

- 修士論文 -

原子核時計の実現に向けた  
 $^{229}\text{Th}$  アイソマーエネルギーの決定精度の向上

(Improvement of the Accuracy of  $^{229}\text{Th}$  Isomer Energy  
Measurement Aiming for Realization of a Nuclear Clock)

東京大学大学院理学系研究科 物理学専攻  
宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究所 山崎研究室

平野 航亮

令和3年1月

## 概要

$^{229}\text{Th}$ には基底状態からの差がわずか数 eV の核異性体が存在し、このアイソマー状態と呼ばれる準位を用いることで原子核時計が実現できると目されている。これは微細構造定数の時空間変化も捉えることができるほど精密であるが、裏を返せばそれだけ正確にアイソマーエネルギーを測定することが必要だということである。

現在までさまざまな実験方法でこの測定が試みられてきたが、どれも間接的な計算によって求められているため、誤差の大きいものとなっている。そこで 2018 年 10 月から 2019 年 3 月にかけて、超伝導遷移端 (TES) 型マイクロカロリメータを用いて直接アイソマーエネルギーを導くための実験がなされた。本研究では、その 3 つある TES channel が長時間にわたって観測したデータを解析し、そのうえで必要になる手法を確立した。

まず、TES の動作点が異なればそのふるまいが異なることから、それらが混在してノイズにならないように、安定したオフセット電圧を持つ 2 つの時間範囲を抽出した。そして、パルスデータが相似でありノイズデータと独立であることを仮定し、最適フィルタ処理を用いることでノイズを除去した。さらに、パルスの大きさがオフセット電圧と相関関係にあり、これが分解能を損なっていることを見抜き、スペクトルエントロピーを最小化することで補正した。

以上の工夫を施したエネルギースペクトルでは、 $^{229}\text{Th}$  のものと思われるピークが  $29180.8^{+3.3}_{-4.4}$  に見つかり、 $18.53^{+3.4}_{-2.2}$  eV の分解能を達成していた。これは先行研究の分解能を大きく上回る結果であった。

また、今回は直接ダブルピークを区別することはできなかったが、モデリングすることによって目的の達成のためにはあとどれくらいイベント数が必要かを計算した。

# 目次

第 1 章	序論	6
1.1	原子核時計とはなにか	6
1.2	なぜ $^{229}\text{Th}$ なのか	6
1.3	先行研究の測定方法はどんなものか	7
1.4	なぜ本稿の研究が必要なのか	8
第 2 章	実験手法	11
2.1	TES 型マイクロカロリメータとはなにか	11
2.2	今回解析するデータはどのような実験で得られたデータか	12
第 3 章	データ解析	16
3.1	使用データとソフトウェア	16
3.2	パルスデータと予備的データ弁別	17
3.3	全体スペクトルと Line Identifying	19
3.4	ノイズを除去する手段: 最適フィルタ処理	19
3.5	エネルギー較正を妨げるオフセットと PHA の関連の確認	21
3.6	相関を補正する手段: スペクトルエントロピー	23
3.7	エネルギー較正曲線の決定	26
第 4 章	解析結果と議論	32
4.1	結果: 解析後のエネルギースペクトル中でどれが見たいピークか	32
4.2	議論: 結果と先行研究との比較	33
第 5 章	結論と展望	36
	参考文献	37
付録 A	使用したピークエネルギー	39
付録 B	他のデータセットでの結果	40
B.1	ピークのフィッティング	41
B.2	スペクトルエントロピーを最小化する $\alpha$ と、フィッティング次数を評価する指標 $F$	44
B.3	較正曲線の作成	45

# 目次

1.1	さまざまなアイソマー状態のエネルギーと半減期。 $^{229}\text{Th}$ は比較的安定かつ 10 eV 以下のエネルギー準位をもつ特異な元素として、原子核時計候補と考えられている。 . . . . .	7
1.2	29 keV, 42 keV でのエネルギースペクトルと、そのレベルダイアグラム。206 eV と 198 eV の差 8 eV がアイソマーエネルギーに対応する。値は Sikorsky et al. によるもの . . . . .	9
1.3	29 keV でのみかけのラインエネルギーから Isomer level を決める手法, 29 keV ピークでのエネルギー分解能は 36 eV(FWHM) であった。 . . . . .	10
2.1	マイクロカロリメーターの模式図。温度計には、温度によって「抵抗が変化する」ことを明示するため可変抵抗の記号を用いている。 . . . . .	11
2.2	理想的な超伝導転移端での抵抗の温度変化 . . . . .	12
2.3	製作した TES とコリメータ . . . . .	14
2.4	TES とコリメータを組み合わせたセンサマウントと冷凍機内に格納した様子 . . . . .	15
3.1	解析の流れ。左側が未解析のデータがどのようにして得られたかを簡単に表した部分。右側が本研究が実際におこなった解析の部分。 . . . . .	16
3.2	冷凍機の温度の推移。急激に上昇しているところは冷却機の電源が入り、しばらくは設定温度 70.5mK 程度に保たれている。ADR の冷却能力が下ると温度が温度安定のためのヒータ電力は小さくなるというフィードバックがかかっている。ヒーターの電力が下がりきると、設定温度以上になっていってしまう。橙の領域を有効な範囲とする。 . . . . .	17
3.3	立ち下がりのトリガごとに出力される 20 ms 間のデータ。ダウンサンプリング済みである。切り取る時間は立ち下がり前の方が 10% 長い。 . . . . .	18
3.4	図 3.3 のパルス部のみを切り出したデータ。オフセットの計算に使用する範囲は誇張してある	18
3.5	各 ch ごとのオフセットのトレンド。左から ch2,ch3,ch4。 leap 前を青、 leap 後を橙でプロットしている。 . . . . .	18
3.6	ch4 region1 の PH ヒストグラムとピークのインデックス . . . . .	19
3.7	最適フィルタ処理の概念図 . . . . .	21
3.8	ch4 region1 について、左は処理前のパルス高 (PH: Pulse Height) のヒストグラム、右は処理後の PHA のヒストグラム . . . . .	21
3.9	ch4 region1 について。右は各パルスデータの PHA と offset 値をプロットしたもの。左は軸スケールを右の PHA に合わせて 90° 倒した PHA スペクトル。 . . . . .	22
3.10	ch4 region1 について slope vs. PHA。エラーバーは図 3.9 におけるフィッティングでの二乗平均平方根。青線は原点を通る直線でフィッティングしたもの。 . . . . .	23

3.11	ch4 region1 について、PHA スペクトルを 7つの領域に分けたもの（上）と、それぞれの範囲で H- $\alpha$ をプロットしたもの（下）。各色は領域に対応している。 . . . . .	24
3.12	ch4 region1 について、赤点は PHA の全範囲を用いて $H$ を計算しプロットしたもの、青点は $1 < \text{PHA} < 1.5$ の範囲を用いて $H$ を計算しプロットしたもの。縦線は各色に対応する $H$ についての $\alpha_{H \min}$ を明示している。 . . . . .	26
3.13	ch4 region1 について、左は $H$ 最小化をおこなったのち図 3.6 におけるピーク B を拡大したもの。右はピーク C を拡大したもの。 . . . . .	27
3.14	ch4 region1 について、左はピーク B、右はピーク C についての図である。上のヒストグラムは 1bin あたり最低 20 データであり、黒実線はモデル 3.19 を用いてフィッティングしたもの。下のプロットはモデルとデータとの差である。 . . . . .	28
3.15	ch4 region1 について PHA vs. エネルギー (PI)。各ピークに対応するエネルギーは表 A.1 の値とした。エラーバーは 68% 誤差であるが、小さいのでつぶれている。 . . . . .	29
3.16	ch4 region1 について、上は図 3.15 でもプロットした 5 点を 3 次多項式を用いて誤差で重み付けしてフィッティングしたもの。水色線は求めた較正曲線。下は残差である。誤差棒はどちらも 68% 誤差を示す。 . . . . .	30
3.17	全ての ch と region について、較正曲線によって PHA から変換されたエネルギーのスペクトル。較正に使用したピーク周辺を抽出している。 . . . . .	31
4.1	統合したデータのエネルギースペクトル。左は較正に使用したピーク周辺を抽出している。 $y$ 軸は対数スケールであることに注意。右はさらに 29 keV 周辺を拡大したもの。 $y$ 軸は線形スケールであることに注意。 . . . . .	32
4.2	ピーク P を単一のガウス分布でフィッティングしたときの contour plot。赤、緑、青線はそれぞれ 68%, 90%, 99% の信頼度曲線。背景の明度は C 統計量を示す。 . . . . .	33
4.3	上はピーク P 周辺のエネルギースペクトルに、モデル (ガウス分布 + const.) を重ねた図。下はその残差。const.=1000 とし、norm は $\chi^2$ が最も小さくなる大きさとした。 . . . . .	34
4.4	イベント数が 3000 の $^{229}\text{Th}$ のピークモデルを単一のガウス分布でフィッティングした図。残差がガウス分布から有意に外れていることが分かる。 . . . . .	35
4.5	イベント数 (photon 数) を変化させたとき、「 $^{229}\text{Th}$ のピークモデルが単一のガウス分布でフィットできない」という仮説が棄却できる確率。赤、緑、水色の横線はそれぞれ 68%, 90%, 99%。 . . . . .	35
B.1	それぞれのデータセットについて、ピークをフィッティングしたようす。下部のプロットはフィッティング曲線とデータの残差である。詳細は図 3.14 を参照。左上 : ch2 region1 CsK $\alpha$ 2 および $\alpha$ 1。左下 : ch2 region1 CsK $\beta$ 3 および $\beta$ 1。右上 : ch2 region2 CsK $\alpha$ 2 および $\alpha$ 1。右下 : ch2 region2 CsK $\beta$ 3 および $\beta$ 1。 . . . . .	41
B.2	それぞれのデータセットについて、ピークをフィッティングしたようす。下部のプロットはフィッティング曲線とデータの残差である。詳細は図 3.14 を参照。左上 : ch3 region1 CsK $\alpha$ 2 および $\alpha$ 1。左下 : ch3 region1 CsK $\beta$ 3 および $\beta$ 1。右上 : ch3 region2 CsK $\alpha$ 2 および $\alpha$ 1。右下 : ch3 region2 CsK $\beta$ 3 および $\beta$ 1。 . . . . .	42

B.3	それぞれのデータセットについて、ピークをフィッティングしたようす。下部のプロットはフィッティング曲線とデータの残差である。詳細は図 3.14 を参照。左上 : ch4 region1 CsK $\alpha$ 2 および $\alpha$ 1。左下 : ch4 region1 CsK $\beta$ 3 および $\beta$ 1。右上 : ch4 region2 CsK $\alpha$ 2 および $\alpha$ 1。右下 : ch4 region2 CsK $\beta$ 3 および $\beta$ 1。 . . . . .	43
B.4	それぞれのデータセットについての較正曲線。下部のプロットは較正曲線とデータの残差である。詳細は図 3.16 を参照。上 : ch2 region1。下 : ch2 region2 . . . . .	45
B.5	それぞれのデータセットについての較正曲線。下部のプロットは較正曲線とデータの残差である。詳細は図 3.16 を参照。上 : ch3 region1。下 : ch3 region2 . . . . .	46
B.6	それぞれのデータセットについての較正曲線。下部のプロットは較正曲線とデータの残差である。詳細は図 3.16 を参照。上 : ch4 region1。下 : ch4 region2 . . . . .	47

# 表目次

2.1	今回の実験用に製作された TES の設計パラメータと実績値 . . . . .	13
2.2	仙台実験のログ . . . . .	13
3.1	使用したソフトウェアとそのバージョン . . . . .	17
3.2	各 ch 及び各 region についてフィッティングして求めた PHA とその誤差。Line の列に書かれたピーク名は仮定されたものである。誤差は PHA の 68% 誤差である。 . . . . .	28
3.3	ch4 region1 について、注目している 5 ピークに対して $n$ 次式の $\chi^2$ フィッティングをおこなった。その $\chi^2/\text{dof}$ と式 3.20 で定義された指標 $F$ 。 . . . . .	29
4.1	ピーク P のイベント数、および単一のガウス分布でフィッティングして得られたエネルギーと幅。誤差は 68% 誤差である。 . . . . .	32
4.2	$^{241}\text{Am}$ - $\gamma$ 線および $\text{CsK}_{\alpha 2}$ のエネルギー分解能。また 29.1816 keV における分解能の推測値も記載してある。 . . . . .	33
A.1	今回の研究で主に使用した特性 X 線および $\gamma$ 線のエネルギー・強度比・自然幅 (Handbook of X-Ray Data より抜粋) . . . . .	39
B.1	各データセットごとの「スペクトルエントロピーを最小化する $\alpha$ 」と「フィッティング次数を上げることが適切か判断する指標 $F$ 」。 . . . .	44

# 第 1 章

## 序論

### 1.1 原子核時計とはなにか

現在の「秒」の定義は  $^{133}\text{Cs}$  原子時計による測定がもとになっており、この精度は  $10^{-15}$  ほどである。また 2002 年に作成された「光格子時計」は  $10^{-18}$  の精度と報告された [1]。これを東京スカイツリーまで運び一般相対論の効果を実証した試みは記憶に新しい [2]。しかしこれらの限界は外部の電磁場が電子遷移の共鳴周波数を擾乱することに因っている。そこで考え出されたのが「原子核時計」である。これは原子核遷移を利用しており、「強い相互作用」の強力な結びつきで安定した共鳴周波数を得ることができ、電子によるシールド効果で外部からの擾乱を低減できる。[3]。こうして正確になっていく時計は、微細構造定数の時空間変化さえも捉えることができるといわれている [3][4]。しかし一般に核異性体を実現させるためには MeV 単位の高エネルギーのレーザーを用いねばならない。レーザー分光法は 10eV 程度のレーザーを用いておこわれるものなので、このままでは原子核時計をつくることはできない。この課題を克服し原子核時計を実現する最有力候補として注目されたのが  $^{229}\text{Th}$  である。

### 1.2 なぜ $^{229}\text{Th}$ なのか

$^{229}\text{Th}$  は基底状態 ( $J^\pi = 5/2^+$ ) のエネルギーに比べてわずかに高いエネルギーを持つ核異性体 ( $J^\pi = 3/2^+$ ) が存在する (図 1.1)。転移波長は  $350_{-75}^{+150}$  nm といわれており、高分解能レーザー分光法を適用することができる [5]。この励起状態はアイソマー状態とよばれ、原子物理学と原子核物理学の橋渡しになるとして、30 年以上にわたり実験や理論からそのエネルギー差を求める試みが続けられていた。初期の測定では間接的な方法しかとれず、その誤差は大きかった。たとえば、2 状態の双極子の蛍光強度の違いを高解像度レーザー分光法によって測定する方法では  $3.5 \pm 10$  eV と求められた [6][3]。しかし測定機器の分解能が向上した近年ではより細かい精度で測定できるようになり、そのエネルギーは徐々に制約されつつある。ローレンス・リバモア国立研究所が 2007 年に発表した数値は  $7.6 \pm 0.5$  eV [7] であったのに対し、ルートヴィヒ・マクシミリアン大学ミュンヘンが 2019 年に発表した数値は  $8.28 \pm 0.17$  eV であった [8]。これらの値は、前者は「半導体マイクロカロリメータ」後者は「磁気ボトル型電子エネルギー分光器」、といった別々の測定方法で与えられたもので、矛盾したものとなっていた。我々は TES 型マイクロカロリメータにより、 $8.30 \pm 0.92$  eV という値を得 [9]、またハイデルベルグ大学のマグネティックカロリメータによる値は  $8.10 \pm 0.17$  eV であり [10] この値に収束しつつあるようにもみえる。

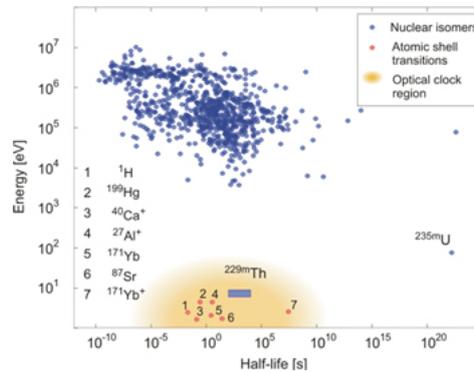


図1.1 さまざまなアイソマー状態のエネルギーと半減期 [11]。 $^{229}\text{Th}$  は比較的安定かつ 10 eV 以下のエネルギー準位をもつ特異な元素として、原子核時計候補と考えられている。

