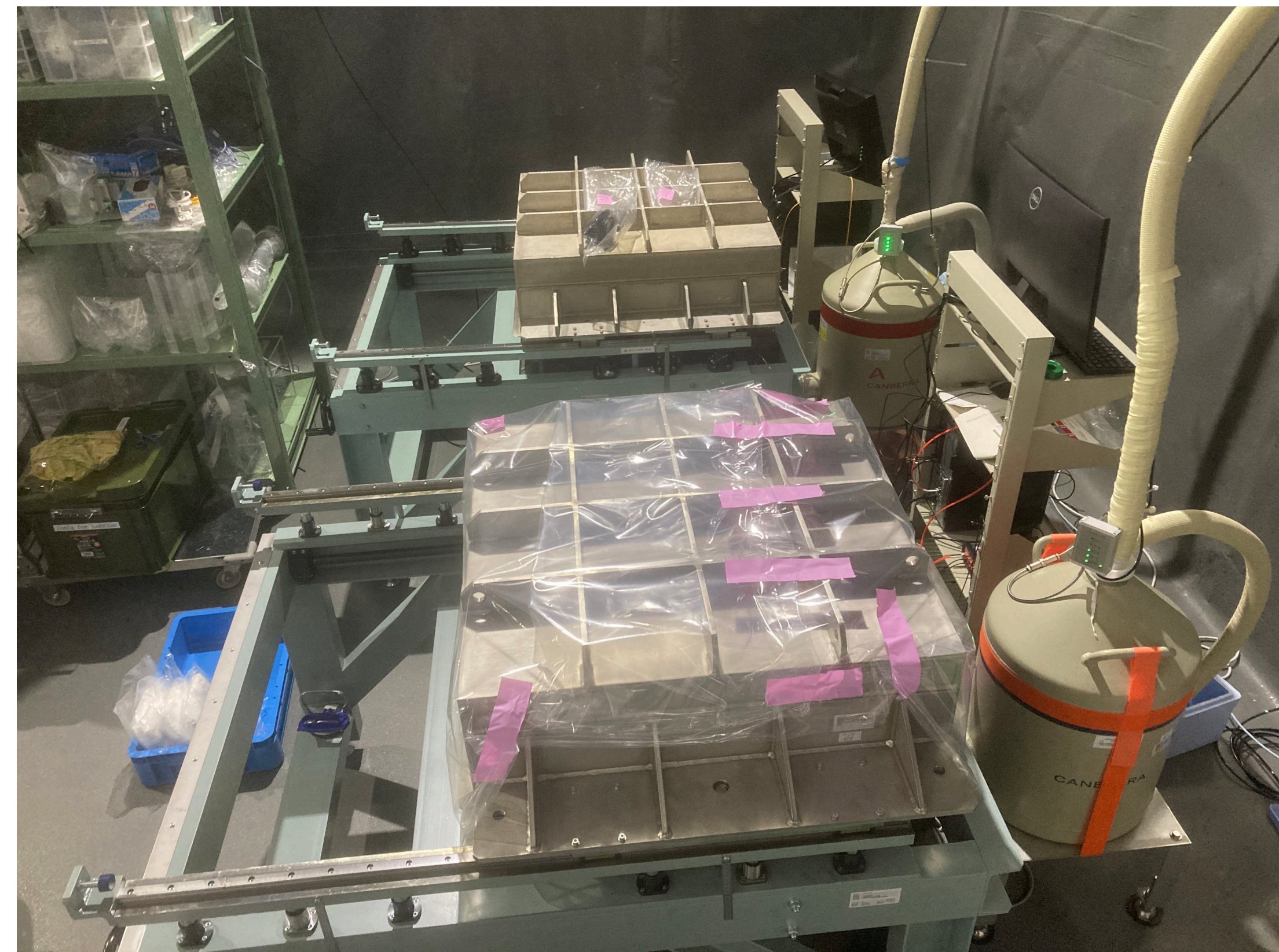


# 極低放射能ゲルマニウム検出器の構築と運用

- ・モチベーション
- ・LabCのゲルマニウム検出器
- ・極低放射能ゲルマニウム検出器の導入
  - ・遮蔽体、DAQ etc.
  - ・Calibration runとの比較
  - ・BGスペクトルの時間変化
  - ・世界のHPGe検出器との比較
  - ・測定例
- ・まとめ



