

表面アルファ線検出器

2020年6月04日

早稲田大 小林兼好

第六回極低放射能技術研究会

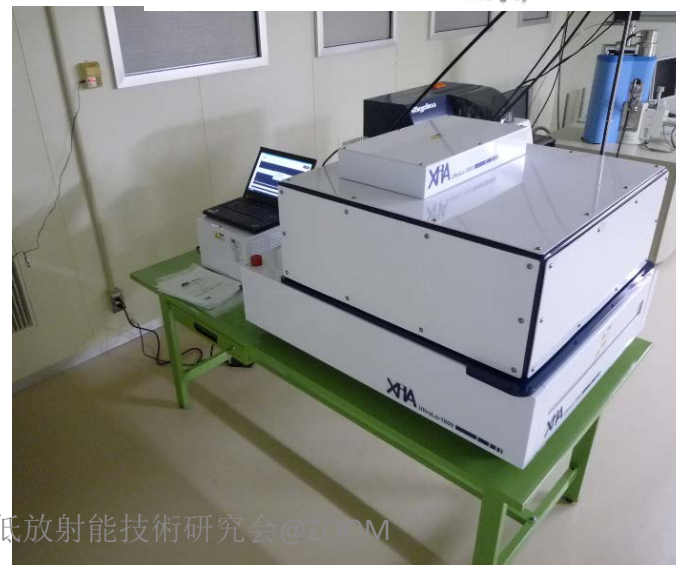
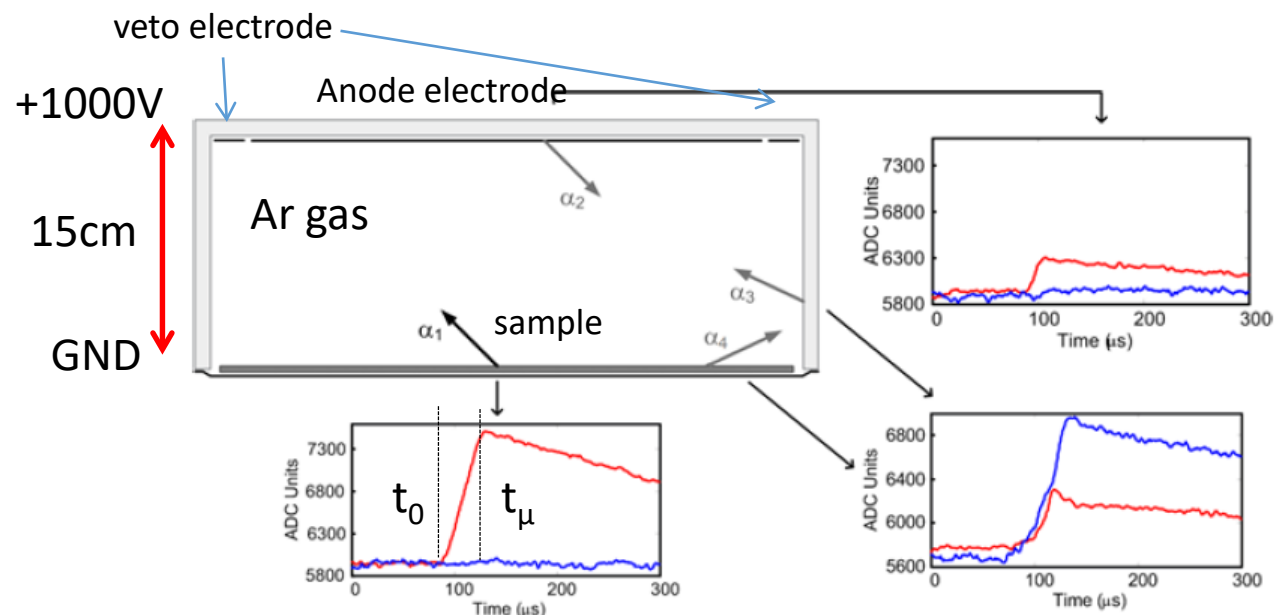
目次

1. 表面アルファ線検出器
2. ^{210}Pb のバルク含有量測定
3. 銅のまとめ
4. 不導体の測定について

低バックグラウンドアルファカウンタ(XIA Ultra-Lo-1800)

2015年1月にXMASS実験のバックグラウンドスタディのため、神岡地下クリーンルームに導入。

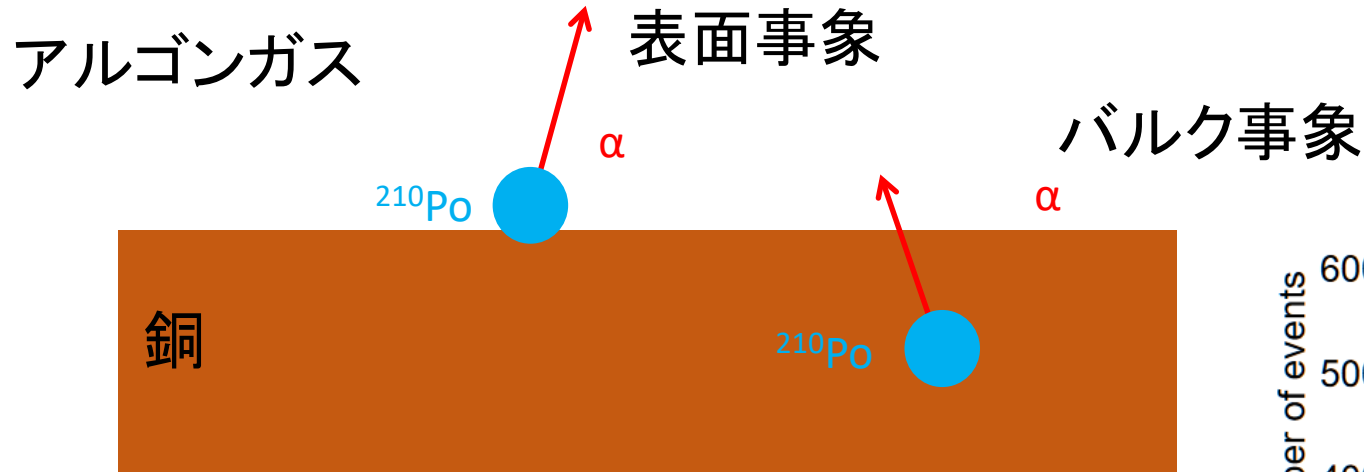
| | 仕様 |
|-----------------|---|
| 検出効率 | >90% of 2pi |
| エネルギー分解能 | <9%FWHM at 4.6MeV |
| 検出エネルギー範囲 | 1-10MeV |
| サンプルサイズ | 707cm ² (φ30cm disk)、 1800cm ² (42cm*42cm) |
| 最大サンプル重量 | 9kg |
| 最大サンプル厚み | 6.3mm |
| 到達可能バックグラウンドレベル | 10 ⁻⁴ α/cm ² /hr (すべてが ²¹⁰ Poの表面付着からくる場合、0.56mBq/m ² に相当) |



