

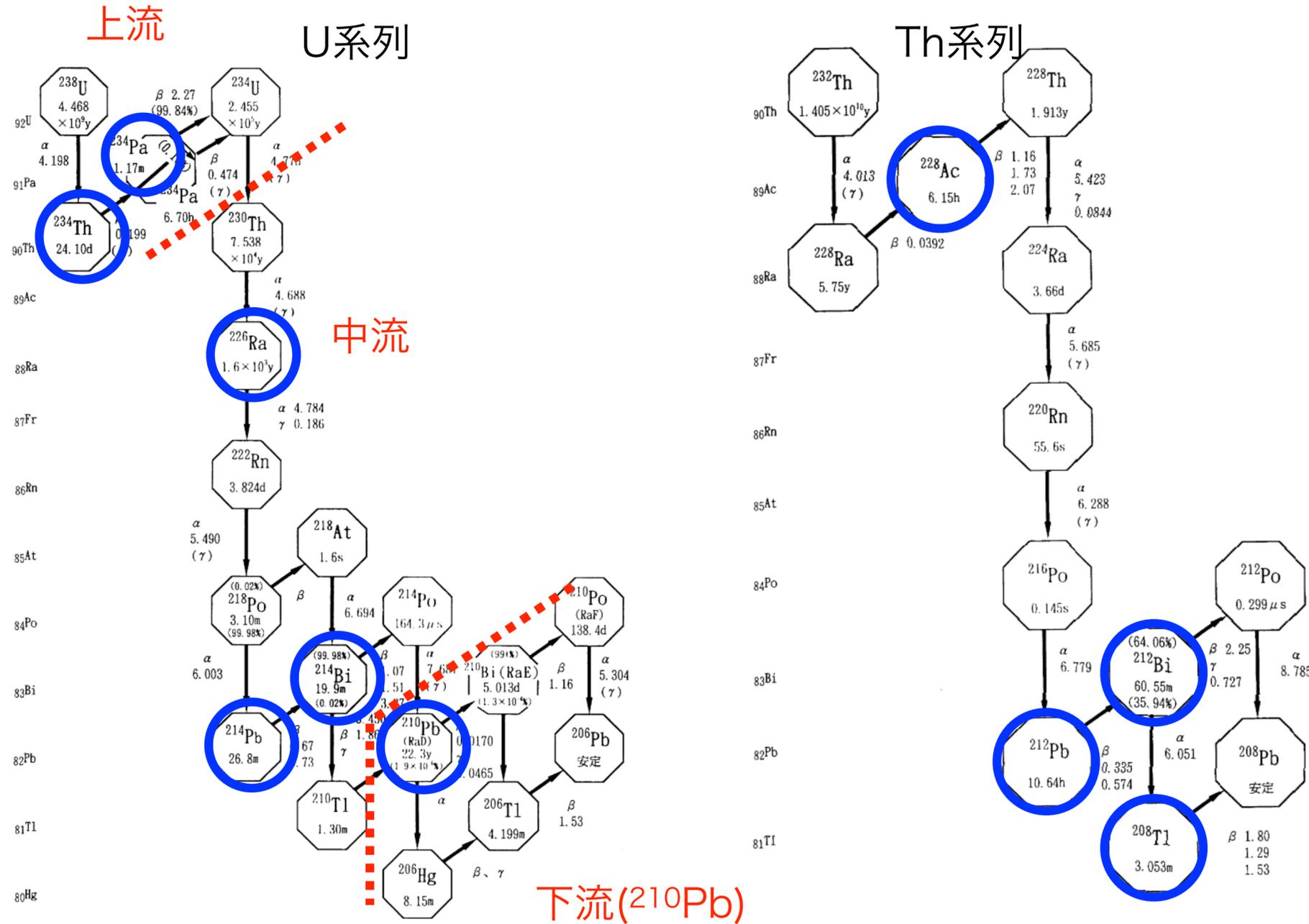
HPGe検出器

第六回極低放射能技術研究会

2020.06.04

- 話す内容：
 - 高純度ゲルマニウム(HPGe)検出器による測定のモチベーション
 - 神岡にあるHPGe検出器の紹介+アクティビティ
 - この1年間の測定@LabC
 - ディスク法によるRa測定の高感度化
 - 新HPGe検出器導入に向けた準備
 - データベースの現状
 - まとめ

HPGe検出器による測定のもちベーション



青○：GeでRI評価に使っているガンマ線を放出する核

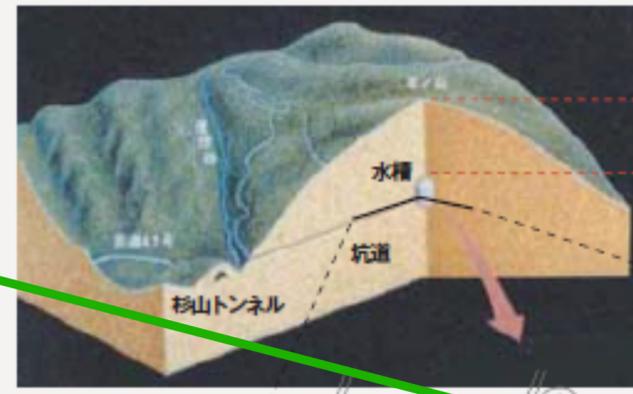
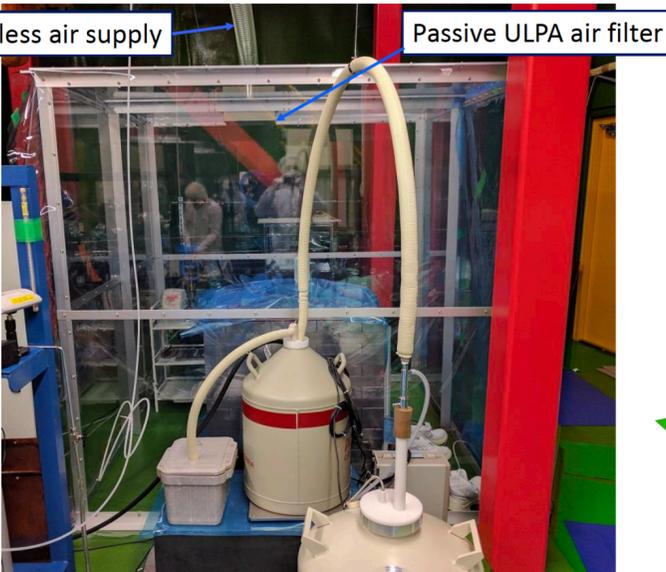
SK-Gdでの
硫酸ガドリニウム8水和物中の
RIの要求値
 ^{238}U : < 5 mBq/kg
 ^{232}Th : < 0.05 mBq/kg
 ^{226}Ra : < 0.5 mBq/kg

- HPGe検出器：Ge結晶内にエネルギーを落としたガンマ線を計測：O(1keV)の高分解能でRIの特定が容易
- 感度：試料によるがウラン中流の測定結果を基にウラン元素濃度を評価すると0.1 ppbとかのレベル：ICP-MS (pptとかppqのレベル)には負ける
- しかし放射平衡が崩れていることもよくある(U系列等)： ^{238}U 、 ^{232}Th 量で放射平衡を仮定して評価すると ^{226}Ra 、 ^{228}Ra が多い場合などを見落とすことも
- ➡ ICP-MSでは感度があまり出ない ^{226}Ra や ^{210}Pb などがGe検出器では高感度で定量出来る：ICP-MSとは相補的な関係
- ➡ ^{226}Ra 娘核のBGや ^{210}Po 起源の (α, n) 反応などを評価するにはGeによる測定も必要

