

平成28年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業
英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

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

成果報告書

平成29年3月
国立大学法人 東京大学

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立大学法人 東京大学 が実施した平成26－28年度「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」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	iv
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2-1
2.2 年度毎の研究計画の概要	2-1
3. 業務の実施内容および成果	
3.1 硬X線 γ 線検出用 TES アレイ検出器の開発	3.1-1
3.2 検出器アレイ多重読出回路の開発（再委託先：産業技術総合研究所）	3.2-1
3.3 核燃料物質等を用いた測定試験（再委託先：原子力機構）	3.3-1
3.4 研究推進	3.4-1
4. 結言	4-1

表一覧

表 2. 1-1 全体スケジュール 2. 1

表 3. 1-1 SU-8、スタイキャスト、Au、Ag の熱伝導率 3. 1-5

表 3. 1-2 エポキシ製ポストと金バンプ製ポストの比較 3. 1-6

表 3. 1-3 γ 線吸収体の材質と超伝導転移温度、熱容量および γ 線吸収効率の比較 . . . 3. 1-14

表 3. 2-1 4 種類材料の共振器に対する、位相雑音実測値@ 1 Hz, 3 kHz、磁束から共振周波数への変換効率実測値、および、(3. 2. 10)式にそれらを代入・試算した SQUID 入力換算の磁束雑音@ 1 Hz, 3 kHz 3. 2-12

表 3. 3-1 ピークカウントからの Eu 線源の放射能比の算出結果 3. 3-4

図一覧

図 2. 1-1 全体計画図 2. 3

図 3. 1-1 ETF-TES マイクロカロリメータ動作原理概念図 3. 1-2

図 3. 1-2 金バンプ製ポストを用いた γ 線 TES 3. 1-5

図 3. 1-3 金バンプ製ポストを用いた γ 線 TES の作製プロセス 3. 1-7

図 3. 1-4 Au バンプ製ポスト γ 線 TES の顕微鏡写真(左)、および 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. 1-8

図 3. 1-5 γ 線入射応答波形に見られるキンク部(波形のねじれ)(左)、ポスト構造の最適化を図った検出素子の γ 線入射応答波形(右)の比較 3. 1-9

図 3. 1-6 Ir/Au 薄膜温度センサ上に作製された 2 個の金バンプポスト(左)、2 個の金バンプポスト上に錫吸収体を搭載した TES 素子で得られた Eu-154 核種からの 123keV γ 線入射信号応答波形 3. 2-10

図 3. 1-7 TES による Np-237 核種からの γ 線エネルギースペクトル[枠内: 89keV 付近の γ 線ピークを拡大したスペクトル](上)と、Np-237 核種からの γ 線計測時の出力ベースラインの変動(右) 3. 1-11

図 3. 1-8 ベースライン弁別処理後の Np-237 核種からの γ 線エネルギースペクトル . . . 3. 1-12

図 3. 1-9 0.5mm 角試作した 0.5mm 角 Ta 吸収体付 TES の顕微鏡写真(左)と、Ta 吸収体付 TES により計測された Cs-137 線源からの γ 線エネルギースペクトル 3. 1-14

図 3. 1-10 4 ピクセル錫放射線吸収体付 TES アレイ検出素子 3. 1-15

図 3. 1-11 モーター分離型パルス管に換装した寒剤フリー希釈冷凍機 3. 1-16

図 3. 2-1 室温から極低温への熱流 3. 2-1

図 3. 2-2 マイクロ波帯周波数多重化方式の構成、原理、従来の周波数多重化法との比較 3. 2-3

図 3. 2-3 (a) 2 通りのチップ温度 (0.1 K と 4 K) における無負荷(Unloaded) Q 値 Q_0 と外部(Coupled) Q 値 Q_c の共振周波数依存性の測定結果例 (b) Q_0 と Q_c の定義 (c) チップから極低温 HEMT 増幅器への信号伝達 (d) (c)に示す極低温 HEMT 増幅器入力端での規格化電圧の SQUID への入力磁束依存性の計算値。(e) SQUID での入力磁束から出力電圧への変換効率と共振器無負荷 Q 値との関係(計算) 3. 2-4

図 3.2-4 鋸歯状波変調による入出力特性線形化・ダイナミックレンジ増大の原理と特徴	3.2-5
図 3.2-5 読出回路のパラメータ設定；TES パラメータからの要請	3.2-6
図 3.2-6 信号処理系 (a)全容 (b) 鋸歯状波磁束変調回路の概要 (c)室温信号処理ユニット 外観	3.2-8
図 3.2-7 試作したマイクロ波周波数多重読出回路チップ	3.2-9
図 3.2-8 4 種類の共振器の無負荷 Q 値と共振器内部のマイクロ波電力の関係	3.2-11
図 3.2-9 10 Hz における位相雑音の共振器内マイクロ波電力依存性	3.2-12
図 3.2-10 クロストークメカニズム探索のためのチップ	3.2-13
図 3.2-11 クロストークおよび直線性誤差評価の実験結果	3.2-14
図 3.2-12 (a)コバルト線源からの放射線を照射した TES 出力の、マイクロ波多重読出回路に よる読出波形。(b) (a) の立上り部の拡大	3.2-16
図 3.2-13 磁束雑音の周波数依存性	3.2-17
図 3.3-1 測定に使用した線源	3.3-4
図 3.3-2 TES 検出器および CdZnTe 検出器による ^{154}Eu 線源の測定結果	3.3-5
図 3.3-3 TES 検出器と Ge 半導体検出器で取得した原子炉照射された ^{235}U 箔中性子ドシメータ の X 線および γ 線スペクトル	3.3-6
図 3.3-4 原子炉照射された ^{235}U 箔中性子ドシメータの測定結果およびシミュレーション結果の 比較	3.3-7
図 3.3-5 TES 検出器と Ge 半導体検出器で取得した原子炉照射された ^{237}Np 箔中性子ドシメータ の X 線および γ 線スペクトル	3.3-8
図 3.3-6 原子炉照射された ^{237}Np 箔中性子ドシメータと未照射の ^{237}Np 箔中性子ドシメータの X 線および γ 線スペクトルの比較	3.3-9
図 3.3-7 TES 検出器および CdZnTe 検出器による ^{237}Np 線源の測定結果	3.3-10

略語一覧

ADR	: Adiabatic Demagnetization Refrigerator	(断熱消磁冷凍機)
CPW	: Coplanar Waveguide	(コプレーナ線路、コプレーナ導波路)
ETF	: Electro Thermal Feedback	(電熱負帰還)
FPGA	: Field Programable Gate Array	(エフピージーエー)
FWHA	: Full Width at Half Maximum	(半値全幅)
HEMT	: High Electron Mobility Transistor	(高電子移動度トランジスタ)
RIE	: Reactive Ion Etching	(反応性イオンエッチング)
SNR	: Signal to Noise Ratio	(信号対雑音比)
SQUID	: Superconducting Quantum Interference Device	(超伝導量子干渉素子)

概略

核物質の核種分析・同定では、核物質から発生する硬X線、 γ 線や中性子線検出を主な手法とする非破壊測定と、化学分析を主とする破壊測定に大別される。このうち溶媒抽出、沈殿回収等の化学的手法を適用したアクチノイド分析では、精密な定量分析が可能となるが、このような化学分析手法は長時間にわたる煩雑かつ危険な作業を要して極めて非効率であり、しかも用いる溶媒等は大量の放射性廃棄物として事後処理を余儀なくされることとなるなど、大きな問題を抱えている。一方、 γ 線測定による非破壊測定法では、NaI シンチレーション検出器や Ge 半導体検出器を用いて得られた γ 線スペクトルから核物質の組成、定量を行うため、破壊測定法に比べて迅速で、測定効率、作業の安全性に優れている。ただし、既存の放射線スペクトロメータでは最も分光特性に優れる Ge 半導体検出器を用いても Pu や Am 等の核種に起因した γ 線エネルギーピークの分離が不完全であり、正確な核種同定、定量は極めて困難である。したがって、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必要であり、それを確実に成し遂げる計測基盤技術として、Ge 半導体検出器の検出性能を大きく超える超高エネルギー分解能硬X線 γ 線スペクトロメータを適用した革新的な核種同定分析手法の構築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 γ 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) やマイナーアクチノイド全元素を精密に弁別、分析し得る革新的な核種同定分析技術を確立する。本研究の実施者は、本研究課題開始前において、す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、既存ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器より 4~5 倍程度に相当する優れたエネルギー分解能を達成し、さらに 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 γ 線硬X線 TES 検出技術をベースとして、さらなる分光特性の向上を図り 100keV に対してエネルギー分解能 30eV の実現を目指すとともに、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を行うことにより 4mm \times 4mm 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目指している。このような検出性能が達成されれば、98.81keV にある ^{239}Pu とそれよりわずか 190eV しか離れずしかも強度 10 倍の ^{241}Am の γ 線ピークを完全に弁別する等、混在する元素・同位体の γ 線ピークを全て分離できる等、FP 混在下での Pu の定量分析を初めて実現されるばかりか、高レベル放射性廃液中の Pu 計測に用いるハイブリッド K 線吸収端スペクトル法では測定不可能な ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 等、Pu の同位体比の精密な定量分析も可能となる。

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得る可能性を秘めている。本研究では、30eV のエネルギー分解能の達成を最終目標に据えて、検出素子構造の見直しと改良を重ねるとともに、素子冷却に用いる寒剤フリー希釈冷凍機の機械振動低減も図り、エネルギー分解能向上に努めた。また、有感領域拡大を目指した TES アレイ素子の開発の動作実証も進めた。アレイ読出回路の開発では、回路チップの試作、性能評価を通して TES アレイの低雑音かつ低ク

ロストークの読出を実現するための読出回路チップの設計指針を明らかにするとともに、さらに室温エレクトロニクス改良によるダイナミックレンジ拡大を図り、高いエネルギー分解能を維持しつつ TES アレイの信号読出を可能にする多チャンネル信号読出回路を構築した。そして開発した TES 検出システムを用いて高速炉で照射済みの核燃料物質および多種類の線源、核種等から発生する γ 線の精密計測を実証し、本事業で開発した γ 線 TES 検出システムの性能を評価した。

委託先である東京大学では、独自に考案した重金属放射線吸収体を超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサと金バンプポストを介して搭載する硬 X 線 γ 線 TES 検出素子構造をベースに、その重金属 γ 線吸収体における新素材の開拓と切削加工精度の向上、金バンプポストの形状改善等を通して、さらに高いエネルギー分解能の実現と高速応答特性の獲得を目指した。また、素子を冷却するのに用いる寒剤フリー希釈冷凍機において、パルス管プレクーリング機構で発生する機械振動が極低温ステージ上の TES へ伝搬するのを抑制するべく、パルス管モーター部の分離、空気ばねによるプレクーリング機構部の吊り下げ等の改良を重ねて低ノイズ化を図った。その結果、エネルギー分解能は $84\text{eV}@123\text{keV}$ を達成し、さらに冷凍機の温度揺らぎに依存するベースライン揺らぎ成分の除去により、最終到達目標である 30eV の分解能に肉薄する $54\text{eV}@86.4\text{keV}$ 程度のエネルギー弁別特性を有することを確かめた。さらに 4 ピクセルから成る TES アレイ素子を試作し、複数のピクセルの同時動作を達成した。

再委託先である産業技術総合研究所では、TES アレイ信号読出において、配線数を抑制しつつ、各画素からの信号を劣化させずに、多くの画素からの信号を読出得るマイクロ波帯での多重信号読出回路の開発を進めた。TES アレイの高エネルギー分解能を劣化させずに信号読出を行い得るために必要な読出回路の広いダイナミックレンジ、高速応答特性、隣接チャンネルとのクロストーク低減等の主要な技術課題を抽出し、明確な設計指針を立ててチップの改良および回路系の設計を進めた。その結果、構築した 16ch 読出回路システムにおいて、 γ 線 TES 入射応答読出に必要な回路特性が得られた。また、東京大学で作製した γ 線 TES 検出素子をこの読出回路に接続して、実際に γ 線入射信号の検出にも成功した。

再委託先である日本原子力研究開発機構大洗研究開発センターでは、上述にて開発した TES 検出システムを用いて核物質、各種線源からの γ 線検出実証を行い、その分析性能を評価した。これらの測定試験を実施するために、まず放射線作業を伴う試験計画の作成および実験資機材の準備はもちろんのこと、原子炉にて照射済みの試料を取扱うため、核防護の観点からも必要十分なより厳格な規定に基づく作業計画、事前のリスク把握、安全管理等において、綿密な準備を進めた。そして、平成 28 年 3 月に大洗研究開発センター施設内高速実験炉「常陽」サイト内の照射装置組立検査施設 2 階の測定室に東京大学にて開発した TES 検出器システムを搬入して、核燃料物質および RI 物質の測定実験を実施することができた。測定した核種は原子炉照射済みの $U-235$ 箔中性子ドシメータ、 ^{237}Np 箔ドシメータ他である。従来型の放射線測定器による測定も並行して実施した。 ^{235}U 箔中性子ドシメータの測定では、 ^{238}U の中性子捕獲核分裂で生成した ^{137}Cs の β 崩壊で生じる 31.817 keV の $\text{Ba } K_{\alpha 2}\text{-X}$ 線および 32.194 keV の $\text{Ba } K_{\alpha 1}\text{-X}$ 線のピークや、未壊変の ^{235}U の内殻電子が ^{137}Cs の β 線などで弾き飛ばされて生じる 94.654 keV の $\text{U } K_{\alpha 2}$ と 98.434 keV の $\text{U } K_{\alpha 1}$ 特性 X 線のピークが確認できた。また、 ^{237}Np 箔中性子ドシメータの測定では、 ^{237}Np の (n, γ) 反応を起点として最終的に生じる ^{238}Pu の α 崩壊に伴い放出される 43.498 keV の γ 線や ^{237}Np および ^{238}Pu の中性子捕獲核分裂で生じた ^{137}Cs の $\text{Ba } K\text{-X}$ 線等に起因する複数のピークの同

定に成功した。TES スペクトロメータを用いた原子炉照射済み中性子化箔の精密な同位体分析の試みは世界で初めてであるが、今回得られた TES スペクトロメータによる分析結果では、HP-Ge 検出器で得られたスペクトルとの比較において TES の秀でたエネルギー分光性能が活かされて、より顕著に核種から発生する γ 線のピークを分離できており、従来の放射線検出器よりも優れ、十分な実用レベルに達していることが実証されるに至った。

以上の実績を踏まえて、本事業で開発した γ 線 TES 検出技術は、現状においてもすでに核物質計測において実用のレベルに達しつつあるが、さらに大規模アレイ化による有感面積拡大を進めて検出効率を高めることができれば、放射性廃液の非破壊検査のみならず、次世代保障措置にも有効な分析技術として確立し得るものと考えられる。さらに、本技術は、高速炉での精密かつ詳細な燃焼度の分析、核変換による核種の生成、消滅過程の解明や、事故炉での燃料デブリ検査等にも大きな威力を発揮し得る革新的な核物質分析・同定技術として強く期待される。

なお、研究推進を図る上で、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、本事業期間において委託先の東京大学、と再委託先の日本原子力機構大洗開発センターおよび産業技術総合研究所つくば事業所にて、計 3 回の研究推進委員会を開催した。各委員会では、上記成果の達成を報告するとともに、現在の研究開発状況を業務参加者、外部委員の全員で確認した。そして外部の委員を交えた活発な議論が行われた。さらに各委員会終了後には、外部委員には東京大学低温センターでの TES 動作実験、大洗での「常陽」サイト内の照射装置組立検査施設内に設置された TES 検出システムおよび高速実験炉「常陽」、そして産業技術総合研究所つくば事業所での TES を用いた多チャンネル信号読出実証実験と超伝導エレクトロニクスデバイス作製のためのクリーンルーム「CRAVITY」をご視察頂いた。これらの研究推進委員会では、検出器開発の今後の方向性、検出システムの安定性等について意見、質問が数多く出され、また激励を賜り、今後の研究開発における新たな指針が見出された。

1. はじめに

高濃縮ウラン(U)やPu等、軍事転用可能な核物質の厳格な計量管理は、原子力の平和利用を担保するために必要不可欠であり、我が国においても国際社会が許容し得る高精度かつ透明性の高い保証措置を自らが確立することが強く望まれている。特に軍事転用監視の観点からは、Pu、Uの精密な濃度確認はもちろん、Np、Amの代替核物質としての確認、中性子計測を利用し廃液流系のPuをトレースする際に必要となるCm/Pu比などの計測項目において、アクチノイド元素の精密な定量分析が必須となる。しかしながら最近では世界的な原子力発電量の増加により、国際原子力機関IAEAの保障措置業務量は増加しており、限られた人的および機器設備環境のリソースで如何に有効な査察を行うかが課題になりつつある。一方、原子力施設は益々自動遠隔操作化が進み、従来の近接して測定し、また員数を確かめるなどの査察関連業務の実施が益々困難になっている。さらにPu粉末や混合酸化物燃料(MOX燃料)を大量に取扱う施設では、従業員のみでなく査察官の放射線被ばくも考慮する必要性が生じている。これらの問題を解決する手段として保障措置のための高度な技術開発の必要性が益々増大しており、査察対象となる核物質の探知・測定技術の精度向上、測定作業の効率化と測定時間の短縮化、査察作業の安全性確保が急務となっている。

核物質の測定法は、核物質から発生する硬X線、 γ 線や中性子線検出を主な手法とする非破壊測定と、化学分析を主とする破壊測定に大別される。破壊測定法におけるアクチノイド元素分析では溶媒抽出、沈殿回収等の化学的手法を用いて精密な定量分析が可能となる。しかしながら、このような化学分析手法は長時間にわたる煩雑かつ危険な作業を要して極めて非効率であり、しかも用いる溶媒等は大量の放射性廃棄物として事後処理を余儀なくされることとなるなど、大きな問題を抱えている。一方、 γ 線測定による非破壊測定法では、NaIシンチレーション検出器やGe半導体検出器を用いて得られた γ 線スペクトルから核物質の組成、定量を行うため、破壊測定法に比べて迅速で、測定効率、作業の安全性に優れている。ただし、既存の放射線スペクトロメータでは最も分光特性に優れるGe半導体検出器を用いてもPuやAm等の核種に起因した γ 線エネルギーピークの分離が不完全であり、正確な核種同定、定量は極めて困難である。

したがって、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必要であり、それを確実に成し遂げる計測基盤技術として、Ge半導体検出器の検出性能を大きく超える超高エネルギー分解能硬X線 γ 線スペクトロメータを適用した革新的な核種同定分析手法の構築が強く望まれている。このような精密核種同定分析手法は福島第一原子力発電所における事故炉の燃料デブリ調査、計量管理にも威力を発揮し、さらに次世代原子炉における燃焼(核反応)の直接モニタリングをも可能にする等、原子力分野における諸課題の解決と新規技術開拓に大きく貢献するものと考えられる。

そこで、本研究では、核物質から発生する硬X線や γ 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)やマイナーアクチノイド全元素を精密に弁別、分析し得る革新的な核種同定分析技術を確立する。本研究実施者はすでにスズやタンタル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の開発を行い、およそ100mKの極低温にて安定に動作させ、既

存ゲルマニウム(Ge)半導体検出器を大きく超える良好なエネルギー分解能を達成し、さらに 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。本研究ではこの TES 検出技術をベースとして、さらなる分光特性の向上を図り 100keV に対してエネルギー分解能 30eV の実現を目指す。さらにこの 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を行うことにより 4mm×4mm の広い有感面積を達成し、Pu 保障措置や核燃料、廃棄物検査に適用可能な検出システムの構築を進める。

2. 業務計画

2.1 全体計画

核物質から発生する硬X線や γ 線を優れた分光特性を有する超伝導転移端センサ(TES)により分析し、プルトニウムおよびマイナーアクチニド全元素を精密に弁別、分析し得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、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得る。本研究では、高い吸収効率を有するスズ放射線吸収体を搭載した TES により 100keV に対して 30eV の超高エネルギー分解能を実現する。そしてこの 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駆使した多重信号読出を行うことにより 4mm \times 4mm の広い有感面積を実現する。

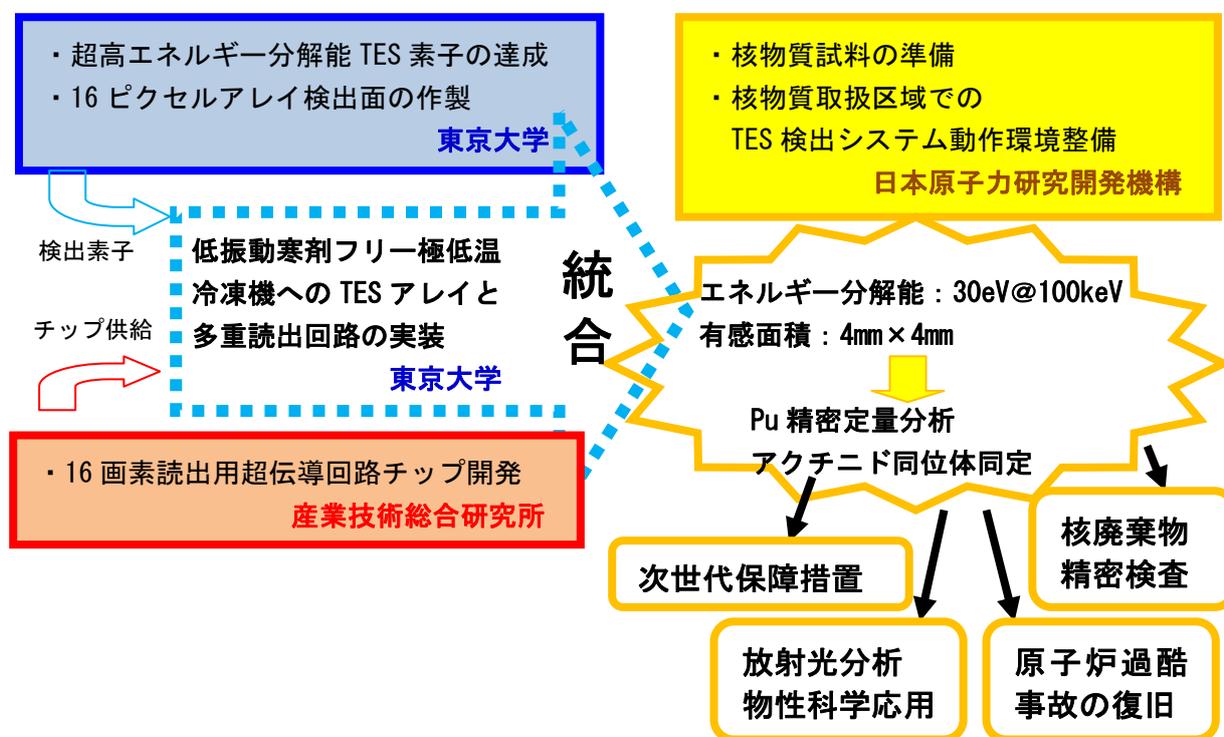


図 2.1-1: 全体計画図

2.2 年度毎の研究計画の概要

(1) 平成26年度

TES 検出素子の開発では、スズ放射線吸収体を超伝導薄膜温度センサ上に搭載するために必要となる金バンプ製ポスト(台座)の個数や配置形状等の工夫により、エネルギー分解能および応答特性の向上が期待される TES 検出素子を試作する。試作検出素子は、極低温冷凍機を用いて冷却し、性能評価実験を実施する。併せて TES アレイ信号読出のために、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出配線の整備を開始する。超伝導同軸ケーブル

を適用した配線体系を設計し、その周波数特性や熱伝導率を評価するとともに、冷凍機内の各温度ステージ上での熱アンカーの取り方も考慮して、TES アレイ信号読出回路動作に必要な信号読出配線を構築する。検出器アレイ多重読出回路の開発では、TES アレイの低雑音読出を実現するための、読出回路チップの基本設計・評価を実施する。また、広いダイナミックレンジを持つ室温信号処理系回路の設計に着手する。核燃料物質等を用いた測定試験では、開発した TES 検出器を用いて核燃料物質等の取扱い施設の管理区域内で核燃料物質等の測定を実施するとともに、従来型の放射線測定器による並行測定やシミュレーション計算等を行い、TES 検出器の基本性能を評価する。研究推進にあたっては、東京大学本郷キャンパスにおいて研究推進委員会を開催する。

(2) 平成 27 年度

TES 検出素子の開発では、検出性能の実現を目指し、金バンプ製ポストが放射線吸収体を支える素子構造の最適化を図るとともに、素子冷却に用いる寒剤フリー希釈冷凍機においてモーター部分離型の低振動タイプのパルス管を新たに導入して振動抑制対策を実施し、さらなるエネルギー分解能向上を目指す。また 4 ピクセルアレイ素子の試作、動作実証を行う。TES アレイ信号読出回路の開発では、低雑音かつ低クロストークの読出を実現するための読出回路チップの設計指針を明らかにするとともに、ダイナミックレンジ拡大を目指した室温エレクトロニクスを改良を実施する。核燃料物質等を用いた測定試験では、開発した TES 検出素子を組み込んだ低振動型寒剤フリー希釈冷凍機を用いて核燃料物質等を用いた測定試験を実施し、今年度は原子炉照射された U-235 試料等の分析実証を試みる。研究推進にあたっては、日本原子力研究開発機構大洗研究開発センターにおいて研究推進委員会を開催する。

(3) 平成 28 年度

TES 検出素子の開発では、H27 年度までの TES 検出素子試作と希釈冷凍機に搭載されたパルス管の振動低減による低ノイズな TES 信号読出環境構築の成果を基に、金バンプポストにて γ 線吸収体を支える構造の最適化を進めて、検出素子の応答特性の向上とノイズの極小化に努め、100keV に対して 30eV の極めて高エネルギー分解能を得られ得る TES 素子の開発を行う。そしてこの TES ピクセル最大 16 個からなる TES アレイを作成し、核物質から発生する硬 X 線 γ 線に対して高い検出効率を有する TES 検出素子を実現する。検出器アレイ多重読出回路の開発では、H27 年度に評価したダイナミックレンジとクロストークに関する課題の解決策を施し、最大 16 画素 TES の出力信号を周波数多重可能な読出回路を実現する。そしてこの読出回路と TES 検出素子アレイを接続し、 γ 線入射信号読出と性能評価を行い、TES 雑音以下の読出回路雑音を実現する。核燃料物質等を用いた測定試験では、開発した TES 検出システムを用いて核燃料物質等の測定試験を実施する。従来型の放射線測定器による並行測定データやシミュレーション計算等により測定データに含まれるバックグラウンド放射線の影響等を評価する。原子炉照射された Np-237 試料からの γ 線スペクトル結果の解析を行うと同時に、そのデータの比較として未照射の Np-237 や Eu-154、Eu-155 等、核燃料物質等を用いた検出実験を行い、TES 検出器の基本性能を評価する。研究推進にあたっては、産業技術総合研究所つくば事業所において研究推進委員会を開催する。

