伝導量子干渉計) で読み出す場合を考える。入射フォトンのエネルギーを E、吸収体と磁性体を合わせた熱容量を C_{tot} 磁性体の体積を V、 SQUID の検出コイルの直径を Rとすると、SQUID の検出コイルを貫く磁束 ϕ は、

$$\delta\phi = \mathcal{G}\mu_0 \frac{V}{R} \frac{\partial M}{\partial T} \frac{\Delta E}{C_{\rm tot}} \tag{1.5}$$

と表せる。ここで \mathcal{G} は無次元の形状による因子で $\mathcal{G} \sim 1$ のオーダーであり、 μ_0 は真空中の透磁率である。

マグネティックカロリメータのエネルギー分解能は、素子の熱力学的なゆらぎと SQUID 読み出し 系のノイズによって決まる。現状では後者の寄与が大きく、将来 SQUID の性能が向上することで飛 躍的に分解能が改善する可能性がある。現在の実績としては、Heidelberg 大学のグループによって、 動作温度 33 mK でエネルギー分解能は 3.4 eV@5.9 keV ([4]) と非常に優れた実績があり、また、X 線だけではなく γ 線領域の観測に対応するものも開発されている。もともとは、粒子や γ 線の観測を 目的に考えられたものであるが、SQUID の進歩とともに X 線で優れた分解能が出せるようになって きた。高エネルギー領域での観測に優れている理由としては、高エネルギー用の MC の分解能は主に 磁性体のスピン比熱で決まり、分解能の比熱的依存性が熱力学的なゆらぎよりも弱いために (1/2 乗 に対して 1/3 乗)高エネルギー領域での観測においては他の検出器よりも優れている。

現状では SQUID 読み出し系ノイズの寄与が大きいが、H 今後の SQUID の性能向上と共に分解能が飛躍的に改善するであろう。

1.4 本論文の目的

2005 年打ち上げ予定である X 線天文衛星 Astro-E2 に搭載予定の半導体カロリメータ (6×6 ピク セル) は、5.9 keV の X 線に対し ~ 6 eV のエネルギー分解能を持ち、X 線天文学の新時代を開くも のの、視野が約 3' と狭く今後広い視野をもつ X 線分光検出器の開発が必要となる。これまでの撮像 型検出器の主流は CCD であるがその分解能は ~ 100 eV であり、それを超えるエネルギー分解能を もつカロリメータの開発は必須である。

本論文では、有望な X 線分光器として世界で注目されているメタリックマグネティックカロリメー タの開発を本研究室での立ち上げ段階から報告するものである。§2 ではマグネティックカロリメータ の原理、§3 では素子の製作と評価、§4 では実験装置、§5 では測定結果、§6 では考察、§7 ではまとめ と今後の課題について述べる。



 \boxtimes 1.6: The Astro-E2 satellite

第2章 マグネティックカロリメータの原理

2.1 X線マイクロカロリメータの原理

本節では、マグネティックカロリメータの原理について触れるまえに、まずは、一般的なマイクロ カロリメータに共通する構造や原理について述べておく。

2.1.1 X線マイクロカロリメータの構造

X線マイクロカロリメータは、図 2.1 で示すような吸収体、ピクセル、温度計、サーマルリンク、 熱浴から成る。吸収体に入射した X線光子は光電効果等によって吸収されその大部分が熱に変わる。 この微小な温度変化 ΔT を入射エネルギーを E、熱容量を C として、

$$\Delta T = E/C \tag{2.1}$$

を検出するために吸収体を十分熱化する必要があり、吸収体と温度計の間は適度に熱伝導を悪くした サーマルリンクによってつながれている。吸収体で生じた熱はサーマルリンクを通して熱浴に逃げて 行き再び定常状態に戻る。

吸収体

X線光子は光電効果によって吸収体に吸収されるため、検出効率を高くするためには吸収体の原子 番号を大きくし、十分な面積と厚さを持たせなければならない。しかし、素子が大きくなると熱容量 が大きくなってしまいエネルギー分解能が悪くなってしまう。このように、X線吸収体として用いる 物質はX線吸収効率、熱容量、X線の熱化の効率の条件を同時にクリアしなければならない。そこ で、以下に物質の種類に応じた特徴を挙げる。

1. 絶縁体と半導体

絶縁体や半導体はバンドギャップの不純物準位に電子が捕捉されて準安定な状態を作ってしまい、 熱化が不完全であったり安定しにくい。

2. 常伝導金属

純粋な常伝導金属は熱化が非常に速いが、電子比熱が大きいため検出器のサイズが限られる。

3. 準金属

ビスマス、水銀テルルなどの準金属は熱化が比較的速いがデバイ温度が低く格子比熱が大きい。 4. 超伝導体



図 2.1: カロリメータの構造のモデル

超伝導体は超伝導遷移温度よりも十分低温では電子比熱が小さいため、原子番号が大きく、デバ イ温度が高い超伝導体を用いれば、比熱を抑えつつ高い検出効率を達成できる。しかし、超伝導 遷移温度よりも十分な低温では準粒子の再結合の影響で熱化が非常に遅くなる。

2.1.2 カロリメータの代表的なパラメータ

カロリメータについて理解する上での重要なパラメータについて述べておく。

熱容量 C

比熱はカロリメータのエネルギー分解能および時定数を決める重要なパラメータである。低温における金属の比熱 *c* は、フォノンに起因する格子比熱 *c* と伝導電子に起因する電子比熱 *c* の二つの要素からなっており、

$$c = c_l + c_e \tag{2.2}$$

と書ける。

• 格子比熱 cl

格子比熱はデバイ温度 θ_D よりも十分低温 $(T \ll \theta_D)$ において

$$c_{l} \approx \frac{12\pi^{4}}{5} N_{A} k_{B} \left(\frac{T}{\theta_{D}}\right)^{3}$$

= 1.94 × 10³ [J/K/mol] $\left(\frac{T}{\theta_{D}}\right)^{3}$ (2.3)

と表され、温度の3乗に比例する (デバイの3乗則)。ただし、 N_A はアボガドロ数、 k_B はボル ツマン定数である。超伝導物質では、超伝導遷移温度を T_c として、 $T < 0.1T_c$ で格子比熱は支 配的である。

• 電子比熱

電子比熱にはフェルミ準位近傍の電子のみが寄与でき、物質が常伝導状態か超伝導状態かによって異なる。

常伝導状態

$$c_e = \gamma T \tag{2.4}$$

超伝導状態 $T < 0.1T_c$ では、

$$c_e = \gamma \left(aT_c \exp\left(\frac{-bT_c}{T}\right) \right) \tag{2.5}$$

超伝導転移は二次相転移であり秩序状態から無秩序状態へ移行するので、電子比熱 $c_e = T\left(\frac{\partial S}{\partial T}\right)$ は $T = T_c$ において不連続な飛びを示す。(比熱異常) この飛びは常伝導状態の比熱の 1.43 倍に相当する。[26]

以上に於いて、 γ はフェルミ面における電子の状態密度の尺度である Sommerfeld 定数、 T_c は 超伝導体の遷移温度で共に物質に依存するパラメータである。a、b は物質に依らない定数で $a \approx 8.5, b \approx 1.44$ である。

熱容量Cは比熱c、密度ho、原子量M、体積Vを用いて

$$C = c\rho V/M \tag{2.6}$$

と書ける。

2.1.3 エネルギー分解能の熱力学的な限界

エネルギー分解能の熱力学的な限界について、まずは例として、フォノンがキャリアである場合に ついて述べる。

フォノン一個の平均エネルギーは k_BT であるので温度 T、熱容量 Cの素子の熱力学的なゆらぎは

$$\sqrt{N} = \sqrt{\frac{CT}{k_B T}} = \sqrt{\frac{C}{k_B}}$$
(2.7)

と求まる。これに対して入射 X 線によってフォノン数は n 増加しそのゆらぎは $\sqrt{N+n}$ になる。典型的な値として、E = 6 keV、C = 1 pJ/K、T = 0.1 K を考えるとゆらぎの増加の割合は

$$(\sqrt{N+n} - \sqrt{N})/\sqrt{N} \sim \frac{1}{2}\sqrt{\frac{n}{N}} = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{E}{CT}} \sim 0.1$$
(2.8)

である。従って、入射 X 線によるゆらぎの影響は小さく、素子の熱力学的なゆらぎが支配的である。 つまり、エネルギー分解能は素子の熱力学的なゆらぎで決まる。

以上をふまえて改めて熱力学のみに基づいて系に固有なカロリメータのエネルギー分解能を求める。素子のエネルギーは分配関数 Z、 $\beta = 1/k_BT$ とすると $\overline{E} = -\partial \ln Z/\partial \beta$ から熱容量は、

$$C = \partial \bar{E} / \partial T \tag{2.9}$$

$$= -\frac{\partial^2 \ln Z}{\partial \beta^2} \frac{\partial \beta}{\partial T} = -\frac{\partial^2 \ln Z}{\partial \beta^2} \frac{1}{k_B T^2}$$
(2.10)

であるから、素子のエネルギーのゆらぎは

$$\left\langle \Delta E^2 \right\rangle = \partial^2 \ln Z / \partial \beta^2$$
 (2.11)

$$= k_B T^2 C \tag{2.12}$$

になる。これから系の熱力学的なゆらぎによるエネルギー分解能 (FWHM) は、

$$\Delta E_{\rm FWHM} = 2.35\sqrt{k_B T^2 C} \tag{2.13}$$

の程度である。式 (2.13)から明らかなように、エネルギー分解能は入射光子のエネルギーに第一近似 では依存しない。一般には、抵抗温度計を用いたカロリメータでは、温度計の感度 α などに依存する 係数 ξ を用いて、

$$\Delta E = 2.35\xi \sqrt{k_B T^2 C} \tag{2.14}$$

となる。いずれにせよ、高いエネルギー分解能を実現するには素子の熱力学的なゆらぎを抑えるため に極低温で動作させる必要がある。

2.2 マグネティックカロリメータの原理と構造

マグネティックカロリメータ (Magnetic Calorimeter) とは、磁性体の磁化の温度変化を温度計とし て用いるマイクロカロリメータである。微小な磁化の変化を SQUID (Superconducting QUamtum Interference Device: 超伝導量子干渉計)を用いて測定することにより、非常によいエネルギー分解能 が実現できる。

MMC の原理は、巨視的に言うとキュリー則に従って変化する常磁性体を一定の磁場の元に置き、 温度変化による磁化の変化 (dM/dT)を測定するということであり、微視的に言うと、磁気モーメ ントを持つ電子スピン系に磁場をかけるとゼーマン効果によって $\epsilon = g\mu_B J_Z H$ の (g: Lande のg因 子、 μ_B : ボーア磁子、 J_Z : 電子の角運動量)エネルギー準位をもつ。エネルギー入射があると、吸



図 2.2: マグネティックカロリメータの概念図

収体の温度が上昇し、その温度変化のために整列していた磁性体金属原子スピンが不整列になり、磁 化が変化する。その磁化の変化を測定するのである。(図 2.2)

実際には、磁性をもつイオンをホストとなる系に希釈して用いることとなり、その熱容量を C_{host} 、 $C_{spin} + C_{host} = C_{total}$ とすると、出力される磁化 Mの変化は、

$$\Delta M = \frac{dM}{dT} \times \Delta T = \frac{dM}{dT} \times \frac{E}{C_{\text{total}}}$$
(2.15)

となり、磁気モーメント mの変化は、全体のモル体積を V とすると、

$$\Delta m = V \frac{dM}{dT} \times \Delta T = V \frac{dM}{dT} \times \frac{E}{C_{\text{total}}}$$
(2.16)

となる。

2.2.1 MC開発の歴史と実績

MC による最初の放射線計測は Bühler & Umlauf (1988)[2] によって、YAG(Yttrium Aluminium Garnet) 結晶に 0.5%のエルビウム (Er) を入れたもので行われた。Er は Y と結晶半径がほぼ等しいた めに、置換が用意であり、数 10%の濃度でいれることも可能である。この実験では、7.5 g のサファイ アを吸収体として、150 mg の YAG 結晶を温度計とし、³He クライオスタットを用いて 0.35 K の環 境化で 30 mT の磁場をかけた。²⁴¹Am からの 5.5 MeV の α 線に対して 65 keV の分解能を得た。読 みだしの SQUID は 4.2 K stage に設置されていた。ここで質量あたりの分解能として 8.7 keV/g が 示されたことにより、ボロメータとしての MC の能力が実証された。MC の材料としては、磁気温度

第2章 マグネティックカロリメータの原理

計にもつかわれる CMN(硝酸セリウムマグネシウム塩) が提示されたこともあるが、Bandlerら [1]が 金属に希釈した Metallic Magnetic Bolometer のアイディアを示し、金に Er をいれた Au:Er 系の開 発がすすめられた。素子に金属を用いているものをメタリックマグネティックカロリメータ (Metallic Magnetic Calorimeter : MMC) と呼ぶ。

現在 MMC の実験を行っているのは Heiderberg 大と Brown 大のチーム [4] が、X 線検出実験では、 5.9 keV の X 線に対して、3.4 eV という非常に良い分解能が達成おり (図 2.3)、また NIST も開発を 行なっていて [10][11]、まだ分解能を議論できるレベルではないものの、イメージングの早期実現を 目指している。