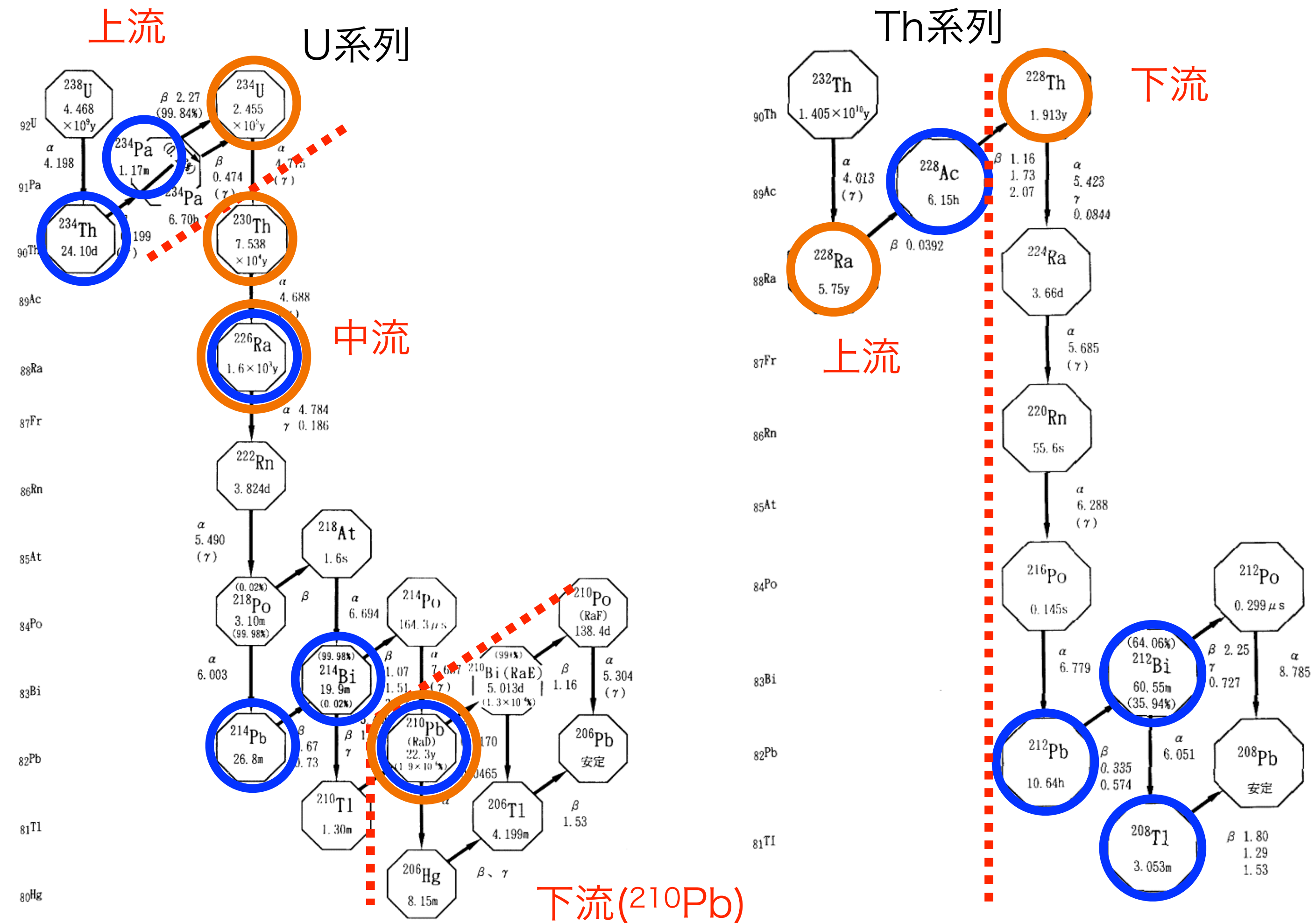
2024.02.06

東北大学ニュートリノ科学研究センター 市村晃一

第9回極低放射能技術研究会



# HPGe検出器によるRI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

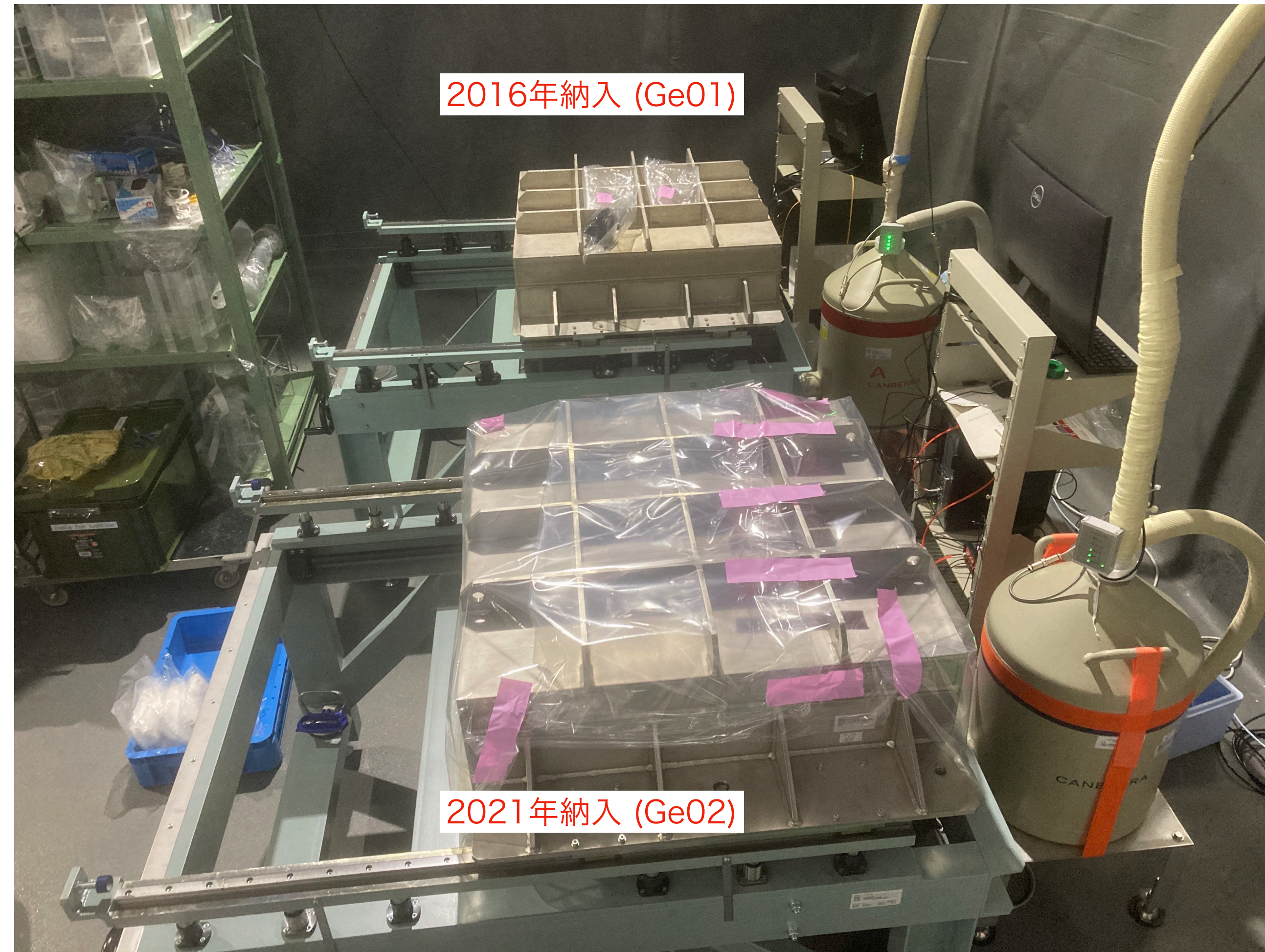
オレンジ○：壊変の途中にある半減期が1年以上の核

$^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ：ICP-MSやGD-MSが得意  
 $^{210}\text{Pb}$ ：Ge (n型、BEGeタイプ)や  
 Accelerator mass spectrometry (AMS)  
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2021.11.001>  
 など

- 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, 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)： $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ 量で放射平衡を仮定して評価すると $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 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 $^{226}\text{Ra}$ (濃縮とか頑張ればいける)や $^{210}\text{Pb}$ 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
- ➡  $^{226}\text{Ra}$ 娘核の BGや $^{210}\text{Po}$ 起源の( $\alpha$ ,n)反応などを評価するにはGeによる測定も必要



# LabCの2台の極低放射能Ge検出器



極低放射能仕様, 同軸p型, 相対効率80%の2台

※相対効率：検出器の前方軸上25 cmの位置に置いた $^{60}\text{Co}$  点状線源からの1332.5 keV  $\gamma$  線全吸収ピークについて、直径・長さ3インチのNaI(Tl)検出器の検出効率に対する効率



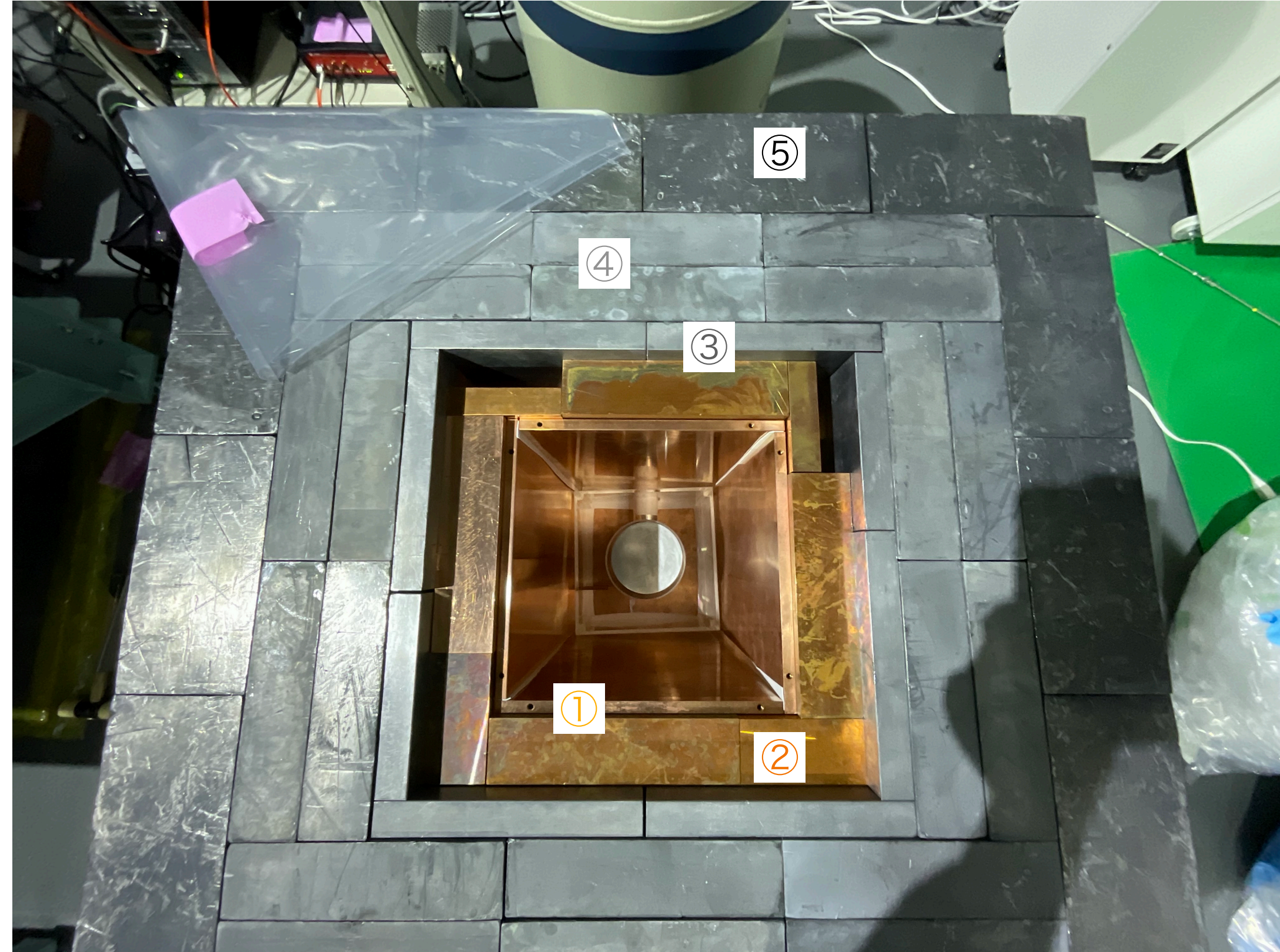
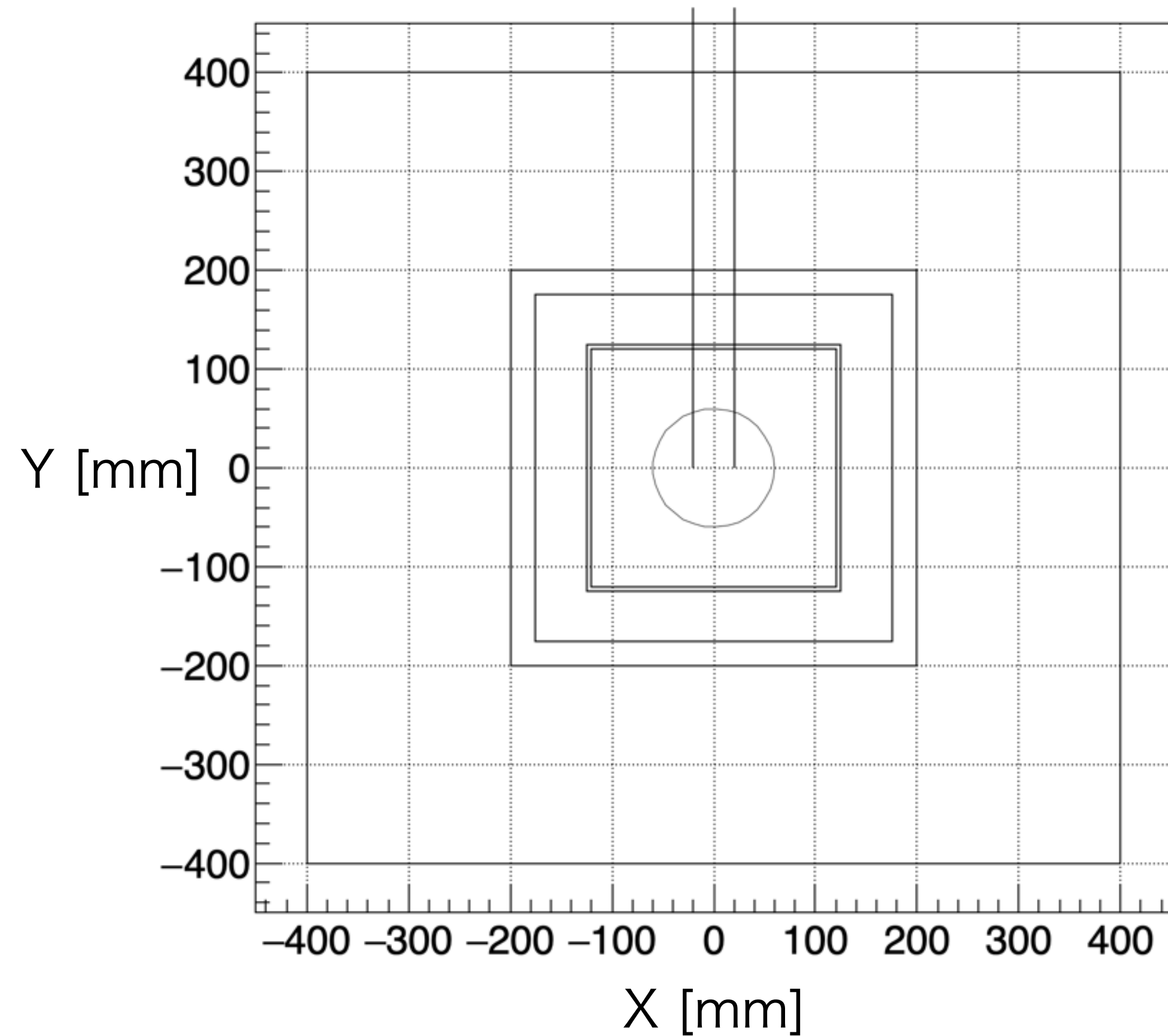
# LabCGe 2号機 (2021年納入時の写真)



