

# B06 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

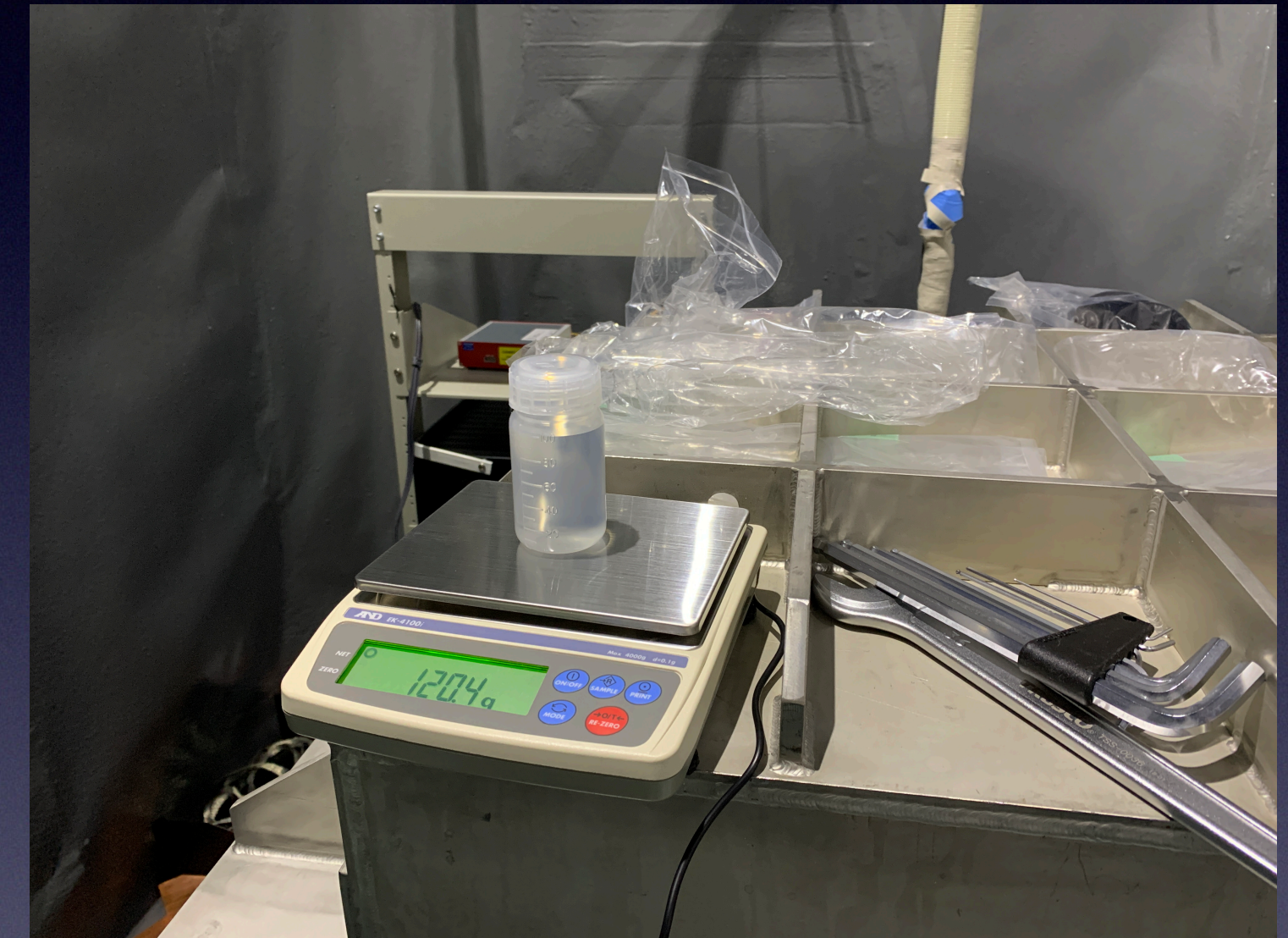
2021.02.08

東北大学ニュートリノ科学研究センター 市村 晃一

# 申請時所属機関とメンバー

- 東大宇宙線研：市村晃一, 関谷洋之, 竹田敦, 安部航, 池田一得, 伊藤博士
- 岡山大：伊藤慎太郎
- 横国大：南野彰宏

## 査定金額と使途



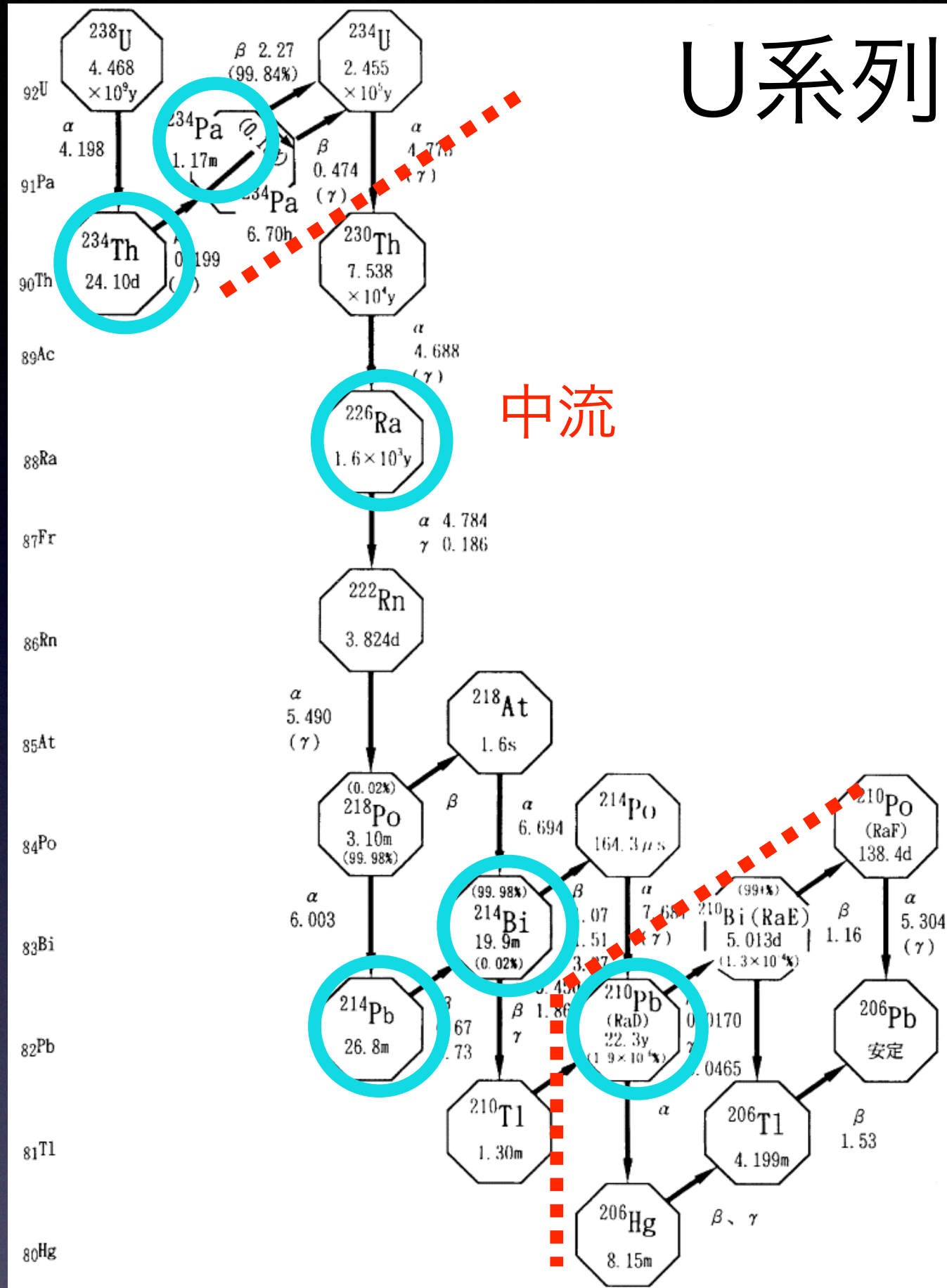
- 採択額：100千円
  - 仙台－神岡の旅費(48千円)；試料測定のための旅費
  - ゲルマニウム(Ge)検出器での測定に用いる電子天秤、手袋の購入(52千円)に使わせて頂きました。

