

平成22年 5月 5日現在

研究種目：基盤研究(A)
研究期間：2006～2009
課題番号：18206098
研究課題名（和文） プルトニウム体外計測のための超ウラン元素L X線の高精度分光分析
研究課題名（英文） High precision spectroscopy of LX-rays emitted from transuranium elements for Pu in vivo measurements
研究代表者 前畑 京介 (MAEHATA KEISUKE) 九州大学・大学院工学研究院・准教授 研究者番号：30190317

研究成果の概要（和文）：Pu 同位体が放射するエネルギーが 10keV から 20keV の LX 線を作業員の体外から計測することで、Pu 吸入摂取量を推定し内部被曝線量を評価するためには、Pu などの超ウラン元素の LX 線放射率を高い精度で評価する必要がある。そこで、超伝導相転移端温度センサー(TES)型マイクロカロリーメータシステムを開発し、超ウラン元素から放射される LX 線光子を半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能でスペクトル計測した。

研究成果の概要（英文）：The emission probability of LX rays for plutonium isotopes is one of the most important parameters for high precision estimation of the amount of the intake of plutonium isotopes by using the in vivo counting. A microcalorimeter with the superconducting transition edge sensor (TES) was developed and the excellent energy resolution of 50 eV FWHM value was obtained in spectroscopic measurements of LX-rays emitted by transuranium elements with

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	24,900,000	7,470,000	32,370,000
2007年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2008年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2009年度	2,400,000	740,000	3,140,000
年度			
総計	36,500,000	10,970,000	47,470,000

研究分野：放射線物理・計測学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：放射線・X線、放射線計測、超伝導素子

1. 研究開始当初の背景

(1) 使用済み核燃料再処理施設やウラン(U)・プルトニウム(Pu)混合酸化物(MOX)燃料製造施設等のPuを取り扱う施設では、作業員のPu吸入摂取量を推定し、内部被曝線量を評価する必要がある。このとき、作業員の体外からPuが α 壊変したUから放射される

エネルギーが13～17keVのLX線を直接計測することで、Pu吸入摂取量を推定することも重要である。LX線計測によりPu吸入摂取量を正確に推定するためには、Pu同位体組成の情報とLX線放射率の情報が非常に重要となる。Puなどの超ウラン元素のLX線放射率に関する実験データと理論計算値との一致が

良くなく、体外からの LX 線計測による Pu 吸収摂取量の推定に高い精度が得られない問題がある。超ウラン元素の LX 線放射率を高い信頼性で評価するには、LX 線を半値幅 100eV 以下の優れたエネルギー分解能で分光分析する必要がある。

(2) 高純度ゲルマニウムやリチウムドリフト型シリコンなどの汎用高精度半導体検出器では、Pu などの超ウラン元素が放射するエネルギーが 10keV から 20keV の多数の LX 線を正確に分析するのに十分なエネルギー分解能が得られていない。一方、超伝導相転移端温度計 (TES) 型マイクロカロリメータは、数 keV のエネルギーを有する X 線光子を 10eV より優れたエネルギー分解能で計測可能であることを実証し、既に実用段階に入っている。しかしながら、Pu などの超ウラン元素が放射するエネルギーが 10keV から 20keV の多数の LX 線を正確に分析するために開発された TES 型マイクロカロリメータはない。

(3) マイクロカロリメータの動作には 100mK 程度の超低温を安定に保持する必要がある。核燃料を取り扱う施設では液体ヘリウムが不要で操作が簡便な計測システムが要求されている。

2. 研究の目的

(1) エネルギーが 10keV から 20keV の LX 線光子を半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で計測できる TES 型マイクロカロリメータの設計・作製を行う。

(2) 液体ヘリウムを使わず簡便な操作で TES 型マイクロカロリメータの高性能動作を可能とする計測システムを構築する。

(3) TES 型マイクロカロリメータを用いて、 ^{241}Am 線源や Pu 同位体から放射される LX 線を半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で分光分析を行い、超ウラン元素の LX 線放射率を高い信頼性で評価できることを実証する。