表 2.1-1: 全体スケジュール

年度 項目	平成 26 年度	平成 27 年度	平成 28 年度
(1) 硬 X 線 γ 線検出用 TES アレイ検出器の開発	要素研究フェーズ (エネルギー分解能向上、信号読出回路開発)		統合、検証フェーズ (大規模アレイ、アレイ信号読出)
	① TES による高エネルギー分解能と高速応答の実現 (東京大学)		
② TES アレイの試作と動作実証 (東京大学)	素子構造の改善・最適化		
		除振強化・低ノイズ化	
(2) 検出器アレイ多重読出回路の開発 (産総研)	アレイ素子評価準備	4ピクセル作成	16ピクセル作成
	低雑音化	ダイナミックレンジ拡大・クロストーク評価・高速化	読出性能評価
(3) 核燃料物質等を用いた測定試験 (原子力機構)	放射線源を用いた検出実験	照射燃料を用いた検出実験	核燃料等を用いた検出実験
	委員会の開催	委員会の開催	委員会の開催
(4) 研究推進			

3. 業務の実施内容および成果

3.1 硬X線γ線検出用 TES アレイ検出器の開発

3.1.1 TESによる高エネルギー分解能と高速応答の実現

(1) 核物質分析用γ線スペクトロスコピーにおける高エネルギー分解能の必要性

本研究では、核物質から発生する硬X線やγ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、分析し得る革新的な核種同定分析技術を確立することを目指している。本研究実施者はすでにスズやタンタル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の開発を行い、およそ100mKの極低温にて安定に動作させ、既存ゲルマニウム(Ge)半導体検出器より4~5倍程度に相当す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が、FP混在下でのPuの定量分析を確実にを行うためには、98.81keVにある²³⁹Puとそれよりわずかに190eVしか離れずしかも強度10倍の²⁴¹Amのγ線ピークを完全に弁別する等、混在する元素・同位体のγ線ピークを全て分離しうる、より一層高い分析能力を有するスペクトロメータが求められる。ゆえに本研究項目においては、硬X線、γ線のピーク分離能力として100keVに対して30eV以上のエネルギー分解能を実現することを目標としている。

(2) TESマイクロカロリメータの動作原理

本研究では、核物質から発生する硬X線やγ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、マイクロカロリメータの構造は極低温に冷却された放射線吸収体と温度センサが弱い熱コンダクタンスを持った熱リンクで外部の熱浴と接合されたものである。吸収体がX線、γ線等の放射線にさらされると入射光子から吸収したエネルギーのために温度上昇が生じる。この時、温度センサと外部の系を結ぶ熱リンクの熱伝導が悪いために吸収体と温度センサの温度上昇 ΔT はX線光子のエネルギーをE、吸収体と温度センサ合計の熱容量をCとして

$$\Delta T = \frac{E}{C} \quad (3.1.1)$$

と書ける。カロリメータではフォノン生成に必要なエネルギーは数 μ eV程度と極めて低いためにX線入射に伴って生成するフォノン数は膨大な数になり、従来の検出器に比べ優れたエネルギー分解能の実現が可能である。超伝導転移端センサ(TES)は超伝導体の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センサで、この狭い転移領域でTESを安定に動作させるために強い電熱フィードバックを用いる。図3.1-1にTESマイクロカロリメータの動作原理概念図を示す。TESおよび吸収体の温度をTとし、TESに一定の電圧 V_0 を印加するとTESの転移領域中の抵抗Rにより

$$P = \frac{V_0^2}{R} \quad (3.1.2)$$

のジュール加熱が生じ、これと系から熱コンダクタンスを介して逃げる熱量とが等しくなる点で安定にバイアスされる。X線光子が入射されるとTESの温度が上昇し抵抗Rは転移

カーブに沿って上昇するが、R の増大に伴いジュール発熱は減少して、系が冷える方向に負の熱的なフィードバックが発生することとなる。この熱的フィードバックをETF(Electro Thermal Feedback)と呼ぶ。なお定電圧バイアス下では R が増大するにつれて TES を流れる電流が減少するが、この電流減少は微小変化であるために一般的に超伝導量子磁束干渉素子(SQUID)を用いて検出され、これより光子入射のエネルギーが測定される。強い電熱フィードバック下では、入射 X 線のエネルギーは TES を流れる電流変化を ΔI とすると

$$E = V \int \Delta I dt \quad (3.1.3)$$

と表せる。またエネルギー分解能は、フォノンノイズとジョンソンノイズを考慮して

$$\Delta E_{(FWHM)} = 2.36 \sqrt{4kT_c^2 C(1/\alpha)\sqrt{n/2}} \quad (3.1.4)$$

で表される¹⁾。ここで k はボルツマン定数、 $\alpha = d \log R / d \log T$ は転移の傾きを表す値、 n は熱伝達の温度に依存した定数である。100mK 程度の動作温度を持つ TES 薄膜では $n=3 \sim 5$ になることが報告されている。ETF-TES マイクロカロリメータでは光子入射による温度上昇が元の定常状態に帰還する際にジュール加熱が減少するために ETF-TES マイクロカロリメータの応答速度は

$$\tau_{ETF} = \left[1 + \frac{\alpha}{n} \left\{ 1 - \left(\frac{T_{bath}}{T} \right)^n \right\} \right]^{-1} \frac{G}{C} \approx \frac{n}{\alpha} \frac{G}{C} \quad (3.1.5)$$

で表され¹⁾、 $\alpha=500$ と仮定すると理論的にはカロリメータの本来の熱的な時定数 $\tau_{eff} = C/G$ よりも 2 桁程度速くなり、計数率特性が改善される。

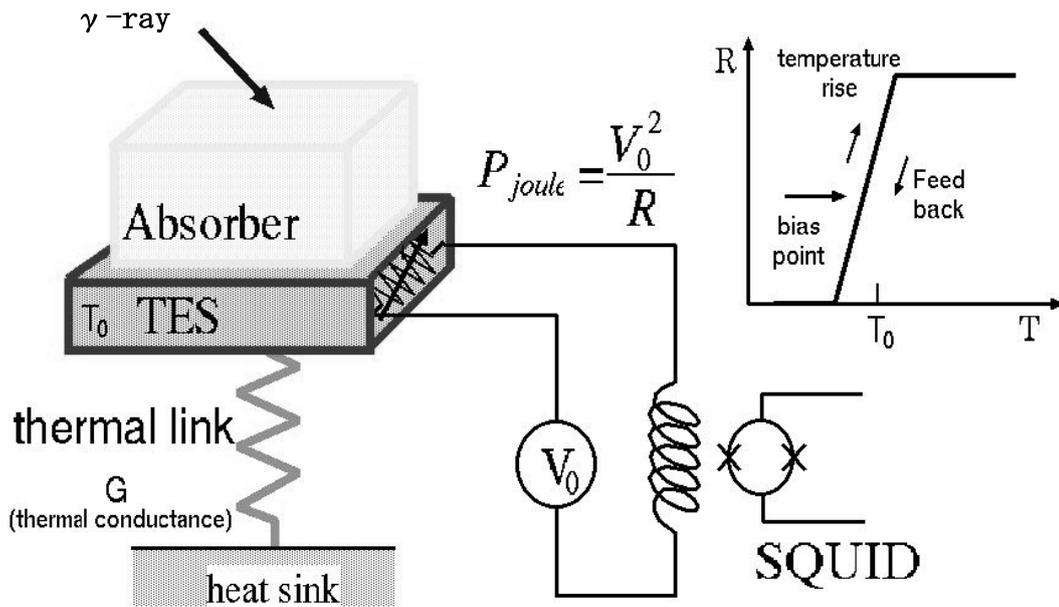


図 3.1-1: ETF-TES マイクロカロリメータ動作原理概念図

(3) TES 検出素子の設計 (H26)

①超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサ部

マイクロカロリメータのエネルギー分解能は式(3.1.4)より、温度 T に比例することがわかる。TES マイクロカロリメータにおいてこれは超伝導体の転移温度そのものであるため、転移温度が低くなる程エネルギー分解能は向上することになる。したがって、一般的には単一の超伝導金属薄膜をそのまま TES に用いるのではなく、これに常伝導金属薄膜を重ねた二重層薄膜とし、近接効果によって転移温度を低下させたものが用いられている。ここで近接効果とは、超伝導体と常伝導金属が界面で接触している場合に、超伝導体中のクーパー対が数十 μm オーダーで常伝導金属側に染み出すことにより、超伝導体が元々持っている超伝導特性が低下し、常伝導金属が超伝導性を示すようになる。

現在の極低温冷凍機技術の下で安定的に TES マイクロカロリメータを運用し、かつ高いエネルギー分解能を得るためには、TES の転移温度が 100 mK 程となることが望ましい。これまでに、国内外の各研究機関において TES に用いられている主な超伝導金属としては主にモリブデン(Mo)とチタン(Ti)が挙げられる。Mo は 900 mK と比較的高い転移温度であるため、近接効果により転移温度を下げるためには、Cu もしくは Au といった常伝導金属の膜厚を精密に制御しつつ分厚く積膜しなければならない。また、Ti は化学的安定性に欠け、Ti/Au 積膜プロセスにおいて高真空度を達成するチャンバーや Ti 積膜と Au 積膜の間の時間短縮等の条件が求められる他、検出素子の長期的な運用においても不安定性が残る。

本研究実施者である東京大学では超伝導イリジウム(Ir)を適用した TES の開発を進めてきた²⁾。Ir はバルクで 112 mK と非常に低い転移温度を持ち、しかも白金族元素であり極めて化学的に安定であり、長期的な検出器の運用が可能となる。ただし Ir は低温にて電気抵抗率が比較的高く、熱伝導性に乏しいという欠点があり、Ir の単一薄膜を TES とし、用いると、薄膜内部で生じる温度勾配により超伝導状態と常伝導状態の部分に分離し、放射線入射応答に対して強い入射位置依存性が生じてエネルギー分解能を著しく劣化させてしまうことが先行研究により明らかとなっている。この超伝導 Ir 薄膜の低い熱伝導率に起因した問題点を回避するべく、我々は Ir 膜の上に熱伝導性の良い Au を成膜した Ir/Au 近接二重膜を TES に適用し、X 線検出においては良好な検出特性を得ることに成功している。そこで本研究で用いる検出素子の温度センサ部においても、Ir:100 nm 厚、Au:10 nm 厚から成る Ir/Au バイレイヤ薄膜の適用をベースとしている。

② γ 線吸収体部

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、高い吸収効率と低い減衰長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。しかしながら、マイクロカロリメータのエネルギー分解能は $d^{1/2}$ 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は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ことが報告されている。一方で、錫(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³⁾⁴⁾。図 3.1-2(上)に示すように、100 keV における錫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、錫(Sn)と比較して吸収効率に優れる鉛(Pb)を放射線吸収体に導入した例があり、本研究の実施者はこれまでに 662 keV の¹³⁷Cs 線源に対して 4.7 keV FWHM のエネルギー分解能を得ている⁵⁾。図 3.1-2 (下) に示すように、100 keV の γ 線に対して鉛は 53.2 と高い光電吸収/コンプトン散乱反応断面積比を得られる。しかしながら、鉛(Pb)は錫(Sn)と比較して熱容量が 6 倍程高く 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。したがって本研究では、100keV 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錫(Sn)を選択した。また、さらに 100keV 領域においてより高い吸収効率を得ることと同時に数 100keV~1MeV のエネルギー領域の γ 線に対しても実用に耐え得る検出効率を得ることを目的としたタンタル(Ta)吸収体を搭載する TES の開発も行った。

100 keV 付近のエネルギーの強い γ 線の検出には、十分な吸収効率を得られるだけの吸収体厚さが必要となる。このため、鉛よりも熱容量の小さい 0.3 mm 厚の錫を用いた。図 3.1-3 は 0.3 mm 厚における錫の吸収効率を表しており、100 keV の γ 線に対して約 31%である。吸収体の体積は検出器の大部分を占めており、その熱容量は大きな値となる。入射 γ 線は吸収体内で熱化され、TES はその熱によって生じた抵抗変化を基に信号を読み出す。第 2 章で述べたように、マイクロカロリメータのエネルギー分解能はフォノン数の揺らぎによって決まるため、吸収体の熱容量をできるだけ低くすることが望ましい。

極低温においては、物質の格子比熱はデバイの T^3 近似を用いて次式で表せる。

$$C_v \cong \frac{12\pi^4}{5} NK_B \left(\frac{T}{\theta}\right)^3 \cong 234 NK_B \left(\frac{T}{\theta}\right)^3 \quad (3.1.6)$$

ここで、N は物質中に含まれる全原子数、 θ はデバイ温度である。物質の格子比熱は温度の 3 乗に比例するため、吸収体を十分に冷却することで、その熱容量を極小にすることができる。鉛($\theta=105$ K)と錫($\theta=200$ K)ではデバイ温度が約 2 倍異なるため、例えば 100 mK における 0.5 mm 角 \times 0.3 mm 厚のそれぞれの熱容量を比較すると、 $C_{Pb}=6.9$ (pJ/K)、 $C_{Sn}=1.1$ (pJ/K)となり、錫は鉛の 6 倍程熱容量が低い。ゆえに TES の γ 線吸収体として求められる熱容量の低減を図る上で、錫は鉛よりも適している。

③ γ 線吸収体を超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサ上に搭載する構造の検討

入射 γ 線を吸収しそのエネルギーを熱に変換する γ 線吸収体と高感度な温度センサとして働く超伝導薄膜間の熱伝導率を最大限高めることにより、 γ 線 TES は高い信号波高値と信号応答の高速化を実現し得るものと考えられる。また近年、TES 薄膜素子内の熱伝導率により生じる TFN (Thermal Fluctuation Noise)の存在が近年指摘され、これがエネルギー分解能劣化の一因となるため、検出素子の熱伝導率の向上を目指した研究開発が注目されている。このような TFN は γ 線 TES における γ 線吸収体部と超伝導薄膜温度センサ間の熱伝導率においても同様の論理にてエネルギー分解能低下の要因となり得ると我々は考え

ており。ゆえに本研究では他研究グループに先駆けて γ 線吸収体- TES 間の熱伝導率を向上させた検出素子の動作実証を行っている⁶⁾。

超伝導薄膜温度センサは熱的に外部の系から隔離し適度に弱い熱リンクを形成させるため、約 500 nm 厚の極めて薄い SiN メンブレン上に成膜されている。このため、SiN メンブレンの機械的強度は低く、吸収体搭載用ポストの作製技術は大きく制限を受けている。

従来、 γ 線 TES マイクロカロリメータでは、超伝導薄膜上にスタイキャスト製エポキシや SU-8 などのポスト（台座）を作製し、その上に吸収体を搭載する手法が取られている。このような素子構造を採用することにより、重金属バルク放射線吸収体と超伝導薄膜温度センサはポスト部を介してのみ熱的に接触することとなり、吸収体内への放射線入射により発生した熱を逃がすことなく、全て超伝導薄膜温度センサに伝達することが可能となる。もし仮にポストを構築せずに、直接、重金属放射線吸収体を超伝導薄膜温度センサ上にエポキシ等を用いて固定したならば、エポキシが固化しないうちに重金属放射線吸収体の自重でエポキシの接着領域が拡大して、わずか 250 μ m 角の超伝導薄膜の外側の窒化シリコンメンブレン上にはみ出してしまふ恐れがある他、重金属放射線吸収体が超伝導薄膜センサに対して傾いた状態で固定され、吸収体がポスト以外に窒化シリコンメンブレン上に直接接触するなどして、吸収体内で発生した熱による温度パルスを超伝導薄膜温度センサに伝達せずに外部の熱浴に直接に流出させてしまふ熱的なリークが発生する等の問題を引き起こす可能性が著しく高くなる。このような熱的なロスを抑制するため、放射線吸収体を搭載するためのポスト（台座）は極めて重要な働きを担っている。米国国立標準技術研究所(NIST)では SU-8（感光性厚膜フォトレジスト）製のポストを採用している。この手法の利点はフォトリソグラフィ技術によって均質かつクリーンルーム内で一貫してポスト作

表 3.1-1: SU-8、スタイキャスト、Au、Ag の熱伝導率

	SU-8	Stycast 2850FT	Au	Ag
Thermal conductivity [W/mK]	0.3	1.28	546	235

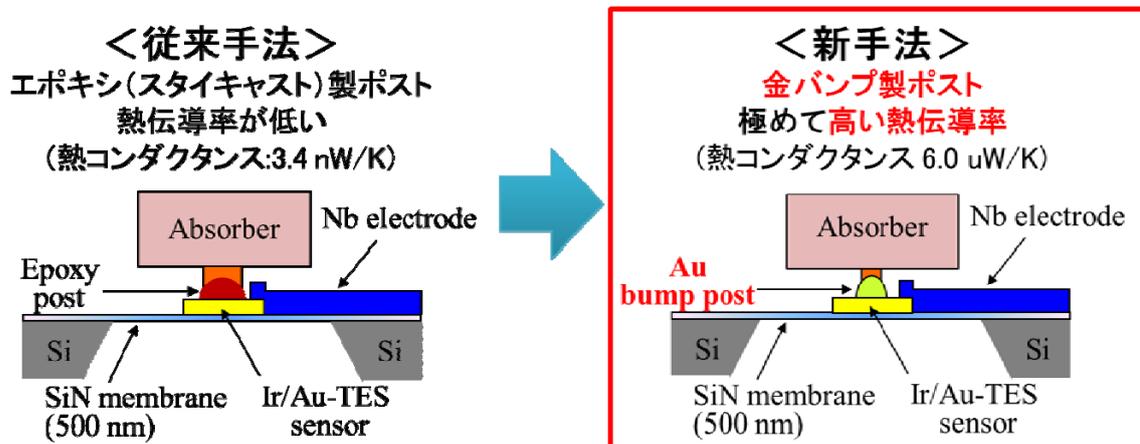


図 3.1-2: 金バンプ製ポストを用いた γ 線 TES

成を行えることにある。しかしながら、表 3.1-1 に示すように SU-8 は感光性の厚膜フォトレジストでありその熱伝導度は $G_{\text{SU-8}} = 0.3 \text{ W/mK}$ とかなり低く、 γ 線吸収体と超伝導温度センサ間の熱コンダクタンスを著しく低下させる要因となり得る。そこで、本研究では熱伝導率の極めて高い金(Au)に着目し、図 3.1-2 に示すようにワイヤーボンディングマシンを用いて超伝導薄膜上に Au バンプ製のポストを作製した γ 線 TES マイクロカロリメータを考案した。

金線を用いたワイヤーボンディングマシンは通常 IC チップなど半導体の電極の 2 点間をワイヤで電氣的に接続する装置で、ワイヤ先端のボールとターゲットを接触させた状態で熱、荷重そして超音波を加えて接着させる。この装置で接着した 1 つ目のバンプのみをポストとして利用することにより、吸収体内で生じた熱を高い熱コンダクタンスで TES へ伝達可能な素子構造を実現した。また、ワイヤーボンディングマシンを用いる際はワイヤとターゲット面の相性が重要となるが、本研究の超伝導薄膜は表面に数 nm の Au が成膜してあるため金線との高い接合性が得られる。

また、前述の通り優れたエネルギー分解能を有する γ 線 TES マイクロカロリメータを実現するためには熱容量を低減することが必要不可欠であるが、これは γ 線吸収体部のみならず、吸収体を支えるポスト部においても同様である。従来のエポキシ製ポストではスタイキャストの制御が困難なため、塗布量にばらつきが生じていた。しかしながら、Au のバンプ製ポストは均質なポストの作製が可能となりアレイ化した際の歩留まり率の向上に寄与する。そして Au は常伝導金属であるためその熱容量は大きな値となるが、直径 60 μm 程に極小化することが可能となるため、ポスト部の熱容量の低減かつ均質化に繋がる。

極低温における常伝導金属の熱容量は電子からの寄与が支配的となるため、転移温度よりも高い場合、その熱容量は次式で表せる。

$$C(T) = \frac{\rho}{A} \gamma VT \quad (3.1.7)$$

ここで、 A は原子量、 γ は定圧モル比熱、 V は試料の体積を表す。

式(3.1.7)より、本研究で用いた Au バンプの熱容量は 0.1 pJ/K と求まり、スタイキャストのみを用いた場合の 7.6 pJ/K と比較して 76 倍小さいことがわかる。

また、極低温における常伝導金属の熱コンダクタンスは Wiedemann-Franz 則より、

$$G = \frac{L_0 T}{R} \quad (\text{ただしローレンツ数: } L_0 = \pi^4 K_B^2 \frac{\pi^4 K_B^2}{3e^2} = 24.4 \text{ nW} \cdot \Omega \cdot \text{K}^2) \quad (3.1.8)$$

と求まる。これより Au バンプの熱コンダクタンスは 6.0 $\mu\text{W/K}$ と求まり、ゆえに表 3-1-2 に示す通りスタイキャストの 3.4 nW/K と比較して 3 桁高く、 γ 線吸収体-超伝導薄膜

表 3.1-2: エポキシ製ポストと金バンプ製ポストの比較

ポスト	形状	熱コンダクタンス	熱容量
エポキシ (Stycast 2850FT)	$\Phi \sim 150 \mu\text{m}$ 、 200 μm 厚	3.4 nW/K	7.6 pJ/K
金(Au)	$\Phi 60 \mu\text{m}$ 、 15 μm 厚	6.0 $\mu\text{W/K}$	0.1 pJ/K

温度センサ間の優れた熱伝導性を実現する。

(4) γ 線 TES 検出素子の作製プロセスの確立 (H26)

重金属バルクの γ 線吸収体を金バンプ製ポストを介して超伝導 Ir/Au 温度センサ薄膜上に搭載した TES 検出素子の作製プロセスを図 3.1-3 に示す。まず両面研磨 Si ウエハ

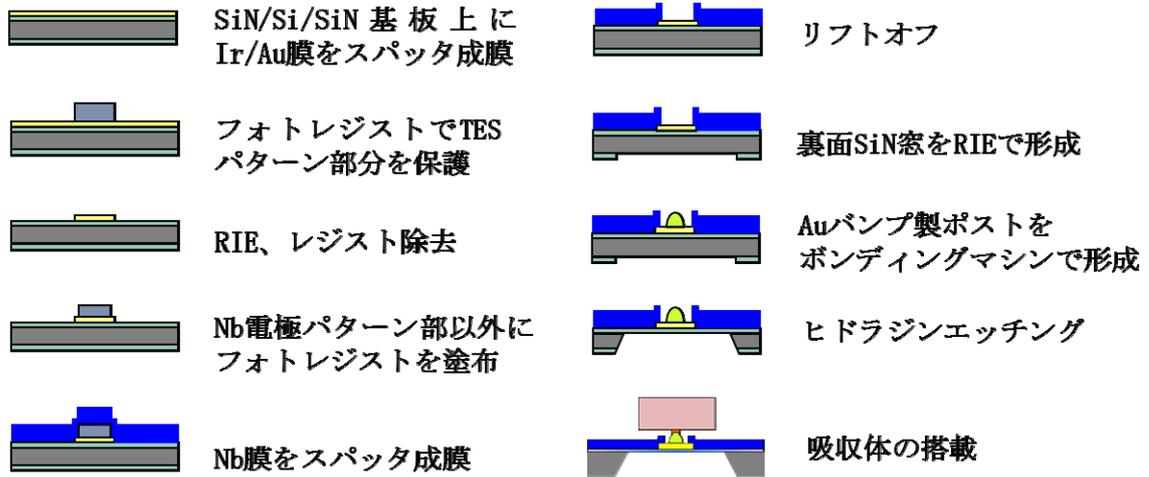


図 3.1-3: 金バンプ製ポストを用いた γ 線 TES の作製プロセス

(350 μ m 厚)の両面に Si₃N₄膜 (500nm または 1 μ m 厚) を LPCVD で積膜した基盤を 2cm 角サイズにダイシングし、この 2cm 角基盤にて TES 作製プロセスを実施する。この Si₃N₄膜付き Si 基盤の表面に研究実施者 (東京大学) が占有する RF スパッタ装置にて、300 $^{\circ}$ Cの基盤加熱下で Ir 膜 (100nm 厚) および Au 膜 (10nm) を続けて製膜する。次に BCl₃ガスによる反応性イオンエッチング (Reactive Ion Etching; RIE) によって Ir/Au をエッチングすることにより TES パターンを形成する。さらにスパッタリング製膜およびリフトオフ法を用いて超伝導 Nb 電極 (T_c=9K 以上) を積膜・成形する。この Nb 電極作製プロセスでは理化学研究所 (和光) の THz イメージンググループが所有する設備の協力を得ている。そして裏面より主に CH₄ガスを用いる RIE により Si₃N₄膜を除去して、Ir/Au 膜下部にある Si 基盤部を深堀エッチングするための窓を作製する。そしてこの段階にて、表面の Ir/Au 膜上に重金属製 γ 線吸収体を搭載するために用いる金バンプポストをあらかじめ作製しておく。最後に裏面よりヒドラジン水和物の溶液を用いて Ir/Au 膜下部にあるシリコンを完全に除去し、超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサが Si₃N₄膜のみで保持されるメンブレン構造を完成させる。そして最後に顕微鏡やマニピュレータ等を用いて位置制御しつつ金バンプポスト上にごく少量のスタイクキャストエポキシを塗布した後、重金属バルク製 γ 線吸収体を搭載・固定して、検出素子を完成させる。なお、TES に搭載する錫バルク放射線吸収体の切削加工時には、切断時に角 (エッジ) 部にバリ等が残らず、また切断面が滑らかになるような処理を施している。放射線吸収体の断面の滑らかさは、 γ 線入射時に発生するフォノンが伝搬する際に、反射、散乱等を抑制し、熱特性の向上に寄与すると考えられる。

(5) 試作検出素子の冷却および検出特性評価 (H26~H27)

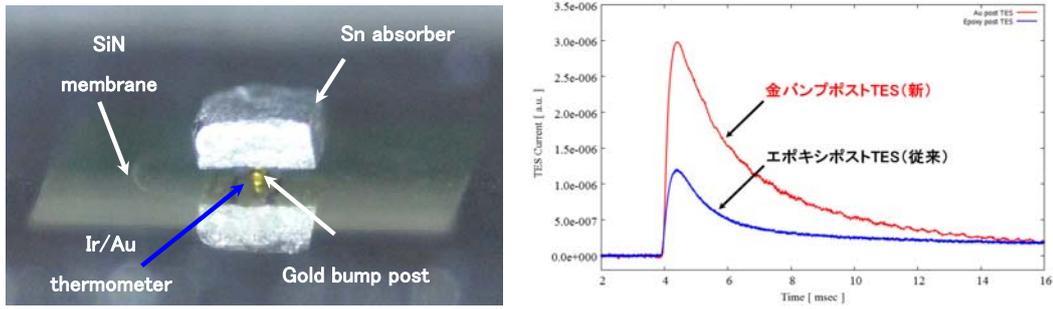


図 3.1-4: Au バンプ製ポスト γ 線 TES の顕微鏡写真(左)、および Au バンプ製ポスト TES とエポキシ製ポスト TES による、 ^{241}Am (59.5 keV) の平均波形の比較

