令和3年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子カシステム研究開発事業

超伝導量子計測技術を駆使した TRU 核種 迅速線量評価システムの開発

成果報告書

令和4年8月 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した平成30年度一令和3年度「超伝導量子計測技術を駆使したTRU 核種迅速線量評価システムの開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	viii
1. はじめに ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1–1
2. 業務計画	
2.1 全体計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2–1
3. 業務の実施内容および成果	
3.1 TRU 迅速線量評価システムの開発 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 1–1
3.1.1 大規模信号データの解析ソフトの開発製作【H30-R2】・・・・・・・・・	3. 1–1
3.1.2 大洗研究所での測定試験【H30-R3】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 1-10
3.1.3 TES アレイスペクトロメータによる ²⁴⁴ Cm 線源の測定【R1-R2】・・・・・	3. 1-15
3.1.4 64 画素 TES アレイスペクトロメータの総合的な評価【R3】・・・・・・・	3. 1–19
3.2 TES アレイスペクトロメータの開発作製(再委託先:産総研)・・・・・・・・	3. 2-1
3. 2.1 TES アレイスペクトロメータの概要【H30-R3】・・・・・・・・・・・	3. 2-1
3.2.2 SiO ₂ /Si _X N _Y /SiO ₂ 三層メンブレンの特徴【H3O-R3】・・・・・・・・・・・	3. 2-2
3.2.3 SiO ₂ /Si _X N _Y /SiO ₂ 三層メンブレンの作製【H3O-R1】・・・・・・・・・・・	3. 2-3
3.2.4 超伝導/常伝導二層膜の試作と特性均一性の評価【H30-R2】・・・・・・・	3. 2-3
3.2.5 三層メンブレンの熱伝導特性【R2】 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2-6
3.2.6 三層メンブレンの低周波雑音と応答速度【R3】・・・・・・・・・・・・・	3. 2-8
3.2.7 多画素 TES と MW-Mux の協調動作【R3】 ・・・・・・・・・・・・	3. 2-11
3.2.8 読出回路素子作製工程の改良【H30-R1】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2-12
3.2.9 測定試験用スペクトロメータ:TRU 起因の近接2輝線の精密分光【R3】・	3. 2-13
3.3 重金属 L X 線·γ線吸収体アレイ実装技術の開発(再委託先:東京大学)・・・	3. 3-1
3. 3. 1 スズ(Sn) を γ 線吸収体に適用した TES 検出素子開発の現状と課題【H30】 ・	3. 3-1
3.3.2 吸収体接続用ポストの増加を目指した取り組み【H30-R2】・・・・・・・	3. 3-3
3.3.3 スズ(Sn)単結晶およびタンタル(Ta) 単結晶の吸収体を用いた	
検出素子の開発【H30-R2】 ・・・・・・・・・・	3. 3-7
3.3.4 大規模 TES アレイへの重金属吸収体の実装【R3】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 3-13
3.4 L X線分析技術の開発(再委託先:九州大学) ・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4-1
3.4.1 LX 線計測の分析技術の検討 【H30-R1】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4-1
3.4.2 TES アレイスペクトロメータの応答のシミュレーション計算【R1】・・・	3. 4-4
3.4.3 肺付近の人体の簡易構造による沈着深さの推定【R1】・・・・・・・・・	3. 4-6
3.4.4 詳細な人体構造による沈着深さの推定【R3】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4-9
$3.4.5$ γ 線に対するシミュレーション【R3】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4-19
3.4.6 検出下限値に関する検討 【R3】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4-25
3.5 研究推進【H30-R3】・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 5-1

4.	結言	•	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
4	. 1	本研	究の成果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4-1
4	. 2	今後	の展開 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4-1
表一	-覧		
表	₹ 3.	1–1	ワークステーションのスペック ・・・・・・・・・・・・3.1-2
表	₹ 3.	1-2	ソフトウェアのテスト結果 ・・・・・・・・・・・・・・3.1-7
表	₹ 3.	1–3	大規模信号データ解析ソフトウェア tesa ・・・・・・・・・・3.1-8
表	₹ 3.	1-4	放射能比の算出結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.1-8
表	₹ 3.	1-5	管理区域内の測定試験の工程 ・・・・・・・・・・・・・・・3.1-14
表	₹ 3.	1-6	現状の Pu 等の肺モニタおよびバイオアッセイによる線量評価の条件・・・3.1-19
表	₹ 3.	1–7	2mSv の吸入摂取に相当する便中への Pu 排泄量・・・・・・・・3.1-20
表	₹ 3. *	1-8	50mSv の吸入摂取に相当する肺中の Pu 残留量・・・・・・・・3.1-20
表	₹ 3. 1	1-9	Pu の L X 線およびγ線エネルギー・・・・・・・・・・3.1-21
表	₹ 3. 1	-10	64 画素 TES アレイスペクトロメータにおける
			バイオアッセイ及び肺モニタの検出下限・・・・・・・3. 1-25
表	₹ 3. 1	-11	64 画素 TES アレイスペクトロメータにおける γ 線核種分析の検出下限・・・3. 1-26
表	₹ 3. 1	-12	多画素 TES アレイスペクトロメータの検出下限まとめ・・・・・・・3. 1-27
表	₹ 3.2	2–1	Si _x N _Y /Si _{NO₂/Si_xN_Y 三層メンブレンと従来型 Si_xN_Y 単層メンブレンの比較 ・・3.2-9}
表	₹ 3. 2	2-2	従来型 SixNy メンブレンを使う TES のフォノン雑音の
			実験値と理論値の比較・・・3.2-10
表	₹ 3. 4	l-1	237 Np から放出される L X 線のエネルギー、自然幅、放出率・・・・・・3. 4-10
表	₹ 3.4	4–2	四面体ファントムの肺近傍で使用されている物質の密度と元素組成・・・・3.4-13
表	₹ 3.4	1–3	²³⁵ U から放出される L X 線のエネルギー、自然幅、放出率・・・・・・3.4-13
表	₹ 3. 4	 -4	²³⁷ Np から放出される L X 線の放出率の実験値と文献値の比較・・・・・・3. 4-21
表	₹ 3. 4	- 5	237 Np から放出される L X 線と 241 Am から放出される γ 線の放出率・・・・・3. 4-22
表	₹ 3.5	5–1	第3回超伝導転移端センサ線量評価システム研究推進委員会参加者・・・・3.5-4
表	₹ 3.5	5-2	第3回超伝導転移端センサ線量評価システム研究推進委員の主な質疑・・・3.5-6
図-	-覧		
义	₫ 2.	1-1	全体計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・2-2
<u> </u>	₫ 2.	1-2	研究開発体制 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・2-3
<u> </u>	3. ·	1–1	ワークスステーション外観 ・・・・・・・・・・・・・・3. 1-1
<u> </u>	⅓ 3. 1	l -2	計算に割り当てるスレッド数と 1 計算あたりの所要時間の関係・・・・・3.1-3
<u> </u>	₫ 3. 1	-3	1 つの実行ファイルに割り当てるスレッド数と
			64 画素分の計算に要する時間・・・・・・・・・3. 1-3
这	3.	1-4	EGS5 計算体系 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.1-4

図 3.1-5	並列計算数と 1 計算あたりの所要時間の関係 ・・・・・・・・・3.1-5
図 3.1-6	硝酸 ²³⁹ Pu 溶液 (²⁴¹ Am を放射能比で 3 %程度含有) の Χ線・γ線スペクトル
	(10 keV から 70 keV のエネルギー範囲) ・・・・・・・・・3. 1-9
図 3.1-7	硝酸 ²³⁹ Pu 溶液 (²⁴¹ Am を放射能比で 3 %程度含有) の Χ 線・γ線スペクトル
	(60 keV から 140 keV のエネルギー範囲) ・・・・・・・・3. 1-9
図 3.1-8	TES 測定装置の配置概略 ・・・・・・・・・・・・・・・3. 1-10
図 3.1-9	TES 測定装置の室内レイアウト案 ・・・・・・・・・・・・3. 1-11
図 3.1-10	TES アレイスペクトロメータによる測定試験 ・・・・・・・・・3. 1-12
図 3.1-11	¹⁵⁷ Eu 線源による測定試験状況 ・・・・・・・・・・・・・3. 1-12
図 3.1-12	肺ファントム (²⁴¹ Am 線源) の測定計画での配置検討案 ・・・・・・3. 1-13
図 3.1-13	施設の管理区域内での TES 測定装置の設置及び予備冷却時の状況 ・・・・3. 1-14
図 3.1-14	測定試験の状況および使用した線源・・・・・・・・・・・・3.1-16
図 3.1-15	極低温モジュールと ²⁴⁴ Cm 線源 ・・・・・・・・・・・・・・3. 1-16
図 3.1-16	5 画素の TES アレイスペクトロメータによる ²⁴⁴ Cm のスペクトル ・・・・3. 1-17
図 3.1-17	5 画素の TES アレイスペクトロメータによる
	²⁴⁴ Cm の 14. 9 keV 付近のスペクトル・・・3. 1-18
図 3.1-18	立体角の補正の考え方および補正のグラフ・・・・・・・・・・3.1-23
図 3.1-19	ピーク効率の評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・3. 1-25
図 3.2-1	(a) TES アレイスペクトロメータの構成。青点線枠内が極低温冷却部。
(b)	約 0.1 K の極低温モジュール (c)TES チップ (d)TES 上に金(Au) バンプを
介	して搭載されるバルクスズ吸収体。下地の透明部は三層メンブレン。 ・・・3.2-2
図 3.2-2	三層メンブレンと温度検知部(超伝導/常伝導二層膜)から成る TES 断面・・3.2-2
図 3.2-3	チタン/金(Ti/Au)二層膜の超伝導転移温度 7gの場所依存性(実験値)・・・3.2-5
図 3.2-4	開発した 9 画素搭載 10mm×10mm TES チップ・・・・・・・・3.2-6
図 3.2-5	メンブレンの代表的熱伝導機構・・・・・・・・・・・・3.2-7
図 3.2-6	TES 動作温度を転移温度 TC に到達させるに要する電力 PTES のメンブレン長 L
	依存性の実験値(O)と理論値(点線,一点鎖線,実線)との比較・・・・・3.2-8
図 3.2-7	SQUID 入力コイルに換算した電流雑音スペクトル ・・・・・・・3.2-9
図 3.2-8	光子入射に対する TES 出力波形の一例 ・・・・・・・・・・3.2-11
図 3.2-9	(a)複数画素 TES の MW-Mux による周波数多重読出回路。簡単のため、2 画素の
	場合を示す。(b) マイクロ波透過率の周波数依存性。(c) (b)に示す8本の
	ディップの各々が、SQUID への入力磁東ΦAに対し、磁束量子Φo(Φo≡h/((2e));
	h: Planck 定数、e: 単位電荷)を単位とする周期的応答を示す。・・・・3. 2-12
図 3.2-10	(a) 複数画素 TES、多重読出回路、極低温冷凍機をベースとする測定系。
	(b) 極低温モジュールの蓋に取り付けた ²³⁷ Np 線源。(c)(b)において
	²³⁷ Np 線源の前部に挟むアルミニウム箔の枚数に対する TES の計数。 ・・・3. 2-13
	²³⁷ Np 線源の分光結果 ・・・・・・・・・・・・・・3.2-14
図 3.2-12	スプライン補間による効果 ・・・・・・・・・・・・・3.2-15
図 3.2-13	60-120 keV 帯スペクトルにおける Spline 補間の効果 ・・・・・・3.2-15

図 3.2	2-14	5 画素 TES のスペクトル・・・・・・・・・・・・・・3. 2-17
図 3.	2–15	画素 A1 の出力波形例・・・・・・・・・・・・・・・3.2-18
図 3.	2-16	60 時間測定による 86.5 keV 付近の ²³⁷ Np と ²³³ Pa のスペクトル・・・・3.2-18
図 3.3	3–1	スズ(Sn:左)と鉛(Pb:右)に対するγ線の光電吸収、
		コンプトン散乱の反応断面積・・・・・・・・3.3-2
図 3.3	3–2	金 (Au) バンプ製ポスト γ 線 TES の顕微鏡写真(左)、および金(Au) バンプ製ポスト
	TES	とエポキシ製ポスト TES による ²⁴¹ Am(59.5 keV)の平均波形の比較・・・・・3.3-2
図 3.3	3–3	超伝導イリジウム/金(Ir/Au)超伝導薄膜温度センサ1画素上に
		金(Au)バンプポストを4個作製したデバイス・・・・3.3-4
図 3.5	3–4	超伝導イリジウム/金(Ir/Au)超伝導薄膜温度センサ上にて
		金(Au)バンプポスト形成後にポスト上部突起を平坦化(左)し、
		その上にスタイキャストを塗布したポスト(右)・・・・3.3-5
図 3.3	3–5	超伝導イリジウム/金(Ir/Au)超伝導温度センサ薄膜上にて4個の金(Au)
		バンプポスト上にスズ(Sn)吸収体を搭載したデバイスの顕微鏡写真・・・・3.3-6
図 3.3	3–6	単結晶スズ(Sn)薄板から作製した吸収体ブロック(左)
		単結晶スズ(Sn)吸収体を実装した TES 検出素子の写真・・・3.3-7
図 3.3	3–7	スズ (Sn) 単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES による
		²⁴¹ Am (59. 5 keV) の光電吸収イベントの応答波形・・・・・・・・3. 3-8
図 3.3	3–8	スズ(Sn)単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES 検出素子(左)、
		スズ(Sn) 単結晶およびタンタル(Ta) 単結晶の γ 線吸収体を実装した
		TES アレイ検出素子の写真(右)・・・・・3. 3-9
図 3.3	3–9	スズ(Sn)単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES による 241 Am $(59.5~keV)$ の
		光電吸収イベントの応答波形とエネルギースペクトル・・・・・・・3.3-11
図 3.3	3–10	タンタル (Ta) 単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES による ^{137}Cs 線源からの
		γ線エネルギースペクトル・・・・・・・3.3-12
図 3.3	3–11	吸収体搭載プロセス装置および 3×3 TES アレイへスズ(Sn) 吸収体を
		実装中の検出器デバイス・・・・・・・・3.3-13
図 3.	3–12	作製した 9 個の 3×3 TES アレイのスズ(Sn) 吸収体検出器デバイス・・・・3.3-14
図 3.5	3–13	試作したスズ(Sn)吸収体 2 mm×2 mm×2 mm 素子の TES アレイ・・・・・3.3-15
図 3.	4–1	²³⁹ Pu 線源から放射されるULX線のエネルギースペクトル ・・・・・3.4-1
図 3.4	4–2	TES 型マイクロカロリーメータを用いて Pu 廃液試料から放射される
		L X 線を計測した場合に予測されるエネルギースペクトル ・・・・・・3.4-2
図 3.4	4–3	241 Am 線源のLX線ピーク強度とアクリル板の厚さの関係を調べる
		スペクトル計測実験の体系 ・・・・・・・3.4-3
図 3.4	4–4	スペクトル計測結果から得られた L $lpha$ 1 $lack$ 線、L eta 1 $lack$ 線及び L γ 1 $lack$ 線
		それぞれのピーク強度とアクリル板の厚さとの関係 ・・・・・・・3.4-3
図 3.4	4–5	Llpha1X線のピーク強度とアクリル板厚さの関係の測定結果と
		シミュレーション計算結果の比較 ・・・・・・・・・・3.4-4
図 3.4	4–6	241 Am 線源のL γ 1 X 線、L β 1 X 線及びL γ 1 X 線が厚さ 5 μ m の金(Au) 吸収体に

	入射したときに付与されるエネルギーのシミュレーション計算結果 ・・・・3.4-5
図 3.4-7	²³⁹ Pu と ²⁴¹ Am の混合線源のLγ1Χ線、Lβ1Χ線及びLγ1Χ線が
	厚さ5 μmの金(Au)吸収体に入射したときに
	付与されるエネルギーのシミュレーション計算結果・・・3.4-5
図 3.4-8	人体を簡易的に模擬した計算体系・・・・・・・・・・・・・3.4-6
図 3.4-9	²³⁷ Np からのLX線が人体表面から発生した場合のスズ(Sn) 吸収体に
	付与されるエネルギースペクトル・・・・・・・・3.4-7
図 3.4-10	²³⁷ Np からのL X 線の発生位置と 3 つのL X 線のピークカウント数の関係・3. 4-8
図 3.4-11	237 Np から放出される L $lpha$ 1 と L eta 1 のピークカウント数の比と
	$Llpha$ 1 と $L\gamma$ 1 のピークカウント数の比・・・3. 4-8
図 3.4-12	PHITS 3.26 で20 keV 光子が厚さ20 μm のスズ(Sn)に入射した際に
	スズ(Sn)に付与されるエネルギー分布・・・3.4-9
図 3.4-13	Geant4 10.7p1 で 20 keV 光子が厚さ 5 μm のスズ(Sn)に入射した際に
	スズ(Sn)に付与されるエネルギー分布・・・3.4-10
図 3.4-14	PHITS 3.26 で ²³⁷ Np からのLΧ線が厚さ 5 μm のスズ(Sn)吸収体に
	入射した際に吸収体に付与されるエネルギー分布・・・3.4-11
図 3.4-15	Geant4 10.7p1 で ²³⁷ Np からのLX線が厚さ5μm のスズ(Sn) 吸収体に
	入射した際に吸収体に付与されるエネルギー分布・・・3.4-11
図 3.4-16	四面体メッシュモデルによる人体を前面から見た時の断面図・・・・・・3.4-12
図 3.4-17	四面体メッシュモデルによる人体を頭部から見た時の胸部断面図・・・・3.4-12
図 3.4-18	Pu 同位体としての線源の移動範囲 (-5.0 cm から 1.0 cm)と
	TES アレイスペクトロメータとしてのスズ (Sn) 吸収体の位置・・・・・3. 4-14
図 3.4-19	y=-5.0 cm の位置に ²³⁷ Np がある場合の1個のスズ(Sn)吸収体に
	付与されるエネルギー分布・・・・3.4-14
図 3.4-20	²³⁷ Np の位置を変化させた時の3種類のLX線の相対強度の変化・・・・・3.4-15
図 3.4-21	237 Np の位置を変化させた時のL eta 1に対するL $lpha$ 1の比と
	Lγ1に対するLα1の比・・・・・3.4-15
図 3.4-22	同放射能の ²³⁷ Np と ²³⁵ U の位置を変化させた時の
	3 種類の L X 線の相対強度の変化・・・・・3. 4-16
図 3.4-23	237 Np の位置を変化させた時のL eta 1に対するL $lpha$ 1の比と
	Lγ1に対するLα1の比・・・・・3.4-16
図 3.4-24	²³⁷ Np のみがある場合にLX線が線源位置から
	1個のスズ(Sn)吸収体の方向のみに放出される場合の
	スズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル・・・・・3. 4-17
図 3.4-25	237 Np のみがある場合にLX線が線源位置から 4π 方向に放出される場合の
	16 個のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル・・・・・3. 4-18
図 3.4-26	妨害核種として ²³⁷ Np と同放射能の ²³⁵ U がある場合にLX線が線源位置から
	1個のスズ(Sn)吸収体の方向のみに放出される場合の、
	スズ(Sn)吸収体に付与されるエネルギースペクトル・・・・・3.4-18

図 3.4-27	妨害核種として ²³⁷ Np と同放射能の ²³⁵ U がある場合に 16 個の
	スズ(Sn)吸収体に付与されるエネルギースペクトル・・・・・3.4-19
図 3.4-28	L X線のアクリルによる透過を測定する実験の模式図・・・・・・・3.4-19
図 3.4-29	厚さが 0 mm、6 mm、12 mm のアクリル板を透過後の
	L X 線のエネルギースペクトル・・・・・・・3. 4-20
図 3.4-30	アクリル板の厚さに対する透過後のLX線の強度変化・・・・・・・3.4-21
図 3.4-31	アクリル板の厚さに対する L $lpha$ 1 に対する L γ 1 の強度比・・・・・・3.4-21
図 3.4-32	237 Np のLX線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からのLX線の線源位置を
	変化させた時の 237 Np の 3 種類のLX線と γ 線の相対強度の変化・・・・ 3 . 4- 23
図 3.4-33	237 Np のLX線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からのLX線の線源位置を
	変化させた時のL eta 1に対するL $lpha$ 1、L γ 1に対するL $lpha$ 1、
	$L\gamma$ 1に対する $L\beta$ 1、 γ 線に対する $L\gamma$ 1の強度比・・・・3.4-23
図 3.4-34	237 Np のLX線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からのLX線が線源位置から
	1個のスズ(Sn)吸収体の方向のみに放出される場合のスズ(Sn)吸収体に
	付与されるエネルギースペクトル・・・3.4-24
図 3.4-35	237 Np のLX線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からのLX線が 4π 方向に
左	女出される場合のスズ(Sn)吸収体に付与されるエネルギースペクトル・・・・3.4-24
図 3.4-36	TES 型マイクロカロリーメータの肺モニタ適用時の肺中の ²³⁹ Pu 測定体系・・3. 4-25

略語一覧

CVD: Chemical Vapor Deposition (化学気相成長)

EGS5: Electron Gamma Shower Version 5 (電子光子輸送計算コード 5)

FWHM: Full Width at Half Maximum (半値幅)

GCC : GNU Compiler Collection (GNU コンパイラコレクション)

Geant4: Geometry and Tracking Software 4

(体系構築粒子追跡ソフトウェア 4)

HEMT: High Electron Mobility Transistor (高電子移動度トランジスタ) HPGe: High Purity Germanium Detector (高純度冷却ゲルマニウム検出器)

ICRP: International Commission on Radiological Protection

(国際放射線防護委員会)

MW-Mux: Microwave Multiplexer (マイクロ波マルチプレクサ)

PHITS: Particle and Heavy Ion Transport code System

(粒子重イオン輸送コードシステム)

RIE : Reactive Ion Etching (反応性イオンエッチング法)

SQUID: Superconducting Quantum Interference Device

(超伝導量子干涉素子)

DC-SQUID: Direct Current Superconducting Quantum Interference Device

(直流超伝導量子干涉素子)

TES : Transition Edge Sensor (超伝導転移端センサ)

TRU : Trans-Uranium (超ウラン元素)

概略

研究の背景及び目的等

本研究では、高速炉の燃料取扱での作業員の絶対的な安全性確保を通して、高速炉核変換技術による廃棄物減容を可能とする革新的原子カシステム構築を支えることのみならず、福島廃炉措置における燃料デブリ処理時に発生する放射性ダストへの防護対策強化にも貢献し、原子カエネルギー利用の安全性向上を図ることを目的とした TRU 迅速線量評価システムの開発を行う。

原子力施設の安全において事故の未然防止は当然のことながら、高速炉開発、高経年化原子力施設の補修や廃止措置、福島第一発電所の廃炉作業などでの事故に備えて被ばく線量評価の高度化を図ることは事象の軽減や改善のために有効な措置となり得る。被ばく線量は、放射線に係る事故において最初に確認が要求される事項の1つであるとともに、医療措置などの判断のために迅速性および確実性が求められる情報である。しかしながら、現状、Pu 等の超ウラン元素(TRU)核種は α 線測定の困難さから体内中の摂取量の評価精度は十分ではない。Pu 等からの X 線を測定する肺モニタは Ge 半導体検出器の分解能が十分ではなく Pu と 241 Am の識別はできない。また、Pu 等の内部摂取後、当該者の尿や便のバイオアッセイ試料を毎日、5 日採取するが、その 1 日分のバイオアッセイ試料の分析に熟練分析員がさらに 5 日の期間を要しており、迅速化・効率化が求められている。

そこで、近年開発が進んでいる高分解能で非破壊測定が可能な超伝導量子計測技術を肺モニタおよびバイオアッセイ試料の分析に適用することにより人体の内部被ばく線量の評価において、α線測定に依らない革新的な X 線γ線超精密分析手法を適用することで、迅速かつ確実な線量評価のための TRU 核種迅速線量評価システムの基盤技術の開発を行う。

超伝導量子計測技術として、具体的には既存 Ge 半導体検出器の分光精度を大きく凌駕する超伝導転移端センサ(Transition Edge Sensor :TES)を多数集積した X 線・ γ 線超エネルギー高分解能スペクトロメータを開発し、これを肺モニタおよびバイオアッセイ試料分析に適用して、迅速かつ確実な人体内の Pu 等の TRU 核種の摂取量評価が可能な TRU 核種迅速線量評価システムの基盤技術を開発する。この技術が確立されれば、従来の肺モニタの精度向上が可能となるとともに、これまで熟練分析員がバイオアッセイ 1 試料に約 5 日かかっていた分析期間を短縮することが可能となる。

平成 18 年より日本原子力研究開発機構は九州大学や東京大学とともに TES による肺モニタ測定のための 239 Pu および 241 Am の L X 線測定、Pu 試料等から放出される X 線や γ 線の高分解能測定を実施し、原子力産業分野への TES の適用を目指して共同で研究を進めてきた。平成 26 年からは原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブにおいて、東京大学を中心として産業技術総合研究所および日本原子力研究開発機構が受託研究を実施し、小規模アレイ TES 検出器の性能評価のために、Pu 以外にも 237 Np 等のマイナーアクチニドの測定を実施し、TES が精密核物質計測の分析ツールとして大きな威力を発揮する可能性を有することを実証した。

これまでのこれらの研究開発により TES 検出器素子の高分解性能の実証、原子力施設において

連続運転可能な実用的な冷凍機システムの開発、複数画素の TES 検出器の小規模アレイ化が達成されてきた。しかしながら、線量評価等の分析への適用・展開を図るためには、大規模なアレイ化によるさらなる検出効率の向上が必要である。

本研究の実施内容

本研究では、肺モニタおよびバイオアッセイ試料分析に適用して人体内の Pu 等の TRU 核種の摂取量評価が可能な TRU 核種迅速線量評価システムの基盤技術の開発を図るために、基本ユニットとして 64 画素 TES アレイスペクトロメータに係る製作技術、ソフトウェア技術および TRU 核種の体内摂取量の評価に関連して TRU の体内の沈着深さを推定する手法の開発を行った。また、放射性物質を用いた測定実験の結果を基に、TRU 迅速線量評価システムのための放射線測定器としての基本的な性能を評価した。本研究の実施により、L X 線用・ γ 線用の多画素 TES アレイスペクトロメータ製作の基盤技術を開発し、64 画素 TES アレイスペクトロメータの放射線測定器としての基本的なシステム実現の見通しが得られた。

本研究の成果

本研究の実施により、世界に先駆けて 4 個の金(Au) バンプポストで吸収体を安定的に搭載するデバイス作製手法および L X 線・ γ 線吸収体の搭載に耐え得る低応力三層メンブレンの製作技術を確立した。また、均一な性能を有する温度制御可能な転移温度を持つ超伝導薄膜の製作技術を確立し、今後の大規模 TES アレイスペクトロメータで必要となるマイクロ波多重読出回路 (MW-Mux) を国内ではじめて開発した。L X 線・ γ 線吸収体については、単結晶スズ(Sn) および単結晶タンタル (Ta) の検討の結果、単結晶を適用することによる特段の熱特性の改善、およびエネルギー分解能の向上を確認するには至らなかった。また、タンタル (Ta) については、水分の吸着による熱容量の増大を原因とする性能の著しい劣化も確認され、現段階では安価に調達可能な非単結晶のスズ (Sn) バルクを適用することとした。

開発した技術を基に、10 mm×10 mmのチップに9画素(3×3)のスズ(Sn)吸収体を搭載した TES 素子および MW-Mux を組み込んだプロトタイプ分光計を試作し、²³⁷Np 線源を用いた測定を実施した。吸収体の脱落のため5素子での測定となったが、多画素 TES アレイガンマ線スペクトロメータでのガンマ線・硬 X 線計測および計測信号の同時読み出しに国内ではじめて成功し、エネルギー分解能も86.5 keV において約50 eV を確認するなどの十分な成果が得られた。

測定実験の成果を基に、64 画素 TES アレイスペクトロメータの検出限界の性能を評価し、実用化に向けての必要な画素数を推定することができた。従来のバイオアッセイの化学分析では5日間が必要であるが、2000 画素レベルの TES アレイスペクトロメータでは、タイプ S の分析であれば、3 日間の測定で判定できる可能性が示された。しかしながら、タイプ M についでは、画素数の増加による大面積化のみでは検出下限を下げることは困難であり、TES 素子の集積化や多層化を検討する必要がある。その他、大規模 TES アレイスペクトロメータに適用する解析ソフトの開発や TRU 核種の体内摂取量の評価に関連して TRU の体内の沈着深さを推定する手法を開発し、大規模 TES アレイスペクトロメータ使用の環境整備を進めることができた。一方、令和4年2月に肺ファントムの測定および3月に燃料研究棟の管理区域内での測定を計画していたが、2月初めに希釈冷凍機のインサート部の閉塞による故障の発生および新型コロナウイルスの影響での物流

の混乱に伴う部品の入手困難による施設側の工事の 3 月末までの延期により施設での実験は令和 4 年 8 月末まで期間延長した。令和 4 年 7 月から測定を再開したが、TES 検出器の不調及び管理 区域内の測定試験の中止により測定効率に係る測定データが得られなかったため、測定効率は計算で評価して 64 画素 TES アレイスペクトロメータの性能推定を行った。管理区域での測定試験を通じて、実用化に向けての課題などの知見が得られた。

今後の展開

本研究において、64 画素 TES アレイスペクトロメータの検出下限を評価し、バイオアッセイ試料測定においては 239 Pu の L X線測定で 120 Bq が検出限界と試算された。また、 γ 線核種分析では、 239 Pu で約 200 kBq が検出限界と試算された。これら試算結果からバイオアッセイ試料の 239 Pu の約 20 Bq レベルの測定には 2000 画素 TES レベル以上が必要となるが、本研究で開発した TES アレイ化の基盤技術によってスケールアップ及び集積化での対応が可能と考える。なお、核物質管理の簡易 γ 線核種測定では 64 画素 TES で適用可能と考えられ、遠隔非破壊での測定の実用化に向けての展開が期待できる。

今後の展開として、2048 画素 TES アレイスペクトロメータの実現に向けて、今回開発した基盤 技術を基に、64 画素 TES アレイスペクトロメータを基本ユニットとし、素子実装や安定動作を確認して、それを 4 個組み合わせて基本モジュールとして 256 画素 TES を開発する、さらに、素子の集約化等の開発を進めるとともに、それを 8 個実装して、2048 画素 TES アレイスペクトロメータとする段階的アプローチにより開発を進めていく必要がある。

これまでは、基盤研究として大学等の各組織が所有する冷凍機を利用し、それぞれの冷凍機に合わせて TES 回路等を組み込んで開発及び測定試験等を行ってきたが、これまでの成果を基に実用機に向けて冷凍機システムから抜本的に見直し、64 画素以上の大規模 TES アレイスペクトロメータに最適化した標準的な基本システムを構築、試作し、核物質管理測定や線量評価適用などの実用化に向けた開発を進めることが考えられる。一方、原子力産業への適用において、γ線測定の吸収体の搭載は不可欠であるが、吸収体の脱落防止等の歩留まりの改善が課題として残っており、量産化技術の開発を継続する必要がある。

国内外において TES 検出器技術の開発は着実に進展しており、TES はいずれ実用化されることは確実である。これからの開発及び利用のためにも幅広い研究者の育成を図っていく必要がある。また、産総研で開発された三層メンブレン、均一な超伝導薄膜の製作技術および MW-Mux は最先端の製造技術であり、将来の実用機の量産化に向けた製造メーカの育成も今後必要となると思われる。

1. はじめに

本研究では、高速炉の燃料取扱での作業員の絶対的な安全性確保を通して、高速炉核変換技術による廃棄物減容を可能とする革新的原子カシステム構築を支えることのみならず、福島廃炉措置における燃料デブリ処理時に発生する放射性ダストへの防護対策強化にも貢献し、原子カエネルギー利用の安全性向上を図ることを目的とした TRU 迅速線量評価システムの開発を行う。

原子力施設の安全において事故の未然防止は当然のことながら、高速炉開発、高経年化原子力施設の補修や廃止措置、福島第一発電所の廃炉作業などでの事故に備えて被ばく線量評価の高度化を図ることは事象の軽減や改善のために有効な措置となり得る。被ばく線量は、放射線に係る事故において最初に確認が要求される事項の1つであるとともに、医療措置などの判断のために迅速性および確実性が求められる情報である。しかしながら、現状、Pu等のTRU核種はα線測定の困難さから体内中の摂取量の評価精度は十分ではない。Pu等からのX線を測定する肺モニタはGe検出器の分解能が十分ではなくPuと²⁴¹Amの識別はできない。また、Pu等の内部摂取後、当該者の尿や便のバイオアッセイ試料を毎日、5日間採取するが、その1日分のバイオアッセイ試料の分析に熟練分析員がさらに5日の期間を要しており、迅速化・効率化が求められている。

そこで、近年開発が進んでいる高分解能で非破壊測定が可能な超伝導量子計測技術を肺モニタおよびバイオアッセイ試料の分析に適用することにより人体の内部被ばく線量の評価において、 α 線測定に依らない革新的な X 線 γ 線超精密分析手法を適用することで、迅速かつ確実な線量評価のための TRU 核種迅速線量評価システムの基盤技術の開発を行う。

超伝導量子計測技術として、具体的には既存 Ge 半導体検出器(以下、「Ge 検出器」)の分光 精度を大きく凌駕する超伝導転移端センサ (Transition Edge Sensor: TES)を多数集積した X 線・ γ 線超エネルギー高分解能スペクトロメータを開発し、これを肺モニタおよびバイオアッセイ試料分析に適用して超精密核物質同定を行うことにより、迅速かつ確実な人体内の Pu 等の TRU 核種の摂取量評価が可能な TRU 核種迅速線量評価システムの基盤技術を開発する。この技術が確立されれば、従来の肺モニタの精度向上が可能となるとともに、これまで熟練分析員がバイオアッセイ 1 試料に約 5 日かかっていた分析期間を短縮することが可能となる。

平成 18 年より日本原子力研究開発機構(以下、「原子力機構」)は九州大学や東京大学とともに TES による肺モニタ測定のための ²³⁹Pu および ²⁴¹Am の L X 線測定、Pu 試料等から放出される X 線や y 線の高分解能測定を実施し、原子力産業分野への TES の適用を目指した共同で研究を進めてきた。平成 26 年からは原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブにおいて、東京大学を中心として産業技術総合研究所(以下、「産総研」)および原子力機構が受託研究を実施し、小規模アレイ TES 検出器の性能評価のために、Pu 以外にも ²³⁷Np 等のマイナーアクチニドの測定を実施し、TES が精密核物質計測の分析ツールとして大きな威力を発揮する可能性を有することを実証した。

これまでのこれらの研究開発により TES 検出器素子の高分解性能の実証、原子力施設において連続運転可能な実用的な冷凍機システムの開発、数画素の TES 検出器の小規模アレイ化が達成されてきた。しかしながら、線量評価等の分析への適用・展開を図るためには、大規模なアレイ化

によるさらなる検出効率の向上が必要である。

本研究では、大規模 TES アレイスペクトロメータシステムへの将来展開を図るための基本ユニットとして 64 画素 TES アレイスペクトロメータを開発し、放射線測定器としての基本的なシステムを確立するとともに、肺モニタの測定およびバイオアッセイ試料測定への適用のための性能を確認する。

TES アレイスペクトロメータシステムは、256 画素以上に拡張可能なように、多画素 TES アレイ検出器と1つの多重読出回路を開発し、それを並列化によってスケールアップする手法が最も合理的である。したがって本研究において、まず 16 画素の TES アレイ検出器および読出回路からなるミニスペクトロメータを製作する。これを冷凍機等の測定システムに組込み、放射性物質を用いた測定試験により基本性能の評価を行い、TES アレイの高分解能化および読出回路の多重度の検討にフィードバックする。さらに 64 画素 TES アレイスペクトロメータの作製を行い、スケールアップの効果の確認、肺モニタおよびバイオアッセイ試料分析への適用のための性能評価を行う。測定試験の結果は、将来の 256 画素以上の大規模 TES アレイスペクトロメータの検討にフィードバックして TES アレイの高分解能化および読出回路のさらなる多重度の増大のために活用する。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本研究の全体計画を図 2.1-1 に示す。初年度において、TES アレイスペクトロメータの実験 準備を行い、次年度に開発した単画素 TES を冷凍機へ組み込み、基本的な試験を実施する。3 年目は放射性物質等を用いた測定試験を実施し、16 画素 TES アレイミニスペクトロメータの基本性能を確認する。4 年目に 64 画素 TES アレイスペクトロメータの測定試験を行い、内部被ばく線量評価に係る肺モニタおよびバイオアッセイ試料への適用性を確認する。64 画素 TES アレイスペクトロメータの基盤技術の確立によって、画素数のスケールアップにより、実用的な肺モニタおよびバイオアッセイ試料分析のための超伝導量子計測技術を駆使した TRU 核種迅速内部被ばく線量評価システムが可能となる。

本研究の進捗については、毎年度に研究推進委員会を開催し、広く意見を聴きながら研究を進める。

本研究の実施体制を図 2.1-2 に示す。本研究は、原子力機構、産総研、東京大学および九州大学の4機関が連携して実施する。原子力機構は本研究の全体取りまとめを行うとともに、多重画素 TES アレイスペクトロメータの解析方法の開発、放射性物質を用いた原子力施設での測定試験等を実施し、肺モニタおよびバイオアッセイ試料分析への適用について評価する。産総研はスペクトロメータの心臓部となる TES アレイ検出器とそれに対応した多重読出回路の開発製作を行い、原子力機構に TES アレイスペクトロメータとして供給する。東京大学は、数十keV 以上の高エネルギー光子の検出効率の飛躍的増大のため、重金属からなるγ線吸収体の開発および TES アレイへの吸収体実装技術の開発を担当する。九州大学は、TES を用いた肺モニタとして実績ある L X 線測定解析技術を L X 線・γ 線総合分析へ適用するとともに、TES 動作に必須となる極低温冷凍機の安定動作に関する知見と技術を提供する。

研究推進委員会は課題代表、再委託機関の業務主任者および外部委員で構成される。外部 委員は、分析技術開発、デバイス開発、応用技術、産業化技術、原子力現場に係る専門家や メーカ技術者の7名に依頼した。

超伝導量子計測技術を駆使した TRU 核種迅速線量評価システム

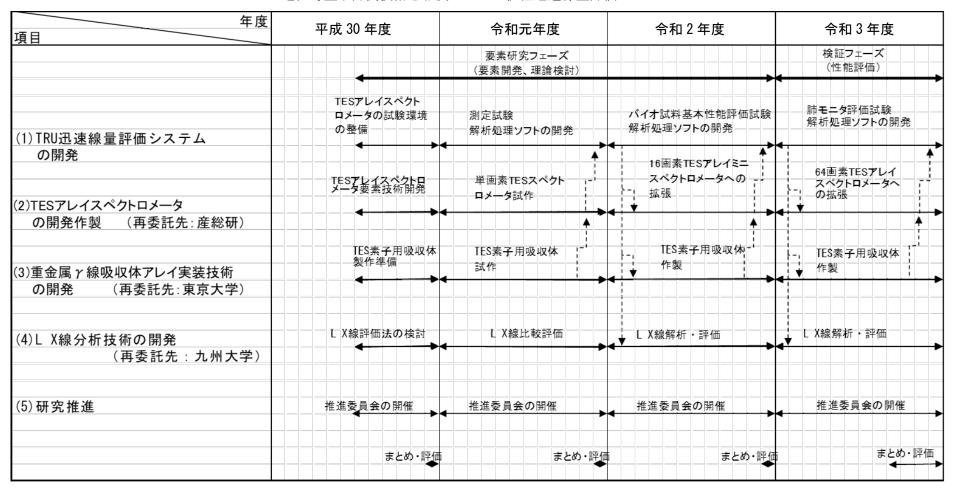


図 2.1-1 全体計画

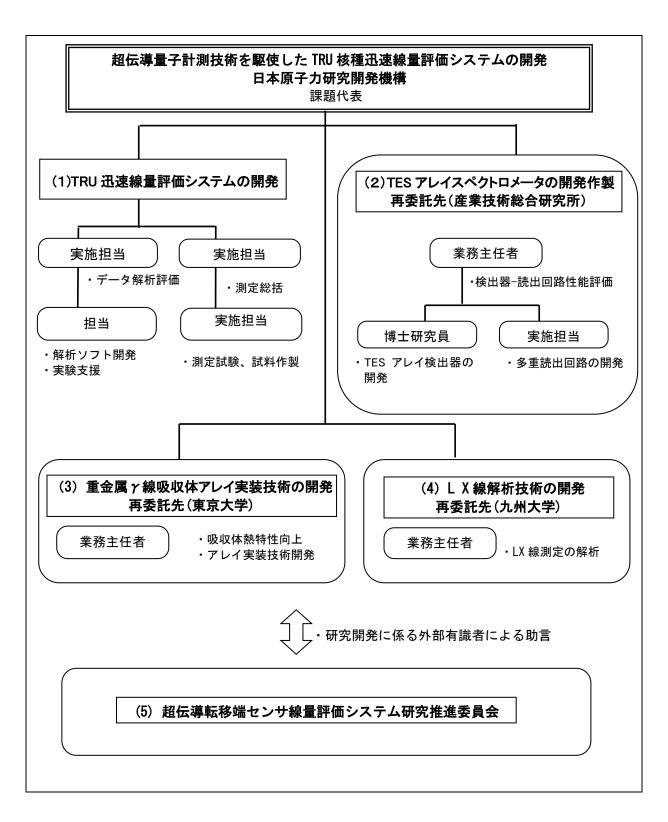


図 2.1-2 研究開発体制

3. 業務の実施内容および成果

3.1 TRU 迅速線量評価システムの開発

本研究の実施にあたって研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究開発を進めた。

多画素 TES アレイスペクトロメータの大規模な信号データの解析を行うソフトを開発し、性能評価により解析時間の短縮化を確認し、大規模な信号データの解析ソフトの製作が完了した。また、大洗研究所において冷凍機を整備し、管理区域内での試験環境を整え、管理区域内に搬入し、作動させた。また、大洗研究所において放射性物質を用いた TES アレイスペクトロメータの測定試験を行った。さらに、²⁴⁴Cm の線源を用いた測定実験を産総研で行い、TES スペクトロメータの動作を確認した。

