

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 (2018年9月 - 2022年8月)

日本原子力研究開発機構 大洗研究所 (研究代表 高崎浩司)

産業技術総合研究所 デバイス技術研究部門

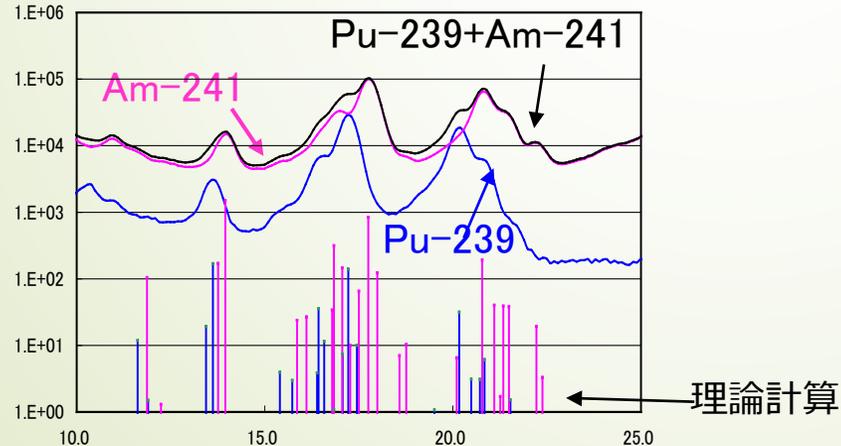
東京大学大学院 工学系研究科 原子力専攻

九州大学大学院 工学研究院 エネルギー量子工学部門

現状の内部被ばく線量評価の課題

肺モニタ (Ge検出器)

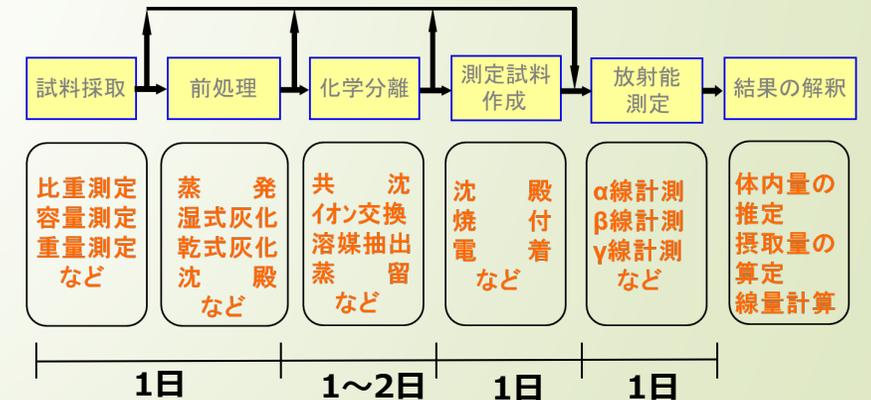
- ^{241}Am の妨害でPuが測定できない
 - 検出限界が高い (Pu:約0.5~2 Sv)
 - 体表面の汚染の影響を受ける
- ↓
- 高精度 (Pu:約50mSv) で肺中のPuと ^{241}Am を測定したい
 - 体表面汚染の影響なしに測定したい
 - Pu吸入に対する的確な措置



肺モニタ (Ge検出器) のスペクトル

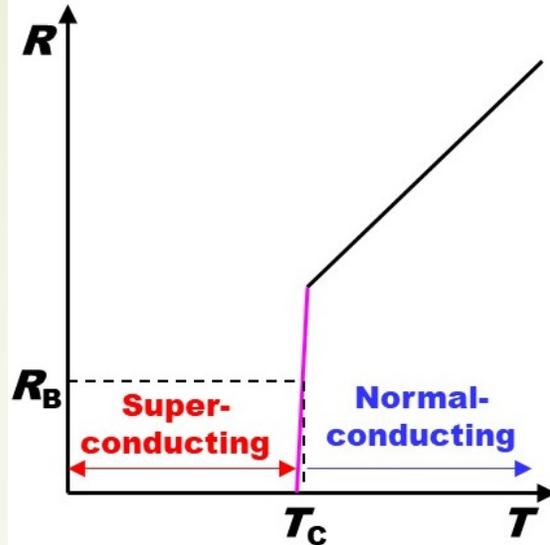
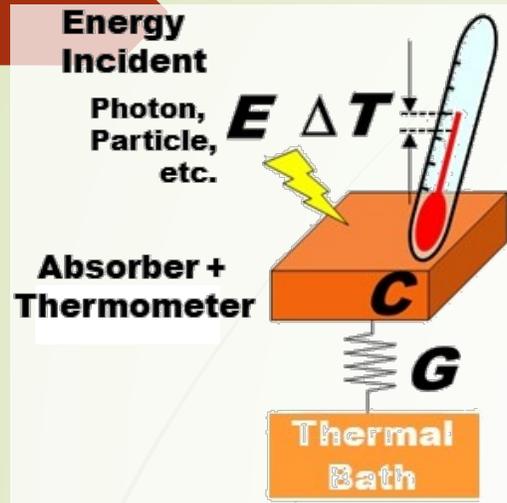
バイオアッセイ試料の分析

- 化学的分析のため、熟練分析員でも1試料の分析に5日程度の時間が必要 (現状、低い線量まで評価できるのは、この方法のみ)
- ↓
- 簡易な測定で可能な限り時間を短縮し、早く線量を評価したい
 - 早い対応措置の判断



バイオアッセイ試料分析

超伝導転移端センサ (TES) の動作原理とポテンシャル



$$\Delta T = \frac{E}{C} \quad \text{: Temperature Rise}$$

$$\Delta E \approx 2.35 \sqrt{\frac{k_B T_C^2 C}{\alpha}} \quad \text{: Energy Resolution}$$

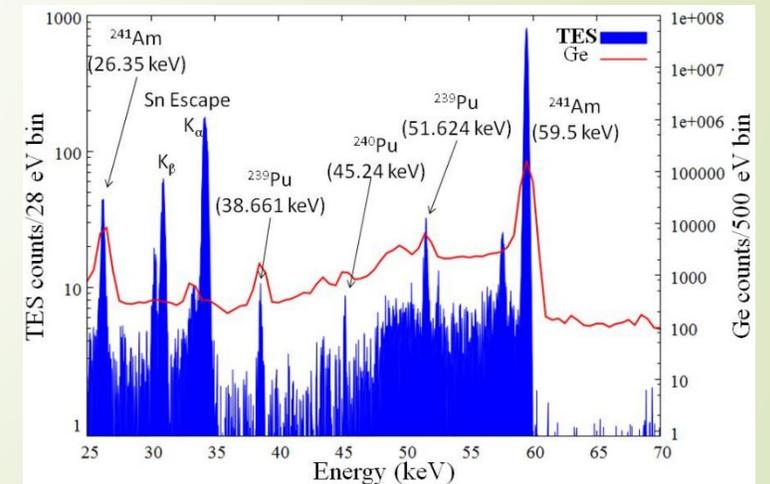
$$\alpha \equiv \frac{T_C}{R_B} \frac{\partial R}{\partial T}$$

C: Heat Capacity
G: Thermal Conductance

- ・ 極低温 (≈ 0.1 K) 動作による小 C
- ・ 急峻な R-T 特性による大 α

高純度 Ge 検出器に比べ、10-100 倍優れた分解能 (ΔE)

- X, γ 線検出
 - 非破壊、遠隔、省力、短時間
- 広いエネルギー帯に渡る分光
 - 多核種の同時計測
 - 人体深さ依存性
- 優れた分光能力
 - 核種・同位体比の識別能
 - 検出限界の改善



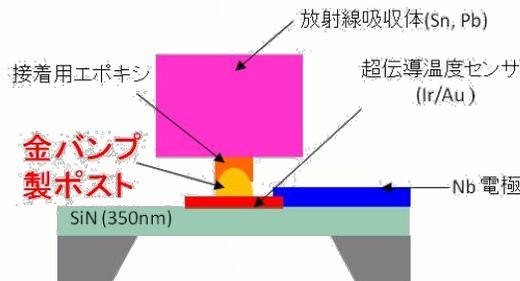
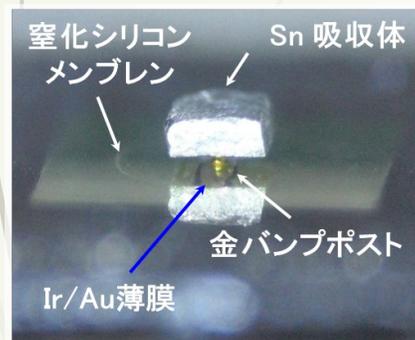
Pu 同位体の精密計測の実例

