

極低温マイクロカロリメータを用いた 放射能絶対測定法の確立に向けた調査研究

スミス ライアン*
(2025年3月11日 受理)

A survey for the next generation primary activity standards based on low-temperature microcalorimeters

SMITH Ryan

Abstract

Today, coincidence counting methods, which use proportional counters and scintillation counters, plays a major role in providing primary standards for radioactivity. While these methods exhibit small measurement uncertainties of $u \sim 0.1\%$ and cover a wide range of radionuclides, it is inherently difficult to improve their uncertainties below 0.1% due to their strong dependence on physical models. In this paper, the current primary activity measurement methods are reviewed, followed by the outlook for the next generation primary activity measurements using low-temperature microcalorimeters.

1 放射性同位体の産業応用

日本国内での放射性同位体・放射線利用は、2017年現在で経済規模はおおよそ4.4兆円であり、そのうち51%が工業利用、44%が医療・医学利用、4%が農業利用となっている¹⁾。このうち放射性同位体について、主な産業応用例としては、放射線滅菌、非破壊検査、食品照射、核医学などが挙げられる。

放射線滅菌は放射線照射により微生物を死滅させる手法である。用いられる同位体としては⁶⁰Coが一般的であり、高い透過力により最終梱包状態の注射針などを滅菌できるというメリットがある²⁾。

非破壊検査はX線発生装置を用いるものが多いが、放射性同位体を用いるものとしては²²Naなどの陽電子線(β^+ 線)を放出する核種を用いた陽電子消滅法が挙げられる。これは、線源からの陽電子と測定対象の電子が対消滅する現象を応用したもので、物質中での陽電子の寿命や、対消滅により放出される光子のエネルギー変化

から、物質中の空隙・空孔を評価する非破壊検査である。特に近年ではイオン注入シリコンの欠陥評価など、半導体分野での応用が着目されている検査手法である³⁾。

食品照射はジャガイモやニンニクなどの発芽の防止や、放射線による殺虫・殺菌・滅菌技術を食料品に応用したものである。工業分野での滅菌と同様に包装された状態の食品に対しても効果を上げることができ、食品中に薬剤が残留しないといった利点がある。日本国内では現在、⁶⁰Coの γ 線のジャガイモへの照射のみが許可されているが、香辛料などへの適用も議論されている⁴⁾。

核医学は放射性医薬品を用いた診断・治療技術を指し、特に近年放射性同位体利用が伸びている分野である。診断技術には、¹⁸Fをはじめとする陽電子線源による陽電子放出断層撮影(Positron Emission Tomography: PET)や、^{99m}Tcをはじめとする γ 線・X線源を用いた単一光子放射断層撮影(Single Photon Emission Computed Tomography: SPECT)などが挙げられ、診断部位や病状に合わせた放射性医薬品が使用される⁵⁾。また、治療においては、短半減期かつ崩壊系列の中で複数の α 線を放出する核種を用いたがん治療用の放射性医薬品の研究開発が盛んであ

* 分析計測標準研究部門 放射能中性子標準研究グループ

り、²²⁵Ac や ²²¹At といった核種を応用した医薬品の開発が行われている⁶⁾。

このように、放射性同位体は産業分野において様々な領域で用いられているが、使用中の被曝を最小限に抑えながら利用によるメリットを最大限に享受するためには放射性同位体の適切な管理が必要であり、特に放射能を正確に把握することは視認できない放射線の影響を正確に評価するために重要である。例えばある放射性物質に対して放射能を過小に評価すると、使用者等の被曝量が増大してしまう可能性があり、逆に放射能を過大に評価してしまうと、治療や滅菌などの十分な効果が現れない可能性がある。現在、放射能は国際単位系において「1s あたりに崩壊する原子核の個数」として定義されており、単位としてはベクレル ($\text{Bq} = \text{s}^{-1}$) が用いられている。日本の国家計量標準機関 (National Metrology Institute: NMI) である産業技術総合研究所 計量標準総合センター (National Metrology Institute of Japan: NMIJ) では放射能測定の基準となる放射能絶対測定装置を設けており、これを用いた放射能標準の供給と維持を担うことで、国内での放射性同位元素利用における安全性に寄与している。また、アメリカ国立標準技術研究所 (National Institute of Standards and Technology: NIST) やアンリベクレル研究所 (Laboratoire National Henri Becquerel: LNE-LNHB) といった各国の NMI との国際比較への参加によって国際的同等性も確保している。

本報告書は、放射能標準の供給・維持に欠かせない放射能絶対測定装置について、今日用いられている技術と将来の展望を調査したものである。2章では今日の放射能標準で用いられている絶対測定装置と核種分析装置について、3章では次世代の放射能絶対測定の要素技術である極低温マイクロカロリメータについて、4章では極低温マイクロカロリメータの放射能測定への応用における課題と展望について述べる。

2 今日の放射能標準

一個の原子核が単位時間に壊変する確率である壊変定数や、1度の壊変で放出される放射線の種類やエネルギー、数は核種ごとに異なる。そのため、それぞれに適した測定装置を利用して核種ごとに放射能の標準が立ち上げられている。放射能の測定時には壊変に伴って放出された放射線を検出するが、その計数率 N (単位は s^{-1}) と測定対象の放射能 A (単位は Bq) の関係は、検出効率 ε (単位は s^{-1}/Bq) を用いると $N = \varepsilon A$ となる。標準供給の現場では、放射能標準溶液の単位質量あたりの放射能

(単位は Bq/g) が用いられることも多い。ここで、検出効率 ε を標準線源から求める測定法を比較測定、標準線源を用いずに求める測定法を絶対測定と呼ぶ。今日の放射能測定では、図1のように各放射能測定器の校正に用いられる標準線源の校正経路を辿ると、国家標準機関の絶対測定装置に辿り着くトレーサビリティ体系が構築されている。ゆえに、放射能絶対測定法の正確さは特に重要となる。本章では今日の放射能標準について、現在用いられている絶対測定法や、核種分析と併せて行われる放射能標準の供給について述べる。

2.1 放射能絶対測定法

放射能絶対測定は大きく分けて、Defined Solid Angle (DSA)、高ジオメトリ計測、同時計数法の3種類に分類することができる⁷⁾。はじめにこれら3種類の概要について紹介した後に、今日、NMIJをはじめとする世界の国家標準機関において多くの核種で応用されている手法である、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法、CIEMAT/NIST Efficiency Tracing (CNET)、Triple to Double Coincidence Ratio (TDCR) 法について紹介する。CNET法とTDCR法はともに液体シンチレーションカウンタの計数効率評価にフリーパラメータモデルを用いた放射能測定手法であり、共通した不確かさ要素を有しているため、同じ項にて解説する。

Defined Solid Angle 他の線源の放射能を用いずに検出効率を得る手法のひとつは計算によってこれを正確に評価することであり、DSAはその名の通り放射線の入

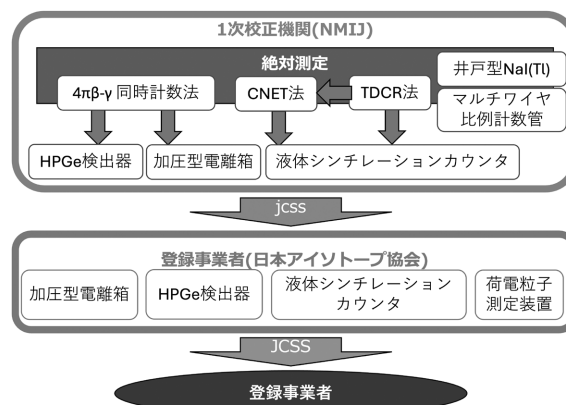


図1: 日本の放射能標準とトレーサビリティの概要図。国内の校正済み放射能測定装置の校正経路を辿ると、1次校正機関であるNMIJの絶対測定装置に辿り着く。図中のCNETはCIEMAT/NIST Efficiency Tracing、TDCRはTriple to Double Coincidence Ratioの略称である。

