レーザー分光分析手法を用いたバックグラウンド評価に関する研究

東大院工 / 原子力機構　岩田 圭弘
東京大学宇宙線研究所　関谷 洋之
日本原子力研究開発機構　伊藤 主税

共同利用研究経費：
物品費2．５万円、旅費５万円（東海⇔神岡）

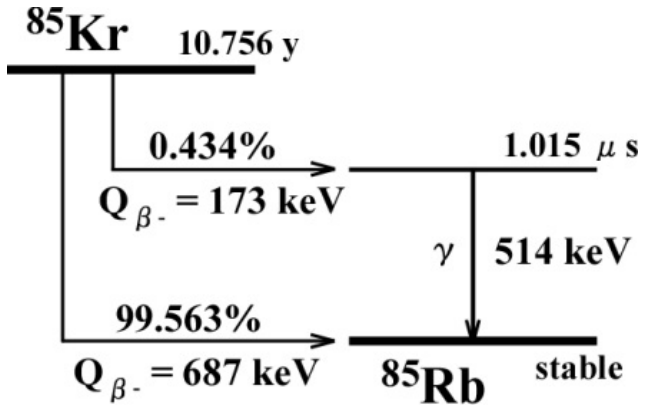
平成28年度 東京大学宇宙線研究所 共同利用研究成果発表会
東京大学柏キャンパス　2016/12/10（土）

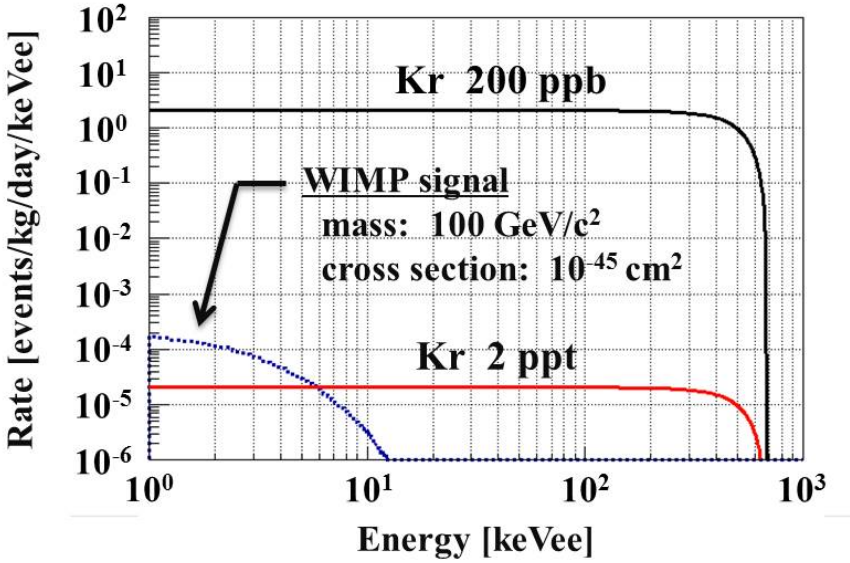
Outline

- **Xeを用いた暗黒物質探索におけるKr不純物**
  - ＊ レーザー共鳴イオン化（RIMS）を用いた Xe中Kr測定
- **XMASS 液相Xe中のKr濃度測定**
  - ＊ ダイヤフラムバルブによる試料ガス流量の制御
  - ＊ 測定系のコンタミ：パルスバルブ（PSV）O-ringの交換
- **レーザー吸収分光を用いた希ガス測定の検討**
  - ＊ コンパクト、RIMS では難しいAr 等の測定可能性
  - ＊ キャビティーリングダウンによる感度向上
- **まとめ、今後の予定**

Xeを用いた暗黒物質探索における不純物 ^{85}Kr バックグラウンドの影響

- ^{85}Kr：核分裂で生成 ⇒ ^{85}Kr/Kr～10^{-11}
- ^{85}Krのβ decay（$Q_{\beta-}$ = 687 keV）
- 市販の純Xeガス中に Kr/Xe～ppb
  ⇒ 蒸留により ~ppt まで低減
- WIMP探索に対する ^{85}Kr BG
  ⇒ ~ppt Kr が σ~10^{-45} cm^2 探索に影響
- Xe中 ~ppt level Kr濃度測定
  ⇒ レーザー共鳴イオン化質量分析法（RIMS）





レーザー共鳴イオン化質量分析法（RIMS）

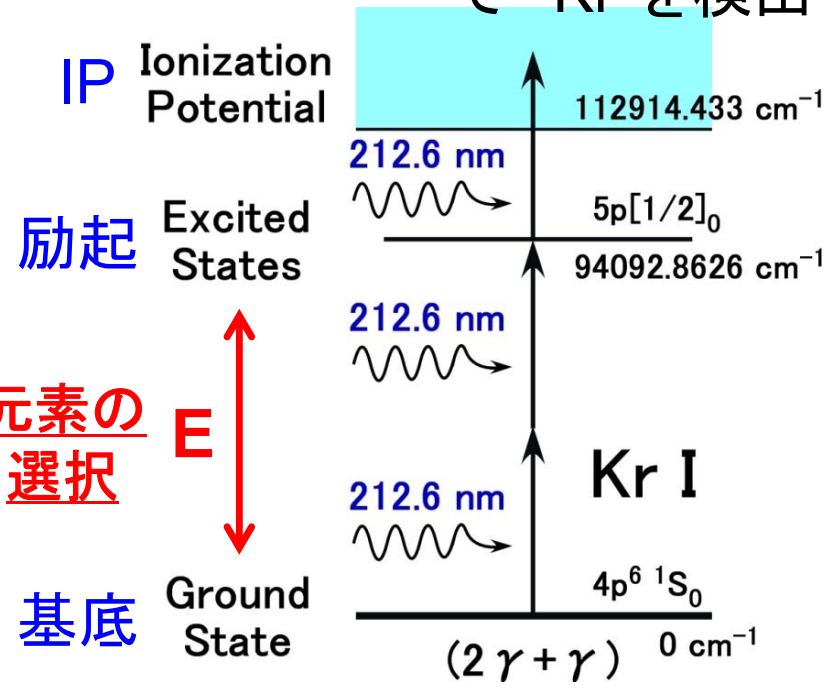
- **元素の選択性**を利用した**濃縮不要、超高感度（sub-ppt [*]）**分析法

[*] Y. Iwata et al., Nucl. Instrum. Methods A 797 (2015) 64-69.

- **ナノ秒パルスレーザーによる共鳴イオン化** + TOF質量分析
  - ▻ 短パルスで、2γ 励起効率向上
  - ▻ TOF質量分析と相性良い

- **多光子、光電子イオン化による Xe BG**は m/z = 84 に影響なし
  - ▻ Xe^{+} は m/z = 124-136
  - ▻ Xe^{2+} は m/z = 62-68　（vs. ^{84}Kr）

TOF質量分析で$^{84}Kr^{+}$を検出



クリプトン（Kr）原子の（2γ+γ）共鳴イオン化

Gas phase (Dec. 9, 2010) → RIMS（昨年秋）: 108.3±7.7 ppt, 103.8±7.3 ppt

Xe circulation system (XMASS)

4 x 180 W refrigerator
PTR developed by KEK

Cable line

Calibration line

Water tank

gas pump

filters

emergency gas pump
100 L/min

^{85}Kr event: 6.9±2.9 ppt
（今年春、XMASS）

Condenser
360 W

evaporator

filters

10 m^3
x 2

gas
storage

1050kg

Outer vacuum

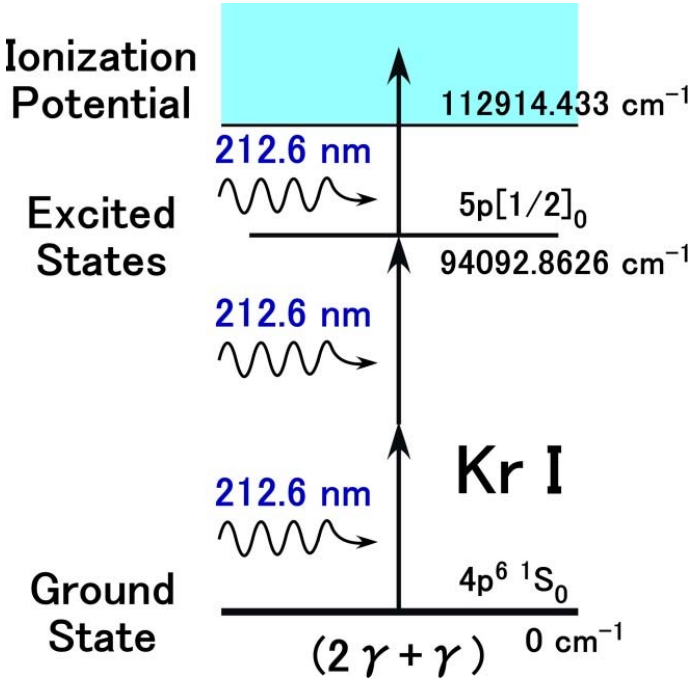
Liq. phase (Apr. 6, 2016)

