超伝導転移端センサが切り拓く革新的原子力基盤計測技術

(受託者)国立大学法人東京大学

(研究代表者)大野　雅史 大学院工学研究科

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

(研究期間)平成２６年度～２８年度

１．研究の背景とねらい

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

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

２．これまでの研究成果

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

① TES検出素子の開発

東京大学では、錫放射線吸収体を搭載した硬X線 γ 線TES検出素子の性能向上を図るべく、検出素子の試作と寒剤フリー希釈冷凍機を用いた性能評価実験を担当している。これまでにIr/Au TESに高い γ 線吸収効率を有する錫やタンタルの重金属バルクの放射線吸収体をエポキシ

ポストあるいは金バンプポストで結合させた素子作成プロセスを確立した[(1)]。現在、錫放射線吸収体の切削手法を改善、イリジウム/金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)の形状およびその上に放射線吸収体を固定する際に用いるエポキシ添加の条件を見直し、検出素子の熱特性の向上や応答時定数の高速化を図っている。これまで放射線入射応答信号波形の立上りや立下り時に波形のねじれ・キンクが生じてこれがエネルギー分解能劣化の要因となってきたが、放射線吸収体と超伝導薄膜温度センサの間の熱伝導の向上が、この波形のねじれ・キンクの抑制につながることを強く示唆する結果が得られた。また冷凍機コールドステージ（熱浴）の温度揺らぎにより TES 出力のベースラインが変動して、これが TES のエネルギー分解能を制限する大きな要因になっていることが確かめられている。図 1 に Np-237 核種からの γ 線エネルギースペクトルを示す。このスペクトルでは、86.477keV のγ線エネルギーピークにおいて、既存の半導体検出器（HPGe）で得られるエネルギー分解能より 5 倍程度優れる 89eV のエネルギー分解能がすでに達成されている。このγ線検出データに対して試行的にベースラインの弁別を行い、熱浴の温度揺らぎによる要因を抑えた信号処理を施したところ、さらに 4 割程度エネルギー分解能が向上する可能性が示唆される結果が得られた。現在、TES 冷却に用いる寒剤フリーのパルス管搭載希釈冷凍機において、エネルギー分解能劣化につながるパルス管の機械振動の低減を図るべく、モーター部分離型の低振動タイプのパルス管に換装すると共に、$^{3}He^{4}He$ 混合冷媒ガス圧送ポンプ系からの振動の低減にも取り組み、TES のノイズとなる要因の除去につとめている（図 2 参照)。