射角を評価して放射能を測定する手法である。図2に示すような測定体系を構築することで、線源から放出される放射線のうち、立体角 Ω に放出される放射線のみが検出器に入射できるようコリメータによる調整を行い、線源と検出器の距離やコリメータの半径などを正確に計測することで、 α 核種の放射能を不確かさ 0.1 % で評価できる^{8),9)}。後方散乱を起こす β 線や、透過率の高い γ 線への応用が難しく、基本的に α 核種のみに応用されているものの、冷却により固体にした ^{222}Rn の絶対測定¹⁰⁾ や、10 万年以上の半減期を有する ^{233}U の半減期測定¹¹⁾ などにも応用されている。

高ジオメトリ計測 DSA では立体角の正確な評価を行える測定体系を構築するが、高ジオメトリ計測では 4π や 2π 方向に放出する放射線の全てを検出できるような計測体系を構築する。この手法では、立体角を正確に評価する必要はなく、荷電粒子の検出効率はほぼ 100 % になるものの、線源内での自己吸収や光子のエスケープなどの影響を考慮・評価する必要がある。 4π や 2π ジオメトリでの測定が可能な検出器として、液体シンチレーションカウンタや井戸型 NaI (Tl) シンチレーションカウンタ、比例計数管が挙げられる。比例計数管では、ガスフロー式比例計数管やマルチワイヤ比例計数管の内部に固体の線源を導入する方法と、比例計数管で用いられる PR ガス (アルゴン 90 % とメタン 10 % の混合ガス) とともに気体の線源を導入する手法がある。

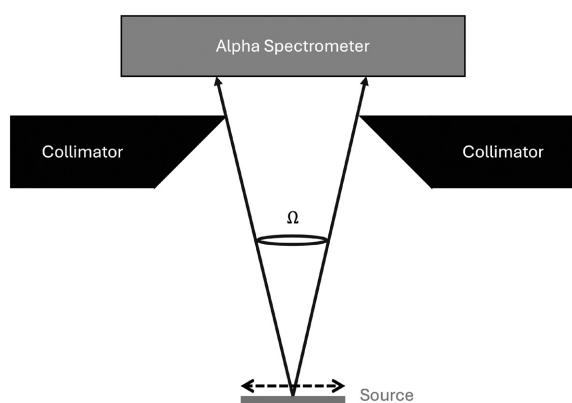


図2: DSA の測定体系の概要図。線源上のある一点から放出される放射線のうち、立体角 Ω に放出される放射線のみがコリメータに遮蔽されずに検出器に入射する。実際の測定では、線源上の様々な点における立体角を考慮したうえで、検出効率を評価する。

同時計数法 同時計数法は複数の検出器を用いて得られた計数率・同時計数率から検出効率を求める手法であり、特に今日の放射能絶対測定において多くの核種に使われている手法である。ガスフロー式比例計数管や液体シンチレーションカウンタといった 4π ジオメトリの検出器が多く使用されるが、高ジオメトリ計測が 100 % 近い検出効率が実現できていることを前提とした手法であるのに対し、同時計数法は 100 % とは限らない検出効率を実験値から計算によって求める手法である。

2.1.1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法

$4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法は、図3に示すように荷電粒子検出器 (4π ジオメトリ) と γ 線検出器を組み合わせる使用同時計数装置である¹²⁾。 4π ジオメトリのガスフロー式比例計数管と、その近傍に配置された NaI (Tl) シンチレーションカウンタを組み合わせるのが一般的であり、NMIJ でもこの組み合わせを利用している。図中に示すような回路を構築することで、荷電粒子検出器の計数率と γ 線検出器の計数率、荷電粒子検出器と γ 線検出器の同時計数率をそれぞれ計測することができる。NIST や LNE-LNHB のように、同時計数率の代わりに反同時計数率を利用する例もあるが、測定原理は同様のものである^{13),14)}。崩壊の過程で荷電粒子と γ 線を同時に放出する核種に応用されており、 β 線放出核種 (β 核種) や α 線放出核種 (α 核種) をはじめ、軌道電子捕獲 (Electron Capture) 壊変核種 (EC 核種) の中でも弱い X 線・オージェ電子を放出するものの測定に利用されている。

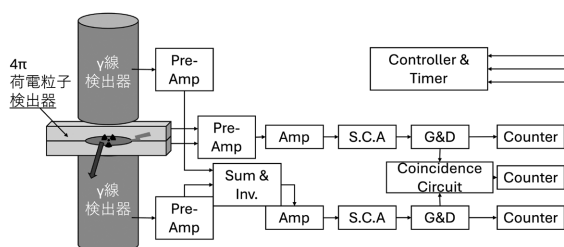


図3: $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法の概要図。信号回路は NMIJ で用いているものを示している。線源を 4π 荷電粒子検出器に取り付け、それを γ 線検出器で挟む測定体系を構築する。図中の Pre-Amp と Amp は前置増幅器と増幅器であり、2つの γ 線検出器からの信号はサムアンドインバータ (Sum & Inv) により纏める。シングルチャンネルアナライザ (S.C.A) によって放射線入射によるパルス信号を検出したのち、ゲートアンドディレイ (G&D) とカウンター (Counter) を用いて計数する。また、 β 線と γ 線の同時検出事象を計数するために、同時計数回路 (Coincidence Circuit) も使用する。

放射能 A の線源が壊変に伴い放出する β 線と γ 線の計数率を N_β, N_γ とおき、その検出効率を $\varepsilon_\beta, \varepsilon_\gamma$ とおくと、 $N_\beta = \varepsilon_\beta A, N_\gamma = \varepsilon_\gamma A$ が成り立つ。この時、 β 線と γ 線の同時計数率 N_{co} は $N_{co} = \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma A$ が成り立つため、以下の式 (1) のように、放射能 A を実測の計数率のみから表すことができる。

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_{co}} = \frac{\varepsilon_\beta A \varepsilon_\gamma A}{\varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma A} = A \quad (1)$$

しかしながら、実際の測定においては、荷電粒子検出器において γ 線の一部や内部転換電子、娘核種の特性 X 線・オージェ電子などが検出され、さらにカスケードやコンプトン散乱の影響によって同時計数率が上昇してしまう。これらの影響を考慮した計数率は、内部転換効率 α 、内部転換電子の検出効率 ε_{ce} 、荷電粒子検出器での γ 線検出効率 $\varepsilon_{\beta\gamma}$ 、カスケード等による同時計数率を ε_c とおくと、

$$\begin{aligned} N_\beta &= A[\varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta)\frac{\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha}] \\ N_\gamma &= A\frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} \\ N_{co} &= A[\frac{\varepsilon_\beta\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} + (1 - \varepsilon_\beta)\varepsilon_c] \end{aligned} \quad (2)$$

となり、式 (1) から直接放射能を求めることができない。そこで、自己吸収の条件の異なる線源を用意し、その測定結果から N_γ/N_{co} の値と $N_\beta N_\gamma/N_{co}$ の値を用いて外挿曲線を得る。ここで、 $N_\gamma/N_{co} = 1$ となるときは式 (2) から $\varepsilon_\beta = 1$ であり、 $N_\beta = A$ である。このように、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法では $\varepsilon_\beta = 1$ に外挿することで $N_\beta = A$ を求める外挿法が適用されている¹⁵⁾。この測定法の不確かさ要因としては外挿曲線の評価によるものが最も大きく、質量あたりの放射能評価における不確かさは $u_A \sim 0.1\%$ となっている¹⁶⁾。

2.1.2 CNET 法・TDCR 法

液体の有機シンチレータと放射性物質を混ぜ合わせると、放射性物質から 4π 方向に放出される放射線のエネルギーによって溶液 (液体シンチレーションカクテル) が蛍光する。このとき放出される光子を光電子増倍管 (photomultiplier tube: PMT) によって検出する測定器が液体シンチレーションカウンタ (Liquid Scintillation Counter: LSC) である。LSC は線源の自己吸収による影響を受けずエネルギー下限も低いため、 ^3H のような低エネルギー純 β 核種も含めた幅広い核種の測定に用いられている。測定においては通常 2 本の PMT が用いられ、PMT の雑