硬γ線用の超伝導転移端センサ (TES) について

超伝導現象を利用した高感度の熱量センサ (マイクロカロリメータ) 超伝導転移端センサ (TES : Transition Edge Sensor)

微細加工による検出素子の製作技術 超伝導薄膜の温度センサ、信号回路

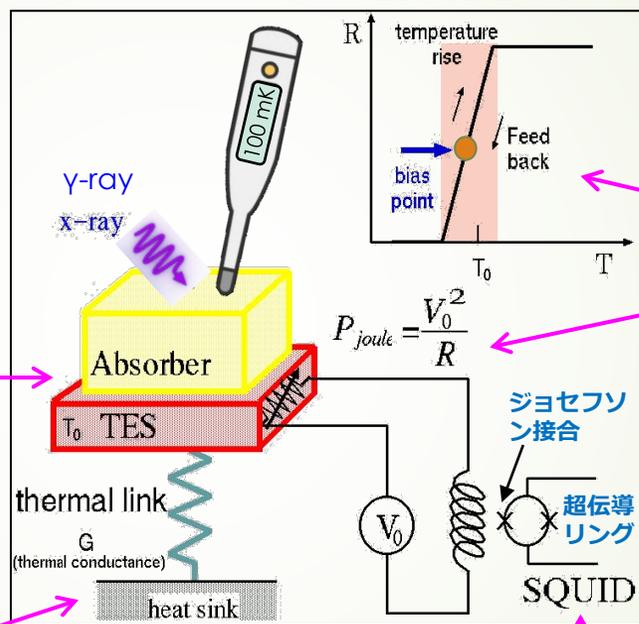
半導体プロセスを応用したMEMS (Micro Electro Mechanical Systems)製造技術を駆使して検出素子を製作



超低温 (100mK以下 : -273.05°C) の冷却技術 ³He-⁴He希釈冷凍機 or 断熱消磁冷凍機

- 室温から最低温度 (100mK以下) に到達 (自動制御化もなされている)
- 200V三相交流電源で駆動。液体ヘリウム等の寒剤供給不要

超伝導転移端



超伝導を利用したX線、γ線光子エネルギーの検出技術 超伝導転移端による高感度温度計

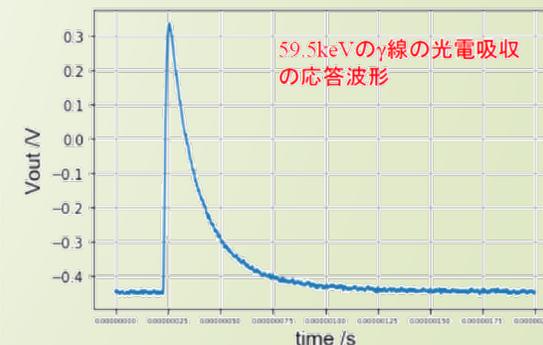
- 超伝導と常伝導の急な抵抗の変化を利用して1つの光子による微小な温度上昇を検出
- 定電圧バイアス下での電熱フィードバック (ETF : Electro Thermal Feedback)によりバイアスポイント安定化

超伝導を利用した高感度磁気センサによる 微小信号の検出技術

SQUID:超伝導量子干渉素子 (Superconducting Quantum Interference Device)

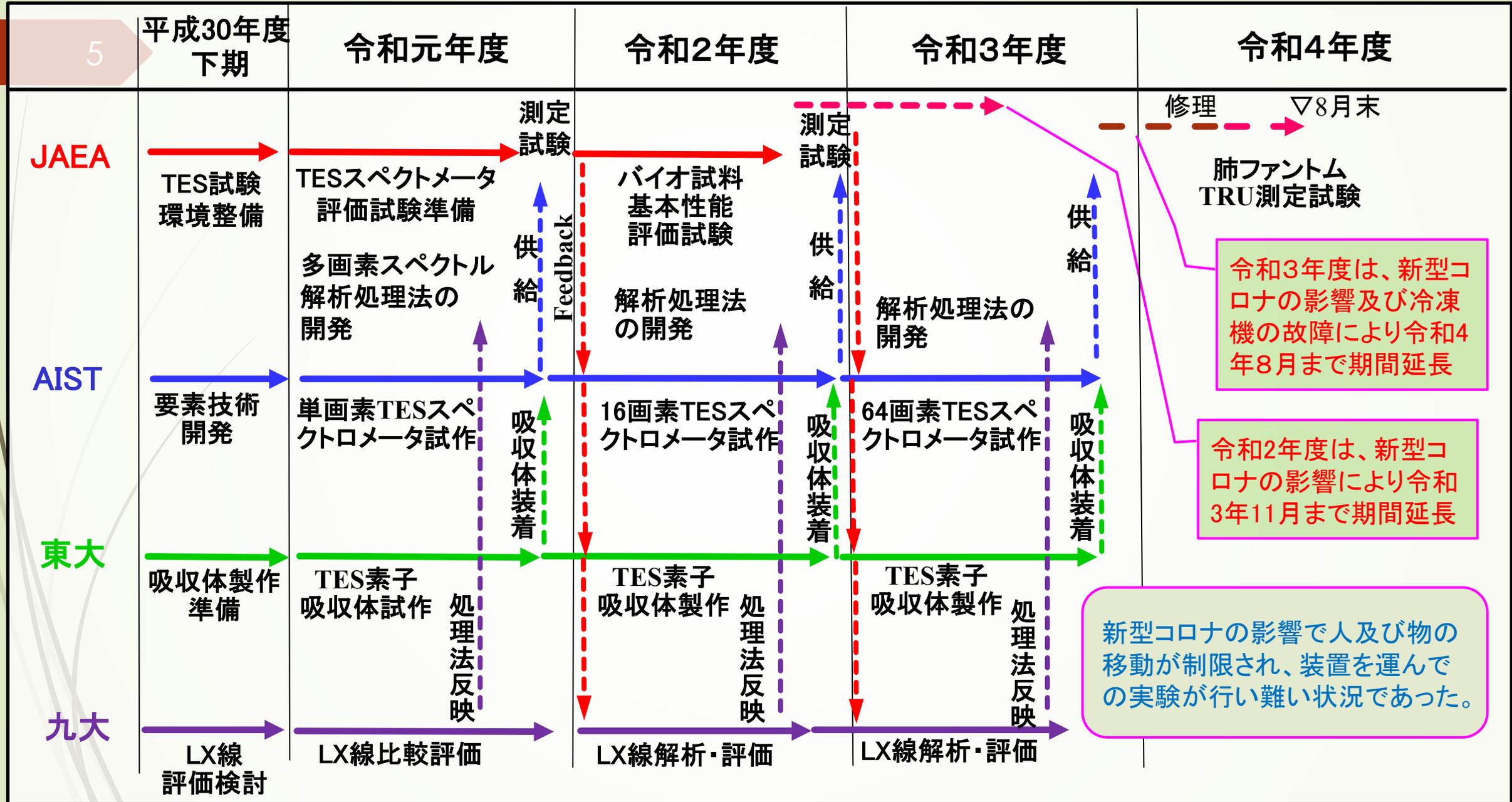
- 地磁気の1億~10億分の1程度の磁束密度の計測可能
- 電流変化を磁束変化に変換、その磁束変化を電圧変化へ変換

吸収体: 単結晶スズ Am-241で検出実験



熱浴(コールドステージ温度140mK)

開発スケジュール



本研究の目標と成果

大規模アレイ化に基づく実用分析システム

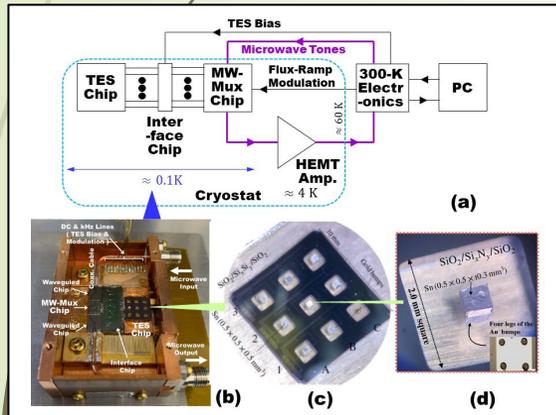
超伝導量子計測技術を適用した体内摂取量の評価手法の抜本的な改革

→ 処置の迅速化による作業員の安全確保、安全性向上

放射線検出器として高効率化(多画素化)と低エネルギー測定が必要

16画素、64画素TES回路開発 TES素子の高度化

- ・低応力三層メンブレン
- ・均一な性能の超伝導薄膜
- ・マイクロ波多重読出回路(MW-Mux)