**ご支援いただき大変有難うございました**

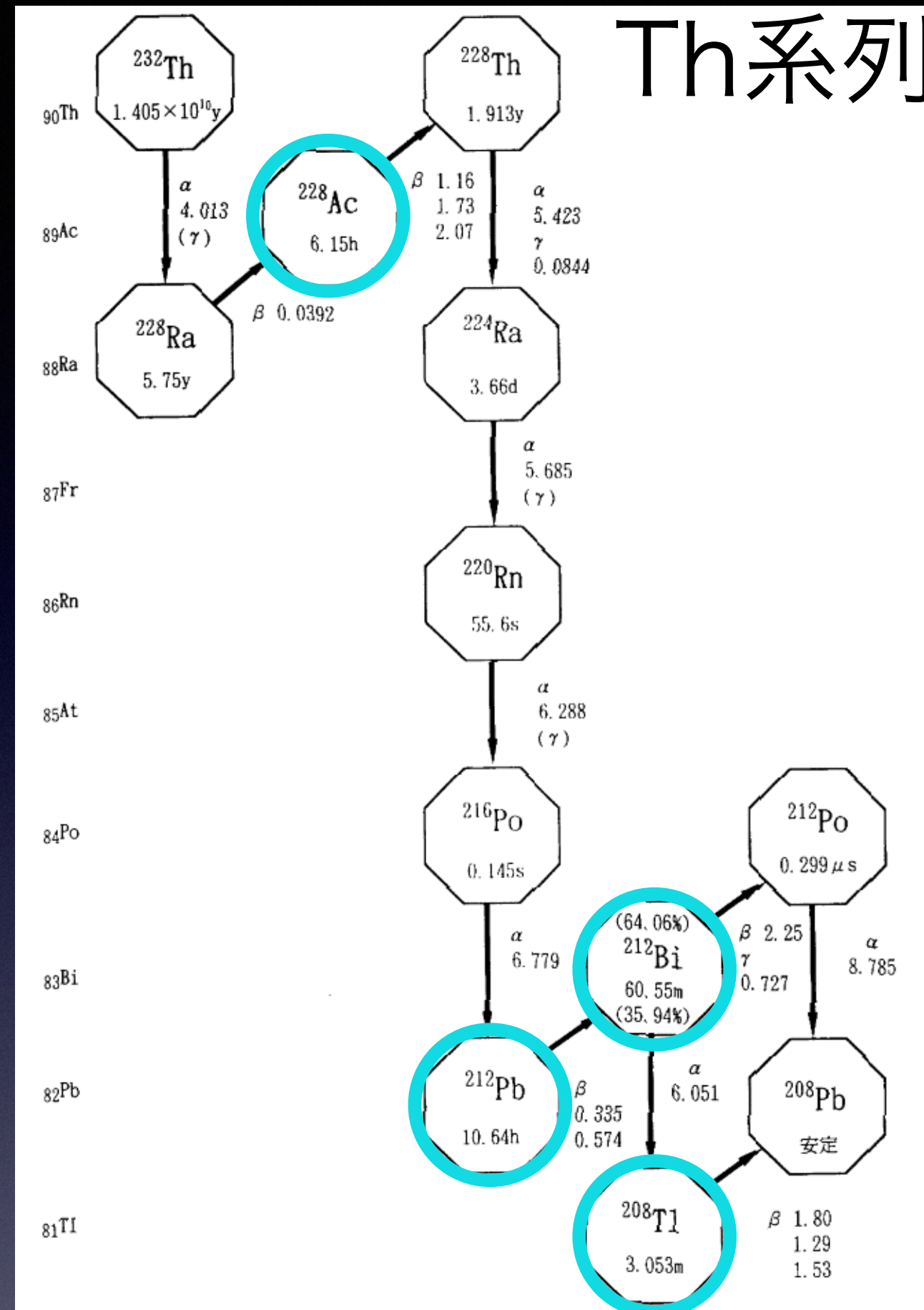
# Ge検出器でのRI測定の意義

青○：GeでRI評価に使っているガンマ線を放出する核

## U系列



## Th系列

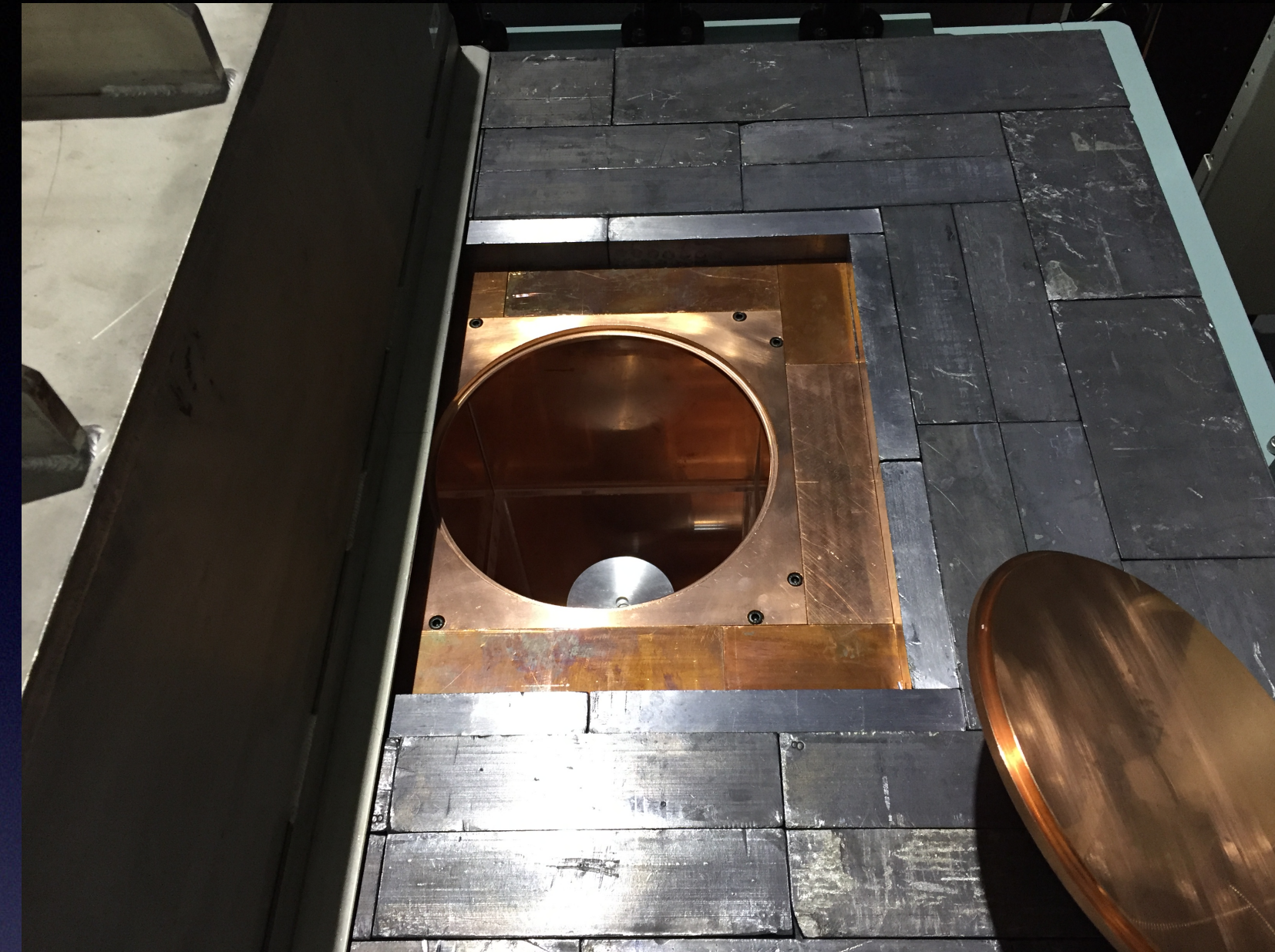
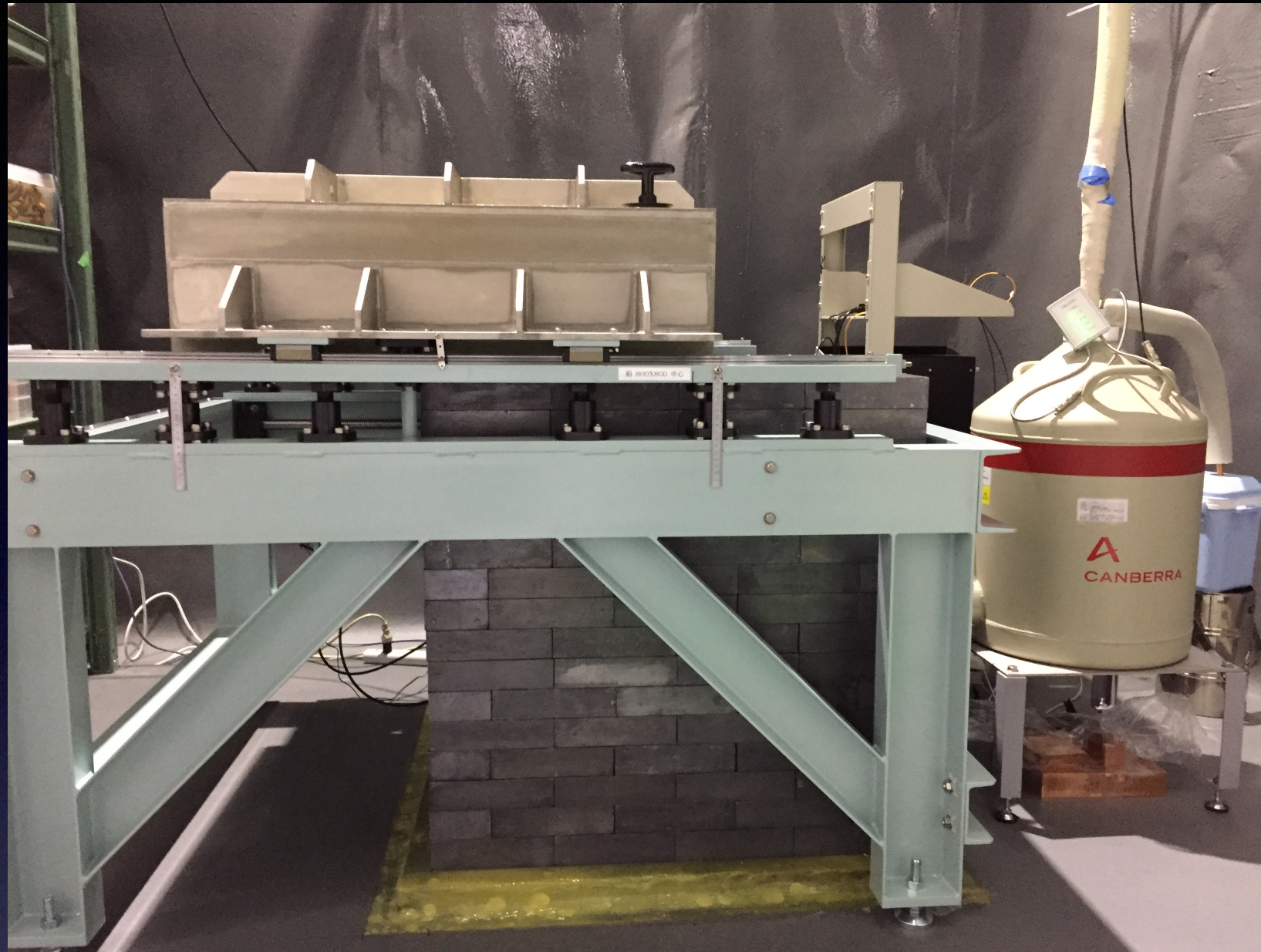