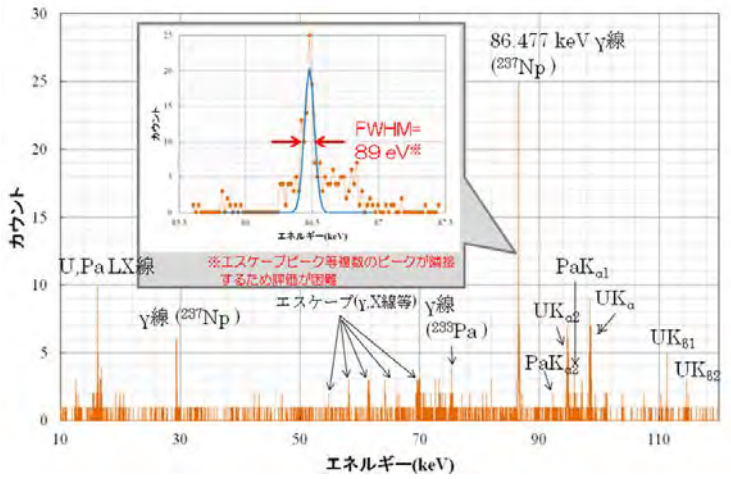

図 1: ^{241}Am と ^{57}Co 線源から得たエネルギースペクトル

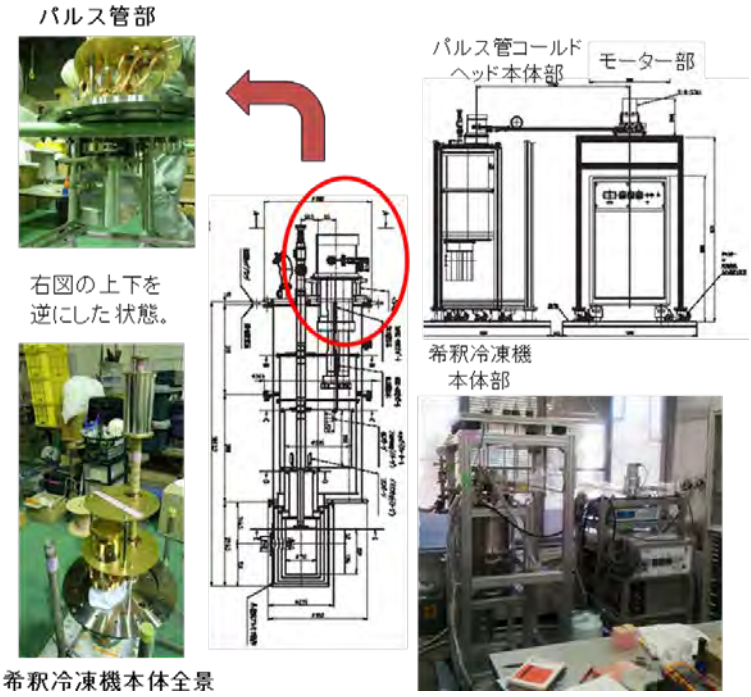

図 2: モーター分離型パルス管に換装した寒剤フリー希釈冷凍機の概要（右上：システム概略、右下：冷凍機システム全景、左上：パルス管冷却ヘッドと希釈冷凍機熱交換機接続部、左下：希釈冷凍機本体全景）

② TES アレイ読み出し用信号多重化回路の開発

超伝導転移端センサ(TES: Transition Edge Sensor)アレイのための多重読出回路では、雑音性能と共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。産総研で開発中のマイクロ波帯周波数多重読出回路(MW-MUX)ではコプレナー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気的結合によりクロストークが発生すると考えられる。そこで共振周波数間隔および空間的な距離によりクロストークがどのように変化するかを実験的に評価し、チップ全体でクロストークを抑制する設計指針を得た。また MW-MUX では入出力応答の線形化のためにランプ磁束変調方式を採用するが、クロストークの存在により直線性誤差を発生しうることを明らかにした。クロストークを抑える共振器配置の読出チップを用いた場合、γ 線検出において、1/1000 以下の誤差が期待できる。評価に用いた読出チップはマイクロ波フィードラインの両側に超伝導量子干渉素子(SQUID)で終端された共振器が 0.5mm ピッチで 8 個ずつ接続されている。まずチップ上 2 チャネル SQUID 入力に dc 電流を印加し応答を調べた。入力電流 I_Bによりチャネル B 出力 θ_B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ネル A の出力θ_Aもθ_Bに対応して変動する。この測定よりクロストーク k=dθ_A/dθ_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}によりクロストークの大きさが比較される。また、共振周ランプ磁束変調法は、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計測法である。測定したいチャネルと同時にクロストーク k のある他のチャネルに変調がかけられた場合、両チャネルの入力差に応じてΦ_0 周期で$k\Phi_0/2\pi$程度の誤差が生じうる [(2)]（入出力とも磁束換算)。入力差によることから、他チャネルからのクロストークと同時に被測定チャネルの直線性誤差も発生することになる。図 3 にランプ磁束変調を用いて測定を行った結果の一例を示す。共振周波数もしくは位置が近いチャネルへのクロストークおよび直線性誤差がみられるが、いずれも磁束換算で±1 mΦ_0より小さい。東大製 γ 線 TES 出力パルス波高値は、SQUID 入力磁束換算で 1Φ_0程度ゆえ、本読出回路との組合せにより TES の本質的分解能が得られると期待される。

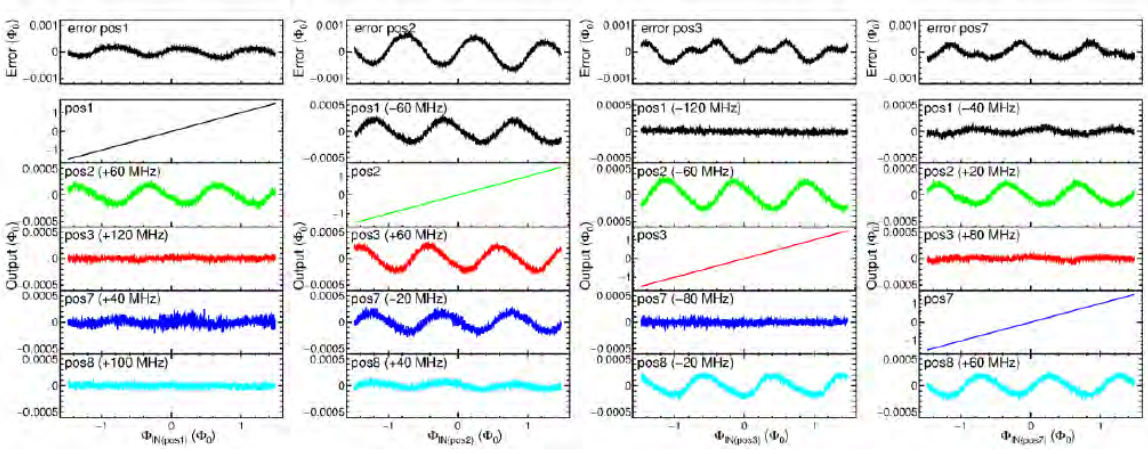

図3:ランプ磁束変調下での5チャネル同時測定におけるクロストークと直線性誤差。各列はチャネル 1,2,3,7（左->右）入力を 3Φ_0掃引した時の各チャネル応答。最上列が掃引チャネル応答の直線性誤差。図中周波数は掃引チャネルとの共振周波数差。チャネル 1,2,3 及び 7,8 はチップ上隣接。

