

B5 高純度ゲルマニウム検出器を用いたSK-Gd計画等のための放射性不純物量測定

東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会

2025.01.30

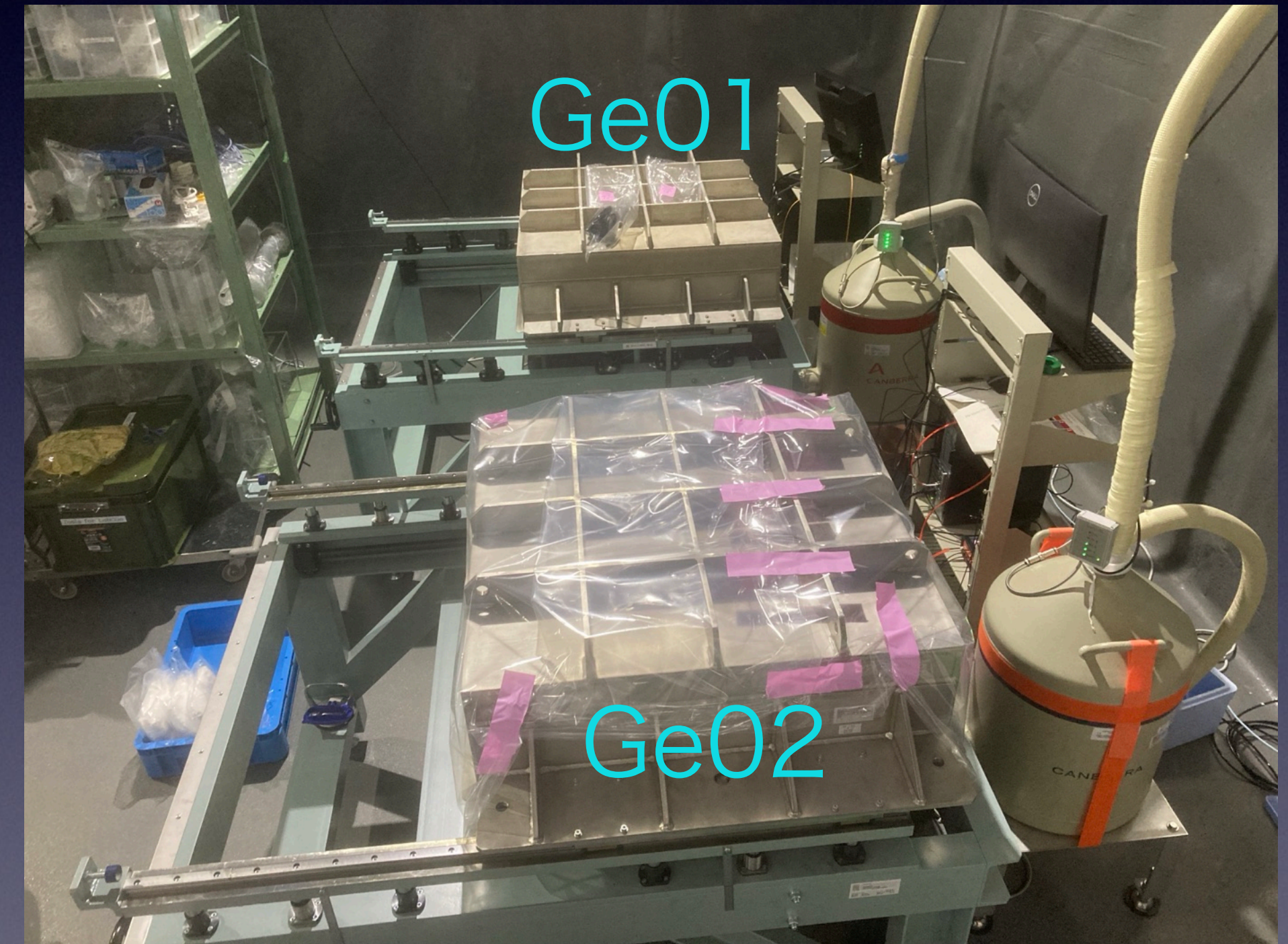
東北大学ニュートリノ科学研究センター 細川 佳志

申請時所属機関とメンバー (B5)

- 東北大RCNS：市村晃一, 岸本康宏, 池田晴雄、千葉健太郎 (学生) 神澤帝鳳 (学生)
- 東大宇宙線研：関谷洋之, 竹田敦, 安部航, 池田一得, 細川佳志(現東北大RCNS)
- 東大：中島康博
- 東京理科大学：伊藤博士
- 東北大：中村輝石
- 横国大：南野彰宏, 佐々木優斗 (学生)
- 筑波大：坂口綾, 高久雄一