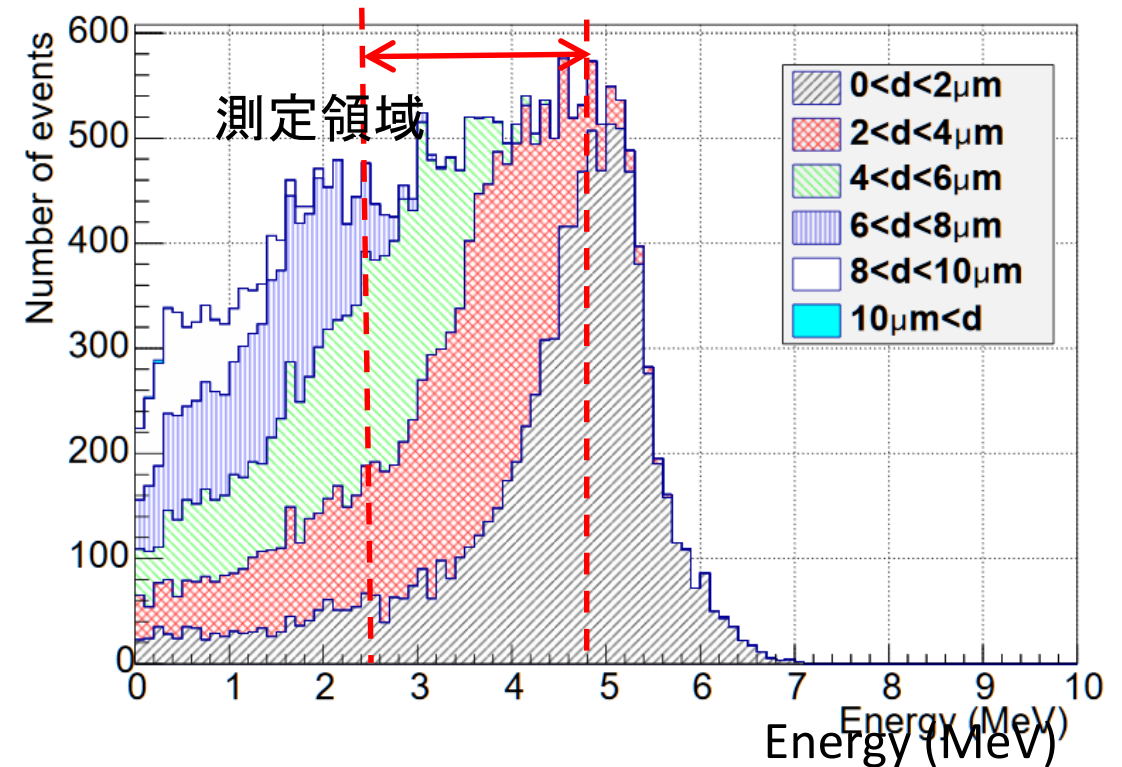
— signal
— veto signal

波形の rise time ($t_{\mu} - t_0$)を測定することでサンプル表面からの事象をアルゴンガス中または天井からの事象から区別できる。

表面、バルク(表面に近い)事象はアルファカウンタでどのようにみえるか？



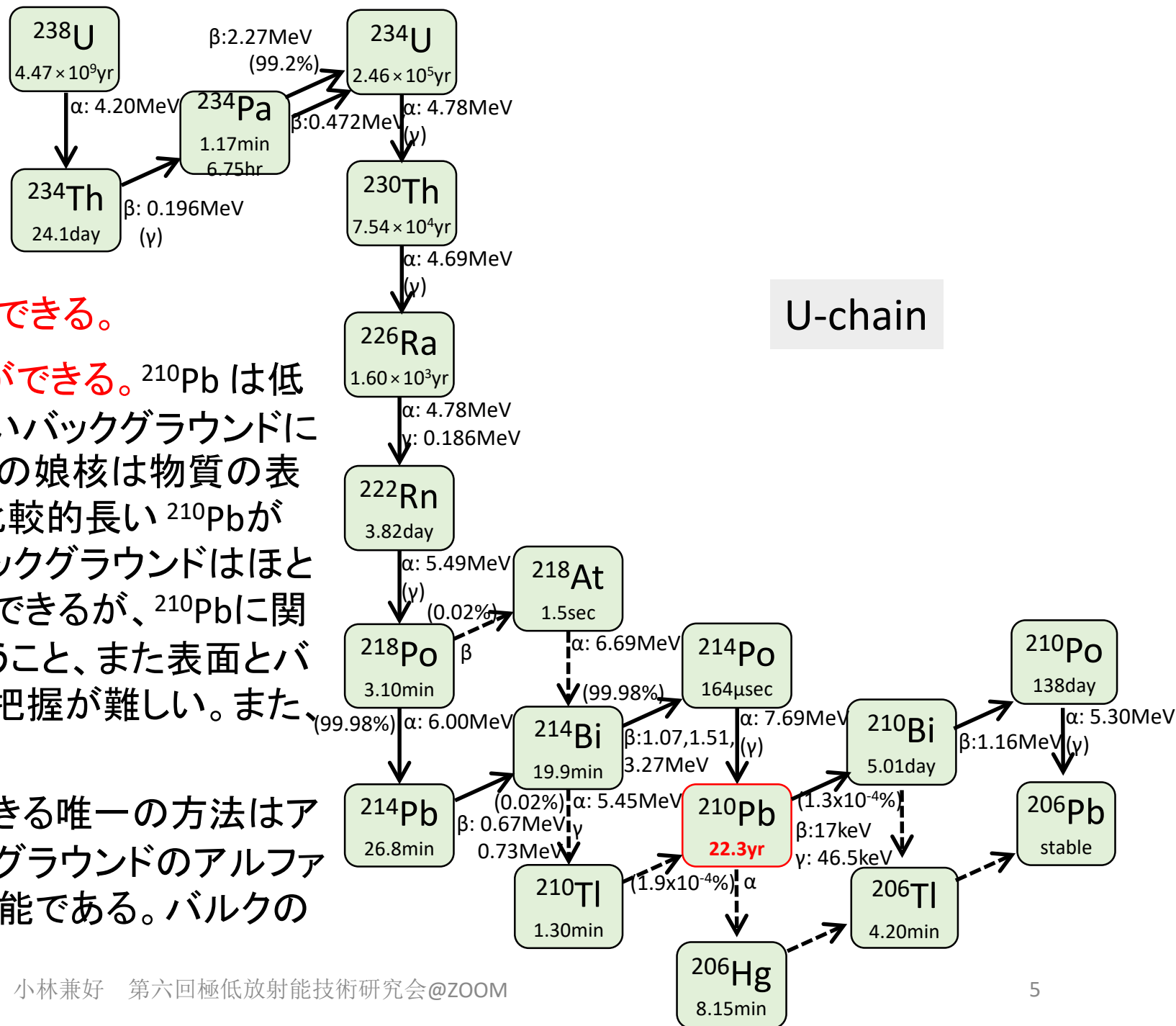
エネルギー分布 (銅バルク中の5.3MeVアルファ線MCシミュレーション)



- 銅中の5.3MeVアルファ線の飛程は約 $\sim 10\mu\text{m}$ 。
- エネルギー分布は連続的になる。
- MCの見積もりから $2.5 < E < 4.8\text{MeV}$ の事象は主に $2 < d < 6\mu\text{m}$ の深さからくる。(d: 銅表面からのアルファ線生成点までの距離)。

アルファカウンタ を使うメリット

- 表面に付着した放射性不純物を測定できる。
- ^{210}Pb の含有量、表面・バルクの理解ができる。 ^{210}Pb は低バックグラウンド地下実験でいやらしいバックグラウンドになりうる。 ^{222}Rn は空気中に存在し、その娘核は物質の表面に付着するため半減期が22年と比較的長い ^{210}Pb が残ってしまう。U-chain / Th-chainのバックグラウンドはほとんどICP-MS/GD-MS/HPGeなどで測定できるが、 ^{210}Pb に関しては容易に放射平衡が崩れてしまうこと、また表面とバルクの区別ができないので全体量の把握が難しい。また、測定感度も出にくい。
- 現状、 ^{210}Pb の表面とバルクの区別できる唯一の方法はアルファカウンタである。さらに低バックグラウンドのアルファカウンタであれば、バルクの測定も可能である。バルクの測定方法を確立してきた。