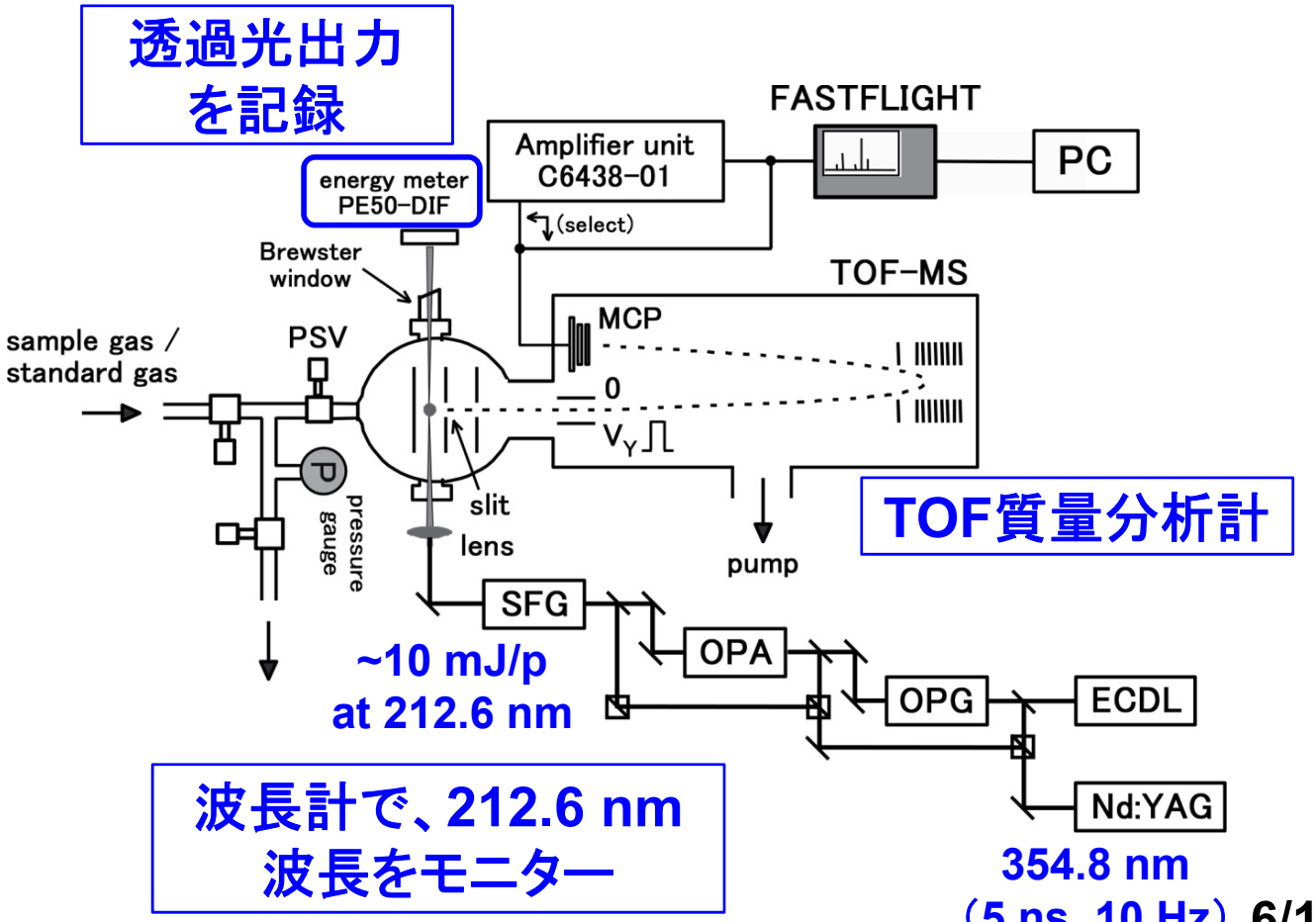
700L
Liq.
Storage

→ RIMS（今回）

測定セットアップ

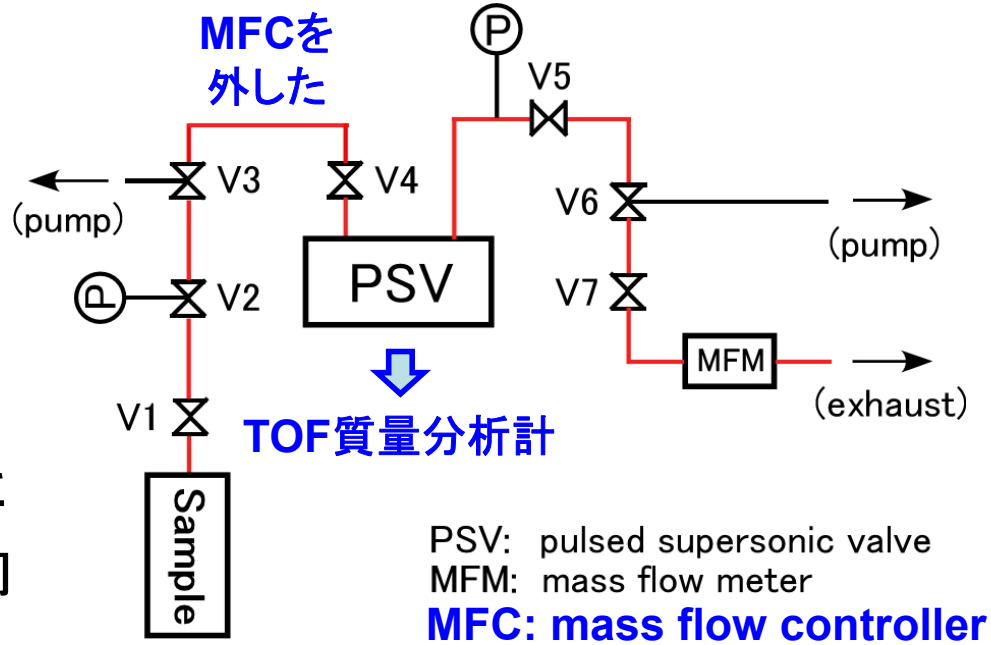
- パルスバルブ（PSV）から、試料ガスを質量分析計に導入
- Nd:YAG（354.8 nm）励起光から 212.6 nm を生成し、Kr を（2γ+γ）共鳴イオン化 ⇒ TOF-MS で ^{84}Kr 検出

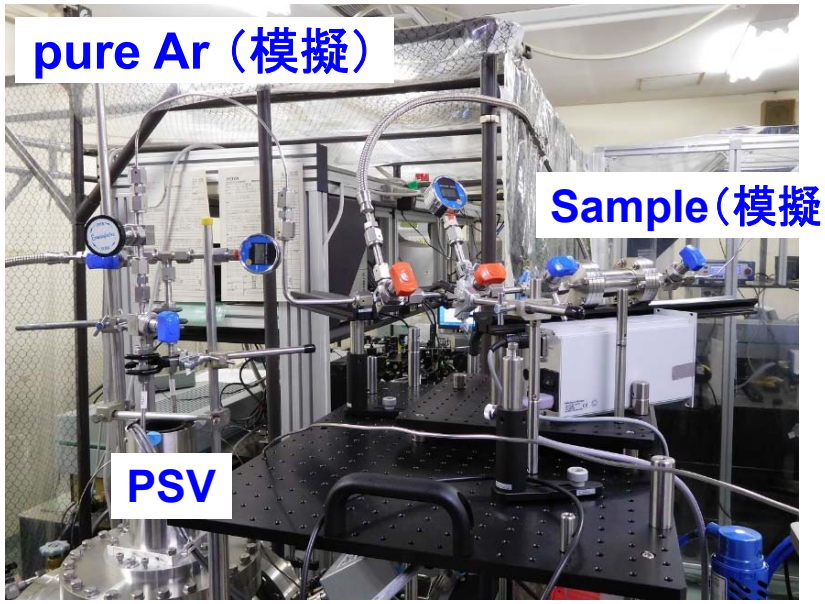


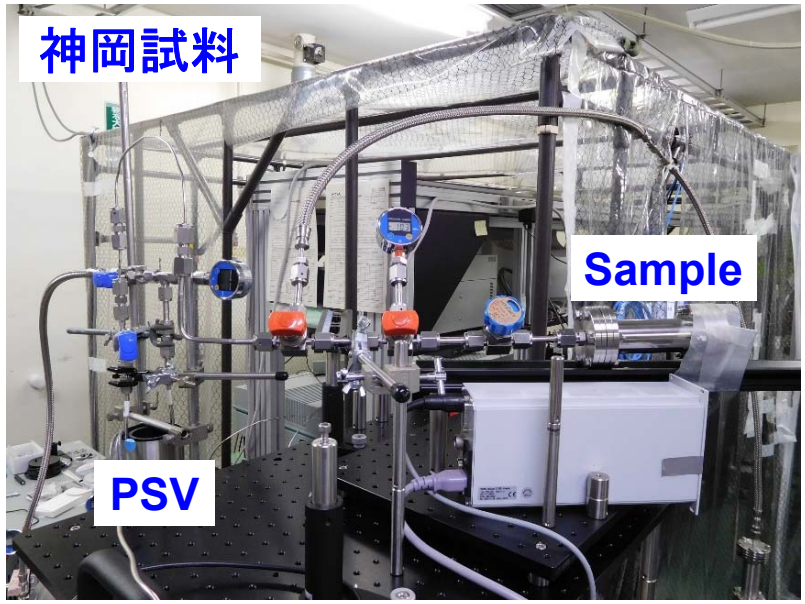


試料セットアップ

- 試料：115 cc at 0.87 MPa
- pure Ar（Kr濃度：1-10 ppt）で模擬測定
  - ⇒ 気相Kr測定に使用したMFCがコンタミ源であったため、外した
  - ⇒ MFM見ながら、V4 で流量制御