多画素 TES スペクトロメータについて、肺モニタやバイオアッセイ試料の実際の内部被ばく線量の測定を考慮した試験を実施し、TRU 迅速線量評価システムの基盤技術としての適用性、拡張性について 64 画素 TES アレイスペクトロメータの総合的な評価を行った。

3.1.1 大規模信号データの解析ソフトの開発製作【H30-R2】

(1) 信号データの解析にかかわる整備【H30】

16 画素 TES アレイミニスペクトロメータおよび 64 画素 TES アレイスペクトロメータから得られる大規模な信号データの解析に備えて計算環境の整備として、最大 32 スレッドでの計算が可能なワークステーションおよびアプリケーションソフトの購入を行った。購入したワークステーション等の外観は図 3.1-1、スペックは表 3.1-1 のとおりである。ワークステーションには、信号データの解析プログラムの作成・検討に使用するコンパイラ群である GCC⁽¹⁾および波高スペクトルの解析や実験環境の試算に使用する電子・光子輸送計算コード EGS5⁽²⁾を導入し、計算環境の整備を図った。



図 3.1-1 ワークスステーション外観

表 3.1-1 ワークステーションのスペック

Precision 7920 Tower				
OS	Windows 10 Pro Workstations 用(4 コア プラス)日本語			
CPU	デュアルインテル Xeon ゴールド 6134 3.2G, 8C/16T, 10. 4GT/s 3UPI,			
	24.75M キャッシュ, ターボ, HT (130W) DDR4-2666			
メモリ	192GB(12x16GB)2666MHz DDR4 ECC RDIMM メモリ			
ビデオ カード	NVIDIA Quadro P400, 2GB, 3mDP			
ハードディスク	1st : 2.5インチ 512GB SATA SSD Class 20			
	2nd : 3.5インチ 4TB (5400RPM) SATA HDD			
	3rd : 3.5インチ 4TB(5400RPM) SATA HDD			
ソフトウェア	Microsoft Office Home and Business 2016(日本語)			

さらに、ワークステーションについては、C++言語で記述したコードを GCC の C++コンパイラでコンパイルして作成した共分散行列算出用プログラムおよび EGS5 コードの 2 つを利用して、ベンチマークテストを行った。

(a) 共分散行列算出用プログラムを利用したベンチマークテスト

共分散行列の算出は、Principal Component Analysis 法で TES 信号データの波高値を解析する際に重要となるアルゴリズムである。当該手法では、まず、取得した信号パルスを平均する。次に、平均パルスの電圧値からのそれぞれの信号パルスの電圧値の残差を求める。残差を行列化し、その共分散を求める。最後に、共分散行列から固有ベクトルを算出し、固有ベクトル同士の関係を利用して波高値の解析を行う。これにより、TES 信号データの波高値解析で一般的に用いられている最適フィルタ法に比べて、2 倍程度高いエネルギー分解能を達成出来る②。行列演算ライブラリ Eigen③と Open Multi-Processing API④を利用して、信号データを行列化し、上記のアルゴリズムのうちの残差の共分散行列の算出までを複数のCPUによる分割処理で高速に演算出来るコードを記述した。コードについては計算に割り当てるスレッド数(分割処理させる数)を1スレッドから最大32スレッドまで変化させた複数のコードを用意し、それぞれからC++コンパイラで実行ファイルを作成した。ベンチマークテストは、1 画素のTES の信号波形を模擬した13 ビット×17,000 信号を入力ファイルとして、

- a) 1種類の実行ファイルを1つのみを稼働させ、計算に要する時間を測定するテスト
- b) 同一の計算スレッド数割り当てた実行ファイルを、割り当てスレッド数の合計が32 スレッドになるまで複数個同時に稼働させ、計算に要する時間の平均を求めるテストの2種類を実施した。

a)のテストの結果から得られた計算に割り当てるスレッド数と1計算あたりの所要時間の関係を図 3.1-2 に示す。割り当てるスレッドが 16 スレッド程度までは割り当てスレッド数を増加させることで計算時間の短縮が図られるが、それ以上のスレッドを割り当ててもほとんど計算時間は変化しないことが確認できた。

b)のテストの結果から得られた 1 計算あたりの平均所要時間に対して、64 画素分の信号の計算に必要なバッチ数(64÷実行ファイルの並列稼働数)を乗ずることで、64 画素分の信号の計算に要する時間を見積もることが出来る。1 つの実行ファイルに割り当てるスレッド数と 64 画素分の計算に要する時間の関係は図 3.1-3 のとおりとなった。この関係から、計算に割り当てるスレッド数を増やし同時に稼働できる実行ファイルを減らし、バッチ処理数を増やす方式よりも、計算割り当てスレッド数を減らし同時に稼働できる実行ファイルを増やし、バッチ処理数を減らす方式の方が 64 画素分の波形解析を行う際には有利となることが確認された。

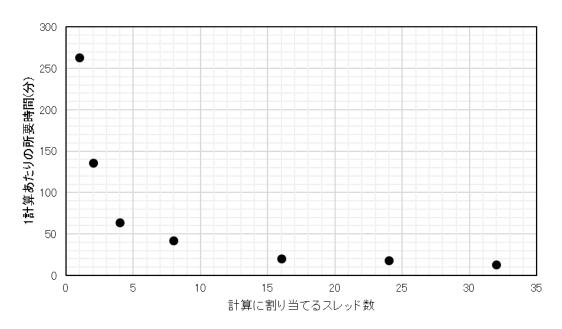


図3.1-2 計算に割り当てるスレッド数と1計算あたりの所要時間の関係

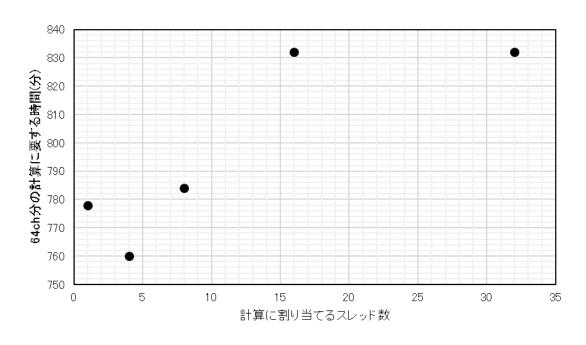


図 3.1-3 1 つの実行ファイルに割り当てるスレッド数と 64 画素分の計算に要する時間

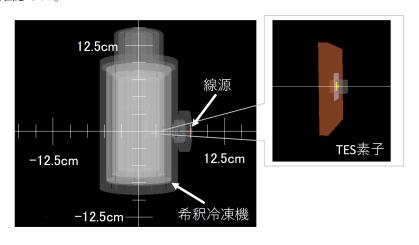
(b) EGS5 コードを利用したベンチマークテスト

テストに際して、 3 He- 4 He 希釈冷凍機と 1 画素の TES スペクトロメータを模擬した計算体系を構築した(図 3.1-4)。線源データには 237 Np および放射平衡状態にある 233 Pa を選択し、それらの X 線および γ 線の放出率のデータは Table of Radioactive Isotopes $^{(6)}$ から取得した。1 計算あたりの試行回数を 1×10^7 に設定し、同時に実行する EGS5 コード数(並列計算数)を 1 から 32 計算まで変化させて、1 計算あたりの所要時間を算出した。並列計算数と 1 計算あたりの所要時間の関係を図 3.1-5 に示す。並列計算数が 14 計算までは 1 計算に要する時間は一定であるが、15 計算を超えると 32 計算まで直線的に増加していくことが確認出来た。図 3.1-5 の関係を用いて、以下の式から 1 試行あたりの計算時間を求めることが出来る。

(1試行あたりの計算時間) = (1計算あたりの所要時間) $/(並列計算数<math>\times (1\times 10^7)$)

----(3. 1-1)

(3.1-1)式に基づくと、EGS5 の計算の場合には、並列計算数を可能な限り多くとる方が、1 試行あたりの計算時間を短くすることができ、短い時間でより多くの統計量が得られることを確認した。



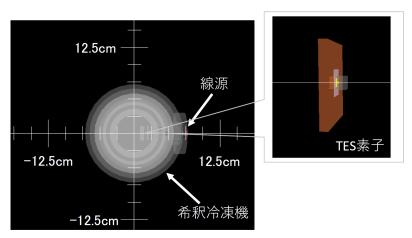


図 3.1-4 EGS5 計算体系

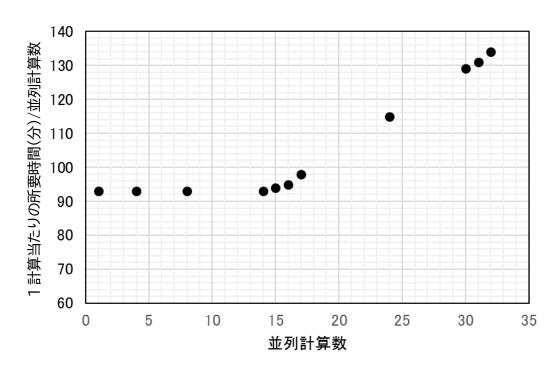


図 3.1-5 並列計算数と1計算あたりの所要時間の関係

(2) 大規模信号データの解析ソフトの製作および解析速度の評価【R1】

本研究の目指す 64 画素 TES アレイスペクトロメータからは大量の信号データが出力されるため、原子力機構で作成し、これまで使用していた並列処理に対応していない信号解析ソフトウェアでは処理に時間が掛かり過ぎてしまう問題があった。そこで、信号データを解析するためのソフトウェアとして、Windows のコマンドプロンプトで実行可能な CUI コマンド tesa を製作し、TES アレイスペクトロメータからの信号データの解析時間の短縮を図った。

tesa は各計算処理を行うための複数のコマンドで構成され、各コマンドは以下の機能を備えている。

- ① conv コマンド:信号データをバイナリ形式からテキスト形式に変換する
- ② exsg コマンド:指定された信号番号のデータを抽出する
- ③ baseline コマンド:ベースラインを計算する
- ④ model コマンド:モデルパルスおよびそのパワースペクトルを作成する
- ⑤ noise コマンド:ノイズのパワースペクトルを作成する
- ⑥ optf コマンド:最適フィルタ法による解析を行う
- ⑦ pca コマンド:Principal Componet Analysis (PCA) 法による解析を行う
- ⑧ hstg コマンド:波高値データからエネルギー校正してヒストグラムを作成する
- ⑨ hstgsum コマンド:波高値データから得たヒストグラムを合算する

tesaでは、上記のコマンド①から⑤で解析の準備を行った後、コマンド⑥または⑦を

用いて信号の波高値解析アルゴリズムを最適フィルタ法または PCA 法から選択して波高値解析を行い、コマンド⑧および⑨で波高値スペクトルを作成する。

最適フィルタ法 $^{(7)}$ では、信号が常に同じ波形(モデルパルス)であり、なおかつ取得信号とノイズが完全に独立であるという仮定を利用する。この仮定のもとでは、周波数空間において、測定で得られた信号 D(f) について、規格化されたモデルパルス M(f) に波高値 A をかけたものにノイズ成分 N(f) が含まれる形で、

$$D(f) = A \times M(f) + N(f)$$
 ---- (3.1-2)

とかけることを利用し、測定で得られた信号 D(f) とモデルパルス M(f) の残差を最小にするような波高値 A を最小二乗法により求める。この手法では、S/N を最大化して信号の波高値を求めることが出来る。

一方で PCA 法⁽²⁾では、取得したすべての信号パルスを平均し、その平均パルスとそれぞれの信号パルスの電圧値の残差を求める。次に、残差を行列化し、その共分散を求める。最後に、共分散行列から固有ベクトルを算出し、各信号パルスを固有ベクトル上に投影し、投影同士の関係を利用して波高値解析を行う。この手法を用いることで、信号のベースラインの揺らぎ等のエネルギー分解能を劣化させる外的要因を排除して、波高値の解析を行うことが出来る。

PCA法は、最適フィルタ法に比べて2倍程度高いエネルギー分解能を達成出来る²⁾が、 適用できるエネルギー範囲が狭く、解析に多くの時間を要するので、両手法を測定対象 や目的に応じて選択する必要がある。

平成 30 年度に整備したワークステーション(Dell Precision 7920 Tower)上で、データ量が 8192 データ点/1 信号×65536 信号のテストデータに対して、本ソフトウェアをテストした結果を表 3.1-2 に示す。最適フィルタ法による解析の所要時間(表中の手順 1 および手順 3 から 10 の計算時間の合算)は 17 秒程度、PCA 法による解析の所要時間(表中の手順 1、7 および 11 の計算時間の合算)は 52 秒であった。64 画素 TES アレイスペクトロメータについて各画素からテストと同規模の信号データが取得された場合でも、最適フィルタ法であれば 20 分程度(=1 処理あたり 17 秒×64 処理)、PCA 法であれば最短 60 分程度(=1 処理あたり 52 秒×64 処理)で解析が完了することが示され、本ソフトウェアは十分実用的な解析速度を備えていることが確認できた。

なお、本ソフトウェアによる解析は、原子力機構でこれまで使用していたソフトウェ アと同等の精度を持つことも、テストデータの解析結果の比較により確認できている。

表 3.1-2 ソフトウェアのテスト結果

手順 番号	コマンド	テスト時の計算内容	計算時間
1	conv	信号データをバイナリから CSV に変換しつつチャネル毎に分割。テストではチャネル数は1を指定し実質的に分割しない	3秒
2	exsg	分割信号データから全範囲を指定して全信号データを抽出 (波形の確認に使用し、解析自体には直接使用しない。)	2秒
3	baseline	信号データのベースラインを計算;最初の300個の平均を計算	2秒
4	baseline	信号データのベースラインを計算;8192 個目のデータを抽出 (平均値を求める範囲として8192 個目のみを指定)	1秒
5	conv	ノイズデータをバイナリから CSV に変換しつつチャネル毎に分割。ただし、チャネル数は1を指定し実質的に分割しない	0.1 秒未満
6	baseline	ノイズデータのベースラインを計算;最初の 300 個の平均を計算	0.1 秒未満
7	model	信号データからモデルパルスおよびそのパワースペクトルを計 算	2秒
8	noise	ノイズデータからのパワースペクトルを計算	0.1 秒未満
9	optf	最適フィルタによる解析	9秒
10	hstg	最適フィルタによって得られた波高値を基にヒストグラムを作 成	0.1 秒未満
11	pca	PCA による解析。計算に必要な信号データの平均値は手順 7 で得られたモデルパルスを使用	47秒

(3) 大規模信号データの解析ソフトの評価【R2】

平成 30 年度に整備したワークステーション(Dell Precision 7920 Tower)上で、令和元年度に製作した大規模信号データ解析ソフトウェア tesa の Pu 測定時の信号解析能力性能評価を実施した。表 3.1-3 に tesa の概要を示す。

Pu 測定に係る性能評価には、試料の組成情報やスペクトルの輝線の情報が必要となることから、過去にスズ(Sn)吸収体搭載型の単画素 TES で取得した硝酸 ²³⁹Pu 溶液(²⁴¹Am を放射能比で 3%程度含有)を測定した際の信号データを用いた。

性能評価は、平成30年度のワークステーション構築の際に併せて整備した、電子・光子輸送計算コードEGS5⁽⁵⁾による計算体系を用いたシミュレーション結果と、tesaの主成分分析法(PCA法)で解析した実測値との比較により実施した。

超ウラン元素の L-X 線や 239 Pu の 51.6 keV γ 線、 241 Am の 59.5 keV γ 線等を含むエネルギー領域(低エネルギー領域)の比較結果を図 3.1-6 に、 239 Pu からの K-X 線を含むエネルギー領域(高エネルギー領域)の比較結果を図 3.1-7 に示す。

低エネルギー領域については、実験とシミュレーションに大きなずれがないことから、解析により想定通りのピークや計数が得られている。 239 Pu の 51.6 keV γ 線および 241 Am の 59.5 keV γ 線ピークの正味計数から 239 Pu と 241 Am の放射能比を算出したところ、 239 Pu:

 241 Am = $1:0.028\pm0.007$ であり、Ge 半導体検出器などで計算した試料中の放射能比である 239 Pu: 241 Am = 1:0.029 とほぼ同一の数値が得られた(表 3.1-4)。

一方で、高エネルギー領域については、 239 Pu からの 94.6 keV の U K $_{\alpha 2}$ -X 線、94.6 keV の U K $_{\alpha 1}$ -X 線、129.3 keV の γ 線が実測により識別出来ていることが、比較結果から確認できる。したがって、tesa の PCA 法による解析を用いることで、 241 Am を放射能比で 3%程度含有する 239 Pu 試料であっても、5 から 10 カウント程度の計数が得られれば 239 Pu ピークが識別可能であるといえる。

以上の結果から、大規模信号データ解析ソフトウェア tesa は実用的な解析速度の結果とともに Pu 測定時の信号解析に十分な能力を有していることから、有効な波高分析手法とともに並列化・最適化により解析時間の短縮化の見通しが得られた。Pu 測定時の信号解析に十分な能力を有しているといえる。

表 3.1-3 大規模信号データ解析ソフトウェア tesa

信号解析用ソフトウェア: t e s a (表)

作成目的

64ch TESアレイスペクトロメータからの大規模信号データの高速処理

特徴

- 波高値解析手法
 - ① 最適フィルタ法
 - ② 主成分分析法 (PCA法)
- ・解析時間の短縮
 - ① 複数コアによる並列計算
 - ② アルゴリズムの最適化

- 柔軟性等の確保
 - ① メイン解析環境 (Dell Precision T7920ワークステーション) の 故障時でも他のPCでの縮退運用可能
 - ② ソフトウェア構造の明確化
 - ③ データ形式変更時のプログラム改修低減

へ 性能 (8192データ点/1信号×65536信号解析時間) @Dell Precision T7920 €

① 最適フィルタ法:17 秒

64ch分

- ① 17秒×64ch = 20分
- ② 主成分分析法 (PCA法):52 秒

② 52秒×64ch = 60分

表 3.1-4 放射能比の算出結果

核種	エネルギー (keV)	γ線放出率 (%)	ピーク計数				放射能比 (TES 実測)		試料放射能
²³⁹ Pu	51.6	0.0271	132	±	34	1	±	_	1
²⁴¹ Am	59.5	35.9	4899	±	210	0.028	±	0.007	0.029

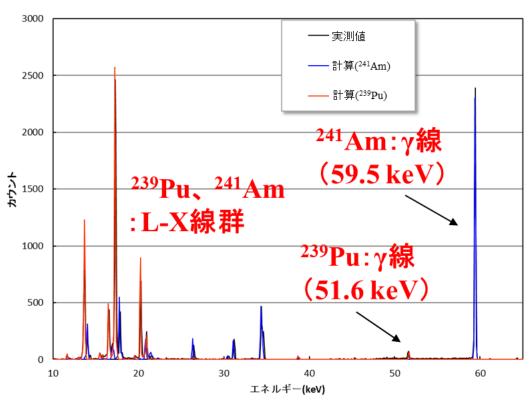


図 3.1-6 硝酸 ²³⁹Pu 溶液 (²⁴¹Am を放射能比で 3%程度含有)の X 線・γ線スペクトル (10 keV から 70 keV のエネルギー範囲)

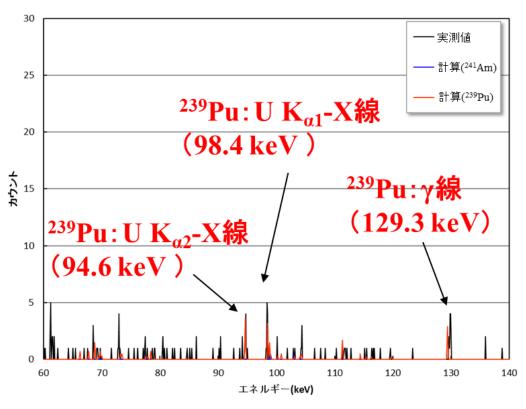


図 3.1-7 硝酸 ²³⁹Pu 溶液 (²⁴¹Am を放射能比で 3%程度含有)の X 線・γ線スペクトル (60 keV から 140 keV のエネルギー範囲)

3.1.2 大洗研究所での測定試験【H30-R3】

(1) 試験計画の検討【H30-R2】

大洗研究所での測定試験に向けて、平成 30 年度に試験場所の調査、令和元年度に計画の 検討、令和 2 元年度に TES アレイスペクトロメータの作動に必要な電力を供給するための 分電盤の設置および Pu ダストモニタの整備を行った。

分電盤は新型コロナウイルスの影響はあったものの令和 2 年 11 月に設置工事を完了した。 一方、Pu ダストモニタは新型コロナウイルス感染拡大の影響により契約や製作等に予定外 の遅れが生じたが、令和 2 年度内に納入された。

TES アレイスペクトロメータの作動に必要な電力については、既設の分電盤 (200V-15A の端子のみ) の容量では不十分であるため、別途専用の分電盤 (200V-100A) を新設した。また、放射線管理測定室の配置を検討した。図 3.1-8 に TES 測定装置の配置概略および図 3.1-9 に TES 測定装置の室内レイアウト案を示す。

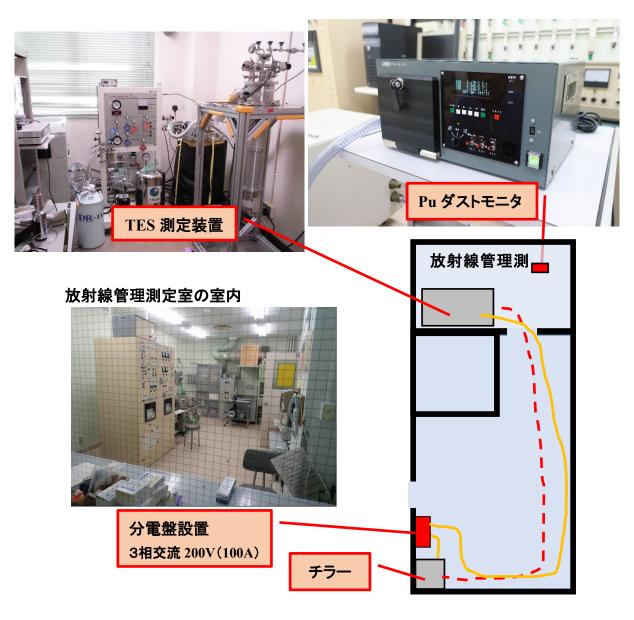


図 3.1-8 TES 測定装置の配置概略

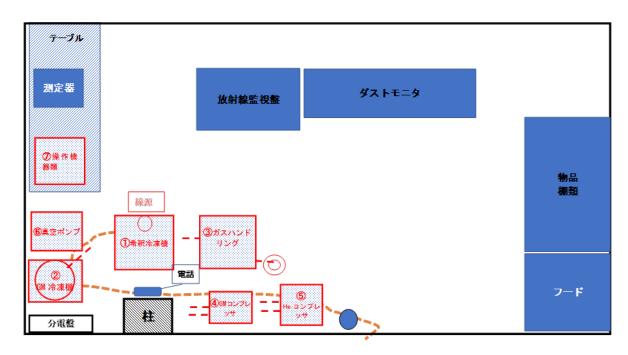


図 3.1-9 TES 測定装置の室内レイアウト案

(2) 大洗研究所での測定試験【R2-R3】

令和2年度第4四半期に大洗研究所での測定試験を計画していたが、令和2年12月からの第3波の新型コロナウイルス感染症の影響により人や機材の移動に制約が生じたため、令和2年度内の測定試験は見通せなくなった。このため令和3年の秋頃に測定試験を行うこととし、令和2年度の受託研究は令和3年の11月まで期間延長した。

令和3年度は新型コロナウイルスの感染状況はデルタ株と思われる影響で全国的に急拡大し、依然として不透明な状況であった。このため、測定試験では当初予定の東京大学の冷凍機の使用が困難と考えられたため、仙台に置いていた九州大学の冷凍機を使用して測定試験を行うこととし、TESアレイ検出器および回路の組込み等の検討・調整を行った。

²³⁷Np 線源(原子力機構提供)の多画素 TES 検出器の多重同時読み出しについては、産総研で測定試験を行い高分解能スペクトルデータが得られていたが、線源は冷凍機内部に設置されて測定されたデータであったため、大洗研究所での測定試験では TES 検出器の総合評価のため、検出器の窓の位置や肺モニタを考慮した肺ファントム測定によって、実際の測定効率のデータを収集することを目的とした。

① 令和3年11月の測定試験

令和3年11月に大洗研究所の放射線管理棟(一般区域)に設置した冷凍機に東京大学で作製した2画素 TES アレイを装着して、¹⁵⁴Eu 線源を用いた測定試験を行った。大洗研究所に設置した TES-SQUID の調整、TES 検出素子の超伝導状態、検出信号の読出しなどの各デバイスの動作および光子検出からデータ取集までの一連の動作を確認した。図 3.1-10 に TES アレイスペクトロメータによる測定試験の状況を示す。動作確認の結果、2画素 TES のうち1画素 TES は SQUID の調子が良くなかったため、1画素 TES でのデータ収集を行った。図 3.1-11 に冷凍機内に装着した TES 検出器素子の外観、¹⁵²Eu 線源の設置状況、得られた信号パルスを示す。

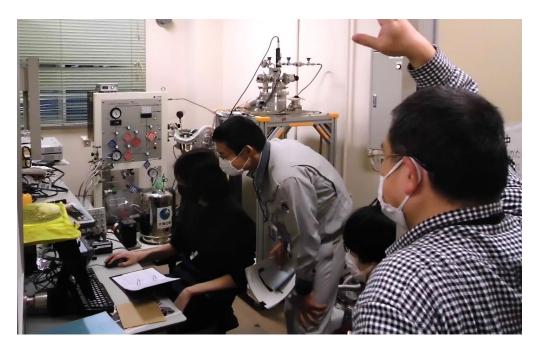
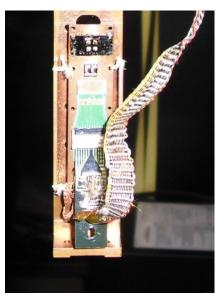


図 3.1-10 TES アレイスペクトロメータによる測定試験



(a) 冷凍機内に装着した TES 検出器素子



(b) カバー内部の TES 等の基盤



(c) ¹⁵⁴Eu 線源の検出器窓への設置 (d) Eu-154 線源からの信号パルス

図 3.1-11 ¹⁵⁷Eu 線源による測定試験状況

② 令和4年1月~3月の測定試験

令和4年2月に肺ファントムの測定計画(図3.1-12参照)および3月に燃料研究棟の管理区域内での測定を計画していたが、2月初めに希釈冷凍機のインサート部の閉塞による故障の発生および新型コロナウイルスの影響での物流の混乱に伴う部品の入手困難による施設側の工事の3月末までの延期により施設での実験は令和4年8月末まで期間延長した。





図 3.1-12 肺ファントム (²⁴¹Am 線源) の測定計画での配置検討案

③ 令和4年7月~8月の測定試験

令和4年6月に希釈冷凍機のインサート部の修理が完了し、6/29(水)に大洗研究所に返 送された。メーカにおいてインサート部のインピーダンス配管の上流部分の閉塞が確認さ れ、経年劣化により内部の残留フラックスが剥がれ落ち、閉塞に繋がったと推測された。 6/30(木)に希釈冷凍機にインサート部を組み込み、冷却を開始した。7/6(水)に温度が約59 mK となり、TES を作動させた。しかしながら、TES 素子が超伝導に転移しない状況が見られ た。令和 4 年 1 月頃までは TES 検出器は動作していたため、不具合は解決できるものと考 え、TES モジュールの回路の付け直し、熱接触の強化を行い、7/19(火)に再度試験を実施し た。しかしながら、前回と同様に TES 素子が超伝導に転移しなかったため、冷凍機内部を 確認したところ、信号線が外側の磁気シールド(熱遮蔽も兼ねており温度 1K)に接触し ていたことを確認した。さらに、TES素子も超伝導の転移がすでに確認された素子に交換す るなど対策を施した。8/1(月)に再度測定試験を行ったが、超伝導に転移が見られなかった。 磁気シールドを開封して内部を確認したが、信号線の接触などは見られなかった。この時 点では原因として TES 検出器のカバーが外側の磁気シールドに接触して熱の流入の可能性 が考えられた。既に 8 月に燃料研究棟の管理区域内での測定試験の工程を組んでいたこと から、TES検出器のカバーを外しての測定は管理区域内での測定試験で実施することとした。 8/5(金)に装置を燃料研究棟に搬入し、8/19(金)の午後より予備冷却を開始した。図 3.1-13 に施設の管理区域内での TES 測定装置の設置及び予備冷却時の状況を示す。また、 表 3.1-5 に管理区域内の測定試験の工程を示す。これまでも管理区域での試験を実施して きたが、ほとんどが冬場の実施であるとともに、室温の上昇は顕在化していなかった。し かしながら、今回初めての場所で、夏場でもあり、チラーの排熱が更衣室内にこもり、

8/21 (日) の日中には室温が40 ℃近くまで上昇した。8/22 (月) の出勤後に施設の冷房装 置を入れても30 ℃を下回らなかった。このため、同日、施設管理者との協議により管理区 域内更衣室の作業環境において作業者の熱中症のリスクの懸念および一般作業への支障が 考えられることから、TES 装置の冷却を停止し、やむなく測定試験を中止した。









更衣室温度。夏場 ではチラーの廃熱 により予想以上で あった。

図 3.1-13 施設の管理区域内での TES 測定装置の設置及び予備冷却時の状況

表 3.1-5 管理区域内の測定試験の工程

	期間	令和4年8月				
項	目	第1週 8/1-8/7	第2週 8/8-8/14	第3週 8/15-8/21	第4週 8/22-8/28	第5週 8/29-9/4
装置の	搬入、設置		_			
冷凍機	作動、冷却					
測定系	駆動調整				_	
試料の	測定					
冷凍機	停止、片付け					
装置搬	出					

(3) 大洗研究所における測定試験のまとめ及び今後の課題【R3】

新型コロナウイルスの影響により人および物の移動が制限され、大学の冷凍機を借用しての測定試験は困難となった。多画素 TES アレイスペクトロメータの多重同時読み出しについては、産総研での測定試験でデータが得られていたが、冷凍機内部に線源を設置しての測定のため、より現実的な評価を目指し、管理区域内の測定試験及び肺ファントムの実測の測定効率で補完することとした。研究が終了して当面の使用予定がなかった九州大学の冷凍機を原子力機構に移設した。令和3年11月にTES 検出器の動作を確認し、測定を開始したが、冷凍機の故障等で中断した。令和4年7月から測定試験を再開したが、TES 検出器の不調及び管理区域内の測定試験の中止により測定データを得ることができなかった。このため、測定効率は計算で評価して64画素 TES アレイスペクトロメータの性能推定を行った。

TES 検出器の不調については、今後、原因調査を進める。TES 検出器は温度が下がりにくい傾向はみられていたものの、令和 4 年 1 月頃までは動作していた。冷凍機修理後の 7 月の測定再開時より信号線の接触など見直しても超伝導への転移が見られない状況である。一方、低温で作動する SQUID は動いており、ある程度の冷却はされていると考えられ、これまでの約 60 mK の表示も変わっていない。測定回路のあるステージへの熱の流入が疑われたが、信号線を外側磁気シールドに接触させない対策を講じたものの改善が見られなかった。また、管理区域搬出後に TES 検出器モジュールの寸法を調べた結果、検出器カバー底面の接触の可能性も低いと思われる。原因の調査には時間がかかることが予想される。

今回の施設の管理区域内での測定試験では、これまでの東京大学の装置(パルス管型冷凍機)とは異なる装置(GM 型冷凍機)を使用したが、装置の搬入および設置とともに、予備冷却まで計画通りに実施することができた。これにより管理区域内作業の各種手続き、新たな装置においても問題なく実施できることが確認できた。しかしながら、実用化においては、冷凍機の廃熱処理に関する課題が顕在化した。TES 検出器は低温を取り扱うため冷却は必須であり、実用化に向けて、様々な管理区域での適用にはチラーの屋外への設置や冷却水の確保を考慮する必要がある。

3.1.3 TES アレイスペクトロメータによる ²⁴⁴Cm 線源の測定【R1-R2】

(1) 1 画素 TES スペクトロメータによる測定試験(原子力機構,産総研)【R1】

令和2年2月に産総研が製作したTES基盤に、東京大学によってスズ(Sn)の吸収体が実装され、3月より1画素TESスペクトロメータの動作を確認する測定試験を開始した。冷凍機は産総研の断熱消磁冷凍機(ADR)を使用し、原子力機構の²⁴⁴Cm線源(規制に係る下限数量以下の密封線源)をADR内に設置して、試作TESの放射線検出器としての動作を確認した。

図 3.1-14 に 1 画素 TES スペクトロメータの測定試験の状況および使用した線源を示す。



TES スペクトロメータが内蔵された ADR 冷凍機

244 Cm 線源



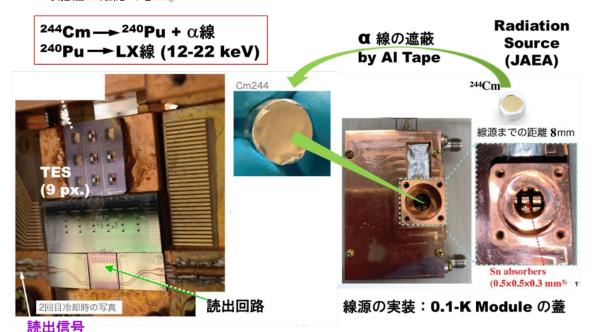
(下限数量以下の密封線源)

主要な L X 線のピーク 14.3 KeV (放出割合 3.1 %) Pu-L_{α1} 18.3 KeV (放出割合 3.0 %) Pu-L_{β1}

図 3.1-14 測定試験の状況および使用した線源

(2) TES アレイスペクトロメータによる測定試験(原子力機構,産総研)【R2】

令和 2 年度は産総研と共同で極低温モジュールを用いて 244 Cm 線源による TES 検出器の試行測定を実施した。図 3. 1-15 に極低温モジュールと装着した 244 Cm 線源を示す。冷凍機は無冷媒断熱消磁冷凍機 (ADR) が使用された。TES 検出器は吸収体の不具合により 9 画素中の 5 画素が動作している。また、今回の試行測定では TES の動作点の調整がなされていないため、各スペクトルのピーク高さなどに違いがある。図 3. 1-16 に 5 画素の TES アレイスペクトロメータで測定した 244 Cm のスペクトルを示す。Ge 検出器のスペクトルに比べ TES 検出器は十分に優れた分解能を有していることがわかる。図 3. 1-17 に 5 画素の TES アレイスペクトロメータによる 244 Cm の 14 keV 付近のスペクトルを示す。5 画素の分解能の評価の結果、分解能は 14.9 keV において約 45 eV と評価され、L X 線の測定によって肺モニタへの適用の可能性が確認できた。



Module @ 0.1-K Stage 内

図 3.1-15 極低温モジュールと ²⁴⁴Cm 線源

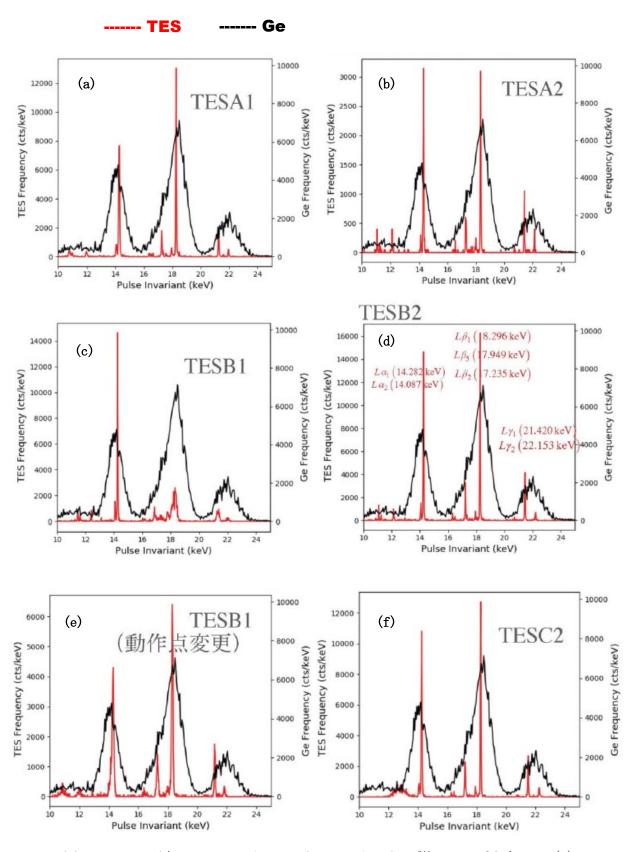


図 3.1-16 5 画素の TES アレイスペクトロメータによる 244 Cm のスペクトル: (c) の TES B1 について動作点を調整した結果が (e) である。Ge 検出器のスペクトルに比べ TES 検出器は優れた分解能を有している

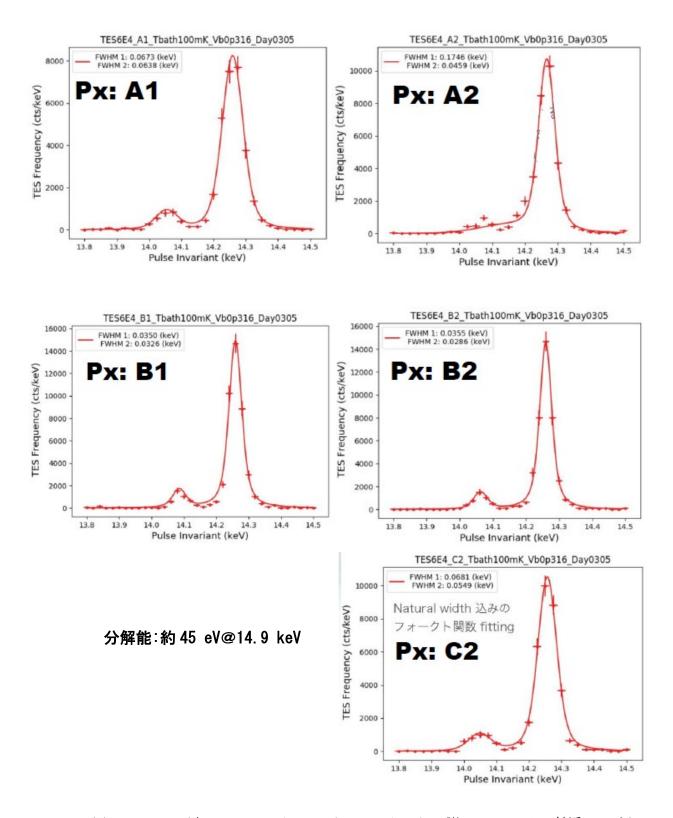


図 3.1-17 5 画素の TES アレイスペクトロメータによる ²⁴⁴Cm の 14.9 keV 付近のスペクトル。L X 線エネルギー領域の 14.9 keV において分解能は約 45 eV が得られた。

3.1.4 64 画素 TES アレイスペクトロメータの総合的な評価【R3】

多画素 TES スペクトロメータについて、TRU 迅速線量評価システムの基盤技術である 64 画素 TES アレイスペクトロメータの総合的な評価を行う。評価においては、本研究で実施した 244 Cm(図 3.1–16 参照)及び 237 Np(図 3.2–11 参照)のスズ(Sn) γ 線吸収体の TES アレイスペクトロメータの測定データを基にピーク効率及び検出下限値について評価するとともに、本研究の多画素 TES スペクトロメータについて、総合的な評価を行い、内部被ばく線量評価への適用に必要な性能を明らかにした。

(1) 線量評価に係る要求事項

TES 検出器について、ICRP Publ. 78 ⁽⁸⁾での線量評価への適用について考察する。 α 線を放出する Pu 等の TRU を吸入摂取した場合、体内の Pu の摂取量はバイオアッセイで評価される。 肺モニタはスクリーニングとして用いられる。 Pu 等のバイオアッセイおよび肺モニタによる線量評価について、表 3.1-6 に示す。

表 3.1-6 現状の Pu 等の肺モニタおよびバイオアッセイによる線量評価の条件

評価方法	特徴
バイオア ッセイ	・内部被ばく線量(実効線量)で要求される測定レベルは記録レベル(1~2 mSv) ・TRU 核種は 5 日間の便や尿の試料を化学的に分析して間接的に評価。 ・化学的分析において、1 試料につき約 5 日の時間と労力がかかる。 ・化学的分析での検出鋳レベルは Pu 等に対して、1 mBq/便試料 ⁽⁸⁾ ・Pu と ²⁴¹ Am は化学的に分離してα線スペクトロメトリーで測定
肺モニタ	 ・医療措置等の判断のために、望まれる測定は線量限度レベル(50 mSv)であるが、Ge 検出器でも困難。スクリーニングとして使用。 ・簡便であるが、測定で人を拘束するため、1 時間程度の測定が現実的であるが、50 mSv のレベルは困難 ・体外から肺に残留する Pu の L_X 線を直接測定 ・Pu 等に対して Ge 検出器(50 cm²) 4 本で測定 ・Ge 検出器の分解能では Pu と ²⁴¹Am の L_X 線の分離測定は不可能。

