

論文の内容の要旨

A spectroscopic study of ^{229}Th isomer using TES microcalorimeters (^{229}Th 異性体のTESマイクロカロリメータを用いた分光研究)

氏名 村松はるか

1. 研究の背景と目的

現代の物理学では光速、素電荷、プランク定数といった物理定数の恒常性の仮定の上に成り立っているが、例えば大統一理論の候補であるM理論では物理定数の恒常性を必要としていないなど、物理定数の恒常性は常に検証の対象である。変動の可能性が示唆されている物理定数の一つに微細構造定数($\alpha = e^2/4\pi\epsilon\hbar c$)がある。微細構造定数の時間変動については、20億年前の天然原子炉(Oklo)から測定された ^{149}Sm と ^{150}Sm のクーロンエネルギーの差と現在のSmのクーロンエネルギーの差を比較する手法や、キューサーの吸収線分光により2種類のダブルットの波長比を現在の波長比と比較する方法や、異種の原子時計を比較する方法により検証されている。現在、微細構造定数の変動に最も高い制限をつけているのは異種の原子時計の比較から求められた $\delta\alpha/\alpha = -3.3 \times 10^{-16}$ (Blatt+, 2008)である。さらに、新たな可能性として、Thの29keVから遷移する基底準位と異性体準位のエネルギー差を使用した原子核時計を用いることで、微細構造定数の変動の精度が5桁も向上することが期待されている。しかし、 ^{229}Th の異性体準位のエネルギー(^{229m}Th)が正確に求まっていないことから、 ^{229}Th 原子核時計は実現されていない。ガンマ線分光により図1の崩壊系列が

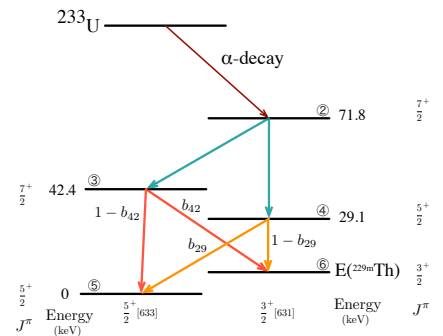


図1. ^{233}U の崩壊系列: 29.19 keVから基底準位と異性体準位に崩壊する2本のエネルギーの差が求めたいエネルギーである。Beck+etal2009では②→③、②→④、③→⑤、④→⑥の4本のラインと分岐比を使用して ^{229m}Th のエネルギーを求めた

ら間接的に $E(^{229m}\text{Th})$ が 7.8 ± 0.5 eVと求められた(Beck+, 2009)。一方、 ^{229}Th をドープした結晶にシンクロトロン光を照射し基底準位の直接励起の試みが行われたが、 ^{229m}Th からの放射光信号は取得できなかった。さらにこの結果から、7.3 - 8.8 eVのエネルギー範囲に $E(^{229m}\text{Th})$ が存在しないことが示唆された(Justin+ 2015)。この実験では、波長幅0.19 eVのシンクロトロン光を7.3 - 8.8 eVのエネルギーレンジで 0.1 eVより小さいステップでスキャンが行われており、ステップ間隔でスキャン漏れがないように実施された。同様に10 nmの幅をもつシンクロトロン光を10 nm間隔で3.9 - 9.5 eVのエネルギーレンジをスキャンし、 ^{229m}Th からの放射光信号が検出出来なかったという報告もある(Yamaguchi+ 2015)。 ^{229}Th イオンの半減期の見積もりから ^{229m}Th は6.3 - 18.3 eVと報告されており(Wensen+ 2016)、これまでの実験から現状で可能性のある $E(^{229m}\text{Th})$ は9.5 - 18.3 eVである。

^{229}Th の原子核時計を実現するためにも、 $E(^{229m}\text{Th})$ を正確に求めることが急務であり、29.19 keVから遷移する二本のガンマ線を直接測定することが望まれる。そこで、モンテカルロシミュレーションを用いて29.19 keVの二本のガンマ線分布を作成した結果、両者を分離するためには15 eV程度のエネルギー分解能が必要であることが分かった。そのため、本研究では30 keVで15 eVのエネルギー分解能を有する検出器を開発し、エネルギー決定精度を向上させるために統計誤差と系統誤差を小さくしかつ正しく見積もることを目指した。放射線源からの微弱放射は回折格子等では測定できないことから、我々は非分散型の放射線計測器TES型マイクロカロリメータ(TES)を用いて29.19keVラインの分離と、29.19、29.39、42.43、42.63 keVの4本のラインを使用した推定を行うことを提案する。TESは入射エネルギーによる素子の温度上昇を超伝導遷移端を用いて抵抗の変化として読み出す分光検出器であり、100 mKの極低温で動作させることでkeV領域では数 eVの分解能が達成できる検出器である。素子の熱容量を増加させることでエネルギー帯域の拡大を行うことが可能であるが、TESの超伝導遷移端の性質により高エネルギーの光子が入射するとエネルギー応答が非線形になりエネルギー分解能が劣化するためエネルギースケールの較正が困難になるという問題がある。本論文では、エネルギー応答の非線形性を含めたエネルギー較正方法の開発を行い、同時に要求される30 keVで15 eVのエネルギー分解能を有する素子とその検出器ステージの開発に向けた試験と較正線源の選定・照射方法の構築と実証を実際に ^{233}U 線源からのガンマ線を照射する環境で行った。