2.3 MMCの利点と問題点

MMCの他のカロリメータに対しての利点と実際の問題点をあげていく。

2.3.1 構造上の利点

まず MCの構造からの利点として、

- 実測する量が熱平衡における統計力学的な量である磁化であるので巨視的な量で考えればよい こと
- また抵抗温度計を用いるカロリメータとは違い、その読み出し系に発熱をおこす箇所がなく、
 温度を非常に低温にまで下げられること
- それに関連して性質上、最低温度まで持っていく配線数が少なくてすみ、熱流入が少ないということ

が上げられる。

2.3.2 非常に高い線形性

MMCの最大の利点は、ダイナミックレンジがひろく、線形性が良いという点である。

上で述べた Heiderberg 大と Brown 大のチームであるが、そこでの γ 線の検出実験では [5]、温度 25 mK、印加磁場 4.7 mT で 122 keV の γ 線に対して分解能は 340 eV(FWHM) である。多数の escape peak が見られ、ゲインは観測のエラー (10⁻⁴ レベル) 内で線形性を保っている (図 2.4)。

2.3.3 MMCのノイズ

マグネティックカロリメータの主なノイズ源としては、熱力学的なゆらぎ、磁気的ジョンソンノイズと SQUID ノイズがある。



図 2.3: Heidrberg-Brown 大の分解能 3.4 eV @ 5.9 keV [8]



図 2.4: Au:Er の信号波高の線形性 [5]

熱力学的なゆらぎ

熱力学的なゆらぎ (RMS) は 2.1 で述べたように全体の熱容量 C でもって $\sqrt{k_BT^2C}$ と表されるが、 これは、熱浴と温度を計測する系が同じタイムスケールでエネルギーのやりとりを行っている場合で ある。実際には、温度を測定しているスピン系は伝導電子系とつながっており、この伝導電子系が熱浴 とつながっている。従って、温度計であるスピン系におけるゆらぎのタイムスケールはスピン系と伝 導電子系との間のタイムスケールである。さらに、本論文で考えている MMC の場合は、スピン系と 伝導電子系との間のゆらぎのタイムスケールは熱浴と伝導電子系の間のゆらぎのタイムスケールより も速い、つまり、全体的なゆらぎよりも速いタイムスケールで温度を計測することができるので、エネ ルギー分解能 (FWHM) は上記の $\sqrt{k_BT^2C}$ よりも小さくできる。温度 50 mK、 $C = 1 \times 10^{-12}$ J/K の場合 RMS で評価すると1 eV 程度になるが、素子のパラメータを最適化することでこの半分以下 に抑えられる。

磁気的ジョンソンノイズ

磁気的ジョンソンノイズは、導体の中の電荷のランダム運動による熱的電流が磁場を生じさせることに起因する。

Gillespie や Harding&Zimmerman ら [9][12] によれば近似的には、半径 r の検出コイルと距離 z に ある厚さ t、電気伝導度 σ の導体による温度 T における磁気的ジョンソン ノイズのカットオフ周波数 とノイズレベル (NEP) は、

$$f_c = \frac{1}{4\mu_0 \sigma zt} \tag{2.17}$$

$$NEP = \left(\frac{\mu_0^2 \sigma k_{\rm B} T t}{8\pi z^2}\right)^{1/2} (\pi r^2)$$
(2.18)

と表される。

この磁気的ジョンソンノイズは、主に磁気センサ自身、吸収体、熱浴等の周囲の金属に起因する。 Enss(2000)[4]の例では、吸収体による寄与が検出コイルの中にある磁気センサよりも大きく支配 的である。現状では、寄与の程度は SQUID ノイズよりも小さいが、SQUID の性能向上と共に素子 のパラメータの最適化に注意しなければならない。

SQUID ノイズ

SQUID ノイズには、SQUID のシャント抵抗で発生するジョンソンノイズと、トンネル接合のショットノイズがある。そのノイズスペクトルは、読み出し系の回路で決まる遮断周波数よりも低い周波数 領域ではほぼ一定であり、ノイズ等価電流 i_n は典型的に、 $0.1 ~ 1 \mu \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ である。詳しくは、 4.2.3 で述べる。

2.3.4 素子製作上の制限:RKKY相互作用

素子の製作に関して、常磁性体を希釈するホストの条件として、信号の立上りはホスト内部での熱 伝導に依存するので、金属または準金属がよい。イオンとしては、4f系が望ましいとされている[4]。 これは RKKY 相互作用 (伝導電子とスピンの相互作用)によって、間接的にスピン同士がカップルす る効果が 3d や 4d 系よりも小さいためである。この効果は互いの距離に依存するために、希釈濃度も 制限される。Enss らによる[4] 計算によれば、Au に Er を 500ppm 入れた場合、RKKY 相互作用に よる出力の低下が 27%である。

2.3.5 読みだし系の問題

測定系の問題として、極低温下で SQUID を用いて測定することで、低ノイズな環境で行なえる反面、その性能が SQUID の性能に依存してしまうということがあげられる。また SQUID に関しては、 その性質上、もともと磁場に弱く、強磁場下で安定した動作を実現する SQUID は、まだまだ開発途 上の段階にあり、これから共同で開発していかなければならない。

加えて、実際に次世代衛星に載せるためには撮像ということが不可欠であれが、まだまだその段階 には世界的にみても到達してはおらず、今後の大きな課題であり、現在の MMC の世界レベルには遅 れはとってはいるものの、我々にとっても大きく開発の余地はある。

2.4 MMCの性能を決めるパラメータ

ここで、実際に MMC の性能を決めるパラメータについて考えていく。

MMC の原理を理解する上で重要な物理量は、磁気モーメントの変化の式である 2.16 を表す化 M、磁気比熱 c_{spin} 、磁化の温度変化率 dM/dT である。それゆえに、本節では、常磁性体におけるこれらの物理量の計算の方法をまとめておく。

エネルギー状態が 2J+1 重に縮退した常磁性体の電子スピン系の磁気モーメント \vec{m} は、軌道角運動量 \vec{L} 、スピン角運動量 \vec{S} 、ボーア磁子 $\vec{\mu}_B$ とし、 $J_z = L_z + S_z$ とすると、

$$\vec{m} = -\vec{\mu}_B(\vec{L} + g_0\vec{S}) = -g\vec{\mu}_B J_z$$
 (2.19)

というエネルギー準位をもち、*g*は Lande の *g* 因子で、

$$\langle \vec{J}\vec{L}\vec{S}J_z | (L_z + g_0 S_z) | \vec{J}\vec{L}\vec{S}J_{z'} \rangle = g(\vec{J}\vec{L}\vec{S})J_z J_{z'} \delta_{J_z J_{z'}}$$

で定義されて、

$$g(\vec{J}\vec{L}\vec{S}) = \frac{1}{2}(g_0+1) - \frac{1}{2}(g_0-1)\frac{L(L+1) - S(S+1)}{L(L+1)} \sim \frac{3}{2} + \frac{1}{2}\frac{L(L+1) - S(S+1)}{L(L+1)}$$
(2.20)

となる。 g_0 は電子g因子と呼ばれるもので、

$$g_0 = 2[1 + \frac{\alpha}{2\pi} + O(\alpha^2) \cdots]$$

= 2.0023

(ただし、 $\alpha = \frac{e^2}{\hbar c} \approx \frac{1}{137}$ で定義する。) この磁気モーメントが磁場 \vec{H} 中におかれた時のエネルギーは、

$$E = -\vec{\mu} \cdot \vec{H} = -g\mu_B J_z H \tag{2.21}$$

である。よって、分配関数 Zは

$$Z = \sum_{J_z=-J}^{J} \exp(-\frac{E}{k_B T})$$

$$= \sum_{J_z=-J}^{J} \exp(\frac{g\mu_B J_z H}{k_B T})$$

$$= \sum_{J_z=-J}^{J} \exp(\gamma \beta H J_z)$$

$$= \frac{\sinh((J + \frac{1}{2})\gamma \beta H)}{\sinh(\frac{\gamma \beta H}{2})}$$
(2.22)

となる。ここで、

$$\beta \equiv \frac{1}{k_B T} \quad , \quad \gamma \equiv g \mu_B \tag{2.23}$$

とおいた。

2.4.1 磁化と磁化率

熱力学関係式から、ヘルムホルツの自由エネルギーを F とすると、

$$Z = \exp(-\beta F) \tag{2.24}$$

となり、磁化 Mは、

$$M = -\frac{\partial F}{\partial H}$$

$$= -\frac{\partial}{\partial H} (-\frac{1}{\beta} \ln Z)$$

$$= \frac{1}{\beta} \frac{d}{dH} \ln \frac{\sinh(\frac{2J+1}{2J}\gamma J\beta H)}{\sinh(\frac{1}{2J}\gamma J\beta H)}$$

$$= \frac{1}{\beta} \frac{d}{dH} \mathcal{B}_{j}(\gamma J\beta H)$$

$$= \gamma J B_{J}(\gamma J\beta H)$$

$$= g \mu_{B} J B_{J}(g \mu_{B} J H/k_{B} T) \qquad (2.25)$$

となり、 B_J は Brillouin(ブリュアン) 関数であり、

$$B_{J}(x) = \frac{d}{dx} \ln(\frac{\sinh \frac{2J+1}{2J}x}{\sinh \frac{1}{2J}x})$$

$$= \frac{d}{dx} [\ln(\sinh \frac{2J+1}{2J}x) - \ln(\sinh \frac{1}{2J}x)]$$

$$= \frac{2J+1}{2J} \frac{\cosh(\frac{2J+1}{2J}x)}{\sinh(\frac{2J+1}{2J}x)} - \frac{1}{2J} \frac{\cosh(\frac{1}{2J}x)}{\sinh(\frac{1}{2J}x)}$$

$$= \frac{2J+1}{2J} \coth(\frac{2J+1}{2J}x) - \frac{1}{2J} \coth(\frac{1}{2J}x)$$
(2.26)

と定義される。 $(\frac{d}{dx}\sinh x = \cosh x, \coth x = \frac{\cosh x}{\sinh x}$ より) ここで、分配関数からでてくる微分すれば B_J となるものを便宜上 \mathcal{B}_J とし、 $B_J(x) \equiv \frac{d}{dx}\mathcal{B}_J(x)$ と書 くことにする。すなわち、

$$\mathcal{B}_J(x) = \ln\left(\frac{\sinh\frac{2J+1}{2J}x}{\sinh\frac{1}{2J}x}\right)$$
$$= \ln\left(\sinh\frac{2J+1}{2J}x\right) - \ln\left(\sinh\frac{1}{2J}x\right)$$
(2.27)

また $b_J(x) \equiv \frac{d}{dx} B_J$ とすると $\frac{d}{dx} \operatorname{coth} x = \operatorname{cosech}^2 x = \sinh^{-2} x$ より

$$b_J = \frac{d}{dx} B_J(x) = (\frac{2J+1}{2J})^2 \operatorname{cosech}^2(\frac{2J+1}{2J}x) - (\frac{1}{2J})^2 \operatorname{cosech}^2(\frac{1}{2J}x)$$

 $x \ll 1$ の時、

$$B_J(x) \sim \frac{J+1}{3J}x - \frac{1}{45}\frac{(J+1)\{(J+1)^2 + J^2\}}{2J^3}x^3...$$

 $x \to \infty$ の時、

$$\lim_{x \to \infty} B_J(x) = 1$$

 $J = 1/2 \mathcal{O}$ 時、 $\sinh(2x) = 2\sinh x \cosh x$, $\cosh(2x) = 2\cosh^2(x) - 1$ より、

$$B_{1/2}(x) = \tanh(x)$$
$$\mathcal{B}_{1/2}(x) = \ln(e^x + e^{-x})$$
$$b_{1/2}(x) = \operatorname{sech}^2(x) = \cosh^{-2}(x)$$

磁化率 χ は、

$$\chi = \frac{\partial M}{\partial H}$$

= $(\gamma J)^2 \beta b_J (\gamma J \beta H)$
= $(\gamma J)^2 \beta [-(\frac{2J+1}{2J})^2 \operatorname{cosech}^2(\frac{2J+1}{2J}\gamma J \beta H) + (\frac{1}{2J})^2 \operatorname{cosech}^2(\frac{1}{2J}\gamma J \beta H)]$ (2.28)

となる。

 $\gamma J\beta H \ll 1(T$ 大またはH小)では、キュリー定数を C_{Curie} として、

$$M \sim \gamma J \frac{J+1}{3J} \gamma J \beta H$$

$$= \frac{J(J+1)}{3k_B T} (g\mu_B)^2 H$$

$$\chi = \frac{J(J+1)}{3k_B T} (g\mu_B)^2$$

$$= \frac{p^2 \mu_B^2}{3k_B T}$$

$$= C_{\text{Curie}}/T$$
(2.30)

