

論文の内容の要旨

論文題目 超伝導転移端センサを用いた放射性核種分析装置の研究

氏名 畠山 修一

1. はじめに

精密 γ 線分光技術は非破壊で放射性同位体の高精度な微量分析・同定を可能にし、原子力分野での応用のみならず、様々なトレーサー核種を用いた生体イメージングにおいて、生体内に取り込まれた微量の核種から放出される γ 線を高感度に検出する可能性を秘めている。 γ 線の検出にはこれまでシンチレータや Ge 半導体検出器が用いられて来たが、既存の放射線スペクトロメータとして最もエネルギー分解能に優れる Ge 半導体検出器でさえ、生体内の微細な生体組織を同時かつ非破壊でリアルタイムイメージングに至る γ 線検出精度は得られていない。このため、微量な放射性核種を高感度に検出する精密 γ 線分光技術を実現する、既存検出原理とは全く異なる γ 線分光技術の開発が望まれている。

我々が開発を行っている超伝導転移端センサ (Transition Edge Sensor; TES) 型マイクロカロリメータは、比熱が極小化する極低温にて放射線入射により生じる温度上昇を超伝導体の急峻な温度抵抗変化を用いて高精度に計測するスペクトロメータである。放射線入射により発生する電子正孔対数の統計的揺らぎによりエネルギー分解能が制限される半導体検出器とは異なり、TES のエネルギー分解能は主に極低温下でのわずかな熱ゆらぎと抵抗値に起因したノイズにのみ制限され、それは入射放射線のエネルギーに依存しないため、Ge 半導体検出器と比較してさらに 2 桁程分光特性を向上させる事が可能となり、革新的な γ 線分光技術として期待されている。本研究では、 γ 線に対して既存半導体検出器を越える優れたエネルギー分解能と高検出効率を両立する γ 線 TES の開発に着手した。これによって、得られるエネルギースペクトルにおいて近接するピークを有する核種の分離特定を可能にし、さらに計測時間の大幅な短縮、検出限界の低減をも達成される。例えば、生体組織内に含まれる ^{109}Cd (88 keV)などの微量な放射性トレーサーを、シンチレータを用いてイメージングを試みた報告¹⁾では、細胞レベルでの核種の輸送経路や蓄積位置を追跡することは困難であったが、微細加工技術に基づいた高分解能 γ 線 TES スペクトロメータを適用することにより μm オーダーで高感度に微量核種のイメージングが可能となる。

精密 γ 線分光技術はまた、 γ 線コンプトンイメージングにおける散乱及び全吸収エネルギーの正確な把握につながり、角度分解能の向上すなわち空間分解能の向上に直結するため、革新的な分子イメージング技術を実現し得る。従来のコンプトンカメラでは、散乱体と吸収体に用いられている Si や Ge、CdTe 等の半導体検出器によりエネルギー分解能と検出効率は制限を受け、十分な角度分解能が得られず、細胞レベルでの薬剤分布を計測するに至る十分な空間分解能を得る事は不可能であった。例えば理化学研究所ではコンプトンカメラを用いて生体内にマルチトレーサーを投与したマウスの複数分子同時イメージングを試みているが、Ge 半導体検出器の検出性能により制限を受けているためにその空間分解能は数 mm 程度となっている²⁾。さらに、エネルギー分解能と検出効率に優れた γ 線分光技術は、内部被曝モニタリングへ適用することにより、早期に毒性の強いプルトニウム(^{239}Pu)の体内精密分布情報を取得する事が可能となる。従来の Ge 半導体検出器を用いた肺モニタでは ^{239}Pu とアメリシウム(^{241}Am)のエネルギーピークを分離する十分なエネルギー分解能を得る事は困難であったが³⁾、精密 γ 線分光技術により、体外から即座に微量の重金属放射性核種の検出・同定を行う技術は非常に有用である。

本研究は、生体 γ 線コンプトンイメージングや肺モニタへの応用を想定して TES を用いて 100 keV 付近の γ 線を優れたエネルギー分解能で高感度に検出する次世代 γ 線精密分光技術の開発を行い、放射性核種の元素分析・核種同定装置の実現を目指した要素技術の確立を目的に研究を行った。また、検出効率の向上とイメージングの位置情報を取得するため、大面積化を見据えたアレイ検出素子の開発を目的とした。