ES 素子を顕微鏡で観察した写真の例を図 3.1-4(左)に示す。本素子は $250\ \mu\text{m}$ 角、約 $100\ \text{nm}$ 厚の超伝導 Ir/Au 薄膜は約 $1\ \mu\text{m}$ 厚の SiN メンブレン上 ($1.5\ \text{mm}$ 角) に製膜され、Ir/Au 薄膜上には直径約 $60\ \mu\text{m}$ の Au バンプ製ポストを介して約 $0.5\ \text{mm}$ 角、約 $0.3\ \text{mm}$ 厚の重金属製 Sn 放射線吸収体が搭載されている。試作した TES 検出素子を SQUID 電流増幅器と接続し希釈冷凍機のコールドステージ上に搭載して、コールドステージ (熱浴) の温度を $115\ \text{mK}$ にて一定に保ち、TES に定電圧を印加して動作させる。TES を流れる電流は SQUID 増幅器チップ上にて磁束に変換され、dc-SQUID アレイを用いてその磁束変化を検出することにより電流増幅を行い、 γ 線入射に対する信号応答を計測した。極低温下での常伝導抵抗 $R_n=817\ \text{m}\Omega$ を有する検出素子において、素子の動作抵抗が 30%の値となる条件にて TES を定電圧バイアスして、 ^{241}Am 線源からの γ 線を冷凍機のベリリウム窓を通して TES に照射して得られた光電ピーク ($59.5\ \text{keV}$) に相当するイベントの信号応答波形を図 3.1-4 (右) に示す。なおこの図には、比較として従来のエポキシ製ポストを用いて同じ大きさの錫吸収体を接続した検出素子の入射信号応答波形も示されている。この図より従来の TES での応答と比較して 2 倍以上の高い信号波高値、すなわち高 S/N 比が得られていることがわかる。これは、吸収体-TES 間の熱伝導率を向上させたことにより吸収体内で生じた熱が高効率で TES へ伝達されたことに起因すると考えられる。さらに、この信号応答波形を解析すると、それぞれの信号立下りにおいて、速い立下り時定数での立下り部に続き遅い立下り時定数を持つ立下り部が続くような構造を有しているが、このうち遅い立下り成分の減衰時定数は、金バンプ製ポストを用いた素子において $8\ \text{ms}$ であるのに対して、エポキシ製ポストを用いた素子において $24\ \text{msec}$ と見積もられ、3 倍程度の高速化が図られていることも明らかになった⁶⁾。ゆえに金バンプ製ポスト γ 線 TES は S/N 比の向上に寄与するだけでなく、これまで計数率を制限していた立下り波形の遅い時定数成分の高速化を実現している⁷⁾。

(6) 検出素子設計および作製プロセス最適化による信号波高値増大と応答高速化 (H27~H28)

① γ 線入射信号波形立下り部に見られるキックの改善と応答高速化 (H27)

前述の図 3.1-4 (右) で示した信号を検出した素子において、さらに詳細な信号応答波形の解析を進めたところ、熱浴温度 $110\ \text{mK}$ 、バイアス点 $28\%R_n$ においては ^{241}Am (59.5

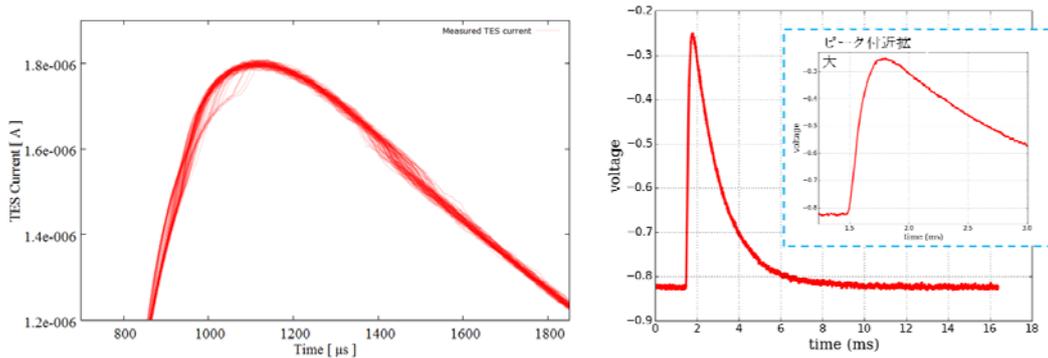


図 3.1-5: γ 線入射応答波形に見られるキंक部（波形のねじれ）（左）、ポスト構造の最適化を図った検出素子の γ 線入射応答波形（右）の比較

keV)の波形の立上りと立下りに図 3.1-5 (左) に示すような信号波形が不安定になってジャンプしているようなキंक部（波形のねじれ）があることが判明した。このような、特に波形立下り部に生じるキंक部については、エネルギー分解能の劣化の主要な要因になり得るため、このキंक部の発生する原因とその抑制は分光特性の向上を目指す上で重要な課題と言える。信号立下りのキंक部の発生メカニズムの詳細についてはまだ解明されていないが、例えば低エネルギーX線検出用の超伝導薄膜のみで構成させる（超伝導薄膜温度センサが放射線吸収体の役割も兼ねる）素子においては確認されず、重金属バルク放射線吸収体を搭載した TES に見られる特有の現象であることから、我々はこのキंक発生が、放射線吸収体と超伝導薄膜温度センサ間の熱的な結合状態に起因しているのではないかと考えている。そこで、金バンプ製ポストの先端を少し潰して（歪ませて）重金属放射線吸収体との接地面積を広げるような工夫を施し、また、搭載する重金属放射線吸収体の固定に用いるスタイキャストエポキシの量を少し増加させて素子の作製を試みた。重金属放射線吸収体搭載におけるエポキシ添加はごくわずかで、その調整はデバイス作製者の経験、試行錯誤によるところが大きく、エポキシ添加量の定量化は非常に難しいが、このようにして金バンプ製ポスト形状とそのエポキシ添加の工程を改良して得られた素子の写真と Np-237 核種から発生する 86.4keV の γ 線入射応答信号波形を図 3.1-5(右) に示す。信号入射応答波形の立上り、立下り部とも、顕著なキंक部の発生は見られない。また、重金属放射線吸収体と金バンプ製ポストの間の熱接触が改善されたことに起因して、信号立下りの時定数 $\tau_{\text{etf}}=1\text{msec}$ 程度になり、これまでの 2msec 以上の立下り時定数に比べ 2 倍以上、応答高速化が図られている。この他、Eu-154 核種からの γ 線計測により得られたエネルギースペクトルにおいても、 $84\text{eV}@123.1\text{keV}$ のエネルギー分解能を達成している。今回の放射線吸収体を支えるポスト構造の改良、最適化が直接的にキंकの抑制改善に作用しているかどうかについては、今後の素子作製の反復、再現を通してより多い統計に基づいた判断が必要になるが、検出素子の熱特性向上を図る上で、金バンプ製ポストとその上のエポキシ添加の構造の改良が極めて重要なポイントであることは示された。

②金バンプポストの個数を増加させた素子の試作と応答特性評価 (H28)

前述のように、 γ 線吸収体と Ir/Au 薄膜温度センサを接続する金バンプポストの特性により優れた応答特性を実現し得ることが明らかになったが、本研究実施者はこの金バンプ

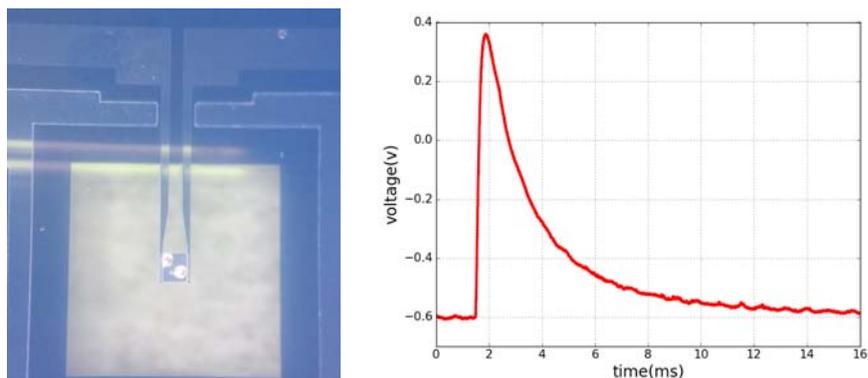


図 3.1-6: Ir/Au 薄膜温度センサ上に作製された 2 個の金バンプポスト(左)、2 個の金バンプポスト上に錫吸収体を搭載した TES 素子で得られた Eu-154 核種からの 123keV γ 線入射信号応答波形

ポストの個数を増加させることにより、検出素子の機械的強度を高める (γ 線吸収体がポストから外れてしまうリスクを低くする) とともに、応答速度高速化や S/N 比の増大等においてさらなる応答特性向上が期待できるものと考えた。そして図 3.1-6 (左) に示す通り、250mm 角の Ir/Au 薄膜上の対角線上に 2 個の金バンプポストを配し、その上に 0.5mm 角、0.3mm 厚の錫吸収体を搭載した検出素子を試作し、その応答特性を評価した。図 3.1-6(右)に Eu-154 核種からの γ 線を計測して得られた 123keV の γ 線による光電吸収イベントを推定される検出信号応答波形を示す。常伝導抵抗値やバイアス条件も異なるため、同一条件での比較とはならないが、信号波高値は増大しているものの、信号の立下り時定数は、図 3.1-5 (右) に比べて 2 倍以上増大しており、我々の期待とは異なる結果となった。この原因について、金バンプポストは常伝導金属であるため、電子比熱の増大に伴う熱容量の増加が避けられず、これが検出器の応答速度時定数の劣化をもたらしているものと考えられる。したがって、 γ 線吸収体を支える金バンプポストの個数の増加は、素子の機械的強度を高める効果は認められるものの、必ずしも応答高速化には貢献しないことが明らかになった。ただし、金バンプポストの形状最適化については、バンプポスト作製に用いる金線の径を細いものに改めれば、重金属バルク製 γ 線吸収体搭載時の安定度を高めると同時に、応答高速化も達成し得る可能性を秘めているものと考えられる。

(7) γ 線 TES のエネルギー分解能の改善と熱浴温度揺らぎの影響 (H27~H28)

図 3.1-5 (右) の信号波形を示す検出素子を用いて Np-237 核種からの γ 線を計測したスペクトルを図 3.1-7 (上) に示す。86.5keV 付近に Np-237 核種からの γ 線の光電吸収ピークが見られる他、それに起因した Sn のエスケープピーク、および U や Pa 等の蛍光 X 線のピークも確認できる。なお、このスペクトルにおいて 86.5keV のピークのエネルギー分解能は 89eV (FWHM) と見積もられる。ところで、超伝導転移端センサは温度センサに用いられている超伝導薄膜の超伝導転移温度 (100mK 近傍またはそれ以下の温度) より十分に低い温度まで極低温冷凍機を用いて冷却し、検出素子を動作させる。この超伝導薄膜の超伝導転移温度と極低温冷凍機のコールドステージ (熱浴) の温度の差の勾配は、放射線入射により発生する検出素子内の熱を冷却するためのみならず、TES 検出器の定常時の動作

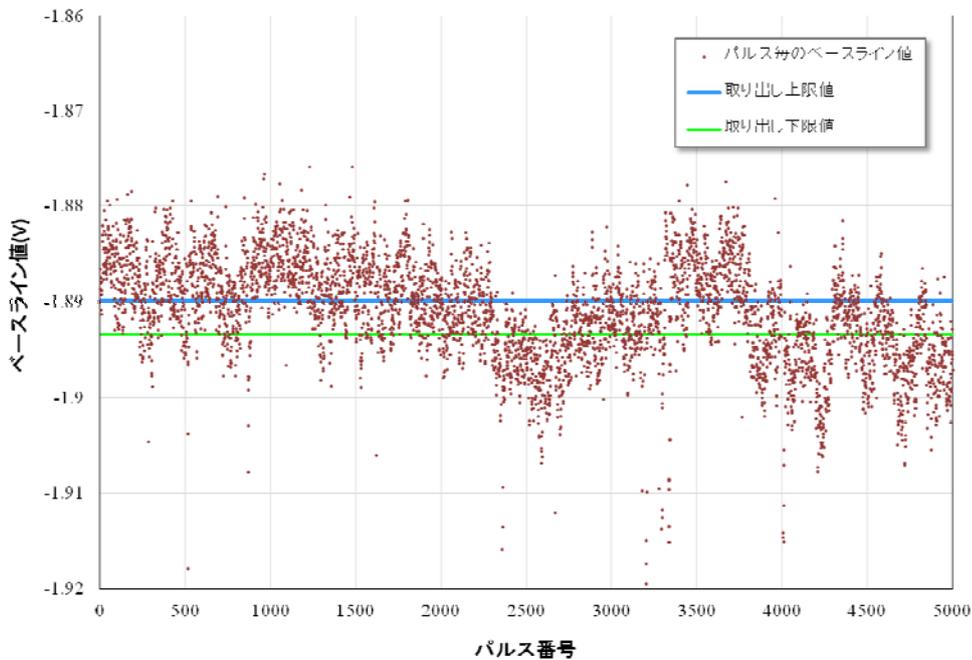
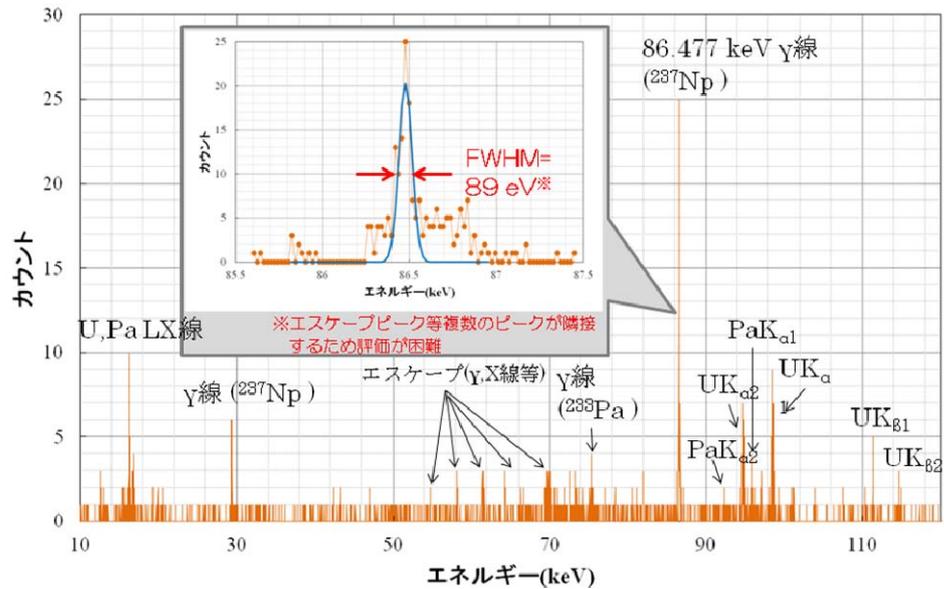


図 3.1-7: TES による Np-237 核種からの γ 線エネルギースペクトル[枠内: 89keV 付近の γ 線ピークを拡大したスペクトル](上)と、Np-237 核種からの γ 線計測時の出力ベースラインの変動 (下)

において、超伝導薄膜内部を流れる電流により発生するジュール発熱を窒化シリコンメンブレンで構成させる弱い熱リンクを介して徐熱する役割をも担っており、極めて重要な働きをしている。しかしながら、何らかの要因により、この温度勾配の差が変化すれば、素子内のジュール発熱と検出器外部へ逃げる熱量のバランスが崩れて、素子の動作（バイアス）点が移動することとなり、そうなれば、TES を流れる電流および電流感度（検出感度）に変異を生じさせることとなる。これは TES の分光精度を大きく劣化させる原因となり得る。この温度勾配を同じ状態にて保持するためには、冷凍機のコールドステージ（熱浴）の温度は可能な限り一定に保たねばならない。通常、この希釈冷凍機極低温部の温度

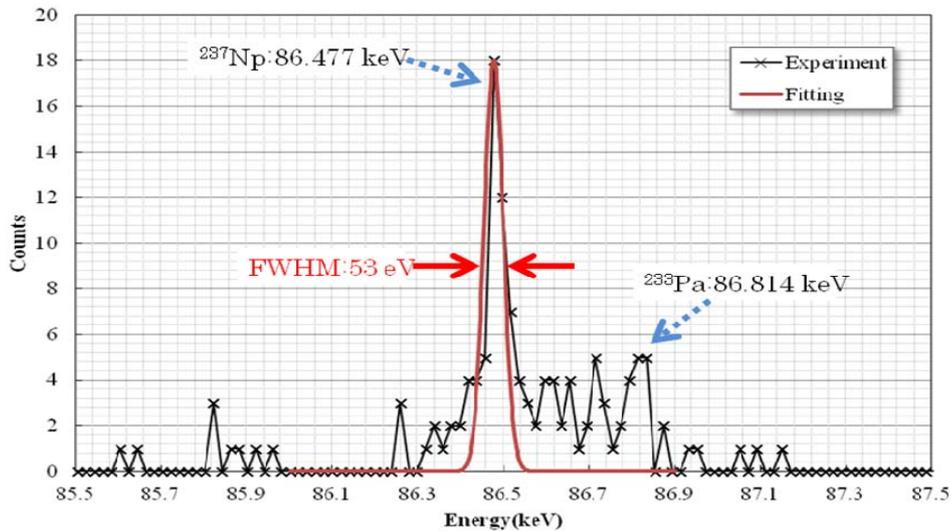
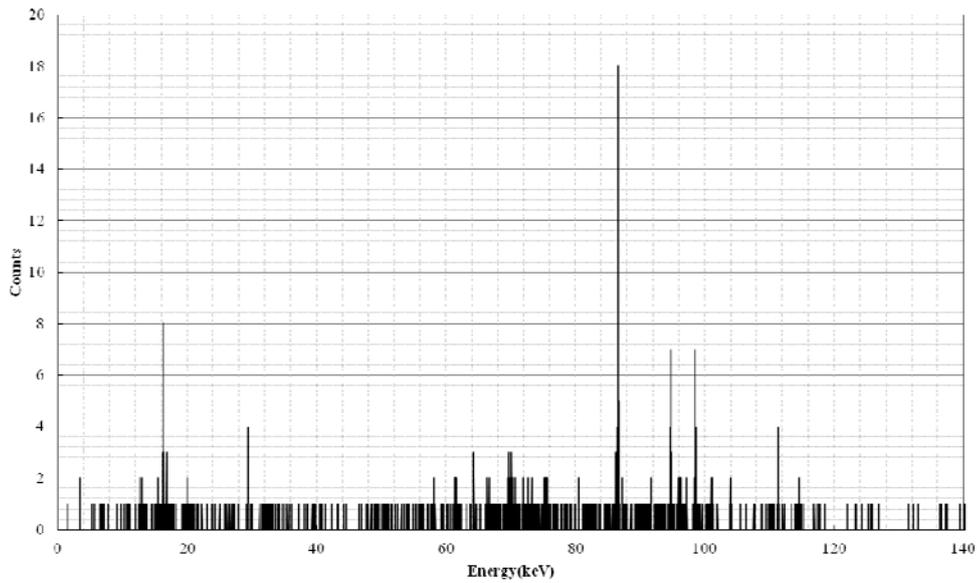


図 3.1-8: ベースライン弁別処理後の Np-237 核種からの γ 線エネルギースペクトル
 (上: エネルギースペクトル全体、下: 86keV の γ 線ピーク部を拡大したスペクトル)

計測には酸化ルテニウム、ゲルマニウム等の高抵抗を示す温度センサが用いられ、その温度センサの抵抗値を、レジスタンスブリッジを用いて読み出すことにより、温度モニタを行う。また抵抗値を読み出すレジスタンスブリッジにはPIDの制御回路が内蔵されており、温度計の抵抗値を入力し、極低温部に配置されたヒーターに出力する形で所望の温度にてPID制御により一定に保たれる。本研究で用いる希釈冷凍機においては、 $3\text{He}/4\text{He}$ 混合器近傍に設置された酸化ルテニウム温度計の抵抗値をレイクショア社製 AC370 型レジスタンスブリッジにより読み出し、PIDによる主力値を同じく混合器内に装着されているヒーターに与えることにより温度制御を行っており、たとえば 100mK において $50\sim 100\ \mu\text{K}$ の精度にて温度を安定化させることが可能である。

先ほど述べた Np-237 核種からの γ 線計測において、得られた γ 線入射応答波形の波形立上り直前の主力ベースラインの平均値を算出し、それをイベント毎にプロットしたもの

を図 3.1-7 (右) に示す。横軸は γ 線イベントの入射順を示したものであるが、たとえば、この計測が 2cps 程度のカウンtrateにてイベントを記録していたとすると、図の横軸の範囲は、およそ 2500sec の時間スケールを持つものと解釈できる。このような時間スケールにてベースライン値の揺らぎを子細に見ると、10~30 分くらいの大きなうねりのような動きと 30~50s 程度の周期にて小刻みな振幅を示す揺らぎの 2通りが確認できる。我々はこのベースライン値の揺らぎは冷凍機混合器の温度揺らぎに呼応したものであると考えており、このうち大きなうねりについては、希釈冷凍機の $3\text{He}4\text{He}$ 冷媒ガス循環状態の変化、混合器内の $3\text{He}4\text{He}$ 冷媒液面の変異やスティルでの蒸発量の変異等に起因した冷凍機の冷却能力の変動等に起因するもの、一方、小刻みな揺らぎはレジスタンスブリッジによる PID 制御の変動許容幅に起因するものではないかと推測している。ベースライン値の変動幅は、前述の通り TES のバイアス点の変異を引き起こし、ゆえに検出感度のばらつきを生じさせて、エネルギー分解能の劣化要因となる。この熱浴温度揺らぎにエネルギー分解能がどの程度影響しているのかを見積もるため、図 3.1-7 のプロット内に示した緑線 (取り出し下限値) と青線 (取り出し上限値) の範囲内にあるベースラインを持つイベントを抽出し、そのイベントに対して、最適フィルタ処理を施して構成したエネルギースペクトルを図 3.1-8 に示す。ベースライン弁別によりイベント数が減少し、統計は全く不足しているが、86.5keV のピーク付近を拡大したスペクトルから、ピークの幅を見積もると 53eV 程度と見積もられる。統計精度の不足、および歪なピークの形状から、直ちにこの数値が本検出器のエネルギー分解能を表すものとは言えないが、ベースライン値の変動が、エネルギー弁別性能に少なからず影響を与えていることが本結果より明らかになった。この温度揺らぎによるエネルギー分解能劣化を抑制する手法としては、まず本研究で用いる希釈冷凍機では、TES が設置されているコールドステージとは異なるミキシング部において温度計測とヒーター加熱による温度安定化を行っているので、これを希釈冷凍機のコールドステージ上において直接温度計測およびヒーター加熱制御を行えるようにシステムを改善することが有効であると考えられる。コールドステージとミキシング間の構造は熱伝導度を高く保つように工夫されているものの、コールドステージとミキシング部では温度差が 6~7mK 程度ある (コールドステージの方が高い) ことは既知であり、熱伝搬の遅れ、輻射熱侵入等により、コールドステージとミキシング部の温度環境は少なからず異なり、ミキシング部のヒーター熱量変化に対して、コールドステージの温度が即応して変化していない可能性がある。さらに、この温度揺らぎによるベースライン変動に対して、あらかじめ TES の感度がどれくらい変化するかを見積もり、得られた測定データに対して、イベント入射信号の波高値をベースラインの揺らぎによって補正するようなソフト上の対応も検討の余地があると思われる。

(8) タンタルバルクを用いた γ 線吸収体を搭載した TES の開発 (H26~H28)

本稿ではこれまで 100 keV 程度の γ 線を測定対象とした TES 素子開発を目的として、Sn 放射線吸収体素子開発の状況を述べた。しかし、錫バルクの γ 線吸収体は、低エネルギー側 (40 keV 以下) に対して 100 %に近いエネルギー吸収効率を示すものの、それ以上の高いエネルギーを持つ放射線に対しては急激に吸収効率が低下する。また、100 keV 以上の高

表 3.1-3: γ 線吸収体の材質と超伝導転移温度、熱容量および γ 線吸収効率の比較

Material	T_c (K)	Heat capacity @ 100mK (keV/mK)	Absorption Efficiency @ 100keV (%)	Absorption Efficiency @ 600keV (%)
Sn	3.72	5.96	30.9	1.39
Ta	4.5	4.87	89.8	5.23
Pb	7.2	43.0	84.9	4.15

いエネルギーを放出する放射線核種には、 ^{56}Co の 846.77 keV と ^{134}Cs の 847.0 keV や、 ^{235}U の 185.7 keV と ^{226}Ra の 186.1 keV のように近接したエネルギーを放出するものがあり、これらの識別を可能にする、高いエネルギー分解能・吸収効率を持った検出器が必要である。ゆえに本研究実施者は、100 keV – 1 MeV 程度の高いエネルギーを持つ γ 線に対しても十分なエネルギー吸収効率と、高いエネルギー分解能を実現する TES 素子の開発を進めている。この高エネルギー γ 線用 TES 素子の開発には、高エネルギー γ 線に対し吸収効率を持つ放射線吸収体が必要となるが、本研究では、錫よりも原子番号が大きく γ 線吸収効率に優れるタンタル(Ta)に着目し開発を行った⁸⁾。表 3.1-3 に、Sn, Ta, Pb 吸収体の超伝導転移温度と、それぞれの 100 mK における熱容量(pJ/K)、100keV および 600 keV γ 線に対する吸収効率(%) (0.5mm 角・0.3mm 厚で計算)をまとめている。表より、Ta は Sn よりも低熱容量であり、かつ、Pb よりも吸収効率が高いので高エネルギー γ 線用 TES の放射線吸収体として適した材料であると考えられる。

Ta バルクの γ 線吸収体を Ir/Au 超伝導温度センサ上に金バンプを介して搭載した TES 素子を試作した。検出素子の構造、超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサの形状等は前述の錫バルク吸収体を用いた素子と同じである。作製した素子を顕微鏡で観察した写真を図 3.1-9 (左)に示す。この素子を希釈冷凍機により冷却し、Cs-137 線源からの γ 線を照射して得られたエネルギースペクトルを図 3.1-9 (右)に示す。なお、ここでは信号の波高値スペクトルを、エネルギーが既知である光電ピークと Ta のエスケープピーク($K\alpha$, $K\beta$)を用いてエネルギー校正を行っている。また、測定条件は、熱浴温度 110mK、バイアス電流 33