- ・ 1号機と同じミリオンテクノロジーズ キャンベラフランス製 T2FA仕様 同軸P型 相対効率80%
- ・ 2021年2月末に受領 (船便+陸送で送られてくる)
- ・ 性能(納入時に業者がチェック)
  - ・ 相対効率 82.5%
  - ・ FWHM 0.81 keV ( $^{57}\text{Co}$  122 keV), 1.74 keV ( $^{60}\text{Co}$  1332 keV) : 業者さんが持ってきたMCAを使用



# LabCGe 2号機の遮蔽体 (ジオメトリ XY)



- 1号機と同じ遮蔽体設計：O(10 kg)の硫酸ガドリニウムも測定可能
- 1号機との違い：
  - 6N銅と5 Bq/kg鉛を硝酸洗浄した(1号機はエタノールで超音波洗浄)
  - 35 Bq/kg鉛を10cm厚(底面は5cm厚)入れた。上部の鉛は綺麗ではない
  - (1号機は20cm分全て 180 Bq/kg鉛)

①1 cm 6N grade Cu (硝酸洗浄：後述も)

②5 cm OFHC Cu

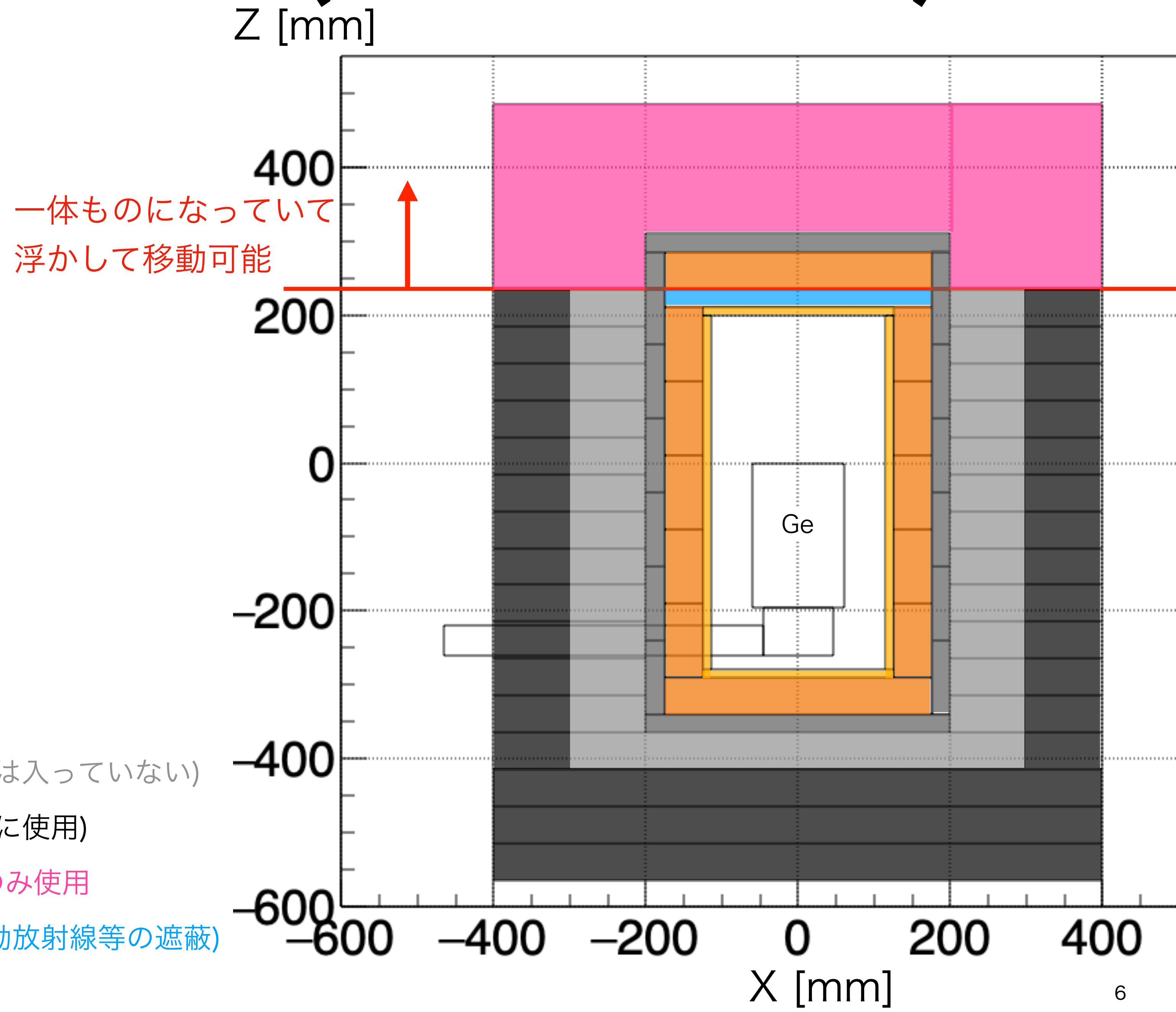
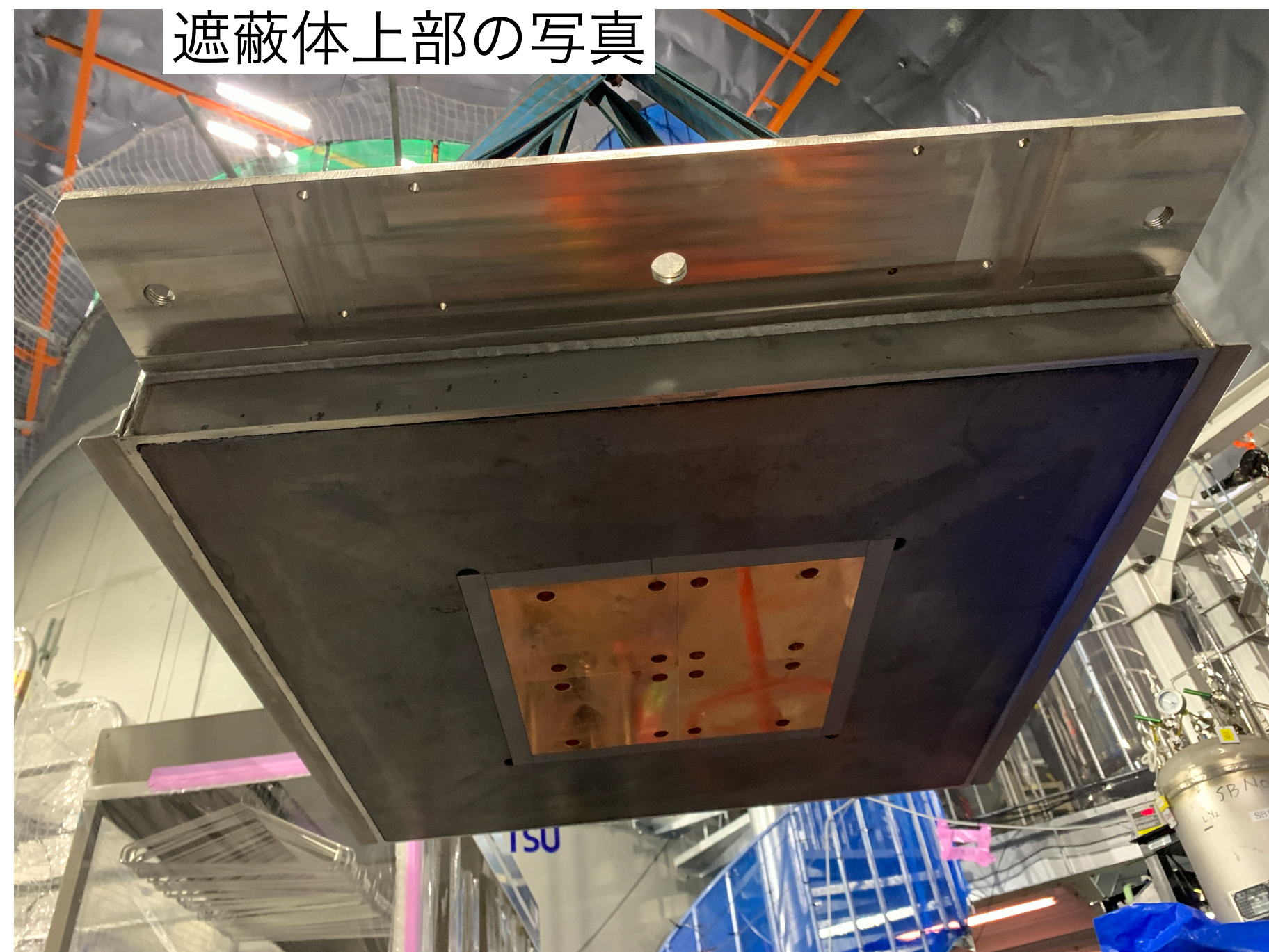
③2.5 cm  $5 \pm 3$  Bq/kg  $^{210}\text{Pb}$  lead (硝酸洗浄も)