(2) バイオアッセイに係る測定性能の目安

TRU 核種の内部被ばくの線量評価は、便や尿のバイオアッセイ試料の化学分析で行われてきた。線量評価では管理上有用なレベル未満の結果を除外できるとする記録レベルがあり、記録レベルは実効線量 1~2~mSv~0範囲で管理者が設定するとされている。したがって、バイオアッセイによる線量評価では 2~mSv~ に相当する排泄量の検出を目安とする。人体の代謝モデルから 2~mSv~0吸入摂取の場合の便中の排泄量を ICRP Publ. 78(表 A. 12. 13.) (8) から計算した結果を表 3.1-7~ に示す。

バイオアッセイの分析では、5 日間の排泄量から評価している。すべての測定には5日目のまでの検出が望ましいが、極低レベル放射線測定には非常に多くの画素数が必要となると予想されるため、今回は現実的な画素数での評価として、平均としてタイプ M (硝酸プルトニウム)で約5 Bq、タイプ S (二酸化プルトニウム)で約20 Bqの検出について検討する。1日目から3日目までの排泄量で、2mSvを超えることを把握し、4日目と5日目

はバイオアッセイ分析の組み合わせとなる。実際に TES 測定に置き換えるためには化学分析との慎重な比較検証が必要となるが、バイオアッセイの TES 測定が可能となれば、化学分析の労力削減による効率化が期待できると考える。

64 画素で目標とする L X 線でのエネルギー分解能は Pu と 241 Am の分離測定のために 100 eV @ 20 keV 以下が望ましい。

核種	吸入の	2 mSv に相当する		便中への排泄量 (Bq)						
	タイプ	吸入摂取量 (Bq)	1日目	2 日目	3 日目	4 日目	5日目	平均		
²³⁹ Pu	M	62. 50	6.88	9. 38	5.00	2. 13	0.81	4.84		
ru	S	240. 96	26. 5	38. 5	20.2	8. 43	3. 37	19. 4		
²⁴⁰ Pu	M	62. 50	6.88	9.38	5.00	2. 13	0.81	4.84		
ru	S	240. 96	26. 5	38.5	20.2	8. 43	3. 37	19. 4		
²³⁸ Pu	M	66. 67	7. 33	10.00	5. 33	2. 27	0.87	5. 16		
Pu	S	181. 82	20.00	29.09	15. 27	6. 36	2.55	14.65		
²⁴² Pu	M	64. 52	7. 10	9.68	5. 16	2. 19	0.84	4. 99		
Pu	S	259. 74	28. 57	41.56	21.82	9.09	3.64	20.94		

表 3.1-7 2 mSv の吸入摂取に相当する便中への Pu 排泄量

(3) 肺モニタに係る測定性能の目安

肺モニタはキレート剤投与などの医療措置等の判断のため、早期の線量評価において必要となる。判断基準として線量限度 50 mSv に相当する肺中の残留量の検出が目安と考えられる。人体の代謝モデルから 50 mSv の吸入摂取の場合の肺中の Pu 残留量を ICRP Publ. 78 (表 A. 12. 13.) $^{(8)}$ から計算した結果について表 3. 1–8 に示す。なお、ICRP Publ. 78 等では硝酸プルトニウムなどを Type M、二酸化プルトニウム (PuO_2) を Type S としている。

肺モニタでは 1 日目の肺中の残留量は、硝酸プルトニウムで約 $91\sim97$ Bq、二酸化プルトニウムで $264\sim377$ Bq となる。したがって、硝酸プルトニウムで約 90 Bq、二酸化プルトニウムで約 350 Bq を検出能力の目安とする。

64 画素で目標とする LX 線でのエネルギー分解能は Pu と 241 Am の分離測定のために 100 eV @ 20 keV 以下が望ましい。

核種	吸入の	50 mSv に相当する	肺中	の残留量((Bq)
修性	タイプ	吸入摂取量 (Bq)	1 日目	2 日目	3 日目
²³⁹ Pu	M	1562	91	88	86
Pu	S	6024	349	337	331
²⁴⁰ Pu	M	1562	91	88	86
Pu	S	6024	349	337	331
²³⁸ Pu	M	1667	97	93	92
Pu	S	4545	264	255	250
²⁴² Pu	M	1613	94	90	89
Pu	S	6494	377	364	357

表 3.1-8 50 mSv の吸入摂取に相当する肺中の Pu 残留量

(4) TES に係る検出能力の評価方法について

TES に係る検出能力の評価方法について、Ge 検出器の考え方 ⁽⁹⁾を参考にした。TES は従来にない高分解の検出器であるため、必ずしもそのまま適用できるとは限らないが、TES に係る検出能力の把握が可能と思われる。

① ピーク効率

ピーク効率はコベル法により γ 線スペクトロメトリーにおいては、放射能を求めるに、スペクトル上の全エネルギー吸収ピークの面積から、試料から放出された γ 線の数を求める必要があり、そのためにピーク効率 ϵ は以下の式よりを計算される。

$$\varepsilon = \frac{N}{A \cdot I\gamma}$$

ここでNはピーク計数率(cps)、Aは放射能(Bq)、 $I\gamma$ は着目している γ 線または X 線の放出率である。ピーク効率の評価には標準線源の実測データを基にエネルギー毎に評価する。

バイオアッセイ試料を想定した評価においては、検出窓直前の位置における評価することとする。また肺モニタについては、人体を想定した評価とする。これら測定は、可能であれば標準線源やファントムを用いることが望ましいが、今回は距離の二乗則で推定する。

肺モニタの測定およびバイオアッセイのスクリーニングに適用する Pu 等の L X 線領域(10~20 keV)のピーク効率は、 244 Cm の 14.9 keV,18.3 keV から評価する。また、Pu 等の核種分析には 100 keV 近辺の γ 線を測定するものとして、適用するピーク効率は、 237 Np の 86.47 keV, 233 Pa の 94.65 keV 及び 98.43 keV から評価する。表 3.1-9 に Pu 同位体の L X 線エネルギー及び γ 線エネルギーを示す。

	²³⁹ Pu		²⁴⁰ Pu		²³⁸ Pu		²⁴² Pu	
	エネルギー (keV)	放出率	エネルギー (keV)	放出率	エネルギー (keV)	放出率	エネルギー (keV)	放出率
LX線	13.6	1.60E-02	13. 6	3. 61E-02	13.6	3.85E-02	13.6	3. 10E-02
LA豚	17.3	1.59E-02	17. 3	3. 72E-02	17. 3	3.94E-02	17. 3	3. 19E-02
	51.6	2. 72E-04	45. 24	4.50E-04	43.50	3.95E-04	44. 92	3. 73E-04
γ <i>γ</i> 線	38.7	1. 04E-04	ı	_	ı	ı	-	_
γ旅	98.8	1. 47E-05	104. 23	7. 08E-05	99.85	7. 35E-05	103.50	2.55E-05
	129.3	6. 31E-05	ı	_	-	1	_	_

表 3.1-9 Pu の L X 線および γ 線エネルギー

② 検出下限の評価方法(9)

Ge 検出器の検出下限の評価方法については、Cooper の方法と ISO11929 による方法がある。どちらも、バックグラウンドとピーク効率を基に計算される。ピーク効率はスペクトルのピークのグロスのカウントから前後のバックグラウンドから推定

したバックグラウンドを差し引いたネットのカウントから評価される。文献9に従って、TES 検出器の検出下限値の概算として同方法を適用して評価を試みる。

TES 検出器は、多画素の検出器であり、画素数や個々の画素の効率の影響も考えられるが、数画素のデータから概算として求めることとする。

③ 大規模 TES アレイスペクトロメータの立体角の簡易補正

検出下限の評価において、今回、測定効率は距離の2乗測の計算により評価するが、TES アレイの検出面積の増加に伴い、2,000 画素級の TES アレイの場合は測定効率への影響が考えられる。今回開発した9 画素 TES チップのサイズは10mm×10mm。1mm×1mmのメンブレン上に0.5mm×0.5mmのスズ(Sn)吸収体が搭載されている(図3.2-1、図3.2-4参照)。仮に、9 画素 TES チップを適用すると2,048 画素で約150mm×150 mmとなることから、今後の大規模画素アレイ化では集積化や多層化も考える必要がある。

今後の集積化も考慮し立体角の補正では、1 画素 TES 素子を 1mm×1mm と仮定して計算 した。また、今回の補正では円盤状に TES 素子を配列した簡易なモデルを使用した。

図 3.1–17 に計算の概念図および画素数と立体角の補正係数のグラフを示す。中心に 1 画素 TES 素子を置き、その外側を正方形の素子を囲む円に置き換える。円の半径 1 は素子の大きさの1 分 位である。円盤状に素子を配置する時、半径 1 Rx は 1 相の素子のとなる。また、1 Rx には円周上には素子の直径で割った個数が配置できるものとした。

距離が D_0 の時の測定効率をeとしたとき距離 D_x の効率は $D_x^2/D_0^2 \cdot e$ となる。従って、円盤状に配置した $N(=1+6+\cdots+n_x)$ 個のTES素子に対して D_0 にN画素のTES素子がある場合との比率は以下のようになる。

$$f = \frac{\sum \left(\frac{D_x^2}{D_0^2} n_x\right)}{N}$$

画素数 N と立体角の補正係数は比例した結果が得られたことから、換算式で立体角を補正した。

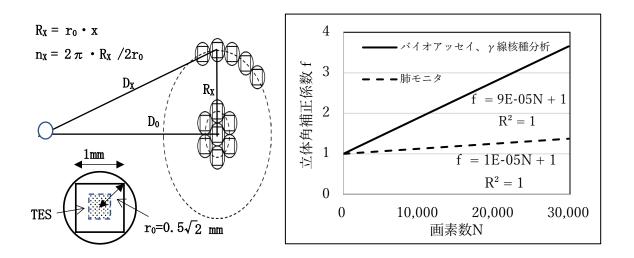


図3.1-18 立体角の補正の考え方および補正のグラフ

(5) 64 画素 TES アレイスペクトロメータの検出下限

① ピーク効率の評価

 244 Cm の 14.9 keV, 18.3 keV および 237 Np の 86.5 keV, 233 Pa の 94.7 keV 及び 98.4 keV のスペクトルのピークからピーク効率を概算した。使用した TES アレイスペクトルメータによるスペクトルの分解能は、約 45 eV@14.9 keV (244 Cm) および約 40 eV @ 86.47 keV (247 Np) であった。図 3.1-19 に計算に用いたピークデータ及び計算結果を示す。L X 領域では約 2.0×10^{-4} 、 γ 線領域では 100 keV 付近では約 6.4×10^{-4} のピーク効率を用いて評価した。

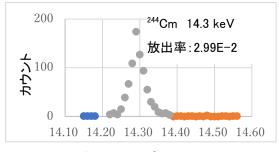
② 検出下限値の評価

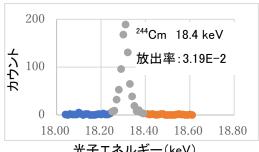
実測で得られた 244 Cm の L X 線および 237 Np の γ 線のスペクトルのデータから Pu に係る 64 画素 TES アレイスペクトロメータでのバイオアッセイおよび肺モニタの検出下限値 を試算した。表 3.1-10 にバイオアッセイ及び肺モニタの検出下限を示す。また、表 3.1-11 に γ 線核種分析に係る検出下限を示す。検出下限の評価は Cooper の方法および IS011929 の方法でそれぞれ行い、両方法での値はほぼ一致している。表 3.1-12 に多画素 TES アレイスペクトロメータの検出下限をまとめた。

a) バイオアッセイ

バイオアッセイ試料の測定について、64 画素で 72 時間測定した場合の 239 Pu の検出限界の値は、約 $120\sim130$ Bq であるが、 240 Pu、 238 Pu 及び 242 Pu の検出限界の値は約 $50\sim60$ Bq であった。これは、 239 Pu の L X 線の放出率が他の核種と比べ特に低いためである。表 3.1-12(1)に 2048 画素(64×32)及び 16384 画素(64×256)で 72 時間測定の検出下限を示す。タイプ S(二酸化プルトニウム)の約 20 Bq の検出には 2,048 画素、タイプ M(硝酸プルトニウム)の約 5 Bq 検出には 16,384 画素でも厳しかった。これは、画素数の増大による立体角の効果が影響しているものと考えられるおり、

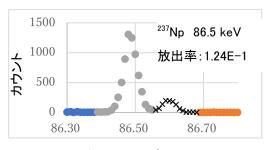
従来のバイオアッセイの化学分析では5日間が必要であるが、2000 画素 TES アレイスペクトロメータでは、タイプ S の分析であれば、3日間の測定で判定できる可能性が示された。しかしながら、タイプ M についでは、画素数の増加による大面積化のみでは検出下限を下げることは困難であり、TES 素子の集積化や多層化を検討する必要がある。

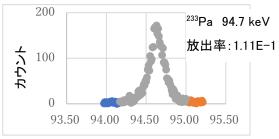




光子エネルギー(keV)

光子エネルギー(keV)





光子エネルギー(keV)

光子エネルギー(keV)



ピークの エネルギー	1 画素 TES のピーク効率
14.3 keV	2.0E-04
18.4 keV	2.0E-04
86.5 keV	2.7E-04
94.7 keV	1.8E-04
98.4 keV	1.6E-04

光子エネルギー(keV)

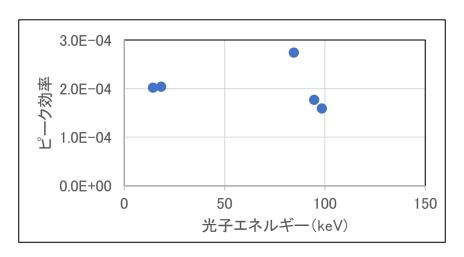


図 3.1-19 ピーク効率の評価

b) 肺モニタ

多画素 TES アレイによる肺モニタは、従来の Ge 検出器の肺モニタよりも低いレベルまでの測定が可能であることが示された。線量限度レベルの測定にはタイプ S では 16,384 画素、1.5 時間で可能と見積もられたが、タイプ M では大面積化だけでは困難であった。大規模アレイ化には集積化および多層化を今後検討する必要がある。また、肺モニタは測定対象が肺であり体積線源での更なる検討が必要である。

c) γ 線核種分析

Pu の試料等の γ 線の検出・分析の検出限界について評価した。64 画素で 72 時間測定した場合の 239 Pu の γ 線(98.8 keV)の検出限界の値は、約 200 kBq、 240 Pu(104.2 keV)、 238 Pu(99.9 keV)及び 242 Pu(103.5 keV)の検出限界の値は約 20 kBq~70 kBq であった。 239 Pu は γ 線においても放出率が他の核種と比べ特に低いため検出限界が高い。表 3.1-12(3)に 2048 画素(64×32)及び 16384 画素(64×256)で 72 時間測定の γ 線の検出下限を示す。 2048 画素では約 4 kBq~40 kBq、16,384 画素はでは3 kBq~30 kBq の検出限界であった。 バイオアッセイ試料レベルの γ 線核種分析への適用には厳しいが、数 MBq オーダーでの核物質管理の測定では、64 画素でも 72 時間よりも短い時間での測定が期待できる。

表 3.1-10 64 画素 TES アレイスペクトロメータにおけるバイオアッセイおよび肺モニタの検出下限

(1) バイオアッセイ

Cooper の方法

IS011929 の方法

/	<u> </u>	Cooper vy	714			10011323	17/114		
	画素数	1	1	64	加力片里	1	1	64	测点位置
	測定時間(h)	1.0	72.0	72.0	測定位置 60 mmでの	1. 0	72.0	72.0	測定位置 60 mmでの
	k		3		DL (Bq)		1.645		DL (Bq
	ピーク効率	2.0E-04	2. 0E-04	1. 3E-02	DL (Dq)	2.0E-04	2.0E-04	1. 3E-02	DL (Dq
²⁴⁴ Cm	14.3 keV 放出率		2.99E-02		6. 3E+01		2.99E-02		6. 8E+01
CIII	DL (Bq)	4. 3E+02	1. 2E+01	1. 1E+00	<u>0. 3E+01</u>	2. 0E+02	1. 1E+01	1. 2E+00	<u>0. 8E±01</u>
²³⁹ Pu	13.6 keV 放出率		1.60E-02		1. 2E+02		1.60E-02		1. 3E+02
ru	DL (Bq)	8. 0E+02	2. 2E+01	2. 1E+00	1. ZE+0Z	3.8E+02	2. 1E+01	2. 2E+00	1. 3E+02
²⁴⁰ Pu	13.6 keV 放出率		3.61E-02		5. 2E+01		3.61E-02		5. 6E+01
ru	DL (Bq)	3. 5E+02	9.8E+00	9. 2E-01	5. ZE+01	1.7E+02	9. 2E+00	9.9E-01	<u>5. 0E+01</u>
²³⁸ Pu	13.6 keV 放出率		3.85E-02		4. 9E+01		3.85E-02		5. 3E+01
I u	DL (Bq)	3.3E+02	9. 2E+00	8.6E-01	4. 9E+01	1.6E+02	8.6E+00	9.3E-01	5. 3E+01
²⁴² Pu	13.6 keV 放出率		3. 10E-02		6. 1E+01		3.10E-02		6. 5E+01
ru	DL (Bq)	4. 1E+02	1. 1E+01	1. 1E+00	0. 1E+01	2. 0E+02	1. 1E+01	1. 2E+00	0. 35+01

(2) 肺モニタ

Cooper の方法

	画素	数	1	256	測定位置
	測定時間(h)		1.0		160 mmで
	k		•	3	DL (Bq)
	ピーク	効率	2.0E-04	5. 2E-02	V) DL (Dq)
²⁴⁴ Cm	14.3 keV	放出率	2. 99	E-02	0 0E±03
CIII	DL (B	q)	4. 3E+02	5. 4E+00	2. 2E+03
²³⁹ Pu	13.6 keV	放出率	1. 60	E-02	4. 0E+03
ru	DL (B	q)	8. 0E+02	1. 0E+01	4. 0E±03
²⁴⁰ Pu	13.6 keV	放出率	3. 61	E-02	1. 8E+03
ru	DL (B	q)	3. 5E+02	4. 5E+00	<u>1. 6E⊤03</u>
²³⁸ Pu	13.6 keV	放出率	3. 85	5E-02	1. 7E+03
ru	DL (B	q)	3. 3E+02	4. 2E+00	1. 7E+03
²⁴² Pu	13.6 keV 放出率		3. 10	E-02	9 1E±09
Pu	DL (B	q)	4. 1E+02	5. 2E+00	2. 1E+03

IS011929 の方法

 測定位置	256	1	
例是位直 160 mmで	1.0	1. 0	
→ DL (Bq)	645	1. 6	
V) DL (Bq)	5. 2E-02	2. 0E-04	
2. 2E+03	E-02	2.99	
2. ZE+03	5. 5E+00	2. 0E+02	
4 1E±03	E-02	1.60	
4. 1E+03	1. 0E+01	3. 8E+02	
1. 8E+03	E-02	3.61	
1. 6E+03	4. 5E+00	1. 7E+02	
1. 7E+03	E-02	3.85	
1. 7E+03	4. 2E+00	1. 6E+02	
2 15102	E-02	3. 10	
2. 1E+03	5. 3E+00	2. 0E+02	

表 3.1-11 64 画素 TES アレイスペクトロメータにおける γ 線核種分析の検出下限 Cooper の方法

	1 77 17 1					
	画素数		1	1	64	測定位置
	測定時間(h)		1.0	72.0	72.0	60 mmでの
	k	:		3		DL(Bq)
	ピーク	効率	1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
²³⁹ Pu	98.8 keV	放出率		1.47E-05		1.9E+05
	DL(I	Bq)	1.1E+06	2.4E+04	2.0E+03	
	ピーク	効率	1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
²⁴⁰ Pu	$104.2~\mathrm{keV}$	放出率		7.08E-05		3.2E+04
	DL(I	Bq)	2.3E+05	6.2E+03	5.7E+02	
	ピーク	効率	1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
²³⁸ Pu	99.9 keV	放出率		7.35E-05		2.2E+04
	DL(I	Bq)	2.2E+05	4.8E+03	4.0E+02	
	ピーク	効率	1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
²⁴² Pu	$103.5~\mathrm{keV}$	放出率		2.55E-05		6.5E+04
	DL(I	Bq)	6.6E+05	1.5E+04	1.2E+03	

ISO11929 の方法 画素数 64

画素	画素数		1	64	測定位置
測定時間	間(h)	1.0	72.0	7.02	60 mmでの
k			1.645		DL(Bq)
ピークタ	効率	1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
98.8 keV	放出率		1.47E-05		2.1E+05
DL(B	q)	4.6E+05	2.1E+04	2.1E+03	
ピークタ	効率	1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
104.2 keV	放出率		7.08E-05		3.5E+04
DL(B	q)	1.1E+05	5.8E+03	6.2E+02	
ピークタ	効率	1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
99.9 keV	放出率		7.35E-05		2.4E+04
DL(Bq)		9.3E+04	4.2E+03	4.2E+02	
ピーク効率		1.6E-04	1.6E-04	1.0E-02	
103.5 keV 放出率			2.55E-05		6.9E+04
DL(B	q)	2.7E+05	1.2E+04	1.2E+03	

表 3.1-12 多画素 TES アレイスペクトロメータの検出下限

(1) バイオアッセイ

Cooper の方法

IS011929 の方法

		画素数	64	2048	16384
		測定時間(h)	72.0	72.0	72.0
	²⁴⁴ Cm	14.3 keV	6. 3E+01	1. 3E+01	9. 3E+00
	²³⁹ Pu	13.6 keV	1. 2E+02	2.4E+01	1. 7E+01
DL (Bq)	²⁴⁰ Pu	13.6 keV	5. 2E+01	1. 1E+01	7. 7E+00
	²³⁸ Pu	13.6 keV	4. 9E+01	9.8E+00	7. 2E+00
	²⁴² Pu	13.6 keV	6. 1E+01	1. 2E+01	8. 9E+00

64	2048	16384
72.0	72.0	72. 0
6.8E+01	1. 4E+01	1. 0E+01
1. 3E+02	2. 6E+01	1. 9E+01
5. 6E+01	1. 2E+01	8. 5E+00
5. 3E+01	1. 1E+01	7. 9E+00
6. 5E+01	1. 3E+01	9.8E+00

(2) 肺モニタ

Cooper の方法

IS011929 の方法

		画素数	256	16384	262144
		測定時間(h)	1.0	1.5	1.5
	²⁴⁴ Cm	14.3 keV	2. 2E+03	2. 2E+02	1. 5E+02
	²³⁹ Pu	13.6 keV	4. 0E+03	4. 1E+02	2. 7E+02
DL (Bq)	²⁴⁰ Pu	13.6 keV	1.8E+03	1.8E+02	1. 2E+02
	²³⁸ Pu		1. 7E+03	1. 7E+02	1. 1E+02
	²⁴² Pu	13.6 keV	2. 1E+03	2. 1E+02	1. 4E+02

256	16384	262144
1.0	1.5	1.5
2. 2E+03	2. 4E+02	1.8E+02
4. 1E+03	4. 4E+02	3.4E+02
1.8E+03	2. 0E+02	1. 5E+02
1. 7E+03	1. 9E+02	1. 4E+02
2. 1E+03	2. 3E+02	1.8E+02

(3) γ 線核種分析

Cooper の方法

IS011929 の方法

		画素数	64	2048	16384	
		測定時間(h)	72.0	72.0	72.0	
DL (Bq)	²³⁹ Pu	98.8 keV	1. 9E+05	3.9E+04	2. 9E+04	
	²⁴⁰ Pu	104.2 keV	3. 2E+04	6. 5E+03	4.8E+03	
	²³⁸ Pu	99.9 keV	2. 2E+04	4. 4E+03	3. 3E+03	
	²⁴² Pu	103. 50keV	6. 5E+04	1. 3E+04	9. 4E+03	

64	2048	16384
72.0	72.0	72.0
2. 1E+05	4. 3E+04	3. 1E+04
3. 5E+04	7. 1E+03	5. 2E+03
2. 4E+04	4. 9E+03	3.6E+03
6. 9E+04	1. 4E+04	1.0E+04

参考文献

- (1) 「GCC, the GNU Compiler Collection」, 2019年3月29日アクセス">
 アクセス
- (2) S.E. Busch et al., "Progress Towards Improved Analysis of TES X-ray Data Using Principal Component Analysis", J. Low Temp. Phys. **184**, 382-388(2016).
- (3) 「Eigen is a C++ template library for linear algebra: matrices, vectors, numerical solvers, and related algorithms」, http://eigen.tuxfamily.org/index.php?title=Main_Page>2019年3月29日アクセス.
- (4) 「OpenMP® Enabling HPC since 1997, The OpenMP API specification for parallel programming」, < https://www.openmp.org/>2019年3月29日アクセス.
- (5) Hirayama H, Namito Y, Bielajew AF, Wilderman SJ, Nelson WR. The EGS5 code system, SLAC-R-730. 2005.

- (7) A.E. Szymkowiak et al., "Signal Processing for microcalorimeters", J. Low Temp. Phys. 93, 281-285(1993).
- (8) International Committee on Radiation Protection, Individual Monitoring for Internal Exposure of Workers, ICRP Publication 78, Ann. 27, No. 3/4, (1997).
- (9) 原子力規制庁, 放射能測定法 シリーズ No. 7「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線 スペクトロメトリー」(令和 2 年 9 月).

3.2 TES アレイスペクトロメータの開発作製(再委託先:産総研)

多画素 TES アレイスペクトロメータの開発に向けて、TES との結合度増大により低雑音化を図った読出回路に関し、共振 Q 値の画素間均一性を図るための読出回路素子作製工程を確立し、マイクロ波透過率の周波数依存性を平坦化したマイクロ波多重読出回路 (MW-Mux) を国内ではじめて実現した。また、世界に先駆けて想定するバルク吸収体搭載に耐え得る三層メンブレンを開発するとともに、所有する極低温冷凍機内で温度制御可能な転移温度を持つ超伝導薄膜の試作に成功した。温度約 120 mK での低応力 $SiO_2/Si_xN_Y/SiO_2$ 三層メンブレンの熱コンダクタンス値 G として、従来報告されている SiN 単層メンブレンでの値と同程度の、1.1 < G(nW/K) < 1.7 を得た。標記 G を得るためのメンブレン膜厚は、従来の報告値約 $1~\mu$ m に対し、本研究では約 $7~\mu$ m であり、バルク吸収体支持に要する機械的強度の点で有利と考えられる。

これら開発した技術を用いて製作した多画素スペクトロメータを東京大学での吸収体実装を経て測定試験を行った。4 画素 TES と多重読出回路から成るプロトタイプ分光計を開発し、国内ではじめて多画素ガンマ線 TES の多重読出を実証するとともに、0.1 keV 差と近接する ²³⁷Np と ²³³Pa の輝線の分離に成功した。また、双方の輝線に関し、理論値に近い計数率の比を 得た。

3.2.1 TES アレイスペクトロメータの概要 【H30-R3】

本研究遂行において、既存分光技術に対し、高い分光能力と受光面積増大による短時間計測の潜在能力を併せ持つTESアレイスペクトロメータの開発を担ったスペクトロメータの構成を図3.2-1(a)に示す。超伝導現象を利用する多画素TES、MW-Mux、両者の接続信号線とTESの定電圧駆動用バイアス抵抗が配置されたインターフェースの3種類のチップが実装され、0.1 Kに冷却される極低温モジュール、MW-Muxチップ出力増幅用高移動度化合物半導体増幅器(HEMT Amp.)を極低温冷却するための断熱消磁冷凍機付きのクライオスタット、室温信号処理回路、制御とデータ保存を司るパソコン(PC)から成る。10 mm×10 mmのTESチップには、3行3列計9画素のTESが試作され、各画素のTES上に3.3節で述べる東京大学の技術を用いて0.5 mm×0.5 mm×0.3 mmのバルクスズ(Sn)製の光子吸収体を、4本の金(Au)バンプを介して搭載した。

TES 画素数増大に伴う、TES 出力の並列読出に要する室温-極低温間の配線数増大は、配線経由の流入熱の増大による極低温冷凍機の熱負荷の増大をもたらす。極低温冷凍機は、TES アレイスペクトロメータの消費電力、体積、価格の支配要因となる。この問題解決のため、複数画素のTES 出力を極低温下で1本の読出線に多重化するための読出回路を開発した。複数の多重化方式⁽¹⁾の中で、本研究では、HEMT の持つ広帯域性と信号電力に対する高いダイナミックレンジを多重化数増大に活かしたMW-Mux ⁽²⁾を採用し、開発した。MW-Mux の動作原理は、3.2.7節で述べる。

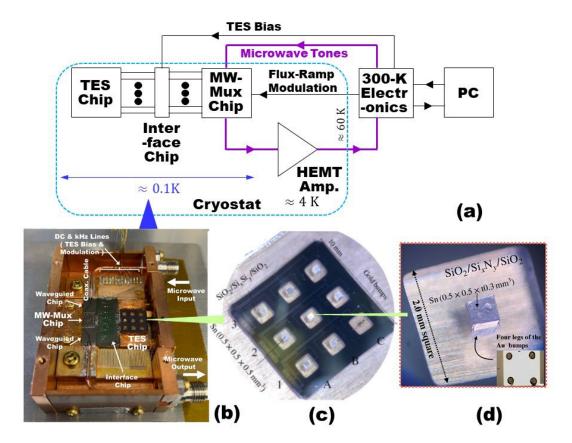


図 3.2-1 (a) TES アレイスペクトロメータの構成。青点線枠内が極低温冷却部。 (b) 約 0.1~K の極低温モジュール (c) TES チップ (d) TES 上に金(Au) バンプを介して搭載されるバルクスズ吸収体。下地の透明部は三層メンブレン。

3.2.2 SiO₂/Si_xN_y/SiO₂三層メンブレンの特徴 【H3O-R3】

TES の温度検知部を構成する超伝導/常伝導二層膜の抵抗 R-温度 T 特性、つまり TES の超伝導転移温度 T_c 、転移温度幅 ΔT 、常伝導抵抗 R_c 等は、二層膜の下地となるメンブレンの材質、結晶構造、応力に依存する可能性がある。また、標記パラメータ及び、温度検知部と熱浴との間の熱コンダクタンス G は、TES の特性や光子検出性能を支配する。このため、多画素 TES の特性均一化を図るためには、メンブレンの材質、結晶構造、応力の場所分布を抑制する必要がある。従来、化学量論的組成の Si_3N_4 、または、 $X \approx 3$ $Y \approx 4$ におい

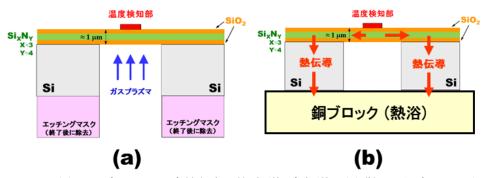


図3.2-2 三層メンブレンと温度検知部(超伝導/常伝導二層膜)から成る TES 断面 (a) 裏地シリコンの深堀エッチング時に、メンブレン表面がガスプラズマに曝される様子 (b) クライオスタットに実装した TES の動作時の熱の流れ

て応力の絶対値を 0 に近づけた低応力 Si_xN_Y 単層膜が、メンブレンとしてよく使われ、熱 伝導特性もよく調べられている⁽³⁾⁻⁽⁸⁾。メンブレンの裏地には、もともと基板材料である Si が厚さ数百 μm 存在するが、これを図 3.2-2 に示すように、ガスプラズマによる深堀 リアクティブイオンエッチング (Deep RIE) により除去し、厚み 0.5-10 μm 程度の自立メン ブレン膜により、上の超伝導/常伝導二層膜を支えるとともに、所望の G を得る。Si の Deep RIE におけるエッチングレート(単位時間内のエッチング膜厚)には、RIE 装置の場 所分布が不可避となる。SixNy 単層膜はプラズマ耐性が低いため、その組成や応力が、Si を全て削り切った後のガスプラズマへの曝露時間依存性、すなわち、場所依存性を持つ 可能性が考えられる。これは、その上に成膜する超伝導/常伝導二層膜の特性の画素間不 均一性の原因となり得るため、多画素 TES の特性均一化を目指す本研究にとって、解決す べき問題である。一方、SiO2は、プラズマ耐性がSixNyより強く、また、正 (tensile) の 応力を示す Si_xN_Y とは逆の、負(Compressive)の応力を示す成膜条件を設定できる。した がって、Si_xN_yとSiO₂から成る多層膜は、裏地Siのオーバエッチに対するガスプラズマ耐 性と 0 に近い応力を併せ持ち、その結果、このような膜の上に成膜した超伝導/常伝導二 層膜の特性は、優れた場所的均一性を持つことが期待される。以上の思想の基、かつて、 ミリ波(連続波)検出 TES ボロメータアレイのメンブレンとして採用が考えられた SiO₂/Si_XN_Y/SiO₂ 三層膜^{(9), (10)}を、本研究では、X 線・y線の光子計数 TES 用メンブレンと して初めて採用することとした。本研究では、液体材料利用の化学的気相成長(Chemical Vapor Deposition; CVD) 法⁽¹¹⁾により、SiO₂/SixNy/SiO₂ 三層膜を成膜した。

3.2.3 SiO₂/Si_xN_Y/SiO₂三層メンブレンの作製 【H3O-R1】

平成30年度業務計画の「化学気相成長法により、TESを周辺環境から熱的に絶縁するために用いる低応力メンブレン用絶縁体膜を試作する。」、および、令和元年度業務計画の「均一な特性のTESアレイ実現の鍵となる、低応力メンブレン用絶縁体膜と超伝導薄膜の積層構造の作製条件を詰め、単画素TESを試作する。」に対し、以下を実施し、目標を達成した。

- 1. 自立三層メンブレン(SiO₂/Si_xN_y/SiO₂; Max. 22 mm□)の試作(図3.2-1 (d)) に成功し、金(Au)ポストを介したSnバルク吸収体搭載に耐える強度を持つことを確認(図3.2-1 (c), (d)) した。
- 2. 三層メンブレン上にチタン/金(Ti/Au)を積層し、所有する極低温冷凍機内で温度制御可能な T_c を持つ4 9画素TES試作に成功(図3.2-1 (c))した。詳細は、3.2.4節に述べる。

3.2.4 超伝導/常伝導二層膜の試作と特性均一性の評価 【H30-R2】

CVD 法により成膜された $SiO_2/Si_xN_y/SiO_2$ 三層膜の上に、温度検知部となるチタン/金 (Ti/Au) 二層膜を、直流マグネトロンスパッタ法により成膜した。用いた成膜装置は、チタン (Ti) 成膜室と金 (Au) 成膜室、および、成膜対象となる試料を大気圧から成膜室に移送する前に真空に排気するための準備(ロードロック)室の3つの真空室から成る。バイアス電流用・出力読出用の超伝導配線材料をニオブ (Nb) とし、直流マグネトロンスパ

ッタ法により成膜した。自立メンブレン形成のため、部分的に $SiO_2/Si_xN_y/SiO_2$ 三層膜裏地のシリコン基板を深堀エッチングした。具体的工程を順番に示す。

- 1) 3 inch 径シリコン基板表面への、SiO₂/Si_xN_Y/SiO₂ 三層膜の CVD 成膜
- 2) 応力評価; TES 特性の制御性・再現性の実現にとって、メンブレン成膜後の所定の応力実現は重要
- 3) シリコン基板裏面への、深堀エッチング時マスク用 SiO₂の CVD 成膜
- 4) マスク形状のパターニングとエッチングによる、基板裏面からの不要部の SiO₂ 除去
- 5) チタン/金(Ti/Au) 成膜装置でのプラズマクリーニング
- 6) チタン(Ti)成膜
- 7) 金(Au)成膜
- 8) 温度検知部のパターニングと浸漬エッチングによる、不要部のチタン/金(Ti/Au)除 去
- 9) 配線レイヤーパターニング
- 10) ニオブ(Nb)電極成膜
- 11) 不要部のニオブ(Nb)をレジストマスクとともに除去(リフトオフプロセス)
- 12) 11) までの工程を完了した 3 inch 径シリコン基板を、深堀エッチング装置へのセットに適する、4 inch 径シリコン基板へのレジストによる貼付け
- 13) シリコン基板裏面の深堀エッチング
- 14) アセトン浸漬 (レジスト溶解) による 4 inch 径シリコン基板からの 3 inch 試料の 取り外し

以上の工程により、TES が完成(図 3.2-1(c))した。これにより、平成 30 年度業務計画の「均一な特性のTESアレイ実現の鍵となる超伝導薄膜の材質を、スパッタ成膜法により検討する」および令和元年度業務計画の「超伝導薄膜の積層構造の作製条件を詰め、単画素 TES を試作する」を達成した。

X 線・ γ 線の光子検出用 TES において、光子エネルギーE とエネルギー分解能 ΔE の比 $E/\Delta E \geq 1 \times 10^3$ を得るためには、約 0.1 K 以下の超伝導転移温度 T_c が必要となる。一方、多くの超伝導体は、材料によって T_c がほぼ決まってしまう。超伝導体中での超伝導体電子対の相互作用長の目安となるコヒーレンス長と同程度以下の厚み t_S の超伝導薄膜に、ある厚み t_N の常伝導金属膜を積層すると、超伝導薄膜の臨界温度 T_c を、 t_N により制御することが可能となる(近接効果 $^{(12)}$)。この現象の利用により、0.4 K であるチタン (Ti)の T_c を、本研究における TES の T_c として適当な約 0.1 K に下げることが可能となる。 T_c のウエハ面内での均一性、制御性の確保には、 t_S や t_N が、ウエハ面内で均一であることが重要である。また、チタン/金(Ti/Au) 界面に酸化膜が形成されると、これが二層膜間の電子の透過率を下げ、理論予測からの T_c のずれを引き起こす $^{(13)}$ と考えられる。超伝導/常伝導二層膜の抵抗温度特性の画素間均一化のためには、以上を考慮に入れた上で、成膜条件の最適化を図る必要がある。

図 3.2-3(a) に、30 nm の設計膜厚のチタン(Ti) 上の金(Au) 設計膜厚 t_{ND} を 50-125 nm の 範囲で可変に成膜した場合の、金(Au) 設計膜厚を関数としたチタン/金(Ti/Au) 二層膜の

 T_c を示す。ウエハ中心からの半径 15.8, 21.2, 29.2 mm の 3 通りの位置のチップにおいて評価を行った。また、その位置にある 10 mm×10 mm チップ上に配置される 3×3 画素 TES における画素毎の T_c の分布を、図 3.2-3(b) 示す。

図 3. 2-3 (a) に、 t_{ND} 増大に伴う T_{C} の低下が測定された。これは、近接効果の理論と合致する結果である。一方、3 通りの Rに対する T_{C} 変化に関しては、一見、理論とは逆の傾向を呈した。成膜に用いた直流マグネトロンスパッタ装置の性質上、ウエハ中心に近い(Rが小となる)程、金 (Au) 膜厚は大となる。つまり、 t_{ND} が大となる程、厚い金 (Au) により近接効果が強く発現し、 T_{C} 低下の方向と予測されたが、実験結果は逆の傾向を示した。この原因として、面内分布を無視し Rに独立に 30 nm 厚みと仮定したチタン (Ti) が、金 (Au) 同様、R増大に伴い膜厚が低下し、そのため R増大に伴うチタン (Ti) の超伝導性(金 (Au) を付与しない場合の T_{C})低下が、 T_{C} 増大に伴う金 (Au) 膜厚低下による近接効果の弱まり(に基づく T_{C} 増大)の程度を上回ったと解釈できる。また、ウエハ上の異なる T_{C} の位置のチップに対し、 T_{C} の最大値と最小値を各々 T_{C} max、 T_{C} min と定義し、 T_{C} のばらつき指標を T_{C} =2 (T_{C} max - T_{C} min) /(T_{C} max + T_{C} min))と定める。 t_{ND} =100 nm かつ T_{C} =15.8 mm, 29.2 mm(両チップ中央の間隔: 13.4 mm)に対し、 T_{C} max=142 mK, T_{C} min=120 mK ゆえ、 T_{C} =0.15 を得る。

図 3. 2-3 (b) において、中心が R =21.2 mm にある 10 mm×10 mm チップ内 9 画素間(チタン/金(Ti/Au)温度センサ部どうしの距離は、チップの一辺に平行、垂直な方向ともに 5 mm)の T_c 分布は、132 $\leq T_c$ (mK) \leq 135 であった。今度は、チップ内における T_c の最大ばらつき指標を $\sigma T_c \equiv 2(T_{cmax} - T_{cmin})/(T_{cmax} + T_{cmin})$)で定義すると、 $\sigma T_c =0.03$ を得る。また、チップに搭載された 9 画素中 8 画素の TES に関して、常伝導抵抗のばらつき、および、同一バイアス電流に対する TES 抵抗のばらつきの測定結果は、ともに 14%であった。実際の分光計では、直列接続した複数画素 TES に一定値のバイアス電流を供給する。その際、TES 抵抗のばらつきは、最適条件からのずれ、例えばエネルギー分解能劣化の原因となり得る。

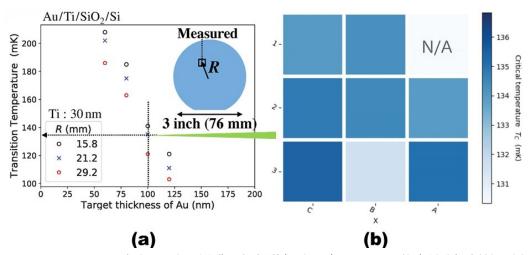


図 3.2-3 チタン/金(Ti/Au) 二層膜の超伝導転移温度 T_C の場所依存性(実験値) (a) 3 インチ径ウエハ中心からの距離 R 3 通りに対する、 T_C の金(Au) 目標厚み t_N 依存性 (b) t_{ND} =100 nm かつ中心が R=21.2 mm に位置する 10 mm×10 mm チップ内での T_C の分布

