

# マイクロカロリメータ特性X線スペクトル計測による超ウラン元素内部被ばく線量評価に関する研究

中村, 圭佑

<https://hdl.handle.net/2324/1937182>

---

出版情報 : Kyushu University, 2018, 博士 (工学), 課程博士  
バージョン :  
権利関係 :

マイクロカロリメータ  
特性 X 線スペクトル計測による  
超ウラン元素内部被ばく線量評価に関する研究

九州大学大学院工学府  
エネルギー量子工学専攻

中村 圭佑

平成 30 年 2 月

<b>1</b>	<b>序論</b> .....	1
1.1	原子力及び放射線の利用.....	1
1.2	核燃料サイクル.....	2
1.3	放射線と被ばく.....	3
1.4	放射線管理.....	4
1.4.1	被ばくの管理.....	4
1.4.2	被ばくの防護.....	7
1.5	異常時における放射線管理.....	8
1.5.1	異常における放射線管理について.....	8
1.5.2	内部被ばくが考えられる場合の異常時対応.....	9
1.6	超ウラン元素に対する放射線管理.....	10
1.6.1	原子力施設等に存在する超ウラン元素.....	10
1.6.2	超ウラン元素に対する放射線管理.....	12
1.6.3	超ウラン元素に対する内部被ばく線量の測定評価.....	12
1.7	超伝導相転移端温度計型マイクロカロリメータ.....	14
1.8	本研究の目的.....	14
1.9	本論文の構成.....	15
<b>2</b>	<b>内部被ばく線量の評価方法</b> .....	17
2.1	防護量と実用量.....	17
2.2	預託線量.....	19
2.3	内部被ばく評価に係る体内動態モデル.....	20
2.3.1	内部被ばく評価に係る体内動態モデルについて.....	20
2.3.2	呼吸気道モデル.....	22
2.3.3	胃腸管モデル.....	22
2.3.4	全身性放射能に対する体内動態モデル.....	23
2.3.5	体内動態モデルにもとづく内部被ばく線量評価.....	24
2.4	肺モニタによる TRU 測定について.....	26
2.4.1	肺モニタについて.....	26
2.4.2	肺モニタによる内部被ばく評価.....	27
2.4.3	胸部厚さの補正.....	32
2.4.4	肺モニタによる測定結果からの内部被ばく評価.....	33
2.5	TES 型マイクロカロリメータを肺モニタに適用した場合の優位性.....	34
<b>3</b>	<b>LX線測定用 TES 型マイクロカロリメータ</b> .....	35
3.1	TES 型マイクロカロリメータ.....	35

3.1.1	マイクロカロリメータ	35
3.1.2	マイクロカロリメータのエネルギー分解能	35
3.2.2	TES 型マイクロカロリメータの構造	36
3.1.3	TES 型マイクロカロリメータの熱的応答	37
3.1.4	電熱フィードバック	37
3.1.5	TES 型マイクロカロリメータの固有の雑音	39
3.1.6	固有のエネルギー分解能	40
3.1.7	読み出し回路	41
3.1.8	最適フィルタ法	44
3.2	L X 線測定用 TES 型マイクロカロリメータ	47
3.2.2	本研究で使用した TES 型マイクロカロリメータ	47
3.2.3	L X-TES 及び TES-m の特性	50
3.2.4	エネルギー分解能と TRU 弁別性	54
4	TES 型マイクロカロリメータによる超ウラン元素 L X 線スペクトル測定	58
4.1	$^{244}\text{Cm}$ 線源から放出される L X 線のスペクトル測定	58
4.1.1	システムセットアップ	58
4.1.2	冷熱浴温度及び動作点の決定	64
4.1.3	L X 線パルス解析	67
4.1.4	パルスの選別	68
4.1.5	最適フィルタ	72
4.1.6	動作点補正	74
4.1.7	ピーク同定及びエネルギー校正曲線	79
4.1.8	エネルギースペクトル	80
4.1.9	各 L X 線成分の計数値と放出率評価	83
4.2	$^{237}\text{Np}$ から放出される L X 線測定実験	85
4.2.1	システムセットアップ及び動作点設定	85
4.2.2	L X 線パルス解析	86
4.2.3	各 L X 線成分の計数値と放出率評価	88
5	TES 型マイクロカロリメータを用いた内部被ばく線量評価に関する考察	90
5.1	はじめに	90
5.2	TRU 核種の混在に関する考察	90
5.2.1	TRU 組成について	90
5.2.2	核種毎のモデル L X 線スペクトル	91
5.2.3	代表的な TRU 組成における L X 線スペクトル	94
5.3	検出下限値に関する考察	98
5.3.1	検出下限値について	98

5.3.2	Pu 測定における検出下限値について.....	99
5.3.3	肺モニタ適用時の検出下限値について.....	100
5.4	胸部厚さの評価に関する考察.....	101
5.4.1	L X 線スペクトロメトリーによる胸部厚さの推定方法.....	101
5.4.2	<sup>241</sup> Am から放出される L X 線を用いた薄膜厚さ評価.....	102
6	結論及び今後の展望.....	107
6.1	結論.....	107
6.2	今後の展望.....	108
	謝辞.....	109
	参考文献.....	110

# 1 序論

## 1.1 原子力及び放射線の利用

我が国では原子力基本法に基づき、原子力の平和利用を通して、人類社会の福祉と国民生活の水準向上に努めている。原子力はエネルギー自給率の低い我が国の貴重なエネルギー源として電力発電に利用されている。「エネルギー基本計画」[1.1]によると、原子力発電は「優れた安定供給性を有しており、運転コストが低廉で変動も少なく、運転時には温室効果ガスの排出もないことから、安全性の確保を大前提に、エネルギー需要構造の安定性に寄与する重要なベースロード電源」と位置付けられている。これを背景に、日本では 42 基の商業発電用原子炉が設置されており、2010 年度には発電量に占める原子力発電の割合が 28.6%という高い値を示した[1.2]。しかし、福島第一原子力発電所事故後に新しい法規制（新規規制基準）が施工され、これにもとづく規制要求への適合性審査のため、2017 年 12 月現在では、4 基のみの稼働に留まっている。表 1.1 に現在の商業発電用原子炉施設の稼働状況を示す。

また、放射線としては放射性同位元素や放射線発生装置（加速器等）が様々な分野で利用されている[1.2][1.3]。表 1.2 に放射線利用分野について示す。放射線利用は今や社会に欠かせない重要な技術として位置づけられ、特に医療における診断や治療では X 線発生装置等が数多くの病院で導入されている。また、法令上の規制対象には該当しない低エネルギー加速器や少量放射性同位元素を用いた放射線利用についても幅広く行われており、すそ野が広い分野であると言える。

表 1.1 発電用原子炉施設の稼働状況（2017 年 12 月現在）

稼働状況	基数	原子炉
稼働中	4	高浜 3 号、高浜 4 号、川内 1 号、川内 2 号
停止中	37	泊 1 号、泊 2 号、泊 3 号、東海 1 号、女川 1 号、女川 2 号、女川 3 号、福島第二 1 号、福島第二 2 号、福島第二 3 号、福島第二 4 号、柏崎刈羽 1 号、柏崎刈羽 2 号、柏崎刈羽 3 号、柏崎刈羽 4 号、柏崎刈羽 5 号、柏崎刈羽 6 号、柏崎刈羽 7 号、浜岡 3 号、浜岡 4 号、浜岡 5 号、志賀 1 号、志賀 2 号、美浜 3 号、大飯 1 号、大飯 2 号、大飯 3 号、高浜 1 号、高浜 2 号、島根 2 号、伊方 2 号、伊方 3 号、玄海 2 号、玄海 3 号、玄海 4 号、東海第二、敦賀 2 号

表 1.2 放射線利用分野[1.2][1.3]

大項目	中項目	小項目
工業利用	放射線照射工業	材料開発、滅菌、半導体加工等
	測定・分析	非破壊測定、レベル計、厚さ計、ラジオグラフィ等
農業利用	食品照射	品種改良、商品開発、害虫駆除
医療分野	診断	X線 CT、短寿命 R I のトレーサ利用、PET、SPECT 等
	治療	X線、ガンマ線、電子線、陽子線、重粒子線照射
資源・環境保全利用	排煙排水等の処理	
研究利用	トレーサ利用	RI トレーサ、超短寿命 RI トレーサ

## 1.2 核燃料サイクル

我が国のエネルギー政策の中で将来的なエネルギー資源の安定的な確保として、核燃料サイクルが重要視されている[1.1]。核燃料サイクルは原子力発電によって生じる使用済み燃料中のウラン及びプルトニウムを取り出し、再び原子炉燃料として使用するという一連のサイクルのことを言う。核燃料サイクルの概念図を図 1.1 に示す。核燃料サイクルには 2 つの輪があり、ひとつが軽水炉サイクル、もうひとつが高速炉サイクルと呼ばれている。軽水炉サイクルでは、軽水炉で生じる使用済み燃料を再処理した後、混合酸化物 (MOX) 燃料として再び軽水炉で使用する (プルサーマル) ことを指す。一方、高速炉サイクルでは再処理施設にて取り出したプルトニウム及び転換用のウランを主体とした燃料を製造し、これを高速炉にて使用することで、発電するとともに、転換用のウランの中性子吸収により燃料用のプルトニウムを製造する。その後、高速炉用の再処理施設にて燃料成分を抽出し、再び高速炉にて発電を行う。軽水炉サイクルに比べ高速炉サイクルは燃料のリサイクル率が高いため、資源の有効利用という点で優れている。また、高速炉では、使用済み燃料中に含まれるマイナーアクチノイドを燃やすことで高レベル放射性廃棄物による環境負荷の低減が期待される[1.4]。

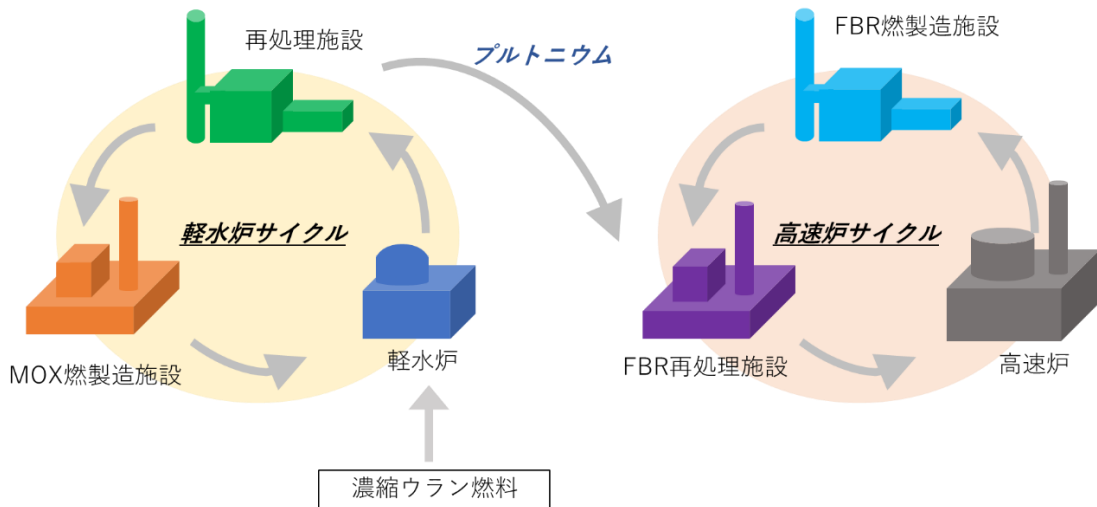


図 1.1 核燃料サイクル概念図

### 1.3 放射線と被ばく

原子力や放射線の平和利用においては、貴重なエネルギー資源としての位置づけや社会における有効性を持つ反面、放射線被ばくに伴う健康影響について留意する必要がある。放射線が人体に与える影響は、確率的影響と確定的影響の2種類に大別される。確率的影響は細胞の突然変異によるがんの発生又は遺伝性疾患を指し、確定的影響はある閾値以上の被ばくにより細胞死又は細胞の機能不全が発生し、それが身体に与える影響を指す。確率的影響と確定的影響の特徴について表 1.3 に示す。国際放射線防護委員会 (ICRP) では被ばくの上限である線量限度を、確定的影響の発生防止を念頭に置くとともに、確率的影響の発生について、そのリスクを見積もった上で、容認できない下限レベルとして定めているよう勧告している [1.5]。我が国の線量限度は ICRP1990 年勧告に従って、実効線量及び等価線量に対して表 1.4 の通り定められている。

被ばくの種類としては、線源の位置関係によって、内部被ばく（線源が“体内”に存在する）と外部被ばく（線源が“体外”に存在する）に分けることができる。内部被ばくでは $\alpha$ 線や $\beta$ 線が被ばく線量への寄与が大きく、一方、外部被ばくでは、透過力のあるX線、 $\gamma$ 線及び中性子線の寄与が大きい。ただし、身体表面の汚染がある場合は $\beta$ 線が外部被ばくの主要因となることもある。



表 1.3 確率的影響と確定的影響

種類	閾値	影響	特徴
確率的影響	無	がん、遺伝的疾患	線量は影響の発生確率に依存
確定的影響	有	白内障、皮膚損傷、造血機能低下、不妊	線量は影響の重篤度に依存

表 1.4 線量限度

		職業被ばく	公衆の被ばく
実効線量		50mSv/年かつ 100mSv/5年	1mSv/年
等価線量	皮膚	500mSv/年	—
	水晶体	150mSv/年	—
女子の線量限度		5mSv/3カ月 (ただし、妊娠した場合は、腹部表面の等価線量で 2mSv、かつ内部被ばく 1mSv (出産までの間))	—

## 1.4 放射線管理

### 1.4.1 被ばくの管理

放射線による被ばくは、“ALARA” (As Low As Reasonably Achievable) の精神[1.6]に基づいて、合理的に達成できる限り低く保つことが原則となる。そのため、発電用原子炉施設や再処理施設、放射線使用施設等（以下、「原子炉施設等」）では、保安規定や放射線障害予防規定等の中で、放射線の管理に関する事項について定め、被ばくの低減に努めている。

被ばくの低減のためには、まず、ゾーニングにより被ばくを被る可能性のある場とそうでない場に分けることが必要となる。被ばくを被る可能性のある場は「管理区域」と呼ばれ、限定された作業員のみがその中に立ち入ることが認められる。管理区域の設定基準は法令により定められており、表 1.5 の通りとなっている。

管理区域における放射線管理は、場（施設）のモニタリングと個人のモニタリングに大別できる。場のモニタリングでは、放射性物質が存在する場所の線量、表面汚染密度及び空気中の放射性物質濃度を測定する。線量は外部被ばくの低減、表面汚染密度及び空気中の放射性物質濃度は内部被ばく防止の観点で行われる。各項目には法令要求を担保するための管理

値が設けることが一般的であり、それを超過しないことを測定により確認している[1.7]。測定はサーベイメータ等の可搬型機器もしくは、定置式（据置型）のモニタリング設備等によって行われる。表 1.6 に場のモニタリングにおける測定手法と法令要求を記載する。ただし、線量以外の法令要求は特別な措置を講じるための管理基準として用いられるものであり、この値を超えたところで直ちに法令違反とはならない。

個人のモニタリングは個人被ばく線量計及び摂取量評価のための特殊モニタリングによって行われる。個人被ばく線量計は外部被ばく線量の評価を目的としており、作業場所の放射線状況に応じた線量計を着用する[1.8]。着用する部位は原則として作業者の胸部近辺であるが、女子については妊娠時の線量限度を担保する目的で腹部としている。胸部（女子については腹部）は体幹部均等被ばくの代表箇所として位置づけられるため、ここに着用した個人被ばく線量計の評価結果は外部被ばくによる実効線量となる。不均等被ばくの可能性がある作業については、胸部の他に被ばくを被る可能性のある部位に不均等被ばく評価用の線量計を着用する[1.7]。これによる評価結果は当該部位の等価線量となる。代表的な不均等被ばくの例としては、グローブボックス作業時の手部被ばくがあり、専用の線量計として手指指リングが用いられる。

摂取量評価のための特殊モニタリングは、内部被ばく線量の評価を目的としており、内部被ばくの可能性がある作業者のみを対象に実施される。測定方法は体外計測法、バイオアッセイ法及び空気中放射物質濃度にもとづく計算評価法の3つがある[1.8]。表 1.7 に特殊モニタリングの方法毎の特徴を記載する。いずれの方法を用いて評価を行うかについては、内部被ばくの可能性の大小や取り扱う放射性物質を考慮して決定されるが、平常時の管理では、主に空気中放射物質濃度にもとづく計算評価又は全身カウンタを用いた体外計測法のいずれかが用いられる[1.7]。

表 1.5 管理区域の設置基準

項目	法令要求
外部放射線に係る線量	1.3mSv/3 カ月
表面汚染密度	$\alpha$ 線を放出する核種：0.4 Bq/cm <sup>2</sup> $\alpha$ 線を放出しない核種：4.0 Bq/cm <sup>2</sup>
空気中の放射性物質濃度	3 月間の平均濃度が空気中濃度限度の 1/10

表 1.6 場の管理における管理手法

測定項目	測定手法	法令要求
外部放射線に係る線量	<ul style="list-style-type: none"> <li>● サーベイメータ</li> <li>● 定置式モニタリング設備 (エリアモニタ)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 作業エリア等：20mSv/年 (100mSv/5年)</li> <li>● 管理区域境界：1.3mSv/3 カ月</li> </ul>
表面汚染密度	<ul style="list-style-type: none"> <li>● スミアによる試料採取 (間接法)</li> <li>● サーベイメータ (直接法)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● <math>\alpha</math> 線を放出する核種：4 Bq/cm<sup>2</sup></li> <li>● <math>\alpha</math> 線を放出しない核種：40 Bq/cm<sup>2</sup></li> </ul>
空気中の放射性物質濃度	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 定置式モニタリング設備 (ダストモニタ)</li> <li>● 空気サンプラによる試料採取</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 空気中濃度限度 (核種及び化学形によって異なる)</li> </ul>

表 1.7 内部被ばく線量の評価のための特殊モニタリングの特徴

	体外計測法	バイオアッセイ法	空気中放射性物質濃度にもとづく計算評価
測定線種	$\gamma$ 線、X 線	$\alpha$ 線、 $\beta$ 線、 $\gamma$ 線	$\alpha$ 線、 $\beta$ 線
代表的な適用核種	<sup>137</sup> Cs、 <sup>60</sup> Co、 <sup>131</sup> I、U 同位体、Pu 同位体、 <sup>241</sup> Am 等	Pu 同位体、U 同位体、 <sup>241</sup> Am、 <sup>90</sup> Sr	全ての核種
測定評価方法概要	体内に存在する放射性物質を体外から測定し、体内残留量から摂取量を算出する	排泄される便を採取して、排泄率から摂取量を算出する	空気中の放射性物質濃度の評価結果から、作業者の呼吸量や滞在時間を考慮して摂取量を算出する
特徴	摂取直後から測定評価が可能であるため、迅速な処置が可能。ただし、評価には体組織における減弱を考慮する必要がある	最も検出限界が低い方法。ただし、便の採取が必要となるため、評価結果を得るまでには比較的長い時間を要する。	簡便な計算により評価が可能。しかし、実際の呼吸域とサンプリング箇所が同一でない場合が多く、信頼性に乏しい。

## 1.4.2 被ばくの防護

外部被ばくの防護対策が必要となるのは、主に線量の高い作業環境で作業を行う場合である。このような場所で作業を行うにあたっては、作業前に場のモニタリングを行い、線量率を測定した上で、計算評価によって作業に係る外部被ばく線量の見積もりを行う。見積もった量が許容できるか否かについては、その施設における管理基準値や線量限度等との比較により判断する。許容できない場合は、作業時間の短縮、遮蔽体の設置又は遮蔽防護具（例えば鉛エプロン）の着用等の対策を行い、外部被ばく線量の低減を図る。

空気汚染又は遊離性の表面汚染が確認されている作業環境では内部被ばくの防護対策が必要となる。外部被ばくの場合は合理的に達成可能な範囲で許容できる線量を設定するが、内部被ばくの場合は原則として被ばく線量を限りなくゼロにすることが理想的である。これは、放射性物質を体内に取り込んでしまった場合に、容易に取り除くことができず、微量の摂取でも被ばく線量が高くなる可能性があるためである。ゆえに、空気汚染等が確認されていない場合でも、作業中の不注意等により空気汚染の可能性のあるような作業を行う場合は内部被ばく防護対策を行うことが望ましい。

内部被ばく防護対策としては、呼吸防護具が有効である。呼吸防護具には表 1.8 に示す通り防護係数（空气中放射性物質の除去率の逆数）の異なるものが数種類ある[1.9]。作業環境中の空气中放射性物質濃度に応じて適切な防護係数を有する呼吸保護を選定することが望ましい。ただし、防護係数の大きい呼吸保護具ほど、作業員への身体的負荷が大きくなるため、作業時間の軽減や作業員の交代等の措置を考慮する必要がある。

表 1.8 呼吸保護具の種類と防護係数

種類	防護係数※	写真
半面マスク	10	
全面マスク	100	
空気呼吸器	1000	
エアラインスーツ	1000 以上	

※日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所の場合

## 1.5 異常時における放射線管理

### 1.5.1 異常における放射線管理について

原子炉施設等における平常時の放射線管理についてはこれまで述べてきた通りであり、厳密な放射線管理により、線量限度を超過する可能性は低いと言える。しかし、平常とは異なる「異

常事態」が発生した場合は、異常事態の内容や規模に応じた適切な放射線管理が望まれる。

異常事態において第一に考えることは、「人」の安全確保である。異常事態の規模によってこの対象が作業者となる場合や公衆となる場合があるが、いずれにせよ、人の安全を最優先に考慮することが重要である。そして、「人」への影響の大きい異常事態の一つとして、内部被ばく事故があげられる。これは、1.4.2 項で述べた通り、微量の放射性物質の取り込みにおいても、人体に影響を及ぼす被ばく線量となる可能性があるためである。

## 1.5.2 内部被ばくが考えられる場合の異常時対応

内部被ばくが考えられる異常事態としては、以下の3つが挙げられる。

- イ) 放射性物質が呼吸する空気中に飛散し、適切な呼吸保護具がない状態で呼吸をした場合（吸入摂取）
- ロ) 放射性物質に汚染されたものを口にした場合（経口摂取）
- ハ) 放射性物質に汚染されたものにより出血を伴う創傷を負った場合（創傷部汚染に伴う摂取）

なお、上記の3つの中で最も発生頻度が高い事象はイ) 吸入摂取である。

いずれかの異常事態が発生した場合の処置対応としては、多量の出血や意識不明等、人命に影響があるような場合を除き、以下の手順が考えられる。

- 1) 当事者を安全な場所（汚染のない場所）に移動させた後、内部被ばくの有無を調べるためのスクリーニングを行う。スクリーニングの方法としては、吸入摂取の場合は鼻スミア、創傷部汚染の場合は傷口の直接測定又は血液試料の測定となる。
- 2) 1) と並行して当事者の滞在していた場所の汚染状況（空气中放射性物質濃度及び表面汚染密度）を調査する。
- 3) スクリーニングの結果、内部被ばくの可能性が高いと判断された場合は体外計測法による一次評価を行う。吸入及び経口摂取の場合は肺モニタ測定又は全身カウンタ、創傷部汚染の場合は傷モニタにより測定する。ただし、身体表面に汚染がある場合は測定評価の妨げとなるため、除染を優先する。
- 4) 一次評価の結果、医療処置が必要と判断した場合は、医師による医療処置を講じる。医療処置の方法は、吸入及び経口摂取の場合は、体外排泄を促すキレート剤の投与、創傷部汚染の場合は外科的切除又はキレート剤の投与となる。
- 5) 4) の処置状況に関わらず、継続的に当事者の排泄物を採取し、バイオアッセイ法による評価を行う。
- 6) バイオアッセイ法の評価結果から最終的な被ばく線量を決定する。医療処置については必要に応じ適宜追加実施する。

なお、内部被ばくの可能性がある当事者が複数人いる場合は、スクリーニングや一次評価の結果最も重篤な被ばく線量となる可能性の高い人から順に実施していく。

## 1.6 超ウラン元素に対する放射線管理

### 1.6.1 原子力施設等に存在する超ウラン元素

ここまでは一般的な放射性物質に対する放射線管理について記載してきたが、ここからは具体的な管理対象として、超ウラン元素（TRU）を取り扱う場合について述べる。

TRUとは、原子番号92番のウランより重い元素を指す。原子力施設等に存在する代表的なTRUはプルトニウムであるが、その他には $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ 及び $^{237}\text{Np}$ が比較的存在割合の大きい核種となる[1.10]。TRUは原子炉施設における核燃料物質の燃焼に伴い生成される。図1.2にTRUの生成過程を示す[1.11]。核燃料サイクルを行う場合、再処理施設において燃料成分となるプルトニウムとそれ以外のTRUに分離される。プルトニウムを除くTRUは高放射性廃棄物としてガラス固化した後、最終処分（地層処分）が行われることになる。一方、プルトニウムはプルサーマル又は高速炉にて核燃料として再利用される。

再処理施設で分離されたプルトニウムを長期間保管する場合は、崩壊生成物の存在により組成が変化する。使用済み燃料中に含まれるプルトニウム同位体の存在量の一例を表1.9に示す。表より放射能量で見た場合、 $^{241}\text{Pu}$ の存在割合が高いことがわかる。 $^{241}\text{Pu}$ は半減期14.35年[1.13]で $^{241}\text{Am}$ に壊変するため、時間経過とともに $^{241}\text{Am}$ の存在割合が大きくなる。

その他、放射性同位元素の使用施設においては低エネルギー $\gamma$ 線源や $\alpha$ 線源としてTRUである $^{241}\text{Am}$ や $^{244}\text{Cm}$ が使用されてことがある。

表 1.9 使用済み燃料中に含まれるプルトニウム同位体の存在量※

核種	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$
存在量 (Bq/tU)	$4.6 \times 10^{13}$	$1.1 \times 10^{13}$	$1.5 \times 10^{13}$	$3.1 \times 10^{15}$	$3.0 \times 10^{10}$

※：ORIGEN[1.12]による計算値

(初期濃縮度 4%, PWR 比出力 35MW/tU, 燃焼度, 28GWd/tU, 冷却日数 180day)

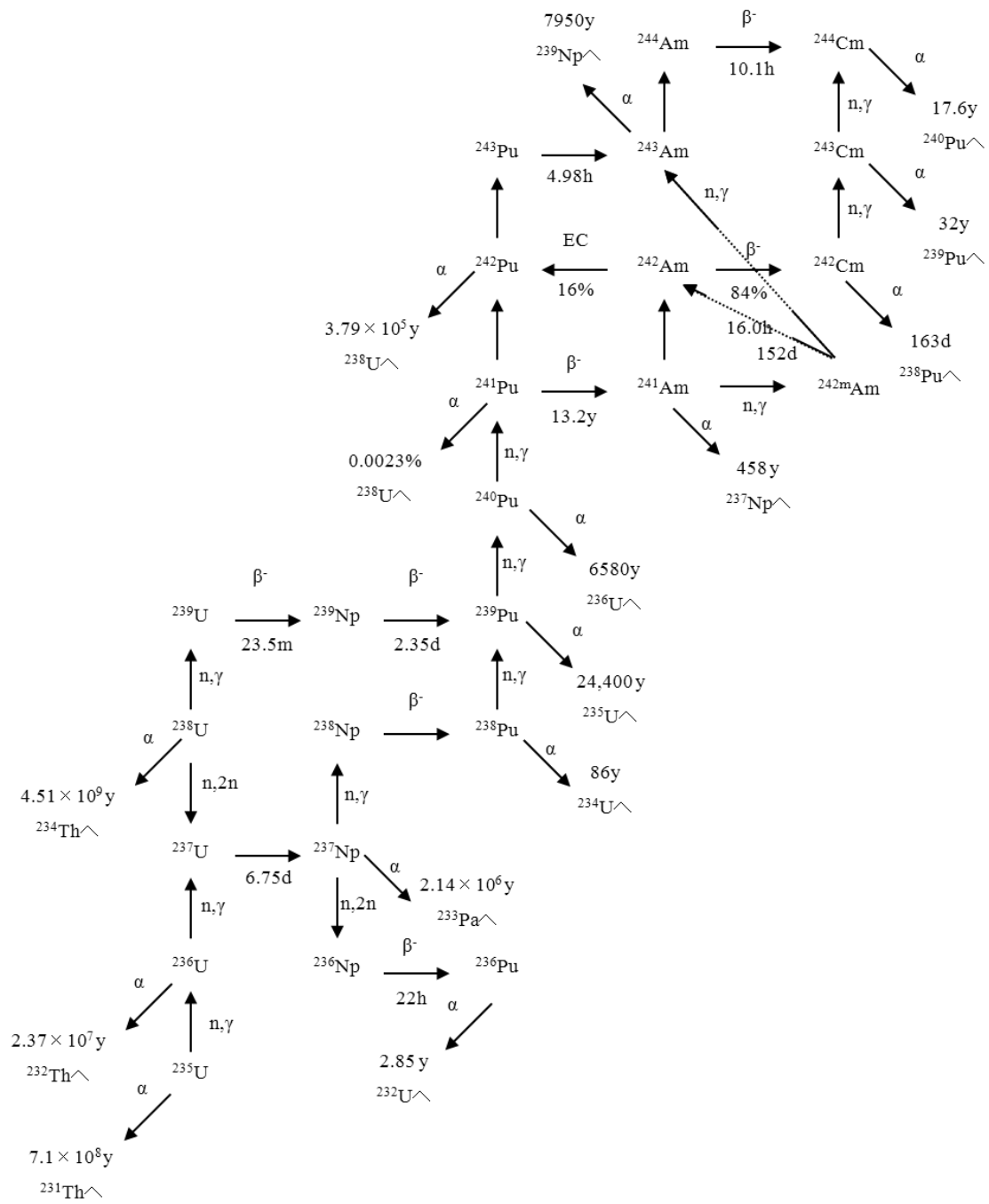


図 1.2 TRU の生成過程



## 1.6.2 超ウラン元素に対する放射線管理

原子力施設等に存在する TRU は  $^{241}\text{Pu}$  を除く全てが  $\alpha$  線放出核種である。そのため、平常時では  $\alpha$  線を測定することで管理を行っている。複数の TRU が存在する可能性がある場合は、最も重要な核種をキー核種として定め、測定された  $\alpha$  線に対して、全量がキー核種であると仮定して管理を行う方法がある [1.7]。キー核種は、内部被ばく時における重篤性（内部被ばく線量係数）や取り扱う放射性物質中における存在比率を考慮して選定される。例えば、日本原子力研究開発機構の東海再処理施設においては、 $^{238}\text{Pu}$  を  $\alpha$  線放出核種の一核種として定め管理を行っている。

TRU に対する放射線管理では、特に内部被ばくに対する防護及び管理が重要となる。これは、 $\alpha$  線放出核種は  $\beta$  線放出核種に比べ内部被ばく線量係数が高く [1.14]、微量の体内摂取においても内部被ばく線量が重篤化しやすいためである。

## 1.6.3 超ウラン元素に対する内部被ばく線量の測定評価

1.4 項にて述べた内部被ばく線量の評価のため特殊モニタリングを TRU に対して実施する場合について述べる。バイオアッセイ法や空气中放射性物質濃度からの評価については、他核種と同様に実施できるが、体外計測法を用いる場合は注意が必要となる。表 1.10 に代表的な TRU として  $^{239}\text{Pu}$  及び  $^{241}\text{Am}$  から放出される LX 線のエネルギー及び放出率を示す [1.15]。プルトニウム同位体は  $\gamma$  線の放出率が著しく低いため、LX 線により元素を同定し、定量しなければならない。しかし、表 1.10 に示す通り LX 線のエネルギー成分は元素単体でも互いに近接して存在しており、さらに他の TRU も類似するエネルギー成分を有している。体外計測法において使用される肺モニタ [1.8] の場合、検出器として Ge 半導体検出器が用いられることが一般的である。図 1.3 に肺モニタの高純度ゲルマニウム (HPGe) 半導体検出器を用いた場合の  $^{239}\text{Pu}$  及び  $^{241}\text{Am}$  混在時のエネルギースペクトルを示す。図より、互いの LX 線成分が重なりあい、明確なピーク弁別が困難であることがわかる。

平常時の内部被ばく線量の測定評価においては、内部被ばくが「ない」ことを確認しており、これは、TRU の LX 線領域においてバックグラウンドを超える有意な計数がないことを以て判断している。しかし、異常時において体外計測法は医療処置の判断に用いられる一次評価として位置づけられているため、TRU の摂取量のある程度の信頼性をもって測定評価する必要がある。現状の肺モニタでは、LX 線領域におけるピーク弁別が困難であるため、作業場所の核種組成や、 $\gamma$  線においてピーク同定が可能な  $^{241}\text{Am}$  の定量結果から間接的に TRU の摂取量を評価している。しかし、体外計測法の信頼性向上や適切な医療処置の実施のためには、肺モニタのピーク弁別精度の向上が望まれる。

表 1.10  $^{239}\text{Pu}$  及び  $^{241}\text{Am}$  の L X 線エネルギー及び放出率[1.15]

L X-ray	$^{239}\text{Pu}$		$^{241}\text{Am}$	
	Energy [keV]	Emission Probability	Energy [keV]	Emission Probability
$L_1$	11.62	0.001163	11.87	0.0104
$L\alpha 1$	13.44	0.00192	13.76	0.017
$L\alpha 2$	13.62	0.01685	13.95	0.149
$L\eta$	15.40	0.000393	15.86	0.00238
$L\beta 6$	15.73	0.000297	16.11	0.00267
$L\beta 15$	16.39	0.000386	16.79	0.0034
$L\beta 2$	16.43	0.00354	16.84	0.0314
$L\beta 4$	16.58	0.00115	17.06	0.0146
$L\beta 7$	16.84	0.000108	17.27	0.001
$L\beta 5$	17.07	0.000741	17.50	0.0065
$L\beta 1$	17.22	0.01395	17.75	0.0837
$L\beta 3$	17.45	0.000998	17.99	0.0123
$L\beta 10$	18.03	0.000053	18.58	0.0007
$L\beta 9$	18.21	0.000079	18.76	0.00103
$L\gamma 5$	19.51	0.000107	20.10	0.00065
$L\gamma 1$	20.17	0.00316	20.78	0.0192
$L\gamma 2$	20.49	0.00031	21.10	0.004
$L\gamma 8$	20.62	0.000027	21.26	0.00017
$L\gamma 3$	20.72	0.000309	21.34	0.0039
$L\gamma 6$	20.84	0.000612	21.49	0.0038
$L\gamma 4$	21.53	0.000151	22.22	0.00193
$L\gamma 13$	21.73	0.000026	22.38	0.00033

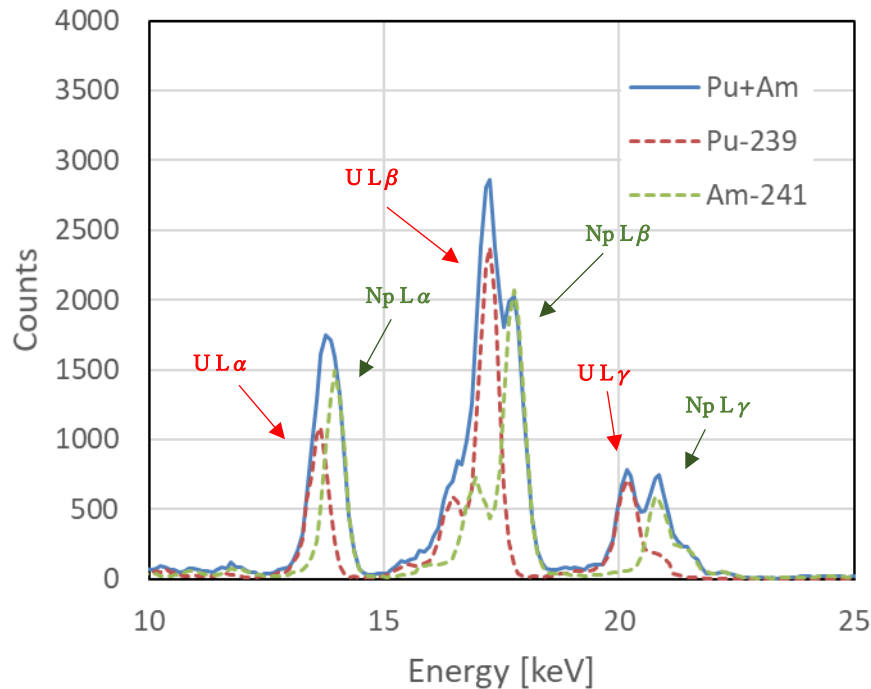


図 1.3  $^{239}\text{Pu}$  及び  $^{241}\text{Am}$  線源混在時の HPGe 半導体検出器におけるスペクトル

## 1.7 超伝導相転移端温度計型マイクロカロリメータ

肺モニタのピーク弁別精度向上のためには、TRU の L X 線領域において高いエネルギー分解能を有する検出器を採用する必要がある。HPGe 半導体検出器を超えるエネルギー分解能を有する検出器として超伝導相転移端温度計 (TES) 型マイクロカロリメータがある。TES 型マイクロカロリメータは超伝導状態から常伝導状態に転移する際の急激な抵抗値の上昇を利用して光子のエネルギーを測定するエネルギー分散型の検出器である。エネルギー分解能は 5.9keV 光子に対して、半値幅で 1.6eV という報告があり [1.16]、これは、HPGe 半導体検出器と比較して遥かに優れている。TES 型マイクロカロリメータは従来 10keV 未満の低エネルギー X 線を対象として研究開発が行われてきた。しかし、近年では、応用研究が活発となり、例えば透過型電子顕微鏡 (TEM) 用 TES 型マイクロカロリメータ等の 10keV を超える光子に対しても十分な感度を有するものについて研究開発が行われている [1.17]。TES 型マイクロカロリメータを、肺モニタをはじめとする TRU-L X 線測定に応用することで、内部被ばく線量評価の信頼性向上が期待される。