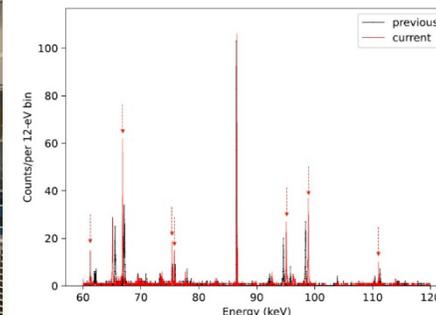
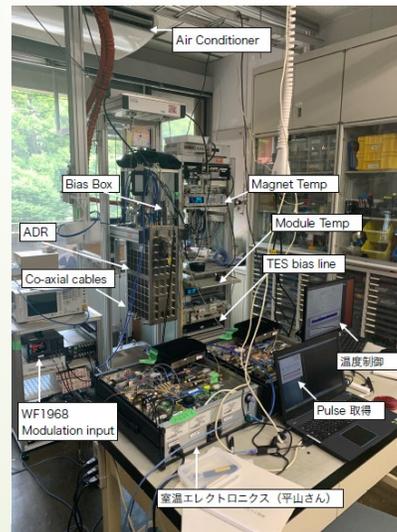


γ線吸収体の開発 吸収体搭載技術の開発

- ・4個の金(Au)バンプポスト
- ・非単結晶のスズ(Sn)バルクを適用

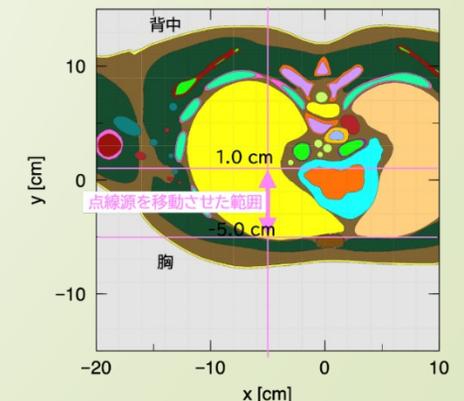
多画素データ処理技術の開発 放射性物質による測定実験

- ・解析ソフトの開発
- ・²³⁷Np線源等を用いた測定 約 50 eV@86.5 keV
- ・64画素TESアレイスペクトロメータの総合評価

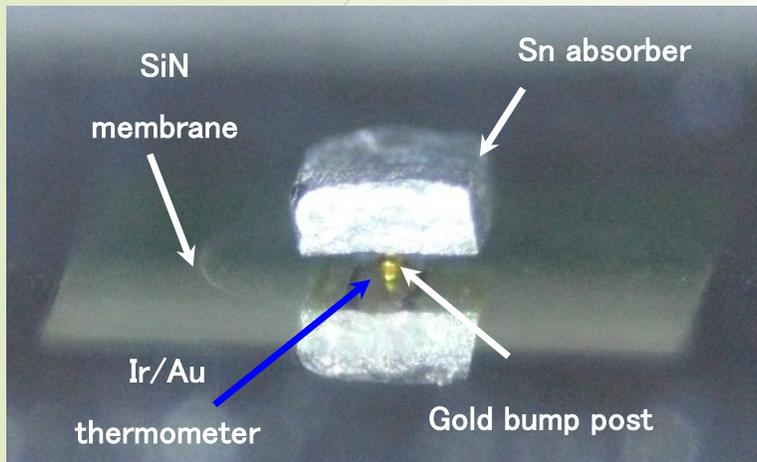


大規模信号データの解析ソフト

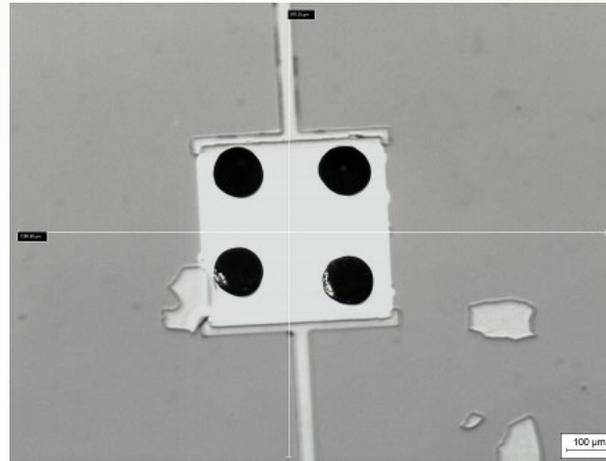
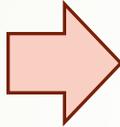
L X線の測定・解析技術の開発 ・TRUの体内の沈着深さを推定 する手法の開発



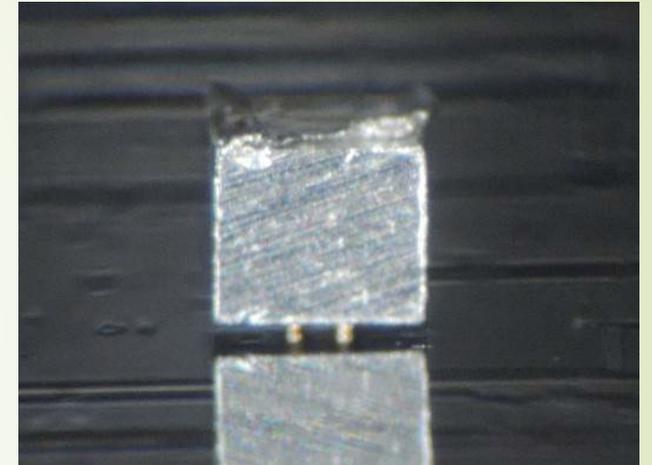
4個の金(Au)バンプポストで γ 線吸収体を安定的に搭載するデバイス作製手法の開発



従来の単一ポスト

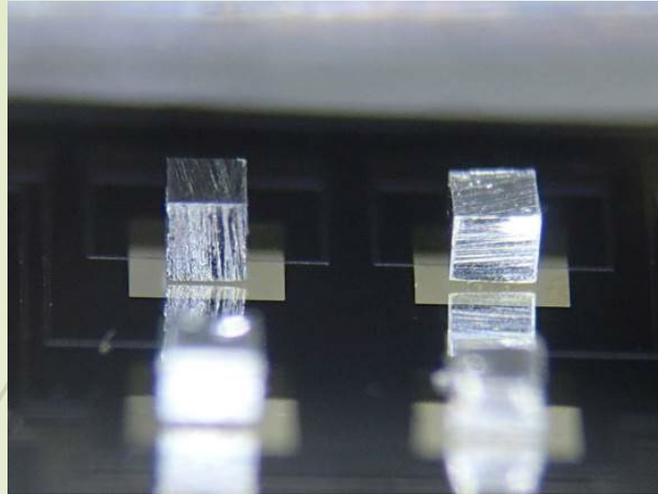


極小金(Au)バンプポスト4個



- ▶ 極小金(Au)バンプポスト4個で1つの γ 線吸収体を支える構造の作製プロセスを確立
- ▶ スペーサーを展開する必要がなくなり、緻密なピクセル画素配置が可能
- ▶ 多くのピクセル画素に対して、個々のピクセル画素上の γ 線吸収体を固定するエポキシの乾固を待たずに、アレイ素子を短時間で完成可能

単結晶スズ(Sn) および単結晶タンタル(Ta)の検討

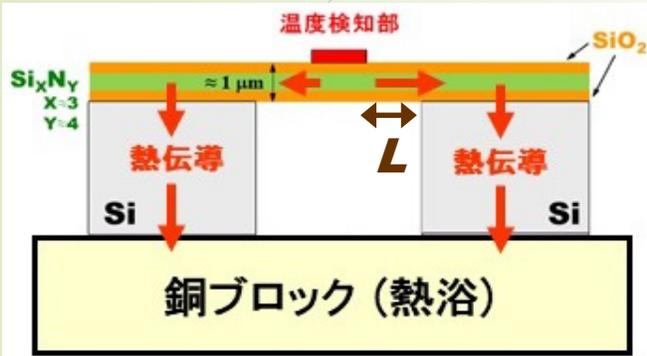


スズ(Sn)単結晶の吸収体を搭載したTES検出素子(左)、スズ(Sn)単結晶およびタンタル(Ta)単結晶の吸収体を実装したTESアレイ検出素子の写真(右)