2. TES 型マイクロカロリメータの動作原理

TES 型マイクロカロリメータは放射線入射時の温度上昇を超伝導体の転移領域を温度計として検出を行うことを原理としている。図 1 に示すように、基本的な構成は入射放射線を吸収し熱化・熱拡散させる吸収体、吸収体からの熱入力による温度変化を読み出す温度計、温度計の熱を外界へ逃がし、信号を立ち上げるための熱リンクからなる。TES はわずか数 mK の幅しか持たない超伝導転移領域で著しい抵抗値変化を示すため、極めて高感度な温度計として働く。さらに、電熱フィードバック (ElectroThermal Feedback; ETF) を導入する事により、TES はこの狭い転移領域内で安定して動作し、信号応答速度の高速化が実現される⁴⁾。TES には常に一定のバイアス電圧 V が印加されており、定常状態において TES の抵抗 $R(T)$ で発生するジュール発熱 $P = V^2/R(T)$ と熱浴への熱流出量は釣り合っている。ここで、エネルギー E の放射線入射により、TES の温度が上昇したとすると、超伝導転移領域内にある TES の抵抗値は増加するが、 V は常に一定に保たれているためジュール発熱 P は減少する。一方、熱浴への熱流出量は一定とみなせるので、結果として TES に冷却作用が働き、元の平衡温度へと速やかに戻される。この熱的なフィードバックは温度上昇に対して発熱量が常に逆向きとなる負のフィードバックで、TES の温度は自動的に転移領域内に保たれる (図 2 参照)。

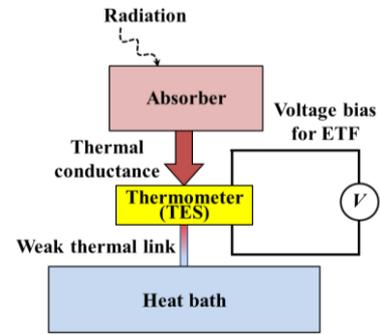


図 1. TES の概念図

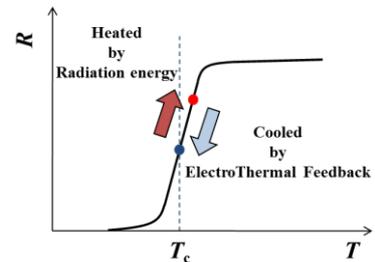


図 2. 電熱フィードバックの概念図

3. γ 線検出用 TES マイクロカロリメータ

TES を適用した検出器の開発は、従来数 keV の弱いエネルギーの X 線を主な検出対象として来た。しかしながら、近年、この優れたエネルギー分解能を持つ TES と γ 線吸収効率の高い重金属製放射線吸収体を組み合わせることで、100 keV 付近の γ 線を計測するが可能となる検出器が開発された。検出器の熱容量を C とすると、マイクロカロリメータのエネルギー分解能は $C^{1/2}$ に比例し、エネルギー分解能を向上させるためには検出器の大半の体積を占める吸収体の熱容量を低減させることが必要となる。そこで、100 keV の γ 線に対して十分な吸収効率と低い熱容量を有する錫 (Sn) 吸収体を導入した γ 線 TES マイクロカロリメータの研究開発が世界中で活発に行われている。2000 年には、ロスアラモス国立研究所 (Los Alamos National Laboratory; LANL) によって 70 eV FWHM @ 59.5 keV⁵⁾ また、2007 年には米国国立標準技術研究所 (National Institute of Standards and Technology; NIST) によって 27 eV FWHM @ 103 keV のエネルギー分解能が達成されている⁶⁾。本研究においても Sn 吸収体を用いた TES 検出素子の試作を行い、320 eV FWHM @ 59.5 keV のエネルギー分解能を得ている⁷⁾。しかしながら、上記に示した γ 線 TES マイクロカロリメータはいずれも Sn 吸収体と超伝導薄膜温度センサの接続に、熱伝導率の低い感光性厚膜フォトレジストである SU-8 あるいはエポキシ製スタイヤキャストが使用されているため、低い計数率特性とエネルギー分解能の劣化が問題となっていた。そこで、本研究では図 3 に示すように従来のエポキシ製ポストと比較して、熱伝導率の極めて優れた金バンプ製ポストを介して超伝導薄膜上に吸収体を搭載する独自の検出素子の開発を行った⁸⁾ (特許出願済: 特願 2012-160594)。