## 1.8 本研究の目的

本研究では、TES 型マイクロカロリメータによる TRU の特性 X 線スペクトル計測を原

子炉施設等の異常時における迅速な内部被ばく線量評価への応用することを目的とした。そのために、L X 線に十分な感度を有する TES 型マイクロカロリメータを用いて主要な TRU の L X 線スペクトル計測実験を行い、その結果から TRU 非破壊元素分析の有効性について評価を行った。また、明確にピーク弁別された L X 線を内部被ばく評価に用いるためには L X 線の詳細な放出率の情報が必要となる。そこで、計測実験で得られたエネルギースペクトルから L X 線の放出率の評価を行うとともに、TES 型マイクロカロリメータを用いた L X 線スペクトル計測における定量性の確認を行った。さらに、内部被ばく線量の評価のための肺モニタへの適用及び要求性能について考察を行った。

## 1.9 本論文の構成

本論文は、内部被ばく線量の測定評価のための TES 型マイクロカロリメータによる L X 線測定についてまとめ、さらに肺モニタへの適用における有効性について記載したものである。以下に本論文の構成を示す。

第 2 章では、超ウラン元素を含む核燃料物質等の吸入摂取事故発生時における内部被ばく線量の測定評価手法について述べた。

第 3 章では、TES 型マイクロカロリメータの動作原理と、超ウラン元素の L X 線スペクトル計測用に試作した TES 型マイクロカロリメータの特性について述べた。 $^{241}\text{Am}$  と  $^{239}\text{Pu}$  の樹脂密封型標準線源を用いて、試作した TES 型マイクロカロリメータによる L X 線スペクトル計測の予備実験を行い、エネルギーが 13 keV から 18 keV 領域の主要な L X 線ピークを半値全幅 80 eV 程度のエネルギー分解能で明確に分離できることを確認した。

第 4 章では、試作した TES 型マイクロカロリメータを用いた超ウラン元素 L X 線スペクトル測定実験について述べた。バックグラウンドに大きく寄与をする散乱 X 線の入射事象を低減するため、代表的な超ウラン元素である  $^{244}\text{Cm}$  及び  $^{237}\text{Np}$  の電着型標準線源を冷凍機内の TES 型マイクロカロリメータの近傍に取り付け L X 線スペクトル測定を行った。L X 線検出事象に対応する信号パルスについて最適フィルタ処理及び動作点変動補正を行い、検出信号パルス波高分布を L X 線スペクトルへと変換した。計測で得られた L X 線スペクトルでは、主要な L X 線ピークを半値全幅 80 eV のエネルギー分解能で明確に同定した。この計測で得られた  $^{244}\text{Cm}$  及び  $^{237}\text{Np}$  の L X 線スペクトルのピーク解析により算出した主要な L X 線放出率は文献値と同様の値であり、TES 型マイクロカロリメータで計測した L X 線スペクトルの定量分析への適用性を示した。

第 5 章では、TES 型マイクロカロリメータによる TRU-L X 線スペクトル計測の内部被ばく線量の測定評価への適用可能性について述べた。現実的な核燃料物質を想定した TRU 組成の模擬的 L X 線スペクトルを、TES 型マイクロカロリメータで計測された L X 線スペクトルデータを利用して作成し、主要な L X 線ピークを明確に同定できることを確認することで、内部被ばく線量の測定評価への適用可能性を示した。また、L X 線スペクトル計測実験で

得られた検出効率に基づいて TES 型マイクロカロリメータを使用した肺モニタについて検討し、TRU 測定時の検出限界について示した。さらに、高精度 L X 線分析による肺胸部厚さ測定法を考案し、その妥当性を確認した。

第 6 章では、本論文のまとめと今後の課題、展望について述べた。

## 2 内部被ばく線量の評価方法

### 2.1 防護量と実用量

放射線防護のための量には、「防護量」と「実用量」の2つがある[2.1]。防護量とは、人体の生物学的な影響の観点から定められた量であり、実用量とは測定の見点から定められた量である。表 1.4 に示した線量限度は防護量であるのに対して、線量限度を担保するために測定では実用量を測定することになる。

防護量には実効線量と等価線量がある。等価線量  $H_T$  は、特定の組織又は臓器  $T$  の線量を表す値であり、

$$H_T = \sum_R w_R D_{T,R} \quad (2.1)$$

で与えられる。ここで、 $D_{T,R}$  は組織又は臓器  $T$  が放射線  $R$  から受ける平均吸収線量、 $w_R$  は放射線加重係数である。放射線加重係数とは、放射線の種類による生物学的な影響の違いを補正するための係数であり、表 2.1 の通りとなる[2.2]。等価線量の単位は物理的には J/kg であるが、吸収線量（単位質量あたりの放射線により付与されたエネルギー）と区別するために Sv が用いられる。等価線量は組織又は臓器単体の被ばく線量を表すものであるため、局所的な被ばくが想定されるような場合には等価線量限度について考慮しなければならない。

実効線量  $E$  は放射線による身体全体の線量を表す値であり、等価線量  $H_T$  を用いて、

$$E = \sum_T w_T H_T \quad (2.2)$$

となる。ここで  $w_T$  は組織荷重係数と呼ばれ、組織毎の放射線への感受性を重みづけしている。組織荷重係数の値を表 2.2 に示す[2.2]。実効線量の単位は等価線量と同様の理由で Sv が用いられる。実効線量は身体全体に係る確率的影響の発現リスクを表す尺度となる。式 (2.2) より確率的影響の発現リスクは、単一の組織や臓器に依存するのではなく、身体全体にわたる被ばくにより評価されることがわかる。

実用量には、場のモニタリングのための「周辺線量当量」及び「方向性線量当量」、個人のモニタリングのための「個人線量当量」の3つがある。いずれの量も、人体組織の等価な物体（ファントム）中の「ある深さ」における線量当量として定義される。「ある深さ」は実用量によりどの防護量を評価するかで異なり、実効線量の評価に用いる場合は 1cm、水晶体の等価線量の評価に用いる場合は 3mm、皮膚の等価線量の評価に用いる場合は 70 $\mu$ m となる。実用量の種類と一般的な表記について表 2.3 に示す[2.3]。

表 2.1 放射線荷重係数

放射線の種類	エネルギー	放射線加重係数
光子	全エネルギー	1
電子、 $\mu$ 粒子	全エネルギー	1
中性子	$E < 10\text{keV}$	5
	$10\text{keV} \leq E \leq 100\text{keV}$	10
	$100\text{keV} < E \leq 2\text{MeV}$	20
	$2\text{MeV} < E \leq 20\text{MeV}$	10
	$20\text{MeV} < E$	5
陽子	$2\text{MeV} < E$	5
$\alpha$ 粒子、核分裂片、重原子核	全エネルギー	20

表 2.2 組織荷重係数

組織・臓器	組織加重係数
生殖腺	0.20
赤色骨髄	0.12
結腸	0.12
肺	0.12
胃	0.12
膀胱	0.05
乳房	0.05
肝臓	0.05
食道	0.05
甲状腺	0.05
皮膚	0.01
骨表面	0.01
上記以外のすべて	0.05

表 2.3 実用量の表記

モニタリング対象	実用量の種類	深さ	表記	対応する防護量
場のモニタリング	周辺線量当量	1cm	$H^*(10)$	実効線量
	方向性線量当量	3mm	$H'(3, \Omega)$	水晶体の等価線量
		70 $\mu$ m	$H'(0.07, \Omega)$	皮膚等の等価線量
個人のモニタリング	個人線量当量	1cm	$H_p(10)$	実効線量
		3mm	$H_p(3)$	水晶体の等価線量
		70 $\mu$ m	$H_p(0.07)$	皮膚等の等価線量

## 2.2 預託線量

内部被ばくの場合、体内に取り込んだ放射性物質は、その放射性物質の物理半減期、及び身体の自浄作用（生物学的半減期）に従って減衰する。そのため、内部被ばくの事実を認識したところで、被ばく線量のコントロールができない。そこで、内部被ばく線量の評価には、摂取後の体内残留時間を考慮した被ばく線量として、「預託線量」という考え方が用いられる[2.2]。放射性物質の体内摂取に伴う組織  $T$  の等価線量  $H_T$  は、等価線量率  $H_{Tr}(t)$  の時間積分値  $H_T(\tau)$  で与えられる。

$$H_T = H_T(\tau) = \int_{t_0}^{\tau} H_{Tr}(t) dt \quad (2.3)$$

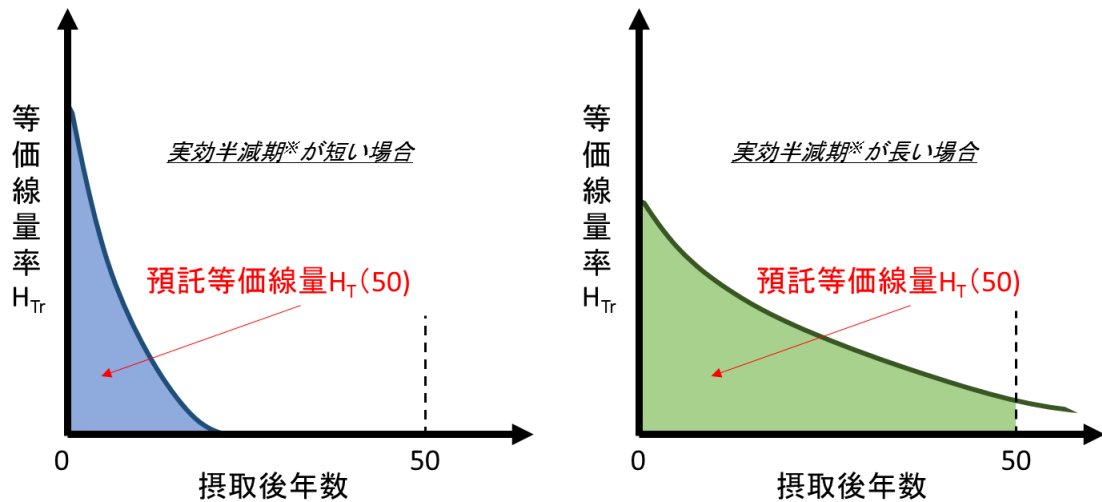
ここで  $\tau$  は摂取後の積算時間を表すが、特に断りがない場合は 50 年（成人）又は 70 年（子供）が用いられる[2.2]。このようにして与えられた  $H_T(\tau)$  を預託等価線量と言い、当該組織の内部被ばくによる等価線量として用いる。 $H_{Tr}(t)$  は物理半減期及び生物学的半減期の両方を考慮した値であり、 $H_T(\tau)$  とは図 2.1 に示すような関係となる。各組織及び臓器の預託等価線量  $H_T(\tau)$  を用いて、預託実効線量  $E(\tau)$  は、

$$E(\tau) = \sum_T w_T H_T(\tau) \quad (2.4)$$

と評価される。 $H_T(50)$  や  $E(50)$  は 50 年経過後の総内部被ばく線量を与えるものであるが、将来的な被ばく線量を、摂取した時期で被ったという概念を取り入れ、摂取した年の内部被ばく線量として評価される。

線量限度は外部被ばくと内部被ばくの区別がないため、実効線量は個人モニタリングによって得られた個人線量当量  $H_T(50)$  と内部被ばくの預託実効線量  $E(50)$  の和によって評価される。





※実行半減期:物理半減期及び生物学的半減期の両方を考慮した半減期

$$\frac{1}{(\text{実効半減期})} = \frac{1}{(\text{物理半減期})} + \frac{1}{(\text{生物学的半減期})}$$

図 2.1 等価線量率と預託等価線量の関係

## 2.3 内部被ばく評価に係る体内動態モデル

### 2.3.1 内部被ばく評価に係る体内動態モデルについて

内部被ばく線量の評価にあたっては、預託線量の考えのもと、放射線物質の体内動態における時間的な変化を考慮しなければならない。しかし、内部被ばくの個々のケース毎に体内動態を評価することは困難である。そこで、ICRP では放射性物質の人体における挙動に関する簡易的な体内動態モデルを提供している[2.4]。一般的には、評価者はこの体内動態モデルを用いて内部被ばくの状況に応じた適切なパラメータを選定し、内部被ばく線量の評価を行う。体内動態モデルへの適用にあたり必要となるパラメータを表 2.4 に示す。内部被ばくの状況によっては、表 2.4 に示したパラメータが未知である場合も想定される。その場合は、安全側の評価という観点で評価結果が最も厳しくなるパラメータが用いられる。

ICRP により与えられる体内動態モデルは、呼吸気道モデルや胃腸管モデルなどの特定の部位に着目したモデルや主要な放射性物質に係る全身性放射能に対するモデルがある。各モデルでは、人体を組織及び臓器ごとのコンパートメントに分け、元素毎にあらかじめ決められたコンパートメント間の移行速度（速度定数）により、時間経過後の組織（臓器）残留量や排泄量を評価する。

表 2.4 ICRP が提供する主要な体内動態モデル

パラメータ	選択肢	影響
元素	適用する元素	全身性放射能に対する体内動態モデルの選定に必要
核種	適用する核種	内部被ばく線量係数[Sv/Bq]に影響
摂取方法	吸入摂取 経口摂取 創傷部汚染	適用する体内動態モデルに影響
吸入速度のタイプ (吸入摂取のみ)	タイプ F タイプ M タイプ S (化学形に応じて適切なタイプを選択)	呼吸気道→血中の移行速度に影響
空気力学的中央径	1 $\mu$ m 又は 5 $\mu$ m	呼吸気道モデルにおける沈着率に影響
f <sub>1</sub> 値 (吸入摂取又は経口摂取のみ)	化学形に応じて適切な値を選択	胃腸管モデルにおける小腸→血中への移行速度に影響

### 2.3.2 呼吸気道モデル

吸入摂取された放射性物質は鼻・口から肺へと続く呼吸気道に侵入する。呼吸気道における挙動は呼吸気道モデルによって記述される[2.5]。呼吸気道モデルでは、吸入した粒子の空気力学的中央径（AMAD）及び呼吸状態をパラメータとしてコンパートメント毎の沈着率を決定する。コンパートメントとしては胸郭外、胸郭内毎に細分化されており表 2.5 の通りとなる。表 2.5 には ICRP の勧告する標準条件（AMAD：5 $\mu$ m、呼吸状態：「軽作業中で鼻呼吸」）[2.4]における沈着率を記載している。各コンパートメントに沈着した放射性物質は、

- イ) 血中に直接移行する。
- ロ) 「変換された状態」を経由して血中に移行する。
- ハ) リンパ節（LN<sub>ET</sub> 又は LN<sub>TH</sub>）を経由して血中に移行する。
- ニ) 繊毛運動によりコンパートメント間を移動し、最終的に咽頭（ET2）に運ばれた後、胃腸管に吸収される。
- ホ) 体外へと排出される（前鼻道（ET1）のみ）。

のいずれかにより血中、胃腸管又は体外に移行する。ロ) の「変換された状態」とは粒子表面の比較的溶けやすい成分が溶解した後の残留物やマクロファージによって取り込まれたものを指す。「変換された状態」を経由する度合いは物質の化学形に依存し、化合物毎に「吸収が早い：タイプ F」、「中位：タイプ M」、「遅い：タイプ S」が設定されている。主要 TRU であるプルトニウムの場合は「不特定の化合物：タイプ M」、「不溶性酸化物：タイプ S」となっており、タイプ S の方が全身への移行が抑えられるため内部被ばく線量が低くなる。

表 2.5 呼吸気道モデルにおけるコンパートメント

コンパートメント		沈着率[%] (AMAD:5 $\mu$ m の場合)
胸郭外	前鼻道 (ET1)	34
	後鼻道、口腔、 咽頭及び喉頭 (ET2)	40
胸郭内	気管及び気管支 (BB)	1.8
	細気管支領域 (bb)	1.1
	肺胞一問質領域 (AI)	5.3

### 2.3.3 胃腸管モデル

吸入された放射性物質は呼吸気道モデルに従って一部が胃腸管へ移行する。胃腸管に移行した放射性物質の挙動は胃腸管モデルによって記述される[2.6]。胃腸管モデルは表 2.6 に示すコンパートメントに分かれている。コンパートメント間の移動は基本的には一方向のみで

あり表中の速度定数 $\lambda$ に従って移行するが、小腸においてのみ、血中に取り込まれる経路と大腸へ移行する経路との分岐がある。そのため、最終的には血中に吸収されるか便として排泄されるかのどちらかとなる。血中に移行する割合は $f_1$ 値というパラメータにより表され、元素の化学形に依存する。プルトニウムの $f_1$ 値は表 2.7 の通りである。

表 2.6 胃腸管モデルにおけるコンパートメント

コンパートメント	速度定数[1/d]
胃 (ST) →小腸 (SI)	24
小腸 (SI) →大腸上部 (ULI)	6
大腸上部 (ULI) →大腸下部 (LLI)	1.8
大腸下部 (LLI) →便 (排泄)	1

表 2.7 プルトニウムの $f_1$ 値

$f_1$ 値	化合物
$5.0 \times 10^{-4}$	不特定の化合物
$1.0 \times 10^{-4}$	硝酸塩
$1.0 \times 10^{-5}$	不溶性酸化物

#### 2.3.4 全身性放射能に対する体内動態モデル

吸入摂取に伴い呼吸気道又は胃腸管を経由して血中に取り込まれた放射性物質の挙動は、全身性放射能に対する体内動態モデルによって記述される[2.7]。全身性放射能に対する体内動態モデルは元素毎に異なる。図 2.2 にプルトニウムの全身性放射能に対する体内動態モデルを示す。血中に取り込まれたプルトニウムは、骨格、腎臓、軟組織、生殖腺及び肝臓へ移行する。骨格へ移行したプルトニウムは骨髓へと移行し、最終的には血液中に再び戻るという循環を繰り返す。体外へと排出される経路は腎臓を経由して尿中に移行する場合と、肝臓を経由して便により排泄される場合の 2 通りとなる。コンパートメント間の速度定数を表 2.8 に示す。表 2.8 において、血中からの骨格や肝臓の移行速度が、その逆の経路の移行速度より大きいことから、プルトニウムは骨格や肝臓に蓄積しやすいことがわかる。なお、全身放

射能に対する体内動態モデルは元素毎に定められているが、他の TRU であるアメリシウム、キュリウム、ネプツニウムはプルトニウムと速度定数のみ異なる同一のコンパートメントが使用される。

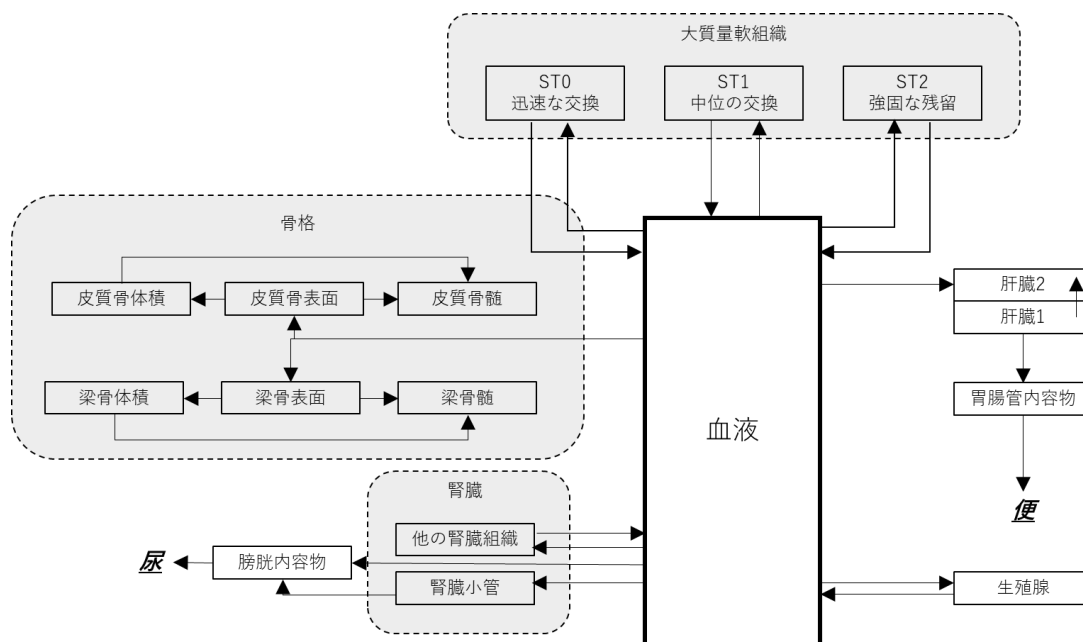


図 2.2 プルトニウムの全身性放射能に対する体内動態モデル

### 2.3.5 体内動態モデルにもとづく内部被ばく線量評価

前項までに記載した体内動態モデルに従って吸入摂取時の体内挙動は記述される。これにより、各組織や臓器における放射性物質の存在量の時間変化があきらかとなるため、式 (2.3) を用いて預託等価線量  $H_T(50)$  を、さらに式 (2.4) を用いて預託実効線量  $E(50)$  を求めることができる。特に、1Bq あたりの  $E(50)$  は内部被ばく線量係数  $e(50)$  [Sv/Bq] と呼ばれ、表 2.4 に記載したパラメータのうち主要なもの ICRP により整備され利用可能となっている [2.8]。つまり評価者は適切なパラメータを選択し、それに対応する  $e(50)$  と摂取量 [Bq] を用いることで、直ちに内部被ばく線量を算出することができる。表 2.9 に TRU の内部被ばく線量係数を示す。

体内動態モデルにもとづく経過時間ごとの肺残留率、尿排出率及び便排出率についても ICRP により提供されているため [2.7]、これを用いて摂取量を評価する。例えば吸入摂取に対する特殊モニタリングの方法として肺モニタを実施した場合は、肺モニタにより定量した放射エネルギーを肺残留率で除することで摂取量が得られる。ただし、肺残留率は摂取から測定ま

での経過時間に対応する値を選定しなければならない。同様にバイオアッセイを行った場合は、排泄率で除することで摂取量が得られる。図 2.3 に肺残留率及び便排泄率の一例として<sup>239</sup>Pu の残留率排泄率曲線を示す。

表 2.8 プルトニウムの全身性放射能に対する体内動態モデルにいける速度定数

経路	速度定数[1/d]	経路	速度定数[1/d]
ST0 <sup>a</sup> →血液	$6.93 \times 10^{-1}$	皮質骨表面 →皮質骨体積部	$4.11 \times 10^{-5}$
ST1 <sup>a</sup> →血液	$4.75 \times 10^{-4}$	梁骨表面→梁骨髄	$4.93 \times 10^{-4}$
ST2 <sup>a</sup> →血液	$1.90 \times 10^{-5}$	梁骨体積部 →梁骨髄	$4.93 \times 10^{-4}$
梁骨骨髄→血液	$7.60 \times 10^{-3}$	皮質骨表面 →皮質骨髄	$8.21 \times 10^{-5}$
皮質骨髄→血液	$7.60 \times 10^{-3}$	皮質骨体積部 →皮質骨髄	$8.21 \times 10^{-5}$
腎臓（その他の組織）→血液	$1.39 \times 10^{-3}$	血液→ 腎臓（その他の組織）	$3.23 \times 10^{-3}$
肝臓 2→血液	$2.11 \times 10^{-4}$	血液→肝臓 1	$1.941 \times 10^{-1}$
睪丸→血液	$1.90 \times 10^{-4}$	肝臓 1→肝臓 2	$1.77 \times 10^{-3}$
卵巣→血液	$1.90 \times 10^{-4}$	血液→睪丸	$2.30 \times 10^{-4}$
血液→ST0	$2.773 \times 10^{-1}$	血液→卵巣	$7.10 \times 10^{-5}$
血液→ST1	$8.06 \times 10^{-2}$	肝臓 1→SI <sup>b</sup>	$1.33 \times 10^{-4}$
血液→ST2	$1.29 \times 10^{-2}$	血液→ULI <sup>c</sup>	$1.29 \times 10^{-2}$
血液→梁骨表面	$1.941 \times 10^{-1}$	血液→腎臓（尿細管）	$6.47 \times 10^{-3}$
血液→皮質骨表面	$1.294 \times 10^{-1}$	血液→膀胱	$1.29 \times 10^{-2}$
梁骨表面 →梁骨体積部	$2.47 \times 10^{-4}$	ST1→膀胱	$4.75 \times 10^{-4}$
		腎臓（尿細管） →膀胱	$1.386 \times 10^{-2}$

<sup>a</sup>ST:軟組織、<sup>b</sup>SI:小腸、<sup>c</sup>ULI:大腸上部

表 2.9 TRU の内部被ばく線量係数

核種	タイプ	経口摂取 $e(50)$ [Sv/Bq]	吸入摂取 $e(50)$ [Sv/Bq]
$^{238}\text{Pu}$	M	$2.3 \times 10^{-7}$	$3.0 \times 10^{-5}$
	S	$8.8 \times 10^{-9}$	$1.1 \times 10^{-5}$
$^{239}\text{Pu}$	M	$2.5 \times 10^{-7}$	$3.2 \times 10^{-5}$
	S	$9.0 \times 10^{-9}$	$8.3 \times 10^{-6}$
$^{240}\text{Pu}$	M	$2.5 \times 10^{-7}$	$3.2 \times 10^{-5}$
	S	$9.0 \times 10^{-9}$	$8.3 \times 10^{-6}$
$^{241}\text{Am}$	M	$2.0 \times 10^{-7}$	$2.7 \times 10^{-5}$
$^{244}\text{Cm}$	M	$1.2 \times 10^{-7}$	$1.7 \times 10^{-5}$
$^{237}\text{Np}$	M	$1.1 \times 10^{-7}$	$1.5 \times 10^{-5}$

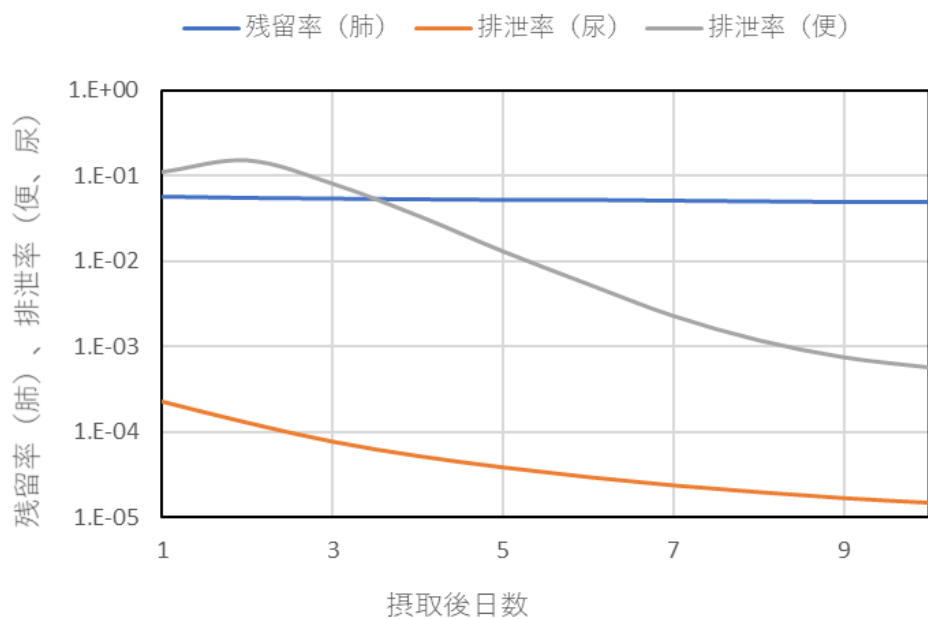


図 2.3  $^{239}\text{Pu}$  吸入摂取 (タイプ M) 肺残留率及び便・尿排泄率

## 2.4 肺モニタによる TRU 測定について

### 2.4.1 肺モニタについて

内部被ばくが疑われる事象が発生した場合は、迅速な一次評価により、被ばく線量の推定

及び治療計画の立案・実効が必要となる。特に、取り込んだ物質が TRU である場合は、取り込み直後のキレート剤投与の有効性が確認されているため[2.9]、一次評価に用いられる手法において、迅速性は非常に重要な性能となる。

肺モニタは、吸入摂取時における内部被ばく評価手法で有効とされている機器である。一般的な肺モニタでは検出器として検出効率の良好な HPGe 検出器が用いられる[2.10]。この HPGe 半導体検出器複数台を 1 セットとし、肺全面部を覆うような形で配置される。被測定者は、横になるか、椅子に座るなど、身体への負荷が少ない姿勢に保たれ、測定を実施する。TRU を対象とした場合の検出限界はおおむね表 2.10 のようになる。肺モニタの外観を図 2.4 に示す。

表 2.10 肺モニタにおける典型的な検出下限値

核種	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{244}\text{Cm}$	$^{237}\text{Np}$
検出下限 [Bq]	$1 \times 10^3$	$2 \times 10^3$	20	$2 \times 10^3$	500



(a) 外観 (全体)



(b) 検出器

図 2.4 肺モニタ外観

#### 2.4.2 肺モニタによる内部被ばく評価

肺モニタによる内部被ばく評価の一例について記載する。肺モニタ自体は、十分な検出限界を担保するため、重厚な鉄室内で運用されることが一般的であり、さらに高価な HPGe 半導体検出器を用いているため、日本国内で配備されている施設は非常に少数である。そのた



め、測定・評価における知見が少なく、現状では統一的な規格などが存在していない。ここでは、肺モニタの運用方法の一例として、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ける肺モニタについて述べることとする[2.11]。

肺モニタによる測定手法は、一般的な $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって行われる。核燃料取扱施設において、肺モニタによる評価が期待されるのは、TRU の吸入又は経口摂取事故である。TRU 元素吸入摂取時の測定・評価フローの一例を図 2.5 に示す。まずは、事故時には非密封状態の TRU 元素を取り扱っていた可能性が高いため、厳密なる身体サーベイを行う。身体サーベイにより身体又は被服に汚染が確認された場合は、適切な除染設備を用いた除染や、着替えを行い、体外に汚染が付着していない状態とする。その後、鉄室内にて $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより体内（主に肺内）から放出される光子の検出を行う。被測定者への身体及び精神的な負荷や、検出限界を考慮して決定されるが、30 分測定が一般的である。TRU 元素のうち、 $\gamma$ 線放出核種である  $^{241}\text{Am}$  や  $^{237}\text{Np}$  はそれぞれの $\gamma$ 線により核種の定性・定量が行われるが、Pu 同位体や  $^{244}\text{Cm}$  はいずれの核種も $\gamma$ 線の放出率が低いため[2.12]、特性 X 線、特に比較的放出率の大きな L X 線により定性・定量がなされる[2.4]。特性 X 線の放出過程としては以下の通りとなる。

- ①  $\alpha$  壊変により、娘核種の原子核の励起状態へと遷移する
- ② 励起エネルギーが原子の周りの電子に付与される（内部転換）
- ③ エネルギーを付与された電子が原子から放出される（内部転換電子）
- ④ 放出された電子により作られた空の電子軌道に、外殻から電子が遷移する
- ⑤ 遷移の結果、内殻と外殻のエネルギー差に相当するエネルギーを有する特性 X 線が放出される

L X 線とは、④において作られる空孔が L 殻である場合を言う。なお、②においては $\gamma$ 線が競合過程となっている。肺モニタで測定対象とするのは、TRU 元素の $\alpha$ 壊変に付随する X 線であるため、娘核種の特性 X 線（L X 線）となる。各 TRU の L X 線のエネルギー範囲及び放出率を表 2.11 に示す[3.2]。なお、

肺モニタ測定において L X 線を対象とする場合は、これらのエネルギーが近接しており、HPGe 半導体検出器では弁別が困難である。そのため、複数成分を加味した領域を ROI（Region of Interest：関心領域）として設定し、定量性を担保している。ただし、複数核種が存在している場合は、単純なスペクトル解析では問題が生じる。複数核種が存在する状況として考えられるのが、ある程度の年数が経過した Pu 含有燃料（例えば MOX 燃料）の場合である。この場合、燃料中にある  $^{241}\text{Pu}$ （半減期約 14 年）の娘核種として  $^{241}\text{Am}$  が生成されるが、その強度が他の Pu 同位体と同等程度となる可能性がある。図 2.6 に ORIGEN[2.13]により取得した一般的な使用済み燃料における Pu 同位体及び他の TRU ( $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ ) の放射線エネルギー及び L X 線強度比の経年変化を示す。なお、L X 線強度比については、Pu 同位体を 1 として規格化を行っている。肺モニタ測定により Pu 同位体を定量しようとしたところで、 $^{241}\text{Am}$  の L X 線が妨害核種として存在してしまうため、ROI を設定した単純なスペクトル解

析では過大評価をしてしまうおそれがある。そのため、 $^{241}\text{Am}$  の 59.4keV の  $\gamma$  線により  $^{241}\text{Am}$  の定量した後、L X 線領域の ROI における寄与を評価し、当該 ROI から差し引くことで Pu 同位体の定量を行う方法（寄与係数法）[2.14]がある。また、L X 線領域におけるピーク強度が同等程度であれば、ピークの裾部での重なりはあっても、ピーク自体の判別が可能となるため、この場合は複数ピークによる関数適合[2.15]により定量することも可能である。しかし、他の TRU 元素である  $^{237}\text{Np}$  や  $^{244}\text{Cm}$  が存在している場合は、スペクトル成分が複雑化し、関数適合による評価における信頼性について十分な結果が得られないおそれがある。その他、工程情報等により Pu/Am 比が既知である場合は、これにより L X 線領域のピーク面積から Pu 寄与分を求める方法もある。

表 2.11 TRU から放出される L X 線のエネルギー及び放出率

線源	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{244}\text{Cm}$	$^{237}\text{Np}$
娘核種	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{237}\text{Np}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{234}\text{Pa}$
エネルギー [keV]	11.619~ 20.714	11.619~ 20.714	11.619~ 20.714	11.62~ 21.73	11.89~ 22.2	12.125~ 21.984	11.368~ 20.113
放出率[%]	10.63	4.66	10.34	8.71	37.66	8.92	59.7

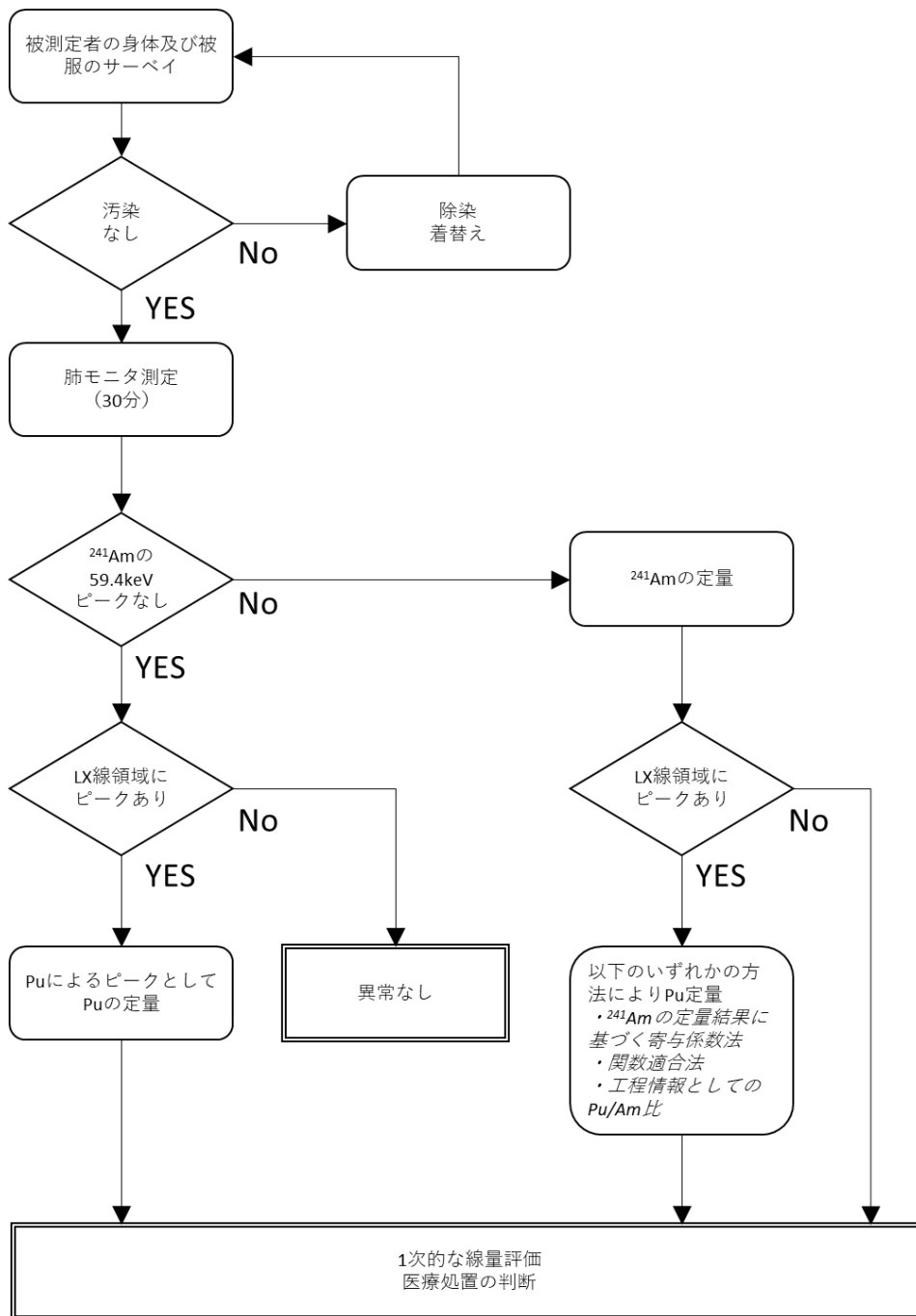
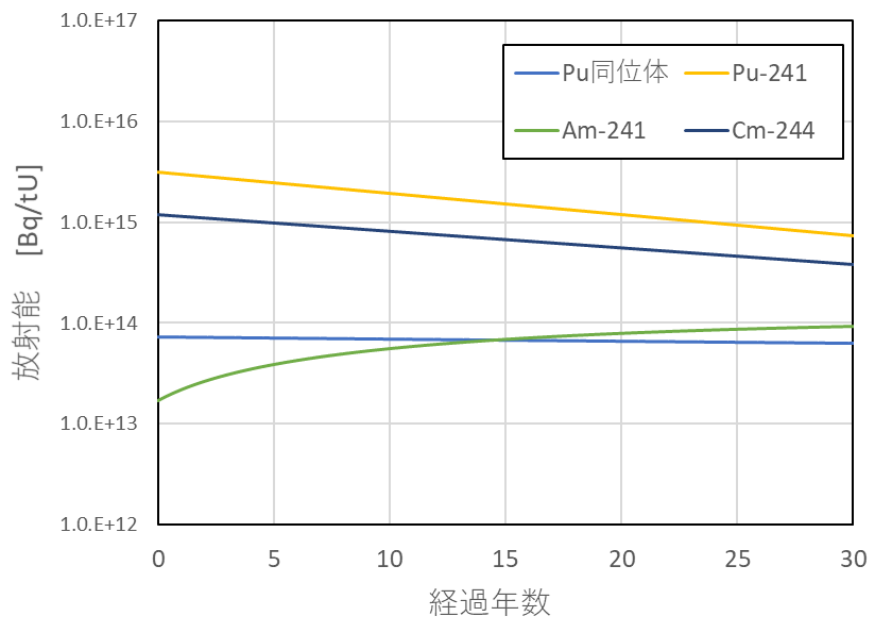
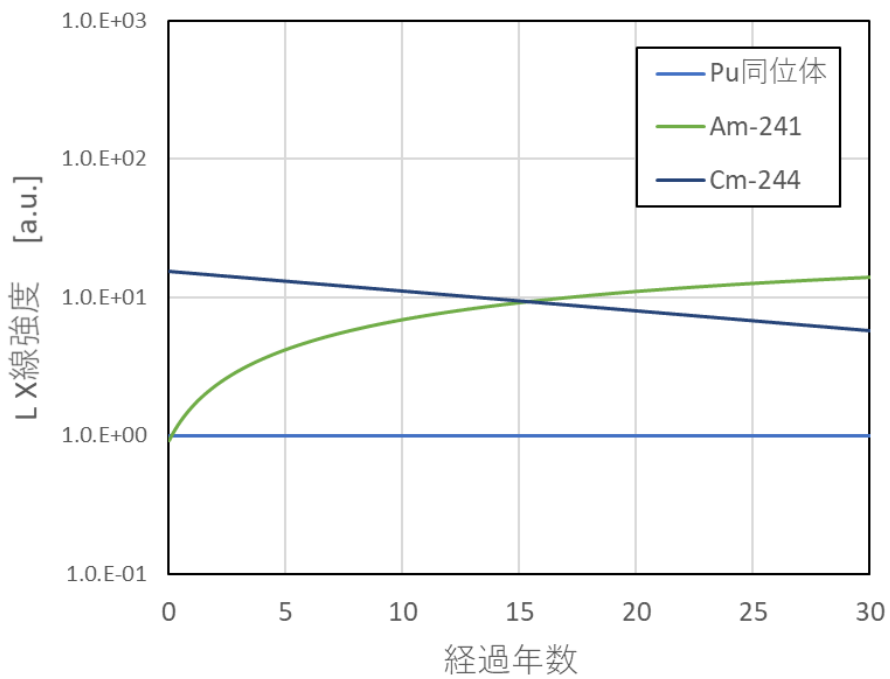