### 1.3 先行研究の測定方法はどんなものか

ではそれぞれの測定方法にはどのような特徴があるだろうか。また他の測定方法はあるのだろうか。上で述べた例を簡単に比較する。

#### 1.3.1 マイクロカロリメータのメリットとデメリット

マイクロカロリメータとは、放射線のエネルギーを熱に変換し、さらにそれを電圧値へ変換するという検出器である。この二段階目を担う変換器はその性質から「温度計」と呼ばれ、この種類によってマイクロカロリメータはいくつかの分類ができる。その中で 2007 年の先行研究 [7] で用いられた半導体マイクロカロリメータはサーミスタを温度計としている。サーミスタは半導体に不純物を添加したもので、ある温度で急激に電気抵抗が変化する性質がある。マイクロカロリメータは X 線検出器として開発が進み、6 keV で 6 eV 程度のエネルギー分解能をもつ [12] が、 $\gamma$  線領域では、熱容量が大きくなるため、エネルギー分解能は 26 eV 程度であった。

マグネティックマイクロカロリメータは、磁場中においたスピンによる磁化が、温度変化によって変化することを用いて温度計とする方式である。SQUID によって磁場を読むことで非常に高い感度をもち、6 keV でのエネルギー分解能は 2 eV 程度に達している。多画素化が困難といわれていたが、最近の研究が進んでいる。

超伝導転移端 (Transition Edge Sensor :TES) 型マイクロカロリメータは、極低温での超伝導転移を温度計として利用し、これも 6 keV では 2 eV 程度のエネルギー分解能をもつ。我々が検出器として用いているため、次章で詳述する。

#### 1.3.2 磁気ボトル型電子エネルギー分光器のメリットとデメリット

磁気ボトル型電子エネルギー分光器は、磁気ボトル効果によって集められた電子がソレノイドのボトル (~400 mm) を通ってマイクロチャンネルプレート (MCP) に入射し、そこで電子の運動エネルギーが検出されるというものである。2019 年の先行研究では、 $^{233}\text{U}$  を線源としてチャンバー内に安置し、放出された電子たちのエネルギースペクトルから遷移エネルギーを決定している [8]。この方法のメリットは直接的なエネルギー

一の測定が可能な点であるが、精度の限界は最終的な検出器である MCP の解像度に依存している。

## 1.4 なぜ本稿の研究が必要なのか

これまで、様々なカロリメータにより、 $^{229}\text{Th}$  のアイソマーエネルギーの測定が試みられてきたが、いずれも、8 eV というレベルを直接に捉えたものではない。

これまでおこわれてきた手法は大きく 2 つあり、1 つは 29 keV, 42 keV の 2 ケ所で、約 200 eV 離れたダブルピークの距離を決め、その差がアイソマーエネルギー 1 に相当する、というものである。レベルダイアグラムと、測定例を図 1.2 に示す [10]。Beck et al. [7] も同様の手法による。

もう一つは、Yamaguchi et al. (2019)[9] でも行われた、一番エネルギーの低い 29 keV の輝線を、アイソマー状態によるダブルピークとして中心エネルギーを求め、別途決まっている分岐比  $b$ ,  $E_{\text{CR}}$  を用いて、 $E_{\text{obs}} = bE_{\text{CR}} + (1 - b)E_{\text{IN}}$  から  $E_{\text{IN}}$  を計算するという手法である。

2018 年 10 月から 2019 年 3 月まで、東北大学や日本原子力研究開発機構、理化学研究所と宇宙科学研究所が共同で原子核時計を実現すべく実験がおこわれた。このとき  $^{229}\text{Th}$  の核異性体遷移エネルギーの決定のために、 $\gamma$  線をとめる阻止能とエネルギー分解能を決める熱容量のバランスをとった専用の TES 型マイクロカロリメータが製作された。Yamaguchi et al. (2019)[9] では、日本原子力研究開発機構大洗実験施設での 2017 年の測定データが用いられた。しかし、測定環境としては雑音が多く、また冷却温度も 90 mK 程度までと比較的高く、本来の TES 型マイクロカロリメータの性能が発揮できたわけではない。その後実験場所を東北大学に移し、別の冷凍機による実験が 2018 年 10 月から 2019 年 3 月にかけて断続的に行われており、こちらのほうがよいエネルギー分解能が期待できる。

そこで、本研究では、2019 年の実験で得られたデータを使用して、TES 型マイクロカロリメータより得られたパルス高データから  $^{229}\text{Th}$  のアイソマーエネルギーを、29 keV ラインの doublet を直接みることで検出する手法を目指し、エネルギー分解能を追求した解析をおこなう。

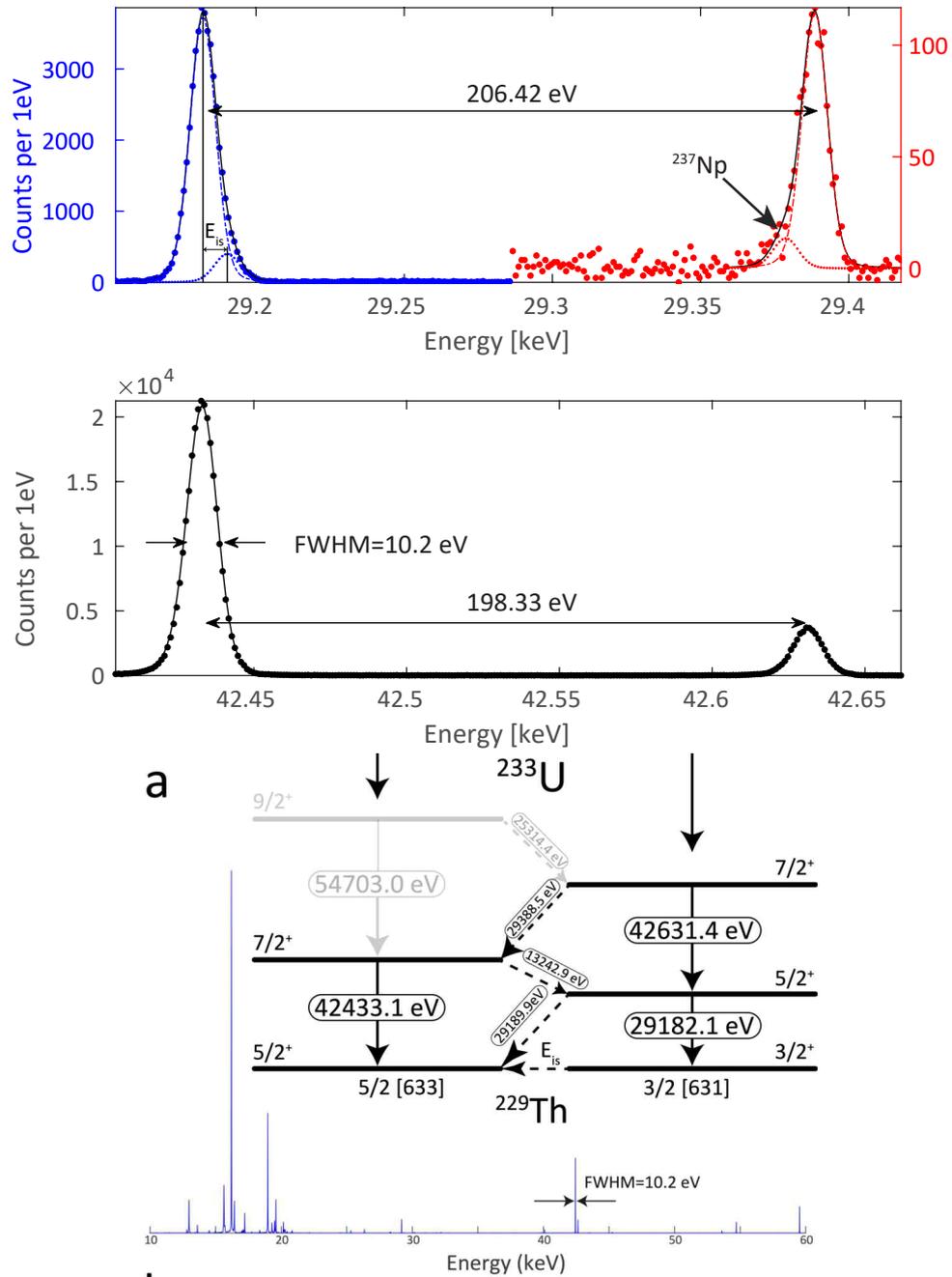


図1.2 29 keV, 42 keVでのエネルギースペクトルと、そのレベルダイアグラム。206 eVと198 eVの差8 eVがアイソマーエネルギーに対応する。値はSikorsky et al.[10]によるもの

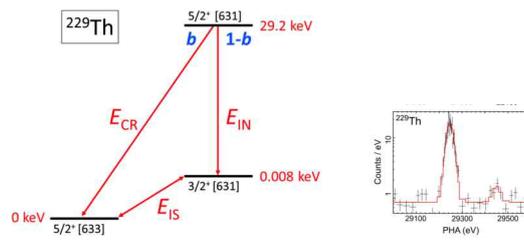


図1.3 29 keV でのみかけのラインエネルギーからアイソマーエネルギーを決める手法 [9], 29 keV ピークでのエネルギー分解能は 36 eV (FWHM) であった。

## 第 2 章

# 実験手法

### 2.1 TES 型マイクロカロリメータとはなにか

ここで、本研究で用いた「超伝導遷移端温度計 (Transition Edge Sensor; TES) 型マイクロカロリメータ」について、模式図2.1を用いて解説していく。

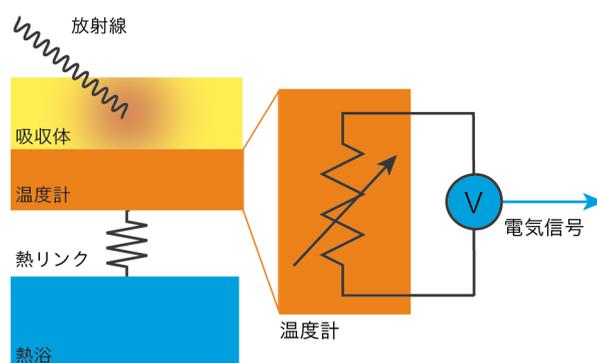


図2.1 マイクロカロリメータの模式図。温度計には、温度によって「抵抗が変化する」ことを明示するため可変抵抗の記号を用いている。

1. いま、あるエネルギーを持った光子、とくに X 線や  $\gamma$  線が吸収体に入射した。吸収体はその高い阻止能により、光エネルギーをほぼすべて熱エネルギーへと変化させる。また吸収体は熱容量を非常に小さくすることで、より大きな熱を生むことができる。
2. そうして得られた熱は直接結合された温度計へ余すことなく伝わる。この温度計として、超伝導転移を用いるのが、超伝導遷移端 (Transition Edge Sensor: TES) 型マイクロカロリメータである。理想的な抵抗の温度変化を図2.2に示す。転移温度を 100mK 程度にとることで、吸収体熱容量を  $T^3$  則により小さくし、大きな温度変化を得ることができる。
3. 転移温度以下の極低温環境にセンサをおき、電圧バイアス  $V$  をかけることで、センサは発熱する。温度上昇により、抵抗が大きくなり発熱量  $P = V^2/R$  が小さくなることでセンサの温度が下る negative feedback が働く。これにより、適切な電圧値を選べば、TES は常に転移端上に動作点をとることができる。

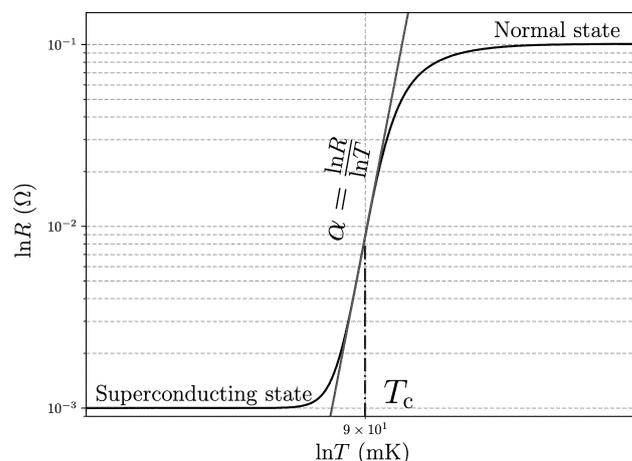


図2.2 理想的な超伝導転移端での抵抗の温度変化

きる。

4. そこにエネルギー入射があると、常伝導状態への相転移が直ちに起こり抵抗は急激に上昇し、バイアス電流は減少する。この電流を SQUID により電圧変換して読み取ることで光子の到来を知るしくみになっている。
5. 抵抗変化は先程も述べたフィードバック機構によってもとの転移温度  $T_c$  へと速やかに戻り、次のイベントに備えることができる。

ただし、入射熱量が吸収体の熱容量に比して大きい場合、温度変化が転移端をこえて、抵抗変化が saturation を起こす可能性もある。そのため、測定したいエネルギー範囲に応じて、センサを設計する必要がある。また、抵抗の温度変化は図2.2でわかるように線形ではない。そのため、ゲインの線形性は必ずしも保障されない。TES の一般的なレビューは文献 [13] を参照されたい。

## 2.2 今回解析するデータはどのような実験で得られたデータか

ここでは実験がどのようにおこなわれたかを簡潔に説明する。詳細は Muramatsu(2018)[14] の Chapter 7 を参照のこと。宇宙科学研究所では、TES の設計、製作が行われている。今回の実験用の TES は村松によって、大洗実験施設での実験 [9] であまりエネルギー分解能がよくなかったことから、29 keV で 20 eV 以下のエネルギー分解能を達成することを目標に以下のように設計された (図2.3, 表2.1)。4 素子が一つの基板にのったものとして設計されたが、1 素子は配線が切れて読み出せない状態であった。まず、宇宙科学研究所において、 $^{55}\text{Fe}$  線源によって、5.9 keV の X 線を照射し、エネルギー分解能を調べたところ、ch:  $10.02 \pm 1.07$  eV, ch2:  $10.03 \pm 0.76$  eV, ch3:  $10.64 \pm 0.99$  eV と、設計値にほぼ近く、また非常に特性がそろっていることがわかった [14]。 $^{229}\text{Th}$  からの未知のエネルギーの輝線を決定するには、エネルギーの較正が非常に重要であり、較正線源や  $^{233}\text{U}$  線源からは多数の放射線が放出される。それらがセンサ基板にあたり微小な温度擾乱をもたらすことで、低周波側のノイズが増え、エネルギー分解能は劣化してしまう。そのため、東北実験ではリン青銅の 0.8 mm の板に、0.3 mm 角の穴をあけたコリメータを製作し、装着した。

$^{229}\text{Th}$  アイソマーエネルギーを正確に較正するためには、調べたいピークの近くに較正用のピークを人工的

に設ける必要がある。そのため  $^{229}\text{Th}$  ピークを観測するための  $^{233}\text{U}$  線源（設計値 110 MBq）のほかに  $^{133}\text{Ba}$  線源および  $^{241}\text{Am}$  線源も内蔵された。

この実験環境で4回のデータ取得がなされた。そのログを表2.2にまとめる。No.1 実験では、65mK を達成し、 $^{241}\text{Am}$  の 26 keV の輝線を用いて、15-18 eV (FWHM) のエネルギー分解能を確認した。ただし、較正線源の配置が悪く、Ba の輝線がほとんど見えなかった。その後設定をかえながら No.2, No.3 の実験を行なったが、今度は冷凍機の不調（あるいは熱流入の増加）で、動作温度を 90 mK 以下に下げられなかった。様々な改良を重ね、2019 年 3 月に 70mK でのデータ取得を行なった。これが分解能と較正線源のバランスのとれた測定と期待される。しかし、大洗実験の解析を優先させたために、このデータはほとんど解析されてこなかった。そこで、本研究でこのデータ解析を行ない、大洗実験 [9] よりもよい分解能で、 $^{229}\text{Thorium}$  輝線の検出、エネルギー決定を行なう。

表2.1 今回の実験用に製作された TES の設計パラメータと実績値

	材質	厚み
TES	Ti/Au	40/145 (nm)
吸収体	Au	3.9 ( $\mu\text{m}$ )

測定量	値
転移温度 ( $T_C$ )	122 (mK)
熱容量 ( $C$ )	3.57 (pJ/K)
飽和エネルギー	40 keV
エネルギー分解能 (FWHM at 6 keV)	10 eV

表2.2 仙台実験のログ

No.	日付	照射時間概算	設定温度
1	2018/10/14 14:12:06-10/19 17:19:21	$4.4 \times 10^5\text{s}$	65 mK
2	2018/11/14 12:47:05-11/19 9:52:40	$4.2 \times 10^5\text{s}$	90 mK
3	2018/11/20 22:15:32-11/29 10:10:18	$7.3 \times 10^5\text{s}$	90 mK
4	2019/3/8 21:22:23-3/11 16L2L26	$2.4 \times 10^5\text{s}$	70.5 mK