アルファカウンタのデメリット

- 表面に付着したバックグラウンドに関してはエネルギー分布から放射性不純物の同定がある程度可能だが、バルクに関してはエネルギー分布の連続的なので同定はできない。他の検出器測定結果を合わせ総合的な判断が必要になる。XMASSの無酸素銅では他の放射性不純物の含有量が十分低く、 ^{210}Pb が同定できたが、他の不純物が多いと解析は単純ではなくなる。
- ^{210}Pb に関するデメリットは、 ^{210}Po しか測定できないため、半減期が22年と長く、1度の測定ではわからない。通常1年はかかってしまう。

銅の $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ バルク含有量を測定する上で重要なことは:

1. アルファカウンタの検出器自身のバックグラウンドが小さい。

- UltraLo-1800は地下に導入されバックグラウンドは $2.5 < E < 4.8 \text{ MeV}$ で $(5.6 \pm 5.6) \times 10^{-6} \alpha/\text{cm}^2/\text{hr}$ と小さい。

2. サンプル表面の放射性不純物は最小化する必要がある。

- 電解研磨をかけ表面付着の放射性不純物を除去した(研磨前の不純物も大きくはないことを確認)。
- サンプル交換はクリーンルームで行った。
- サンプルの保存はEVOH (ethylene-vinylalcohol copolymer) の袋に入れ行った。
- サンプル表面からのバックグラウンドからなるエネルギー領域 (5.3 MeV 周辺) は解析にしようせず $2.5 < E < 4.8 \text{ MeV}$ を使うことにした。これにより表面バックグラウンドは $< 5\%$ になる。

3. サンプル表面粗度は銅中のアルファ線の飛程($\sim 10 \mu\text{m}$)より十分短くすべき。

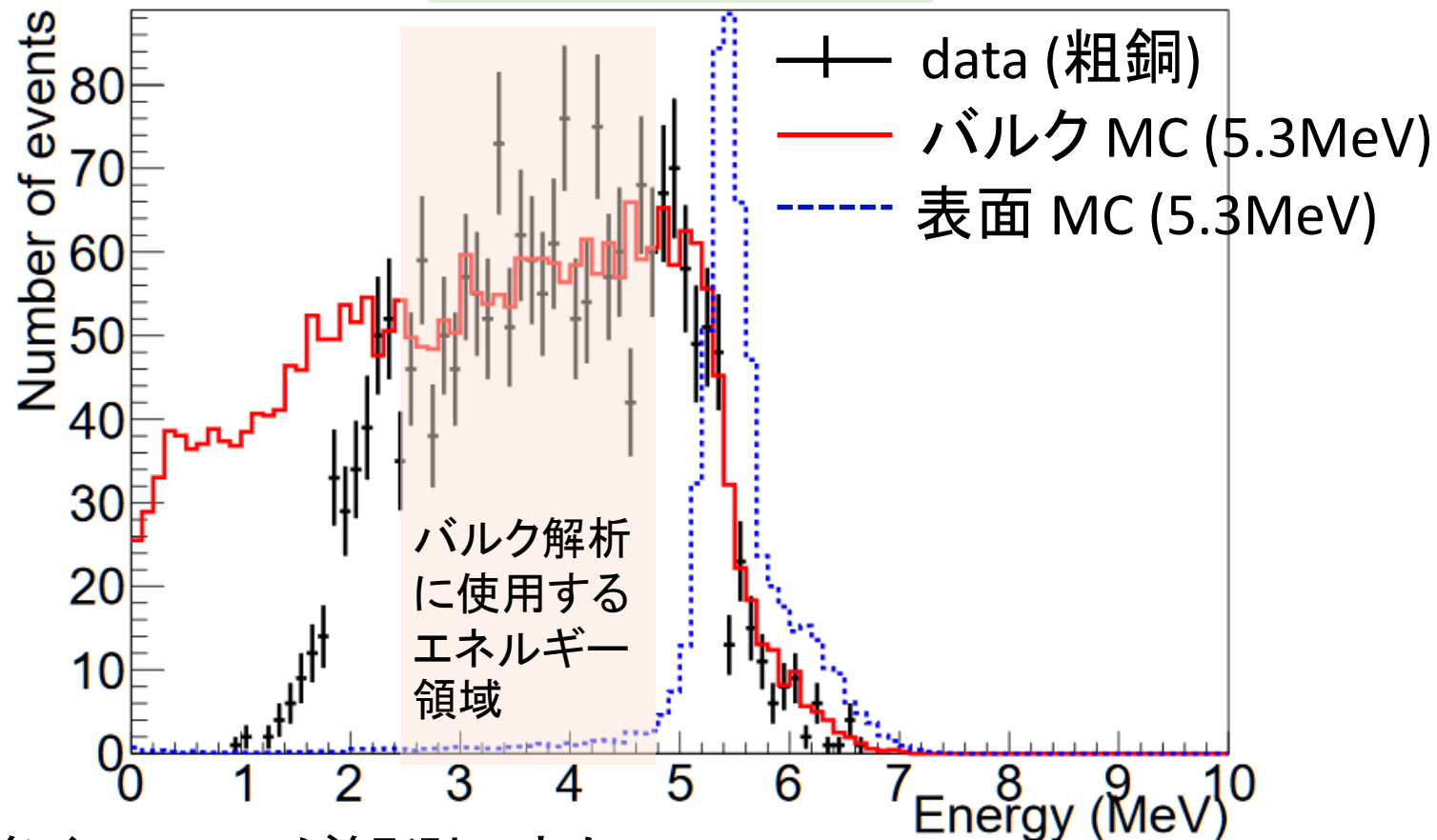
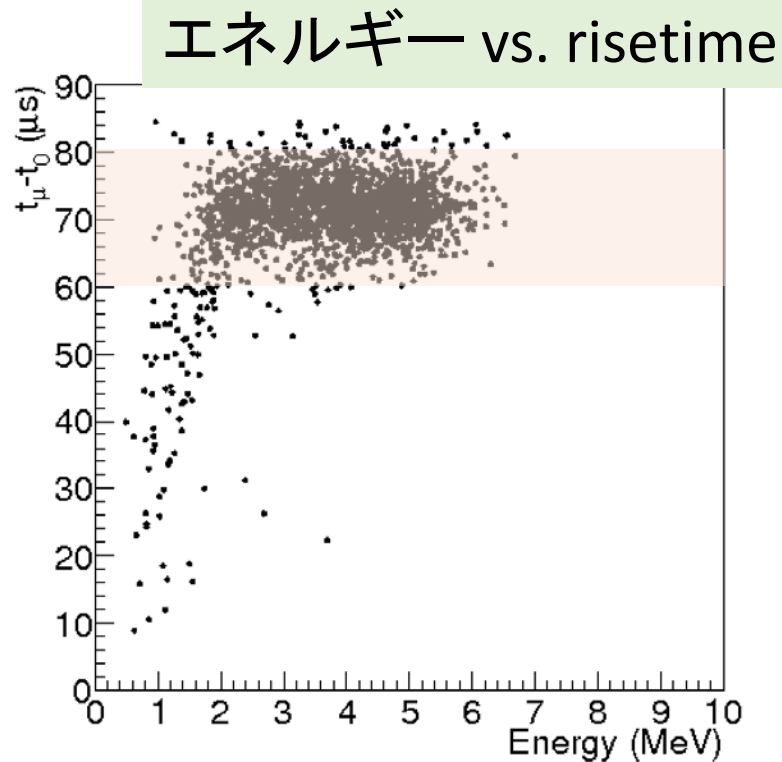
- 電解研磨後の表面粗度は $\ll 1 \mu\text{m}$ であることをレーザーマイクロスコープで確認。