図 2.5 肺モニタによる測定評価フローの一例



(a) 放射能の経年変化



(b) L X 線強度比の経年変化

図 2.6 使用済み燃料中の TRU 組成の経年変化

### 2.4.3 胸部厚さの補正

肺モニタにおける測定結果から肺内に存在する TRU 元素を評価する場合、身体組織による減弱を考慮しなければならない。低エネルギーの L X 線の場合は、身体組織による減弱の影響が顕著となるため、この評価は非常に重要である。日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所の場合、過去に研究所内従業員の胸部厚さの測定評価を行っており、平均的な胸部厚さを 2.3cm としている [2.16]。しかし、体格の差による胸部厚さの広がり約 1.5cm ~ 3.5cm であり、平均的な値からのずれが大きい。胸部厚さが 0.1cm 変化すると、 $^{241}\text{Am}$  を測定対象とした場合の計数効率が約 3% 変化するため、胸部厚さの評価を行い、その結果によって効率補正を行っている。胸部厚さの評価方法としては Fry らによる身長及び体重をパラメータとした方法 [2.17] を採用している。これによると、身長  $H[\text{inch}]$  及び体重  $W[\text{pond}]$  における胸部厚さ  $CWT[\text{inch}]$  は

$$CWT = -0.1 + 1.072 \times \left(\frac{W}{H}\right) \quad (2.5)$$

の関係があるものとしている。式(2.5)を用いることで、胸部厚さの評価において標準誤差  $\pm 0.26\text{mm}$  が得られたとの報告がされている [2.16]。

被測定者は肺モニタ測定にあわせて、身長及び体重を測定し、胸部厚さの評価結果から効率補正を行い、内部取り込み量を算定する。補正の方法は、あらかじめ、ファントム等により胸部厚さ毎の効率曲線を取得し、評価した胸部厚さに応じた効率を用いる。効率曲線の一例として、米国ローレンスリバモア国立研究所 LLNL ファントム [2.18] 及び肺形状線源 (図 2.7) を用いて取得した効率曲線を図 2.8 に示す。なお、LLNL ファントムでは、厚さ及び密度が異なる胸部プレートが付属しており、このプレートを任意に選択することで、胸部厚さ毎の効率が評価できる。図に示した例では、脂肪 50%、筋肉 50% の密度を有する厚さ 1.60cm、2.25cm、2.77cm、3.30cm、3.91cm のプレートにより効率曲線を取得した。



図 2.7 LLNL ファントム (左) 及び肺形状線源 (右)

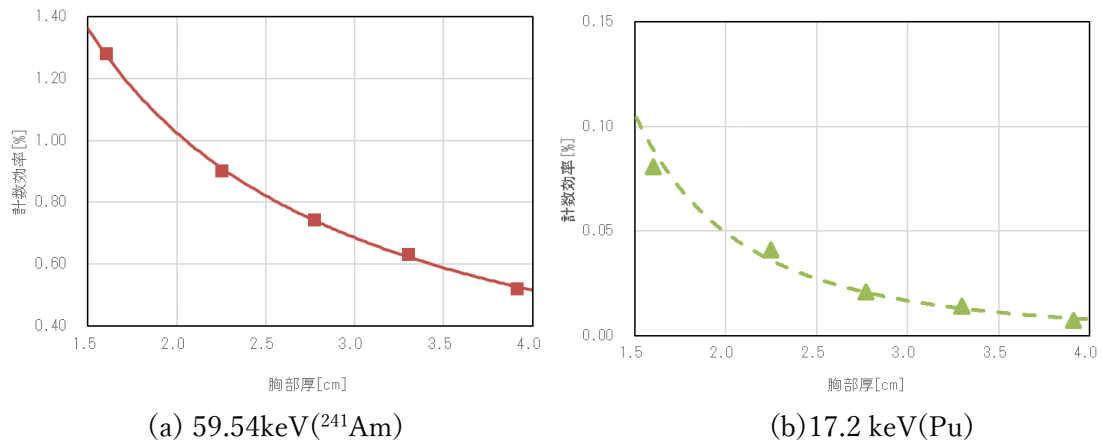


図 2.8 胸部厚さによる効率の変化

#### 2.4.4 肺モニタによる測定結果からの内部被ばく評価

前項までの方法で、被測定者の体内に存在する TRU 元素の量を算定した後、摂取からの経過時間を考慮して、内部被ばく線量の評価を行う。評価には ICRP による体内動態モデルの結果として得られる肺中残留率を用いる。仮に測定による肺内の TRU 元素量が  $A_{lung}$  Bq とすると、体内摂取量  $A_{in}$  Bq は肺中残留率  $r(t)$  を用いて、

$$A_{in} = \frac{A_{lung}}{r(t)} \quad (2.6)$$

となる。ここで  $t$  は吸入から肺モニタ測定までの経過時間を表す。肺中の残留率は時間経過とともに変化するため、厳密には測定開始から測定終了までの間の変動を考慮しなければならないが、30分程度の測定であれば、一定であるとみなすことができるため、一般的には、測定期間中の補正は行わない。体内摂取量が求まったら、これに内部被ばく線量係数を乗ずることで内部被ばく線量の算定を行う。測定により複数の核種が検出された場合は、各核種の総和により内部被ばく線量を算定する。2.3項にて述べた通り、肺中残留率や内部被ばく線量係数はAMADや化学形により異なる値となるため、吸入時に取り扱っていた放射性物質の情報を取得し、適切なパラメータを設定する必要がある。

## 2.5 TES型マイクロカロリメータを肺モニタに適用した場合の優位性

TES型マイクロカロリメータは非常に高いエネルギー分解能を有するエネルギー分散型のX線検出器である。これを肺モニタに適用することで、HPGe半導体検出器では、ピーク弁別できなかったLX線を弁別することが期待される。

Pu同位体に $^{241}\text{Am}$ が混在している場合、HPGe半導体検出器による測定では両核種のLX線成分が重なり合う(図1.3参照)。この場合、取得したスペクトルから $^{241}\text{Am}$ の有無については、 $\gamma$ 線を確認することで容易に判断することができる。ここからPu同位体の有無を判断する場合は、LX線領域において、 $^{241}\text{Am}$ 単体時よりもピーク強度が高いことを確認しなければならない。しかし、これは、単純なスペクトル解析では、判断することが困難であり、専門的な知識や経験が必要となる。最も重大な過誤としては、Pu同位体を見逃すことである。表1.10に示した通り、Pu同位体LX線放出率は $^{241}\text{Am}$ のLX線放出率に比べ1/3から1/6程度である。一方、内部被ばく線量換算係数は、両核種とも同等である。Pu同位体と $^{241}\text{Am}$ から放出されるLX線が同等の強度において、Pu同位体を見逃してしまった場合、内部被ばく線量に換算して、1/4程の過小評価となってしまふ。これを逆に考えると、 $^{241}\text{Am}$ と同等の内部被ばく線量に相当するPu同位体からは、 $^{241}\text{Am}$ から放出されるLX線の1/3程度の強度のLX線しか放出されないということである。

TES型マイクロカロリメータで両核種から放出されるLX線を明確にピーク弁別することで、Pu同位体ピークの見逃しを防ぐことが可能となり、内部被ばく線量評価における信頼性の向上が見込まれる。なお、これは、他のTRU核種が混在している場合についても同様のことが言える。

### 3 L X線測定用 TES 型マイクロカロリメータ

#### 3.1 TES 型マイクロカロリメータ

##### 3.1.1 マイクロカロリメータ

マイクロカロリメータの概念図を図 3.1 に示す。マイクロカロリメータは吸収体及び温度計で構成されており、吸収体にて放射線を吸収しそのエネルギー熱へと変換した後、これに伴い生じるわずかな温度変化を温度計で読み取る。放射線エネルギーを  $E$ [J]、吸収体の熱容量を  $C$ [J/K]、温度変化  $\Delta T$ [K] とすると

$$\Delta T = \frac{E}{C} \quad (3.1)$$

となる。この温度変化は熱伝導度  $G$ [W/K] を持つ熱リンクを介して冷熱浴へと伝わり再び定常状態に戻る。

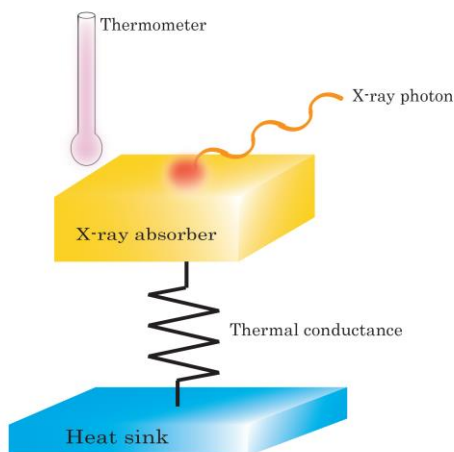


図 3.1 マイクロカロリメータ概念図

##### 3.1.2 マイクロカロリメータのエネルギー分解能

マイクロカロリメータのエネルギー分解能は素子自身の熱力学的な揺らぎによって決定される。マイクロカロリメータ内のフォノン数を  $N$  とすると、

$$Nk_B T \approx C_V T \quad (3.2)$$

となる。このとき、フォノン数の揺らぎ  $\Delta U$  は

$$\Delta U \approx \sqrt{N} k_B T = \sqrt{k_B T^2 C_V} \quad (3.3)$$



となる。ここで  $k_B$  はボルツマン定数 ( $=1.38 \times 10^{-23}$  [J/K])、 $C_V$  [J/K] は定積熱容量、 $T$  [K] は温度である。これによりマイクロカロリメータのエネルギー分解能は以下の通りとなる。

$$\Delta E_{FWHM} = 2.355 \xi \sqrt{k_B T^2 C_V} \quad (3.4)$$

ここで  $\xi$  は温度計の特性に由来するパラメータを示す。式(3.4)より、マイクロカロリメータのエネルギー分解能は素子自身の温度と熱容量によって決定される。ゆえにマイクロカロリメータの動作温度を低くする、又は熱容量を小さくする (=素子を小さくする) ことで優れたエネルギー分解能が期待できる。

### 3.2.2 TES 型マイクロカロリメータの構造

超伝導相転移端温度計 (TES : Transition Edge Sensor) は X 線吸収体で得られた熱エネルギーを温度変化として読み取る。TES は超伝導状態と常伝導状態における相転移領域を利用しており、図 3.2 のようにわずかな温度変化によって急激な電気抵抗の変化が起こる。この急峻な勾配は TES の感度  $\alpha$  として扱われており、

$$\alpha \equiv \frac{d \log R}{d \log T} = \frac{T}{R} \frac{dR}{dT} \quad (3.5)$$

で定義される。ここで  $R$  [Ω] は TES の電気抵抗、 $T$  [K] は TES の温度となる。この感度  $\alpha$  が大きいほどより優れたエネルギー分解能が期待できる。半導体を用いた温度計と比べ TES は 100 倍以上の感度を有する [3.1]。

TES は 2 層薄膜で構成されており、薄膜の厚さを変えることで、超伝導転移温度をコントロールすることが可能である [3.2]。式(3.4)より、転移温度が低い程エネルギー分解能が良好となるが、冷凍機的能力により現実的に達成可能な極低温が制限されるため、100mK~200mK の転移温度を有するように設計される。

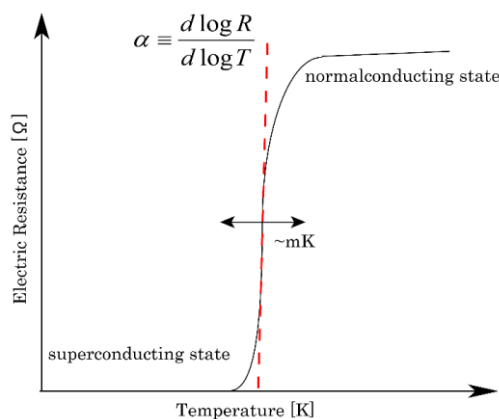


図 3.2 TES の相転移領域

### 3.1.3 TES型マイクロカロリメータの熱的応答

TES型マイクロカロリメータは光子の吸収に伴う微小温度変動 $\Delta T$ を超伝導-常伝導転移端における急激な抵抗値の変動として検出する。TESの熱容量を $C$ 、TES-冷熱浴間の熱伝導度を $G$ とすると

$$C \frac{d\Delta T}{dt} = -G\Delta T \quad (3.6)$$

となる。これより、

$$\Delta T = \Delta T_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_0}\right) \quad (3.7)$$

となる。ここで $T_0$ は時間 $t=0$ のときの温度上昇の値で、減衰時定数 $\tau_0$ は、

$$\tau_0 = \frac{C}{G} \quad (3.8)$$

となる。これより、TES型マイクロカロリメータにより検出された信号パルス形状は熱容量と熱伝導度に依存する。

### 3.1.4 電熱フィードバック

TES型マイクロカロリメータの安定的な動作には電熱フィードバックが利用される。TES型マイクロカロリメータに定電圧 $V_b$ を印加した場合、光子吸収に伴う温度上昇によりTESの抵抗値が上昇する。TESにおける発熱 $P_{TES}$ は

$$P_{TES} = \frac{V_b^2}{R_{TES}} \quad (3.9)$$

となるため、光子吸収に伴い $P_{TES}$ は減少する。これにより、温度上昇に対して負のフィードバックを与えられることになり、素早い応答が可能となる。実際には図3.3のように定電流源を用い、TESと並列にシャント抵抗を接続することで擬似的な定電圧バイアスにより動作させる。

電熱フィードバックが動作している場合、動作点(定常状態)におけるTESの温度を $T_0$ 、抵抗値を $R_0$ とすると、発熱 $P_b$ は式(3.9)と同様に、

$$P_b = \frac{V_b^2}{R_0} \quad (3.10)$$

となる。定常状態においては、発熱 $P_b$ と除熱 $P_{ex}$ が釣り合っている状態となる。除熱はTES-冷熱浴間でのみ発生しうるので、冷熱浴温度 $T_s$ 及び1Kにおける熱伝導度 $G_0$ を用いて、

$$P_b = P_{ex} = \frac{G_0}{n} (T_0^n - T_s^n) \quad (3.11)$$

となる。なお、 $G_0$ と  $G$ は、

$$G = G_0 T^{n-1} \quad (3.12)$$

の関係にある。 $n$ はカロリメータと冷熱浴との間の熱抵抗に熱抵抗に依存する定数で、カピツア抵抗が支配的なら  $n=3,4$  程度、電子格子相互作用が弱い場合は  $n=5,6$  程度となる。

光子吸収後のカロリメータの温度を  $T$ とし、温度変化を  $\Delta T (=T-T_0)$  とすると、

$$C \frac{dT}{dt} \cong \frac{V_b^2}{R(T_0)} - \frac{G_0}{n} (T^n - T_s^n) \quad (3.13)$$

となる。この式を一次近似すると、

$$C \frac{d(\Delta T + T_0)}{dt} = C \frac{d\Delta T}{dt} = \frac{V_b^2}{R(T)} \Delta R - G_0 T^{n-1} \Delta T \quad (3.13)$$

$$= -\frac{P_b \alpha}{T} \Delta T - G \Delta T \quad (3.14)$$

となる。この解は、

$$\Delta T = \Delta T_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{eff}}\right) \quad (3.15)$$

となる。ただし、 $\tau_{eff}$ は

$$\tau_{eff} \equiv \frac{C}{G} \frac{1}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}} \quad (3.16)$$

であり、電熱フィードバックが動作しているときの実効的な減衰時定数を表す。式 (3.11) 及び式 (3.12) を用いると  $\tau_{eff}$ は、

$$\tau_{eff} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n} \left(1 - \left(\frac{T_s}{T}\right)^n\right)} \quad (3.17)$$

と表すことが可能である。冷熱浴温度  $T_s$ が TES 温度  $T$ より十分に低い場合、式 (3.17) は次のように表すことができる。

$$\tau_{eff} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n}} \approx \frac{n}{\alpha} \tau_0 \quad (3.18)$$

TES の感度 $\alpha$ は定数  $n$ に比べて十分に大きいため、 $\tau_{eff}$ は  $\tau_0$ に比べ 1/100 以下となることが見込まれる。電熱フィードバックの他の利点として、動作点の設定は TES に印加するバイアス電圧により行うことができるため、動作点の保持及び設定に特別な措置を講じなくて良い点あげられる。

定電圧状態である場合 TES 抵抗値の変化は TES に流れる電流値の変化  $\Delta I(t)$ として読みだされる。

$$\begin{aligned} \Delta I(t) &= \frac{V_b}{R(T_0 + \Delta T(t))} - \frac{V_b}{R(T_0)} \\ &\approx -\frac{\Delta R(t)}{R(T_0)} I_{TES}(t) \end{aligned}$$

$$\approx -\alpha \frac{E}{CT(t)} I_{TES}(t) \quad (3.19)$$

上式では、 $R(T_0) \gg \Delta R(t)$ を用いて近似している。ここで、 $I_{TES}(t)$ は時間  $t$  経過後の TES に流れる電流を表す。

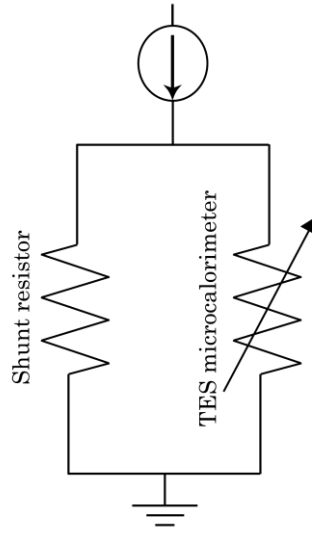


図 3.3 疑似的な定電圧バイアス

### 3.1.5 TES 型マイクロカロリメータの固有の雑音

TES 型マイクロカロリメータには温度計の熱抵抗とサーマルリンクから生じる熱抵抗に起因する固有のノイズがある。これらはジョンソンノイズとフォノンノイズと呼ばれ、以下に述べる性質を持っている。

ジョンソンノイズとは抵抗を有する回路には必ず生じる雑音であり、

$$\Delta V_j = \sqrt{4k_B T R \Delta f} \quad (3.20)$$

$$\Delta I_j = \sqrt{\frac{4k_B T \Delta f}{R}} \quad (3.21)$$

で表される。ここで  $\Delta f$  は周波数帯域を示す。

電熱フィードバックが動作している場合、ジョンソンノイズによる電流スペクトル密度  $\delta I_j^2$  [ $A^2/Hz$ ] は次のように表される。

$$\delta I_j^2 = \frac{4k_B T}{R} \left( \frac{1}{L_0 + 1} \right)^2 \frac{1 + \omega^2 \tau_0^2}{1 + \omega^2 \tau_{eff}^2} \quad (3.22)$$

$$= \frac{4k_B T}{R} \left( \frac{1}{L_0 + 1} \right)^2 \quad (w \ll \tau_0^{-1}) \quad (3.23)$$

$$\text{or } = \frac{4k_B T}{R} \quad (w \ll \tau_{eff}^{-1}) \quad (3.24)$$

ここで  $L_0$  は体系のオープンループゲインを表し、

$$L_0 = \frac{P_b \alpha}{GT} \quad (3.25)$$

となる。これより、 $w \ll \tau_0^{-1}$  を満たす周波数領域ならば電熱フィードバックによりジョンソンノイズが抑制され、一方、 $w \ll \tau_{eff}^{-1}$  の周波数領域ではジョンソンノイズは抑制されないことがわかる。

フォノンノイズは有限の熱伝導度に起因する熱揺らぎを表す。熱揺らぎ  $\Delta P_{ph}$  は、

$$\Delta P_{ph} = \sqrt{4k_B T^2 G \Gamma \Delta f} \quad (3.26)$$

と表される。ここで  $\Gamma$  は、

$$\Gamma = \frac{n}{2n+1} \frac{1 - \theta^{-(2n+1)}}{1 - \theta^{-n}} \quad (3.27)$$

となる。ただし、 $\theta = T/T_s$  である。このとき電流スペクトル密度  $\delta I_{ph}^2$  は次のように表される。

$$\begin{aligned} \delta I_{ph}^2 &= \frac{1}{V_b^2} \left( \frac{L_0}{L_0 + 1} \right)^2 \frac{1}{1 + w^2 \tau_{eff}^2} \delta P_{ph}^2 \\ &= \frac{4k_B G T^2 \Gamma}{V_b^2} \left( \frac{L_0}{L_0 + 1} \right)^2 \frac{1}{1 + w^2 \tau_{eff}^2} \end{aligned} \quad (3.28)$$

これより、 $w \gg \tau_{eff}^{-1}$  の周波数領域ではフォノンノイズが抑制されることがわかる。

以上のことから、 $w \ll \tau_{eff}^{-1}$  を満たす周波数領域ではフォノンノイズ、 $w \gg \tau_{eff}^{-1}$  を満たす周波数領域ではジョンソンノイズが支配的になることがわかる。

### 3.1.6 固有のエネルギー分解能

式 (3.22) 及び式 (3.28) の和  $\delta P$  を電流応答度  $S_I(\omega)$  で表すと次のようになる。

$$\delta I^2 = 4k_B T P_b \frac{1 + w^2 \tau_0^2}{L^2} |S_1|^2 + 4k_B T P_b \Gamma \frac{\alpha}{L} |S_1|^2 \quad (3.29)$$

ただし、 $S_I(\omega)$  は、

$$\begin{aligned} S_1(\omega) &\equiv \frac{\delta I}{\delta P} \\ &= -\frac{1}{V_b} \frac{L(\omega)}{1 + L(\omega)} \end{aligned} \quad (3.30)$$

とである。ここで  $L(\omega)$  は体系のループゲインとなり、

$$L(\omega) \equiv \frac{L_0}{1 + i\omega\tau_0} \quad (3.31)$$

と表せる。これによりノイズ等価パワー（NEP）は次のようになる。

$$\begin{aligned} NEP(\omega)^2 &= \left| \frac{\delta I}{S_1} \right|^2 \\ &= 4k_B T P_b \left( \frac{1 + \omega^2 \tau_0^2}{L_0^2} + \frac{\alpha \Gamma}{L_0} \right) \end{aligned} \quad (3.32)$$

また、これを周波数空間で表すと、

$$NEP(f)^2 = 4k_B T P_b \left( \frac{1 + (2\pi f)^2 \tau_0^2}{L_0^2} + \frac{\alpha \Gamma}{L_0} \right) \quad (3.33)$$

となる。

固有のエネルギー分解能  $\Delta E_{rms}$  は、

$$\Delta E_{rms} = \left( \int_0^\infty \frac{4df}{NEP^2(f)} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (3.34)$$

となるため、これに式 (3.33) を代入して、

$$\Delta E_{rms} = \sqrt{\frac{4k_B T^2 C \sqrt{1 + \alpha \Gamma L_0}}{\alpha L_0}} \quad (3.35)$$

が得られる。ここで、 $\xi$  を

$$\xi \equiv 2 \sqrt{\frac{1}{\alpha L_0} \sqrt{1 + \alpha L_0 \Gamma}} \quad (3.36)$$

と定義すると、半値幅で表されるエネルギー分解能  $\Delta E_{FWHM}$  は、

$$\Delta E_{FWHM} = 2.355 \xi \sqrt{k_B T^2 C} \quad (3.37)$$

となる。仮に  $T_s \ll T$  ならば、 $\Gamma \sim 1/2$ 、 $P_b \sim GT/n$ 、 $L_0 \sim \alpha/n$  となり

$$\xi \equiv 2 \sqrt{\frac{\sqrt{n/2}}{\alpha}} \quad (3.38)$$

となるため、感度  $\alpha$  を大きくすることで優れたエネルギー分解能が期待できる。

### 3.1.7 読み出し回路

TES の急激な抵抗値変動は TES に流れる電流の変化として出力される。従って、信号読み出しには、この電流値を低ノイズ、高感度で読み出すことができる電流計が必要となる。TES 型マイクロカロリメータの読み出しには一般的に超伝導量子干渉素子 (SQUID) 増幅器が用

いられる [3.5]。SQUID 増幅器は TES と同様に超伝導を利用した磁気センサーであり、TES 型マイクロカロリメータとは電流を磁束に変換するための入力コイルを介して接続される。SQUID 増幅器はリング状の超伝導体により構成されており、リング中にジョセフソン接合を 1 つ有する高周波型の rf-SQUID 増幅器と 2 つ有する直流型の dc-SQUID 増幅器に大別される。dc-SQUID 増幅器の方が感度が高いため、TES 型マイクロカロリメータの読み出しには dc-SQUID 増幅器が用いられる。

dc-SQUID 増幅器は図 3.4 に示すように、超伝導リングに 2 つのジョセフソン接合が並列に配置されている。図中の上から下に臨界電流を超える電流  $I$  を流す場合を考える。このとき、左右に流れる電流  $I_1$  及び  $I_2$  は、左右のジョセフソン接合が等価であるとする、

$$I_1 = I_c \sin \varphi_1 \quad (3.39)$$

$$I_2 = I_c \sin \varphi_2 \quad (3.40)$$

となる。超伝導リングの上から下に流れる電流は、左右の電流の和となるため、

$$\begin{aligned} I &= I_1 + I_2 = I_0 \sin \varphi_1 + I_0 \sin \varphi_2 \\ &= 2I_0 \cos\left(\frac{\varphi_1 - \varphi_2}{2}\right) \sin\left(\frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2}\right) \end{aligned} \quad (3.41)$$

となる。

ここで、 $\theta$  をクーバー対の巨視的波動関数の位相とし  $\nabla \theta$  を図中に示した積分路 C に沿って周回積分すると、 $2\pi n$  ( $n$ : 整数) になる。すなわち、

$$\oint_C \nabla \theta ds = 2\pi n = (\vartheta_b - \vartheta_a) + (\vartheta_c - \vartheta_b) + (\vartheta_d - \vartheta_c) + (\vartheta_a - \vartheta_d) \quad (3.42)$$

となる。第 1, 3 項はジョセフソン接合を横切った位相差であるから、ゲージ不変位相差の式

$$\varphi = \vartheta_1 - \vartheta_2 - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_1^2 A(r, t) ds \quad (3.43)$$

を用いて、

$$\vartheta_b - \vartheta_a = -\varphi_1 - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_a^b A ds \quad (3.44)$$

$$\vartheta_d - \vartheta_c = -\varphi_2 - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_c^d A ds \quad (3.45)$$

となる。一方、第 2, 4 項は超伝導体内部の位相差である。磁界は熱力学的臨界磁界  $H_C$  より十分小さく、秩序パラメータ  $|\Psi|$  の空間的变化が無視できるとして、

$$\Psi = |\Psi| \exp\{i\theta(r)\} \quad (3.46)$$

のように、空間的に一様な  $|\Psi|$  と空間的に変化する位相  $\theta(r)$  を用いた記述が可能である。この場合、電流密度  $J_S$  は、 $f = \Psi/\sqrt{n_s}$  ( $n_s$ : 電子対密度) を用いると、

$$J_S = \frac{n_s(-e^*)}{m^*} |f|^2 (\hbar \nabla \theta + e^* A) \quad (3.47)$$

ここで  $\Lambda = m^*/n_s|f|^2e^{*2}$ 、 $\Phi_0 = h/2e = 2.07 \times 10^{-15}$  [Wb] とすると、

$$\vartheta_c - \vartheta_b = \int_b^c \nabla\theta \cdot ds = -\frac{2\pi}{\Phi_0} \int_b^c \Lambda J \cdot ds - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_b^c A \cdot ds \quad (3.48)$$

$$\vartheta_a - \vartheta_d = \int_d^a \nabla\theta \cdot ds = -\frac{2\pi}{\Phi_0} \int_d^a \Lambda J \cdot ds - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_d^a A \cdot ds \quad (3.49)$$

式(3.44)、(3.45)、(3.48)、(3.49)を式(3.42)に代入すると

$$\varphi_2 - \varphi_1 = 2\pi n + \frac{2\pi}{\Phi_0} \oint_C A \cdot ds + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_d^a \Lambda J \cdot ds + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_b^c \Lambda J \cdot ds \quad (3.50)$$

超伝導線の太さが磁束侵入深さ  $\lambda$  ( $10^{-5} \sim 10^{-6}$  cm) よりはるかに大きいとすると、 $J_s=0$  ととってよい。また、 $A$  の積分は積分路  $C$  内の磁束  $\Phi$  に等しい。したがって、

$$\varphi_2 - \varphi_1 = 2\pi n + \frac{2\pi\Phi}{\Phi_0} \quad (3.51)$$

となり、式(3.41)に代入すると

$$I = 2I_c \cos\left(\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right) \sin\left(\varphi_1 + \frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right) \quad (3.52)$$

また、図 3.4 の超伝導リングのインダクタンスを  $L$  とすると全磁束は、外部から加えられた磁束  $\Phi_{ext}$  と、ループを流れる電流によって作られた磁束の和で与えられる。ここで、電流  $I_1$ 、 $I_2$  を次のように表わす。

$$I_1 = \bar{I} + I_{cir} \quad (3.53)$$

$$I_2 = \bar{I} - I_{cir} \quad (3.54)$$

ここで、 $\bar{I}$  は平均電流とし、 $I_{cir}$  は循環電流とする。平均電流は磁束を生じないが循環電流は磁束を生じるため、これを  $LI_{cir}$  とする。

したがって、全磁束  $\Phi$  は

$$\begin{aligned} \Phi &= \Phi_{ext} + LI_{cir} \\ &= \Phi_{ext} + \frac{LI_c}{2} (\sin\varphi_1 - \sin\varphi_2) \\ &= \Phi_{ext} + LI_c \sin\left(\frac{\varphi_1 - \varphi_2}{2}\right) \cos\left(\frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2}\right) \end{aligned} \quad (3.55)$$

となる。ここで、式(3.51)を用いると

$$\Phi = \Phi_{ext} - LI_c \sin\left(\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right) \cos\left(\varphi_1 + \frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right) \quad (3.56)$$

となる。よって、式(3.52)、(3.56)を解くことにより SQUID の振る舞いを求めることができる。

ここで、循環電流が無視できるとして、与えられた  $\Phi_{ext}$  に対して式(3.52)を  $\varphi_1$  について極大をとることにより、 $I_{max}$  を数値的に求めると、



$$I_{max} = 2I_c \left| \cos \left( \frac{\pi \Phi_{ext}}{\Phi_0} \right) \right| \quad (3.57)$$

となる。これより  $I_{max}$  は周期  $\Phi_0$  で変化することがわかる。

この素子にバイアス電流  $I_B$  を流すと  $I_B > I_{max}$  で電圧が出始める。つまり有限の磁束に対しては臨界電流が減少し、ジョセフソン接合に電位差が生じることから、磁束の変化を電圧の信号として読み出すことができる。常伝導トンネルの抵抗値を  $R$  とすると、

$$V = R \sqrt{I_B^2 - I_{max}^2} \quad (3.58)$$

となり、これに式(3.57)を代入し、 $I_B \approx 2I_c$  とすると

$$V \approx 2RI_c \left| \sin \left( \frac{\pi \Phi_{ext}}{\Phi_0} \right) \right| \quad (3.59)$$

と表わせる。

式 (3.59) からわかるように、SQUID の応答は磁場に対して周期的となる。よって、実用上は、SQUID に任意の磁場をかけ、感度の高い点に固定し、被検出電流に伴う出力上昇を打ち消すようなフィードバックコイルを付属させる。これにより、SQUID の動作点を固定しつつ、被検出電流の大きさに応じたフィードバック電流から、広いダイナミックレンジのもとで被検出電流に応じた値を得ることができる。このような制御系を Flux Locked Loop(FLL)と言う。

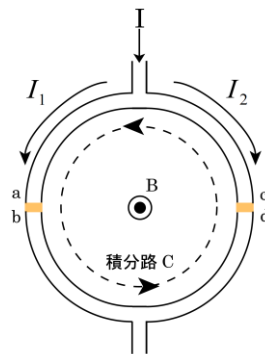


図 3.4 dc-SQUID の構造

### 3.1.8 最適フィルタ法

TES 型マイクロカロリメータによる X 線スペクトル計測では、原理的には非常に優れたエネルギー分解能が期待できる。しかし、実際に TES 型マイクロカロリメータから読み出される X 線検出信号は、3.1.6 項にて述べた固有の雑音の他に、3.1.7 項に記載したような読み出し系を含む測定環境に起因する雑音が存在するため、エネルギー分解能が想定よりも悪化する。

る。よって、これらの雑音の影響を最小限にするため、最適フィルタ処理[3.6]と呼ばれるデジタルフィルタリング処理により、エネルギー分解能の悪化を低減させる方法が用いられる。以下に最適フィルタの詳細について記載する。

まず、信号の形を  $V(t) = E_0 f(t)$  と仮定する。ここで、 $f(t)$  は既知で  $E$  に独立な関数である。既知のスペクトル密度  $e_n(f)$  のランダム雑音がある中で、 $E_0$  の最適な値を見積もる必要がある。スペクトルが周波数依存性を持つ場合、異なる時間ビンの雑音は相関があるためこの計算は時間空間では困難である。しかし、周波数空間では異なる周波数ビンの雑音は相関がない。 $i$  番目の周波数ビンの信号振幅  $s_i$  を得るために  $V(t)$  の離散フーリエ変換をとる。各ビンの雑音電圧の平均二乗は  $n_i$  で与えられる。各  $s_i$  は  $E_0$  に比例するので、雑音に相関がなければ各ビンで信号の大きさについて独立な計算結果が得られる。

各ビンの重みを  $w_i$  とすると信号は

$$E = \sum_{i=1}^{\infty} (w_i s_i) \quad (3.60)$$

となり、雑音は、

$$\Delta E_{rms} = \left\{ \sum_{i=1}^{\infty} (w_i n_i)^2 \right\}^{1/2} \quad (3.61)$$

となる。最適なフィルタを得るためには  $E/\Delta E$  の値を最大にする  $w_i$  を選択する必要がある。ここで、 $k$  番目の任意の周波数ビンの重み  $w_k$  について考える。 $E/\Delta E$  において  $w_k$  に対する微分をとると、

$$\frac{d}{dw_k} \left( \frac{E}{\Delta E} \right) = \frac{s_k \Delta E - \frac{E}{\Delta E} w_k n_k^2}{\Delta E^2} \quad (3.62)$$

となる。 $E/\Delta E$  が最大となる点はこれの極値を求めれば良いため、式 (3.62) の左辺を 0 とすると、

$$w_k = \frac{s_k \Delta E^2}{n_k^2 E} = \frac{s_k \sum_{i=1}^{\infty} (w_i n_i)^2}{n_k^2 \sum_{i=1}^{\infty} (w_i s_i)} \quad (3.63)$$