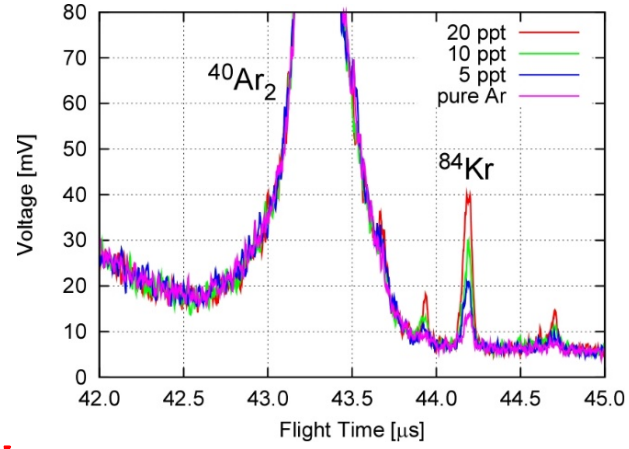




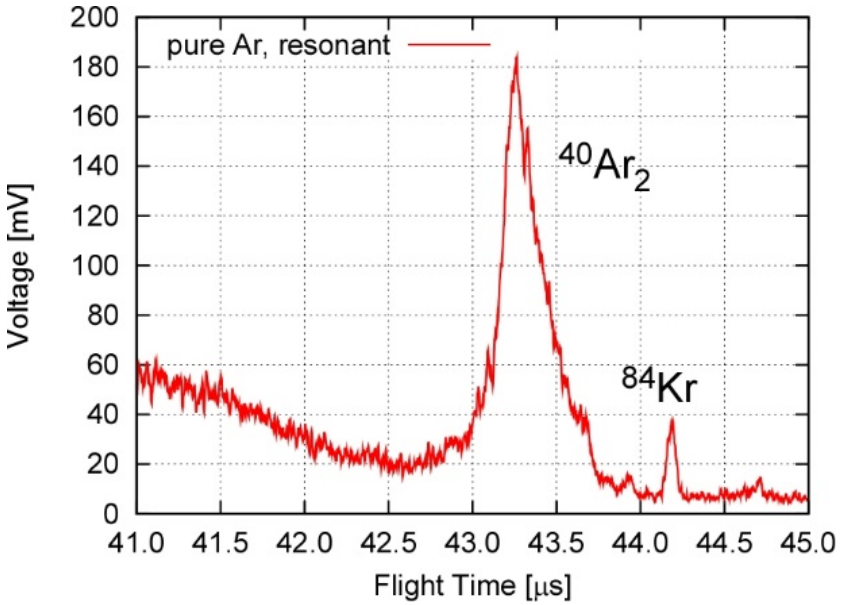
模擬試料＆神岡試料中のKr測定結果

- 模擬測定のコンタミ: ~ 20 ppt
- 神岡試料: < 60-70 ppt
  （コンタミ分含む、詳細は評価中）

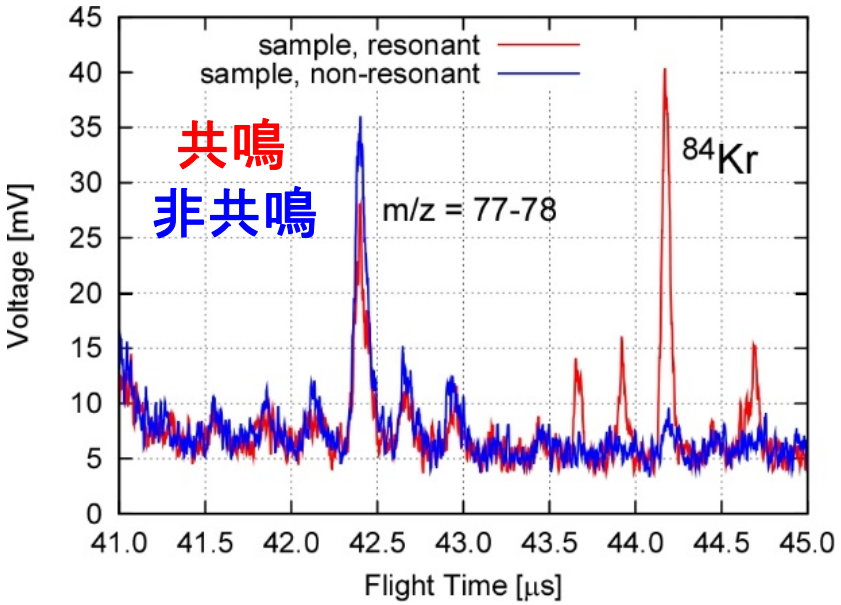
気相中Kr ~ 100 ppt よりは低いが、炭化水素BGが観測されており、試料側（容器等）コンタミの可能性あり