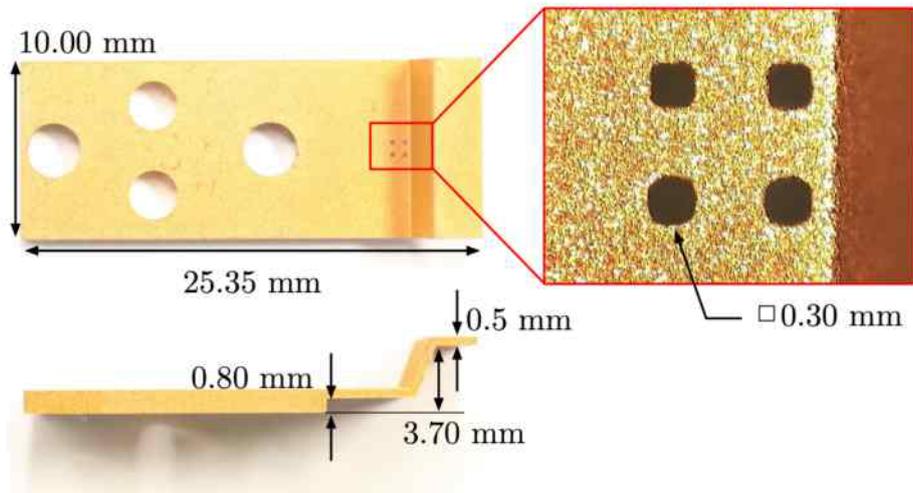
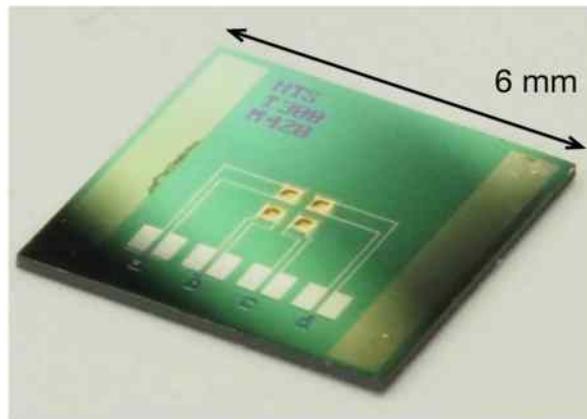


図2.3 製作した TES とコリメータ [14]

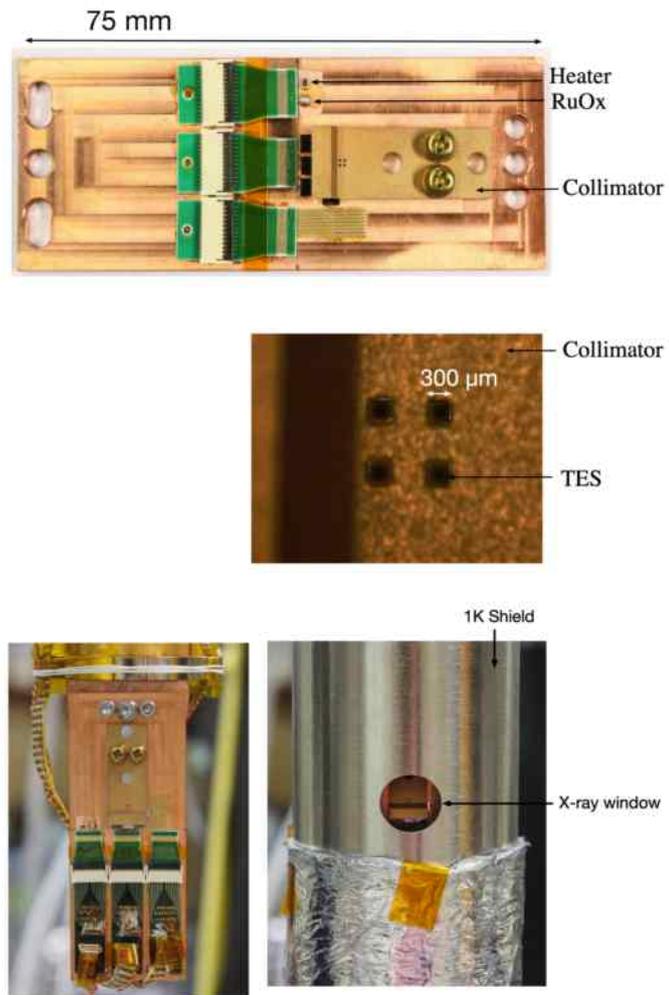


図2.4 TES とコリメータを組み合わせたセンサマウントと冷凍機内に格納した様子 [14]

## 第3章

# データ解析

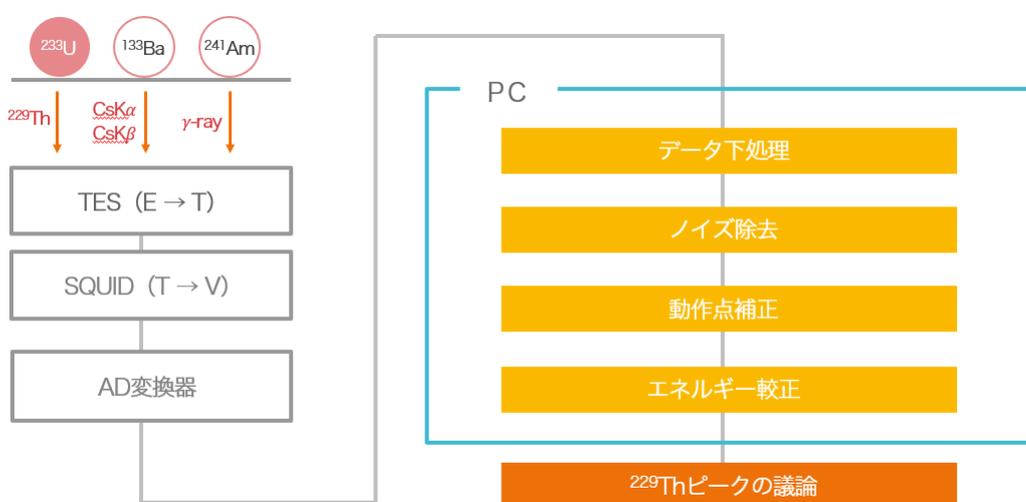


図3.1 解析の流れ。左側が未解析のデータがどのようにして得られたかを簡単に表した部分。右側が本研究が実際におこなった解析の部分。

一連の実験・解析の流れを簡単に図示したものが図3.1である。今まで説明してきた実験はこの左側の部分であり、その未解析だったデータを本研究で扱っている。実験全体を軽くふりかえる。 $^{233}\text{U}$ 線源 ( $^{229}\text{Th}$ を放射)、および較正線源  $^{133}\text{Ba}$  ( $\text{CsK}\alpha$ ,  $\text{CsK}\beta$ を放射)と  $^{241}\text{Am}$  ( $\gamma$ 線を放射)からの放射線がTES型マイクロカロリメータに入射し温度へ変換する。さらにSQUIDが電圧信号に変換して、データが蓄積されていく。

実際におこなった解析は右側のPC内での処理である。まずそのデータを扱いやすいように下処理して、必要不必要なデータをふるい分けデータを分割する。その後、よりよい分解能を得るためにそれぞれのデータセットについてノイズ除去や動作点補正をおこなう。最後にエネルギー較正曲線を用いて、補正されたデータをエネルギーと対応付ける。これからそれぞれの過程について順に説明していく。

### 3.1 使用データとソフトウェア

仙台で取得した4回のデータのうち、一番動作温度が低く、エネルギー分解能がよいと期待される2019年3月8日から11日のデータを用いることとする。ただ、取得できたデータ全てが使えるわけではない。

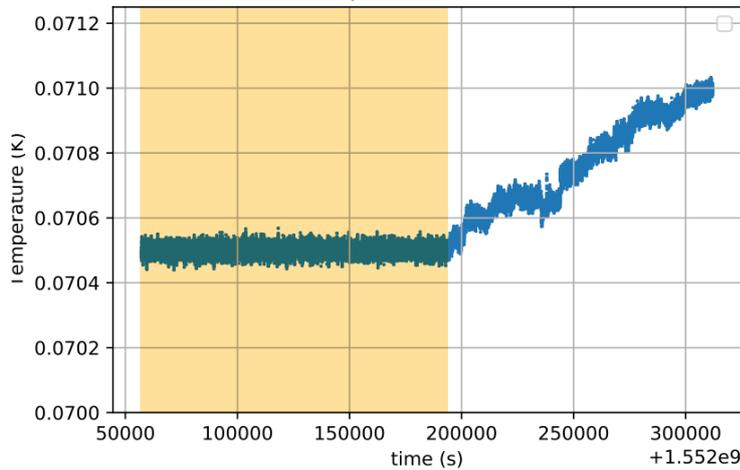


図3.2 冷凍機の温度の推移。急激に上昇しているところは冷却機の電源が入り、しばらくは設定温度70.5mK程度に保たれている。ADRの冷却能力が下ると温度が温度安定のためのヒータ電力は小さくなるというフィードバックがかかっている。ヒータの電力が下がりきると、設定温度以上になっていってしまう。橙の領域を有効な範囲とする。

冷凍機の電源を入れた直後は出力が安定しない。さらに、出力が3/10の11時ごろに止まってしまっており、それ以降は温度の上昇によってTESが安定して動作していなかった。そのため、「2019/3/8 21:22:23 - 2019/3/11 16:21:26」とられた132,551個/chのデータのうち、比較的出力が安定している「2019/3/9 00:30:00 - 2019/3/10 10:56:40」とられた68,999個/chのデータのみを採用する。

解析に使用したソフトウェアのversionを表3.1にまとめる。

表3.1 使用したソフトウェアとそのバージョン

ソフトウェア	バージョン
python	3.7.3
Jupyter	4.4.0
XSPEC	12.1.1

## 3.2 パルスデータと予備的データ弁別

放射線が入射すると、TESはパルス上の電流変化を生じる。それをイベントと呼ぶことにする。各イベントごとにパルス波形データを取得している。その例が図3.3である。取得には、picoscope 4224 (40 MS/s, 15 bit,  $\pm 2$  V)をもちい、サンプリングは24nsごと、トリガーの前後10msの20msのデータを保存している。実際には、時間分解能は細か過ぎたために、パルスの形が損なわれないよう1/64でダウンサンプリングして1.54  $\mu$ sのサンプリングレートとして用いている。

まず、図3.4のような各パルスに対し簡易的に「オフセット」と「パルス波高」を定義する。「オフセット」はパルスデータの1-100番目まで、すなわち約0.15msの電圧値の平均とする。そして、「パルス波高」(以降PH: Pulse Height)はオフセットから最小ピーク値までの差の絶対値とする。このPHが放射線のエネルギー

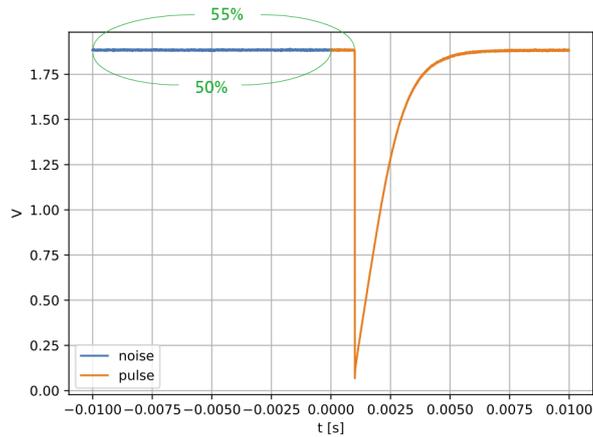


図3.3 立ち下がりのトリガごとに出力される 20 ms 間のデータ。ダウンサンプリング済みである。切り取る時間は立ち下がり前の方が 10% 長い。

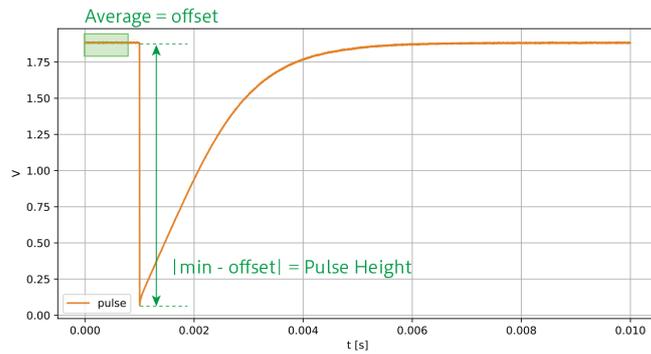


図3.4 図3.3のパルス部のみを切り出したデータ。オフセットの計算に使用する範囲は誇張してある

と粗く対応している。

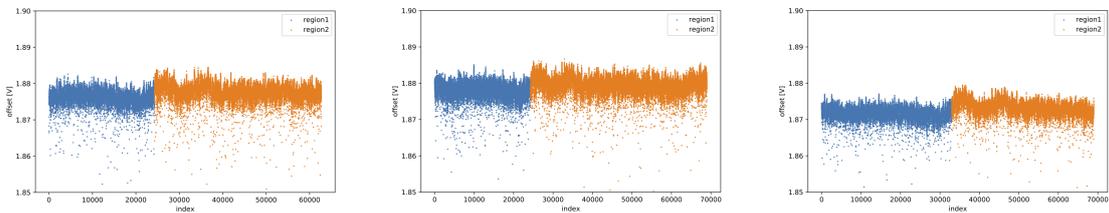


図3.5 各 ch ごとのオフセットのトレンド。左から ch2,ch3,ch4。 leap 前を青、 leap 後を橙でプロットしている。

そのオフセットにどのようなトレンドがあるか調べたものが図3.5になる。どの ch にもオフセットの”飛び”(leap)が存在し、それは図3.2でもわかるように冷凍機出力の leap 由来であることがうかがえる。オフセットが違えば TES の特性が変わってしまうので、leap 前後でそれぞれ「region1」「region2」という異なるデータセットとして扱うこととする。すなわち、パルスデータは時間的な 2 つの region と、3 つの異なる TES

Channel による 6 種類に大別される。

### 3.3 全体スペクトルと Line Identifying

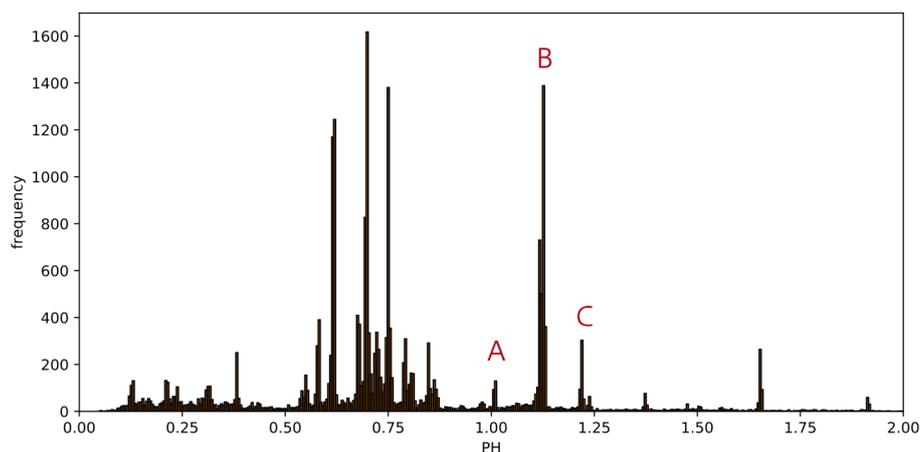


図3.6 ch4 region1 の PH ヒストグラムとピークのインデックス

ここで、いま具体的に何を見つけたいのか整理する。図3.6に PH ヒストグラムを示す。PH は先述したとおり「エネルギーに対応」しているが、どのように対応しているか、どれほどの精度で対応しているかはこれからの解析で明らかにしていかななくてはならない。本実験では、 $^{233}\text{U}$  の他に、エネルギー較正用に自作の  $^{133}\text{Ba}$  (500 kBq),  $^{241}\text{Am}$  (500 kBq) の線源が用いられていた。また TES は金, Ti が Si 基板上に製作されており, Al などが配線に使用されていた。TES の前面には、コリメータとして燐青銅 (Cu, Sn, P) の板が設置されていた。Ba が崩壊すると Cs の蛍光 X 線を出す。図のように様々な輝線構造が見られるため、それを同定しなくては、エネルギー較正がおこなえない。同様の実験をおこなっている Yamaguchi et al. (2019)[9] などから、探索している 29 keV  $^{229}\text{Th}$  輝線の前後のラインとして A,B,C を決めた。これを順に  $\text{Am}\gamma$ ,  $\text{CsK}\alpha$ ,  $\text{CsK}\beta$  由来のものだと仮定する。これは文献値 [15] のエネルギーや強度比から見当をつけたものである。そうであったならば、 $^{229}\text{Th}$  ピークはピーク B の低エネルギー側近傍に現れる。

### 3.4 ノイズを除去する手段: 最適フィルタ処理

パルスデータには多くのノイズが乗っているため、PH それ自体は使用に耐えうる解像度を持っていない。そのため「最適フィルタ処理」という処理をおこなう。これはパルスデータの S/N 比を最大化する波形処理である。以下、その理論について説明する。