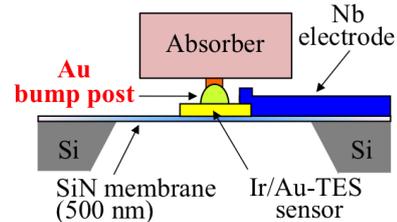


図 3. Au バンプポスト製 γ 線 TES マイクロカロリメータの断面図

4. Au バンプ製ポスト γ 線 TES の基本特性

本研究で開発した γ 線検出用 TES マイクロカロリメータの顕微鏡写真を図 4 に示す。TES 部は 250 μm 角、約 100 nm 厚の超伝導 Ir/Au 薄膜で、約 500 nm 厚の SiN メンブレン上に製膜されている。さらに、Ir/Au 薄膜上には直径約 60 μm の Au バンプ製ポストが設置され、極めて薄い SiN メンブレンを壊す事無く約 0.5 mm 角、約 0.3 mm 厚の重金属製 Sn 放射線吸収体が搭載されている。SiN メンブレンは図 1 における TES と熱浴間の weak thermal link に相当し、非常に薄い膜にする事で熱伝導率を低減させている。この構造により、吸収体及び TES は周囲

からほぼ熱的に絶縁され、放射線入射により吸収体内で生じた熱を高効率に超伝導センサに伝達し、超伝導薄膜の温度を十分に上昇させて抵抗変化に変換する事が可能となっている。

クライオスタットにはパルス管を駆動させる事で、液体ヘリウム寒剤無しで 100 mK 以下の極低温を作り出す事が可能となるパルス管希釈冷凍機を用いた。作製した素子と SQUID 増幅器はコールドステージ上に配置されており、Al ワイヤでボンディングされている。これにより TES 直列上の残留抵抗はほぼ 0 と見なす事ができる。シャント抵抗 R_s は TES の抵抗値よりも十分小さな抵抗値($R_s \sim 20 \text{ m}\Omega$)を持ち、TES と並列に接続されているため、TES に疑似的な定電圧バイアスをかける役割をしている。TES で生じる微小電流変化は入力コイルで磁束変化に変換され、SQUID 増幅器で読み出される。

パルス管の使用によって液体ヘリウムを用いる事無く極低温環境が得られるようになった。しかしながら、本検出素子は非常に薄い薄膜上に重金属製の放射線吸収体を搭載しているため、パルス管駆動時の機械的振動がノイズ源となることを確認している。そこで、本実験では冷凍機本体とパルス管を、ベローズを介して分離した構造に改良する事で振動を低減させ検出素子の特性を向上させた。

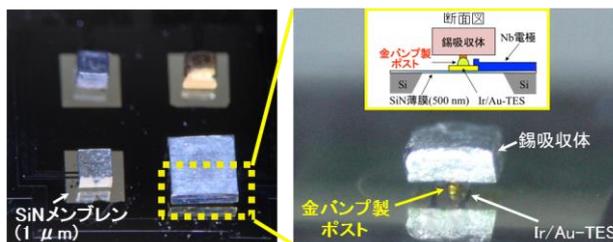


図 4. Au バンプ製ポスト γ 線 TES の顕微鏡写真

4-1. 信号特性

熱浴温度 115 mK、0.3% R_n のバイアス点 ($R_n \sim 817 \text{ m}\Omega$) における Au バンプ製ポスト γ 線 TES とエポキシ製ポスト γ 線 TES による、 ^{241}Am (59.5 keV) の平均波形の比較と最大波高値で規格化した ^{241}Am (59.5 keV) の平均波形の比較を図 5 に示す。これらの結果から Au バンプ製ポスト γ 線 TES は、従来のエポキシ製ポストと比較して 5 倍以上の高い信号波高値と 5 倍速い減衰時定数 (24 ms \Rightarrow 4.5 ms) を達成し、高 S/N 比すなわち、高エネルギー分解能と高計数率特性の両立を実現した⁸⁾。

