

# 超伝導転移端センサが切り拓く革新的原子力基盤計測技術

(受託者) 国立大学法人 東京大学

(研究代表者) 大野 雅史 大学院工学研究科

(再委託先) 国立研究開発法人 産業技術総合研究所、国立研究開発法人 原子力研究開発機構

(研究期間) 平成 26 年度～28 年度

## 1. 研究の背景とねらい

核物質の核種分析・同定において、核物質から発生する硬 X 線、 $\gamma$  線検出を主な手法とする非破壊測定は、溶媒抽出、沈殿回収等の化学的手法を適用したアクチニド分析に比べ、測定効率、作業の安全性に優れている。ただし  $\gamma$  線検出に用いる NaI シンチレーション検出器や Ge 半導体検出器の分光精度の限界から Pu や Am 等の核種に起因した  $\gamma$  線エネルギーピークの分離が不完全であり、現状の非破壊測定法では正確な核種同定、定量は期待できない。一方、有効かつ健全な核物質保証措置を堅持するためには、高効率、高精度、高信頼性、リモートモニタリング可能といった、高度な非破壊分析技術の確立が急務である。したがって、精度の高い核種分析・同定を確実に成し遂げる計測基盤技術として、Ge 半導体検出器の性能を大きく超える超高エネルギー分解能硬 X 線  $\gamma$  線スペクトロメータの実現が強く望まれている。

本研究では、核物質から発生する硬 X 線や  $\gamma$  線を極めて高いエネルギー分解能を有する超伝導転移端センサ (TES : Transition Edge Sensor) により分析し、プルトニウム (Pu) やマイナーアクチニド全元素を精密に弁別、分析しうる革新的な核種同定分析技術を確立する。TES は放射線入射による温度上昇を超伝導転移領域における急峻な温度抵抗変化を用いた高感度な温度計により検出する革新的なスペクトロメータであり、原理的には高純度ゲルマニウム半導体検出器に比べて 2 桁以上優れたエネルギー分解能を実現しうる可能性を秘めている。本研究の実施者は、これまでにスズや鉛等の重金属バルク放射線吸収体を超伝導薄膜温度センサ上に搭載した TES の研究を行い、およそ 100mK の極低温にて安定に動作させ、半導体検出器の分光性能を大きく超える優れたエネルギー分解能を達成し、Pu 試料の分析や世界で初めてとなる TES を用いた核分裂生成物 (FP) の元素、核種同定に成功している。本研究ではこれら  $\gamma$  線硬 X 線 TES 検出技術をベースとして、Pu のピーク弁別性能のさらなる向上を図るべくより一層の分光特性の向上を目指すと共に、この TES ピクセルをアレイ状に配置した検出器を開発し、超伝導エレクトロニクスを用いた多重信号読出しを行うことにより数 mm 角程度の広い有感面積を達成し、Pu 保障措置や核燃料、廃棄物検査等の核物質測定ニーズに対して実用可能となる高性能検出システムの構築を進める。

## 2. これまでの研究成果

硬 X 線、 $\gamma$  線検出用 TES アレイ素子の開発は東京大学が行い、アレイ信号読出し用回路チップの開発は産業技術総合研究所が担当する。そしてこれらの成果を統合して構築した TES 検出システムを日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター内に持ち込み、放射線源および核燃料物質等を用いた測定試験を試み、検出システムの動作実証を進めている。

### ① TES 検出素子の開発

まず、東京大学では Ir/Au TES に高い  $\gamma$  線吸収効率を有する錫やタンタルの重金属バルクの放射線吸収体をエポキシポストあるいは金バンプポストで結合させた素子作成プロセスを確立した。特に金バンプポストを用いる手法は、金バンプの高い熱伝導特性を生かして、超伝導 Ir/Au

薄膜温度センサと重金属バルク放射線吸収体の間の熱コンダクタンスを高め、放射線吸収体で生じた温度上昇を速やかにロス無く温度センサに伝達することを可能にするものであり、熱伝導度に起因した熱揺らぎノイズの低減と、入射応答信号の立下り時間短縮を達成する独創的なアイデアに基づくものである<sup>(1)</sup>。本研究で開発した $\gamma$ 線検出用TESマイクロカロリメータの構造及び顕微鏡写真を図1に示す。TES部は250  $\mu\text{m}$ 角、約100 nm厚の超伝導Ir/Au薄膜で、外部の系とTESを弱い熱コンダクタンスで結合する役割を担う極薄いSiNメンブレン(500nm厚)上に製膜されている。さらに、Ir/Au薄膜上には直径約60  $\mu\text{m}$ のAuバンプ製ポ