他機関における TES の T_c のウエハ面内依存性の報告例を挙げる。米国 NASA Goddard Space Flight Center の天文観測用モリブデン/金 (Mo/Au) 製 X 線 TES に関し、共通バイアス電流を流す同一チップ内の 30 画素 TES で $T_{\rm cmax}$ =84 mK, $T_{\rm cmin}$ =78 mK の報告 $^{(14)}$ があり、 σT_c =0.07 と算出される。また、米国国立標準研究所 (NIST) の核燃料非破壊検査用モリブデン/銅 (Mo/Cu) 製 γ 線 TES に関し、3 inch 径ウエハ上に作製される 4 チップ中 1 チップ (66 画素搭載) で、 $T_{\rm cmax}$ =122 mK, $T_{\rm cmin}$ =118 mK の報告 $^{(15)}$ があり、 σT_c =0.03 と算出される。本研究で得た σT_c は、ウエハ中心から 15-30 mm 離れた領域では劣るが、R =21.2 mm にある 10 mm×10 mm チップ内では遜色ない。NIST は、 σT_c =0.03 に対して、236 画素中 221 画素におけるエネルギー分解能が、50+/-10 eV の範囲内に収まったと報告している $^{(15)}$ 。先に述べた、直列接続時に生じるバイアス電流最適値のずれが、エネルギー分解能分布の一因と考えられるが、50+/-10 eV の分布が、本事業で許容されると考えれば、 本実験で得られたチップ内における TC の最大ばらつき指標 σT_c =0.03 を前提とし、今後の TES 試作を行うことは妥当と考えられる。

以上により、平成30年度目標の「均一な特性のTESアレイ実現の鍵となる…スパッタ成膜法により検討する。」、令和元年度目標の「均一な特性の…超伝導薄膜の積層構造の作製条件を詰め、単画素TESを試作する。」、および令和2年度目標の「超伝導/常伝導二層膜の抵抗温度特性を評価し、特性の画素間均一化実現に向く作製条件を見出す」を達成した。

この実験結果から、画素間均一性に優れるチップ開発のための、以下の成膜指針を得た。

- (1) 所望のエネルギー分解能に適した $T_{\rm c} \approx 140$ mK を得るためには、30 nm 厚みのチタン (Ti)に対し 100 nm の金(Au) 膜厚とする。
- (2) この時、直径 3 inch(= 76.2 mm) ウエハ上の 15.8 \leq R (mm) \leq 29.2 の領域に存在 するチップの TES の T_c が、120 \leq T_c (mK) \leq 142 (σ T_c =0.15) 程度の分布を持つとの前提で、 今後の設計を行う必要がある。
- (3) $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ チップ上に配置される 3×3 画素 TES における T_c は、 $132 \le T_c$ (mK) $\le 135 (\sigma T_c = 0.03)$ の分布を持つとの前提で、今後の設計を行う必要がある。
- (4) T_c のウエハ内分布と、チタン(Ti)および金(Au)の膜厚のウエハ内分布を併せて考えると、二層膜の T_c の分布は、金(Au)の膜厚分布よりもチタン(Ti)の膜厚分布に支配されている可能性が高い。

この指針を基に、令和 2 年度目標の「16 画素 TES を試作する」を達成(図 3.2-4) した。

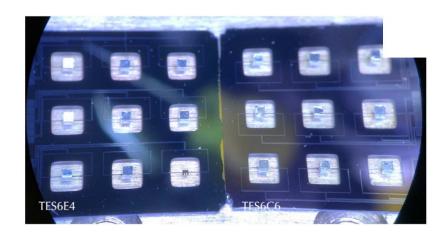


図 3.2-4 開発した 9 画素搭載 10 mm×10 mmTES チップ; 2 チップ実装により、令和 2 年度目標の 16 画素を上回る 18 画素を実現した。

3.2.5 三層メンブレンの熱伝導特性 【R2】

固体内の熱伝導には、図 3.2–5 に示すように、大別して 2 つの機構が考えられている。フォノンが、伝搬経路内で不純物等により非弾性散乱されながら伝搬する拡散的伝導と、伝搬経路内をエネルギーが失われずに伝搬する放射的または弾道的伝導である。熱伝導距離 L とフォノンの平均自由行程 I_{Ph} との間の大小関係により、どちらが支配的になるかが決まる。拡散的熱伝導(L) I_{Ph} では、メンブレン内のフォノン散乱に寄与する因子との衝突回数が熱伝導率を決める、すなわち、L 大に従い、L にほぼ比例した頻度の散乱をフォノンが受けるため、電気抵抗におけるオームの法則の如く、熱伝導率はL にほぼ反比例する。L と I_{Ph} を制御できる場合には、L による G 調整との設計自由度を持たせられる利点がある反面、フォノンの非弾性散乱要因となる不純物濃度や格子欠陥密度等の制御が困難な場合には、G の制御性・再現性は望めない欠点がある。一方、放射的または弾道的伝導(L) 《 I_{Ph})では、エネルギー損失が無視できるので、熱伝導率は、 I_{Ph} に独立に、熱放射源(TES)

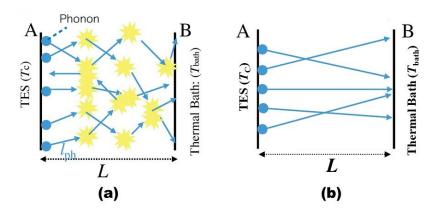


図 3.2-5 メンブレンの代表的熱伝導機構 (a) 拡散的($L \gg l_{Ph}$ の時) (b) 放射的($L \ll l_{Ph}$ の時)

の場合には、温度検知部直下のメンブレン直方体)の放射面積と熱を受ける側(TES の場 合には、シリコン下地が削られず残っている部分のメンブレン)の有効面積により決まる。 したがって、TES チップ作製工程において、これら幾何学的寸法の再現性さえ得られれば、 制御性・再現性に富む G の実現が期待できる。従来の Si_xN_y 単層メンブレンの多くは、放 射的または弾道的伝導が支配的との報告 $^{(4),(6),(8)}$ がなされており、実際、Gが、TES 温度 検知部二層膜の周囲長と、その直下にあるメンブレンの厚みの積に比例するとの実験結果 報告 $^{(16)}$ もある。TES 動作温度を $T_{
m c}$ に到達させるに要する電力 $P_{
m TES}$ のメンブレン長 L 依存性 を測定し、理論と比較(図3.2-6)した。実験結果は、図3.2-5に熱伝導機構を示す拡散 的(Diffusive)、放射(弾道)的(Ballistic)いずれの理論曲線とも一致しないことがわか る。一方、対極を成すこれら二つの熱伝導機構の中間状態、すなわち、放射(弾道)的熱 伝導機構をベースとし、それに若干の非弾性散乱効果を採り入れた中間的熱伝導機構(L ≈ $l_{\rm Ph}$ の場合; Ballistic / Diffusive) の理論値(3)は、 $P_{\rm ES}$ が拡散的熱伝導に比べ弱い $L/l_{\rm Ph}$ 依存性 を示すが、実験値は、 $I_{Ph} \approx 1 \ \text{mm}$ の場合の中間状態の理論曲線によく合致することがわか る。また、実験に用いた幾何学的寸法 $0.1 \le L \pmod{5} \le 0.6$ は、フィッティングにより得 られた $I_{Ph} \approx 1$ mm に対し、 $0.1 \leq L/I_{Ph} \leq 0.6$ ゆえ、中間的熱伝導機構の適用条件 $L \approx I_{Ph}$ と矛盾はない。以上から、令和2年度目標である三層メンブレンにおける熱伝導特性の評 価を達成した。

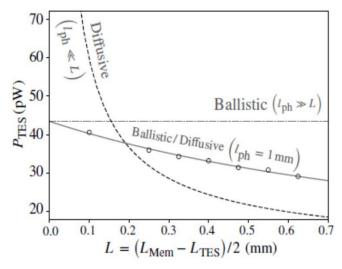


図 3.2-6 TES 動作温度を転移温度 T_c に到達させるに要する電力 P_{TES} のメンブレン長 L 依存性の実験値(\bigcirc)と理論値(点線,一点鎖線,実線)との比較

3.2.6 三層メンブレンの低周波雑音と応答速度 【R3】

従来の Si_xN_Y 単層膜メンブレンでは、放射(弾道)的熱伝導機構が報告されていた。放射(弾道)的熱伝導機構では、G は TES の周囲長×メンブレン厚みに比例するとの実験結果 $(^{16)}$ が報告されている。将来的に、バルク吸収体搭載 TES の検出エネルギーを、 $(^{137}$ Cs 輝線の存在する 660 keV 付近まで拡張する場合、100 keV 対応のスズ (Sn) 吸収体の厚みを増大するか、あるいは原子番号がスズ (Sn) より大きなタンタル (Ta) 等の吸収体を使う $(^{17)}$ 選択肢が考えられる。例えば、E=100 keV の γ 線光子に対し約 30%の吸収率を持つ厚み 0.3

mm のスズ(Sn) 吸収体は、 $20\le E$ (keV) ≤ 220 の範囲のエネルギーを持つ光子に対し許容できる吸収率を持つとの報告 $^{(15)}$ がある一方、 600 keV 光子に対する吸収率はわずか 1.4% $^{(17)}$ に過ぎない。スズ(Sn) 吸収体の厚みを 1.2 mm に増大すると、600 keV 吸収率は 5.5%に増大する。一方、厚みを 4 倍にする分、吸収体重量も 4 倍となる。また、0.3 mm 厚みスズ (Sn) を 0.3 mm 厚みタンタル(Ta) に置き換えると、600 keV 光子吸収率は 5.2%へ増大し、

表 3.2-1 Si_xN_y/Si_NO₂/Si_xN_y 三層メンブレンと従来型 Si_xN_y 単層メンブレンの比較

Institute	Target	Membrane	T _c (mK)	$G(T_c)$ (nW/K)	Thickness (µm)
This work	γ	SiO ₂ /Si _x N _y /SiO ₂	131-135	1.1 - 1.7	6.9
NIST (15)	γ	Si_xN_y	120	2.4 - 3.3	1
SRON (4)	X	Si_xN_y	130	0.8	1

重量は 2.3 倍 $^{(18)}$ となる (スズ(Sn) およびタンタル(Ta) の γ 線吸収体の性能評価について、 3.3.3 (4) 節参照)。いずれも、厚み 0.3 mm のスズ(Sn) 吸収体の保持機能を持つ従来型 γ 線 TES に比べ、機械的強度の高いであろう厚いメンブレンが望まれる。従来の $\mathrm{Si}_{x}\mathrm{N}_{y}$ 単層 膜メンブレンでは、G が厚みに比例するため、厚いメンブレンの使用は、G 増大をもたらす。また、TES-熱浴間の熱コンダクタンスゆらぎに起因する雑音等価電流スペクトルの 理論式は、

$$\delta I_{\text{Ph}} = \sqrt{4k_B T_C^2 G \Gamma} |s_I| ---- (3.2-1)$$

で与えられ $^{(19)}$ 、 \sqrt{G} に比例する。但し、 K_B はボルツマン定数、 Γ はメンブレン内での熱伝導に関する係数、 $S_I[A/W]$ は TES の応答関数(入力熱パワーから出力電流への変換効率)である。重量増大した吸収体を支えるためのメンブレン厚膜化は、(3.2-1)式より、TES-熱浴間の熱コンダクタンス Gのゆらぎ δI_{Ph} を増大するため、従来の単層メンブレンでは好ましい選択肢ではなかった。

本研究で開発した三層メンブレンは、 $6.9~\mu m$ まで厚くしても、 $1~\mu m$ 厚の従来型単層メンブレンと同程度の値に Gを抑制できることがわかった(表 3.2–1)。これは、低雑音と高機械的強度を両立するメンブレンの可能性を示唆した。

TES を MW-Mux で読み出す系の雑音特性から、TES の雑音スペクトルを得ることができる。読出回路は 3.2.7 節で概略を述べることとし、ここでは実験結果を記述する。

図 3.2-7 に代表的な画素に関する、SQUID 入力端での雑音電流スペクトルを示す。赤は $R/R_N=0.62$ の実測値、黒は検出器雑音と読出回路雑音の和から成る理論値である。検出器雑音は、従来の報告 $^{(20)}$ 上、TES-熱浴間の熱コンダクタンスゆらぎが支配的となる低周波領域、温度検知部のジョンソン雑音が支配的となる高周波領域、吸収体-温度検知部間の熱コンダクタンスゆらぎが支配的となる中周波領域と特徴付けられる。各々の領域で支配的な雑音が、総合雑音理論値と定量的に合うように、各雑音の理論式上のフィッティングパラメータを定めた。TES の動作上、TES が追随する上限周波数 f_{Up} は、出力パルス緩

和時間 τ_F の逆数に相当する $f_{Up}=1/(2\pi\tau_F)$ と考えられる $^{(19)}$ 。 f_{Up} 以下の周波数帯での雑音スペクトルの理論値と実験値とのフィッティングから、三層メンブレンに対し、フィッティングパラメータ p=1.3 が求まった。この値は、表 3.2-2 に示す、従来の $\mathrm{Si}_x\mathrm{N}_Y$ 単層メンブレンで報告された値 $^{(21)}$ に比べ、遜色はない。このことは、 $\mathrm{Si}_0\mathrm{Si}_x\mathrm{N}_Y/\mathrm{Si}_0\mathrm{Si}_z$ 三層メンブレンが、 $\mathrm{Si}_x\mathrm{N}_Y$ 単層メンブレンに比べ余剰雑音を多く発生している訳ではないことを示す。

また、寸法 $0.5 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm} \times 0.3 \text{ mm}$ のスズ吸収体を装荷した TES の出力波形の緩和時間は約 1.4 ms @ 130 mK、立上時間は約 0.2 ms (図 3.2-8) であった。これらは従来の γ 線 TES に関する報告値 $^{(15)}$ と同程度である。したがって、本研究で開発した三層メンブレンを用いた γ 線 TES は、従来の γ 線 TES の想定用途に適用可能と考えられる。

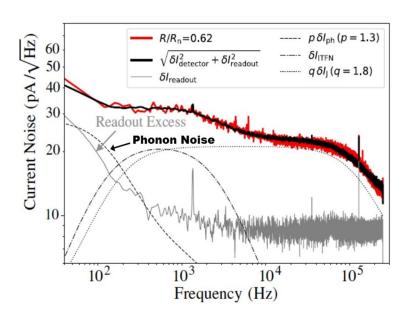


図 3.2-7 SQUID 入力コイルに換算した電流雑音スペクトル。記号は以下のとおり:赤線:実測値、黒線:実測値にフィッティングした理論値(検出器雑音と読出回路雑音の寄与の和)。灰色実線:読出回路雑音の寄与、灰色点線:フォノン雑音理論値(3.2-1)式×1.3 倍、灰色一点鎖線:吸収体-温度検知部間の熱コンダクタンスゆらぎ起因の雑音、灰色点線:温度検知部抵抗のジョンソン雑音×1.8 倍

表 3. 2-2 従来型 Si_xN_yメンブレンを使う TES のフォノン雑音の実験値と理論値の比較

Reference	Operating Mode	Variation	Gamma	Tc (K)	G (pW/K)	Power Noise (aW/(Hz)^0.5)		
						Theo.	Exp.	Exp/Theo
[21]	Bolometer @ 150 GHz	Type-1	0.57	0.465	153	32.50	36	1.11
		Type-2	0.57	0.57	86	29.86	33	1.10
[22] Bolometer @ 5.0-		TES-A	0.5	0.087	0.057	0.11	0.5	4.55
	Bolometer @ 5.0-8.8 THz	TES-B	0.5	0.093	0.06	0.12	0.16	1.33
		TES-C	0.5	0.094	0.031	0.09	0.12	1.37

以上から、本研究で開発した $Si0_2/Si_xN_y/Si0_2$ 三層メンブレンは、従来の Si_xN_y 単層メンブレンと同等の熱コンダクタンス G とフォノン雑音を持った上で、従来メンブレンより約7 倍厚いため、機械強度に優れる可能性を期待できる。

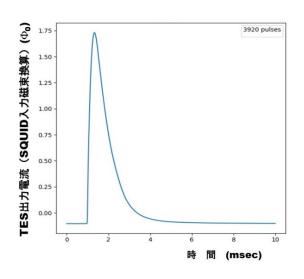


図 3.2-8 光子入射に対する TES 出力波形の一例。縦軸: SQUID への結合磁束量として表示。単位は、磁束量子 Φ_0 ($\Phi_0 \equiv h/(2e)$; h: Planck 定数、e: 単位電荷)。

3.2.7 多画素 TES と MW-Mux の協調動作 【R3】

以上の熱伝導特性と超伝導/常伝導二層膜の抵抗温度特性を持つ TES 9 画素を、 $10\,$ mm× $10\,$ mm チップ上に作製した。また、 $8\,$ 画素 TES を $1\,$ 本のマイクロ波読出線上に信号多重化できる MW-Mux チップを、 $3.2.8\,$ 節に述べる課題への取り組み等により、開発 $^{(23)}$ した。さらに、これらのチップの温度を約 $100\,$ mK に固定し、分光試験用の放射線源を取り付けられる極低温モジュールを開発した上で、TES と MW-Mux の協調動作を行った。以上は、令和 $2\,$ 年度業務計画目標の $1\,$ つに挙げており、これを達成した。

図 3.2-1(a)に示すスペクトロメータの構成中、極低温下の電気回路を図 3.2-9 に示す。TES の各画素に対応して、長さ(すなわち共振周波数)の異なる超伝導共振器と、TES 出力電流を読み取るための超伝導量子干渉素子(SQUID)が、MW-Mux チップ上に構成される。SQUID は、TES 出力電流の関数として値が変化するインダクタンスとして機能する。インダクタンス値の変化は、そのインダクタンスで終端される共振器の共振周波数を変調する。つまり、光子の入射した画素のTES 出力電流が、終端インピーダンス条件を介して共振器の共振周波数に応分の変化をもたらす。MW-Mux チップにおけるマイクロ波透過率の周波数依存性は、非共振周波数帯ではほぼ1の透過率、共振周波数ではほぼ全反射(透過率=0)となる(図 3.2-9(b))。本実験では、8 画素 TES を直列接続し、1 系統のバイアス電流を流した。これは、画素別のバイアスに比べ、多画素動作時の調整の手間の低減および極低温-室温間の配線数減少の利点を持つ。反面、電流電圧特性が画素間で均一でない場合には、各画素は、必ずしも最適動作点にバイアスされない。直列バイアスの基

で充分なエネルギー分解能の多画素検出を可能とする程度の、特性の画素間均一性向上を研究目標として目指しつつ、途中段階においては、各画素において性能最適となる複数のバイアス電流値を設定した性能評価実験や分光実験を柔軟に採り入れた。

これにより、令和 2 年度に開発した多画素 TES の特性・性能評価を行い、令和 3 年度 の TES 作製技術の進展も総合的に考慮し、更に令和 2 年度開発の多重読出回路と組み合わせた動作を達成した。

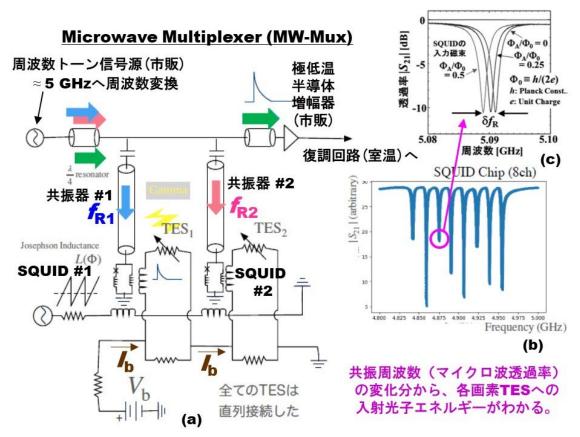


図 3. 2-9 (a) 複数画素 TES の MW-Mux による周波数多重読出回路。簡単のため、2 画素 の場合を示す。(b) マイクロ波透過率の周波数依存性。(c) (b) に示す8本の ディップの各々が、SQUID への入力磁束 Φ_A に対し、磁束量子 Φ_0 (Φ_0 \equiv h/(2e); h: Planck 定数、e: 単位電荷)を単位とする周期的応答を示す。

3.2.8 読出回路素子作製工程の改良 【H30-R1】

平成30年度業務計画の「検出器エネルギー分解能に占める読出回路雑音の寄与を現状値の50%以下に低減する回路改良に着手する。」に対し、TESとの結合度増大により低雑音化を図った読出回路を考案した。

令和元年度業務計画の「TES との結合度増大により低雑音化を図った読出回路に関し、 共振 Q値の画素間均一性を図るための読出回路素子作製工程を確立する。」に対し、以下 を実施し、目標を達成した。

共振 Q値の画素間の均一性、および検出器エネルギー分解能に占める読出回路雑音に大

きく寄与すると考えられた、①MW-Muxチップ上の金属残渣物 ②マイクロ波伝送線での電磁波の反射に対し、①残渣物発生を低減する作製工程 ②反射抑制に効果ある線路の接地法を開発した。また、これにより、読出回路雑音をTES雑音に比べ無視できるレベルへの低減、および、共振Q値の画素間均一性を得ることに成功し、標記2方法の効果を確認した。

3.2.9 測定試験用スペクトロメータ: TRU 起因の近接2 輝線の精密分光 【R3】

図 3.2-10 に測定系を示す。TES と MW-Mux の協調動作実証のための、極低温冷凍機(ADR) や室温信号処理回路等を含む実験系である。図 3.2-10 (a) 中、ADR が断熱消磁冷凍機とクライオスタット、右側の制御ラック内に、極低温下のチップの温度制御装置が配置され、手前の机に、極低温下チップに与える信号や、チップの応答出力を見る室温回路が配置される。図 3.2-10 (b) は、図 3.2-1(b) に示した極低温モジュールに、放射線源を固定可能な蓋を施したものとなる。10 mm×10 mmの TES チップ上の各画素への、放射線源からの光子入射頻度均一化のため、測定対象となるネプツニウム(237 Np)線源を、TES チップから十分離れた 8 mm の位置に置いた。予備実験では、 237 Np 線源からは、検出対象である 237 Np 線の単一光子分光に支障を来たした。これを解決する TES 出力パルスに重なり、 237 Np 線の単一光子分光に支障を来たした。これを解決するため、 237 Np 線源の手前に、アルファ線や 237 Np 線源の手前に、アルファ線の減衰は無視できる。図 3.2-10 (c)はアルミニウム箔の枚数と計数率の測定結果である。枚数増大に伴い計数率が低下し、 237 Np かっこれによ

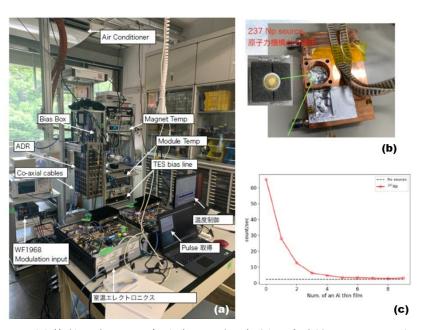


図 3.2-10 (a) 複数画素 TES、多重読出回路、極低温冷凍機をベースとする測定系。(b) 極低温モジュールの蓋に取り付けた ²³⁷Np 線源。(c) (b) において ²³⁷Np 線源の前部に挟むアルミニウム箔の枚数に対する TES の計数。ベータ線の遮蔽効果による計数低下が見られる。5-6 枚以上で、計数飽和が観測される。

り、アルファ線や β 線によるパイルアップなしに、 γ 線を検出できることがわかった。 TES チップと読出回路チップの間に配置されるインターフェースチップ上には、TES を 定電圧バイアスするため、TES の動作点抵抗に比べ充分小さな抵抗が配置された。図 3.2-1(c)の TES チップ上 9 画素のうち、4 画素は実験途上で吸収体が脱落したため、分光測定 対象から外した。残りの 5 画素 TES (A1, A2, B1, B2, C2) は直列バイアスされ、マイクロ波多重回路で同時に読み出された。読出回路雑音は、TES 雑音に比べ十分低く抑制された。TES による分光に先立ち、同一放射線源に対し、高純度冷却ゲルマニウム検出器 (HPGe) の分光を行った。

図 3. 2-11 に 60-120 keV のエネルギー範囲において、1 画素 TES(画素 B1)と HPGe 各々により、ネプツニウム(237 Np)線源を測定したスペクトルを示す。青が 237 Np の $^{\gamma}$ 線、赤が 237 Np の 229 U への崩壊途上で生じるプロトアクチニウム(233 Pa)の $^{\gamma}$ 線、黒が X 線を示す。図 3. 2-11 より、HPGe で測定したウラン(U)の K $^{\alpha}$ 2 線と 233 Pa の K $^{\alpha}$ 1 線は重なるが、TES では分離できていることがわかる。このことは、バイオアッセイ $^{(24)}$ や肺モニタへの採用検出器としての TES の優位性を示している。 237 Np 線源の放射部には白金(Pt)が用いられているため、Pt 由来の X 線も観測された。図 3. 2-11 より、Pt 輝線に対しても、TES の分離能力が HPGe より優れることがわかる。ちなみに、86. 5 keV での輝線の半値幅から得た TES のエネルギー分解能は、23 倍優れた値であった。

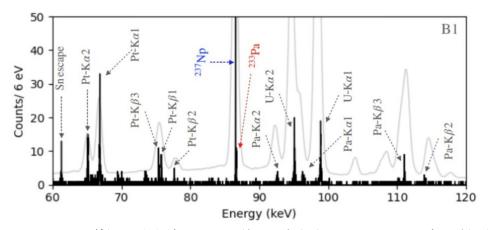


図 3.2-11 237 Np 線源の分光結果。黒:単一画素(B1)TES による 60 時間計測(T_{M} =60 hour)、灰:HPGe、動作点:TES が常伝導状態での抵抗値の約 30%となる抵抗値

高分解能分光にとってエネルギー校正は重要である。本実験の目標は、86.5~keV の ^{237}Np 輝線からわずか 0.1~keV しか離れていない微弱な ^{233}Pa 輝線を分離 (識別) することにある。 ^{233}Pa 輝線の 1 画素あたりの計数率は、約 1 カウント/時間であり、単画素 TES での分光の場合、統計的に意味のある分光データ取得のためには、約 100 時間の計測(信号積分時間 T_{M})を要する。 100~mK における極低温モジュール温度の短時間安定度の二乗平均値が 6~mK である断熱消磁冷凍機をこのように長時間運用すると、TES 出力電流の時間的なドリフトが観測された。これは、光子エネルギー算出の妨げとなるため、次に述べる数値補正を行った。

単一光子検出時の TES 出力電流の時間積分値、すなわちパルス面積を縦軸に、TES に光子入射ない場合の TES 出力電流、すなわちベースラインを横軸にとった二次元平面を図 3.2-12 に示す。図 3.2-12 (a)に示すドリフトが、エネルギー分解能算出に及ぼす影響を低減(補償)するため、 237 Np 輝線@86.5 keV に関し、標記平面の曲線を 3 次元スプライン 関数で補間した結果を、図 3.2-12 (b)の青線で示す。この人工的ベースラインを基準とし、図 3.2-12 (b)上の 237 Np 輝線および 233 Pa 輝線@86.6 keV の実験値から差し引いた値を図 3.2-12 (c)に示す。時間経過に伴うパルス面積とベースラインの変動を補償できたことがわかる。以上のいわゆる「スプライン補間」前と補間後のスペクトルを、各々、

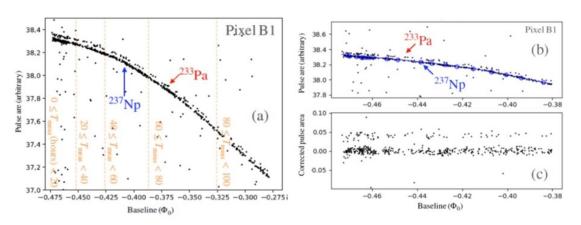


図 3.2-12 スプライン補間による効果 (a)補間前のベースラインとパルス波高値の関係 $(0 \le T_{M}(\text{hour}) \le 100)$ (b) ^{237}Np 輝線に関する時間変動と補間に基づく新たなベースライン (青) $(0 \le T_{M}(\text{hour}) \le 60)$ (c) (b) の各データから、(b) の新ベースラインを差し引いた結果、ベースラインとパルス波高値双方の時間ドリフトが補正され、横軸に平行な直線にほぼ近づいた。

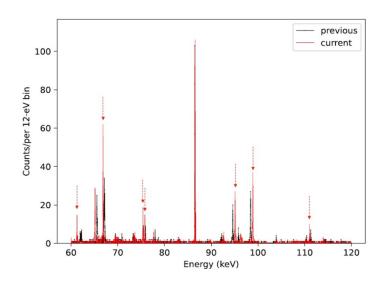


図 3.2-13 60-120 keV 帯スペクトルにおける Spline 補間の効果。黒:補間前、赤:補間後。赤矢印で示す輝線は同一計数の基で補間により高くなった。これは、該当輝線に対する、Spline 補間によるエネルギー分解能の向上を意味する。

図 3.2-13 の黒線と赤線に示す。各輝線の光子計数は、補間前後で等しいにも関わらず、複数の輝線が高くなっている。これは、スプライン補間により、エネルギー分解能が向上したことを意味する。

TES 5 画素毎に採取した 86. 4-86. 8 keV 帯のスペクトルを図 3.2-14 に示す。比較のため、HPGe スペクトルも提示した。図 3.2-14 より、B2, B1, A2, C2 各画素のエネルギー分解能として、39.6+/-1.7 eV、40.3+/-1.5 eV、43.8+/-1.9 eV、47.2+/-2.0 eV が得られた。画素 A1 のみ、58+/-4.4 eV と他の 4 画素より悪く、近接 2 輝線の分離が不十分な結果を得た。画素 A1 では、図 3.2-15 に示すように、光子入射に伴う TES 出力波形に 6 mA 近傍において原因不明の「跳び」が発生した。これが、画素 A1 のエネルギー分解能を劣化させる原因と考えられる。また、60 時間経過中のエネルギー分解能の劣化に関して、画素 B2, B1, A2, C2 についてはわずかであるが、画素 A1 では、劣化は無視できなかった。したがって、本研究の目的である、0.1 keV 差に近接する 2 輝線(237Np 輝線@86. 5 keV と 233Pa 輝線 @86. 6 keV)の分離および輝線間の計数比の高精度測定において、A1 を外し、他の 4 画素での実験データの積算に基づくスペクトル採用が妥当と考えられる。

画素 B1 の 60 時間積分で得た、 237 Np と 233 Pa のスペクトルを図 3. 2-16 (a) に示す。灰色線が HPGe による実測値、黒丸が TES による実験値、青曲線が 237 Np の実験値にフィットした ガウス関数である。青曲線の半値幅から見積もったエネルギー分解能は、 $^{40.3}$ +/- $^{1.5}$ eV であった。 233 Pa の計数は約 1 カウント/時間に過ぎないため、60 時間の積分時間では 約 60 しか計数を稼ぐことができない。そのため、 233 Pa の輝線をガウス関数でフィットすることはできなかった。

以上の状況を改善するため、エネルギー分解能が同様値を呈す 4 画素(A2, B1, B2, C2)の 60 時間の実測データを基にしたスペクトルを図 3.2-16 (b)に示す。総計数は、単画素 60 時間の 459 (図 3.2-16 (a))に対し、4 画素 60 時間では 1719 に増大(図 3.2-16 (b))した。 237 Np の実測値とガウス関数との特にピーク近傍でのフィットの度合が、図 3.2-16 (a)に比べ改善した。また、 233 Pa 輝線が約 230 の計数に増大したことに伴い、ガウス関数でフィットできるようになった。双方の半値幅から、86.5 keV 233 Pa 年 233 Pa 中 233 P

 237 Np の 233 Pa に対する輝線の高さの比に関する、国際度量衡局の勧告値は $6.\ 16+/-0.31$ である。図 $3.\ 2-16$ (b) に示すように、エネルギー窓幅 $11\ eV$ における輝線高さは、 237 Np において $344.\ 1$ カウント、 233 Pa において $54.\ 4$ カウントであった。両者の比 $6.\ 32$ は、勧告値 $6.\ 16$ とほぼ一致する。信号積分時間に伴う計数の更なる増大効果を調べるため、断熱消磁冷凍機に対し 60 時間毎に 4 回の再冷却を繰り返し、目立ったエネルギー分解能の劣化なしに、240 時間の分光も行った。その結果、両者の輝線高さの比は $6.\ 22$ となった。この値は、信号積分時間を 60 時間とした時の $6.\ 32$ よりも、国際度量衡局の勧告値 $6.\ 16$ に近付いた。

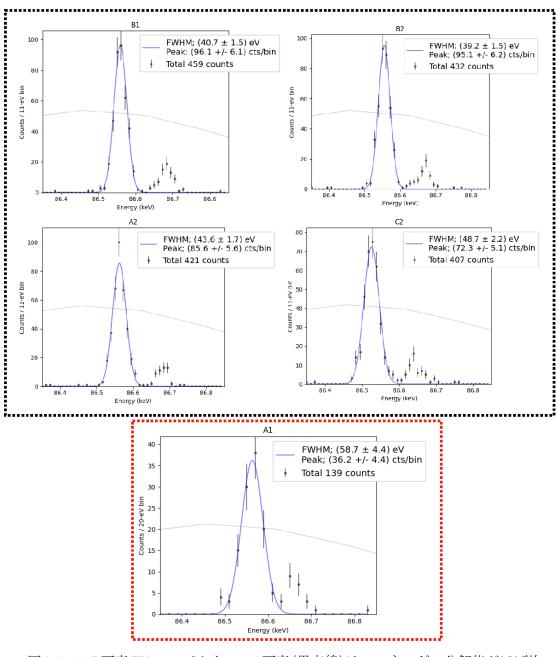


図3.2-145 画素 TES のスペクトル。4 画素 (黒点線) は、エネルギー分解能がほぼ均一。 画素 A1 (赤点線) は他の4 画素に比べ悪い。黒丸:実験値(TES)、青線:ガウス 関数によるフィット、灰線: 比較値(HPGe による測定)

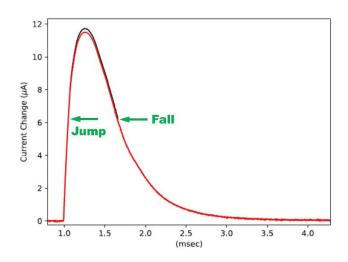


図 3.2-15 画素 A1 の出力波形例。黒線:実測値。立ち上がりと緩和双方とも、6 μA 付近で、出力電流の不連続な跳びが発生。赤線:不連続な跳びを黒線から差し引いた後の波形。

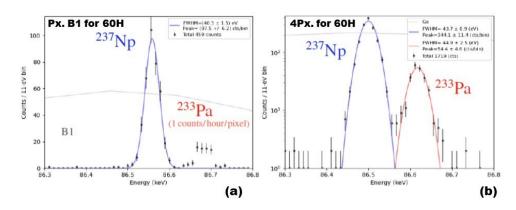


図 3.2-16 60 時間測定による 86.5 keV 付近の ²³⁷Np と ²³³Pa のスペクトル。青: ²³⁷Np を フィッティングしたガウス関数、赤: ²³³Pa をフィッティングしたガウス関数、灰: HPGe の測定値

以上の実験結果から、下記結論が導かれる。

- 1. TES の出力波形が正常かつエネルギー分解能が 39 48 eV の範囲にある 4 画素 TES、マイクロ波読出回路、断熱消磁冷凍機付属のクライオスタットから成るスペクトロメータを開発し、東大での吸収体実装を経て、測定試験を完了した。これにより、令和 3 年度業務計画の「製作した多画素スペクトロメータを東京大学での吸収体実装を経て測定試験を行う。」を達成した。
- 2. 当該スペクトロメータにおいて、信号積分時間増大に伴う光子計数増大により、ガウス関数でフィットできる輝線群を持つTRU分光に成功した。特に、0.1 keV 差に近

- 接した ²³⁷Np と ²³³Pa の輝線を明瞭に分離するとともに、理論値(国際度量衡局の勧告値)に近い計数率の比を得た。
- 3. 5 画素目の TES は、出力パルス波形に原因不明の「跳び」が発生した。このため、エネルギー分解能が他の 4 画素より良くなく、かつ断熱消磁冷凍機の再冷却時間 60 時間内での、エネルギー分解能の時間的劣化が大きく、信号の時間積分に伴う改善が困難とみられた。
- 4. 1~3から、1,2に示すスペクトロメータが、現時点で研究代表機関での測定試験用に提供するに最適と考えられる。これにより、令和3年度業務計画の「前年度に開発した多画素 TES の特性・性能評価を行い、今年度の TES 作製技術の進展も総合的に考慮し、更に前年度開発の多重読出回路と組み合わせた上で、研究代表機関での測定試験用として供するに最適なスペクトロメータ像を明らかにする。」を達成した。
- 5. 1 に示す 4 画素構成の TES アレイスペクトロメータプロトタイプの実験結果から、将来、より多くの画素と広い受光面から成る TES アレイスペクトロメータが開発されれば、240 時間より短い測定時間の基で国際度量衡局の勧告値に近いピーク比が得られることが期待される。また、この実験結果は、バイオアッセイや肺モニタに応用する TES スペクトロメータ設計に資する基礎となり得る。

参考文献

- (1) J. N. Ullom and D. A. Bennett, "Review of superconducting transition-edge sensors for x-ray and gamma-ray spectroscopy," Supercond. Sci. Technol., 28, 084003 (2015).
- (2) J. A. B. Mates, et al., "Simultaneous readout of 128 x-ray and gamma-ray transition-edge microcalorimeters using microwave SQUID multiplexing," Appl. Phys. Lett., 11, 062601 (2017).
- (3) A. A. Joshi and A. Majumdar, "Transient ballistic and diffusive phonon heat transport in thin films," J. Appl. Phys., 74, 31 (1993).
- (4) H. F. C. Hoevers, et al., "Radiative ballistic phonon transport in siliconnitride membranes at low temperature," Appl. Phys. Lett., 86, 251903 (2005).
- (5) M. M. Leivo and J. P. Pekola, "Thermal characteristics of silicon nitride membranes at sub-Kelvin temperatures," Appl. Phys. Lett., 72, 1305 (1998).
- (6) W. Holmes, et al., "Measurements of thermal transport in low stress silicon nitride films," Appl. Phys. Lett., 72, 2250 (1998).
- (7) X. Zhang et al., "Controlling the thermal conductance of silicon nitride membranes at 100 mK temperatures with patterned metal features," Appl. Phys. Lett., 115, 052601 (2019).
- (8) G. Wang et al., "Thermal properties of Silicon Nitride Beams Below One Kelvin," IEEE Trans. Appl. Supercond., 21, 232 (2011).
- (9) M. Ukibe et al., "Fabrication of large NbSi bolometer arrays for CMB

- applications," Nucl. Instrum. Phys. Res. A 559, 554 (2006).
- (10) W. Zhang et al., "Characterization of a Superconducting NbSi Transition Edge Sensor for TeSIA," IEEE Trans. Appl. Supercond., 25 (2015).
- (11) https://www.samcointl.com/portfolio/sin-pecvd/
- (12) P. G. de Gennes, "Boundary Effects in Superconductors," Rev. Mod. Phys., 36, 225 (1964).
- (13) J. M. Martinis et al., "Calculation of $T_{\rm C}$ in a normal-superconductor bilayer using the microscopic-based Usadel theory," Nucl. Instrum. Meth. Phys. Research A 444, 23 (2000).
- (14) S. J. Smith et al., "Uniformity of kilo-pixel arrays of transition-edge sensors for X-ray astronomy," IEEE Trans. Appl. Supercond. 25, 2100505 (2015).
- (15) D. A. Bennett et al., "A high resolution gamma-ray spectrometer based on superconducting microcalorimeters," Rev. Sci. Instrum., 83, 093113 (2012).
- (16) C. Pobes et al., "Comparison of Different Mo/Au TES Designs for Radiation Detectors," J. Low Temp. Phys., 193, 282 (2018).
- (17) M. Ohno et al., "Superconducting Transition Edge Sensor for Gamma-Ray Spectroscopy," IEICE Trans. Electron., E100-C, 283 (2017).
- (18) T. Irimatsugawa et al., "High Energy Gamma-Ray Spectroscopy Using Transition-Edge Sensor with a Superconducting Bulk Tantalum Absorber," IEEE Trans. Appl. Supercond., 25, 2101303 (2015).
- (19) S-F Lee et al., "Voltage-biased superconducting transition-edge bolometer with strong electrothermal feedback operated at 370 mK," Appl. Opt., 37, 3391 (1998).
- (20) N. A. Wakeham et al., "Thermal fluctuation noise in Mo/Au superconducting transition-edge sensor microcalrimeters," J. Appl. Phys., 125, 164503 (2019).
- (21) D. Schwan et al., "Millimeter-wave bolometer array receiver for the Atacama pathfinder experiment Sunyaev-Zel dovich (APEX-SZ) instrument," Rev. Sci. Instrum., 82, 091301 (2011).
- (22) T. Suzuki et al., "Development of Ultra-Low-Noise TES Bolometer Arrays,"
 J. Low Temp. Phys., 184, 52 (2016).
- (23) Y. Nakashima et al., "Investigation of Large Coupling between TES X-ray Microcalorimeter and Microwave Multiplexer Based on Microstrip SQUID," IEEE Trans. Appl. Supercond., 29, 2100705 (2019).
- (24) A. Gagne et al., "A bioassay method for americium and curium in feces," J. Radioanal. Nucl. Chem., 295, 477, (2013), DOI:10.1007/s10967-012-1804-0

3.3 重金属 L X 線・γ線吸収体アレイ実装技術の開発(再委託先:東京大学)

4個の金(Au)バンプポストを配置し、世界に先駆けて安定した L X 線・ γ 線検出用の吸収体を搭載するデバイス作製手法を確立した。これは、検出素子の大規模アレイ化への展開を実現するための核となるデバイス作製技術であり、これをもって、L X 線・ γ 線検出用大規模 TES アレイスペクトロメータ作製の基盤が固められた。