オシロスコープで測定されたパルスデータを  $D(t)$  とする。これをフーリエ変換して

$$\tilde{D}(f) = \int dt D(t) \exp [2\pi i f t] \quad (3.1)$$

以下、式が見にくくなることを防ぐため周波数空間におけるチルダを省略する。

ここで大きな仮定として、パルスとノイズが独立で、さらに全てのパルスが相似であるとみなす。つまり、規格化されたモデルパルス  $M(f)$  と、各パルスデータ  $D_i$  に対応するノイズデータ  $N_i(f)$  と係数  $A_i$  は以下のような関係にあると仮定する。

$$D_i(f) = A_i M(f) + N_i(f) \quad (3.2)$$

知りたいのは PH に代わってパルスのスケールを表す量、すなわち  $A_i$  である。そのためには  $A_i$  がパルスデータ  $D_i$  と  $M_i$  の差を最小にしていることが求められる。この条件を最小二乗法を用いて記述したい。残差の 2 乗  $\chi^2$  を次のように定義する。

$$\chi^2 := \int df \frac{|D - AM|^2}{|N|^2} \quad (3.3)$$

ここでインデックスは省略されている。この  $\chi^2$  を最小にする  $A$  を調べていく。

$$\frac{\partial \chi^2}{\partial A} = \int df \frac{-(D^* M + DM^*) + 2A|M|^2}{|N|^2} \quad (3.4)$$

$$= \int df \frac{-2DM^* + 2A|M|^2}{|N|^2} \quad (3.5)$$

式3.5の変形は、 $D, M$  が実関数のフーリエ変換であることから  $D^*(f) = D(-f), M(-f) = M^*(f)$  となることを用いている。 $\chi^2 \geq 0$  だから、式3.5を 0 にする  $A$  が  $\chi^2$  を最小にする。左辺が 0 であるとして変形し、

$$A = \int df \frac{DM^*}{|N|^2} \bigg/ \int df \frac{|M|^2}{|N|^2} \quad (3.6)$$

$$= \int df \frac{D}{M} \frac{|M|^2}{|N|^2} \bigg/ \int df \frac{|M|^2}{|N|^2} \quad (3.7)$$

ここで、

$$T(t) := \mathcal{F}^{-1} \left( \frac{M^*}{|N|^2} \right) \quad (3.8)$$

を用いて式3.7を逆フーリエ変換すると、

$$A = \int dt D(t)T(t) \bigg/ \int df \frac{|M|^2}{|N|^2} \quad (3.9)$$

$$= C \int dt D(t)T(t) \quad (3.10)$$

である。なお、 $C$  は規格化定数である。今扱っているデータは時間を離散化したものなので、

$$A = C \sum_k D(t_k)T(t_k) \quad (3.11)$$

となる。このときの  $T$  をテンプレートと呼ぶ。

簡単に述べると、まずモデルパルスを平均で得て、係数を掛けたモデルパルスと各パルスの残差が最小になったとき、その係数を各パルス高に代わる指標とするものである。そしてこの指標を PHA (Pulse Height Analysis value) と呼ぶこととする。

実際の処理のフローチャートは図3.7に示した。モデルパルス  $M$  はあるピークに属するパルスデータを平均したものとする。テンプレート  $T$  は周波数空間で  $M/\bar{N}$  を計算し、逆フーリエ変換して得る。そして、各パルスデータ  $\#i$  の PHA は、 $D_i$  と  $T$  を用いて式3.11のように求める。

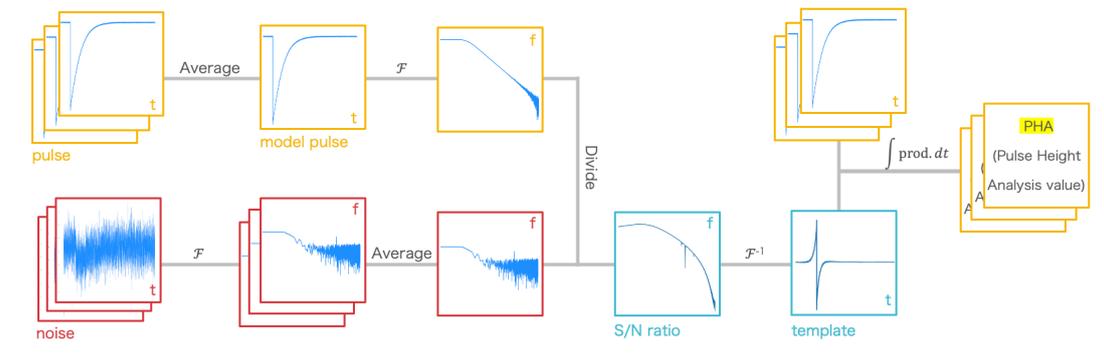


図3.7 最適フィルタ処理の概念図

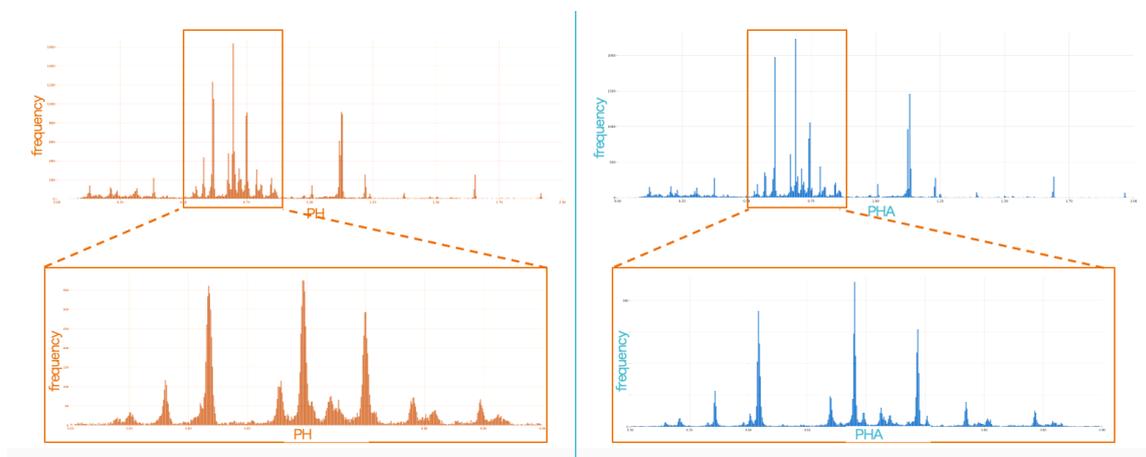


図3.8 ch4 region1 について、左は処理前のパルス高 (PH: Pulse Height) のヒストグラム、右は処理後の PHA のヒストグラム

なお、テンプレート  $T$  を作成するために使うパルスデータ集合はできるだけ相似であることが必要になる。そのため、比較的独立した同一のピークから得られたデータを用いるとよい。

図3.8で示されているように、この処理によってスペクトルの解像度は大幅に上昇する。しかし目標とする解像度には遠く及ばない。次節にてその原因究明と解決を目指す。

### 3.5 エネルギー較正を妨げるオフセットと PHA の相関の確認

前節のように、パルスピーク値ではなく、最適フィルタ処理による PHA を用いることでエネルギー分解能はある程度向上した。さらに PHA 値が TES の動作点の微妙な変化による影響を受けていないか調べるために、PHA の時間変化、また PHA と同時に最適フィルタ処理によって得られる offset 値との相関を調べた。すると、図3.9のように PHA と offset をプロットすると、相関関係を示唆していた。offset は信号入力前後での TES の動作点で流れていた電流値であり、動作点を意味する。この相関を定量的に評価し、補正することで、さらにエネルギー分解能の向上を目指す。offset と PHA に線形なズレが見られることから、図3.9に引いたような直線でフィッティングをおこなった。

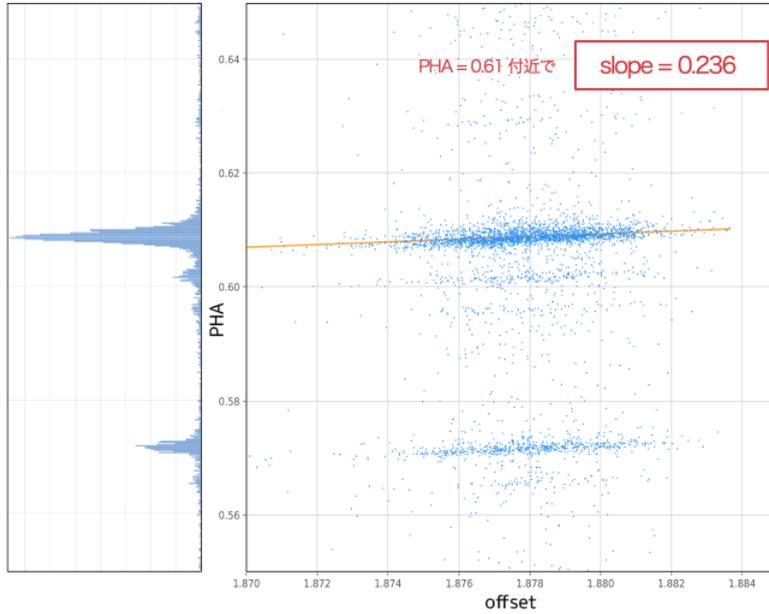


図3.9 ch4 region1 について。右は各パルスデータの PHA と offset 値をプロットしたもの。左は軸スケールを右の PHA に合わせて 90° 倒した PHA スペクトル。

各パルスデータ # $i$  について、

$$E = \sum_i |\text{PHA}_i - \{s(\text{OFST}_i - \text{OFST}_{\text{med}}) + t\}|^2 \quad (3.12)$$

を最小化するような  $(s, t)$  を求めて、そのパラメータとした。ここで OFST とは offset 電圧値のことであり、また  $\text{OFST}_{\text{med}}$  はピークデータ範囲内におけるその中央値とする。なお各ピークのデータ範囲については、ピーク A の極大をとる PHA を  $\widehat{\text{PHA}}_A$ 、半値全幅を  $\text{FWMH}_A$  として、

$$\left[ \widehat{\text{PHA}}_A - 2\text{FWMH}_A, \widehat{\text{PHA}}_A + 2\text{FWMH}_A \right] \quad (3.13)$$

と定めた。

この  $\text{slope}(= s = \Delta\text{PHA}/\Delta\text{OFST})$  が PHA スペクトルのピークをなまらせていることは明白であるから、これを水平にするという変換を考える。つまり、変換後の  $\text{PHA}_i$  を  $\text{PHA}'_i$  と書けば

$$\text{PHA}'_i = \text{PHA} - s(\text{OFST}_i - \text{OFST}_{\text{med}}) \quad (3.14)$$

とする。

しかし、複数のピークについて、この傾きは一定の値とは見なせなかった。図3.10は同じ channel, region のデータについての slope vs. PHA のプロットである。slope が PHA によって大きく異なっている。つまり、ある一つのピークの slope を基準にして変換式3.14を用いても、それはそのピークのみに適したものであって、他領域の分解能を上げるとは限らない。個々のピークでフィットで決めた slope を用いる方法では、未知のピーク検出には適用できないため、データ全体に適用できる補正方法を考える必要がある。図3.10に見えるよう

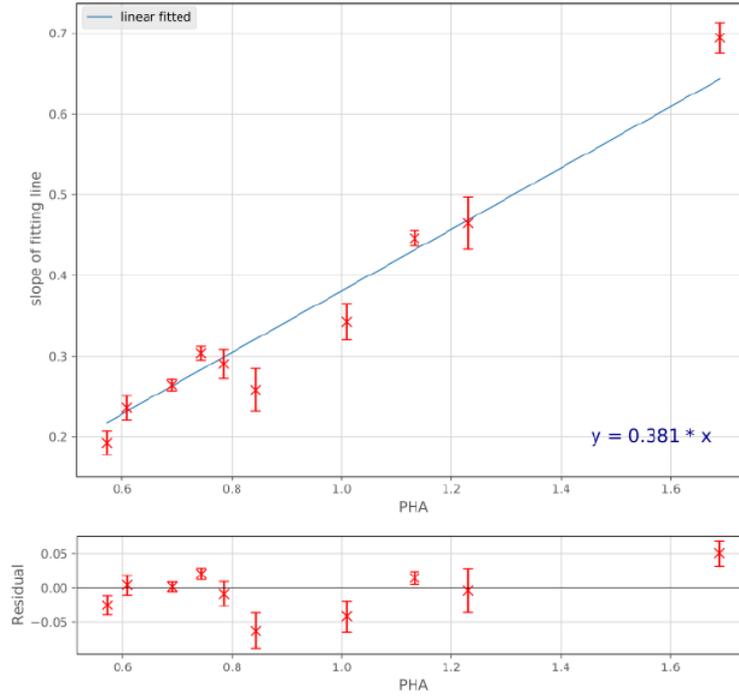


図3.10 ch4 region1 について slope vs. PHA。エラーバーは図3.9におけるフィッティングでの二乗平均平方根。青線は原点を通る直線でフィッティングしたもの。

に, slope と PHA の相関関係について注目する。PHA が大きくなれば slope が大きくなる傾向がある。この2つが比例関係にあると仮定し、その関係を内包したモデルを用いて変換してやれば、大域的に分解能を上げることができるだろうと考えられる。検出器から考えると、動作点の変動が、全体的なゲインの変動をもたらしている、ただしゲインの非線形性は考慮しない、という考え方である。

式3.14について、 $k$  を比例定数として  $s = k\text{PHA}$  の関係が成り立つと仮定すれば、

$$\begin{aligned} \text{PHA}'_i &= \text{PHA} - k\text{PHA}(\text{OFST}_i - \text{OFST}_{\text{med}}) \\ &= \text{PHA}[1 - k\text{PHA}(\text{OFST}_i - \text{OFST}_{\text{med}})] \end{aligned} \quad (3.15)$$

便宜上  $\alpha = -k$  として、

$$\text{PHA}'_i = \text{PHA}[1 + \alpha\text{PHA}(\text{OFST}_i - \text{OFST}_{\text{med}})] \quad (3.16)$$

によって、データ全体を補正し、分解能を最大にする  $\alpha$  を探せばよい。

### 3.6 相関を補正する手段: スペクトルエントロピー

個々のピークの最適値ではなく、全体にかかわるパラメータ  $\alpha$  を決定し、分解能を改善する手法として、Likelihood の指標としての「スペクトルエントロピー」を導入する。いま、変換式3.16で得られた  $\text{PHA}'_i(\alpha)$  を  $N_b$  bin のヒストグラムにする。このとき  $m$  番目の bin に入っているデータ割合を  $f_m$  と書く。これらの記号を用いてスペクトルエントロピー  $H$  を

$$H = - \sum_{m=1}^{N_b} f_m \log f_m \quad (3.17)$$

と定義する。一様分布であれば  $\log N_b$  となり、デルタ関数であれば 0 となる。このように、 $H$  が小さいときには分布のコントラストが大きくなる。

すなわち  $H$  を最小にする  $\text{PHA}'_i(\alpha)$ 、これを達成できる  $\alpha_{H \min}$  を求めることが、相関を補正する最適な変換となる。

まず、 $N_b$  の大きさはどのように選ぶかという問題がある。あまりに大きいと分解能のボトルネックになってしまう。逆に小さすぎると  $f_m$  が全体的に小さくなってしまい  $H(\alpha)$  の変化が少なくなってしまう。今回のデータは  $\sim 60$  keV のピーク (Am 由来の  $\gamma$  線) まで観測されていることを踏まえ、いま数 eV の分解能を見たいわけだから、スペクトル全体を  $\sim 10^4$  分割してヒストグラムにすれば 1bin あたり数 eV となって適切である。