0－20 ppt Kr in Ar



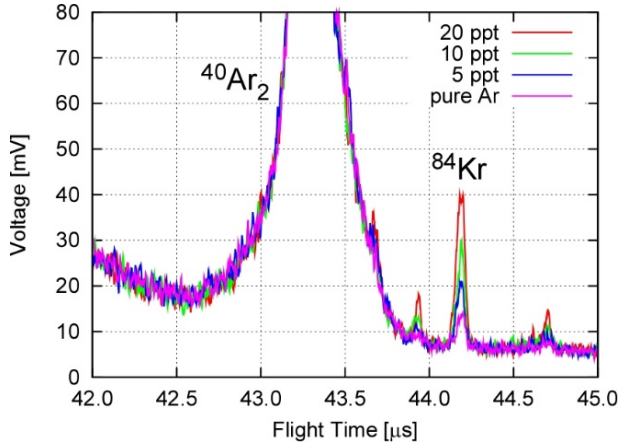
pure Ar（模擬）



神岡試料

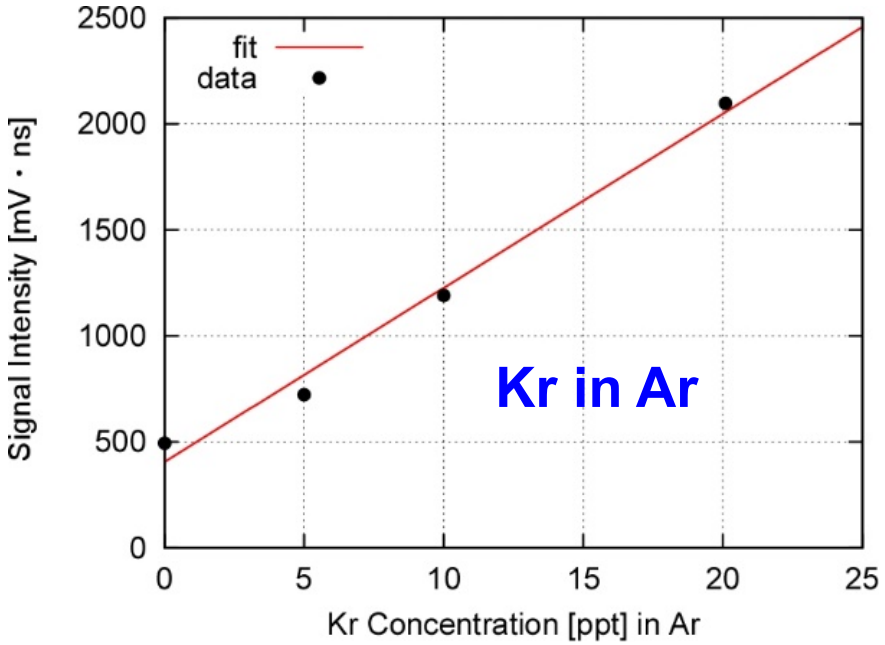
模擬試料＆神岡試料中のKr測定結果

- 模擬測定のコンタミ: ~ 20 ppt
- 神岡試料: < 60-70 ppt
  （コンタミ分含む、詳細は評価中）

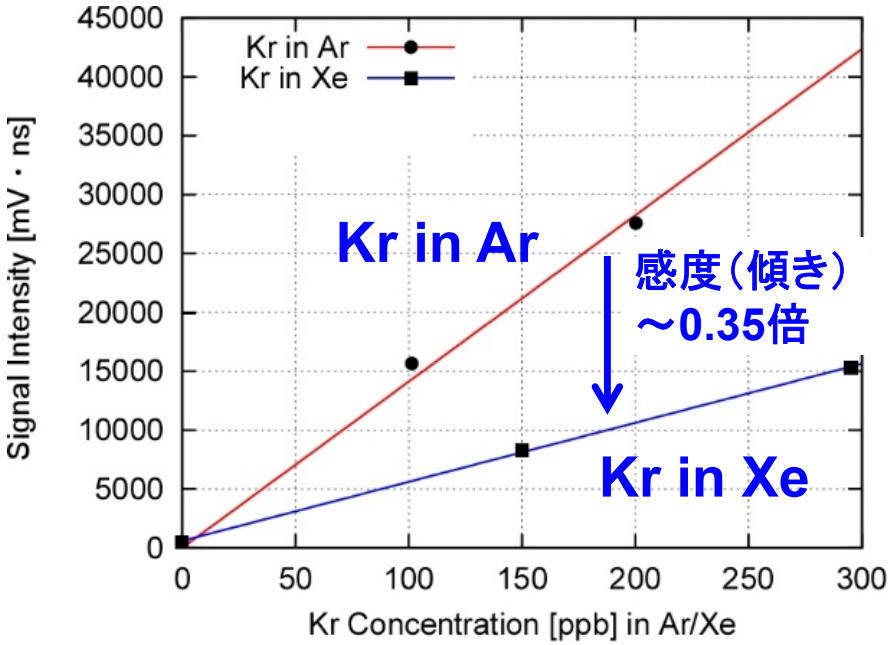


0－20 ppt Kr in Ar

気相中Kr ~ 100 ppt よりは低いが、炭化水素BGが観測されており、試料側（容器等）コンタミの可能性あり



0－20 ppt Kr in Ar

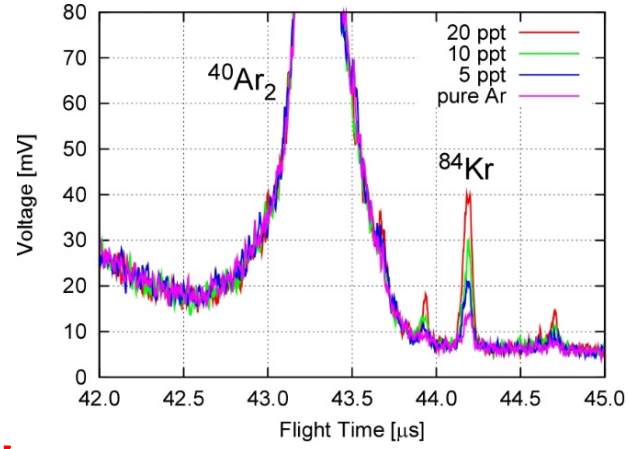


0－300 ppb Kr in Ar/Xe

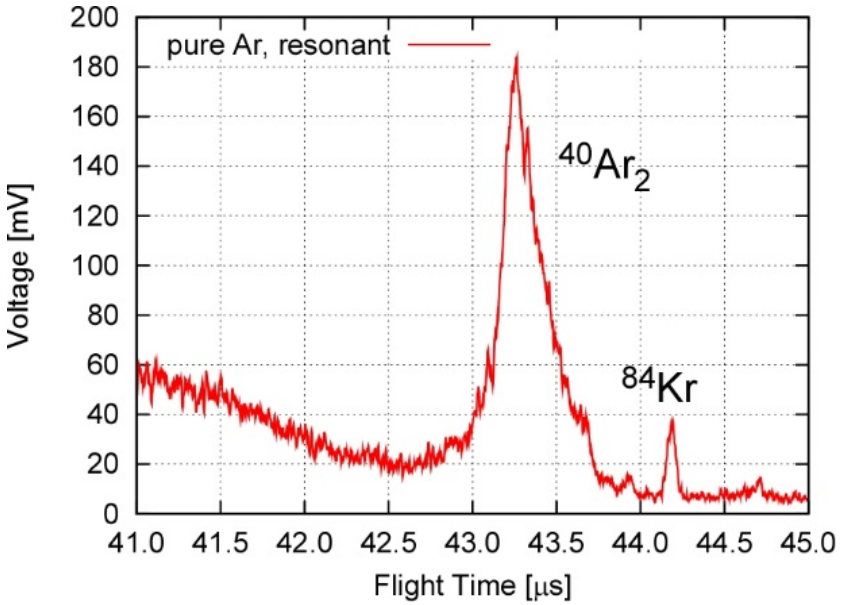
模擬試料＆神岡試料中のKr測定結果

- 模擬測定のコンタミ: ~ 20 ppt
- 神岡試料: < 60-70 ppt
  （コンタミ分含む、詳細は評価中）

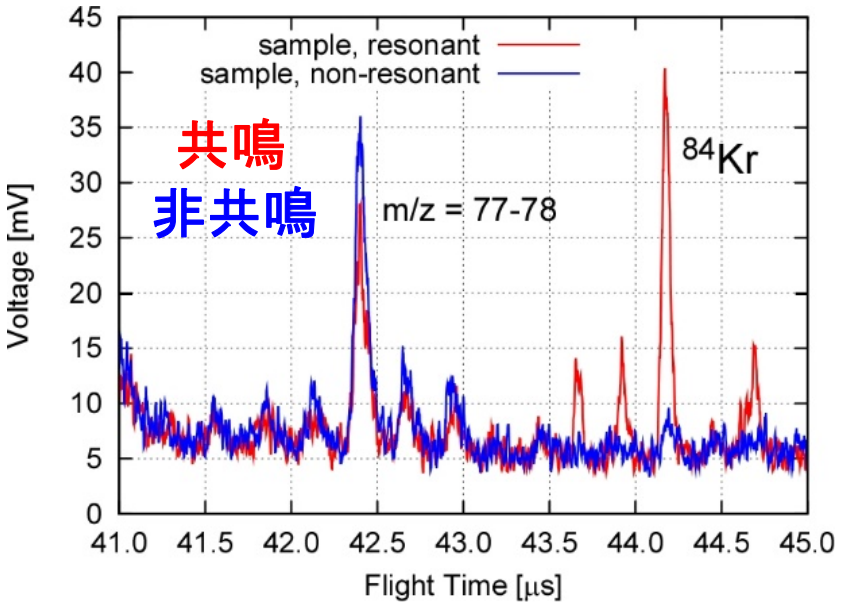
気相中Kr ~ 100 ppt よりは低いが、炭化水素BGが観測されており、試料側（容器等）コンタミの可能性あり