SK-Gd計画での硫酸ガドリニウム8水和物 1kg中のRIの要求値

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

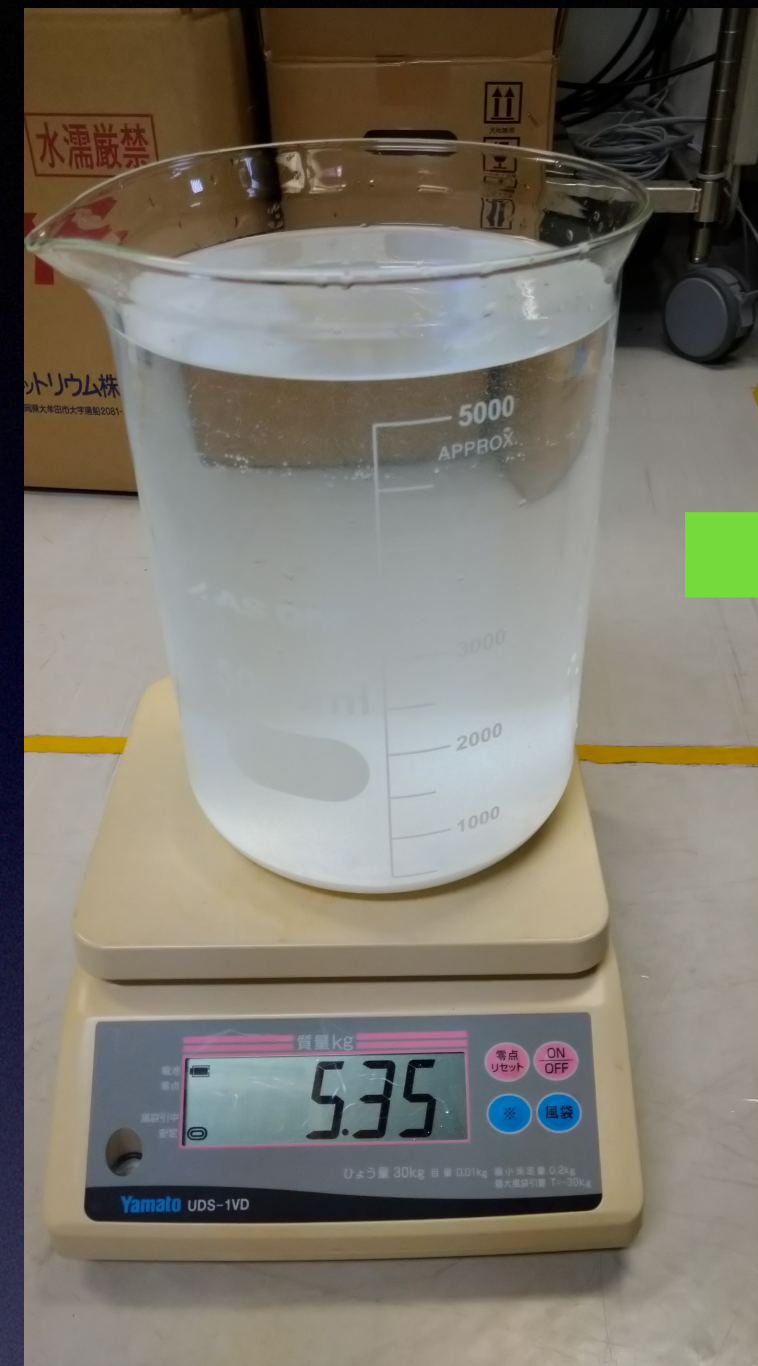
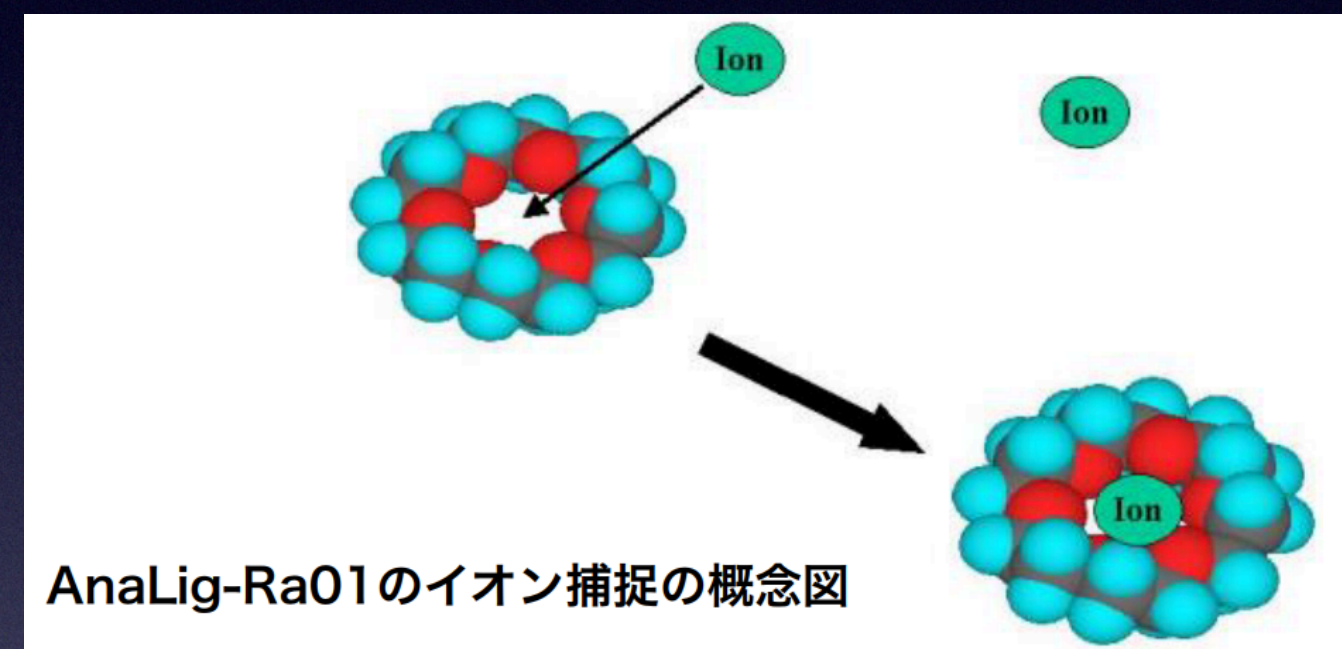
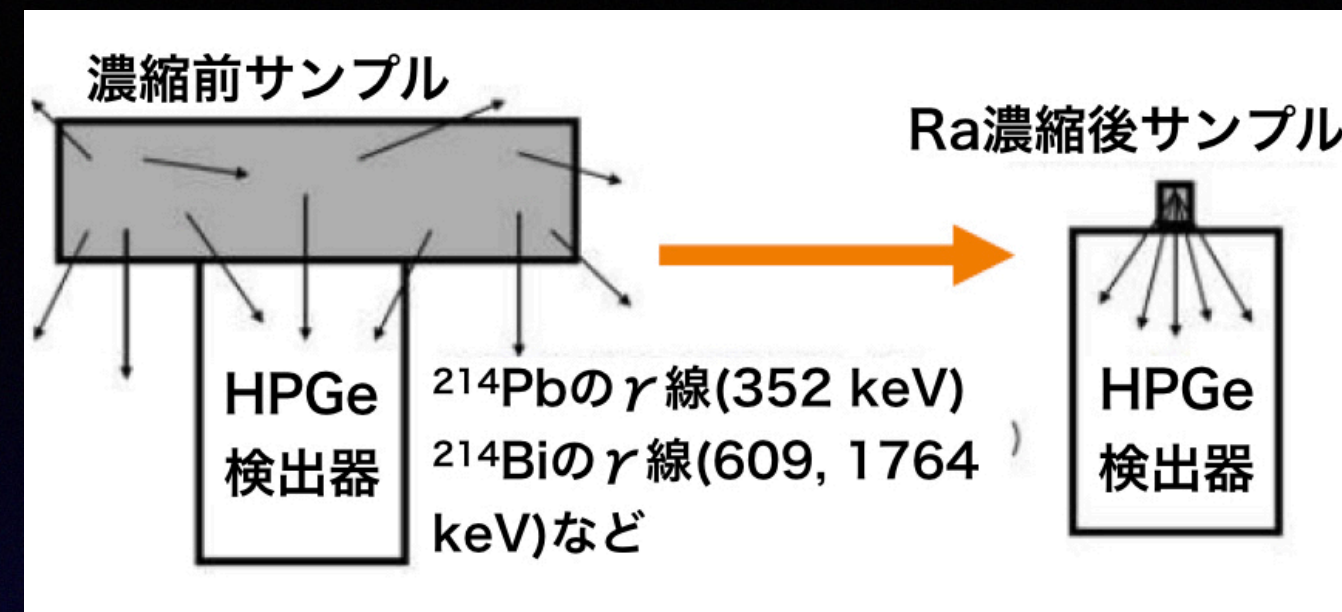
- 高純度ゲルマニウム(HPGe)検出器：Ge結晶内にエネルギーを落とした $\gamma$ 線を計測：O(1 keV)の高分解能でRIの特定、定量
- 感度：試料の材質、形状にもよるがウラン中流（ $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ 等）で0.1 ppb (~ 1 mBq/kg)のレベルで定量可能
  - ICP-MS(Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy)： $^{238}\text{U}$ や $^{232}\text{Th}$ を高感度で測定可能(pptとかppqのレベル)だが、放射平衡が崩れていることも
  - $^{226}\text{Ra}$ ：娘核の $^{214}\text{Bi}$ (Q値3.27 MeV)、 $^{228}\text{Ra}$ ：娘核の $^{208}\text{Tl}$ (Q値5.00 MeV)はSK実験 太陽ニュートリノ観測のBGに
- 大量の硫酸ガドリニウムを高感度で分析する必要