④10 cm  $\sim 35$  Bq/kg  $^{210}\text{Pb}$  lead

⑤10 cm  $\sim 180$  Bq/kg  $^{210}\text{Pb}$  lead



# LabCGe 2号機の遮蔽体 (ジオメトリ XZ)

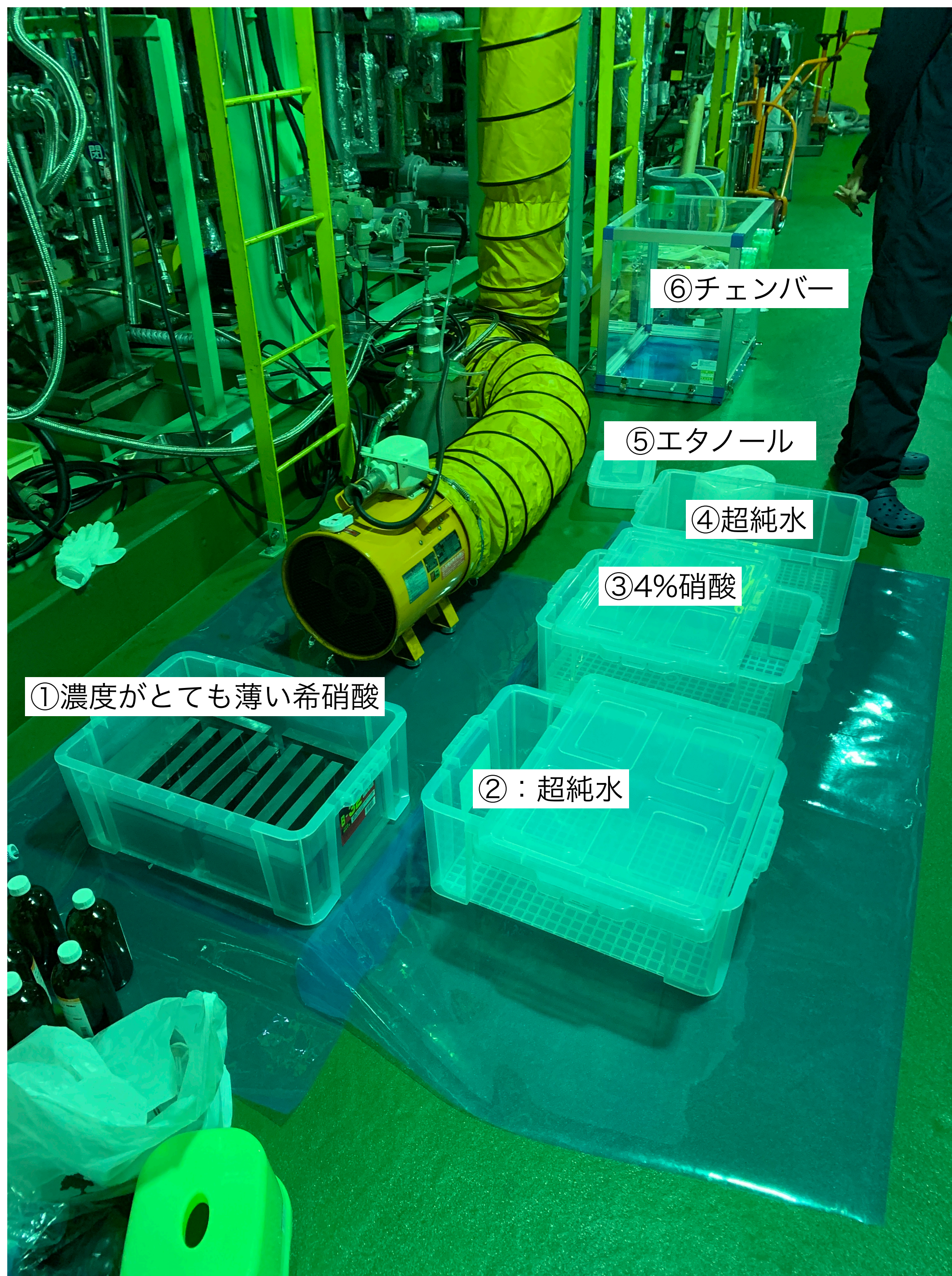


- 6N grade Cu (1cm thickness)
- OFHC Cu (5cm thickness)
- $5 \pm 3$  Bq/kg  $^{210}\text{Pb}$  lead (2.5 cm thickness)
- 35 Bq/kg  $^{210}\text{Pb}$  lead (側面10cm、底面5cm、上部には入っていない)
- 180 Bq/kg  $^{210}\text{Pb}$  lead (下部、35Bq/kgの鉛より外側に使用)
- RCNSにあった lowBG lead & Normal lead : 上部にのみ使用
- 25mm thickness OFHC Cu blocks (上部鉛からの制動放射線等の遮蔽)



# 6N銅と5Bq/kg 鉛の表面洗浄

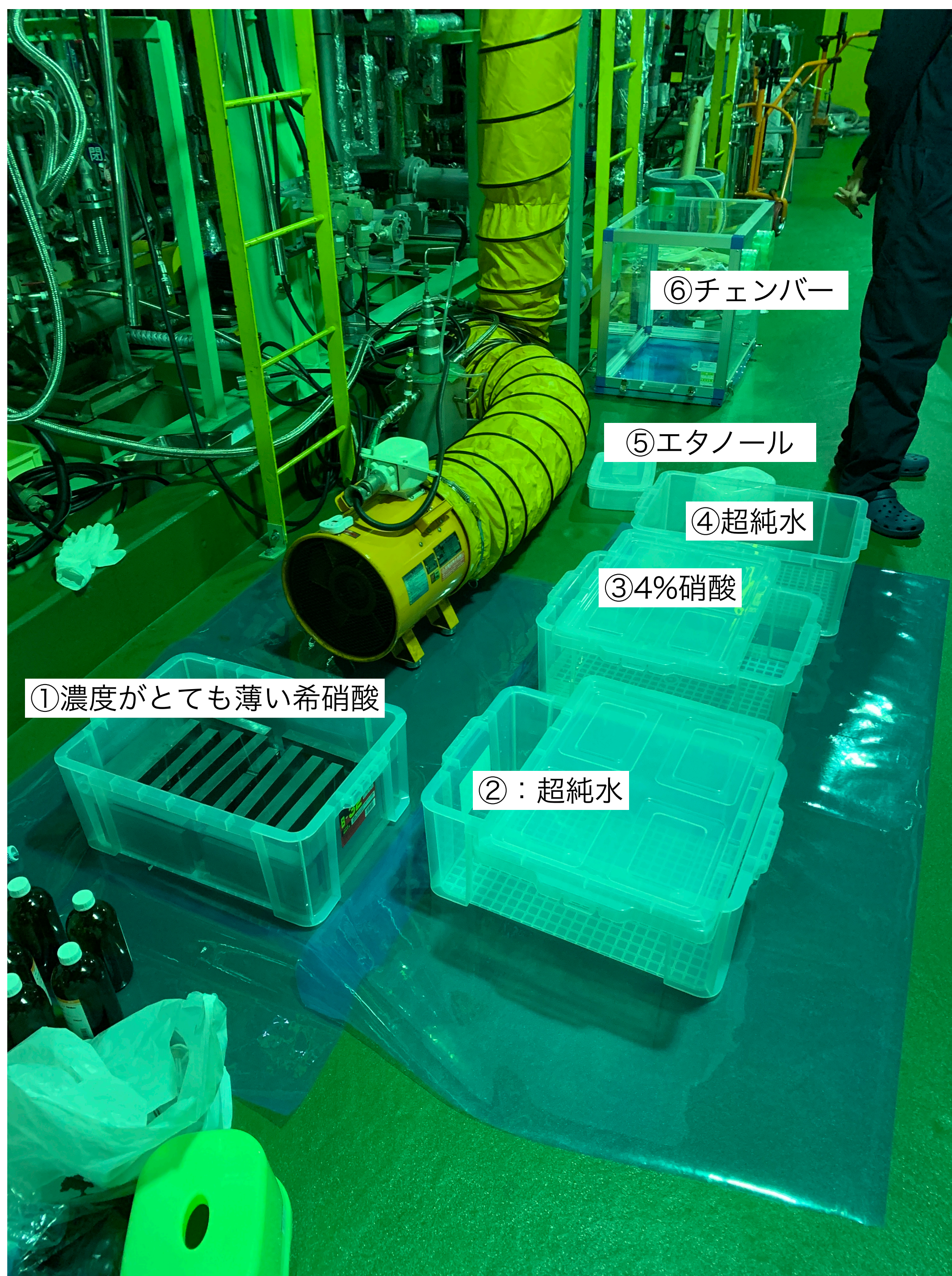
- ・ Kozlovのスライドと東大竹本さんの情報を参考に新たに購入した6N銅と低放射能鉛の表面洗浄を実行
- ・ 作業中はN95のマスク、手袋は2重、クリーン服、ヘアネット等を着用、ダクトを起動
- ・ ①：5.5 kgの超純水+和光のJIS special grade 0.1mol/l の硝酸500ml を5本入れた容器。ここで鉛を20分漬ける(10分の時点で鉛ブロックを反転させる)
- ・ ベンコットで素早く拭いて②の超純水槽に20分漬け置き (ここでも10分経ったら鉛ブロックを反転させる)
- ・ 20分経ったらベンコットで素早く拭いて③の超純水5.58 kg + 和光のsuper special grade (60%  $\text{HNO}_3$ , 0.42 kg)で濃度を約4%に調整した硝酸水溶液に20分漬け置き(ここでも10分経ったら鉛ブロックを反転させる)
- ・ ベンコットで素早く拭いて④の超純水槽に20分漬け置き (ここでも10分経ったら鉛ブロックを反転させる)
- ・ 20分経ったらベンコットで素早く拭いた上で、⑤のところでエタノールにさっと浸してベンコットで拭く
- ・ 全て終わったら⑥のチェンバー内に入れて一晩乾かす( $\text{N}_2$ ガス 5l/min)