査定金額と用途

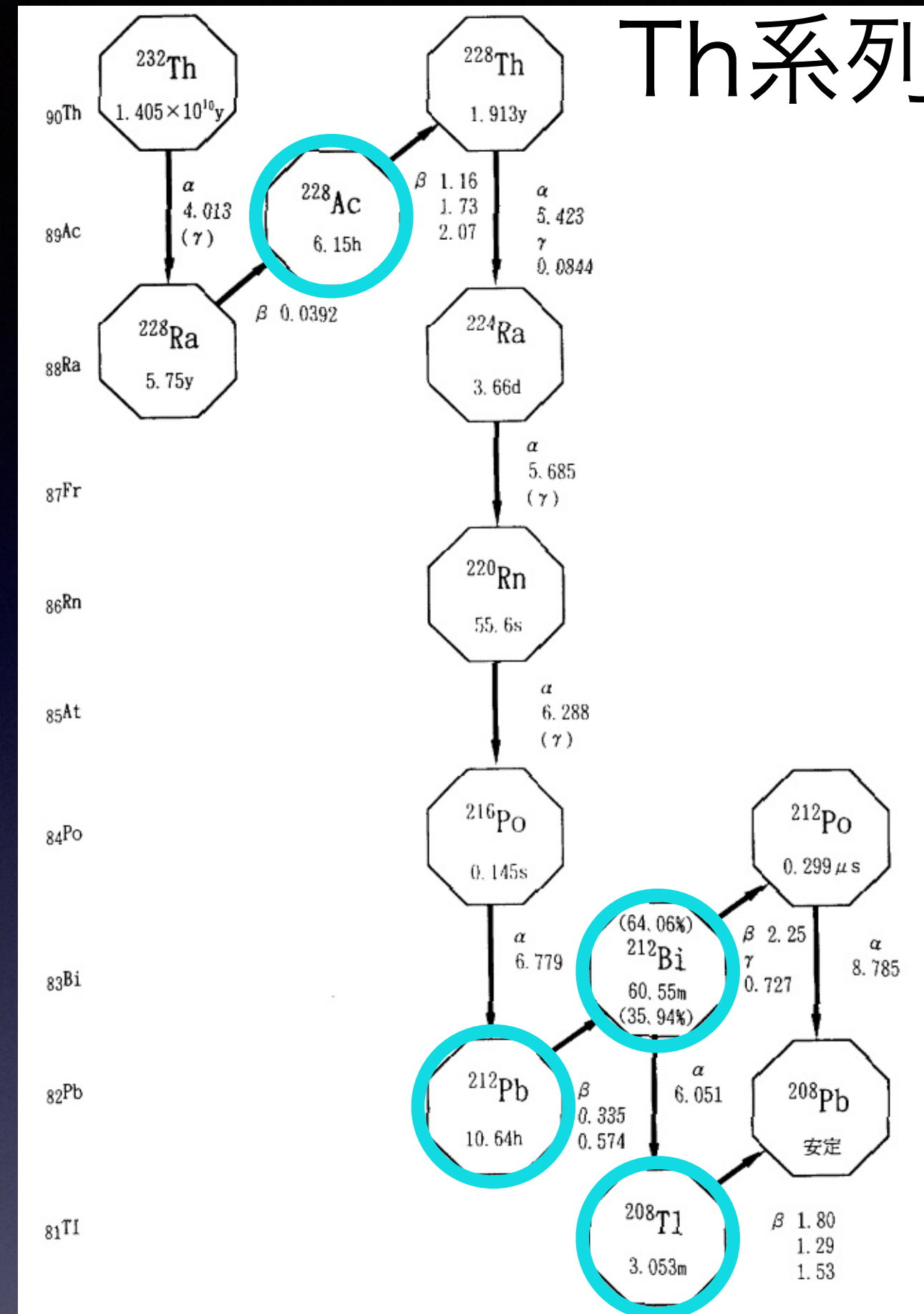
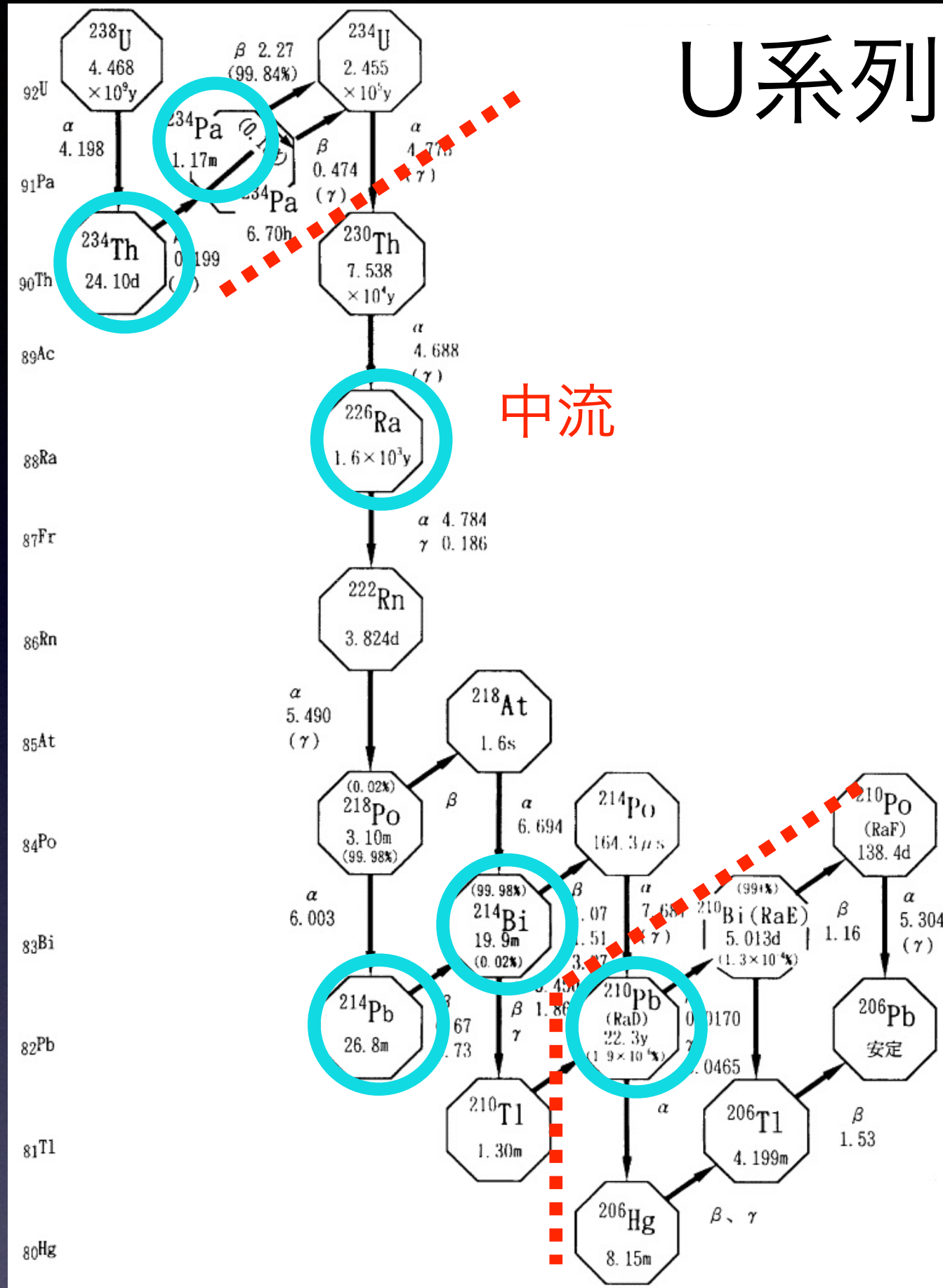
- 採択額：100千円(旅費として)
 - 神岡一仙台間の旅費
 - Ge測定に必要な消耗品 に使わせて頂きました