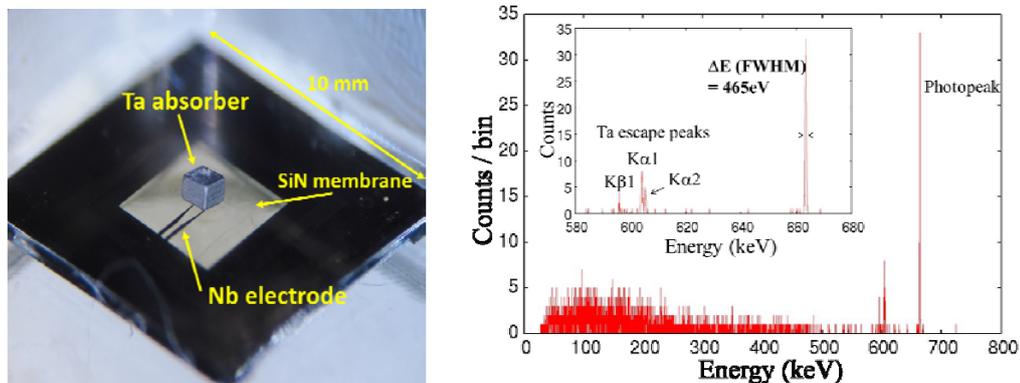


図 3.1-9: 0.5mm 角試作した 0.5mm 角 Ta 吸収体付 TES の顕微鏡写真(左)と、Ta 吸収体付 TES により計測された Cs-137 線源からの γ 線エネルギースペクトル

μA である。このエネルギースペクトルでは、コンプトン散乱成分と比較して光電ピークが強調されている。このスペクトル形状における特徴は、662 keV の γ 線に対して検出効率が低い Sn を用いて得られたスペクトルには見られない特徴であり、Ta が数百 keV に対して優れた検出効率を実現していることを実証している。エネルギー分解能は、ガウス分布にフィッティングすることにより、 $\Delta E_{\text{FWHM}} = 465\text{eV} @ 662 \text{ keV}$ という値が得られた。⁷⁾ これは高純度 Ge 半導体検出器による理論的に達成可能なエネルギー分解能の 3 倍以上に相当するものであり、このような数 100keV のエネルギー領域におけるエネルギー分散型スペクトロメータによるエネルギー分解能としては世界最高の値である。

3.1.2 TES アレイの試作と動作実証 (H27~H28)

本研究では、大きな有感面積を有する TES アレイを開発するにあたり、4 ピクセルからなるアレイ素子を 1 ユニットとし、これを複数ユニット配置して拡張することにより TES アレイの大規模化を図ることとした。そして前項 3.1.1 で述べた、錫バルク γ 線吸収体を超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサと金バンプ製ポストを介して搭載・固定した TES 作製プロセスをベースとして、図 3.1-10 に示すように基本ユニットとなる 4 ピクセル TES アレイ検出素子の作製を行った。本素子は後述するモーター分離型パルス管換装後の希釈冷凍機に組み込まれ、日本原子力研究開発機構大洗開発センターでの核物質検出実証実験を含む各種線源、核種等から発生する γ 線の計測に本格的に投入された結果、3.3 章で紹介する研究成果を挙げている。なお図中に示す ch1 および ch2 の素子については、大洗での実験において実際に同時動作させた実績を有している。

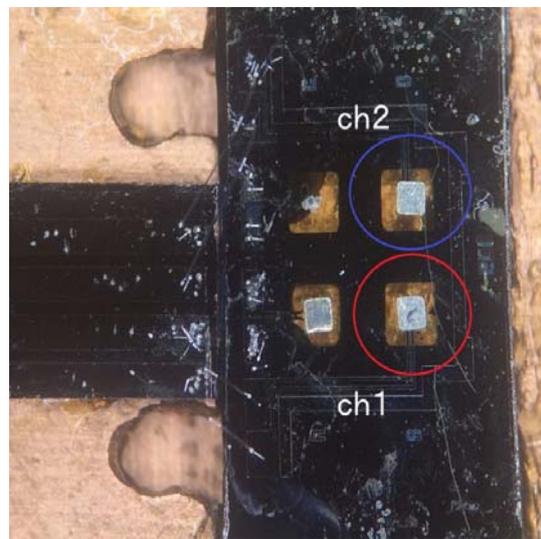


図 3.1-10: 4 ピクセル錫放射線吸収体付 TES アレイ検出素子 (ただし左上のピクセルは、東大から原子力機構大洗への輸送中に γ 線吸収体が脱落して破損した)

3.1.3 TES アレイ駆動用の配線整備

(1) 希釈冷凍機へのモーター部分離型パルス管換装による機械振動抑制 (H26~H27)

本研究では、核物質精密分析のための検出システムの確立を目指しており、TES 冷却用極低温冷凍機を含む検出システムは原子炉、燃料加工等の核物質取扱施設内での運用が前提となるが、このような施設では、搬入する機器に対して高い安全性が求められる他、被曝、汚染等のリスク軽減のため人の出入りの頻度が制限され、また放射能拡散防止のための空調管理がなされていることも多い。したがって、従来の液体ヘリウムや液体窒素等の寒剤を大量に必要とする冷凍機システムでは、寒剤の異常な蒸発による爆発等の危険性があり、また寒剤の取扱等において手間と人手を要し、さらに大量の蒸発ガス発生による窒

息等の恐れもあり、そのような極低温冷却機器の使用は適していない。そこで、我々はγ線検出用 TES 検出器素子開発と並行して、寒剤フリーで長時間の極低温での自動運転が可能で安全性に優れる希釈冷凍機システムを導入し、試作検出素子の動作実証、性能評価実験へ適用してきた。本課題における原子力機構大洗での核物質検出実験では、東京大学および産業技術総合研究所で作製した検出素子や極低温信号読出エレクトロニクスを冷凍機内に組み込んで、検出システムをあらかじめ構築し、これを大洗の施設へ輸送・搬入して実証実験を行っている。この核物質実証実験では東京大学が保有・管理する 1W@4K のパルス管を搭載した希釈冷凍機を適用した。

これまでの研究結果よりγ線検出用 TES 開発においては、重量のかさむ重金属放射線吸収体が、窒化シリコンメンブレン上に製膜された超伝導薄膜温度センサ上に搭載されている特殊な構造が災いして、機械振動にとりわけ敏感に反応してしまい、パルス管等の機械冷凍機部の振動が検出器の大きなノイズ源となることが突き止められている。ゆえに寒剤フリー希釈冷凍機の機械振動低減を図ることが、エネルギー分解能向上のカギを握っており、これまでに適用する冷凍機において様々な振動抑制の対策を重ねてきた。パルス管を用いた希釈冷凍機においては、パルス管冷却ヘッドを希釈冷凍機デュワー本体から浮かせて、その間を溶接ベローで接続し、パルス管冷却ヘッドは冷凍機上部に設置された架台から吊り下げられるような構造を採用し、パルス管で発生する機械振動が希釈冷凍機内のデュワーに伝搬しにくいように改造が施されている。なお、パルス管冷却ヘッドの2段の冷却ステージと希釈冷凍機

デュワー内の $^3\text{He}^4\text{He}$ ガス冷媒熱交換器とは、極細くかつやわらかい銅線の束で接続し、熱伝達効率は下げずに機械振動を遮断する工夫がなされている。さらに昨年度までに、パルス管を吊り下げるロッドと架台の間に防振素材を入れ、またその架台を支える4つの脚と架台の間にも防振治具を導入する等、いろいろな追加の振動対策を施した結果、漸く 100eV@100keV 前後のエネ

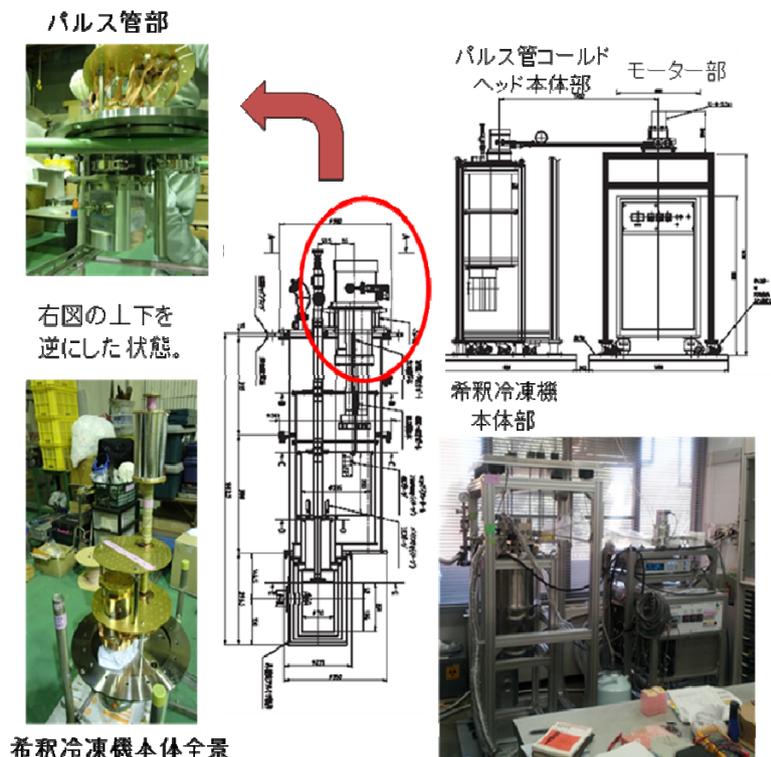


図 3.1-11: モーター分離型パルス管に換装した寒剤フリー希釈冷凍機 (右上: システム概略、右下: 冷凍機システム全景、左上: パルス管冷却ヘッドと希釈冷凍機熱交換機接続部、左下: 希釈冷凍機本体全景)

ルギー分解能を達成し得るまで、機械振動による影響の抑制に成功した。ただし、このような数多くの改良を経てもなお、機械振動が TES 検出器のノイズ成分として影響することは避けられず、依然としてエネルギー分解能抑制の大きな要因になっていた。そこで本事業ではこれまでモーター部がパルス管本体に直結していた米国クライオメック社製冷却ヘッド (1W@4K) を取り除き、モーターを完全に分離させてパルス管本体から切り離した構造を持つ住友重工業社製の冷却ヘッド (冷却能力は変わらず 1W@4K) に換装することにより、さらなる機械振動抑制を試みた。パルス管のモーター部にはパルス管冷却の冷媒である高圧ヘリウムガスをパルス管冷却ヘッド内へ圧送する弁を強大な力で回転させるモーターが収められており、その駆動過程において大きな機械振動の発生が余儀なくされる部分であり、このモーター部を構造的にパルス管冷却ヘッド本体部から切り離すことは希釈冷凍機側への機械振動伝搬を阻止する上で効果的と我々は考えている。図 3.1-11 に新たにモーター分離型パルス管に換装した希釈冷凍機システムの概要を示す。パルス管のモーター部は図に示す通りパルス管本体とは完全に切り離され、それぞれ別の架台によって支えられており、両者は冷媒循環のため、手で曲げることが可能なくらいの硬さの 2 本の細い金属管と 1 本のフレキホースのみを介して接続されている。なお、本冷却システムは輸送時において、パルス管冷却ヘッドを搭載した希釈冷凍機本体部、冷凍機本体を支える架台、パルス管モーター部を設置した架台、 $3\text{He}4\text{He}$ 循環ガスハンドリングシステム、パルス管用コンプレッサの各ユニットに分離することが可能であり、いずれのユニットも 40~130kg 程度の重量に収まっており、可搬性にも優れている。モーター部分離型パルス管への換装後の本冷却システムは 2016 年 2 月に納品され、3 月より大洗の日本原子力研究開発機構に移送されて、核物質検出実験に本格投入された。本稿 3.3 章で説明する実験結果は全てこの希釈冷凍機システムを用いて実施し、得られたものである。

(2) モーター部分離型パルス管搭載希釈冷凍機への TES アレイ駆動用配線整備 (H27~H28)

前述のモーター部分離型パルス管に換装した希釈冷凍機において、TES アレイおよびその信号読出に用いる超伝導エレクトロニクス回路を設置するコールドステージ、およびそれらへの磁気ノイズを遮蔽する磁気シールド、そして検出素子と信号読出回路を駆動する同軸配線と低温アンプ等を組み込み、検出システムを完成させた。超伝導エレクトロニクス回路の駆動用配線の詳細については、次の 3.2 章にて記述する。

3.1.4 TES 検出素子開発のまとめ

本事業では、研究実施者がこれまで進めてきた超伝導 Ir/Au 薄膜を用いた TES の研究をベースとして、さらに錫やタンタルの重金属バルク製放射線吸収体を導入して、 γ 線超精密分光が可能な検出素子の開発を進めてきた。具体的には、超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサ上に金バンプポストを作製し、この上に重金属 γ 線吸収体を搭載固定する独自の γ 線 TES 素子構造をさらに発展させ、検出特性の高性能化を図った。金バンプポストの優れた熱伝導特性を活かすことにより、重金属放射線吸収体で γ 線入射に伴って発生した熱が速やかに超伝導薄膜センサに伝達されることとなり、錫バルク放射線吸収体を用いた素子においては、100keV 相当の γ 線入射に対する出力応答において高い波高値 (S/N 比) を得ると

もに、立下り時定数 2msec 以下の高速応答をも実現した。そして、核物質や γ 線源を用いた性能実証において Ge 半導体検出器の理論分解能の 5 倍以上に相当する 84eV@123keV (Eu-154) および 89eV@86.5keV (Np-237) のエネルギー分解能を実証した他、冷凍機の温度揺らぎ等を除去すれば、53eV@86.5keV 程度のエネルギー分解能もすでに達成しつつあることが明らかになり、最終目標としている 30eV のエネルギー分解能に肉薄するレベルまで到達することができた。また、タンタルのバルクを γ 線吸収体として用いた素子においては、数 100keV 以上の γ 線エネルギー領域における世界最高分解能である 465eV@662keV (Cs-137) を達成した。さらに、これらの検出素子の多画素化、大面積化も進め、その基本ユニットとなる 4 ピクセルアレイの作製を行い、日本原子力機構大洗研究開発センターでの核物質検出実験にて、その性能が実証された。

参考文献

- (1) K. D. Irwin and G. C. Hilton, “Transition-Edge Sensors,” *Cryogenic Particle Detection*, 9, 63-150, n/a 2005
- (2) D. Fukuda, H. Takahashi, M. Ohno, and M. Nakazawa, “Ir TES for X-ray microcalorimeters,” *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research*, A 444, 1, (2000), 241-244
- (3) Robert D. Horansky et al., “Identification and elimination of anomalous thermal decay in gamma-ray microcalorimeters”, *Appl. Phys. Lett.*, 103, 212602 (2013)
- (4) 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
- (5) 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)
- (6) 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)
- (7) M. Ohno et al., “Superconducting Transition Edge Sensor for Gamma-ray Spectroscopy”, *IEICE TRANSACTIONS ELECTRONICS*, Vol E100-C, No3, 283-290 (Invited paper), (2017)
- (8) 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)

3.2 検出器アレイ多重読出回路の開発（再委託先：産業技術総合研究所）

3.2.1 はじめに

TES による核分光の計測時間短縮と計数率増大に資する画素数増大は、一般的には、室温-極低温間の配線数と流入熱の増大をもたらし、分光器の体積・消費電力を支配する極低温冷凍機の大形化を招く。これを防ぐため、図 3.2-1 に示す極低温下での信号多重化技術が必要となる。本節では、従来 TES に対して行われてきた MHz 帯への多重化に比べ、一本の読出線への多重化数を飛躍的に増大できるマイクロ波帯の周波数多重読出法を開発する。

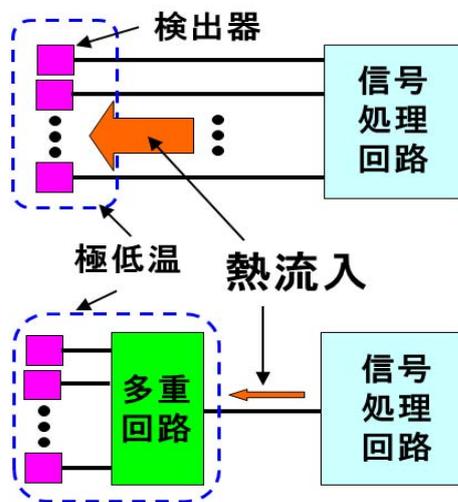


図 3.2-1: 室温から極低温への熱流

その概要を図 3.2-2 に示す。読出チップ上に、常伝導金属によるフィルタに比べ遙かに鋭い共振特性 (Q 値 $>10^4$) を持ち、画素毎に共振周波数 f_R が異なる数 GHz 帯超伝導薄膜共振器群を、殆ど発熱のない超伝導量子干渉素子 (RF-SQUID ; TES 信号強度に応じた可変インダクタンスとして機能する素子 : SQUID は Superconducting Quantum Interference Device の略) で終端した読出回路が、米国標準研究所 (NIST) で提案^{1, 2)}され、ガドリニウム (Gd) からの 100 keV の γ 線の二画素同時読出に用いられた³⁾。本方式において入出力一本ずつの信号読出同軸線上に多重化可能な原理的画素数 U は、

$$U = \frac{B}{\kappa f_s} \quad (3.2.1)$$

で与えられる。ただし、 B はチップ出力端に接続する極低温の高易動度トランジスタ (High Electron Mobility Transistor; HEMT) 増幅器の帯域、 f_s は TES 単画素あたりの信号帯域 (通常 $f_s \approx f_R/Q$ が成立するように Q を設計)、 κ は隣接共振周波数間隔と f_s の比であり、画素間漏話 <-30 dB には $\kappa > 10$ が必要¹⁾とされる。典型例 $B \approx 4$ GHz, $f_s \approx 0.1$ MHz, $\kappa \approx 10$ の基で $U \approx 4 \times$

10^3 を得る。すなわち、マイクロ波帯利用による大きな B が U 増大をもたらすことが期待される。

一方、本方式の実用化には、NIST の先行研究で未解決であった以下の課題解決が求められていた。(1) 設計した f_R の精度良い実現 (2) 読出雑音の評価、主要雑音源の同定、読出雑音<<TES システム雑音の実証 (3) $\approx 10^3$ 画素実現のための構成と室温信号処理回路の開発。これらに関し、産業技術総合研究所では、2011 年度より下記の研究開発を行ってきた。

(1) 極低温の冷却 HEMT 増幅器の帯域 4-8 GHz 帯全域にわたり、共振周波数を $\pm 0.02\%$ 以下の精度で予測可能な設計指針を見出すとともに、素子パラメータに制約の強い RF-SQUID の実現に適した素子構造の導入とパラメータ実現に成功⁴⁾した。

(2) 本プロジェクトのように、TES の光子計数 (Photon Counting) 動作の高周波域において重要となる白色読出雑音の評価のため、低周波域で顕著となる誘電体起因の余剰雑音が無視できる絶対温度 4 K に置いた読出回路チップの雑音を系統的に評価し、複数の主要雑音源の存在と、それらの寄与度を明らかにした⁵⁾。その際、4 K での低雑音動作に適した共振器の電極材料として、NIST が用いたニオブ(Nb)より超伝導転移温度が高く電極損失が低いと期待される窒化ニオブ(NbN)を採用し、これと Nb ベースの SQUID を組み合わせた独自チップを開発した⁵⁾。雑音評価の結果、31 pA/ $\sqrt{\text{Hz}}$ の RF-SQUID 入力換算電流雑音を得た⁵⁾。これは、成果発表当時(2014 年 5 月)には、NIST の報告値 40 pA/ $\sqrt{\text{Hz}}$ ⁶⁾より優れた値であった。

(3) 少画素での基本動作実証に注力し、画素数増大への根本的な取り組みはそれまでに行っていなかった。しかし、産業技術総合研究所は、大規模アレイ化を可能とする独自方式の着想を持っており、その具現化には、本プロジェクトで開発する読出技術が基盤となる。

以上の技術蓄積、知見、将来展望の下に、産業技術総合研究所が、本プロジェクトにおける TES アレイの読出技術の開発に従事することとなった。

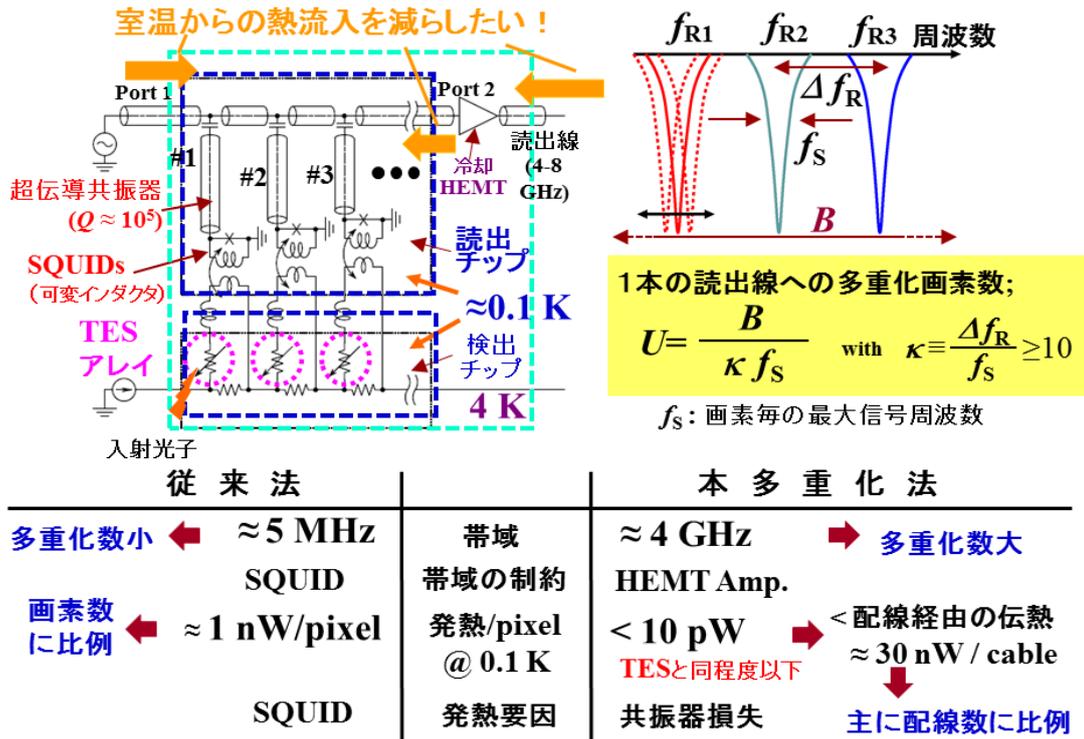


図 3.2-2: マイクロ波帯周波数多重化方式の構成、原理、従来の周波数多重化法との比較

3.2.2 読出回路の動作原理と設計 (H26~H28)

(1) チップ上共振器の Q 値；高速応答性と後段増幅器雑音からの要請

読出回路が TES の本質的なエネルギー分解能を損なわないためには、TES で読出したパルスの読出回路の入力換算雑音電流を、TES の電流雑音よりも十分小さくしなければならない。私達は、本プロジェクトが開始される以前に、以下 2 点を明らかにした⁵⁾。①読出回路雑音は、4 K 動作においては、入力端に設けたローパスフィルタ内の抵抗で発生する熱雑音が支配的である。②ガンマ線 TES の動作温度である 0.1 K に冷却すると、チップ後段に置かれた極低温 HEMT アンプの雑音が支配的となること、数値計算で予測される。HEMT アンプ雑音の読出回路雑音への寄与度を抑えるには、読出チップにおける入力電流（磁束）から出力周波数（位相）への変換効率を増大し、HEMT アンプ入力端における信号対雑音比を大きくとる必要がある。図 3.2-3 は、チップに起因する雑音と、チップ後段の HEMT 増幅器の雑音との関係を説明する。同図(a)には、4 K と 0.1 K における、共振器の無負荷 Q 値 Q_0 と負荷 Q 値 Q_c の周波数依存性を示す。なお、 Q_0 、 Q_c の物理的意味を同図(b)に示す。 Q_0 は共振器内の損失（誘電損失、電極損失、放射損失）に起因する Q 値、 Q_c はマイクロ波フィードラインを介して共振器の外部へ流出し、冷却 HEMT 増幅器の入力抵抗や室温のマイクロ波信号源の出力抵抗で消費する損失電力に起因する Q 値である。同図(a)のように、 Q_c は温度に独立であるが、 Q_0 は 4 K から 0.1 K への冷却に伴い、約 1 桁の増大が観測される。同図(c)は、チップから冷却 HEMT 増幅器への信号伝達を示す。 P_{IN} を共振器群に入力されるマイクロ波パワーとすると、HEMT アンプへの入力マイクロ波パワーは複素透過率 S_{21} を用いて $|S_{21}|^2 P_{IN}$ 、チップ出力電圧 (=HEMT 増幅器入力電圧) は

$V_{SQ} \approx S_{21} \sqrt{P_{IN} Z_0}$ と記述できる。HEMT 増幅器の入力換算雑音電力を P_N とおくと、HEMT 増幅器入力端における信号対雑音比は、

$$SNR = \frac{V_{SQ}^2 / Z_0}{P_N} = \left(\frac{V_{SQ}}{\sqrt{P_{IN} Z_0}} \right)^2 \frac{P_{IN}}{P_N} \quad (3.2.2)$$

で与えられる。右辺の $V_{SQ} / \sqrt{P_{IN} Z_0}$ と SQUID への入力磁束 Φ_{IN} の関係 (計算値) を同図 (d) に示す。ただし、 $Q_c = 5 \times 10^3$ とし、4 つの異なる Qu に対しプロットした。従来型 TES 読出に広く使われている DC-SQUID の入力磁束-出力電圧と同様、磁束量子 Φ_0 周期の $V_{SQ} / \sqrt{P_{IN} Z_0} - \Phi_{IN}$ 特性を得る。図より、 Qu が高い程、山が高く谷の深い特性となる。HEMT 増幅器に伝達するマイクロ波信号強度の Qu 依存性をよりわかりやすくするため、SQUID における信号の変換効率 $\partial V_{SQ} / \partial \Phi_{IN}$ の依存性を同図 (e) に示す。 $\partial V_{SQ} / \partial \Phi_{IN}$ は Qu とともに増大する。 $Qu = Q_c$ となる $Qu = 5 \times 10^3$ 近傍で、 $\partial V_{SQ} / \partial \Phi_{IN}$ の Qu に対する変化率は最大となり、 Qu が 5×10^3 から離れるにつれ、変化率は減少する。図 3.2-3 (e) は、 $Q_c = 5 \times 10^3$ の下での Qu と SQUID の信号変換効率との関係 (計算値) を示す。 $Qu \geq 1 \times 10^5$ すなわち $Qu \geq 20 Q_c$ の場合には、縦軸フルスケールの 95% の変換効率が得られることがわかる。つまり、 $Qu \geq 20 Q_c$ が HEMT 雑音の寄与を下げる条件として求められる。