神岡にあるHPGe検出器の紹介

@実験室A(そのうちIPMU実験室に)
同軸p型 相対効率 100%

Ge@東北大
同軸p型
相対効率 74%



東京大学宇宙線研究所
ICRR

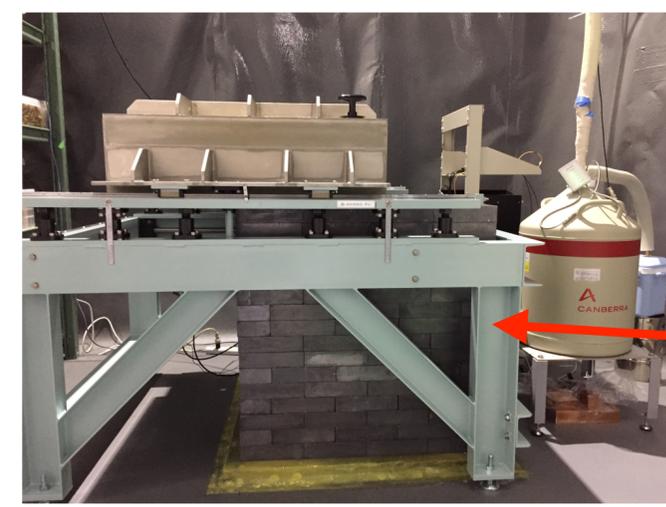
神岡宇宙素粒子研究施設
Kamioka Observatory

地下施設共同利用実験
Kamioka underground laboratory

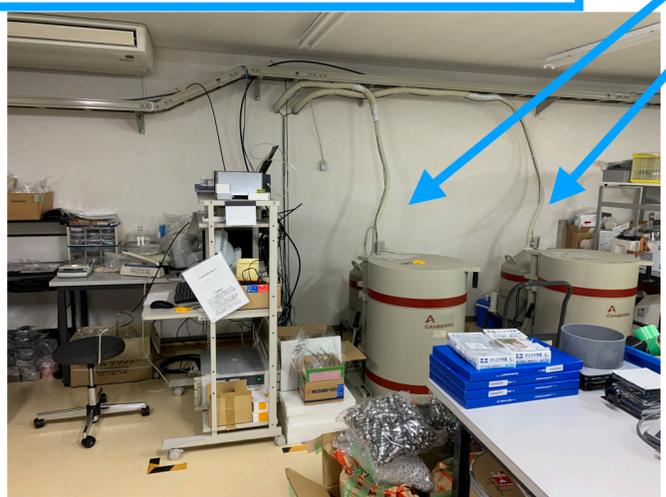
スーパーカミオカンデ
Super-Kamiokande
XMASS

CLIO
NEWAGE
CANDLES

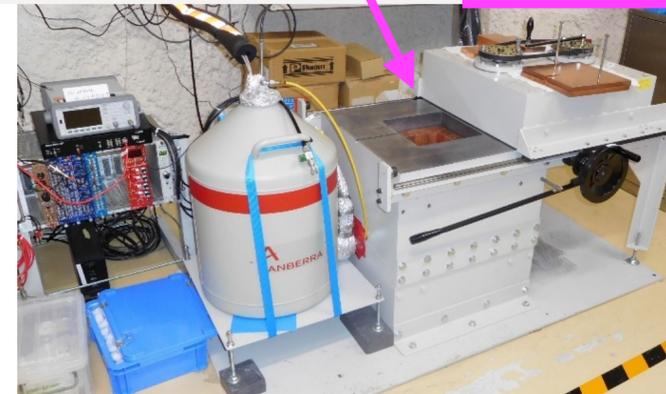
lowBG仕様 Ge@
実験室C
同軸p型
相対効率 80%



@IPMU実験室
同軸p(n)型 相対効率 120(100)%



阪大Ge@実験室D
同軸p型 相対効率 $\geq 50\%$



6台のHPGe検出器が様々な実験の
極低放射能化のため稼働中

神岡にあるHPGe検出器の性能やアクティビティ (阪大,A02班 CANDLES)

HPGe Detector and Shielding

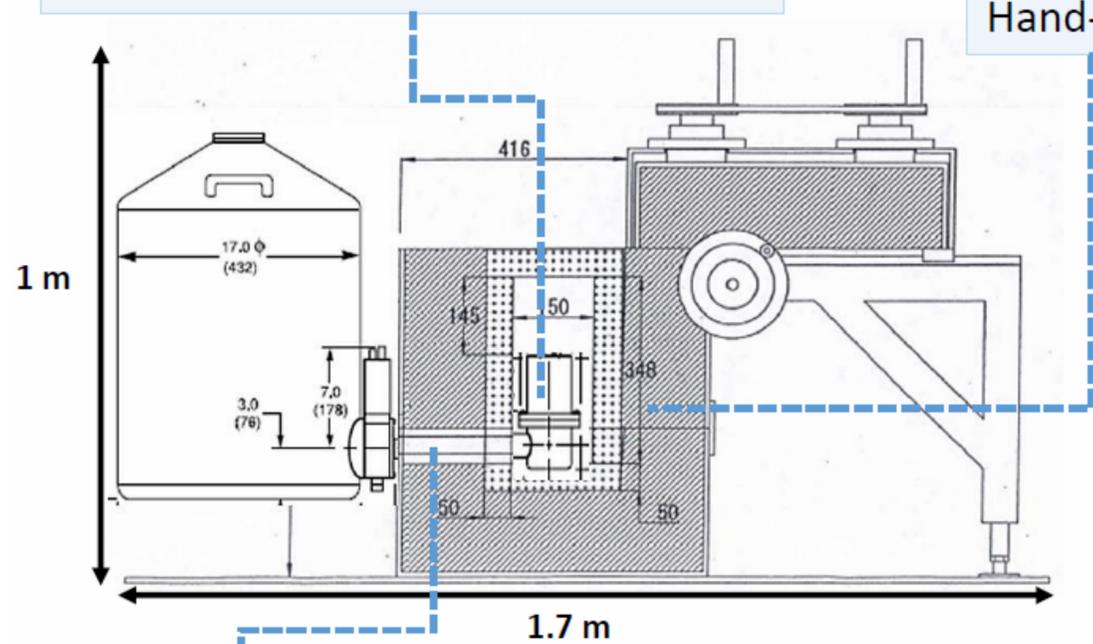
Environment (Kamioka, Japan)
2700 m.w.e. underground

HPGe detector

SEGe, p-type coaxial, CANBERRA Inc.
End cap diameter: 83mm
Crystal diameter: 65 mm
Relative efficiency $\geq 50\%$

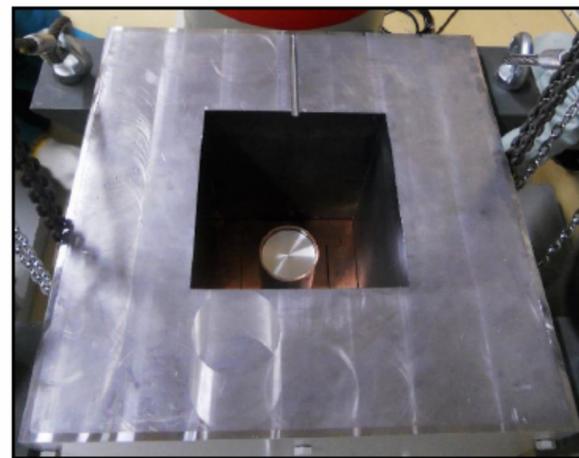
Shielding

Inner 50 mm copper shield (Zigzag design)
Outer 150 mm lead shield (Hermetic)
Hand-driven rail to access chamber



Radon Reduction

Constant flow of LN₂ boil-off



- 梅原さんに貰った資料より
- サンプルスペース：15 x 15 x 15 cm
- 遮蔽体：タングステン + 5 cmの銅と15 cmの鉛
- 測定しているもの：CaF₂の粉末、結晶モジュール周りの素材、アルミニウム、遮蔽体候補部材など

サンプル測定時の写真



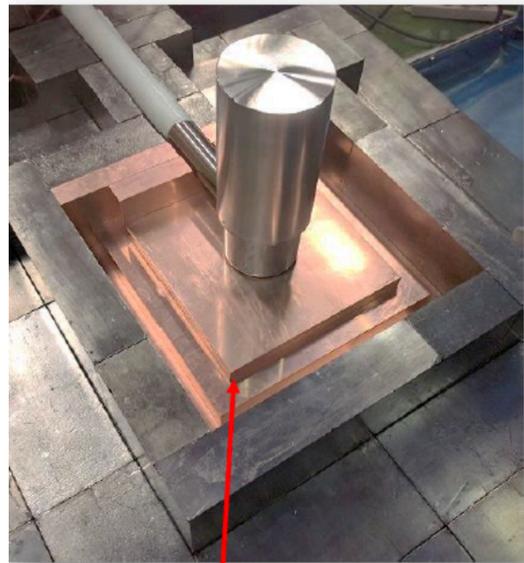
神岡にあるHPGe検出器の性能やアクティビティ (東北大)

The HPGe detector's details

- Coaxial p-type: 74% relative efficiency (Canberra U.S.A.);
- The U-type cryostat;
- Remote preamplifier electronics;
- A 130mm longer than standard cooling line;
- The detector end cup made of certified **99.9995%** pure aluminium (<0.35ppb of **U** & <0.35ppb of **Th** & <0.1ppm of **K**);
- Analog NIM-type DAQ;
- Delivered on Feb 7th 2014;
- In April 2016, construction of a permanent shielding was started.

- Kozlovの資料(LBGT2017)+竹本くんに貰った写真
- サンプルスペース : 20 x 20 x 20 cm
- 遮蔽体 : 5cm OFHC銅、25 cm 鉛(Chile, high purity German, old US lead)
- 測定しているもの : PICOLONで用いるNaIやPMTなど

Lower part of the Cu shielding



+1.5cm
3 OFHC Cu sheets
(20x20x0.5cm)