ご支援いただき大変有難うございました

Ge検出器でのRI測定の意義

青○：GeでRI評価に使っているガンマ線を放出する核



SK-Gd計画での硫酸ガドリニウム8水和物 1kg中のRIの要求値

238U : < 5 mBq/kg
 232Th : < 0.05 mBq/kg
 226Ra : < 0.5 mBq/kg
 228Ra : < 0.05 mBq/kg など

- 高純度ゲルマニウム(HPGe)検出器：Ge結晶内にエネルギーを落とした γ 線を計測：O(1 keV)の高分解能でRIの特定、定量
- 感度：試料の材質、形状にもよるがウラン中流 (214Pb, 214Bi等) で0.1ppb (~ 1mBq/kg)のレベルで定量可能
 - ICP-MS(Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy)：238Uや232Thを高感度で測定可能(pptとかppqのレベル)だが、放射平衡が崩れていることも
 - 226Ra：娘核の214Bi(Q値3.27 MeV)、228Ra：娘核の208Tl(Q値5.00 MeV)はSK実験 太陽ニュートリノ観測のBGに
- SK-Gd実験だけでなく様々な極放射能検出器の開発にGe検出器でのスクリーニングは重要

本年度の研究結果

- **Second gadolinium loading 論文 (<https://doi.org/10.1016/j.nima.2024.169480>)内で Ge01, Ge02を用いたスクリーニング結果が報告**
- **昨年度publishされたGe02に関する論文 <https://doi.org/10.1093/ptep/ptad136> が引用**
- **Ge01、Ge02を用いたスクリーニング、BGの低減の確認を継続中**

Table A.4
Results from HPGe assays of all samples produced in 2021 in units of mBq/kg. The upper limit is 95% CL.



Batch ID	Lab	Detector	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	²²³ Ra	⁴⁰ K	¹³⁸ La	¹⁷⁶ Lu	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
210301	Kamioka	LabC01	<6.4	<0.43	<0.22	<0.17	<2	<1.2	<1.8	<0.045	0.37 ± 0.089	<0.065	<0.12
210302	LSC	geAsterix	<10	<0.19	<0.37	<0.38	<0.47	<1.7	<1.8	<0.21	0.16 ± 0.05	<0.09	<0.09
	Kamioka	LabC01	<8.6	<0.47	<0.66	<0.28	<3.2	<1.2	<2.1	<0.08	<0.37	<0.087	<0.21
210303	LSC	geOreoel	<8	<0.34	<0.66	<0.36	<0.47	<1.9	2.0 ± 0.6	<0.3	0.54 ± 0.07	<0.13	<0.13
	Kamioka	LabC01	<8.8	<0.45	<0.74	<0.24	<4	<1.3	<1.7	<0.062	0.78 ± 0.11	<0.094	<0.18
210601	BUGS	Belmont	<13.66	<0.31	<0.39	<0.31	<0.24	<1.08	<2.14	<0.11	0.41 ± 0.13	-	<0.16
	Kamioka	LabC01	<6.3	<0.25	<0.23	<0.17	<4.3	<0.75	<1.7	<0.048	0.62 ± 0.095	<0.07	<0.13
	LSC	geAsterix	<9	<0.16	<0.29	<0.29	<0.39	<1.4	<1.8	<0.10	0.46 ± 0.05	<0.07	<0.10
210711	BUGS	Merrybent	<4.86	<0.22	0.27 ± 0.13	<0.31	<0.18	<0.99	<1.59	<0.14	0.41 ± 0.06	-	<0.04
	LSC	geAsterix	<13	<0.26	<0.47	<0.48	<0.58	<2.3	<2.7	<0.22	0.20 ± 0.06	<0.10	<0.11
	Kamioka	LabC01	<4.9	<0.17	<0.28	<0.22	<2.2	<0.76	<1	<0.032	0.23 ± 0.07	<0.056	<0.1
210712	LSC	geAsterix	<15	<0.23	<0.47	<0.53	<0.67	<2.3	<1.8	<0.24	0.11 ± 0.05	<0.09	<0.12
	BUGS	Belmont	<3.75	<0.33	<0.26	<0.18	<0.19	<0.83	<1.25	<0.10	<0.15	-	<0.04
	Kamioka	LabC01	<6.5	<0.17	<0.51	<0.18	<1.9	<0.7	<1	<0.039	<0.11	<0.06	<0.13
210713	BUGS	Belmont	<5.55	<0.26	<0.49	<0.34	<0.22	<1.08	<1.75	<0.12	<0.14	-	<0.06
	Kamioka	LabC01	<5.1	0.22 ± 0.078	<0.26	0.17 ± 0.083	<1.6	<0.61	<0.78	<0.033	0.16 ± 0.06	<0.043	<0.11
	LSC	geOreoel	<10	<0.29	<0.50	<0.28	<0.39	<1.3	<1.4	<0.2	0.18 ± 0.06	<0.12	<0.12
210811	BUGS	Merrybent	<4.91	0.40 ± 0.12	<0.24	<0.35	<0.34	<0.82	<1.98	<0.16	0.32 ± 0.07	-	<0.06
	Kamioka	LabC02	<17	<0.3	<0.36	<0.2	<2.3	<0.97	<1.9	<0.094	0.21 ± 0.09	<0.078	<0.12
210821	BUGS	Merrybent	<6.80	0.36 ± 0.14	<0.37	<0.32	<0.19	<0.81	<2.53	<0.14	0.22 ± 0.07	-	<0.06
	Kamioka	LabC01	<6	<0.28	<0.3	<0.19	<4.1	<0.77	<1	<0.091	0.34 ± 0.093	<0.061	<0.13
210822	BUGS	Merrybent	<7.83	0.62 ± 0.24	<0.49	0.38 ± 0.22	<0.34	<1.03	<2.01	<0.17	0.35 ± 0.12	-	<0.11
	Kamioka	LabC01	<9.4	<0.31	<0.2	<0.33	<2.5	<0.92	<1.4	<0.045	0.38 ± 0.1	<0.069	<0.14
210823	Kamioka	LabC02	<13	<0.38	<0.29	<0.3	<5.2	<1.1	2.2 ± 0.84	<0.087	1.1 ± 0.15	<0.088	<0.13
210922	Kamioka	LabC01	<9.2	<0.24	<0.46	<0.35	<2.8	<0.82	<0.95	<0.059	0.26 ± 0.083	<0.07	<0.14
211006	Kamioka	LabC01	<9.7	<0.22	0.39 ± 0.19	<0.24	<2.3	<0.86	<1	<0.044	<0.14	<0.071	<0.17
211106	BUGS	Belmont	<3.69	<0.24	0.41 ± 0.16	0.23 ± 0.12	<0.23	<0.53	<1.23	<0.08	<0.08	-	<0.04
	Kamioka	LabC02	<10	<0.61	<0.43	<0.23	<2.3	<1.3	<1.7	<0.093	<0.25	<0.098	<0.15
211201	BUGS	Merrybent	<6.63	<0.42	0.31 ± 0.20	<0.58	<0.21	<1.01	<1.88	<0.11	0.19 ± 0.08	<0.11	<0.08
	Kamioka	LabC01	<15	0.26 ± 0.13	<0.42	<0.19	<3.6	<0.95	<1.1	<0.049	<0.27	<0.072	<0.16
211202	Kamioka	LabC02	<12	<0.38	<0.39	<0.2	<2.3	<1.2	<1.1	<0.12	0.21 ± 0.094	<0.079	<0.12
211204	Kamioka	LabC01	<8.2	0.2 ± 0.094	<0.26	<0.38	<2.3	<0.84	<1	<0.049	<0.18	<0.062	<0.14
211205	Kamioka	LabC01	<7	<0.3	<0.4	<0.18	<2.3	<0.96	<0.94	<0.064	0.29 ± 0.085	<0.086	<0.14