一方、スズ(Sn) およびタンタル(Ta) のバルク、またそれらの単結晶素材を用いた吸収体によるアレイ素子の試作、性能評価を進めた。現時点での性能評価を総括した結果、通常の金属バルクと単結晶での明確な特性の相違は見当たらず、また、タンタル(Ta) については、水分の吸着による熱容量の増大を原因とする性能の著しい劣化も確認され、現段階では安価に調達可能な非単結晶のスズ(Sn) バルクを適用することとした。

本研究で開発したスズ(Sn)のバルク吸収体を極小金(Au)バンプポスト4個を装備した超伝導温度薄膜上に搭載固定する手法をフルに活用して、3×3 TES アレイのスズ(Sn)吸収体検出器デバイス9個(81 画素分)を作製した。実装されたデバイスにおいて、吸収体の脱落等による歩留まり率低下は認められるものの、実用に耐える安定した大規模アレイ作製は実証できたものと考える。

また、測定効率、吸収効率を高める方策として、アレイの2段に重ねることを当初想定していたが、安定的な吸収体の搭載技術の確立によって、これまでの2倍の厚みのある2 mm×2 mm×2 mmγ線吸収体素子の搭載が可能となり、実効的に吸収体を2つ重ねるのと同等の吸収効率が得られる素子の作製にも成功した。

3.3.1 スズ(Sn)をγ線吸収体に適用した TES 検出素子開発の現状と課題【H30】

本研究で目的とする核物質から発生する $100~\rm keV$ 程度のエネルギーを有する γ 線の計測において光電吸収は理想的な相互作用であり、そのためには高い吸収効率を得るため原子番号 Zの大きな物質を選択することが望ましい。また、検出器の高い計数率を実現するため入射 γ 線光子を吸収する十分な吸収体の厚さと、吸収体の広い有感面積が必要となる。したがって本研究で適用する TES 型マイクロカロリーメータ検出器は、超伝導薄膜からなる温度センサ上に重金属のバルクで構成される γ 線吸収体を搭載した検出素子構造を採用する。

TES 型マイクロカロリーメータのエネルギー分解能は比熱 C の 1/2 乗($C^{1/2}$)に比例するため吸収体を大きくするとその熱容量は増加してしまい、温度感度は劣化してしまう。そこで、物質の比熱を低減しつつ、かつ γ 線に対して十分な吸収効率が得られる金属が吸収体に適していると言える。超伝導現象を示す金属ではその金属の超伝導転移温度より充分低い温度まで冷却すれば、超伝導状態において電子比熱の寄与が小さくなり、物質の比熱が急激に減少することで知られている。このため、吸収体に適した超伝導金属としてタンタル(Ta)、レニウム(Re)、モリブデン(Mo)等が挙げられるが、これらの金属は光子エネルギーの熱化過程において準安定状態が存在する。一方で、スズ(Sn)は優れた熱化特性を持っていることから、100 keV の γ 線に対して複数の研究グループで導入されている $^{(1),(2)}$ 。図 3.3-1(左)に示すように、100 keV におけるスズ(Sn)のコンプトン散乱

に対する光電吸収の反応断面積比は 13.0 と十分な値を得ている。また、図 3.3-1(右)に示す通りスズ(Sn)と比較して吸収効率に優れる鉛(Pb)も TES 用の γ 線吸収体候補に適するものと考えられ、特に 100 keV の γ 線に対して鉛(Pb)は 53.2 と高い光電吸収/コンプトン散乱反応断面積比が期待される。しかしながら、鉛(Pb)はスズ(Sn)と比較して熱容量が 6

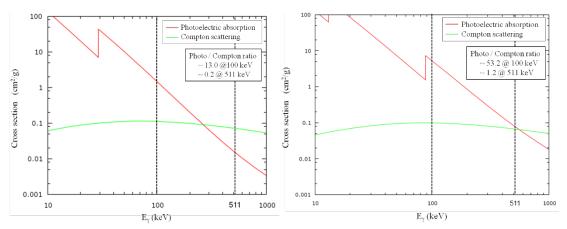


図 3.3-1 スズ(Sn:左)と鉛(Pb:右)に対するγ線の光電吸収、コンプトン散乱の反応断面

倍程高く、本研究実施者のこれまでの研究において $^{(3)}$ 、100 keV の γ 線に対しては十分な S/N 比を得ることが困難であった。したがって本研究実施者は、100 keV 領域の硬X線 γ 線検出用 TES に搭載する放射線吸収体の第一候補として熱容量の低いスズ(Sn)を選択し、検出素子の開発を進めてきた。

これまでに本研究実施者は、スズ(Sn)のバルクから精密な切削加工技術を駆使して、 $0.5\sim1~mm$ 角、厚さが $0.3\sim0.5~mm$ の直方体状の γ 線吸収体ブロックを作製し、これを 0.2~mm 角程度の超伝導薄膜温度センサ上(イリジウム/金: Ir/Au バイレイヤ薄膜)の中央に 1~mm 個の金(Au) バンプを介してわずかなエポキシを用いて搭載・固定した γ 線検出用 TES の作製プロセスを確立している。この金(Au) バンプを γ 線吸収体搭載用のポスト(台座)として適用した γ 線 TES 素子構造は我々独自のアイデアであり、金(Au) バンプポストの高い熱伝導特性により γ 線吸収体が γ 線を吸収して生じた温度上昇を速やかにロスなく超伝導温度センサ薄膜に伝達することが可能となり、エネルギー分光特性の向上および応答速度の高速化に貢献している $^{(4),(5)}$ 。図 3.3-2 に開発した金(Au) バンプにスズ(Sn) 吸収体を搭載した TES 検出素子デバイスおよびその検出による 59.5~keV の γ 線を検出し

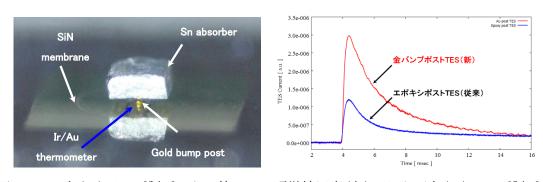


図 3.3-2 金(Au) バンプ製ポストγ線 TES の顕微鏡写真(左)、および金(Au) バンプ製ポスト TES とエポキシ製ポスト TES による ²⁴¹Am (59.5 keV) の平均波形の比較

た典型的な信号波形を示す。これより従来のエポキシ系のポストに γ 線吸収体を搭載した素子に比べて、応答速度は3倍程度優れる3 msec 程度が得られている。なお 237 Np からの 86.5 keV の γ 線に対して高純度 Ge 半導体検出器に比べて10 倍程優れる53 eV のエネルギー分解能を達成している。

以上より、本研究者においてすでに既存半導体検出器の理論的に達成可能なエネルギー分解能を凌駕する γ 線分光特性を実現しつつあるが、しかしながら、TES 検出器において理論的に到達可能と推定されるエネルギー分解能(10 eV 以下)と比較するとまだ分光特性には大きな改善の余地が残されており、また、高線量率環境下での実応用に向けて応答速度のさらなる高速化も求められる。現在の我々の検出素子の性能を大きく制限する要因としては、バルクのスズ(Sn)で構成される γ 線吸収体における熱伝導特性、および γ 線吸収体と超伝導薄膜温度センサを接する金(Au)バンプポスト部の熱伝達特性にあることが明らかになりつつある。そこで本課題では、これらの特性向上を図るべく、金(Au)バンプポスト部の構造をさらに最適化して応答速度の向上やアレイ化時の画素毎の特性のばらつき、歩留まり率向上を図る素子構造・作製プロセス開拓を行う。さらに γ 線吸収体素材として新たに単結晶のスズ(Sn)の適用を検討する。

3.3.2 吸収体と超伝導薄膜温度センサを接続するポストの増大を目指した取り組み【H30-R2】 (1) 吸収体の TES への実装手法の改善【H30】

上記で説明したこれまでの我々独自の金(Au)バンプポストにより吸収体と超伝導薄膜 温度センサを接続する手法においては、基本的に1個の金(Au)バンプポストは超伝導薄膜 温度センサの中央に配する構造を採用してきた。しかしそのような構造は、1 個の金(Au) バンプポストの頂点の1点にて大きなスズ(Sn)吸収体を支えることになるため不安定であ り、とりわけ、素子作製プロセス時に金(Au)バンプポストの上に極少量のエポキシを塗 布して、スズ(Sn)吸収体を搭載した後、そのエポキシが乾くまでは、スズ(Sn)吸収体が 傾いて下の超伝導薄膜センサや窒化シリコンメンブレン上に接したりしないように、周 りからスズ(Sn)吸収体を浮かせるようにスペーサーを噛ますなどして、待たねばならな い。さらに素子完成時にこの吸収体ブロックを支えていたスペーサーを抜き取る過程に おいて、その力加減によって窒化シリコンメンブレンを破損してしまう危険性がかなり 高くなるのが素子作製プロセス上の最難関でありさえする。このような技術的困難は、 シングル画素あるいは少数の画素からなるアレイ素子を作製するにあたっては、作製プ ロセスを実施する研究者の経験的な慣れや工夫により素子完成の歩留まりを向上させる ことは何とか可能であったが、本課題で想定される数 10 画素からなる大規模アレイにお いては、画素の集積度が高まることもあいまって、このようなスペーサーを用いた素子 作製プロセスを実施することは極めて困難と言わざるを得ない。さらに素子作製プロセ ス完成後においても、金(Au)バンプ1個で支えられているスズ(Sn)吸収体を搭載した素子 では、機械的強度が大変弱く、少しの衝撃でスズ(Sn)吸収体が脱落するケースが後を絶 たなかった。

そこで、本課題では、このような素子構造の弱点を解消するために、超伝導薄膜温度 センサ上に複数個の金(Au)バンプポストを形成させ、それらの上に吸収体を搭載する素 子構造の設計を開始し、試作を進めた。図 3.3-3 に大きさ $250 \mu m$ 角のイリジウム/金 (Ir/Au)薄膜の画素 1 個に金(Au)バンプポストを 4 個配した試作素子の写真を示す。

このような金(Au)バンプポストの個数増加は、スズ(Sn)吸収体の保持状態を安定化さ せ、吸収体搭載固定時のスペーサーの挿入の手間を省き、大規模画素アレイ上への吸収 体を取り付けるプロセスの実質的な確立に大きく寄与するものである。そして、このよ うな改善は、上記で述べた利点以外にも、吸収体と超伝導薄膜温度センサ間の熱伝達を 向上させ、応答速度高速化につながることが期待される。また、従来の1個の金(Au)バン プポストで吸収体を支える素子においては、金(Au)バンプポストの先端のわずかな形状 の違いや、金(Au)バンプポストの先端に塗布するエポキシの量の素子毎のばらつきによ り、素子毎に吸収体と超伝導薄膜温度センサ間の熱結合の強さに違いが生じ、これは、 エネルギー分解能や応答速度等の検出特性が素子毎に異なる主な原因となっていた。し かしながら、画素あたりの金(Au)バンプポストを増加させることで、個々の金(Au)バン プポストにおいて形状やエポキシ塗布量にばらつきがあっても、それらの違いが目立た なくなる(平均化される)こととなり、これは大規模アレイの画素毎の特性のばらつき を抑制する方向に作用するものと考えられる。しかしながら、金(Au)バンプポストの増 加は、金の熱容量増加と直結し、これはセンサのエネルギー分解能や応答速度を劣化さ せる要因にもなるため、今後、素子の試作、性能評価を通して、個々の金(Au)バンプポ ストの大きさや個数の最適化は TES 検出素子デバイスの設計に必要不可欠となる。





図3.3-3 超伝導イリジウム/金(Ir/Au)超伝導薄膜温度センサ1 画素上に金(Au)バンプポストを4個作成したデバイス(左:斜上から見た顕微鏡写真 右:真上から見た顕微鏡写真)

(2) 金(Au) バンプポスト個数の増化に伴う課題【R1-R2】

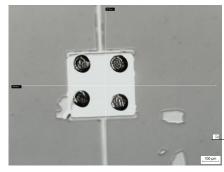
金 (Au) バンプポストの個数を増加させる素子構造の検討、試作を進めた結果、個数の増加に伴う課題が明らかとなった。図 3.3-3のプロトタイプ試作素子の写真に見られる通り、 $250\,\mu$ m 角のイリジウム/金 (Ir/Au) 超伝導薄膜温度センサ上に 4 個の金 (Au) バンプポストが辛うじて搭載できているが、超伝導薄膜温度センサのスペースに比べて金 (Au) バンプの径が大きすぎてはみ出しそうな状況である。このような素子においてまず考えられる懸念は、金 (Au) バンプポストの体積が大きく、金 (Au) は本検出素子で想定される動作温度においては常伝導状態を維持するため、電子比熱の寄与が大きくなり、検出器の

熱容量を増大させ、TES の検出性能の著しい劣化を招くこととなる。しかも、金(Au)バン プの直下のイリジウム/金(Ir/Au)薄膜の超伝導転移温度は金(Au)バンプと接しないイリ ジウム/金(Ir/Au)薄膜の領域の超伝導転移温度と比べて低下することも考えられるため、 検出素子の安定した動作状態が得られない可能性もある。また、図3.3-3の右図に示す通 り、各金(Au)バンプポストの先端に髭状の突起が確認されるが、これはバンプボンダに おいて金(Au)バンプを作製する工程において、作製されたバンプから金(Au)ワイヤを切 断する際にワイヤの一部がバンプ側に残ってしまうために生じるものである。これまで の研究において、金(Au)バンプポスト上にあるこのような髭状残留物は、この次のデバ イス作製工程で、ポストの上に吸収体を搭載固定するためにエポキシを滴下する際、ポ スト上にエポキシが塗布されるのを妨げ、うまくポストの上面をエポキシで濡らすこと ができない障害を発生させる原因となっていた。さらにこのようなポスト上の金(Au)ワ イヤの髭状部の残留のしかたにより、4個のポストの高さが異なる状況を生み出すことと なり、その上に吸収体を搭載した時に、4個のポストすべてに重量を均等に分散して安定 して搭載、固定することをも困難にする。ゆえに、大規模アレイ化をにらみ、重金属バ ルク製の吸収体を各画素において安定して搭載、固定し、各画素の検出特性を向上させ るとともに、画素毎の熱特性のばらつきを抑え、アレイ作製プロセスにおける歩留まり 率向上を図るには、金(Au)バンプポストの大きさ、形状の最適化が必要となった。

(3) 金(Au) バンプポスト形状の最適化【R1-R2】

上述のとおり、検出素子大規模アレイ化に向けて、吸収体搭載用ポストの個数増加を 検出特性向上および素子作製プロセスにおける歩留まり率向上に結び付けるため、金 (Au)バンプポスト形状の改良を進めた。

金(Au) バンプ形成に用いる金ワイヤの径や材質、およびバンプ形成時のボンディングマシーンのパラメータの最適化やプロセスを見直し、最適化した結果、図 3.3-4 (左) に示す通り、 $200\,\mu$ m 角のイリジウム/金(Ir/Au) 薄膜上に形成される金(Au) バンプポストの径が $50\,\mu$ m程度に納まるくらいの小型化を達成するとともに、金(Au) バンプ上部の平坦化をも実現した。これによりポスト上部の平坦面に吸収体を搭載固定するためのエポキシ(スタイキャスト)の塗布が確実に行えるようになり、さらに同一画素内の4個のポストの高さの不均一性も排して、 γ 線吸収体と金(Au) バンプポストとの連結を強固にするこ



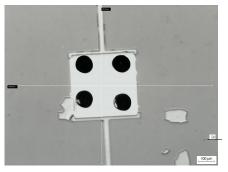


図 3.3-4 超伝導イリジウム/金(Ir/Au)超伝導薄膜温度センサ上にて金バンプポスト形成後にポスト上部突起を平坦化(左)し、その上にスタイキャストを塗布したポスト(右)

とに成功した。

この1画素あたり4個の金(Au)バンプポスト上に0.5mm×0.5mm×0.5mmのスズ(Sn)のバルクからなる吸収体を搭載固定した試作素子の写真を図3.3-5に示す。この写真は素子のほぼ水平方向から横面を撮影したものであり、吸収体を支える4個の小さな金(Au)バンプポストが確認できる。

さらに、素子の試作を進めていくうちに、このように極小化した4個の金(Au)バンプポ ストを一つの超伝導薄膜温度センサ上に配して吸収体を搭載する手法は、アレイ素子作 製プロセスにおける作業の煩雑性を排除し、素子作製の歩留まり率向上にも大きく寄与 することが明らかとなってきた。従来の1個のポストで大きな吸収体を支える構造におい て吸収体の保持状態が傾いたり、脱落したりするような不具合が多く、の発生を大きく 抑制することにつながっている。さらに吸収体を金(Au)バンプポストに搭載固定する作 製プロセスにおいて、金(Au)バンプポストの高さよりわずかに低いスペーサーをイリジ ウム/金(Ir/Au)超伝導温度センサ薄膜やその下部、および周囲に広がるごく薄い窒化シ リコンメンブレンの上にあらかじめ設置して、その上に吸収体を搭載し、エポキシが固 まった後に、窒化シリコンメンブレンを破損せずに、また吸収体に不可抗力をかけずに 静かにスペーサーを引き抜くという工程が必要不可欠であった。このようなスペーサー を広げて設置するスペースの確保は、アレイ素子における各画素間の距離を縮めること を困難にし、緻密な画素配置の障害となっていた。さらに、スペーサーを引き抜くには、 完全に吸収体を固定するエポキシが乾き固まるまで待つことを余儀なくされ、またスペ ーサーを入れている素子の周りに隣接する画素において同時並行での吸収体搭載プロセ スの実施をも困難にしていた。それゆえ、1 個あたりの吸収体搭載を終えるのに半日程度 要するため、大規模アレイ素子における全画素への吸収体搭載を達成するには途方もな い日時を要することになり、これはy線TES大規模アレイ化実現に向けての大きな障害と なっていた。今回、このような極小金(Au)バンプポスト4個で1つの吸収体を支える構造 の作製プロセスを確立したことにより、スペーサーを展開する必要が無くなり、緻密な 画素配置が可能となり、また多くの画素に対して、個々の画素上の吸収体を固定するエ ポキシの乾固を待たずに、次から次へと吸収体をエポキシが塗布された4個の金(Au)バ

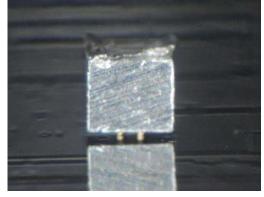


図 3.3-5 超伝導イリジウム/金(Ir/Au)超伝導温度センサ薄膜上にて 4 個の金(Au)バンプポスト上にスズ(Sn)吸収体を搭載したデバイスの顕微鏡写真。なお金バンプポストより下には、上の吸収体が素子の窒化シリコン層(シリコンウエハ上)に反射した像が映り込んでいる。

ンプポスト上に置いていくことにより、アレイ素子を短時間で完成することができる。 この素子作製プロセス改善の威力は、検出用 TES の大規模アレイ化達成のカギを握るもの と考える。

3.3.3 スズ(Sn) およびタンタル(Ta) の単結晶の吸収体に用いた TES 検出素子の開発【H30-R2】

(1) スズ(Sn) 単結晶の吸収体を用いた TES 検出素子の製作【H30】

吸収体加工において、スズ(Sn)等の吸収体ブロックの表面の粗さや欠陥がフォノンの散乱や反射が影響し、吸収体内の熱伝達性を劣化させ、検出特性に悪影響を及ぼしうる。 γ線吸収体部の熱伝導特性向上は、γ線検出用TESの検出特性改善に必要不可欠であるため、本研究者も、これまでスズ(Sn)吸収体ブロックの切削加工において、形状、大きさのばらつき抑制の他、表面を滑らかにする工夫を考案してきたが、本課題では、γ線吸収体内の熱特性の向上を図る抜本的な改善手法として新たに単結晶スズ(Sn)の薄膜素材の導入を進めている。一般的に単結晶素材は多結晶素材に比べて、熱伝導特性や電気伝導特性に優れることが知られており、スズ(Sn)単結晶素材をγ線吸収体ブロックに導入すれば、吸収体内部でのフォノンの散乱が抑制され熱伝導性が向上し、応答速度の改善や、γ線入射応答特性のイベント毎、あるいは吸収体内におけるγ線吸収位置依存性の抑制が期待される。

H30 年度は、図 3. 3-6 左に示すような単結晶のスズ(Sn) 薄板 0. 3mm 厚の部材をダイシングプロセスにて、0.5mm 角および 1mm 角のブロックに切削し、 γ 線吸収体形状に加工した。次にこの単結晶スズ(Sn) 吸収体を窒化シリコンメンブレン(500nm 厚)上に成膜された大きさ $250\,\mu$ m 角の超伝導イリジウム/金薄膜上の 4 角に金(Au) バンプポストをあらかじめ作製・配置した温度センサ部に、少量のエポキシを用いて搭載固定し、検出素子の試作を済ませた(図 3. 3-6 右参照)。

(2) スズ(Sn)単結晶のγ線吸収体に用いた試作 TES 検出素子のγ線入射応答【R1】

前項において作製したスズ(Sn)単結晶のγ線吸収体を搭載したTESを、東京大学低温セ



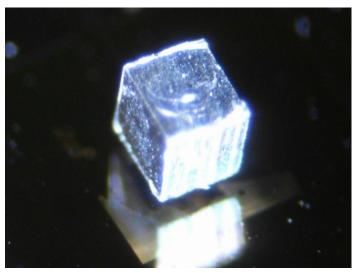


図 3.3-6 単結晶スズ(Sn)薄板から作成した吸収体ブロック(左)、 単結晶スズ(Sn)吸収体を実装した TES 検出素子の写真

ンターにて保有する GM コールドヘッド分離型寒剤フリー希釈冷凍機のコールドステージ上に取り付け、冷却および 241 Am の γ 線源を用いた γ 線入射応答評価実験を行った。TES は $10~m\Omega$ のシャント抵抗と並列に接続し、疑似的な定電圧バイアスにより駆動され、 γ 線入射に伴う TES の電流変化は冷凍機のコールドステージにある TES 近傍に搭載された dc-SQUID アレイを用いた電流増幅器により増幅されて読みだされる。なお室温に置かれた 241 Am 線源からの γ 線は希釈冷凍機デュワーの Be 窓、および冷凍機デュワー内の複数の 熱輻射シールド側面に開けられた小さな開口部(アルミマイラで塞がれている)を通して、コールドステージ上の TES へ直接入射される。

検出素子を冷却したところ、230 mK 付近において急峻な超伝導転移が確認されたが、これは本素子試作において想定していた 120 mK 程度の超伝導転移温度に比べて高い値となった。この理由は、成膜装置に起因したイリジウム(Ir)薄膜の特性が影響していることが考えられる(詳細は 3.3.4 (2) 参照)。

図 3.3-7 にスズ (Sn) 単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES により検出された 241 Am 線源からの 59.5 keV の γ 線の光電吸収イベントの応答波形を示す。応答波形において高い波高値が得られ、十分な S/N 比を達成できていることが確認された。これより、金 (Au) バンプポストの個数が増加したにもかかわらず、金 (Au) バンプの小型化により検出素子の熱容量増大が十分に抑えられており、また、本検出素子の超伝導転移温度が比較的高い値に留まっていることを考慮すれば、良好な γ 線検出性能が得られているものと考えられる。

(3) スズ(Sn)単結晶およびタンタル(Ta)単結晶の吸収体の TES 検出素子の製作【R1-R2】

令和元年度から、スズ(Sn)単結晶を γ 線吸収体として用いた検出素子の作製を行った。 本検出素子開発では、4個の金(Au)バンプポストで1個のスズ(Sn)単結晶の γ 線吸収体ブ

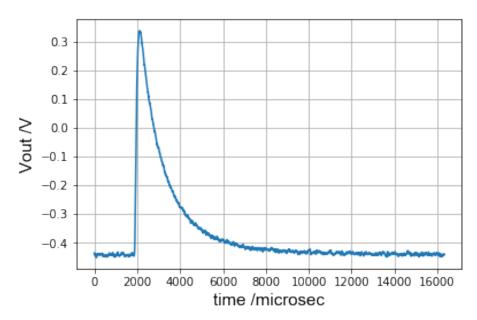


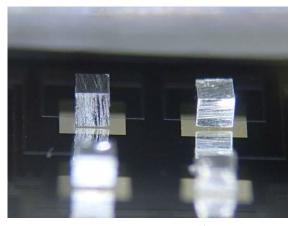
図 3. 3-7 スズ(Sn) 単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES による 241 Am (59. 5 keV) の光電吸収イベントの応答波形

ロックを支える最新の作製プロセスを投入した。まず、センサと外部の系の間を適度に低い熱コンダクタンスで結合する弱い熱リンクの役割を担う $1.2 \text{ mm} \times 1.2 \text{ mm}$ 角、厚さ $1 \mu \text{ m}$ の窒化シリコンメンブレン上に、スパッタリングにてイリジウム/金バイレイヤ (Ir:100 nm、Au:10 nm厚)を積膜し、併せてニオブ電極も積膜・パターニングして、超伝 導転移端センサを作製する。そしてこのイリジウム/金(Ir/Au)薄膜上に、4 個の金(Au)バンプポストを作製後、スタイキャストを各ポスト上に塗布して、上から $0.5 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ のスズ(Sn) 単結晶の γ 線吸収体を搭載、固定した。

さらに、上記と同様の素子作製プロセスにて $0.5\,\text{mm}\times0.5\,\text{mm}\times0.5\,\text{mm}$ の9 ンタル (Ta) 単結晶の γ 線吸収体を搭載した検出素子も作製した。タンタル (Ta) を γ 線吸収体として用いる検出素子は、従来の 1 つの金 (Au) バンプポストで支える素子構造 6 においても試作および評価を行ってきたが、タンタル (Ta) はスズ (Sn) に比べて比重が大きく、 γ 線吸収体ブロックが重くなるため、 γ 線吸収体を安定して保持することがなかなか困難であり、素子作製プロセスにおける歩留まり率が著しく低く、また素子を冷却し、 γ 線検出性能を評価する実験中に、 γ 線吸収体が傾く、あるいはポストから脱落するトラブルも頻発していた。今回、新たに確立した 4 つの金 (Au) バンプポストにより γ 線吸収体を保持する素子構造を採用することにより、 γ 線吸収効率に優れるタンタル (Ta) を TES の γ 線吸収体として本格的に導入することへ道を拓いたものと言える。

完成した検出素子の顕微鏡写真を図 3.3-8 に示す。基盤上の 2 つの明るい四角い部分は、窒化シリコン $(1~\mu\text{m})$ 製のメンブレン構造で、その下部のシリコンは抜けているため、透き通って見えている。スズ (Sn) 単結晶ブロックの下には、 $200~\mu\text{m}$ 角のイリジウム/金 (Ir/Au) 超伝導薄膜温度センサが窒化シリコンメンブレン上に積膜され、そのイリジウム/金 (Ir/Au) 薄膜上に 4 個の極小金 (Au) バンプポストが形成され、それらがこのスズ (Sn) 単結晶ブロック $(0.5~\text{mm}\times0.5~\text{mm})$ を支えている。したがって、写真では見えにくいが、このスズ (Sn) 単結晶ブロックと下部の $(\text{Si}_{x}\text{N}_{y})$ メンブレンとの間は、ほぼ金 (Au) バンプポストの高さ $(\text{50}~\mu\text{m})$ 程度)に等しいわずかなクリアランスを保ちつつ浮いた構造となっている。

また、同図(右)に同様の素子構造において、スズ(Sn)(単結晶ではない)、スズ



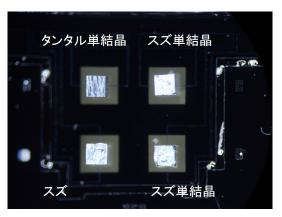


図 3.3-8 スズ(Sn) 単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES 検出素子(左)、スズ(Sn) 単結晶およびタンタル(Ta) 単結晶の γ 線吸収体を実装した TES アレイ検出素子の写真(右)

(Sn)単結晶、タンタル(Ta)単結晶をそれぞれ γ 線吸収体として搭載、試作した4画素から成るアレイ素子の顕微鏡写真を示す。なお、搭載した γ 線吸収体の大きさはすべて 0.5 mm×0.5 mm×0.5 mmとなっている。

これら、スズ(Sn)単結晶とタンタル(Ta)単結晶を γ 線吸収体として用いた検出素子は、 2×2 個にてアレイ状に配列されたデバイス上に作り込まれており、小型化かつ形状を最適化した 4 個の金(Au) バンプポストにより 1つの γ 線吸収体を安定に保持する検出素子構造の実証したことにより、高性能な γ 線検出用 TES を大規模アレイ化するための基盤技術が固められた。

(4) スズ(Sn) およびタンタル(Ta) の単結晶を用いたγ線吸収体の性能評価【R2】

上記で試作した4画素アレイ素子を東京大学にて保有する寒剤フリーパルス管プレクーリング機構付きの希釈冷凍機のコールドステージに dc-SQUID とともに設置して、100 mK以下まで冷却して、TES はそれぞれ 20 m Ω のシャント抵抗を用いて疑似的な定電圧バイアス下で駆動させ、各画素の γ 線検出性能を評価した。

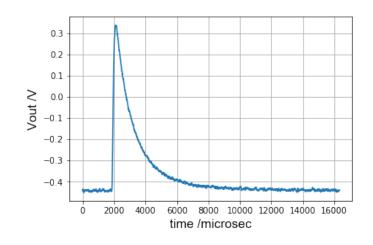
まず、試作したアレイ素子においてイリジウム/金(Ir/Au)薄膜は230mK付近において急峻な超伝導転移が確認された。イリジウム(Ir)と金(Au)の近接2重層薄膜では、近接効果により、本来のイリジウム(Ir)の超伝導転移温度(バルクで145 mK 程度)より低い超伝導転移温度が得られるはずであるが、本結果では、作製したイリジウム/金(Ir/Au)膜の超伝導転移温度はイリジウム(Ir)のバルクの超伝導転移温度より高い値となっている。これについて、成膜に使用するスパッタリング装置において、最近、大きな改修を行い、イリジウム(Ir)ターゲットは変わっていないものの、スパッタ源ユニットは新設計のものに交換したため、その成膜装置の変更が影響しているものと思われる。また、金(Au)の膜厚を増加させるなど、イリジウム(Ir)と金(Au)の膜厚比を調整した試作薄膜の評価実験により、超伝導転移温度の低下が確認できており、イリジウム/金(Ir/Au)薄膜の超伝導転移温度を100 mK 程度の最適な値にすることは可能であると考えている。

次に、単結晶スズ(Sn)の γ 線吸収体を搭載した TES素子に、冷凍機外(室温)に設置した 241 Am 線源から冷凍機デュワーの Be 窓を通して γ 線を入射させ、SQUID 増幅器を介して 増幅された電流信号を、GAGE 社製 AD 変換ボードを用いて入射イベントに相当する信号電流の全波形データを取得し、信号解析を行った。

希釈冷凍機コールドステージの温度を 160mK にて安定させ、スズ(Sn) 単結晶搭載 γ 線 TES により得られた 241 Am 線源からの γ 線の信号波形およびエネルギースペクトルを図 3.3-9 に示す。信号立ち上がり、立下りの形状、時定数において、単結晶ではないスズ (Sn) のバルクを γ 線吸収体に用いた検出素子の結果と比較しても特段の差異は認められない。エネルギースペクトルにおける 59.5keV の光電吸収ピークの半値幅は約 150 eV 程度と算定される。これは、従来の単結晶ではないスズ (Sn) を γ 線吸収体に用いた検出素子の性能(最高値は 59 eV @ 86 keV)と比較して劣るものと言わざるを得ないが、その原因については、今回の検出素子の超伝導転移温度 230mK が、従来の素子の超伝導転移温度 150 mK と比較して高いこと、さらに、今回の計測時の希釈冷凍機の機械振動が若干高かったことが影響していると考えられる。

これらの結果より、現時点の測定環境および超伝導薄膜温度センサの雑音特性下では、検出器のエネルギー分解能を左右するノイズ特性として、単結晶のスズ(Sn)が非単結晶スズ(Sn)に比して優れているとは結論づけられないことが明らかとなった。ただし、今後、冷凍機の機械振動抑制が改善され、温度計の役割を担う超伝導温度センサ薄膜の超伝導転移温度の低減が図られることにより、振動に起因するノイズ環境およびフォノンノイズが低下し、単結晶スズ(Sn)と非単結晶スズ(Sn)の熱特性の相違が見えてくる可能性は残されているとも考えられる。

引き続き、単結晶タンタル(Ta)のバルクを搭載した TES 検出素子に、 137 Cs 線源からの γ 線を入射させ、その信号応答を評価した。タンタル(Ta) はスズ(Sn) に比べて、より高 い γ 線吸収効率が得られ、しかも文献値による比熱のパラメータからスズ(Sn) と同程度 の熱容量が得られるため、 γ 線検出用 TES として有望な γ 線吸収体の候補と我々は期待している。図 3. 3-10 に 137 Cs 線源からの 662 keV 相当の γ 線に対するエネルギースペクトル



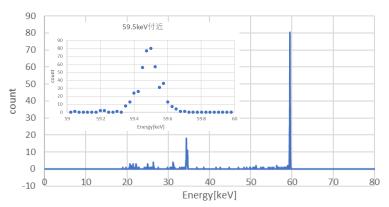
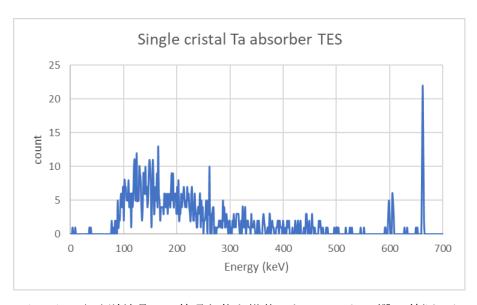


図 3. 3-9 スズ(Sn) 単結晶の γ 線吸収体を搭載した TES による 241 Am (59. 5 keV) の光電吸収イベントの応答波形 (上) とエネルギースペクトル (下)

を示す。662 keV の γ 線に対してもタンタル (Ta) は高い吸収効率を持つため、エネルギースペクトルにおいても、顕著な光電吸収ピークが確認され、そのエネルギー分解能は 3 keV (FWHM) @662 keV が得られている。ただし、これまでの本研究実施者の研究で得られている、単結晶ではないタンタル (Ta) のバルクを γ 線吸収体に用いた検出素子でのトップデータかつ世界最高のエネルギー分解能 427 eV (FWHM) @662 keV には及ばない結果とな

った。本研究実施者による従来の研究でもタンタル(Ta)を γ 線吸収体に用いた TES 検出器の性能は安定せず、エネルギー分解能も常に優れた値が得られるものではなかったが、今回の単結晶タンタル(Ta)を用いた検出素子においても、その性能のばらつきを克服するには至らなかった。この原因としては、タンタル(Ta)は吸着性に富み、たとえばタンタル(Ta)の切削加工中等、素子作製プロセスの過程において空気中の水分を吸着し、その熱容量が大幅に増大していることが考えられる。今回、作製した単結晶タンタル(Ta)を用いた素子においても、単結晶スズ(Sn)を用いた素子と同様に 241 Am 線源からの γ 線59.5 keV の入射も試みたが、信号応答は確認されるものの、その応答パルスの波高値は極めて小さく、その入射信号を電流ノイズレベルから分離するべくトリガをかけて波高データを取得するのに苦労するほどであった。この結果は、今回の単結晶タンタル(Ta)を用いた検出素子においても、熱容量が想定以上に増大していることを裏付けるものである。

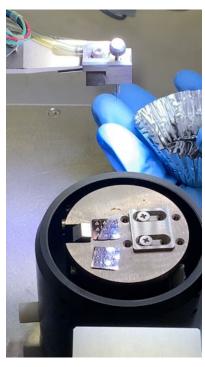
以上の結果を総括すると、スズ(Sn)およびタンタル(Ta)ともに、単結晶を適用することによる特段の熱特性の改善、およびエネルギー分解能の向上を確認するには至らなかった。また、タンタル(Ta)については、吸着による熱容量の増大を原因とする性能の著しい劣化も確認され、100~keV程度の γ 線を複数の画素からなるアレイ素子において、全画素の検出性能を良好な状態で揃えることが要求される状況では、タンタル(Ta)は不適であると結論づけるに至った。それゆえ、現時点においては、価格面においても安価に調達可能な、非単結晶のスズ(Sn)のバルクをTESアレイの γ 線吸収体として適用することを決定した。 γ 線吸収体の特性として単結晶スズが通常の(多結晶の)スズと比較して有意な差が認められるのか、今後のマルチプレクサ等の駆使による統計的なデータの蓄積により、結論を得ることが待たれる。

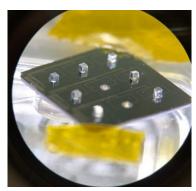


3.3.4 大規模 TES アレイへの重金属吸収体の実装【R3】

これまでに確立した極小金(Au) バンプポスト 4 個を用いた重金属吸収体の TES アレイへの実装技術とスズ(Sn) のバルクの吸収体の性能評価結果を踏まえて、大規模 TES アレイへのスズ(Sn) 吸収体の実装を行った。産業技術総合研究所で作製された Si_xN_Y メンブレン上へのチタン/金(Ti/Au) 近接 2 重層超伝導薄膜を積膜した 3×3 個で構成されるアレイ素子は、将来の大規模 TES アレイ化を実現していく上でも、その基本となるユニットと位置付けられ、今後はこの基本ユニットを並べて拡張することにより、スケーラブルに画素数を増大させていくこととなる。したがって、この基本ユニットとなる 3×3 TES アレイへのスズ(Sn) 吸収体実装の成否は LX 線・ γ 線検出用大規模 TES アレイを実現することを目標とする本課題プロジェクトの最終的な成功に向けて鍵を握る重要なステップと位置付けられる。

令和2年度から産総研製のチタン/金(Ti/Au)製 TES アレイ素子に対して、東京大学にて有する吸収体搭載プロセス装置を用いて、4個の極小金(Au)バンプ適用によるスズ(Sn)吸収体実装を進めた。図 3.3-11 に吸収体搭載プロセス装置とスズ(Sn)吸収体を実装中の検出器デバイス示す。





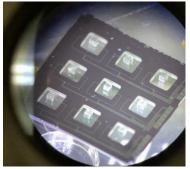


図 3. 3-11 吸収体搭載プロセス装置および 3×3 TES アレイヘスズ(Sn)吸収体 を実装中の検出器デバイス

スズ(Sn)吸収体を実装には、4個の極小金(Au)バンプ適用し、極小金(Au)バンプポストの先端とスズ(Sn)吸収体ブロックの接着には、スタイキャストを使用している。金(Au)バンプポストへスタイキャストを塗布後、各画素へ1個のスズ(Sn)吸収体ブロックの位置合わせをしつつ、搭載するには、平均2分ほど要する

主にスズ(Sn)のバルク吸収体を極小金(Au)バンプポスト4個を装備した超伝導温度薄膜

上に搭載固定する手法をフルに活用して、3×3 TES アレイスペクトロメータのスズ(Sn) 吸収体検出器デバイス9個(81 画素分)の作製を行った。図 3.3-12 に作製した9個の検出器デバイスの写真を示す。実装されたデバイスにおいて、基盤を裏返すなどして搭載された吸収体の保持の耐久性等をチェックしたところ、スズ(Sn)の吸収体が脱落するとの問題点が明らかとなっている。原因は、スズ(Sn)吸収体を金(Au)バンプポスト上に固定する際に用いるスタイキャストの状態(混ざり具合)と量において、改良の余地があるものと推測され、スタイキャストによる固定状態のさらなる向上と画一化が課題である。しかしながら、吸収体脱落等による歩留まり率低下は認められるものの、実用に耐える安定した大規模アレイ作製は実証できたものと考える。

また、測定効率、吸収効率を高める方策として、アレイの2段に重ねが当初考えられたが、極小金(Au)バンプポスト4個の導入による安定的な吸収体の搭載技術の確立により、これまでの2倍の厚みのある吸収体の搭載が可能となった。図3.3-13に作製したスズ吸収体 $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm} 素子を示す。実効的に吸収体を<math>2 \text{ つ重ねるのと同等の吸収効率が得られる素子の作製にも成功した。}$

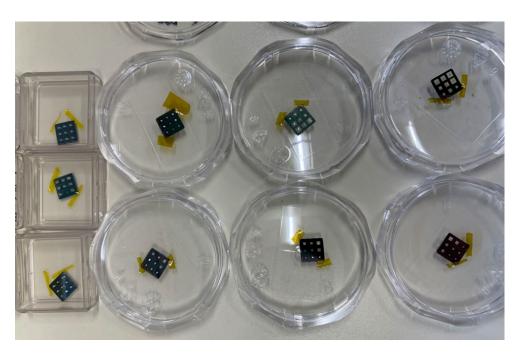


図3.3-12 作製した9個の3×3 TES アレイ(81 画素分)のスズ(Sn)吸収体検出器デバイス。実装後の吸収体脱落等による歩留まり率低下が認められ、エポキシによる固定状態のさらなる向上と画一化が課題である

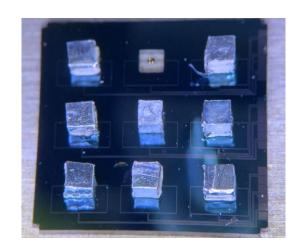


図 3.3-13 試作したスズ(Sn)吸収体 2 mm×2 mm×2 mm 素子の TES アレイ。実効的 に吸収体を 2 つ重ねるのと同等の吸収効率が得られる。吸収体の形状が若干 不揃いなところは改善の余地がある