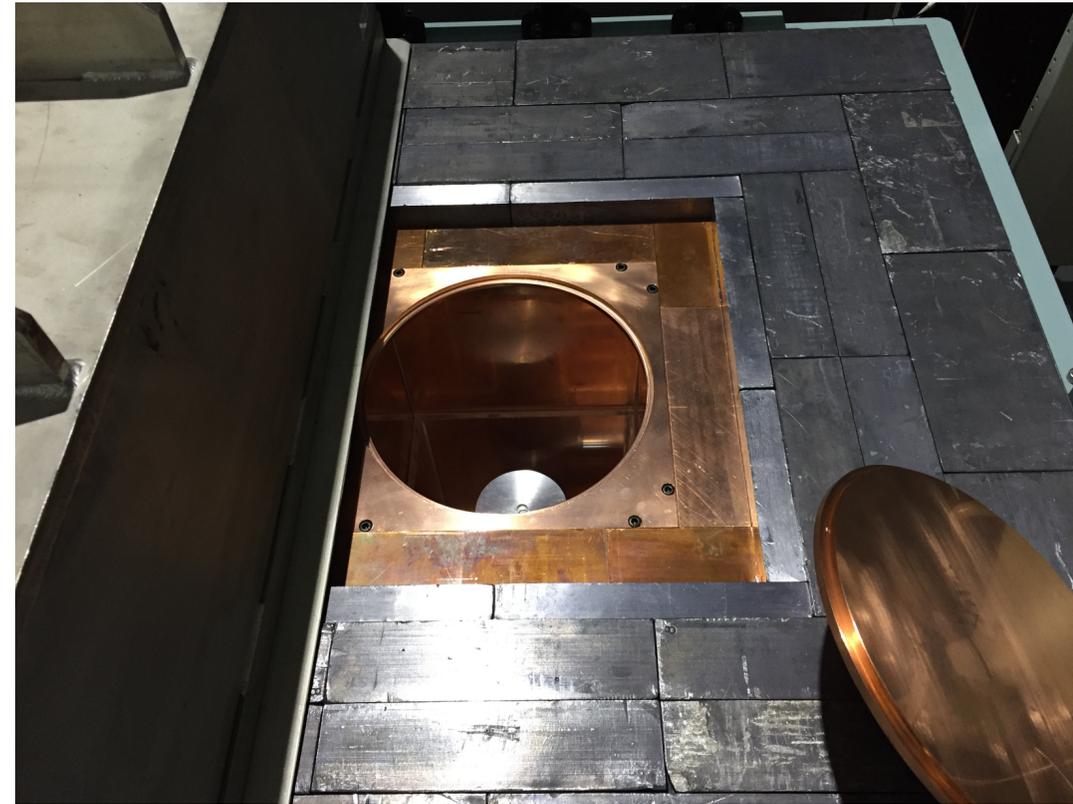
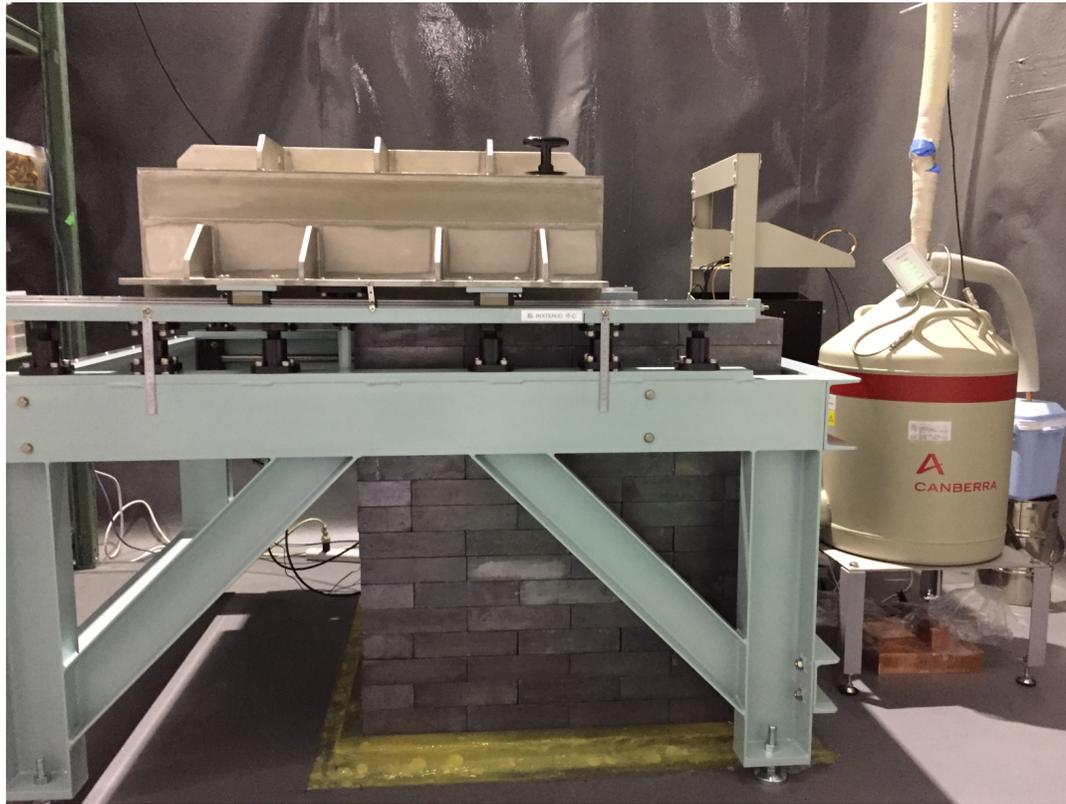
Old lead
high purity lead
Chile low BG lead

A 5cm-thick old US OFHC Cu



PMTを測定している写真

神岡にあるHPGe検出器の性能やアクティビティ(東大LabC)

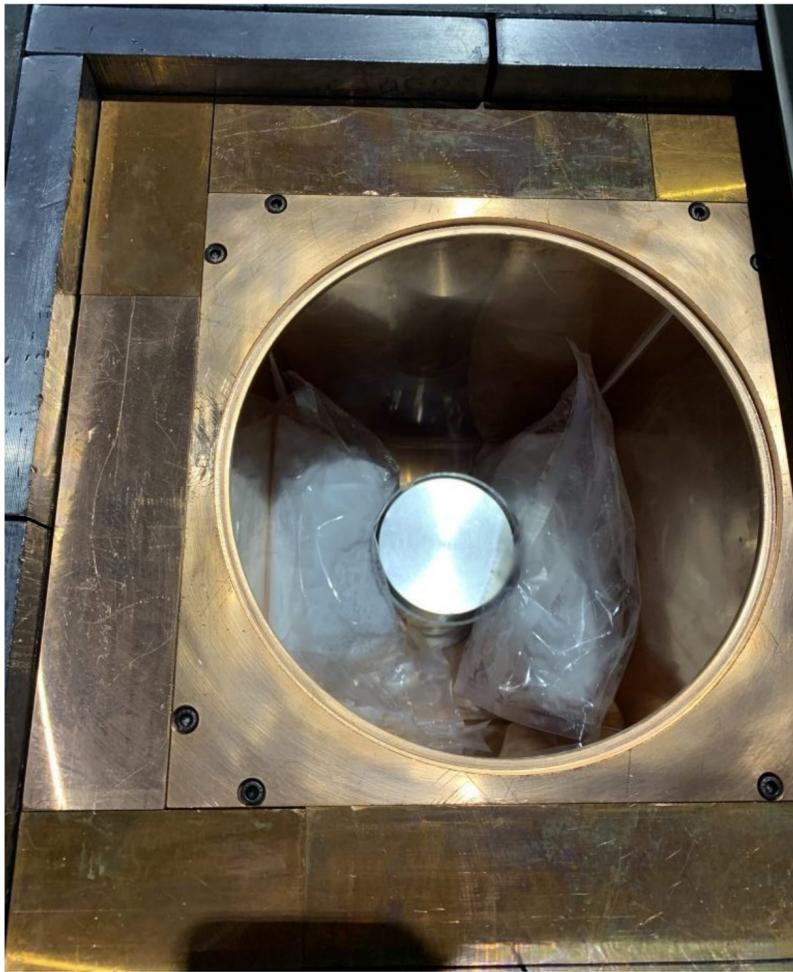


- キャンベラ(現ミリオンテクノロジーズ)・フランス製
- P型、相対効率80%、低放射能仕様
- 1cmの6N grade銅、5cmの銅、2.5cmの極低²¹⁰Pb (~5Bq/kg)鉛、20cmの低²¹⁰Pb (~140Bq/kg)鉛
➡6N銅とか遮蔽体開閉機構は前回の新学術の連携の成果
- サンプルスペース：Ge検出器の上部：23 x 23 x 19.5 cm = 10,315 cm³
- Ge検出器の側面：23 x 23 x 15 - $\pi(5 \times 5) \times 15 = 6,757$ cm³　：側面の領域も有効利用
- 昨年からは主にC班SK-Gdで用いる硫酸ガドリニウムを中心に測定(後述)
- 他に活性炭(<https://arxiv.org/pdf/2003.11705.pdf>)なども

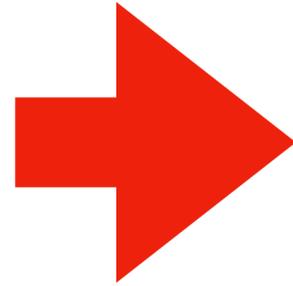
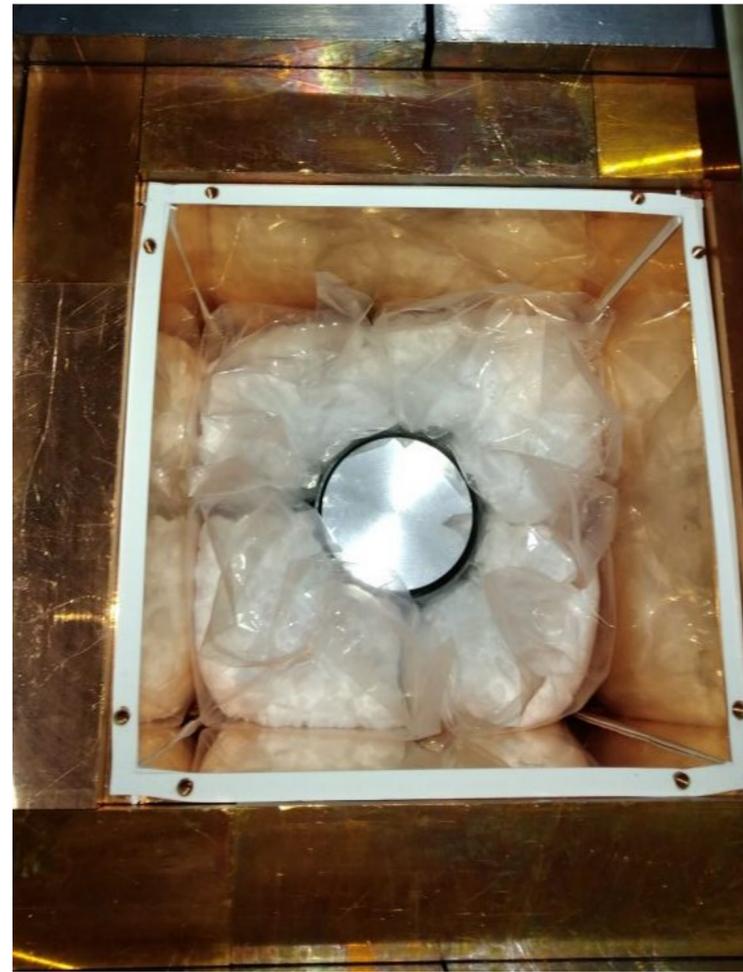
この1年の主な測定@LabC

この1年の主な測定@LabC

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)



