

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 大学院工学系研究科

(再委託先) 国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人日本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の開発研究を行った。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み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た。

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、アレイ信号読み出し用回路チップの開発は産業技術総合研究所が担当した。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た。

① TES 検出素子の開発

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

ブポストを介して搭載する硬X線 γ 線 TES 検出素子構造⁽¹⁾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⁽²⁾(図1参照)。金バンプポストの優れた熱伝導特性を生かすことにより、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) を得ると共に、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(図2参照)、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となった。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⁽²⁾。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。

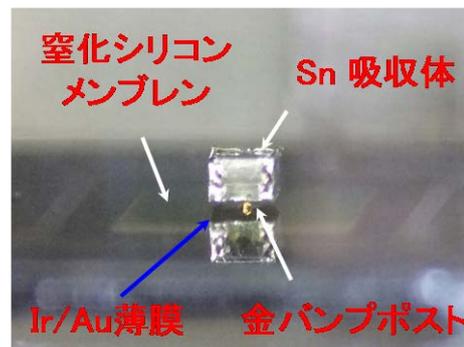


図1: スズバルク製 γ 線吸収体を搭載した TES 検出素子

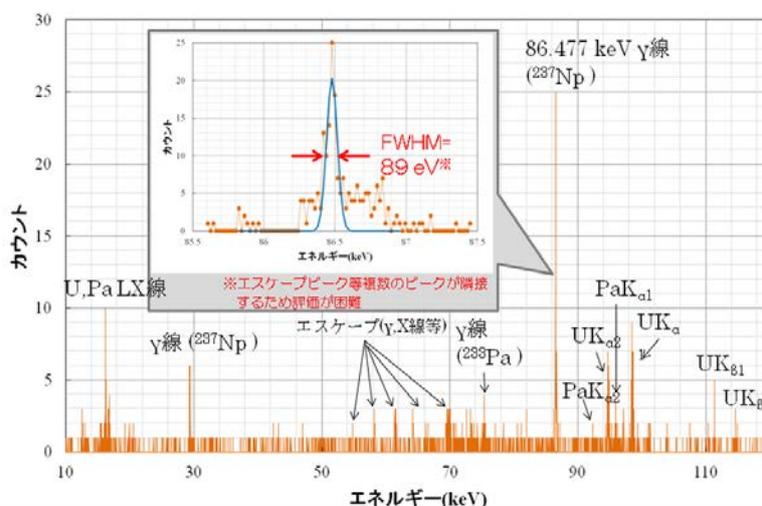


図2: ²³⁷Np 線源からの γ 線エネルギースペクトル

② TES アレイ読み出し用信号多重化回路の開発

産業技術総合研究所では、TES アレイ信号読み出しにおいて、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み出し得るマイクロ波帯での多重信号読み出し回路⁽³⁾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み出しを行うるために必要な読み出し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 読み出し回路システムにおいて、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み出し雑音は、従来の DC-SQUID 読出に遜色ない値を達成した。そして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。さらに ^{57}Co 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み出し、立上り時間 $230\ \mu\text{s}$ 、立下り時間 $6.2\ \text{ms}$ のパルスを、従来の読み出し法に遜色ない高速応答性で読み出すことに成功した（図 3 参照）。