となり、キュリー則が成り立つ。ここで $p=\sqrt{g^2J(J+1)}$ は有効ボーア磁子である。
 $J{=}1/2$ では、

$$M = \frac{1}{2}g\mu_B \tanh(\frac{g\mu_B H}{2k_B T}) \tag{2.31}$$

となる。

2.4.2 エントロピー

同様に、熱力学関係式からエントロピー Sは、

$$S = k_B \beta^2 \frac{\partial F}{\partial \beta}$$

= $k_B \beta^2 [\frac{\partial}{\partial \beta} (-\frac{1}{\beta} \ln Z)]$
= $k_B \beta^2 [\frac{1}{\beta^2} \ln Z - \frac{1}{\beta} \frac{\partial}{\partial \beta} \ln Z]$
= $k_B [\ln Z - \beta \frac{d}{d\beta} \ln \frac{\sinh(\frac{2J+1}{2J}\gamma J\beta H)}{\sinh(\frac{1}{2J}\gamma J\beta H)}]$

$$= k_{B} \left[\ln Z - \gamma J \beta H B_{J}(\gamma J \beta H) \right]$$

$$= k_{B} \left[\ln \frac{\sinh(\frac{2J+1}{2J}\gamma J \beta H)}{\sinh(\frac{1}{2J}\gamma J \beta H)} - \gamma J \beta H B_{J}(\gamma J \beta H) \right]$$

$$= k_{B} \left[\mathcal{B}_{J}(\gamma J \beta H) - \gamma J \beta H B_{J}(\gamma J \beta H) \right]$$
(2.32)

となり、J=1/2では、

$$S = k_B [\ln(e^{\gamma J\beta H} + e^{-\gamma J\beta H}) - \gamma J\beta H \tanh(\gamma J\beta H)]$$

= $-k_B [X \tanh X - \ln(e^X + e^{-X})]$ (2.33)

であり、ここで、
$$\gamma J\beta H = \frac{g\mu_B H}{2k_B T} = X$$
とした。
 $\gamma J\beta H \rightarrow 0(T$ 大) では $\lim_{x \rightarrow 0} \sinh x = 2x$ より、

$$S = k_B \ln(2J + 1) \tag{2.34}$$

である。

2.4.3 比熱

常磁性体のスピンの比熱を cspin とすると、

$$c_{\rm spin} = -\beta \left(\frac{\partial S}{\partial \beta}\right)$$

$$= -\beta \frac{\partial}{\partial \beta} [k_B (\mathcal{B}_J (\gamma J\beta H) - \gamma J\beta H B_J (\gamma J\beta H))]$$

$$= -k_B \beta [(\gamma J H) B_J (\gamma J\beta H) - (\gamma J H) B_J (\gamma J\beta H) - (\gamma J\beta H) (\gamma J H) b_J (\gamma J\beta H)]$$

$$= k_B (\gamma J\beta H)^2 b_J (\gamma J\beta H)$$

$$= k_B (\gamma J\beta H)^2 [(\frac{2J+1}{2J})^2 \operatorname{cosech}^2 (\frac{2J+1}{2J} \gamma J\beta H) - (\frac{1}{2J})^2 \operatorname{cosech}^2 (\frac{1}{2J} \gamma J\beta H)]$$

$$= \frac{H^2}{T} \chi \qquad (2.35)$$

となり、 $J=1/2\,{\rm O}$ 時 $\gamma J\beta H=\frac{g\mu_BH}{2k_BT}=X$ とすると、

$$c_{\rm spin} = k_B X^2 {\rm sech}^2 X \tag{2.36}$$

$$\frac{dc_{\rm spin}}{dT} = \frac{dX}{dT} \frac{dc_{\rm spin}}{dX}
= -\frac{2k_B}{T} X \frac{X}{\cosh^2 X} (1 - X \tanh X)$$
(2.37)

である。よって、 $\frac{dc_{spin}}{dT} = 0$ となる比熱のピークは $X \tanh X = 1$ となる $X \equiv \frac{g\mu_B H}{2k_B T} \sim 1.2$ のあたりであり、図 2.5 のように、ショットキー型となる。

実際に 2J+1 重の準位のうち、基底状態の 2 準位のみ使うので、ここで J = 1/2 としておいて問題はない。例として、 Er^{3+} は J = 15/2 であり、2J+1 = 16 準位あるが基底状態の次の励起状態は温

度にして 15 K 程度高いために、二準位系とみなせる。この時の比熱は、図 2.5 に示したようにショットキー型比熱になる。これは、比熱 (c = dE/dT) はエネルギーのゆらぎを表す量であることを基に考えると、その物理的な意味としては、温度が準位間隔より十分低い場合 ($k_BT \ll \gamma J\beta H$) には、系はほぼ下の準位にあるが、温度が準位間隔と同程度 ($k_BT \sim \gamma J\beta H$) になると、上の準位に励起される確率が増し、エネルギーは大きくゆらぐようになり、さらに、温度十分高くい場合 ($k_BT \gg \gamma J\beta H$) には、状態は上下の準位にほぼ等確率で分布するということである。よって、比熱はエネルギーの出入り (励起) が激しいときに大きくなる。まさに、比熱はエネルギー準位の構造をよく反映しているのである。



図 2.5: 温度と比熱の関係:ショットキー型

2.4.4 磁化の温度変化

ここで磁化の温度変化 $\frac{dM}{dT}$ は、

$$\frac{dM}{dT} = \frac{d\beta}{dT} \frac{dM}{d\beta}
= -k_B \beta^2 (\gamma J) (\gamma J H) b_J (\gamma J \beta H)
= -k_B (\gamma J \beta)^2 H b_J (\gamma J \beta H)$$
(2.38)
$$= -\frac{c_{\text{spin}}}{H}$$
(2.39)

と表すことができる。

また、内部エネルギーU = -MHを温度Tで微分すると、

$$\frac{dU}{dT} = c_{\rm spin} = -\frac{dM}{dT}H$$

となることから、上と同様に

$$\frac{dM}{dT} = -\frac{c_{\rm spin}}{H}$$

| プランク定数 | $h = 6.626176 \times 10^{-34}$ | [Js] |
|---------|--|-----------------------|
| | $\hbar = 1.045472 \times 10^{-34}$ | [Js] |
| 電子の質量 | $m_e = 9.109389 \times 10^{-31}$ | [kg] |
| 電荷素量 | $e = 1.6021892 \times 10^{-19}$ | [C] |
| ボルツマン定数 | $k_B = 1.380662 \times 10^{-23}$ | [J/K] |
| アボガドロ数 | $N_{\rm A} = 6.022045 \times 10^{23}$ | $[\mathrm{mol}^{-1}]$ |
| ボーア磁子 | $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} = 9.2740154 \times 10^{24}$ | [J/T] |
| 磁束量子 | $\phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.0678 \times 10^{-15}$ | $[\mathrm{Tm}^2]$ |

表 2.1: 基礎物理定数

とすることができ、磁化の温度変化は、スピン系の比熱と磁場から決まることがわかる。

2.4.5 素子のパラメータを決める関係式

上で求めた基本的な統計量を用いて、原理から製作する素子のパラメータを決定する関係を考察する。上でみてきたように、MCは、素子の磁化の温度変化 $\frac{dM}{dT}$ を実際には磁気モーメント m の変化でみるので、この量をカロリメータに特徴的な量である比熱 c で表すことを考える。そうすると、式 2.16 と 2.39 から、

$$\Delta m = V \frac{dM}{dT} \times \Delta T = V \frac{dM}{dT} \times \frac{E}{C_{\text{total}}}$$
$$= -\frac{C_{\text{spin}}}{H} \times \frac{E}{C_{\text{total}}}$$
$$= -\frac{E}{H} \times \frac{C_{\text{spin}}}{C_{\text{spin}} + C_{\text{host}}}$$
(2.40)

であり、

$$V\frac{dM}{dT} = V \times \frac{-c_{\rm spin}}{H} = -\frac{C_{\rm spin}}{H}$$
(2.41)

と、熱容量と磁場で表すことができる。

2.5 典型的なパラメータ

典型的な値を入れて、実際に測定する値を検証する。

基礎物理定数

今回使用するものを表 2.1 にまとめておく。

2.5.1 典型的なパラメータ依存性

ここで、Au:Er 素子の g(ランデの g 因子)の値を 6.8 とする。まず、金のモル体積 V_m を求めると、

$$V_{\rm m} = \frac{\left(4.07825 \times 10^{-10}\right)^3}{4} \times N_{\rm A} \quad [{\rm m}^3/{\rm mol}] \tag{2.42}$$

となる。

金の比熱 c_{Au} は温度 T[K]の関数として、電子比熱と格子比熱の足し合わせにより、

$$c_{\rm Au}(T) = 6.7582 \times 10 \times T + 4.2443 \times 10 \times T^3 \, [{\rm J/K/m^3}]$$
 (2.43)

とかける。

エルビウムのスピン系の磁気比熱 c_{spin} は、エルビウムの濃度 ppm と磁場 B[T]、温度 T[K]の関数 として、

$$c_{\rm spin}(\rm ppm, B, T) = \frac{k_B(\rm ppm \times 10^{-6})N_A}{V_m} \times \frac{g\mu_B B}{2k_B T \cosh(\frac{g\mu_B B}{2k_B T})^2} \quad [\rm J/K/m^3]$$
(2.44)

となる。

エネルギー E[eV]の入射によって、ピックアップコイルの感じる磁束の変化 $\Delta \Phi_{pickup}$ は、ピック アップコイルの半径を r[m] とすると、

$$\Delta\Phi_{\text{pickup}}(\text{ppm}, B, T, r, E) = \frac{E\mu_0}{(1 + \frac{c_{\text{Au}}(T)}{c_{\text{spin}}(\text{ppm}, B, T)})Br}$$
(2.45)

とすることができる。

第3章 Au:Er素子の製作と評価

本章では、マグネティックカロリメータのセンサーとして利用する金 (Au) とエルビウム (Er) の特性 と Au:Er 素子の製作過程とその評価について述べる。

3.1 素子に使用する元素の選定

常磁性体イオンを希釈するホストとしては、信号の立上り(つまり熱拡散)はホスト内部の熱伝導 に依存するので金属または準金属がよい。さらに、熱化の早いこと(熱平衡に達するのがはやいこと) を考えても、金属または準金属が望ましい。また、常磁性体イオンとしては、4f系が望ましいとされ ている[4]。これはRKKY相互作用(伝導電子とスピンの相互作用)によって、間接的にスピン同士が カップルする効果が3dや4d系よりも小さいからである。この効果は互いの距離に依存するために、 希釈濃度も制限される。Enss らによる[4]計算によれば、金(Au)にエルビウム(Er)を500ppm入れ た場合、RKKY相互作用による出力の低下が27%であるという報告がある。そこで現在文献も豊富 で、最も良く使われていて実績もある[4]、Au:Er系の素子を製作することとする。また素子として、 Au:Erの他にもAg:Er、Bi₂Te₃:ErやPbTe:Erなどといったものも候補になりえる[7]。金(Au)とエ ルビウム(Er)の基礎的データ(理科年表[32]、株式会社ニラコのカタログより)を表3.1にまとめる。

| | Au | Er |
|--------------------------------|--|--|
| 原子番号 | 79 | 68 |
| 原子量 | 196.966 | 167.26 |
| 密度 [g/cm ³] | 19.3 | 9.066 |
| 融点 [K] | 1337 | 1802 |
| 格子定数 a [×10 ⁻¹⁰ m] | a = 4.07825 | α -Er(h.c.p) $a = 3.5588$, β -Er(b.c.c) $a = 3.94$ |
| 結晶構造 | f.c.c | ただし、 $T(\alpha \rightarrow \beta) = 1640 [K]$ |
| モル体積 [cm ³ /mol] | 10.19 | 18.44 |
| 基底状態の電子配置 | $[{\rm Xe}]4{\rm f}^{14}5{\rm d}^{10}6{\rm s}^{1}$ | $[Xe]4f^{12}6s^2$ |
| 価数 | 3^{+} | $3^+($ [Xe] $4f^{11}5s^2$) |
| 電子比熱計数 $\gamma[J/mol/K^2]$ | 0.689×10^{-3} | 8.7×10^{-3} |
| デバイ温度 [K] | 165 | 176.9 |

表 3.1: 金 (Au) とエルビウム (Erbium:Er) の基礎的なデータ

原料は株式会社ニラコから、金は厚さ0.05 mm で純度99.95 %のものを、エルビウムは厚さ0.025 mm
で純度 99.99 %のものを購入した。ただし金に含まれる不純物については、その中に磁性をもつもの は含まないという回答を得ている。

3.1.1 エルビウム (Er) の特性

エルビウム (Er) 元素は、希土類イオンに属し、そこでは 3 価イオンの化学的性質は非常によく似ている。それは、最外殻の電子配置が中性キセノンと同じであるからである。また、エネルギー準位が (2J+1)に縮退した原子には、常磁性の性質がみられ、この縮退は磁場を印加することによって分離することができる。また、系の高いエネルギーからの影響は無視される。

Er は、希少な元素であり、その電子配置は 3.1 でも示した通り [Xe]4f¹²6s² で 3 価のイオンとなる。 全角運動量の量子数 J = 15/2 で、16 個のエネルギー準位をもつ。今、考えるのは基底状態で磁場を かけることによりスプリットした二準位系を考える。エルビウムのその上の準位は 15 K も高いとこ ろにあるので、今は全く問題にならない。(図 3.1)