となる。 $s_i$  は一般に複素数である。 $E/\Delta E$  の分母は  $w_i$  の絶対値にのみ依存するので、 $w_i$  の位相は分子を最大にするように選択出来る。これはすべての項を実数にすることで達成されるので

$$w_i = \frac{\hat{s}_i}{n_i^2} \quad (3.64)$$

ここで、 $\hat{s}_i$  は  $s_i$  の共役な複素数である。これにより、 $E$  は純粋な  $\cos$  関数の足しあわせになり、フィルタが掛かった信号は時間空間で常に  $t=0$  にピークを持つ。次にフーリエ変換の規格化を行う。フーリエ変換と逆変換は以下のように表される。

$$H(t) = \int_{-\infty}^{\infty} h(f) e^{-i2\pi f t} df \quad (3.65)$$

$$h(f) = \int_{-\infty}^{\infty} H(t) e^{i2\pi ft} dt \quad (3.66)$$

検出器への入力を $E_0P(t)$ として、そのフーリエ変換を

$$\int_{-\infty}^{\infty} E_0P(t) e^{i2\pi ft} dt = E_0P(f) \quad (3.67)$$

と仮定する。検出器の応答関数を $S_V$ とすると、出力電圧スペクトルは

$$v(f) = E_0S_V(f)p(f) = E_0s(f) \quad (3.68)$$

となる。式(3.68)の最適フィルタは $\hat{s}(f)/e_n^2(f)$ なので、フィルタがかけられた信号は

$$v_{filt}(f) = E_0 \frac{\hat{s}(f)s(f)}{e_n^2(f)} \quad (3.69)$$

となる。これを時間空間で書くと

$$V_{filt}(t) = E_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{s}(f)s(f)}{e_n^2(f)} e^{-i2\pi ft} df \quad (3.70)$$

又は、

$$V_{filt}(0) = E_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{s}(f)s(f)}{e_n^2(f)} df = 2E_0 \int_0^{\infty} \frac{|s(f)|^2}{e_n^2(f)} df \quad (3.71)$$

となる。ここで、2つ目の積分は、 $s(f)$ が時間空間において実数関数なのでその変換 $|s(-f)|^2 = |s(f)|^2$ であることを利用した。 $V_{filt}(0)$ は信号振幅の最適な計算結果である。(実際フィルタ係数は任意の規格化がなされており、エネルギー校正は既知のピークのエネルギーを用いて行われる)。式(3.71)に、

$$\int_{-\infty}^{\infty} x(f)\hat{y}(f)df = \int_{-\infty}^{\infty} x(t)\hat{y}(t)dt \quad (3.72)$$

で表されるパーセバルの定理[3.7]を適用すると

$$V_{filt}(0) = \int_{-\infty}^{\infty} V(t)T(t)dt \quad (3.73)$$

が得られる。ここで、

$$T(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{s}(f)}{e_n^2(f)} e^{-i2\pi ft} df \quad (3.74)$$

であり、これは最適フィルタテンプレートと呼ばれる。式(3.73)は、離散的なデータ点に対しては

$$V_{filt}(0) = \sum_i V_i(t)T_i(t) \quad (3.75)$$

と表わすことができる。ただし、 $V_i(t)$ 及び $T_i(t)$ はそれぞれ離散化された検出信号データとテンプレートである。実際の測定において $s(f)$ は、検出信号を平均しフーリエ変換することで、 $e_n^2$ は雑音のデータを周波数空間で平均することで得られる。

フィルタがかかった雑音は

$$e_{n-filt}(f) = \frac{\hat{s}(f)e_n(f)}{e_n^2(f)} = \frac{\hat{s}(f)}{e_n(f)} \quad (3.76)$$

である。これは異なる周波数では相関がないので、二乗の絶対値をとると、

$$\langle V_{n-filt} \rangle = \int_0^\infty \frac{|s(f)|^2}{e_n^2(f)} df \quad (3.77)$$

となり、 $t=0$  を含むどの時間でも平均二乗の揺らぎが計算できる。これを式(3.71)の  $V_{filt}$  で割ることで、 $E_0$  を 1 とするエネルギー単位に規格化することが出来る。

$$\langle \Delta E^2 \rangle = \frac{\int_0^\infty \frac{|s(f)|^2}{e_n^2(f)} df}{\left(2 \int_0^\infty \frac{|s(f)|^2}{e_n^2(f)} df\right)^2} = \frac{1}{4 \int_0^\infty \frac{|s(f)|^2}{e_n^2(f)} df} = \frac{1}{4 \int_0^\infty \frac{|S_V(f)|^2 |p(f)|^2}{e_n^2(f)} df} \quad (3.78)$$

検出時に入射 X 線のエネルギーが瞬時に吸収されると仮定すると  $P(t)$  は  $t=0$  でデルタ関数になり、 $p(f) = 1$  となる。NEP =  $e_n(f)/S_V(f)$  という定義から式(3.78)は

$$\Delta E_{rms} = \left( \int_0^\infty \frac{4df}{NEP^2} \right)^{-1/2} \quad (3.79)$$

になる。瞬時のエネルギー吸収の仮定は成立しないこともあるので、より一般的な式(3.78)もまた有用である。

## 3.2 LX線測定用 TES型マイクロカロリメータ

### 3.2.2 本研究で使用した TES型マイクロカロリメータ

本研究で使用する TES 型マイクロカロリメータは、10~25keV の LX 線を十分な効率で検出可能であり、なおかつエネルギー分解能が 100eV 以下である必要がある。これらの条件を満たすため、厚さ 5 $\mu$ m の Au を吸収体として用いた LX 線用 TES 型マイクロカロリメータ (以下、「LX-TES」) を試作した。5 $\mu$ m の Au 吸収体を用いた場合の X 線吸収効率を図 3.5 に示す。これにより、対象とする LX 線に対して、35~80%の吸収効率により検出することができる。また、TES 型マイクロカロリメータでは、入射光子の光電ピークを用いて核種の定性・定量を行う。本研究では 10~25keV の光子を対象といるため、最大で 25keV 程度の光電子の発生が考えられる。25keV の運動エネルギーを有する光電子の Au 中の飛程は Tabata らの半経験式[3.3]を用いて 0.5 $\mu$ m 程度と見積ることができるため、厚さ 5 $\mu$ m において、十分な光電ピークを形成する事が可能である。

試作した LX-TES の写真を図 3.6 に示す。吸収体 Au の大きさは 150 $\mu$ m $\times$ 150 $\mu$ m、温度計部分は 350 $\mu$ m $\times$ 350 $\mu$ m の Au と Ti の二層構造となっている。Au と Ti の厚さは、それぞれ 50nm、120nm である。Ti の超伝導転移温度は約 0.39K であるが、常伝導物質である Au と二層構造にすることで、転移温度を下げる事ができる[3.4]。本研究で開発した TES では転移温度が約 200mK となる。LX-TES の横断面図を図 3.7 に示す。温度計はブリッジ状の窒化シ

リコンの薄膜上に配置されている。これにより、吸収体で得られた熱による温度変化に対して温度計で確認できる程度の弱い熱伝導度を得ることができる。配線には 1.2K で超伝導になる Al を用いた。

また、本研究では、TRU-L X 線に関する幅広い知見を得るために、実績のある他の TES 型マイクロカロリメータとして電子顕微鏡用に開発されたマッシュルーム形状の吸収体を搭載した TES 型マイクロカロリメータ（以下、「TES-m」）についても使用した。TES-m は L X-TES と同様に厚さ  $5\mu\text{m}$  の Au を吸収体として用いているため、TRU-L X 線に対して十分な吸収効率を有する。TES-m の構造を図 3.8 に示す。吸収体の形状は、前述の通りマッシュルーム形状をしており、TES-吸収体間の熱伝導の経路を制限することができる。これにより、吸収位置による信号パルスのばらつきが抑制されることが期待される。表 3.1 に本研究で使用した TES 型マイクロカロリメータについてまとめた。

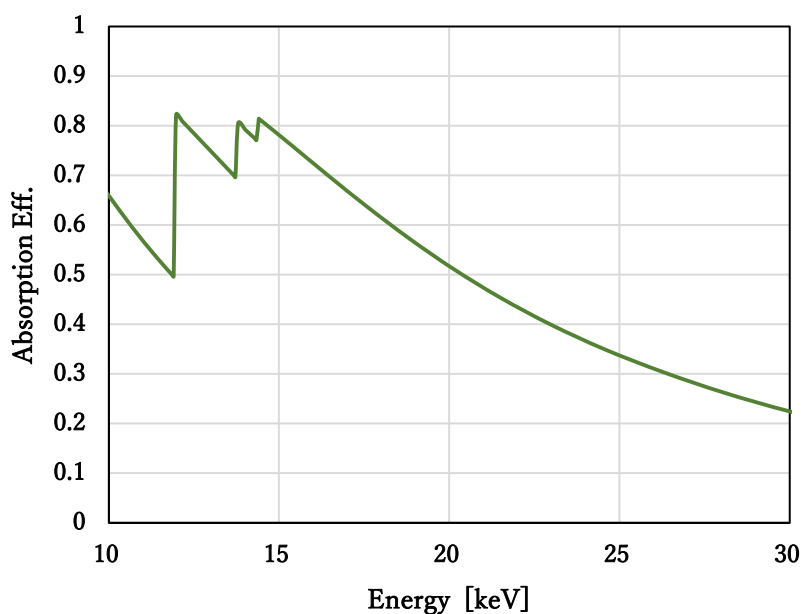


図 3.5 Au 吸収体の吸収効率

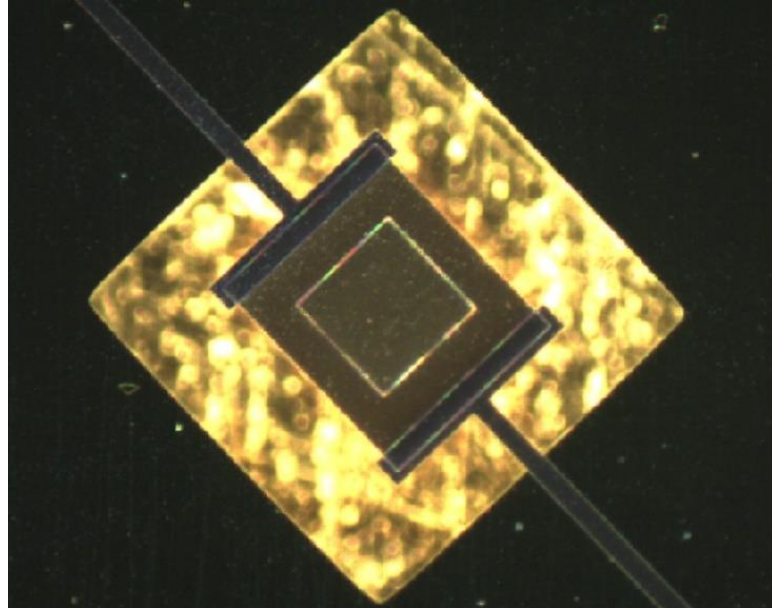


図 3.6 L X 線測定用 TES 型マイクロカロリメータ

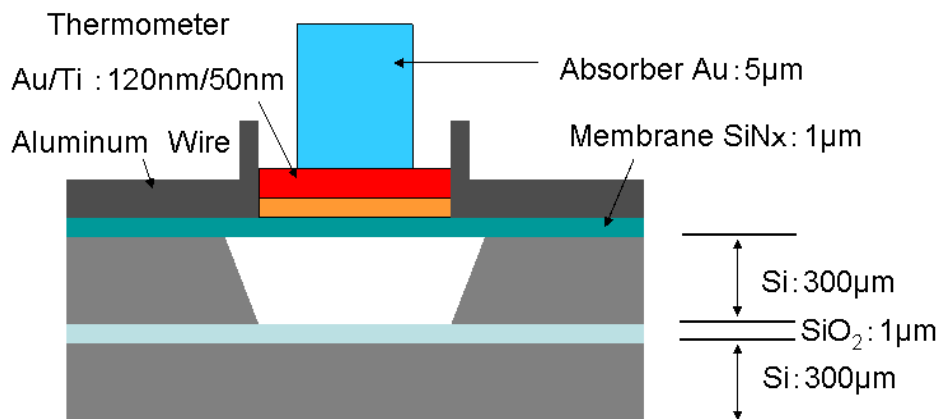


図 3.7 L X - TES 断面図

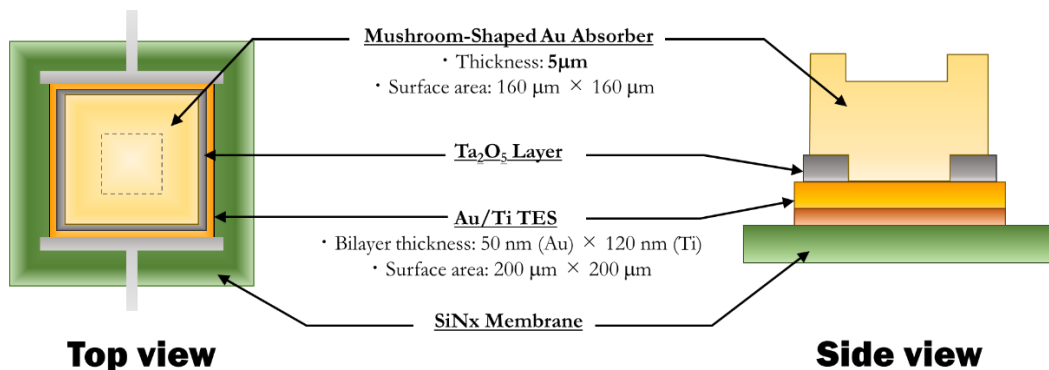


図 3.8 TES-m 構造図

表 3.1 本研究で使した TES 型マイクロカロリメータ

		L X-TES	TES-m
吸収体	厚さ	Au : 5μm	
	面積[μm <sup>2</sup> ]	150 × 150	160 × 160
TES	厚さ	Au/Ti : 50/120 nm	
	面積[μm <sup>2</sup> ]	350 × 350	200 × 200
吸収体形状		立方体	マッシュルーム形

### 3.2.3 L X-TES 及び TES-m の特性

TES の動作温度を決めるためには、TES の温度と電気抵抗値の関係から、超伝導転移温度を調べる必要がある。そこで、TES の電気抵抗温度依存性 (R-T 特性) を測定した。

図 3.9 に TES 型マイクロカロリメータの測定回路を示す。測定回路にバイアス電流  $I_b$  を流した場合、TES と並列にシャント抵抗が接続されているため、TES とシャント抵抗の各抵抗値 ( $R_{TES}$  及び  $R_s$ ) の逆数に比例した電流がそれぞれに流れる。TES 及びシャント抵抗に流れる電流をそれぞれ  $I_{TES}$  及び  $I_s$  とすると、その和は  $I_b$  となるため、オームの法則より、

$$R_{TES} = \left( \frac{I_b}{I_{TES}} - 1 \right) R_s \quad (3.80)$$

となる。 $I_{TES}$  は TES と直列に接続した入力コイルを介した SQUID 増幅器の出力  $V_{out}$  から、 $I_{TES} = \eta V_{out}$  により得られる。ここで、 $\eta$  は SQUID 増幅器の電圧電流変換係数であり、本測定において既知である。また、 $R_s$  も回路設計の時点で既知であるため、これらの値を用いて  $R_{TES}$  を得ることができる。よって、温度は冷熱浴の温度コントローラによって制御し、バイアス電

流を通电した時の SQUID 増幅器出力から TES 抵抗値を測定した。なお、バイアス電流は TES 自身の自己発熱による温度変動の影響を抑制するために十分に低い値として  $10\mu\text{A}$  に設定した。

本研究で開発した LX-TES 及び TES-m の RT 特性を図 3.10 に、RT 曲線から得られた温度-感度特性 ( $\alpha T$  特性) を図 3.11 にそれぞれ示す。また、表 3.2 に両 TES の超伝導転移温度、相転移幅及び常伝導抵抗値をまとめる。LX-TES に比べ TES-m の方が、転移温度が低く急峻な RT 特性となっている。よって、TES-m の方が高いエネルギー分解能を有していることが予想される。また、常伝導抵抗値についても両者には大きな違いがみられる。常伝導抵抗値は Au 吸収体が支配的となるが、TES-m の方は吸収体と TES の接触面積が小さいため、電気伝導性が低くなり、常伝導抵抗が上昇したものと考えられる。

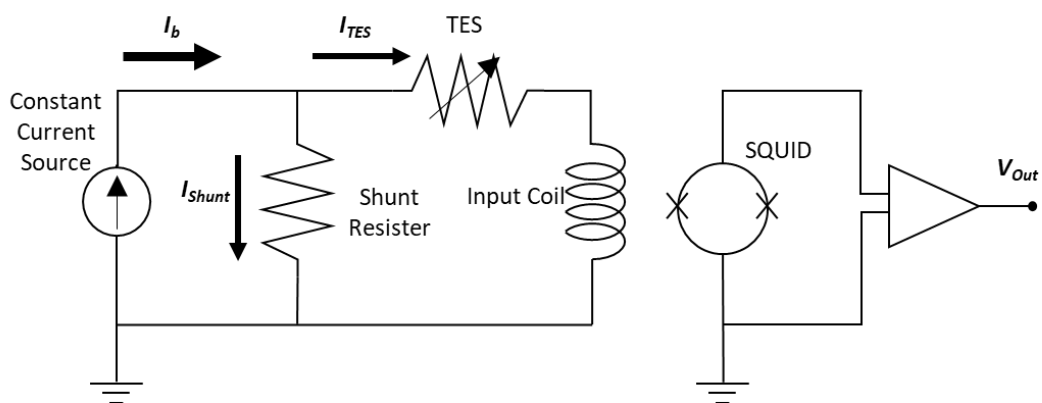
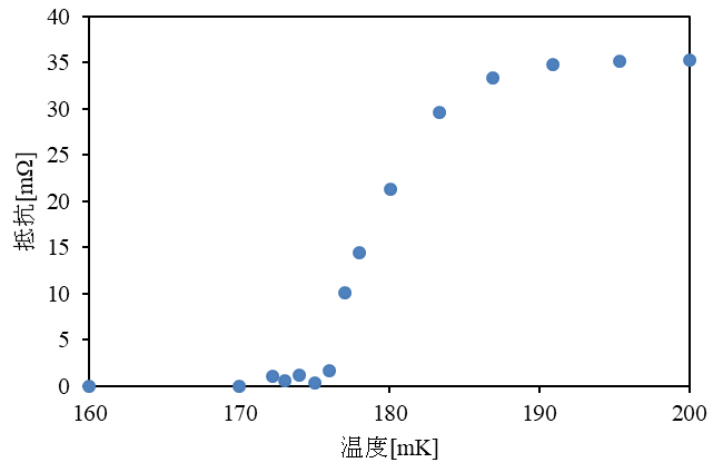
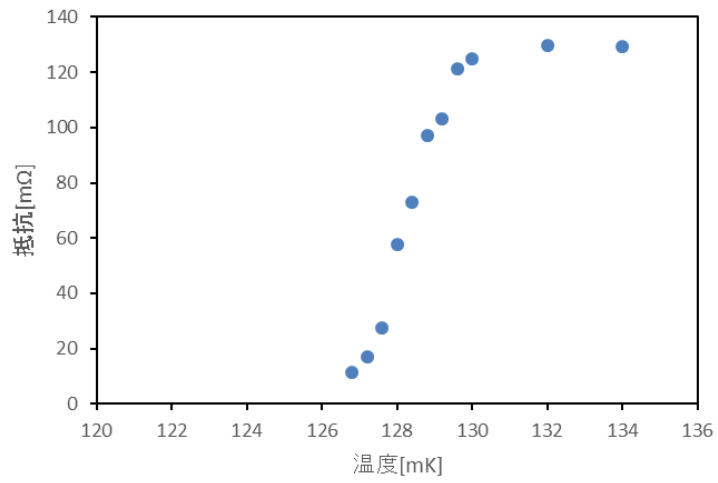


図 3.9 TES 型マイクロカロリメータ測定回路



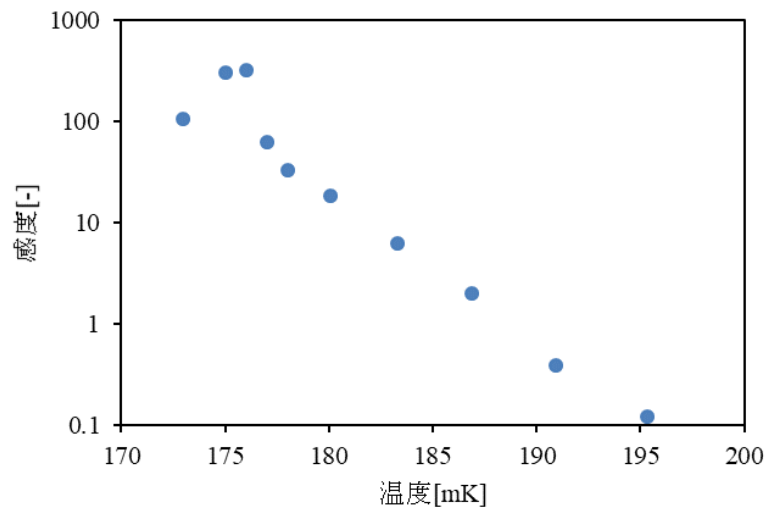


(a) LX-TES RT 曲線

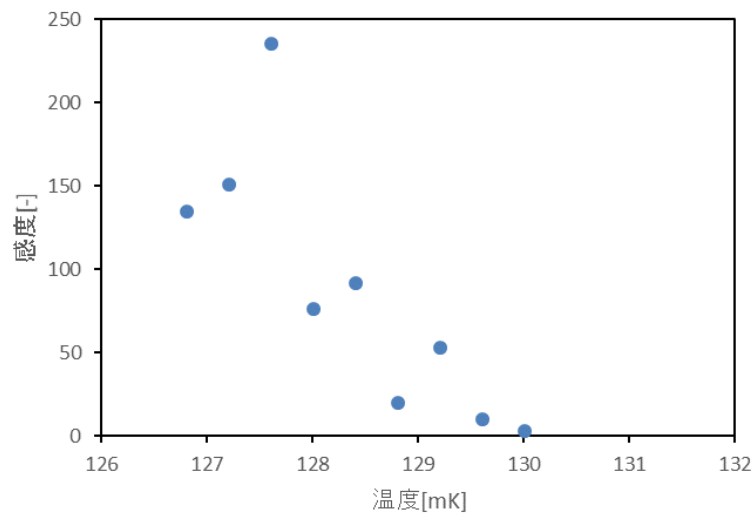


(b) TES-m RT 曲線

図 3.10 TES 型マイクロカロリメータ RT 曲線



(a) LX-TES  $\alpha T$  特性



(b) TES-m  $\alpha T$  特性

図 3.11 TES 型マイクロカロリメータ  $\alpha T$  特性

表 3.2 転移温度及び転移幅


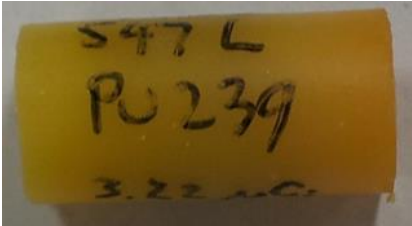
TES	転移温度 (mK)	転移幅 (mK)	常伝導抵抗 (m $\Omega$ )
LX-TES	173.8	20.2	35
TES-m	127.6	2.2	130

### 3.2.4 エネルギー分解能と TRU 弁別性

両 TES のエネルギー分解能を見積もるため、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$  線源を用いた測定実験を行なった。線源仕様を表 3.3 に示す。測定方法及びスペクトル解析については、4 章に記載する  $^{244}\text{Cm}$  測定実験等と同様の方法により行った。ここでは、結果についてのみ記載することとする。

両 TES により得られた LX 線エネルギースペクトルをそれぞれ図 3.12 (LX-TES) 及び図 3.13 (TES-m) に示す。ともにエネルギー分解能 80eV 未満で LX 線の検出を行うことができた。3.2.3 項で予想した通り、TES-mの方が優れたエネルギー分解能となったが、LX-TES においても十分なエネルギー弁別性を有していることが確認された。LX-TES のエネルギー分解能を表 3.4 に、TES-mのエネルギー分解能を表 3.5 に示す。

表 3.3 線源仕様

線源	形状	写真	強度
$^{241}\text{Am}$	アクリル板封入 点線源		370 kBq
$^{238}\text{Pu}$	リンパ管模擬樹 脂封入線源		71.78 kBq
$^{239}\text{Pu}$			119.14 kBq
※写真は $^{239}\text{Pu}$ ( $^{238}\text{Pu}$ も同形状)			

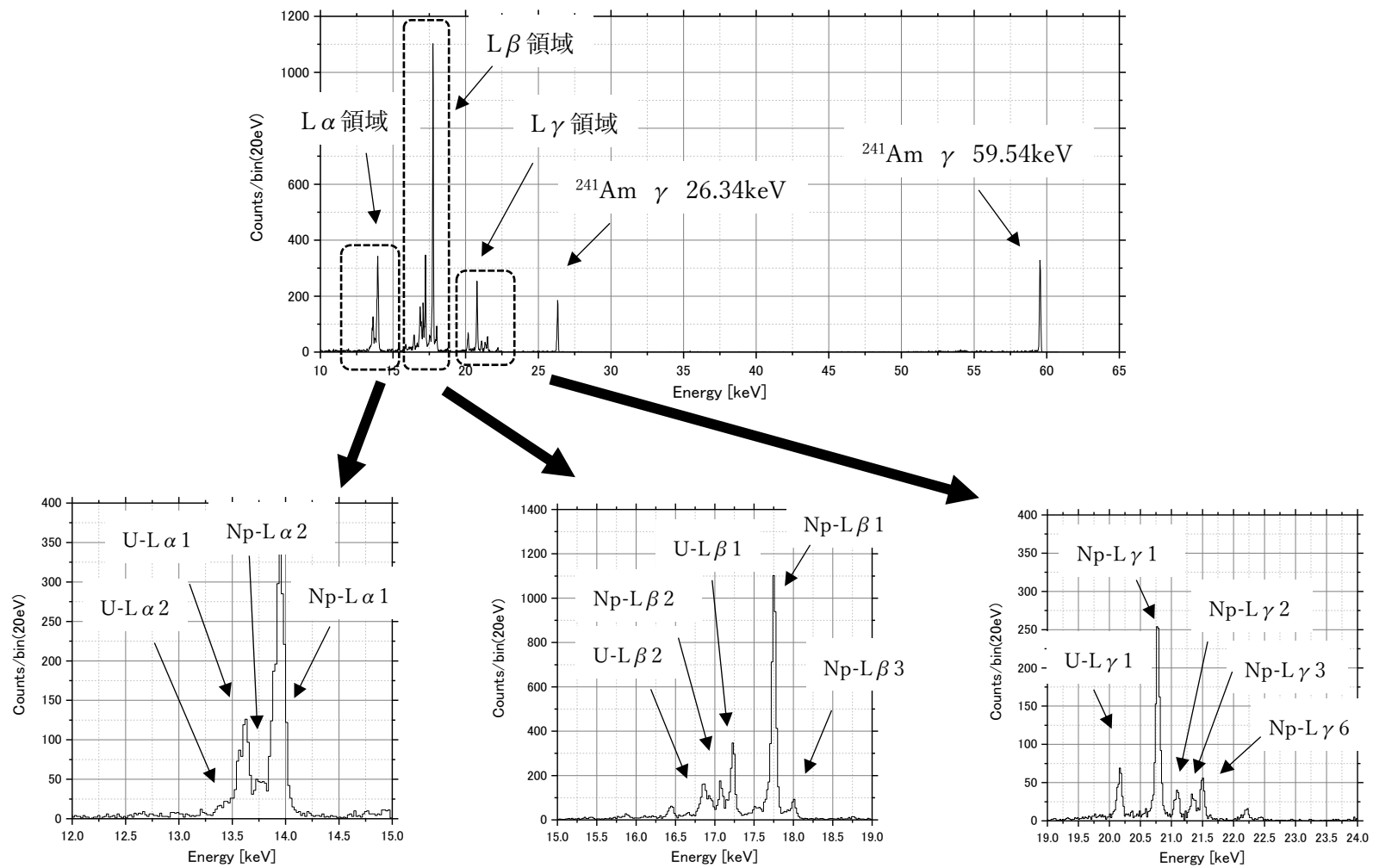


図 3.12 L X-TES で取得した Pu、Am 線源 L X 線スペクトル

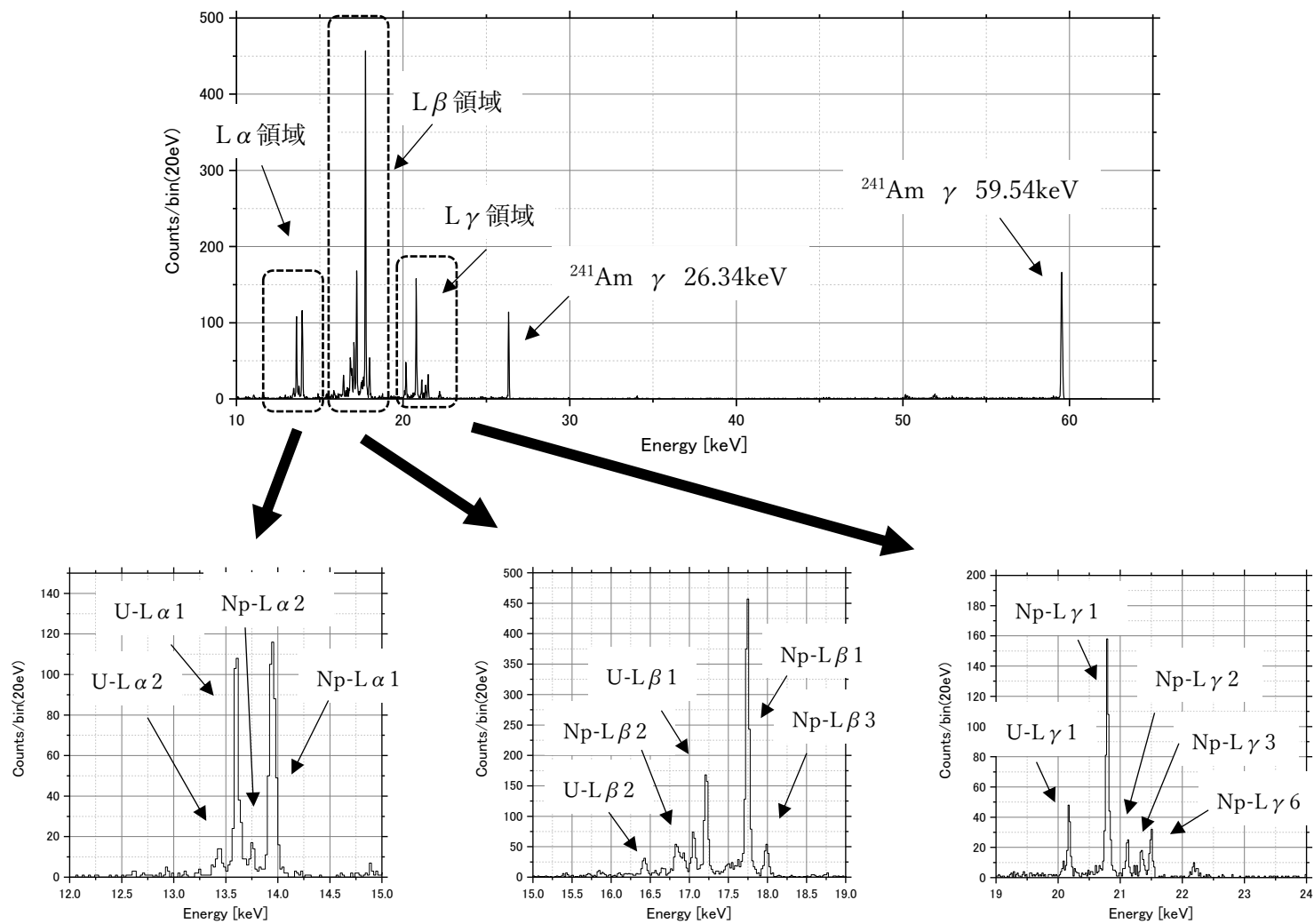


図 3.13 TES-m で取得した Pu、Am 線源 L X 線スペクトル

表 3.4 LX-TES のエネルギー分解能

LX線	エネルギー(keV)	自然幅 (eV)	分解能 (eV)
U-L $\alpha$ 1	13.60	11.7	67.0
U-L $\beta$ 1	17.22	13.5	62.5
U-L $\gamma$ 1	20.17	14.5	62.7
Np-L $\alpha$ 1	13.94	11.8	63.6
U-L $\beta$ 1	17.75	13.4	60.9
U-L $\gamma$ 1	20.78	15.9	60.8

表 3.5 TES-m のエネルギー分解能

LX線	エネルギー(keV)	自然幅 (eV)	分解能 (eV)
U-L $\alpha$ 1	13.60	11.7	31.5
U-L $\beta$ 1	17.22	13.5	39.2
U-L $\gamma$ 1	20.17	14.5	33.5
Np-L $\alpha$ 1	13.94	11.8	31.5
U-L $\beta$ 1	17.75	13.4	39.2
U-L $\gamma$ 1	20.78	15.9	33.5

## 4 TES 型マイクロカロリメータによる超ウラン元素 L X 線スペクトル測定

### 4.1 $^{244}\text{Cm}$ 線源から放出される L X 線のスペクトル測定

#### 4.1.1 システムセットアップ

測定には L X 線用 TES 型マイクロカロリメータとして 3 章に記載した「TES-m」を使用した。TES-m のチップの四隅をワニスにて銅製のホルダーに接着し、さらに TES チップ近傍に SQUID 増幅器チップ及び室温中継用コネクタ (FPC コネクタ) を同様の方法で接着した。測定系の回路接続図を図 4.1 に、接続の様子を図 4.2 にそれぞれ示す。チップ間の接続はアルミ線によるボンディングにより行った。SQUID 増幅器チップには  $7\text{m}\Omega$  のシャント抵抗器が搭載されており、これにより動作状態の TES に印加される電圧は疑似的な定電圧となる。

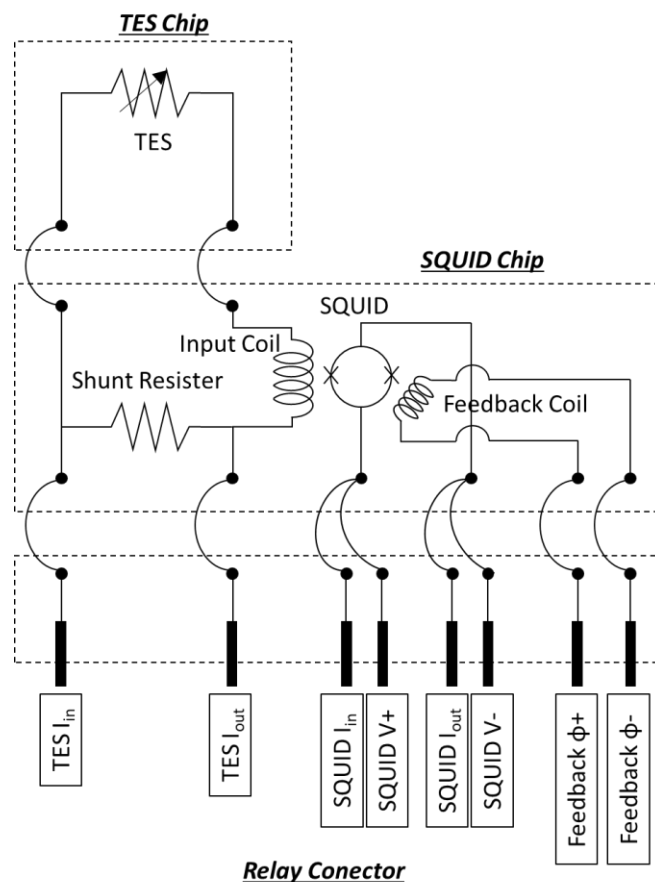


図 4.1 測定系の回路図



図 4.2 接続の様子

上記ホルダーについては、TES の超伝導転移温度 (L X-TES の場合、約 130mK) 以下まで冷却させる必要がある。そのための冷凍設備としては無冷媒希釈冷凍機 (以下、「冷凍機」) [4.1] を用いた。使用した冷凍機の写真を図 4.3 に、構造を図 4.4 にそれぞれ示す。冷凍機の構造としては、大きく 2 つに分けられる。一つが 4 K までの予冷を行う GM 冷凍部、もう一つが 100mK 以下の極低温まで冷却させる希釈冷凍部である。GM 冷凍部は冷媒ガスの圧縮・膨張を行うためのディスプレイッサーが据え付けられており、ディスプレイッサーの機械的な振動が TES の動作に悪影響を与えることが過去に観測されている [4.2]。そこで、今回使用した冷凍機では、GM 冷凍部と希釈冷凍部を分離した構造を採用しており、予冷のための熱交換は He ガス循環により行われる仕様となっている。