参考文献

- (1) Robert D. Horansky et al.," Identification and elimination of anomalous thermal decay in gamma-ray microcalorimeters", Appl. Phys. Lett., 103, 212602 (2013)
- (2) R.D. Horansky et al. "Superconducting absorbers for use in ultra-high resolution gamma-ray spectrometers based on low temperature microcalorimeter arrays", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 579 (2007) 169-172
- (3) R.M. Thus Damayanthi et al., "Development of Bulk Superconducting-Absorber Coupled Transition-Edge Sensor Detectors for Positron Annihilation Spectroscopy", IEEE Trans. Appl. Supercond., 23, 3, (2013)
- (4) S. Hatakeyama et al., "Development of Hard X-Ray and Gamma-Ray Spectrometer Using Superconducting Transition Edge Sensor", IEEE Trans. Appl. Supercond., 23, 3, (2013)
- (5) M. Ohno et al., "Superconducting Transition Edge Sensor for Gamma-ray Spectroscopy", IEICE TRANSACTIONS ELECTRONICS, Vol E100-C, No3, 283-290 (Invited paper), (2017)
- (6) T. Irimatsugawa et al., "High Energy Gamma-ray Spectroscopy Using Transition Edge Sensor With Superconducting Bulk Tantalum Absorber", IEEE Trans. Appl. Supercond., Vol. 25, no3, 2101303 (2015)

3.4 L X 線分析技術の開発(再委託先:九州大学)

先行研究で蓄積した様々な TRU 線源から放射される L X 線スペクトルデータを活用し、TRU から放射される L X 線等の重金属吸収体への入射応答性能を試算し、スペクトル計測実験において主要な L X 線ピークを明確に同定できることを確認した。また、主要な L X 線のピーク強度から TRU 核種の体内摂取量を評価する手法について検討を行った。

輸送計算コードを活用して、肺付近の人体構造を簡易的に構築し、TRU から放射される L X 線等に対する吸収体の入射応答性能を試算し、TRU 核種の体内摂取量の評価に関連して TRU の体内の沈着深さを推定する手法を確立した。

多重画素での L X 線検出に係る入射応答性能、エネルギー分解能について評価を実施し、 γ線検出の性能と合わせて総合的に肺モニタやバイオアッセイ試料の分析測定として内部被ば く線量評価システムに必要な適用性・拡張性を評価した。

3.4.1 LX 線計測の分析技術の検討 【H30-R1】

平成 30 年度は、先行研究 $^{(1)}$ 、 $^{(2)}$ で実施された TES 型マイクロカロリーメータによる 239 Pu、 241 Am、 244 Cm、 237 Npの TRU 線源から放射される L X 線スペクトル計測実験で得られた検出信号パルスデータを解析して、主要な L X 線ピークを明確に同定することができることを実証した。図 3. 4-1 に 239 Pu 線源から放射される U L X 線のエネルギースペクトルを示す。

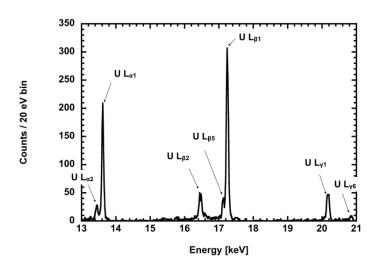


図 3.4-1 ²³⁹Pu 線源から放射される U L X 線のエネルギースペクトル

さらに、TES 型マイクロカロリーメータによる L X 線スペクトルに基づいて TRU 非破壊分析の実現性を検討した。図 3.4-2 に 10 年間稼働した核燃料再処理施設の Pu 廃液について予想される L X 線のエネルギースペクトルを示す。

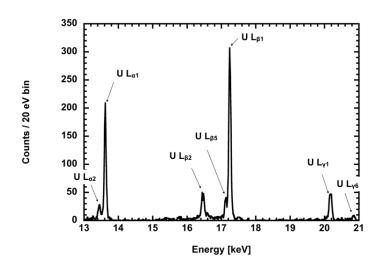


図 3.4-2 TES 型マイクロカロリーメータを用いて Pu 廃液試料から放射される L X 線を計測した場合に予測されるエネルギースペクトル

令和元年度は、TRU 核種の体内摂取量を評価するために、Pu 同位体の同位体の沈着深さの推定法を考案した。L X 線スペクトル計測結果から TRU 核種の肺沈着量を評価する場合、身体組織による L X 線強度の減弱を考慮する必要がある。エネルギー E_a で強度が I_{0a} の L X 線 a とエネルギー E_b で強度が I_{0b} の L X 線 b が、厚さxの物質を透過するときのそれぞれの強度は

$$I_a = I_{0a}e^{-\mu_a x} (3.4-1)$$

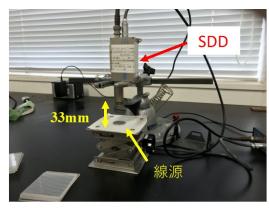
$$I_b = I_{0b}e^{-\mu_b x} (3.4-2)$$

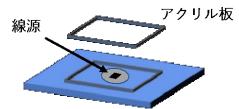
で与えられる。ここで、 μ_a と μ_b は、それぞれ、エネルギーが E_a と E_b の L X 線光子に対する物質の線源弱係数である。式 3.4-1 と式 3.4-2 から

$$x = \frac{1}{\mu_0 - \mu_b} \ln \left(\frac{I_b I_{0a}}{I_c I_{0b}} \right) \tag{3.4-3}$$

となる。肺に沈着した Pu 同位体から放射される L X 線のスペクトル計測を行い、2 つの L X 線 a と L X 線 b の強度をそれぞれ I_a と I_b とする。 I_{0a} と I_{0b} は L X 線 a と L X 線 b の放射率から求めることができ、 μ_a と μ_b はエネルギーが E_a と E_b の光子に対する胸部組織の平均的な線源弱係数としてデータベースから求めることができる。したがって、式 3. 4-3 を用いると L X 線スペクトル計測により Pu 同位体の肺沈着深さxを推定できる。

この推定法の原理を確認するために、人体組織等価物質であるアクリル板を透過する TRU L X線のピーク強度とアクリル板の厚さの関係を実験的に調べた。L X線のスペクトル構造が Pu 同位体と類似する 241 Am 線源から放射される L X線のエネルギースペクトルを、Si 半導体検出器で計測した。図 3.4-3 に実験体系を、図 3.4-4 にアクリル板の厚さ 0 mm におけるピーク強度で規格化した L α 1 X線 (13.95 keV)、L β 1 X線 (17.75 keV) 及び L γ 1 X線 (20.78 keV) それぞれのピーク強度とアクリル板の厚さとの関係を図 3.4-4 に示す。図 3.4-4 の結果から、式 3.4-3 を用いた沈着深さ推定の可能性が示された。





線源の上にアクリル板を一枚ずつ重ねて測定

図 3.4-3 ²⁴¹Am 線源の L X 線ピーク強度とアクリル板の厚さの関係を調べるスペクトル計測実験の体系

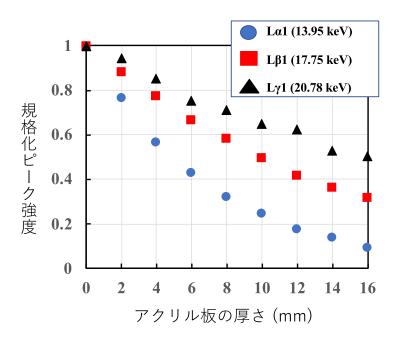


図 3.4-4 スペクトル計測結果から得られた L α 1 X 線、L β 1 X 線及び L γ 1 X 線 それぞれのピーク強度とアクリル板の厚さとの関係

物質中の光子、中性子や荷電粒子の輸送問題に関するモンテカルロシミュレーションコードを用いて図3.4-4の結果を検証した。一般的には、物質中の光子、中性子や荷電粒子の輸送問題に関するモンテカルロシミュレーションには、Particle and Heavy Ion

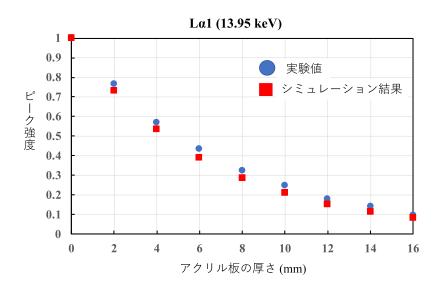


図3.4-5 Lα1 X線のピーク強度とアクリル板厚さの関係の測定結果とシミュレーション計算結果の比較

3.4.2 TES アレイスペクトロメータの応答のシミュレーション計算 【R1】

開発する TES アレイスペクトロメータの TRU L X線に対する応答特性を評価するために、L X線が厚さ 5 μ m の吸収体に入射したときに付与されるエネルギーと、吸収体中でL X線との相互作用により生成された 2 次電子の飛程分布について Gean4 を用いてシミュレーション計算した。また、同じ放射能の 239 Pu と 241 Am の混合線源から L $_{\gamma}$ 1 X線、L $_{\beta}$ 1 X線及び L $_{\gamma}$ 1 X線が入射した場合について同様のシミュレーション計算を行った。図 3.4-6 に 241 Am 線源の L $_{\gamma}$ 1 X線、L $_{\beta}$ 1 X線及び L $_{\gamma}$ 1 X線が厚さ 5 $_{\mu}$ m の金 (Au) 吸収体に入射した場合の吸収体に付与されるエネルギーのシミュレーション結果を示す。また、図 3.4-7 に同じ放射能の 239 Pu と 241 Am の混合線源からの L $_{\gamma}$ 1 X線、L $_{\beta}$ 1 X線及び L $_{\gamma}$ 1 X線が厚さ 5 $_{\mu}$ m の金 (Au) 吸収体に入射した場合の吸収体に付与されるエネルギーのシミュレーション結果を示す。これらの結果から光電ピーク、吸収端とL X線入射により生成された 2 次電子による連続スペクトルなど先行研究で取得した実験データを再現できるこ

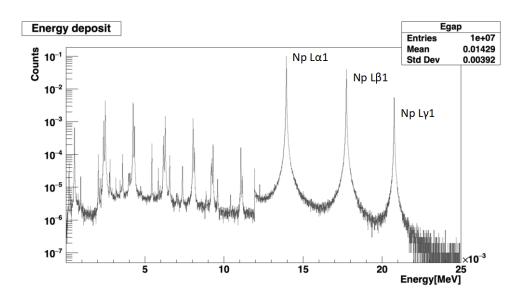


図 3. 4-6 241 Am 線源の L γ 1 X 線、L β 1 X 線及び L γ 1 X 線が厚さ 5 μ m の金(Au) 吸収 体に入射したときに付与されるエネルギーのシミュレーション計算結果

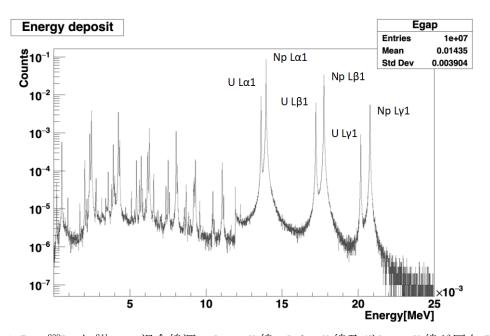


図 3. 4-7 239 Pu と 241 Am の混合線源の L γ 1 X 線、L β 1 X 線及び L γ 1 X 線が厚さ 5 μ m の金(Au) 吸収体に入射したときに付与されるエネルギーのシミュレーション計算結果

3.4.3 肺付近の人体の簡易構造による沈着深さの推定 【R2】

モンテカルロシミュレーションコード Geant 4 を使用して、肺付近の人体の体系を簡易的に構築した。本事業では 100 keV 以下の L X 線の物質中での輸送現象をシミュレーションするために、低エネルギーの電磁相互作用を記述する Penelope モデル $^{(6)}$ を採用した。このモデルの適用エネルギーの下限値は 250 eV である。人体の構成材料は水よりも人体内の物質を模擬している A-150 組織等価プラスチック $^{(7)}$ を想定した。人体の内部に 2 個の直方体の肺を設置し、肺内部の構造は作らずに空気とした。構築した体系をワイヤーフレームとして図 3.4-8 に示す。

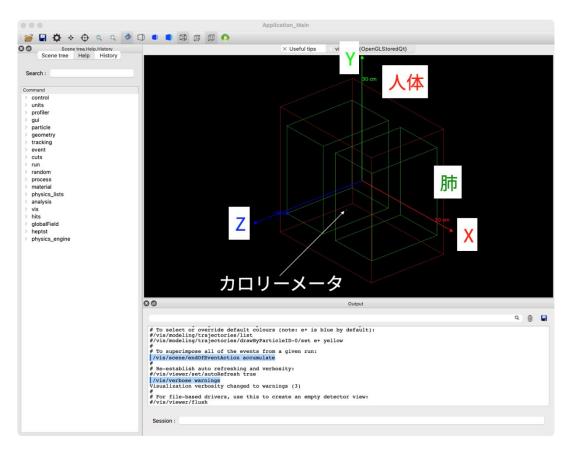


図 3.4-8 人体を簡易的に模擬した計算体系

構築した体系を使用して、L X の発生位置を肺の中心から人体表面まで変化させながら 1 辺が 0.5 mm の立方体 Sn 吸収体のエネルギースペクトルを計算した。図 3.4-9 に ^{237}Np からの L X 線が人体表面から発生した場合のスズ (Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトルを示す。

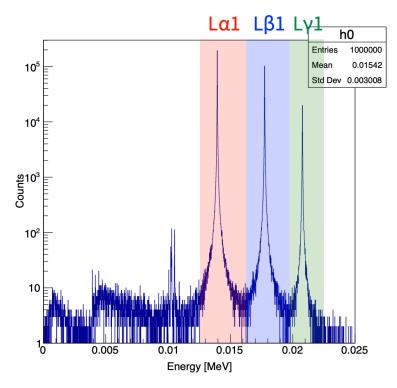


図 3. 4-9 237 Np からの L X 線が人体表面から発生した場合のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル

次に 237 Np からの L X 線の発生位置を肺の中心から人体表面まで変化させた場合のピークカウント数を図 3.4-10 に示す。カウント数を集計した範囲は図 3.4-9 で色をつけた範囲とした。この図の横軸の位置が 0 mm が肺の中心、90 mm が肺の表面、100 mm が人体表面に相当する。この図から肺の内部ではいずれの L X 線でもピークカウント数がほとんど変化していない。このことから、3 種類の L X 線のピークカウント数を用いれば L X 線の発生位置を推定することができると考えられる。

図 3.4–11 に 237 Np から放出される $L\alpha 1$ と $L\beta 1$ のピークカウント数の比を示す。肺の内部においては $L\alpha 1/L\beta 1$ も $L\alpha 1/L\gamma 1$ もほとんど一定である。これはシミュレーションにおいて L X 線は 4π 方向ではなく X 線吸収体の方向にのみ発生しており、L X 線は空気中ではほとんど相互作用しないためである。一方、組織等価プラスチック中ではこれらの比率は大きく変化しており、これらの比率を用いることで L X 線の発生位置を推測できることがわかった。エネルギー差が大きい $L\alpha 1$ と $L\gamma 1$ のピークカウント数の比を使う方が $L\alpha 1/L\gamma 1$ が大きく変化するために L X 線の発生位置を推測するためにはより有用であることがわかった。このことから推定された Pu 同位体の位置からマイクロカロリーメータまでの距離を求め、ピークカウント数、測定時間、L X 線の放出率などを考慮することで、Pu 同位体の内部摂取量を評価できると考えられる。

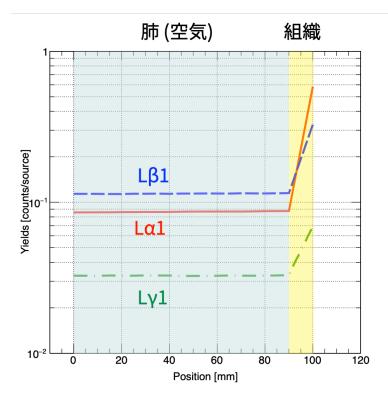


図 3.4-10 ²³⁷Np からの L X 線の発生位置と 3 つの L X 線のピークカウント数の関係

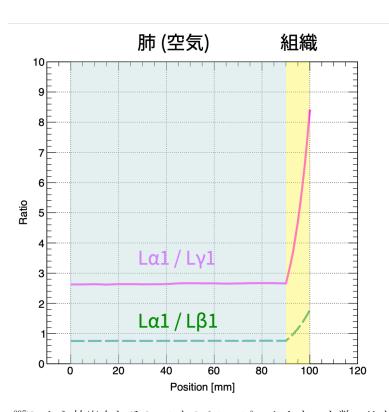


図 3. 4-11 237 Np から放出される L $_{\alpha}$ 1 と L $_{\beta}$ 1 のピークカウント数の比と L $_{\alpha}$ 1 と L $_{\gamma}$ 1 のピークカウント数の比

3.4.4 詳細な人体構造による沈着深さの推定 【R3】

令和 2 年度は Pu 同位体の沈着深さを推定するためのシミュレーション計算に物質中の光子、中性子や荷電粒子の輸送問題に関するモンテカルロシミュレーションコードである Geometry And Tracking 4 (Geant4)のバージョン 10.7 patch 1 に光子と物質の相互作用として Penelope モデルを適用して肺近傍の構造を簡易的に作成した。

令和 3 年度はより現実的な構造を構築するために、主に国内で開発が進められている Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS)のバージョン 3.26 に光子と物質の相互作用として Electron Gamma Shower Version 5 (EGS5)モデル⁽⁸⁾を適用することとした。これは後述のように 3 次元体系を Geant4 ではより簡便に構築可能であるためである。

PHITS に内蔵されている EGS5 モデルと Geant4 使用時に採用した Penelope モデルは、両モデルともレイリー散乱、コンプトン散乱、光電効果、電子対生成、制動放射、電離、陽電子消滅を取り扱う。EGS5 モデルではさらにモリエール多重散乱、モラー散乱を取り扱う。EGS5 モデルの適用下限エネルギーは 1 keV、Penelope モデルの適用下限エネルギーは初期設定で 990 eV、ユーザの設定で 250 eV に変更できる。

PHITS 3. 26 を用いたシミュレーション体系の構築の前に、PHITS 3. 26 と Geant4 10. 7p1 で 20 keV 光子を厚さ 5 μ m のスズ(Sn) に入射した際にスズ(Sn) に付与されるエネルギー分布の比較を行った。20 keV 光子は本研究の L X 線のエネルギーに近く、スズ(Sn) は想定している TES アレイスペクトロメータの吸収体である。図 3. 4-12 に PHITS 3. 26、図 3. 4-13 に Geant4 10. 7p1 で計算した結果を示す。2 つの図から 20 keV 光子の物質への全エネルギー付与の割合と 5 keV 付近の段差が両シミュレーションコードで同等の結果であることが示された。

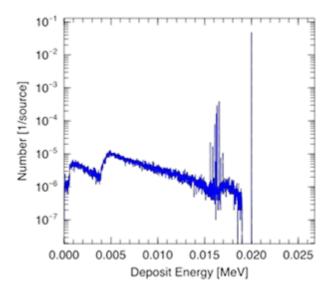


図 3.4-12 PHITS 3.26 で 20 keV 光子が厚さ 5 μm のスズ(Sn) に入射した際にスズ (Sn) に付与されるエネルギー分布

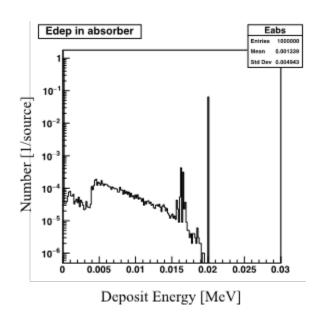


図 3.4-13 Geant4 10.7p1 で 20 keV 光子が厚さ 5 μm のスズ(Sn)に入射した際にスズ(Sn)に付与されるエネルギー分布

次に 237 Np から放出される 3 種類の L X 線を厚さ 5 μm のスズ (Sn) 吸収体に同時に入射した場合にスズ (Sn) に付与されるエネルギー分布を計算した。 237 Np から放出される L X 線のエネルギー、自然幅、放出率は表 1 に示すように文献 (9) の値とした。

図 3.4-14 に PHITS 3.26、図 3.4-15 に Geant4 10.7p1 で計算した結果を示す。この場合も全エネルギー付与の割合、自然幅に起因するピークの幅が両コードでほぼ等しい計算結果を得られた。このことから PHITS 3.26 は Geant4 10.7p1 と同等の計算精度と考えられる。

Geant4では四面体メッシュ体系を構築および変更する際にC++言語で記述されるソースコードの変更と計算プログラム全体を再コンパイルする必要があり、C++言語に精通している必要があり難易度が高い。一方PHITSではプログラムのソースコードではなく入力ファイルを変更するだけで再コンパイルの必要はないため Geant4 よりも容易に構築が可能であるため、令和3年度はより現実的な体系を構築するのが容易であるPHITS 3.26 (以下PHITS)を使用することとした。

表 3.4-1 ²³⁷Np から放出される L X 線のエネルギー、自然幅、放出率

LX線の種類	エネルギー [keV]	自然幅 [eV]	放出率 [%/崩壊]
L α 1	13. 946	11.8	14. 9
L β 1	17. 751	13. 4	8. 37
Lγ1	20. 784	15. 9	1. 92

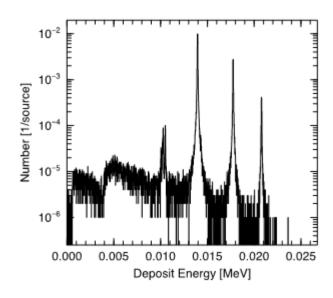


図 3. 4-14 PHITS 3. 26 で ²³⁷Np からの L X 線が厚さ 5 μm のスズ(Sn) 吸収体に入射した際に吸収体に付与されるエネルギー分布

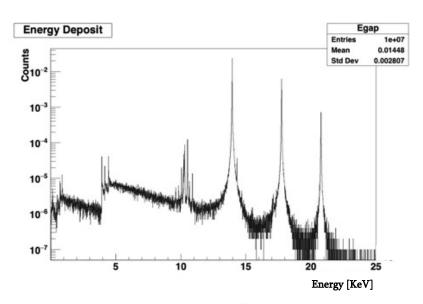


図 3. 4-15 Geant4 10.7p1 で ²³⁷Np からの L X 線が厚さ 5 μm のスズ(Sn) 吸収体に入射 した際に吸収体に付与されるエネルギー分布

より現実的な人体構造を利用するために、ICRP が公開している Adult Mesh-Type Reference Computational Phantom $^{(10)}$ の成人男子モデルを使用した。このファントムモデルは、ICRP Pub $103^{(11)}$ および $110^{(12)}$ で公開されたもので、放射線防護において必要な線量換算係数などの計算をモンテカルロシミュレーションで利用するためのボクセルファントムモデルを四面体メッシュファントムモデルとして公開したものである。図 3.4-16 に PHITS により生成した成人男子の四面体メッシュモデルの前面から見た断面、図 3.4-

17 に頭部方向から見た胸部断面の例を示す。これらの図から呼吸器など本研究で重要となる肺などの臓器が組み込まれていることがわかる。

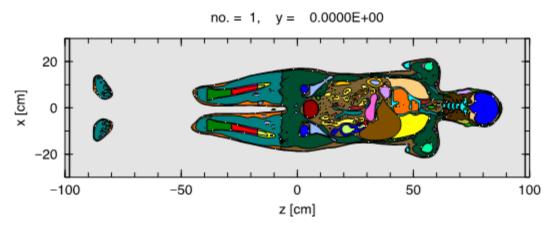


図3.4-16 四面体メッシュモデルによる人体を前面から見た時の断面図

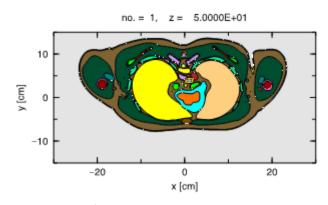


図 3.4-17 四面体メッシュモデルによる人体を頭部から見た時の胸部断面図

表3.4-2にこのファントムで設定されている肺内部および近傍の組織の密度と元素組成を示す。この表から組織により密度や元素組成が異なっており、水や組織等か物質のみを使用するよりもシミュレーションの予測精度が向上すると考えられる。式 3.4-3 で Pu 同位体の沈着深さを精度良く推定するためには、沈着位置と L X 線検出器の間にある各物質の厚さと減弱係数が必要になる。

PHITS では四面体メッシュ体系を高速に計算できるアルゴリズムが内蔵されており、ボクセルファントムの 4 倍程度の速度で計算できる⁽¹³⁾ことから、本研究では人体構造としてこの四面体メッシュファントムモデルを採用した。

表 3.4-2 四面体ファントムの肺近傍で使用されている物質の密度と元素組成

	肺内部	筋肉	皮下組織	皮膚	骨
密度 [g/cm³]	0. 415	1.05	0. 939	1. 089	1. 904
Н	10.2	10.2	11.2	10	3.6
С	10.8	14. 2	51.7	19. 2	15. 9
N	3. 2	3. 4	1. 1	4. 2	4. 2
0	74.8	71. 1	35. 5	65	44.8
Na	0. 1	0.1	0.1	0.2	0.3
Mg					0. 1
Р	0. 1	0.2	0.1	0.1	3. 3
S	0. 2	0.3	0.2	0.2	0.2
C1	0. 3	0. 1	0. 1	0.3	0. 1
K	0. 2	0.4		0. 1	0. 1
Ca					5. 8
Fe	0. 1				_

構築した体系を使用して、L X の発生位置を変化させながら スズ(Sn)吸収体のエネルギースペクトルを計算した。L X 線には 241 Am が α 崩壊した後の娘核種である 237 Np と 239 Pu が α 崩壊した後の娘核種である 235 U からの L X を使用した。前述の表 3. 4-1 と表 3. 4-3 に それぞれ 237 Np と 235 U から放出される L X 線のエネルギー、自然幅、放出率を示す。PHITS でシミュレーションする際は L X 線のエネルギー、自然幅、放出率をこれらの表になるように設定した。

表 3.4-3 ²³⁵U から放出される L X 線のエネルギー、自然幅、放出率

LX線の種類	エネルギー [keV]	自然幅 [eV]	放出率 [%/崩壊]
L α 1	13.618	11. 7	1. 685
L β 1	17. 222	13. 5	1. 395
L γ 1	20. 169	14. 5	0. 316

点線源の位置を図 3. 4-18 に示すように 肺内部の胸側表面に近い y=-5.0 cm から肺の中心に近い 1.0 cm まで深さ方向に変化させた。TES マイクロカロリーメータとして 1 辺が 0.5 mm の立方体のスズ(Sn) 吸収体を 4 個×4 個の 16 個 y=-10 cm の位置に設置した。線源からは 1 個のスズ(Sn) 吸収体の方向にのみ L X 線が放出されるように設定した。図 3. 4-19 に y=-5.0 cm に 237 Np が存在する場合に L α 1、L β 1、L γ 1 の 3 種類の L X 線が 1 個のスズ(Sn) 吸収体へ付与したエネルギー分布を示す。この図のそれぞれのピーク部分の計数を算出してそれぞれの L X 線の相対強度とした。

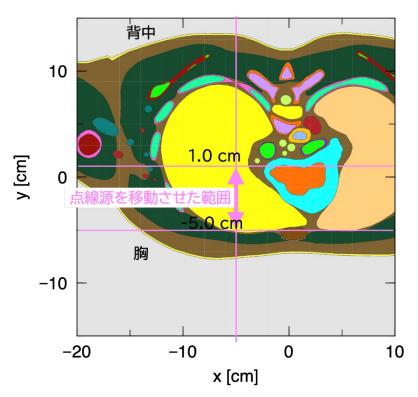


図 3.4-18 Pu 同位体としての線源の移動範囲 (-5.0 cm から 1.0 cm) と TES アレイス ペクトロメータとしてのスズ(Sn) 吸収体の位置

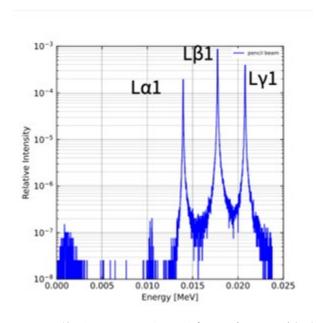


図 3. 4-19 y=-5.0 cm の位置に 237 Np がある場合の 1 個のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギー分布

図 3. 4-20 に 237 Np の位置を y=-5. 0 cm から y=1. 0cm まで変化させた場合の L α 1、L β 1、L γ 1 の 3 種類の L X 線の相対強度の変化を示す。この図からエネルギーが低い L α 1 が減弱しやすく、エネルギーが高い L γ 1 が減弱しにくいことがわかる。図 3. 4-21 に L β 1 に

対する $L\alpha1$ の比と $L\gamma1$ に対する $L\alpha1$ の比の線源位置による変化を示す。このことから 肺内部の胸部表面付近から肺中心程度であれば、L X 線の強度比の線源位置による依存性 をあらかじめ準備することにより式 3.4–3 を使用せずに図 3.4–21 から沈着深さを推定できると考えられる。

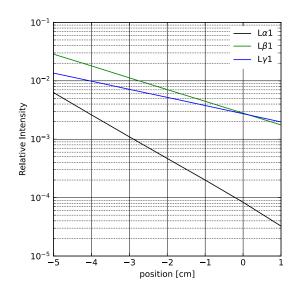


図 3.4-20 ²³⁷Np の位置を変化させた時の 3 種類の L X 線の相対強度の変化

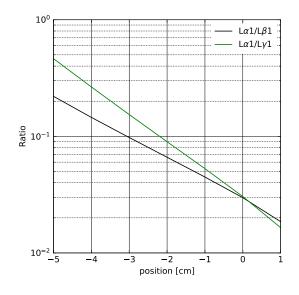


図 3. 4-21 237 Np の位置を変化させた時の L β 1 に対する L α 1 の比と L γ 1 に対する L α 1 の比

次に妨害核種として 237 Np と同放射能の 235 U が存在する場合にスズ(Sn)吸収体に付与されるエネルギースペクトルから算出した 237 Np の L X 線のピークの相対強度を図 3. 4-22 示す。また、図 3. 4-23 に L β 1 に対する L α 1 の比と L γ 1 に対する L α 1 の比の線源位置による変化を示す。これらの図から妨害核種として 237 Np と同放射能の 235 U があっても沈着位置を推定できると考えられる。

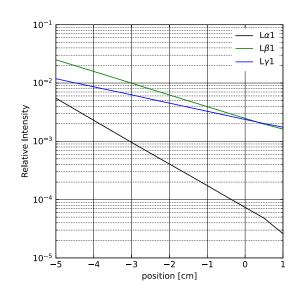


図 3. 4-22 同放射能の ²³⁷Np と ²³⁵U の位置を変化させた時の 3 種類の L X 線の相対強度の変化

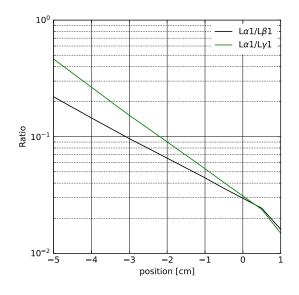


図 3. 4-23 同放射能の 237 Np と 235 U の位置を変化させた時の L β 1 に対する L α 1 の比 と L γ 1 に対する L α 1 の比

次に L X 線が線源位置から 1 個のスズ (Sn) 吸収体の方向のみに放出される場合と、 4π 方向に放出された場合の 16 個のスズ (Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトルの和を比較した。図 3.4–24 と図 3.4–25 に線源として 237 Np のみがある場合の 1 個のスズ (Sn) 吸収体の方向と 4π 方向に放出される場合のスズ (Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル、図 3.4–26 と図 3.4–27 に 237 Np と同放射能の 235 U がある場合のエネルギースペクトルを示す。これらの図から L X 線が 4π 方向に放出されて体内にある物質などにより散乱された光子がスズ (Sn) 吸収体に入ったとしても 3 種類の L X 線のピーク部分を算出する際に大きな支障にならないことが確認された。これは妨害核種として 237 Np と同放射能の 235 U がある場合も同様であることがわかった。

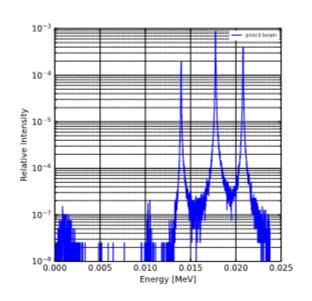


図 3. 4-24 237 Np のみがある場合に L X 線が線源位置から 1 個のスズ(Sn) 吸収体の方向のみに放出される場合のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル

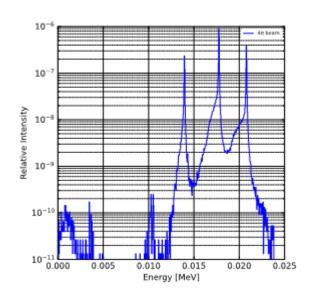


図 3. 4-25 237 Np のみがある場合に L X 線が線源位置から 4π 方向に放出される場合 の、16 個のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル

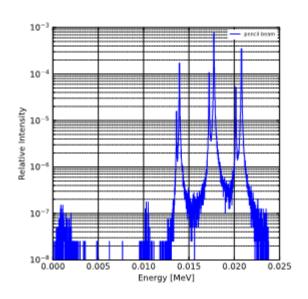


図 3. 4-26 妨害核種として ²³⁷Np と同放射能の ²³⁵U がある場合に L X 線が線源位置から 1 個のスズ(Sn) 吸収体の方向のみに放出される場合の、スズ(Sn) 吸収体 に付与されるエネルギースペクトル

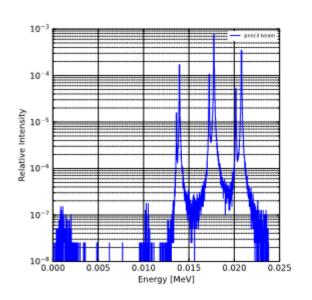


図 3.4-27 妨害核種として ²³⁷Np と同放射能の ²³⁵U がある場合に 16 個のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル

3.4.5 γ線に対するシミュレーション 【R3】

ニオブ (Nb) やモリブデン (Mo) などの中重核では L X の強度比は L X 線を放出する原子の化学結合により変化することが知られている $^{(14)}$ 。より重い原子核における状況を調べるために 241 Am 線源を用いて 241 Am 崩壊後の 237 Np のからの 3 種類の L X 線の強度比を調査した。図 3. 4-28 に実験体系の模式図を示す。

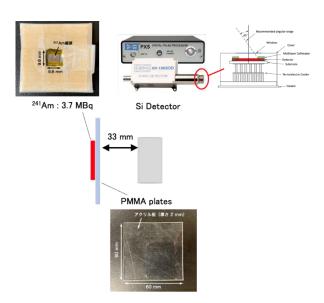


図3.4-28 LX線のアクリルによる透過を測定する実験の模式図

線源には $3.7\,\text{MBq}$ の ^{241}Am 密封線源を、L X 線の検出には Si 半導体検出器を使用した。 線源と検出器の距離を $33\,\text{mm}$ として、ここに厚さ $2\,\text{mm}$ から $16\,\text{mm}$ までのアクリル板を置いて各 L X 線の減弱を調べた。図 3.4– $29\,\text{にアクリル板の厚さが }0\,\text{mm}$ 、 $6\,\text{mm}$ 、 $12\,\text{mm}$ の時のアクリル板通過後の L X 線のエネルギースペクトルの測定結果を示す。アクリル板の厚さが増えるにつれて、エネルギーの低い L α 1 の強度が低くなっていることがわかる。

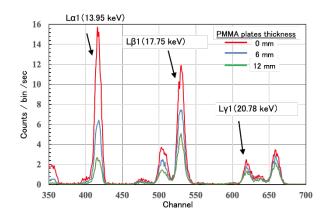


図 3.4-29 厚さが 0 mm、6 mm、12 mm のアクリル板を透過後の L X 線のエネルギースペクトル

図 3.4-30 にアクリル板の厚さに対する L X 線の減衰の測定値を示す。赤線は指数関数によるフィッティングの結果である。このことからもアクリル板の厚さが増えるにつれて、エネルギーの低い L α 1 の強度変化が大きく、エネルギーが高い L γ 1 の強度変化が小さくなっていることがわかる。

このデータを用いて L α 1 に対する L γ 1 の比を図 3.4-31 に示す。PHITS でシミュレーションした結果も合わせて示す。PHITS のシミュレーションでは 237 Np から放出される L χ 237 Np からの L χ 337 Np から放出される L χ 337 Np からの L χ 337 Np からの L χ 34 級の強度比は表 3.4-1 のデータを使用した。この図から L χ 41 に対する L χ 41 の比が実験と計算で異なることがわかる。実験と計算の L χ 42 級の放出比を表 3.4-4 に示す。この表から分かるようにこれは L χ 43 級の放出比が実験値と計算値で異なることがわかる。これは、中重核と同じように化学結合に L χ 43 級の強度比が依存しているためであると考えられる。体内に吸収された Pu 同位体の化学形は不明であることが多いと考えられるため、精度の高い沈着深さの推定には L χ 43 級の他に放出率が化学形に依存しない原子核から放出される χ 43 線を活用することが望ましいと考えられる。

そこで、 241 Am から放出される約 60 keV の γ 線と L X の強度比を用いた沈着深さの推定を検討した。この時用いた L X 線と γ 線の放出率を表 3.4-5 に示す。

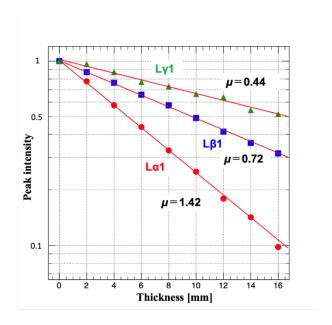


図3.4-30 アクリル板の厚さに対する透過後のLX線の強度変化

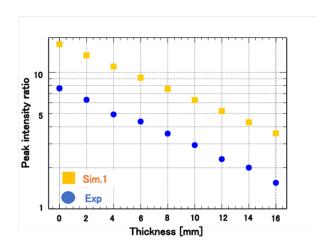


図3.4-31 アクリル板の厚さに対する $L\alpha1$ に対する $L\gamma1$ の強度比。Expが実験値、Sim.1 が PHITS によるシミュレーション結果を示す。

表 3.4-4 ²³⁷Np から放出される L X 線の放出率の実験値と文献値の比較

LX線の種類	エネルギー [keV]	放出率 実験 [%/decay]	
L α 1	13. 95	8. 1	14. 9
L β 1	17. 75	10. 1	8. 37
Lγ1	20. 78	2.8	1. 92

表 3.4-5 ²³⁷Np から放出される L X 線と ²⁴¹Am から放出される γ 線の放出率

	エネルギー [keV]	放出率 [%/decay]
$^{237}\mathrm{Np}\ \mathrm{L}\alpha1$	13. 95	14. 9
237 Np L β 1	17. 75	8. 37
²³⁷ NpL γ 1	20. 78	1.92
241 Am γ	59. 54	35. 9

図 3.4-32 に 237 Np からの L X 線、 241 Am からの γ 線、さらに妨害核種として同放射能の 235 U が線源位置から 1 個のスズ(Sn) 吸収体に向かって放出される場合のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトルからピーク強度を算出し、線源位置に対する依存性を示す。また、図 3.4-33 に 237 Np の L β 1 に対する L α 1、L γ 1 に対する L α 1、L γ 1 に対する L α 1、L γ 1 に対する L β 1、 β 1、 β 1、 β 241Am の γ 線に対する L β 1 の強度比を示す。この場合は、線源位置を y=-5.0 cm から 7.0 cm まで移動させた。図 3.4-32 の L α 1 の強度は y=1.0 cm 付近で傾きが変わるために図 3.4-33 の L β 1 に対する L α 1、L γ 1 に対する L α 1 の比が単調減少ではなく y=1.0 cm 付近で下に凸の変化をしている。このため L α 1 は深い位置での沈着深さ推定には使えないことがわかる。一方、 γ 線に対する L γ 1 の比は y=1.0 cm よりも深いところでも単調減少しているため、妨害各種があったとしても L X 線のみで評価するよりもより深い位置での沈着深さの推定に使用できると考えられる。

次に 237 Np の L X 線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からの L X 線が線源位置から 1 個のスズ (Sn) 吸収体の方向のみに放出される場合と、 4π 方向に放出される場合の 16 個のスズ (Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトルの和を比較した。図 3. 4-34 に線源位置から 1 個のスズ (Sn) 吸収体の方向のみに放出される場合、図 3. 4-35 に 4π 方向に放出される場合のスズ (Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトルを示す。 4π 方向に放出される場合のスズ (Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトルを示す。 4π 方向に放出され散乱される光子の成分がある場合でも γ 線と $L\gamma$ 1 のピークが明瞭に弁別できることがわかる。

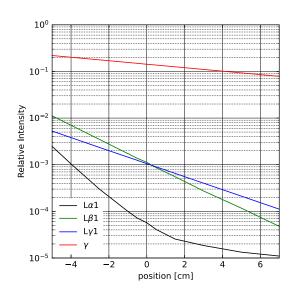


図 3. 4-32 237 Np の L X 線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からの L X 線の線源位置を変化させた時の 237 Np の 3 種類の L X 線と γ 線の相対強度の変化

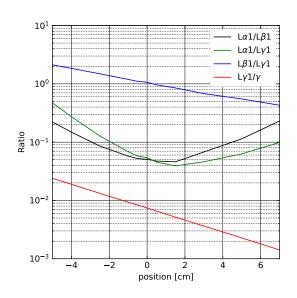


図 3. 4-33 237 Np の L X 線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からの L X 線の線源位置を変化させた時の L β 1 に対する L α 1、L γ 1 に対する L α 1、L γ 1 に対する L β 1、 γ 線に対する L γ 1 の強度比

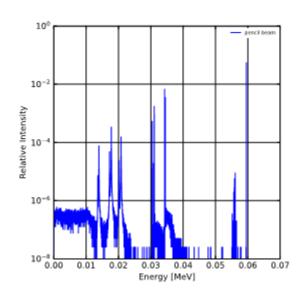


図 3. 4-34 237 Np の L X 線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からの L X 線が線源位置 から 1 個のスズ(Sn) 吸収体の方向のみに放出される場合のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル

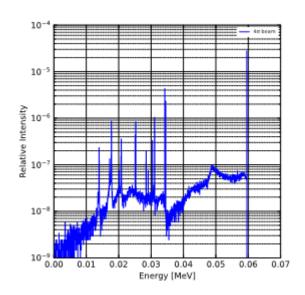


図 3. 4-35 237 Np の L X 線と 241 Am から γ 線、同放射能の 235 U からの L X 線が 4π 方向に 放出される場合のスズ(Sn) 吸収体に付与されるエネルギースペクトル

3.4.6 検出下限値に関する検討 【R3】

放射線計測における検出下限値はエネルギースペクトルの着目しているピークの部分 とその両側にあるバックグラウンド部分の計数率から求められる。バックグラウンド部 分が平坦な場合はバックグラウンド部分の幅をピークの幅と同程度とすることで十分で ある(15)。

先行研究では冷凍機入射窓近傍に小体積の 239 Pu が置かれ、1 辺が 5 μm の金(Au)吸収体を用いた TES 型マイクロカロリーメータで測定し、測定時間が 7 日間の場合の L X 線測定の検出下限値は 10 kBq 程度であった $^{(15)}$ 。 TES 型マイクロカロリーメータを肺モニタに適用するために、測定時間を 30 分、体表面から検出器までの距離は 1 m 程度、 239 Pu の点線源が肺の壁に沈着しており、体表面までの距離を 2.27 m と仮定した。この仮定の模式図を図 3.4-36 に示す。この仮定で同じ 1 辺が 5 μm の金(Au) 吸収体 TES 型マイクロカロリーメータの検出下限値を先行研究のデータを用いて見積もると 1.7 m GBq 程度となった。

既存のGe検出器を用いた肺モニタの検出下限値は2-4kBqである⁽¹⁶⁾である。これはGe検出器の有感領域はTES型マイクロカロリーメータの吸収体部分より非常に大きいため検出効率が高い。そこでTES型マイクロカロリーメータを肺モニタに適用するためには多画

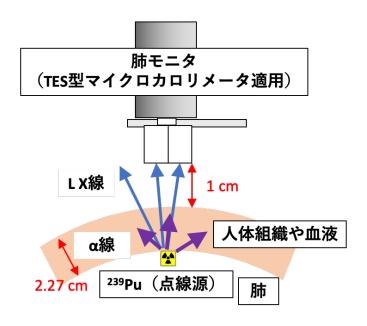


図 3.4-36 TES 型マイクロカロリーメータの肺モニタ適用時の肺中の ²³⁹Pu 測定体系

素化による有感面積の向上が必要となる。TES 型マイクロカロリーメータの多画素化の研究 $^{(17)$ 、 $^{(18)}$ がなされており、例えば 200 μ m×200 μ mを 10^5 個配列して有感面積を 4000 μ m にすれば検出下限値が 10 kBq 以下になり、Ge 検出器による肺モニタと同程度の検出下限値を実現できると考えられる。しかし、Ge 検出器はエネルギー分解能が TES 型マイクロカロリーメータより大きいため、妨害核種などがある場合は TES 型マイクロカロリーメータでピークを弁別することにより Pu 同位体の沈着量を推定できる優位性があると考えられる。

参考文献

(1) K. Maehata et al., Development of a TES microcalorimeter for spectroscopic measurement of LX-rays emitted by transuranium elements, J. Nucl. Sci.