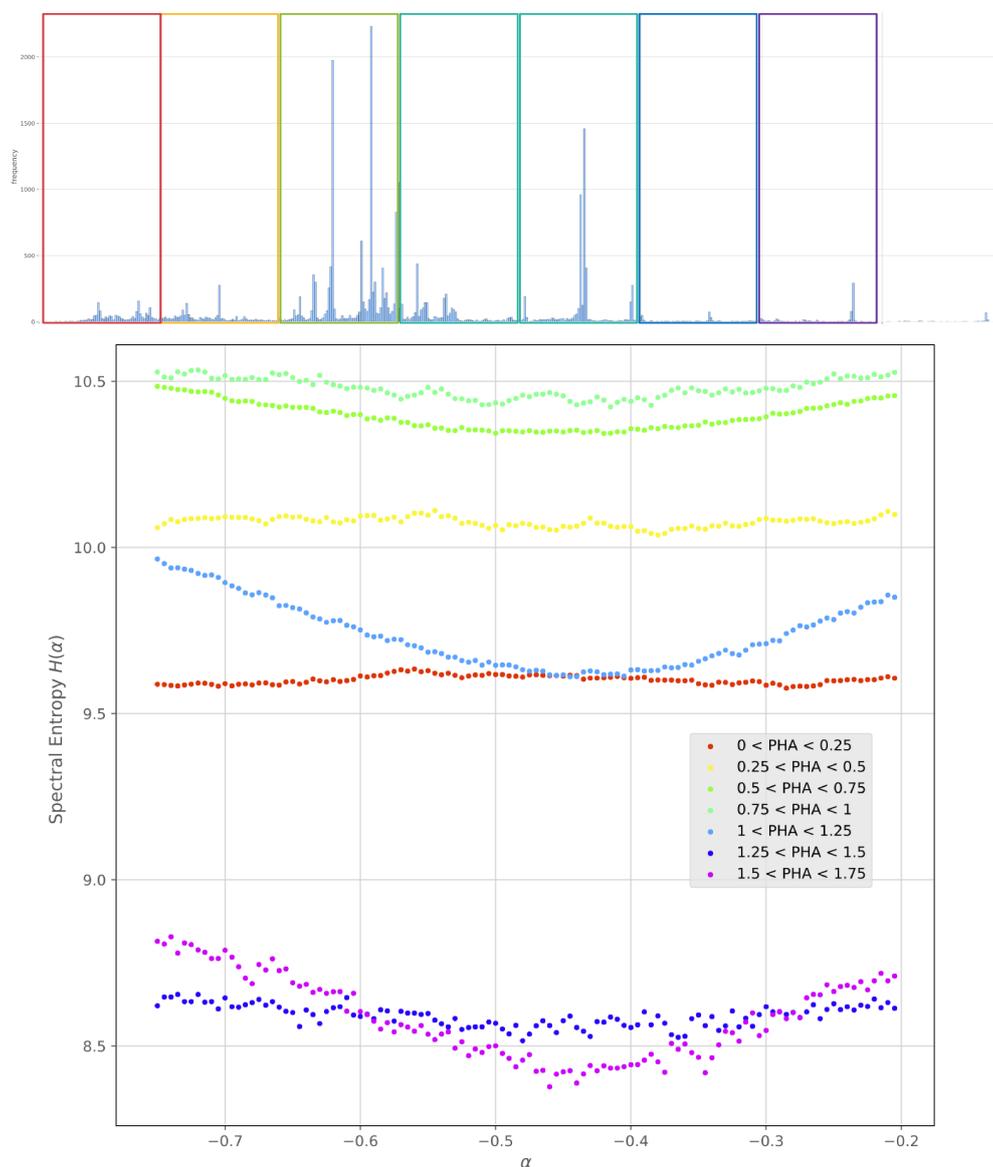


図3.11 ch4 region1 について、PHA スペクトルを7つの領域に分けたもの(上)と、それぞれの範囲で  $H-\alpha$  をプロットしたもの(下)。各色は領域に対応している。

また、調べたい  $^{229}\text{Th}$  ピークが出現する位置からかけ離れた領域に注目しても意味がないどころか、むしろ分解能が悪くなる可能性さえある。実際大まかに7つの領域に分けて  $H-\alpha$  をプロットしたものが図3.11になる。領域によって  $\alpha_{H\text{min}}$  が異なり、さらに  $H$  が変化しなかったり  $\alpha$  に対し上に凸であったりするところもあった。 $^{229}\text{Th}$  ピークが出現する範囲は  $\text{CsK}\alpha$  付近であることは分かっているので、この範囲の  $\alpha_{H\text{min}}$  を採用すべきである。

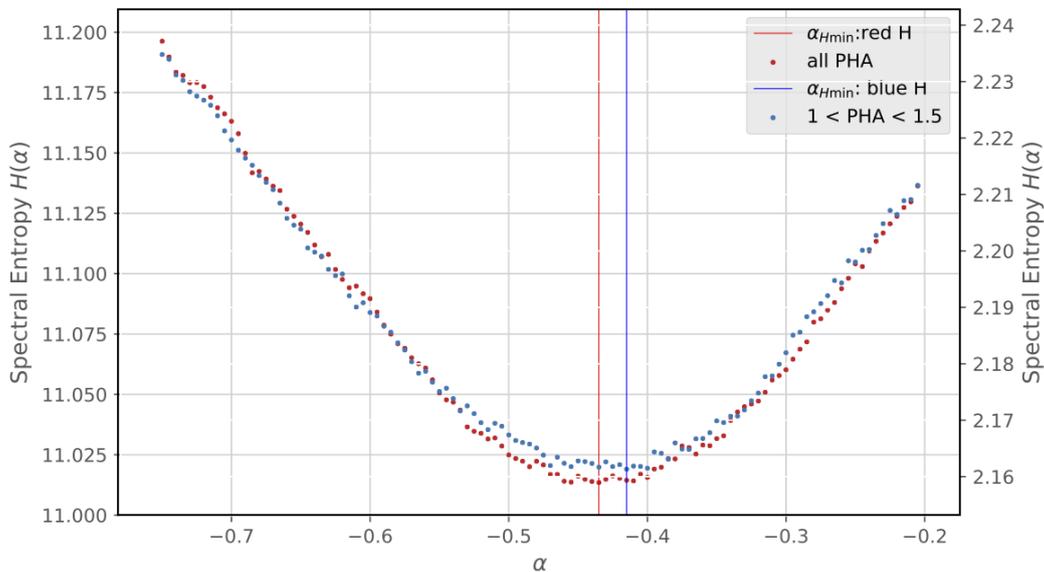


図3.12 ch4 region1 について、赤点は PHA の全範囲を用いて  $H$  を計算しプロットしたもの、青点は  $1 < \text{PHA} < 1.5$  の範囲を用いて  $H$  を計算しプロットしたもの。縦線は各色に対応する  $H$  についての  $\alpha_{H \min}$  を明示している。

図3.12で、PHA 範囲を制限する前後の  $H$  の振る舞いを比較している。制限前は  $\alpha_{H \min} = -0.435$ 、制限後は  $\alpha_{H \min} = -0.415$  であった。

果たしてこのような工夫が必要なのかどうか、 $\Delta\alpha = 0.02$  がどの程度影響を及ぼすかを概算して調べてみよう。PHA 領域を制限した後の補正により PHA の offset 依存性が完全になくなったと仮定すると、制限前の依存性は  $\text{slope} = 0.02$  である。図3.9を参考にして、 $|\text{OFST}_i - \text{OFST}_{\text{med}}| < 0.003$  のデータ点が PHA 空間におけるピークの「幅」とみなせば、これは  $10^{-4}$  ほどになる。PHA  $\approx 1$  にあるピークは 26.34 keV の Am $\gamma$  線によるものと考えられる (図3.6) から、エネルギー空間におけるピークの「幅」は数 eV になる。アイソマーエネルギーも数 eV であるから、 $\Delta\alpha = 0.02$  の差により測定精度が悪くなってしまうことがわかる。

これ以外のデータセットについては、エネルギー範囲を統一するために、「図3.11の水色の範囲」を「図3.6における A,B,C を含むような範囲」と再定義して、その PHA データを抽出して同様の解析をおこなう。

### 3.7 エネルギー較正曲線の決定

これから抽出された範囲内のピークをフィッティングして正確な PHA を導き出す。TES のゲインは一般には単純な線形ではなく、先行研究でも多項式等で表しているものが多い。ただし、今回は 29 keV ライン前後の狭い範囲でゲイン較正がおこなえれば十分なため、線形でも問題のない可能性もあり、実際のデータで確認をおこなう。まずは個々のピークの PHA 値を正確に求めることを考える。輝線のモデルとしては、不確定性原理によるスペクトルの広がりを自然幅として特徴づけられたローレンツ関数として表現し、それにガウシアン的なノイズが重畳されたものと仮定する。図3.13をみると、B と C は2つのピークが近い距離に存在している。1つずつフィッティングしてはもう片方の影響を強く受けるので、ここは同時にフィッティングする。

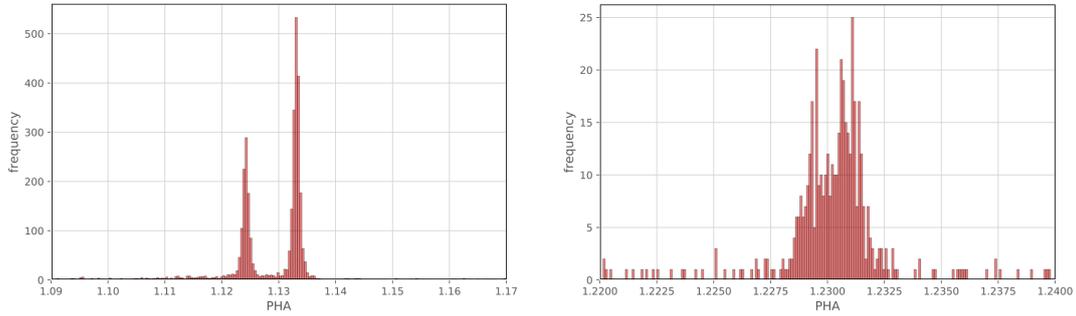


図3.13 ch4 region1 について、左は  $H$  最小化をおこなったのち図3.6におけるピーク B を拡大したもの。右はピーク C を拡大したもの。

ただし、ピークを中心や自然幅は  $E$  と PHA がどのような関係にあるかに依存してしまう。そこで局所的に  $\text{PHA} = aE + b$  という線形関係が成り立つと仮定して、以下のようなローレンツ関数  $L'$  を新たに定義する。

$$L'(x | E, \Gamma, a, b) = \frac{a\Gamma}{2\pi} \frac{1}{[x - (aE + b)]^2 + \left(\frac{a\Gamma}{2}\right)^2} \quad (3.18)$$

これによって 2 つのピークの位置関係や幅を  $a, b$  というパラメータでまとめて記述することができる。ガウシアン幅については、エネルギーが近いので共通の値とした。(独立させても一致する値しか得られなかった)

この関数  $L'$  とガウス関数  $G$  を畳み込みして

$$W(x | E_1, E_2, \Gamma_1, \Gamma_2, a, b, n, \sigma) + \text{const.} \quad \text{where} \quad W := (L'_1 + nL'_2) * G \quad (3.19)$$

をダブルピークのモデルとする。

ここでさらなる仮定をする。ピーク A は左から  $\text{CsK}_{\alpha 2}, \text{CsK}_{\alpha 1}$  の重ね合わせ、ピーク B は左から  $\text{CsK}_{\beta 3}, \text{CsK}_{\beta 1}$  の重ね合わせとする。そうすると  $E_1, E_2, \Gamma_1, \Gamma_2, n$  を表 A.1 におけるそれぞれの文献値に固定して、フィッティングのパラメータを減らすことができる。

実際にフィッティングした結果は次の図 3.14 および表 3.2 のようになった。ただし、`xspec` が扱いやすい形にするために、PHA を定数倍している。以降はこれを単に「PHA」と呼ぶことにする。

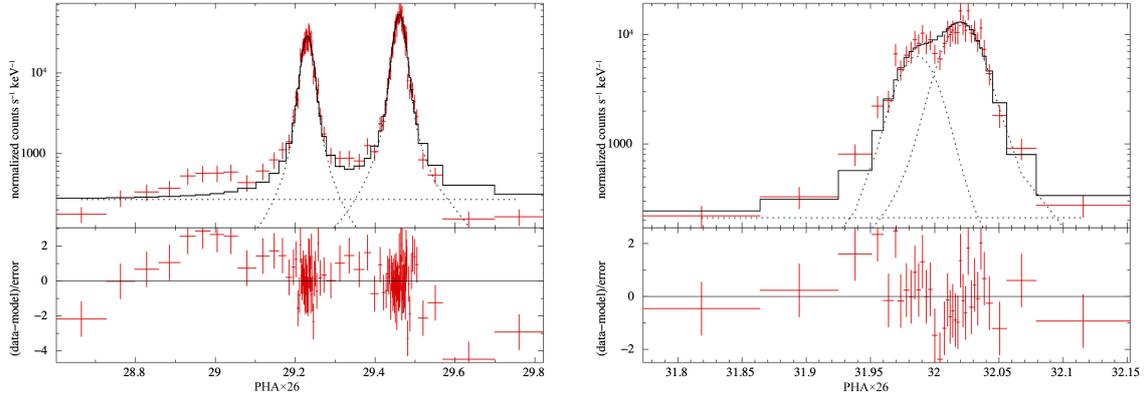


図3.14 ch4 region1 について、左はピーク B、右はピーク C についての図である。上のヒストグラムは 1bin あたり最低 20 データであり、黒実線はモデル3.19を用いてフィッティングしたものの。下のプロットはモデルとデータとの差である。

表3.2 各 ch 及び各 region についてフィッティングして求めた PHA とその誤差。Line の列に書かれたピーク名は仮定されたものである。誤差は PHA の 68% 誤差である。

ch2	Line	PHA × 26k	ch3	Line	PHA × 26k	ch4	Line	PHA × 26k
	Am $\gamma$	28143 ± 1.4		Am $\gamma$	20999 ± 0.55		Am $\gamma$	26242 ± 1.1
	CsK $_{\alpha 2}$	31491 ± 0.11		CsK $_{\alpha 2}$	23506 ± 0.31		CsK $_{\alpha 2}$	29230 ± 0.44
reg1	CsK $_{\alpha 1}$	31759 ± 0.66	reg1	CsK $_{\alpha 1}$	23696 ± 0.34	reg1	CsK $_{\alpha 1}$	29460 ± 0.45
	CsK $_{\beta 3}$	34592 ± 8.8		CsK $_{\beta 3}$	25817 ± 1.1		CsK $_{\beta 3}$	31961 ± 0.14
	CsK $_{\beta 1}$	34668 ± 8.8		CsK $_{\beta 1}$	25852 ± 1.1		CsK $_{\beta 1}$	32002 ± 0.14
	Am $\gamma$	27891 ± 0.92		Am $\gamma$	21025 ± 0.90		Am $\gamma$	26263 ± 0.67
	CsK $_{\alpha 2}$	31213 ± 0.45		CsK $_{\alpha 2}$	23524 ± 0.37		CsK $_{\alpha 2}$	29249 ± 0.33
reg2	CsK $_{\alpha 1}$	31473 ± 0.41	reg2	CsK $_{\alpha 1}$	23719 ± 0.35	reg2	CsK $_{\alpha 1}$	29476 ± 0.35
	CsK $_{\beta 3}$	34284 ± 1.9		CsK $_{\beta 3}$	25835 ± 1.1		CsK $_{\beta 3}$	31985 ± 1.3
	CsK $_{\beta 1}$	34339 ± 1.9		CsK $_{\beta 1}$	25870 ± 1.1		CsK $_{\beta 1}$	32020 ± 1.3

表3.2の ch4 region1 についてをプロットしたものが図3.15である。この 5 点を結んだときになだらかに繋がっていることから、ピークの同定は尤もなものであると判断できる。

ここから、ch や region ごとに分割されていたデータセットを統合していく。しかし、TES が異なれば同じエネルギーに対して同じ PHA を出力するとは限らない。また、これは TES は同じであっても動作点が異なる (=region が異なる) データセットについても同様のことがいえる。このような問題により、PHA からエネルギーへの変換は全データセットで一律におこなってはならない。各々のデータセットがどのような関係にしたがっているかを明らかにし、エネルギー空間で統合する必要がある。

較正曲線  $PHA = f(E)$  について、 $f$  が多項式で十分近似できると仮定する。では何次式が適切だろうか。ch4 region1 の 5 点を誤差で重み付けした  $n$  次式の  $\chi^2$  フィッティングをおこなった。( $n = 1, 2, 3$ )

ここで、多項式の次数を上げたときにどのくらい  $\chi^2$  が改善するかを表した指標  $F$  を次のように定義する。

$$F_{n \rightarrow n+1} := \frac{\chi_n^2 - \chi_{n+1}^2}{\chi_{n+1}^2 / \text{dof}_{n+1}} \quad (3.20)$$

$\chi_n^2$  は  $n$  次式でフィッティングしたときの最小の  $\chi^2$  で、 $\text{dof}_n$  は  $n$  次式でフィッティングしたときの自由度で

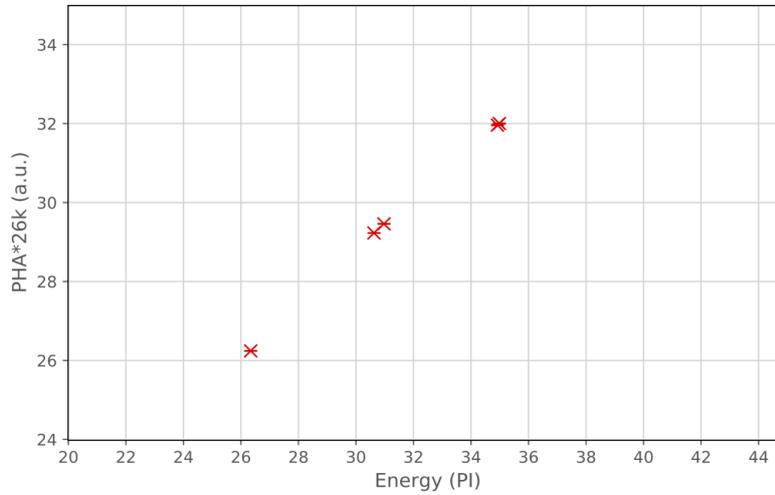


図3.15 ch4 region1 について PHA vs. エネルギー (PI)。各ピークに対応するエネルギーは表A.1の値とした。エラーバーは68% 誤差であるが、小さいのでつぶれている。