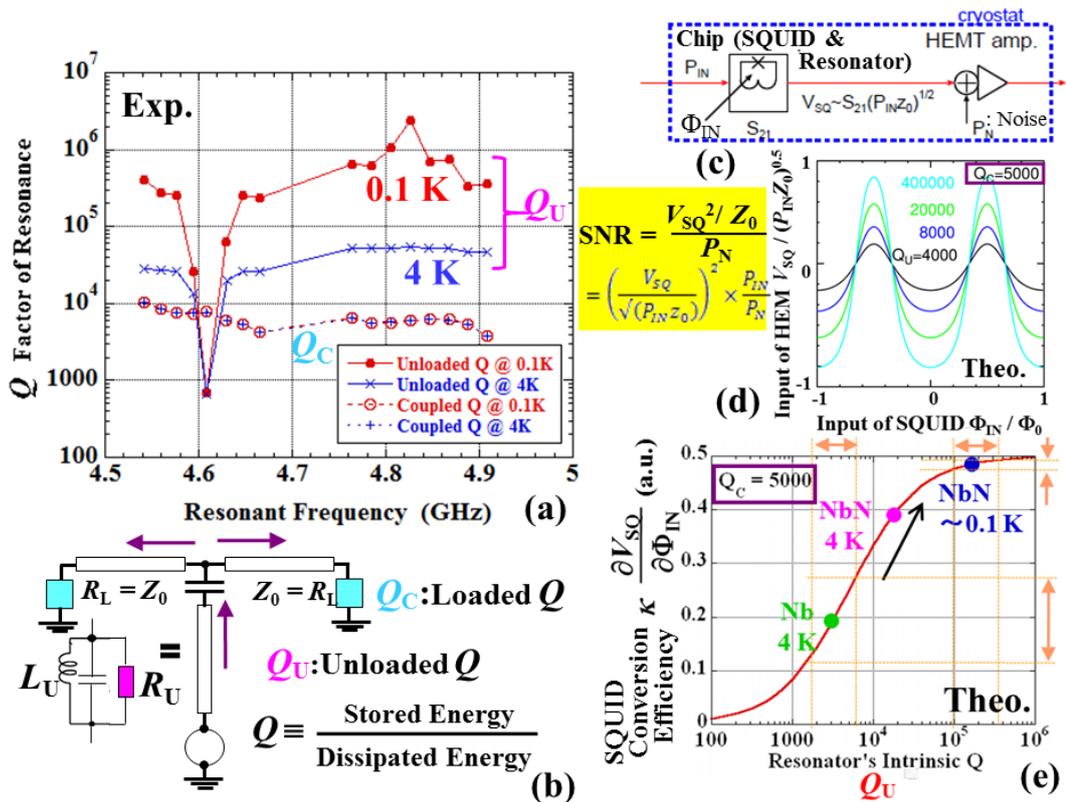
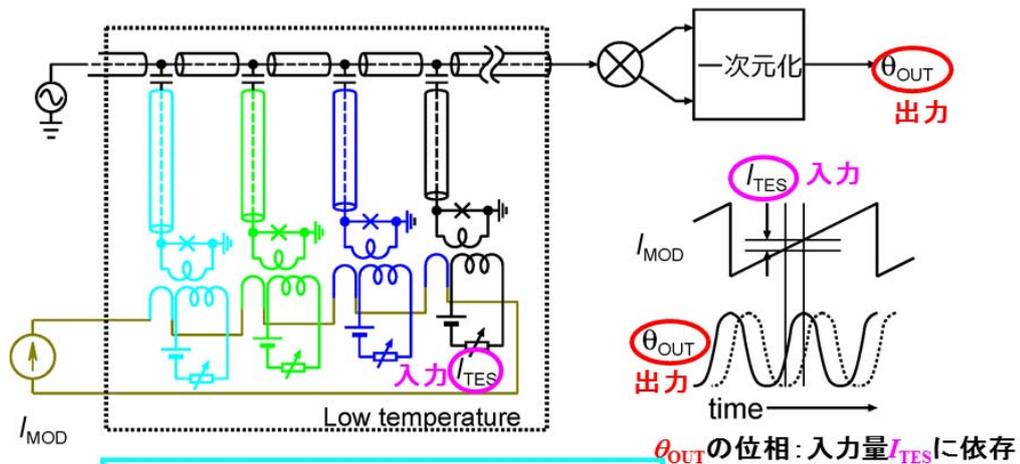


図 3.2-3 (a) 2通りのチップ温度 (0.1 K と 4 K) における無負荷 (Unloaded) Q 値 Q_U と外部 (Coupled) Q 値 Q_C の共振周波数依存性の測定結果例 (b) Q_U と Q_C の定義 (c) チップから極低温 HEMT 増幅器への信号伝達 (d) (c) に示す極低温 HEMT 増幅器入力端での規格化電圧の SQUID への入力磁束依存性の計算値。(e) SQUID での入力磁束から出力電圧への変換効率と共振器無負荷 Q 値との関係 (計算)。

(2) 鋸歯状波磁束変調による入出力特性線形化とダイナミックレンジ増大 (H27~H28)

SQUID は入力磁束に対し、磁束量子 $\Phi_0 (\equiv 2.07 \times 10^{-15} \text{ Wb})$ 周期の非線形応答を示すため、入出力特性の線形化とダイナミックレンジの拡大を行う外部機構が必要である。TES の読出に一般的に用いられる DC-SQUID は FLL (Flux Locked Loop) と呼ばれる負帰還回路により、動作点を感度の高い磁束バイアス点へ固定している。この方式は、SQUID 毎に負帰還回路を要するために、信号多重化による配線数減という意義を損なう。



追加配線は画素数によらず往復1対のみ ○

$\Phi(I)$ - θ 特性を測定して、シフト量から I_{TES} を決定

→ 周期さえ厳密なら波形は問わない ○

$\Phi(I)$ - θ 特性1掃引(鋸の歯一つ)が1サンプル測定に相当

→ TES信号帯域 \ll SQUID読み出し帯域となってしまう △

図 3.2-4 鋸歯状波変調による入出力特性線形化・ダイナミックレンジ増大の原理と特徴

本研究では、図 3.2-4 に示すランプ磁束変調法 (Flux Ramp Modulation) ^{1-3), 6)} という方式により入出力特性の線形化とダイナミックレンジ拡大を図っている。この方式は、振幅が Φ_0 より大きく、TES 信号より十分速い鋸歯状波信号を用いて SQUID に変調をかけることで、入力信号に対する感度を実効的に Φ_{IN} によらず一定とする方法である。図 3.2-4 右の波形図に示すように、信号があるときの周期応答のずれ(位相差)を読み出すことで SQUID への入力磁束 Φ_{IN} を復調することができる。また、全画素の SQUID と磁氣的に結合した 1 本の磁界印加線を設け、これに鋸歯状波電流を流すだけで、磁束トラップ等に起因する各 SQUID の位相ばらつきに関係なく、全画素の SQUID を磁束変調できる。つまり、FLL 法のような読出線以外に帰還線を各画素個別に設けることは不要となるので、本方法は、室温-極低温間の配線総数の低減に貢献する。

(3) 読出雑音とダイナミックレンジ ; TES からの要請 (H27~H28)

読出雑音およびダイナミックレンジの特性に関する TES からの要請の関係を図 3.2-5 に示す。読出回路が TES の本質的なエネルギー分解能を損なわずに信号を読出すためには、

マイクロ波読出回路の入力換算雑音電流パワースペクトル密度 S_{I_RO} (A^2/Hz) と、TES の等価雑音電流パワースペクトル密度 S_{I_TES} (A^2/Hz) の間には、以下の大小関係が要求される。

$$\sqrt{S_{I_RO}} = \frac{\sqrt{S_{\Phi_RO}}}{M} < \sqrt{S_{I_TES}} \quad (3.2.3)$$

ただし、 S_{Φ_RO} (Φ_0^2/Hz) は読出回路チップ上の SQUID の磁束雑音パワースペクトル密度、 M は SQUID ループと TES からの信号を流す入力コイルの間の相互インダクタンスを表す。従来研究により明らかにされている東大製ガンマ線 TES の等価雑音電流は、 $\sqrt{S_{I_TES}} \approx 100$ pA/ \sqrt{Hz} である。一方、産総研で開発して来た読出回路は、 $M=100$ pH (NbN 製 SQUID リング)、 $M=60$ pH (Nb 製 SQUID リング) を持つ。これらの M 値と (3.2.3) 式より、読出回路に要求される SQUID の等価雑音磁束は、 $\sqrt{S_{\Phi_RO}} < 5.5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{Hz}$ (NbN 製 SQUID リング)、 $\sqrt{S_{\Phi_RO}} < 3.5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{Hz}$ (Nb 製 SQUID リング) である。産総研では、4 K 動作にて $\sqrt{S_{\Phi_RO}} = 1.7 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{Hz}$ を得た。したがって、東大製ガンマ線 TES 読出時の動作温度 0.1 K においても $S_{\Phi_RO} = 1.7 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{Hz}$ を得られれば、(3.2.3) 式は満たされるとともに、TES システム全体のエネルギー分解能に対する読出回路雑音の寄与は、 $1.7 / \sqrt{(5.5^2 + 1.7^2)} = 0.30$ (NbN 製 SQUID リング)、 $1.7 / \sqrt{(3.5^2 + 1.7^2)} = 0.43$ (Nb 製 SQUID リング) に抑えられる。

1. 電流雑音: 読出回路 << TES

$$S_{I_RO} \ll S_{I_TES} \quad [A^2/Hz]$$

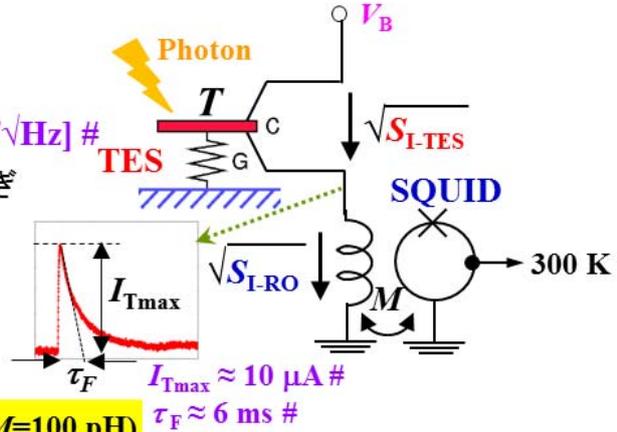
$$S_{I_TES} \approx |S_I|^2 4k_B T^2 G \approx 100 \text{ [pA}/\sqrt{\text{Hz}}] \#$$

Conductanceの熱揺らぎ

Current Responsivity [A/W] :

$$S_I = \frac{-1}{V_B} \frac{D_p}{1+D_p} \frac{1}{1+i\omega\tau}$$

D_p : Transfer Func.



$$M\sqrt{S_{I_RO}} < 5.5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{Hz} \text{ (NbN; } M=100 \text{ pH)}$$

$$< 3.5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{Hz} \text{ (Nb; } M=60 \text{ pH)}$$

東大製TESの従来典型値

2. ダイナミックレンジ: 読出回路 > TES

$$\frac{\Phi_{Max}}{M\sqrt{(S_{I_RO}B)}} > \frac{60 \text{ keV}}{\approx 100 \text{ eV}} \#$$

$$\Phi_{Max} = M I_{Tmax} \approx 5 \times 10^{-1} \Phi_0 \text{ (NbN)}$$

$$\approx 3 \times 10^{-1} \Phi_0 \text{ (Nb)}$$

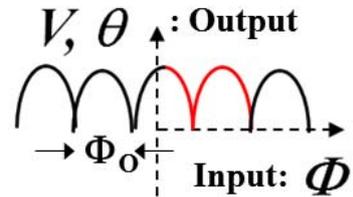
$$B \approx 1 \times 10^4 \text{ [Hz]} \text{ (}\gamma \text{線)} \#$$

Flux Quantum:

$$\Phi_0 \equiv \frac{h}{2e}$$

h : Planck's Const.
 e : Unit Charge

$$\Phi_{Max} \approx \Phi_0$$



<機構が必要>

- ・ダイナミックレンジ拡大
- ・入出力特性線形化

図 3.2-5 読出回路のパラメータ設定 ; TES パラメータからの要請

次に、読出回路のダイナミックレンジ DR_{RO} と TES のダイナミックレンジ DR_{TES} には、

$$DR_{RO} > DR_{TES} \quad (3.2.4)$$

の大小関係が必要である。ここで、

$$DR_{TES} = \frac{E}{\Delta E_{FWHM}} \quad (3.2.5)$$

$$DR_{RO} = \frac{\Phi_{Max}}{M\sqrt{(S_{I-RO}f_s)}} \quad (3.2.6)$$

と定義される。ただし、 E は検出光子のエネルギー、 ΔE_{FWHM} は TES のエネルギー分解能、 Φ_{Max} は、測定対象エネルギーの光子が入射した TES の出力パルスにおける最大波高信号電流と等価な SQUID 入力磁束、 f_s は、TES 出力に起因する SQUID 入力パルスの時間変化の最大周波数であり、以下 2 つの時定数のうち長いものの逆数にほぼ等しいと考えられる。①電熱帰還状態にある TES の熱的時定数 ②TES へのマイクロ波漏洩抑止用として SQUID 入力端に挿入したローパスフィルタの時定数（これが、TES-SQUID 間信号伝達回路の上限周波数を決める）。本研究で扱う東大製 γ 線 TES は、本プロジェクト開始前の研究から、 $E = 60$ keV に対し、 $\Delta E_{FWHM} \approx 100$ eV、波高出力電流 $I_{TESmax} \approx 10$ μ A を持つ⁷⁾ことがわかっている。 $I_{TESmax} \approx 10$ μ A は、 $M=100$ pH を持つ NbN 製 SQUID リングへの鎖交磁束 $\Phi_{Max} \equiv MI_{TESmax} \approx 5.0 \times 10^{-1} \Phi_0$ 、 $M=60$ pH を持つ Nb 製 SQUID リングへの鎖交磁束 $\Phi_{Max} \equiv MI_{TESmax} \approx 3.0 \times 10^{-1} \Phi_0$ に換算できる。これらは $\Phi_0/2$ に比べ無視できる程小さくはないため、(2) で述べた鋸歯状波変調を用いた SQUID 入出力特性の線形化・ダイナミックレンジ拡大法が必要となる。また、(3.2.3)式より、 $M=100$ pH を持つ NbN 製 SQUID リングでは $\sqrt{S_{\Phi_{RO}}} < 5.5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ 、 $M=60$ pH を持つ Nb 製 SQUID リングでは $\sqrt{S_{\Phi_{RO}}} < 3.5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ を満たすように読出回路は設計される。これらの数値を(3.2.6)式に代入すると、NbN、Nb とともに $DR_{RO} \approx 3 \times 10^3$ を得る。一方、 $E = 60$ keV、 $\Delta E_{FWHM} \approx 100$ eV を(3.2.5)式に代入し、 $DR_{TES} \approx 6 \times 10^2$ を得る。双方の比較から、本設計は、(3.2.4)式を満たすことがわかる。さらに、共振器間のクロストークや、入出力特性の直線性誤差も TES の読出精度の低下要因となる。これらに関しては、入力波高磁束 $0.5 \Phi_0$ に対して TES の読出精度 $1/600 (= 100 \text{ eV} / 60 \text{ keV})$ を乗じた $\pm 0.8 \text{ m}\Phi_0$ 以下の実現を目標とした。なお、将来的に、東大製 TES のエネルギー分解能が、本プロジェクト目標値である 30 eV に到達した場合、 M の倍増および TES 抵抗値の $2/3$ 倍化を組み合わせ、 $\Phi_{Max} \equiv MI_{TESmax}$ の 3 倍化を図ることにより、以上の結論を崩すことなく対応が可能である。

以上の方針により、チップ設計を行った。

(4) 室温信号処理系 (H26~H28)

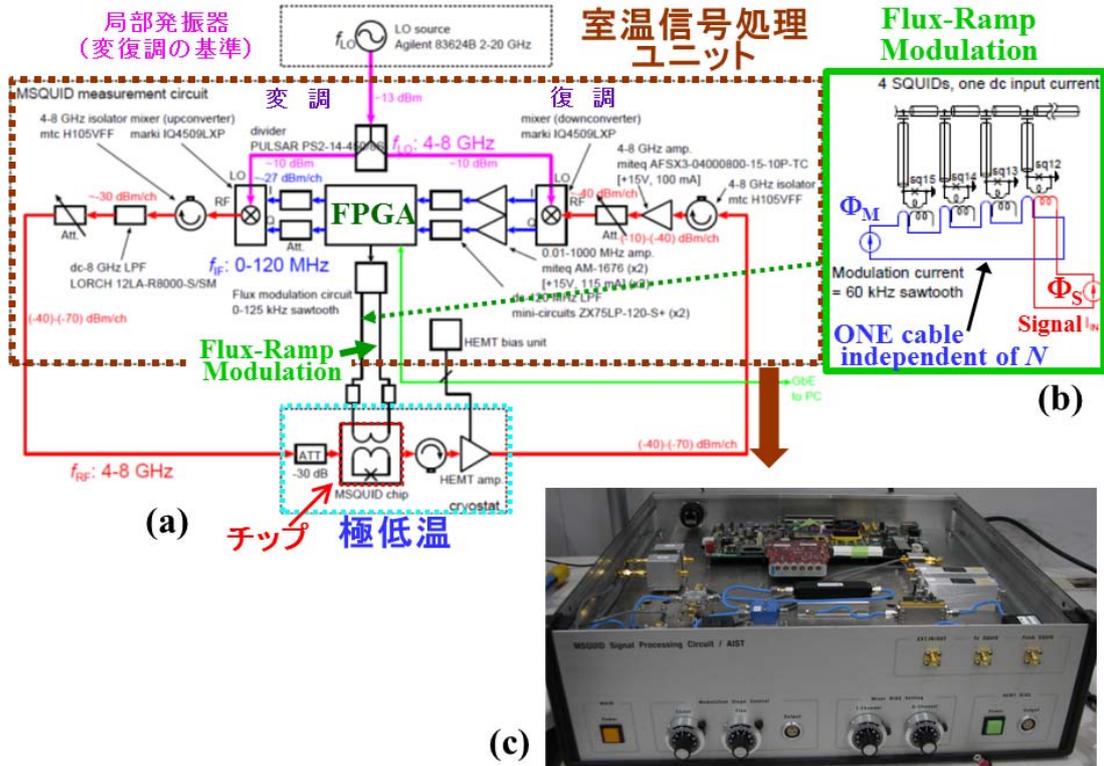


図 3.2-6 信号処理系 (a)全容 (b) 鋸歯状波磁束変調回路の概要 (c)室温信号処理ユニット外観 ((a)で茶色破線で囲む領域)

図 3.2-6 に本研究で用いるマイクロ波多重読出方式の信号処理系を示す。

原理について述べる。図 3.2-6(a)に示す FPGA(Field Programmable Gate Array)と記述されたブロック内のデジタルアナログ変換器(DA)で、チップ内の N 個の共振器を持つ共振周波数に相当する N 個の単一周波数信号群(周波数コム(Frequency Comb))を生成する。この周波数コムを、局部発振器(Local Oscillator)で励起したミキサで、低雑音の冷却 HEMT 増幅器が使える 4-8 GHz 帯に周波数を上方変換(up-convert)し、チップに入力する。チップ透過率 S_{21} による変調、すなわち、TES 出力信号による振幅変調および位相変調を受けた周波数コムは、冷却 HEMT 増幅器で約 30 dB 増幅され、室温へ導かれる。この出力信号群は、室温増幅器でさらに約 30 dB 増幅された後、他のミキサによりベースバンド(0-120 MHz 帯)に周波数を下方変換(downconvert)され、FPGA ブロック内のアナログデジタル変換器(AD)によりデジタルデータに変換される。これにより、 N 個の画素信号を、マイクロ波周波数を掃引することなしに同時に読み取ることができる。また、図 3.2-6(a)中央の FPGA ブロックの下部に置かれ、Flux Modulation Circuit と記された、一回り小さな四角印は、本節冒頭で述べた変調磁束を各画素の SQUID に縦続接続した入力信号線を介して一斉に印加するための、鋸歯状波発生器である。

3.2.3 チップ試作 (H26~H28)

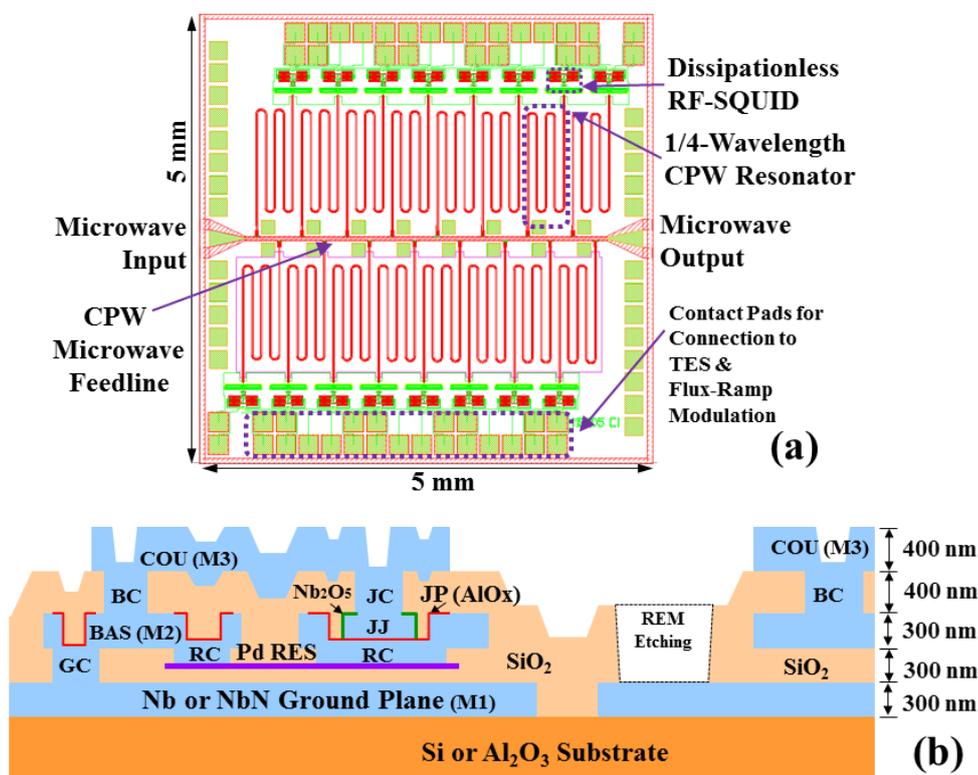


図 3.2-7 試作したマイクロ波周波数多重読出回路チップ (a) 上から見た図 (b) 断面

設計・試作したチップを図 3.2-7 に示す。チップ寸法は 5 mm×5 mm であり、チップ中央を左右に貫くコプレーナ線路(Coplanar Waveguide; CPW と略す)マイクロ波フィードライン(特性インピーダンス 50 Ω) を挟んで上下に 8 組ずつ、合計 16 個の長さの異なる 1/4 波長 CPW 共振器が配置される。全ての共振器は、インターディジタル型キャパシタを介してフィードラインに接続されている。SQUID 動作の心臓部を受け持つ Nb/AlOx/Nb 積層型ジョセフソン接合素子、配線電極 3 層、SiO₂ 層間絶縁 2 層、Pd 抵抗から成る。配線層は、グランドプレーン(GND または M1 と略す)、ベース電極(BAS または M2 と略す)、上部配線(COU または M3 と略す)から構成される。グランドプレーン層の一部が共振器電極を構成し、グランドプレーン層の一部と BAS 層の一部が SQUID リングを構成する。COU 層の一部は、SQUID に、TES からの信号を入力するスパイラルコイルを構成する。これらは、半導体チップ作製と同様のフォトリソグラフィ法と、3 種類(スパッタ、蒸着、化学的気相成長法)の成膜技術、反応性イオンエッチング法、リフトオフ法を用いて、産業技術総合研究所のクリーンルーム CRAVITY (Clean Room for Analog digital superconductiVITY)で作製された。読出雑音に重要な影響を与える共振器の無負荷 Q 値の関係する共振器電極材料には、金属系超伝導デバイス材料として最も技術が確立された Nb と、Nb の約 2 倍の超伝導転移温度を持つがゆえに低電極損失が期待される NbN の 2 通りの選択肢を持たせた。異種材料に基づく評価結果は、3.2.4 節に述べる。

3.2.4 チップ上共振器材料の比較 (H26~H28)

2種の電極と2種の基板材料を用いて4種類の共振器を試作し、共振器に蓄積されるマイクロ波電力 P_{res} を変化させた場合の共振器の無負荷 Q 値 Q_U を比較した。ただし、 P_{res} とチップに投入されるマイクロ波電力 P_{MW} との関係は、

$$P_{res} = \frac{2Q_R^2}{\pi Q_C} P_{MW} \quad (3.2.7)$$

で表される。ここで、 Q_R は共振の急峻さを示す Q 値であり、その逆数は共振器系の全損失を意味する。共振器系の全損失は、共振器内部の損失と共振器外へのエネルギー散逸による損失に大別でき、前者は共振器の無負荷 Q 値 Q_U の逆数、後者は外部 Q 値 Q_C の逆数である。すなわち、

$$\frac{1}{Q_R} = \frac{1}{Q_U} + \frac{1}{Q_C} \quad (3.2.8)$$

が成り立つ。測定の結果得られた P_{res} と Q_U の関係を図 3.2-8 に示す。弱電力の領域では材料による Q_U の差は小さく、電力の増大とともに差が大きくなる傾向にある。また、Si 基板よりサファイア基板が、Nb より NbN が、 Q_U が高い傾向にある。このような電力依存性の原因の可能性として、誘電体表面の酸化層・水酸化層等により形成されるエネルギーの二準位系が報告^{8,9)}されている。ある理論¹⁰⁾によると、二準位系雑音が支配的な場合、 Q_U はマイクロ波電力の 0.5 乗に比例する。私達の実験結果では、 Q_U の電力依存性はこれより弱く、特に Nb と Si 上の NbN では、高い電力値に対し Q_U が飽和する現象が見られた。理論では Q_U は次式で表される。

$$\frac{1}{Q_U} = \delta_{sat} + \frac{\gamma}{\sqrt{1 + \frac{P_{res}}{P_C}}} \quad (3.2.9)$$