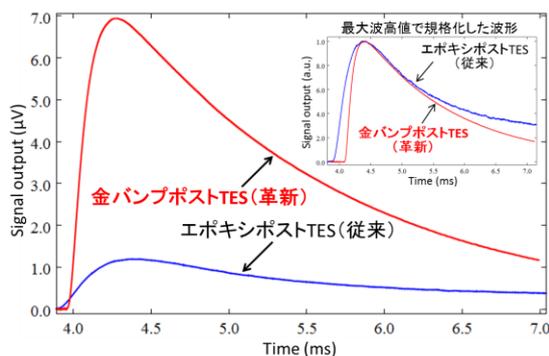


図 5. ^{241}Am (59.5 keV) から得た平均波形の比較

4-2. ^{241}Am 、 ^{57}Co と ^{137}Cs 密封放射線源を用いた γ 線照射実験

^{241}Am と ^{57}Co 密封放射線源から得られたエネルギースペクトルを図 6 に示す。59.5 keV と 122 keV の光電ピーク、及び K_α と K_β のエスケープピークが鮮明に確認できる。エネルギー分解能は 84 eV FWHM@59.5 keV を達成し、典型的な半導体検出器の限界値 ($\sim 300 \text{ eV FWHM@60 keV}$)⁹⁾ を越える γ 線分光特性を実現した。また、図 7 に示すように、662 keV (^{137}Cs) の γ 線に対しては 526 eV FWHM のエネルギー分解能を達成し、TES による高エネルギー γ 線分光性能としては世界最高のエネルギー分解能を実証した⁸⁾。

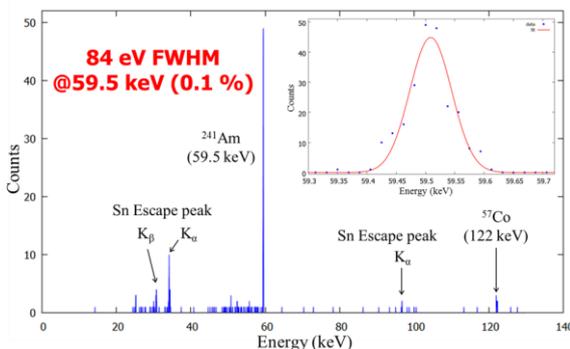


図 6. ^{241}Am 、 ^{57}Co 密封放射線源から得たエネルギースペクトル

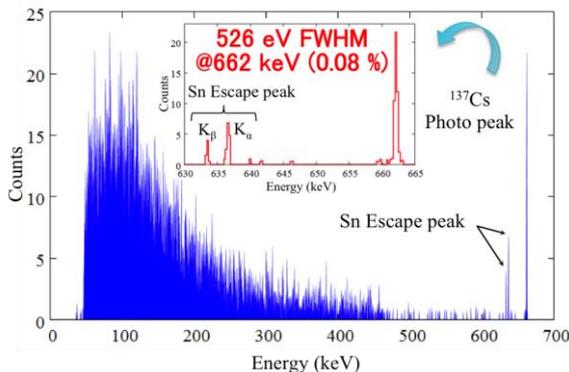


図 7. ^{137}Cs 密封放射線源から得たエネルギースペクトル

5. 放射性試料を用いた核種同定実験

日本原子力研究開発機構(JAEA)大洗研究開発センターにおいて、作製した Au バンプ製ポスト γ 線 TES を組み込んだパルス管希釈冷凍機を管理区域内に搬入し、放射性試料の精密測定を行った。図8は Pu 試料の精密測定エネルギースペクトルを表しており、Ge 半導体検出器と比較して TES のスペクトルでは ^{239}Pu (51.624 keV)と ^{240}Pu (45.244 keV)が明瞭に分離・検出されている。また、その他のピークにおいても TES のピーク検出感度が優れている事が確認できる¹⁰⁾。また、 ^{154}Eu 放射性試料測定結果から、123 keV の γ 線に対してエネルギー分解能 125 eV FWHM を達成した(図9参照)。さらに、図10に示すように、世界で初めて核分裂生成物の非破壊での精密核種同定に成功した。