- 単結晶スズ(Sn)および単結晶タンタル(Ta)ともに、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。
- 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た。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
- 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

3層メンブレンTES：熱伝導特性評価

本研究： $\text{SiO}_2 / \text{Si}_x\text{N}_y / \text{SiO}_2$
従来： Si_xN_y



同等の熱コンダクタンス

Institute	Target	Membrane	T_c (mK)	$G(T_c)$ (nW/K)	Thickness (μm)
This work	γ	$\text{SiO}_2/\text{Si}_x\text{N}_y/\text{SiO}_2$	131–135	1.1–1.7	6.9
NIST ³	γ	Si_xN_y	120	2.4–3.3	1
SRON ²¹	x	Si_xN_y	130	0.8	1

厚み7倍！

Appl. Phys. Lett. 119, 222602, 2021

本研究で開発した $\text{SiO}_2/\text{Si}_x\text{N}_y/\text{SiO}_2$ 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。

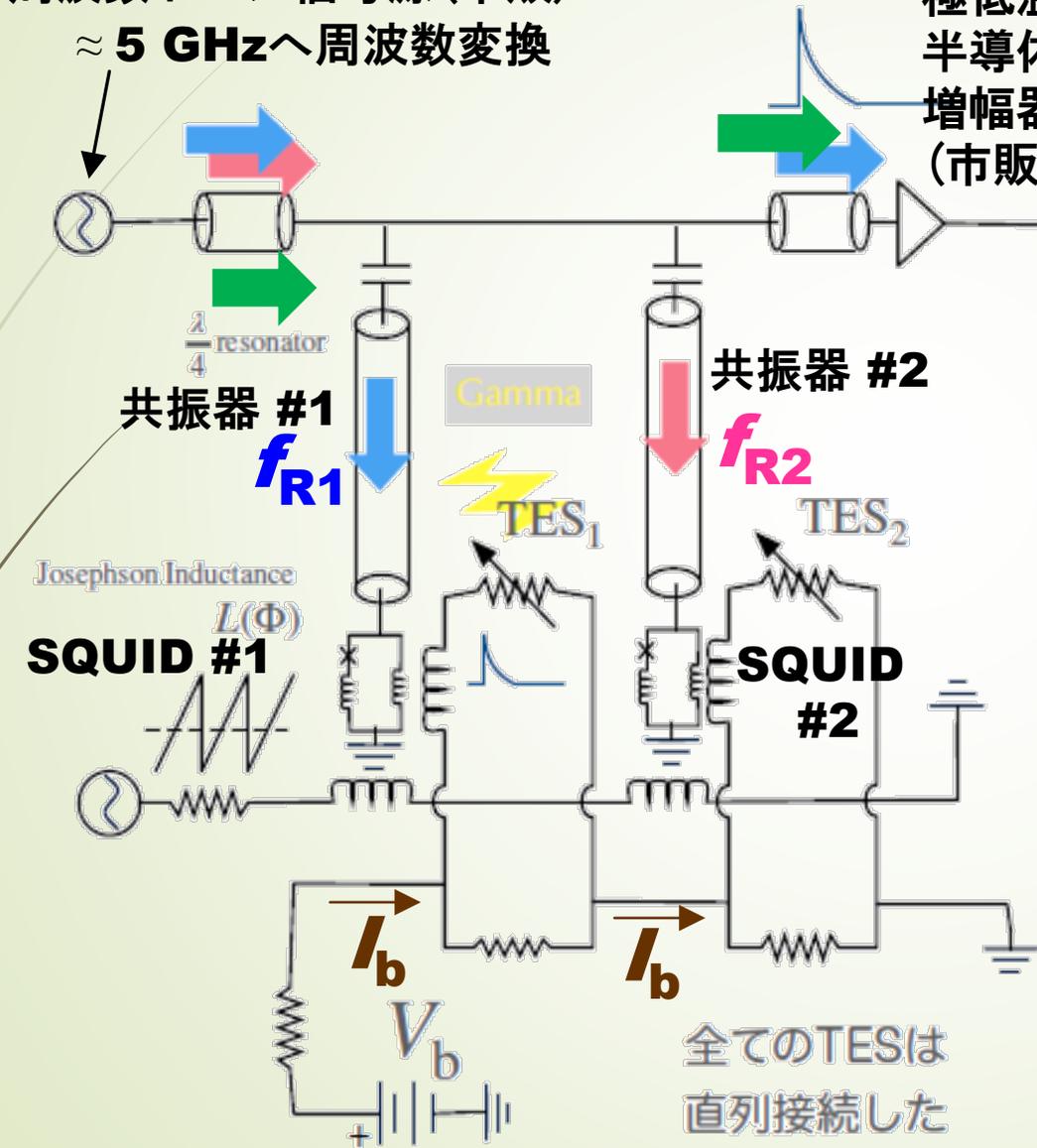
均一な性能を有する超伝導薄膜の製作技術を確立

- アレイ化に必要な均一な超伝導薄膜成膜技術を開発
- 目標の分解能に適した $T_c \approx 140$ mKを得るため、30 nmのチタン(Ti)に対し100 nmの金(Au)膜厚

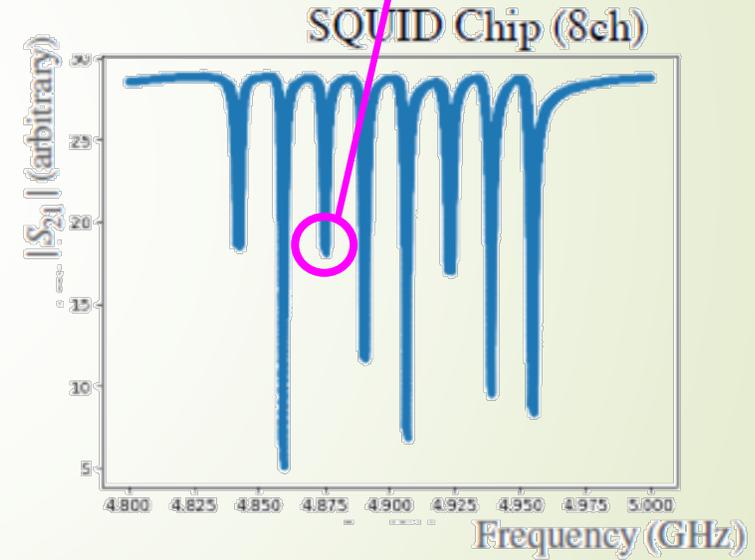
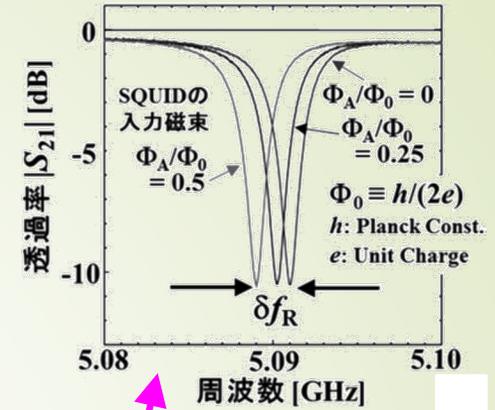
マイクロ波多重読出回路 Microwave Multiplexer (MW-Mux)

周波数トーン信号源 (市販)
 $\approx 5 \text{ GHz}$ へ周波数変換

極低温
 半導体
 増幅器
 (市販)