音由来の偽計数 (片方で発生) と蛍光由来の計数 (同時計数) を区別することでバックグラウンド値を低下している。実際の測定においては、共存物等によるクエンチング (消光) によりスペクトル形状が変化する。例えば、カラークエンチングでは全体の計数率が低下し、ケミカルクエンチングでは低エネルギー側にスペクトルが歪む。そのため、比較測定においてはあらかじめクエンチングによる影響を求める必要がある。近年では、シンチレーションカクテルの外部に ^{60}Co などの標準 γ 線源を置いて、コンプトン散乱による蛍光からクエンチングの影響を求める外部標準法が多く使われている。

LSC を用いた放射能測定法には CNET 法と TDCR 法があり、それぞれ高ジオメトリ測定と同時計数法にカテゴリ化することができる。この項では、はじめに CNET 法と TDCR 法で共通して用いられるフリーパラメータモデルの概要を述べた上で、CNET 法と TDCR 法の手法を概説し、最後にこの二つの手法の不確かさ要素について解説する。

フリーパラメータ シンチレーションカクテルの蛍光により発生する光子を 1 本の PMT で検出する時を考える。エネルギー E (単位は MeV) の放射線により蛍光した際の光子の数は、シンチレータを励起させる放射線のエネルギーとクエンチングによって変化し、ポアソン分布をとる。その平均光子数 \bar{n} は、

$$\bar{n} = \frac{LEQ(E)}{h\nu} \quad (3)$$

となる。ここで、 $h\nu$ は蛍光光子の平均エネルギー (単位は MeV)、 L はシンチレータのエネルギー変換効率 (単位は MeV/MeV)、 $Q(E)$ は電離クエンチングに関するパラメータ (単位は MeV/MeV) である。電離クエンチングは放射線とシンチレータの相互作用で発生する電離密度の高さに起因するクエンチングであり、Birks によって導かれた半経験的な式 (4) の通り放射線エネルギーとシンチレーション溶液の特性に基づく関数である。

$$Q(E) = \frac{1}{E} \int_0^E \frac{dE}{1 + kB(dE/dx)} \quad (4)$$

ここで、 dE/dx は入射粒子に対するシンチレーション溶液の阻止能 (単位は MeV/cm)、 kB は Birks パラメータ (単位は cm/MeV) である¹⁷⁾。放出された光子が PMT に入射すると、フォトカソードにて光電子が生成され、これがダイノードにより増倍されることにより電気信号として読み出すことが可能となる。フォトカソードで生成さ

れる光電子の平均数 \bar{m} は、式 (3) と PMT の光子検出効率 ε_{PMT} を用いて、

$$\bar{m} = \bar{n}\varepsilon_{\text{PMT}} = \frac{L\varepsilon_{\text{PMT}}}{h\nu}EQ(E) \quad (5)$$

となる。ここで、フォトカソードで光電子を1つ生成するのに必要な放射線のエネルギーはフリーパラメータ λ として定義すると、

$$\lambda = \frac{EQ(E)}{\bar{m}} \quad (6)$$

となる¹⁸⁾。このフリーパラメータは式 (5) (6) より $\lambda = \frac{h\nu}{L\varepsilon_{\text{PMT}}}$ であり、シンチレータや PMT の特性によってのみ決定され、放射線エネルギーや核種に依存しないことがわかる。

CNET では2本の PMT を、TDCR では3本の PMT を用いて測定を行うが、 R 本の PMT を置いた時に各 PMT に入射する光子数は R 分割されると考えることができる。このとき、1本の PMT での検出効率は光電子が発生しない確率を除くことによって得られる。ここで、光電子が発生する個数はポアソン分布を持つため、平均 m 個の光電子が発生する中で x 個の光電子が発生する確率は、

$$P(x, m) = \frac{m^x \exp(-m)}{x!} \quad (7)$$

となる。ゆえに、平均 m/R 個の光電子が発生する1本の PMT での検出効率は、光電子が発生しない確率、すなわち式 (7) に $x=0$ を代入した確率を除くことによって得られ、

$$1 - P(0, \frac{m}{R}) = 1 - \exp(-\frac{\bar{m}}{R}) = 1 - \exp(-\frac{EQ(E)}{R\lambda}) \quad (8)$$

となり、フリーパラメータと放射線エネルギー、 $Q(E)$ に依存することがわかる。シンチレーションカクテル中の放射性物質からは様々なエネルギーの放射線が放出されることを考慮すると、スペクトル形状を規格化した $S(E)$ を用いて同時検出効率を求めることができる。例えば、2本の PMT を並べた時の同時検出効率は、

$$\varepsilon = \int_0^{E_{\text{max}}} S(E) (1 - \exp(-\frac{EQ(E)}{2\lambda}))^2 dE \quad (9)$$

である。エネルギースペクトルが核種ごとに固有であることから、式 (9) は核種に固有の式である。

CNET 法 ある核種を2本の PMT で構築された LSC で計測するときの同時検出効率 ε とフリーパラメータ λ との関係式は、核種ごとに固有のエネルギースペクトルを計算して得られた $S(E)$ を式 (9) に代入することで求めることができる。前述の通り LSC のフリーパラメータ λ は PMT やシンチレーション溶液の状態によって変化するため、これを実験的に評価するのが CNET 法である^{19), 20)}。

はじめに、乳化剤濃度などのケミカルクエンチングの条件が異なる複数のシンチレーション溶液を用意し、³H の標準線源の同時計数率を計測することで、 ε_{3H} を実験的に得る。ケミカルクエンチングの条件の違いは、比較測定で用いられる外部標準法などから Quench Indicating Parameter q として定量化でき、実験的に得られた ε_{3H} との比較により、式 $\varepsilon - q$ を得ることができる。さらに、式 (9) の計算から式 $\varepsilon_{\text{3H}} - \lambda$ を得ることができ、ここで得られた2式を比較することで、 $q - \lambda$ の関数を得ることができる。ここで、 q と λ はどちらも核種に依存しない LSC の特性を示す値であるため、この関数は他の核種にも応用することができる。

次に、測定したい核種、例えば ¹⁴C についても、³H 標準線源と同様に q の異なるシンチレーション溶液を用いて計測することで、 $N_{\text{14C}} - q$ を実験的に得ることができる。先に取得した $q - \lambda$ と、あらかじめ式 (9) から求めた $\varepsilon_{\text{14C}} - \lambda$ を用いることで $q - \varepsilon_{\text{14C}}$ の式を求め、これと $N_{\text{14C}} - q$ から $N_{\text{14C}} - \varepsilon_{\text{14C}}$ を取得することができ、放射能 $A_{\text{14C}} = N_{\text{14C}} / \varepsilon_{\text{14C}}$ が求められる。

TDCR 法 TDCR 法は図4に示すように3本の PMT を120°の角度で配置し、3本のうちの2本における同時計数率 N_D と、3本全ての同時計数率 N_T を利用する検出方法である^{21), 22)}。式 (9) のように式 (8) からこの二つの計数率を求めると、

$$\varepsilon_D = \int_0^{E_{\text{max}}} S(E) (3(1 - \exp(-\frac{EQ(E)}{3\lambda}))^2 - 2(1 - \exp(-\frac{EQ(E)}{3\lambda}))^3) dE \quad (10)$$

$$\varepsilon_T = \int_0^{E_{\text{max}}} S(E) (1 - \exp(-\frac{EQ(E)}{3\lambda}))^3 dE \quad (11)$$

となる。一方、ある試料を計測したときに得られる実測の同時計数率 N_D , N_T について、 $N_T / N_D = \varepsilon_T / \varepsilon_D$ が成り立つ。すなわち、式 (10) と (11) から得られる $\varepsilon_T / \varepsilon_D$ について、エネルギースペクトルのモデルから得られる $S(E)$ と、シンチレーション溶液の阻止能 dE/dx , Birks

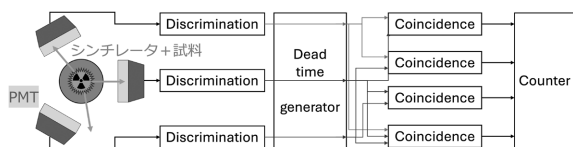


図4: TDCR法の概要図。3本のPMTを配置し、そのうち2本での同時計数率と3本の同時計数率、合計4つの同時計数率を用いて放射能を測定する。

パラメータ kB を代入することで、実測値とフリーパラメータ λ からなる方程式を得ることができる。この方程式を解くことにより得られた λ からは式 (10) を用いて同時計数率を求められるため、上記のデータと実測の同時計数率のみから放射能を求めることができる。ただし、連続スペクトルを示す純 β 核種については ϵ_T/ϵ_D から一意に ϵ_D が決まるのに対し、線スペクトルを示す EC 核種については一意に決まらない。このため、TDCR は一般的に純 β 核種にのみ応用されているが、一意に決まる領域のみを使用して EC 核種の放射能を測定している例もある²³⁾。