3. 研究の方法

(1) TES 型マイクロカロリメータの設計・製作

マイクロカロリメータは、入射光子のエネルギーを温度上昇に変換する吸収体と入射エネルギーに比例した温度上昇を精度良く計測する温度計から構成され、吸収体における微小な温度上昇を感度よく優れた精度で測定する高感度温度計が重要である。TES 型マイクロカロリメータでは、電気抵抗が相転移領域において非常に急峻な温度依存性を示す超伝導薄膜を温度計として利用する。図 1 に TES 型マイクロカロリメータが X 線光子を検出し、エネルギー情報を含む検出信号を出力する過程を概念的に示す。TES は入力コイル L と直列に接続され、バイパス抵抗 R_b が TES と L に並列に接続されている。

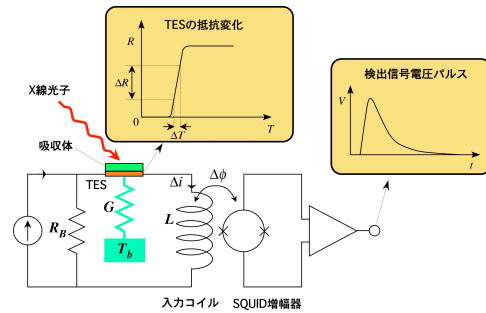


図1 TES型マイクロカロリメータの動作原理

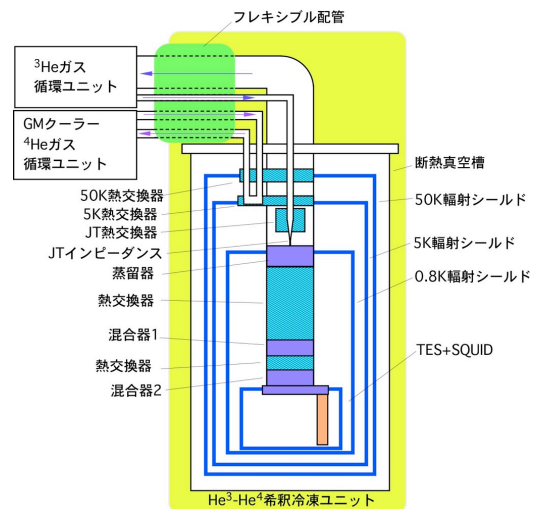


図2 液体ヘリウム不要冷凍システム

この回路に直流電流 i_0 が通電されている。このとき、TES 素子内におけるジュール発熱と温度 T_b の熱浴にコンダクタンス G を介して流れる熱流とのバランスで動作温度が決まる。X 線入射による吸収体の温度上昇 ΔT は TES の電気抵抗を ΔR だけ増加させ、 L を流れる電流変化 Δi に比例する磁束変化 $\Delta \phi$ が超伝導量子干渉素子 (SQUID) を使った増幅器により電圧パルスへと出力される。

TES 型マイクロカロリメータの構造は、数 keV 以下の X 線を精度よく計測することが実証されている Ti 上に Au を積層した 2 層構造とする。設計仕様は、動作温度 100mK、エネルギーが 10keV から 20keV の X 線光子を半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で、毎秒 100 カウント以上の計数率とする。吸収体として機能する Au 層の厚さは、エネルギー分解能と計数率の設計仕様を満たし、高い検出効率を与える最適値を求める。また、Au 層との近接効果により臨界温度が 100mK になるよう Ti 層の厚さを決定する。

(2) 液体ヘリウム不要冷凍機システムの開発
近年、ギフォード・マクマフオン (GM) 冷凍

機を搭載することで、液体ヘリウムを使用することなく 200mK の温度において 100mW の冷凍能力を有するコンパクトな構造の ^3He - ^4He 希釈冷凍機が製品化されている。TES 型マイクロカロリメータをこの液体ヘリウム不要型希釈冷凍機に取り付けて冷却する場合、GM 冷凍機の機械的振動が検出器動作条件の擾乱や検出信号の大きな雑音源となるので、図 2 に示すように ^3He - ^4He 希釈冷凍ユニット、GM 小型冷凍機 ^4He ガス循環ユニットおよび ^3He ガス循環ユニットに分離した構造に改造し、希釈冷凍ユニットへ伝播する GM 冷凍機やガス循環ポンプ等が発生する機械振動を極力抑制する。