ディスク法（後述）を用いた $^{226,228}\text{Ra}$ に特化した測定



伊藤博士くん（宇宙線研）の頑張りでこれまでの2倍の試料を同時測定出来るようになり、感度も向上

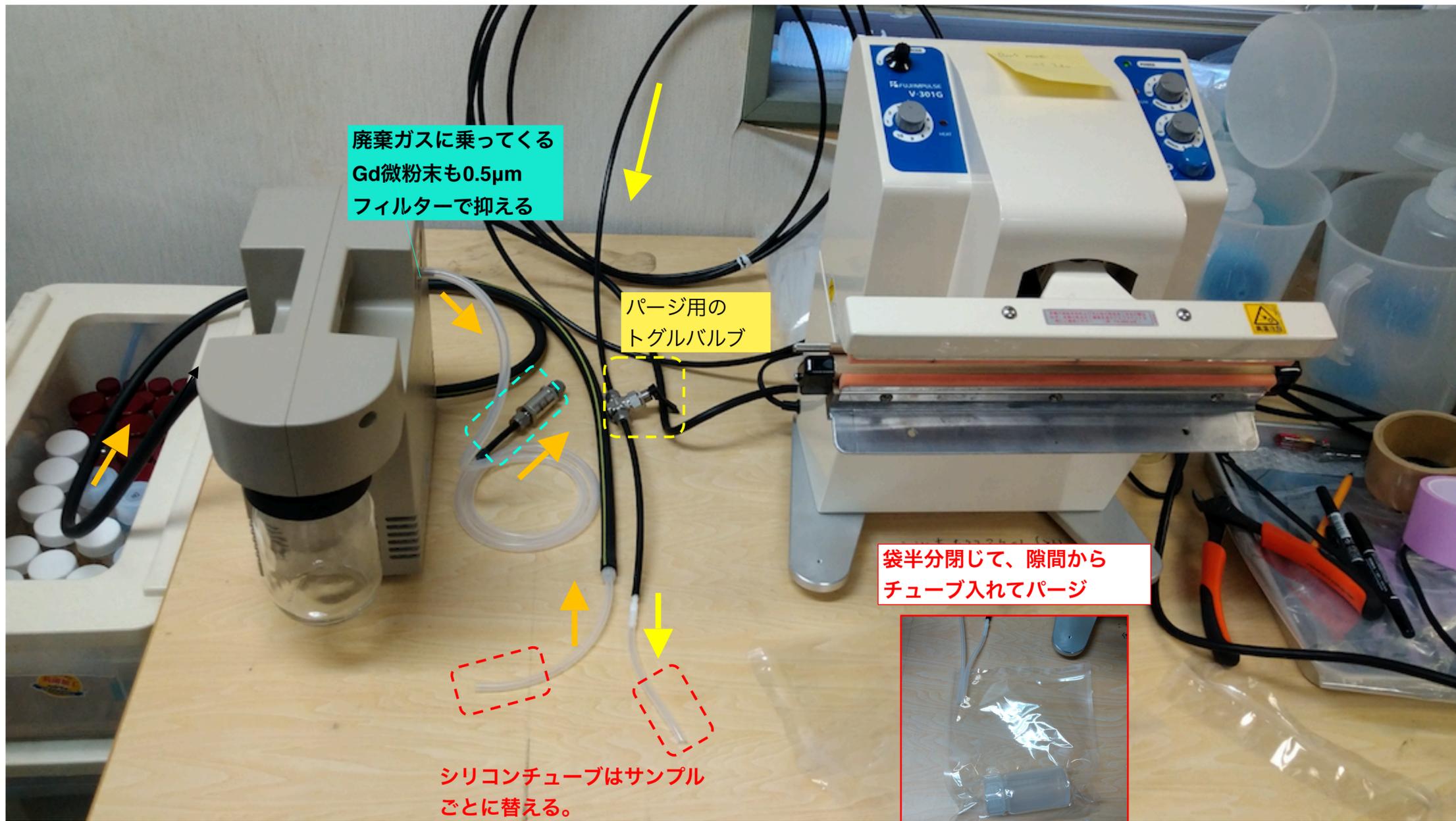
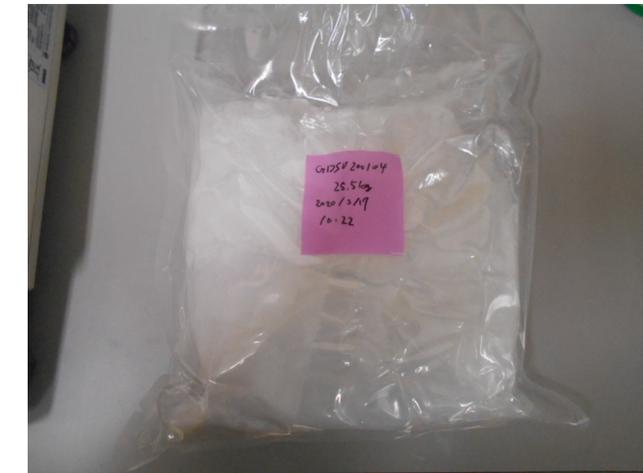
- LabCのHPGeではこれまで硫酸ガドリニウム11ロット分の直接測定と6ロット分のディスクによるRa濃縮サンプル測定を行った

硫酸ガドリニウム測定準備の改善

純空気ボンベ



袋詰めした測定用サンプル

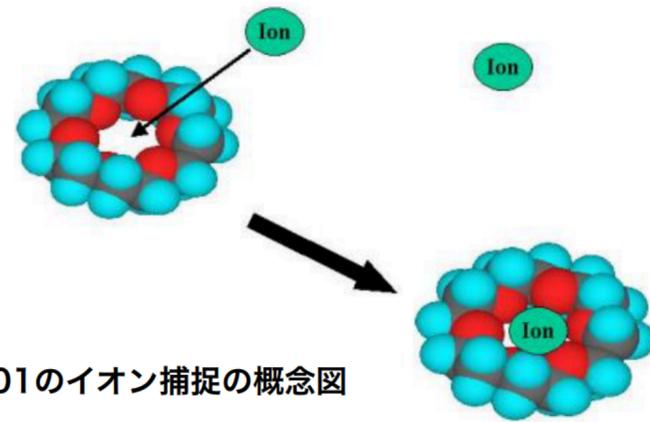
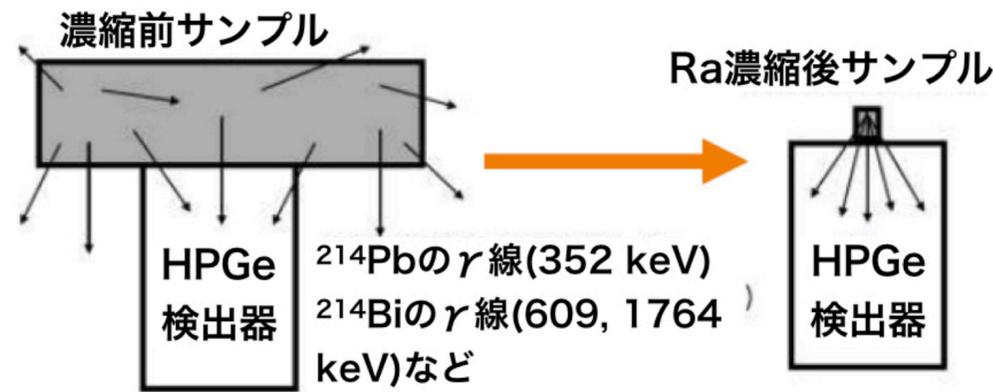


- これまで：測定用サンプルを作るときに環境中のラドンが入る
- 1~数週間ラドンの壊変を待つ必要がある：タイムロス
- **伊藤博士くんが純空気でパージするシステムを構築：サンプル作成後タイムロス無く測定に移れるようになった**
- **空気を抜くことによって10kgのサンプルを容易にサンプルスペースに詰められるようになった**

ディスク (Ra Empore Disk) を用いたRa測定の高感度化

- 同じRI量だったら化学分離(濃縮)して容積を小さくしたほうが高感度、短時間で測定出来る
- 試料をGe検出器に近付けて検出効率上がる(Ge検出器からサンプル台上まで9mm)：ディスク(~2g)だとHPGe検出器のエンドキャップに直接置ける
- Raを吸着する樹脂 (Analig-Ra01)が埋め込まれたRa Empore diskを用い、硫酸ガドリニウム水溶液からRaが吸着出来るのかを調べている

ディスク製作後、 ^{226}Ra の壊変を待って
娘核の ^{214}Pb , ^{214}Bi の γ 線を測定



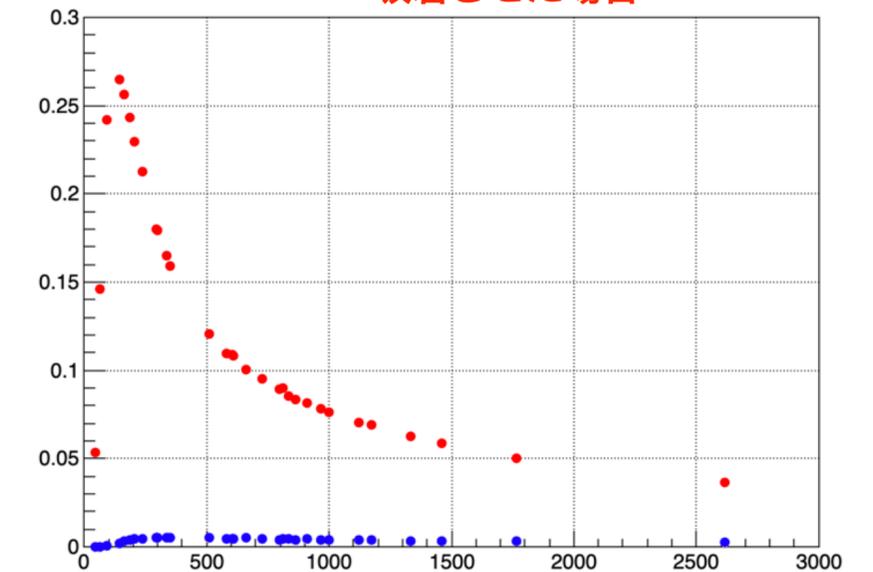
AnaLig-Ra01のイオン捕捉の概念図

特定のイオン半径(今だとRaとかBa)を持つイオンを
吸着する”分子認識樹脂”