図 4.3 冷凍機の外観



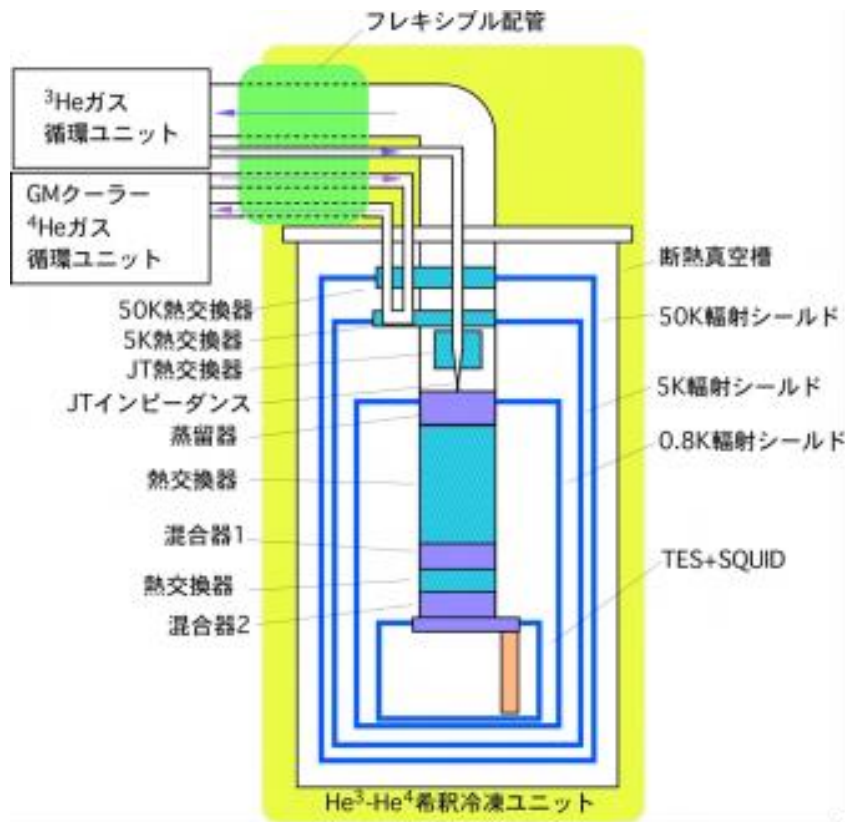


図 4.4 冷凍機の構造

TES ホルダーは冷凍機希釈冷凍部最下部のコールドステージに取り付けた。取り付けの際は、熱的な接触を十分に担保するために、真空用グリース「APIEZON L」(M&I Material LTD. 製) を接触面に塗布した。

電気的な取り合いについては、冷凍機に備え付けの配線に TES ホルダーに接着した中継用コネクタに適合するコネクタを取り付け、冷凍機上部に位置する冷凍機取合コネクタを介して、室温機器との接続を行った。室温側の機器として使用した計器類及びその用途について表 4.1 に、接続ブロック図を図 4.5 にそれぞれ示す。放射線入射に伴う TES の応答は SQUID 増幅器にて電圧信号パルスとして出力される。SQUID 増幅器から出力される電圧信号パルスはデジタイザーによりデジタルパルスデータとして観測される。デジタイザーにおいて、任意の電圧値にてトリガーを設定し、さらにトリガーイベントに対して PC 内に保存するように設定することで、パルスデータのみの取得を行った。

線源には Eckert & Ziegler 製の  $^{244}\text{Cm}$  標準線源を使用した。線源の形状について図 4.6 に、線源仕様について表 4.2 にそれぞれ示す。当該線源は、従来、 $\alpha$  線用の標準線源として使用さ

れているものであるため、プラチナ版への電着により作成されている。TES 型マイクロカロリ  
 ーメータによる測定においては、 $\alpha$  線入射に伴う想定外の温度上昇が懸念されるため、放出面  
 にポリイミドフィルムテープ（カプトン®テープ）を 3 重に貼付し、さらにアルミニウム膜を  
 1 重として  $\alpha$  線が TES に直接入射しないような措置を講じた。線源強度及び TES の有感面積  
 を考慮すると、十分な統計量を得るためには線源と TES 間の距離はできるだけ近づけること  
 が望ましい。そこで、図 4.7 に示す通り TES ホルダーに線源用のスタンドを付属させ、そこに  
 線源を配置した。これにより線源表面と TES 間の距離は 14mm となった。

表 4.1 測定に使用した計器類及びその用途

機器名	製造 (型式)	用途	備考
SQUID コント ローラー	SII ナノテクノ ロジー	・ SQUID の制御・調整 ・ TES への通電	・ 図 4.1 における全入 出力に接続
デジタイザー	Acqiris (DP308)	・ SQUID 出力に接続し、パ ルスデータを取得	・ 分解能：12bit ・ サンプリグレート： 200MS/s ・ PCI スロットにて PC と接続・制御
温度コントロー ラー	Lake Shore (Model 370)	・ 冷凍機の温度コントロー ル（ヒーター制御含む）	・ 冷凍機付属の測温 抵抗体及びヒーター (抵抗器) に接続

表 4.2 線源仕様 ( $^{244}\text{Cm}$ )

線源種類	電着線源
放射能径	5mm
電着板材質	プラチナ
密封用カバー	有：100 $\mu\text{g Au/cm}^2$
放射能量	4000 $\pm$ 130 Bq (窓なしガスフロー比例計数管にて評価)
同位体純度	$^{244}\text{Cm}$ ：99.9% (Bq 換算)

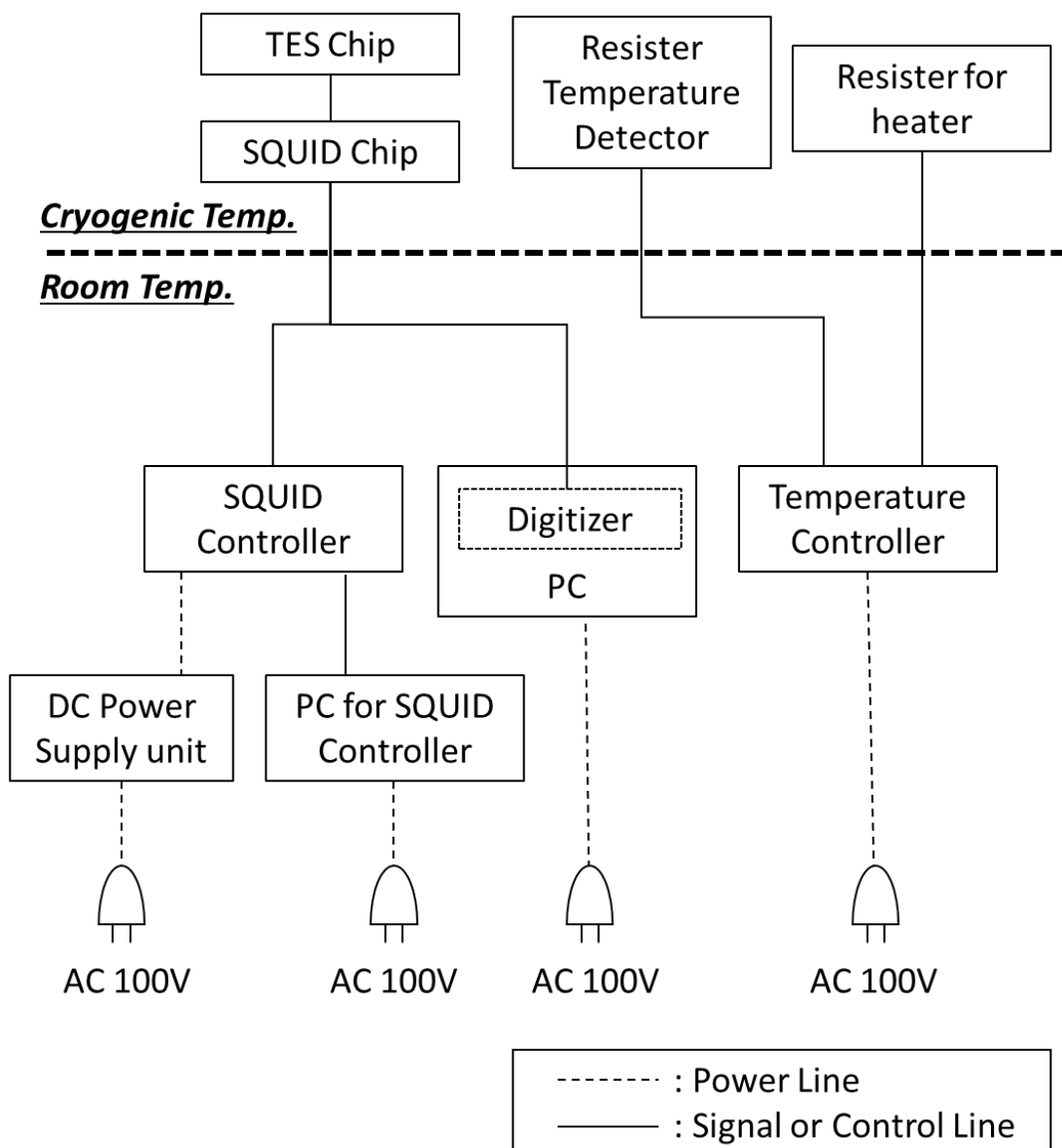


図 4.5 TES 接続ブロック図

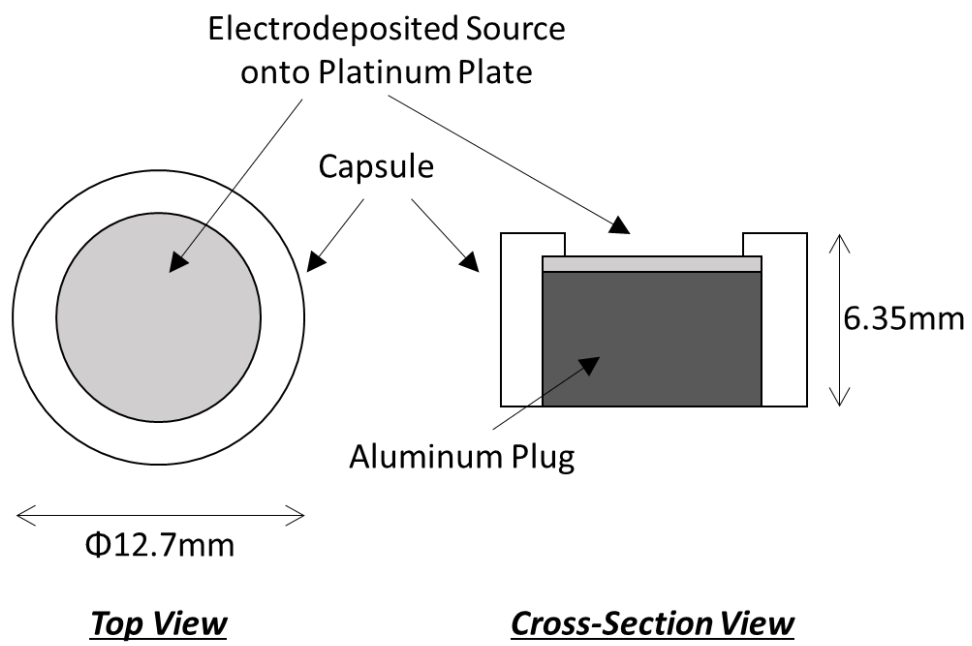


図 4.6 標準線源外観

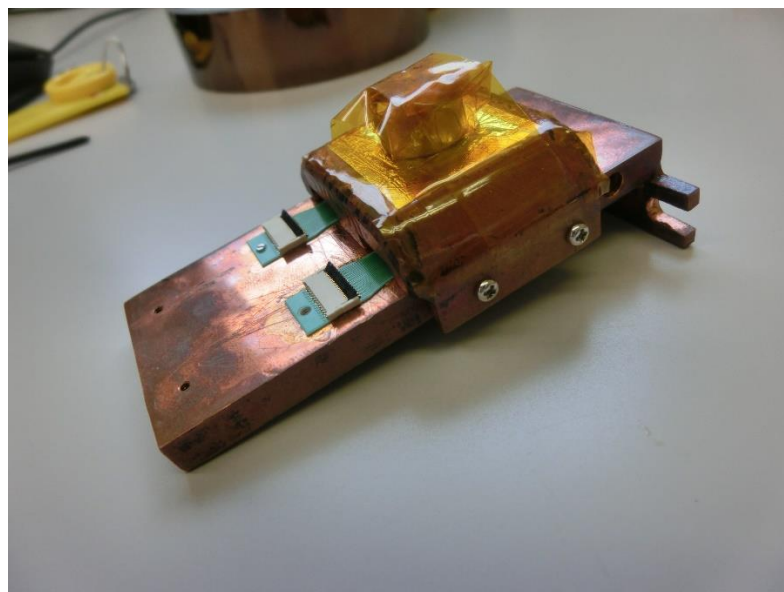


図 4.7 TES ホルダーに取り付けた線源

線源を取り付けた TES ホルダーを冷凍機のコールドステージに取り付け、中継コネクタの接続を行った後、冷凍機内装シールド (0.8K シールド、1K シールド、4K シールド) 及び断熱真空用外装シールドを取り付けた。その後、ターボ分子ポンプ (Adixen 製 ACT 200 T) を用いて冷凍機断熱真空槽の真空引きを行うとともに、GM 冷凍部を起動させ、予冷を開始した。予冷に要する期間は 45 時間程度であり、予冷の終了後に冷凍機内温度が予冷到達温度である 5K 程度となっていることを確認した。TES チップ等の接続に用いているボンディングについては、冷却に伴う熱収縮等により断線する可能性があるため、予冷終了後に一度 SQUID 増幅器チップとの導通確認及び SQUID の  $\phi$ -V 特性の測定を実施し、正常であることを確認した。予冷終了後の  $\phi$ -V 特性の測定結果を図 4.8 に示す。なお、温度コントローラを除く計器類については、SQUID の磁束トラップによる悪影響を考慮して、予冷開始から前述の  $\phi$ -V 特性測定までの間、全ての電源を切断した。予冷終了後、希釈冷凍機による本冷却を開始した。本冷却では、3He-4He 混合ガス循環により希釈冷凍機内部の混合器にて希釈冷凍現象を発生させ、100mK 以下の極低温環境まで冷やしこみを行う。本冷却に要する時間は約 10 時間程度であった。今回の実験では、コールドステージにて約 65mK が最低到達温度となった。

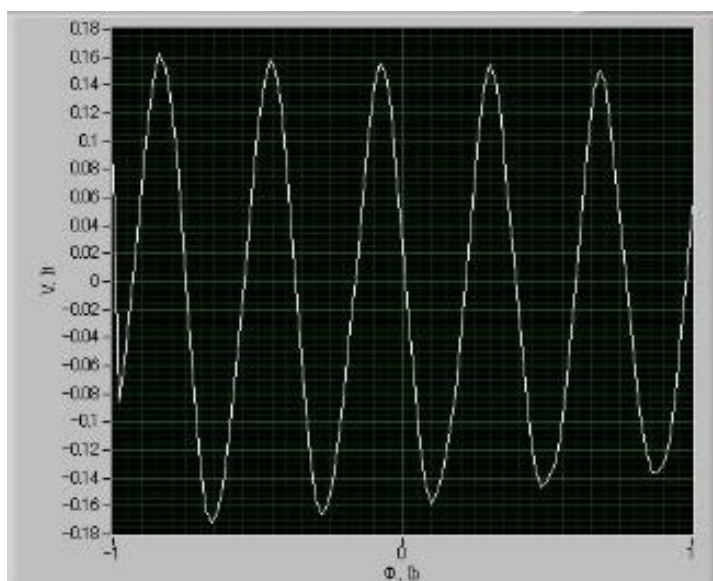


図 4.8 予冷終了後の  $\phi$ -V 特性

#### 4.1.2 冷熱浴温度及び動作点の決定

TES 型マイクロカロリメータは入射光子により発生した熱を最終的に冷熱浴へと熱伝達させるため、その応答性は TES-冷熱浴間の熱伝導度及び温度差に依存する。また、TES 自体

の温度も、TES に流れる電流に起因する発熱量と、冷熱浴への排熱量とが釣り合う点に保持される。よって、安定な TES の応答のためには、冷熱浴の温度を安定させる必要がある。本システムでは、コールドステージが冷熱浴に相当するため、コールドステージの温度を安定的にコントロールすることが必要となる。今回の実験では、使用した TES の転移温度及び冷凍機の最低到達温度を考慮して、温度コントローラの設定温度を 70mK として、TES 型マイクロカロリメータの動作及び測定を試みた。なお、温度コントロールは温度コントローラの PID 制御機能を使用した。設定温度 70mK のコールドステージ温度を 10 秒毎にサンプリングした場合の 24 時間における温度変動を図 4.9 に示す。図 4.9 より、コールドステージの温度揺らぎの範囲としては、70mK 設定時で  $70.00 \pm 0.019$  mK であることがわかった。

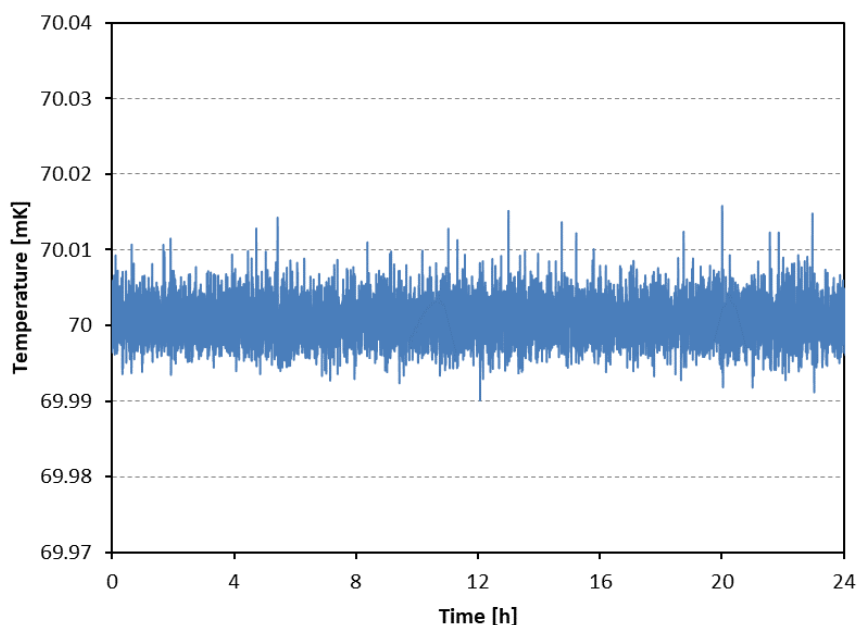


図 4.9 温度コントローラによる温度安定性

TES 型マイクロカロリメータの動作点の設定は、過去に前田が行った方法を採用した[4.3]。前田は、常伝導状態の TES 抵抗値  $R_N$  と超伝導-常伝導転移状態の TES 抵抗値  $R_{OP}$  の比  $R_{OP}/R_N$  を指標として、種々の  $R_{OP}/R_N$  におけるノイズスペクトルからエネルギー分解能を評価し、TES 動作の安定性も考慮した結果、 $R_{OP}/R_N=0.4$  となる点を動作点として設定した。TES の動作点による応答性の違いは、冷熱浴による温度差が変化することや、TES の R-T 曲線の傾きが一定ではない(非線形的)ことに起因するため、必ずしも  $R_{OP}/R_N=0.4$  が適切であるとは言い難い。しかし、今回用いた TES は前田が評価した TES と同等の形状であり、超伝導転移温度も同様であるため、本実験においても  $R_{OP}/R_N=0.4$  となる点を動作点として採用することとした。

動作点である  $R_{OP}/R_N=0.4$  を設定するために冷熱浴 70mK における TES の電流-電圧依存性 (IV 特性) の測定を行った。IV 特性とは、TES 測定回路に流す電流値とその時の SQUID 増

幅器出力電圧値の関係性を示すものである。図 3.9 に示した通り、TES 測定回路に流すバイアス電流  $I_b$  は、TES に流れる電流  $I_{TES}$  とシャント抵抗に流れる電流  $I_{Shunt}$  の和となる。一方、SQUID 増幅器出力電圧  $V_{out}$  は  $I_{TES}$  と比例関係 ( $I_{TES} = V_{out} \times \eta$  :  $\eta$  は SQUID 電圧変換係数) にある。よって、IV 特性とは、バイアス電流と TES 電流の関係性を示すものであると言い換えることができる。TES 電流は TES 抵抗値に依存するため、IV 特性から任意のバイアス電流通電時の TES 抵抗値を求めることができる。今回の実験で得られた IV 特性を図 4.11 に示す。使用した TES の常伝導時の抵抗値は  $124\text{m}\Omega$ 、SQUID 増幅器電圧変換係数が  $201\mu\text{A}/\text{V}$  であるため、これらの値を用いて、図 4.11 からバイアス電流に対する TES 抵抗値を求めることができる。図 4.12 にバイアス電流に対する TES 抵抗値の関係を示す。図 4.12 から、 $R_{OP}/R_N = 0.4$  となるバイアス電流を評価すると  $I_b = 160\mu\text{A}$  となった。しかし、実際に  $I_b = 160\mu\text{A}$  で TES を動作させたところ、SQUID 増幅器のフィードバックコイルの動作が TES の抵抗値変化の応答性に追い付かず、正常に磁束固定ループ (FLL) が動作しなかった。そのため、最終的には FLL が有効な最小バイアス電流値として  $250\mu\text{A}$  を動作点とした。動作点に関する情報について表 4.3 にまとめる。

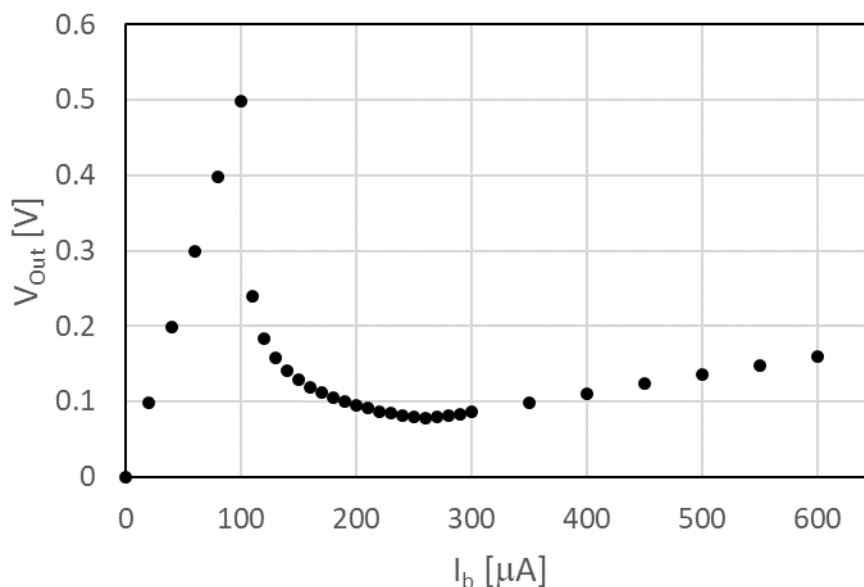


図 4.11 TES IV 特性

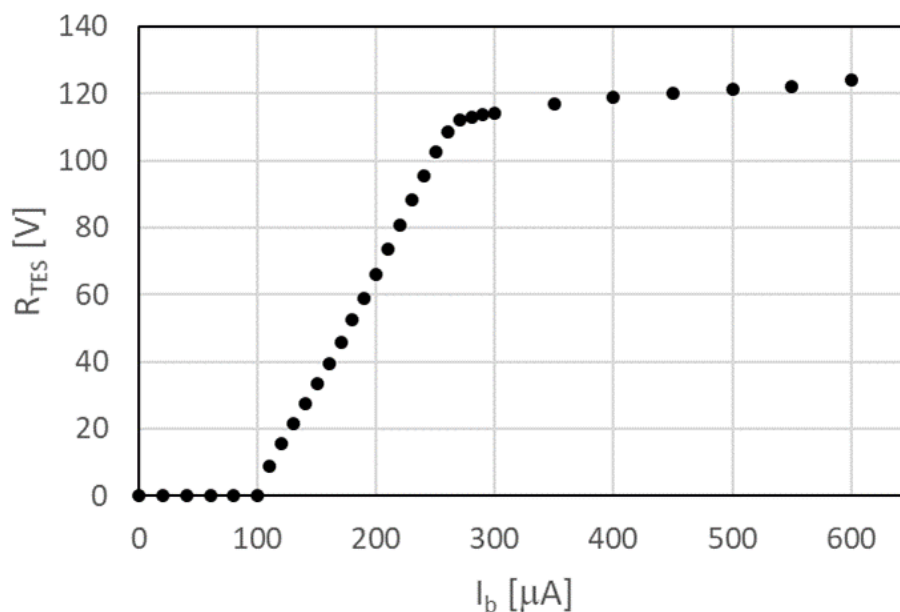


図 4.12 TES IR 特性

表 4.3 動作点の情報 ( $^{244}\text{Cm}$  測定)

パラメータ	設定値	備考
冷熱浴温度	70mK	コールドステージ温度にて設定
温度コントローラー PID 制御パラメータ	P : 100s 、 I : 50s、 D : 0s	コールドステージ温度に適用
バイアス電流	250 $\mu\text{A}$	—
動作時 TES 抵抗値	102m $\Omega$	—
SQUID 電圧変換係数	201 $\mu\text{A}/\text{V}$	—

### 4.1.3 LX 線パルス解析

TES を前項に記載した動作点に設定した後、4.1.1 項に示した通りデジタイザー (Acqiris 製 : DP308) により信号パルスの取得を行った。TES からの信号パルスの形状に合わせて、デジタイザー付属の立下りエッジトリガーを  $-30\text{mV}$  に設定し、トリガーイベントに該当する全てのパルスを取得した。測定期間は 194 時間となった。



測定期間内における総取得パルス数は 3102 カウントであった。取得したパルスに対して、図 4.13 に示すフローに従って、パルス解析を行い、エネルギースペクトルを取得した。以下にパルス解析の詳細について記載する。

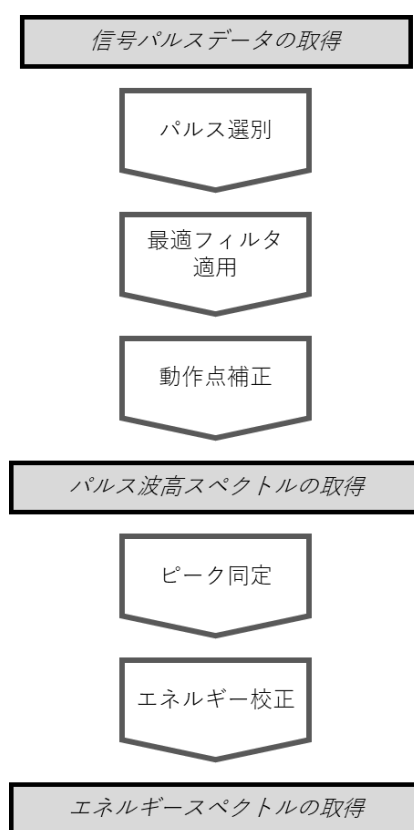


図 4.13 パルス解析フロー

#### 4.1.4 パルスの選別

取得した信号パルスは、基本的には放射線の入射による TES の熱的な応答に起因するものである。理想的な信号は TES 型マイクロカロリメータの吸収体に入射し、それに伴う温度上昇による信号である。しかし、実際の測定では、放射線の吸収される場所（例えば吸収体ではなく TES に直接吸収されるような場合）によって信号パルスの形状が異なる可能性がある。吸収体による放射線吸収に起因する信号パルス（以下、「吸収体パルス」）とそうでない場合の信号パルス（以下、「非吸収体パルス」）とでは、吸収エネルギーに対するパルス波高

値の応答性が異なる。よって、これらが混在した状況でパルス波高値の解析を行うと、正確なエネルギースペクトルを取得できない恐れがある。

吸収体パルスと非吸収体パルスでは、吸収された場所の熱的な特性が異なるため、結果としてパルスの時間的な応答性が異なる。よって、信号パルスの立ち上がり及び立下り時間の着目することで、これらの弁別が可能となる。図 4.14 に取得した信号パルスの立ち上がり時間及び減衰時定数の関係を示す。ここで、立ち上がり時間と減衰時定数は以下の通り定義した。

立ち上がり時間：信号パルスの立ち上がりについて波高値の 10% から 90% まで要する時間

減衰時定数：信号パルスの減衰について波高値の 10% から 90% まで要する時間変化に対して指数関数でフィッティングした場合の時定数

図 4.14 より、パルスの形状としては以下の大きく 3 つに分けことができる。

領域 A：立ち上がり時間が 12~18 $\mu$ s、減衰時定数が 150~500 $\mu$ s で比較的まとまりのある領域

領域 B：立ち上がり時間が 12 $\mu$ s 未満である領域

領域 C：立ち上がり時間が 12 $\mu$ s 以上であり、減衰時定数が 500 $\mu$ s 以上でばらつきを持っている領域

各領域の代表的な信号パルス例を図 4.15 に示す。また、各領域のパルス数を表 4.4 に示す。領域 A の信号パルスは、様々なパルス波高値を持つが、減衰時定数や立ち上がり時間にまとまりがあるため、吸収体パルスであると考えた。領域 B は短い立ち上がり時間を持つことが特徴であり、その後、数マイクロ~10 $\mu$ s 程度で急峻にパルスが減衰し、以降は領域 A と同等の挙動を示す。TES の特性上、早い立ち上がり時間は早い温度上昇を意味するため、吸収体ではなく TES に直接入射したイベントであると考えられる。領域 C は著しく長い減衰時定数を持つことが特徴である。減衰時定数が長いということは、熱伝導が良好でない、または、TES-冷熱浴間のいずれかの箇所の温度が上昇したことが考えられる。TES を支えるシリコン基盤に比較的高いエネルギーの放射線が吸収された場合は、冷熱浴側の温度が上昇し、TES からの熱の流れ一時的に悪くなるとともに、TES の動作点が一時的に変動し、あたかも信号パルスのような応答を示すことが予想される。いずれにせよ、領域 A を除く信号パルスは非吸収体イベントである可能性が高いため、これらの領域の信号パルスについては、解析対象外とした。

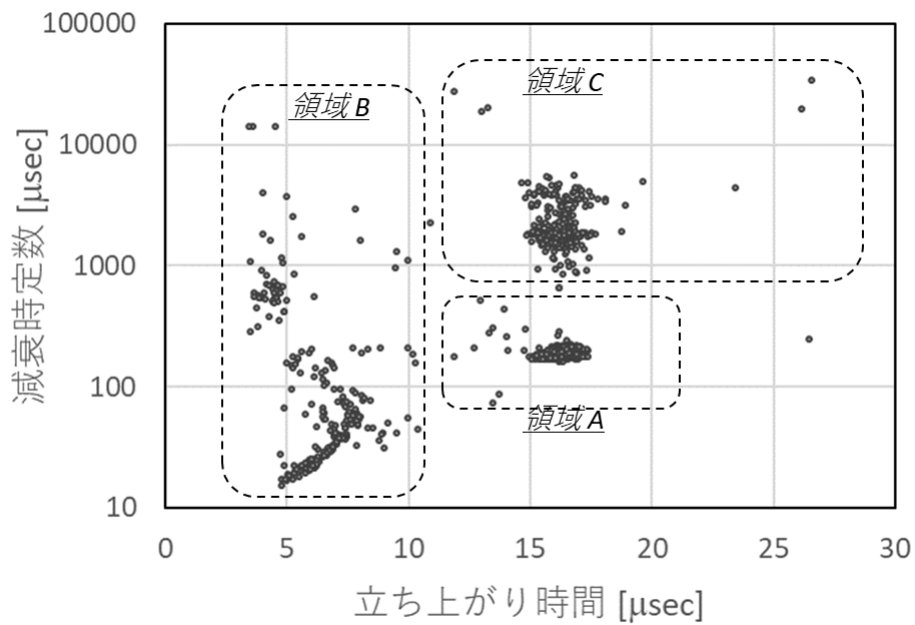
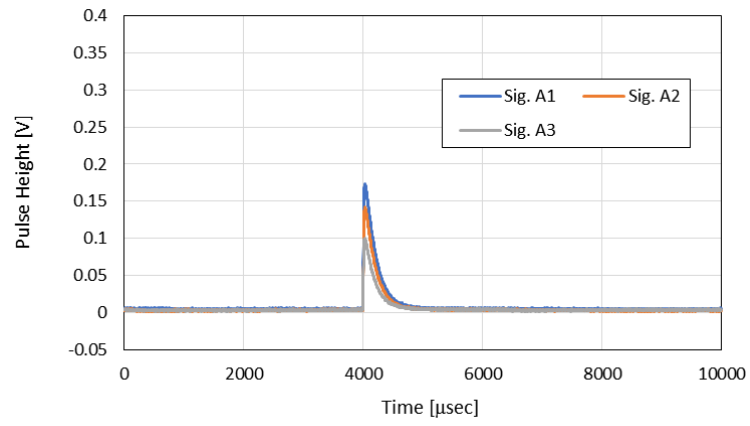


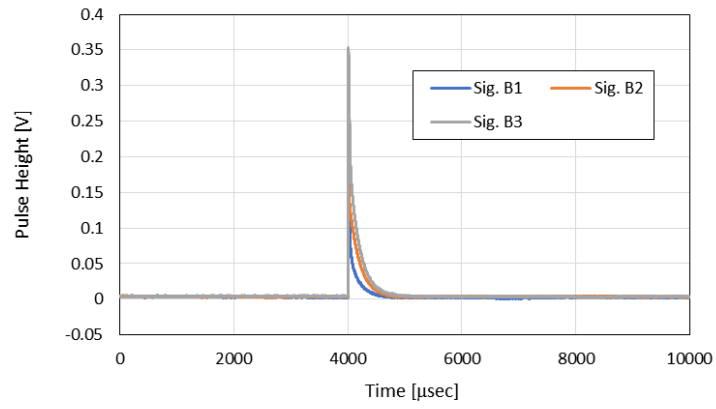
図 4.14 立ち上がり時間と減衰時定数の関係

表 4.4 各領域の信号パルス数

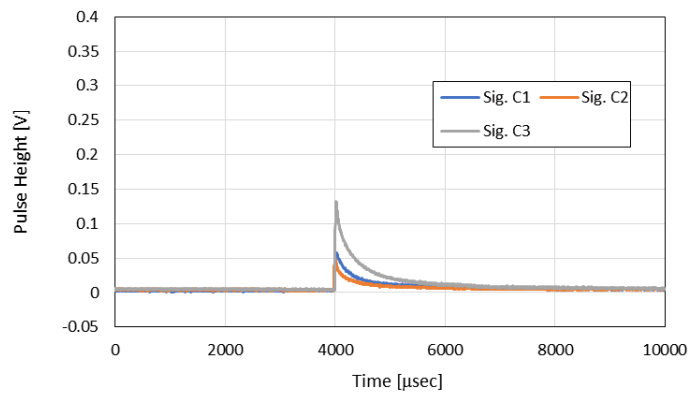
領域	領域の定義	信号パルス数
領域 A	立ち上がり時間：12～18 $\mu$ s 減衰時定数：150～500 $\mu$ s	2523
領域 B	立ち上がり時間：12 $\mu$ s 未満 減衰時定数：制限なし	285
領域 C	立ち上がり時間：12 以上 減衰時定数：500 $\mu$ s 以上	291
その他	上記以外	3
総数	—	3102



(a) 領域 A



(b) 領域 B



(b) 領域 C

図 4.15 各領域のパルス形状

#### 4.1.5 最適フィルタ

選別した信号パルスに対して、3.1.8 項にて述べた最適フィルタを適用した。最適フィルタを適用する際には、式(3.76)に示す通りフィルタテンプレート関数  $T_i(t)$ が必要となる。 $T_i(t)$ には式(3.76)から周波数空間における真の検出器信号  $s(f)$ およびノイズスペクトル  $e_n(f)$ が必要となる。実際には真の検出器信号を取得することは不可能であるため、一般的には検出器信号の平均を真の検出器信号の代替（モデルパルス）として使用する。

本実験では、信号パルスのない状態における電圧出力を、信号パルス取得時と同一の時間幅で100個取得し、その周波数空間における平均をノイズスペクトルとした。また、モデルパルスには取得・選別した全信号パルスの平均を用いた。モデルパルスとしては、単一のエネルギーに相当するパルス信号の平均を用いることが望ましいが、本実験では、複数のエネルギー成分を持つLX線を測定対象としている。そのため、理想的には、信号パルスの波高値に応じてモデルパルスを作成することが望ましい。しかし、最終的に放射線測定用設備への応用を考慮した場合、個別のモデルパルスを作成し最適フィルタを適用することで、解析が煩雑となり、迅速な測定・評価への支障となる可能性がある。そのため、現実的な適用を考慮した場合の性能を把握する目的で、本実験では、簡易的なモデルパルスを採用することとした。取得したノイズスペクトル及びモデルパルススペクトルを図4.16及び図4.17にそれぞれ示す。また、ノイズスペクトル及びモデルパルスを用いて作成した最適フィルタテンプレートを図4.18に示す。作成したテンプレートと信号パルスを時間空間において掛け合わせることで、最適フィルタを適用後のパルス波高分布を取得した。最適フィルタ適用前後のパルス波高分布を図4.19に示す。最適フィルタの適用によりエネルギー分解能はFWHMで約200eVから約90eVに改善された。