復調回路 (室温)へ

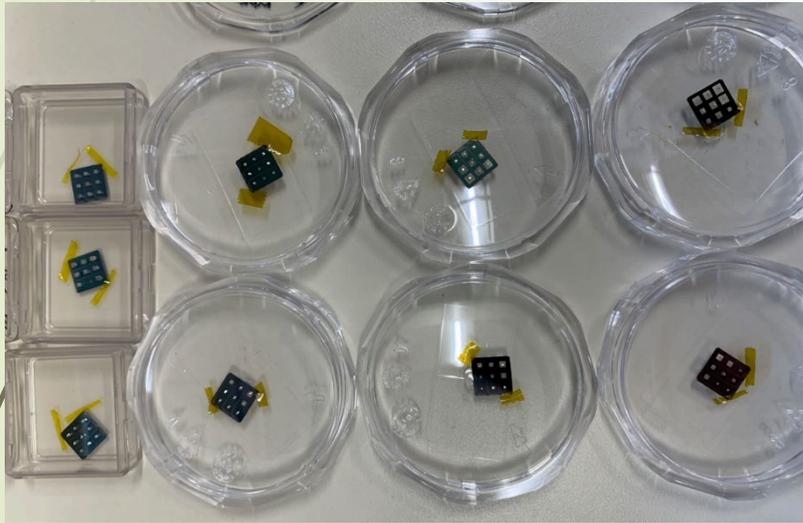


共振周波数 (マイクロ波透過率) の変化分から、各画素TESへの入射光子エネルギーがわかる。

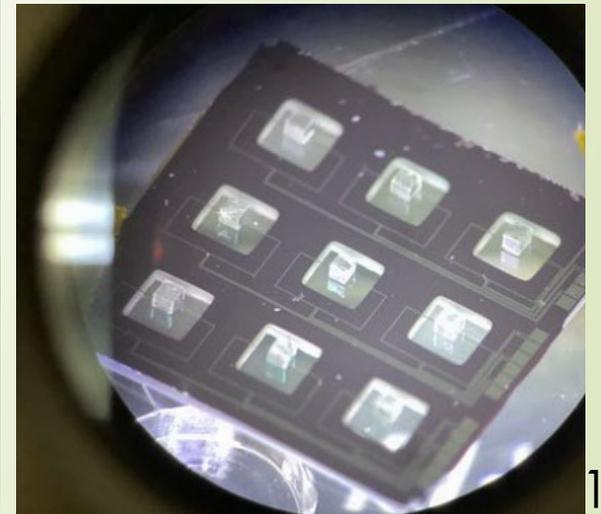
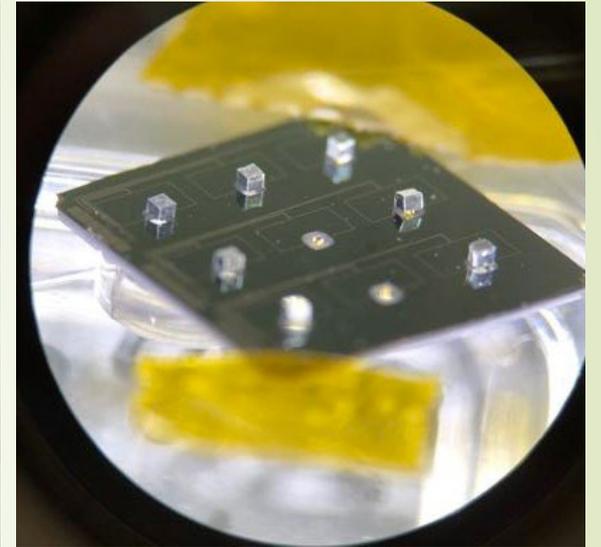
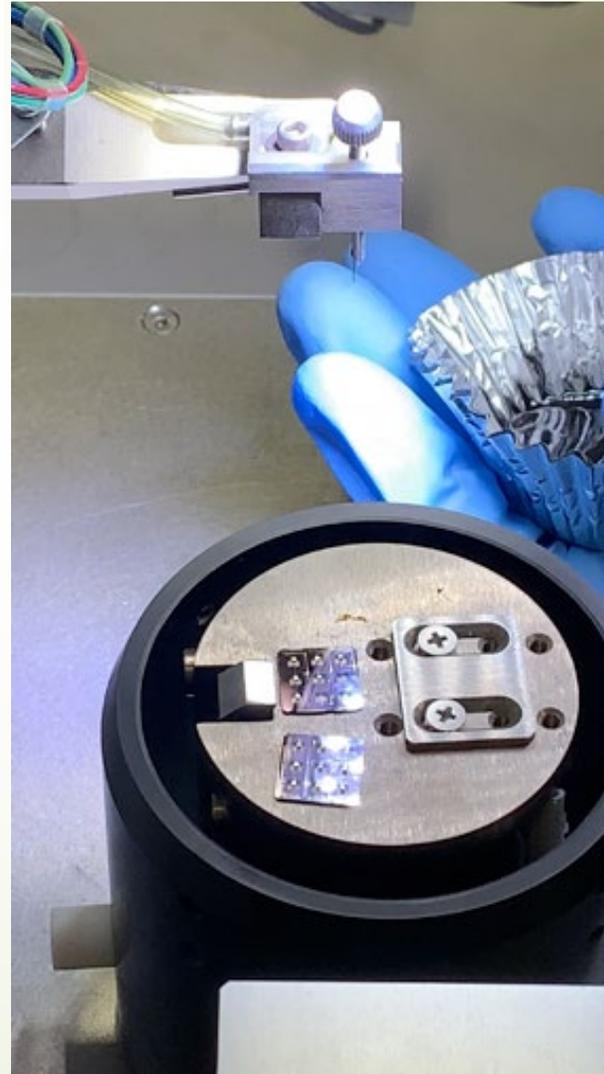
全てのTESは
 直列接続した

大規模TESアレイへの重金属 γ 線吸収体の実装

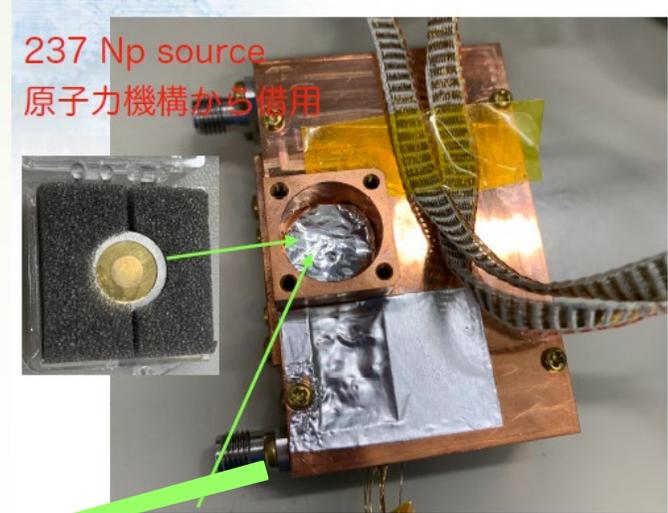
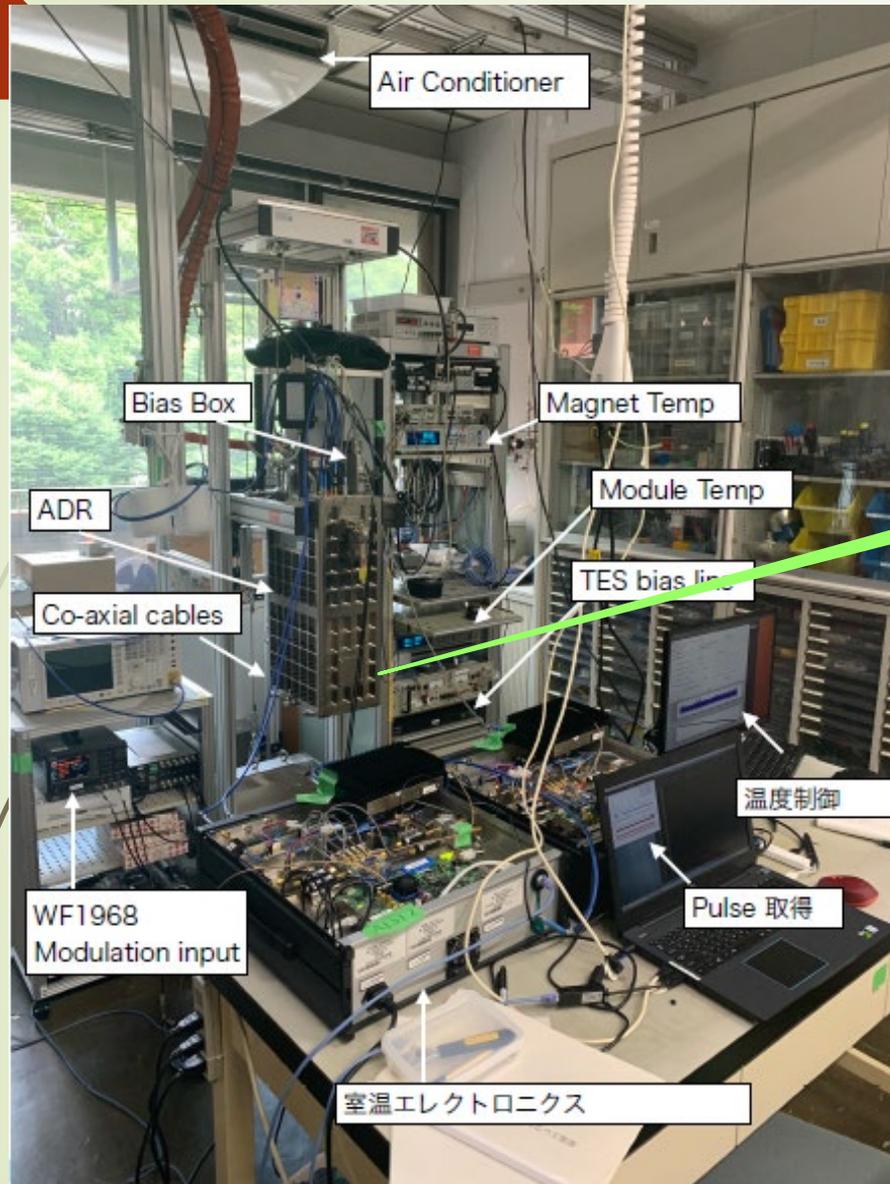
産総研製の3層メンブレン、チタン/金(Ti/Au)超伝導薄膜TESアレイ素子に、東京大学にて有する γ 線吸収体搭載プロセス装置を用いて、4個の極小金(Au)バンプ適用によるスズ吸収体実装を進めた。