ある。結果は表3.3のようになった。

表3.3 ch4 region1 について、注目している5ピークに対して  $n$  次式の  $\chi^2$  フィッティングをおこなった。その  $\chi^2/\text{dof}$  と式3.20で定義された指標  $F$ 。

n	dof	$\chi^2/\text{dof}$	F
1	3	15871	70689
2	2	0.674	
3	1	0.301	3.48

$F_{1 \rightarrow 2}$  は非常に大きな値であり、多項式の次数を上げることでフィッティングが大幅に改善されていることを示している。 $F_{2 \rightarrow 3}$  についても、これは1に比べ十分に大きいので、多項式の次数を上げることで有意にフィッティングが改善していることを示している。したがって多項式でフィッティングをするならば3次多項式が最もよい近似となることがいえる。

さらに、 $\chi^2_3$  自体が1より十分小さいことから、この3次多項式が十分較正曲線を近似できるという前述の仮定は保証された。実際にこの曲線を PHA vs. エネルギーのプロットに重ねたものが図3.16である。この解析は山口 (2019)[9] を参考にしている。

他のデータセットについても同様に、重み付けした3次多項式のフィッティングを用いて PHA をエネルギーに変換していく。全てのデータセットについて、変換したスペクトルの一部を図3.17に示す。

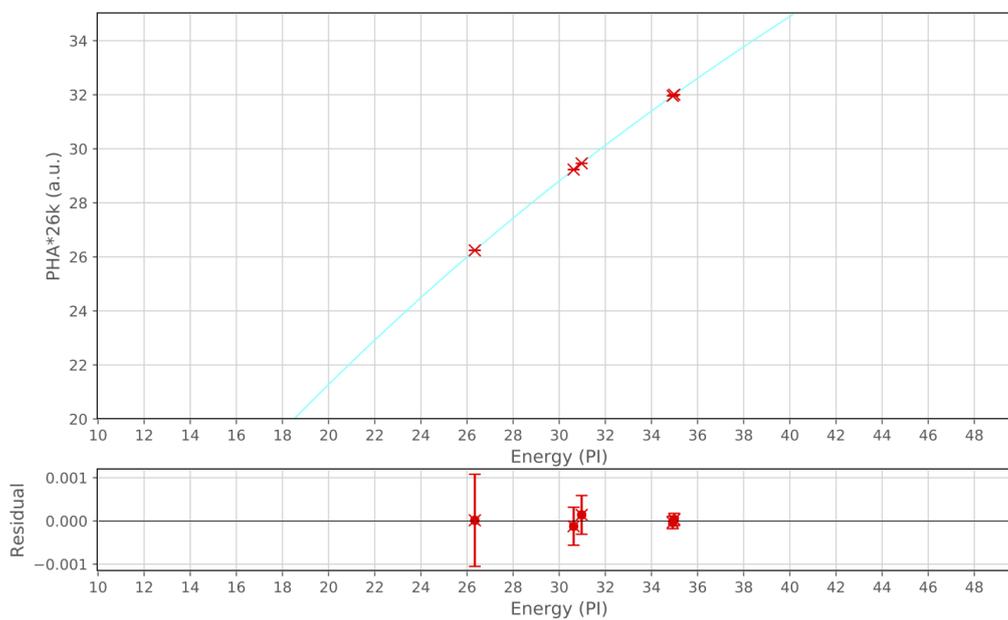


図3.16 ch4 region1 について、上は図3.15でもプロットした 5 点を 3 次多項式を用いて誤差で重み付けしてフィッティングしたもの。水色線は求めた較正曲線。下は残差である。誤差棒はどちらも 68% 誤差を示す。

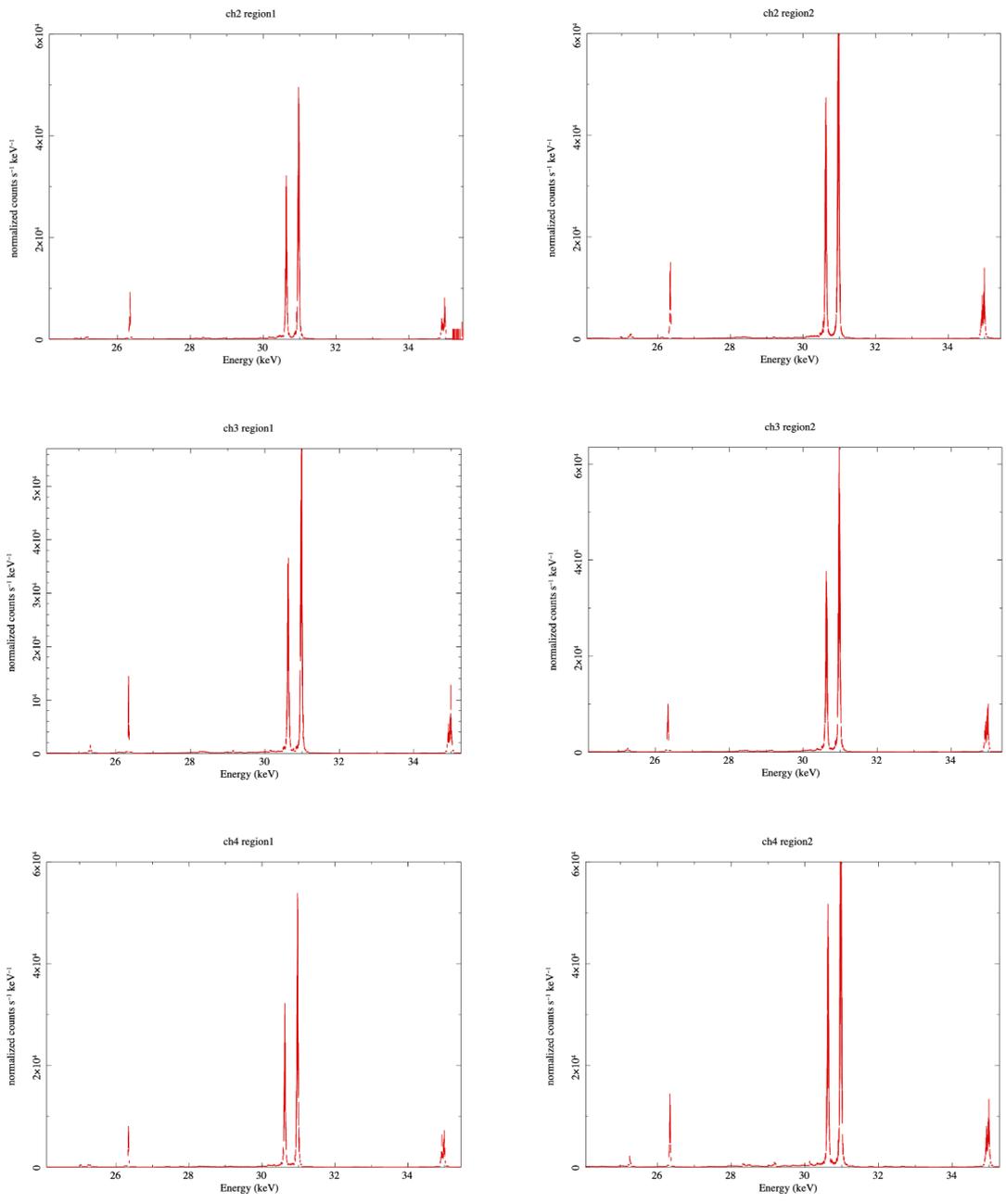


図3.17 全ての ch と region について、較正曲線によって PHA から変換されたエネルギーのスペクトル。較正に使用したピーク周辺を抽出している。

## 第 4 章

# 解析結果と議論

### 4.1 結果：解析後のエネルギースペクトル中でどれが見たいピークか

全てのデータセットについて、前章の解析で求めた較正曲線にしたがい、PHA をエネルギーにそれぞれ変換し統合した。結果のスペクトルを図4.1に示す。

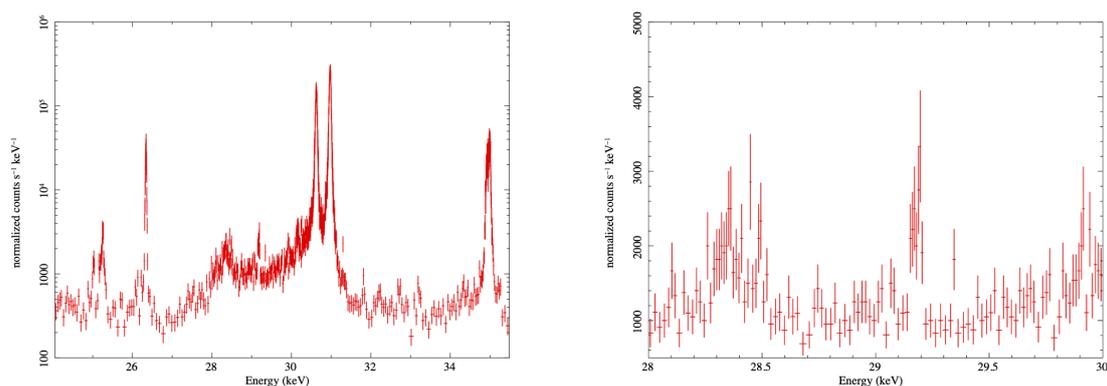


図4.1 統合したデータのエネルギースペクトル。左は較正に使用したピーク周辺を抽出している。 $y$  軸は対数スケールであることに注意。右はさらに 29 keV 周辺を拡大したもの。 $y$  軸は線形スケールであることに注意。

$^{229}\text{Th}$  のピークは 29.2 keV 近傍に出現することが分かっている。図4.1の両方の図から、確かに当該位置にピークが存在することが確認できる。この  $^{229}\text{Th}$  ピークの最有力候補を、ピーク P と呼ぶこととする。ピーク P を単一のガウス分布でフィッティングした結果を表4.1および図4.2に示す。

表4.1 ピーク P のイベント数、および単一のガウス分布でフィッティングして得られたエネルギーと幅。誤差は 68% 誤差である。

counts.	77.76 (28900-29500 eV)
Energy [eV]	$29180.8^{+3.3}_{-4.4}$
$\sigma$ [eV]	$18.53^{+3.4}_{-2.2}$

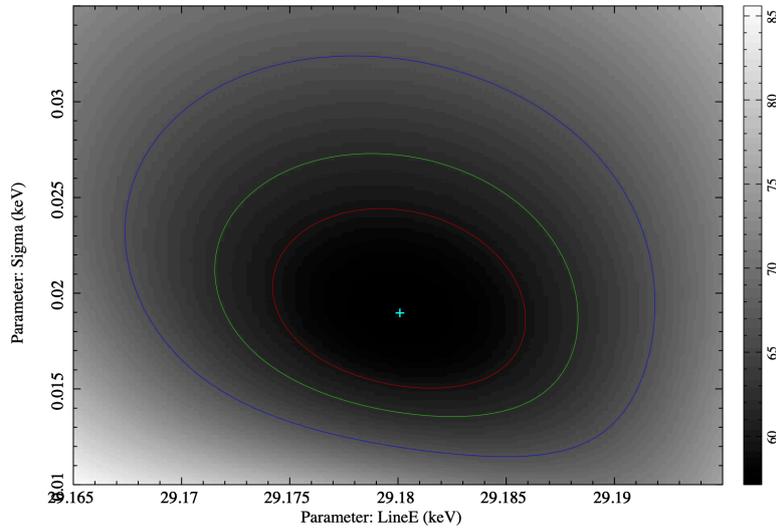


図4.2 ピーク P を単一のガウス分布でフィッティングしたときの contour plot。赤、緑、青線はそれぞれ 68%, 90%, 99% の信頼度曲線。背景の明度は  $\chi^2$  統計量を示す。

## 4.2 議論：結果と先行研究との比較

この実験で達成することができたエネルギー分解能を評価する。まず、Yamaguchi et al.(2020)[9] の実験および解析では 36 eV の分解能を達成している。まず、 $^{241}\text{Am}\gamma$  線と  $\text{CsK}_{\alpha}$  線についてどのくらい分解能があるかをフィッティングによって調べた。その際、エネルギーや自然幅の値は文献値に固定している。結果を 4.2 に示す。

表4.2  $^{241}\text{Am}\gamma$  線および  $\text{CsK}_{\alpha 2}$  のエネルギー分解能。また 29.1816 keV における分解能の推測値も記載してある。

peak	$\sigma$ [eV]
$^{241}\text{Am}\gamma$	$17.1971^{+0.17}_{-0.17}$
$\text{CsK}_{\alpha 2}$	$14.987^{+0.40}_{-0.39}$
(29.1816 keV)	(18.53)

この解析で求められた  $\sigma$  は先行研究のおよそ半分であり、分解能を大きく向上させることができたことがわかる。

では実際にピーク P の分離を試みてみる。中心値が先行研究の  $E_{\text{IN}}$ 、標準偏差が解析で求めた  $\sigma$  としたガウス分布のモデルをピーク P から減じたとき、その残差にガウス分布が存在していればピークが分離できたといえる。結果を図 4.3 に示す。

先行研究によると 29.19 keV に  $E_{\text{CR}}$  の山が見えるはずであるが、今回の残差のプロットで有意な山を見つけることができなかった。つまり、現状ではまだ 29 keV の  $^{229}\text{Th}$  におけるダブルピークを分離することは

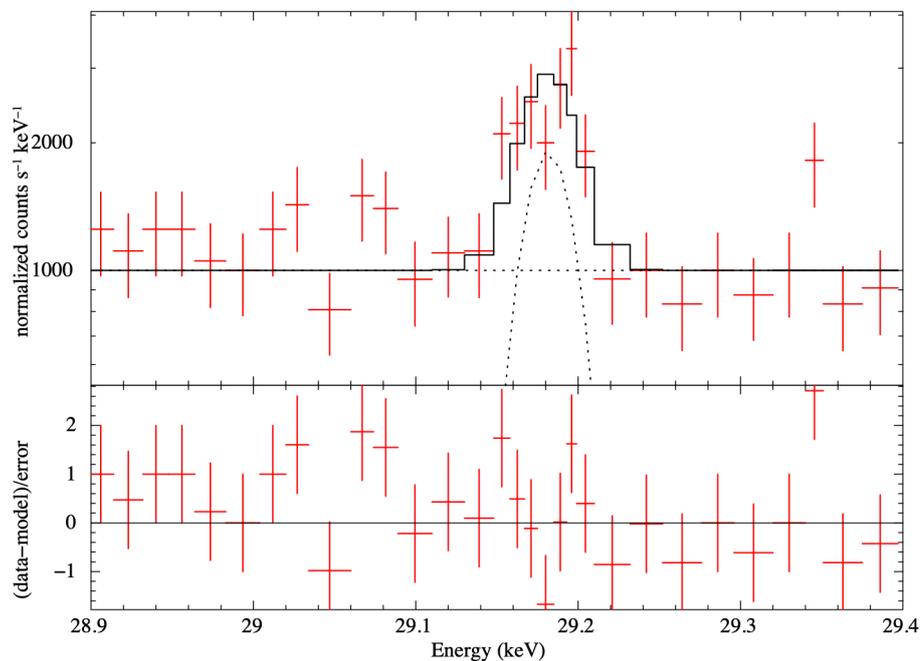


図4.3 上はピーク P 周辺のエネルギースペクトルに、モデル（ガウス分布 +const.）を重ねた図。下はその残差。const.=1000 とし、norm は  $\chi^2$  が最も小さくなる大きさとした。

きなかった。

逆に今回の実験の分解能でダブルピークのモデルを作ってみる。エネルギーや norm 比は Yamaguchi et al.[9] の値を採用した。これを単一のガウス分布でフィットした。この結果を図4.4, 4.5に示す。「 $^{229}\text{Th}$  のピークが単一のガウス分布でフィットできる」という仮説が unacceptable になる、つまりピークが分離できるようになるのは、イベント数が 3000 以上であるときだった。（信頼度 99%）

しかしこれは今回の実験の誤差において統計誤差が支配的であることを仮定している。系統誤差が原因で、イベント数を増やしても分解能の改善が頭打ちになる可能性は否定できない。その評価は今後の課題となる。