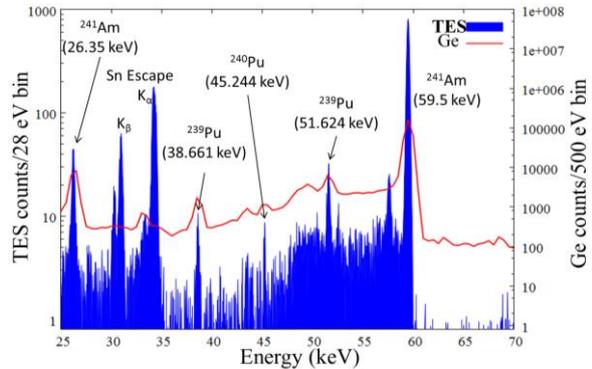


図8. γ 線 TES と Ge 半導体検出器による Pu 試料測定スペクトルの比較

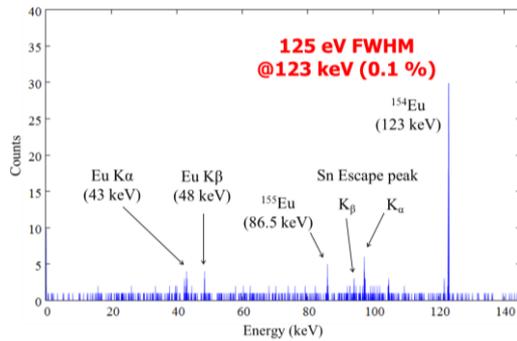


図9. ^{154}Eu 放射性試料から得たエネルギースペクトル

6. まとめ

本研究では、エネルギー分解能に着目し、既存放射線検出器とは全く計測原理の異なる超伝導転移端センサ(TES)型マイクロカロリメータを用いた高エネルギー分解能 γ 線検出器を開発することで、分析感度とイメージング精度を向上可能な放射性核種分析装置の実現を目指した要素技術の確立を目的に研究を行った。吸収体-TES 間の熱伝導率を向上させることにより高 S/N 比と高計数率特性が実現可能であることが判明し ^{241}Am 、 ^{57}Co と ^{137}Cs 密封放射線源を用いた γ 線照射実験では数十 keV から数百 keV までの広いエネルギーレンジにおいて半導体検出器の限界値を越えるエネルギー分解能を実証した。また、8 ピクセルアレイ検出素子を用いた放射性核種精密同定実験では、従来の Ge 半導体検出器と比較して TES のスペクトルでは ^{239}Pu (51.624 keV)と ^{240}Pu (45.244 keV)が明瞭に分離・検出し、その他のピークにおいても TES のピーク検出感度が優れている事を確認した。さらに、世界で初めて核分裂生成物の非破壊での精密核種同定に成功した。以上より、本研究では γ 線を優れたエネルギー分解能で高感度に検出可能な γ 線 TES マイクロカロリメータの開発を行い、既存半導体検出器の分光性能を 6 倍程上回るエネルギー分解能を達成した。また、これまで分離・検出することのできなかった放射性核種の同定が可能であることを実証し、放射性核種分析装置の要素技術として非常に有用であることを示した。

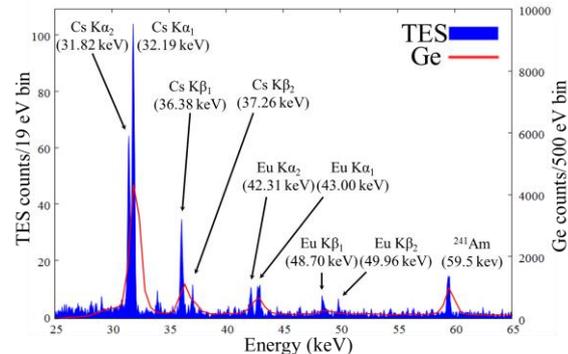


図10. γ 線 TES と Ge 半導体検出器による核分裂生成物試料測定スペクトルの比較

参考文献

- 1) R. Sugita et al., Phys. Med. Biol. 59, 2014 837–851, (2014)
- 2) S. Motomura et al., IEEE Trans. on Nucl. Sci., Vol.54, No.3, 710-717, (2007)
- 3) D. Franck et al., Radiat. Prot. Dosim., Vol. 89, Nos. 3–4, pp. 321–324, (2000)
- 4) Irwin et al., IEEE Trans. on Appl. Supercond., VOL. 5, NO. 2, (1995)
- 5) M.L. van den Berg et al., SPIE Meeting, 21 Sept, (2000)
- 6) R.D. Horansky et al., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A, 579, 169-172, (2007)
- 7) S. Hatakeyama et al., Radiation Measurements, Elsevier, vol. 55, 83-86, (2012)
- 8) S. Hatakeyama et al., IEEE Trans. on Appl. Supercond., VOL. 23, NO. 3, (2013)
- 9) C.A. Klein, IEEE Trans. Nucl. Sci, 15, 214, (1968)
- 10) S. Hatakeyama et al., Journal of Low Temperature Physics, Springer, in press, (2014)