③ 核物質試料を用いた TES 検出システムの検出実証試験

日本原子力研究開発機構大洗研究開発センターでは、昨年度に引き続き、硬X線γ線検出用 TES アレイ検出器による核燃料物質等を用いた測定試験を実施するために、放射線作業を伴う試験計画の作成及び実験資機材の準備を行った。そして平成 28 年 3 月～5 月に大洗研究開発センターの核燃料取扱施設において東京大学にて開発した TES 検出器システムを搬入して、核燃料物質及び RI 物質の測定実験を実施し、現在、その検出データの解析を進めているところである。併せて、開発した TES 検出器における現状でのエネルギー弁別特性での燃料中の核種弁別性能をシミュレーションすると共に、エネルギー分解能がどの程度向上すれば必要十分な使用済燃料の分析精度が得られるかについても検討を進めている（図 4 参照）

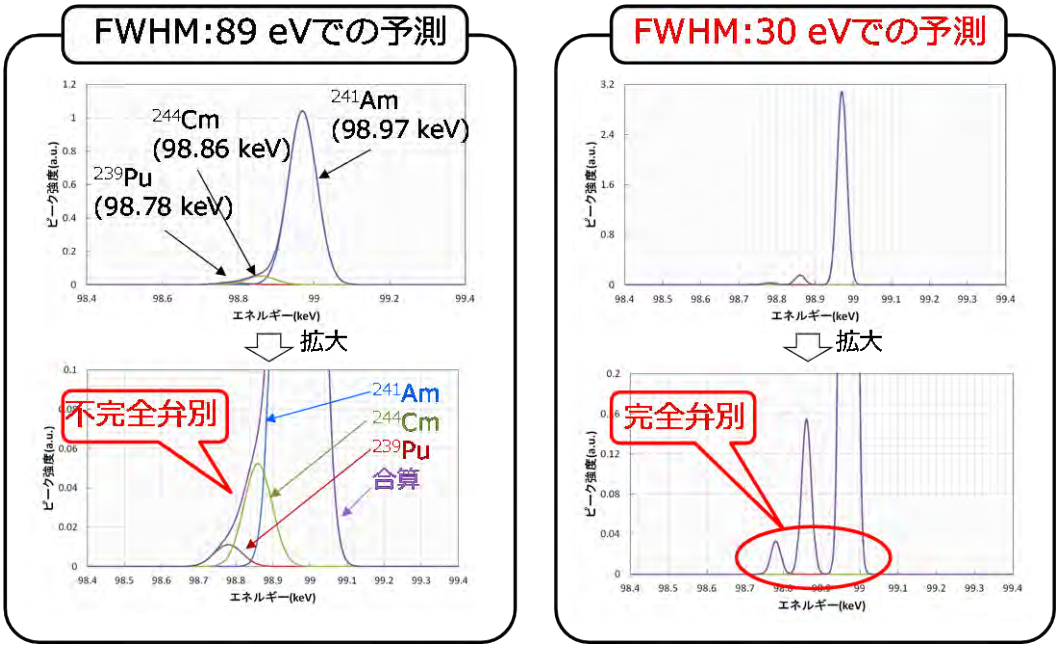

図 4:TES による使用済み燃料中(軽水炉、熱出力：375 万 kW、燃焼度：33000MWd/t、10 年後)の ^{239}Pu、^{241}Am、^{244}Cm(放射能比 1 ： 5.6 ： 3.5)の弁別の例（左： ΔE＝89eV の場合、右： ΔE＝30eV の場合の比較）

３．今後の展望

TES 素子のアレイ化を進めて、数 mm 角の有感領域を得られる検出素子を開発する。またアレイ素子用マイクロ波読み出し回路開発では、試作したアレイ素子を組み合わせて信号多重読み出し実証を目指す。さらに希釈冷凍機のさらなる機械振動抑制を図り、高感度かつ高精度なγ線スペクトロスコピーが可能な検出システムを構築し、核物質試料の精密な検出実証を目標とする。

４．参考文献

(1) Hatakeyama, S. et al. ″Development of Hard X-Ray and Gamma-Ray Spectrometer Using Superconducting Transition Edge Sensor″ IEEE Trans. Appl. Supercond.,23,3, (2013)

(2) F. Hirayama et al., submitted to IEEE Trans. Appl. Supercond. (Accepted.)