図 3.1: 磁場とエネルギー準位の関係

3.2 Au:Er 素子の製作

3.2.1 装置

金とエルビウムの熔融は、サーモ理工の赤外線加熱装置 (図 3.2) と真空チェンバー (図 3.3) を用い て加熱を行なった。真空チェンバーはチェンバー内径 40 cm 、高さ 30 cm の円筒状のチェンバーで、 ターボポンプで~10⁻⁵torr 程度まで引く。ターボポンプはバルザース 230 l/s である。クイックカッ プリングを用いてチェンバーと接続した。ポンプ直後と、チェンバー直前に電離真空計が取り付けて ある。チェンバー円筒の上面に VG 160 フランジがあり、そこにサーモ理工社製の赤外線導入加熱器 を取り付けた。赤外線加熱器は、約 800 W のランプとランプからの光を収束させる反射鏡、真空中 に光を導入する直径 2cm の石英棒からなる。ランプは 100 V で、最大 8.2 A の電流を流せるので最 大 820 W となる。操作は、コントローラーのノブと電流計を用いて手動で行う。ランプの光は、金 蒸着した楕円反射鏡で石英棒の上面に収束され、石英棒を通って先端にある材料を加熱する。石英棒 は O リングで真空を破らないようにチェンバーに導入されている。先端には、石英棒表面を保護す るキャップが取り付けてある。材料の熱容量、台の熱伝導率にもよるが 1300 °C 程度まで材料を加熱 できる。熱で反射鏡を焼き焦がさない様に、反射鏡には冷却水を循環させる。また、冷却水が急に止 まった時に反射鏡保護のためランプを自動的に切断する水流スイッチが設置してある。フランジと加 熱器の間に運動導入のフランジがあり、加熱器と試料の位置 (間隔)を微調整できる。

試料の熔融のセッティングは、熱伝導の少ないと考えられる pyrex ビーカ (50 ml) の上にアルミナの皿¹(耐熱 1500 °C) を乗せ、その皿中の中心に Er と Au を置き、上には蓋兼シールドとして透明石 英板 (厚さ 3 mm)を載せてある。

シースに入った熱電対を試料台に接するように配置して温度を測れるようにした。熱電対は長さ 10 cm の白金シースに入った R タイプの物で、0~1700 °C 位までの温度範囲に対応する。熱電対か らの読み出しはクイックカップリングに D-Sub 9pin コネクタを取り付け、そこから Multi Channel Analyzer へ繋いだ。Multi Channel Analyzer は GPIB を経由して LAN からコントロールした。ま た、銅板の温度も同時に測れるように試料台を乗せる銅板の裏面には白金温度抵抗 (100 Ω)を張り付 け、四端子法でモニターした。

3.2.2 素子製作

金とエルビウムの赤外線加熱装置による加熱はどれも 8.2 A で 1 時間行なった。熔融回数は、素子 によっては数度行なっている。表 3.2 にあるような量で一度熔融を行ない、そこに金箔のみを足して 濃度を調整するという方法をとっている。

| | 大きさ | 重さ |
|-------------|--|--------------------|
| Er | $1.0~\times~<~0.5~\times~0.0374~\mathrm{mm}$ | $< 0.00017 { m g}$ |
| Au 箔 | $5.0~\times~5.0~\times~0.050~\mathrm{mm}$ | 0.049 g |

| 表 | 3.2: | 熔融前の典型的な試料の量 | 를 |
|----|------|--------------|---|
| 23 | 0.2. | | 1 |

¹実は小さいアルミナるつぼの蓋である。今後の notation は皿。

第3章 Au:Er素子の製作と評価





図 3.3: 赤外線加熱器の内部と加熱台

図 3.2: 赤外線加熱器

3.3 製作した素子の評価

製作したいくつかの素子をrf-SQUID で磁化測定し、そのデータをもとに、素子のパラメータを決定した。素子の中に磁性をもった不純物がないかを確かめ、また熔融した効果を評価するために金のみの測定も行なった。

3.3.1 都立大共用 rf-SQUID 装置

製作した素子の評価には、都立大共用の QUAMTUM DESIGN 社の MPMS(Magnetic Property Measurement System) という rf-SQUID 装置を用いた。rf-SQUID 装置 (図 3.4、3.5) は、筒状の試料 室の中心あたりに試料を置き、SQUID のインプットである検出コイルを筒に沿って走査させること で磁化を測定する。試料の配置された部分は試料の磁化によって SQUID に磁束の変化が検出され、1回走査するごとにピークをもった磁束変化の曲線が得られる。この曲線を理想的な試料による磁束 の変化曲線でフィッティングして、磁化を決めている。測定は一点で数回の走査をして、曲線の平均 をフィットするようになっている。

試料はプラスチック製のストローに固定している。このストローの磁化は、測定で検出されない。 ストローはコイルの走査方向と平行なので磁化の変化が無く、ストローの磁化は考えなくてよいから である。カタログスペックでは、~10⁻⁸ emu まで感度があるそうだが、試料がすくなくともトータ ル~10⁻⁴ emu 程度の磁化を持っていた方が良いとも記してあった。

第3章 Au:Er素子の製作と評価





図 3.4: 都立大共用 rf-SQUID 装置

図 3.5: rf-SQUID の試量挿入部

3.3.2 データのフィッティング

rf-SQUID 装置によって測定した磁気モーメント m(磁化ではない)を

$$m(N \times 10^{18}, g, F, T) = \frac{1}{2}gN\mu_B \tanh(\frac{g\mu_B F}{k_B T})$$

でフィッティングすることで、磁性体の原子数 N と比例定数 g を求めた。F が外場の大きさ (gauss)、 N が磁性体の原子数を ×10¹⁸ 個単位で表し、T は温度 (K) である。設定値は、印加外場、温度であ り、測定値は磁気モーメントである。磁気モーメントのエラーを考慮してフィッティングを行なった。

3.3.3 Au 箔の測定とデータのフィット

最初に、rf-SQUID 装置で熔融前の Au 箔の磁化と外からかける磁場の関係を測定した結果が図 3.6 である。横軸は外場で単位は ×1000 Gauss である。縦軸が Au の磁化で単位は emu である。Au の みでは 0~ 0.5 T で正の磁化、それより強い磁場では弱い負の磁化になった。

図 3.6 にはデータを単純に N-tupple の polynominal 関数を利用して 1 次関数でフィットした結果 も重ねて図示してある。1 次関数フィットの結果は、低磁場での正の磁化の影響で、明らかにデータ よりもモデルの傾きが小さい。得られた傾きは -0.2809×10^{-8} で、y 切片は 0.4286×10^{-5} になっ た。単純に傾きと Au 試料の重量から磁化率 χ_{Au} を求めると、 -2.206×10^{-5} [mol⁻¹] となった。

金属の磁化は、3 つの帯磁率 Pauli 常磁性帯磁率 χ_p と、Landau 反磁性帯磁率 χ_d 、閉殻構造の金属イオンによる反磁性帯磁率 χ_{ion} の和

$$\chi = \chi_p + \chi_d + \chi_{ion}$$

のようになる [33]。Pauli 常磁性は伝導電子による常磁性で

$$\chi_p = \frac{3}{2} \frac{n_e \ \mu_B^2}{k_B \ T_F}$$



図 3.6: Au 箔の磁化

のように表され、実は温度に依らない。 T_F は Fermi 温度である。Landau 反磁性も伝導電子による 磁性で、Pauli 常磁性帯磁率 χ_p の $-\frac{1}{3}$ 倍の大きさをもつので温度に依らない。金属イオンによる磁 性は、電子の軌道運動が磁場によって歳差運動になることから生ずる。閉殻構造の原子やイオンはこ の反磁性のみを示す。この反磁性の磁気モーメントは原子一個について、

$$\mu = -\frac{Ze^2 \langle r^2 \rangle}{6m_e c^2} H$$

のように表される。< r² > は原子内の電子の原子核からの距離の平均である。このような直感的に は解りにくい式で、さらに比較できるようなデータも載っていないため直接の比較は出来ない。しか し温度に依らず、一定と考えてよさそうである。

以上から (閉殻の) 金属の磁性すべての磁性は温度に依存しないので、4K での測定値は常温での データと一致すると考えられる。

Au の電子配置は、{[Xe]4f¹⁴5d¹⁰}6s [32] のようになっており、6s 電子が一個スピンを持っている。 しかし、結晶の状態ではこの s 電子は伝導電子になってしまっているので、普通の常磁性に寄与する 電子はなく、閉殻の金属イオンになっている。上の閉殻イオンと伝導電子の帯磁率に対する式が適用 でき、帯磁率は温度に依らない。

以上から、Au は反磁性を示し、外場と帯磁率の関係は負の傾きをもった直線になる。しかし図 3.6 は明らかに直線からずれており、外場が弱いところでは磁化が正の値をとり、外場が強くなるにつれ て負に転じている。

このような曲線になる理由としては、Au に含まれる不純物が考えられる。図 3.6 では 0.25 T 程度の途中で傾きが負になっている事は、Au 以外の磁化は飽和していると考えればよさそうである。

そこで、強磁場では Au の磁化のみが効いていると考え、傾きが一定になったように見える点のみに 限ってフィットを行なって見た。図 3.7が、外部磁場が 1.5 T から 4 T までにしぼってフィットした結

第3章 Au:Er素子の製作と評価



図 3.7: Au 箔 fit polynomial (1.5T-4T)



果を表している。フィットで得られた、傾きから帯磁率 [emu/mol] を計算すると (傾き [emu/Gauss] / 重量 [g] × 質量数 [g/mol])、

 $-0.3847 \times 10^{-8} \times 196.9 / 0.025 = -3.03 \times 10^{-5}$

となり、文献の値と近くなる。

| | $\chi_{ m Au}$ | g | N 個 |
|---------------------|-----------------------|-------|---------------------|
| polynominal(all) | -2.206×10^{-5} | | |
| polynominal(1.5-4T) | -3.03×10^{-5} | | |
| polynomial + tanh | -2.70×10^{-5} | 116.9 | 3.73×10^{13} |

表 3.3: Au の帯磁率:フィット毎のまとめ

さらに、model を、"1次関数 (polynominal) + tanh" にしてフィットした。これは金属の反磁性 + 常磁性体 に対応している。わずかに常磁性体が含まれていれば、低磁場では常磁性体の磁化が強く、 強磁場では常磁性体の磁化は飽和して反磁性のみになると考えたからである。図 3.8 がフィットした 結果で、モデルの曲線はデータに良く合って見える。 $\chi = -2.70 \times 10^{-5}$ と帯磁率の値は株式会社ニラ コの資料では、 -2.79×10^{-5} [g/mol] であるので、これと最も近くなるが、不純物として g = 116.9という磁性体が必要になる。この不純物の磁性体の量は (当然) 非常に少量で、 0.5×10^{-10} mol 程度 である。

表 3.3 に 3 つのフィット結果をまとめておく。結果として、Au は 4K でも基本的には文献値の帯 磁率を持つ。

3.3.4 Au:Er 素子の測定とデータのフィット

Auのフィットが1次関数+tanhでよくあうので、Au:Er素子のデータも同じ1次関数 + tanh という関数でフィットしていく。

また問題となるのが、ErがAuに均一に融けるのかということであるが、このことを調べるために 素子をいくつかに分割し、各々をrf-SQUIDによって測定することにより、その均一性についても議 論する。

これまでに製作した素子についてそれぞれ、1次関数 + tanh という関数でフィットした。ここで は、実際に使用した。#34素子についてのフィット結果を示す。#34素子は、元々#29素子から鋏で 分割したものであり、同時に分割したものも rf-SQUID 装置で測定することにより、濃度の均一性も 考えることとする。

図 3.10 は#29 を分割した各素子の Er の濃度の比較で、横軸に分割後の素子の番号、縦軸に濃度 (ppm) がとってある。図中の横線は分割する前の#29 の濃度の値である。分割後の素子のデータか らフィットして得られた Er の原子数の合計は、2.37×10¹⁸ [個] であり、また#29 単体から得られた Er 原子数は 2.4461×10¹⁸ [個] で、分割後の合計とほぼ一致する。

図 3.11 が、分割後の濃度のヒストグラムになる。#29 と#35 の間に 2 倍以上の差がある。しかし、表 3.3.4を見ると、#29 の g は 9 個の素子の中でも最も小さい値である。g と Er の原子数 N は反比例の傾向にあるので、濃度のばらつきは小さくなる可能性がある。特に突出して濃度の大きい素子は無いので、どこかに Er の大きな塊があるなどして Er が集中しているような事はなく Er 小片はAu の中に融け込んでいると考えられる。

そして、#34 素子についてフィッテイングをおこなったものが、図 3.12 であり、同時に分割した もののパラメータを表 3.3.4 につける。分割したものの典型的な寸法は、~ 1.5×~ 1.5 mm である。



図 3.9: #29 の分割



図 3.10: #29 分割後の ppm の比較

第3章 Au:Er素子の製作と評価



図 3.12: #34 素子

| #No. | 重さ[g] | ppm | g |
|-----------|-------|------|--------|
| #29 | 0.162 | 4228 | 5.0700 |
| #29v2(29) | 0.018 | 6659 | 5.1248 |
| #30(29) | 0.019 | 4972 | 5.2152 |
| #31(29) | 0.019 | 4050 | 5.2847 |
| #32(29) | 0.014 | 4499 | 5.3469 |
| #33(29) | 0.012 | 3472 | 5.3413 |
| #34(29) | 0.017 | 2911 | 5.4414 |
| #35(29) | 0.024 | 2357 | 5.4249 |
| #36(29) | 0.016 | 2971 | 5.3283 |
| #37(29) | 0.023 | 4735 | 5.2425 |

表 3.4: 素子のパラメータ

第4章 今回の実験装置と予想される出力

マグネティックカロリメータの特性評価及びX線照射実験は、東京都立大学(TMU: Tokyo Metropolitan University)にて行った。マグネティックカロリメータの微小な磁束(電流)変化の読み出しには、dc-SQUID(超伝導量子干渉計)を用いている。dc-SQUIDを使用する理由として、感度の高い磁束計であり、かつ低ノイズという2つの条件を満たしていることがあげられ、また極低温で動作できるということも大きな利点である。