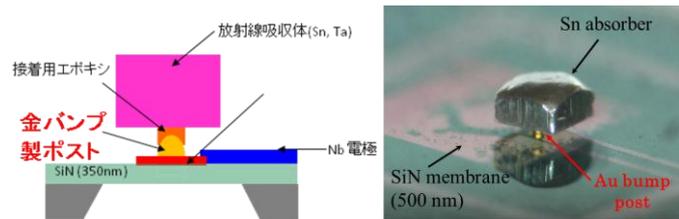


図1：錫バルク吸収体搭載TES検出素子の構造（左）と作製したTES検出素子の顕微鏡写真（右）

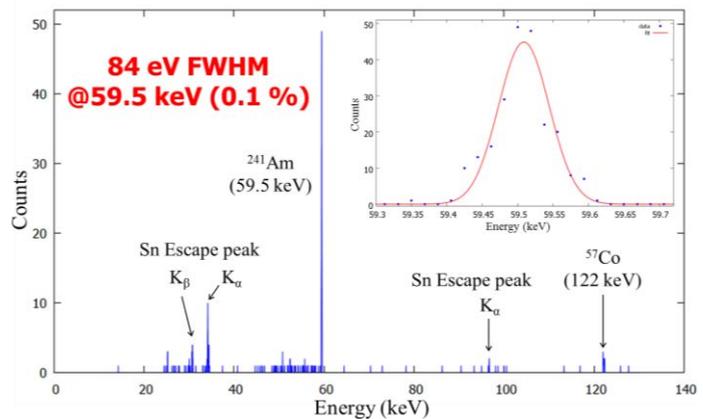


図2： $^{241}\text{Am}$ と $^{57}\text{Co}$ 線源から得たエネルギースペクトル

ストが設置され、この極薄のSiNメンブレンを壊す事無く約0.5 mm角、約0.3 mm厚の重金属製Sn放射線吸収体が搭載されている。この構造により、吸収体及びTESは周囲からほぼ熱的に絶縁され、放射線入射により吸収体内で生じた熱を高効率に超伝導センサに伝達し、超伝導薄膜の温度を十分に上昇させて抵抗変化に変換する事が可能となる。

従来、TES動作に必要な極低温環境を得るには、大量の液体ヘリウムや液体窒素を必要とする極低温冷凍機が用いられてきたが、寒剤取り扱いには特殊な技術や経験を必要とし、また寒剤から発生する膨大な蒸発ガスは、外気から隔離されている放射性物質取り扱い区域内での使用を困難にするなど、大きな制約を抱えている。しかしながら近年、1W@4K以上の大きな冷却能力を有するGM冷凍機やパルス管のプレクーリング冷却ヘッドの登場により、寒剤フリー極低温冷却技術は目覚ましい進歩を遂げており、簡便かつ安全に、しかも全自動運転にて100mK以下の極低温を得られるようになってきた。本研究においても、核物質取扱施設でのTES検出技術の適用を想定しつつ、これらプレクーリング冷却ヘッドを用いた全自動の寒剤フリー希釈冷凍機を活用したTES検出システムを構築している。ただし、この寒剤フリー希釈冷凍機を導入当初は、プレクーリング冷却ヘッド駆動時に発生する機械的振動が大きなノイズ源となり、とりわけ重金属放射線吸収体を搭載したTESにおいて、読出し電流値のベースラインが大きく揺らぎ安定して動作しない困難に直面した。そこで、希釈冷凍機冷却機構部からプレクーリング冷却ヘッドを分離して溶接ペローで接続し、素子取付コールドステージを振動源であるプレクーリング冷却ヘッドから浮かせる構造に改造し、さらにプレクーリング部の保持において適度な弾性のある指示体を導入する改良等を進めている。現在、寒剤フリー希釈冷凍機導入当初よりは機械的振動がかなり抑制されてきており、放射線検出特性も大幅に改善され始めている。

$^{241}\text{Am}$ 線源と $^{57}\text{Co}$ 線源から放出される $\gamma$ 線を用いて開発した検出素子の動作実証を行った。希