EVOHシートに入れた
Ra吸着ディスクを直接
エンドキャップの上に置
ける

硫酸ガドリニウム8kgを直接測定(サンプル台上に配置)
φ47mm、厚さ0.5mmのディスクに
吸着させた場合



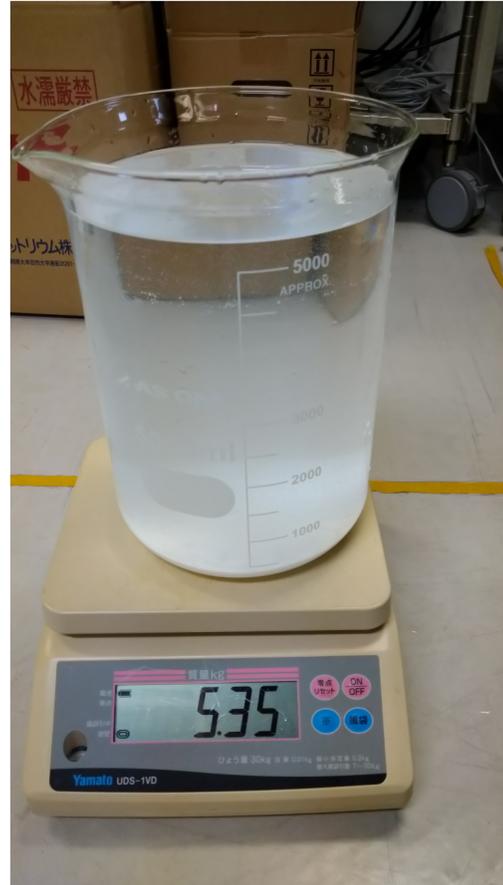
352 keV(^{214}Pb) 0.5%→16%,
609 keV(^{214}Bi) 0.5% → 10.8% 等

RaのEmpore diskへの吸着

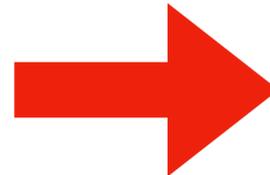
セットアップ全体像

上から見た図

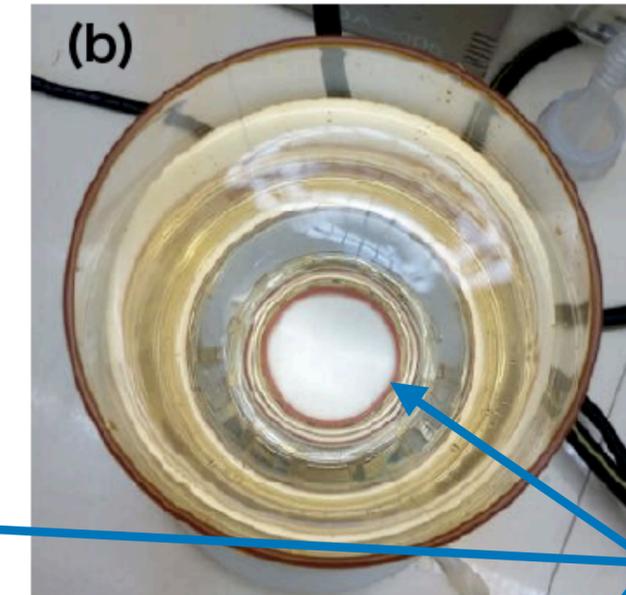
硫酸ガドリニウム水溶液
硫酸ガドリニウム 250 g
MilliQ水 5 kg
EL グレード硝酸 100 g
(0.2 mol/L)
を2セット



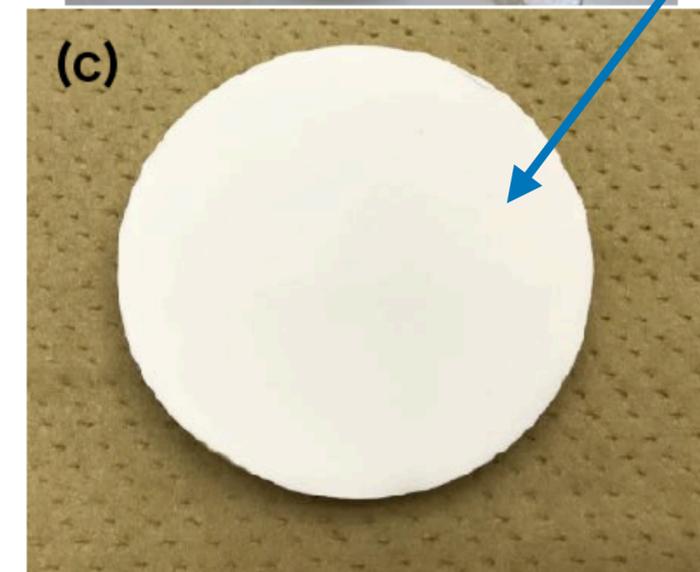
通液



吸引
ろ過



洗浄済みディスク

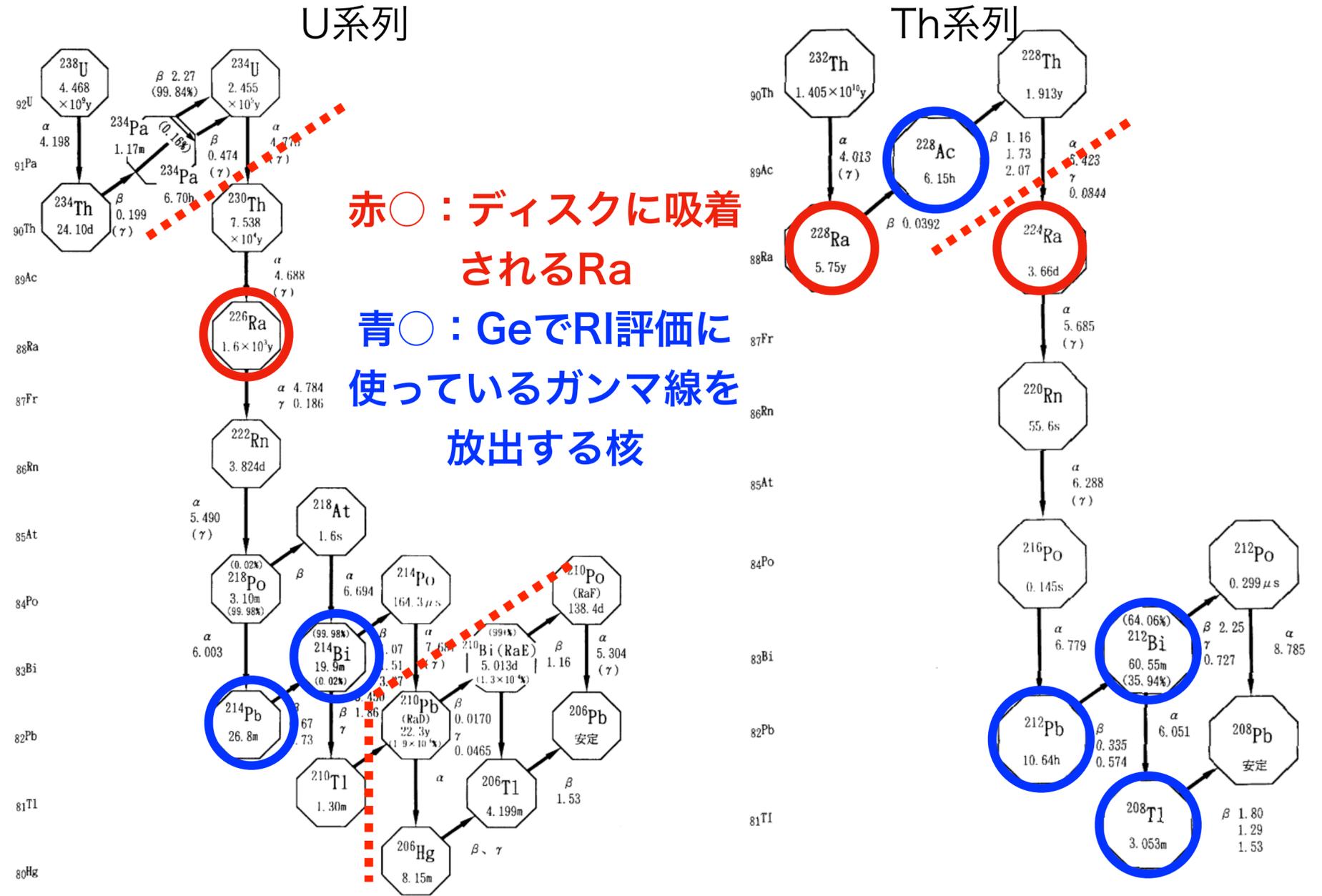


通液終了後はディスクを3 mol/L 硝酸100 ml, およびMilliQ水 100 mLで洗浄し、EVOH(エチレンビニルアルコール)袋で密封

RaのEmpore diskへの吸着

ディスク作成から2週間程度時間をおき、 ^{226}Ra と ^{214}Pb , ^{214}Bi が放射平衡になるのを待ってHPGe検出器での測定を行う

U系列の ^{226}Ra とTh系列の ^{228}Ra の量を調べることが出来る



^{224}Ra ：吸着していると思われるが、測定を始めるまでの2週間の間に壊変するためHPGe検出器では観測されない：ディスク作成してすぐ測定してみる

Ac系列の ^{223}Ra (半減期11.4日)も吸着していると思われるので、娘核の ^{219}Rn (401.81 keV γ , BR 6.37%)、 ^{211}Pb (832 keV γ , BG 3.52%)等を用いた分析が出来るかも