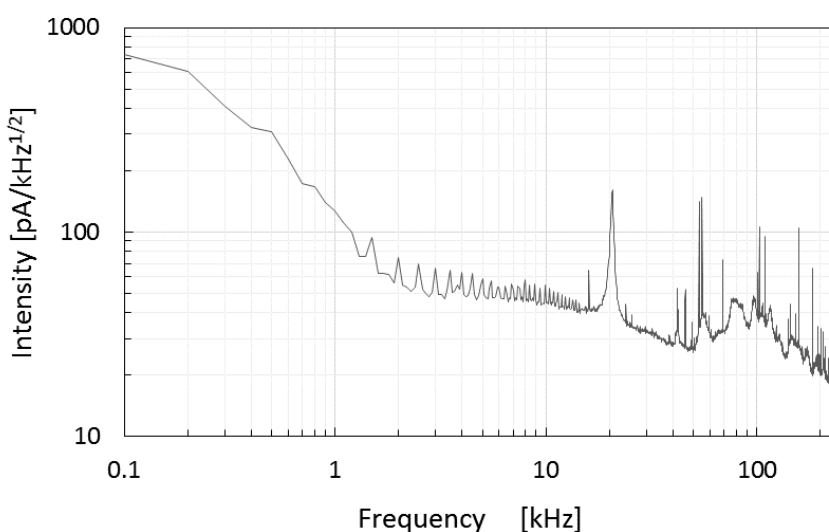


図 4.16 ノイズスペクトル

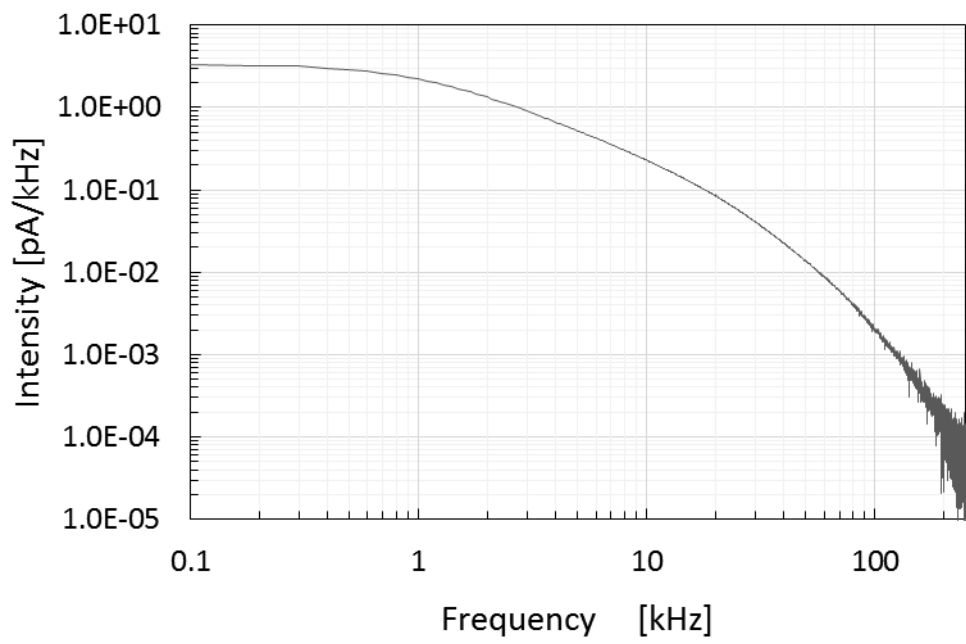


図 4.17 モデルパルススペクトル

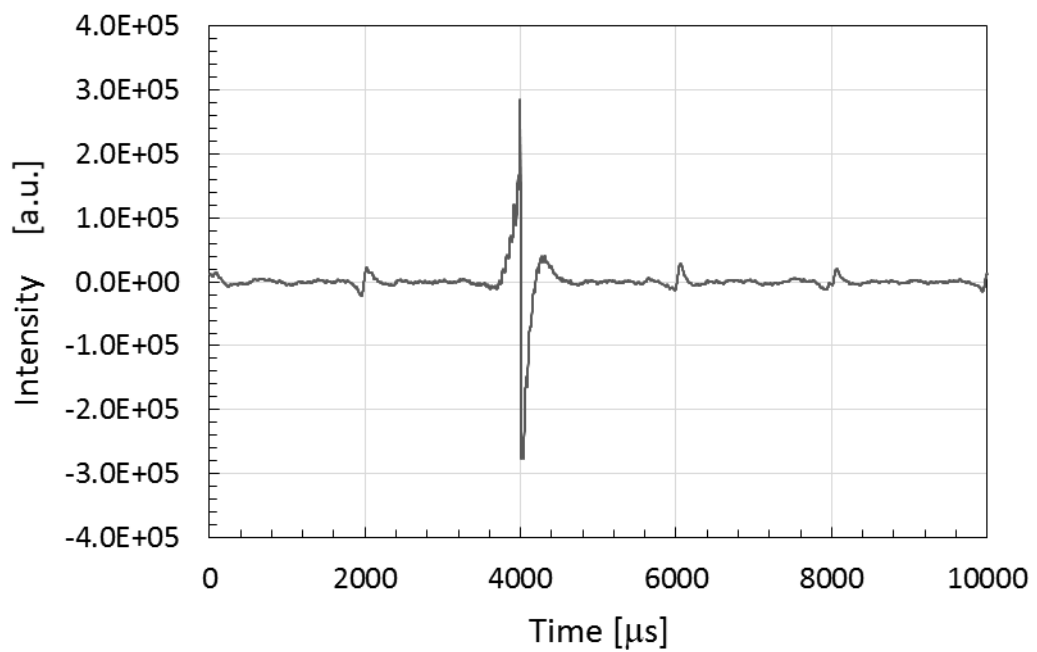


図 4.18 フィルタテンプレート

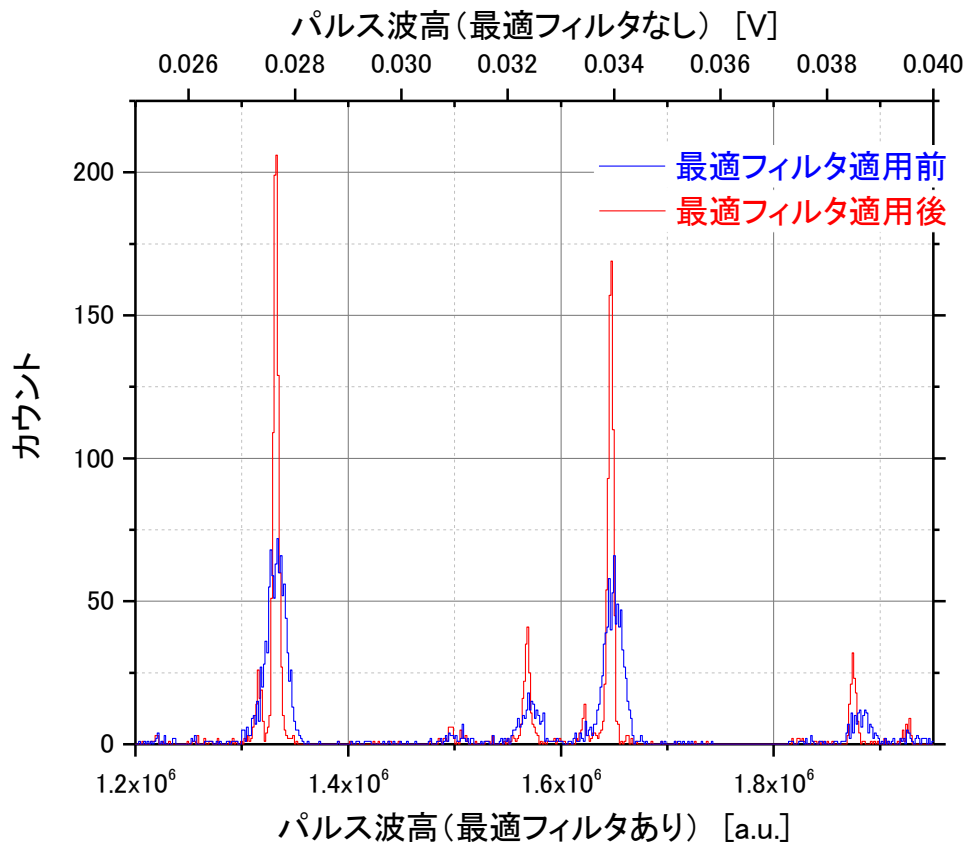


図 4.19 最適フィルタ適用前後のパルス波高スペクトル

#### 4.1.6 動作点補正

本実験では、信号パルスのサンプリング時間が 194 時間となった。TES の動作点は 4.1.2 項に記載した通り、TES に流れる電流に起因する TES の発熱量と冷熱浴へと流れる除熱量が釣り合う位置に保持される。よって、冷凍機の温度コントロールに伴う冷熱浴の微小温度変動や、電流源からの電流量の揺らぎ等の影響により動作点についても微小変化をしている可能性が高い。TES の動作点が変わることは、TES の抵抗値が変化するということであり、これは TES に流れる電流の変化、つまり SQUID 増幅器出力に影響を与えることになる。よって、信号パルスの影響を受けていない状態（定常状態）における SQUID 増幅器出力を確認することで、動作点の変動状況が把握できる。

本実験では、信号パルスのみをデータ取得しており、定常状態の SQUID 増幅器出力を常にモニタリングしていなかった。よって、信号パルス毎のベース出力電圧（パルスが立ち上がる直前の電圧値）により動作点の変動を評価した。図 4.20 に信号パルス毎のベース出力電圧について示す。図中の横軸「信号パルス No.」は時系列順に番号を振っているため、図

4.20 はベース出力電圧の経時変化を表すものと言える。図 4.20 より、ベース出力電圧が時間とともに変動していることわかり、TES の動作点変動していることが確認された。

図 4.21 にベース出力電圧とパルス波高値の関係を示す。図 4.21(a)は総信号パルスにおける関係を示しており、図 4.21(b)は  $L\alpha$  線領域に相当すると考えられるパルス波高値  $1.3 \times 10^6 \sim 1.36 \times 10^6$  における拡大図を示す。図 4.21(b)より、ベース出力電圧とパルス波高値の間に依存性があることが確認できる。よって、この関係を線形近似し、切片の値で補正することとした。これにより、動作点の変動による影響を軽減できることが期待される。動作点補正前後のパルス波高スペクトル（パルス波高値： $1.3 \times 10^6$  付近）の比較を図 4.22 に示す。また、動作点補正後のパルス波高スペクトルを図 4.23 に示す。動作点補正によりエネルギー分解能は FWHM で約 90eV から約 70eV に改善された。

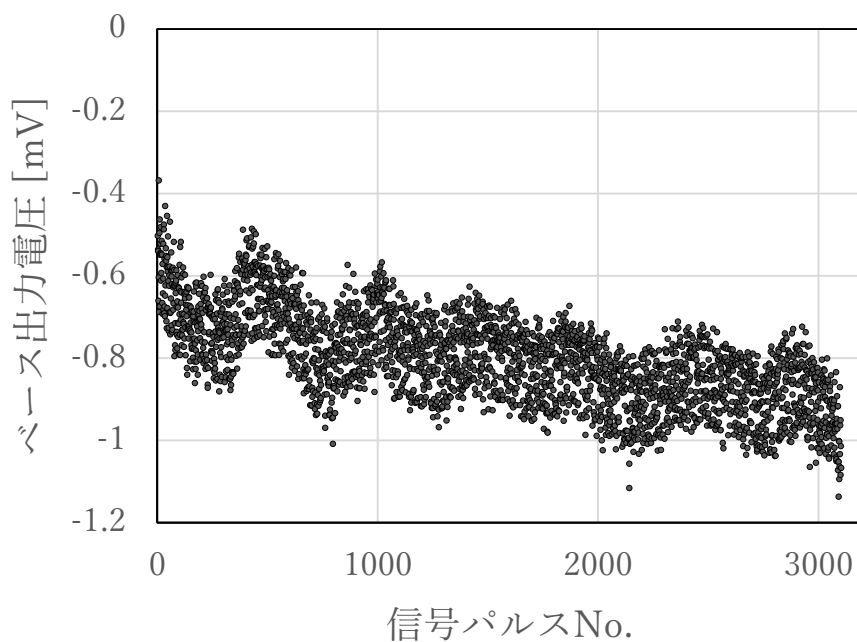
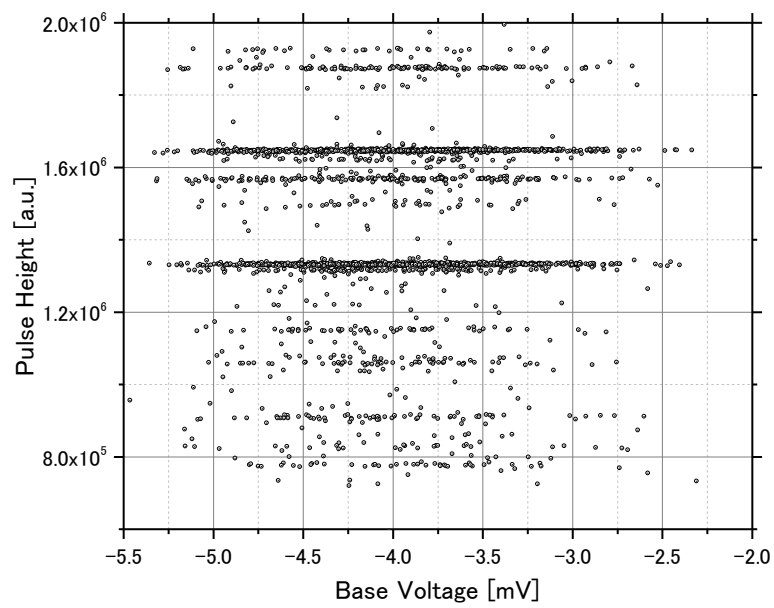
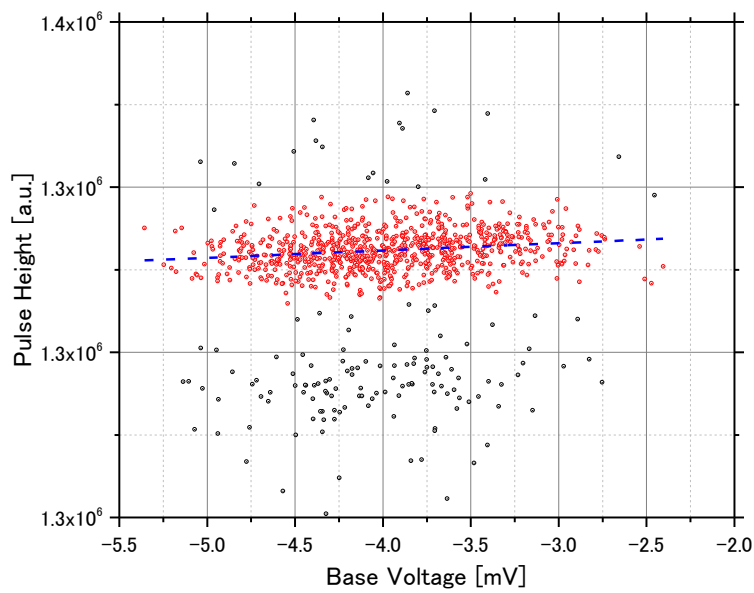


図 4.20 信号パルス毎のベース出力電圧





(a) パルス波高全域



(b)  $L\alpha$  領域

図 4.21 ベース出力電圧とパルス波高の関係

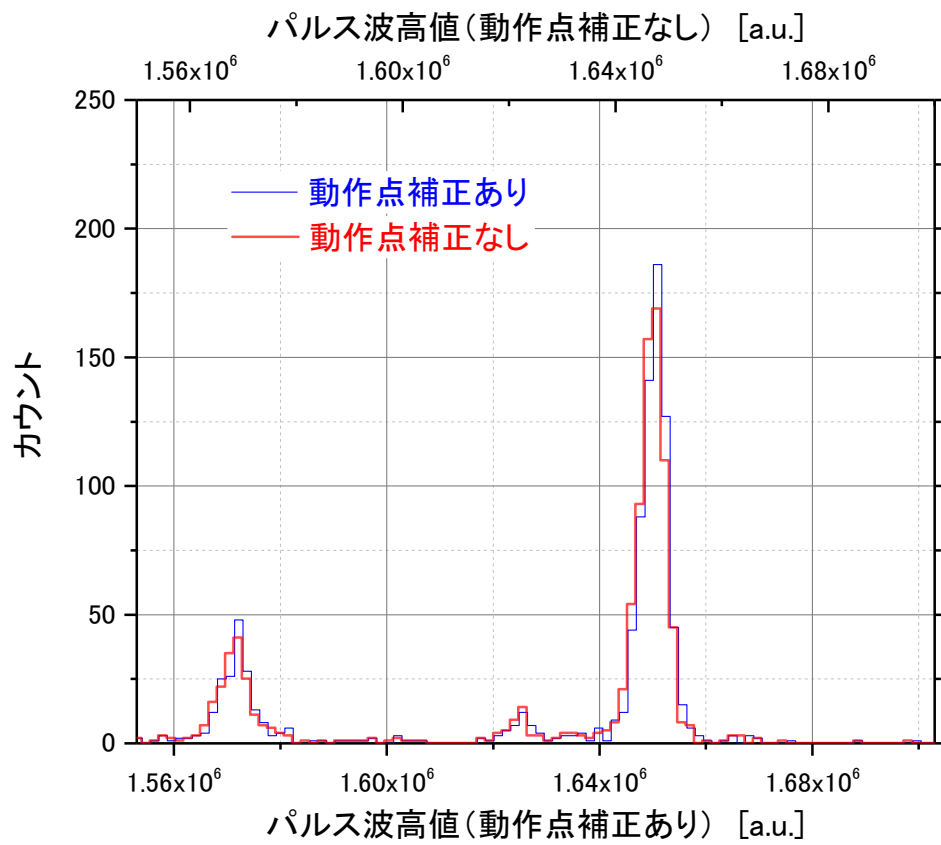
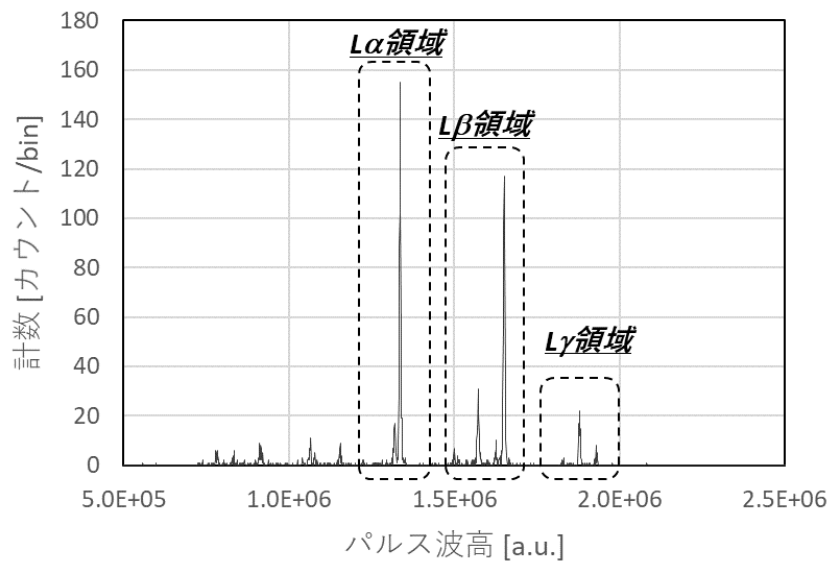
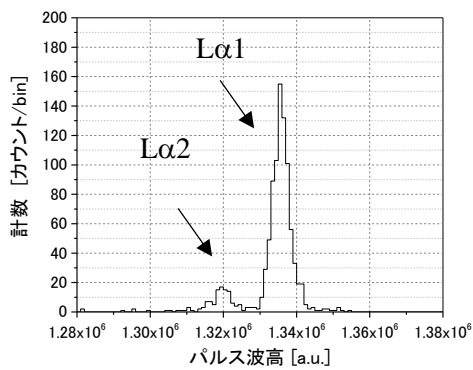


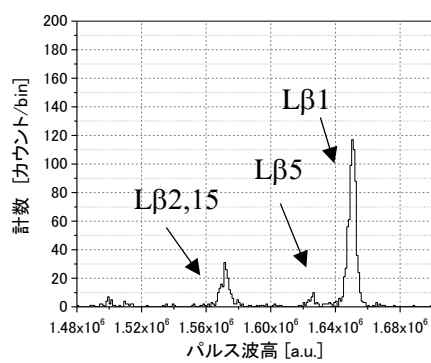
図 4.22 動作点補正前後のパルス波高波高スペクトル



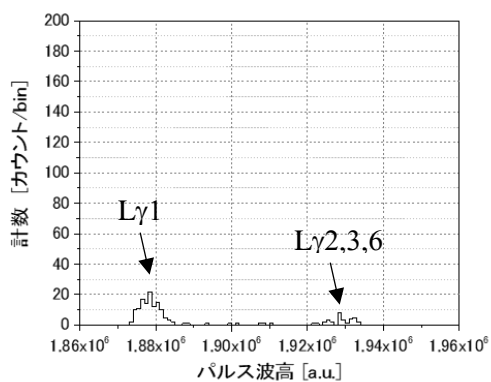
(a) 全体



(b)  $L\alpha$  領域



(c)  $L\beta$  領域



(d)  $L\gamma$  領域

図 4.23 動作点補正後のパルス波高スペクトル

#### 4.1.7 ピーク同定及びエネルギー校正曲線

パルス波高スペクトルをエネルギースペクトルに変換するためには、パルス波高値と相当するエネルギーの関係性を知る必要がある。スペクトル解析におけるエネルギー校正は、被測定線源ではない既知のエネルギーを持つ線源（エネルギー校正用線源）により行う方法と、被測定線源自体のピークを用いて行う場合の2種類の方法がある[4.4]。前者の場合は、エネルギー校正用線源から放出される放射線のエネルギーが既知線源のエネルギー範囲と比較的近い必要があり、後者の場合は、複数種類のエネルギーの放射線を放出する線源である必要がある。本実験では線源を冷凍機内部に配置しており、外部からエネルギー校正用線源による校正を行うことが困難であった。よって、 $^{244}\text{Cm}$  線源から放出される L X 線そのものを用いてエネルギー校正曲線を求めることとした。

$^{244}\text{Cm}$  線源から放出される L X 線は、文献にてある程度の放出率について既知であり[4.5]、L X 線成分も放出率の低いものを含めると 10 種類ほど存在しているため、スペクトルの形状から相当する L X 線成分を予想することが可能である。得られたパルス波高スペクトル及び  $^{244}\text{Cm}$  から放出される L X 線放出率の文献値から L X 線成分の同定を図 4.23 の通り行った。同定したピークに対して、ガウス関数を用いてピークフィッティングを行い、得られたガウス関数の中心値を各 L X 線成分のエネルギーに相当するパルス波高値として定めた。パルス波高値と相当する L X 線成分及びそのエネルギーを表 4.5 にまとめる。この関係性に対して 2 次の多項式フィッティングを行い、エネルギー校正曲線を求めた。なお、入射エネルギーがない場合のパルス波高値は 0 となるため、原点を含めてフィッティングを行うことが原理的である。しかし、原点を含めた場合の決定係数  $R^2$  が 0.9993 に対して、原点を含めない場合の決定係数  $R^2$  が 0.9999 と大きかったため、原点を含めないエネルギー校正曲線を採用した。また、エネルギー校正にあたっては、線源の電着材である Pt からの特性 X 線 ( $L\alpha 1$ : が確認されたため、低エネルギー側の校正曲線の信頼性を挙げる目的で、これらの特性 X 線を含めて校正を行った。得られたエネルギー校正曲線を図 4.24 に示す。

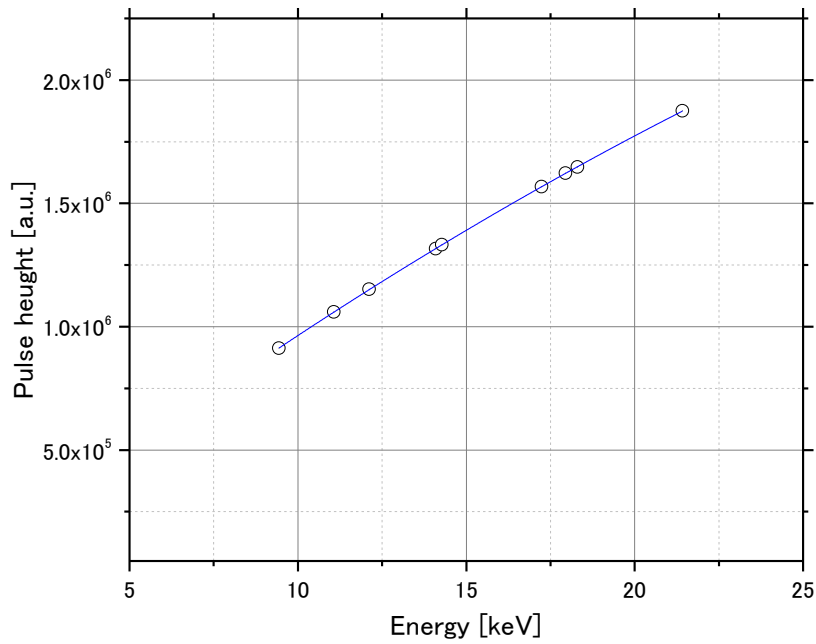


図 4.24 エネルギー校正曲線

表 4.5 パルス波高値とエネルギーの関係

L X 線	パルス波高値 [a.u.]	エネルギー [keV]
Pt-L $\alpha$ 1	$9.13 \times 10^5$	9.44
Pt-L $\beta$ 1	$1.06 \times 10^6$	11.07
Pu-LI	$1.15 \times 10^6$	12.12
Pu-L $\alpha$ 1	$1.32 \times 10^6$	14.09
Pu-L $\alpha$ 2	$1.33 \times 10^6$	14.28
L $\beta$ 2,15	$1.57 \times 10^6$	17.24
L $\beta$ 5	$1.62 \times 10^6$	17.95
L $\beta$ 1	$1.65 \times 10^6$	18.30
L $\gamma$ 1	$1.87 \times 10^6$	21.42

#### 4.1.8 エネルギースペクトル

エネルギー校正後の L X 線エネルギースペクトルを図 4.25 に示す。なお、エネルギースペクトルのビン幅は 20eV とした。取得したエネルギースペクトルからエネルギー分解能の評価を行った。X 線の場合、原子内における遷移元のエネルギーレベル幅と遷移先のエネルギーレ

ベル幅を足し合わせた固有の広がり（自然幅）を有する。この自然幅は幅因子 $\Gamma$ のローレンツ関数によって表される。一方、検出器由来のピークの広がりにはガウス関数によって表される。つまり、観測されるピーク形状はローレンツ関数とガウス関数の畳み込みによって得られるフォークト関数となる[4.4]。よって、エネルギー分解能の評価にあたっては、各LX線成分に固有の自然幅を用いたフォークト関数によってピークフィッティングを行い、このうちのガウス成分の分布幅を用いて、検出器由来のエネルギー分解能とした。ピークフィッティングにあたっては、自然幅は既知[4.6]であるため、ローレンツ分布の幅因子は固定パラメータとして、それ以外をフリーパラメータとした。エネルギーについては、既知の値があるものの、前項に記載した通り、校正曲線によりエネルギーを取得したため、校正曲線自体の不確かさを考慮してフリーパラメータとし、フィッティングによりピーク中心のエネルギーを求めた。の図4.26にLX線各領域のピークフィッティングの様子を、表4.6に各LX線の自然幅及び検出器由来のエネルギー分解能を示す。ピーク強度の小さい $L_{\alpha 2}$ 線や $L_{\beta 2,15}$ 線は、フィッティング誤差が20%程度となったが、主要ピークである $L_{\alpha 1}$ 線や $L_{\beta 1}$ 線についてはフィッティング誤差を含めても80eVより優れたエネルギー分解能を有することを確認した。

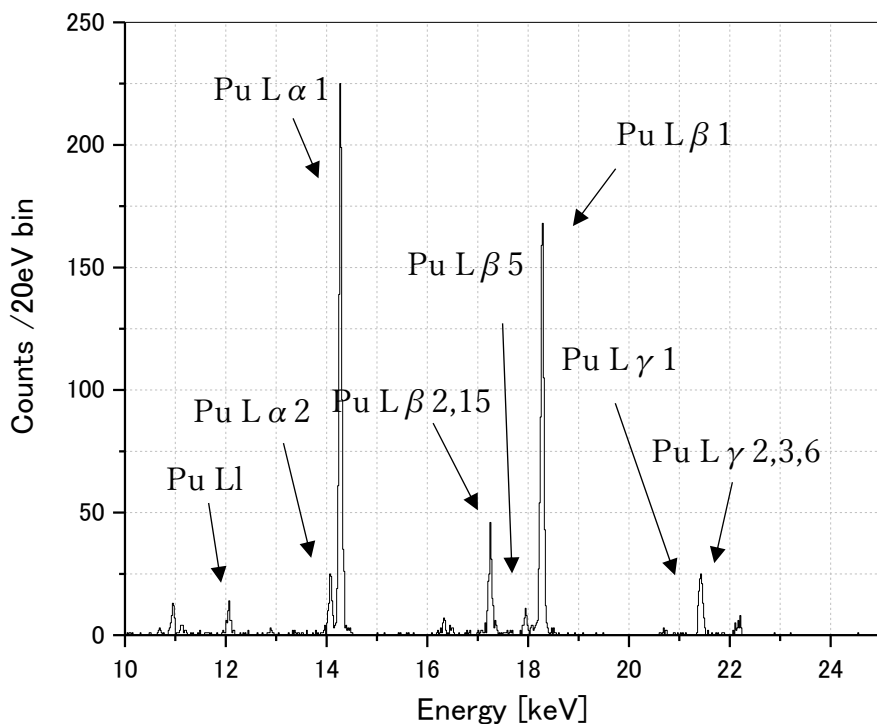
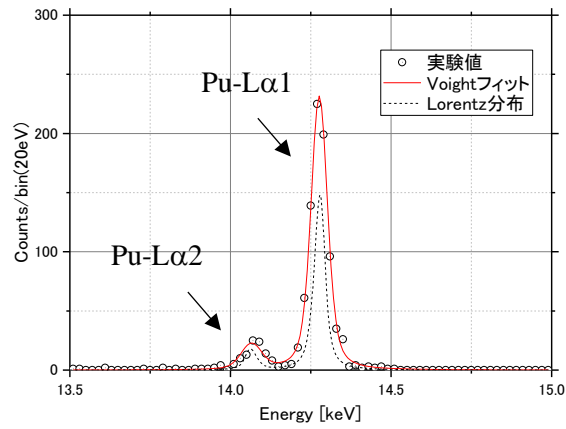
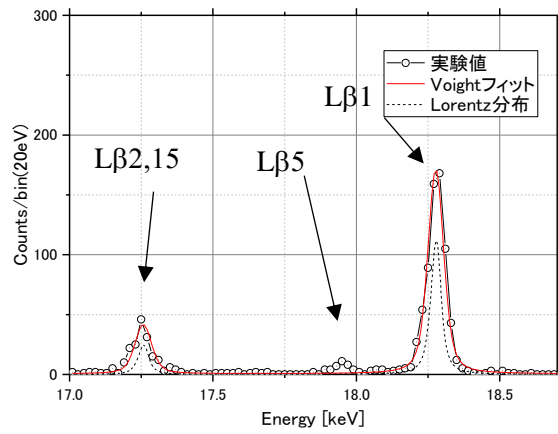


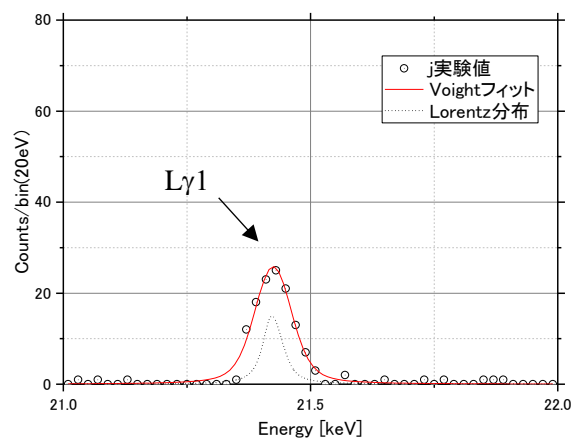
図 4.25 エネルギースペクトル



(a) L $\alpha$  領域



(b) L $\beta$  領域



(b) L $\gamma$  領域

図 4.26 ピークフィッティングの様子

表 4.6 自然幅及びエネルギー分解能

L X 線	エネルギー [keV]	自然幅[eV]	ピーク中心 [keV]	検出器のエネルギー分解能 [eV]
L $\alpha$ 2	14.09	12.27	14.066 $\pm$ 0.007	74.2 $\pm$ 13.3
L $\alpha$ 1	14.28	12.20	14.2781 $\pm$ 0.0006	55.8 $\pm$ 0.1
L $\beta$ 2,15	17.24	15.25※	17.257 $\pm$ 0.007	60.7 $\pm$ 12.1
L $\beta$ 1	18.30	13.79	18.276 $\pm$ 0.002	57.3 $\pm$ 2.7
L $\gamma$ 1	21.42	16.26	21.424 $\pm$ 0.003	82.9 $\pm$ 4.3

※主成分である L $\beta$ 2 の値

#### 4.1.9 各 L X 線成分の計数值と放出率評価

得られたエネルギースペクトルを用いて、<sup>244</sup>Cm から放出される L X 線の放出率評価を行った。放出率評価の手順を以下に示す。

- 1) エネルギースペクトルの各ピークについて関数適合を行う。適合関数は定数+ガウス関数とし、ピーク中心、ピーク面積、幅因子、定数を全てフリーパラメータとする。
- 2) 得られた関数からピーク面積 C を計算し、これを L X 線の計数とする。
- 3) 以下の式を用いて単位壊変あたりの L X 線放出率  $P_{LX}$  を求める。

$$P_{LX} = \frac{C}{\varepsilon \times \Omega \times A} \times \frac{1}{t} \quad (4.1)$$

ここで  $\varepsilon$  は計数効率、A は線源の放射エネルギー[Bq]、t は測定時間[s]、 $\Omega$  は立体角となる。計数効率については、

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu x} \quad (4.2)$$

により、線源- TES 間に存在する物質の減弱効率及び吸収体における吸収効率を計算し、さらに、幾何条件として立体角を掛け合わせて算出した。ただし、式(4.2)中の  $I/I_0$  は透過率、 $\mu$  は線減弱係数、x は透過する物質の厚さを表す。表 4.7 に減弱及び吸収に関する計算条件を示す。ただし、 $\mu$  は通過する光子のエネルギーに依存するため、L X 線成分毎に効率を評価した。減弱効率及び吸収効率とエネルギーの関係を図 4.27 に示す。その他、A は 4kBq、t は 194 h = 698400 s とした。また、 $\varepsilon$  については、TES を円板近似した場合の面積と線源面積及び両者の距離から解析的な計算により求め、 $1.03 \times 10^{-5}$  となった。得られた放出率を表 4.8 に示す。なお、誤差としては、フィッティングに由来する標準誤差、フィッティングによって得られた計数の標準誤差及び線源自体の放射能の標準誤差を考慮し、各々が独立であると仮定して評価した。

最後に本評価手法の妥当性を確認するために文献値[4.5]との比較を行った。ここで用いた



文献値は計算評価により取得した値である。比較の結果を表 4.9 に示す。本実験では、統計不足に伴う不確かさが大きいいため文献値に比べ誤差の大きい結果となった。LX 線成分の放出比率は同様の傾向を示したものの、評価値としては、文献値に比べ大きい値となる傾向が見られた。これは、立体角や吸収・減弱について、一部、近似的な想定を含めていることや、フィッティングの際にテール部を過少に評価している可能性があることが考えられる。これらの課題を解決するには、十分な統計量を取得すると共に、既知線源を用いた検出効率の評価やモンテカルロシミュレーション等を用いた体系の評価が有効であると考えられる。

表 4.7 減弱条件及び吸収条件

	材質	厚さ	用途
減弱条件	Au	0.052 $\mu\text{m}$	線源の密封性カバー
	Al	3 $\mu\text{m}$	$\alpha$ 線の遮蔽
	Polyimide	150 $\mu\text{m}$	$\alpha$ 線の遮蔽
吸収条件	Au	5 $\mu\text{m}$	吸収体

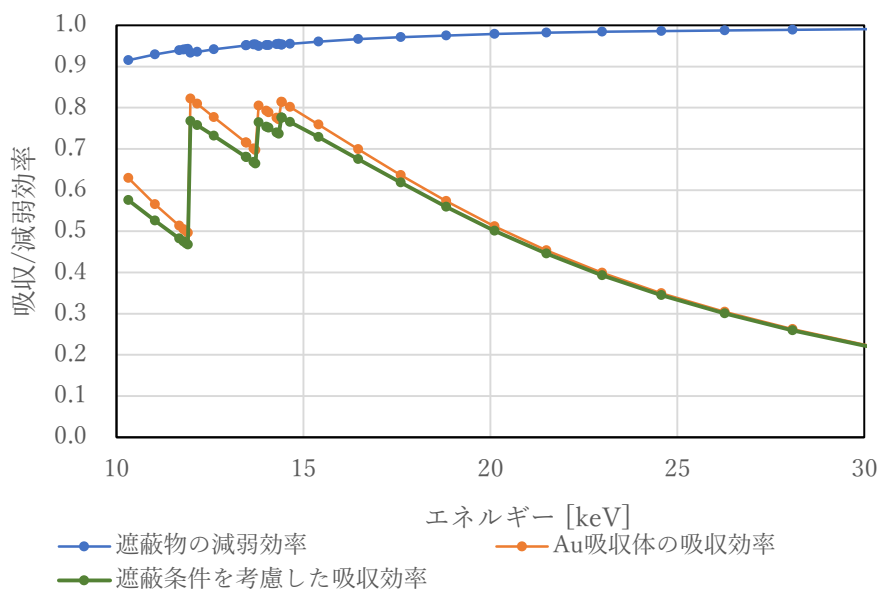


図 4.27 遮蔽条件を考慮した吸収効率

表 4.8 L X 線成分の計数値と放出率

L X 線	エネルギー [keV]	計数値 [counts]	効率 [%]	放出率 [%]
LI	12.12	42.4 ± 10.2	75.9	0.194 ± 0.047
Lα2	14.08	95.1 ± 12.7	75.0	0.440 ± 0.060
Lα1	14.28	775 ± 28	74.0	3.64 ± 0.18
L η	16.33	15.9 ± 19.2	68.1	0.0808 ± 0.0978
Lβ2,15	17.24	155 ± 24	63.6	0.847 ± 0.134
Lβ5	17.95	31.5 ± 20.0	60.1	0.182 ± 0.116
Lβ1	18.30	639 ± 33	58.4	3.79 ± 0.23
Lγ1	21.42	124 ± 12	44.9	0.958 ± 0.094

表 4.9 他研究者との評価値の比較

L X 線	エネルギー [keV]	本研究 [%]	文献値 [%]
LI	12.12	0.194 ± 0.047	0.214 ± 0.003
Lα2	14.08	0.440 ± 0.060	0.350 ± 0.010
Lα1	14.28	3.64 ± 0.18	3.03 ± 0.02
L η	16.33	0.0808 ± 0.0978	0.102 ± 0.02
Lβ2,15	17.24	4.82 ± 0.29	4.08 ± 0.03 <sup>※1</sup>
Lβ5	17.95		
Lβ1	18.30		
Lγ1	21.42	0.958 ± 0.094	0.991 ± 0.08 <sup>※2</sup>