4. 他 ^{210}Po 以外の放射性不純物からのアルファ線は無視できる。

- GD-MS測定から ^{238}U , ^{232}Th が共に $< 100 \text{ ppt}$ であることが確認できたので ^{238}U は $< 1.2 \text{ mBq/kg}$ で ^{232}Th は $< 0.4 \text{ mBq/kg}$ と小さい。

^{210}Pb を多く含有するサンプル (粗銅)

エネルギー (表面)



- 粗銅サンプルからはバルク領域に多くの ^{210}Po が観測できた。
- バルク含有量同定解析に用いるエネルギー領域は上の分布から $2.5 < E < 4.8 \text{ MeV}$ に決定した。
- エネルギー分布の形はデータとMCシミュレーションで一致した。

$^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ 含有量の算出方法

$$N_0(t) = N_0(0)e^{-\frac{t}{\tau_0}}$$

$$N_1(t) = N_0(0) \frac{\frac{1}{\tau_0}}{\frac{1}{\tau_1} - \frac{1}{\tau_0}} \left(e^{-\frac{t}{\tau_0}} - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right) + N_1(0)e^{-\frac{t}{\tau_1}}$$

$\tau_0 = 32.17\text{yr}$ (lifetime of ^{210}Pb)

$\tau_1 = 0.55\text{yr}$ (lifetime of ^{210}Po)