川北温泉水を用いたlow Raサンプルでの検証

U系列²²⁶Ra

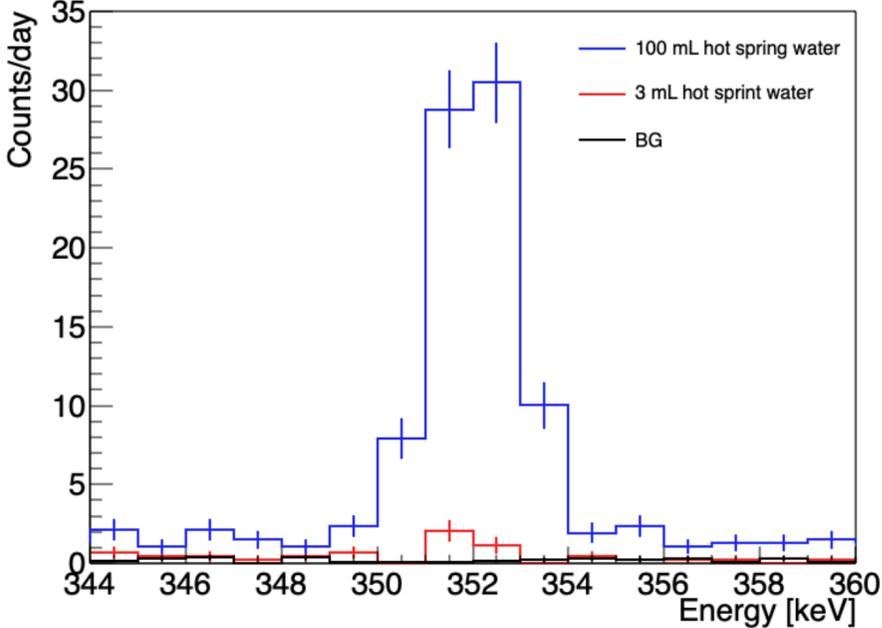
川北温泉水(石川県) : Raを豊富に含む水

²²⁶Ra : 112^{+34}_{-12} mBq/l (統計誤差+系統誤差)

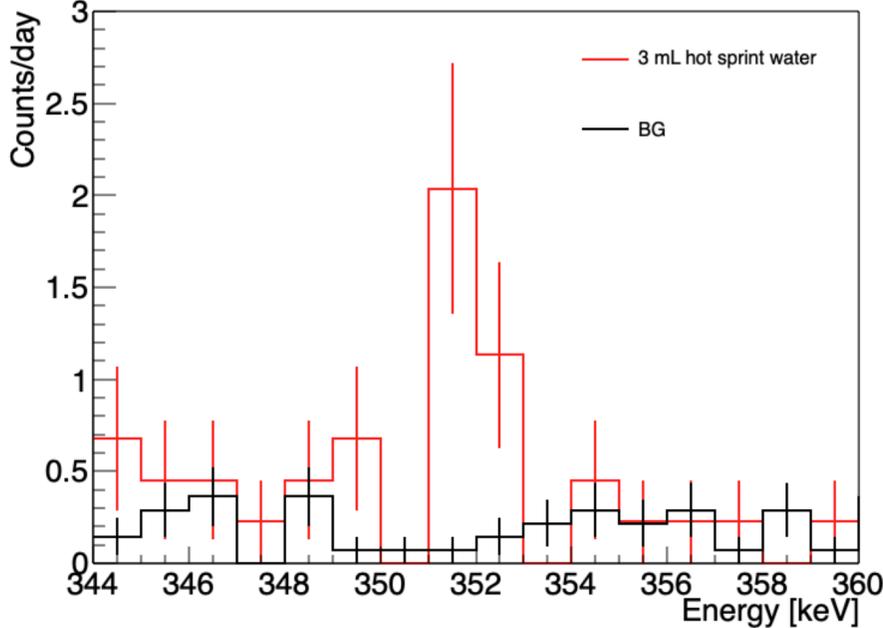
これを3 ml (100 ml)含んだ高純度硫酸ガドリニウム水溶液5%

10 リットルをディスクに通液・HPGe検出器で測定

352 keV : ²¹⁴Pb(BR 37.6%)



左の図の拡大



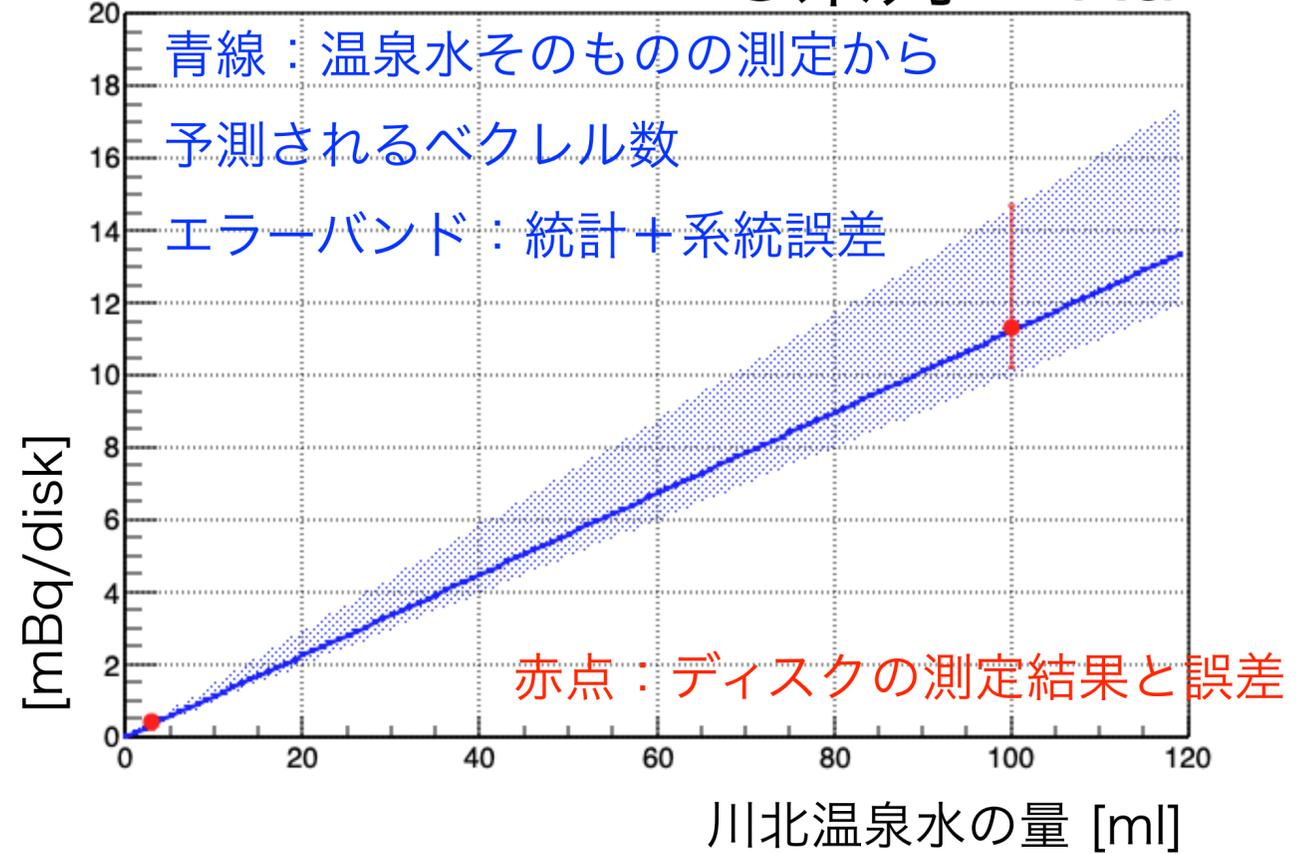
青 : 100ml : (4.7日の測定)