(3) X 線管を使った応答特性測定

Rh をターゲットとする X 線管を使って 20.2keV と 22.keV の X 線を発生させ、エネルギーが 10keV から 20keV の X 線光子入射に対する TES 型マイクロカロリメータの出力パルス波高と入射 X 線エネルギーの関係を校正する。

(4) ^{241}Am 線源の LX 線スペクトル測定

無冷媒冷凍システムで動作温度が保持された TES 型マイクロカロリメータにより、 ^{241}Am 線源から放射される LX 線の高精度スペクトル測定を行う。

(5) ^{238}Pu 及び ^{239}Pu 線源の LX 線スペクトル測定

日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所において、プルトニウム標準線源から放射される LX 線の TES 型マイクロカロリメータによる高精度スペクトル測定を実施する。

4. 研究成果

(1) LX 線検出用 TES 型マイクロカロリメータの作製

本研究で作製した LX 線検出用 TES 型マイクロカロリメータチップの写真を図 3 に示す。100cps 程度の計数率を実現するために、Au/Ti の 2 層薄膜の超伝導薄膜温度計に Au 薄膜を吸収体として積層した構造とした。薄膜温度計は $350 \times 350 \mu\text{m}^2$ の面積を有し、近接効果により 200mK 近傍になるように Au と Ti の膜厚をそれぞれ、120nm 及び 50nm とした。また、Au 吸収体の面積は $150 \times 150 \mu\text{m}^2$ で 20keV の X 線光子を 50% の効率で吸収できるように厚さを $5 \mu\text{m}$ とした。作製した TES の電気抵抗の温度依存性 (R-T 曲線) の測定結果を図 4 に示す。図より相転移温度は 180mK 付近であり、マイクロカロリメータとして動作可能であることが確認された。厚さ $5 \mu\text{m}$ の Au 吸収体を積層した TES 型マイクロカロリメータは世界で初めて作製された。