CNET・TDCRの不確かさ CNETとTDCRはともにフリーパラメータモデルに基づいていた測定法であるが、Birksの式(4)で用いられる dE/dx や kB の正確性や不確かさの評価方法について今日も議論が続けられている。スペクトル形状 $S(E)$ についても既存の検出器では評価の難しい低エネルギー領域において不確かさが大きくなり、PMTの特性のばらつきなども不確かさ要因となる。これらの影響から、両者の質量あたりの放射能評価における不確かさも、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法と同等の $u_A \sim 0.1\%$ となっている²⁴⁾。

2.2 核種分析装置

放射線検出器のエネルギー分解能は、入射したエネルギー E の放射線に対するエネルギースペクトル上でのピークの半値全幅 ΔE_{FWHM} 、またはその入射エネルギーとの比 $R = E/\Delta E_{FWHM}$ で表される。前節で紹介した放射能絶対測定装置では、主に NaI(Tl) などのシンチレーションカウンタや比例計数管などのガス検出器などが使用されているが、いずれもエネルギー分解能は $R \approx 10$ と低く、目的としている核種以外の不純物が混入していた場合に弁別が難しいという欠点がある。そこで今日の放射能絶対測定では、エネルギー分解能の高い検出器を応用した核種分析装置を別途に用意し、不純物評価を行う必要がある。

エネルギー分解能の高い検出器として使用されるのは主に Ge や Si などの半導体を利用した検出器であり、その分解能は $R \sim 100$ と、シンチレーションカウンタや比例計数管よりも10倍優れている。p型とn型を接合した半導体に対して電流が流れない方向に電圧を印加すると電子や正孔が存在しない空乏層が作られる。この空乏層に放射線が入射した際の電離作用によって電子-正孔対が発生すると、放射線のエネルギーの大きさに依存した電流信号が発生するため、信号出力の波高値を分析することによってエネルギースペクトルを得ることができる。

Ge 検出器の方が原子番号がより大きいために透過力の高い γ 線に対する検出効率に優れ、1対の電子-正孔対を生成するのに必要なエネルギーの小ささから光子に対するエネルギー分解能にも秀でる。一方でバンドギャップの幅が小さく、熱エネルギーによってバンドギャップを超えて伝導帯に存在する電子の数が常温では多くなるため、動作にあたっては真空中で液体窒素等を用いて 100 K 以下に冷却する必要がある。冷却にあたって Ge 結晶に被せるアルミニウム製のエンドキャップや、500 μm 程度の不感層の厚みにより、透過力の小さな α 線等の荷電粒子の検出には不向きである。Si と比較して低い融点を持つため、1 cm^3 あたり 10^{10} 個以下の不純物濃度を有する高純度結晶を生成することが可能であり、この結晶を利用した高純度 Ge (High Purity Ge: HPGe) 検出器は、近年の主要な γ 線スペクトロメータとして応用されている。

Si 検出器は Ge 検出器のように高純度の結晶を用いることはできない一方、不感層の薄さに優れながら常温でも使用可能な検出器が開発されている。イオン注入型 Si 検出器は不感層の薄さに優れた Si 検出器の一種であり、n型シリコン結晶の表面にイオンを注入することでp型半導体の層を生成することで、わずか 50 nm の不感層を実現している。この優れた不感層の薄さによって α 線のエネルギー損失を小さくできるため、イオン注入型 Si 検出器は優れた α 線スペクトロメータとして近年応用されている。

3 極低温マイクロカロリメータ

3.1 概要

近年の放射能測定技術の開発の動向として、極低温マイクロカロリメータの応用が着目されている。マイクロカロリメータは半導体検出器を超えるエネルギー分解能を有する X 線検出器として開発されたものであるが、

近年では 4π ジオメトリ計測による放射能絶対測定への応用が着目されている。

マイクロカロリメータの概要図を図5に示す。カロリメータは放射線のエネルギーを熱的に検出する測定器の一種で、吸収体・温度センサ・熱浴から構成される。熱容量 C (単位は J/K) の検出器にエネルギー E の放射線が入射した時の温度上昇は $\Delta T = E/C$ (単位は K) であり、この温度上昇を極低温の物性を応用した温度センサで読み出すことで、放射線のエネルギーを測定する。この時、100 mK 以下の極低温で動作することにより、熱容量 C は十分に小さくなるため、単一の光子が持つような微弱なエネルギーに対しても高い精度で温度を読み出すことができる。エネルギー分解能は検出器のフォノン数の揺らぎに制限され、 $\Delta E_{FWHM} \propto \sqrt{kCT^2/a}$ となる。ここで、 k はボルツマン定数、 a はセンサの温度感度であり、温度感度の高いセンサを応用することで、マイクロカロリメータは半導体検出器よりも高いエネルギー分解能 $R > 1000$ を実現している。一方、検出器のフォノン揺らぎを低減するために熱浴との間に小さな熱コンダクタンス G (単位は W/K) を持つように設計されるが、信号応答の立ち下がり時定数となる熱力学温度時定数 $\tau = C/G$ (単位は s) が増大するため、応答速度が遅いという欠点がある。

3.2 代表的なマイクロカロリメータ

マイクロカロリメータは極低温で高い温度感度を有する温度センサを用いるが、この温度センサの原理によって半導体マイクロカロリメータ、超伝導転移端センサ (Superconducting Transition Edge Sensor: TES) 型マイク

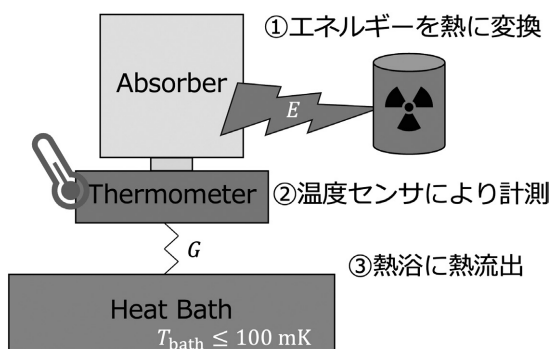


図5: マイクロカロリメータの概要図。吸収体、温度センサ、熱浴から構成され、100 mK 以下の熱浴温度で動作する。吸収体部への放射線入射による温度上昇を、極低温物性を応用した温度センサで読み出すカロリメータの一種である。

ロカロリメータ、金属磁気カロリメータ (Metallic Magnetic Calorimeter: MMC) に分けることができる。ここでは、次世代放射能絶対測定に向けて研究開発が進められている TES 型マイクロカロリメータと MMC について、検出原理を述べる。

3.2.1 TES 型マイクロカロリメータ

TES 型マイクロカロリメータは超伝導体が転移端で示す急峻な温度抵抗変化を温度センサとして応用したマイクロカロリメータである。超伝導転移領域は 1 mK 以下の極めて小さな領域であり、半導体サーミスタよりも二桁以上優れた温度感度 α を有する。当初は、典型的な動作抵抗値が 1Ω 以下と極めて小さいために、半導体マイクロカロリメータ等で使用される JFET アンプとのインピーダンス整合が難しいことに加え、極めて小さな転移領域が熱浴の温度揺らぎの影響を受けやすいことなどから、実用が極めて困難な検出器であった。これらの問題は、低入力インピーダンスの増幅器として応用可能な超伝導量子干渉計 (Superconducting QUantum Interference Device: SQUID) を用いた図6に示す定電圧バイアス回路によって実用的なレベルにまで克服された。

TES にある一定の電圧バイアスを印可することで、自身で発生するジュール熱と熱浴への流出量を均衡させることができる。この平衡状態で、放射線入射による温度上昇が発生するとそれを補償する様にジュール熱が減少して平衡温度に戻ろうとする帰還が働く。この効果は負の電熱フィードバック (Electro Thermal Feedback: ETF) と呼ばれ、熱力学温度 $\tau = C/G$ よりも高速な応答時定数を実現することができる。また、ジュール熱と熱流出が狭い超伝導転移領域内で均衡するように印加電圧を調整