赤 : 3 ml : (4.5日の測定) これでもBGからは有意なexcessが見える

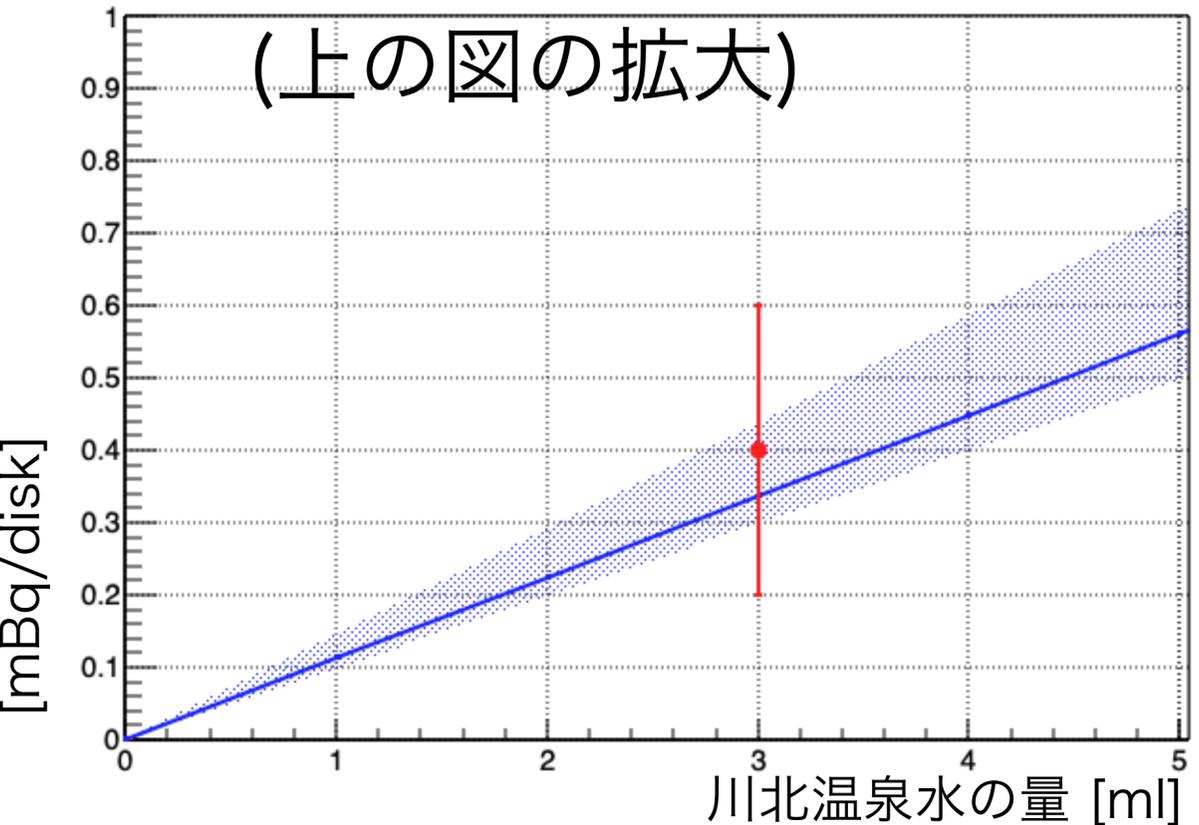
黒 : BGデータ

測定結果は予想値と一致
0.3 mBq/diskでも2σでexcessが見える

ディスクのHPGeでの測定結果



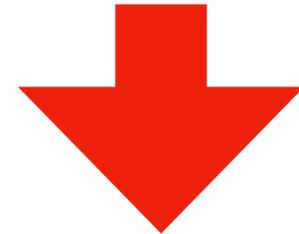
ディスクのHPGeでの測定結果



川北温泉水を用いたlow Raサンプルでの検証

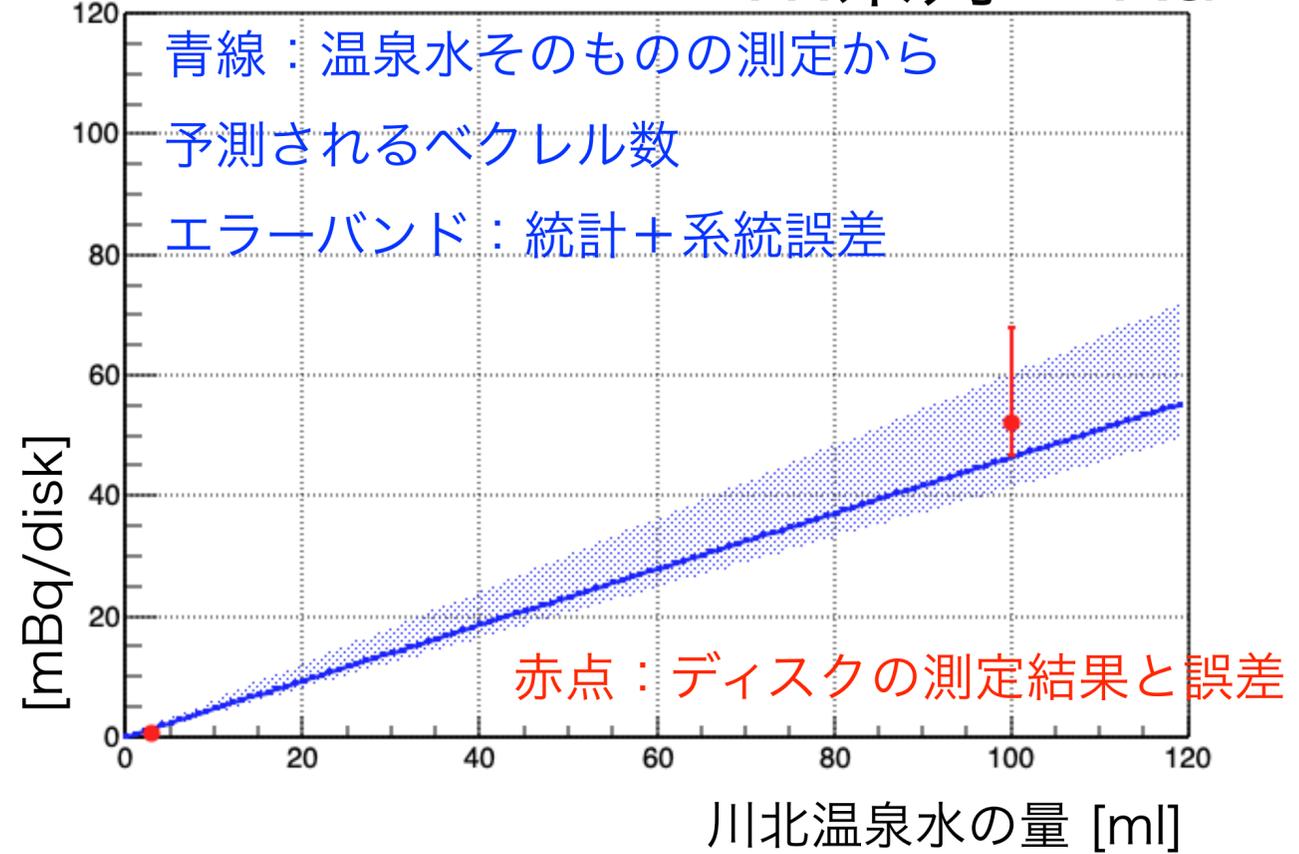
Th系列²²⁸Ra

Th系列でもディスクの測定は予想値とほぼ一致

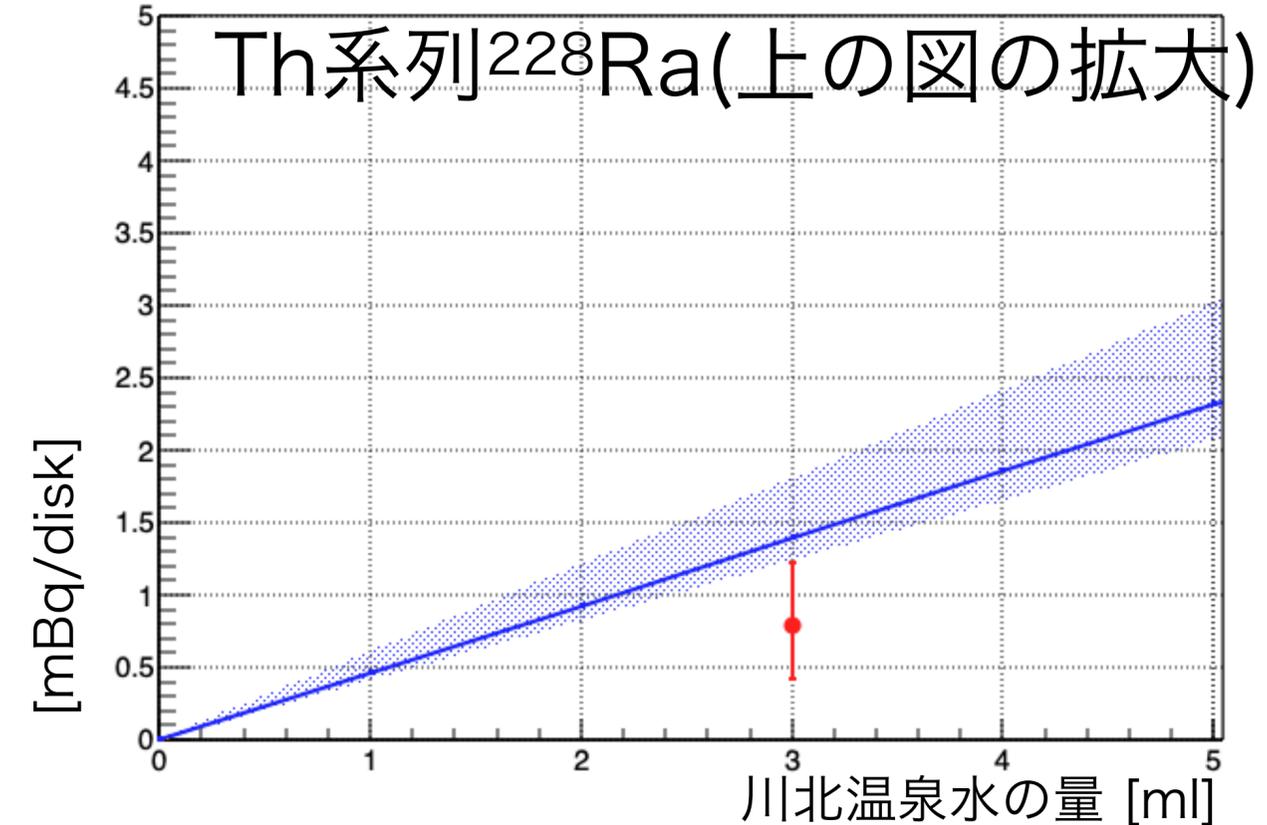


硫酸ガドリニウム5%という濃い溶液でもRaはディスクに吸着し
low BG HPGe検出器と組み合わせることで
1週間に満たない測定時間で0.3 mBqレベルの測定が可能なが示された

ディスクのHPGeでの測定結果



ディスクのHPGeでの測定結果



これまでの濃縮法からの改善点など

	これまでの方法 (スターラー+Analig-Ra 樹脂) PTEP : 091H01 (2018)	今回の方法 (ディスクで吸引る過)
試料作製(=濃縮)にかかる時間	1時間で1リットル	1時間で3リットル
回収率 = どれくらいRaが樹脂に吸着したか イオン半径の近いBaを添加し吸着させて、その後分離しICP-MSで測定して評価	81±4%	> 99.9%