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 1065 (2024) 169480

Contents lists available at ScienceDirect

Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nima

Full Length Article

Second gadolinium loading to Super-Kamiokande


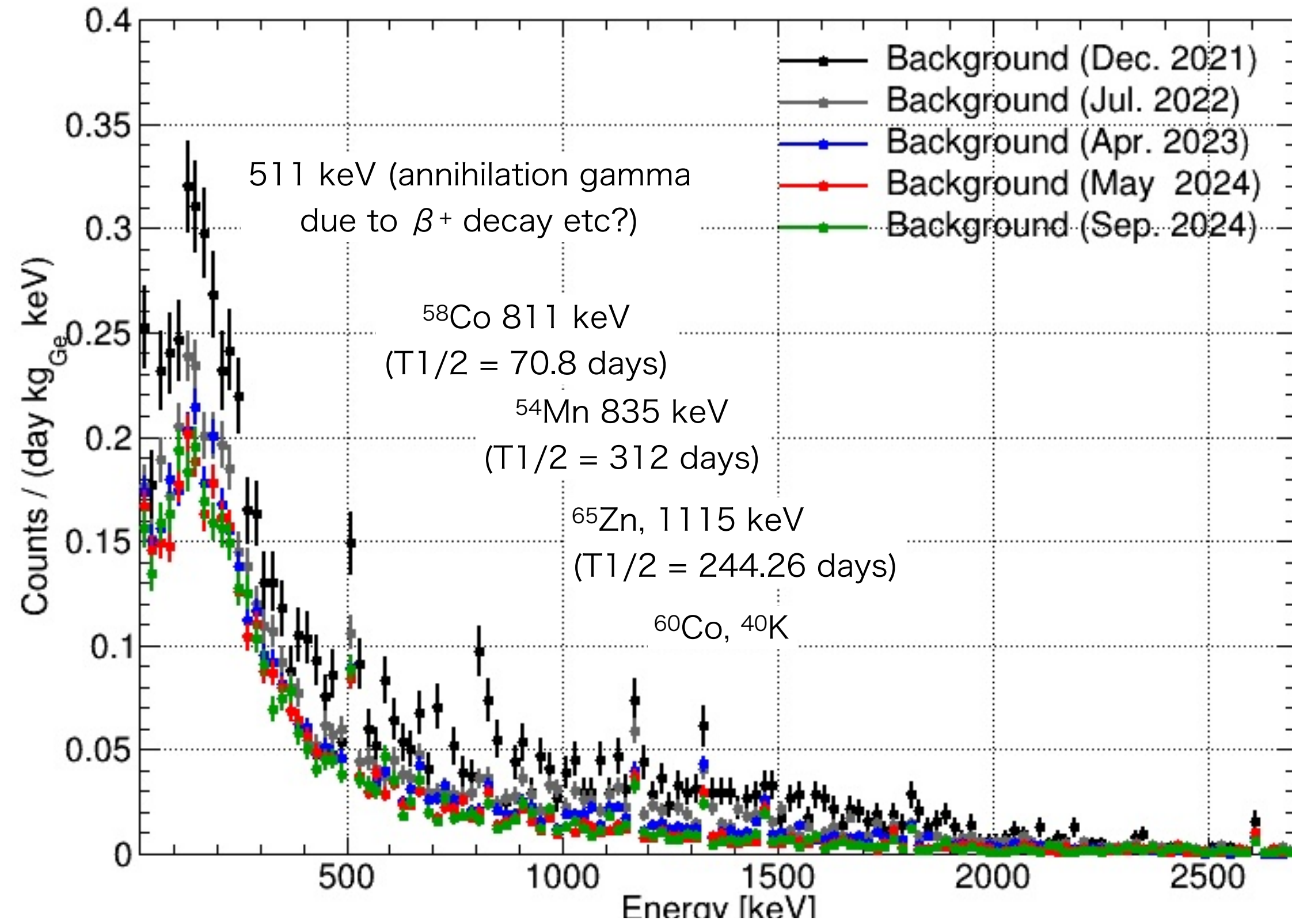
K. Abe^{1,48}, C. Bronner¹, Y. Hayato^{1,48}, K. Hiraide^{1,48}, K. Hosokawa¹, K. Ieki^{1,48}, M. Ikeda^{1,48}, J. Kameda^{1,48}, Y. Kanemura¹, R. Kaneshima¹, Y. Kashiwagi¹, Y. Kataoka^{1,48}, S. Miki¹, S. Mine^{1,6}, M. Miura^{1,48}, S. Moriyama^{1,48}, Y. Nakano¹, M. Nakahata^{1,48}, S. Nakayama^{1,48}, Y. Noguchi¹, K. Sato¹, H. Sekiya^{1,48}, H. Shiba¹, K. Shimizu¹, M. Shiozawa^{1,48}, Y. Sonoda¹, Y. Suzuki¹, A. Takeda^{1,48}, Y. Takemoto^{1,48}, H. Tanaka^{1,48}, T. Yano¹, S. Han², T. Kajita^{2,48}, K. Okumura^{2,48}, T. Tashiro², T. Tomiya², X. Wang², S. Yoshida², P. Fernandez³, L. Labarga³, N. Ospina³, B. Zaldivar³, B.W. Pointon^{5,51}, E. Kearns^{4,48}, J.L. Raaf⁴, L. Wan⁴, T. Wester⁴, J. Bian⁶, N.J. Griskevich⁶, M.B. Smy^{6,48}, H.W. Sobel^{6,48}, V. Takhistov^{6,24}, A. Yankelevich⁶, J. Hill⁷, M.C. Jang⁸, S.H. Lee⁸, D.H. Moon⁸, R.G. Park⁸, B. Bodur⁹, K. Scholberg^{9,48}, C.W. Walter^{9,48}, A. Beauchêne¹⁰, O. Drapier¹⁰, A. Giampaolo¹⁰, Th.A. Mueller¹⁰, A.D. Santos¹⁰, P. Paganini¹⁰, B. Quilain¹⁰, R. Rogly¹⁰, T. Nakamura¹¹, J.S. Jang¹², L.N. Machado¹³, J.G. Learned¹⁴, K. Choi¹⁵, N. Iovine¹⁵, S. Cao¹⁶, L.H.V. Anthony¹⁷, D. Martin¹⁷, N.W. Prouse¹⁷, M. Scott¹⁷, Y. Uchida¹⁷, V. Berardi¹⁸, N.F. Calabria¹⁸, M.G. Catanesi¹⁸, E. Radicioni¹⁸, A. Langella¹⁹, G. De Rosa¹⁹, G. Collazuol²⁰, F. Iacob²⁰, M. Mattiazzi²⁰, L. Ludovici²¹, M. Gonin²², L. Périssé²², G. Pronost²², C. Fujisawa²³, Y. Maekawa²³, Y. Nishimura²³, R. Okazaki²³, R. Akutsu²⁴, M. Friend²⁴, T. Hasegawa²⁴, T. Ishida²⁴, T. Kobayashi²⁴, M. Jakkapu²⁴, T. Matsubara²⁴, T. Nakadaira²⁴, K. Nakamura²⁴, Y. Oyama²⁴, K. Sakashita²⁴,

Table A.5
Results from HPGe assays of all samples produced in 2022 in units of mBq/kg. The upper limit is 95% CL.