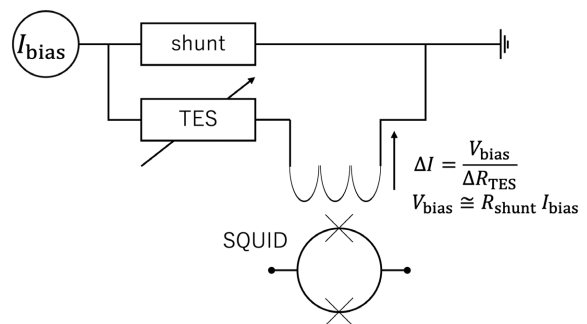


図6: TES の基本的な動作・読み出し回路図。超伝導薄膜の常伝導抵抗よりもはるかに小さい shunt 抵抗を並列に繋ぐことで、TES に対する定電圧バイアスを実現する。放射線入射による TES の抵抗値変化は、TES と直列に繋がれた入力コイルに流れる電流を変化させ、磁氣的にカップリングされた SQUID への印加磁束の増減として読み出すことが可能となる。

することができ、ETF が温度揺らぎによる影響を軽減させるため、優れたベースライン安定度による高エネルギー分解能が実現可能となった^{25), 26)}。

マイクロカロリメータのエネルギー分解能は前述のとおり動作温度と熱容量に制限されるが、TES 型の場合は超伝導温度センサの転移温度が動作温度に相当する。一般的に使用される温度センサは、Mo や Ti などの超伝導体と Au や Cu などの常伝導体から成る二重層膜で発生する近接効果によって転移温度を 100 mK 程度に調節したものであり、合計の厚さ $t \sim 100$ nm 程度の薄膜を応用している。測定対象の線質やエネルギーを考慮した吸収体設計を行うことによって様々な領域に応用させることができる検出器であり、今日までに X 線・ γ 線スペクトロスコープを始め、通信波長帯の光子数識別や核破砕片検出による核データ評価に向けた応用研究が進められている²⁷⁾⁻²⁹⁾。

3.2.2 MMC

MMC は極低温下の磁性体が温度変化による磁化の変化を温度センサとして応用したマイクロカロリメータである。電気抵抗を読み出すために電圧を印加する TES とは異なり、磁場を印加して動作させ、磁化変化を SQUID で読み出す検出器である。当初は誘電体に磁性体をドーブした物質を温度センサとして用いて開発が行われていたが、極低温下における磁気モーメントとフォノン間のエネルギー交換が非常に遅いため、実用的な応答速度の実現が困難であることが課題であった。そこで、磁性体を金属中にドーブした物質を温度センサとして用いることで、伝導電子と局在スピン間のカップリングによる高速な熱化を応用した実用的な応答速度を実現した^{30), 31)}。特に信号の立ち上がり速度に優れ、 $\tau_{\text{rise}} < 100$ ns の立ち上がり時定数も実現可能である³²⁾。ただし、実際の検出器製作においては読み出しに用いる SQUID の帯域やスルーレートを考慮した設計が必要である。TES 型のような ETF 機構は用いられないが、更に低い熱浴温度 $T_{\text{bath}} = 30$ mK で動作することで同等のエネルギー分解能・応答速度を達成することが可能である。例えば γ 線検出用に設計されたものでは、TES 型と MMC のいずれにおいても $50 \text{ keV} < E < 100 \text{ keV}$ の γ 線に対して 1 ms 単位の長さの信号波形が得られ、 $\Delta E_{\text{FWHM}} < 40$ eV のエネルギー分解能を実現できることが報告されている^{33), 34)}。

図 7 に MMC の読み出し回路と検出器断面の概略図を示す。温度センサで発生する磁化変化は「ピックアップコイル」と呼ばれるミアンダ(蛇行)配線のコイルと、ピックアップコイルと直列に繋がれた入力コイルを介し

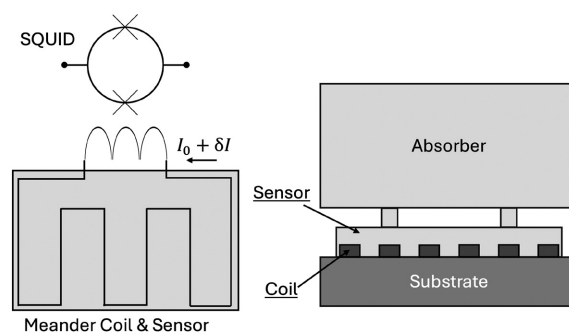


図 7: MMC の読み出し回路と検出器断面を示した図。ミアンダ配線された超伝導体のコイルが温度センサの下に構成されており、永久電流 I_0 が流れている。センサへの放射線入射による磁化変化によってコイルを流れる電流 δI が変化するため、入力コイルを介した SQUID による信号読み出しが行える。

て SQUID に入力される。超伝導体で積膜したピックアップコイルには永久電流が流れており、温度センサに磁場を印加した状態で動作させることができる。ピックアップコイル近傍の設計は断面図の通り、吸収体と温度センサがコイルの上に形成される形をとる^{31), 35)}。

温度センサに用いられる金属としては Au と Ag の 2 種類が、磁性体としては Er が 100 ppm 単位ドーブされることで用いられてきた。磁性体の局在スピンと金属中の伝導電子によって発生する Ruderman - Kittel - Kasuya - Yoshida (RKKY) 相互作用の影響によって磁化の温度依存性が低下するのを防ぐため、RKKY 相互作用が発生しにくい 4f 系元素である Er が選択されている。RKKY 相互作用と磁気双極子相互作用を考慮したシミュレーションを行うことで、温度・磁場に依存する磁化・熱容量といった熱力学的特性を評価した上で検出器を設計できる。

3.3 マイクロカロリメータによる 4π ジオメトリ計測

通常、マイクロカロリメータは離れた位置にある線源から放出される放射線を検出する測定器であり、線質に合わせて吸収体を設計する。一方、図 8 のように吸収体の内部に放射性物質を閉じ込めた 4π ジオメトリの計測体系も考案されてきた。吸収体内に線源を閉じ込め、放射性壊変によって放出される α 線や β 線などの荷電粒子、反跳によって運動エネルギーを有する娘核種、 γ 線や内部転換電子、X 線やオージェ電子などを全て閉じ込めると、放射性壊変によって吸収体に付与されるエネルギーは壊変前後の粒子の静止エネルギーの差と同値であり、 $Q = (m_M - (m_N + m_P))c^2$ となる。ここで、 m_M , m_N ,

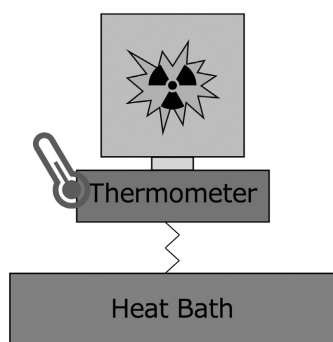


図8: マイクロカロリメータによる 4π ジオメトリ計測体系の概要図。放射性壊変後の荷電粒子や娘核種等を全て閉じ込めることによって、壊変により発生するエネルギーを計測することが可能となる。

m_p はそれぞれ親核種、娘核種、放出される荷電粒子の質量 (単位は kg), c は光速 (単位は m/s) である。ここでマイクロカロリメータが測定するエネルギー Q は放射性壊変 (radioactive decay) によって放出される全エネルギー (Q 値と呼ばれる) であるため、このような計測体系は Decay Energy Spectroscopy (DES) や Q-spectroscopy と呼ばれている。

ただし実際の検出器製作において、荷電粒子や娘核種を完全に閉じ込められるような設計が実現できても、透過力の高い γ 線・X 線をも完全に捕捉することは難しい。また、 β 壊変によって放出されるニュートリノは、そのほとんど全てが吸収体の外に飛び出す。