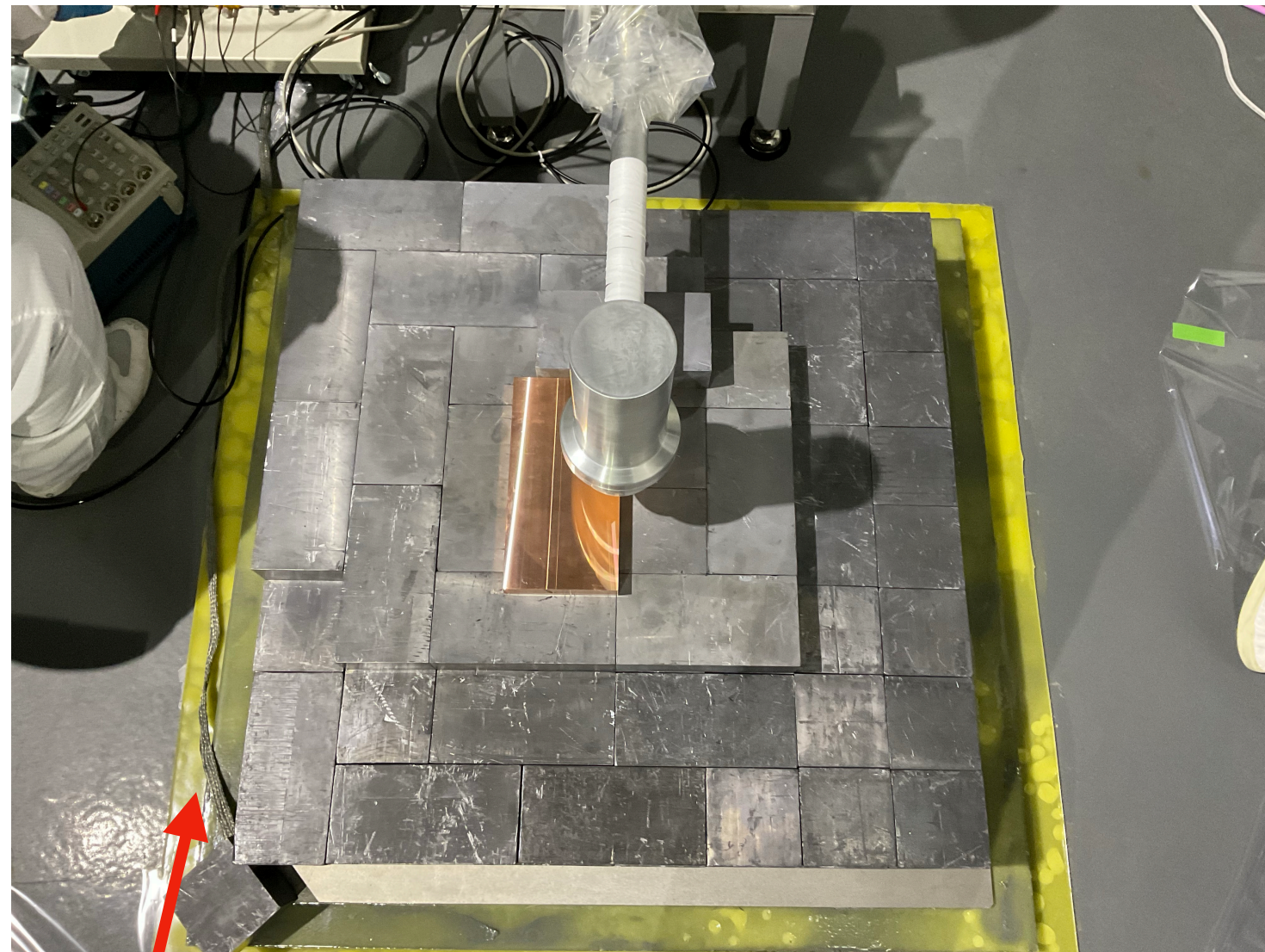
# 6N銅と $^{210}\text{Pb}$ が5Bq/kg鉛の表面洗浄 続き

- ①→②、②→③、③→④のところでKozlovはブラッシングしていたが、加工済み鉛が綺麗だったので傷をつけるだけのようには思われたため今回ブラッシングはしなかった
- 多分①の硝酸濃度が薄いので、もし次回があるなら13 mol/lの硝酸を希釈するようにした方がいいかも。
- テストとして青灰色から白色錆のついた鉛を③の4%硝酸水溶液に付けたところ泡を立てて錆が消えていき鉛色に戻った。
  - 今回購入した5 Bq/kg鉛については泡は出なかった
- 一晩⑥のチェンバーで放置したが6N銅も鉛も変色しなかった。
- EVOH袋で2重にパックしてLabCへ搬送