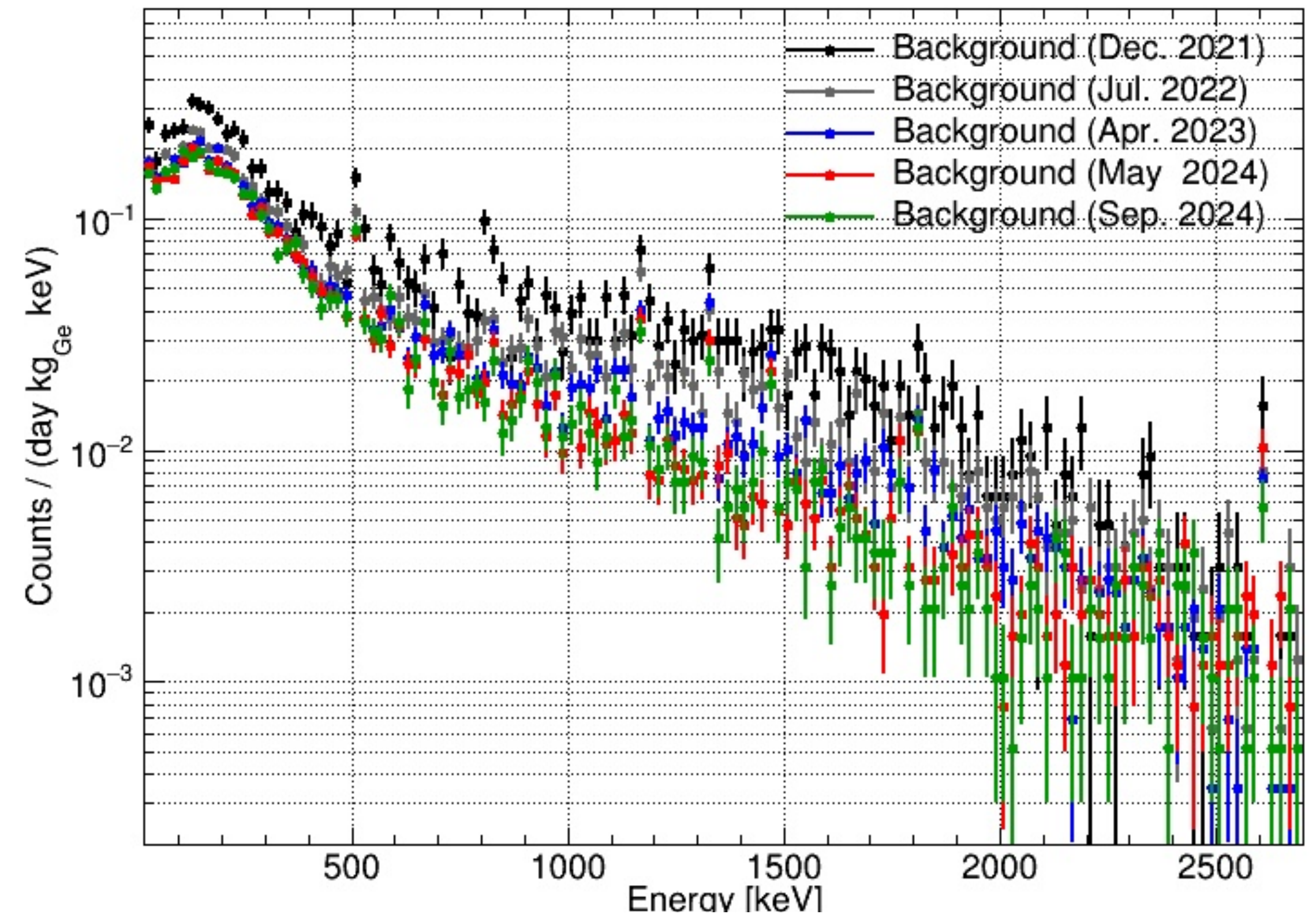
Batch ID	Lab	Detector	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	²²³ Ra	⁴⁰ K	¹³⁸ La	¹⁷⁶ Lu	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
220102	Kamioka	LabC02	<8.2	<0.2	<0.35	<0.19	<2	<0.84	<1.1	<0.062	<0.15	<0.064	<0.11
220103	Kamioka	LabC01	<6.2	0.41 ± 0.12	<0.46	<0.18	<2.5	<0.83	<1	<0.036	<0.17	<0.068	<0.13
220104	Kamioka	LabC02	<7.1	0.35 ± 0.14	<0.32	<0.21	<2.1	<0.92	<0.94	<0.1	0.23 ± 0.086	<0.081	<0.11
220201	Kamioka	LabC01	<8.9	0.31 ± 0.13	<0.42	<0.25	<2.4	<0.87	<1	<0.056	<0.31	<0.071	<0.13
220241	BUGS	Belmont	<6.37	0.34 ± 0.11	0.22 ± 0.12	<0.30	<0.27	<0.52	<1.28	<0.07	0.09 ± 0.04	-	<0.07
	Kamioka	LabC01	<7.1	<0.31	<0.5	<0.21	<2.9	<1	<1.4	<0.041	<0.23	<0.086	<0.14
220242	LSC	geOreoel	<9	<0.21	<0.26	<0.70	<0.36	<1.2	<1.1	<0.2	0.69 ± 0.06	<0.08	<0.11
	BUGS	Belmont	<5.00	<0.46	<0.28	<0.39	<0.39	<0.79	<1.56	<0.06	0.51 ± 0.11	-	<0.08
	Kamioka	LabC02	<7.9	<0.49	<0.32	<0.21	<2.3	<1.2	<1.1	<0.07	0.53 ± 0.099	<0.074	<0.12
220251	BUGS	Belmont	<4.59	<0.25	<0.35	0.35 ± 0.14	<0.18	<0.63	<1.39	<0.10	<0.13	-	<0.06
	Kamioka	LabC01	<5.8	0.27 ± 0.1	<0.4	<0.33	<2.1	<0.81	<1.3	<0.038	<0.14	<0.05	<0.21
220351	LSC	geAsterix	<9	<0.19	<0.35	<0.47	<0.16	<1.9	<0.16	<0.16	<0.11	<0.09	<0.10
	Kamioka	LabC02	<8	<0.4	<0.41	<0.22	<2.2	<0.96	<1.4	<0.073	<0.13	<0.14	<0.13
220352	BUGS	Belmont	<5.56	<0.30	<0.48	<0.40	<0.30	<0.53	<1.67	<0.07	<0.12	-	<0.14
	Kamioka	LabC01	<10	<0.31	<0.6	<0.16	<2.5	<0.96	<1.2	<0.047	<0.19	<0.06	<0.15