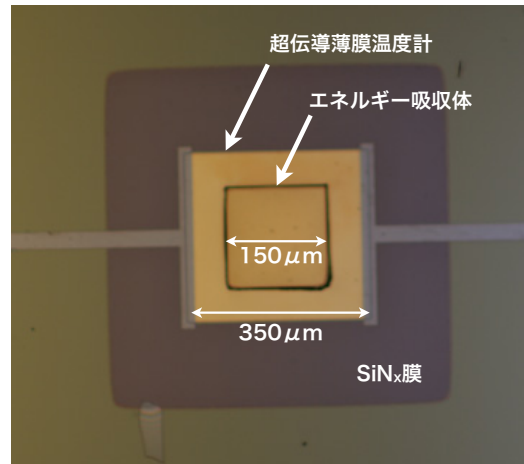


図 3 TES 型マイクロカロリメータチップ

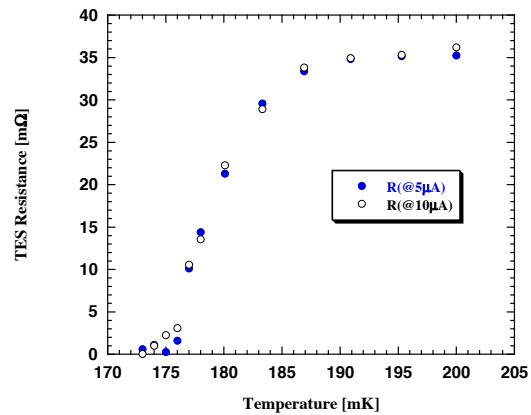


図 4 作製した TES の R-T 曲線測結果

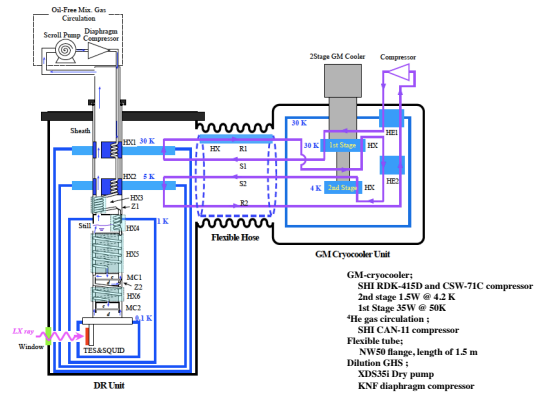


図 5 開発した無冷媒冷凍システム

(2) 無冷媒冷凍機により動作温度を保持された TES 型マイクロカロリメータによる ^{241}Am 線源からの LX 線の検出

本研究では、図 5 に示すような ^3He - ^4He 希釈冷凍ユニットと GM クーラーユニットが分離した構造を有する分離型無冷媒希釈冷凍機による TES 型マイクロカロリメータ冷凍システムを開発した。ガスハンドリングシ

テムから ^3He - ^4He 希釈冷凍ユニットに導入された ^3He - ^4He 混合ガスは、GM クーラーユニットで冷却された低温 ^4He ガスと熱交換され 4K の温度まで冷却される。4K に冷却された ^3He - ^4He 混合ガスは、JT 熱交換器において蒸留器から排気される低温の ^3He - ^4He 混合ガスにより 1K 近傍まで冷却され、約 140kPa の圧力差が発生する JT インピーダンスでジュール・トムソン効果により凝縮する。凝縮した ^3He - ^4He 混合液は蒸留機や熱交換器で冷却された後、2 段の混合器へ導入され濃縮相と希釈相の境界相を通過する際に冷凍動作を行い、JT インピーダンスから導入される ^3He - ^4He 混合液を熱交換器で冷却しながら蒸留器へと戻る。希釈冷凍ユニットの混合器の試料ホルダーに、LX 線検出用 TES 型マイクロカロリメータと SQUID それぞれのチップを隣接して取り付けられた。

140mK の動作温度に保持された TES 型マイクロカロリメータに、Rh をターゲットとする X 線管で発生した X 線を照射した。そのときの TES 型マイクロカロリメータ検出信号パルス波高分布に示される Cu K_α (8.04 keV)、Rh K_α (20.2 keV) 及び Rh K_β (22.7 keV) の特性 X 線ピークを使って、エネルギーが 10keV から 20keV の X 線光子入射に対する TES 型マイクロカロリメータの出力パルス波高と入射 X 線エネルギーの関係を調べ、X 線エネルギーとパルス波高の関係が 2 次式で近似できることがわかった。

次に、 ^{241}Am 線源から放射される LX 線と γ 線の検出実験を行った。 ^{241}Am の α 崩壊に伴い放射されるエネルギーが 17.75 keV の ^{237}Np $L_{\beta 1}$ X 線を検出したときの TES 型マイクロカロリメータの出力パルス信号を図 6 に示す。図より検出信号パルスの減衰時定数が 600 μ 秒であるので、毎秒 100 カウントの計数率で動作可能であることがわかった。出力された検出信号パルスをデジタル変換してコンピュータに記録し、デジタルフィルター処理により解析することで、図 7 に示すようなエネルギースペクトルが得られた。図中のエネルギーが 17.75keV の $L_{\beta 1}$ X 線に対するエネルギー分解能は半値幅で 80eV であった。さらに、エネルギーが 59.54keV の γ 線を半値幅 140eV のエネルギー分解能で検出しているがわかった。目標である半値幅 50eV のエネルギー分解能に到達するには、無冷媒冷凍システムに搭載した GM クーラー等により誘発される電気的な雑音の除去を徹底する必要があると考えられる。