- Technol., 47, (2010), pp. 308-318.
- (2) K. Maehata et al., Response of a superconducting transition-edge sensor microcalorimeter with a mushroom-shaped absorber to L X rays emitted by transuranium elements, IEICE Trans. Electron., E98.C, (2015), pp. 178-185.
- (3) T. Sato, et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55 (2018), pp. 684-690.
- (4) J. Allison, et al., Recent developments in Geant4, Nucl. Instrum. Meth., A835 (2016), pp. 186-225.
- (5) S. Agostinelli, et al., Geant4-a simulation toolkit, Nucl. Instrum. Meth., A506 (2003), pp. 250-303.
- (6) F. Salvat, et al., PENELOPE-2008: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport, OECD Nuclear Energy Agency, ISBN 978-92-64-99066-1 (2009).
- (7) J. B. Smathers, et al., Composition of A-150 tissue-equivalent plastic, Med. Phys., 4 (1977) pp. 47-77.
- (8) H. Hirayama, et al., The EGS5 Code System, KEK Report 2005-8 (2005).
- (9) M. Maeda, et al., Development of TES microcalorimeterfor high precisionspectroscopy of LX-rays from transuranium elements, Prog. Nucl. Sci. Technol., 1 (2011) 226-229.
- (10) C. H. Kim, et al., ICRP Publication 145: Adult mesh-type reference computational phantoms, Ann. ICRP, 49 (2020) 13-201.
- (11) ICRP, P103: The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, Ann. ICRP, 37 (2007).
- (12) ICRP, ICRP Publication 110. Adult Reference Computational Phantoms, Ann. ICRP, 39 (2009).
- (13) T. Furuta, etal., Implementation of tetrahedral-mesh geometry in Monte Carlo radiation transport code PHITS, Phys. Med. Bio., 62 (2017) pp. 4798-4810.
- (14) J. Iihara, et al., Chemical effects of L X-ray intensity ratios in niobium and molybdenum compounds, Nucl. Instrum. Meth., A299 (1990) 394-398.
- (15) 中村圭佑,マイクロカロリーメータ特性 X 線スペクトル計測による超ウラン元素内部被ばく線量評価に関する研究,学位論文,九州大学 (2018).
- (16) ICRP, ICRP Publication 54 Individual Monitoring for Intakes of Radionuclides by Workers, Ann. ICRP, 19 (1989).
- (17) S. J. Smith, et al., Multiabsorber transition-edge sensors for x-ray astronomy, J. Astron. Telesc. Instrum. Syst., 5 (2019) 021008.
- (18) Y. Nakashima, et al., Low-noise microwave SQUID multiplexed readout of 38 x-ray transition-edge sensor microcalorimeters, Appl. Phys. Lett., 117 (2020) 122601.

3.5 研究推進【H30-R3】

研究代表者の下で各機関の関係者と打ち合わせを行い、各研究項目間における連携を密に して研究を進めるとともに、広く意見を聴きながら研究を進めるため委員会を 4 年間で 4 回 開催した。

研究推進委員会での審議により各年度末までの本研究開発状況について検討され、新型コロナウイルス感染症の影響で測定試験の延期等の期間延長はあったものの、計画通りに進捗していることが確認された。

3.5.1 研究の推進

(1) 平成30年度研究メンバー打合せ

平成30年11月12日に原子力機構の東京事務所において、本研究に係る4機関(原子力機構、産総研、東京大学および九州大学)の研究メンバーおよび関係者が集まり、打合せを開催した。打合せにおいて、研究メンバーの顔合わせを行うとともに、研究方針および全体計画、令和元年度の予定、平成30年度の研究推進委員会の開催について確認した。また、全体計画について平成31年2月28日の研究推進委員会において確認を行った。

(2) 令和元年度研究メンバー打合せ

令和元年 7 月 3 日に原子力機構の東京事務所において、本研究に係る 4 機関(原子力機構、産総研、東京大学および九州大学)の関係者が集まり、打合せを開催した。打合せにおいて、研究のスケジュールおよび実施内容について議論し、これまでの研究の進捗状況および令和元年度の実施計画、令和 2 年度の予定、研究推進委員会の開催について確認した。

(3) 令和2年度研究メンバー打合せ

令和2年7月10日(金)に本研究に係る4機関(原子力機構、産総研、東京大学および九州大学)の関係者での打合せをWeb会議で開催した。打合せにおいて、研究のスケジュールおよび実施内容について議論し、これまでの研究の進捗状況および令和2年度の実施計画、令和3年度の予定、研究推進委員会の開催について確認した。

(4) 令和3年度研究メンバー打合せ

令和3年9月17日(金)に本研究に係る4機関(原子力機構、産総研、東京大学および九州大学)の関係者での打合せをWeb会議で開催した。打合せにおいて、最終年度である令和3年度に向けてのスケジュールおよび実施内容について議論し、これまでの研究の進捗状況および令和3年度の実施計画、研究推進委員会の開催について確認した。

3.5.2 研究推進委員会

本研究による超伝導放射線計測技術の確立は、線量評価の高精度化のみならず、核変換・高レベル放射性廃棄物の管理・処理技術、セキュリティやセーフガードなどを含めた分野への適用も可能であるとともに、福島第一原子力発電所の廃炉作業を進める上での様々な応用が期待できる。

このため、超伝導検出器の応用が想定される技術分野と検出器システムの開発研究者 との間の情報交流を図り、応用分野から検出器に望まれる検出性能と現状の達成状況と のギャップを把握した上で、具体的な応用研究、応用技術分野の設定等の議論が求めら れる。また、将来の本技術の実用化、商品化のために克服するべき課題、障害等につい ても情報交換を進めていく必要がある。

以上の観点から、本研究事業では、外部有識者に参画頂き、「超伝導転移端センサ線量評価システム研究推進委員会」(以下、研究推進委員会という)を発足させた。研究推進委員会の外部委員は、分析技術開発、デバイス開発、応用技術、産業化技術、原子力現場展開に係る専門家やメーカ技術者の6名に依頼した。令和2年度からは、研究メンバー交代に伴い、これまでの研究の継続のため旧研究メンバーの1名を加え、7名とした。各年度の開催日時、研究推進委員会の委員等を表3.5-1に示す。また、研究推進委員会での各委員からの質問・意見および回答を表3.5-2に示す。

(1) 第1回研究推進委員会および大洗研究所燃料研究棟の視察【H30】

第1回の研究推進委員会を平成31年2月28日に原子力機構の大洗研究所で開催した。 表3.5に日時、出席者等を示す。日程の都合により2名の外部委員の先生が参加できなかった。一方、オブザーバーとして放射線計測を専攻する学生に参加して頂き、人材育成の機会として有益であったと考える。

委員会では大洗研究所の概況および本研究課題の概要説明を行った後、各機関の開発項目毎に、これまでの TES 研究の経緯および開発水準、本研究課題による平成 30 年度の研究状況、令和元年度以降の予定について、原子力施設内での核種検出実験(原子力機構)、TES アレイ読出し回路開発(産総研)、TES 検出素子作製(東京大学)および L X線の高分解能測定(九州大学)の順で報告した。報告に対して、委員から質疑応答を受け、本研究推進および研究に関して有益な議論ができた。

委員会終了後、15:40 から大洗研究所の燃料研究棟をご視察頂いた。燃料研究棟は平成29年6月にPuの漏洩トラブルにより作業員の内部被ばくが発生した施設である。視察において、研究推進委員会の委員の皆様に原子力施設での測定試験の検討状況を説明するとともに、測定試験場所のイメージを把握していただいた。また、伊藤委員より平成29年に発生した燃料研究棟の事故の概要が紹介された。

(2) 第 2 回研究推進委員会【R1】

第2回の研究推進委員会を令和2年3月4日に産業技術総合研究所で開催する予定で調整していたが、日本においても新型コロナウイルス感染症の感染拡大の影響により内閣官房からイベント開催の必要性を再検討するよう要望が出されたことから、関係箇所と

も相談し、令和元年度は特別措置として会議での審議ではなく、書類による審議をもって委員会開催とすることを2月24日に判断した。

書類による審議として、3月10日に各位委員に推進委員会で説明予定であったパワーポイントおよび質問回答用紙を送付し、3月19日締め切りで質問およびコメントを依頼した。3月31日に各質問に対する回答をとりまとめ、回答を送付した。

主な質問およびコメントとして、線量評価に関する定量的な議論および説明が不足しているとの指摘が複数あった。線量評価への TES の適用の開発目標として、64 画素の肺モニタとバイオアッセイに適用した場合の検出下限の現段階での見込みについて、補足説明を行った。また、令和元年度の結果が計画通りの達成なのか分かり難いとのコメントがあったたが、計画に対する達成を明確にした。その他、分析データ処理方法、素子製作、信号パルス、およびこれらに考えられる課題等について技術的な活発な質疑と回答が行われた。本研究の進捗については質疑応答において理解していただけたものと考えており、計画通りの進捗か確認されたものと考える。

(3) 第3回研究推進委員会【R2】

第3回の研究推進委員会を令和3年3月22日に開催した。令和2年度当初は原子力機構大洗研究所での開催を検討したものの、令和3年1月から3月も新型コロナウイルス感染症の影響が続いており、Web会議での開催とした。

主な質問およびコメントとして、TES素子の特性に係る熱伝導率や多画素化で懸念される課題が議論された。本研究の進捗については、令和2年度の研究開発結果の説明および質疑応答において理解していただけたものと考えており、計画通りの進捗か確認されたものと考える。

(4) 第 4 回研究推進委員会【R3】

第4回の研究推進委員会を令和4年3月15日に開催した。令和3年秋以降の新型コロナウイルス感染症デルタ株の感染者数の急減から原子力機構大洗研究所での開催で進めていたが、令和4年1月からのオミクロン株の急拡大によりWeb会議で開催した。

主な質問およびコメントとして、TES素子の特性に係る熱伝導率や多画素化で懸念される課題が議論された。本研究の進捗については、令和3年度の研究開発結果の説明および質疑応答において理解していただけたものと考えており、計画通りの進捗か確認されたものと考える。

表 3.5-1 超伝導転移端センサ線量評価システム研究推進委員会参加者

平成30年度第1回研究推進委員会【H30】

日時:平成31年2月28日(木)13:30~16:20、場所:日本原子力研究開発機構大洗研究所環境監視棟2階会議室

参加	者	所属	備考
委員長	課題代表	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所 放射線管理部	
	有識者	国立研究開発法人 科学技術振興機構	
	有識者	研究開発法人 理化学研究所(仙台支所) 光量子工学研究センター	欠席
外部委員	有識者	公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門	欠席
外部安貝	有識者	東芝電力放射線テクノサービス株式会社	
	有識者	株式会社日立ハイテクノロジーズ 科学・医用システム事業統括本部	
	有識者	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門	※ 1
	業務主任者	国立研究開発法人 産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門	
委員	業務主任者	国立大学法人 東京大学大学院工学系研究科原子力専攻	
	業務主任者	国立大学法人 九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門	

※1原子力機構関係者であるが、東京電力福島第1発電所の廃炉技術に係る観点からの助言を頂くために有識者として参加していただいている。

令和元年度第2回研究推進委員会【R1】

書類審議:令和2年3月10日 ~令和2年3月31日

参加	者	所属	備考
委員長	課題代表	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所 放射線管理部	
	有識者	国立研究開発法人 科学技術振興機構	
外部委員	有識者	研究開発法人 理化学研究所(仙台支所) 光量子工学研究センター	
	有識者	公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門	

	有識者	東芝電力放射線テクノサービス株式会社	
	有識者	株式会社日立ハイテクノロジーズ 科学・医用システム事業統括本部	
	有識者	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門	※ 1
	業務主任者	国立研究開発法人 産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門	
委員	業務主任者	国立大学法人 東京大学大学院工学系研究科原子力専攻	
	業務主任者	国立大学法人 九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門	

^{※1}原子力機構関係者であるが、東京電力福島第1発電所の廃炉技術に係る観点からの助言を頂くために有識者として参加していただいている。

令和2年度第3回研究推進委員会【R2】

Web 開催:令和3年3月22日(月)13:00~16:00

参加	者	所属	備考
委員長	課題代表	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所 放射線管理部	
	有識者	国立研究開発法人 科学技術振興機構	欠席
	有識者	研究開発法人 理化学研究所(仙台支所) 光量子工学研究センター	
	有識者	公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門	
外部委員	有識者	東芝電力放射線テクノサービス株式会社	
	有識者	株式会社日立ハイテクノロジーズ 科学・医用システム事業統括本部	
	有識者	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門	※ 1
	有識者	学校法人帝京大学 福岡医療技術学部 診療放射線学科	※ 2
	業務主任者	国立研究開発法人 産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門	
委員	業務主任者	国立大学法人 東京大学大学院工学系研究科原子力専攻	
	業務主任者	国立大学法人 九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門	

※1原子力機構関係者であるが、東京電力福島第1発電所の廃炉技術に係る観点からの助言を頂くために有識者として参加していただいている。

※2 研究メンバーの交代に伴い、これまでの研究の継続のため旧研究メンバーの1名を外部委員に加えた。

令和3年度第4回研究推進委員会【R3】

Web 開催: 令和4年3月15日(火)10:00~12:00

参加	者	所属	備考
委員長	課題代表	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所 放射線管理部	
	有識者	国立研究開発法人 科学技術振興機構	欠席
	有識者	研究開発法人 理化学研究所(仙台支所) 光量子工学研究センター	
	有識者	公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門	
外部委員	有識者	東芝電力放射線テクノサービス株式会社	
	有識者	株式会社日立ハイテクノロジーズ 科学・医用システム事業統括本部	
	有識者	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門	※ 1
	有識者	学校法人帝京大学 福岡医療技術学部 診療放射線学科	欠席※2
	業務主任者	国立研究開発法人 産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門	
委員	業務主任者	国立大学法人 東京大学大学院工学系研究科原子力専攻	
	業務主任者	国立大学法人 九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門	

※1 原子力機構関係者であるが、東京電力福島第1 発電所の廃炉技術に係る観点からの助言を頂くために有識者として参加していただいている。 ※2 研究メンバーの交代に伴い、これまでの研究の継続のため旧研究メンバーの 1 名を外部委員に加えた。

表 3.5-2 超伝導転移端センサ線量評価システム研究推進委員会での主な質疑

平成30年度第1回研究推進委員会での質疑【H30】

1	Q	開発する TES 検出器が測定対象とする光子のエネルギー範囲はどのくらいか。
	А	10 keV~100 keV の範囲である。これまで γ 線用の TES で L X 線の測定は考えていなかったが、本研究では L X 線領域までの測定を目指している。九州大学において データ処理を検討する。
2	Q	開発する TES 検出器に要求されるカウントレートはどれくらいか。
	А	肺モニタに適用する場合は非常に低いカウントレートで良いが、中性子放射化箔のような線源強度の高い試料を測定する場合には高いカウントレートが必要となる。本研究では、1素子あたりのカウントレートは高いものを求めず、素子数を増やすことでカウントレートを稼ぐことを目指す。

	0	汚沈の深さ七向の証価と於山里のエラルギー八般的の虧がNICのLVで独立で添して、
3	Q	汚染の深さ方向の評価と検出器のエネルギー分解能の繋がりについて教えて欲しい。
J	А	深さ方向の評価には、人体による減弱の有無による各 X 線および γ 線のピーク強度比の違いを利用する。エネルギー分解能が向上することで隣接するピークを分離出来ることから、より正確にピーク強度が算出できるようになり、深さ方向の評価精度が向上する。
	Q	読出雑音は波高値に依存するのか。
4	А	スペクトロメータシステムのエネルギー分解能への読出回路雑音の寄与度は、TES 出力電流の波高値に依存するが、本研究のように、回路側のノイズが波高値に影響しないレベルまで低減できれば、エネルギー分解能は TES により支配され、波高値に独立である。
	Q	新しい SQUID の M はどのように決定したのか。(スライド 13 枚目)今回の値が M の上限値か。
5	А	共振の影響を見るため、入力コイル全長に渡る半波長共振周波数の 3-6 倍の高調波が読出帯域である 4-8 GHz 帯に入り、かつチップ上でのレイアウトに寸法上無理のないように決定した。 SQUID 構造・形状の今後の工夫により、高速応答性(スルーレート)と TES の電熱帰還の安定性に支障が生じるレベルにまで M をさらに増大することは可能と考える。
6	Q	新規作製法に基づく共振器損失の低減は、特定の画素に限った現象ではなく、すべての画素に共通に見られるのか。また、従来作製法において、損失増大をもたらす他の要因はないのか。
6	A	共通に見られた。また、新規作製法においても、共振器だけの簡易作製法に比べ損失が全く増えていないとは言えないので、他要因の存在可能性は否定できない。しかし、新規作製法の適用だけで、読出雑音低減に充分効果のある損失低下を得ており、他要因の究明と対策をとらずとも、実用上の問題はないと考えている。
7	Q	本研究の位置づけについて、原子力応用だけではなくて、TES のエネルギー分解能が上がれば、たとえば放射光応用や粒子線検出等への応用にも道が切り拓かれることもしっかりと見据えた研究が必要ではないか。
•	А	そのとおりであり、放射線計測の基盤技術確立を目指して、研究を進める。
0	Q	使用済みの燃料や福島の炉とかでの応用も視野に入れた場合、高いエネルギーの y 線入射によるコンプトン散乱イベントが低エネルギー側にも尾を引いてそれがスペクトルに大きく影響を与えると考えられるが、その点については、すでに測定実験等で調べられているのか。
8	А	分光精度の向上によりピーク検出感度が高くなり、既存の Ge 検出器のスペクトルに比べてコンプトン散乱イベント群より突出してさらに高いピークが検出されることを期待している。今回の大洗での実験でも、ご指摘の点についてはまさに試験の目的に該当しており、核物質検出実験を通して、その影響等も評価する。
9	Q	測定時に必須となる冷却システムの不調等、問題が多いが、そのような極低温冷却機器の信頼性、安定性の向上が鍵を握るのではないか。
	А	その通りである。今後、冷凍機作製企業とも緊密に連携をとり、冷凍機インフラの絶対的な信頼性向上についても努力する。

令和元年度第2回研究推進委員会での質疑【R1】(書類審議)

日本原子力研究開発機構の担当箇所に対する質問と回答

		本研究は、「超伝導量子計測技術を駆使した放射線線量評価システムの開発と体内線量評価への応用」にあると理解していますが、線量に関する定量的評価の検討が
		あまり感じません。そもそも「開発中の本システムは線量評価(定量性はあるのか否か)に適しているのか、いないのか、また適用範囲というか限界はあるのか、新奇な方法
1 '	Q	だけに興味があります。このあたりの議論をお聞かせいただきたく思います。たとえば、微量プルトニウムの生態に及ぼす影響と安全・安心社会的構築と本研究の関連等を
		議論される予定はあるのかどうか、お尋ねします。
	Α	ご指摘の通り、定量的な議論および説明が十分ではありませんでしたので、以下に説明します。

		① TRU 核種に係る線量の定量的な評価への TES の適用は、バイオアッセイおよび肺モニタを考えております。 Pu などの TRU 核種を作業者が吸入摂取した時、肺モニタ
		で医学的な措置が必要か判断し、作業者の便を化学的に分析して個人線量を評価します。
		肺モニタは体の外から肺中の Pu 量を測定しますが、現在の Ge 検出器では Pu は Am が同時に存在するとともに、Pu も線量限度レベルを測定することは困難です。
		肺モニタにおいては、64 画素 TES では Ge 検出器の1/10 の検出限界が期待されます。 肺モニタの Ge 検出器 4 式を TES の 4 式に置き換えることで、250mSv レベルの
		測定が可能となる高性能化が期待できます。しかしながら、50mSv の線量限度レベルまでの測定にはさらに 4 倍の面積が望まれます。
		バイオアッセイについて、化学的な分析では 6 日の分析作業が必要となります。 64 画素 TES で最低限2mSv まで測定する場合、 2.4 日の測定と見積もっており、便試
		料の灰化作業は必要としても 2.4 日 (=6-2.4-1)の短縮とともに、労力的な効率化が期待できます。
		上記見積もりにつきましては、九州大学でのLX線専用TESでのデータを用いたものであり、本研究での1 mm 2級 TESの測定実験データでの検討が必要であり、今後
		議論できるものと考えます。
		② 微量プルトニウムの生態に及ぼす影響と安全・安心社会的構築と本研究の関連等の議論について
		応募段階では、「超伝導量子計測技術を駆使した内部被ばく TRU 核種迅速線量評価システムの開発」としておりましたが、採用時のコメントで「内部被ばく」を削除
		し、汎用的な測定技術の研究開発となりましたため、あいまいなままになっておりました。作業者の線量評価の高度化、迅速性が増すことにより、安全・安心社会構築の
		議論は可能と考えますので、検討事項に加えたいと思います。
		「開発目標」に、「…体内摂取量の評価手法の抜本的な改革・・・・」とあります。抜本的改革を行うために、多画素化、適用、実証と進めていくことと理解しています。本開
		発期間で、体内摂取量の評価手法の現状について、どのような点でどの程度の改革がなされるのか、数値(測定効率、精度などについて)として示すことはできないでしょう
		か?
	Q	^^ : もし、数値として示せるのでしたら、現時点での達成度または現時点の達成状況から見込める最終達成値の予測を示してもらえないでしょうか?開発する TES 検出器に
		要求されるカウントレートはどれくらいか。
		### #################################
2		TRU 核種に係る線量評価への TES への適用については、バイオアッセイおよび肺モニタを考えております。 Pu などの TRU 核種を作業者が吸入摂取した時、まずは肺
		モニタで医学的な措置が必要が判断し、作業者の便を化学的に分析して個人線量を評価します。
		ロークで医手的な相直が必要が判断し、下来有の使を化手的に分析して個人線量を計画しより。 肺モニタは体の外から肺中の Pu 量を測定しますが、現在の Ge 検出器では Pu は Am が同時に存在するとともに、Pu も線量限度レベルを測定することは困難です。肺
	Α	ー データにはいては、64 画素 TES では Ge 検出器の1/10 の検出限界が期待されます。 肺モニタの Ge 検出器 4 式を TES の 4 式に置き換えることで、250mSv レベルの測定
		ゼークにあいては、64 画系 TES では Ge 優山盛の1/10 の優山阪外が場合でより。 加モークの Ge 優山盛年氏を TES の年氏に置き換えることで、250mSv レックルの例だ が可能となる高性能化が期待できます。 しかしながら、50mSv の線量限度レベルまでの測定にはさらに 4 倍の面積が望まれます。
		が可能となる同性能化が動行できょり。しかしながら、50mov の緑重阪度レベルまでの例だにはさらに4 信の面積が至まれまり。 バイオアッセイについて、化学的な分析では6 日の分析作業が必要となります。64 画素 TES で最低限2mSv まで測定する場合、2.4 日の測定と見積もっており、便試料
		・ ハイオノッとイについて、化子的な分析ではもロの分析で素が必要となります。04 画系 TES て最低限2msv まて例だする場合、2.4 ロの例だと兄債もつており、便試得「 の灰化作業は必要としても 2.4 日(=6-2.4-1)の短縮とともに、労力的な効率化が期待できます。
		① 開発目標について、線量評価分析への適用および高精度分光分析の実証について、具体的な指標が明示されていません。公募申請段階では具体的に記載されてい
		① 開発目標について、線重評価分析への適用ねよの尚積度分元分析の夫証について、具体的な指標が明示されていません。公券申請核階では具体的に記載されてい たのでしょうか。
	Q	② 実施状況は記載ありますが、今年度末実績は計画通りなのか否かが分かりません。 ③ 令和2年度以降の予定について、令和2年度には目標に対して何をどこまで達成するのかの指標が記載されている分かりやすいと思います。
		なお、技術開発という言葉は、行為であって目標ではないと考えます。
3		①他の先生方からも定量的な議論がないとのご意見をいただいております。採用時のコメントで「内部被ばく」を削除し、汎用的な測定技術の研究開発となりましたので、あ
		いまいなままになっておりました。
1		具体的な指標につきましては、以下を考えております。
1	Α	1mm2 吸収体 64 画素の TES について Pv. 899 の LV 約 の 20 (2) 型字 1.7 × 103 Pv. (C. +ない 型 (50 v. 2) の 約 1 / 10 の おい 関 用)
		Pu-239 の LX 線の 30 分測定⇒ 1.7×10 ³ Bq(Ge 検出器[50 cm ²]の約 1/10 の検出限界)
		5 Bq の Pu-239 の LX 線の測定時間⇒ 2.4 日
		② 令和元年度の実施の結果としては、計画通りに達成済みです。①解析ソフトの製作完了、②測定実験実施済、③次年度の測定試験計画の概略決定。これら詳細の報

		告書につきましては、4月中にまとめることになっております。
		③ 拝承です。令和2年度の目標は以下の通りです。
		○産総研で製作された 16 画素 TES を用いて、大洗研究所で測定試験を実施する予定。Pu 等の測定により上記の指標に係るバックグラウンドや検出効率等のデータ
		を収集する
		○令和元年度に製作した解析ソフトをテストし、動作の確認を行います。
		① プロジェクトの趣旨目的理解について先ず補足的質問です。プロジェクトタイトルに「線量評価システム」とありますが、本プロジェクトは冒頭に書きました様に、放射能分
		析システムとして受け止めております。それを前提として以下ご質問させて頂きますが、プロジェクトの趣旨・目的理解とし正しいでしょうか?
	۵	② 最適フィルタ適用の理由について、時系列パルスを最適フィルタで波形解析、波高評価し、これを別途波高分布(ヒストグラム)として蓄積されるものと理解しました。TES
	•	は特徴的な立ち上り、立下り、全体として長い時定数を持つことは分かりますが、従来のパルス波高分析のためのディジタル信号処理手法等が適用できない/しない理
		由はどこにあるのでしょうか?例えば、アナログでは困難であった、台形・トライアングル・カスプ波形等のディジタル処理技術が確立されていますが、ここで述べられた
4		"最適フィルタ"等で処理するメリット、必然性などをご教示戴けませんでしょうか?
		① 本プロジェクトの応募当初のタイトルは、「超伝導量子計測技術を駆使した TRU 核種迅速内部被ばく線量評価システムの開発」でしたが、採択時のコメントとして、内
		部被ばく限らず、汎用的な放射線測定器の開発にするようにとのコメットがあり、タイトルから「内部被ばく」の用語を削除しました。したがって、放射能分析システムと理解
	Α	していただいて問題ありません。 ② マイクロカロリーメータは、原理的には非常に優れたエネルギー分解能を持っていますが、実際にはパルスに混入したノイズの影響で、単純にパルスのピーク値をとった
		ではでは理想とするエネルギー分解能を得ることができません。そこで、最適フィルタ解析や PCA 法による解析手法を用いて、可能な限り S/N を改善して解析を実施し
		たりては生活とするエイルイン 万解化を得ることができません。でこで、取過ノイルク解析ですCA 伝による解析子伝を用いて、可能な限り 5/10 を収置して解析を失施し ています。
-		リアルタイム化の可能性について
		① この方法は、リアルタイム演算として、最終的な装置に、例えば FPGA ロジックとして落とし込める様なものなのでしょうか?あるいはいったん時系列信号を大容量データ
		として記録し、オフライン、あるいは"追っかけて"解析するものなのでしょうか?(計数率が低いので、なおさらリアルタイムで測定状況を少しずつでも見ながら使いたくな
	۵	るのが、ユーザの常ですので、この観点からの質問です。)
	- Q	② 幾何学的な面も含めて全体に計数効率は低めをイメージされているとは思いますが、それで
		もなお、デブリ等の計測応用等を考えると、偶発パイルアップは避けられないと思います。このフィルタにおいて、パルスパイルアップの検出とそこから棄却せず信号を抜き
5		出す方法、それらに伴うライブタイム補正等の処理は対応可能なものなのでしょうか?
		① リアルタイム化について
		最適フィルタ法については、予備実験を実施し予めフィルタを作成しておくことで、リアルタイムの解析が可能です。一方、PCA 法は取得したデータを行列化する必要
	Α	があるため、リアルタイムでの解析は困難と考えます。
	11	② パイルアップの補正について
		最適フィルタ法では解析の特性上、困難であると考えます。一方で、PCA法では、立ち上がり時間に敏感な固有ベクトルを利用することで、パイルアップパルスを検出
		できるのではないかと考えております。次年度以降、検討を行いたいと思います。
		「コメント」
6		多画素化による検出効率 up は TES にとって必須な開発項目であり、それに対して着実に開発を進めていると感じました。 令和元年までは要素部品開発が主であったた
		め、それらを組み合わせた評価が令和2年から開始されると思っております。成果を楽しみにしております。また、得られた成果を一般に使えるようにしていただけるとありが
	Q	たいです。 【質問】
		【貝印】 ① 前回のヒアリングでお聞きしたかもしれませんが、64 画素で目標とするエネルギー分解能は何 eV@20keV ? でしょうか。
		② 64 画素化を実現する際に要素部材のほかに、想定されるリスクは何でしょうか。例えば計数率から想定される計測時間において、システムの安定性はどうか等です。ま
		を目標とするアプリケーションにおいて、スペクトルの高さ(カウント数)はどの程度あればよいのでしょうか。 バックグランドが非常に低いので、10 カウントもあればよいよう
	<u> </u>	TOTAL MALL MALL MALL MALL MALL MALL MALL M

		にも思えますが、いかがでしょうか。
		③ 高速信号処理は大変期待しております。開発環境の「tesa」とは何でしょうか。アルゴリズムの最適化とありますが、具体的には何をされたのでしょうか。
	А	① 64 画素で目標とする LX 線でのエネルギー分解能は Pu と Am-241 の分離測定には100eV@20keV が目安と考えています。これは、核燃料物質の Pu の同位体 Pu-241 が放射線崩壊して Am-241 がどうしても同時に存在するためです。 ②九州大学の前畑先生は LX 線専用の TES で測定された実績がありますが、本研究のように1mm²の吸収体(50eV@100eV)で 20KeV ではどのようになるか、産総研での実験結果が興味深いところであります。また、各画素の素材の均一性も限界があると思いますので、それぞれの TES でエネルギー校正を行う必要があるのではないかと考えております。また、スペクトルの高さもバックグラウンドで決まるため、今後の測定結果を評価してからになると思います。 ③ 「tesa」は今回開発した信号解析用ソフトウェアの名称になります。資料が分かり難く恐縮ですが、「開発環境」はベンダの PC を、「運用環境」は昨年度購入したワークステーションをそれぞれ指しています。ベンダの PC よりもワークステーションの方の性能が高く、運用環境(=実際の解析環境)ではさらなる解析時間の短縮が見込まれます。アルゴリズムの最適化ですが、①Boost C++ Libraries による並列処理の実装、②PCA 法による解析時に Spectra - C++ Library を使用しての高速な大規模行列の固有値計算の実装などを行っています。
7	Q	【コメント】 1.AC 読み出しではデータ量が非常に多くなり、その処理速度は実用的なシステムの実現に極めて重要である。専用ソフトウェアの開発により、解析時間が PCA 法で 1/14、最適フィルタ法で 1/45 になったことは極めて重要な意味を持ち、高く評価できる。 2.また、実際に AIST のシステムで評価したことで、実際の使用における課題のあぶり出しや解決がなされたものと期待される。 【質問】 1.PCA 法では、差別化に必要なパラメータ(第 1-2 主成分で大きな違いが出るパラメータ)を同定することでさらに時間短縮できる可能性はあるか?(その場合のメリットと デメリットがあると思われるが、どんな長所短所がありそうか?)
	А	ご意見のとおり、差別化に必要なパラメータを同定することでさらに時間短縮できると考えます。 本手法では、取得した信号パルスすべてを行列化してデータセットを作成し、解析に使用します。最終的に欲しい情報が波高値とベースライン値なのですが、これらに関しては信号パルスの減衰側の後半成分はあまり寄与していないと考えます。したがって、データセットから信号パルスの後半成分を削減し、データセットを小さくすることで、解析時間を短縮することが可能かと思われます。しかしながら、パルスのデータをすべて利用しなくなるため S/N が小さくなり、最終的に得られるエネルギー分解能は悪くなるのではないかと思われます。

産業技術総合研究所の担当箇所に対する質問と回答

		① AIST と東大の役割ですが AIST はメンブレン作製を担当との理解でよいでしょうか。
		② 熱伝導度の測定結果を記載していますが、メンブレンサイズと厚み (P2 から 0.58 um でよいでしょうか) はいくつでしょうか。動作温度にもよりますが、8 nW/K は他のグ
	Q	ループと比較し大きいように思えますが、その原因は何か考えられますか?また熱コンダクタンスの設計値を教えてください。
		③ 共振器の目標値は-40~-30dB において指数(1E+5)以上が得られること、で正しいでしょうか。
		④ 共振器において目標エネルギー分解能を得つつ、64 画素読み出すまでに残るハードルは何でしょうか。測定をしながら課題抽出&対策を繰り返す段階でしょうか。
1		① いいえ、本資料記述の TES に関しては、AIST がチタン/金(Ti/Au)成膜を含む TES チップ試作を、東大が金(Au)バンプ含む吸収体装着を担当しました。
		② 情報が抜けており申し訳ありません。正方形メンブレンの一辺: 1.8 mm、三層メンブレンの厚みは、各々、Si _x N _y : 5.7 um, 下 SiO2: 0.8 um, 上 SiO2: 0.1 um です。従来
	Λ.	の単層 $\operatorname{Si}_{X}\operatorname{N}_{Y}$ メンブレンの極低温での熱コンダクタンス $\operatorname{G1}$ は、超伝導/常伝導二重層(本研究:チタン/金($\operatorname{Ti}/\operatorname{Au}$))で発生した熱的フォノンが距離 $\operatorname{I}\operatorname{M}$ の伝搬途上散乱を
	Α	受けずに熱浴と接触するシリコン基板に伝わる弾道的伝導が支配的な場合の理論値に近いとの報告[1]-[3]があります。この場合、G1 は 1 M に依存せず、チタン/金
		(Ti/Au)の周囲長とメンブレン厚みのみで G1 を決めることとなります。一方、私達の三層メンブレンでは、層境界での界面散乱発生も予想され、その結果、弾道的伝導
		と、その対極を成す拡散伝導の、どちらが支配的(あるいは、それらの重ね合わせ)かは不明です。拡散伝導では、1 M 大となる程 G1 は小となる[1]ため、1 M 長による G1

		調整の余地が加わります。つまり、G1の設計指針を得るための実験に着手したばかりであり、現時点での「設計」は不可能です。今後、G1の1M依存性の実験結果を得
		た段階で初めて、ご質問に回答出来る状況になるとご理解下さい。
		③ 共振周波数 fR 近傍の周波数においてマイクロ波透過率 《 1 (透過率≈1 であるベースラインとの充分なコントラスト)を得るための共振器無負荷 Q 値 QU の条件は、画
		素毎の信号帯域を決める外部 Q 値 QC の約 10 倍です。本研究では、QC≈5×10³ゆえ、QU の目標値は QU≥5×10⁴@-40≤P(dBm)≤-30 です。
		④ 2点の開発課題が考えられます。(1)読出感度は、マイクロ波の反射以外に、fR および SQUID-共振器間の結合強度 g に依存します。各々が異なる fR を持つ 64 画素
		で均一かつ高い読出感度を得るためには、画素毎にgを調整できる回路設計指針の確立と実証が求められます。他機関が採用する SQUID-共振器間磁気結合法に比
		べ、私達の発明による直接結合法は、幸い、幅広い fR の分布に対し g の調整が容易との特長を持ちます[4]。(2) 読出回路内の増幅器や周波数変換器は非線形素子
		であるため、画素数増加に伴う重畳マイクロ波電力増大により、異なる画素読出用の複数周波数のマイクロ波トーン間の和周波・差周波成分が発生し、雑音増大や信号
		利得減少の問題を引き起こします。標記問題抑制の観点から、私達は、極低温から1本の同軸線で室温に取り出した信号を二分し、2系統の室温回路による並列処理法
		を提案し、1系統時に比べ、雑音や画素間クロストークの増加なしの基本動作を実証済み[5]です。(1), (2)に示す独自技術により、来年度以降、64 画素読出実証に取り
		組みたいと考えています。
		参考文献
		[1] H. F. C. Hoevers et al., Appl. Phys. Lett., 86, 251903 (2005).
		[2] W. Holms et al., Appl. Phys. Lett., 72, 2250 (1998).
		[3] C. Pobes et al., J. Low Temp. Phys., 193, 282 (2018).
		[4] Y. Nakashima et al., IEICE Elect. Exp., 14, 20170271 (2017).
		[5] S. Kohjiro, F. Hirayama, Supercond. Sci. Technol., 31, 035005 (2018).
		①1パルスパイルアップ事象への対応について
		α線による極端なパイルアップの波形が示されました。ここまでのパイルアップは論外かもしれませんが、先の JAEA 殿への質問にも記載した様に、現実に定量分析とし
		てシステムを使う場合においては、必ずパイルアップに対する処理を考慮する必要があると思っています。今回のマイクロ波多重読み出しにおいて、偶発的パイルアップ事
	Q	象(2つの信号が時間的にずれて重なりあった場合)において、制約はあるのでしょうか?
		②多重化手法における計数率限界について
		マイクロ波多重化の帯域 4GHz、個別信号帯域20kHz、K=10、多重=2000とありますが、この2000という値は、実質的に計数率2000cpsという、成立限界の指標と考
		えて良いのでしょうか?
		① 本研究で用います多画素 TES+周波数多重読出の特徴は、二信号同時入射が同一画素に対し生じない限り、二信号を異なる周波数の信号として明確に区別できる
2		ことにあります。したがいまして、パイルアップは、以下の場合に限定して発生すると考えられます。(1) ある画素におけるパルス緩和時間よりも短い時間差で同一画素に
		入射する複数光子 (2) 読出回路が追随出来ない位高いスルーレート[A/sec.]のパルス波形を TES に生ぜしめる光子入射。以上のパイルアップ確率は、(1) 画素面積
		縮小 & 画素数増大(2) 磁束変調周波数増大による読出回路の高速化 を将来図ることにより、原理的には低減できます。そして、その実現に要する技術開発には、
	Α	新たな予算、人的資源、開発期間の投入を要しますので、本研究終了後の後継プロジェクトで採り上げることは、大変意義深いこと考えます。
		② いいえ、分光器の最大計数率は、{単画素あたりの TES の最大計数率×分光器を構成する TES の画素数}で表されます。一方、多重化数は、極低温から室温への信
		号読出配線1本あたりに重畳可能な画素数です。したがいまして、想定する分光器システムが、複数の信号読出配線とそれに伴う室温から極低温への流入熱を充分冷
		却可能な極低温冷凍機を備える場合には、{分光器の最大計数率=単画素あたりの TES の最大計数率×多重化数×極低温から室温への信号読出配線数}と表現でき
		ます。例えば、単画素あたりの TES の最大計数率≈100 cps、多重化数≈2,000、配線数≈50 の場合、分光器の最大計数率≈1×107 cps となります。逆に、実験室レベルで
	1	要求される、1 本の読出配線数しか許容しない小型・低消費電力の極低温冷凍機を備えたコンパクトな分光器に対しても、最大計数率≈2×10 ⁵ cps を期待できます。
		【コメント】
3	Q	1. スズ(Sn) バルク吸収体の搭載に耐える自立メンブレンの試作に成功したことは、均一なアレイ検出器の実現に向けた非常に重要なステップと言える。
		2. これを用いた9 画素検出器が試作できたこと、および、コンダクタンスの実測・放射線応答の確認ができたことは、具体的なアレイの実現につながる。
		3. 共振回路において、CMP を用いて残留金属を減らすことによって、マイクロ波ロスを低減するとともに、Q 値の均一性を向上させたことは、非常に大きな

ステップである。また、GND 線の追加により基板内部の不要な共振ピークを減らせたことは、性能向上に役立つと期待される。
【質問】
1. 信号読み出しに周波数コムを使うということに見えるが、その場合は、共振周波数の制御が必要と考えられるが、それはどの程度可能か?(信号読み出し時に問題になることはないか?