作製した作製した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。

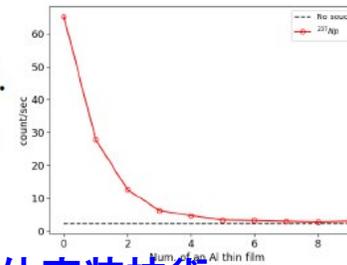


開発した多画素TESアレイスペクトロメータ

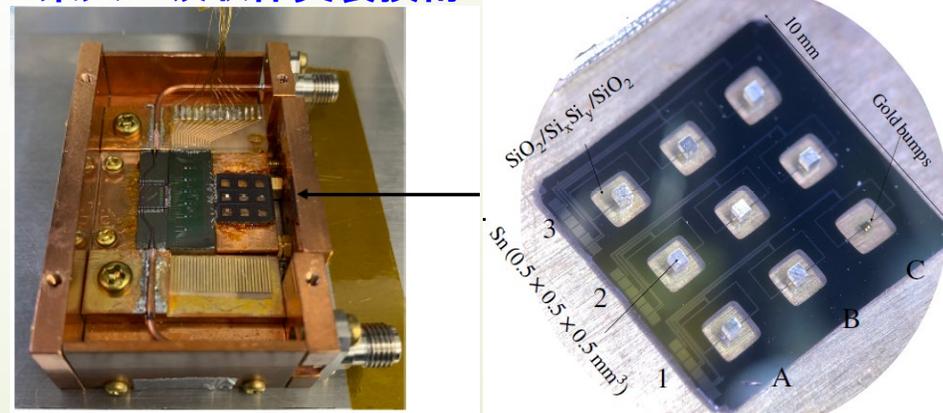


極低温Module

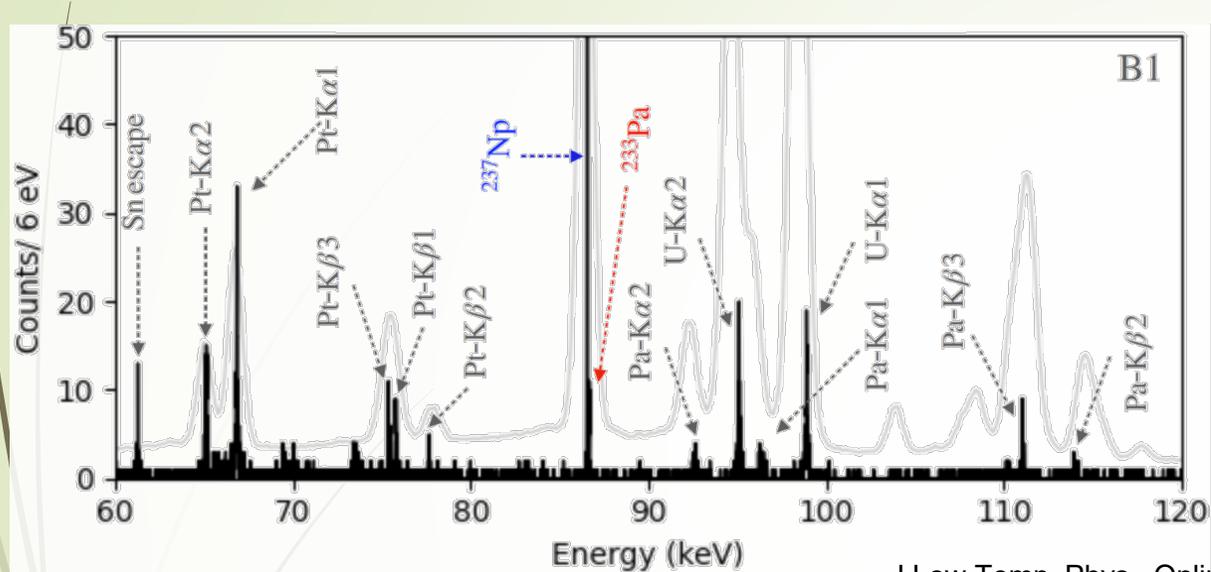
- ・アルミテープ6枚でβ線をシールド。
γはほぼ透過する



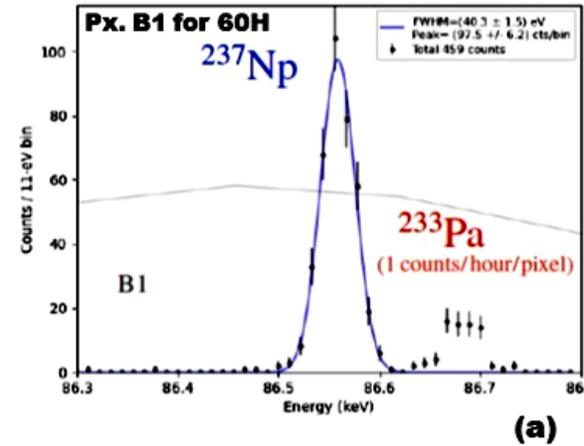
東大の吸収体実装技術



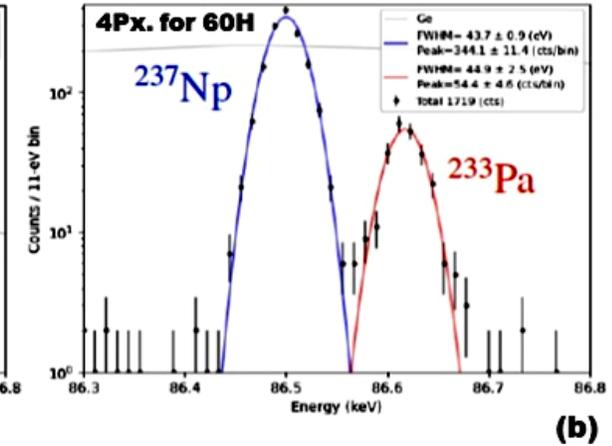
多画素TESアレイスペクトロメータによる ^{237}Np 線源の測定 (分解能約50 eV@86.5 keVを確認)



J Low Temp. Phys., Online, 2022



(a)