0－20 ppt Kr in Ar



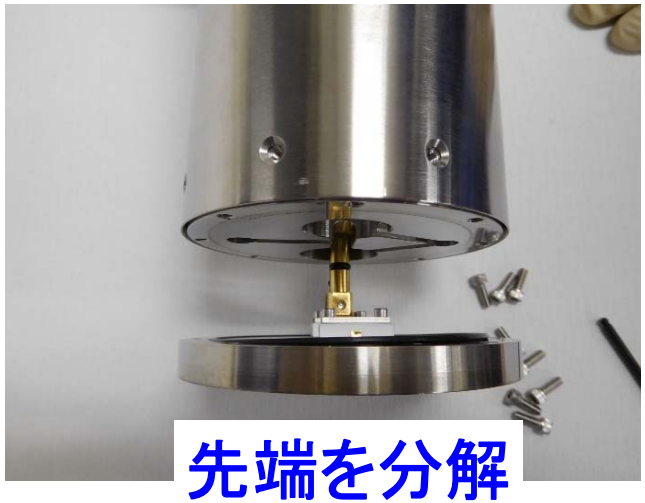
pure Ar（模擬）

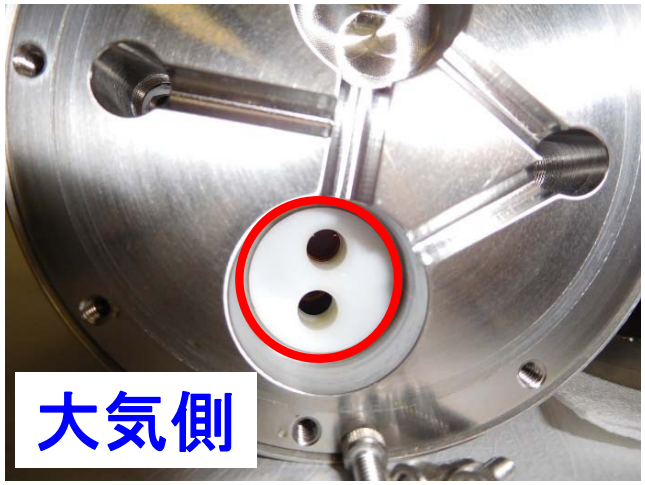


神岡試料

測定系のコンタミ:パルスバルブO-ringの交換

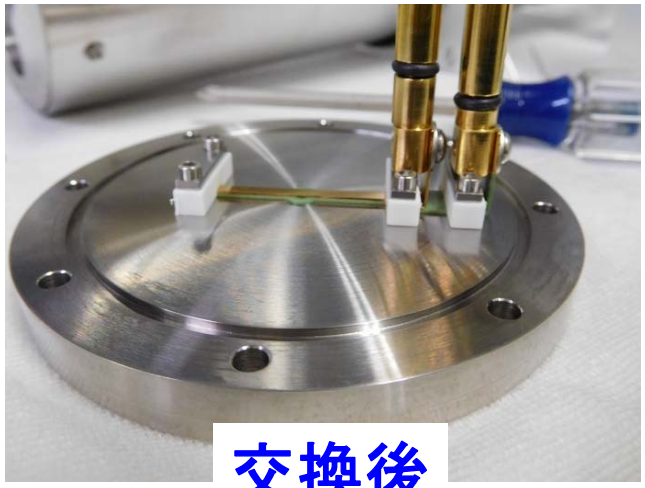
- 電極シール用O-ring(2箇所):ゴム製で、変形する可能性





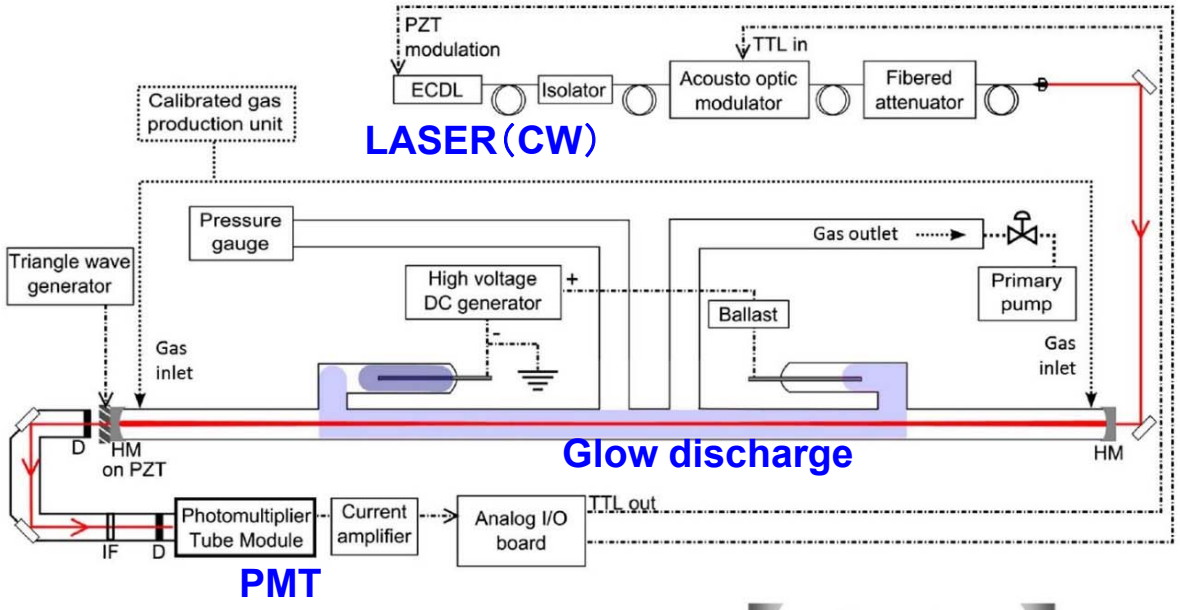
電極

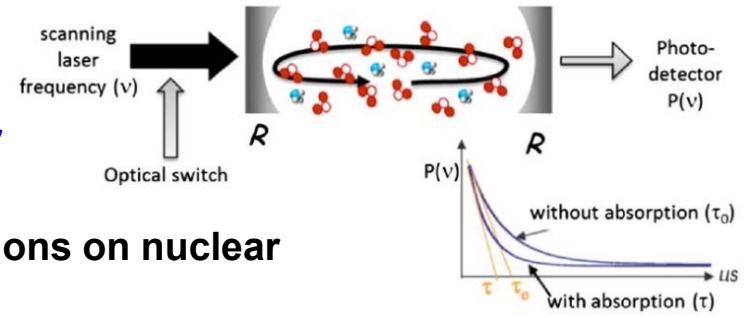
電極シール用
O-ring×2交換



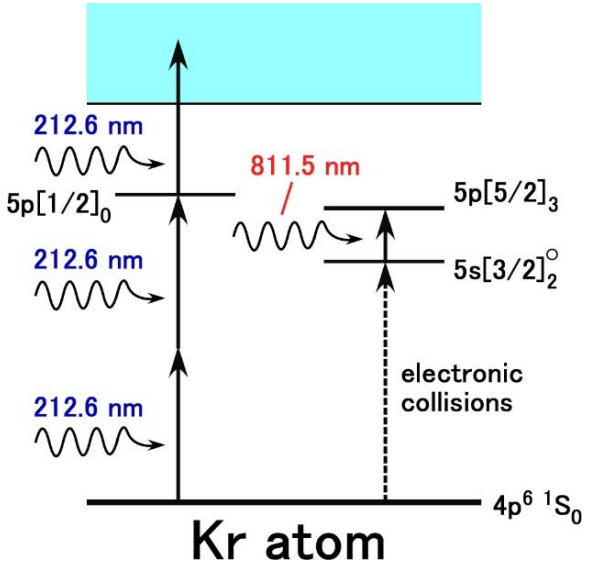
レーザー吸収分光の利用可能性

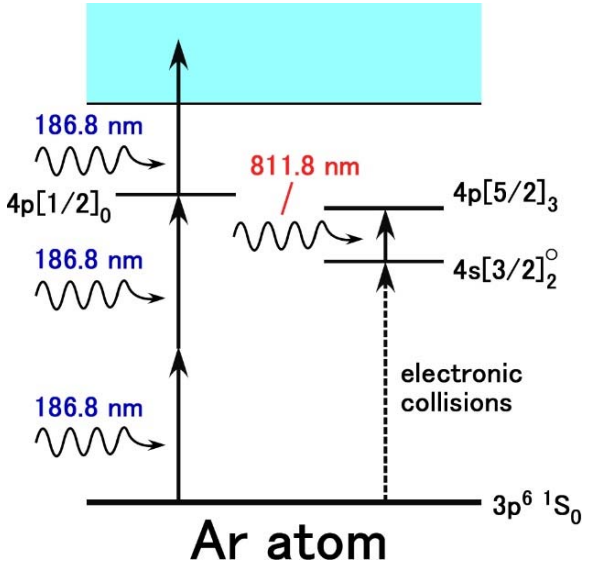
- 準安定→励起の吸収（長波長）を見る
- キャビティーリングダウン（CRDS）による多重反射で、感度向上





Detection limit:
~ 20 ppt for ^{even}Xe in Ar





P. Jacquet et al., IEEE transactions on nuclear science 61 (2014) 2011-2016.

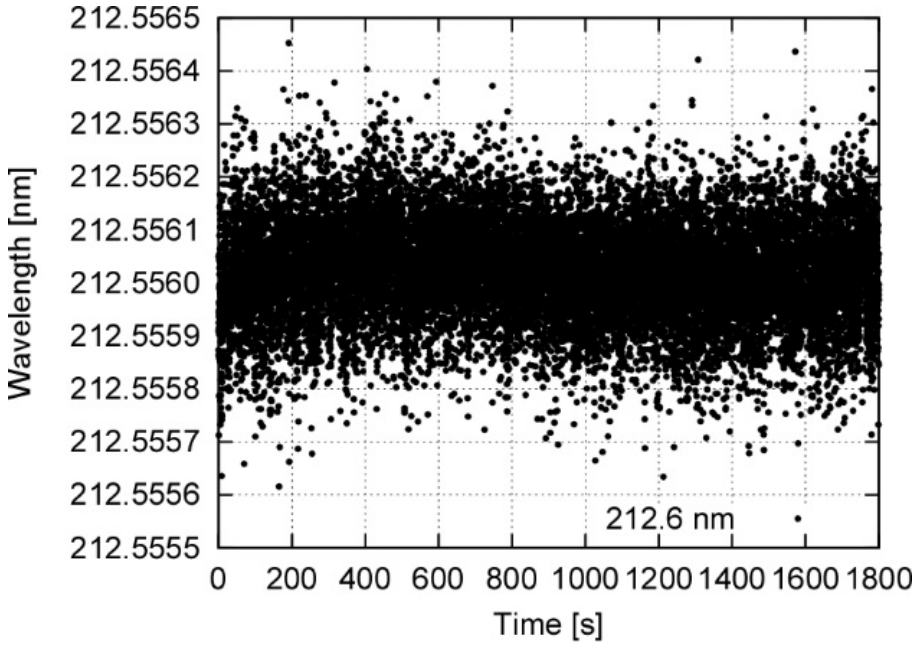
Summary and future plans

- **Xeを用いた暗黒物質探索に対する ^{85}Kr の影響**
  - ＊ レーザー共鳴イオン化を用いたXe中^{84}Kr測定
- **XMASS 液相Xe中のKr濃度測定**
  - ＊ 試料ガスをフロー、コンタミ源のMFC, ニードル弁なし
  - ＊ コンタミを含むため、Kr濃度の上限値: < 60-70 ppt
  - ＊ RIMSに代わる、レーザー吸収分光の利用検討
- **今後の予定**
  - ＊ パルスバルブO-ring交換後のコンタミ低減を確認
  - ＊ CRDSを用いた吸収分光の利用可能性を検討

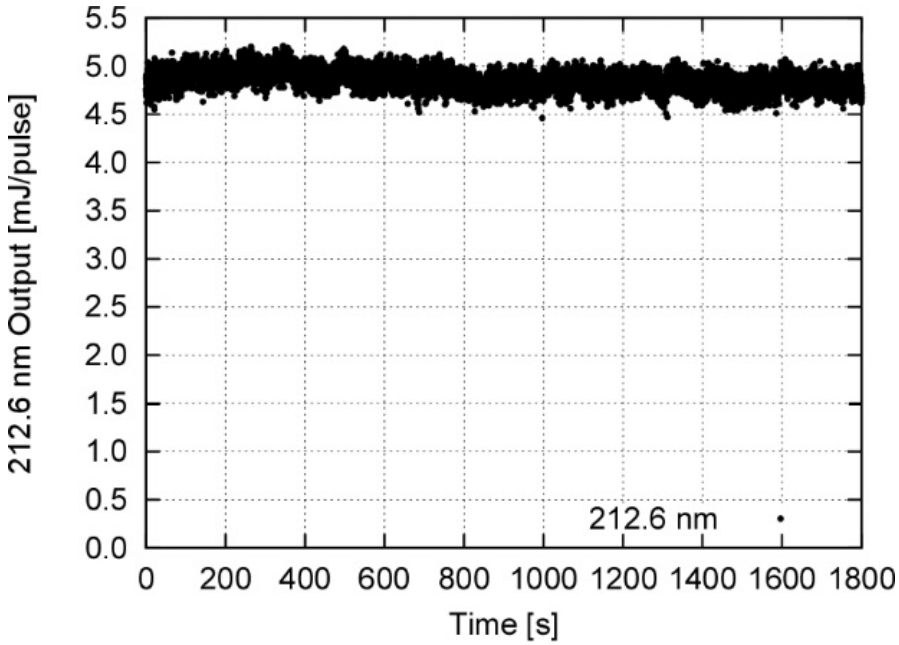
補足資料

神岡試料測定時の212.6 nm波長及び出力

- 波長は、OPGのSignal及びIdler波長から算出
  ⇒ 212.5560±0.0002 nm で安定
- 出力（TOF出口）は、4.5－5 mJ/pulse で安定