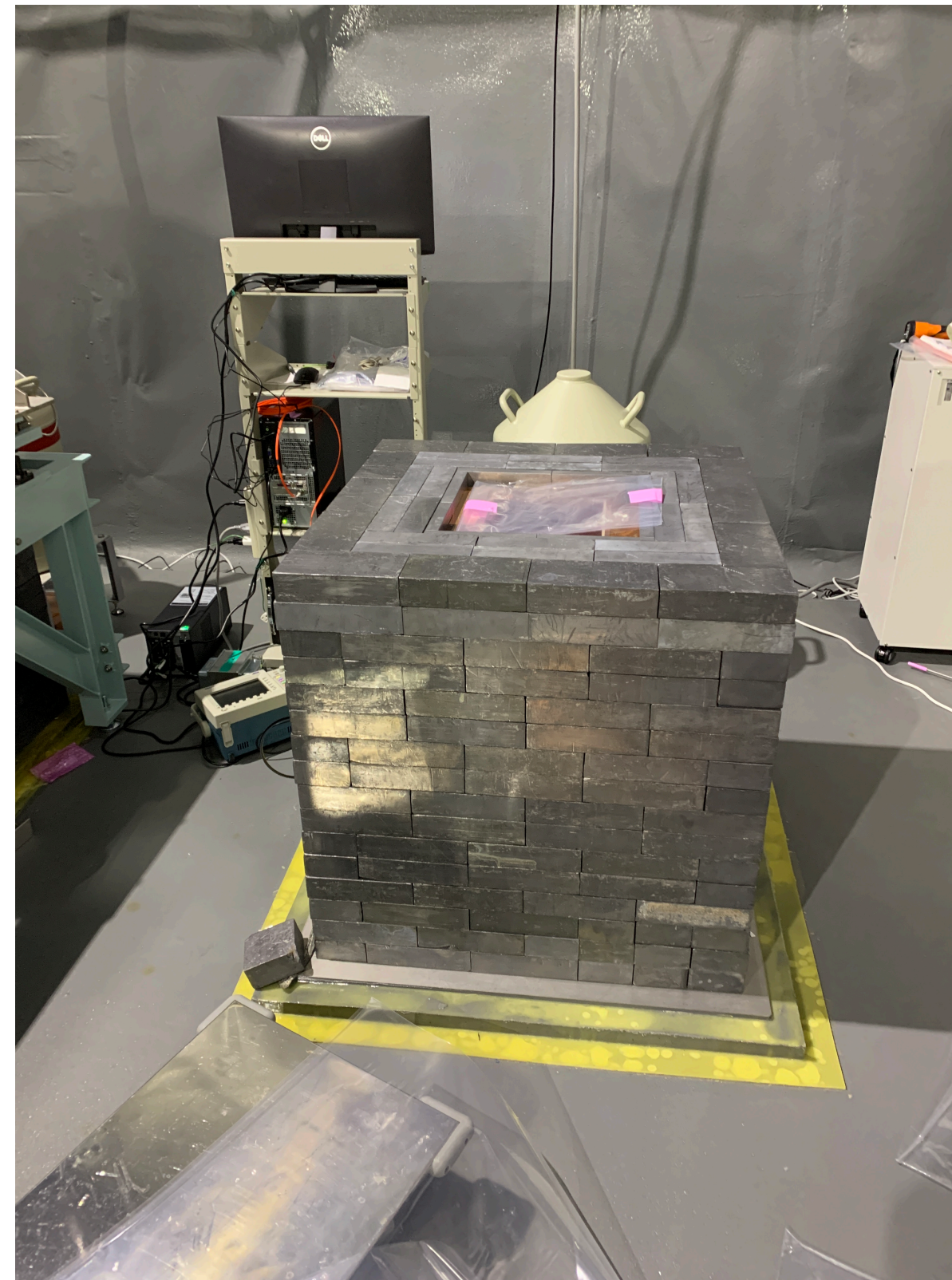


# 遮蔽体組立時の写真

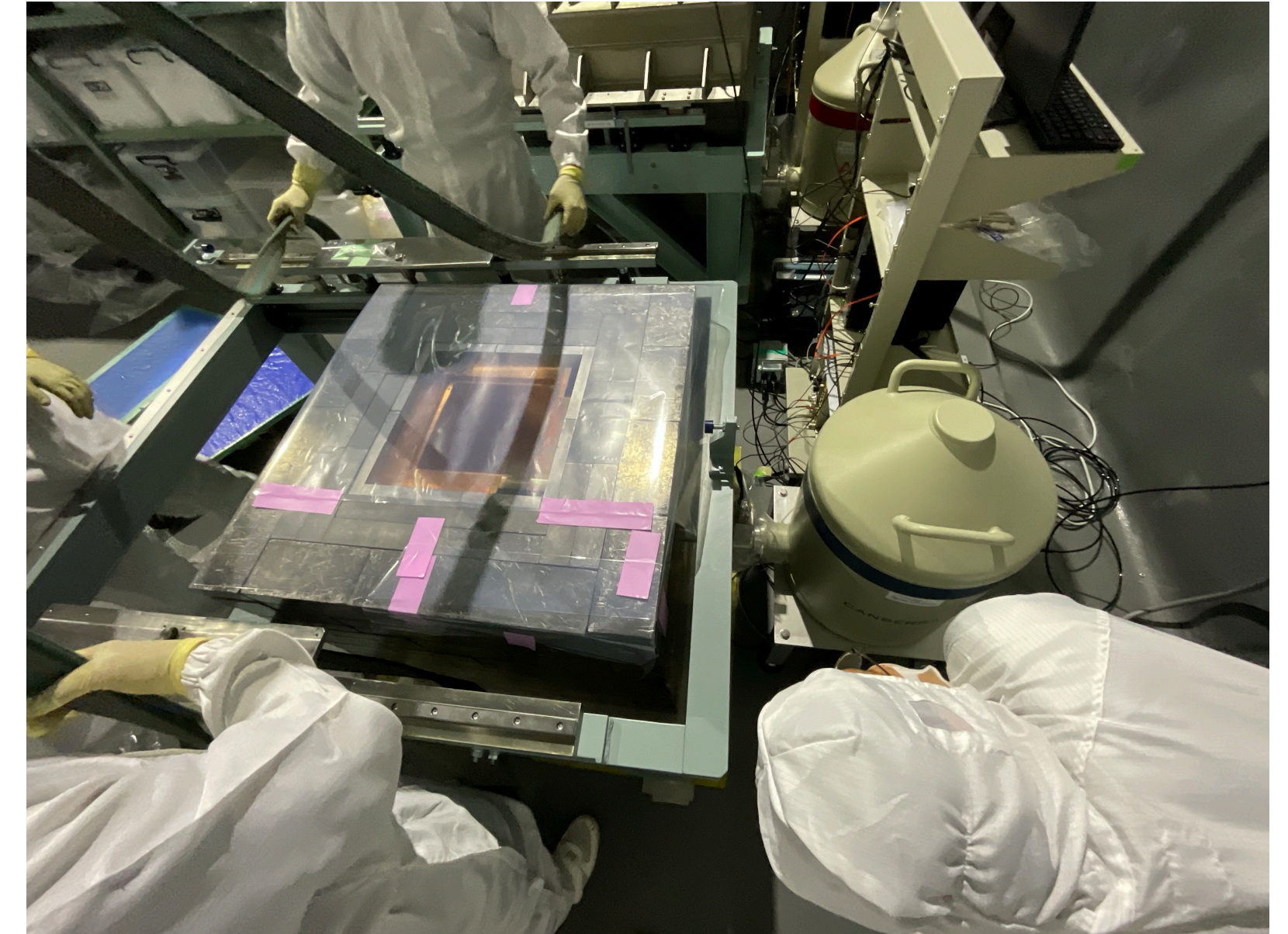


この編み線 (NIMクレートのGNDとGe検出器台座のSUS板を結ぶ)  
がなければベースラインが不安定で100 keVしきい値が限界  
この編み線のおかげで約10 keVのしきい値を達成

- 仮置き of 遮蔽体を一度崩して(左)、300個くらい鉛ブロックを一日で積み上げ (東大細川さん, 東北大池田さん, 横国大鈴木さん他皆様のご協力のおかげ)



開閉機構土台部分の設置 (MESCO)

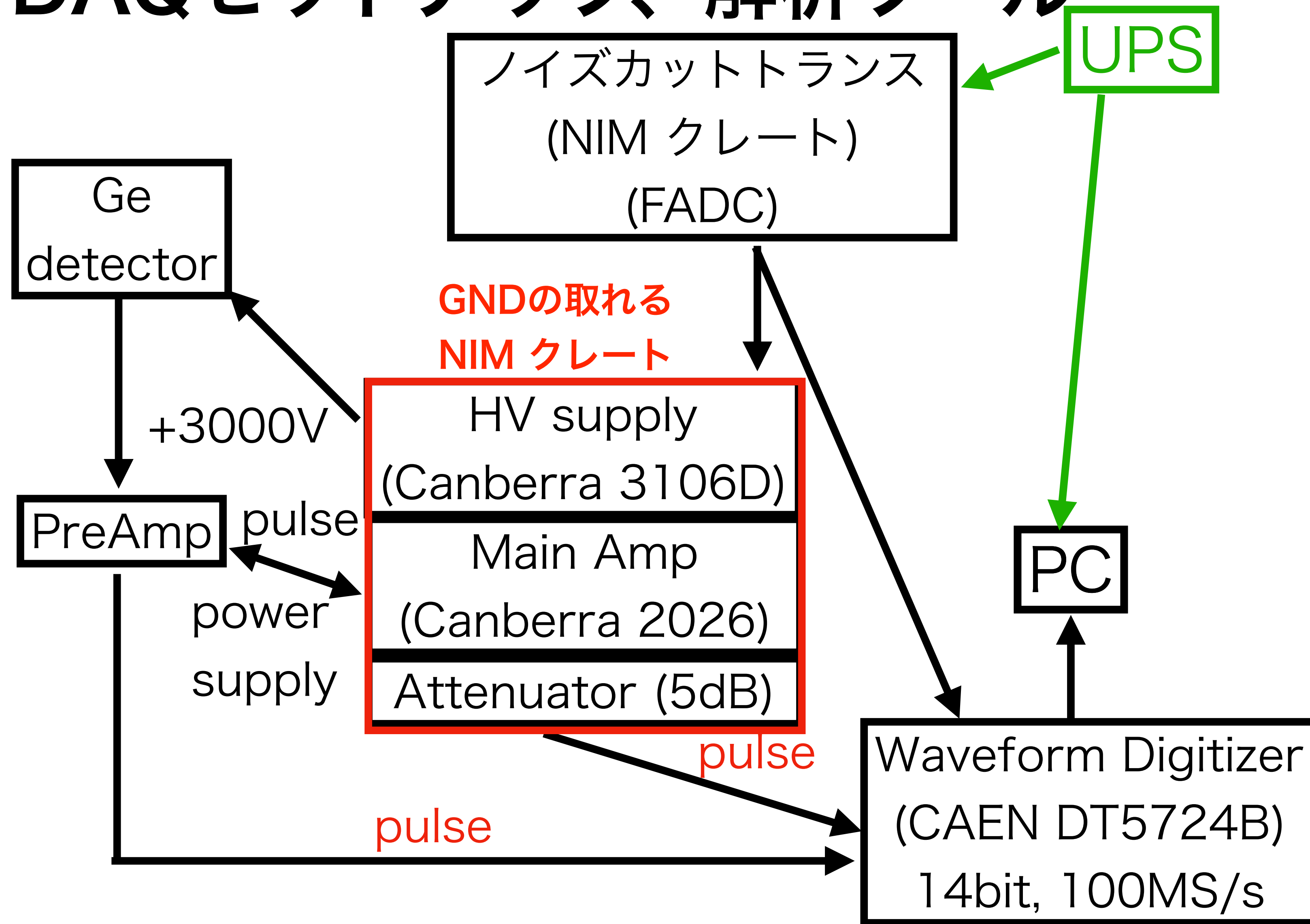


開閉機構蓋の設置 (MESCO)





# DAQセットアップ、解析ツール



Rn free Air は5 l/minで流している

- MainAmp Gain : 10(Coarse) x 0.8 (fine), Shaping time :  $6\mu s$
- 1号機との違い(自分が知る限り) : ノイズ除去のためのUPS、GNDの取れるNIMクレーンを導入
- 波形記録 : CAENのWaveDump (v3.8.2、UnixTimeを記録するよう修正)を使用 : Main AmpとPreAmpの波形を記録