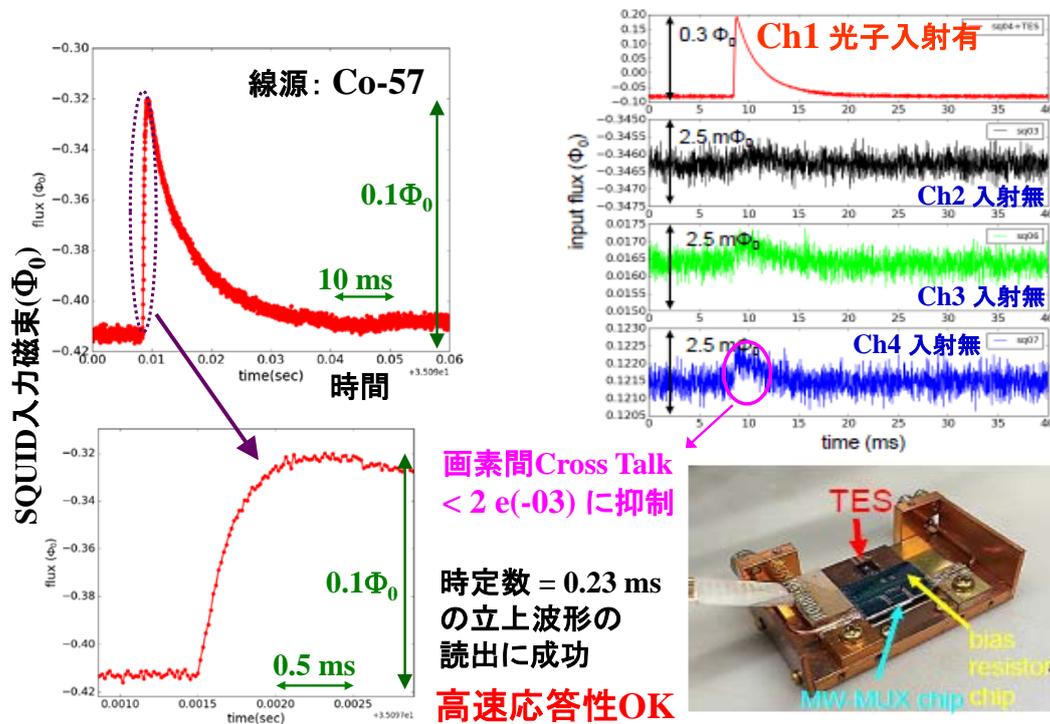


図 3: ^{57}Co 線源を用いた TES と信号多重化回路協調動作の結果(左: 応答信号、右上: クロストーク評価、右下: TES と信号多重化回路チップを結合させた基盤ユニットの写真)

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、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り扱うため、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の高速実験炉「常陽」関連施設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。 ^{237}Np 箔からの γ 線計測において、 ^{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 $43.498\ \text{keV}$ 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の同定に成功した（図 4 参照）。

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生かされて、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。

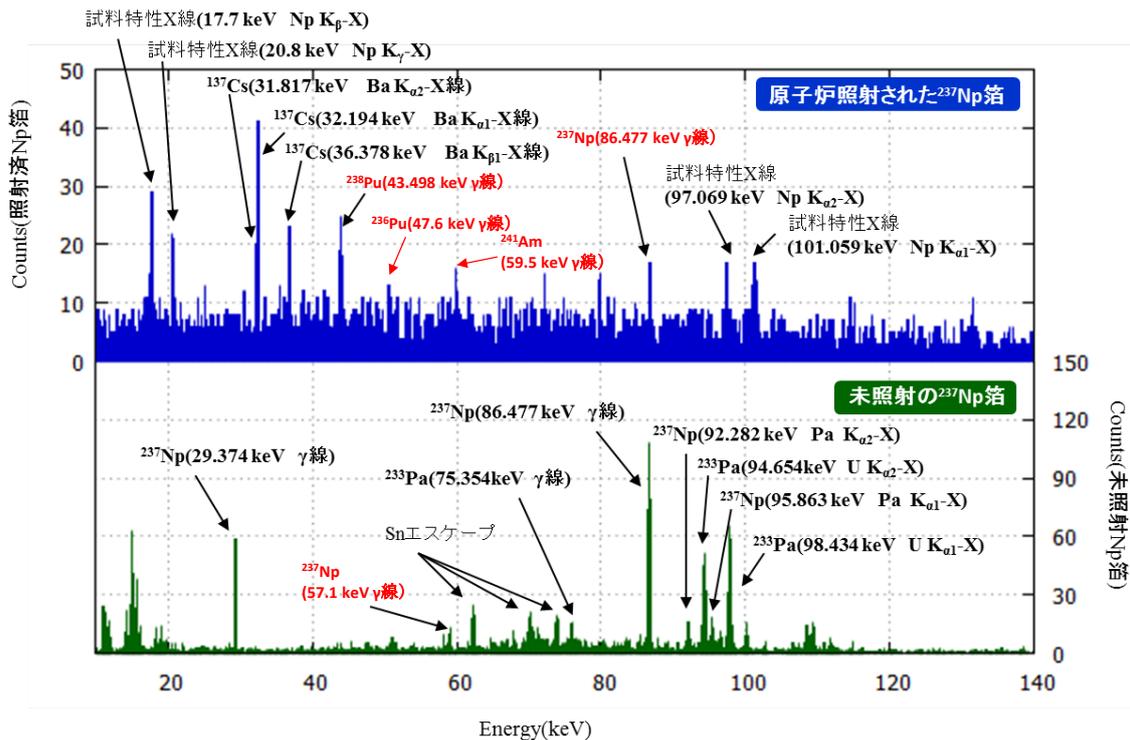


図 4: ^{237}Np からの γ 線計測スペクトル (上: 照射済試料、下: 未照射試料)

以上より、本事業では優れたエネルギー分解能を有する TES ピクセルアレイ検出素子を超伝導エレクトロニクスを駆使した多重読み出し回路により信号読み出しを行う検出システムを実現した。さらにこの検出システムを用いて照射済み核物質試料の精密核種分析にも成功した。これらの成果により、本件研究の狙いである、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プロトタイプ実証、を成し遂げられた。

3. 今後の展望

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う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。

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) M. Ohno et al., "Superconducting Transition Edge Sensor for Gamma-ray Spectroscopy", IEICE TRANSACTIONS ELECTRONICS, Vol E100-C, No3, 283-290 (Invited paper), (2017)
- (3) 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.