# 本研究で使用しているHPGe検出器



- MTKK キャンベラフランス製 同軸P型 相対効率80%、極低放射能仕様
  - 高さ 20 cmのサンプルスペース + HPGe検出器側面にも試料を置くことが可能
  - **本年度はこれまでに24サンプル測定 : (SK-Gd計画で用いる硫酸ガドリニウムの原料と製品、純化手法確立のための測定が主)**
- 本年度はこのHPGeを用いた論文3本publish
  - **Improved method for measuring low concentration radium and its application to the Super-Kamiokande Gadolinium project S.Ito et al, PTEP 2020 (2020) 9, 093H02 <https://doi.org/10.1093/ptep/ptaa105>**
  - Evaluation of radon adsorption efficiency values in xenon with activated carbon fibers, Y.Nakano et al, PTEP 2020 (2020) 11, 113H01, <https://doi.org/10.1093/ptep/ptaa119>
  - Development of low-background photomultiplier tubes for liquid xenon detectors, K.Abe et al (XMASS collaboration) , JINST 15 (2020) 09, P09027 <https://doi.org/10.1088/1748-0221/15/09/P09027>

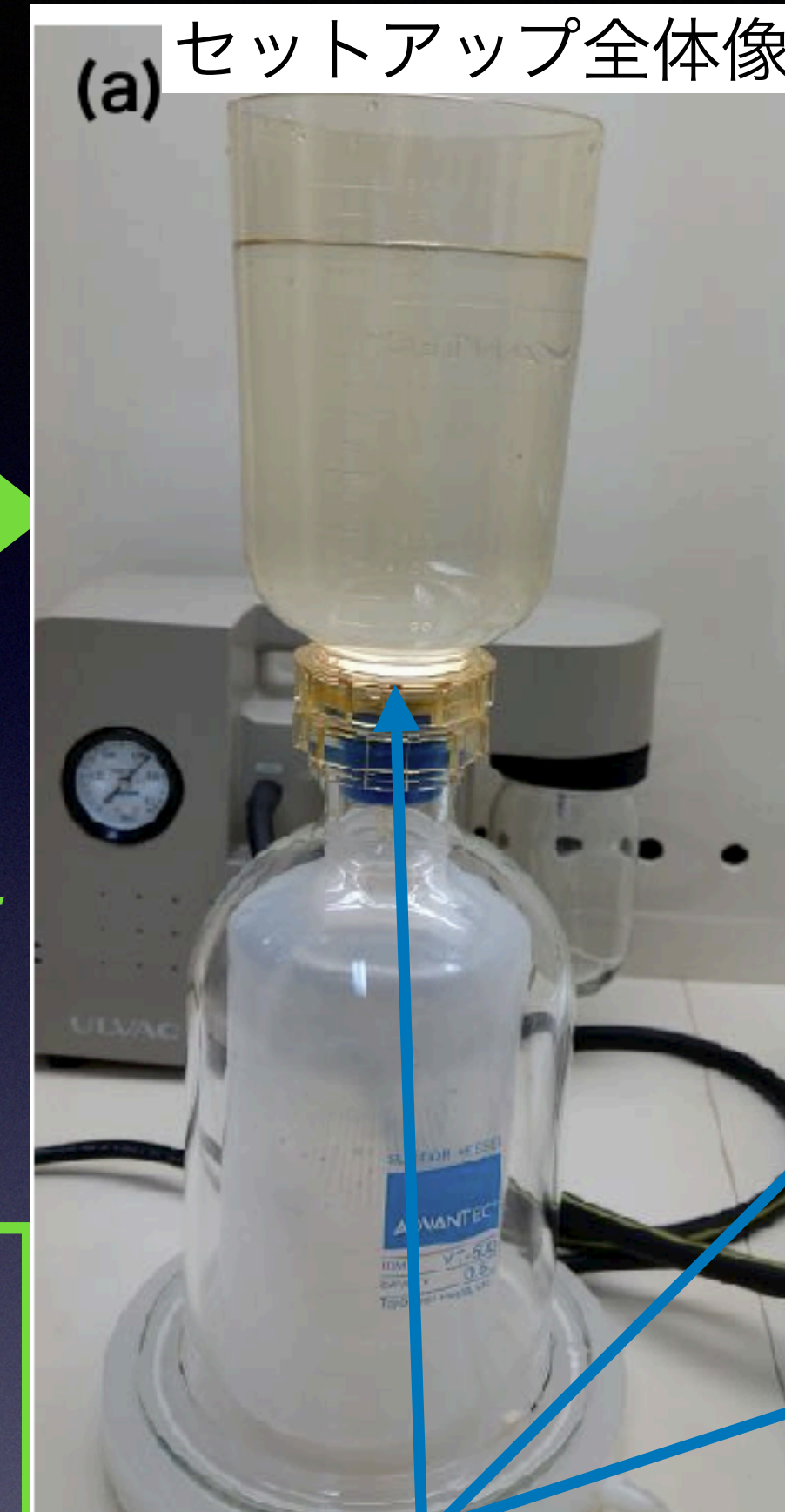
# ディスク法を用いたラジウムの高感度測定手法の開発(1)