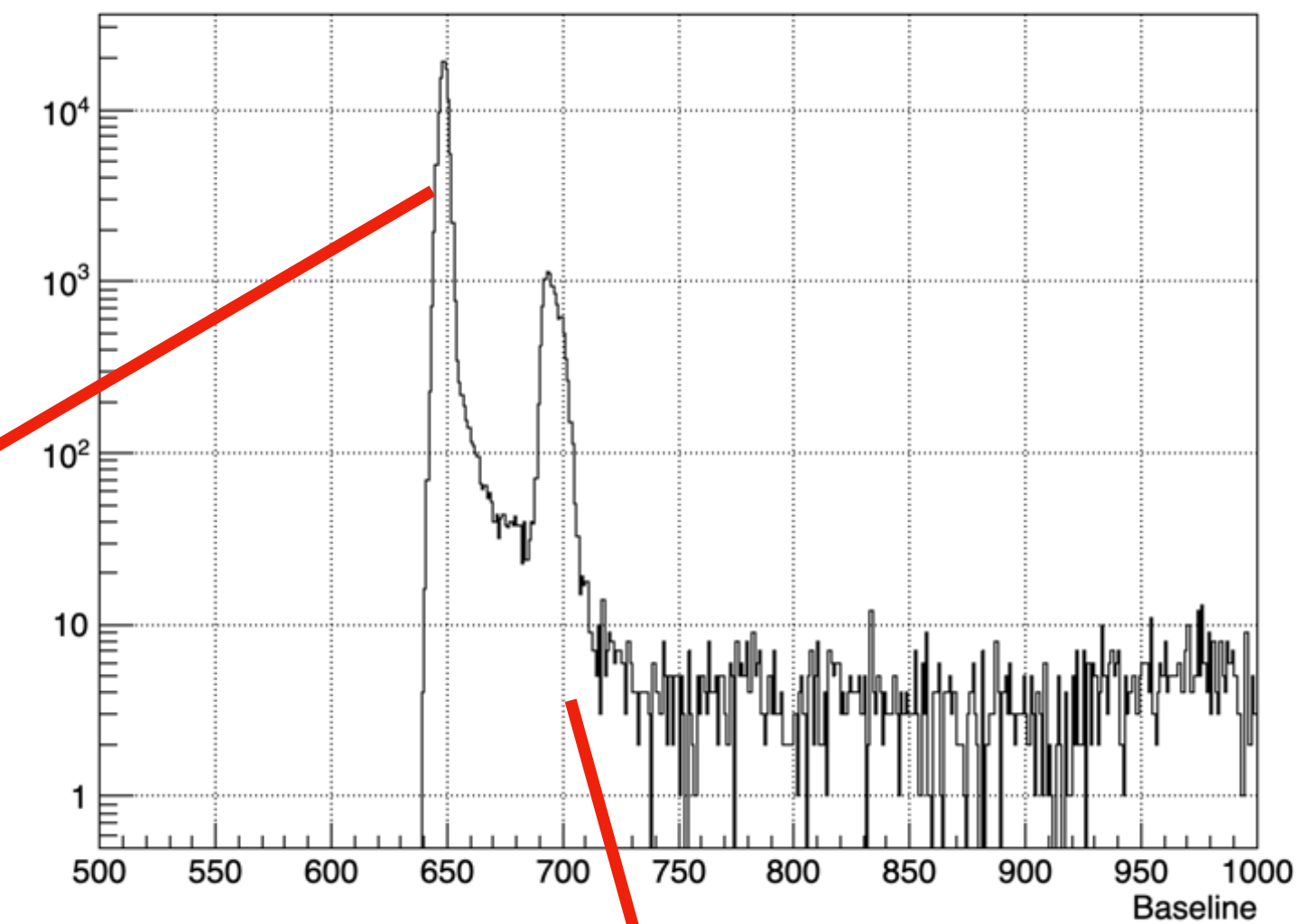
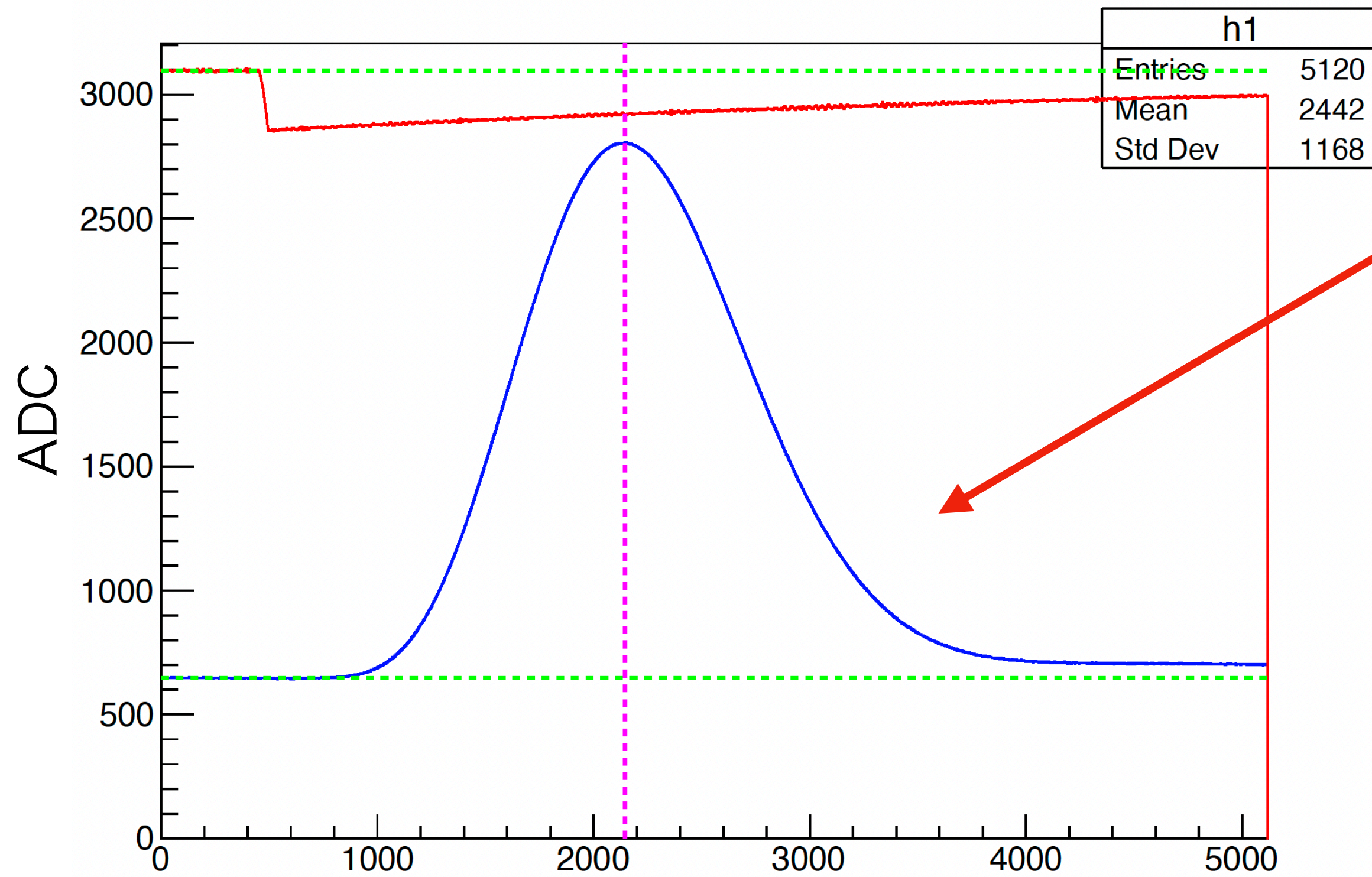


# 解析手法

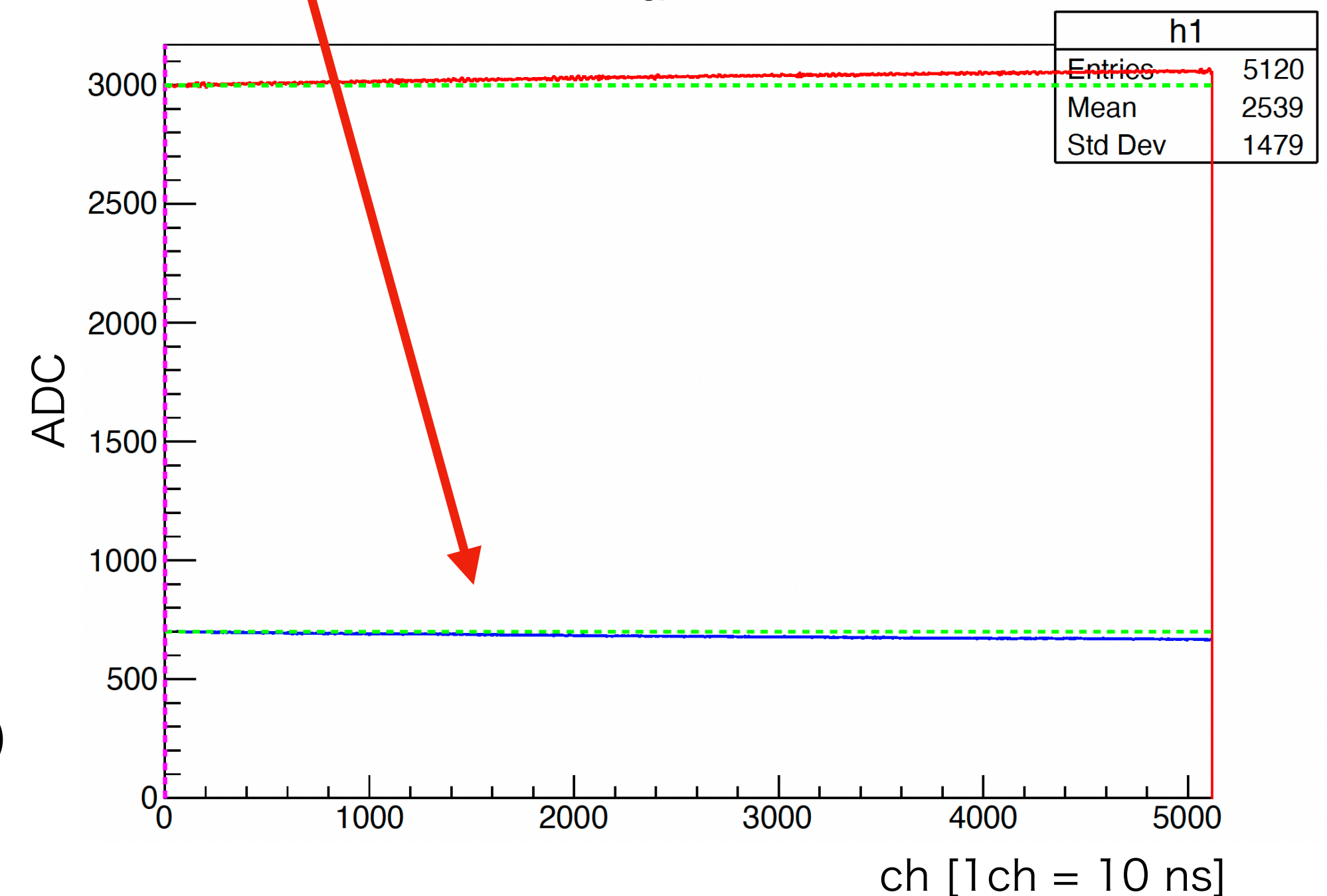
ベースラインの分布 ( $^{133}\text{Ba}$  Calibration run)