2. 非線形応答を含めたエネルギー較正方法の開発

エネルギー帯域10 keVを有するTESマイクロカロリメータの製作を行い ^{41}Ca 、 ^{55}Fe 、 ^{241}Am 線源を使用して3.3 - 17.8 keVまでの帯域でエネルギー分解能とエネルギーに対する応答の評価を行った。素子のノイズスペクトルから決まる原理的なエネルギー分解能は4 eVとなり、3 - 6 keVのエネルギーに対しては約5 eVのエネルギー分解能を示した。一方で10 keV以上のエネルギーに対しては素子の非線形な応答によりエネルギー分解能が16 eVまで劣化した。素子の非線形な応答と、取得している輝線には微細構造も含まれていることから、エネルギーに対応する信号のパルスハイトの分布を単純なガウシアンとしてフィットすることはできない。そこで、我々はライン1本-2本を含む局所領域ではパルスハイト(PHA)とエネルギーの関係が線形関係であると仮定し($PHA=aE+b$)、エネルギーラインモデルを

PHAモデルに変換することを行なった。変換したモデルを使用しPHAスペクトルのフィットを行い、PHAからエネルギーへの変換を行なった。エネルギースペクトルのモデルフィットの結果から、系統誤差をラインエネルギーの決定精度とすると、最大で12 eVの系統誤差がつくことがわかった。そして、TESの非線形性の由来である抵抗値と電流値の関係を使用して非線形性を改善することで、系統誤差を2 eVに収めることができた。

3. ^{229}Th 異性体準位の測定試験

我々はこれまで、10 keVのエネルギーに対して5eV のエネルギー分解能を持つTESの開発を行ってきた。 $E(^{229m}\text{Th})$ の測定のために、エネルギー帯域を拡大し29 keVのエネルギーに感度を持つ素子の開発を行った。エネルギー帯域を拡大させるためには素子の熱容量を増加させる必要があり、TESサイズを従来の2倍の大きさである400 μm 角、吸収体の厚みを4.0 μm とすることでこれを実現した(図2)。設計した素子をISASのクリーンルームを使用してin-houseプロセスで製作し、ISASの実験室で26 keVのエネルギーに対するエネルギー分解能の評価を行った。その結果、26 keVに対するエネルギー分解能は20

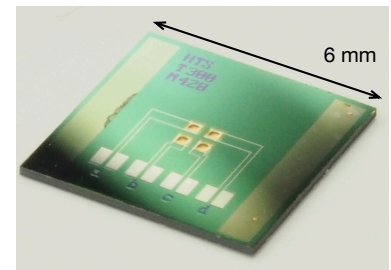


図2. ISASクリーンルームで製作した4素子TESマイクロカロリメータアレイ

eVを示した。製作した素子の転移温度と熱容量から計算されるエネルギー帯域は51 keVとなり、エネルギー帯域を向上させた素子を製作することができた。この素子を使用して強度26 MBqの ^{233}U 線源を用いて、 $E(^{229m}\text{Th})$ の測定試験をJAEAの大洗キャンパスで行った。 ^{233}U 線源照射環境下でのTES素子の性能評価を行い、26 keVに対するエネルギー分解能が44 eV に劣化していることがわかった。 ^{233}U 線源有無のノイズスペクトルを比較することで、線源設置時は線源無しに比べ低周波ノイズが3倍高くなっていることが分かり、TES素子の熱揺らぎに起因するノイズがエネルギー分解能を劣化させていることを突き止めた。そして、 ^{133}Ba 線源と ^{241}Am 線源を較正線源として使用し、 ^{233}U 線源から放射される $E(^{229m}\text{Th})$ の測定を行った。本試験では、エネルギー分解能が不十分のため29.19 keVの二本のガンマ線の直接分離が出来ず、また29.39 keVラインのカウント数が24カウントと不十分なため97.1 keVから始まる崩壊系列を使用して $E(^{229m}\text{Th})$ の見積もりを行った。電流変化のパルスを用いて解析を行った結果、統計誤差と系統誤差を含めて異性体準位が $44^{+13}_{-11} \pm 61$ eVの値を得た。さらにエネルギー応答の非線形を改善するために、抵抗変化にパルスを変換し同様の解析を行った結果、 $8.4^{+7.2}_{-5.8} \pm 9.5$ eVの値を得た。系統誤差は、較正ラインのエネルギースペクトルのフィット結果と既知のエネルギーの差の分散を計算し、その値から統計誤差の分散を差し引く方法で見積もりを行った。