(3) TES 型マイクロカロリメータによる Pu 同位体の LX 線スペクトル計測

九州大学では Pu 同位体線源の取り扱いができないために、核燃料サイクル工学研究所放射線保健室において Pu 同位体から放射さ

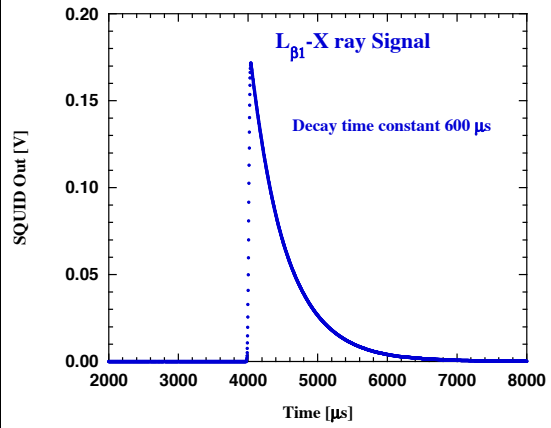


図 6 TES 型マイクロカロリメータの LX 線検出パルス信号波形

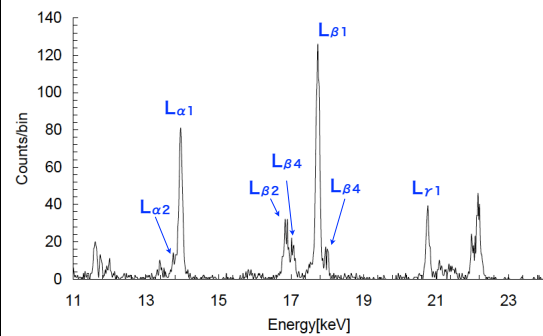


図 7 TES 型マイクロカロリメータで得られた ^{241}Am 線源から放射される LX 線のエネルギースペクトル

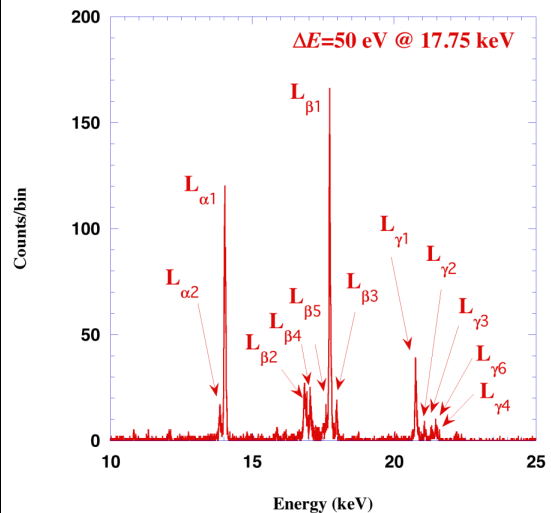


図 8 液体ヘリウムを使用する小型希釈冷凍機で動作条件を保持された TES 型マイクロカロリメータで得られた ^{241}Am 線源から放射される LX 線のエネルギースペクトル

れる LX 線の TES 型マイクロカロリメータによる計測実験を実施した。無冷媒冷凍システムを運転するのに必要な電力と冷却水確保

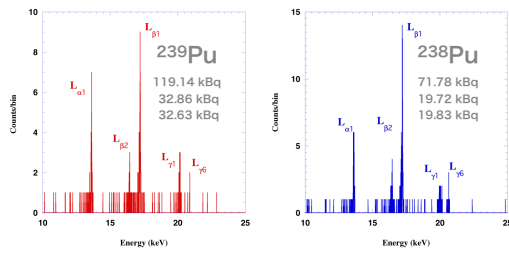


図 9 TES 型マイクロカロリメータで得られて ^{238}Pu と ^{239}Pu 線源の LX 線スペクトル

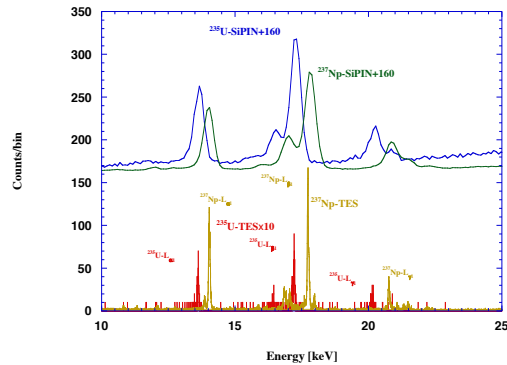


図 10 TES 型マイクロカロリメータによる LX 線スペクトル計測による ^{241}Am と Pu 同位体の分離予測

が困難であったため、走査型電子顕微鏡搭載用に開発された、液体ヘリウムを使用する小型希釈冷凍機を使用した。本研究で作製した LX 線用 TES 型マイクロカロリメータを小型冷凍機に取り付けた。