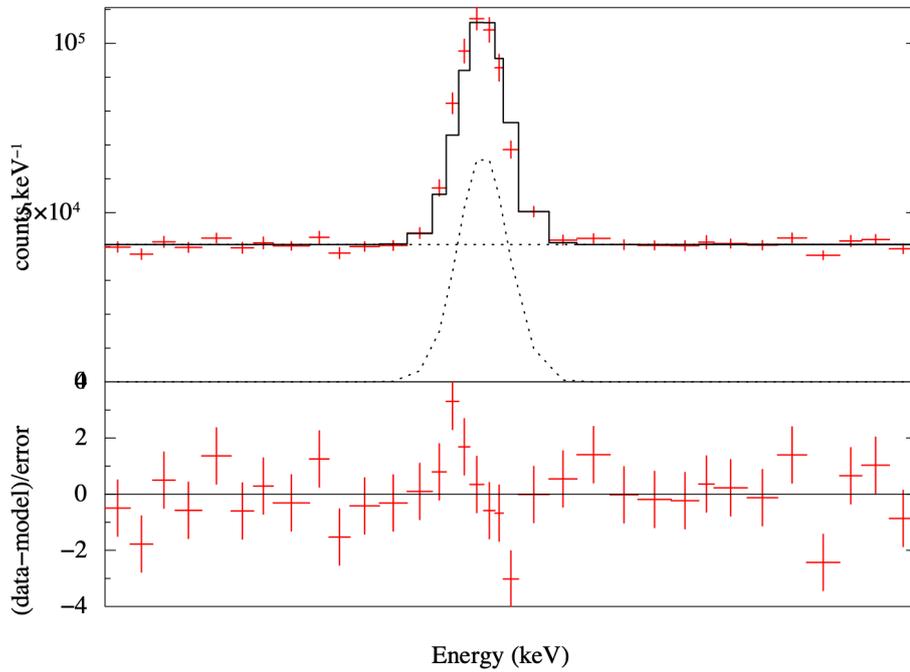


図4.4 イベント数が3000の $^{229}\text{Th}$ のピークモデルを単一のガウス分布でフィッティングした図。残差がガウス分布から有意に外れていることが分かる。

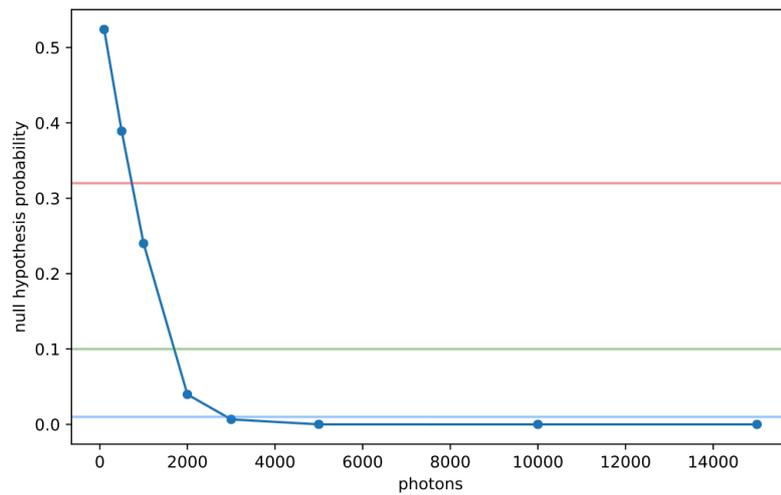


図4.5 イベント数 (photon 数) を変化させたとき、「 $^{229}\text{Th}$ のピークモデルが単一のガウス分布でフィットできない」という仮説が棄却できる確率。赤、緑、水色の横線はそれぞれ68%, 90%, 99%。

## 第 5 章

# 結論と展望

本研究では、レーザー共振可能な  $\leq 10$  eV の  $^{229}\text{Th}$  の isomer レベルを測定し、原子時計への応用を可能とするために、これまで解析されてこなかった TES 型マイクロカロリメータが測定したパルスデータのゲイン変動等による影響を統計学的に処理することで、優れたエネルギー分解能のスペクトルを導く解析手法の確立を目指した。パルスごとの動作点の影響を補正することと、ゲインの非線形性のモデル化が必要である。

Yamaguchi et al. [9] では解析されなかったデータに対して、解析を試みた。冷凍機ヒーターの出力が不安定になっている時間をとり除き、データの不定性をとりのぞいた。また安定した領域内でも TES の動作点に leap が存在していたため、前後でデータセットを分けた。次に、最適フィルタ処理をおこなって計算された PHA とオフセット（動作点）が依存関係にあることを見つけ、スペクトルエントロピーという指標を最尤化するように補正した。これによってさらにエネルギースペクトル解像度が上昇した。そして、較正曲線を多項式で近似し、次数を上げたときにフィッティングがどれだけ改善したかを F テストによって選択した上で、複数の TES センサ、時間範囲を統合して足し合わせたエネルギースペクトルを生成した。これらの結果、異なる Isomer level に対する最低エネルギー準位として、2 つの  $\gamma$  線スペクトルをもつと期待できる  $^{229}\text{Th}$  のピークを 29 keV 周辺に発見した。そしてこのエネルギー分解能が  $18.53^{+3.4}_{-2.2}(1\sigma)$  eV であった。これは先行研究である Yamaguchi et al.[9] の半分程度であり、 $\gamma$  線分光において非常に優れた分解能を実現できたことになる。

今回のデータからは、このラインの光子数は 80 程度であり、 $^{229}\text{Th}$  のピークを直接分離することは難しかった。この原因としては、冷凍機の停止によって測定時間の半分は使用不可能なデータであったため、イベント数が少なくなったことがあげられる。先行研究に基づいたモデリングによると、現状の分解能では、ピークの分離のためには 3000 イベントほどが必要である。より安定した環境で実験をおこなうことが望ましい。また、知りたいピークの付近に較正に使用できるピークが少なかったため、較正曲線の正確な描画に限界があった。較正用の線源を更に工夫して設ける必要がある。さらに、バックグラウンドノイズや較正用ピークのテールが  $^{229}\text{Th}$  の解析を妨げていた。実験のセットアップを改良して、これらの影響を少なくすることが求められる。しかしこれらの改善をおこなっても、系統誤差の影響によって分解能の向上が頭打ちになる可能性がある。つまりいつまでたってもピークが分離可能とならないかもしれない。その評価も今後の課題となる

## 参考文献

- [1] G. Edward Marti, Ross B. Hutson, Akihisa Goban, Sara L. Campbell, Nicola Poli, and Jun Ye. Imaging optical frequencies with 100  $\mu\text{Hz}$  precision and 1.1  $\mu\text{m}$  resolution. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 120, p. 103201, Mar 2018.
- [2] Masao Takamoto, Ichiro Ushijima, Noriaki Ohmae, Toshihiro Yahagi, Kensuke Kokado, Hisaaki Shinkai, and Hidetoshi Katori. Test of general relativity by a pair of transportable optical lattice clocks. *Nature Photonics*, Vol. 14, No. 7, pp. 411–415, 2020.
- [3] E Peik and Chr Tamm. Nuclear laser spectroscopy of the 3.5 eV transition in th-229. *Europhysics Letters (EPL)*, Vol. 61, No. 2, pp. 181–186, jan 2003.
- [4] S G Karshenboim. Some possibilities for laboratory searches for variations of fundamental constants. *Canadian Journal of Physics*, Vol. 78, No. 7, p. 639–678, Jul 2000.
- [5] E. V. Tkalya, Christian Schneider, Justin Jeet, and Eric R. Hudson. Radiative lifetime and energy of the low-energy isomeric level in  $^{229}\text{Th}$ . *Phys. Rev. C*, Vol. 92, p. 054324, Nov 2015.
- [6] R. G. Helmer and C. W. Reich. An excited state of  $^{229}\text{Th}$  at 3.5 ev. *Phys. Rev. C*, Vol. 49, pp. 1845–1858, Apr 1994.
- [7] B R Beck, J A Becker, P Beiersdorfer, G V Brown, K J Moody, J B Wilhelmy, F S Porter, C A Kilbourne, and R L Kelley. Energy splitting of the ground-state doublet in the nucleus  $^{229}\text{Th}$ . *Phys Rev Lett*, Vol. 98, No. 14, p. 142501, Apr 2007.
- [8] Benedict Seiferle, Lars von der Wense, Pavlo V. Bilous, Ines Amersdorffer, Christoph Lemell, Florian Libisch, Simon Stellmer, Thorsten Schumm, Christoph E. Düllmann, Adriana Pálffy, and et al. Energy of the  $^{229}\text{Th}$  nuclear clock transition. *Nature*, Vol. 573, No. 7773, p. 243–246, Sep 2019.
- [9] A. Yamaguchi, H. Muramatsu, T. Hayashi, N. Yuasa, K. Nakamura, M. Takimoto, H. Haba, K. Konashi, M. Watanabe, H. Kikunaga, K. Maehata, N. Y. Yamasaki, and K. Mitsuda. Energy of the  $^{229}\text{Th}$  nuclear clock isomer determined by absolute  $\gamma$ -ray energy difference. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 123, p. 222501, Nov 2019.
- [10] Tomas Sikorsky, Jeschua Geist, Daniel Hengstler, Sebastian Kempf, Loredana Gastaldo, Christian Enns, Christoph Mokry, Jörg Runke, Christoph E. Düllmann, Peter Wobrauschek, Kjeld Beeks, Veronika Rosecker, Johannes H. Sterba, Georgy Kazakov, Thorsten Schumm, and Andreas Fleischmann. Measurement of the  $^{229}\text{Th}$  isomer energy with a magnetic microcalorimeter. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 125, p. 142503, Sep 2020.
- [11] P G Thirof, B Seiferle, and L von der Wense. The 229-thorium isomer: doorway to the road from the atomic clock to the nuclear clock. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*,

Vol. 52, No. 20, p. 203001, sep 2019.

- [12] Richard L. Kelley, Kazuhisa Mitsuda, Christine A. Allen, Petar Arsenovic, Michael D. Audley, Thomas G. Bialas, Kevin R. Boyce, Robert F. Boyle, Susan R. Breon, Gregory V. Brown, Jean Cottam, Michael J. DiPirro, Ryuichi Fujimoto, Tae Furusho, Keith C. Gendreau, Gene G. Gochar, Oscar Gonzalez, Masayuki Hirabayashi, Stephen S. Holt, Hajime Inoue, Manabu Ishida, Yoshitaka Ishisaki, Carol S. Jones, Ritva Keski-Kuha, Caroline A. Kilbourne, Dan McCammon, Umeyo Morita, S. Harvey Moseley, Brent Mott, Katsuhiro Narasaki, Yoshiaki Ogawara, Takaya Ohashi, Naomi Ota, John S. Panek, F. Scott Porter, Aristides Serlemitsos, Peter J. Shirron, Gary A. Sneiderman, Andrew E. Szymkowiak, Yoh Takei, June L. Tveekrem, Stephen M. Volz, Mikio Yamamoto, and Noriko Y. Yamasaki. The Suzaku High Resolution X-Ray Spectrometer. *Publications of the Astronomical Society of Japan*, Vol. 59, No. sp1, pp. S77–S112, 01 2007.
- [13] K.D.Irwin and G. C. Hilton. Transition-edge sensors. In C. Enss, editor, *Cryogenic Particle Detection*, Vol. 99 of *Topics in Applied physics*, p. 63. Springer, Berlin, Heidelberg, [https://doi.org/10.1007/10933596\\_3](https://doi.org/10.1007/10933596_3).
- [14] H. Muramatsu. *A spectroscopic study of 229-Th isomer using TES microcalorimeters*. PhD thesis, Department of Physics, Graduate School of Science, The University of Tokyo, 2018.
- [15] Günter H. Zschornack. X-ray emission lines and atomic level characteristics. In *Handbook of X-Ray Data*, Vol. 1, pp. 179–609. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2017.

## 付録 A

# 使用したピークエネルギー

表A.1 今回の研究で主に使用した特性 X 線および  $\gamma$  線のエネルギー・強度比・自然幅  
(Handbook of X-Ray Data[15] より抜粋)

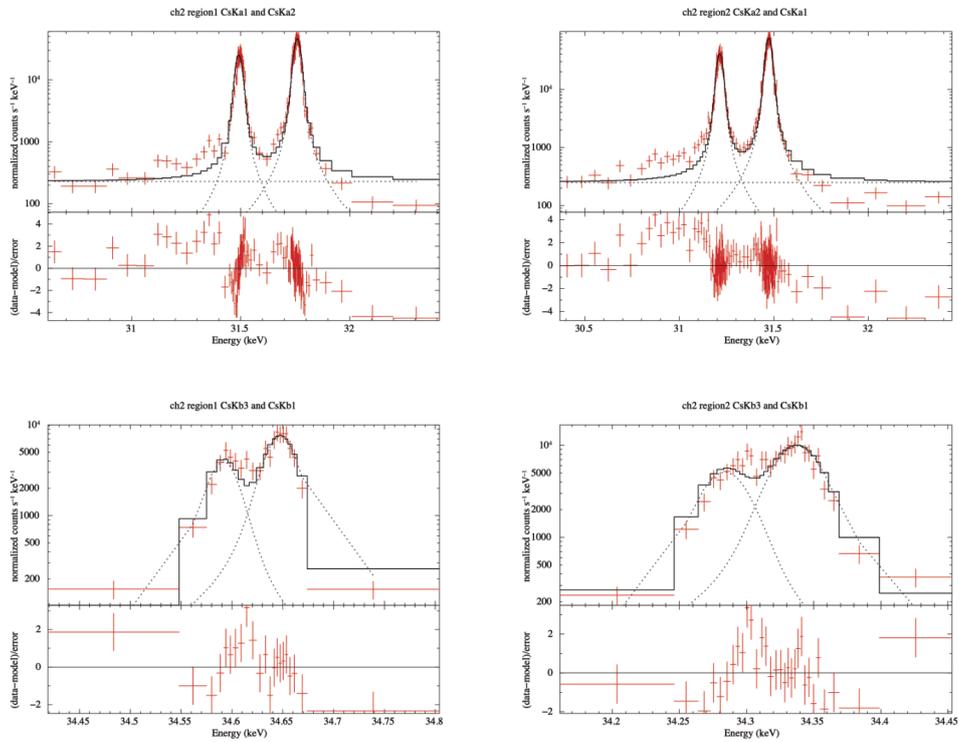
Atom	Line	E/eV	I/eV/ $\hbar$	$\Gamma$ /eV
Cs	$K_{\alpha 2}$	$30625.40 \pm 0.45$	3.07	15.80
	$K_{\alpha 1}$	$30973.13 \pm 0.46$	5.68	15.60
	$K_{\beta 3}$	$34919.68 \pm 0.58$	0.538	16.89
	$K_{\beta 1}$	$34987.30 \pm 1.0$	1.042	17.79
Th	$L_{\alpha 1}$	$12968.70 \pm 0.40$	2.186	11.90
	$L_{\beta 1}$	$16202.20 \pm 0.20$	2.939	12.40
	$L_{\gamma 1}$	$18982.50 \pm 0.90$	0.659	15.00
Np	$L_{\alpha 1}$	$13944.26 \pm 0.21$	2.529	11.83
	$L_{\beta 1}$	$17750.36 \pm 0.34$	3.441	13.41
	$L_{\gamma 1}$	$20785.04 \pm 0.46$	0.787	15.93
$^{241}\text{Am-}\gamma$	-	$26344.8 \pm 0.2$	-	-

## 付録 B

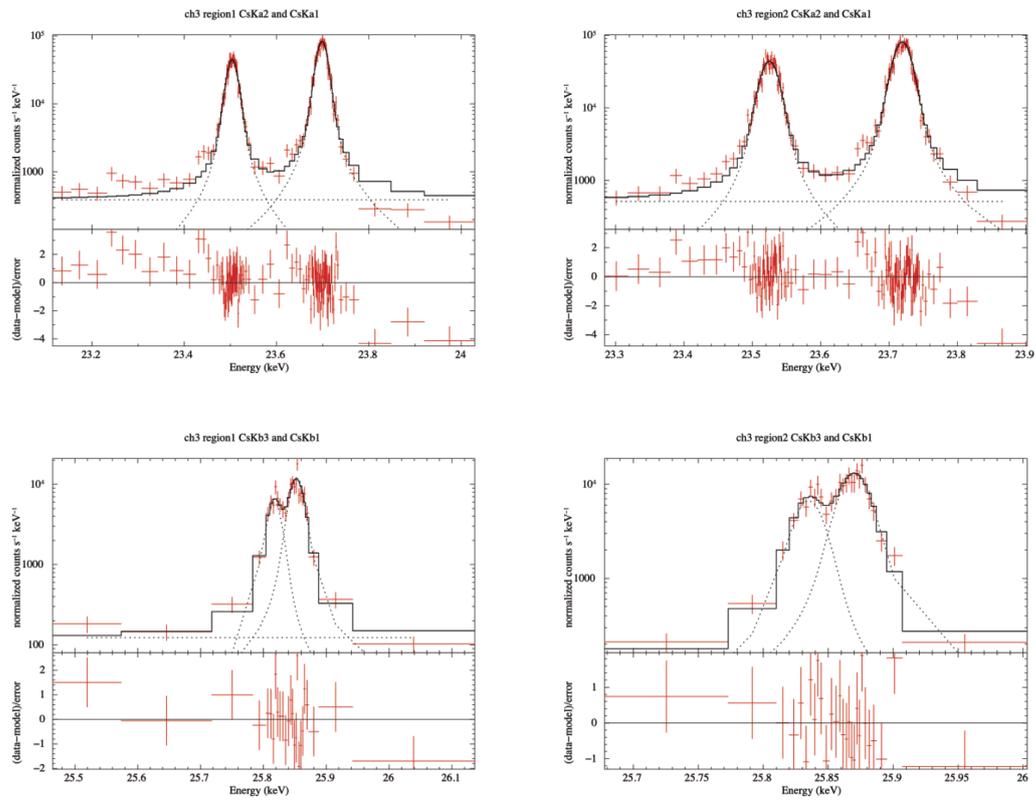
# 他のデータセットでの結果

本文中で述べたデータセットを含む、6つ全てのデータセットにおける解析の結果をここに載せる。ここで、「region1」というのは「offset が leap する前の時間のデータセット」、「region2」というのは「offset が leap した後の時間のデータセット」である。図の詳しい見方は本文中の記述を参照されたい。