220353	LSC	geAnayet	<49	<0.25	<0.73	<1.3	<2.0	<2.4	<0.78	<0.3	<0.2	<0.14	<0.19
	Kamioka	LabC02	<8.2	<0.35	<0.42	<0.17	<2.2	<1.1	<1.9	<0.075	<0.16	<0.08	<0.098
220361	BUGS	Belmont	<6.62	<0.34	<0.38	<0.65	<0.53	<0.81	<1.92	<0.17	<0.18	<0.08	<0.09
	Kamioka	LabC01	<10	0.48 ± 0.14	<0.34	<0.25	<2.1	<0.91	<1.2	<0.053	0.2 ± 0.084	<0.078	<0.15
220371	LSC	geOreoel	<10	<0.26	<0.41	<0.29	<0.45	<1.8	<1.6	<0.2	0.15 ± 0.06	<0.11	<0.16
	Kamioka	LabC02	<9.4	<0.25	<0.43	<0.26	<2.3	<0.98	<2.2	<0.076	<0.16	<0.092	<0.12
220471	BUGS	Belmont	<5.66	0.65 ± 0.21	0.77 ± 0.33	0.89 ± 0.28	<0.28	<0.78	<4.71	<0.08	<0.21	<0.06	<0.05
	Kamioka	LabC01	<6.5	0.32 ± 0.1	<0.28	<0.26	<2.5	<0.82	<1	<0.046	<0.29	<0.068	<0.13
220481	LSC	geAsterix	<12	<0.22	<0.41	<0.45	<0.60	<2.4	<2.4	<0.22	0.25 ± 0.06	<0.06	<0.1
	Kamioka	LabC02	<8	<0.2	<0.6	<0.18	<2.1	<0.91	<0.91	<0.064	<0.14	<0.12	<0.12
220482	BUGS	Merrybent	<11.54	<0.49	0.46 ± 0.28	<0.55	<0.25	<1.43	<2.18	<0.20	<0.15	<0.16	<0.17
	Kamioka	LabC02	<9	<0.48	<0.36	<0.15	<3	<0.95	<2	<0.075	<0.31	<0.071	<0.11
220581	LSC	geAsterix	<12	<0.21	<0.46	<0.49	<0.74	<2.1	<1.6	<0.25	<0.21	<0.08	<0.11
	Kamioka	LabC01	<8.3	<0.25	<0.24	<0.22	<2.2	<1	<1.3	<0.06	<0.22	<0.074	<0.17
220582	BUGS	Merrybent	<16.1	<0.67	<0.84	<0.65	<0.36	<1.51	<3.44	<0.22	<0.33	<0.11	<0.12
	Kamioka	LabC02	<9.1	<0.43	<0.6	<0.23	<2.3	<1.3	<2.7	<0.073	<0.26	<0.087	<0.11
220691	BUGS	Merrybent	<13.4	<0.93	<1.04	<0.73	<0.33	<1.82	<2.90	<0.23	<0.28	<0.14	<0.22
	Kamioka	LabC01	<6.5	<0.33	<0.22	<0.17	<2.1	<0.88	<1.4	<0.049	<0.29	<0.077	<0.13
220603	Kamioka	LabC											