212.6 nm 波長



212.6 nm 出力

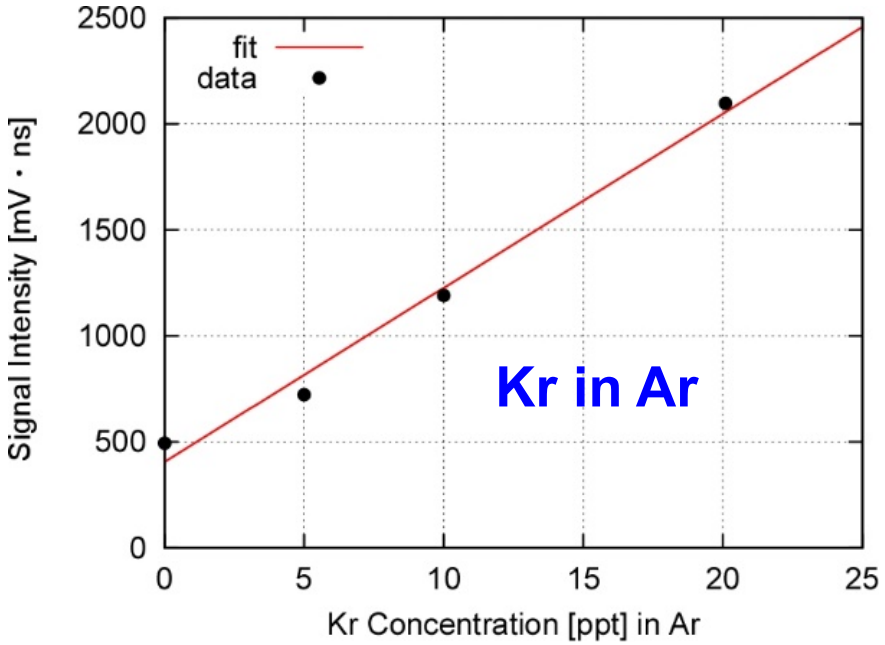
Calibration data

- MFCで濃度調整し、pure Ar 中の 0－20 ppt Kr 測定

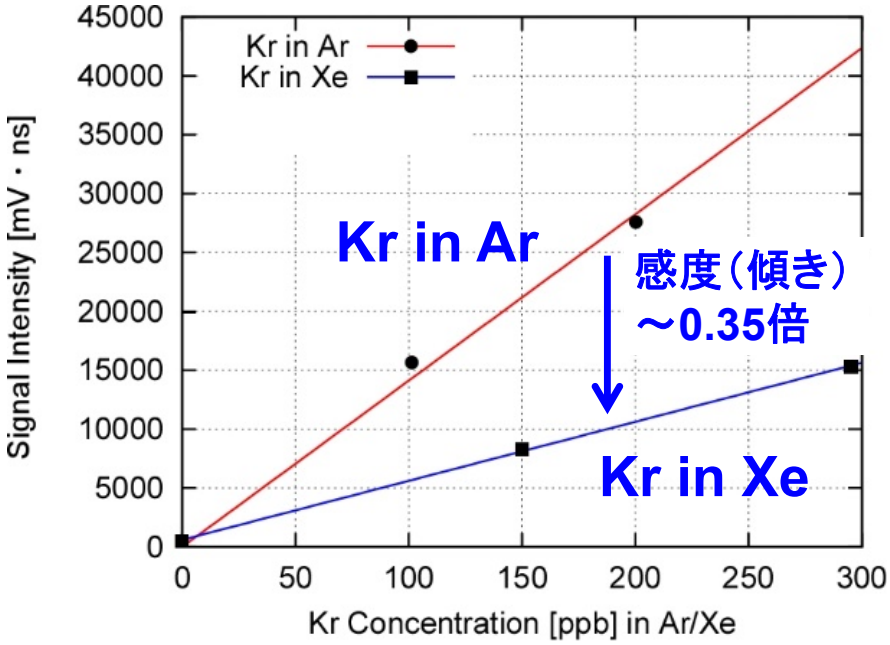
  （傾き, 主成分Ar）= **82.07±6.66** [mV･ns/ppt]

- pure Ar, Xe 中の 0－300 ppb Kr 測定 ⇒ 主成分の違い

  （Xe/Ar）=（50.11±0.96）/（141.22±4.78）~ **0.35**



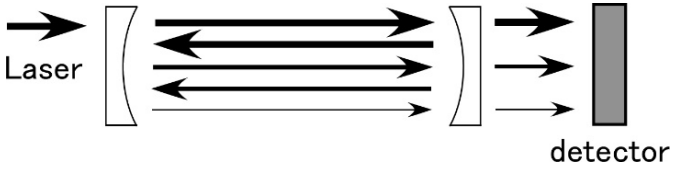
0－20 ppt Kr in Ar

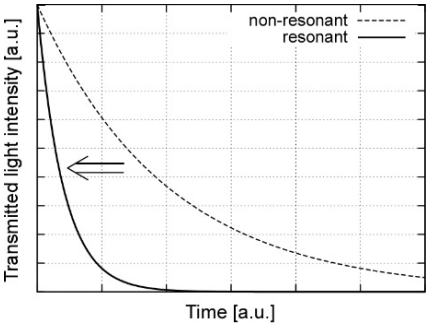


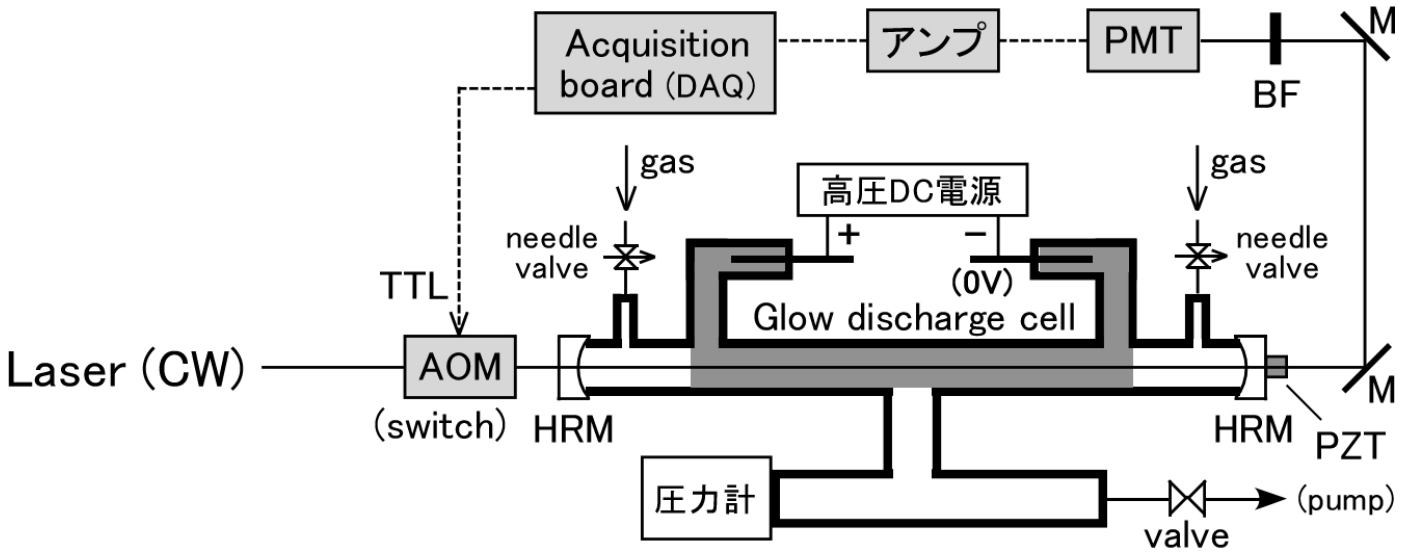
0－300 ppb Kr in Ar/Xe

キャビティリングダウン（CRDS）吸収分光法

- 対象原子・分子の吸収線と同じ波長のレーザー光を導入し、透過光強度の減衰を観測
- 高反射率（R）ミラーで多重反射させて伝搬距離（L）を稼ぎ、検出感度を向上







AOM: acousto-optic modulator
HRM: high-reflectivity (concave) mirror
PZT: piezoelectric transducer

M: mirror
BF: bandpass filter
PMT: photomultiplier tube

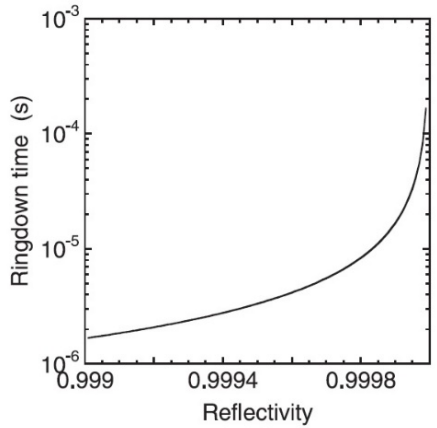


図３　共振器ミラーの反射率とリングダウン時間の関係.

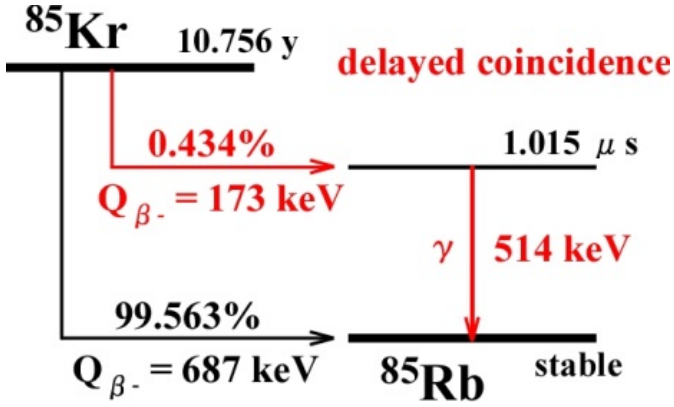
R~99.99% → L~3 km

CRDSセットアップ例（対象: 原子の同位体）

佐々木浩一,
J. Plasma Fusion Res. 91 (2015) 2-9.

Xe中の ^{85}Kr バックグラウンド評価手法

- 大きく分けて2通り:
  - ^{85}Kr decay
  - ^{84}Kr detection（^{84}Kr:stable）



- ^{85}Kr decay: 遅延同時計測

  XMASS 835 kg LXe, Kr/Xe = 1 ppt, ^{85}Kr/Kr = 1×10^{-11} を仮定

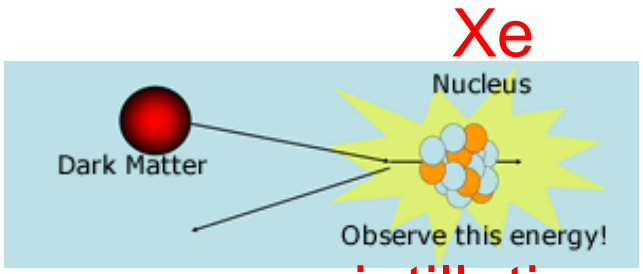
  - ► ^{85}Kr は ~3.8×10^{4} atoms
  - ► ^{85}Kr decay は ~7 day^{-1}　うち、遅延同時計測 ~0.03 day^{-1}

  ⇒ **^{85}Kr/Kr が既知であれば、^{84}Kr検出の方が迅速で感度が良い**

- ^{84}Kr detection: 質量分析、atom trap etc.
  - ► レーザー共鳴イオン化質量分析法（RIMS）も質量分析

Liquid Xe (LXe) for dark matter search

- Advantages of LXe
  - High scintillation yields
  - Self-shielding capability …