 ご存知のように、周波数コムは、複数の正弦波(単一周波数トーン)の足し合わせ波形です。すなわち、周波数コムを構成する複数トーンの個々の周波数は、室温回路内の任意波形発生器により、出力データのテーブル長で決まる周波数分解能の基で、自由に調整できます。したがいまして、①各画素の共振周波数、②SQUIDへの入力磁束の□0/2変化に対する共振周波数変位幅 の2つを予め測定しておけば、各トーンの周波数を、その測定結果に合わせて任意波形発生器で設定することにより、信号読出時に共振周波数の制御が問題になることはありません。なお、私達が開発しました周波数多重読出回路チップにおける、共振周波数の設計値と実測値とのずれは、典型的には約0.2%(共振周波数5 GHz に対し約10 MHz)、入力磁束の□0/2変化に対する共振周波数変位幅は約1 MHz です。

東京大学の担当箇所に対する質問と回答

2	Q	① TES 応答波形に含まれる情報について 応答波形において、構造的な熱接触の問題があると電流経路の切り替えが発生とのこと。波形の揺らぎはないほうがよいのは理解しますが、そもそもの吸収エネルギー (熱)情報は TES の場合、立ち上がりから波形のピーク値までの部分に含まれていると考えても良いでしょうか?ピーク以降の波形は熱の逃がし、超伝導転移端の平衡状態への復帰速度は、エネルギー情報は含まないと考えて良いのでしょうか?この理解は間違っていますでしょうか? (従来型の半導体やシンチレーション素子の場合は、電荷や発光の放出時間依存があるので、素子からの出力全体の積分量を測定すべく、回路や信号処理を行ってきた
		④ 今回の1個の画素あたり4個の金(Au)バンプポスト搭載方式の開発については、金(Au)バンプの再現性について、最大限配慮いたしました。どの程度の再現性があるのか、定量的に示すことまではできませんが、新しい方式においては、金(Au)バンプポスト径は、ほぼワイヤの太さに依存しており、また厚み(高さ)は上からスタンプツールで平らにする工程も取り入れたことから、ほぼ一定となっています。さらに従来の金(Au)バンプポスト先端に残るひげ状の突起については、用いるワイヤ線の種類、材質を最適化することによりその突起の長さがおよそ1/5程度まで短くできたことも、ポストの形状を揃える上で有効だったと考えております。現状、完全に作業者のスキル等によるばらつきが排除できた、とまでは言えませんが、その依存性は従来方式に比べて大きく改善されたと考えられます。
1	А	 まだ、4パターンすべての吸収体について、性能評価をするに至っておらず、現状、単結晶スズ(Sn)についてのみγ線応答信号検出およびエネルギースペクトルの作成に至ったというところです。今後、他のパターンについても暫時、動作試験を行っていければと考えております。 スズ(Sn)吸収体の加工面粗さが熱伝達およびノイズにどの程度影響されるのかについては、興味があるところですが、現状、エネルギー分解能は、それ以外の要因、すなわち無冷媒冷凍機の機械振動、動作温度(転移温度のばらつき)に依存しており、ノイズとして、そこまで議論できるまでには至っておりません。 図中の Kink と表示されているところにおいて、パルス分布の集中している線が1本にならず、2本に分かれている部分です。この素子の場合、その Kink はちょうど70keV~80keV 程度のところで生じており 59.5keV のパルスの測定では大きな影響は出ませんが、本課題で想定する 100keV 程度のγ線計測においては、パルス波形において立ち上がりと立下りで波形のばらつきが生じていることからも応答信号波形生成に大きな影響を及ぼしており、エネルギー分解能劣化の要因にもなっております。
	Q	 ユズ(Sn)吸収体の加工を4パターンされていますが、加工性と性能を鑑みた場合、結果どれがよいでしょうか。 スズ(Sn)吸収体の加工方法により加工面粗さが異なりますが、エネルギー分解能への影響はどうでしょうか。 P4:「2つのモード」がどこを意味しているのかわかりません。(A) (C) で発生した Kink で正しいでしょうか。また使用上問題になるのでしょうか。もしくはその回避案 (Kink を避けて動作点を決定する等)があれば教えてください。 金(Au)バンプの再現性はどうでしょうか。人に依存せず一定の直径・厚みのバンプが得られるのでしょうか(写真ではきれいばバンプが得られていること確認できました)。

しいによって、この知 Ele Nover ppo LOV 士田D い Jl の法のようの法の マンノミレンソエトロン、 ジ氏田 シリーエン・コー
わけですので、この観点において TES と従来型センサの違いを認識しておくことは必要と思い、ご質問 させて頂きました)
② TES スペクトル形状について
この図で示された波高分布が、どの様に信号処理して得られたものかが判りませんが、よく見ると、若干低エネルギー側にテイルをひいている様にも思えます。この真偽
と、もしそうであるならば、用いた信号処理の影響なのか、TESの特性としてあるのか等、知見があればご教示下さい。
① TES の場合においても、原理的には電流パルス変化の積分量が入射エネルギーに相当することになるのですが、実際に TES の信号処理として用いられる最適フィル
タ処理において、より高いエネルギー分解能を得るには、信号の立ち上がりから立下りにいたるより広い周波数領域においてパルスの一様性、ノイズ低減が求められるこ
ととなります。なお、最適フィルタとは、y線入射に対しての典型的な波形をモデルパルスとして定義し、すべての応答信号が、そのモデルパルスの相似形であると仮定
し、各応答信号がモデルパルスに対してどれくらい大きいのか、あるいは小さいのかを、波形の立ち上がりから立下りまでの全領域区間において最小二乗法的に処理し
て、拡大、縮小係数を算出し、それをエネルギーに換算する方式でございます。
② おっしゃるとおり少し低エネルギー側にテイルを引いているようであります。その原因については、現在検討中ですが、1)で申し上げた最適フィルタ処理において、モデ
ルパルスの選定に少し改善の余地があることも考えられます。
【コメント】
1. 金 (Au) バンプ吸収体に代えて、新たに単結晶スズ(Sn) 吸収体を導入し、これまでばらつきがあったγ線信号波形の均一化を達成したことは高く評価でき
る。多素子化に向けて重要なステップを実現したといえる。
2.動作温度 T = 230 mK でエネルギー分解能 ΔE = 150 eV@59.5 keV を達成したことは高く評価できる。
1.H30 年度までの達成分解能について記述してほしい。
2. 昨年度までの成果で波形のばらつきについて記述しているが、改善後の信号波形、および、ばらつきはどうか? (ビフォー、アフターの比較があるとあり
がたい)
1. 平成 30 年度までのこれまでの研究において、Np-287 の 86keV の測定で約 50eV (FWHM) が得られています。冷凍機の振動対策など改善の余地はあります
が、Am-241 の 60 keV のピーク影響が避けられるため、被ばく線量の評価においては、十分な分解能と考えます。
2. 検出素子の改善後において、まだ動作温度(超伝導転移温度)の高いことも起因して、ノイズレベルが十分に低減できておらず、(つまり波形のばらつき
が他のノイズに埋もれている可能性があり、)波形のばらつきが抑制されたか否かを判断できる状況に到達できておりません。

九州大学の担当箇所に対する質問と回答

	Q	こういった応用を想定すると、エネルギー分解能に優れた TES の有用性が理解できます。しかし、少ないチャネル幅にピークが存在する TES の場合のピーク評価、放射能定量方法については、いくつか従来概念とは違って点が出てくるのではないかと思っています。これについて質問させてください。 ① 「ピーク高さ」の記述の意味について
		沈着深さを評価する場合、透過の観点での計数損失、散乱によるエネルギーの拡がり等を考慮すると、「ピーク面積」の評価をなされたものと理解しましたが、あっていますでしょうか?
1		② TES の様な究極的高分解能スペクトルにおけるピーク正味面積評価法の変化について TES とはいえ、ある程度のエネルギー(チャネル)の拡がりが見られると思います。従来素子を用いた測定においてピーク面積を求める場合、ガウス分布を想定し、ピーク
		が存在する部分の散乱線の評価を行った上で、最終的ピーク正味計数を算出するわけですが、TES の場合は、こういった従来のスペクトル解析法の考え方にも影響を与える様に思います。
		究極の分解能を追求するならば、関数についても、ガウス+ローレンツ関数を重ね合わせたフォークト関数等を採用すると、ピーク領域に対する考え方も違ってくると思います。さらに、計数は少ないが分解能がよいという TES の現実的特性上、分布するチャネル幅が極めて少なく、計数も少ないスペクトルに対してピーク正味面積の演算を
		すると、誤差伝搬が大きくなってしまい、核種定性能力は飛躍的に向上するが、定量能力としては、以外に向上しないという様なリスクの可能性も考えられます。 極めて曖

味な質問で誠に申し訳ありませんが、こういった TES による放射能定量、解析に関して、従来法とは異なるアプローチをする必要性、課題などがありましたら、ご教示戴けれ ば幸いです。 ① ご指摘のとおり、ピーク強度は「ピーク高さ」ではなく「ピーク面積」で評価しております。半導体検出器でのスペクトル計測の場合は、エネルギー分解能によるピークの半 値全幅が L X 線の自然幅と比較して十分に広い場合は、ピークをガウス関数でフィッティングして面積を求めております。ピークが孤立しているときはよいのですが、プル トニウムやアメリシウムなどの TRU 線源から放射される L X 線ピークは近接して裾が重なるのでは積分範囲によりピーク強度が変動します。エネルギー分解能に優れる TES スペクトロメータによるスペクトル計測の必要性を改めて確認しました。 │ ② ご指摘のとおり、エネルギー分解能が優れている TES スペクトロメータのスペクトル計測で得られる L X 線ピークの半値全幅は、L X 線の自然幅が無視できません。そこ で我々は、TES スペクトロメータのインパルス応答をガウス型関数、L X 線の自然幅をローレンツ型関数とそれぞれ仮定してフォークト関数でピークフィッティングをしてお ります。ピーク領域の計数が十分に大きいときは通常のスペクトル解析の誤差評価で問題ないと考えます。しかし、ご指摘のように TES スペクトロメータによるスペクトル計 測の利点である少ない計数でも明確なピーク同定が可能な場合の誤差評価については、確立した方法がなく新しい手法を構築する必要があると考えます。そこで、R2 年度以降、誤差評価を重要な開発課題に位置付けます。 ピーク強度を用いて、沈着深さを推定する方法は面白いと印象を受けました。また狙い通りL線で強度変化がアクリル厚みに対して得られていることも確認できました。ま だ先になると思いますが人体へ適応する際に考えるべき追加検討項目は何になるでしょうか。直観的には個人差や水分影響が想像されますが、いかがでしょうか。 R1 年度は、銀盤の上に酸化アメリシウムを 9.6 mm X 9.6 mm の範囲に拡散させた Am-241 面線源と人体等価物質としてアクリル板を用いた最も簡単な体系を組み立て、 シリコン半導体検出器によるスペクトル測定で、主要な L X 線ピーク強度を解析することによる沈着深さ推定の可能性を示し、高い信頼性で沈着深さを推定するには TES スペクトロメータの優れたエネルギー分解能によるLX線ピーク同定の必要性を確認しました。 実際はプルトニウムを含む微粒子が吸入摂取されます。R2 年度以降は、粒径が 1 μm から 20 μm の微粒子が気管支領域、細気管支領域、肺胞-間質領域などに沈着 した場合についてシミュレーションするモデルを構築し、TES スペクトロメータによる L X 線スペクトル計測から内部被ばく線量を算出する手法の構築を進めていきたいと考 えております。 【コメント】 1.実際の人体の測定を想定して、シミュレーションを行うことは非常に重要である。まだ実験とシミュレーションの間に乖離はあるが、着実に進めていくことが重要である。 【質問】 1.Si の空乏層や Be の厚みに不定性があるとした場合、それらの厚みの変化で実験とシミュレーションのずれを説明できないか?(逆に、無理やり合わせようとすると、厚み 3 をどれくらい変える必要があるのか?) 1. Si 半導体検出器でのスペクトル計測でのアクリル板の厚さは数 mm 程度ですので、現在のシミュレーション計算では、Si の空乏層や Be 窓の厚みの不定性の影響は小 さいと考えております。ただし、TES アレイスペクトロメータでのスペクトル計測に関するシミュレーション計算では、冷凍機の断熱真空チェンバーの入射窓や熱シールドに よる減弱の効果を検討する必要があります。

令和2年度第3回研究推進委員会での質疑【R2】

	Q	L X 線のエネルギー分解能について 100eV@20keV が望ましいとのことであるが、その理由は何か。100eV は絶対に達成が必要な目標なのか。 γ 線用 TES は吸収体があるため、100eV は厳しいかもしれない。 一方、吸収体は、L X 線の検出効率の向上にも有利なので、エネルギー分解能はともかく、あったほうがよい。
1	А	50eV@100keV、100eV@20keV は性能の目安としている。絶対に達成が必要な目標ではない。50eV@100keV はこれまでの実績から考えて揚げた現実的な値として挙げた。L X 線については L X 線用 TES とは違い、吸収体があった場合の実績の情報はまだないが、100eV@20keV は期待値として望ましいとしている。L X 線の測定は肺モニタに必要なので、100 eV を超えても問題はないが、Pu と Am の L X 線の弁別ができる分解能は期待したい。
2	Q	TES のデータ処理について最適フィルタ法と PCA 法のどちらが優れているのか。

	А	同じ測定結果に対しての比較まではやっていないが、使った感覚では PCA 法のほうが優れていると考える。
0	Q	TES 素子の制作で三層 Membrane を使っているが、作り方や SiO2の結晶性はどのようになっているのか。
3	А	結晶性については評価していない。CVD を使っているが、基板温度は上げていないので、結晶化はしていないと考えている。
4	Q	多結晶なのかなと思うが。その部分はフォノンの伝搬に係わってくると思われる。メンブレンの熱の伝搬で弾道的(Ballstic)と拡散的(Diffusive)が入り混じっているとのこと であるが。SiNとSiO₂の両方で違う伝搬をしているとの理解で良いか。それぞれの熱伝導係数はどれぐらい違うのか。
	Α	SiN と SiO2 の熱伝導係数はすぐには回答できない。成膜条件で変わってくると思われる。
5	Q	昔、ジョフェフィソン・ジャンクションをやっていたときに、X線吸収イベントが電極に伝搬する解析を行った。サファイア基盤の上に Al2O3 の薄膜を塗ってその上に電極 を置くと多くのフォノンが減る。それは、基盤は結晶だけれども膜は多結晶またはアモルファスでその部分の伝搬は 100 倍から 1000 倍違う可能性がある。この部分が効 いているか、もしくは Ballstic の効果が見えているのであれば、SiO2 は熱伝搬に関係しておらず、SiN が効いているのかもしれないが、どのようにイメージしているのか。
	Α	トータルで $7\mu\mathrm{m}$ の厚みがあるが、そううち SiN が $5\mu\mathrm{m}$ なので熱伝導度はその厚みがメインで決まっているのではないかと思う。
6	Q	厚みかどうかは何とも言えないかもしれない。
O	Α	フォノンは平行に走っているわけではなく、ジグザグに伝搬していると思われる。 SiN と SiO2 間での反射と透過がどの程度になるかによると思われる。
	Q	SiN と SiO2 間での反射と透過は計算できると思う。コイントインピーダンスを考えると界面でのインピーダンスマッチングを計算することができる。結構浅い角なので、全 反射して横に流れていて、面同士の熱のやり取りはないかもしれない。 SiN と SiO2 のインピーダンスがマッチングしていれば、熱がすぐに通るかもしれないが、ミスマッ チがあると割と簡単に反射されると思われる。熱の伝搬は検出器の性能にどの程度影響するものなのか。
7	A	我々が見ているのは、熱コンダクタンスとエネルギー分解能しか見ていない。エネルギー分解能に関しては NIST に比べて劣っているわけではないので、3 層膜は SiN 単層と同じように使えるのではないかと思う。熱コンダクタンスについても厚みは厚くしている状態で同じような値を得ているので同じように使えると思う。単層膜の場合、完全な Bllstic であれば不純物濃度に依存しないので再現性は良いが、 Diffusive の領域に入り込んでいるので、不純物の濃度がばらつけば、特性のばらつきに出てくる懸念がある。
8	Q	特性の値そのものよりもばらつきのほうを重視するということか。
8	Α	将来的に多画素を増やすとなると、多画素で作ったときに画素間の均一性が要求された場合は、ばらつきを抑えることが必要となる。
9	С	私見であるが、TES の分解能のファクターとして、ジョンソンノイズとフォノンノイズのほかに、サーマルフラクチュエーションノイズがあり、まず吸収体は抜きにして、超伝導薄膜の TES の場合、その要因は、超伝導薄膜の中の熱伝導率と外のメンブレンになるが、その比率で効く項があり、シビアであったと思う。メンブレンの G が超伝導薄膜の金属の中の熱伝導率より相当落ちている。 すなわち熱が通りにくいことのほうが、サーマルフラクチュエーションノイズも相対的に小さくなる方向に働くことだったと記憶している。 要するに熱的ノイズが低減されていく方向にいくはずなので、エネルギー分解能の観点だけで言うとメンブレンは G が小さいことに越したことはない。 NIST との波形の比較であるが、 y 線の場合は吸収体がついているので、超伝導薄膜の中、今回の場合はチタン/金ですが、このチタン/金の熱伝導率は金がたくさんついているのでそれほど心配することはないが、それは効いてなくて上に載っている吸収体のスズ(Sn)の中の熱伝導と外部の G が無視できない。 現状ではサーマルフラクチュエーションノイズもの塊みたいなものと推測している。 そうなので波形の比較として出されていた波形の立下りのところや分解能にも効いていると思う。
10	Q	2mSec、3mSec の波形の立下りについて、これは吸収体のついている場合と思うが、吸収体のついていない TES についての立下りはどうなっているのか。それがどうなっているかでメンブレンの G の算定に有効な情報をもたらすと考えられる。大きな吸収体がついている TES はメンブレンの G のバラつきによる波形の立下りの違いはあまり出てこずに、ほかのファクターが効いていると思う。それが NIST よりも遅いことが気になる。今後検討が必要となる。
	А	吸収体のついていない TES とは、吸収体を載せる前の TES の特性のことと思うが、その特性は図っていない。その比較はこれからである。
11	Q	パルスの時定数は10mSec ぐらいで下がるように見えるが、分解能を維持しようとすれば 100cpsは計数できるとの理解で良いか。

	A	100cpsは厳しい。10mSec の逆数が100cps であるが、立下りきらないうちに次のパルスが来るということになるので TES の分解能が取れない。そのため20倍以上空ける必要があると言われている。したがって、この TES では5cps程度しかいかないと思われる。エネルギーの低い6KeV 程度の y 線用の TES(外国のものであるが)についてはマルチプレクサで読めており、それならば、100cpsまではいくと期待している。
12	Q	計数率のアレイ全体で見たらどうかということではないか。1素子×アレイでどのくらいになるかということでもある。
12	А	1素子については、X 線領域であれば、100cpsはいくであろうと思われる。
	Q	パルス波形のテイルが重なると、エネルギー分解能が分析できないとの話であるが、Ge 半導体検出器ではパルス波形の立ち上がりの微分で計測している。TES も同様にデータ処理すればできるのではないのか。
13	A	今のご質問は、通常使われているチャージアンプの話と思うが、チャージアンプの場合は波形の立ち上がりのところに情報がすべて入っている。テイルの部分は貯めた電荷を放電している時間なので、立ち上がりの所だけ取ればよいというのが、 Ge 半導体検出器等で使われている微分考え方である。TES の場合は減衰しきるまでが Ge 半導体検出器でのパルス波形の立ち上がりの部分に相当する。また、波形の形状解析を行っているので、すべての情報を取り出さないとならない。波形が相似であることと、波形の長さに対して何倍かの時間をとってフーリエ解析をしないと分解能の精度が出ない。 TES の場合は、パルス波形の面積にエネルギー情報があり、それで 103の精度を出さなければならないと思っており、微分の技術が使えるかはわからない。
14	С	1 画素では計数率は稼げないので多画素化して全体としてのネットの計数率を上げる考え方である。
1.5	Q	現在はスタイキャストを使用している。スタイキャストは熱収縮で接着剤の選択は難しいと思うが、スタイキャスト以外の候補はあるのか。
15	Α	接着剤の候補は考えつかない。NIST が使っていることもあるが、進歩していないところがある。
	Q	エネルギー分解能を上げるためにバルク吸収体の表面処理の方法が効く聞いた覚えがあるが、処理方法は一義的に決まったのか。
16	А	吸収体の表面処理については、分解能の向上に効くと思うが、統計的なばらつきがあるはずなので、一概には言えない。はさみで切ったものに比べて現在の処理のほう が分解能がよいが、さまざまな改良を行っているので、定量的に表面処理の効果がどの程度あったかは言い難い。表面処理については小さいため研磨などはやめた。 また、大規模アレイになってくるので研磨で大きさが違ってくると、不揃いとなり熱容量も変わってしまうので、画一的に量産してアレイの個数を稼ぎたいため、ダイシング のところで工夫をしているところである。
	Q	簡略化した人体モデルでの結果ではあるが、肺の中の空気層は減衰比に係わらないとの理解で良いか。空気層の減衰は大きくないということか。
17	А	モンテカルロシミュレーションなので、等方に飛ばせば距離でカウント数が下がるが、計算時間を短くするために線源から出る放射線はすべて TES に向かうとしているため距離には依存しない。10 cmぐらいでは減衰はあまりない。
18	Q	フォトンが通過する物質厚さで決まるので肺胞などに比べて、胸膜のほうが圧倒的に厚いのでほとんどそこで決まるということになりそうである。これまでのアクリル板の厚さで変わっていたが、肺の空気層ではあまり効かないことと理解できた。
	Α	4 回方向に放射線を飛ばせば見え方が変わると思うし、肺の中のいろいろなものを計算に入れると良いかとは思う。
19	Q	あまりきわどいところまで行うかどうかはある。そもそもの体の表面についていたものを間違ったものと肺の中に入っているものの区別ができることまでしか言えないのかも しれない。
19	А	そこは検討してみたいと思う。将来的には詳細なモデルを考えたいが、ICRPの最新人体モデルでは肺の中は空気よりは重く、0.5g/cm3ぐらいはあったのでそれを入れると少しは変わるかもしれない。
20	С	そこのきわどいところも TES の分解能でピーク同定ができてピーク面積に対する精度が上がることが言えればよいと思う。また、創傷の深さのほうが、適用性がよいのかも しれない。今後の発展性の話である。
9.1	Q	多画素なので等方的に出た放射線から位置情報が得られると良いのかもしれないと思う。
21	А	多画素による高いエネルギー分解能で散乱線の情報が入ると深さ情報が得られることが可能となるのは良いかもしれない。

令和3年度第4回研究推進委員会での質疑【R3】

	Q	検出限界について、ISO はキューリーの式になっていなかったか。国内では Cooper の式が使われていたが、世界的な議論でα確率、β確率(あるのにない、 ないのにある)の間違い確率を含めて、キューリーの方式になっているのではないか。
	А	方法としては、規制庁が発行している「ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリー」にしたがって行ってみた。Cooper の式と同程度であった。キューリーの式が使われているかどうか、そこまで理解していなかったので確認する。(ISO11929 は Currie 法と同じであることを確認した。)
	Q	画素の検出効率が数に比例して増えるのは同意するが、バックグラウンドも増えるのではないか。
2	Α	仰るとおりである。説明が悪く、抜けていた。画素数に比例してバックグラウンドも増えており、今回の計算でもバックグラウンドの増加を考慮している。
	Q	2σ で計算しているが、 3σ と 2σ の使い分けはあるか。 3σ でなくて良いか。ガイドラインなどはないのか。
3	А	放管的な使い方では、スクリーニングなどの粗い測定は 2σ 、精密な測定は 3σ の用か使い方をしている。使い方によると思うが、 3σ を適用して検出下限を下げるには、画素数を増やすことでの対応となる。ガイドラインははっきりしていないと思う。
4	Q	高分解能安定測定に興味があるが、断熱消磁冷凍機は長期的な測定で希釈冷凍機に劣るということであるが、断熱消磁冷凍機で連続運転するためにはどのような改善が必要か。
4	А	60 時間測定できるのでほとんどの測定には十分ではないかと思うが、アイデアとして 2 つの断熱消磁冷凍機を交互に運転して連続に運転することを聞いたことがある。
	Q	今後の展開において、不確定要素が強いと思うが、メーカを開拓して育成するということであるが、多画素化、マルチプレクサなどの読出回路など開発要素 があると思う。どの部分のメーカを目指すのか。
5	А	まず、1千や1万の吸収体を載せる多画素化の大量生産はメーカでないと大学では困難と思う。半導体や微細加工を行っているメーカを探す必要があると思う。廃炉関係では福島のメーカを使う条件がある。また、読出回路についても 16 の読出しなので、1千の多画素に対応するためにはメーカの大量生産が必要
		と思われる。それぞれのメーカが必要になってくると思う。
6	Q	どこまでいけばミッション完了となるのか。実用的なプロトタイプができればよいのか、それとももっと進んだレベルまでいくのか。また、メーカが製品として売るためにはニーズが必要となると思うが、ビジネスにするため係る話でマーケットも開拓も必要と思うが、こちら側でできることはどのように考えているのか。
	Α	まずは、東京電力のバイオアッセイ分析や核種分析などの適用で電力やメーカに声をかけていくことを考えている。
7	Q	米国 NIST のデータと比較して世界トップレベルのデータが取れているとの認識で良いか。
1	Α	画素数の違いに目をつぶれば、その通りである。
8	Q	画素数の違いはカウントの違いだけで出来たもののクオリティはトップレベルであると思う。原子力の世界は分からないが、普通に考えれば、これは戦略技術で、ほかの国に簡単に出せない技術と感じるが、この辺はどうなのか。
	Α	簡易な核種分析や様々な応用、核燃料物質測定に利用できると思う。
9	С	一部先進国が有するのはある程度良いが、日本が持っていることにアドバンテージがあると思う。実用化について福島の廃炉だけでなく、原子炉施設、原子 核実験を行っている施設など、様々な施設で使える装置にすることが必要と考える。そのような意味で素晴らしい成果と考える。
	Q	エネルギー分解能の分布は主に何から来るのか。回路などの接合界面の制御になるのか。
10		TES の特性のバラつき、熱の流れ、電気的な抵抗値から来ると考えられる。接合界面の制御として、TES の転移点の温度制御、チタンと金の接触面と両者の厚
10	А	みによって転移点の温度がコントロールできる。逆に言えば、そこを制御しないとA画素とB画素の転移点がズレてしまうことになるので、きちっと制御してTESを作る必要がある。また、吸収体と TES の熱伝導率が均一になるように作る必要がある。さらに三層メンブレンの熱のコンダクタンスが均一になるよ
		て IDU EIFで近天が10分。また、次久性に IDU Y然内寺中が初 下はなまりに肝や近天が5分。こりに二個/マファマリが5/14マケノアマハが初 にはなま

		うに制御して作ることが必要となる。
		吸収体のない TES、X 線観測衛星で利用されている $6\sim 2$ 0 keV を対象とされている TES と、神代先生の作製した TES は同等の性能と思われる。分解能のバ
		ラつきの大部分は吸収体によるものと思われる。
11	Q	多画素化について、直列バイアスで多画素化を行うと1つだけ分解能が悪いが、我々も悪くなった経験がある。この点ついてコメントを頂きたい。また、APL 論文に出された別のデータでは分解能が異なっているが、別の A1 なのかどうか教えて頂きたい。
	Α	同じ TES を使っているが、バイアスのかけ方が APL に出した時と違っている。A1 の分解能が悪い原因は現在追及しているところで、明確な答えがまだない。
1.0	Q	時間的なファクターがあるとの理解で良いか。
12	Α	時間とバイアスのかけ方のいくつかのファクターがあると思われる。どのファクターが効くのか調査中である。
10	Q	ADR の継続時間について、再生するのには何時間かかるのか。
13	А	ADRで1回60時間ほど測定して、リチャージするのに3時間かかる。実際の運転では、昼間に測定して、夜にリチャージするやり方である。
14	Q	ADR を使う場合と希釈冷凍機を使う場合のメリット、デメリットは何か。
14	Α	希釈冷凍機の場合は長時間放置しておける。ADR の場合は60時間ごとにバイアスをかけなおすとか、SQUID を調整する必要がある。
15	Q	画素毎に TES の超伝導転移点のバラつきがあると聞いているが、実際にはどの程度ばらつくのか。
15	А	およそ超伝導転移温度が 130mK ぐらいであるが、125~132 mK ぐらいである。
16	Q	デバイスを作られたのは大野先生なので、世界レベルのデバイスが実現したことをお祝い申し上げる。スズ(Sn)の吸収体の作り方について、発注ベースでやっていてもこれぐらいばらつくのか。
	Α	業者さんと相談して試行錯誤をして、最終形が見えないが、何回目に発注するとこんな風にばらつく。
	Q	民生で作ってもらってもこのくらい大きさがばらつくことは理解した。スズ(Sn)吸収体の形もさることながら、金(Au)バンプの位置や吸収体を置く位置もあるのではないかと思うが、どのような要素が性能的に切り分けられるかは分かるか。
17		パターンはこれしかないので比較はできないが、金(Au)バンプを中央の一ヶ所に極小エリアを集中しておく方が不均一性を排除する点では良いのではないかと思う。NIST は SU8 のバンプを使っているが、中央の TES に対して金のレールを張り付けて広げて取り付けている。この方法は良くないと思ったが、40eV の性
	А	能が出ているので、それほど悪い訳でもないのかもしれない。
		NIST の吸収体は 1.25mm であるが、こちらはまだ 0.5mmである。ようやく 1mm を作り始めたが、載せやすいように広げておくのは、作る方からすれば載せや
		すい。
18	Q	吸収体の大きさとバンプのレシオで決まるのであればそれも良いかもしれない。
	А	NIST も苦労しているみたいで、金の道路のようなものを延ばしているが、長さが等しくなるようにしており、いろいろ試行錯誤をしているようである。
19	Q	世界のトップデータを狙うのであれば、多結晶、単結晶の違い重要になるが、実用化を考えた場合はバラツキのほうが効くように思われるが、どうなのか。トップデータを狙うのか、実用化を狙うのかを明確にした上で、多画素は実用化でバラツキを抑えることで割り切るのもありかもしれないと思われる。
	Α	その通りである。
	Q	実用化に入っていく希望が見えて楽しみにしている。アセンブリするときに精神力を使うように聞いたのであるが、そこは職人仕事のようなことで残ってしまうのか。例えば 0.5mm角の物を並べる時に高精度制御の治具を導入することなどでバラツキをなくす可能性はないのでしょうか。
20		端的に申しまして可能と考える。ウエストボンド社のボンディングマシーンを2機種そろえてやっているが、これらはマニュアルタイプでマニュプレータを動
	А	かして載せている。この作業の均一性を高めるためにどうするか、輸入代理店の業者さんとも相談したところセミオートのタイプがある。この方法が確立され
		たのであれば、セミオートも考えられる。ただし、我々の求める精度を達成するには難しいとは言っていた。カメラを導入して位置合わせも自動でやるらしい

		が、TESに比べ吸収体が大きいので、真ん中に載ったのかが分からない。最近は画像合成して下からも見るようなことができるようなので、フルに今の技術 を導入すれば可能と思われる。ただ、業者さんがこのような製品にそのような技術をつぎ込まれるかは別問題である。今後セミオートの導入はあり得る話であ る。
21	Q	TESに比べ吸収体が大きいとのことであるが、吸収体が TES 接地したことはどのようにして判断しているのか、接着剤がなければ導通で確認できるかもしれないが、今はどの様にしているのか。
	А	吸収体を載せた後に傾けたりして落ちないかどうか確認して、金(Au)バンプに載っていると判断している。半分は自由落下である。吸収体はバキュームで吸って、TESの上に来たらバキュームを切って自由落下で金(Au)バンプの上に落としている。
	Q	落下させたときメンブレンの強度が効いていることが活きている訳ですね。
22	А	メンブレンが厚いので、今は実装中にメンブレンが破れることは1回もなかった。以前は接地した時にメンブレンが揺れるので設置したことが分かっていた。 今は傾けるなどで確認して、破れてないからセーフとかになっている。
	Q	金(Au)バンプへの接地について、スズ(Sn)に金(Au)バンプを先につけて、後からメンブレンに載せる方法はできないのか。
23	А	その金(Au)バンプをチタン金の TES に載せるためには超音波で金(Au)バンプを一部溶かさなければならない。接着剤で吸収体を着けずに金(Au)バンプに直接金属接合したいが、難しい。
	Q	スズ(Sn)を金メッキしてはどうか。
24	А	メーカにお願いして、やったことがあるが、金の厚さを 10 nm の厚さでお願いしたが、ぶ厚かった。実際にやってみたら熱容量が違っており、パルスが小さくて分解能を議論するほどにはいかなかったため、いったん中断している。金を塗布することは熱伝導率が上がるので、良いかと思うが、金メッキの技術が分かっていなかったので、現状では実現できていない。 一方、接合では金スズ(Sn)ペーストがあり、これを使えばエポキシが要らないらしいが、金スズ(Sn)の融点はスズ(Sn)より高く、ホットプレートで一度やってみたが、スズ(Sn)の吸収体が丸くなった。これでは無づかしいが、似たようなものがあれば、金属接合で作れると思う。
or.	Q	面積を増やすことについて、画素の数は多いが、0.2mm なので大野先生の 1mm 吸収体が使えれば画素数は少なくなるのか。
25	Α	大きなものが使えれば、少なくできる。
26	Q	LX線の放出率は化学形に依存の意味が分からなかったので説明して欲しい。
20	Α	良く分からないところがあるが、化合物で変わるようである。
27	Q	LX線の放出率は化学形で変わるとγ線との割合も変わって推定の精度とかには問題ないのか。
21	Α	γ 線のエネルギーが高いので、精度としては上がると思われる。
28	Q	沈着深さの精度はどの程度必要か、気道や肺胞などに沈着し、バイオアッセイにいくなどが被ばくに効くと思うとあるが、どこまで深さの精度が要求されるのか。
28	А	深さの精度は被ばくに影響すると考えられるが、このようなものは個人差もあり、線量評価では標準的な人の仮定し、肺モニタでは均一に分布したファントム 線源で校正されている。安全側のレベルで線量評価をすることになると思われる。
29	Q	計算では吸収体を載せていない TES を仮定して計算したとの理解で良いか。
	Α	その通りである。

4. 結言

4.1 本研究の成果

本研究では、肺モニタおよびバイオアッセイ試料分析に適用して人体内の Pu 等の TRU 核種の 摂取量評価が可能な TRU 核種迅速線量評価システムの基盤技術の開発を図るために、基本ユニットとして 64 画素 TES アレイスペクトロメータに係る製作技術、ソフトウェア技術および TRU 核種の体内摂取量の評価に関連して TRU の体内の沈着深さを推定する手法を開発した。また、放射性物質を用いた測定実験の結果を基に、TRU 迅速線量評価システムのための放射線測定器としての基本的な性能を評価した。本研究の実施により、L X 線用・ γ 線用の多画素 TES アレイスペクトロメータ製作の基盤技術を開発し、64 画素 TES アレイスペクトロメータの放射線測定器 器としての基本的なシステム実現の見通しが得られた。

本研究の実施により、世界に先駆けて 4 個の金 (Au) バンプポストで吸収体を安定的に搭載するデバイス作製手法および L X 線・ γ 線吸収体の搭載に耐え得る低応力三層メンブレンの製作技術を確立した。また、均一な性能を有する温度制御可能な転移温度を持つ超伝導薄膜の製作技術を確立し、今後の大規模 TES アレイスペクトロメータで必要となるマイクロ波多重読出回路 (MW-Mux) を国内ではじめて開発した。L X 線・ γ 線吸収体については、単結晶スズ(Sn) および単結晶タンタル (Ta) の検討の結果、単結晶を適用することによる特段の熱特性の改善、およびエネルギー分解能の向上を確認するには至らなかった。また、タンタル (Ta) については、水分の吸着による熱容量の増大を原因とする性能の著しい劣化も確認され、現段階では安価に調達可能な非単結晶のスズ(Sn) バルクを適用することとした。

開発した技術を基に、 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ のチップに $9 \text{ 画素} (3 \times 3)$ のスズ (Sn) 吸収体を搭載した TES 素子および MW-Mux を組み込んだプロトタイプ分光計を試作し、 237 Np 線源を用いた測定を実施した。吸収体の脱落のため 5 素子での測定となったが、9 画素 TES アレイガンマ線スペクトロメータでのガンマ線・硬 X 線計測および計測信号の同時読み出しに国内ではじめて成功し、エネルギー分解能も 86.5 keV において約 50 eV を確認するなどの十分な成果が得られた。

測定実験の成果を基に、64 画素 TES アレイスペクトロメータの検出限界の性能を評価し、実用化に向けての必要な画素数を推定することができた。従来のバイオアッセイの化学分析では5日間が必要であるが、2000 画素レベルの TES アレイスペクトロメータでは、タイプ S の分析であれば、3日間の測定で判定できる可能性が示された。しかしながら、タイプMについでは、画素数の増加による大面積化のみでは検出下限を下げることは困難であり、TES 素子の集積化や多層化を検討する必要がある。その他、大規模 TES アレイスペクトロメータに適用する解析ソフトの開発や TRU 核種の体内摂取量の評価に関連して TRU の体内の沈着深さを推定する手法を開発し、大規模 TES アレイスペクトロメータ使用の環境整備を進めることができた。一方、令和4年2月に肺ファントムの測定および3月に燃料研究棟の管理区域内での測定を計画していたが、2月初めに希釈冷凍機のインサート部の閉塞による故障の発生および新型コロナウイルスの影響での物流の混乱に伴う部品の入手困難による施設側の工事の3月末までの延期により施設での実験は令和4年8月末まで期間延長した。令和4年7月から測定を再開したが、TES検出器の不調及び管理区域内の測定試験の中止により測定効率に係る測定データが得られなかったため、測定効率は計算で評価して64画素 TES アレイスペクトロメータの性能推定を行った。

管理区域での測定試験を通じて、実用化に向けての課題などの知見が得られた。

4.2 今後の展開

本研究において、64 画素 TES アレイスペクトロメータの検出下限を評価し、バイオアッセイ試料測定においては 239 Pu の L X 線測定で 120 Bq が検出限界と試算された。また、 γ 線核種分析では、 239 Pu で約 200 kBq が検出限界と試算された。これら試算結果からバイオアッセイ試料の 239 Pu の約 20 Bq レベルの測定には 2000 画素 TES レベル以上が必要となるが、本研究で開発した TES アレイ化の基盤技術によってスケールアップ及び集積化での対応が可能と考える。なお、核物質管理の簡易 γ 線核種測定では 64 画素 TES で適用可能と考えられ、遠隔非破壊での測定の実用化に向けての展開が期待できる。

今後の展開として、2048 画素 TES アレイスペクトロメータの実現に向けて、今回開発した基盤技術を基に、64 画素 TES アレイスペクトロメータを基本ユニットとし、素子実装や安定動作を確認して、それを4個組み合わせて基本モジュールとして256 画素 TES を開発する、さらに、素子の集約化等の開発を進めるとともに、それを8個実装して、2048 画素 TES アレイスペクトロメータとする段階的アプローチにより開発を進めていく必要がある。

これまでは、基盤研究として大学等の各組織が所有する冷凍機を利用し、それぞれの冷凍機に合わせて TES 回路等を組み込んで開発及び測定試験等を行ってきたが、これまでの成果を基に実用機に向けて冷凍機システムから抜本的に見直し、64 画素以上の大規模 TES アレイスペクトロメータに最適化した標準的な基本システムを構築、試作し、核物質管理測定や線量評価適用などの実用化に向けた開発を進めることが考えられる。一方、原子力産業への適用において、γ線測定の吸収体の搭載は不可欠であるが、吸収体の脱落等の歩留まりの改善が課題として残っており、量産化技術の開発を継続する必要がある。

国内外において TES 検出器技術の開発は着実に進展しており、TES はいずれ実用化されることは確実である。これからの開発及び利用のためにも幅広い研究者の育成を図っていく必要がある。また、産総研で開発された三層メンブレン、均一な超伝導薄膜の製作技術および MW-Mux は最先端の製造技術であり、将来の実用機の量産化に向けた製造メーカの育成も今後必要になると思われる。