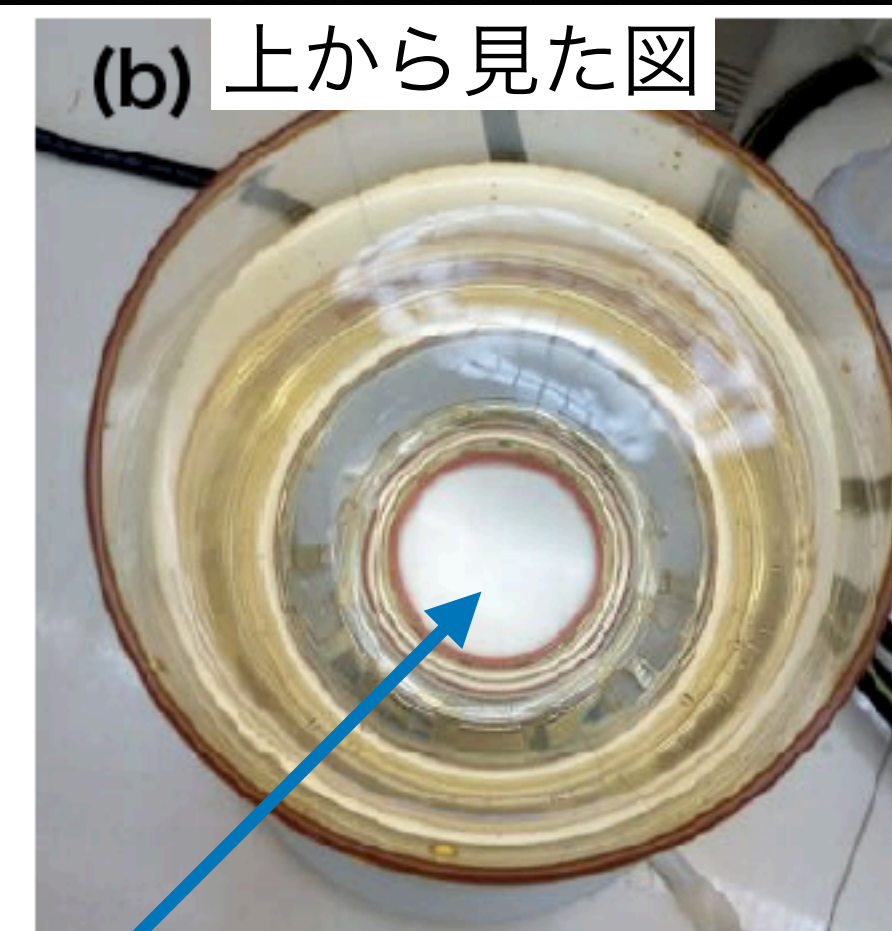
通液

吸引  
ろ過

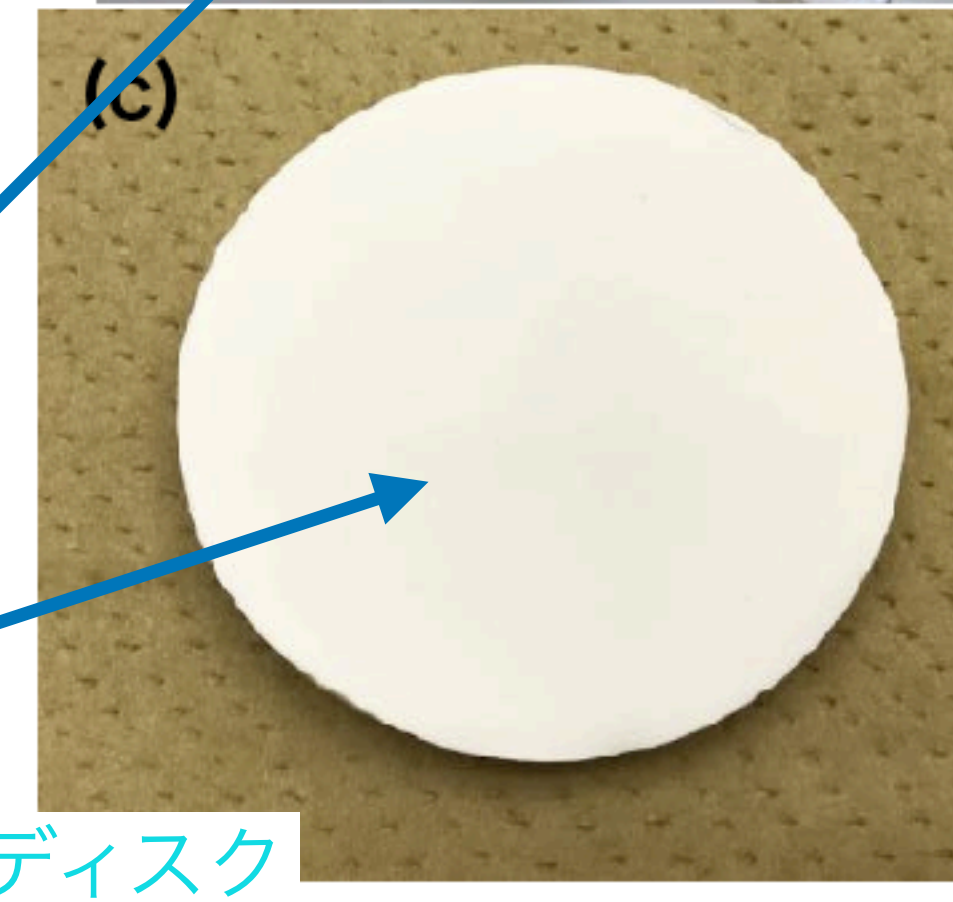
硫酸ガドリニウム水溶液  
硫酸ガドリニウム 250 g  
超純水 5 kg  
EL グレード硝酸 100 g  
(0.2 mol/L) 2セット



(a) セットアップ全体像



(b) 上から見た図



洗浄済みAnaLig-Ra01含有ディスク

- 測定試料が大きくなると試料自体の自己遮蔽や幾何学的効率が感度向上のボトルネックに
- ラジウムを吸着する樹脂 (AnaLig-Ra01) が埋め込まれたディスクに硫酸ガドリニウム水溶液中のラジウムを吸着させ、そのディスクを測定することで上記の問題が解決→短時間で高感度測定が可能に
- ラジウムの吸着率：ラジウムと同族のバリウムで評価 (>99%)