積冷凍機の  $\gamma$  線入射窓 (Be 製) をアルミ箔を数 10 枚重ねて覆い、その外側に  $^{241}\text{Am}$  線源と  $^{57}\text{Co}$  線源を置いて  $\gamma$  線イベントのデータ取得を行った。これにより  $^{241}\text{Am}$  線源から放出される LX 線 (15keV 付近) の TES への入射は抑制されている。図 2 に本計測で得られた  $\gamma$  線エネルギースペクトルを示す。60keV 付近に  $^{241}\text{Am}$  の  $\gamma$  線ピークとこの 60keV ピークに対応して 30keV 付近に錫の  $K_{\alpha}$ 、 $K_{\beta}$  に相当するエスケープピークが確認され、また 122keV 付近に  $^{57}\text{Co}$  の  $\gamma$  線ピークとこの 122keV ピークに対応して 90keV 付近に錫の  $K_{\alpha}$ 、 $K_{\beta}$  に相当するエスケープピークが明瞭に確認できる。なおエネルギー分解能は 84eV (FWHM) @59.5keV が得られており、Ge 半導体検出器で得られる分光性能よりすでに 5 倍以上優れた値である。しかしながら、まだこの分光特性は素子冷却に用いた冷凍機の機械振動が完全に抑制しきれていないこと、さらには錫吸収体の表面の加工精度等に起因した熱的な不安定性によるノイズ等によって制限されていると考えられる。

## ② TES アレイ読み出し用信号多重化回路の開発

TES アレイ化においては、検出素子の動作環境が極低温 ( $\sim 0.1\text{K}$ ) であるため、室温からの配線による極低温部への熱流入を考慮しなければならない。したがって、大規模な TES アレイの読み出しには、極低温部での信号多重化が必要となる。本研究では、高い  $Q$  値を持つ超伝導共振器群を用いて、GHz 帯へ信号を多重化し、各共振器群の共振周波数の変化を読み出すマイクロ波読み出し (Microwave Multiplex : MW-MUX) 回路の開発を行っている。この方式は、高速に読み出し素子をスイッチングしスキップしていく時分割方式や、TES を異なる周波数 (MHz 程度) で交流駆動し周波数空間に多重化を行う周波数多重方式に比べて、原理上 1 系統で読み出せる TES 素子数がより多く、また単素子の読み出しと同様に TES の直流駆動ができるといった利点がある。

図 3 のようにマイクロ波を伝送する Feedline 上に可変インダクタンスと等価な殆ど発熱のない RF-SQUID (超伝導量子干渉素子: Superconducting QUantum Interference Device) で終端した共振回路群を容量結合し、マイクロ波の透過率を読み出すと、図 3 概念図の右部に示すように各共振器の共振周波数  $f_R$  に対応したディップ構造が生じる。RF-SQUID と TES は磁氣的に 1 対 1 対応で結合されており、TES の電流変化によって RF-SQUID のインダクタンスが変化し、 $f_R$  が変化する。よって各 TES の電流信号を周波数軸上における各共振器の  $f_R$  の変化として読み出すことができる。

産業技術総合研究所では、低雑音化のため出力電圧増大を図った読み出し回路チップを設計・試作し、多重読み出し動作に重要な指数である共振  $Q$  値を評価すると共に、極低温冷凍機デューワー内に信号伝送特性の高い信号読み出し配線も整備中である。現在、NbN 共振器と Nb SQUID を組み合わせ

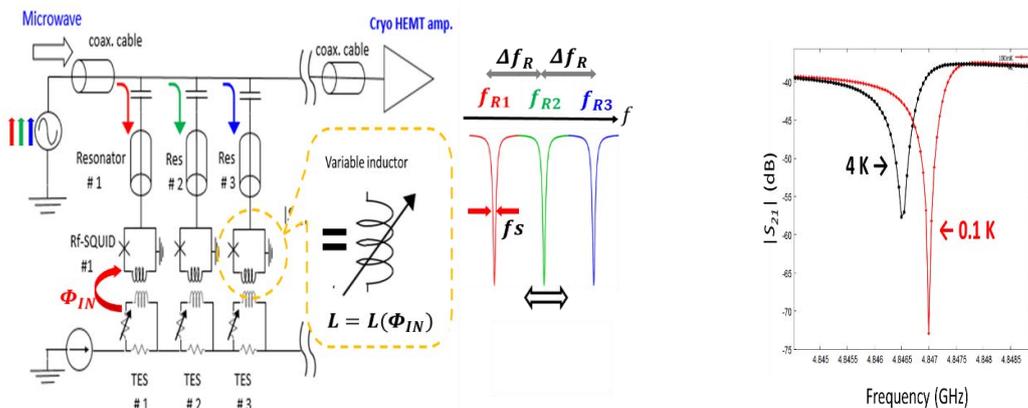


図 3: マイクロ波読み出しの概念図 (左) と 4 K と 0.1 K における NbN 共振器マイクロ波チップの共振点付近における周波数特性 (右)