強度が 380kBq の ^{241}Am 線源から放射される LX 線の計測で得られたエネルギースペクトルを図 8 に示す。エネルギーが 17.75keV の $L_{\beta 1}X$ 線に対するエネルギー分解能は半値幅 50eV であった。 ^{238}Pu 及び ^{239}Pu 線源は放射能強度が 100kBq 程度で LX 線の検出事象が少なかったが、図 9 に示すようなエネルギースペクトルが得られた。Pu 線源の LX 線についても半値幅 50eV 程度のエネルギー分解能で計測した。TES 型マイクロカロリメータによる LX 線スペクトル計測により ^{241}Am と Pu 同位体の分離が期待できることを図 10 に示す。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7 件)

- ① Takahiro Umeno, Keisuke Maehata, Kenji Ishibashi, Yasuharu Kamioka, Shigeru Yoshida, Koji Takasaki and Keiichi Tanaka, Operation of a TES

microcalorimeter cooled by a compact liquid-helium-free $^3\text{He} - ^4\text{He}$ dilution refrigerator directly coupled to a Gifford-McMahon cooler, CRYOGENICS, Vol. 50, Issue 5, pp. 314-319, 2010, 査読有り

- ② Keisuke Maehata, Keisuke Nakamura, Takashi Yasumune, Kenji Ishibashi, Koji Takasaki, Keiichi Tanaka, Akikazu Odawara and Atsushi Nagata, Development of a TES Microcalorimeter for Spectroscopic Measurement of LX-rays Emitted by Transuranium Elements, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 47, No. 3, pp.308-313, 2010, 査読有り

- ③ Keisuke Maehata, Keisuke Nakamura, Takashi Yasunume, Hirofumi Ogi, Makoto Maeda, Hidehiko Arima, Kenji Ishibashi, Takahiro Umeno, Yoshihiro Yamanaka, Koji Takasaki and Keiichi Tanaka, RESPONSE OF TES MICROCALORIMETER TO LX RAYS EMITTED FROM ^{241}Am SOURCE BY OPERATED WITH A LIQUID-HELIUM-FREE $^3\text{He}-^4\text{He}$ DILUTION REFRIGERATOR, Radiation Detectors and Their Uses, High Energy Accelerator Research Organization KEK Proceedings, 2009-12. pp.11-20, 2010, 査読有り

- ④ Y. Yamanaka, T. Ito, T. Umeno, Y. Suzuki, S. Yoshida, Y. Kamioka, and K. Maehata, Development of GM cryocooler separate type liquid-helium-free $^3\text{He}-^4\text{He}$ dilution refrigerator system, Journal of Physics: Conference Series, 150, 012055, 2009, 査読無

- ⑤ T. Umeno, Y. Kamioka, S. Yoshida, K. Maehata, K. Ishibashi, K. Takasaki and K. Tanaka, Performance of compact liquid helium free $^3\text{He}-^4\text{He}$ dilution refrigerator directly coupled with GM cooler in TES microcalorimeter operation, Journal of Physics: Conference Series, 150, 012051, 2009, 査読無

- ⑥ Keisuke Maehata, Katsunori Ueno, Keisuke Nakamura, Takashi Yasumune, Hidehiko Arima, Kenji Ishibashi, Takahiro Umeno, Koji Takasaki, Keiichi Tanaka, Development of TES microcalorimeter for LX-ray spectroscopic analysis of transuranium elements, Radiation Detectors and Their Uses, High Energy Accelerator Research Organization KEK Proceedings, 2008-14, pp. 53-62, 2009, 査読有り

- ⑦ Katsuhiko Ueno, Akihiro Yamaguchi, Keisuke Nakamura, Keisuke Maehata,

Kenji Ishibashi, Takahiro Umeno, Keiichi Tanaka, Koji Takasaki, Development of TES microcalorimeter for high precision spectroscopy of LX-ray photons emitted from transuranium elements, Journal of nuclear science and technology, supplement 5, pp. 522-525, 2008, 査読有り