本年度の研究：BGスペクトルの時間変化①

リニアスケール

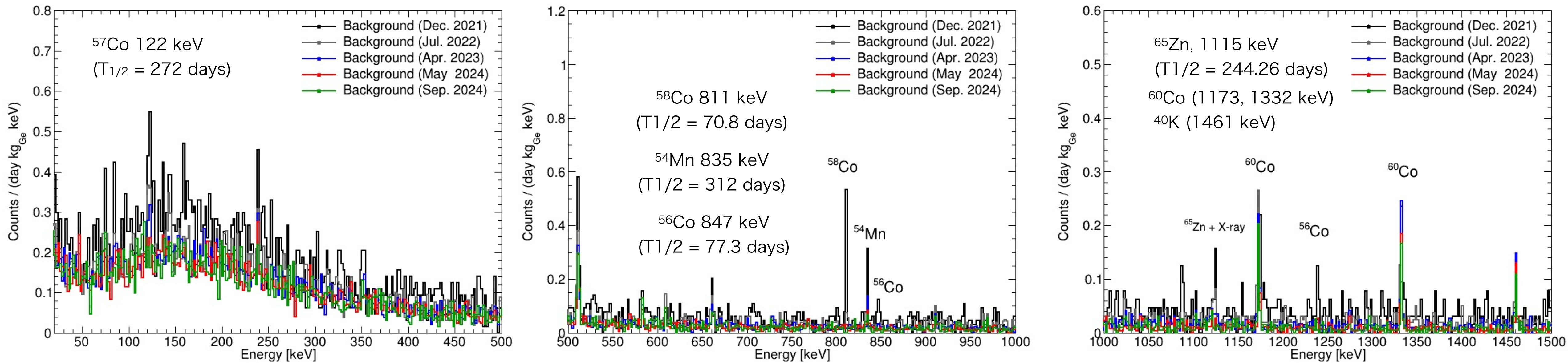


ログスケール



- 黒：2021年12月のBGデータ (LiveTime = 19.0 d), 灰：2022年07月のBGデータ (LiveTime = 47.2 d)
- 青：2023年04月のBGデータ (LiveTime = 86.2 d), 赤：2024年05月のBGデータ (LiveTime = 75.8 d)
- 緑：2024年09月のBGデータ (LiveTime = 57.3 d)
- **40-2700 keV**のカウントレート：140.2 → 100.0 → 84.3 → 76.1 → 74.2 [単位：cpd/kg_{Ge}]
- 連続成分を含むカウントレートは順調に低減

本年度の研究：BGスペクトルの時間変化②



- 黒：2021年12月のBGデータ (LiveTime = 19.0 d), 灰：2022年07月のBGデータ (LiveTime = 47.2 d)
 - 青：2023年04月のBGデータ (LiveTime = 86.2 d), 赤：2024年05月のBGデータ (LiveTime = 75.8 d)
 - 緑：2024年09月のBGデータ (LiveTime = 57.3 d)
- 遮蔽体やGe検出器自体のcosmogenic activationに由来すると考えられる ⁵⁸Co等のガンマ線成分も順調に減ってきている

世界のスクリーニング用 HPGe検出器との比較

Detector	Location	Background rate in 40 – 2700 keV [cts/d/kg]
GeMPI 1	LNGS, Italy	142 ± 1
GeMPI 2	LNGS, Italy	38 ± 1
GeMPI 3 **	LNGS, Italy	24 ± 1
GeMPI 4	LNGS, Italy	71 ± 1
GeOroel	Canfranc, Spain	103 ± 1 *
Gator	LNGS, Italy	65 ± 1
GeRysi	Canfranc, Spain	~ 38
GeMSE	Switzerland	164 ± 2 *
BUGS	Boulby Underground Laboratory, UK	90 ± 9
Ge02	Kamioka Observatory, Japan	~ 84 → 74 ± 1