# ディスク法を用いたラジウムの高感度測定手法の開発(2)

高純度硫酸ガドリニウム水溶液(濃度5%)にラジウム濃度が既知

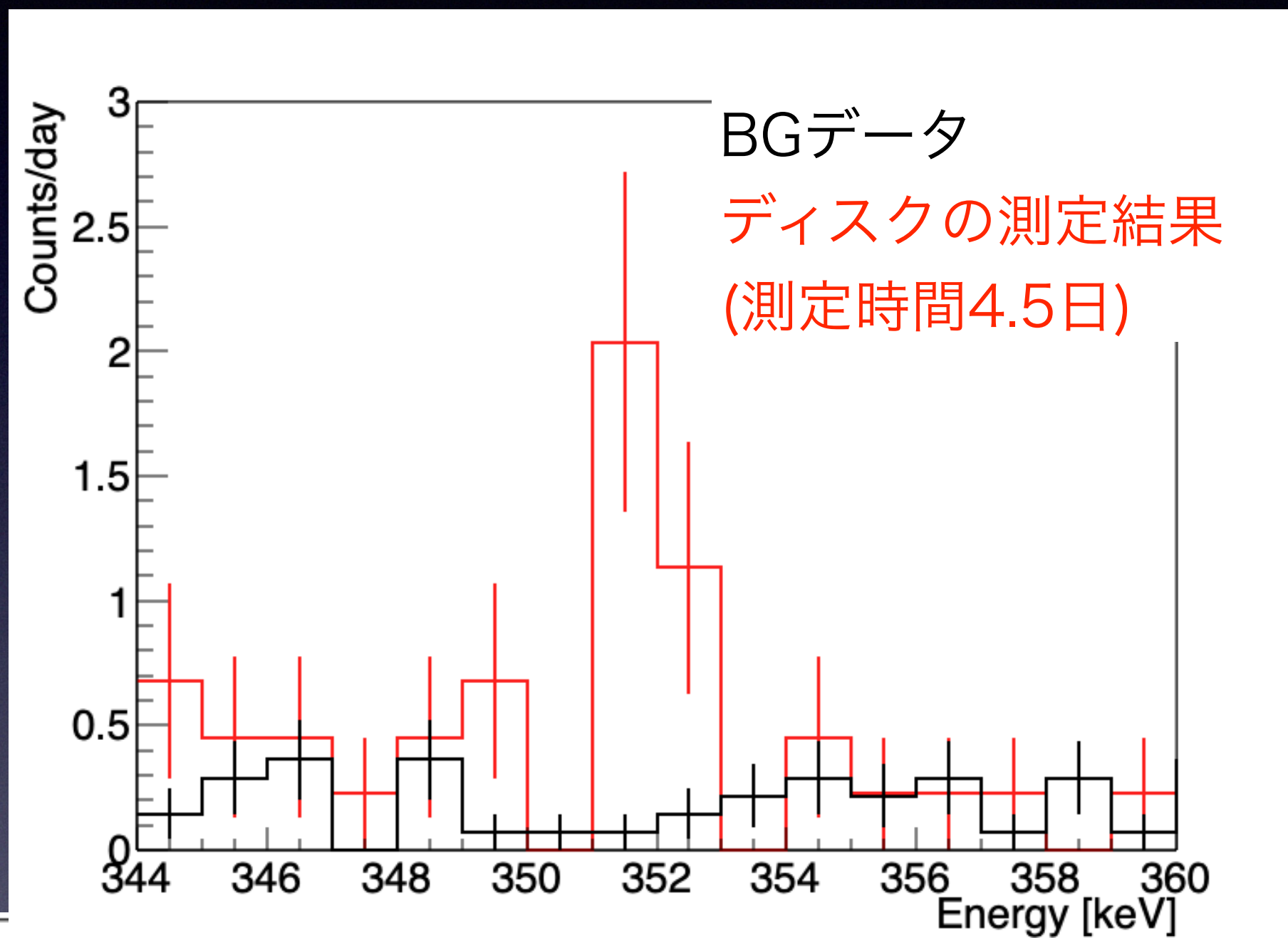
の水を3mL (0.33 mBq)加えて通液したディスクの

352keV( $^{214}\text{Pb}$ , B.R. 37.6%)近傍のスペクトルとRI評価結果

硫酸ガドリニウム500gを含む

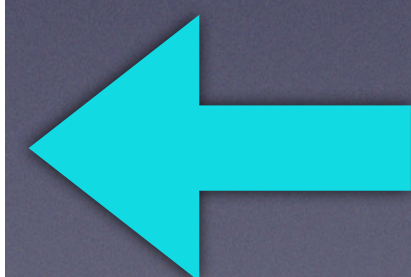
5Lの水溶液(=濃度5%)を通液した

ディスクの測定結果



Lot No.	Concentration of $^{226}\text{Ra}$ (mBq kg $^{-1}$ )	Measurement time (d)
1	< 0.4	6.0
2	< 0.3	11.0
3	< 0.3	8.8
4	< 0.2	9.6
5	< 0.5	8.7
6	< 0.2	13.0

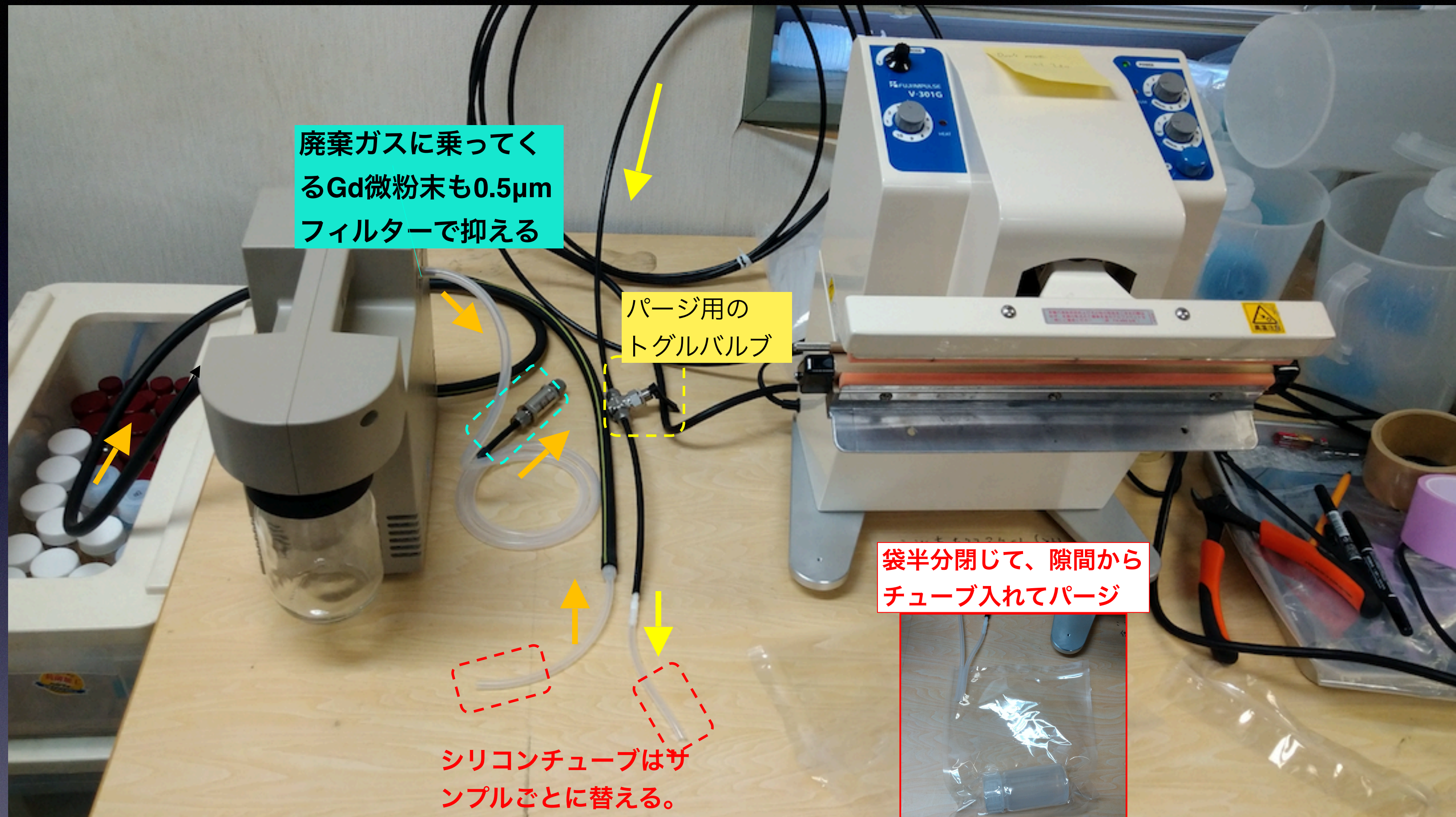
Hot spring water (mL)	Expected amount of $^{226}\text{Ra}$ (mBq)	Results (mBq)
3	$0.33^{+0.10}_{-0.04}$	$0.4 \pm 0.2$
100	$11.2^{+3.4}_{-1.2}$	$11.3^{+3.4}_{-1.1}$



測定結果はラジウム濃度が既知の水から  
予測される値と一致

- 硫酸ガドリニウム5%という濃い溶液からでもラジウムはディスクに吸着し、極低BG HPGe検出器と組み合わせることで0(0.1) mBqレベルの測定が可能で、測定した6ロットでは $^{226}\text{Ra}$ はSK-Gd計画で要求されるRIレベル (< 0.5 mBq/kg) を満たしていることを示した