4. TES素子と検出器ステージの改良

JAEAで行った試験から、統計誤差を小さくするためには、TESマイクロカロリメータの分解能のさらなる向上、素子の熱揺らぎによるノイズの抑制、 ^{229}Th ラインの統計数の増加そしてさらに、系統誤差の不定性を小さくするため、 ^{229}Th ラインにエネルギーが近い較正ラインを追加することが必要である

ことが分かった。素子の温度揺らぎは、TESの吸収体以外の領域であるSi基板に入射する光子の影響であるため、入射する光子をコリメートするコリメータの設計を行った。目的となる光子の統計数を減らさないために、Si基板への光子はコリメートする一方で、吸収体全面に光子が入射する設計とした。素子のエネルギー帯域とエネルギー分解能はトレードオフの関係にあり、エネルギー分解能を向上させるとエネルギー帯域が狭くなってしまふ。エネルギー分解能の向上を優先させるため、エネルギー帯域を40 keVに下げエネルギー分解能の向上を図った。4素子のTESアレイを開発し、さらにJAEA試験の5倍強度が高い110 MBqのU線源を使用することで統計数の拡大を行った。また、29 keVより低エネルギーの較正ラインが足りなかったため、Te K α (27.4 keV)、I K α (28.6 keV)を追加し、42 keVの2本のラインを挟むようにGdK α 1 (43.0 keV)、GdK α 2 (42.3 keV)を追加した。TeとIはX線発生装置を使用して励起させる方法を取り、X線発生装置からの連続成分がバックグラウンドとなり²²⁹Thラインを検出できなくなることが分かったため、X線発生装置は定期的に照射させることにした。

再設計したTES素子とコリメータを低温ステージに搭載し、JAEAの冷凍機環境を東北大学に移し測定を行った。コリメータを設置した効果を線源有無のノイズスペクトルを比較することで評価し、線源設置時と線源無しのノイズスペクトルの差が1.3倍に抑えられたことを確認した。東北大学試験では冷凍機配線の故障のために動作させた素子は3素子であり、それら3素子のエネルギー分解能を²⁴¹Am線源を用いて65 mKの動作温度で評価した。その結果、3素子中2素子は26 keVのエネルギーに対して15 eVの分解能を達成し、1素子は18 eVの分解能を達成した(図3)。

5. 今後の見通し

素子とコリメータは設計通りに製作できたが、冷凍機の冷却能力の低下により動作温度を90 mKに変更せざるを得なくなった。本素子は動作温度65 mKを想定して製作したため、動作温度を高くすると分解能が劣化してしまう。そのため仮定していた分解能、カウント数を得ることができないが、65 mKで動作させた場合に要求を満たすかどうかという観点で評価を行った。18 eVのエネルギー分解能を仮定し、29.19 keVから崩壊する二本のガンマ線の直接測定が可能であるかどうかをモンテカルロシミュレーションを用いて評価した。その結果、異性体準位が9.5 - 18.3 eVの間であれば、48日間動作させ総カウント5000取得することで両者を分離でき、さらに429日間の動作で45,000カウント取得すれば1 eVの統計誤差を実現できることを示した。再設計したTES素子を使用することで世界で初めての²²⁹Th異性体のガンマ線計測による直接観測が可能となる。

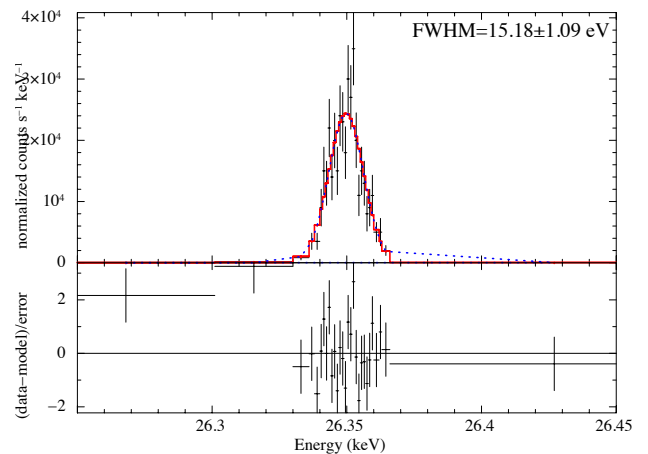


図3：再設計したTESマイクロカロリメータを用いて取得した26 keVのエネルギースペクトル。エネルギー分解能(FWHM)は15 eV。