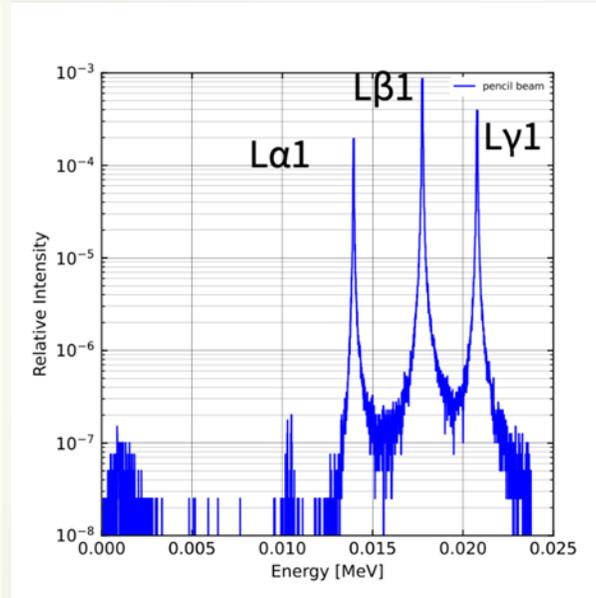
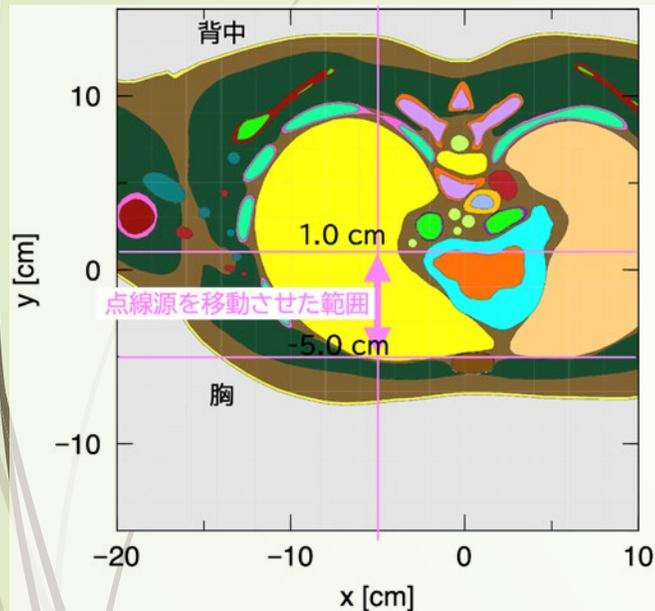


(b)

- 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。
- 当該スペクトロメータにおいて、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。
- 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。

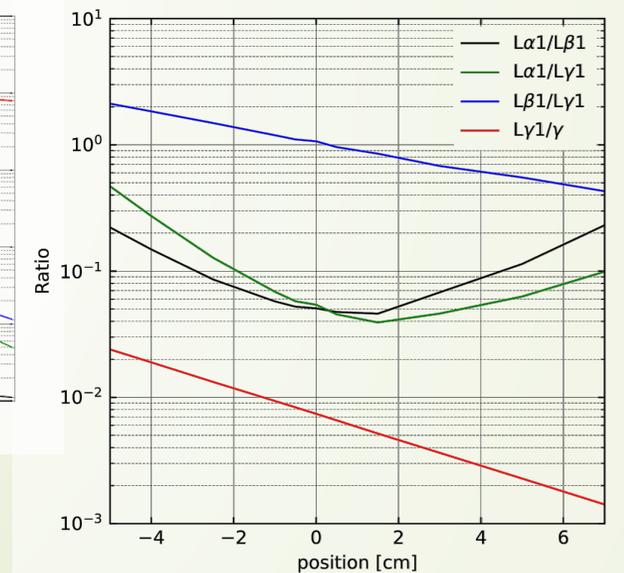
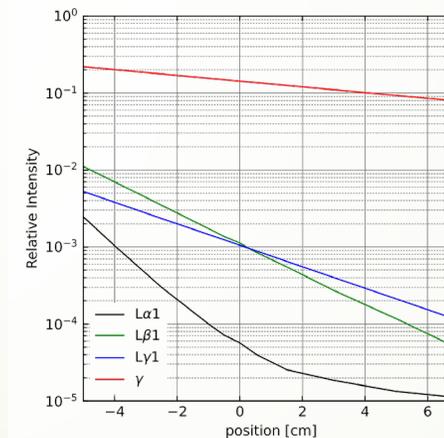
L X線の測定・解析技術の開発

- TRU線源から放出されるL Xの線 (L α 1、L β 1、L γ 1) の体内での減衰の違いから沈着深さを推定



²⁴¹Amからの γ 線を考慮した評価

- 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、妨害核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

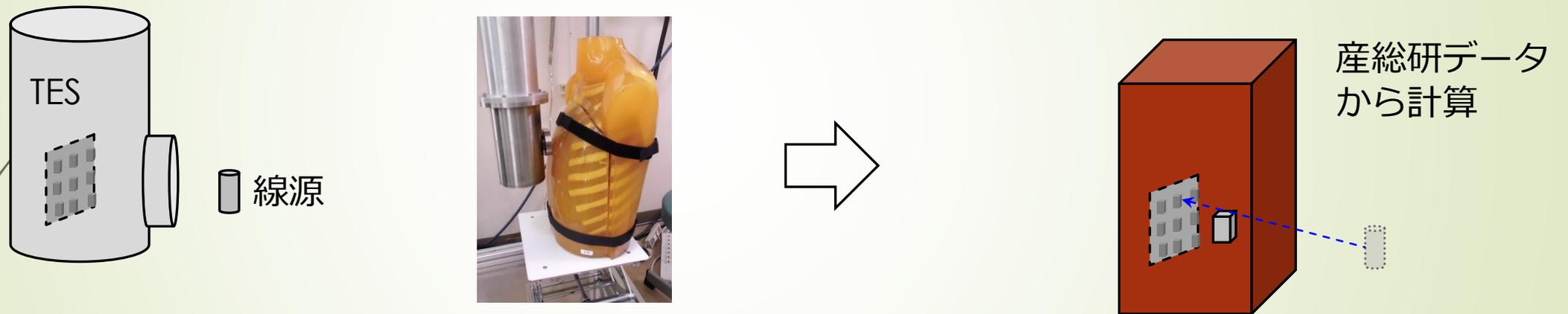


Pu同位体としての線源の移動範囲 (-5.0 cmから1.0 cm)とTES型マイクロカロリメータとしてのスズ(Sn)吸収体の位置

y=-5.0 cmの位置に²³⁷Np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

多画素TES アレイスペクトロメータの評価に係る計算について

- 一般的に、放射線計測器は実際のジオメトリで校正用線源で校正し、測定することが、実際的で精度が高い。当初はそれを目指したが、新型コロナウイルスの感染拡大で困難となった。



- 成果の信頼性としては、本来の方法に対して精度は低くならざるを得ず、今回の必要画素数は**目安**ととらえて頂きたい。将来的に、実際のジオメトリでの実験やシミュレーション計算で、評価精度を高めることが望ましい。

多画素TES アレイスペクトロメータの評価

▶ バイオアッセイ

64画素で72時間測定の実検出限界の値

^{239}Pu : 約120 Bq、

^{240}Pu 、 ^{238}Pu 及び ^{242}Pu : 約50~60 Bq。

タイプS(二酸化プルトニウム)の約20 Bqの検出は2,048画素

タイプM(硝酸プルトニウム)の約5 Bq検出は立体角で16,384画素でも厳しい
今後、、稠密化、多層化を検討

▶ 肺モニタ

64画素 × 4(256画素)で1.0時間測定の実検出限界の値

^{239}Pu : 約4 kBq、 ^{240}Pu 、 ^{238}Pu 及び ^{242}Pu : 約1.7~2.0 kBq

タイプS(二酸化プルトニウム): 約350 Bqの検出は16,384画素が必要

タイプM(硝酸プルトニウム): 約90Bq検出は立体角で262,144画素でも厳しい
今後、、稠密化、多層化を検討

▶ γ 線核種分析

64画素で72時間測定した場合の実検出限界の値

^{239}Pu の γ 線(98.8 keV) 約200 kBq、 ^{240}Pu (104.2 keV)、 ^{238}Pu (99.9 keV) 及び
 ^{242}Pu (103.5 keV): 約20~70 kBq。

(1) バイオアッセイ

Cooper の方法

		画素数	64	2048	16384
		測定時間(h)	72.0	72.0	72.0
DL (Bq)	^{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
	^{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

ISO11929 の方法

	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

		画素数	256	16384	262144
		測定時間(h)	1.0	1.5	1.5
DL (Bq)	^{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
	^{240}Pu	13.6 keV	1.8E+03	1.8E+02	1.2E+02
	^{238}Pu	13.6 keV	1.7E+03	1.7E+02	1.1E+02
	^{242}Pu	13.6 keV	2.1E+03	2.1E+02	1.4E+02