この4章では、使用した実験装置について簡単にふれ、実際の測定でのセットアップ、測定環境 について説明する([17]、[18]も参照のこと)。

4.1 冷却系

カロリメータの性能を引き出すには、極低温で動作させることが必須であり、~100 mK 以下の冷 凍能力をもつ冷凍機が必要である。この冷凍機として、東京都立大学では希釈冷凍機を使用した。希 釈冷凍機は、冷却能力が大きく、液体 He がなくならない限り一定の温度を保ち続けることが可能で ある。

以下では、実際に用いた冷凍機について簡単に説明する。

4.1.1 希釈冷凍機

 3 He-⁴He 希釈冷凍機の冷却は、液体 3 He と液体 4 He と の混合希釈によってなされる。He³-He⁴ 混液は、超流動性を示さない He³ 含量の多い I 相と超流動性を示す He³ 含量の少ない II 相とに分離 する。冷却は、I 相と II 相 中の 3 He のエンタルピーの違いを利用するもので、I 相から II 相へ 3 He が混入するときに吸熱がおこる [29]。

都立大にて使用した希釈冷凍機は、OXFORD Kelvinox25 型希釈冷凍機であり、高さ 124 cm、直 径 39.4 cm の円柱形をしている。(図 4.1) この希釈冷凍器の模式図を 図 4.2 に示す。液体 He を 50 *l* 使用することにより約 50 時間連続で循環運転が可能である。冷却能力は ~ 25 μW、最低到達温度 は、~60 mK である。

図 4.3 に IVC (Inner Vacuum Chamber) の内部構造の概略図を示す。IVC 内部は ~ 10^{-5} Torr まで真空引きされ、カロリメータと SQUID はこの中に組み込まれる。1K pot と呼んでいる箇所は 液体 He の減圧によって冷却されるが、本実験においては実際には1Kまで到達はせず、典型的な温 度として 1.5 K である。SQUID 本体は Nb シールドに両面テープではり、その Nb シールドをネジ によって、1 K pot により冷却された 1K ステージにある接触させている。メタリックマグネティッ



図 4.1: 都立大希釈冷凍機



図 4.2: 希釈冷凍機の内部模式図



図 4.3: IVC 内部の構造

クカロリメータは、最も良く冷却される場所の E/P (Experimental Plate) に台座として渡した真鍮 台に接着されている。台座には E/P の温度ゆらぎがカロリメータに直接伝わらないよう、冷凍機の ゆらぎのタイムスケールよりも遅く、さらに、典型的な MMC の時定数と比べて十分遅くなるように 熱伝導度が銅より悪い真鍮を選んだ。M/C (Mixing Chamber) と 1 K pot、 E/P には、酸化ルテ ニウム (RuO₂) 温度計が取り付けられている。E/P の温度制御には Picowatto 社 AVS47 Resistance Bridge/TS-530 Temperature Controller を用いて M/C のヒーターに流す電流値を制御することで 行っており、 ~ 0.1 mK の安定度で制御することが可能である。

希釈冷凍機内部の配線は外部との熱接触を抑えるために、熱伝導度が悪く径の小さいマンガニン線 を用いている。これらの配線はノイズ対策として信号往復のペア同士 2 本づつツイストしており、4 ポート各 12 対の配線が使用可能となっている。それぞれの配線の往復での抵抗値は、希釈冷凍機の 大きさの都合上、配線を長く取らなければならないために、常温で $\sim 230 \Omega$ 、冷却実験中において は温度 ≤ 4 K で $\sim 180 \Omega$ と大きいものである。

4.1.2 印加磁場のための機構

印加磁場のために使用するコイルは IVC の外側に巻かれていて、1 A で 10 mT の磁場がかかることになっている。また、この配線の抵抗は、 $\sim 1 \Omega$ である。

4.2 SQUID : Superconducting QUantum Interference Device

4.2.1 dc-SQUID の原理

SQUID (Superconducting QUantum Interference Device:超伝導量子干渉計)とは、超伝導の量 子性を利用した装置であり、使用する dc-SQUID は2つのジョセフソン (Josephson) 接合部から成る 超伝導リングを利用している。簡単に説明すると、2つのジョセフソン接合部で磁束が量子化され、 その両端に周期的な電圧が現われる。この電圧差を SQUID の横にインプットコイルを置くことで、 電流変化としてよみだすことになる。SQUID は、超伝導リングを使用しているために極低温下で使 用することができ、カロリメータのすぐ近くに置けるので、他のよみだし装置よりも配線からの余分 な熱流入やノイズを減らすことができる。

図 4.4 のように二つの超伝導体 A と B が二つのジョセフソン 接合 1 と 2 を介してつながっている場合を考える。二つの接合が同じ強さであるとするとそれぞれの接合に流れるジョセフソン電流は、

$$I_i = I_0 \sin(\theta_{iB} - \theta_{iA}) = I_0 \sin(\Delta \theta_i) \quad (i = 1, 2)$$

$$(4.1)$$

ループにかけるバイアス電流 *I_B* とすると、

$$I_B = I_1 + I_2$$
 (4.2)

超伝導体の中に積分路AとBをとって(図4.4参照)

$$(\theta_{1A} - \theta_{1B}) + (\theta_{2B} - \theta_{2A}) = \Delta \theta_2 - \Delta \theta_1 = 2\pi \frac{\Phi_{\text{ext}}}{\Phi_0}$$

$$(4.3)$$



☑ 4.4: dc-SQUID

ループの中の磁束 Φ は、印加磁場 Φ_{ext} 、ループの自己インダクタンス L とループの循環電流 J を用いて

$$\Phi = \Phi_{\text{ext}} + LJ \quad (2J = I_1 - I_2) \tag{4.4}$$

とかける。簡単のためLが0のときを考える。式(4.1)-(4.4)より、 I_B は次のように書ける。

$$I_B = 2I_0 \cos\left(\pi \frac{\Phi_{\text{ext}}}{\Phi_0}\right) \sin\left(\Delta \theta_i + \pi \frac{\Phi_{\text{ext}}}{\Phi_0}\right)$$
(4.5)

ゆえに AB 間の全超伝導電流の最大値である臨界電流 I_c は Φ_{ext} の関数として

$$I_{\rm c} = 2I_0 \left| \cos \left(\pi \frac{\Phi_{\rm ext}}{\Phi_0} \right) \right| \tag{4.6}$$

となる。つまり、この並列接合の超伝導臨界電流はリングを貫く外部磁束により周期的に変動し、自 己インダクタンス *L* が無視できると臨界電流は 0 から 2*I*₀ まで変化し 100%の変調を受ける。

実際には、SQUID 自身のもつインダクタンス *L* を考慮すると、変調の割合が小さくなり感度が落ちる。

 $-\frac{\pi}{2} < \Delta \theta_i < \frac{\pi}{2} (i=1,2)$ 領域において、

$$I_i = I_0 \sin \Delta \theta_i \simeq \frac{2}{\pi} I_0 \Delta \theta_i \tag{4.7}$$

と近似すると *I_i* は式 (4.1)-(4.3) より、

$$I_{i} = \frac{1}{2}I_{B} \pm \frac{\Phi_{\text{ext}}}{L + \frac{\Phi_{0}}{2I_{0}}}$$
(4.8)

ただしi = 1、2で異符号をとる。従って、自己インダクタンスLが存在することによる $\Phi_{\text{ext}} = \frac{\Phi_0}{2}$ での臨界電流の減少 δI_c は、

$$\beta \equiv \frac{2LI_0}{\Phi_0} \tag{4.9}$$

と定義すると、

$$\delta I_c = \frac{2I_0}{1+\beta} \tag{4.10}$$

と書ける。これより確かに SQUID 素子の自己インダクタンス Lが大きくなると、磁場に対する臨界 電流の変化が小さくなる事が分かる。

この素子にバイアス電流 I を流すと $I > I_{max}$ のところから電圧が出始める。有限の磁束に対して は臨界電流が減少しジョセフソン接合の両端に電位差が生じることから、磁束の変化を電圧の変化と して読み出すことができる。この電圧状態の電流と電圧の関係は接合部での常伝導トンネルの抵抗値 を R とすれば、

$$V = R\sqrt{I^2 - I_c^2}$$
 (4.11)

で表せる。従って、適当なバイアス電流 *I*_B(> 2*I*₀)を流すと電圧が磁束とともに周期的に変化する。 さらに素子の近くにコイルを巻きそのコイルを流れる電流を磁束に変えて、電流/電圧変換器 (電 流計)として用いることが可能である。SQUID 素子を電流計として用いる際の最大の特徴は SQUID 素子の入力はフローティングであり測定する電流を乱さない点である。

4.2.2 今回使用した SQUID の性能

都立大にて使用した SQUID AMP 素子は液体 He を使用した低温度環境下での使用を前提とし て開発された、セイコーインスツルメンツ株式会社 (SII: Seiko Instruments Inc.)の SSA(420-Serial SQUID Array) AMP [21] であり、420 個の dc-SQUID がアレイ状に並んでいるという構造をして いる。SQUID 基板は FRP(Fiber Reinforced Plastics) でできており、SQUID AMP 素子及び主要 な配線は基板上の 0.5 mm×0.5 mm の Si ウェ八上に蒸着されている。一つ一つの SQUID 素子は、 SQUID ワッシャー、フィードバックコイル、インプットコイルからなっておりコイルを含めた配線 は全て 0.1 mm ϕ NbTi 配線となっている。SQUID ワッシャーは 2 つのジョセフソン接合を持つリン グである。これらの SQUID AMP のスペックを表 4.1 に示し、図 4.7 にそれぞれの配線図を示す。 SQUID 素子から基板にアルミワイヤでボンディングされている。基板上での配線は銅の上に半田メッ キしたものであり、ボンディングワイヤには主にアルミを使用している。

4.2.3 SQUID noise

SQUID ノイズには、SQUID のシャント抵抗で発生するジョンソンノイズと、トンネル接合のショットノイズがある。そのノイズスペクトルは、読み出し系の回路で決まる遮断周波数よりも低い周波数

| 入力コイル | |
|---------------------------|---------------------|
| 自己インダクタンス L _{in} | $37.8 \mathrm{~nH}$ |
| 相互インダクタンス $M_{ m in}$ | $58 \mathrm{pH}$ |
| フィードバックコイル | |

表 4.1: 420-SSA SQUID 素子パラメータ

| 相互インダクタンス $M_{ m in}$ | $58 \mathrm{pH}$ |
|---|-------------------------------------|
| フィードバックコイル | |
| 相互インダクタンス $M_{ m f}$ | $58 \mathrm{pH}$ |
| ゲイン $G \;(= M_{\mathrm{in}} rac{\partial V}{\partial \Phi})$ | $50 \ \mathrm{kV/A}$ |
| 電流分解能 @ 10 kHz | $6.8 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ |
| 磁束ノイズ @ 10 kHz | 0.19 $\mu\Phi_0/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ |
| スルーレート | $\sim 1 \ V/\mu s$ |
| | |





図 4.6: 420-SSA の顕微鏡写真。左は全体像で写真 1 辺が 3 mm × 3 mm。右は DC-SQUID 素子の拡大写真 で、写真の大きさが 200 μ m。



図 4.7: FRP 実装基盤上の配線図

領域ではほぼ一定であり、磁気ノイズ Φ_n は典型的に数 $\mu \Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ である。SQUID ノイズのノイズ等 価パワーは、磁気応答性 $S = d\Phi/dE = \frac{1}{C_{tot}} \frac{d\Phi}{dT}$ 、磁気ノイズ Φ_n を用いて

$$NEP_{readout}^2 = \left|\frac{\Phi_n}{S}\right|^2 \tag{4.12}$$

として与えられる。

SQUID ノイズのエネルギー分解能への寄与は、

$$\Delta E_{\text{SQUID(FWHM)}} = 2.35 \left(\int_0^\infty \frac{4 \text{d}f}{\text{NEP}_{\text{readout}}^2(f)} \right)^{-\frac{1}{2}}$$
(4.13)

$$= 2.35 \frac{\Phi_{\rm n}}{S} \sqrt{\tau} \tag{4.14}$$

と表せる。

4.3 実験セットアップ

4.3.1 Au:Er 素子と素子台とピックアップコイル

Au:Er 素子を大きさ 0.4 × 0.4 × 0.08 mm 程度に切り、熱伝導度の良いワニス (株式会社ニラコ製 GE701 をアセトンで希釈したもの) で素子台にはりつけている。(図 4.8、4.9) 素子台には希釈冷凍 機のステージとの温度揺らぎを伝えないために真鍮を使用し、さらに素子台とステージの間にはガラ スエポキシの板をはさんである。また、素子台の設計図を付録につけてある。