Nはバックグラウンドを差し引いたアルファカウンタの測定値s。

$N_0(t)$: amount of ^{210}Pb in 1kg at t=t

$N_1(t)$: amount of ^{210}Po in 1kg at t=t

t=0: サンプルが神岡に到着した時間

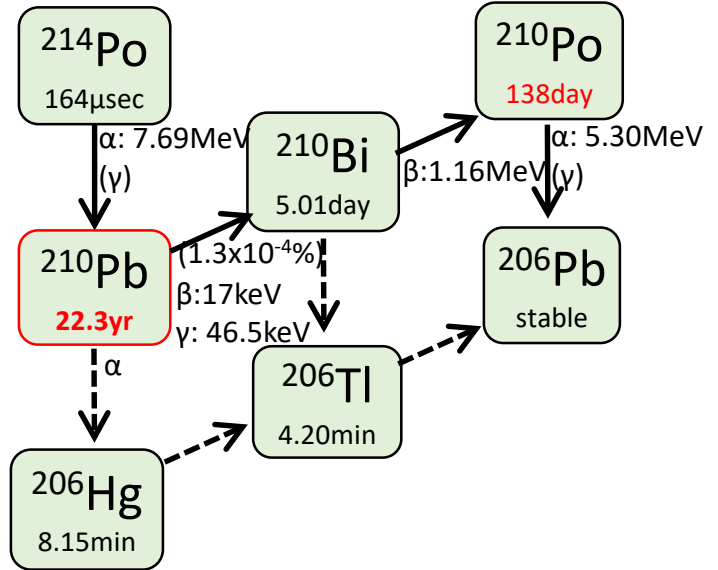
粗銅は放射平衡から大きくずれていた。

^{210}Pb : $57 \pm 1\text{Bq/kg}$, ^{210}Po : $16 \pm 2\text{Bq/kg}$

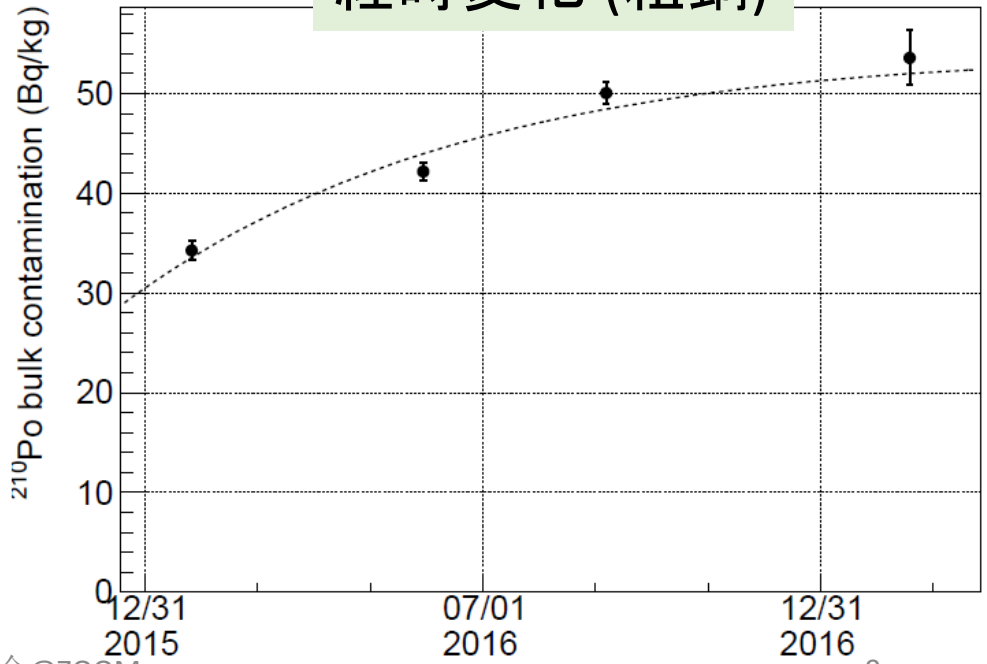
この結果はHPEGeの測定値

($55.6 \pm 1.5(\text{stat.}) + 16.7 - 5.6(\text{syst.})\text{Bg/kg}$)と一致

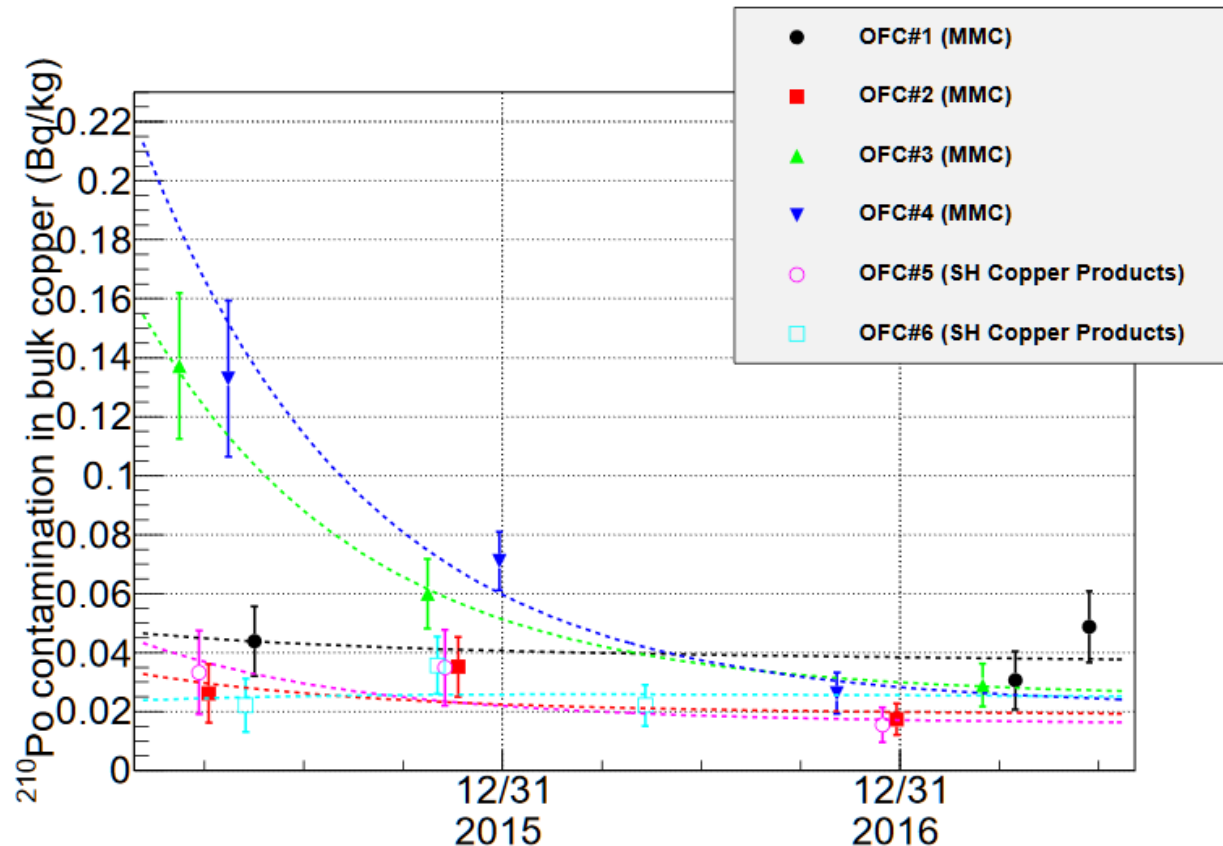
→ この方法が正しいことを確認した。



経時変化 (粗銅)



無酸素銅 (C1020) サンプル (圧延)



| | ^{210}Pb (mBq/kg) | ^{210}Po (mBq/kg) |
|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| OFC#1 (MMC) | 40 ± 8 | 47 ± 21 |
| OFC#2 (MMC) | 20 ± 6 | 33 ± 14 |
| OFC#3 (MMC) | 27 ± 7 | 160 ± 30 |
| OFC#4 (MMC) | 23 ± 8 | 220 ± 40 |
| OFC#5 (SH copper products) | 17 ± 6 | 44 ± 18 |
| OFC#6 (SH copper products) | 27 ± 8 | 24 ± 17 |

MMC: 三菱マテリアル

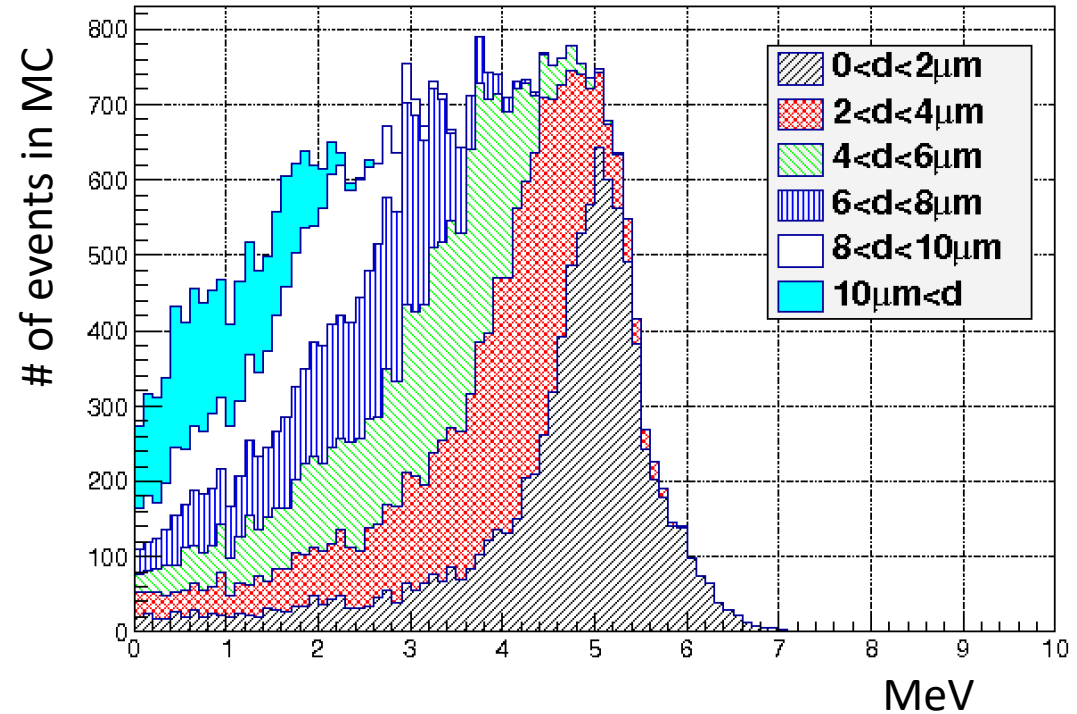
- 放射平衡が大きく壊れている。 ^{210}Po 含有量はサンプルにより大きく異なっているが (24~220mBq/kg), ^{210}Pb 含有量は 17~40mBq/kg以内に収まっている。この測定は世界初の無酸素銅中の ^{210}Pb 含有量の測定である。
- 無酸素銅のよりハイグレードなClass 1のサンプルもしらべたがC1020と変わらなかった。

その他金属の ^{210}Pb バルク測定

- アルミ、スズなどは ^{210}Pb 含有量がバルク中にも多い。
- 鉛の測定を検討中。

sensitivity study for lead sample bulk measurement by MC simulation

- 5.3MeV alpha-rays are simulated in lead uniformly and expected signal energy distribution in alpha counter is estimated based on the current alpha counter performance (d: alpha ray generated position depth from the lead surface). Conversion factor is estimated to be 150 for Lead (all area measurement)
- Po210 alpha-rays in $2 < d < 8 \mu\text{m}$ are observed in $2.5 < E < 4.8 \text{MeV}$.



| | Atomic mass (g/mol) | Density (g/cm ³) | Conversion factor (1alpha/cm ² /hr(2.5< E<4.8MeV)=??Bq/kg) | 5.3MeV alpha-ray Range estimated by MC (μm) | Rough sensitivity (mBq/kg) |
|--------|---------------------|------------------------------|---|---|----------------------------|
| Lead | 207.2 | 11.34 | 150 | 15.1 | ~1.3 |
| Copper | 63.5 | 8.94 | 270 | 10.0 | ~2.4 |

不導体の ^{210}Pb バルク測定

- 将来、特にPTFEやPMTのquartz glassなど不導体が暗黒物質探索のバックグラウンド源になりうる。特にPTFEはキセノン2相式検出器で多く用いられているが、PTFEは中性子にたいする散乱断面積が大きいので、 ^{210}Pb があると ^{210}Po 崩壊の α 線による (α, n) 反応で中性子バックグラウンドが生じる可能性があるので、PTFE表面、バルクでの ^{210}Pb 含有量測定的重要性が増す。
- 超低バックグラウンドのXIAのアルファカウンタは本来導体でないと電場が一様にならないので、測定ができない。そこでサンプル表面の電場をゼロに抑えることにより測定を試みてきた。