ISO11929 の方法

	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

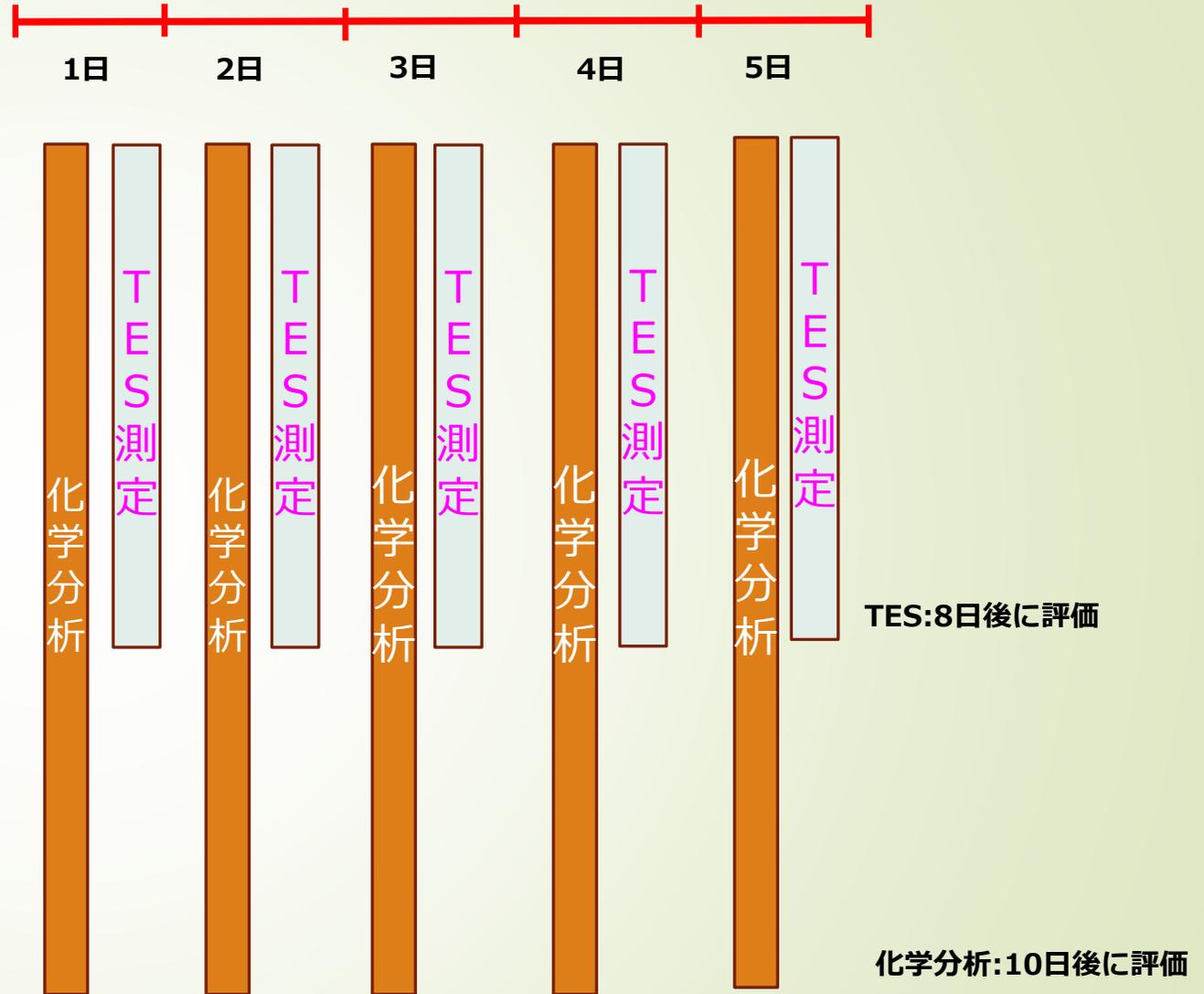
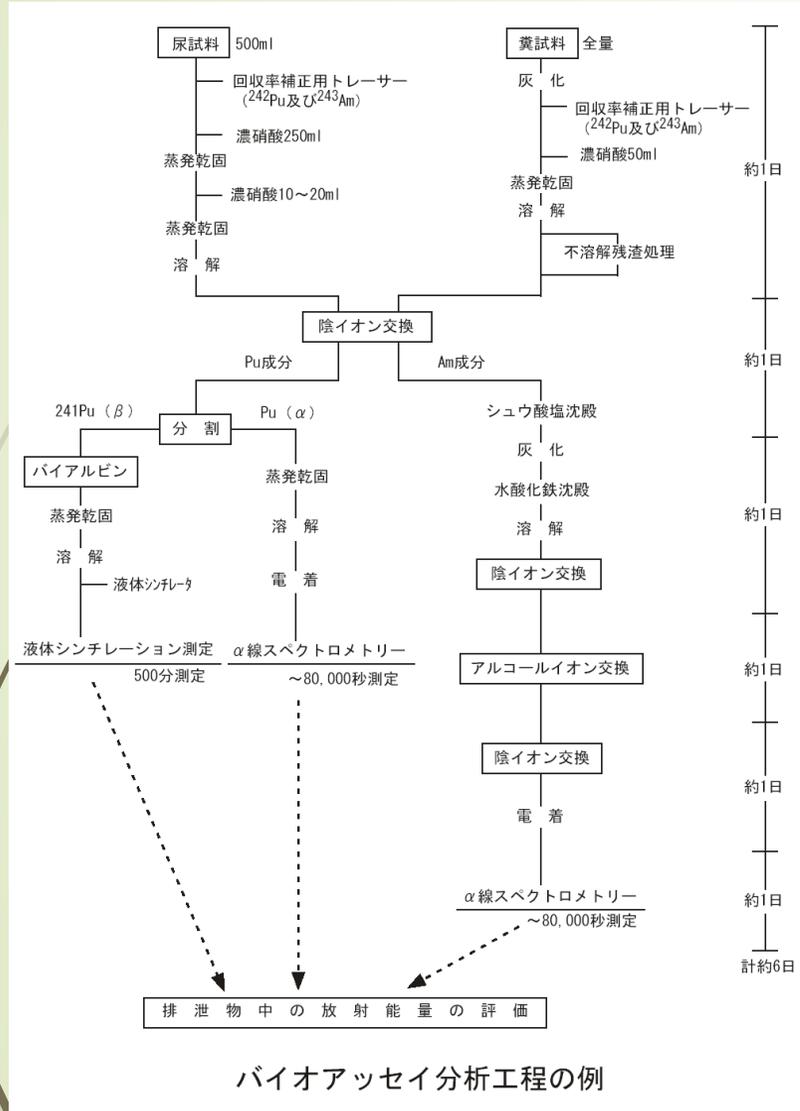
		画素数	64	2048	16384
		測定時間(h)	72.0	72.0	72.0
DL (Bq)	^{239}Pu	98.8 keV	1.9E+05	3.9E+04	2.9E+04
	^{240}Pu	104.2 keV	3.2E+04	6.5E+03	4.8E+03
	^{238}Pu	99.9 keV	2.2E+04	4.4E+03	3.3E+03
	^{242}Pu	103.50keV	6.5E+04	1.3E+04	9.4E+03

ISO11929 の方法

	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

バイオアッセイの短縮効果について

バイオアッセイ (便) 試料採取



- ▶バイオアッセイ分析としては2日短縮。
- ▶TESによる簡易な測定で試料分析の作業を軽減。

まとめ

- ▶ TES検出器の多画素アレイ化に必要な4個の金(Au)バンプポスト、低応力三層膜、均一な性能の超伝導薄膜の製作技術、マイクロ波多重読出回路(MW-Mux)を開発
- ▶ 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、²³⁷Np線源を用いた測定を実施
- ▶ 吸収体の脱落のため5画素となったが、多画素TESアレイγ線スペクトロメータでのγ線・硬X線計測および計測信号の同時読み出しに成功、エネルギー分解能も約50 eV@86.5 keVを確認。
- ▶ 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、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を評価し、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。

今後の展開

- ▶ バイオアッセイ試料の ^{239}Pu の約20Bqレベルの測定には2000画素TESレベル以上が必要。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、遠隔非破壊での測定に向けての展開が期待できる。
- ▶ 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。さらに、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。
- ▶ 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、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。
- ▶ 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。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。幅広い研究者の育成を図る必要がある。また、三層メンブレン、均一な超伝導薄膜の製作技術、マイクロ波多重読出回路(MW-Mux)は最先端の製造技術であり、製造メーカーの育成も必要。