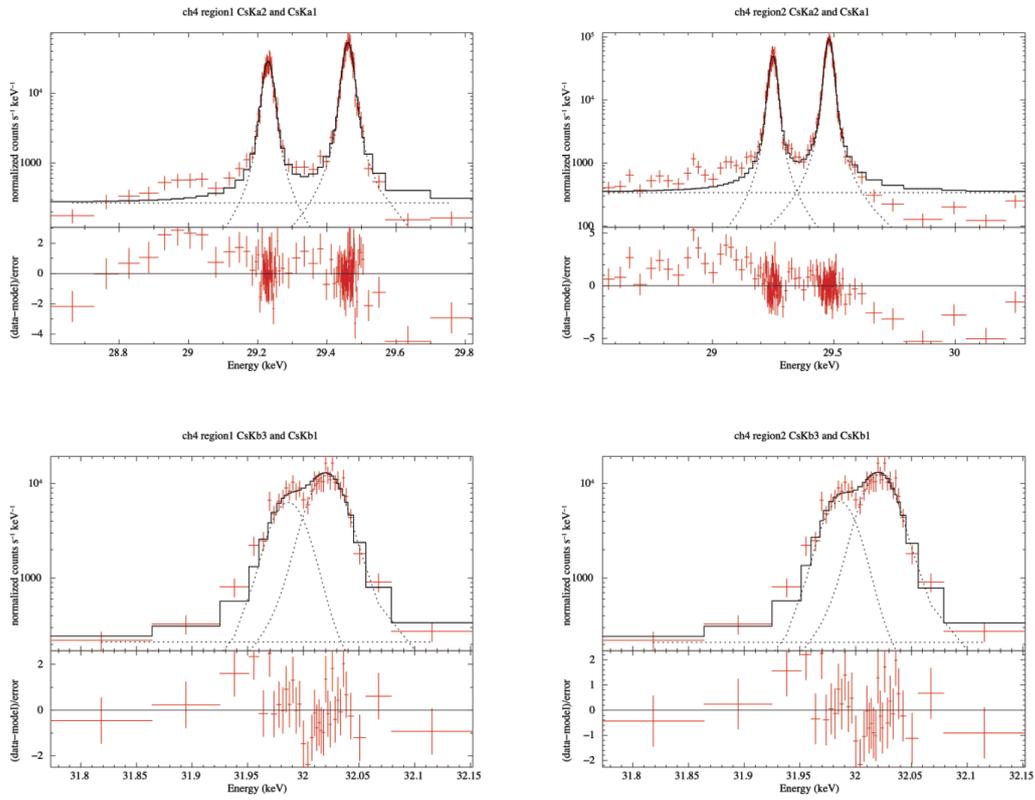
## B.1 ピークのフィッティング



図B.1 それぞれのデータセットについて、ピークをフィッティングしたようす。下部のプロットはフィッティング曲線とデータの残差である。詳細は図3.14を参照。左上：ch2 region1 CsK $\alpha$ 2 および  $\alpha$ 1。左下：ch2 region1 CsK $\beta$ 3 および  $\beta$ 1。右上：ch2 region2 CsK $\alpha$ 2 および  $\alpha$ 1。右下：ch2 region2 CsK $\beta$ 3 および  $\beta$ 1。



図B.2 それぞれのデータセットについて、ピークをフィッティングしたようす。下部のプロットはフィッティング曲線とデータの残差である。詳細は図3.14を参照。左上：ch3 region1 CsK $\alpha$ 2 および  $\alpha$ 1。左下：ch3 region1 CsK $\beta$ 3 および  $\beta$ 1。右上：ch3 region2 CsK $\alpha$ 2 および  $\alpha$ 1。右下：ch3 region2 CsK $\beta$ 3 および  $\beta$ 1。



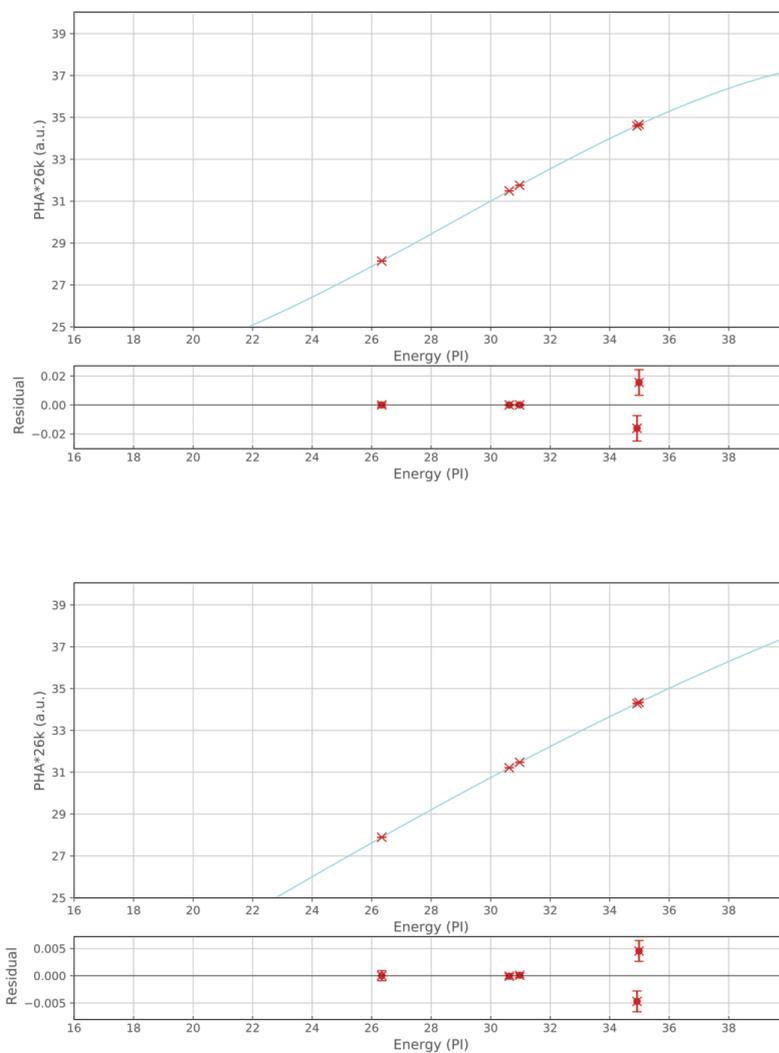
図B.3 それぞれのデータセットについて、ピークをフィッティングしたようす。下部のプロットはフィッティング曲線とデータの残差である。詳細は図3.14を参照。左上：ch4 region1 CsK $\alpha$ 2 および  $\alpha$ 1。左下：ch4 region1 CsK $\beta$ 3 および  $\beta$ 1。右上：ch4 region2 CsK $\alpha$ 2 および  $\alpha$ 1。右下：ch4 region2 CsK $\beta$ 3 および  $\beta$ 1。

## B.2 スペクトルエントロピーを最小化する $\alpha$ と、フィッティング次数を評価する指標 $F$

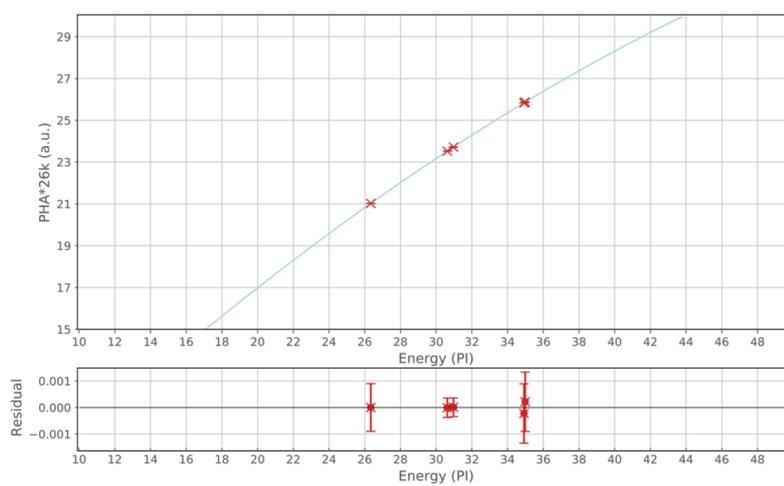
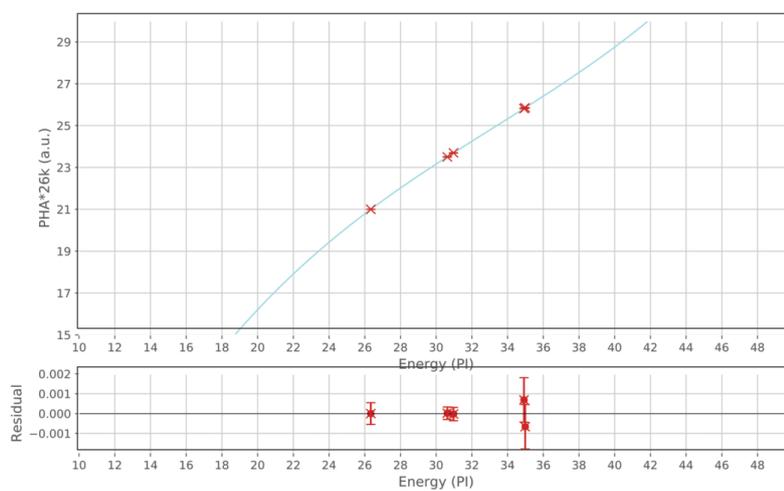
表B.1 各データセットごとの「スペクトルエントロピーを最小化する  $\alpha$ 」と「フィッティング次数を上げることが適切か判断する指標  $F$ 」。

		$\alpha$	$F_{1 \rightarrow 2}$	$F_{2 \rightarrow 3}$
ch2	reg1	-0.4	22.702	16.948
	reg2	-0.36	2852.2	0.2599
ch3	reg1	-0.48	669.34	135.16
	reg2	-0.435	427395	0.3278
ch4	reg1	-0.445	70689	3.4820
	reg2	-0.4	8690.5	0.0598

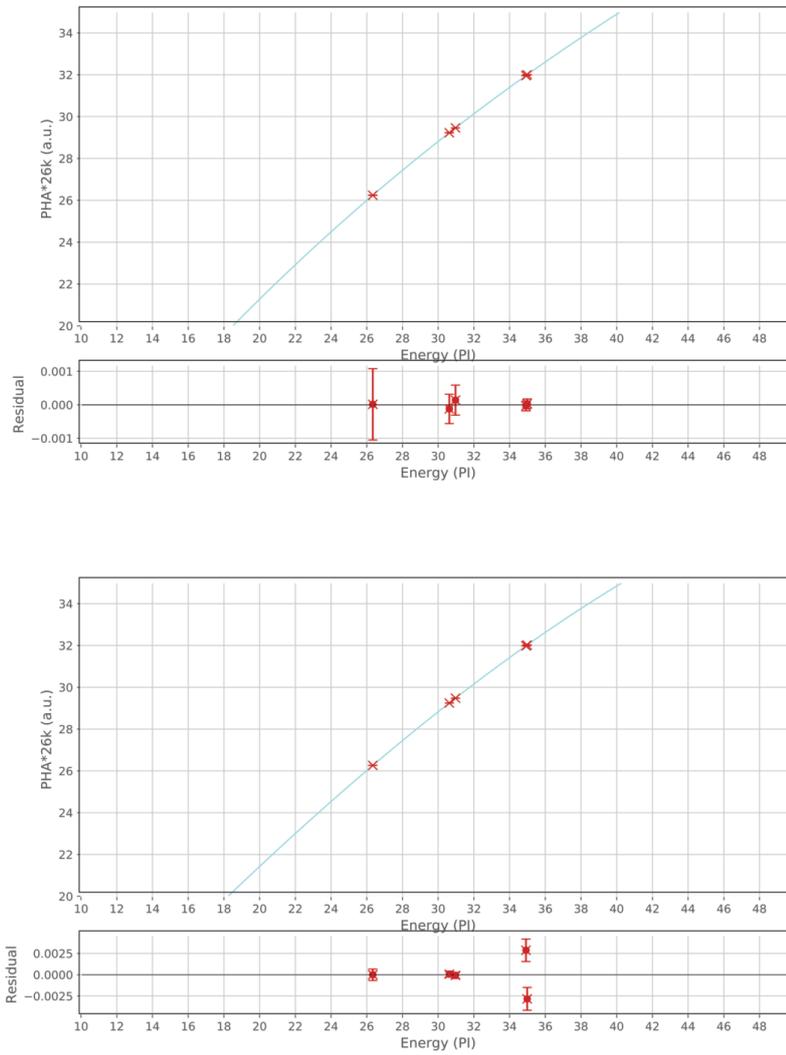
### B.3 較正曲線の作成



図B.4 それぞれのデータセットについての較正曲線。下部のプロットは較正曲線とデータの残差である。詳細は図3.16を参照。上：ch2 region1。下：ch2 region2



図B.5 それぞれのデータセットについての較正曲線。下部のプロットは較正曲線とデータの残差である。詳細は図3.16を参照。上：ch3 region1。下：ch3 region2



図B.6 それぞれのデータセットについての較正曲線。下部のプロットは較正曲線とデータの残差である。詳細は図3.16を参照。上：ch4 region1。下：ch4 region2

# 謝辞

本研究をこの論文の形まで進めるにあたり、たくさんの方々の暖かい激励と丁寧なご指導ご鞭撻を賜りました。心から感謝申し上げます。最終審査では安東正樹先生と馬場彩先生に貴重なご助言をいただきました。ありがとうございます。

指導教員の山崎典子先生には、自分がテーマを決めあぐね徒らに時を過ごしていたところ、本研究のテーマを与えてくださいました。自分は入院や療養等の様々なトラブルを起こす手のかかる問題児だったと思います。にもかかわらず親身になってくださり、感謝をしてもし尽くせません。

満田和久先生には、毎週のミーティングで鋭い指摘をいただきまして、素人同然だった統計学について、理解を深めることができました。感謝申し上げます。

理化学研究所の山口敦史さんには、研究が滞って捗々しい報告ができなかったときも、暖かく見守ってくださいました。また解析が袋小路に陥ったときも、丁寧にアドバイスしてくださいました。ありがとうございます。

山崎研究室秘書の高橋紀子さんには、事務的な面だけでなく、日常的な面でも手厚くサポートしてくださいました。とくに体調を気遣ってください、ご心配をおかけしてしまい恐縮でしたが、とても安心することができました。本当にありがとうございます。

林佑さんには、さまざまな解析について手取り足取りお教えくださいました。右も左も分からない状態から何度も何度も昼夜問わず質問を繰り返してしまいご迷惑をおかけしました。もしそのご指導がなければここまで結論を導くことはできませんでした。ありがとうございます。

研究室同期の八木雄大くんが研究に熱心に取り組む姿からはとても刺激を受け、もっと頑張らないと自分を鼓舞する源になっていました。ありがとうございます。

また、元物理学科の同期たちやサークルの友人たちには、ときにはアドバイスをもらったり、ときには互いの苦しみを分かちあったり、本当に精神的な支えになりました。ありがとうございます。

最後に、何度も見舞いに来てくれたり、快復の手伝いをしてくれた父、母、兄にはとても感謝をしています。直接は言えないのでここにこっそり書かせてもらいます。

末筆ではございますが、未曾有の災禍が続く中、みなさま大変なご苦労をされていると存じます。どうぞご自愛下さい。いち早くこの世間に漂う暗い雰囲気が晴れることを祈るばかりです。