不導体の $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ 含有量を測定する条件

導体と
共通事項

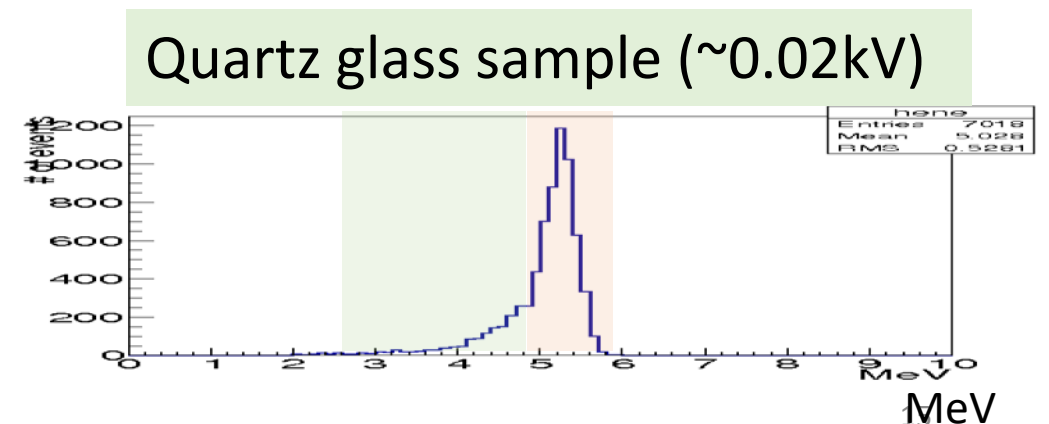
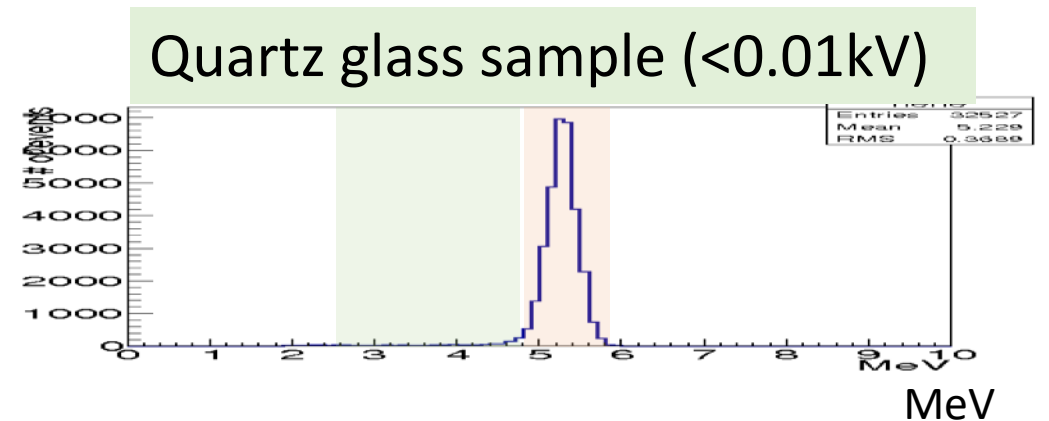
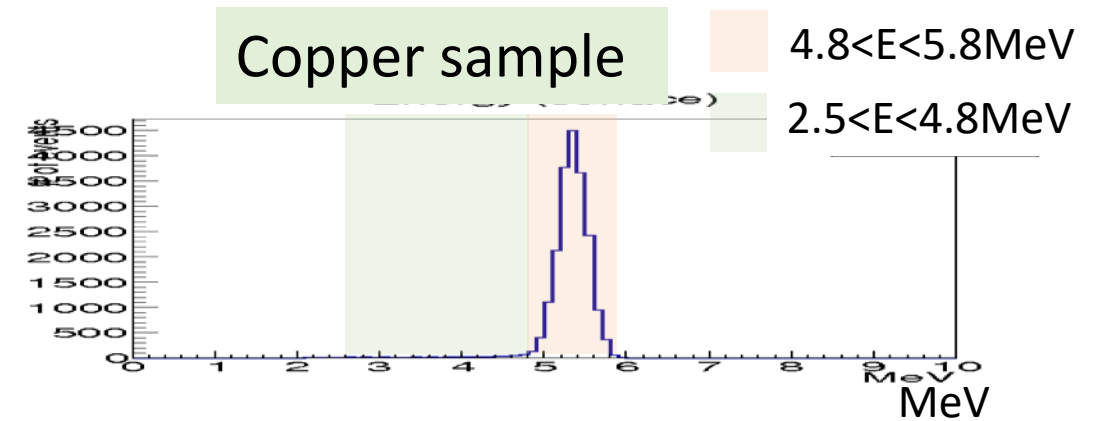
1. アルファカウンタの検出器自身のバックグラウンドが小さい。
 - UltraLo-1800は地下に導入されバックグラウンドは $2.5 < E < 4.8 \text{ MeV}$ で $(5.6 \pm 5.6) \times 10^{-6} \alpha/\text{cm}^2/\text{hr}$ と小さい。
2. サンプル表面の放射性不純物は最小化する必要がある。
3. サンプル表面粗度は銅中のアルファ線の飛程($\sim 10 \mu\text{m}$)より十分短くすべき。
4. 他 ^{210}Po 以外の放射性不純物からのアルファ線は無視できる。

不導体に
だけ必要
な事項

5. サンプル表面電位をほぼゼロにする必要がある。
 - charge inductanceを測定するため、表面電位を一様にほぼゼロに制御しないとエネルギーがただしくわからない。

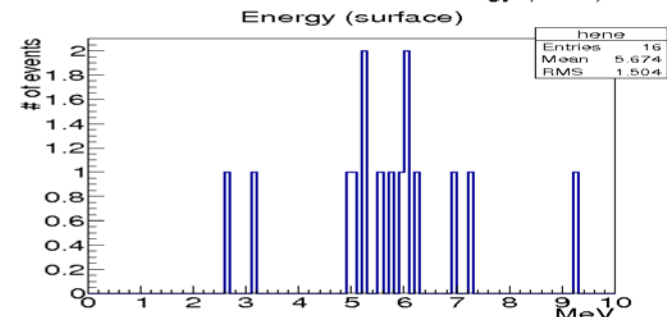
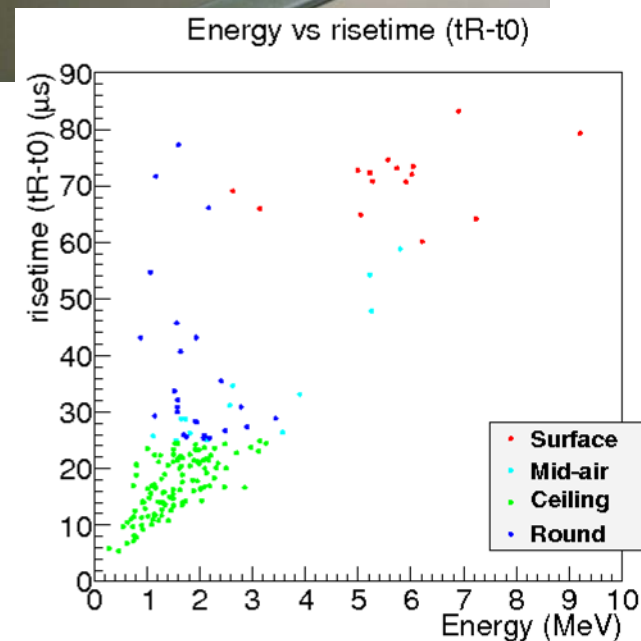
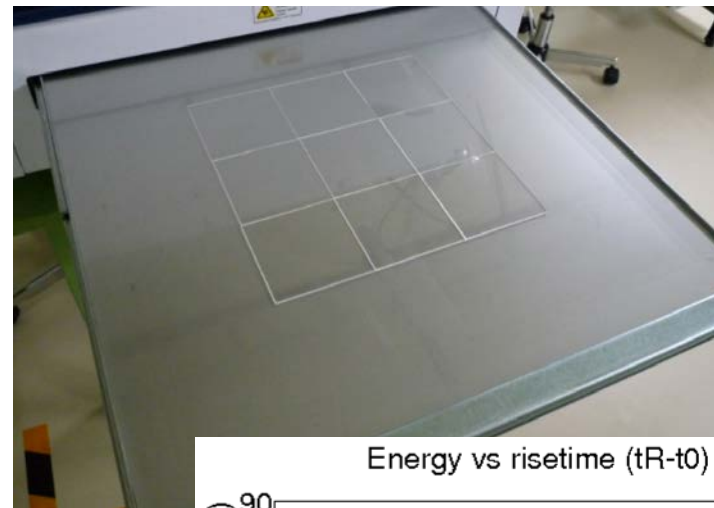
不導体表面の電場の制御