図 4.9: 素子台と Au:Er 素子

図 4.8: Au:Er 素子 顕微鏡写真 Au:Er 素子を大きさは 0.4 × 0.4 × 0.08 mm 程 度である。

Au:Er 素子のまわりに、素子の磁化の変化を感知するピックアップコイルをつけることとなるが、 カプトン管 (外径 0.7 mm、肉厚 0.015 mm)の周りに NbTi 線 (銅被膜あり)を 20 巻きしてピックアッ プコイルとしてある。コイルの抵抗は、常温で 1.74 程度であった。そのピックアップコイルを素 子台に立っている柱に挿すことで固定している。(図 4.10、4.11 、4.12、4.13) ここで、ピックアップコイルの自己インダクタンスを計算しておくと、ピックアップコイルの半径 a は、NbTi 線 (銅被膜あり)の直径 0.127 mm から NbTi 部分の直径 0.06 mm を引くと a = 0.335 mm となる。このとき、ピックアップコイルの長さを l とすると、 $2a/l = \frac{0.335 \times 2}{0.127 \times 10} = 0.528$ で、長岡係数 $K \sim 0.81$ である。そうすると、ピックアップコイルの自己インダクタンスは、単位長さあたりの巻 き数を 1.0/0.127 [巻き/mm] として長さを 0.127×10 mm とすると、ピックアップコイルが、20 巻き で、長さ 10 mm 程度の時に、 $L_{\text{pickup}}(0.335, 0.127 * 10, 1./0.127) \times 2 \times K = 43.5$ nH 程度となる。し かし、今回使用した SQUID のインプットコイルの自己インダクタンスとピックアップコイルの自己 インダクタンスを足したものの測定では ~ 440 nH 程度となった。



図 4.10: ピックアップコイル カプトン管 (外径 0.7 mm、肉厚 0.015 mm)の周 りに NbTi線 (銅被膜あり)を 20 巻きしてピック アップコイルとしてある。



図 4.11: ピックアップコイルと素子台





図 4.12: ピックアップコイルと素子台 上 図 4.13: ピックアップコイルと素子台 横

その上から、真鍮の上部に穴が空いている筒をかぶせ、そこに 線源であるアメリシウム (Am241) をカプトンテープでとりつけている。この線源の強度は 1 kBq で、素子との距離は 6 mm であるの で、カウントレートは、0.38 cts/s が期待される。(図 4.14) また、温度計も同じ素子台の上に取り付けられるようになっている。素子台の模式図を図 4.15 に示す。





図 4.14: 素子台と線源と温度計

図 4.15: 実際のセットアップの模式図

4.3.2 組み込みと内部回路

希釈冷凍機内部への素子台と温度計の組み込みを図 4.16、4.17 に示す。



図 4.16: 希釈への組み込み図 上

```
図 4.17: 希釈への組み込み図 横
```

また、素子から SQUID に信号が伝わるまでの回路図を図 4.18 に、そのパラメータを表 4.2 に示す。

4.3.3 直列抵抗と内部配線を入れた時の周波数特性

当初は、直列抵抗 R_sをいれないで、実験を行なったが、低周波側の揺らぎがおおきかったため、ハ イパスフィルター (HPF) となるように配線に直列抵抗としてマンガニン線 (直径 1 mm、長さ 4 mm) を入れた。また内部配線のインダクタンスは配線をツイストしてあるので、簡単のためにソレノイド に近似して計算した。



図 4.18: 回路図

表 4.2: 回路のパラメータの実測値

| 直列抵抗 R _s | $1.78 \text{ m}\Omega(4.2 \text{ K})$ |
|--|---------------------------------------|
| | 4.85 mΩ(常温) |
| 配線の自己インダクタンス $L_{ m line}$ | ~ 10 nH |
| インプットコイルとピックアップコイルの自己インダクタンスの合計 $L_{	ext{input+pickup}}$ | 440 nH |
| インプットコイルとスクイドワッシャーの相互インダクタンス $M_{ m mutual}$ | $58 \mathrm{pH}$ |

ここで、それらの値の計算をしてみる。いま、直列抵抗 R_s と回路の寄生抵抗 R_{para} があると考えるとすると、ピックアップコイルにおける磁束の変化 Φ_{pickup} 、それによる起電力 V_{pickup} 、SQUID のインプットコイルの自己インダクタンスを L_{input} 、配線の自己インダクタンスを L_{line} として、回路の式はキルヒホッフの法則より、

$$V_{\rm pickup} = -\frac{d\Phi_{\rm pickup}}{dt} = -L_{\rm input}\frac{dI}{dt} - L_{\rm line}\frac{dI}{dt} + R_{\rm s}I + R_{\rm para}I$$
(4.15)

より、回路に流れる電流 I は

$$I = \frac{\Phi_{\text{pickup}}}{L_{\text{input}} + L_{\text{line}} + \frac{R_{\text{s}} + R_{\text{para}}}{\omega}}$$
(4.16)

となる。これがインプットコイルと SQUID ワッシャーの相互インダクタンス $M_{
m mutual}$ によって磁束 $\Phi_{
m input}$ として検出される。よって、

$$\Phi_{\text{input}} = M_{mutual}I = \frac{M_{\text{mutual}}}{L_{\text{input}} + L_{\text{line}} + \frac{R_{\text{s}} + R_{\text{para}}}{\omega}} \Phi_{\text{pickup}}$$
(4.17)

であり、ここで伝達効率を $F = rac{\Phi_{ ext{input}}}{\Phi_{ ext{pickup}}}$ は、

$$F = \frac{M_{\text{mutual}}}{L_{\text{input}} + L_{\text{line}} + \frac{R_{\text{s}} + R_{\text{para}}}{\omega}}$$
(4.18)

と表せる。

従って、回路に直接抵抗及び寄生抵抗が入っている場合は、直接抵抗及び寄生抵抗によって電圧降 下が起こるために、時定数 *r* とすると、

$$\tau = \frac{L_{\rm input} + L_{\rm line}}{R_{\rm s} + R_{\rm para}} \tag{4.19}$$

のようなハイパスフィルターを形成し、低周波の信号は減衰してしまう。

このような計算からカットオフ周波数が決まり、これによって、閉回路にジョンソンノイズがあっ た場合にカットオフが見られる。

ジョンソンノイズのパワースペクトル密度は、カットオフ周波数を f_c とすると

$$|\delta E_{\rm J}(f)| = \sqrt{\frac{4k_B T R_{\rm s}}{(R_{\rm s})^2 + (2\pi f)^2 L^2}}$$
(4.20)

$$= \sqrt{\frac{4k_BT}{R_s} \times \frac{1}{1 + (2\pi f)^2 (\frac{L}{R_s})^2}}$$
(4.21)

$$= \sqrt{\frac{4k_BT}{R_{\rm s}}} \times \frac{1}{\sqrt{1 + (\frac{f}{f_c})^2}}$$
(4.22)

ここで、 $f = f_c$ のとき、つまりノイズの大きさが $\frac{1}{\sqrt{2}}$ 倍になった時をカットオフ周波数としている。

4.3.4 電流 (電圧) 源

今回の測定では、電流源として KEYTHLEY2400(電流源) と自作の 5V 電池レギュレーター (電圧 源)を印加磁場用コイルに電流を流す電源として用意したが、商用電源を用いる電圧源では 50 Hz の ノイズおよび、グラウンドループが増えるので 5 V 電池レギュレーターを主に使用した。ただし、電 池だけだと長時間電圧を安定させることができないために、ニッケル水素電池 (1.2 V) を 8 個直列に つなげて合計 9.6 V にして 5V レギュレータ (型番 3052: 5 V,2 A 仕様)をつけた電圧源を製作した。 (図 4.19) レギュレーターが安定してして 5 V を出すためには、電池の最終電圧が 5 V よりも 2.5 V 程度大きくなければならないので、ニッケル水素電池の最終電圧が 1 V 程度であるので、8 個直列に つけてある。また、希釈冷凍機内部のコイルの抵抗が ~ 1 Ω であることから、コイルに 1 A 流すた めに、レギュレーター内に発熱も考慮にいれて、2 Ω のセメント抵抗を 2 個と、1 k Ω の可変抵抗を入 れてある。下に今回製作したレギュレーターの回路図を図 4.20 につける。この電圧源の電圧の安定 度は、~ 0.01 mV/s 以上で安定している。

4.3.5 測定機器

波形のモニターには、*Tektronix* TDS3012 オシロスコープと、*YOKOGAWA* DL708D オシロスコー プを図 4.22のように配置して用いた。DL708D のスペックとしては、最高サンプルレート 10 Ms/s、周 波数特性~1 MHz、電圧軸感度設定範囲 5 mV/div ~20 V/div、A/D 変換分解能 12 bit(500 LSB/div) である。また、 *HEWLLET PACKARD* 35670A FFT アナライザーを用いてノイズ測定を行った。



図 4.19: 電池駆動レギュレーター

図 4.20: レギュレーター回路図

スペックとしては、13 bit で周波数最大レンジ 102.4 kHz、最小分解能 122 μHz となっている。測定 機器周りの写真を図 4.21 につける。



図 4.21: 測定機器



4.4 予想される出力

ここで、Au:Er 素子の $g(\neg)$ の値を 6.8 とする。まず、金のモル体積 V_m を求めると、

$$V_{\rm m} = \frac{\left(4.07825 \times 10^{-10}\right)^3}{4} \times N_{\rm A} \quad [{\rm m}^3/{\rm mol}] \tag{4.23}$$

となる。

金の比熱 c_{Au} は温度 T[K]の関数として、電子比熱と格子比熱の足し合わせにより、

$$c_{\rm Au}(T) = 6.7582 \times 10 \times T + 4.2443 \times 10 \times T^3 \quad [\rm J/K/m^3]$$
(4.24)

とかける。

エルビウムのスピン系の磁気比熱 c_{spin} は、エルビウムの濃度 ppm と磁場 B[T]、温度 T[K]の関数 として、

$$c_{\rm spin}(\rm ppm, B, T) = \frac{k_B(\rm ppm \times 10^{-6})N_A}{V_m} \times \frac{g\mu_B B}{2k_B T \cosh(\frac{g\mu_B B}{2k_B T})^2} \quad [J/K/m^3]$$
(4.25)

となる。

エネルギー E[eV]の入射によって、ピックアップコイルの感じる磁束の変化 $\Delta \Phi_{pickup}$ は、ピックアップコイルの半径を r[m] とすると、

$$\Delta\Phi_{\text{pickup}}(\text{ppm}, B, T, r, E) = \frac{E\mu_0}{(1 + \frac{c_{\text{Au}}(T)}{c_{\text{spin}}(\text{ppm}, B, T)})Br}$$
(4.26)

とすることができる。

さて、実際にはこのピックアップコイルでみた磁束の変化を SQUID のインプットコイルで受けて、 さらにそれを SQUID ワッシャーに伝えて、増幅して、読み出すわけなので、ここで、インプットコイ ルとその配線の自己インダクタンスを L_{input} 、 L_{line} とし、インプットコイルと SQUID ワッシャーの 間の相互インダクタンスを M_{mutual} とすると、SQUID ワッシャーの感じる磁束の変化 $\Delta \Phi_{SQUID}$ は、

$$\Delta\Phi_{\rm SQUID}(\rm ppm, B, T, r, E, L, M) = \Delta\Phi_{\rm pickup}(\rm ppm, B, T, r, E) \times \frac{M_{\rm mutual}}{L_{\rm input} + L_{\rm line}}$$
(4.27)

となる。上の式の中で、 $\frac{M_{\text{nutual}}}{L_{\text{input}+L_{\text{line}}}}$ がインプットコイルから SQUID ワッシャーへと磁束の伝える 伝達効率となるわけだが、もちろんこれは1に近い方が好ましいのだけれど、現実的には SQUID を 素子近くに置くのはなかなか難しい。理由は、現在使用している SQUID の発熱 ~ μ W から考えて も1K あたりにに置くのが現実的であり、またそもそも SQUID は磁場に弱く、7 mT まで耐えられ るものが開発されてはいるものの、グラジオメータにしても、SQUID の接続部等に臨界磁場がある ので難しいということがあげられる。

実際に読み出すパルスハイト PH は、ゲインを gain[V/A] とすると、

$$PH = \frac{gain \times \Delta \Phi_{\text{pickup}}(\text{ppm}, B, T, r, E, L, M)}{L_{\text{input}} + L_{\text{line}}}$$
(4.28)

となる。

下の図 4.23、4.24、4.25、4.26 が、温度 80 mk の時と 120 mk のときの Φ/Φ_0 vs B と PH vsB の計 算値で ppm ごとに示してある。ここで Φ_0 は、磁束量子である。また、4.3 にこの見積りに使用した パラメータを示す。

また、ここで予想されるパルスの減衰の時定数を計算しておく。式 4.19 より、寄生抵抗は小さい とすると、

$$\tau = \frac{190 \times 10^{-9} + 10 \times 10^{-9} + 43.5 \times 10^{-9}}{1.78 \times 10^{-3}}$$

= 1.36 × 10⁻⁴ (4.29)

表 4.3: 見積りのパラメータ

| Au:Er 素子の重量 | 0.24 mg |
|--|-------------------------|
| ピックアップコイルの半径 r | $0.4 \mathrm{mm}$ |
| ピックアップコイルとインプットコイルの自己インダクタンスの合計 $L_{ m pickup+in}$ | aput 440 nH |
| 入射エネルギー (線:Am241) E | $5.5 { m MeV}$ |
| ピックアップコイルからの伝達効率 $rac{M_{ m mutual}}{L_{ m input}+L_{ m line}}$ | 0.00029 |
| SQUID のゲイン gain | 50 kV/A |
| ランデの g 因子 | 6.8 |
| 金の比熱 c _{Au} 80 mK | 5.428 J/K/m^3 |
| 120 mK | 8.183 J/K/m^3 |
| | |