ただし、 δ_{sat} は、二準位系起因の損失が飽和するまで P_{res} を増大した時の、誘電損失、電極損失、放射損失の和であり、 P_{res} に依らない。また、右辺第二項は、二準位系による損失である。(3.2.9)式において、 $P_{res} \ll P_C$ の低電力領域では、 Q_U は P_{res} に依らず一定である。 $P_{res} \gg P_C$ の高電力領域では、以下の2通りに大別される。(a) $P_{res} = P_C$ 時に右辺第1項 ≪ 右辺第2項が成り立つ系では、 P_{res} の増大とともにほぼ $P_{res}^{(-0.5)}$ に比例して二準位系起因の損失は小さくなり、 Q_U は、ほぼその逆数と近似できるので、 $P_{res}^{0.5}$ に比例して大きくなる。(b) 一方、 $P_{res} = P_C$ 時に右辺第1項 ≒ 右辺第2項が成り立つ系では、 P_{res} の増大に対し $P_{res}^{-\alpha}$ ($\alpha < 0.5$) に従い二準位系起因の損失は減少するが、この領域では右辺第1項 ≻ 右辺第2項となるので、 Q_U の増大の程度は $P_{res}^{-\alpha}$ ($\alpha < 0.5$) よりも更に弱い。そして、右辺第1項 ≫ 右辺第2項となるまで P_{res} が大きくなると、無負荷損失は P_{res} に依存せず一定値に収束する。図 3.2-8 に示す実験結果では、NbN/Si、Nb/Si、Nb/Al₂O₃ の3種類に関し、 P_{res} の増大とともに、 Q_U の P_{res} 依存性は弱くなり、 Q_U は一定値に漸近するよう見える。これは、標記(b)に相当し、 $P_{res} \gg P_C$ の極限領域での漸近値の材料による違いは、

(3.2.9)式における δ_{sat} の差を反映したものと考えられる。NbN/Al₂O₃では、 Q_U の P_{res} 依存性は P_{res} に依らずほぼ一定となっているが、これは他の3種に比べ、電極損失や誘電損失で規定される δ_{sat} が小さく、図3.2-8に示す P_{res} 領域においては、(b)よりも(a)に近い状況にあることが示唆される。

このように、材料による Q_U の違いは見られたが、 Q_U の P_{res} 依存性の傾向に大きな差はなかった。また、本プロジェクト開始以前の研究⁵⁾から、TES読出のためのSQUID動作時に、読出雑音を最小とする P_{res} 値が存在し、それは $P_{\text{res}} \approx -40$ dBmであることを見出していた。図3.2-8より、 $P_{\text{res}} \approx -40$ dBmは、NbN/Al₂O₃以外の3種類の材料では、 Q_U の P_{res} 依存性が弱まりほぼ一定値に飽和しかけている領域に相当する。すなわち、MKID等で報告される二準位系に起因する誘電損失⁸⁻¹⁰⁾は、本プロジェクトで開発するTES用マイクロ波帯多重読出回路では、系の損失の支配要因ではないことが言える。

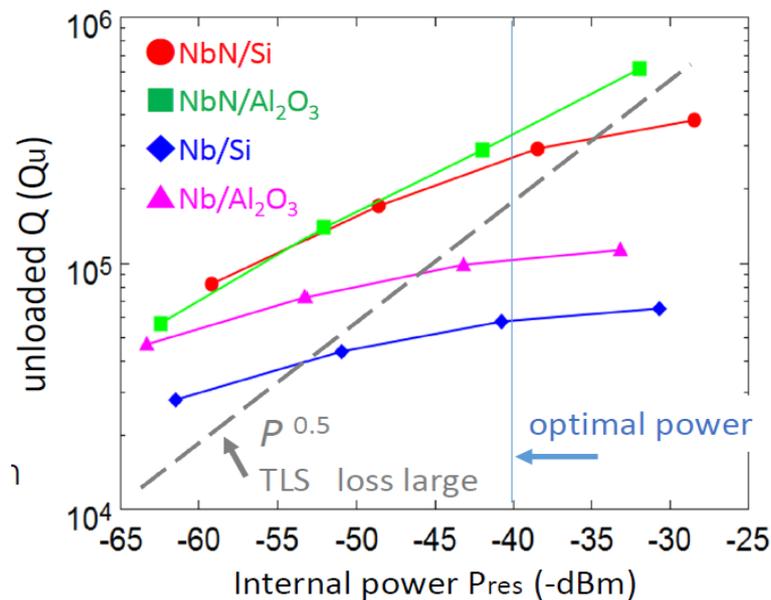


図 3.2-8 4種類の共振器の無負荷 Q 値と共振器内部のマイクロ波電力の関係

試作した4種類の材料の共振器に関し、3 kHz以下の低周波域の位相雑音パワースペクトル密度 S_{FR} の周波数依存性を測定した。10 Hzにおける $S_{\text{FR}}/f_{\text{R}}^2$ の共振器内電力 P_{res} に対する依存性の結果を図3.2-9に示す。図より、4種の材料による雑音の絶対値はほぼ同じであるとともに、全て、 P_{res} 増大に対して $P_{\text{res}}^{-0.5}$ に比例して減少した。また、SQUIDへの入力磁束を0から Φ_0 まで徐々に変化させ、入力磁束から出力共振周波数変異への変換効率を見積持った。これら2つのパラメータから、SQUIDの入力換算の雑音磁束が得られる。

$$S_{\Phi} = \frac{S_{f_{\text{R}}}}{\left(\frac{\partial f_{\text{R}}}{\partial \Phi}\right)^2} \quad (3.2.10)$$

(3.2.10)式より計算された読出回路の入力換算雑音磁束 $\sqrt{S_{\Phi}}$ を、算出の基となった S_{FR} や $\partial f_{\text{R}}/\partial \Phi$ の実測値とともに表3.2-1にまとめる。表から、白色雑音がほぼ支配的となる

3kHz において、従来型 DC-SQUID 読出に遜色のない $\approx 10^{-7}\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ の低読出雑音の実現見通しが得られた。

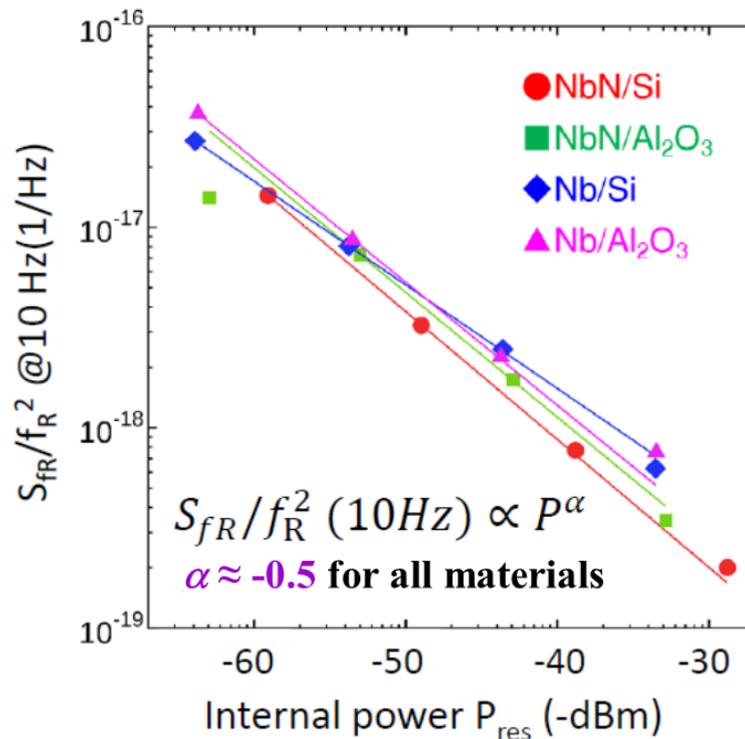


図 3.2-9 10 Hz における位相雑音の共振器内マイクロ波電力依存性

表 3.2-1 4 種類材料の共振器に対する、位相雑音実測値@ 1 Hz, 3 kHz、磁束から共振周波数への変換効率実測値、および、(3.2.10)式にそれらを代入・試算した SQUID 入力換算の磁束雑音@ 1 Hz, 3 kHz。ただし、3 kHz では白色雑音がほぼ支配的、1 Hz では低周波雑音が支配的である。

	$S_{f_R}/f_R^2@1\text{Hz}$	$S_{f_R}/f_R^2@3\text{kHz}$	$\frac{\partial f_R}{\partial \Phi}$ (MHz)	$\sqrt{S_\Phi@1\text{Hz}}$ ($\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$)	$\sqrt{S_\Phi@3\text{kHz}}$ ($\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$)
NbN/Si	7.0×10^{-18}	6.0×10^{-20}	9.8	1.3	0.22
NbN/Al ₂ O ₃	1.1×10^{-17}	2.0×10^{-19}	8.1	2.0	0.53
Nb/Si	1.9×10^{-17}	2.4×10^{-19}	6.5	4.5	0.67
Nb/Al ₂ O ₃	1.6×10^{-17}	2.8×10^{-19}	5.4	4.0	0.8

3.2.5 クロストークと直線性誤差の評価と低減 (H27~H28)

TES アレイ用多重読出回路では、雑音性能とともにクロストークや直線性誤差も検出器のエネルギー分解能に影響を与える。マイクロ波帯周波数多重読出回路では CPW 線路を用いた共振器により多重化を行っており、読出チップ上の共振器間の電磁氣的結合によりクロストークが発生すると考えられる。本節では、まず、クロストークの、共振周波数間隔および空間的距離に対する依存性を実験的に評価し、チップ全体でクロストークを抑制する設計指針を得る。次に、入出力特性の線形化およびダイナミックレンジ拡

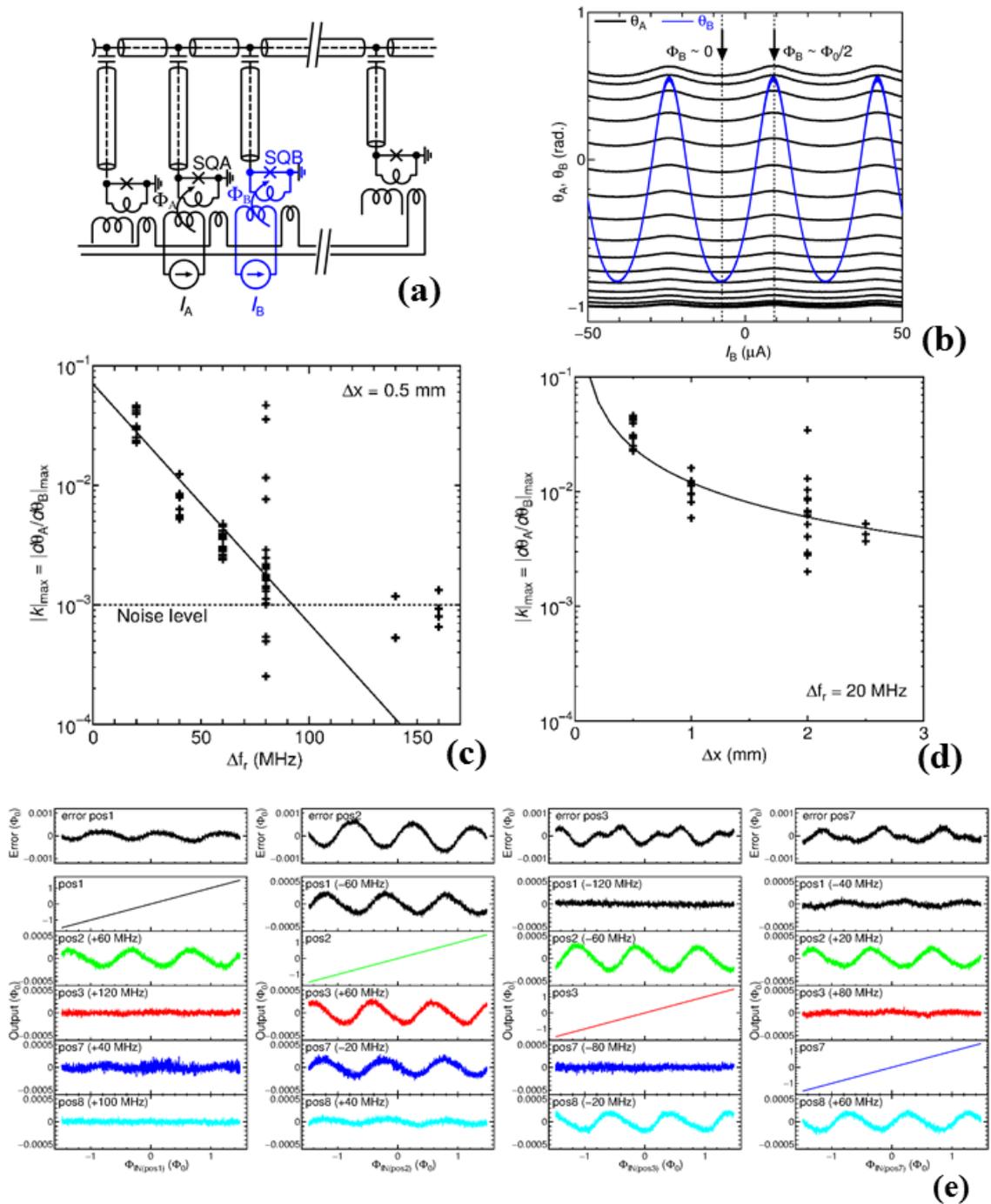


図 3.2-11 クロストークおよび直線性誤差評価の実験結果。(a)クロストーク評価回路概念 (b)クロストークのある2チャンネルの出力例(黒が図(a)のSQA、青がSQBに相当) (c)チップ上隣接チャンネル間クロストーク指数 k_{\max} の共振周波数間隔 Δf_r 依存性 (d)共振周波数の隣接したチャンネル間クロストーク指数 k_{\max} のチップ上距離 Δx 依存性 (e)鋸歯状波磁束変調下での5チャンネル同時測定におけるクロストークと直線性誤差。各列はチャンネル1, 2, 3, 7(左から右に)入力を $3f_0$ 掃引した時の各チャンネルの応答。最上列が掃引チャンネル応答の直線性誤差。図中周波数は掃引チャンネルとの共振周波数差。チャンネル1, 2, 3および7, 8は各々隣接したチップ上の位置を占める。

評価に用いた読出チップは図 3.2-7 と同様、マイクロ波フィードラインの両側に SQUID で終端された共振器が 0.5 mm ピッチで 8 個ずつ接続されている。共振周波数は 5 GHz 付近に 20 MHz 間隔で設定した。チップ上の位置と共振周波数との関係が異なる 5 種類のチップを用意した。評価はフィードラインからみて同じ側にあるチャンネル間で行った。図 3.2-11(a) のようにチップ上 2 チャンネル SQUID 入力に直流電流を印加し応答を調べた。図 3.2-11(b) はクロストークのある 2 チャンネルからの出力例である。入力電流 I_B によりチャンネル B 出力 θ_B (青線) が磁束量子 Φ_0 に相当する周期で変化すると同時に、入力を固定したチャンネル A の出力 θ_A (黒線) も θ_B に対応して変動する。この測定よりクロストーク量 $k \equiv d\theta_A/d\theta_B$ が得られる。 k は θ_A の関数になっているがその最大値 k_{\max} (クロストーク指数) によりクロストークの大きさを比較した。5 種のチップ測定より得られた結果概要を図 3.2-11(c), (d) に示す。図 3.2-11(c) は、チップ上で隣接するチャンネル間のクロストーク指数の共振周波数間隔 Δf_i 依存性である。共振周波数が離れるにしたがいクロストーク指数は急速に減少し、 $\Delta f_i = 100$ MHz に対し 1×10^{-3} 程度になる。また図 3.2-10(d) は、共振周波数間隔 20 MHz のチャンネル間の距離 Δx を変えた時のクロストーク指数である。クロストーク指数は距離とともに減少し、2.5 mm で 5×10^{-3} 程度になる。これらの結果から、隣接位置を占めるチャンネルの共振周波数差を $\Delta f_i \geq 60$ MHz、隣接共振周波数を持つチャンネル間の距離を $\Delta x \geq 1$ mm とすることにより、低クロストークのチップ設計の見通しを得た。

鋸歯状波磁束変調法は、被測定信号より速いランプ波を加算し出力の Φ_0 周期応答の位相のずれから入力信号を推定する。測定したいチャンネルとクロストーク k を持つ他のチャンネルに同時に変調がかけられた場合、両チャンネルの磁束入力差に応じて Φ_0 周期で $k\Phi_0/2\pi$ 程度の磁束誤差が生じ得る。入力差によることから、他チャンネルからのクロストークと同時に被測定チャンネルの直線性誤差も発生することになる。本実験に用いた 5 種のチップのうち、図 3.2-11(c) の $\Delta f_i = 60$ MHz および図 3.2-10(d) の $\Delta x = 2.5$ mm に対応する比較的バランスの良い設計となったチップを選び、ランプ磁束変調を用いて測定を行った結果を図 3.2-11(e) に示す。共振周波数もしくは位置に近いチャンネルへのクロストークおよび直線性誤差が見られるが、いずれも磁束換算で $\pm 0.6 m\Phi_0$ 以下である。東大製 γ 線 TES 出力パルス波高値は、SQUID 入力磁束換算で約 $0.5\Phi_0$ ゆえ、 $\pm 0.6 m\Phi_0/0.5\Phi_0 = \pm 1.2 \times 10^{-3}$ 以下の相対的直線性誤差が見積もられる。この値は、東大製ガンマ線 TES の相対的エネルギー分解能 $100 \text{ eV}/60 \text{ keV} = 1.7 \times 10^{-3}$ より小さい。また、将来、この値が $30 \text{ eV}/60 \text{ keV} = 5.0 \times 10^{-4}$ に改善された場合には、SQUID と TES からの入力信号結合用の相互インダクタンス M の倍増および TES 抵抗値の 2/3 倍化との組み合わせにより、光子入射に伴う SQUID 入力磁束波高値を 3 倍化、すなわち $1.5\Phi_0$ とする。これにより、相対的直線性誤差は、 $\pm 0.6 m\Phi_0/1.5\Phi_0 = \pm 4.0 \times 10^{-4}$ 以下となり、 $30 \text{ eV}/60 \text{ keV} = 5.0 \times 10^{-4}$ を下回る。

以上から、本読出回路におけるクロストークや直線性誤差が、東大製ガンマ線 TES と組み合わせた分光器のエネルギー分解能の支配要因とはならない。

3.2.6 単画素 TES の読出 (H28)

図 3.2-12 は、単画素 TES に放射線源(Co)からのガンマ線を照射し、その出力をマイクロ波マルチプレクサで読んだ場合の波形である。実験に用いた TES は Ir・Au の二層膜構造であり、エポキシポストを介してバルクの Sn 放射線吸収体と接続されている。γ線源には、Co-57 を使い、冷凍機外からの照射を行った。また、マイクロ波読出に使用したチップの無負荷 Q 値 Q_0 は $Q_0 \approx 6000$ であり、これまでに達成した Q_0 値よりも一桁ほど小さかった。図より、立上り時定数(τ_{rise}) 230 μsec 、立下り時定数(τ_{fall}) 6.2 msec を得る。これらの値は、Am-241 の 59.5keV の γ 線を照射したこの TES 素子を、従来型単一素子読出に供した時の値 $\tau_{rise}=260 \mu\text{sec}$ 、 $\tau_{fall}=6.4 \text{ msec}$ にほぼ等しく、我々のマイクロ波読出回路が γ 線 TES 読出に十分な高速応答性を持つことを実証した。

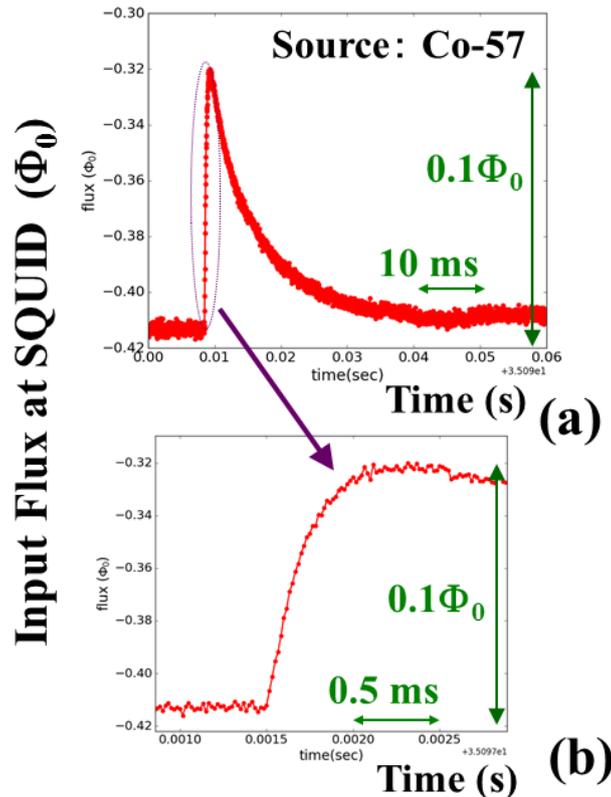


図 3.2-12 (a) コバルト線源からの放射線を照射した TES 出力の、マイクロ波多重読出回路による読出波形。(b) (a) の立上り部の拡大。

図 3.2-13 に、出力端位相ゆらぎの測定値を SQUID 入力端磁束に換算した雑音の周波数 f 依存性を示す。TES のバイアス電流を 2 通り、すなわち、TES が超伝導状態 (黒線) と、超伝導転移端 (赤線) に設定した。超伝導状態時には、 $f > 10 \text{ Hz}$ にて白色、 $f < 10 \text{ Hz}$ では f 低下に対し雑音値増大するスペクトルが得られた。超伝導状態では、TES は雑音発生源にはならないので、ここに示される白色雑音磁束約 $5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ (雑音電流約 $1.7 \times 10^{-10} \text{ A} / \sqrt{\text{Hz}}$) は、読出回路起因の雑音である。この値は、従来型 DC-SQUID ベースの単素子読出での雑音値よりも 1 桁悪いとともに、3.2.4 節で述べた、共振器単体の低周波位相雑音と SQUID の変換効率の測定値から試算した雑音予測値 (表 3.2-1) に比べ 1 桁悪い。この理由は 2 つ考えられる。(1) 共振の無負荷 Q 値の低下。(2) 本実験で用いたマイクロ

波電力が、SQUID 雑音を最小とする値に比べて低いことに起因する、極低温 HEMT 増幅器雑音の寄与度の増大。(1)に関して、本実験に用いた共振器の無負荷 Q 値は、 $Q_0=6 \times 10^3$ であった。この値は、図 3.2-8 に示す値に比べ 1 桁あるいはそれ以上低い。図 3.2-3(e) より、 Q_0 の 6×10^3 から 1×10^5 への増大は、SQUID 変換効率を 1.8 倍化する。HEMT 増幅器の雑音の寄与を $1/1.8$ 倍化する。(2)に関して、本実験では、 -50 dBm のマイクロ波パワーを用いた。これは最適値より約 15dB 小さい。私達のこれまでの研究⁵⁾より、冷却 HEMT 雑音の寄与はパワーに反比例するので、パワー最適化により、15 dB (約 5.6 倍) の雑音低減が見込まれる。(1)、(2)より、白色雑音を $1/(1.8 \times 5.6) = 1/10$ 倍化した値、すなわち $5 \times 10^{-7} \Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ (雑音電流約 1.7×10^{-11} A/ $\sqrt{\text{Hz}}$) への低減が期待できる。この値は、表 3.2-1 に記述した予測値と一致するとともに、マイクロ波周波数多重読出回路で得られた低雑音の世界記録¹¹⁾に等しい。

一方、TES を超伝導転移端にバイアスした時には、 $f < 800$ Hz において f^α ($\alpha \approx 0.7$) にほぼ比例する雑音が観測された。この雑音の原因は現段階では不明であるが、雑音の大きさが TES のバイアス点に依存することから、以下の可能性が考えられる。(1) TES が雑音発生源。(2) 電氣的、熱的、音響的な外来雑音が TES に入射し、TES の急峻な抵抗-温度特性を介して SQUID 入力電流に変換された。今後、下記実験を行うことにより、原因の切り分けを試みる予定。(1)に関しては、複数の TES チップに対し、同様の雑音増大が生じるか否かを確認する。(2)に関しては、動作点微分抵抗と雑音強度の相関、雑音強度のチップへの入射マイクロ波電力依存性、冷却系依存性、チップ搭載モジュールへの振動対策の効果等を調べる。また、(1)、(2)ともに、雑音強度の TES パラメータ依存性を調べ、モデルの妥当性を検証する。これら一連の取り組みにより、主要雑音源を同定するとともに、その雑音強度の低減および SQUID の等価入力磁束への変換係数低減の手法を明らかにしていきたい。

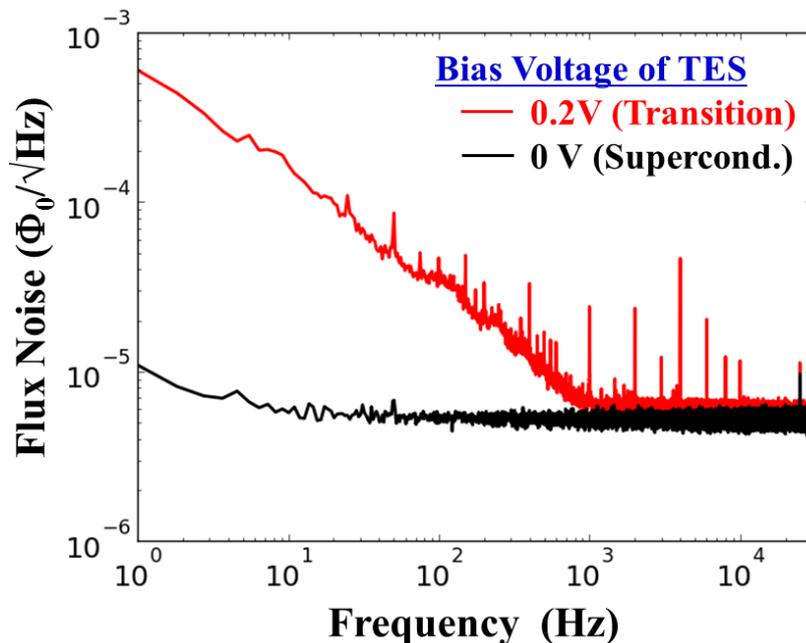


図 3.2-13 磁束雑音の周波数依存性。TES のバイアス点を超伝導転移点 (赤線) と超伝導状態 (黒線) にした時。

3.2.7 まとめ

東大製ガンマ線 TES の読出回路を、従来の多重化法に比べ1本の読出線あたりの多重化画素数の飛躍的増大が期待されるマイクロ波多重方式を基に開発した。低周波域の位相雑音と SQUID の変換効率の実験値から試算される読出雑音は、従来の DC-SQUID 読出に遜色ない値であった。入出力特性の非直線性誤差が、チップ上での隣接チャンネル間のクロストーク量に比例することを理論的、実験的に明らかにするとともに、クロストーク量を1/1000以下とするチップ上チャンネル配置を見出した。コバルト放射線源からの光子照射を受けた単画素 TES 出力を開発した回路で読出し、立上り時間 230 μ s、立下り時間 6.2 ms のパルスを、従来の読出法に遜色ない高速応答性で読み出すことに成功した。一方、TES との協調動作にて観測された雑音は、低周波域の位相雑音と SQUID の変換効率の実験値から試算される値に比べ、白色雑音域で1桁大きく、また 800 Hz 以下の低周波域で周波数依存性のある原因不明の成分が見出された。今後は、これらの低減を図った上で複数画素の同時読出に挑む計画である。

参考文献

- (1) J. A. B. Mates, et al., “Demonstration of a multiplexer of dissipationless superconducting quantum interference devices,” *Appl. Phys. Lett.*, 92 (2008), 023514 1-3.
- (2) J.A.B. Mates, “The microwave SQUID multiplexer,” Ph-D thesis, Univ. Colorado, 2011.
- (3) O. Noroozian, et al., “High-resolution gamma-ray spectroscopy with a microwave-multiplexed transition edge sensor array,” *Appl. Phys. Lett.*, 103 (2013) 202602 1-5.
- (4) F. Hirayama et al., “Flux-ramp modulation for SQUID multiplexer,” *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 23 (2013) 2500405 1-4.
- (5) S. Kohjiro et al., “White noise of Nb-based microwave superconductive quantum interference device multiplexers with NbN coplanar resonators for readout of transition edge sensors,” *J Appl. Phys.*, 115 (2014) 223902 1-9.
- (6) J. A. B. Mates, et al: “Flux-ramp modulation for SQUID multiplexer,” *J. Low Temp. Phys.*, 167 (2012), 707-712.
- (7) S. Hatakeyama et al., “Development of Hard X-ray and Gamma-ray Detector with Transition Edge Sensor for Nuclear Materials Analysis,” *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 25 (2015) 2101603 1-3.
- (8) J. Gao et al., “A semiempirical model for two-level system noise in superconducting resonators,” *Appl. Phys. Lett.*, 92 (2008) 212504 1-3.
- (9) R. Barends et al., “Reduced frequency noise in superconducting resonators,” *Appl. Phys. Lett.*, 97 (2010) 033507 1-3.
- (10) S. T. Scacel et al., “Probing the density of states of two-level tunneling

systems in silicon oxide films using superconducting lumped element resonators,” Appl. Phys. Lett., 106 (2015) 022603.