- quartz glass (不導体) サンプルは比較的制御しやすい(PTFEと比べれば)。
- アルコールを用い、表面電位の絶対値を $<0.01\text{kV}$ に制御する方法を確立し、表面電位が $<0.01\text{kV}$ であることを確認した上で測定した。表面に付着したPo210の 5.3MeV のピークはほぼ導体と同じようにみえることがわかる。下は測定前に約 $+0.02\text{kV}$ だったサンプルを作り測定した比較例。



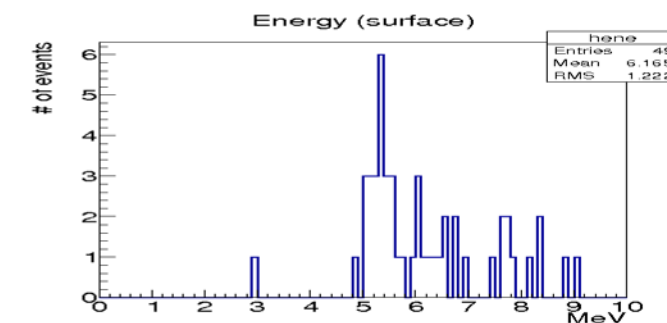
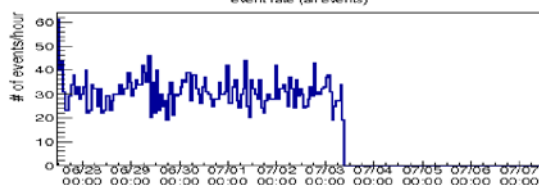
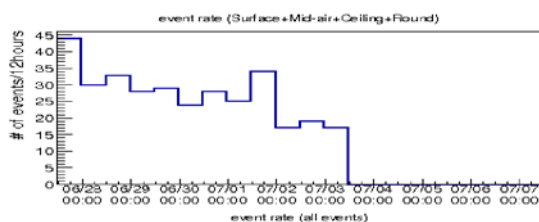
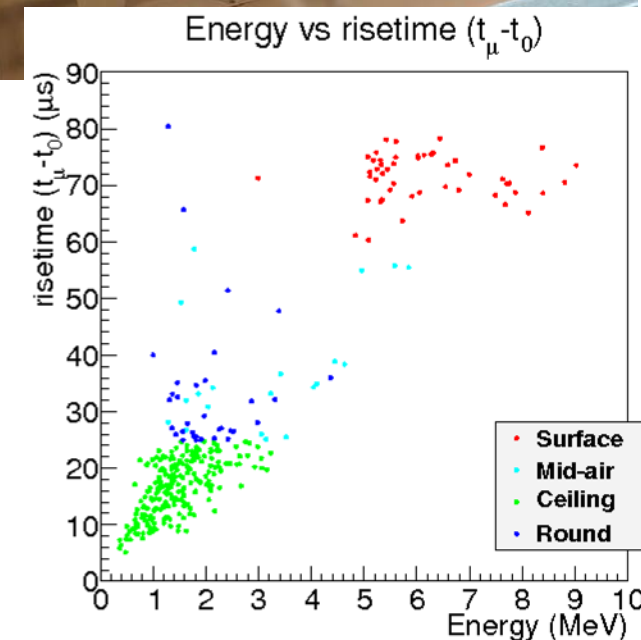
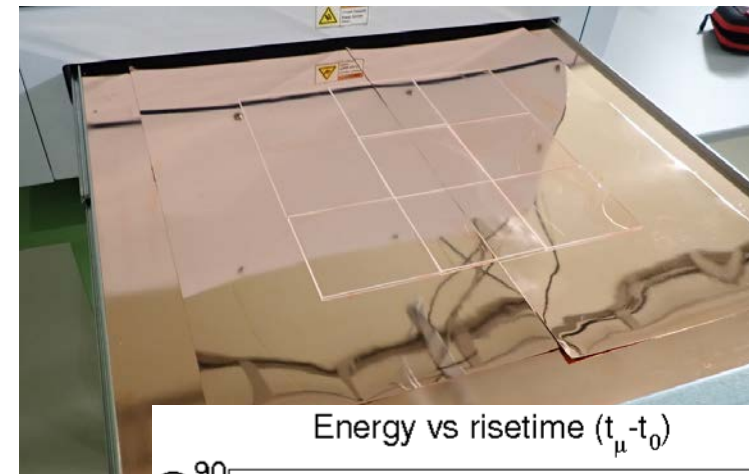
Quartz glass plate

| | |
|------------|--|
| run# | 234 (707cm ² active region) |
| purge | 90min |
| duration | 5.99days (Jan.10 th , 2017 - Jan. 17 th , 2017) |
| sample | Quartz glass plates (100x100x1mm 9 plates (#3-1~9), Toso-quartz ES-zai, made by Fujiwara-seisakusho, surface electric potential is <0.02kV by wiping ethanol. First 1day data is cut) |
| emissivity | (1.85 ± 0.46) × 10 ⁻⁴ α/cm ² /hr (2.09 ± 1.48) × 10 ⁻⁵ α/cm ² /hr (2.5 < E < 4.8 MeV) (6.72 ± 2.74) × 10 ⁻⁵ α/cm ² /hr (4.8 < E < 5.8 MeV) |



Quartz glass plate

| | |
|------------|---|
| run# | 421 (707cm ² active region) |
| purge | 90min |
| duration | 5.89days (Jun. 27 th , 2019 - Jul. 3 rd , 2019) |
| sample | quartz glass plate (10cmx10cmx2mm, 9plate (Tosoh quartz, ES series, polished, #3-1~9), made by Fujiwara-seisakusho. Delivered on Dec. 16 th , 2016). |
| emissivity | $(5.78 \pm 0.83) \times 10^{-4} \alpha / \text{cm}^2 / \text{hr}$ $(1.05 \pm 1.05) \times 10^{-5} \alpha / \text{cm}^2 / \text{hr}$ ($2.5 < E < 4.8 \text{ MeV}$) $(2.74 \pm 0.56) \times 10^{-4} \alpha / \text{cm}^2 / \text{hr}$ ($4.8 < E < 5.8 \text{ MeV}$) |