たマイクロ波読み出しチップの開発を進めており<sup>(2)</sup>、すでに TES 動作環境である 0.1K 付近における Q 値の評価を行い、4K と比較して 0.1K では共振ディップが深くなっていることを確認した (図 3 右参照)。この結果より 0.1K における Q 値は 4K 時と比較して 1 桁以上向上した  $10^5$  程度が得られており、NbN 共振器を用いた TES の低雑音マイクロ波読み出しが期待できる結果となっている。

### ③ 核物質試料を用いた TES 検出システムの検出実証試験

日本原子力研究開発機構大洗研究開発センターでは、硬 X 線  $\gamma$  線検出用 TES アレイ検出器による核燃料物質等を用いた測定試験を実施するために、放射線作業を伴う試験計画の作成及び実験資機材の準備を行った。そして、本研究課題における最初の実証試験として、平成 27 年春に大洗研究開発センター施設内の管理区域に東京大学にて開発した TES 検出器システムを搬入して、核燃料物質及び RI 物質の測定試験を実施した。測定した核種は  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{237}\text{Np}$  及び  $^{154}\text{Eu}$  である。従来型の放射線測定器による測定も並行して実施した。今回用いた冷凍機は、パルス管プレクーリング冷却ヘッドを搭載した希釈冷凍機システムであり、現時点では、モーター直結型パルス管から発生する機械振動の除去が不十分なため、東京大学で実現している分光性能には及ばないものの、 $^{237}\text{Np}$  および  $^{154}\text{Eu}$  の核種から得られた  $\gamma$  線検出スペクトルでは、いずれも特徴的な  $\gamma$  線エネルギーピークを高感度に検出できており、既存検出器を大きく超える核種弁別性能を実証している。また微弱な  $^{239}\text{Pu}$  の線源を用いた  $\gamma$  線検出実験においても、これまでの試験では検出できていなかった Pu に起因する  $\gamma$  線、硬 X 線の検出に成功した。これは検出器のエネルギー分解能の改善、および冷却システムの安定化、低ノイズ化を図ったことによる効果が表れたものと言える。

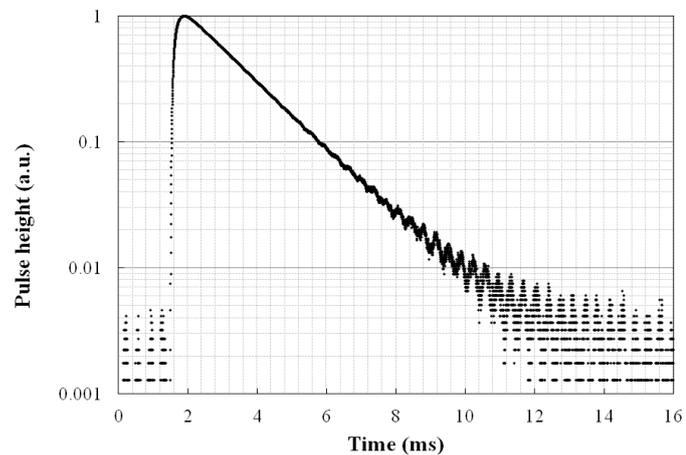


図 4: 核種測定実験で取得した  $^{154}\text{Eu}$  からのガンマ線入射信号波形の例

## 3. 今後の展望

TES 素子の熱特性の最適化、高エネルギー分解能化を図ると共にアレイ素子の開発を行う。また、アレイ素子用マイクロ波読み出し回路開発では、0.1K におけるノイズ特性を評価、その成分特定・抑制等を進め、回路と試作したアレイ素子を組み合わせて信号多重読み出し実証を目指す。さらに希釈冷凍機のさらなる機械振動抑制を図り、高感度かつ高精度な  $\gamma$  線スペクトロスコピーが可能な検出システムを構築し、核物質試料の精密な検出実証を目標とする。

## 4. 参考文献

- (1) Hatakeyama, S. et al. "Development of Hard X-Ray and Gamma-Ray Spectrometer Using Superconducting Transition Edge Sensor" IEEE Trans. Appl. Supercond., 23, 3, (2013)
- (2) Kohjiro, S. et al. "White noise of Nb-based microwave SQUID multiplexers with NbN coplanar resonators for readout of transition edge sensors" J. Appl. Phys., 115, 223902 (2014)