3.3 核燃料物質等を用いた測定試験（再委託先：原子力機構）

3.3.1 目的

東京大学において開発した硬X線 γ 線検出用 TES アレイ検出器を用いて核燃料物質等の測定試験を実施する。従来型の放射線測定器による並行測定データやシミュレーション計算等により測定データに含まれるバックグラウンド放射線の影響等を評価するとともに、核燃料物質等を用いて、TES 検出器の基本性能を評価する。

3.3.2 測定試験概要

TES 検出器による測定実験は、3 年間の研究計画に基づき、日本原子力機構 大洗研究開発センターの原子炉施設において3回実施した。平成 26 年度はナトリウム分析室において、Eu-154 等の FP に係る線源を測定した。平成 27 年度は照射装置組立検査施設において、高速実験炉「常陽」で照射された ^{235}U 試料等を測定した。平成 28 年度は放射線管理棟において、微小放射能の ^{237}Np 線源を測定した。平成 28 年度の測定では他の年度と異なり、 ^{237}Np 線源を 20 KeV の LX 線をカットするため約 3 mm 厚のアルミ箔に包み、冷凍機内部の TES 素子前面から約 1cm の距離に配置した。各測定試験で使用した線源は図 3.3-1 に示す通りである。

上記の TES 検出器による測定に加えて、各年度において Ge 半導体検出器および CdZnTe 半導体検出器による並行測定や電子・光子輸送計算コード Electron Gamma Shower version 5¹⁾（以下「EGS5」という。）による測定シミュレーション計算を実施した。

3.3.3 測定試験の結果および評価

(1) ^{154}Eu の測定結果および評価 (H26)

^{154}Eu 線源の TES 検出器と CdZnTe 検出器による測定結果を図 3.3-2 に示す。本実験で使用した ^{154}Eu 線源は、日本アイソトープ協会より購入した下限数量未満の線源 0.911 MBq（平成 26 年 1 月 1 日検定）である。 ^{154}Eu は半減期 8.59 年で β^- 崩壊し、今回の試験時には約 830 kBq 程度に減衰している。また購入時付属の校正証書から、本線源は放射性同位体として ^{152}Eu （半減期 13.5 年、電子捕獲 72%、 β^- 崩壊 28%）を 7.91%、 ^{155}Eu （半減期 4.76 年、 β^- 崩壊）を 11.5% 含有していることがわかっている。それぞれの核種の試験時における放射能は、 ^{152}Eu が 50 kBq 程度、 ^{155}Eu が 200 kBq 程度と計算できる。TES 検出器による高分解能測定により、 ^{154}Eu の壊変に伴う 43 keV 程度の Gd の K-X 線および 123 keV の γ 線の主要なピークとともに、 ^{155}Eu の 87 keV の γ 線、 ^{152}Eu の壊変に伴う 40 keV 程度の Sm の K-X 線や 122 keV の γ 線ピーク等が観測されている。一方で TES 検出器の Sn 吸収体が薄いため、検出器から光子のエネルギーの一部が散逸することで生じるエスケープピークも複数観測されている。

それぞれの検出器の測定結果について、ピークのエネルギーがほぼ一致していることが確認できる。CdZnTe 検出器による測定においては、86.5 keV および 105 keV の γ 線ピークから、線源中の少量の ^{155}Eu の混入は確認できる。その一方で、CdZnTe 検出器のエネルギー分解能では ^{152}Eu からの 122 keV の γ 線と、 ^{154}Eu からの 123 keV の γ 線ピークは弁別できないため、線源中の少量の ^{152}Eu の識別は不可能である。TES は上記の識別が可能

なうえ、ピークカウントと Sn 吸収体の検出効率および γ 線・X 線の放出率から、 ^{152}Eu と ^{155}Eu の放射能比を 1 標準偏差以内で大まかに算出することができる(表 3.3-1)。これらの結果から TES 検出器の高分解能性能によるピークの分離が有効であることがわかる。

(2) 原子炉照射された ^{235}U 箔中性子ドシメータの測定結果および評価 (H27)

原子炉照射された ^{235}U 箔中性子ドシメータの TES 検出器による測定の解析結果を図 3.3-3 上段に、同試料を Ge 半導体検出器で測定した結果を図 3.3-3 下段に示す。測定時の TES のエネルギー分解能はおおよそ 190eV であった。どちらの測定においても、 ^{238}U の中性子捕獲核分裂で生成した ^{137}Cs の β 崩壊で生じる 31.817 keV の Ba K_{a2} -X 線および 32.194 keV の Ba K_{a1} -X 線のピークや、未壊変の ^{235}U の内殻電子が ^{137}Cs の β 線などで弾き飛ばされて生じる 94.654 keV の U K_{a2} と 98.434 keV の U K_{a1} 特性 X 線のピークが確認できた。また、 ^{137}Cs の 662 keV の γ 線に起因するコンプトン連続部も確認できた。

Ge 半導体検出器による測定結果から、原子炉照射された ^{235}U 箔中性子ドシメータ中の主要放射性核種は ^{137}Cs であることが推測できるため、バナジウムキャプセル中に ^{137}Cs とウランを配置し、シミュレーション計算を実施した。シミュレーション計算では、 ^{137}Cs から放出される光子のエネルギーおよびその放出率のデータは文献(2)に掲載されているものを使用した。原子炉照射された ^{235}U 箔中性子ドシメータの TES 検出器による測定結果と EGS5 によるシミュレーション結果の比較を図 3.3-4 に示す。比較結果から、TES 検出器による ^{235}U 箔中性子ドシメータ測定時のエネルギースペクトル中の連続成分は ^{137}Cs の 662 keV γ 線の検出器中でのコンプトン散乱イベントに起因するものであると決定づけられた。662 keV γ 線により発生するコンプトン散乱電子の最低エネルギーはおおよそ 184 keV であり、これより低いエネルギーの連続成分については、Sn 吸収体中での制動放射による散乱電子のエネルギーの散逸によるものが主な原因である。また、 γ 線の後方散乱なども低エネルギーの連続成分に影響を与えている。 ^{137}Cs の光子のみによるシミュレーションでは、80 keV 以下の部分が実測値と大きくずれることから、 β 線の影響もシミュレートし、スペクトルをさらに評価する必要がある。

(3) 原子炉照射された ^{237}Np 箔中性子ドシメータの測定結果および評価 (H27)

原子炉照射された ^{237}Np 箔中性子ドシメータの TES 検出器による測定の解析結果を図 3.3-5 上段に、同試料を Ge 半導体検出器で測定した結果を図 3.3-5 下段に示す。どちらの測定においても、 ^{237}Np の (n, γ) 反応を起点として最終的に生じる ^{238}Pu の α 崩壊に伴い放出される 43.498 keV の γ 線や ^{237}Np および ^{238}Pu の中性子捕獲核分裂で生じた ^{137}Cs の Ba K-X 線等に起因する複数のピークを確認することができた。検出器サイズの小さい TES 検出器での測定の際に影響が懸念されていた ^{137}Cs の 662 keV γ 線の検出器中でのコンプトン散乱イベントに起因する連続成分は大きな影響を与えないこともわかった。両者を比較した場合、エネルギー分解能の高い TES ではより顕著にピークを分離できており、従来の放射線検出器よりも優れた十分な実用レベルに達していることが確認できた。

TES により測定した原子炉照射された ^{237}Np 箔中性子ドシメータと未照射の ^{237}Np 箔中性子ドシメータの X 線および γ 線スペクトルの比較結果を図 3.3-6 に示す。スペクトルの

形状が照射前後で大きく変化し、原子炉照射による ^{237}Np からの ^{238}Pu の生成や、 ^{137}Cs 等の核分裂生成物の発生が見て取れる。

(4) ^{237}Np の測定結果および評価 (H28)

^{237}Np 線源の TES 検出器と CdZnTe 検出器による測定結果を図 3.3-7 に示す。本実験で使用した ^{237}Np 線源は、日本アイソトープ協会より購入した下限数量未満の線源 222 Bq (平成 26 年 1 月 15 日検定) である。 ^{237}Np (半減期: 2×10^6 年) は α 線崩壊により ^{233}Pa (半減期:27 日) に壊変する。このため、測定に使用した線源は ^{237}Np と ^{233}Pa とが永続平衡の状態となっている。TES 検出器による高分解能測定により ^{237}Np の 86.5 keV の γ 線ピークとともに、 ^{233}Pa の壊変に伴う 95 keV および 98 keV の U の K_{α} -X 線ピーク、その他複数の γ 線、X 線ピーク並びに TES 検出器の吸収体の Sn のエスケープピークが検出されている。線源のバックングには白金が使用されているため、 ^{237}Np や ^{233}Pa の放射線に起因する特性 X 線が線源から発生しており、66.8 keV と 65.1 keV にそれぞれ白金の $K_{\alpha 1}$ -X 線と $K_{\alpha 2}$ -X 線のピークが観測されている。

TES 検出器による Np 線源の測定において、X 線および γ 線の全計数率は 0.07 cps 程度であった。しかしながら、TES システムが安定に動作しており、長時間測定が可能であったため、スペクトル作成に必要な数のパルスを取得できた。取得したパルスから作成したスペクトルは、同一線源の CdZnTe 検出器による測定結果に比べても高い分解能でピークを分離できており、また高 S/N も示していた。これにより、1 ピクセルの Sn 吸収体搭載 TES 検出器であっても、100Bq 程度若しくはそれよりも弱い放射能の核燃料物質等の測定が可能であることが実証された。

3.3.4 まとめ

大洗研究開発センターにおいて、ナトリウム分析室、高速実験炉「常陽」施設の照射装置組立検査施設の測定室および放射線管理棟に TES 検出器を搬入し、核燃料物質、 ^{235}U 箔中性子ドシメータ等の測定を行った。TES 検出器で測定したスペクトルは、Ge 検出器の測定結果と同様の傾向を示しつつも、より高い分解能でピークを分離できていた。また、微弱放射能の核燃料物質等の測定が可能であることが実証できた。これらの結果から、TES 検出器は核物質計測において十分実用可能なレベルに達していることが確認できた。

参考文献

- (1) Hirayama H, Namito Y, Bielajew AF, Wilderman SJ, Nelson WR. The EGS5 code system, SLAC-R-730. 2005.
- (2) Exploring the table of isotopes [Internet]. Berkeley(CA): The Berkeley Laboratory Isotopes Project [cited 2016 Apr 7]. Available from: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/nuclide.asp?iZA=550137>

表 3.3-1 ピークカウントからの Eu 線源の放射能比の算出結果

①核種	②種類	③エネルギー (keV)	④1壊変あたりの放出率 (%)	⑤ピークカウント (全エネルギーピーク+ エスケープピーク)	⑥誤差 (2σ)	⑦ ③のエネルギーに対する検出効率 (%) (Sn 300 μm)	相対放射能 (Eu-154基準) (= ⑤/④/⑦)	相対放射能 誤差 (2σ)	線源放射能 (kBq) (試験時)	相対放射能 (試験時)
Eu-152	Sm K _{α1} X線	40.118	38.3	198	28	96.5	0.063	0.010	53	0.064
Eu-152	γ線	121.78	28.58	29	11	16.4	0.073	0.028		
Eu-154	γ線	123.07	40.79	546	47	15.8	1.000	0.086	829	1.000

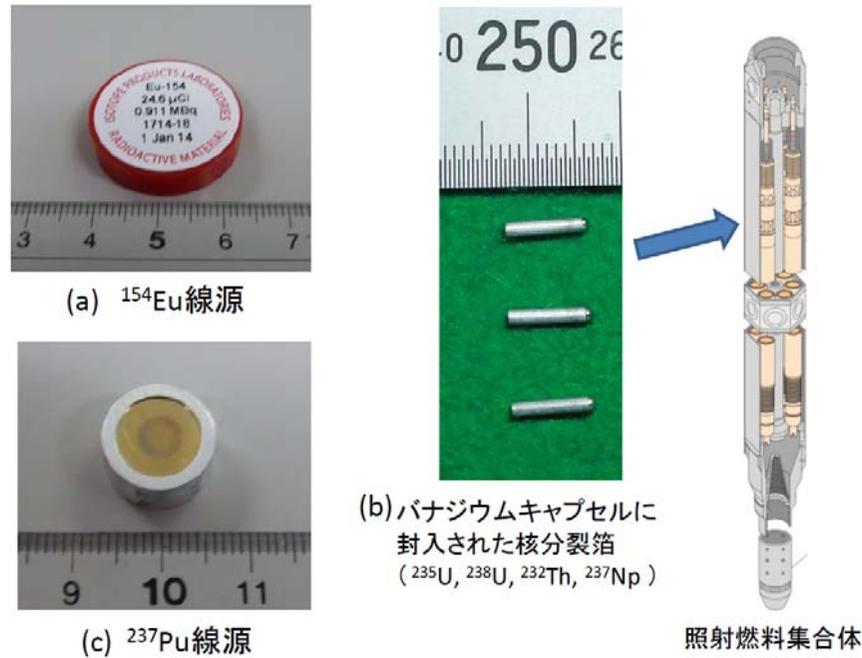


図 3.3-1 測定に使用した線源 (a)平成 26 年度に使用した ¹⁵⁴Eu 線源 (b)平成 27 年度に使用した原子炉照射照射された ²³⁵U 試料等 (c)平成 28 年度に使用した ²³⁷Np 線源