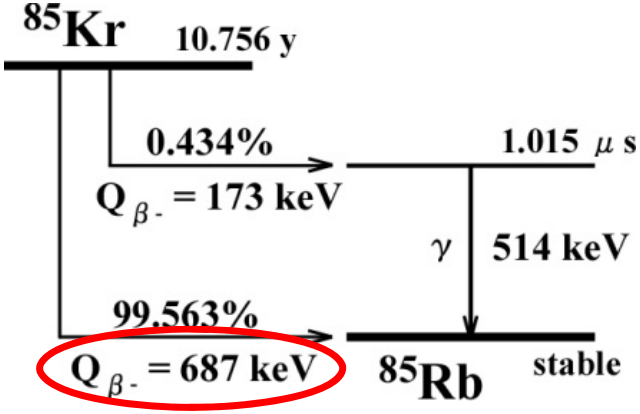


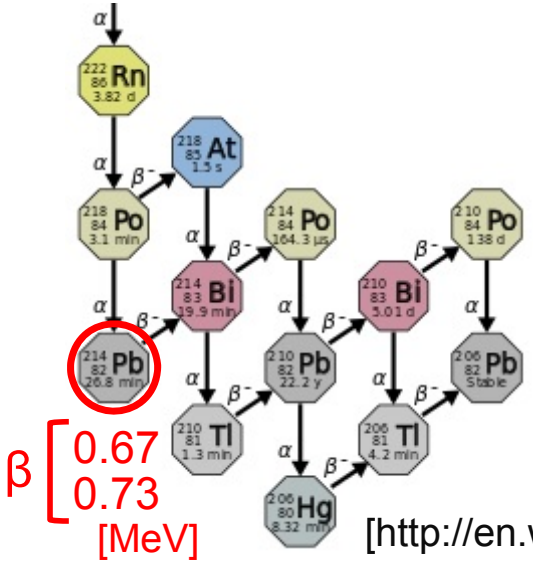
[http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/xmass/detector-e.html]

- Since Xe is a noble gas,

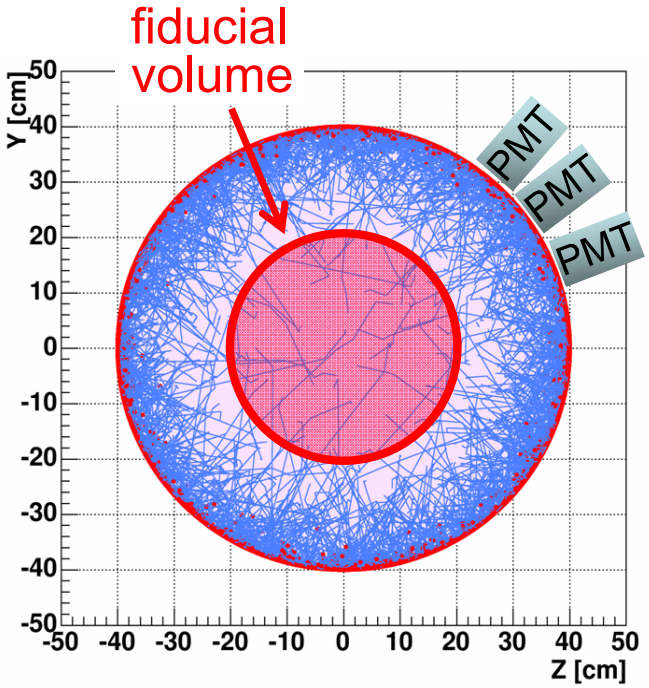
  ^{85}Kr: $Q_{\beta-}$ = 687 keV
  ^{222}Rn: β-decay of ^{214}Pb

  } major BG sources





[http://en.wikipedia.org/wiki/Decay_chain]



self-shielding capability
(XMASS geometry)

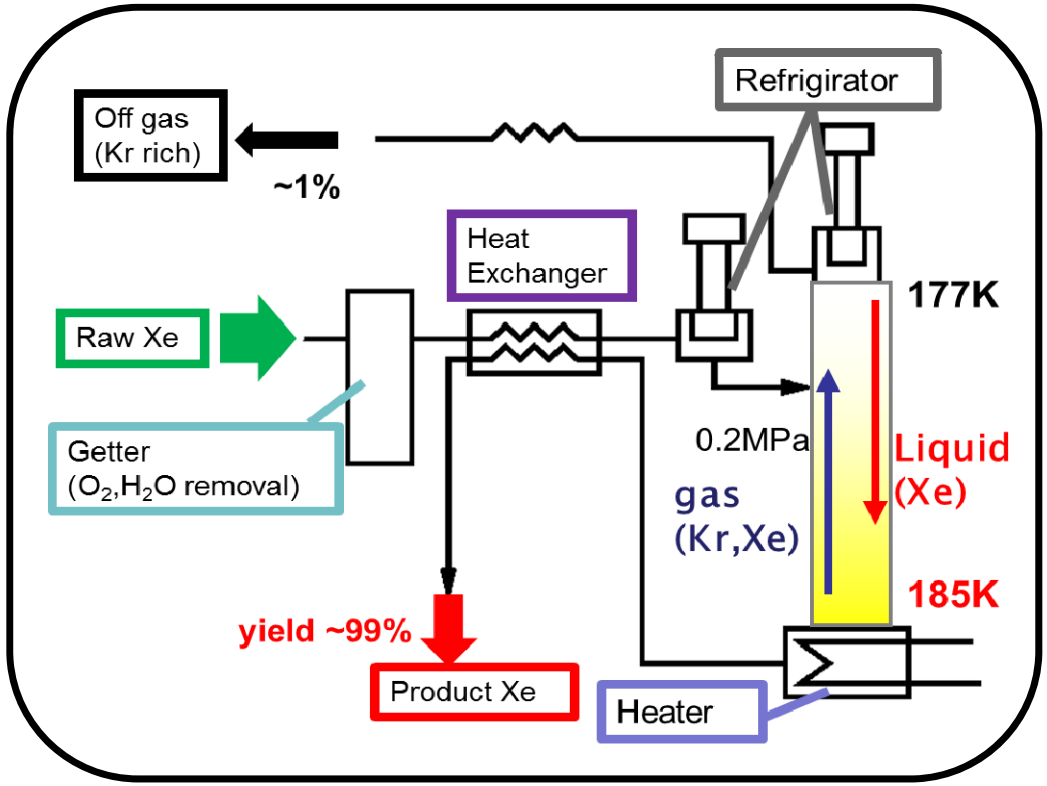
Astoparticle Physics 31, (2009) 290

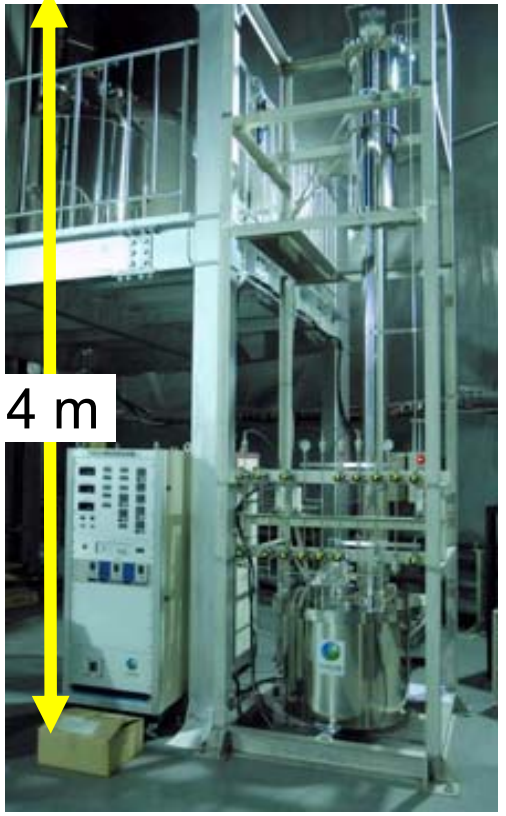
Xe Distillation System (XMASS)

- Commercial “pure Xe” contains ~0.1ppm Kr
  - $^{85}K / K = 1.2 \times 10^{-11}$ τ =10.8 year, Q_β = 687keV
    - 5 order reduction was indispensable.

	Boiling point (0.2 MPa)
Xe	178 K
Kr	140-150 K

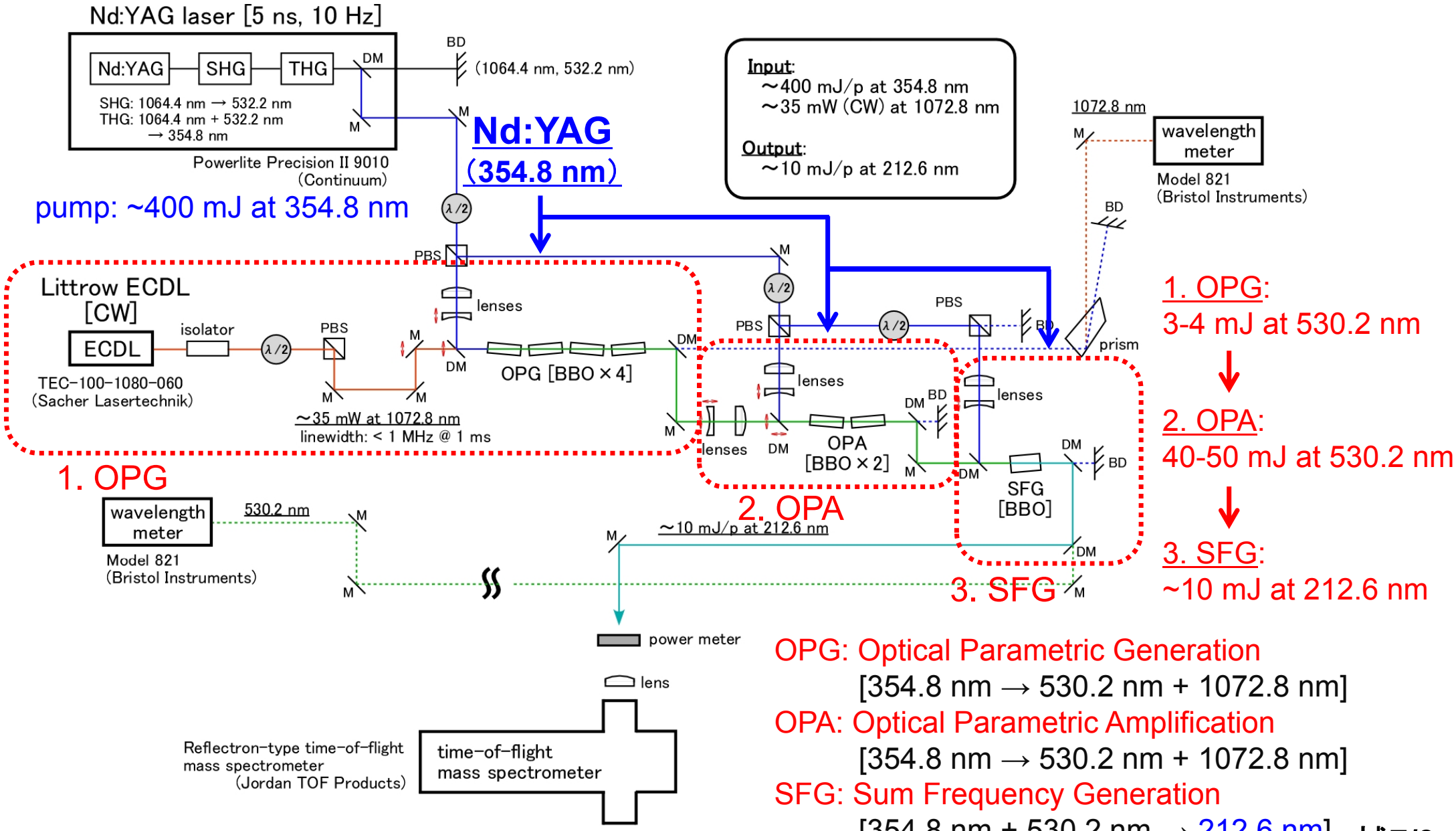
We established Xe purification by distillation