〔学会発表〕(計 10 件)

- ① 前畑京介、荻広史、前田亮、安宗貴志、石橋健二、高崎浩司、田中啓一、山中良浩、無冷媒希釈冷凍機冷却 TES 型マイクロカロリメータを用いた 超ウラン元素 LX 線スペクトル計測システムの開発、日本原子力学会 2010 年春の年会、2010 年 3 月 26 日、茨城大学水戸キャンパス
- ② 前田亮、荻広史、安宗貴志、前畑京介、石橋健二、中村圭佑、高崎浩司、梅野高裕、田中啓一、TES 型マイクロカロリメータを用いた ^{241}Am の LX 線の検出(5)、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月 16 日、東北大学青葉山キャンパス
- ③ 前畑京介、中村圭佑、安宗貴志、石橋健二、高崎浩司、田中啓一、小田原成計、TES 型マイクロカロリメータによる ^{241}Am 、 ^{238}Pu 及び ^{239}Pu 線源 の LX 線計測、2009 年 9 月 16 日、東北大学青葉山キャンパス
- ④ 前畑京介、中村圭佑、安宗貴志、石橋健二、高崎浩司、田中啓一、小田原成計、永田篤士、TES 型マイクロカロリメータによる ^{241}Am 、 ^{238}Pu 及び ^{239}Pu 線源から放射される LX 線スペクトル計測、2009 年秋季第 70 回応用物理学会学術講演会、2009 年 9 月 10 日、富山大学
- ⑤ K. Maehata, K. Nakamura, T. Yasumune, M. Ogi, M. Maeda, K. Ishibashi, K. Takasaki, T. Umeno, Y. Yamanaka, K. Tanaka, Development of a TES Microcalorimeter for Energy Dispersive Spectroscopy of LX Rays Emitted from Transuranium Elements, 12th International Superconductive Electronics Conference, 2009 年 6 月 18 日、九州大学
- ⑥ 前畑京介、中村圭佑、安宗貴志、荻 広史、前田亮、石橋健二、梅野高裕、高崎浩司、田中啓一、超ウラン元素 LX 線検出用 TES 型マイクロカロリメータの開発、第 56 回応用物理学関係連合講演会、2009 年 4 月 1 日、筑波大学
- ⑦ 荻広史、中村圭佑、前田亮、前畑京介、石橋健二、高崎浩司、田中啓一、梅野高裕、TES 型マイクロカロリメータを用いた ^{241}Am の LX 線の検出(4)、日本原子力学会 2009 年春の年会、2009 年 3 月 24 日、東京工業大学
- ⑧ 中村圭佑、荻広史、前畑京介、石橋健二、

高崎浩司、田中啓一、梅野高裕、TES 型マイクロカロリメータを用いた ^{241}Am の LX 線の検出(3)、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月 4 日、高知工科大学

- ⑨ T. Umeno, Y. Kamioka, S. Yoshida, K. Maehata, K. Ishibashi, K. Takasaki and K. Tanaka, Performance of compact liquid helium free ^3He - ^4He dilution refrigerator directly coupled with GM cooler in TES microcalorimeter operation, 25th International Conference on Low Temperature Physics, 2008 年 8 月 7 日, RAI Conference center, Amsterdam, The Netherlands
- ⑩ 中村圭祐、上野克宜、前畑京介、石橋健二、梅野高裕、田中啓一、高崎浩司、TES 型マイクロカロリメータを用いた ^{241}Am の LX 線の検出(2)、日本原子力学会 2008 年春の年会、2008 年 3 月 28 日、大阪大学

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

前畑 京介 (MAEHATA KEISUKE)
九州大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：30190317

(2) 研究分担者

なし ()

研究者番号：

(3) 連携研究者

高崎 浩司 (TAKASAKI KOJI)
日本原子力研究開発機構・核燃料サイクル工学研究所・課長代理
研究者番号：00446444
原 一広 (HARA KAZUHIRO)
九州大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：00180993
有馬 秀彦 (ARIMA HIDEHIKO)
九州大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号：20253495