DES は当初、 β 核種である ^{187}Re の DES によって得られるエネルギースペクトルの最大値と Q 値との差から、吸収体外に飛び出したニュートリノの質量を評価するために開発された^{36, 37)}。その後、 ^{187}Re よりも短い半減期といった強みを持つ EC 核種である ^{163}Ho を用いたニュートリノ質量評価の研究が進められていく一方で、 Q 値が核種に固有であることを利用した α 核種の核種分析や、検出下限やエネルギー分解能が LSC よりも優れることを利用した β 核種のエネルギースペクトル形状の実験的評価にも応用されるようになった。DES には TES 型マイクロカロリメータと MMC のいずれのマイクロカロリメータも応用可能である。2024 年現在、最も優れたエネルギー分解能を実証したものは TES 型³⁸⁾ である一方、信号応答の線形性に優れる MMC は β 線エネルギースペクトルの形状評価への応用の報告が多い^{39), 40)}。

3.3.1 DES の応用例: α 核種

α 核種はニュートリノを放出しないため、 γ 線や X 線

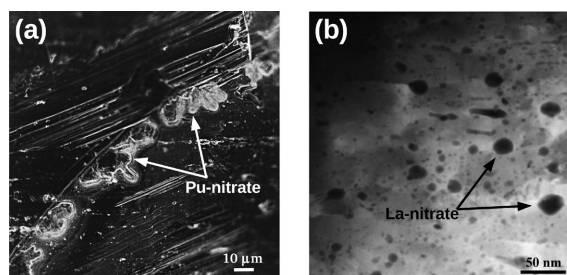


図9: 金箔に溶液を滴下した際の結晶構造の写真。(a) は硝酸プルトニウムを滴下した金箔を光学顕微鏡によって撮影したものであり、直径 $10\ \mu\text{m}$ 単位の結晶が生成されていることがわかる。(b) は非放射性的硝酸ランタンを滴下後に混錬を行なった金箔をエネルギー分散型 X 線分析により撮影した写真であり、結晶構造が直径 $50\ \text{nm}$ 以下に抑えられていることがわかる。写真は文献³⁸⁾より引用。

のエスケープが発生していなければ DES で Q 値を測定することができ、これを応用した核種分析が可能となる。従来の α 線スペクトロスコープでは、 α 線の分岐によって発生する複雑なエネルギースペクトルを分析する必要があったが、DES では α 線の分岐によらず Q 値を計測できるというメリットがある。

吸収体には熱伝導度と阻止能が高い金を用いられ、硝酸などを溶媒とする液体線源を金箔に滴下することで製作できる。しかし、この手法で製作した吸収体を用いた DES では Q 値ピークがピーク割れを起こすことが確認されていた。この現象は、金箔上で溶媒が蒸発する過程で結晶構造が生成され、 α 粒子や娘核種が金箔と結晶のどちらにエネルギーを付与するかによって熱化過程が異なることが原因と考えられている。

Los Alamos National Laboratory では、図9で表されるように線源を閉じ込めた金箔を機械的に混錬することによって結晶構造が破壊された吸収体の製作を行った。混錬によって製作された吸収体を TES 型マイクロカロリメータで検出した結果、吸収体内での熱化過程の違いが改善され、 Q 値ピークのピーク割れが抑制されたため、 $R=5000$ での DES が可能となった。この核種分析の精度は、質量分析と同等の精度となる³⁸⁾。DES による核種分析研究は現在も進められており、 α 核種だけでなく β 核種や崩壊系列を成す核種の放射能測定⁴¹⁾ や、医療用核種生成時の不純物分析⁴²⁾ などの応用が進められている。

3.3.2 DES の応用例: β 核種

DES は検出下限やエネルギー分解能が LSC よりも優れているため、 β 線スペクトルの正確な形状評価に応用

することができる。β線スペクトルの形状は、放射性医薬品が人体に付与する線量評価や、原子炉における停止時の温度制御、LSCを用いたβ核種の放射能評価といった様々な場面で使用される、重要な核データである。LNE-LNHBではMMCを用いてβ線スペクトル形状を評価する研究が進められ、²⁴¹Ptや⁶³Niなどのβ線スペクトルが評価された^{39), 40)}。これらの研究では、一部のβ粒子が親核種の束縛軌道で生成されたのちに放出されるためにβ粒子のエネルギーが変化するという仮説(exchange effect)の実験的実証が一つの目的である。α核種と同様に液体線源の滴下にあたってスペクトル形状の劣化が見られたが、こちらでは金に放射性同位体を電着することによって結晶構造の生成を防いでいる手法を利用している。この研究で得られたエネルギースペクトルは従来のモデルでは考慮されていなかったexchange effectを取り入れたシミュレーション結果と一致しており、exchange effectの実証と、より正確なβ線スペクトルの取得に成功した。今日のLSCによる放射能測定においても、本研究を基に得られた核データを用いて放射能が決定されている。

3.4 DESの放射能絶対測定への応用

DESは壊変のたびにエネルギーを計測でき、さらに荷電粒子に対して検出効率100%の放射能測定装置として応用することができる。この特性を利用し、DESを4πジオメトリの放射能絶対測定法に応用する研究が近年着目されている⁴³⁾。

表1はDESを今日主流の放射能絶対測定法である4πβ-γ同時計数法とTDCR/CNETと比較したものである。基本的に、4πβ-γ同時計数法では荷電粒子とγ線を同時に放出する核種だけに、TDCRでは純β核種だけに用いられている手法である一方、DESはγ線放出の有無を問わずに応用することが可能である。従来手法ではエネルギー分解能の低さゆえに別途の半導体検出器等で核種分析を行う必要があったが、DESに用いられるマイク

ロカロリメータ自体が半導体検出器を超える分解能を有するため、単一の装置で放射能測定と核種分析を同時に行うことが可能となる。また、従来手法では基本的に単一の核種のみを計測対象としてきたが、DESでは弁別した核種ごとに放射能を評価することが可能となり、崩壊系列を成す核種にも応用できるというメリットがある。放射能測定における不確かさは、4πβ-γ同時計数法では外挿曲線由来の不確かさが、TDCR/CNETではフリーパラメータモデル由来の不確かさが存在し、原理的にu~0.1%を下回ることが著しく困難であるが、DESは同様のモデルを用いる必要がないため、さらに不確かさを減少させることが期待される。

現在、NISTにてTESを用いたプロジェクト⁴⁴⁾が、EURAMETにおいてMMCを用いたプロジェクト⁴⁵⁾がそれぞれ進められており、次世代放射能絶対測定への応用が期待される。

4 次世代放射能絶対測定に向けた課題と今後の展望

マイクロカロリメータを用いたDESは半導体検出器を超えるエネルギー分解能が実証されている一方、既存の絶対測定法よりも小さな不確かさでの放射能測定は未だ実証されていない。最も大きな不確かさ要因として、液体標準線源塗布の際の質量測定の不確かさなど、吸収体作成時に起因するものが挙げられる。本章では、放射能絶対測定に応用するために現在課題となっている事象と、NMIJでの今後の展望について述べる。

4.1 絶対測定応用への課題

4.1.1 滴下手法

マイクロカロリメータはエネルギー分解能と時定数が検出器の熱容量に制限されるが、DESのように大型の吸収体を搭載する場合には吸収体部の熱容量が検出器全体の熱容量を占める。そのため、吸収体体積に制限があり、荷電粒子が吸収体外に飛び出さず、かつ過度なパイ

表 1: 放射能絶対測定法の比較

	4πβ-γ同時計数法	TDCR/CNET	DES
検出器	比例計数管とNaI	LSC	マイクロカロリメータ
エネルギー分解能	R < 100	R < 100	R > 1000
核種分析	別途に必要	別途に必要	放射能測定と同時に可能
主な測定対象	荷電粒子とγ線を放出する単一核種	荷電粒子を放出する核種 (TDCRは純β単一核種)	崩壊系列を成す核種も含めた幅広い核種
主要な不確かさ要因	効率外挿	フリーパラメータモデル	試料の質量測定

ルアップを防ぐためには、塗布できる放射性物質の量は極めて少量に制限される。今日の放射能標準の現場では、一般的に引き伸ばされた形状の口部を有するプラスチック製バイアル（ピクノメータ）を用いて滴下された10 mg以上の液体試料を0.05%程度の不確かさで評価しているが、DESでは1 mg程度の試料を使用するため、滴下手法から最適化する必要がある。