🕱 4.25: PH vs B 80 mK



🕱 4.26: PH vs B 120 mK

第4章 今回の実験装置と予想される出力

なり、カットオフ周波数を f_c とすると、 $2\pi f = \omega = 1/\tau$ より、

$$f_c = 1.17 \times 10^3$$
 [Hz] (4.30)

なる。

第5章 測定結果

3章に述べたような方法で自作した素子を用いて、パルスの検出を目指した。実験の経過、および改 善点と、そこで得られたデータの解析について本章で述べる。

5.1 実験の経過

2003 年 12 月 14-24 日および 2004 年 1 月 14-16 日にかけて、都立大希釈冷凍機を用いて冷却実験を 行なった。実験経過のまとめを表 5.1 にまとめる。

5.1.1 第一回目: 2003年12月14-17日

最初、素子、ピックアップコイル(5巻き)、線源とホール素子を一緒に組み込みを行ない、窒素予 冷、ヘリウム転送とおこなった。そこで四端子法により、ホール素子に電流を流した時の電圧を測定 し正常に磁場がかかることを確認した。まず、4.2 K において磁場をかけない時に SQUID が正常に 駆動することを確認した。そこで、同温度で磁場をかけたときに、SQUID が動作するかを調べるた めに、一定電流をかけた時の磁場から電流を1 mA 増減させて、磁場にして 0.01 mT 変化させたと きに SQUID がその磁場の変化を感じていることをオシロスコープで波形をとり、確認した。また、 増減させたときに波形の出る方向が逆転することからも、SQUID は正常に磁場の変化に反応してい るといえる。

上のようなことを確認した後、熱交換ガスの循環運転などの操作を行ない、90 mK まで冷却した。 その温度で、再び先程と同様に SQUID が正常に動作していることを確かめ、また磁場を印加した時 にもその変化を感じていることを確かめた。しかし、低周波のノイズのゆらぎが大きく、パルスの検 出には至らなかった。ホール素子の特性は、4 K、0.1 K で大きな変化は見られず、磁場の大きさは 絶対値としては不定性が大きいものの、電流と磁場に相関があることはみてとれた。

5.1.2 第二回目: 2003年12月17-20日

その後一旦昇温し、ホール素子をはずした。同時に、前回の実験での低周波側のゆらぎを抑えるために内部配線に直列抵抗をいれた。素子、ピックアップコイル(5巻き)、及び線源を組み込み後、真空引き、窒素予冷、ヘリウム転送と行ない、まず、4.2 K において SQUID が駆動することを確認した。前回の実験と同様に、磁場をかけたときに、SQUID が正常に動作するかを調べるために、一定電流をかけた時の磁場から電流を1 mA 増減させて、磁場にして 0.01 mT 変化させたときに SQUID がその磁場の変化を感じていることをオシロスコープで波形をとり、確認した。また、増減させたと

きに波形の出る方向が逆転することからも、SQUIDは磁場の変化に反応していた。

上のようなことを確認した後、熱交換ガスの循環運転などの操作を行ない、80 mK まで冷却した。 その温度で、再び先程と同様に SQUID が正常に動作していることを確かめ、また磁場を印加した時 にもその変化を感じていることを確かめた。

しかし、パルスは得られなかった。

ここで、直列抵抗をいれたことによるノイズの変化を測定したところ、ノイズのカットオフが 10⁴ Hz のところにみられ、変化が確かめられた。

5.1.3 第三回目: 12月20-24日

ー旦昇温し、線源ののせてある素子台の蓋の穴を大きくし、ピックアップコイルの巻き数を5巻き から 20巻きに増やした。

そした、素子、ピックアップコイル (20 巻き)、及び線源を組み込み後、真空引き、窒素予冷、ヘリ ウム転送と行ない、まず、4.2 K において SQUID が駆動することを確認した。前回の実験と同様に、 磁場をかけたときに、正常に SQUID が動作するかを調べるために、一定電流をかけた時の磁場から 電流を 1 mA 増減させて、磁場にして 0.01 mT 変化させたときに SQUID がその磁場の変化を感じて いることをオシロスコープで波形をとり、確認した。また、増減させたときに波形の出る方向が逆転 することからも、SQUID は磁場の変化に反応していた。

上のようなことを確認した後、熱交換ガスの循環運転などの操作を行ない、80 mK まで冷却した。 その温度で、再び先程と同様に SQUID が正常に動作していることを確かめ、また磁場を印加した時 にもその変化を感じていることを確かめた。

その後、パルス取得実験のために、0.05 ~ 0.5 mT の間で磁場をかけて、パルスを取得した。また、磁場 (コイルに流している電流を) 逆にパルスを観測したことからも、これがパルスの証拠となると考えられる。ここで得たパルスの減衰の時定数は予想と一致していたが、パルスハイトは予想していたよりも 1/10 程度低く、またカウントレートも倍程度多かった。

一通りパルスを取得した後、今度は温度を調整して 120 mK のところで、まったく同様の実験を行 なった。そこでも、印加磁場の変化に対して同様の振る舞いがみられ、その後、同様に 0.05 ~ 0.5 mT の間で磁場をかけて、パルスを取得した。ただし、この時は 80 mK の時と比較してノイズが大きく、 パルスの取得は困難であった。取得したパルスを比較すると、80 mK で取得したものよりも、120 mK で取得したものの方が、パルスハイトは小さくなっているのが、みてとれた。80 mK の時とカウン トレート、及びパルスの減衰の時定数は一致していた。

その後、温度を 200 mK に上げて再び同様の実験を行なった。SQUID の動作は確認され、また上 と同様にを印加した時にも SQUID がそれを感じている様子は確かめられたが、パルスの取得には至 らなかった。

ヘリウムを追転送しつつ放置し、翌日同様の実験を行なうために、再び80mKに温度を下げた。 そこでも、SQUIDの動作、および磁場の感知は確認され、0.05~0.5mTの間において、パルスを 取得した。その後、温度を120mKにまで上昇させたところ、そこでも同様の結果が得られ、パルス 第5章 測定結果

を取得した。

それらの実験の後、温度と印加磁場の変化に対して SQUID の振る舞いにどの様な相関が見られる かを調べるために、500 mK、1 K で、ある一定磁場から 1 mA 電流を変化させて、磁場を 0.01 mT 変化させた時の振る舞いを調べた。全ての実験が一通り終了した後、昇温した。

5.1.4 第四回目:2004年1月14-16日:線源なし

第三回目の実験からセットアップを線源を取り外し、その部分をカプトンテープで覆った。それ以 外のところには一切触れてはいない。

その状態で、真空引き、窒素予冷、ヘリウム転送と行ない、まず、4.2 K において SQUID が駆動 することを確認した。その後、交換ガスの循環運転などの操作を行ない、80 mK まで冷却した。そ の温度で、再び先程と同様に SQUID が正常に動作していることを確かめ、また磁場を印加した時に もその変化を感じていることを確かめた。

前回パルスを取得した条件と同じ条件にして、0.1、0.2 mTの磁場を印加したが、パルスは見られなかった。

| | 12/14-17 | 12/17-20 | 12/20-24 | 01/14-16 |
|-----------|----------|----------|----------|----------|
| 線源 | 有り | 有り | 有り | 無し |
| ホール素子 | 有り | 無し | 無し | 無し |
| 直列抵抗 | 無し | 有り | 有り | 有り |
| ピックアップコイル | 5 巻き | 5 巻き | 20 巻き | 20 巻き |
| パルス | 無し | 無し | 検出 | 無し |

表 5.1: 実験の経過と変更点のまとめ

5.2 パルスの取得

素子台に取り付けた温度計で、80 mK、120 mK のところでパルスを取得した。それぞれ、印加磁 場は 0.05、0.1、0.2、0.4、0.5 mT の間であった。磁場 (電流)を逆にかけると、パルスは逆にでてか けないときにはパルスはでない。加えて、線源を取り外した状態で、同様の実験を行なってもパルス はでないので、素子が線源からのエネルギー入射に反応している証明といえる。ただし、予想された パルスの波高値よりも小さかった。

それぞれの温度で磁場を 0.1 mT かけた時に取得したパルスの典型的な形と平均パルスの典型的な 形を図 5.1、5.2、5.3、5.4 に示す。平均パルスは、それぞれ数百パルスの平均である。



図 5.1: パルスの典型的な形 @ 80 mK,0.1 mT 図 5.2: パルスの典型的な形 @ 120 mK,0.1 mT



図 5.3: 平均パルス @ 80 mK,0.1 mT このときのサンプルレートは、200 kS/s であり、 バンド幅は 50 kHz である。

図 5.4: 平均パルス @ 120 mK,0.1 mT このときのサンプルレートは、200 kS/s であり、 バンド幅は 50 kHz である。

5.3 ノイズスペクトルの測定

取得したパルスの評価をするためにもノイズスペクトルの測定は必須である。そこで、FFT アナ ライザーを用いて、ノイズスペクトルの測定をおこなった。また、印加磁場用のコイルに流す電圧源 として使用した自作の電池駆動レギュレーターをつけた時、及び電流を実際に流した時のノイズスペ クトルも測定し、その変化を比較した。そのグラフを図 5.5、5.6、5.7、5.8、5.9、5.10 に示す。図中 の線の色違いは、取っているバンドの違いである。ノイズを取得した範囲の上限が、黒は 100 kHz ま で、赤は 10 kHz、緑は 1 kHz、青は 100 Hz であり、各周波数帯によって、最もよい分解能をもつ値 を使って書いている。





🗵 5.6: 118 mK 0.05 mT





⊠ 5.8: 83 mK 0.1 mT

ここで、内部回路に抵抗を入れた後でのノイズスペクトルとジョンソンノイズの理論式を合わせた ものが、図 5.11 である。

この図から、カットオフ周波数 f_c は 1×10^3 [Hz] のところと見てとれる。この周波数から予想される時定数 τ の値は、 $\tau = \frac{1}{2\pi f_c} = 1.59 \times 10^{-4}$ となるので、大体 $160 \ \mu s$ となる。ただし、この時はピックアップコイルは 5 巻きのものなので、20 巻きのものと比べてピックコイルの自己インダクタンス



⊠ 5.9: 127 mK 0.05 mT

⊠ 5.10: 120 mK 0.05 mT



図 5.11: 直列抵抗を入れた後のノイズスペクト ルとジョンソンノイズの理論線からフィットした カットオフ周波数

は低い。また、このときの内部回路全体の自己インダクタンスは $L_{tot} = \frac{R_s}{2\pi f_c} = 0.28 \times 10^6 = 280 \text{ nH}$ となり、見積もりの $\sim 250 \text{ nH}$ よりも多少高くなる。

5.4 取得したデータの解析

今回の実験において取得したデータの解析を行なった。解析を行なったデータは、温度 80 mK で、 印加磁場がそれぞれ 0.1 、0.2、0.4、0.5 mT におけるものと、温度 120 mK で印加磁場が 0.1 mT に おけるデータである。

データの解析に関しては、これまで当研究室で行なわれている TES 型マイクロカロリメータのデー タ解析手法を利用した。([19]) これはパルス波形をオシロスコープによって記録し、後に FFT(Fast Fourier Transformation)を用いて周波数空間でフィルタリングすることにより、ノイズを除去し S/N(Signal to Noise ratio)を上げることができる。まず最初に、パルスの立ち上がりの位置を合 わせる操作を行なった後、パルスに関しては、時空間(実際に得たパルス)の平均をとってから周波 数空間に(離散的な)FFTを行ない、ノイズに関しては、周波数空間に FFTをおこなってから周辺 ものでいる。ノイズの情報としてはパルスの前後に見られるデータを利用し、信号のベースラインの ゆらぎを得ることもできる。普段は、得られた S/N を平均のパルスにかけてテンプレートをつくり、 そのテンプレートを用いて個々のパルスに関して、パルスハイトをフィッティングするという手法を とっているが、ノイズが大きすぎて今回はあわせることができなかった。そこで今回は、パルスを単 純に積分することにより、エネルギースペクトルをもとめた。上のようにして求めたテンプレートで、 パルスの立ち上がりの時刻を 0 として、0 から 0.5 ms までの間を積分したものから-1 から 0 ms まで 積分したものを 1/2 倍したものを引いて積分値をもとめた。今回のパルスの取得では、横河電機のオ シロスコープを用い、時間分解能 500 μ s でパルスを取得した。電圧レンジは 10 mV である。

それぞれのデータにおけるベースラインのゆらぎとエネルギースペクトルを図 5.12 から 5.21 に示 す。それぞれの縦軸と横軸は、ベースラインのゆらぎは、縦軸がカウント数 ([N/counts])、横軸がベー スライン (Base Line)([BL/eV]) であり、エネルギースペクトルは、縦軸がカウント数 ([N/counts])、 横軸がエネルギー (E)([E/eV]) である。





図 5.12: 80 mK、0.1 mT の時ののベースライン のゆらぎ

図 5.13: 80 mK、0.1 mT の時のエネルギースペ クトル



100 = FWHM=3780 keV = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0 100 = 0