※1 : Lβ 線トータルの値

※2 : Lγ 線トータルの値

## 4.2 <sup>237</sup>Np から放出される L X 線測定実験

### 4.2.1 システムセットアップ及び動作点設定

本実験には 3.2.1 に記載した「L X-TES」を使用した。線源を除くその他の使用機器及び配置については <sup>244</sup>Cm 測定実験に用いたものと同様であるため詳細については割愛する。

線源の仕様について表 4.10 に示す。<sup>237</sup>Np は半減期  $2.144 \times 10^6$  年[4.7]で <sup>234</sup>Pa に壊変するが、<sup>233</sup>Pa の半減期が 26.98 日[4.7]と短いため、放射平衡状態となっている。よって、L X 線領域においては、Pa の特性 X 線に加え、Pa の娘核種である U の特性 X 線も存在するため、<sup>244</sup>Cm に比べ、さらに複雑なスペクトルとなる。

動作点についても、 $^{244}\text{Cm}$  測定実験と同様の方法で決定した。本実験では使用した LX-TES の超伝導転移温度が約 180mK であったため、冷熱浴温度を 150mK に設定し IV 特性を取得した。その後、SQUID 増幅器の FLL の安定性を考慮して動作点を決定した。動作点の情報を表 4.11 にまとめる。

表 4.10 線源仕様 ( $^{237}\text{Np}$ )

線源種類	電着線源
放射能径	5mm
電着板材質	プラチナ
密封用カバー	有：100 $\mu\text{g Au/cm}^2$
放射能量	222 $\pm$ 8 Bq (窓なしガスフロー比例計数管にて評価)
標識年月日	2014.1.15
同位体純度	Pa-233 が放射平衡として存在 (222 Bq)

表 4.11 動作点の情報

パラメータ	設定値	備考
冷熱浴温度	150mK	コールドステージ温度にて設定
温度コントローラーPID 制御パラメータ	P : 100s 、 I : 50s、 D : 0s	コールドステージ温度に 適用
バイアス電流	370 $\mu\text{A}$	-
動作時 TES 抵抗値	22.4m $\Omega$	-
SQUID 電圧変換係数	166.9 $\mu\text{A/V}$	-

#### 4.2.2 LX 線パルス解析

測定期間 45.5h に対して総取得パルス数は 10000 カウントであった。取得したパルスに対して、 $^{244}\text{Cm}$  測定実験と同様に図 4.13 に示すフローに従って、パルス解析を行い、エネルギースペクトルを取得した。

取得した信号パルスについて選別を行った。 $^{244}\text{Cm}$  測定時と使用している TES が異なるため、立ち上がり時間及び減衰時定数については、異なる結果が得られた。しかし、信号パルスの種類は同様であったため、立ち上がり時間及び減衰時定数にて範囲を設定し、範囲内に存在

する信号パルスのみを採用した。

選別した信号パルスに対して、図 4.28 に示す最適フィルタテンプレートを適用した。最適フィルタテンプレートは、選別した全てのパルスの平均により作成したモデルパルス、及び本実験条件におけるノイズスペクトルから作成した。その後、動作点補正及びエネルギー校正を実施した後、図 4.29 に示すエネルギースペクトルを取得した。 $^{237}\text{Np}$  線源から放出される LX 線スペクトルでは、 $^{244}\text{Cm}$  線源と異なり、L X 線領域全体でバックグラウンド（ピークがない領域の計数）が高くなっていることが確認された。これは、連続するエネルギーを有する光子の入射であると理解できるため、 $^{237}\text{Np}$  の娘核種である  $^{233}\text{Pa}$  が放出する  $\beta$  線 ( $\beta$  max: 570keV) の制動放射に起因するものと思われる。

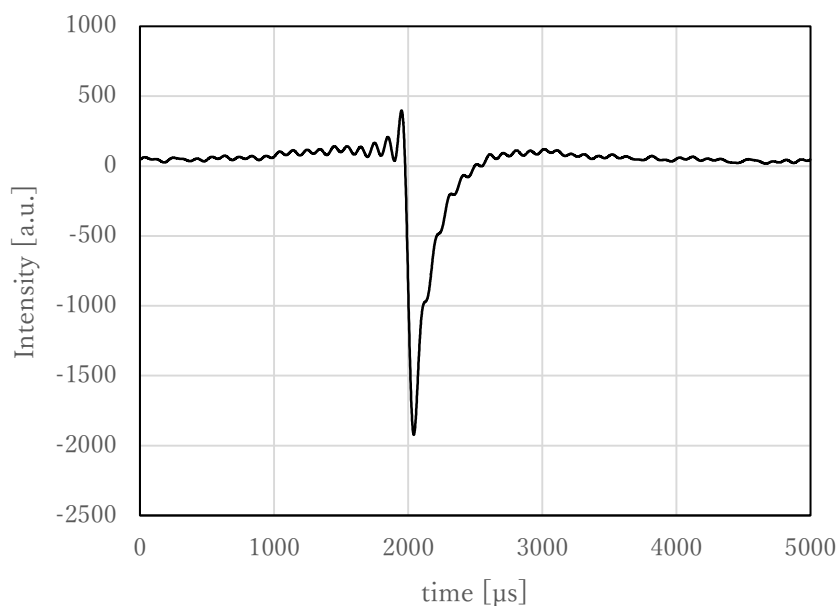


図 4.28 最適フィルタテンプレート

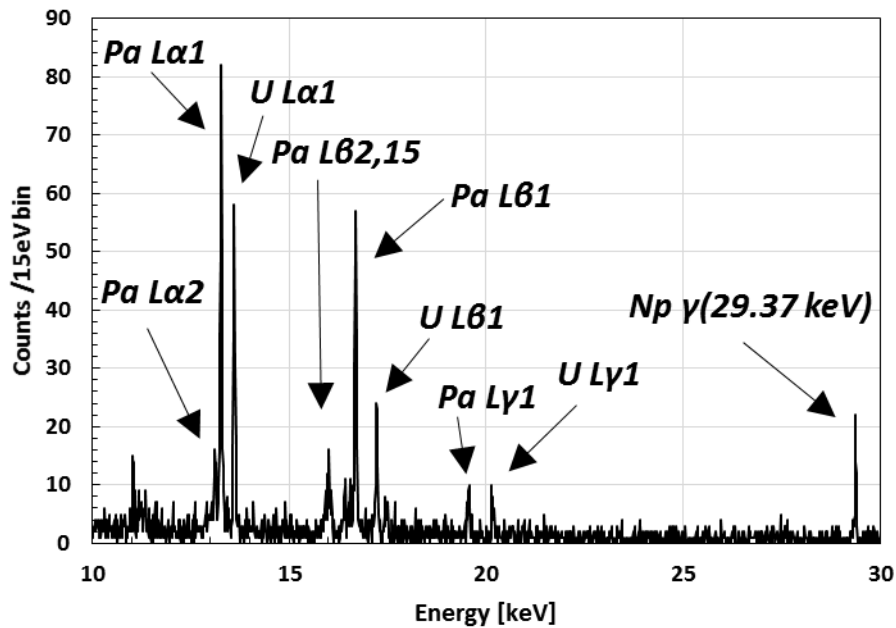


図 4.29  $^{237}\text{Np}$  線源 L X 線エネルギースペクトル

#### 4.2.3 各 L X 線成分の計数値と放出率評価

得られたエネルギースペクトルを用いて、 $^{237}\text{Np}$  から放出される L X 線の放出率評価を行った。放出率評価は  $^{244}\text{Cm}$  線源の場合と同様の方法としたが、 $^{237}\text{Np}$  からは放出率が既知の  $\gamma$  線 (29.37keV) が十分な強度で放出される。よって、当該  $\gamma$  線を用いて、幾何的な効率を評価した後、各 L X 線の放出率を評価した。評価した放出率を表 4.12 にまとめる。また、文献値 [4.8] との比較を表 4.13 に示す。文献値はゲルマニウム半導体検出器を用いた測定によって得られた値である。なお、誤差については、 $\gamma$  線により決定した幾何的な効率については考慮しないものとして、それ以外については  $^{244}\text{Cm}$  線源測定時と同様に、フィッティング誤差、計数誤差、線源の放射能誤差を用いて評価した。

文献値との比較の結果、Schotzig らの評価とは、誤差の範囲内でおおむね一致する値が確認された。一方、Shchukin らの評価と比較すると、本研究で得られた値は高めの評価結果となった。また、主要な L X 線成分では、同等の評価精度であったが、放出率の低い L X 線では、統計的な誤差が大きく、文献における評価精度に比べ劣っていることが確認された。評価精度向上には  $^{244}\text{Cm}$  線源測定時と同様に、計数効率を向上させ、十分な統計量に基づく評価が必要となるが、文献値との同等の結果が得られたことにより、本手法による評価方法の妥当性が確認された。

表 4.12  $^{237}\text{Np}$  線源から放出される L X 線の放出率評価結果

L X 線	エネルギー [keV]	計数值 [counts]	効率 [%]	放出率 [%]
Pa-L $\alpha$ 2	13.13	44.2 $\pm$ 12.5	70.0	3.73 $\pm$ 1.07
Pa-L $\alpha$ 1	13.29	249 $\pm$ 20	69.1	21.3 $\pm$ 1.9
Pa-L $\beta$ 2,15	16.01	20.7 $\pm$ 11.4	69.8	6.66 $\pm$ 1.88
Pa-L $\beta$ 1	16.71	218 $\pm$ 20	66.3	19.4 $\pm$ 1.9
Pa-L $\gamma$ 1	19.57	81.3 $\pm$ 14.9	52.6	9.12 $\pm$ 1.71
U-L $\alpha$ 2	13.44	16.1 $\pm$ 11.3	68.2	1.39 $\pm$ 0.98
U-L $\alpha$ 1	13.62	173 $\pm$ 17	67.1	15.3 $\pm$ 1.6
U-L $\beta$ 2,15	16.41	38.7 $\pm$ 10.2	67.8	3.37 $\pm$ 0.90
U-L $\beta$ 1	17.22	112 $\pm$ 14	63.7	10.4 $\pm$ 1.3
U-L $\beta$ 3	17.45	28.9 $\pm$ 9.3	62.6	2.72 $\pm$ 0.88

表 4.13  $^{237}\text{Np}$  線源から放出される L X 線の放出率評価結果と文献値との比較

L X 線	エネルギー [keV]	本研究 [%]	文献値 [%]	
			Shcotzig et al. (2000)	Shchukin et al. (2004)
Pa-L $\alpha$ 2	13.13	25.0 $\pm$ 2.2	26.0 $\pm$ 2.8	23.3 $\pm$ 2.4
Pa-L $\alpha$ 1	13.29			
U-L $\alpha$ 2	13.44	16.7 $\pm$ 1.9	15.7 $\pm$ 0.7	12.7 $\pm$ 1.3
U-L $\alpha$ 1	13.62			
Pa-L $\beta$ 2,15	16.01	6.66 $\pm$ 1.88	7.91 $\pm$ 0.29	6.3 $\pm$ 0.06
Pa-L $\beta$ 4	16.10			
Pa-L $\beta$ 5	16.64	28.7 $\pm$ 2.7	27.4 $\pm$ 1.1	23.7 $\pm$ 1.7
Pa-L $\beta$ 1	16.71			
Pa-L $\beta$ 3	16.93			
U-L $\beta$ 2,15	16.41			
U-L $\beta$ 4	16.58			
U-L $\beta$ 5	17.07	14.4 $\pm$ 1.8	11.5 $\pm$ 0.5	11.1 $\pm$ 0.7
U-L $\beta$ 1	17.22			
U-L $\beta$ 3	17.45			

## 5 TES 型マイクロカロリメータを用いた内部被ばく線量評価に関する考察

### 5.1 はじめに

これまで、TES 型マイクロカロリメータを用い代表的な TRU に対する測定を実施し、L X 線スペクトロメトリーによる核種の定性及び定量について十分な性能を有することを確認した。しかし、上記の性能については、標準線源単体を用いた場合の理想的な環境におけるものであり、実際の内部被ばく線量評価に応用する場合は、より複雑な測定条件となる。具体的には、核種については、単一核種である可能性は低く TRU 核種が混在していることが多く、さらに、肺モニタへの適用では、胸部厚さや自己吸収によるスペクトルの減弱等を考慮しなければならない。本章では、これまでの実験データを用いて、現実的な内部被ばく評価へ適用するにあたり憂慮すべき事項に対する考察を行う。

### 5.2 TRU 核種の混在に関する考察

#### 5.2.1 TRU 組成について

TRU 核種による吸入事故を想定した場合、発生する可能性がある施設区分としては、核燃料使用施設、再処理施設、加工施設等が挙げられる。核燃料物質や TRU を非密封で扱う場合は、原則としてセルやグローブボックス等の内側にて取り扱うことで内部被ばくの発生を防止する。しかし、グローブボックスのグローブ破損や、セル内作業等の場合は、防護具の着用不備や、その他事故的な要因から内部被ばく事故が発生する可能性がある。また、それ以外にも、地震や津波、竜巻等の激甚災害による内部被ばく事故についても想定される。

いずれのケースについても、内部被ばく事故が起こった場合は、取り扱う核種の情報収集を行う。一方で、肺モニタの測定についても並行して実施することとなるため、測定そのもので核種の弁別ができることが望ましい。また、吸入時の化学形や物理状態が工程情報と一致しない場合も考えられるため、測定精度という面でも核種の弁別を行うことが重要となる。

既存の Ge 半導体検出器では TRU 組成比によっては L X 線領域においてピークの弁別が困難となる可能性がある (2.4 参照)。しかし、TES 型マイクロカロリメータによる高分解能測定では、ピークの弁別による核種同定 (X 線なので、正確には元素同定) について期待される。実際に校正用線源を用いた任意強度比の  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$  の混在条件において、ピークの弁別性に問題ないことを確認している (3.2 項参照)。ここでは、現実的に存在するであろう TRU 組成について、TES 型マイクロカロリメータを用いた L X 線スペクトロメトリーによるピーク

弁別性を確認する。

TRU 組成としては、本項最初に掲げた施設区分のうち、再処理施設について着目した。再処理施設では種々の核燃料物質及び放射性物質（TRU を含む）の集合体を取り扱うが、TRU 組成はこれらの集合体毎に異なる。再処理施設で取り扱う TRU 組成として、大きく分けて以下の 3 つとなる。

- 1) 使用済み燃料
- 2) 核燃料溶液：再処理工程の一つである分離・抽出工程により Pu のみを抽出した溶液
- 3) 高放射性廃液：使用済み燃料中から U、Pu を抽出した後に残る溶液

これら 3 つの代表的な TRU 組成について L X 線スペクトルのピーク弁別性を評価することで、その他の施設の現実的な TRU 組成についても、ある程度、包括されるものと考えられる。代表的な TRU 組成については、ORIGEN[5.1]計算及び文献[5.2]等により求めた。ただし、Pu 同位体のうち  $^{241}\text{Pu}$  については L X 線の放出率が著しく低い ( $\sim 1.1 \times 10^{-3} \%$ ) のため除外した。表 5.1 に  $^{241}\text{Pu}$  を除く代表的な TRU 組成比を示す。

表 5.1 代表的な TRU 組成比 (Bq 比率)

核種	使用済燃料 <sup>※1</sup>	核燃料溶液	高放射性廃液
$^{238}\text{Pu}$	0.036	0.529	<0.001
$^{239}\text{Pu}$	0.009	0.109	<0.001
$^{240}\text{Pu}$	0.012	0.180	<0.001
$^{242}\text{Pu}$	<0.001	0.001	- <sup>※2</sup>
$^{237}\text{Np}$	<0.001	- <sup>※2</sup>	<0.001
$^{241}\text{Am}$	0.013	0.180	0.506
$^{244}\text{Cm}$	0.931	- <sup>※2</sup>	0.493
計	1	1	1

※1 ORIGEN 計算値

(初期濃縮度 4%, PWR 比出力 35MW/tU, 燃焼度, 28GWd/tU, 冷却日数 180day)

※2 分析結果なし

## 5.2.2 核種毎のモデル L X 線スペクトル

表 5.1 に示した TRU 組成に対して、TES 型マイクロカロリメータで測定した場合の核種毎の L X 線スペクトルの形状について考察する。第 1 章で記載した通り、明確なピーク弁別に基づく L X 線放出率の実測データはない。よって、これまでの実験にて TES 型マイクロカロリメータによって得られた L X 線スペクトルを用いて、TRU 混在時の L X 線スペクトル及



びピークの弁別性について評価することとした。しかし、実験で得られた LX 線スペクトルは統計量が少なく、ピークの形状が一部不鮮明なものも見られた。そこで、ピークフィッティングを行い、その結果から核種毎のモデル LX 線スペクトルを作成した。なお、実際の肺モニタに適用する場合は、胸部厚さや自己吸収による減弱の違いからスペクトル形状が変化することが考えられるが、近接したエネルギーにおいては、減弱係数が大きくかわらないことから、ピーク弁別性には大きく寄与しないと考え、これらの影響については考慮しないこととした。

Pu を除く核種については、核種単体毎の LX 線スペクトルデータからピークフィッティングを行いモデル LX 線スペクトルを作成した。ピークフィッティングでは、中心エネルギーのみを固定して、幅因子及び面積因子についてはフリーパラメータとした。つまり、エネルギー分解能については、核種測定時における実際の TES 型マイクロカロリメータの実力値が反映されることになる。ただし、幅因子については、現実的な TES のエネルギー分解能を考慮して、FWHM が 200eV 未満という制限値を設けた。なお、Pu 同位体については、 $^{239}\text{Pu}$  の LX 線スペクトルを用いて、各同位体の LX 線成分の放出比が同等（つまり、各同位体における LX 線スペクトルの形状は同一）であると仮定して、モデル LX 線スペクトルを作成した。

このようにして得られたスペクトルは、最終的に単位壊変数あたりの総 LX 線放出率で規格化を行い各核種のモデル LX 線スペクトルとした。各モデル LX 線スペクトルに放射エネルギー (Bq) を掛けることで、任意の放射エネルギーにおける LX 線スペクトルが得られる。なお、単位壊変数あたりの総 LX 線放出率は各種文献値を用いた。作成した核種毎のモデル LX 線スペクトルを図 5.1~5.4 に示す。

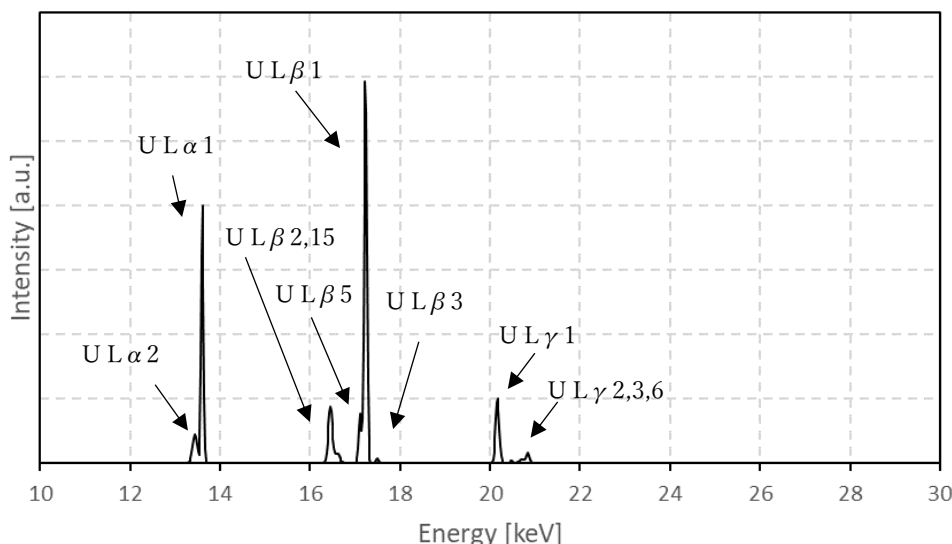


図 5.1  $^{239}\text{Pu}$  モデル LX 線スペクトル

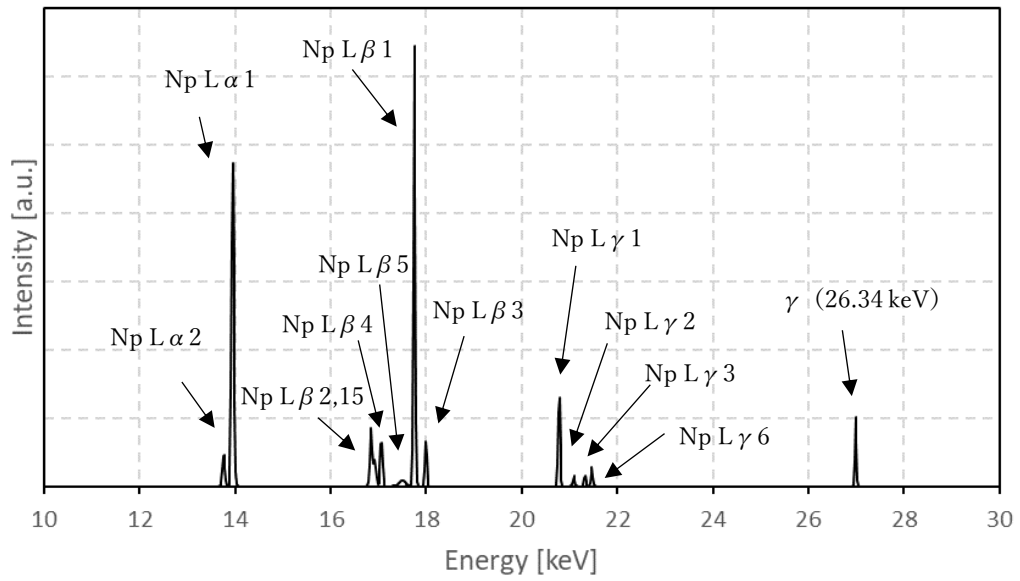


図 5.2  $^{241}\text{Am}$  モデル L X 線スペクトル

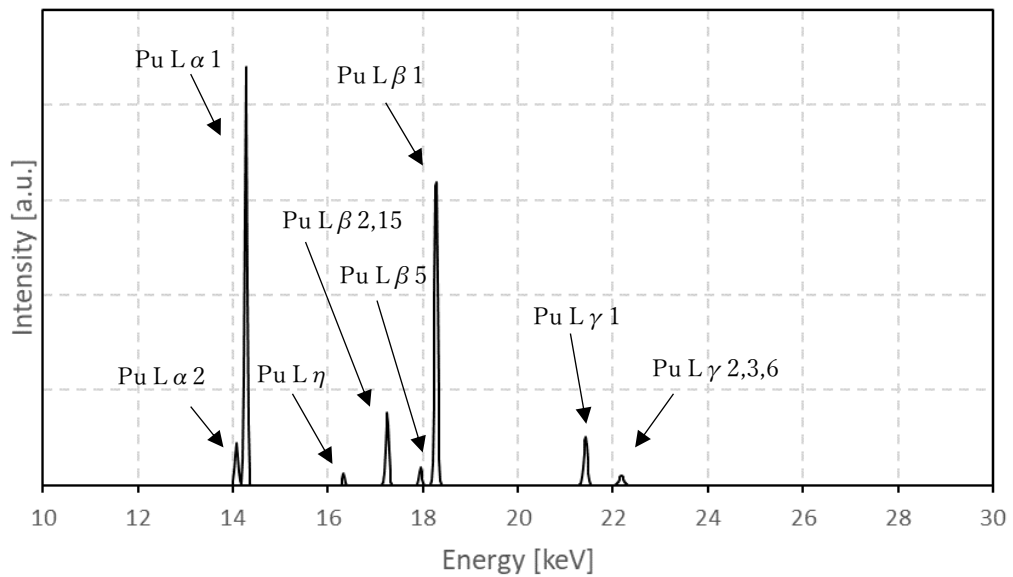


図 5.3  $^{244}\text{Cm}$  モデル L X 線スペクトル

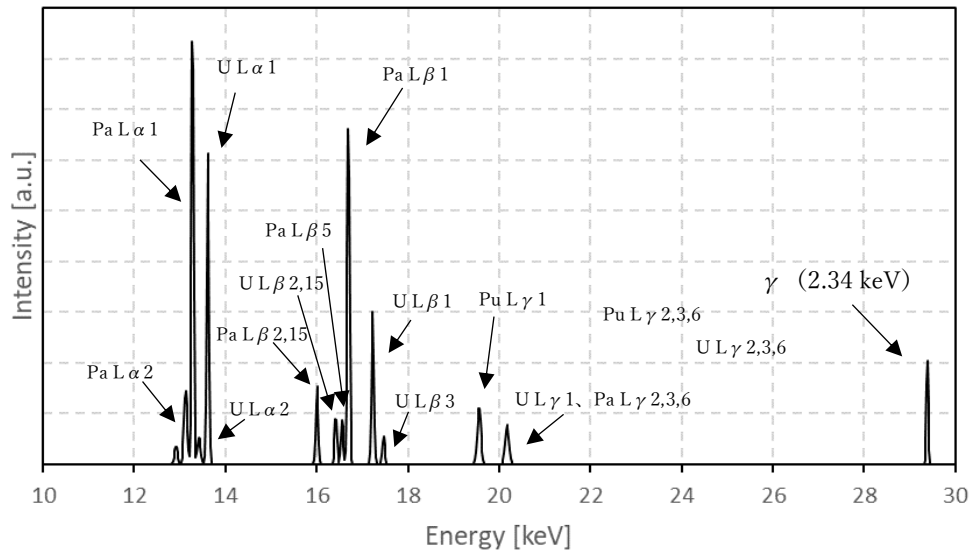


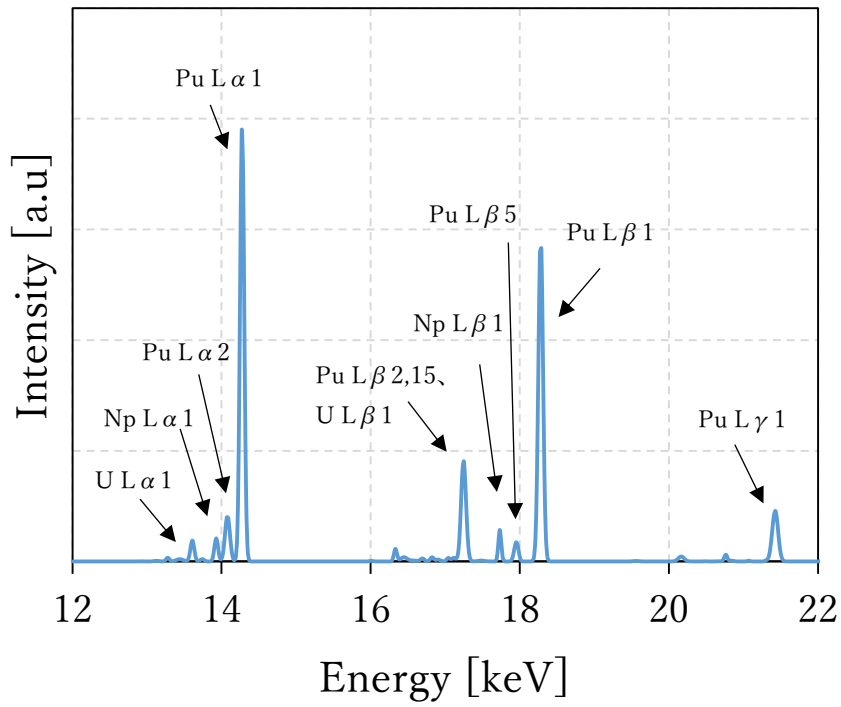
図 5.4  $^{237}\text{Np}$  モデル L X 線スペクトル

### 5.2.3 代表的な TRU 組成における L X 線スペクトル

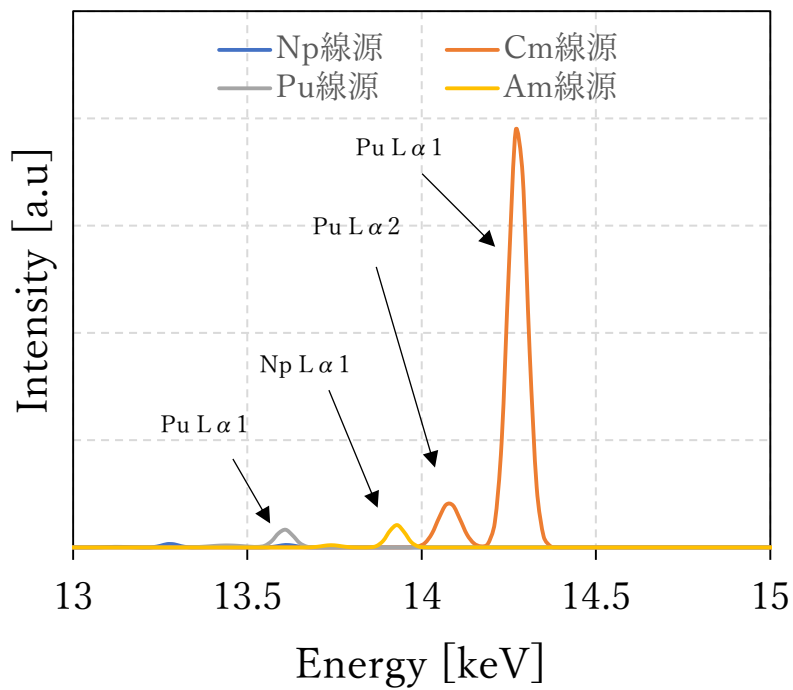
前項にて作成したモデル L X 線スペクトルと表 5.1 の組成比を用いて、代表的な TRU 組成における L X 線スペクトルを作成した。表 5.1 中で「<」となっている核種については、その値が存在するものとして結果に反映した。作成した TRU 組成毎の想定される L X 線スペクトルを図 5.5~5.7 に示す。

図より、Lα領域については、明確にピーク弁別されていることが確認された。現実的なスペクトルでは、さらにマイナーな核種の影響や、高放射性廃液では、 $^{137}\text{Cs}$  に代表される核分裂生成物からの放射線の影響を受ける。しかし、L X 線領域である 10~25keV でピークを有する核種はないため、ピーク弁別自体への影響はないと考えられる。一方で、スペクトル解析におけるバックグラウンドレベルの上昇があるため、検出下限値への影響については考慮する必要がある。

以上の結果より、TES 型マイクロカロリメータを現実的な TRU 組成に対する測定に応用した場合でも、L X 線ピーク弁別を用いた定量的な測定が可能であると言える。

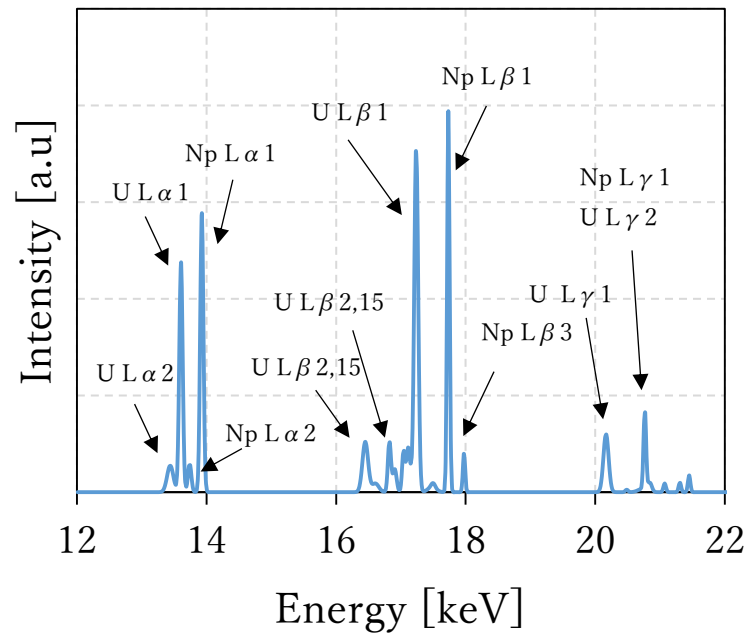


(a) L X 線領域全体 (全核種合算)

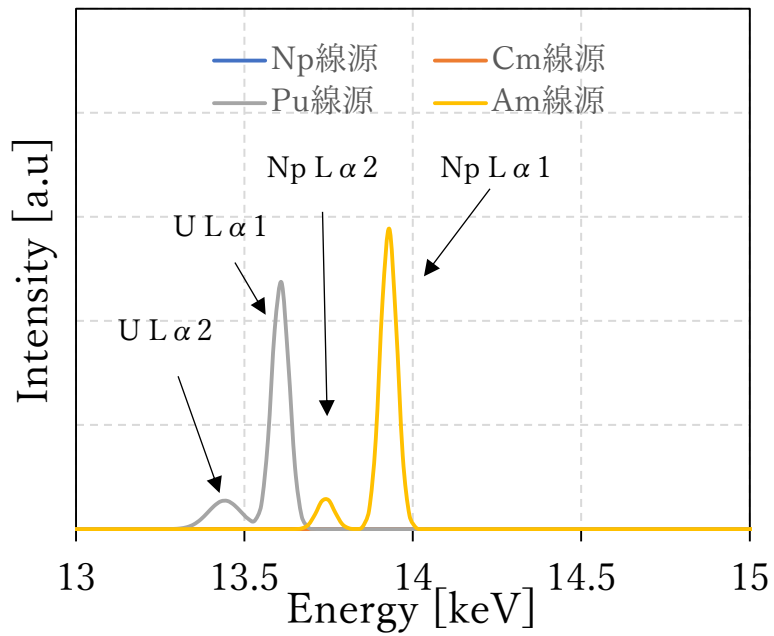


(b) L $\alpha$  領域拡大 (核種別)

図 5.5 使用済み燃料を想定した場合の L X 線スペクトル

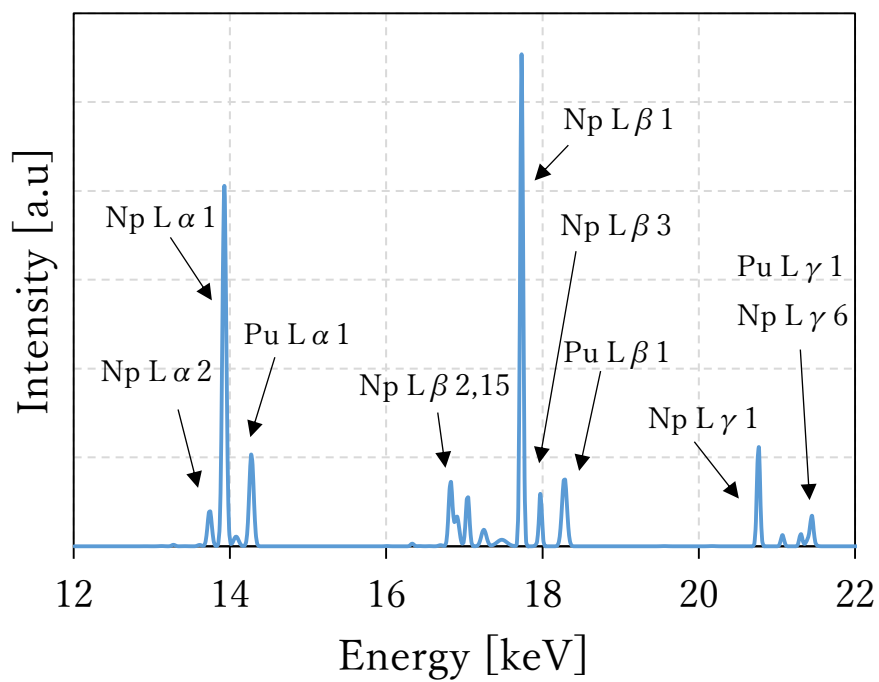


(a) LX線領域全体（全核種合算）

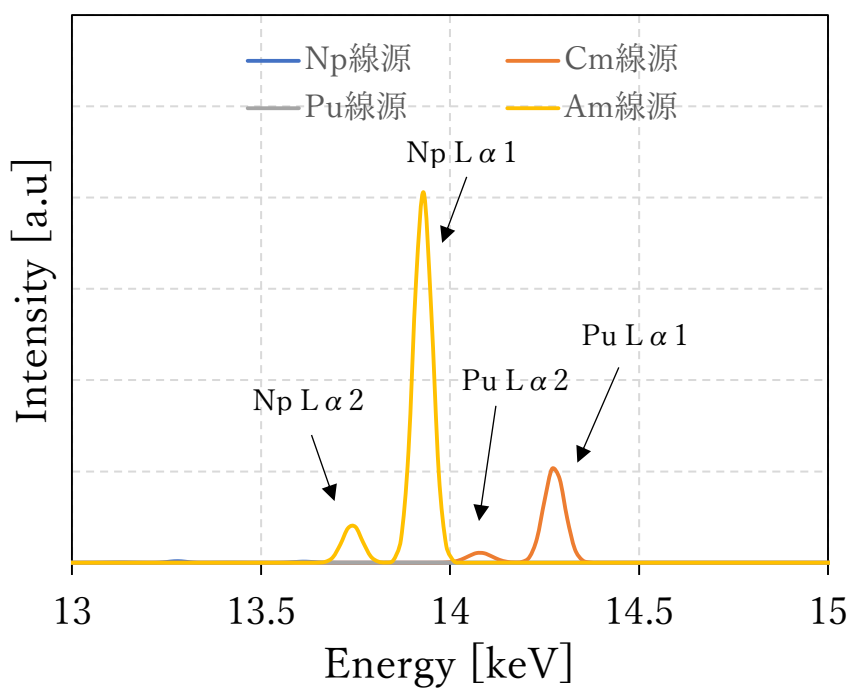


(b)  $L\alpha$ 領域拡大（核種別）

図 5.6 核燃料溶液を想定した場合の LX線スペクトル



(a) LX線領域全体（全核種合算）



(b)  $L\alpha$ 領域拡大（核種別）

図 5.7 高放射性廃液を想定した場合の LX 線スペクトル

## 5.3 検出下限値に関する考察

### 5.3.1 検出下限値について

一般的な放射線計測では、検出下限値は測定評価結果の値が有意であるか否かの判定基準値として用いられる。つまり、測定又は評価の結果が、検出下限値未満であれば、放射性物質が存在する可能性が低く、場合によっては放射性物質が「ない」ものとして考えることもある。検出下限値の考え方としては、ある放射エネルギーに相当する計数値の誤差が許容できるか否かの観点で定めるものがある。許容値として正味計数値そのものを用いる場合は、正味計数値を  $R$ 、その誤差を  $\sigma_R$  とすると、

$$\sigma_R \leq fR \quad (5.1)$$

を満たす正味計数  $R$  の場合、検出されたと判定する [5.3]。ここで  $f$  は測定者が任意で定める信頼指標であり、より一般的には、 $f$  の逆数を  $n$  とした、

$$n\sigma_R \leq R \quad (5.2)$$

と表記し、 $n=3$  を用いることが多い。バックグラウンド計数を  $B$ 、その誤差を  $\sigma_B$  とすると、測定器の計数値  $G$  は、 $G = R + B$  (つまり、 $R = G - B$ ) であるため、その誤差  $\sigma_G$  は  $\sqrt{R + B}$  となる。このとき、

$$\sigma_R = \sqrt{\left(\frac{\partial R}{\partial G}\right)^2 \sigma_G^2 + \left(\frac{\partial R}{\partial B}\right)^2 \sigma_B^2} = \sqrt{R + B + \sigma_B^2} \quad (5.3)$$