最も簡易的な微量液体の滴下手法として、一般的なマイクロピペットの先端部分にマイクロキャピラリーを取り付ける手法が研究されており、5 mgの試料に対して0.1%の不確かさによる質量計測に成功した例が報告されている⁴⁶⁾ものの、依然として0.05%程度の不確かさに抑えることは困難である。マイクロキャピラリーによる試料滴下においては使用者の技量等に左右されることから、インクジェットにより自動化する手法が近年着目されている。しかしながら、インクジェットによる液体滴下では、マイクロキャピラリー以上に液滴が小さくなることから蒸発等による影響が上昇するため実用化が困難である。NISTでは、滴下前後の蒸発による質量減少や、滴下距離の増減による測定質量の変化から蒸発量を正確に評価することで、0.05%の不確かさでの質量評価を達成している⁴⁷⁾。

この他にも、静電力とプランク定数を用いて質量を求めるポルトバランスの応用も研究開発が進められている⁴⁸⁾。2024年現在では固体試料に対してのみ応用できると報告されているが、液体試料への応用が今後期待される。

4.1.2 結晶構造の生成防止

3章で紹介した α 核種分析等で用いられた吸収体の混錬では、吸収体の外縁部にまで放射性物質が行き渡ってしまうため、線源から飛び出す荷電粒子が増大するというシミュレーション結果の報告がある⁴⁴⁾。さらに β 線スペクトル形状評価で用いられた電着手法も液体の質量評価が行えない手法であるため、結晶構造生成を防止するための別の手法が必要となっていた。この課題を解決するために、ナノメートル単位の穴のあいた金（ナノポーラス金）に液体試料を滴下する手法が考案された。ナノポーラス金に液体を滴下した際に生成される結晶構造の大きさはナノ孔の大きさに相当し、混錬を行なった図9と同様の大きさになると考えられる。実際、このような金箔に放射性物質の液体を滴下し、アニーリング処理を行うことで分解能が改善することが報告されており⁴⁹⁾、混錬に代わる、質量測定可能かつ結晶構造の生成を防止できる吸収体制作手法として、DESに応用されている⁵⁰⁾。ただし、混錬と同様に吸収体の中央部に

外に液体が浸透することにより α 線等が吸収体外に飛び出している可能性も議論されており、荷電粒子を閉じ込める性能についての正確な評価が今後期待される。

4.2 NMIJでの今後の展望

上記の通り、DESを用いた次世代放射能絶対測定の研究開発はNISTやEURAMETで盛んに行われており、今後の放射能標準において重要技術となることを見込まれるため、日本のNMIJにおいてもこれらの極低温デバイス技術の放射能標準への応用が急務であると言える。極低温マイクロカロリメータの応用には、100 mK以下にデバイスを冷やすための冷凍機や、TES型の場合は転移温度100 mKの超伝導薄膜を成膜する技術や、MMCの場合はエルビウムをドーピングするための技術などが必要となるが、産総研ではこれまでにTES型マイクロカロリメータの製作・応用の研究実績がある。特に、複数のTESからの信号応答を同時に測定する技術であるマイクロ波多重読み出し技術の研究開発が行われており、これを応用して先行研究での課題となっている質量測定時の不確かさを解決できると期待される。

先行研究では単一のマイクロカロリメータに1 mg程度の液体を滴下する体系の中で質量測定の不確かさを軽減する取り組みを行っていたが、多数のマイクロカロリメータが並ぶアレイ型検出器を用意し、個々の画素への滴下質量ではなく、アレイ上で合計10 mg以上滴下できるような質量測定体系を用意することで、質量測定の不確かさを既存手法と同等に抑えることが可能となる。このようなアレイ型検出器をマイクロ波多重読み出し技術によって全画素からの信号を同時に読み出すことにより、既存手法以上に小さな不確かさによる放射能評価が可能になると考えられる。多重読み出し手法は、一度に計測可能な放射性物質の質量が増加するため、単一のマイクロカロリメータでは計数率の確保の難しい核種に対しても有効な測定方法となることが期待される。

5 まとめ

放射性物質の産業界での使用や規制には、放射能測定の正確性や同等性の担保が重要となる。今日、NMIJをはじめとする各国のNMIでは、主に $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法やTriple to Double Coincidence Ratio (TDCR)、CIEMAT/NIST Efficiency Tracing (CNET)などの同時計数法を絶対測定装置として応用しており、国内の放射能測定装置の校正経路を辿るとこれらの絶対測定装置に辿り着くトレーサビリティが確立されている。既存の絶対測定法は

高い精度での絶対測定を幅広い核種に応用できるものの、線源内の自己吸収や液体シンチレーションカウンタのクエンチング現象を補正するための物理モデルが必要となり、これらの物理モデルに起因する不確かさに制限されているという状況にある。加えて、エネルギー分解能の低い検出器を応用していることから、別途に核種分析装置を用いた計測が必要という状況にある。

そこで近年では、半導体検出器よりも高いエネルギー分解能を有するマイクロカロリメータを用いて、荷電粒子の 4π 方向での吸収効率が原理的に100%となるDecay Energy Spectroscopy (DES)を放射能絶対測定装置として応用する研究が、欧米を中心に盛んに進められている。DESは計数率から放射能を評価するための物理モデルを必要としないため、既存手法よりも小さな不確かさでの絶対測定が期待されており、近い将来の放射能標準において重要技術となるが見込まれるため、NMIJにおいても研究開発を行う必要がある。一方で、現状では微量液体試料の質量測定由来の不確かさが大きいという課題がある。インクジェット等によって滴下される極少量の液体試料の質量評価技術の開発や、多数のマイクロカロリメータを同時動作・読み出す技術の応用により、質量測定による不確かさを抑えることが、次世代放射能絶対測定の確立の鍵となる。

DESによる次世代放射能絶対測定では、放射能測定の不確かさが小さくなることに加えて、既存の核種分析装置よりもエネルギー分解能が高いという利点もある。既存の放射能絶対測定法のように、核種分析を別途行う必要がないため、一度の測定に必要な放射性物質の量を抑えることが可能となり、標準供給で発生する放射性廃棄物の削減につながることを期待される。また、核種分析装置としての応用も盛んに行われており、医療用核種生成時の不純物分析をはじめとする様々な領域で有力な分析装置となることを期待される。

謝辞

本調査研究報告書は、分析計測標準研究部門放射能中性子標準研究グループの原野英樹研究グループ長や佐藤泰主任研究員をはじめ、グループの皆様の協力を得て執筆することができました。また、アメリカ国立標準技術研究所での実地調査を支援していただいた分析計測標準研究部門石井順太郎研究部門長や、現地での案内や議論の機会を設けていただいたRadioactivity GroupのRyan Fitzgerald博士、Denis Bergeron博士、Brian Zimmerman博士の協力もありました。ここに深い感謝を申し上げます。

す。

参考文献

- 1) 内閣府. 第29回原子力委員会資料第1-1号(2017).
- 2) 日本原子力学会誌, 53, 24 (2011).
- 3) 上殿明良. 応用物理, 第79巻, 307 (2010).
- 4) S. Todoriki. *RADIOISOTOPES*, 71, 55 - 62 (2022).
- 5) 佐藤正之. 高次脳機能研究, 30, 387 (2010).
- 6) K. NAGATSU. *Japanese Journal of Health Physics*, 57, 133 - 139 (2022).
- 7) P. Stefan. *Metrologia*, 44, S17 (2007).
- 8) B. Denecke, R. Eykens, J. Pauwels, P. Robouch, D. Gilliam, P. Hodge, J. Hutchinson, and J. Nico. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 438, 124 (1999).
- 9) P. Stefan and S. Geodele. *Acta Chimica Slovenica*, 55, 111 (2008).
- 10) J. Picolo. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 369, 452 (1996).
- 11) S. Pommé, T. Altitzoglou, R. V. Ammel, G. Sibbens, R. Eykens, S. Richter, J. Camps, K. Kossert, H. Janßen, E. García-Toraño, T. Durán, and F. Jaubert. *Metrologia*, 46, 439 (2009).
- 12) P. Champion. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 4, 232 - 248 (1959).
- 13) R. Fitzgerald and M. Schultz. *Applied Radiation and Isotopes*, 66, 937 - 940 (2008).
- 14) C. Bobin, C. Thiam, and J. Bouchard. *Applied Radiation and Isotopes*, 109, 319 - 324 (2016).
- 15) C. Bobin. *Metrologia*, 44, S27 - S31 (2007).
- 16) R. Fitzgerald, C. Bailat, C. Bobin, and J. D. Keightley. *Metrologia*, 52, S86 - S96 (2015).
- 17) J. Birks. *The theory and practice of scintillation counting*. Number v. 27 in International series of monographs on electronics and instrumentation. Pergamon Press, Distributed in the Western Hemisphere by Macmillan (1964).
- 18) P. Grau Carles and A. Grau Malonda. *Applied Radiation and Isotopes*, 54, 447 - 454 (2001).
- 19) A. G. Malonda and E. Garcia-Toraño. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33, 249 - 253 (1982).