- 1 ton LXe = 170 m^3 gas Xe Process speed: 4.7kg/hr → 10 days
- Confirmed Kr < 2.7ppt by API-MS

Overview of the laser system



1. OPG:
3-4 mJ at 530.2 nm

↓

2. OPA:
40-50 mJ at 530.2 nm

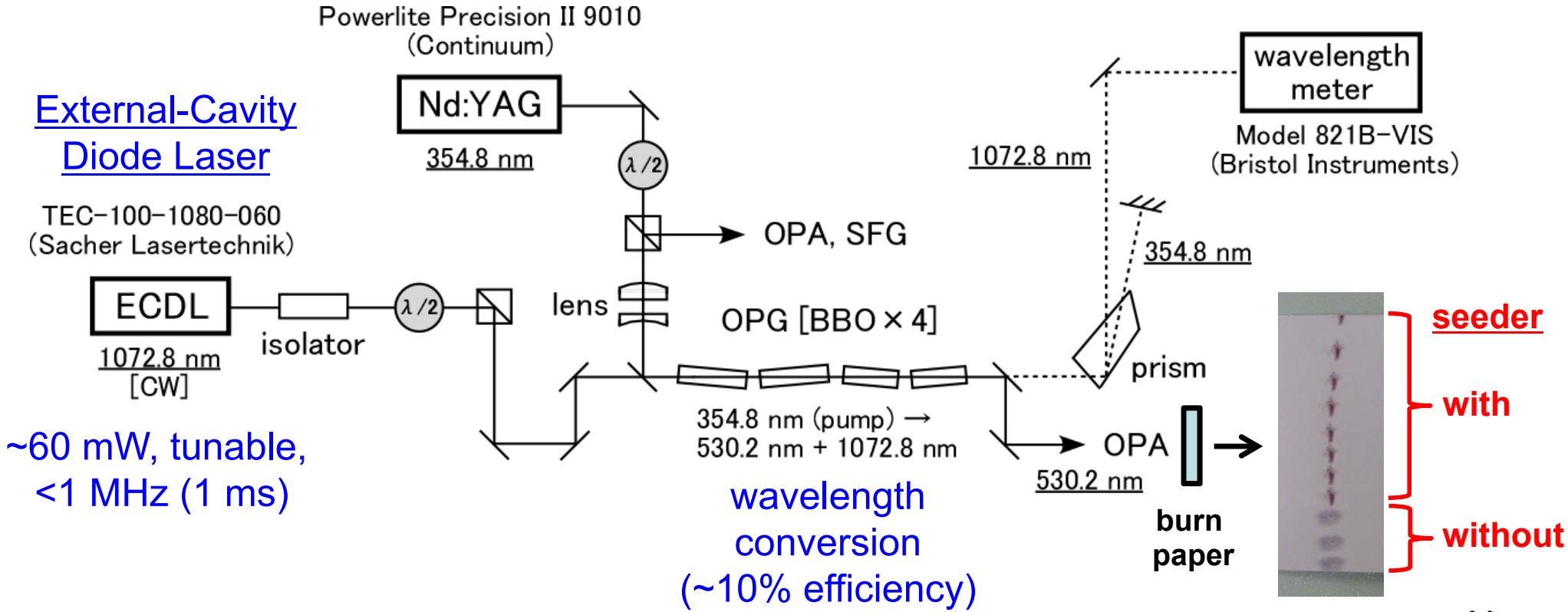
↓

3. SFG:
~10 mJ at 212.6 nm

OPG: Optical Parametric Generation
[354.8 nm → 530.2 nm + 1072.8 nm]
OPA: Optical Parametric Amplification
[354.8 nm → 530.2 nm + 1072.8 nm]
SFG: Sum Frequency Generation
[354.8 nm + 530.2 nm → 212.6 nm]

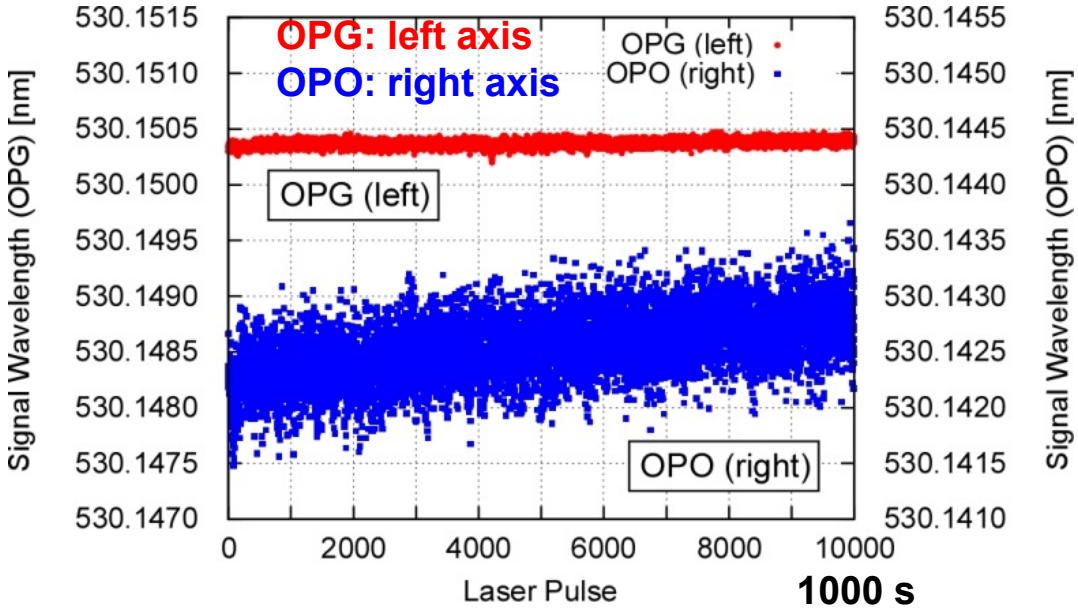
Optical Parametric Generation (OPG)

- 354.8 nm (~30 mJ, 5 ns) → 530.2 nm + 1072.8 nm
- Single-pass, ECDL (CW) used as a seed source
- ECDL fine-tuned to 1072.8 nm → 3-4 mJ at 530.2 nm

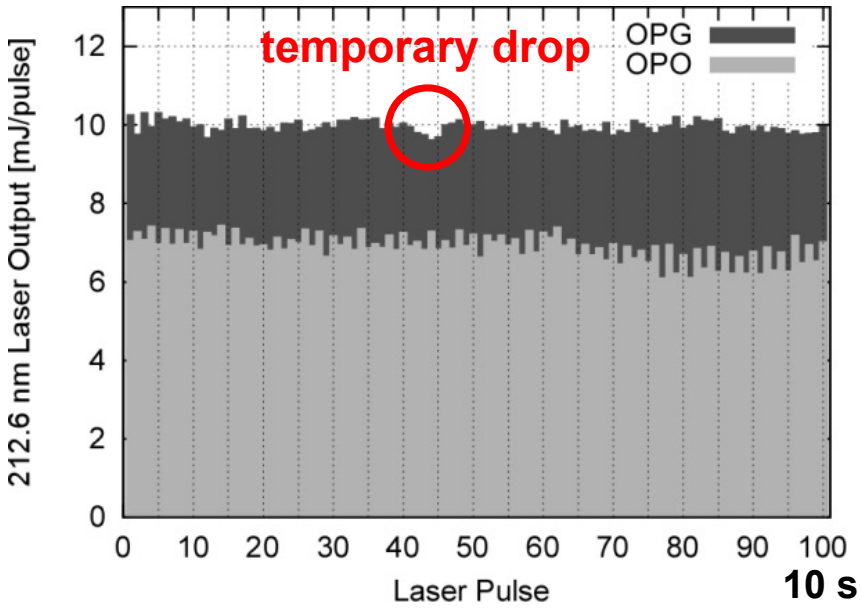


Wavelength and output stability

- Wavelength stability ~10^{-4} nm (~10^2 MHz) at 530 nm
  - Fourier-transform-limited linewidth ~90 MHz (5 ns pulse)
  - ~10^2 MHz stability expected for the SFG output at 212.6 nm
- Short-term output stability at 212.6 nm improved
  - Temperature control of the BBO crystal for further stability



wavelength stability (~530 nm)



output stability (212.6 nm)