図 5.14: 80 mK、0.2 mT の時のベースラインの ゆらぎ

図 5.15: 80 mK、0.2 mT の時のエネルギースペ クトル





図 5.16: 80 mK、0.4 mT の時のベースラインの ゆらぎ

図 5.17: 80 mK、0.4 mT の時のエネルギースペ クトル





図 5.18: 80 mK、0.5 mT の時のベースラインの ゆらぎ

図 5.19: 80 mK、0.5 mT の時のエネルギースペ クトル



図 5.20: 120 mK、0.1 mT の時のベースライン のゆらぎ



図 5.21: 120 mK、0.1 mT の時のエネルギース ペクトル

第6章 考察

6.1 測定結果の評価

5章で得られたデータの解析をもとにその解釈および考察を行なう。

6.1.1 パルスの立ち上がり時間と減衰の時定数

立ち上がり時間としては、数 µs と十分に早く、減衰の時定数は ~ 250 µs 程度であり、回路から 計算される L/R より、~ 150 µs とほぼ一致している。また、ノイズスペクトルをみても 1 kHz のと ころでカットオフが見られこの結果を支持している。パルスの形は幾つか見られたが、減衰の時定数 は変わらなかった。

またここで、印加磁場 (電流) の方向を逆転させると逆方向にパルスは出て、線源を取り外した状態で実験を行なってもパルスは出ない。

6.1.2 カウントレート

予想されるカウントレートは、0.38 cts/s であったが、今回のデータからは 2 ~ 4 cts/s という値 が得られ、少しズレがみられる。予想値よりも 5 倍程度高い値であるが、これはおそらく、素子以外 のピックアップコイルといったところにも 線が当たっているために、温度変化 (電流変化) がみえて しまっていると考えられる。これは、幾つかパルスの形があることからも推測され、単純に素子の大 きさから予想したカウントレートよりも、広い面積にあたった 線の影響を見てしまっているという ことで解釈できる。

6.1.3 波高値について

まず、今回得られた平均の波高値と磁場の関係をプロットしたものを図 6.1 に示す。

得られたデータと予想される出力を示した図 4.23 を比べると、予想していたよりもかなり波高値 が小さいことがわかる。0.1 mT では、2 点ずつ波高値がプロットしてあるが、それぞれ低い方の点 はパルス波形にシェーピングアンプをいれた後にレベルディスクリミネータによりトリガーを作った ものである。今回の測定では高周波のノイズが大きく、シェーピングアンプを入れない場合にはトリ ガーレベルをかなり上げざるを得なかった。そのため、波高値の低いパルスを取得できず、平均波高 値が高くなったものと考えられる。以降の解析はシェーピングアンプを用いたものを基準とする。

今回使用した Au:Er 素子の濃度を算出した通りの 3000ppm とすると、波高値の最大値は磁場が







図 6.2: PH vs B @ 80,120 mK でのデータと濃 度を変えたの時の予想値 予想値の絶対値はデータに合うように規格化し てある

2 mT 程度印加されたところにくるはずであるが、実際にはそれよりも低いところでパルスは検出されている。

今回の実験の中で不定性のある量としては、素子の濃度と印加磁場が予想の値とずれている可能性 が考えられるが、印加磁場が飽和していたり予想された値よりも低いということは、同時に測定し たホール素子の測定から考えにくい。そこで、実際にパルスが検出された印加磁場の範囲内で波高 値が最大となる濃度を計算してみると、~200000pm 程度の濃度となる。そのときに予想される波 高値は、今回検出されたものと二桁違うが、現状だと、4章でも述べた通りインップットコイルから SQUID に信号が伝わる伝達効率が非常に小さく、測定系の影響をうけていることも考えられる。

実際に~200000 ppm 程度の時の予想値を実際に得られたデータにかさねてみると、図 6.2 のよう になる。ただし、予想される波高値の大きさはデータにあうように規格化してある/ 波高値の絶対値 は予想値よりも 1/4000 程とかなり小さくはなっているものの、ピークからの形は予想値とよく似て いて、また、80 mK と 120 mK での波高値の比は、予想と一致している。

波高値が低い理由の可能性として考えられることとしては、第一に入射エネルギー ΔE が低い、第 二に素子の温度変化 ΔT が小さい (これは今考えているもの以外に比熱があるということに等しい)、 第三に磁化の変化率 dM/dT が小さいことなどが上げられ、また SQUID への伝達効率が非常に悪い ことも問題となる。

また、Er 粒子が塊状になって入っているとすれば、その塊の中心部での磁化の変化はスピン同士の相互作用のために出にくくなっていると考えられ、今後はこのようなことも条件を変えて調べて行きたい。また、Er による比熱のため、温度変化が小さくなる効果なども検討したい。

第7章 まとめと今後の課題

7.1 まとめ

我々は、Au:Er 素子を赤外線加熱器を用いて、混入物の少ないクリーンな環境で熔融し、製作した。濃度については、rf-SQUID 装置を用いて、低温下でも磁気モーメントを測定することにより、そのデータをフィッティングをすることで決定した。素子を 20 mg 程度に分割した場合の濃度のむらはファクターで、2 程度であった。上のようにして測定した素子を厚さ 0.08 mm 程度の薄板にし、0.4 mm 四方で重量が 0.2 mg 程度の小片に切断した。こうして製作した Au:Er 素子を希釈冷凍機により 100 mK 以下に冷却し、磁場を印加した。温度 80 mK で、濃度 3000 ppm、印加磁場 0.1 mT、ピックアップコイル 20 巻きで、5.5 MeV の 線が入射した時に、素子の磁化の変化が SQUID に伝達されてパルスハイトは 500 mV 程度が予想される。実際には、7 mV 程度のパルスが検出された。これは MMC のパルスとしては、日本で初めてものもであり、世界的にも Heidelberg-Brown 大、NIST 等のグループについで 3 番目であるといえる。このパルスは、外部磁場への依存性等などから、放射線に対するパルスであるとは考えられるものの、予想よりは小さく、ノイズの影響も大きいため、エネルギー分解能が議論できるレベルではない。この理由としては、磁場とパルス波高値の関係から推定される Er 濃度が rf-SQUID による測定時よりも大きいことが考えられる。また伝達効率のが非常に悪いため、ノイズに弱いことも問題である。

7.2 今後の課題

以上のような実験、考察に基づき、今後 X 線による MMC からのパルス取得、エネルギー分解能 向上のための課題をまとめる。今回の実験では TES 型カロリメータ用のセットアップを間借りする ような形となったが、MMC のために最適化された実験環境の整備も進めており、それについても述 べる。

7.2.1 濃度と均一性の制御

現在 Au:Er 素子を熔融している赤外炉では、温度が金の融点よりは高くなるものの、エルビウム の融点よりは高くならず、完全に熔融しているとはいえず、実際には希釈している状態である。都立 大共用の rf-SQUID での測定でも、ある程度の範囲では混ざりあってはいるものの、きちんと均一性 を保ちながら濃度を制御できているとは、いいがたい。これを解決するには、より高い温度まであげ られる炉を使用することが必要となる。

今後の方向性としては、メーカーにエルビウムを熔融もらえるように依頼すること、また抵抗加熱
第7章 まとめと今後の課題

器を用いて、金とエルビウムを飛ばすこと等を模索している。

7.2.2 素子の形状

現在、素子を薄くしたり切ったりするのは、ほとんどが手作業であり、かなり限界である。プレス 機やレーザーカッターなどを使用したりすれば、より精密に素子の形状を製作できるであろう。また 将来的には、素子をより小さくするためにも、蒸着方式やスパッタ方式でAu:Er素子を作ることも 視野にいれていきたい。

7.2.3 SQUID 関連

今は素子を SQUID の距離が離れているので、伝達効率 $M_{\rm mutual}/L_{\rm input}$ によって信号のかなりの部分が失われている。今後、これらを直付けできれば、ここでの損失がなくなる。セイコーインスツルメンツには、1 mT までは耐えられるグラジオメータタイプのものがあり、これからその性能評価をするところである。

7.2.4 温度揺らぎの制御

Resolving power ~ 1000 を目指すには、温度上昇 dT と熱浴の温度揺らぎ δT の比 $dT/\delta T \gg 1000$ であれば可能である。さらに全く同等の素子を作ることができるようになれば、グラジオメータタイ プにすることで、熱浴の温度揺らぎをキャンセルすることができるようになるので、 $dT/\delta T \sim 100$ とすれば十分である。ここで、例えば dT = 0.1 mK だとすると、温度揺らぎは ~ 1 μ K に抑えられ ればよいこととなる。これは、ADR(断熱消磁冷凍機) で実現可能である。

付録A 希釈冷凍機用素子台の設計図

希釈冷凍機の実験で使用した素子台の設計図を載せる。製作は工学部工作室にすべて依頼した。



図 A.1: 希釈冷凍機用素子台設計図 1



図 A.2: 希釈冷凍機用素子台設計図 2

製作した配線やコイル等の低温での振る舞いを調べるために製作したヘリウムタンクにジャボ漬けで きるプローブの設計図を載せる。製作は工学部工作室にすべて依頼した。



図 B.1: He プローブ設計図 1



図 B.2: He プローブ設計図 2



図 B.3: He プローブ設計図 補足

関連図書

- S. R. Bandler, C. Enss, R. E. Lanou, H. J. Maris, T. More, F. S. Porter, G. M. Seidel, Journal of Low temperature Physics, vol. 93, p. 709 (1993)
- [2] M. Bühler & E. Umlauf, Europhys. Lett. vol 5, p297 (1988)
- [3] C. Enss, A. Fleischmann, T. Görlach, Y. H. Kim, G. M. Seidel, H. F. Braun, proceedings of LTD9 (AIP conference proceedings series 605) p.71 (2002)
- [4] C. Enss, A. Fleischmann, K. Host, J. Schönefeld, J. Sollner, Journal of Low Temperature Physics, vol.121, p.137 (2000)
- [5] A. Fleischmann, C. Enss, J. Schönefeld, J. Sollner, K. Horst, J. S. Adams, Y. H. Kim, G. M. Seidel, S. R. Bandler, NIM A, vol.444, p.100 (2000)
- [6] A. Fleischmann, J. Schönefeld, J. Sollner, C. Enss, J. S. Adams, S. R. Bandler, Y. H. Kim, G. M. Seidel, Journal of Low temperature Physics, vol. 118, p. 7 (2000)
- [7] A. Fleischmann, T. Daniyarov, H. Rotzinger, C. Enss, G. Seidel, will appear in LT23 proceedings (2003)
- [8] V. Zakosarenko, R. Stolz, L. Fritzsch, H.G. Meyer, A. Fleischmann, and C. Enns, Supercond. Sci. Technol. 1404, (2003)
- [9] D. T. Gillespie, J. Appl. Phys. 83, 3118 (1998)
- [10] B. L. Zink, K. D. Irwin, D. P. Pappas, J. N. Ullom, M. E. Huber, LTD10 proceedings (2003)
- [11] K. D. Irwin, LTD10 proceedings (2003)
- [12] J. T. Harding and J. E. Zimmerman, Phys. Lett. A 27, 670 (1968)
- [13] Irwin, K.D., Appl. Phys. Lett. 66, 1998-2000 (1995)
- [14] Bergmann Tiest, W.M., Hoevers, H.F.C., Bruijn, M.P., Mels, W.A., Ridder, M.L., de Korte, P.A.J., and Huber, M.E., these proceedings. (LTD-9, 2001)
- [15] Irwin, K.D., Hilton, G.C., Martinis, J.M., Deiker, S., Bergren, N., Nam, S.W., Rudman, D.A., and Wollman, D.A. Nucl. Instr. Meth. A 444, 184-187 (2000)

- [16] 大島 泰, TES X 線マイクロカロリメータと SQUID アンプ読み出し系, 東京大学, (2000)
- [17] 影井 智宏, Ti-Au 薄膜を用いたマイクロカロリメータによる X 線検出, 東京都立大学, (2001)
- [18] 広池 哲平, Ti/Au 二層薄膜を用いた TES-ETF X 線マイクロカロリメータの研究開発, 東京都 立大学, (2002)
- [19] 森田 ウメ代, TES 型 X 線マイクロカロリメータの応答特性の研究, 東京都立大学, (2003)
- [20] 竹井 洋, 超伝導遷移端 (TES 型)X 線マイクロカロリメータの熱的、電気的応答とノイズ原因の 物理的考察, 東京大学,(2003)
- [21] T.Morooka and K.Tanaka and K.Chinone, IEEE. Trans. Appl. Supercond. (2002)
- [22] Ashcroft&Mermin, Solid State Physics, Saunders College, (1976)
- [23] 木村 逸郎・阪井 英次 訳 (Glenn F. Knoll),「放射線計測ハンドブック」,日刊工業新聞社, (1991)
- [24] 波岡 武·山下 広順 共編,「X 線結像光学」, 倍風館, (1999)
- [25] 宇野津 清・津屋 昇・森田 章・山下 次郎 共訳 (Charles Kittel), 「固体物理学入門 上、下」, 丸 善, (1988)
- [26] 小林 俊一 訳 (M.Tinkham), 「超伝導現象」, 産業図書, (1981)
- [27] 久保 亮五, 「大学演習 熱学統計力学」, 裳華房, (1961)
- [28] 後藤 憲一·山崎 修一郎 共編,「詳解 電磁気学演習」,共立出版, (1970)
- [29] 田沼静一,「低温」,共立出版,(1988)
- [30] 岡村 廸夫,「解析ノイズメカニズム」, CQ 出版社, (1987)
- [31] 小林 俊一,「物性測定の進歩 II –SQUID, SOR, 電子分光–」, 丸善, (1996)
- [32] 国立天文台 編,「理科年表」, 丸善, (2001)
- [33] 黒田達美,「物性論」, 裳華房, (2002)