- 20) B. Coursey, W. Mann, A. Grau Malonda, E. Garcia-Toraño, J. Los Arcos, J. Gibson, and D. Reher. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, 37, 403 - 408 (1986).
- 21) R. Broda, K. Pochwalski, and T. Radoszewski. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, 39, 159 - 164 (1988).
- 22) K. Pochwalski, R. Broda, and T. Radoszewski. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, 39, 165 - 172 (1988).
- 23) A. Razdolescu, P. Cassette, and M. Sahagia. *Applied Radiation and Isotopes*, 66, 750 - 755 (2008).
- 24) K. Kossert, R. Broda, P. Cassette, G. Ratel, and B. Zimmerman. *Metrologia*, 52, S172 - S190 (2015).
- 25) K. D. Irwin. *Applied Physics Letters*, 66, 1998 - 2000 (1995).
- 26) K. D. Irwin, G. C. Hilton, D. A. Wollman, and J. M. Martinis. *Applied Physics Letters*, 69, 1945 - 1947 (1996).
- 27) J. N. Ullom and D. A. Bennett. *Superconductor Science and Technology*, 28, 084003 (2015).
- 28) D. Fukuda, G. Fujii, T. Numata, K. Amemiya, A. Yoshizawa, H. Tsuchida, H. Fujino, H. Ishii, T. Itatani, S. Inoue, and T. Zama. *Optics Express*, 19, 870 (2011).
- 29) S. Dubey, A. Echler, P. Egelhof, P. Grabitz, W. Lauterfeld, M. Mutterer, S. Stolte, A. Blanc, U. Köster, O. Serot, G. Kessedjian, S. Kraft-Bermuth, P. Scholz, and F. Gönnerwein. *Physical Review C*, 102 (2020).
- 30) C. Enss, A. Fleischmann, K. Horst, J. Schönefeld, J. Sollner, J. S. Adams, Y. H. Huang, Y. H. Kim, and G. M. Seidel. *Journal of Low Temperature Physics*, 121, 137 - 176 (2000).
- 31) A. Fleischmann, C. Enss, and G. Seidel. *Metallic Magnetic Calorimeters*, 151 - 216. Springer Berlin Heidelberg (2005).
- 32) S. Kempf, A. Fleischmann, L. Gastaldo, and C. Enss. *Journal of Low Temperature Physics*, 193, 365 - 379 (2018).
- 33) S. T. P. Boyd, R. Hummatov, G. B. Kim, L. N. Le, J. A. Hall, R. Cantor, and S. Friedrich. *Journal of Low Temperature Physics*, 193, 435 - 440 (2018).
- 34) M. K. Bacrania, A. S. Hoover, P. J. Karpus, M. W. Rabin, C. R. Rudy, D. T. Vo, J. A. Beall, D. A. Bennett, W. B. Doriese, G. C. Hilton, R. D. Horansky, K. D. Irwin, N. Jethava, E. Sassi, J. N. Ullom, and L. R. Vale. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 56, 2299 - 2302 (2009).
- 35) A. Burck, S. Kempf, S. Schäfer, H. Rotzinger, M. Rodrigues, T. Wolf, L. Gastaldo, A. Fleischmann, and C. Enss. *Journal of Low Temperature Physics*, 151, 337 - 344 (2008).
- 36) E. Cosulich, G. Gallinaro, F. Gatti, and S. Vitale. *Physics Letters B*, 295, 143 - 147 (1992).
- 37) F. Gatti. *Nuclear Physics B - Proceedings Supplements*, 91, 293 - 296 (2001).
- 38) A. S. Hoover, E. M. Bond, M. P. Croce, T. G. Holesinger, G. J. Kunde, M. W. Rabin, L. E. Wolfsberg, D. A. Bennett, J. P. Hays-Wehle, D. R. Schmidt, D. Swetz, and J. N. Ullom. *Analytical Chemistry*, 87, 3996 - 4000 (2015).
- 39) M. Loidl, M. Rodrigues, B. Censier, S. Kowalski, X. Mougeot, P. Cassette, T. Branger, and D. Lacour. *Applied Radiation and Isotopes*, 68, 1454 - 1458 (2010).
- 40) M. Loidl, M. Rodrigues, C. Le-Bret, and X. Mougeot. *Applied Radiation and Isotopes*, 87, 302 - 305 (2014).
- 41) M. P. Croce, E. M. Bond, A. S. Hoover, G. J. Kunde, W. A. Moody, M. W. Rabin, D. A. Bennett, J. Hayes-Wehle, V. Kotsubo, D. R. Schmidt, and J. N. Ullom. *Journal of Low Temperature Physics*, 176, 1009 - 1014 (2013).
- 42) A. Tollefson, C. Smith, M. Carpenter, M. Croce, M. Fassbender, K. Koehler, L. Lilley, E. O'Brien, D. Schmidt, B. Stein, J. Ullom, M. Yoho, and D. Mercer. *Applied Radiation and Isotopes*, 172, 109693 (2021).
- 43) M. Loidl, E. Leblanc, M. Rodrigues, T. Branger, D. Lacour, J. Bouchard, and B. Censier. *Applied Radiation and Isotopes*, 66, 872 - 876 (2008).
- 44) R. P. Fitzgerald, B. K. Alpert, D. T. Becker, D. E. Bergeron, R. M. Essex, K. Morgan, S. Nour, G. O'Neil, D. R. Schmidt, G. A. Shaw, D. Swetz, R. M. Verkouteren, and D. Yan. *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, 126 (2021).
- 45) M. Müller, M. Rodrigues, J. Beyer, M. Loidl, and S. Kempf. *Journal of Low Temperature Physics*, 214, 263 - 271 (2024).
- 46) D. E. Bergeron, R. Essex, S. Nour, G. A. Shaw, R. M. Verkouteren, and R. P. Fitzgerald. *Applied Radiation and Isotopes*, 201, 111025 (2023).
- 47) R. P. Fitzgerald, B. Alpert, D. E. Bergeron, M. Carlson, R. Essex, S. Jollota, K. Morgan, S. Muramoto, S. Nour, G. O'Neil, D. R. Schmidt, G. Shaw, D. Swetz, and R. M. Verk-

- outeren. <https://arxiv.org/abs/2411.02565> (2024).
- 48) S. Schulze, K. Arumugam, S. Schlamminger, R. Fitzgerald, R. M. Verkouteren, R. Theska, and G. Shaw. *Measurement Science and Technology*, 35, 085020 (2024).
- 49) M. P. Croce, M. W. Rabin, V. Mocko, G. J. Kunde, E. R. Birnbaum, E. M. Bond, J. W. Engle, A. S. Hoover, F. M. Nortier, A. D. Pollington, W. A. Taylor, N. R. Weisse-
Bernstein, L. E. Wolfsberg, J. P. Hays-Wehle, D. R. Schmidt, D. S. Swetz, J. N. Ullom, T. E. Barnhart, and R. J. Nickles. *Journal of Low Temperature Physics*, 184, 958 - 968 (2016).
- 50) J. Hadid, M. Rodrigues, A. Harouri, C. Dupuis, D. Bouville, A. Martin, M. Loidl, and L. Ferlazzo. *Micro and Nano Engineering*, 20, 100220 (2023).