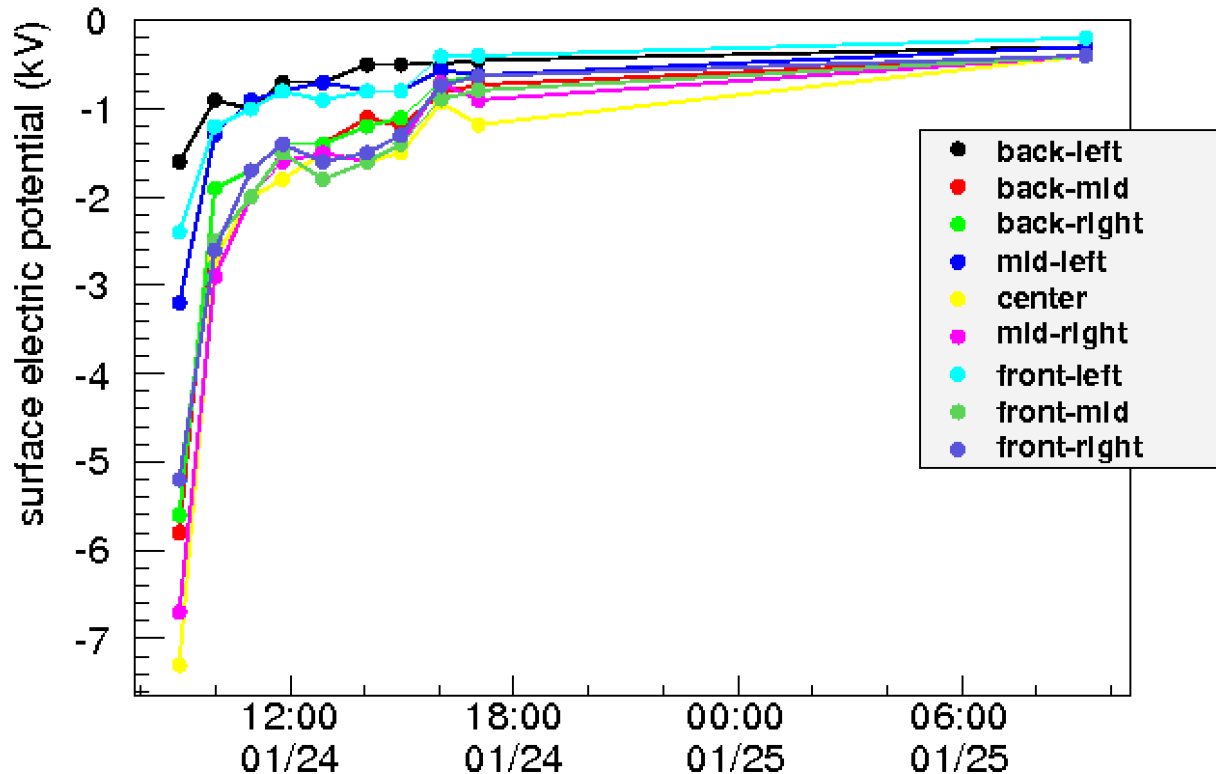
バルク²¹⁰Po in quartz glass

| | Emissivity (2.5<E<4.8MeV) (α /cm ² /hr) | Emissivity (4.8<E<5.8MeV) (α /cm ² /hr) |
|------------|--|--|
| Dec., 2016 | Sample delivery | |
| Jan. 2017 | $(2.09 \pm 1.48) \times 10^{-5}$ | $(6.72 \pm 2.74) \times 10^{-5}$ |
| Jun. 2019 | $(1.05 \pm 1.05) \times 10^{-5}$ | $(2.74 \pm 0.56) \times 10^{-4}$ |

加工時の表面への²¹⁰Pbの付着と思われる表面²¹⁰Poの増加がみられるがバルク中には有意には観測されなかった($\sim < 7$ mBq/kg)。今年に入ってから測定継続中。

PTFE 表面の電場

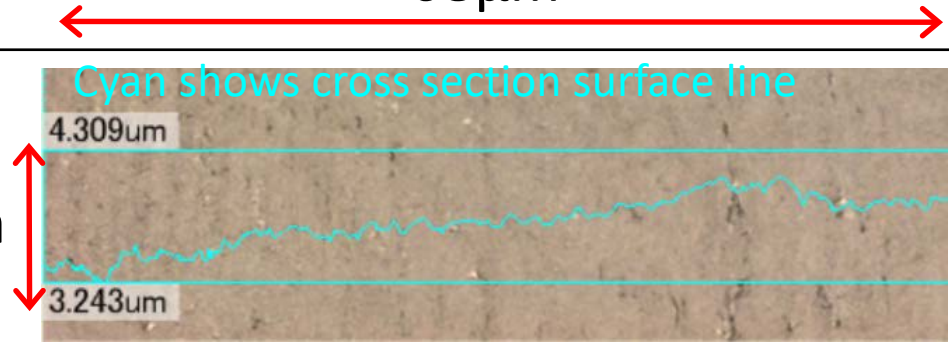

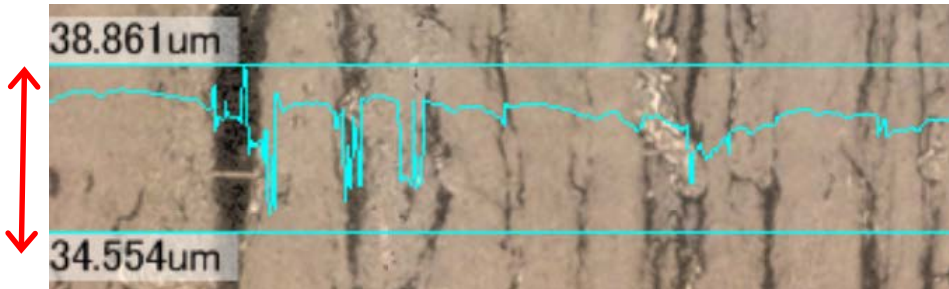
time variation of PTFE surface electric potential



- PTFEは帯電列でももっともマイナスに帯電しやすい物質で、用意にマイナスに帯電する。測定前の丁寧な除電が必要不可欠である。
- 左図はPTFEがどのような帯電しているかを確認したもので、10cmx10cmのPTFE板を置き表面をこすって<-1kVに帯電させ、その後の表面電位の経時変化を測定した。数時間で大まかには除電されるがそれでも1日たっても<-0.1kVに帯電したままであった。
- PTFEはかなり除電が難しいが、アルコールを用いることで>-0.01kVにおさえる手法を確立した。

PTFE samples

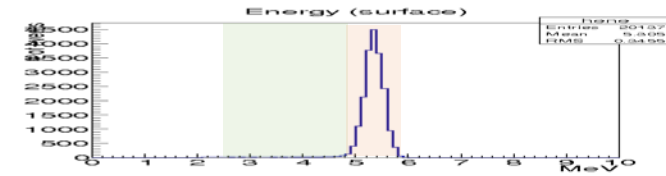
もう1つのPTFEが難しい点が表面粗度を制御することである。通常の加工では多少粗くなってしまう。表面加工をほどこさないことが一番粗度がおさえられる。

| | Gap size | Laser microscope measurement zoom up 68 μm |
|--|---|---|
| Company A No polish | <1 μm . Small gaps are mostly <1 μm . There are some spots. |  <p>1.1μm</p> <p>Cyan shows cross section surface line</p> <p>4.309μm</p> <p>3.243μm</p> |
| Company B Cut by circular saw | <1 μm (But there are some ~1 μm depth slit lines) |  <p>2.8μm</p> <p>12.561μm</p> <p>9.728μm</p> |
| Company A sand paper (#1500) polish | 3~ μm . Many slits (1-3 μm). |  <p>4.3μm</p> <p>38.861μm</p> <p>34.554μm</p> |

PTFE samples

It is difficult to make flat surface by PTFE cutting/physical polish.
Better to use no polish sample.

cf. Copper



| | Gap size | Alpha counter measurement |
|--|---|---------------------------|
| Company A No polish | <1 μ m. Small gaps are mostly <1 μ m. There are some spots. | In preparation |
| Company B Cut by circular saw | <1 μ m (But there are some ~1 μ m depth slit lines) | |
| Company A sand paper (#1500) polish | 3~ μ m. Many slits (1-3 μ m). | |

PTFEのバルク測定

- PTFEを完全に表面粗度をおさえることがむずかしい。また制作時にどうしても帯電して表面にPb210が付着してしまうため、バルク測定にはエネルギー領域を狭くして($2.5 < E < 4.0 \text{ MeV}$ 程度)見積もることが現実的と思われる。
- 加工後すぐに袋詰めして頂ける業者を探し、昨年夏から測定を開始した、今年夏ごろ4点ほどデータがそろそろ予定。もしバルクのPTFEがきれいであれば、 $< \text{数 mBq/kg}$ 程度の感度がでる。