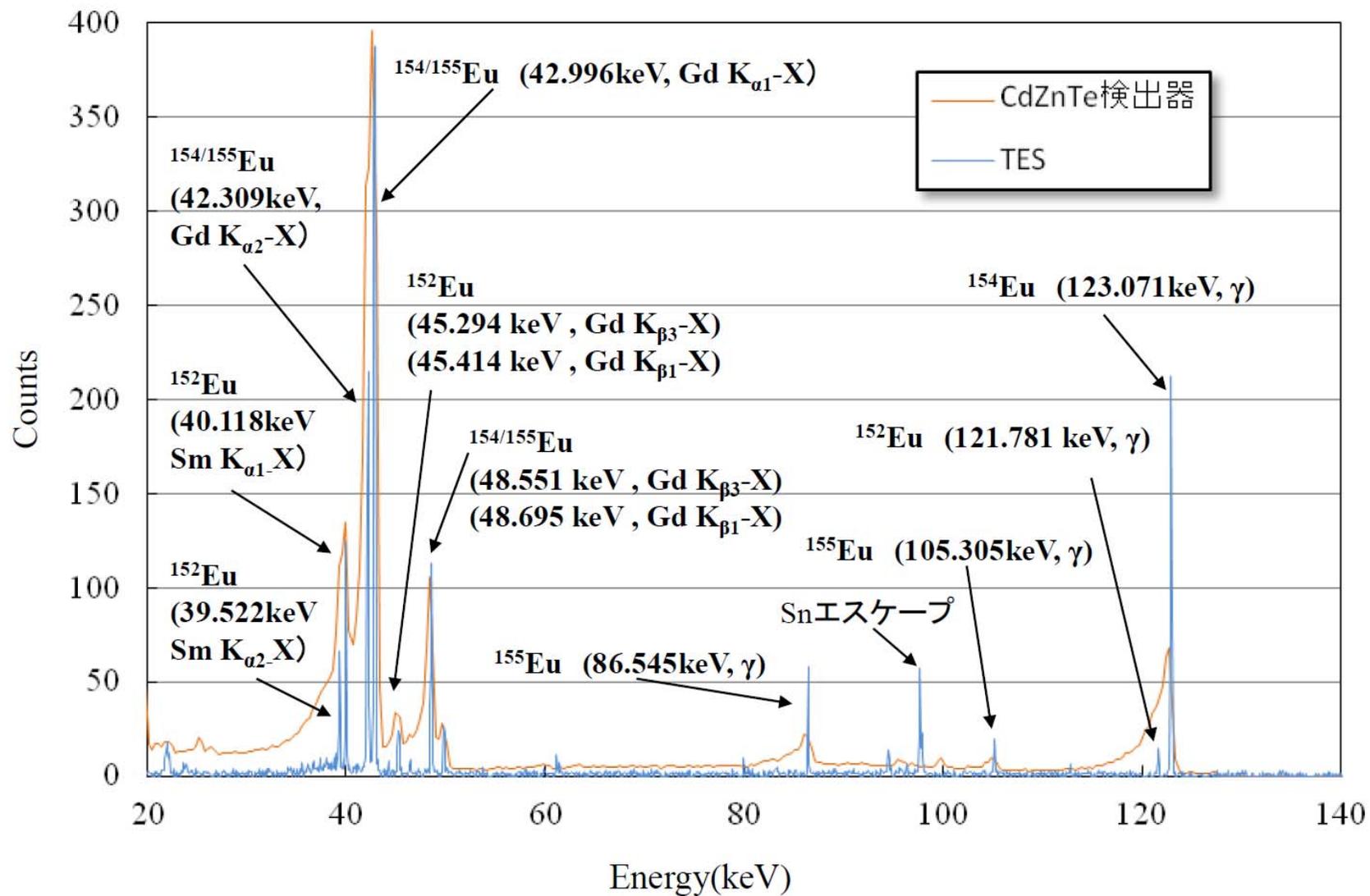


図 3. 3-2 TES 検出器および CdZnTe 検出器による ^{154}Eu 線源の測定結果

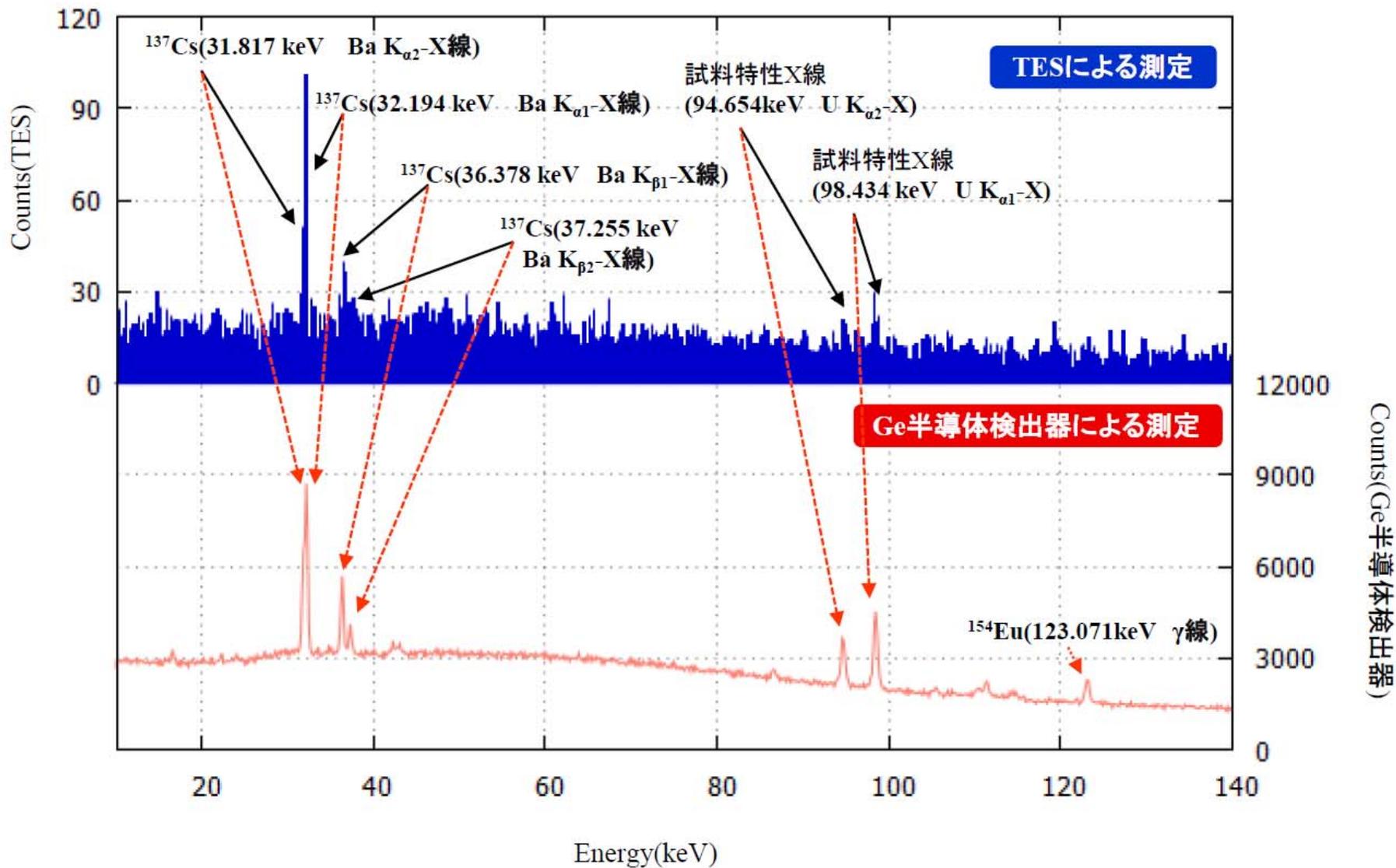


図 3.3-3 TES 検出器と Ge 半導体検出器で取得した原子炉照射された ^{235}U 箱中性子ドシメータの X 線および γ 線スペクトル

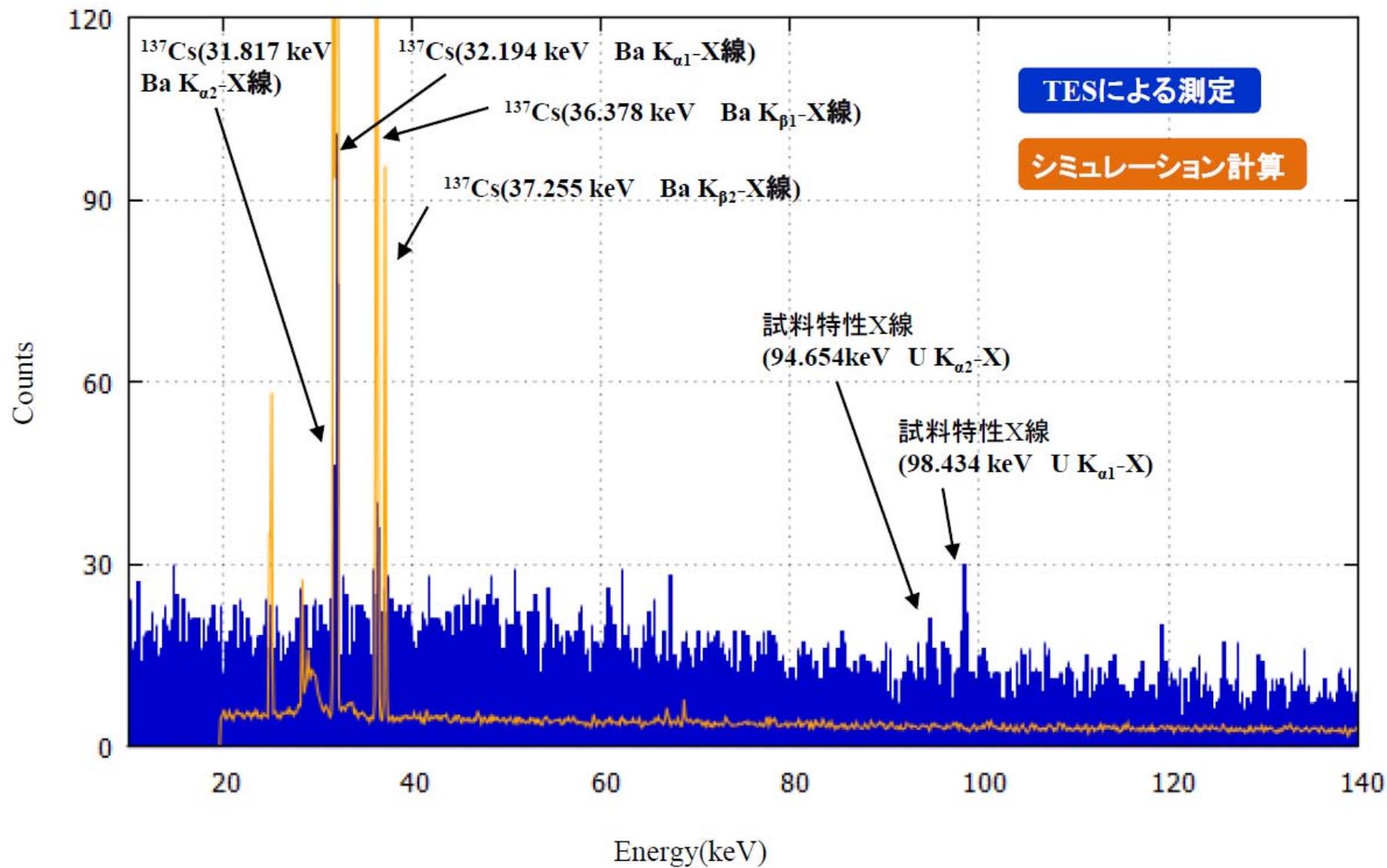


図 3.3-4 原子炉照射された ^{235}U 箱中性子ドシメータの測定結果およびシミュレーション結果の比較

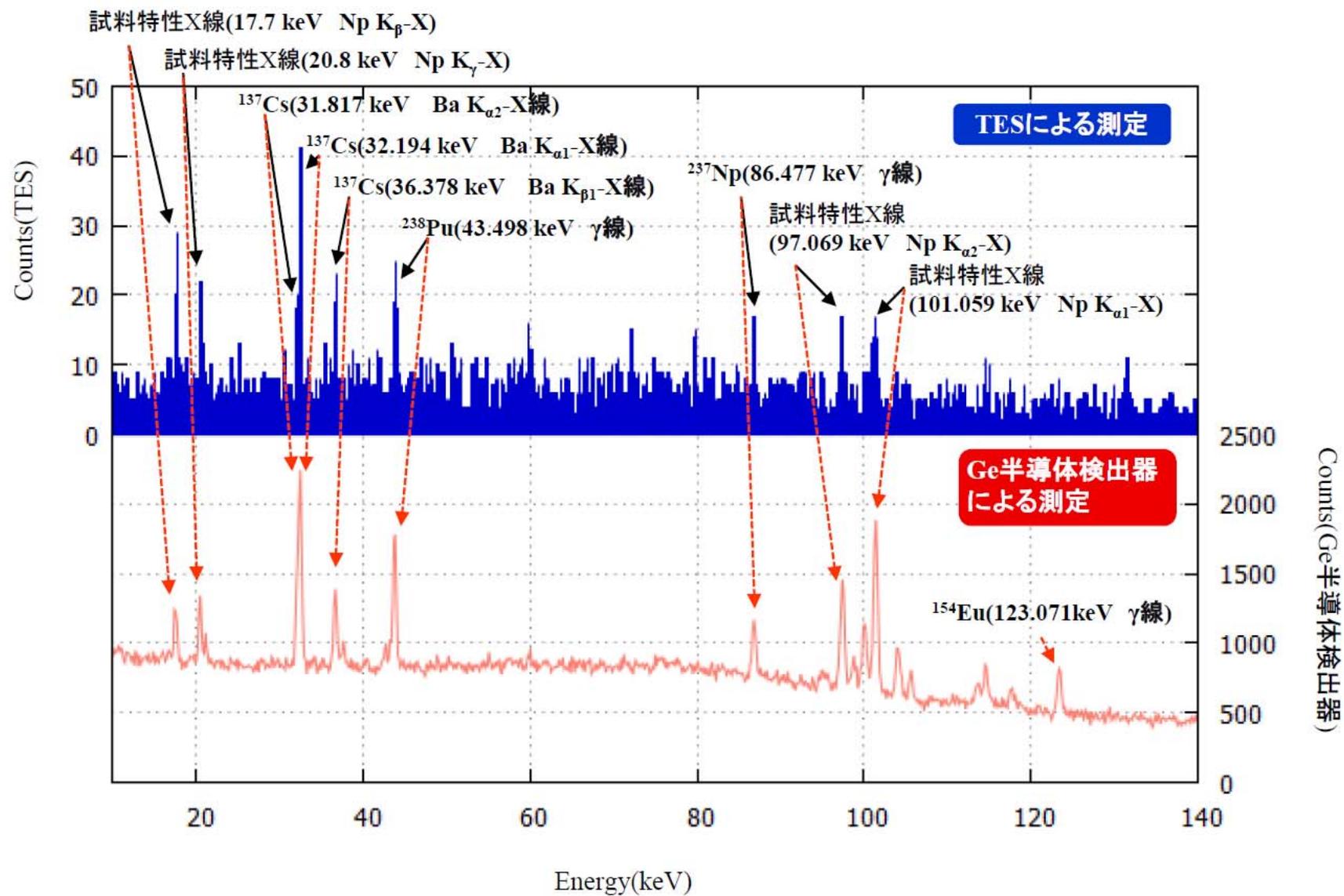


図 3.3-5 TES 検出器と Ge 半導体検出器で取得した原子炉照射された ^{237}Np 箱中性子ドシメータの X 線および γ 線スペクトル

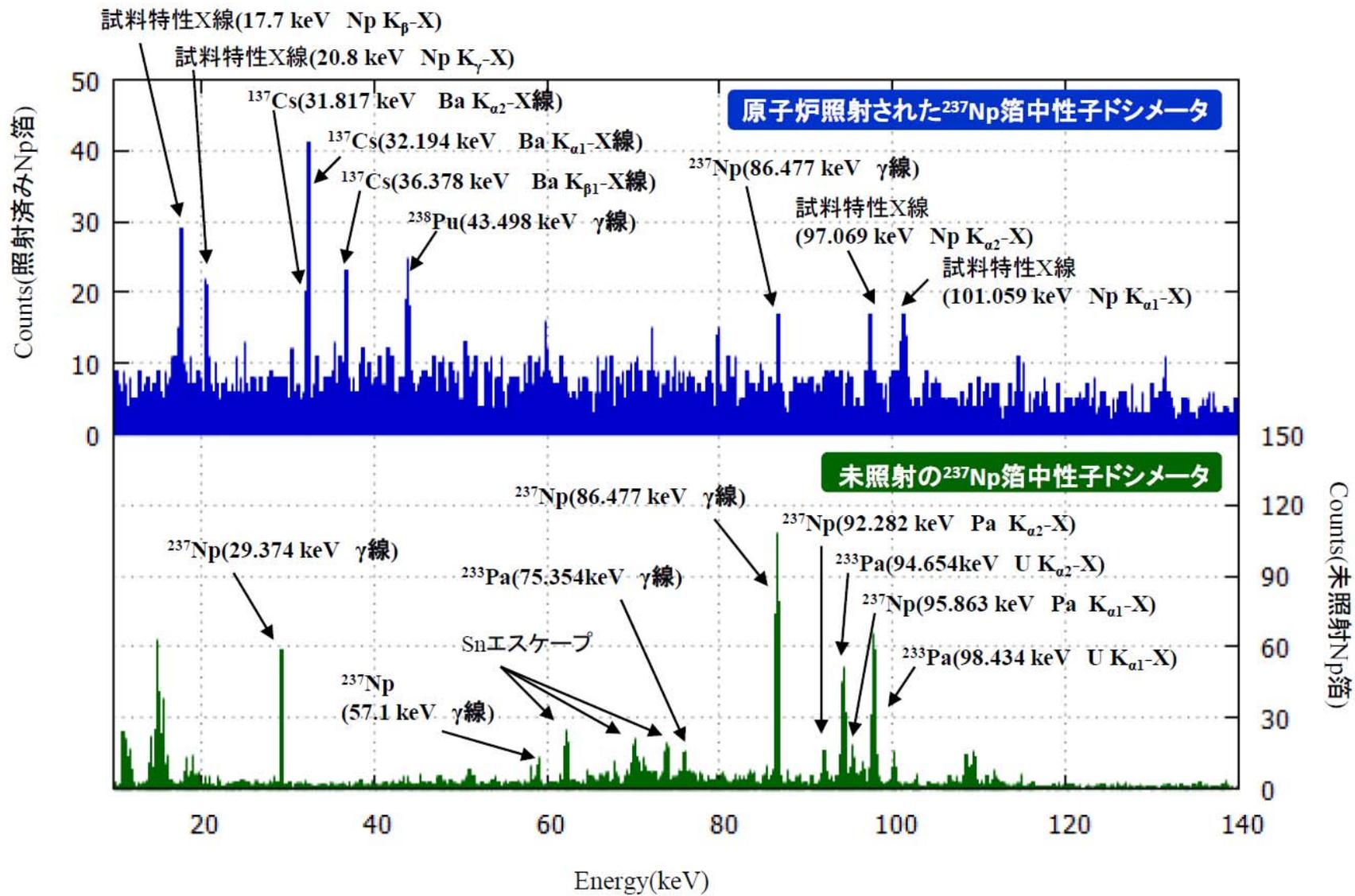


図 3.3-6 原子炉照射された ^{237}Np 箔中性子ドシメータと未照射の ^{237}Np 箔中性子ドシメータの X 線および γ 線スペクトルの比較

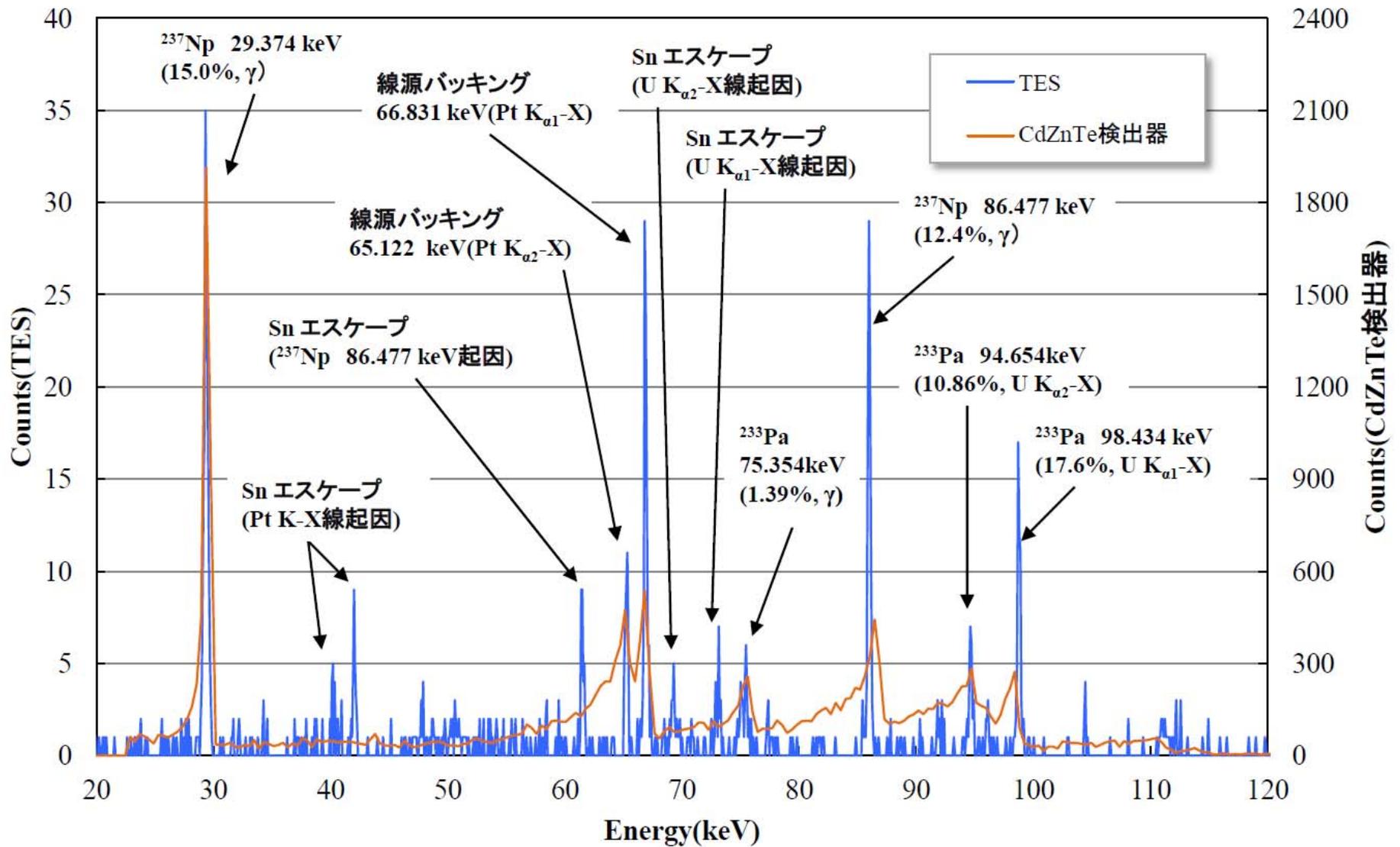


図 3. 3-7 TES 検出器および CdZnTe 検出器による ^{237}Np 線源の測定結果

3.4 研究推進 (H26-H28)

超伝導放射線計測技術の確立は、保障措置、核鑑識、核変換・高レベル放射性廃棄物の管理・処理技術構築等の原子力基盤技術の向上に寄与し、また放射光を利用した最先端の物性科学分野の発展の原動力にもなり得る。ただし、その研究効果を確かなものにし、社会の発展に着実に結び付けるためには、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意思疎通、連携体制の構築が必要不可欠である。そして現段階での超伝導検出技術の開発水準、エネルギー分解能のみならず、検出効率、応答速度等も考慮した真の分析性能、本研究期間終了時に達成可能な計測性能の水準等を明らかにし、さらに、応用分野から検出器に望まれる検出性能と現状での達成値とのギャップを適確に把握した上で、具体的な応用研究、応用技術分野の設定を行う等、緻密かつ深い議論が求められる。また、将来の本技術の実用化、商品化を睨みつつ、そのために克服すべき課題、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、外部有識者にも御参画頂き、研究課題実施初年度より「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」研究推進委員会を発足させ、各年度において1回ずつ、計3回の研究推進委員会を開催した。

3.4-1 「2014年度（第1回）研究推進委員会」

開催日時、場所

場所：東京大学本郷地区浅野キャンパス

工学部 12号館 2階 219会議室

日時：2015年2月6日 金曜日 14時開会 17時閉会

出席者

委員長	大野 雅史	東京大学大学院工学系研究科バイオエンジニアリング専攻 特任准教授 (本課題委託先代表)
委員	大谷 知行	理化学研究所光量子工学研究領域 グループディレクター
委員	神代 暁	産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門 研究グループ長 (本課題再委託先代表)
委員	櫻井 吉晴	高輝度光科学研究センター 利用研究促進部 副主席研究員
委員	澤田 嗣郎	科学技術振興機構先端計測分析技術・機器開発プログラム 開発総括 (東京大学名誉教授)
委員	高崎 浩司	日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 安全管理部次長 (本課題再委託先代表)
委員	武田 誠一郎	日本原子力研究開発機構福島廃止措置技術開発センター センター長
委員	前川 立行	株式会社東芝 電力システム社 原子力事業部 磯子エンジニアリングセンター センター長
委員	前畑 京介	九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部

准教授

オブザーバー	安宗 貴士	日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター (本課題研究実施者)
オブザーバー	伊藤 琢司	大陽日酸株式会社 開発エンジニアリング本部 つくば研究所超低温技術部
オブザーバー	畠山 修一	東京大学大学院工学系研究科バイオエンジニアリング専攻 博士課程 3年
オブザーバー	入松川 知也	東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻 修士課程 2年

会議内容

本研究事業の目的、具体的な目標、進め方等について最初に概略の説明を行った（大野）後、本年度の研究成果について各開発項目毎に、TES 検出素子作製（大野）、TES アレイ読出回路開発（神代）、原子力施設内での核種検出実験（高崎、伊藤）から報告した。そして成果報告を受けて、委員から質疑応答を受け、本研究推進および研究方針に関して非常に有益な情報、コメントを頂いた。委員から受けた主な質問、コメントを以下に示す。

- ・本研究での TES 開発目標について、応用、適用方針をより具体化するべき。
- ・目標 30eV のエネルギー分解能というのは、核物質の化学的挙動を見る上で、たとえば蛍光 X 線のケミカルシフト等の検出には不足している。化学変化、価数の違い等まで把握できるような分析性能は達成可能なのか。
- ・低バックグラウンド下での計測時には綺麗なスペクトルが得られているが、実際の原子力応用では、非常に高バックグラウンド下を想定するべきであり、そのような状況下で TES 検出システムは適用可能なのか。
- ・福島事故炉のデブリ解析等に適用する場合、具体的にどのような計測現場を想定しているのか。
- ・放射光科学、物性科学領域からは 100eV 以上のエネルギー分解能を維持しつつ、高純度ゲルマニウム検出器並みの有感面積が得られれば、一度使ってみたいと思える印象。
- ・TES 動作に必要な冷凍機システムの小型化はどの程度可能なのか。
- ・現在の成果においても、既存検出器とは桁違いのピーク分離能、高感度特性が実証されているので、その TES の動作環境に合った応用目的を上手く探して、適用すれば、非常に面白い実質的な成果が得られることは、間違いない。問題は、その応用先が上手く見つけられるかということにかかっている。そのような応用分野を、TES 検出システム開発研究者としても、きちんと見つける努力が必要不可欠。

東京大学低温センターにおける TES 検出システムの視察

委員会最後に、委員の先生方を本学低温センターにお連れして、実際に GM 冷却ユニット完全分離型希釈冷凍機を用いて冷却されたスズ吸収体付き TES の放射線検出状況を視察、また保管中の検出素子を顕微鏡でご覧になって頂いた。

3.4-2「2015年度（第2回）研究推進委員会」

開催日時、場所

場所：日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター

環境監視棟2階会議室

日時：2016年3月24日木曜日9時30分開会 14時閉会

出席者

委員長	大野 雅史	東京大学大学院工学系研究科原子力専攻 准教授（本課題委託先代表）
委員	神代 暁	産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門 研究グループ長（本課題再委託先代表）
委員	櫻井 吉晴	高輝度光科学研究センター 利用研究促進部 主席研究員
委員	澤田 嗣郎	科学技術振興機構先端計測分析技術・機器開発プログラム 開発総括（東京大学名誉教授）
委員	高崎 浩司	日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 安全管理部次長（本課題再委託先代表）
委員	前川 立行	株式会社東芝 電力システム社 原子力事業部 磯子エンジニアリングセンター センター長
委員	前畑 京介	九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部 准教授
オブザーバー	伊藤 主税	日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 高速炉技術課 研究主席 (本課題研究実施者)
オブザーバー	安宗 貴士	日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター (本課題研究実施者)
オブザーバー	入松川 知也	東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻 博士課程1年
オブザーバー	石井 裕也	東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻 修士課程2年

会議内容

本研究課題の簡単な全体説明を行った(大野)後、本年度の研究成果について開発項目毎に、TES 検出素子作製(大野)、TES アレイ読出回路開発(神代)、原子力施設内での核種検出実験(高崎)について報告した。そして成果報告を受けて、委員から質疑応答を受け、本研究推進および研究方針に関して非常に有益な情報、コメントを頂いた。委員から受けた主な質問、コメントを以下に示す。

- ・本研究の位置づけについて、原子力応用だけではなく、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つかりと見据えた研究が必要ではないか。

→その通りであり、放射線計測の基盤技術確立を目指して、研究を進める所存である。

- ・使用済みの燃料や福島炉とかでの応用も視野に入れた場合、高いエネルギーの γ 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。

→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、その影響等も評価してまいりたい。

- ・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。

→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してまいりたい。

大洗研究開発センター高速実験炉「常陽」の視察

委員会終了後に、午前 11 時ごろより、委員の先生方を大洗研究開発センター内の高速実験炉「常陽」サイト内にお連れして、まず、本研究課題における核物質検出実証試験のために照射装置組立検査施設 (IRAF) 2 階の測定室に搬入、設置し、実験準備中のモーター分離型パルス管換装後の希釈冷凍機システムを含む、IRAF 施設をご見学して頂いた。さらに午後 1 時から高速実験炉「常陽」本体の原子炉内、および制御室等についてもご視察頂いた。なお 3/24 当日は希釈冷凍機の準備調整期間中で、特に $3\text{He}/4\text{He}$ 混合気の循環ラインの真空排気が不完全であったため、循環ラインの一部に詰まりが生じるトラブルが発生し、残念ながら希釈冷凍機は 100mK 以下の冷却状態には至らず、TES の動作風景をご視察頂くには至らなかった。委員会主催者としては、委員の先生方が遠路はるばるお越し頂いたにも拘らず、誠に残念な結果になってしまい、深く反省いたす所存であるが、その場にて委員の先生方には激励を賜り、そのおかげで、3 月末より TES 動作実験がようやく軌道に乗り始め、本稿に記したような成果が得られたことを、ここで改めて感謝申し上げる次第である。

3.4-3 「2016 年度（第 3 回）研究推進委員会」

開催日時、場所

場所：産業技術総合研究所

つくば中央地区第二事業所 2-1 棟 第 7 (M304) 輪講室

日時：2017 年 3 月 21 日火曜日 13 時開会 17 時閉会

出席者

委員長	大野 雅史	東京大学大学院工学系研究科原子力専攻 准教授 (本課題委託先代表)
委員	大谷 知行	理化学研究所光量子工学研究領域 グループディレクター
委員	神代 暁	産業技術総合研究所 人事部統括企画主幹

		ナノエレクトロニクス研究部門兼務 (本課題再委託先代表)
委員	櫻井 吉晴	高輝度光科学研究センター 利用研究促進部 主席研究員
委員	澤田 嗣郎	科学技術振興機構先端計測分析技術・機器開発プログラム 開発総括 (東京大学名誉教授)
委員	高崎 浩司	日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 安全管理部次長 (本課題再委託先代表)
委員	茶谷 恵治	日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 廃炉国際共同研究センター 副センター長
委員	前川 立行	株式会社東芝 電力システム社 原子力事業部 磯子エンジニアリングセンター センター長
委員	前畑 京介	九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部 准教授
オブザーバー	伊藤 主税	日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 高速炉技術課 研究主席 (本課題研究実施者)
オブザーバー	山森 弘毅	産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門 研究グループ長
オブザーバー	平山 文紀	産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門 研究員
オブザーバー	入松川 知也	東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻 博士課程2年
オブザーバー	三浦 義隆	東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻 博士課程1年

会議内容

本研究課題の簡単な全体説明を行った(大野)後、本年度の研究成果について開発項目毎に、TES 検出素子作製(大野)、TES アレイ読出回路開発(神代)、原子力施設内での核種検出実験(高崎)について報告した。そして成果報告を受けて、委員から質疑応答を受け、本研究推進および研究方針に関して非常に有益な情報、コメントを頂いた。委員から受けた主な質問、コメントを以下に示す。

- ・ベースラインの揺らぎを除去するとスペクトルの分解能が向上する点について、ベースライン弁別によって、大部分のイベントを考慮しないのは、効率を犠牲にしているのでは、イベントを取捨選択するのではなくて、各イベントの電流出力ベースライン情報を基に波高値情報を較正するような処理をして、イベントを犠牲にせず検出効率を低下させずに高エネルギー分解能を有するスペクトルを得る手法はあるはずなので、それについて検討されるとよい。
- ・ γ 線吸収体の金バンプポスト接続手法において、他に金属を用いた接続法が提案されていないのか?→米国 NIST でも、金属面同士の接合を利用した吸収体接続を試みている

例はあり、確かに信号応答が高速化されたという報告は存在するが、その素子においてのエネルギー分解能までは言及されていない。またその発表者自身がこの手法では、アレイ化は不可能であると説明している。

- エネルギー較正について、ある特定のエネルギーを放出する放射線を利用して、ラフにでもデータ取得しておくのが有用なのではないか。またバックグラウンドと一緒に乗るようなイベントをエネルギーキャリブレーションに適用するような手法もあるのではないか。
- マイクロ波多チャンネル信号読出回路において、原理的には、最大どれくらいの読出ピクセル数まで対応できるのか。→数 100～1000 ピクセルの読出も理論的には対応可能である。
- 照射済み核物質試料のスペクトルに対して、既存 Ge 半導体検出器で検出できないピークが TES で見えつつあるという事実は、非常に説得力があり優れている。
- 照射済み核物質試料のスペクトルについて Np や Pu 以外の小さなピークについては、それが何に由来するのか、見当はついているのか？→まだ精査、検討中であり、現時点ではそれらのピーク由来の核種を特定するには至っていない。

産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門実験室およびクリーンルームの視察

委員会最後に、委員の先生方をナノエレクトロニクス研究部門神代・山森研究室の実験室にお連れして、実際に超伝導マイクロ波多チャンネル信号読出回路と TES 素子（東京大学にて作製）の協調動作実験、 γ 線入射信号応答検出現場をご覧頂いた。さらに、マイクロ波チップ作製を行っている超伝導デバイス作製専用クリーンルーム「CRAVITY」もご視察頂いた。

4. 結言

本研究では、核物質の超精密計測に適用し得る超精密 γ 線スペクトロメータを実現するべく超伝導転移端センサを用いた検出システムを構築した。東京大学では、超伝導 Ir/Au 薄膜温度センサと錫およびタンタルの重金属バルク製 γ 線吸収体を組み合わせた TES アレイを開発した。そして作製した検出素子において、Ge 半導体検出器の理論分解能の 5 倍程度に匹敵する 84eV @123keV の優れた分光性能を実証するとともに、53eV (FWHM) 程度の極めて高いエネルギー分解能も達成しつつあることが確認された。さらにタンタルを γ 線吸収体として用いた素子の開発にも成功し、数 100keV 以上のエネルギー領域における γ 線精密分光において世界記録となる 465eV@662keV のエネルギー分解能を達成した。また、産業技術総合研究所では、TES アレイ信号読出のためのマイクロ波多重読出回路を開発し、16ch 読出回路システムにおいて、TES の精密分光性能を維持しつつアレイ読出が可能となる入出力特性および隣接チャンネル間でのクロストーク量の低減を達成した。さらにこの回路と TES 検出素子との協調動作も実証し、 γ 線入射信号検出にも成功している。日本原子力研究開発機構では、上述の TES 検出システムを大洗開発センターに持ち込み、核物質や γ 線核種の検出実験実証を進めた。このうち高速炉常陽サイトでは高速炉にて照射した Np や U の核物質から出る γ 線の精密エネルギー spectroscopy を実施し、未照射の物質とのスペクトルの比較を行うことにより、高速炉での中性子照射により生じた、核種の生成、消滅の反応を高い精度で分析できることが実証された。本実験では、並行して進めた Ge 半導体検出器による検査で得られたスペクトルとも比較し、TES が検出効率、検出イベントの総数に起因する統計精度においてはまだ不十分な性能ながら、Ge 半導体検出器の検出ピークとは次元が異なる極めて高いピーク検出感度を有することが明らかとなり、半導体検出器からのスペクトルでは見過ごしてしまうような低濃度の核種に起因したごく小さなピークの検出にも威力を発揮すると強く期待が持てる結果が得られている。

以上の成果を踏まえて、本事業で開発した TES 検出システムは、今後、ピクセルアレイ大規模化による有感面積の増大を図り検出効率をより向上させることにより、使用済み燃料の非破壊検査に対して極めて有効な計測システムになり得るものと考えられる。そして、さらに本検出システムは精密かつ高効率な高速炉燃焼反応の革新的分析手法としての適用や、過酷事故により損傷した原子炉の燃料デブリの精密検査にも大きな威力を発揮するものと考えられる。