国際会議 LRT 2024のスライド より

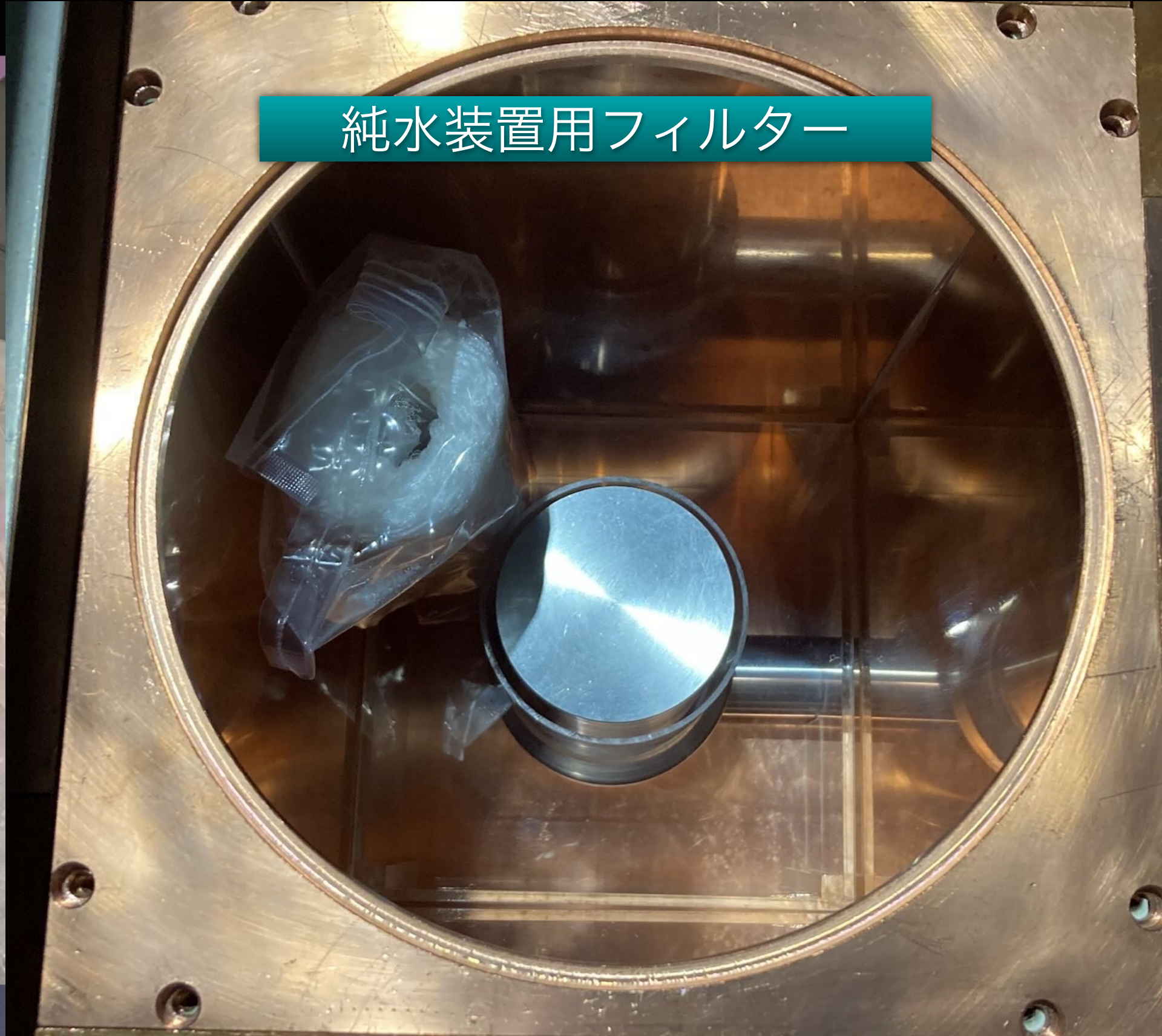
スクリーニングに用いられている世界トップレベルHPGe群と比べて遜色ない極低BGレート

Ge検出器でのサンプル測定写真

高純度銅



純水装置用フィルター



高純度結晶用の原料



高純度結晶



- SK-Gd用硫酸ガドリニウム測定完了後も、SK純水装置で用いるフィルター類の測定などSK, HK関係のサンプルを中心に様々なサンプルのスクリーニングを行っている

まとめと今後

- 引き続き高純度ゲルマニウム検出器を用いたスクリーニングを行っている
- Second gadolinium loading論文でGe01, Ge02を用いたスクリーニング結果が引用
- 連続成分を含むカウントレートは順調に低減中
 - 40 — 2700 keV領域で 74 ± 1 counts/day/kg_{Ge}
 - 世界のスクリーニング用トップレベルHPGeと比べ遜色ないレベルの極低BGレート
- SK-Gd用硫酸ガドリニウム測定完了後も純水装置に用いるフィルター類など、SK, HK関係のサンプルを中心に様々な測定を行っている
 - 引き続き継続して様々なサンプルの測定を行い、フィードバックをする

Backup

BGスペクトルの時間変化の表

Detector	Ge01	Ge02				
Date	Dec. 2019	Dec. 2021	Jul. 2022	Apr. 2023	May 2024	Sep. 2024
Measurement time (d)	23.0	19.0	47.2	86.2	75.8	57.3
Count rate ($\text{kg}_{\text{Ge}}^{-1} \text{day}^{-1}$)						
Integral 40 – 2700 keV	112.6	140.2±2.1	100.0±1.1	84.3±0.8	74.9±0.8	74.2±0.9
^{208}Tl , 2614 keV	0.08±0.04	0.25±0.09	0.16±0.05	0.13±0.03	0.20±0.04	0.10±0.03
^{214}Bi , 609 keV	0.39±0.10	0.25±0.09	0.38±0.07	0.23±0.04	0.24±0.04	0.27±0.05
^{60}Co , 1333 keV	0.41±0.10	0.66±0.14	0.48±0.08	0.68±0.07	0.49±0.06	0.38±0.06
^{40}K , 1461 keV	0.44±0.11	0.31±0.10	0.44±0.07	0.42±0.05	0.35±0.05	0.33±0.06
^{137}Cs , 662 keV	1.29±0.18	0.53±0.13	0.38±0.07	0.32±0.05	0.26±0.05	0.30±0.06
^{210}Pb , 46.5 keV	3.24±0.29	0.69±0.14	0.64±0.09	0.59±0.06	0.59±0.07	0.35±0.06

各ピーク $\pm 3\sigma$ のエネルギー範囲に入っているイベント数から評価。連続成分は差し引いていない。

^{60}Co は2年で元の約77%、3年で67%になる。

^{210}Pb は2年で元の約94%、3年で91%になる。