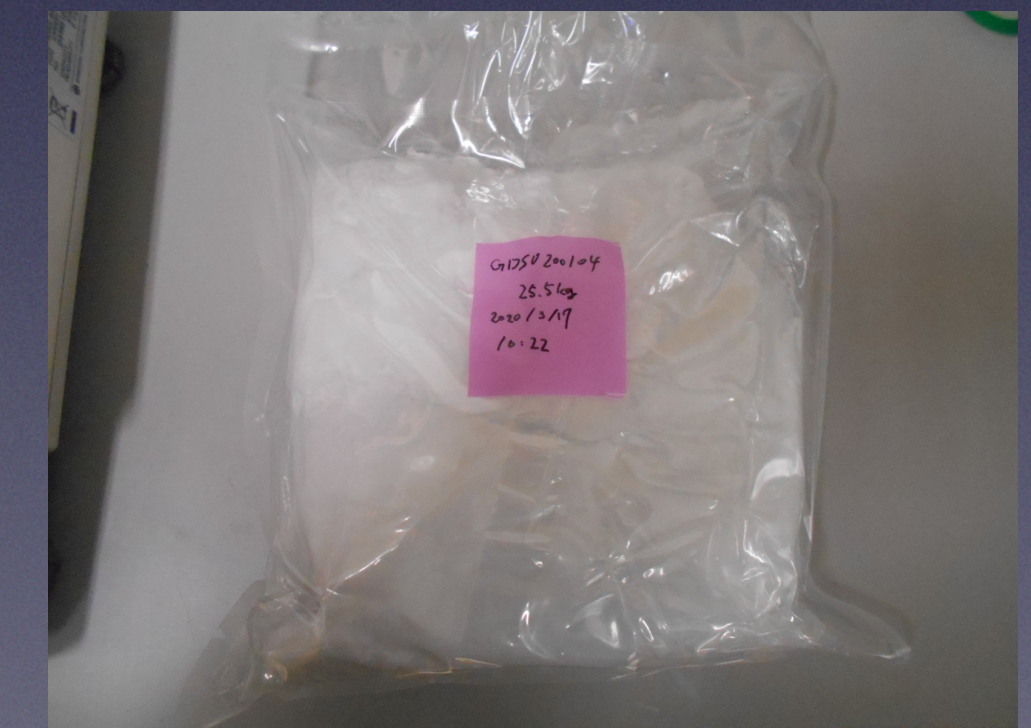
# 硫酸ガドリニウム直接測定での測定方法の高感度化(1)



純空気ボンベ



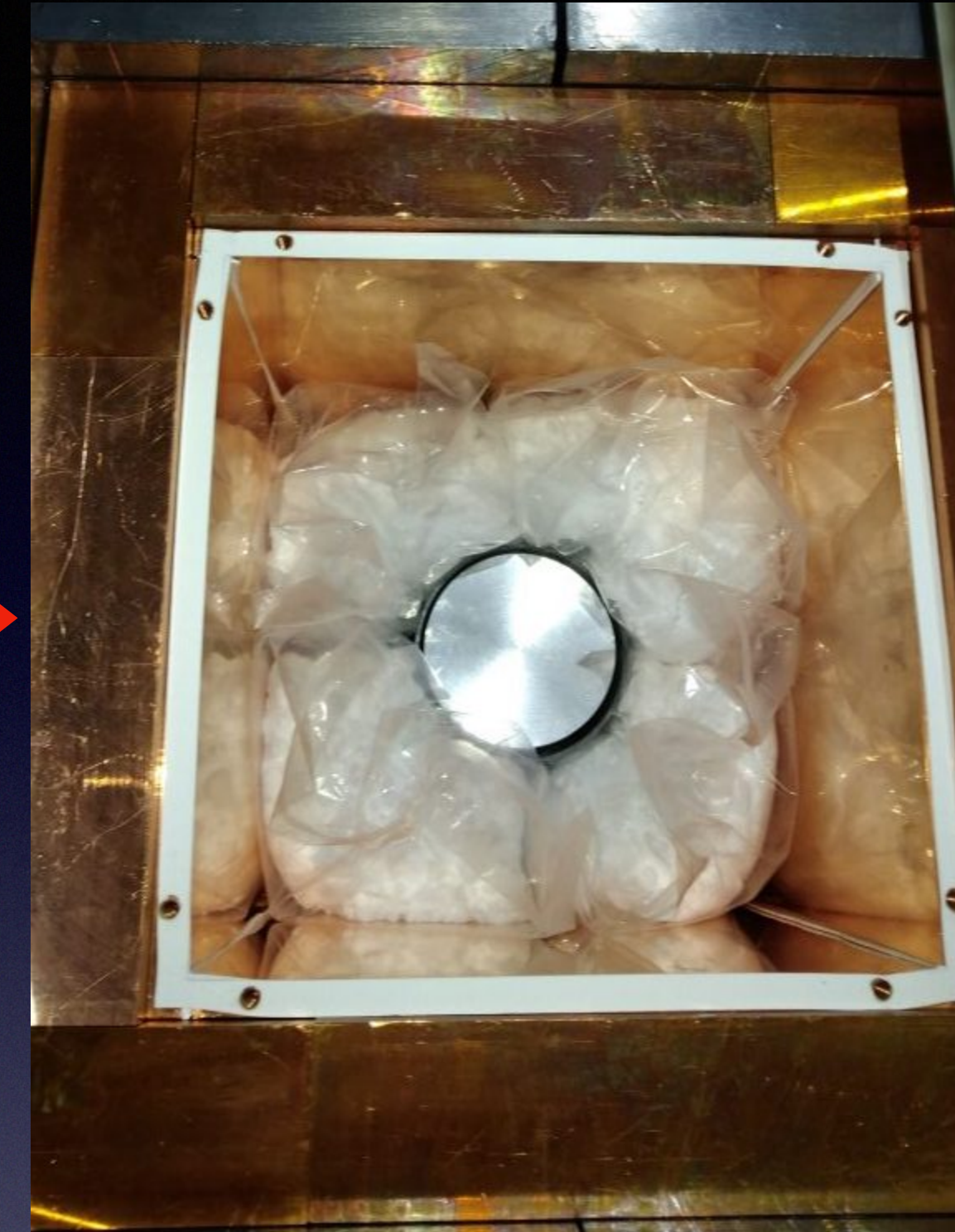
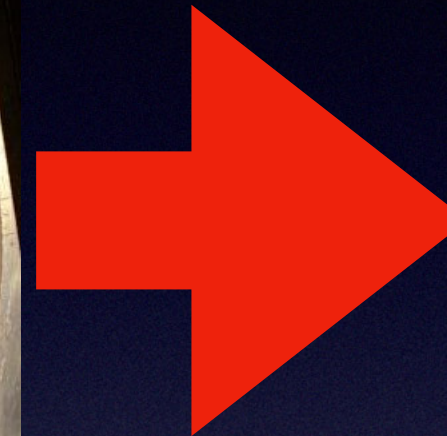
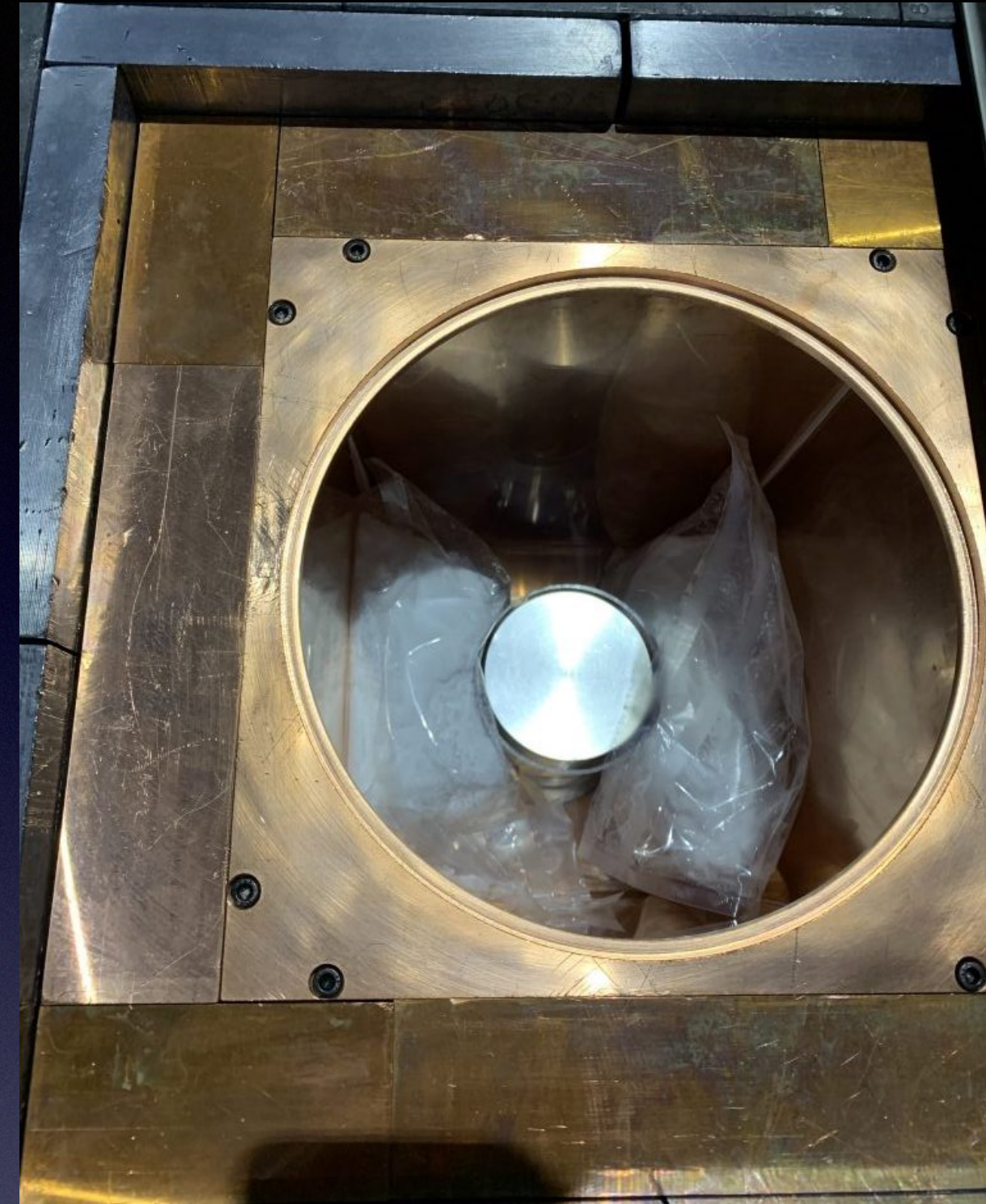
袋詰めした測定用サンプル