となる。これを式(5.2)に代入して、 $R$  について解くと、

$$R = \frac{n^2}{2} \left\{ 1 + \sqrt{1 + \frac{4(B + \sigma_B^2)}{n^2}} \right\} \quad (5.4)$$

が得られる。こうして得られた  $R$  を検出限界計数として、これを測定時間と検出効率で除した値を検出下限値として用いる。

スケーラー等を用いた放射能測定の場合は、 $B$  は単純にバックグラウンド試料(ブランク試料)の測定結果を採用すれば良く、また  $\sigma_B^2 = B$  となる。しかし、スペクトル解析の場合は、バックグラウンドの考え方に注意する必要がある。スペクトル解析におけるバックグラウンドは、ピーク領域の外側(上下両方)の平坦な連続部分の面積から求める [5.4]。ピーク領域の下端チャンネルを  $L$ 、上端チャンネルを  $U$  とし、ピーク領域の外側の幅  $m$  チャンネル分からバックグラウンド

面積を推定する場合、その領域の面積  $S$  は、

$$S = \sum_{i=L-m}^{L-1} C_i + \sum_{i=U+1}^{U+m} C_i \quad (5.5)$$

で与えられる。ここで  $C_i$  はチャンネル  $i$  の計数値である。このとき、ピーク領域のチャンネル

幅を  $w$  とすると、推定するバックグラウンド面積  $B$  は、

$$B = S \times \frac{w}{2m} = \frac{w}{2m} \left( \sum_{i=L-m}^{L-1} C_i + \sum_{i=U+1}^{U+m} C_i \right) \quad (5.6)$$

となる。よって、バックグラウンドの誤差  $\sigma_B$  は、

$$\sigma_B = \frac{w}{2m} \sqrt{\sum_{i=L-m}^{L-1} C_i + \sum_{i=U+1}^{U+m} C_i} \quad (5.7)$$

となる。式 (5.6) 及び式(5.7)を式 (5.4) に代入することで、スペクトル解析における検出下限値を求めることができる。なお、ここでは、ピーク領域の両端から外側が平坦である場合のバックグラウンド面積の推定方法を述べた。測定によっては、妨害ピークがある場合や、ピーク両端に特徴的な形状がある場合も考えられる。その場合は、妨害ピークのピーク面積誤差や、ピーク領域外側のチャンネル幅を上下で変更する等の措置を講じることで、バックグラウンド面積及びその誤差の推定を行うことができる[5.5]。

### 5.3.2 Pu 測定における検出下限値について

上記の検出下限値の考え方をもとに、内部被ばく評価において、最も重要な核種である  $^{239}\text{Pu}$  に対して、TES 型マイクロカロリメータによる測定を行った場合の検出下限値を見積もった。検出下限値の見積もりには、5.2 項に記載したモデル L X 線スペクトル作成時に使用した測定データを採用した。

検出下限値として式(5.4)を採用する場合は、重要となるのはピーク面積ではなく、バックグラウンド面積となる。バックグラウンド面積は、スペクトル形状からピークが見られない位置を任意に選択する。バックグラウンド領域の選択チャンネル幅  $2m$  は平坦なバックグラウンド領域では 3~4 程度チャンネル以上の幅をとっても検出下限値の向上には寄与しない。よって、今回の評価では、バックグラウンド領域幅  $2m$  としてはピーク領域幅  $w$  と同程度とした。

TRU から放出される L X 線は多数の成分を有しているため、測定によって得られる L X 線スペクトルには、単一核種に起因するピークが複数存在する。よって、主要かつ明確なピークとして観測された  $L\alpha_1$ 、 $L\beta_1$  及び  $L\gamma_1$  に対して、それぞれのバックグラウンド領域を求め、相当する検出下限計数を算出した。検出効率  $\varepsilon$  はピーク面積  $R_d(\text{counts})$ 、線源強度  $A(\text{Bq})$  及び測定時間  $T(\text{s})$  を用いて

$$\varepsilon = \frac{R}{AT} \quad (5.8)$$

となる。これは、ピークに相当する L X 線成分の放出率を含んだ値である。検出下限計数に対して検出効率  $\varepsilon$  及び測定時間  $T$  で除することで、今回の測定における検出下限値が得られる。測定条件及びピーク解析条件を表 5.2 に、検出下限値を表 5.3 にまとめる。今回の測定における検出下限値は約 5~10kBq となった。



表 5.2 測定条件及びピーク解析条件

測定条件	線源及び強度	$^{239}\text{Pu}$ : 185 kBq	
	線源形状	リンパ形状線源	
	線源配置	希釈冷凍機 X 線入射窓近傍	
	実測定時間	160 時間 (約 7 日)	
ピーク解析条件	チャンネル幅	20eV/1ch	
	ピーク面積幅	L $\alpha$ 1	10ch : 13.50~13.70 keV
		L $\beta$ 1	10ch : 17.14~17.34 keV
		L $\gamma$ 1	13ch : 20.02~20.28 keV
	バックグラウンド面積幅	L $\alpha$ 1	下側) 5ch : 13.20~13.30 keV 上側) 5ch : 13.70~13.80 keV
		L $\beta$ 1	下側) 5ch : 16.90~17.00 keV 上側) 5ch : 17.54~17.64 keV
		L $\gamma$ 1	下側) 7ch : 19.86~20.00 keV 上側) 5ch : 20.98~21.12 keV

表 5.3 Pu 測定における検出下限値

LX 線	バックグラウンド面積 (counts)	バックグラウンド面積誤差 (counts)	検出限界計数 (counts)	検出下限値 (Bq)
L $\alpha$ 1	40	6.32	31.71	$8.78 \times 10^3$
L $\beta$ 1	38	6.16	31.03	$4.91 \times 10^3$
L $\gamma$ 1	9	3.00	18.00	$1.29 \times 10^4$

### 5.3.3 肺モニタ適用時の検出下限値について

前項にて評価した検出下限値は、冷凍機入射窓の近傍に小体積のプルトニウム線源が存在すし、さらに、測定時間を約 7 日間要した場合である。実際の肺モニタでは、測定時間が 30 分であり、また、検出器-線源間には数 cm の胸部組織が存在する。よって、今回用いた TES 型マイクロカロリメータをそのまま肺モニタに適用した場合の検出下限値は、現状の肺モニタに比べて著しく劣ることとなる。具体的には以下のように見積もられる。

今回の測定で得られた 7 日間あたりバックグラウンド面積  $B_{30\text{min}}$  より 30 分あたりバックグラウンド面積  $B_{30\text{min}}$  は  $B_{30\text{min}} = B_{7\text{day}} \times (30 / (7 \times 24 \times 60))$  となる。肺モニタ測定における胸部厚さ

による減弱は約 90%であるため、検出効率をさらに 1/10 として肺モニタ適用時の検出下限値を見積もると表 5.4 となる。

既存の肺モニタでは検出下限値が 5kBq 程度となるため、TES 型マイクロカロリメータによる検出下限値はこれに及ばないこととなる。検出下限値に大きく影響を及ぼすものとしては、バックグランド面積と検出効率である。バックグランド面積については、Ge 半導体検出器では環境放射線入射に伴うコンプトン連続部が存在するのに対して、TES 型マイクロカロリメータの場合は、高いエネルギーの光子とのイベントが起こりにくいため、バックグランド面積については優れていると考えられる。実際に、今回測定では別な遮蔽を施してはいなかったが、L X 線スペクトル領域において、Ge 半導体検出器のような明確なコンプトン連続部が観測されなかった。一方、検出効率については、TES 型マイクロカロリメータの有感面積が非常に小さいため、Ge 半導体検出器に比べ、大きく劣ることになる。そのため、TES 型マイクロカロリメータを肺モニタに適用するためには、多ピクセル化による有感面積の向上が必要となる。その他、冷凍機内のジオメトリの向上等を考慮しても、多ピクセル化の要求としては、1000ch 以上で既存 Ge 半導体検出器と同等の検出限界を有することが想定される。

仮に、256ch の TES 型マイクロカロリメータを 4 式搭載した肺モニタを考える場合、その 1 式あたりの有感面積は、吸収体のサイズを本研究で使用した L X-TES と同じ  $150 \times 150 \mu\text{m}^2$  とすると、約  $0.058 \text{cm}^2$  と見積もられる。肺モニタに用いられている HPGe 半導体検出器は 1 台あたり  $50 \text{cm}^2$  程度であるため、有感面積あたりの検出限界で比較すると 1000 倍程 TES 型マイクロカロリメータの方が優れていることになる。よって、多ピクセル化で有感面積を増やすことで、既存の HPGe 半導体検出器を上回る検出下限値を有する肺モニタとなることが期待される。

表 5.4 肺中の Pu 測定における検出下限値の見積もり

L X 線	バックグランド面積 (counts)	バックグランド面積誤差 (counts)	検出限界計数 (counts)	検出下限値 (Bq)
L $\alpha$ 1	$1.20 \times 10^{-1}$	$3.45 \times 10^{-1}$	9.23	$8.59 \times 10^6$
L $\beta$ 1	$1.13 \times 10^{-1}$	$3.36 \times 10^{-1}$	9.22	$4.90 \times 10^6$
L $\gamma$ 1	$2.68 \times 10^{-2}$	$1.64 \times 10^{-1}$	9.05	$2.17 \times 10^7$

## 5.4 胸部厚さの評価に関する考察

### 5.4.1 L X 線スペクトロメトリーによる胸部厚さの推定方法

肺モニタ測定では 2.4 項に記載した通り胸部厚さの減弱の影響を考慮しなければならない。

胸部厚さ  $x$  を透過する光子の強度  $I$  は

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (5.9)$$

で与えられる。ここで、 $I_0$  は入射光子強度で  $\mu$  は線減弱係数である。線減弱係数は、物質及び入射光子エネルギー毎に異なる。異なるエネルギーを有する光子 A 及び B のある物質（厚さ  $x$ ）における減弱について考えた場合、それぞれのエネルギーに対する線減弱係数を  $\mu_A$  及び  $\mu_B$  とすると、

$$I_A = I_{0A} e^{-\mu_A x} \quad (5.10)$$

$$I_B = I_{0B} e^{-\mu_B x} \quad (5.11)$$

となる。ここで  $I_A$  及び  $I_B$  は光子 A 及び B の透過後強度であり、 $I_{0A}$  及び  $I_{0B}$  は透過前強度を表す。式 (5.10) 及び式 (5.11) より、

$$\frac{I_B}{I_A} = \frac{I_{0B}}{I_{0A}} e^{-(\mu_B - \mu_A)x} \quad (5.12)$$

の関係が得られるため、両辺の対数をとって整理すると、

$$x = \frac{1}{\mu_A - \mu_B} \ln \left( \frac{I_B I_{0A}}{I_A I_{0B}} \right) \quad (5.13)$$

となる。 $\mu_A$  及び  $\mu_B$  は各種文献等から得ることができ、あらかじめ  $I_{0A}/I_{0B}$  を取得しておけば、透過後の強度比  $I_B/I_A$  から、透過物質の厚さを知ることができる。

胸部厚さの評価方法は、現状では被測定者の体重および身長をパラメータとして経験式（式 (2.5)）を採用している。日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所では、過去に式 (2.5) の妥当性を確認するための胸部厚さ測定を実施しており、計算値と実測値との間の標準誤差として  $\pm 2.6\text{mm}$  と報告されている [5.6]。これは、 $^{241}\text{Am}$  評価時の検出効率に換算して  $\pm 8.6\%$  となり、肺中の放射エネルギーとしては  $-7.92\% \sim +9.41\%$  の誤差に相当する。一方で、肺モニタによって得られる L X 線スペクトルでは  $10 \sim 25\text{keV}$  の範囲で L X 線が確認され、主要な成分としては、 $L_{\alpha 1}$  ( $13 \sim 14\text{keV}$ )、 $L_{\beta 1}$  ( $17 \sim 18\text{keV}$ )、 $L_{\gamma 1}$  ( $20 \sim 22\text{keV}$ ) が挙げられる。原理的にはこれらの成分を用いて式 (5.13) による胸部厚さ測定が可能となる。 $^{241}\text{Am}$  の場合は、これに加え十分な強度の  $\gamma$  線が放出されるため、HPGe 半導体検出器による評価が可能である。しかし、純度の高い Pu 同位体の場合は、 $\gamma$  線の放出率が低いため、胸部厚さ評価のための放射線は L X 線に限定される。そのため、複数のピーク成分を含んだ実効的な線減弱係数を用いる必要がある。しかし、TES 型マイクロカロリメータによる測定では、ピーク弁別性が高く、単一のピークに対応する線減弱係数を用いるため、高い信頼性にもとづく評価が期待される。

#### 5.4.2 $^{241}\text{Am}$ から放出される L X 線を用いた薄膜厚さ評価

前項に記載した、胸部厚さ評価方法の妥当性を確認するため、 $^{241}\text{Am}$  から放出される L X 線を用いた確認試験を行った。試験方法は、被測定物質として  $50\mu\text{m}$  の Zr 膜を  $^{241}\text{Am}$  線源の前面に配置し、3.2 項に記載した L X-TES を用いて、Zr 膜の有る場合における主要 L X 線 ( $L_{\alpha}$

1、 $L_{\beta 1}$ ）の計数値から Zr 膜の厚さ測定を行った。図 5.8 に Zr 50 $\mu\text{m}$  及び身体軟組織の厚さ毎の減弱割合を示す。図より  $L_{\alpha}$  線及び  $L_{\beta}$  線領域における 50 $\mu\text{m}$  の Zr は 0.5cm の身体軟組織と同等の減弱性能を有することがわかる。これは、式 (5.13) 中の対数項が同等となることを意味する。よって、 $L_{\alpha 1}$  線及び  $L_{\beta 1}$  線の計数値から厚さを見積もる場合、式 (5.13) 中の線減弱係数に身体軟組織の線減弱係数を用いること胸部厚さ 0.5cm 時厚さ評価を模擬することができる。

Zr 膜の有無による LX 線スペクトルの比較を図 5.9 に示す。それぞれのスペクトルの計数値から  $L_{\alpha 1}$  を基準としたときの相対強度を求め、式 (5.13) から Zr 膜の厚さを逆算評価した。また、この結果を用いて、身体軟組織厚さ 0.5cm 時の模擬的な評価結果を取得した。これらの結果を表 5.5 にまとめる。これより、評価結果には、実際の厚さからのずれが生じたものの、10%程度の誤差精度で厚さ評価ができることを確認した。なお、誤差としては、計数値の統計的な誤差、及び計数値求める際に用いたフィッティングの誤差を考慮した。つまり、評価結果に生じたずれは系統的なものであり、Zr 膜配置時の保持材等により低エネルギー側の実効的な線減弱係数が増加したものと考えられる。

肺モニタにおける胸部厚さ測定に応用する場合、平均的な胸部厚さを 2.3cm とすると、本結果よりも減弱が強くなることから、相対誤差の増加が想定される。 $^{241}\text{Am}$  の  $L_{\alpha 1}$  線及び  $L_{\beta 1}$  線に対する胸部厚さによる減弱割合の変化を図 5.10 に示す。図より、胸部厚さが 0.5cm のときに比べ、2.3cm の時は  $L_{\alpha 1}$  線で 3.5%、 $L_{\beta 1}$  線で 15%程に減弱されることがわかる。これに伴い、計数値の小さくなり、相対的な誤差が大きくなる。Zr 膜 50 $\mu\text{m}$  (胸部厚さ 0.5cm 相当) における測定結果から、胸部厚さ 2.3cm における計数値及び相対誤差を評価した結果を表 5.6 に示す。表より、本試験条件における胸部厚さ 2.3cm の標準誤差は $\pm 4\text{mm}$ 程度となることがわかる。標準誤差は計数値を上げることで小さくなるため、多ピクセル化を実施することが改善することが可能である。仮に 5.3 項で記載した 1000ch を想定すると標準誤差は 0.04cm 程度となり、これは、現状の計算評価による標準誤差である 0.26cm を大きく上回る評価精度となる。よって、LX 線を用いた胸部厚さ測定の有用性は高いと言える。ただし、本手法を実際の肺モニタに適用する場合は、ただし、胸部厚さの不均一さが与える影響について把握する必要がある。ファントム等を用いた実証試験を行う必要がある。

表 5.5 Zr 膜厚さの評価結果

LX 線	Zr 膜無し計数値	Zr 膜有り計数値	Zr 厚さ評価値 ( $\mu\text{m}$ )	相当する身体軟組織 における評価値(cm)
$L_{\alpha 1}$	2348.2 $\pm$ 54.6	1098.4 $\pm$ 35.1	66.4 $\pm$ 5.9	0.648 $\pm$ 0.058
$L_{\beta 1}$	2329.0 $\pm$ 53.5	1957.9 $\pm$ 50.2		

表 5.6 胸部厚さ 2.3cm を想定した場合の計数値及び標準誤差

L X線	予想計数値	予測標準誤差 (cm)
$L\alpha 1$	$36.5 \pm 13.2$	$\pm 0.411$
$L\beta 1$	$332.1 \pm 30.0$	

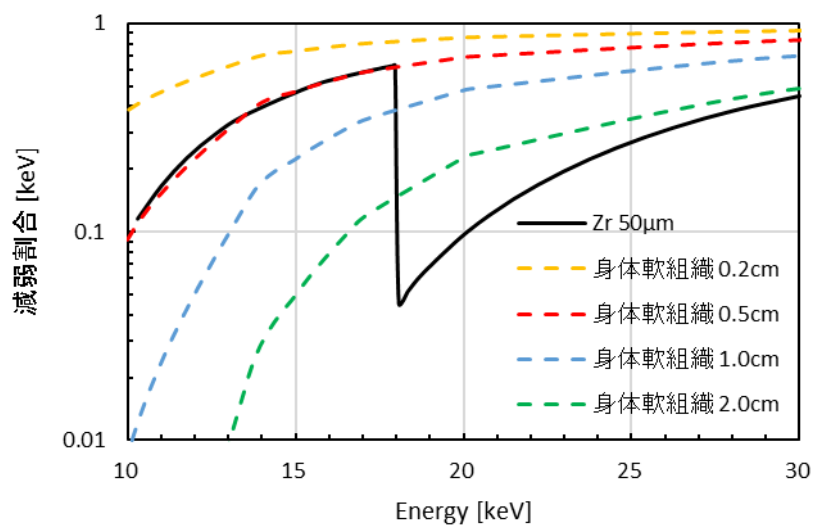


図 5.8 50 $\mu\text{m}$  の Zr の減弱割合

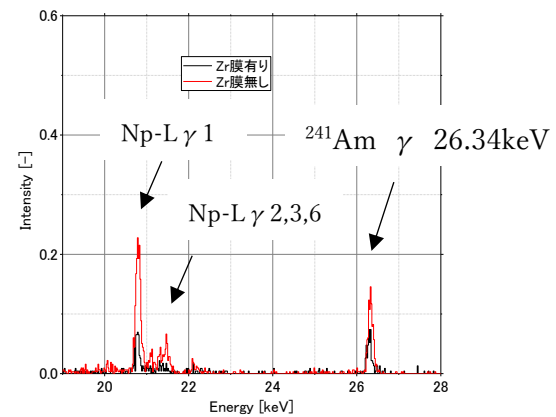
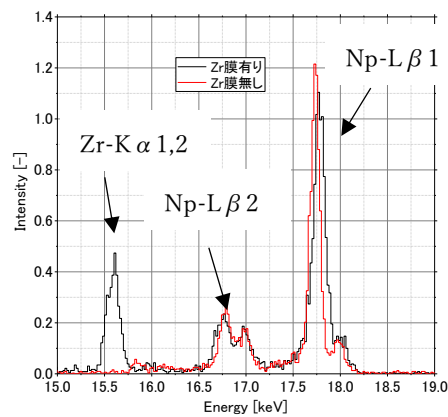
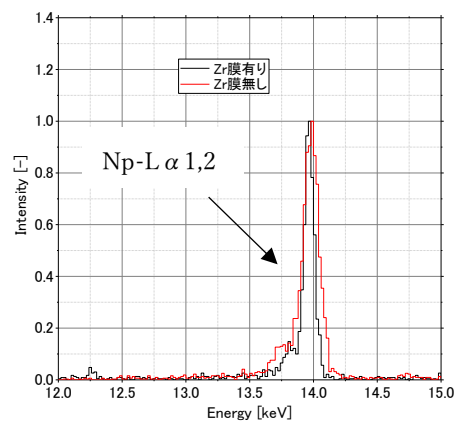
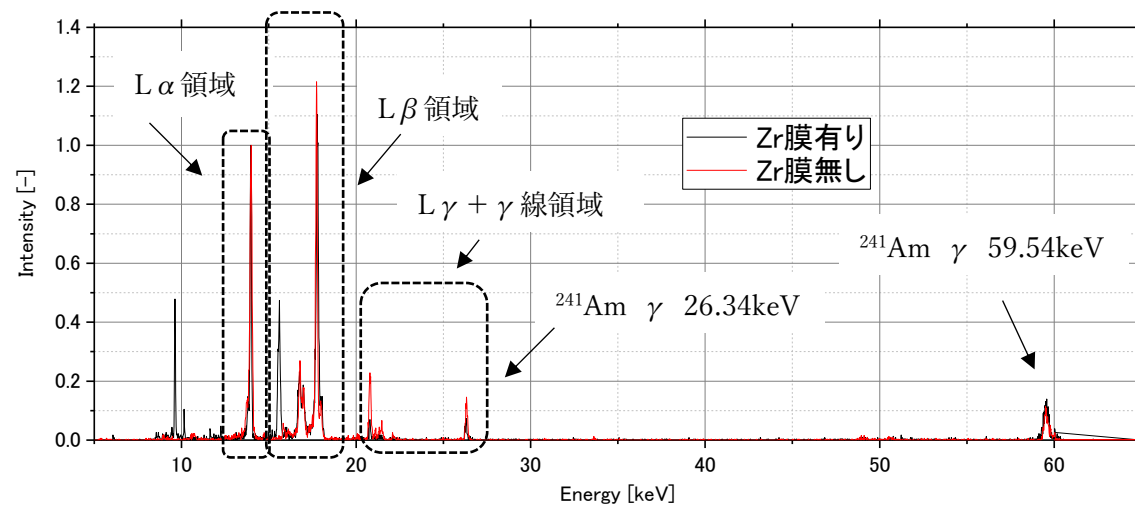


図 5.9 Zr 膜の有無によるスペクトルの比較

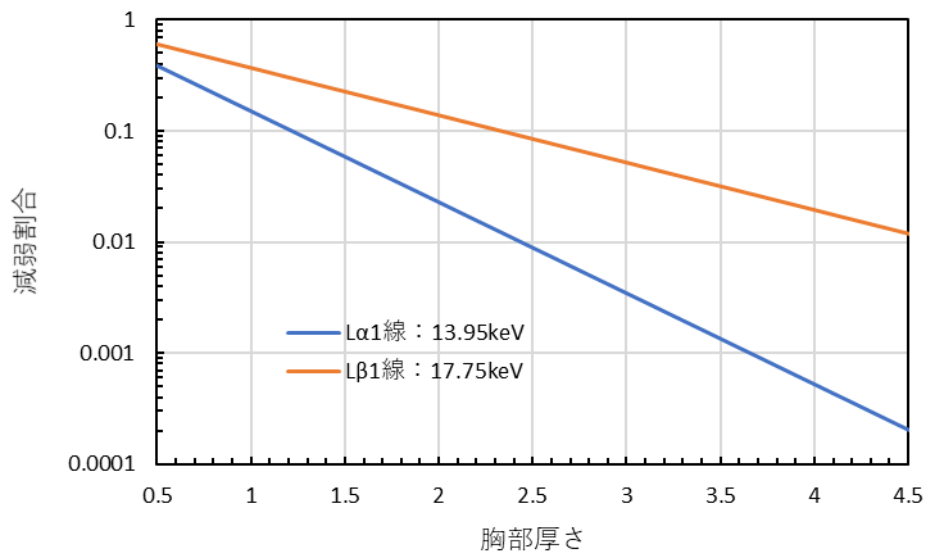


図 5.10 胸部厚さによる減弱割合の変化

## 6 結論及び今後の展望

### 6.1 結論

超ウラン元素の内部被ばく評価においては、被ばく者の健康的影響を最小限にするための迅速な測定評価が必要となる。そのための装置として、吸入事故時における1次評価には肺モニタが用いられる。肺モニタでは、TRUから放出されるLX線を体外から測定することで、肺中のTRU量を求め、そこからICRPの体内動態モデルにもとづく残留率から、被ばく線量を評価する。しかし、TRUから放出されるLX線は非常に微細な構造を有しているため、既存の肺モニタに用いられるHPGe半導体検出器では、正確なピーク弁別にに基づく測定が困難となっている。さらに、複数のTRU核種が混在する場合は、核種毎のピークが重なりあうため、スペクトルが複雑化し、その理解や解析業務においては、相当な経験や知識に基づく専門性が必要となる。

TES型マイクロカロリメータはこの課題に対する解決策となりうる可能性を持っている。TES型マイクロカロリメータの高分解能性を肺モニタに適用することで、煩雑な解析をせずに、LX線ピークの弁別が可能となり、肺モニタ測定における信頼性を向上させるとともに、測定・評価者の技術レベルのハードルを低減させることが期待される。そこで本研究では、TES型マイクロカロリメータによるTRU-LX線測定を実施し、適用可能性について評価した。LX線測定用のTES型マイクロカロリメータとして厚さ $5\mu\text{m}$ のAuを吸収として採用し、代表的なTRU核種である $^{244}\text{Cm}$ 及び $^{237}\text{Np}$ に対して、LX線測定実験を行った。その結果、単一TRU核種に対してピーク弁別に十分なエネルギー分解能を有していることを確認した。また、これまで、明確なピーク弁別にに基づくLX線放出率の実測値が得られていなかった上記2核種について、高分解能測定に基づくLX線放出率を算出した。以上の結果より、TES型マイクロカロリメータを用いた単一TRU測定において、定性及び定量という両観点において有効であることを確認した。

最後にTES型マイクロカロリメータを肺モニタに応用するにあたり、現実的な条件に基づく考察を行った。まず対象となるTRU組成に関して、原子力施設における内部被ばく事故における運用を考慮した場合、TRU組成比としては、様々な値をとりうる。これらの値から代表的なものピックアップし、ピーク弁別性に対する評価を行い、この結果から十分な分解能を有していることを確認した。また、LX線の高分解能測定による優位性として、LX線強度比に基づく胸部厚さ評価方法について試験を行い、その妥当性について確認した。一方で、検出下限値については、単一素子の有感面積の低さから、現状半導体検出には劣っていることがわかった。



## 6.2 今後の展望

本研究の成果としては、TES型マイクロカロリメータによるLX線測定により、TRU核種の定量及び定性について実験値に基づく有効性が確認されたこと、及び肺モニタ適用における優位点と課題について示したことにある。今後は、後者の課題について解決すべく、LX線TES型マイクロカロリメータの多ピクセル化が必須となる。また、場合によっては、素子自体の面積化による有感面積の向上も有効である可能性がある。これらの対策においては、エネルギー分解能の劣化等の影響を伴うことが想定される。本研究で示した、ピーク弁別性のデータやTRU混在時の評価については、有感面積とトレードオフとなるエネルギー分解能の最低保障点を与えてくれる。また、高分解能・高効率測定はTRU-LX線の放出率評価のための測定の時間的制約を和らげることが期待されるため、高い統計精度を有するLX線放出率の実測値の取得について可能となる。これらを実現させることで、実際の肺モニタへの適用と評価のためのLX線データ整備を両立させ、内部被ばく事故に対する測定評価方法の信頼性向上が達成できると考える。

## 謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの助言・ご指導を頂きました九州大学名誉教授石橋健二博士に深く感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、懇切なご指導を頂きました、指導教員である九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門 前畑京介准教授に深く感謝いたします。特に、本論文執筆の際には、社会人である私の状況についてご理解・ご配慮を頂いた上で、多大かつ適切なお助言を賜り、大変感謝します。

本論文の作成の際に有益なお助言並びにご検討を頂きました九州大学工学研究院エネルギー量子工学部門 池田伸夫教授，総合理工学研究院エネルギー科学部門 渡辺幸信教授に深く感謝いたします。

本研究を進めるにあたり多くの助言，ご指導を頂きました九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門 伊豫本直子准教授，執行信寛助教に深く感謝いたします。

本研究におけるパルス解析に関するご支援を頂きました、元九州大学大学院工学府エネルギー量子工学専攻 杉本哲也氏に深く感謝します。

本研究において TES における測定方法や解析手法についてご指導頂いた宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究所 満田和久教授，満田研究室 林佑氏、村松はるか氏、前久景星氏に深く感謝します。

本研究で使用した TES 型マイクロカロリメータ及び SQUID 増幅器を提供して頂いた株式会社日立ハイテクノロジーズ 田中啓一博士に深く感謝します。

TES 型マイクロカロリメータの試験に関する試験環境の提供及び試験に関するご支援、解析手法に関するご助言及びご支援を頂きました理化学研究所香取量子計測研究室 山口敦史博士に深く感謝します。

本研究で使用した無冷媒希釈冷凍機の調整を行って頂きました大陽日酸株式会社 山中良浩博士、伊藤琢司氏に深く感謝します。

TES 型マイクロカロリメータの試験に関する試験環境の提供及び試験に関するご支援、また、専門的な知見に基づくご助言を頂きました日本原子力研究開発機構 高崎浩司博士，安宗貴志博士、前田亮博士、滝本美咲氏、青木克憲氏に深く感謝します。

本研究をすすめるにあたり、業務調整のご配慮をいただいた日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所放射線管理部の皆様へ深く感謝します。

最後に、本研究をすすめる上での基盤となる日々の生活において支えていただいた、妻、両親に深く感謝します。

## 参考文献

### 第1章

- [1.1] エネルギー基本計画、経済産業省 資源エネルギー庁、平成 26 年 4 月、  
([http://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic\\_plan/pdf/140411.pdf](http://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/140411.pdf))
- [1.2] 平成 28 年版原子力白書、原子力委員会、平成 29 年 9 月、  
(<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/about/hakusho/hakusho2016/zentai.pdf>)
- [1.3] 新版原子力ハンドブック、オーム社、1989 年 2 月
- [1.4] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 高速炉研究開発部門 web サイト、  
[https://www.jaea.go.jp/04/fast\\_reactor/](https://www.jaea.go.jp/04/fast_reactor/) (平成 30 年 2 月閲覧)
- [1.5] ICRP Publication 60 “Recommendation of International Commission on Radiological Protection”, Pergamon Press, 1990
- [1.6] ICRP Publication 26 “Recommendation of International Commission on Radiological Protection”, Pergamon Press, 1977
- [1.7] 平成 21 年度放射線管理部年報、JAEA-review 2015-003, 2015 年 3 月、  
(<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2015-003.pdf>)
- [1.8] 被ばく線量の測定・評価マニュアル 2000、原子力安全技術センター、2000 年 10 月
- [1.9] JIS T8150:2006 呼吸用保護具の選択、使用及び保守管理方法、日本工業標準調査会、2006 年
- [1.10] 核燃料サイクル関連核種の安全性評価、松岡 理、日刊工業新聞社、1995 年 2 月
- [1.11] プルトニウムの安全性評価、松岡 理、日刊工業新聞社、1993 年 6 月
- [1.12] S.B. Ludwig, A.G. Croff, Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National Laboratory, 2002
- [1.13] アイソトープ手帳 11 版、日本アイソトープ協会、丸善、平成 23 年 1 月
- [1.14] ICRP Publication 68 “Dose coefficients for intake of radionuclides by workers” Annals of the ICRP Vol.24, No.4, 1994
- [1.15] M. C. Lépy, B. Duchemin, J. Morel, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. A 353, 1994, pp. 10-15
- [1.16] Simon R. Bandler, et.al., IEEE Trans. Appl. Supercond. 23, NO. 3, 2013
- [1.17] 原徹 他、顕微鏡 Vol. 44, No.4, 2009, pp.289

### 第2章

- [2.1] 南賢太郎、(社) 日本アイソトープ協会 RADIOISOTOPES、Vol.49、No.8、2000、pp. 27-39
- [2.2] ICRP Publication 60 “Recommendation of International Commission on Radiological

Protection”, Pergamon Press, 1990

[2.3] 2 版 放射線安全管理の実際、日本アイソトープ協会、丸善、2007 年 5 月

[2.4] ICRP Publication 78 “Individual Monitoring for Internal Exposure of Workers (preface and glossary missing)”, Ann. ICRP 27 (3-4), 1997

[2.5] ICRP Publication 66 “Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection”, Ann. ICRP 24 (1-3), 1994

[2.6] ICRP Publication 30 “Limits for Intakes of Radionuclides by Workers”, Ann. ICRP 7 (1-3), 1982

[2.7] ICRP Publication 67 “Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 2 Ingestion Dose Coefficients”, Ann. ICRP 23 (3-4), 1993

[2.8] ICRP Publication 72 “Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients” Ann. ICRP 26 (1), 1995

[2.9] 放射線事故の緊急医療、中尾勇、ソフトサイエンス社、1986 年

[2.10] 被ばく線量の測定・評価マニュアル 2000、原子力安全技術センター、2000 年 10 月

[2.11] 日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター「燃料研究棟」における作業員の汚染、被ばく事故について、日本原子力研究開発機構事故報告書、平成 29 年 6 月、

(<https://www.jaea.go.jp/04/o-arai/information/2017/062301.pdf>)

[2.12] 放射線データブック、村上悠紀雄 他、地人書館、1982 年

[2.13] S.B. Ludwig, A.G. Croff, Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National Laboratory, 2002

[2.14] 放射能測定法シリーズ 7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー、文部科学省、平成 4 年

[2.15] SEIKO EG & G Gamma Studio  $\gamma$  線分析詳細仕様説明書、セイコー・イージーアンドジー株式会社、2010 年

[2.16] 金井克太、栗原治、Proceedings of 3rd Asian and Oceanic Congress on Radiation Protection, 2010, pp. 3

[2.17] Fry, F. A., Summerling T., Health Physics, 39, 1980, pp.89

[2.18] Technical Report UCRL-TR-215939, Lawrence Livermore National Laboratories, 2005

### 第 3 章

[3.1] Cryogenic Particle Detection, Christian Enss (eds.), Springer, 2005

[3.2] Laboratoire National Henri Becquerel, Recommended data,  
([http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm))

[3.3] 放射線計測の理論と演習、ニコラス ツルファニデス、現代工学社、1986 年

[3.4] 超伝導物理入門、御子柴宣夫、鈴木克生、培風館、1995 年

[3.5] 超電導 web21“我が国における超電導検出器読み出し SQUID 開発の現状”、竹井洋、国際超電導産業技術研究センター、2012

[3.6] A. E. Szymkowiak, R. L. Kelley, S. H. Moseley, C. K. Stahle, J Low Temp Phys. 93, 1993, pp. 281-285

[3.7] フーリエ解析と統計、川田龍夫、共立出版株式会社、1985

#### 第4章

[4.1] 高分解能 X 線分析器用希釈冷凍機、大陽日酸技報 No.28、2009 年

[4.2] 中村圭佑、修士論文、九州大学、2009 年

[4.3] 前田亮 他、Journal of Low Temperature Physics, Vol. 167, 2010, pp. 754

[4.4] 実用ガンマ線測定ハンドブック、G. Gilmore, J. D. Hemingway, 日刊工業新聞社、2002 年

[4.5] V. P. Chechev, Physics of Atomic Nuclei, Vol. 69, No. 7, 2006, pp. 1188

[4.6] S. T. Perkins et al., Tables and graphs of atomic subshell and relaxation data derived from the LLNL Evaluated Atomic Data Library (EADL), Z = 1-100, Lawrence Livermore National Laboratory Report UCRL-50400, Vol. 30,1991

[4.7] 放射線データブック、村上悠紀雄 他、地人書館、1982 年

[4.8] G. Shchukin, K. Iakovlev, J. Morel, Applied Radiation and Isotopes, Vol.60, 2004, pp. 239

#### 第5章

[5.1] S.B. Ludwig, A.G. Croff, Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National Laboratory, 2002

[5.2] “独立行政法人日本原子力研究開発機構再処理施設における潜在的ハザードの実態把握にかかるとヒアリング” 会議資料、原子力規制委員会、平成 25 年 10 月  
(<http://www.nsr.go.jp/data/000048735.pdf>)

[5.3] 放射線計測の理論と演習、ニコラス ツルファニデス、現代工学社、1986 年

[5.4] 実用ガンマ線測定ハンドブック、G. Gilmore, J. D. Hemingway, 日刊工業新聞社、2002 年

[5.5] 放射能測定法シリーズ 7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー、文部科学省、平成 4 年

[5.6] 金井克太、栗原治、Proceedings of 3rd Asian and Oceanic Congress on Radiation Protection、2010, pp. 3

#### 第6章

参考文献なし