ディスクによる吸引る過法：

速くてRaがより吸着する

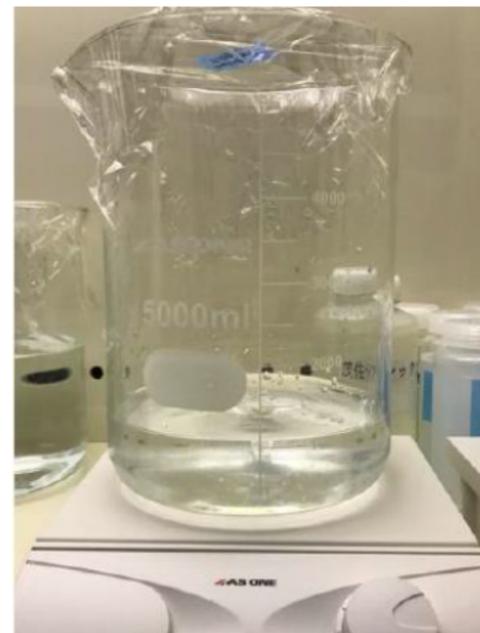
初心者でも出来るほどプロセスは簡単

実際にSK-Gdで用いる予定の500 g 硫酸ガドリニウムを溶かした溶液(10リットル)の測定では、大体1~2週間の測定で< 0.5 mBq/kgの目標感度に到達した測定が出来ている。

ディスクの枚数を増やしたり、通液量を増やせばまだまだ感度は上げることが出来る

硫酸ガドリニウム水溶液に
AnaLig-Ra樹脂を添加して
スターラーで攪拌、吸着

吸着させた樹脂



論文もうすぐ投稿予定

新HPGe検出器導入に向けた準備

現在神岡LabCにあるGe検出器



- 今年度末頃 新極低BG HPGe検出器を導入出来るように手続き中
- LabCにあるものと同レベルの性能（相対効率、分解能）
- BGLレベルはより改善すると期待
- 来年度以降はSK-Gdで用いる硫酸ガドリニウムのスクリーニング速度が倍速（以上）に
- コロナ禍が一段落したら設置に向けた準備を始める(LabCの予定)

データベース(1)：現状(試運転)

http://133.11.143.254:5984/db_test/_design/persephone/index.html：宇宙線研サーバー：神岡VPNへの接続が必要

https://lowbgdb.lowbg.org/couchdb/couchdb/_design/persephone/index.html：ミラーサイト@東北大

(アカデミックサーバーからで、現在はパスワードも必要：お問い合わせ下さい)

The screenshot shows the Persephone Material Assay Database interface. At the top, there is a navigation bar with tabs for Search, Submit, Edit, Settings, Info, Environment, and Login. Below the navigation bar, there is a search bar containing the text 'ALL'. To the right of the search bar are buttons for 'Download all' and a refresh icon. Below the search bar, there is a message: 'Please read through "Info"-tag above before you use this database. Please refer this database (and original publications) when you use some numbers in this database. J. Phys. Conf. Ser. 888, 012211 (2017)/AIP Conf. Proc. 1921, 040002 (2018)'. Below the message, there is a group selection dropdown showing 'Group: XMASS, KAMLAND, NEWAGE, CANDLES'. Below the group selection, there is a material selection dropdown showing 'Material: PMT, BOLT, SUS, Cu'. Below the material selection, there is a search filter dropdown showing '検索したワード = ALL'. Below the search filter, there is a 'Total results: 226' label. Below the search filter, there is a table with columns: Grouping, Name, Isotope, Amount, Isotope, Amount. The table contains 18 rows of data, each with a 'x' button in the last column.

Grouping	Name	Isotope	Amount	Isotope	Amount
▶ CANDLES	Al Myler Sample A	Th-232	0.057 Bq/kg		...
▶ KamLAND	1401 30um (Toray Recycled Ny)			U	7e-11 g/g
▶ KamLAND	1401S 30um (Toray Unrecycled Ny)			U	6e-11 g/g
▶ KamLAND	Acrylic	Th	5e-11 g/g	U	8e-12 g/g
▶ KamLAND	Acrylic (Black)	Th	4.7e-11 g/g	U	4.1e-11 g/g
▶ KamLAND	AD76P1			U	1e-11 g/g
▶ KamLAND	Aron Alpha 201 adhesives	Th	5e-12 g/g	U	5e-12 g/g
▶ KamLAND	Aron Alpha 202 adhesives	Th	5e-12 g/g	U	5e-12 g/g
▶ KamLAND	Balloon glue	Th	2.3e-9 g/g	U	1.4e-9 g/g
▶ KamLAND	BHT	Th	5e-11 g/g	U	6e-12 g/g
▶ KamLAND	bis-MSB	Th	6e-11 g/g	U	4.8e-11 g/g
▶ KamLAND	BisMSB(Dojin)	Th	1e-10 g/g	U	2e-10 g/g
▶ KamLAND	Black Cable guide	Th	9e-9 g/g	U	4e-9 g/g
▶ KamLAND	Cables (teflon)	Th	5e-9 - 3e-8 g/g	U	1e-9 g/g
▶ KamLAND	Carbon fiber	Th	7e-12 g/g	U	2.4e-9 g/g
▶ KamLAND	Carbon fiber	Th	5e-9 g/g	U	8e-9 g/g
▶ KamLAND	Carbon fiber	Th	4e-9 g/g	U	1.9e-8 g/g

宇宙線研サーバーで427サンプルの情報

XMASS : 125

KamLAND : 207

NEWAGE : 10

CANDLES : 85

今 東北大サーバーで226

(お試しで置けるものを置いている。)

データベース：現状の問題点@東北大ミラーサイトとto do

- ①検索エンジンが未実装→神岡サーバーと同様の機能実装を目指す
- ②download allボタンを押すとexcelファイルが出る筈がエラーが出る (JAVA未実装)→表示項目DL機能を実装する
- ③chromeでログインを毎回聞かれる→推奨ブラウザはchrome以外(firefox, safari, opera etc.)

The image shows a screenshot of the Persephone Material Assay Database website. On the left, the search results page is visible, with a red arrow pointing from the 'bis-MSB' entry in the table to a magnified view on the right. The magnified view shows the detailed information for the 'bis-MSB' sample, including its description, measurement results, and data entry information. A red circle highlights the magnifying glass icon in the top right corner of the magnified view, with a red arrow pointing to it from the text '虫眼鏡ボタンをクリック' (Click the magnifying glass button).

Persephone
Material Assay Database

Search Submit Edit Settings Info Environment Login

Please read through "Info"-tag above before you use this database.
Please refer this database (and original publications) when you use the numbers in this database.
J. Phys. Conf. Ser. 888, 012211 (2017)/AIP Conf. Proc. 1921, 04000 (2018)

ALL Download all

Group: XMASS, KAMLAND, NEWAGE, CANDLES

Material: PMT, BOLT, SUS, Cu
検索したワード = ALL
Total results: 226

Grouping	Name	Isotope	Amount	Isotope	Amount
CANDLES	Al Myler Sample A	Th-232	0.057 Bq/kg		
KamLAND	1401 30um (Toray Recycled Ny)			U	7e-11 g/g
KamLAND	1401S 30um (Toray Unrecycled Ny)			U	6e-11 g/g
KamLAND	Acrylic	Th	5e-11 g/g	U	8e-12 g/g
KamLAND	Acrylic (Black)		4.7e-11 g/g	U	4.1e-11 g/g
KamLAND	AD76P1			U	1e-11 g/g
KamLAND	Aron Alpha 201 adhesives	Th	5e-12 g/g	U	5e-12 g/g
KamLAND	Aron Alpha 202 adhesives	Th	5e-12 g/g	U	5e-12 g/g
KamLAND	Balloon glue	Th	2.3e-9 g/g	U	1.4e-9 g/g
KamLAND	BHT	Th	5e-11 g/g	U	6e-12 g/g
KamLAND	bis-MSB	Th	6e-11 g/g	U	4.8e-11 g/g
KamLAND	BisMSB(Dojin)	Th	1e-10 g/g	U	2e-10 g/g
KamLAND	Black Cable guide	Th	9e-9 g/g	U	4e-9 g/g
KamLAND	Cables (teflon)	Th	5e-9 - 3e-8 g/g	U	1e-9 g/g
KamLAND	Carbon fiber	Th	7e-12 g/g	U	2.4e-9 g/g
KamLAND	Carbon fiber	Th	5e-9 g/g	U	8e-9 g/g
KamLAND	Carbon fiber	Th	4e-9 g/g	U	1.9e-8 g/g

bis-MSBをクリック

Sample	Description	Feb/1999
Measurement	Results	U 4.8e-11 g/g Th 6e-11 g/g K-40 6.8e-12 g/g

虫眼鏡ボタンをクリック

Sample	Description	Feb/1999
Measurement	Results	U 4.8e-11 g/g Th 6e-11 g/g K-40 6.8e-12 g/g
	Institution	Japan Energy
	Technique	ICP-MS
	Date	
Data	Reference	Provided by KamLAND collaboration
	Data entry	Y. Nakano ynakano@phys.sci.kobe-u.ac.jp on 2017-03-18 spec v3.00

- 1.情報を充実（製造業者、測定時の写真 + エネルギースペクトルetc.）：クリックだけで詳細情報出るように等も
- 2.上記の機能の実装
- 3.公開したくないけど残して置きたい情報の取り扱い：パスワードロックとかアカウントの権限とか、とりあえず上2つが終わったら
→公開できる情報だけで、機能を拡充して今年度中に運用開始を目指す (市村、伊藤博士さん、中野さん、玉江さんあたり or ポスドク)

まとめ

- 神岡では6台のHPGe検出器がスクリーニングの目的で活用中
 - 試料作成方法の改善による高感度化
- Raの高感度測定法として、Emporeディスクを用いた濃縮法を用いた測定
- ^{226}Ra で0.3 mBq/diskのレベルの高感度測定を達成
- 実際にC班の硫酸ガドリニウム測定に応用
- 新HPGe検出器導入に向けた準備も
- 測定結果をまとめるデータベース
 - 200を超えるサンプルの情報が記載
 - デバッグ終了後に公開予定（本年度中）