- 直接測定： $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ だけでなく他のRIを見落としていないことを検証
- 高感度化、測定スピードの向上のために：
  - サンプル作りの段階で純空気のパージ：袋詰め時に混入した環境中ラドンの除去
  - 袋内の空気抜き：サンプルの大きさを小さくでき、より多量のサンプルを同時に測定出来る

# 硫酸ガドリニウム直接測定での測定方法の高感度化(2)

これまでの硫酸  
ガドリニウム  
の直接測定  
(5kg)

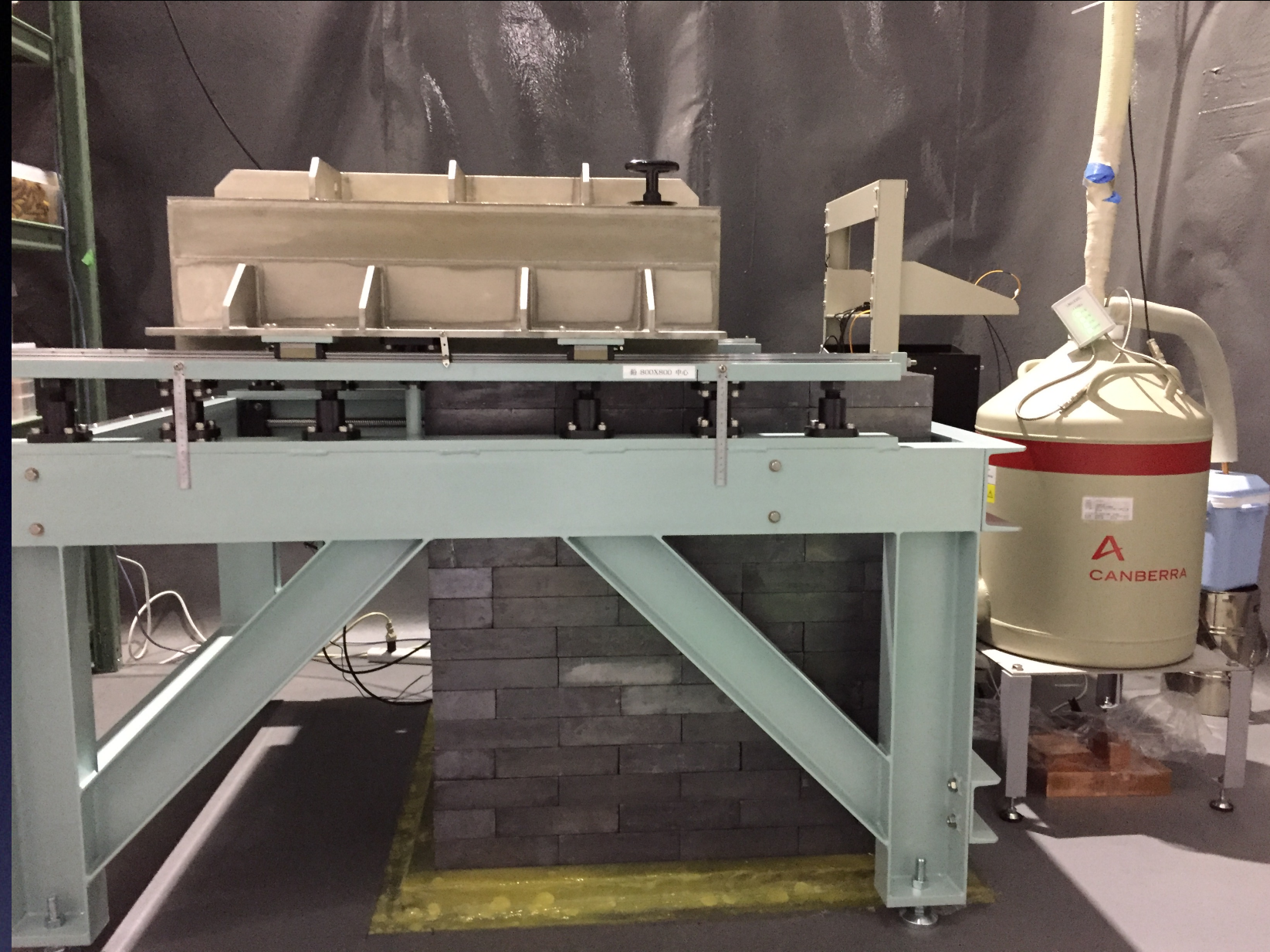


最近の硫酸ガドリニウム  
の直接測定(10kg)

- 前頁のサンプル作りの改善により硫酸ガドリニウムを同時に10 kg以上測定可能に (それまで5kg)
- 2倍のサンプルを同時に測定できるようになり、測定感度も向上した
  - 直接測定でも $^{226}\text{Ra}$ で要求されるレベル (0.5 mBq/kg) の測定が可能に
- 他のRI( $^{40}\text{K}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{176}\text{Lu}$ など)についても評価を行っている
- 硫酸ガドリニウムのさらなる極低放射能化のための純化プロセスのチェックも



# 新しいHPGe検出器



- 新学術「地下から解き明かす宇宙の歴史と物質の進化」で本研究で使用しているHPGe検出器と同じ仕様のHPGe検出器を導入予定
  - 相対効率80%、極低バックグラウンド仕様
  - この検出器の部材のスクリーニングにも本研究のHPGe検出器を使用
  - 今年度中に神岡に到着予定
- 速やかに遮蔽体その他測定に関係するセットアップを構築して、今後SK-Gd計画で新たに導入する硫酸ガドリニウムのスクリーニングを高速、高感度で推進する

# まとめと今後

- 極低バックグラウンド HPGe検出器を用いたスクリーニングをSK-Gd計画で導入する硫酸ガドリニウムを中心に行った
- 今年度：これまで24サンプルのRI測定 / 論文が3本publish
  - **Improved method for measuring low concentration radium and its application to the Super-Kamiokande Gadolinium project S.Ito et al, PTEP 2020 (2020) 9, 093H02 <https://doi.org/10.1093/ptep/ptaa105>**
  - Evaluation of radon adsorption efficiency values in xenon with activated carbon fibers, Y.Nakano et al, PTEP 2020 (2020) 11, 113H01, <https://doi.org/10.1093/ptep/ptaa119>
  - Development of low-background photomultiplier tubes for liquid xenon detectors, K.Abe et al (XMASS collaboration) , JINST 15 (2020) 09, P09027 <https://doi.org/10.1088/1748-0221/15/09/P09027>
- もう1台極低バックグラウンド HPGe検出器を導入予定
  - 速やかに遮蔽体その他セットアップを構築して、26トン（52製造ロット）の硫酸ガドリニウムのスクリーニングの高速化、高感度化を進める