EventNumber = 36, Energy = 384.7 keV, BaseLine = 648.0



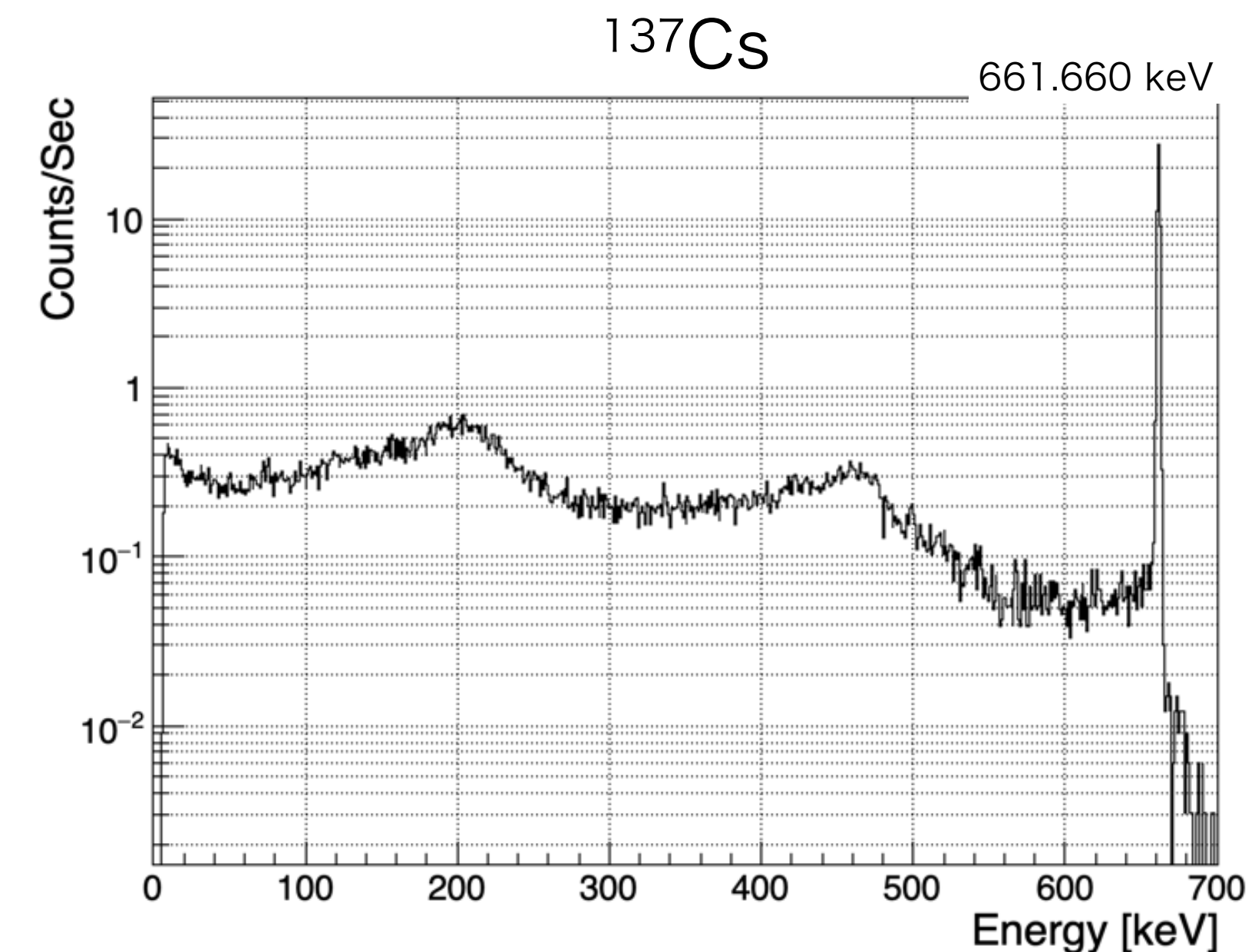
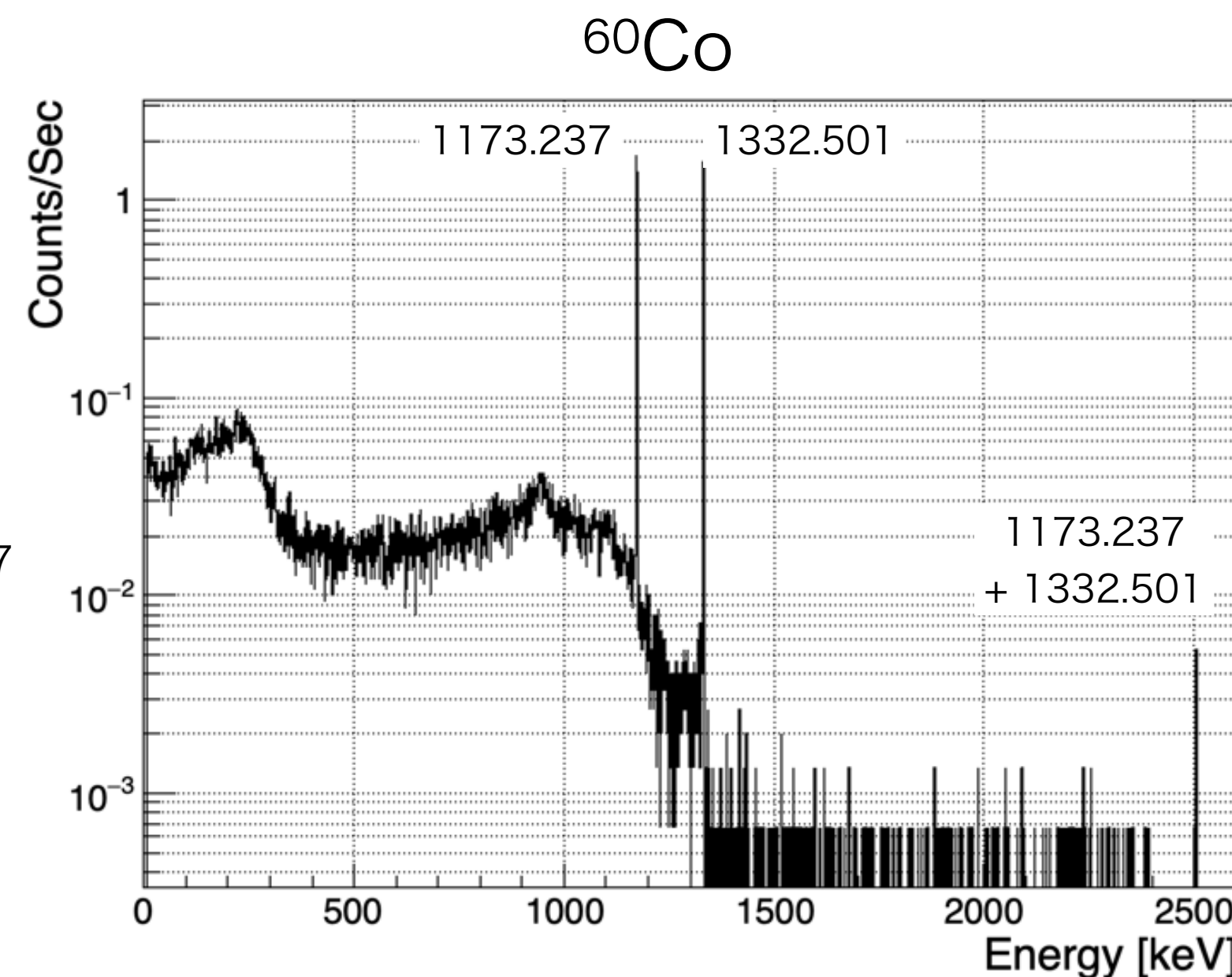
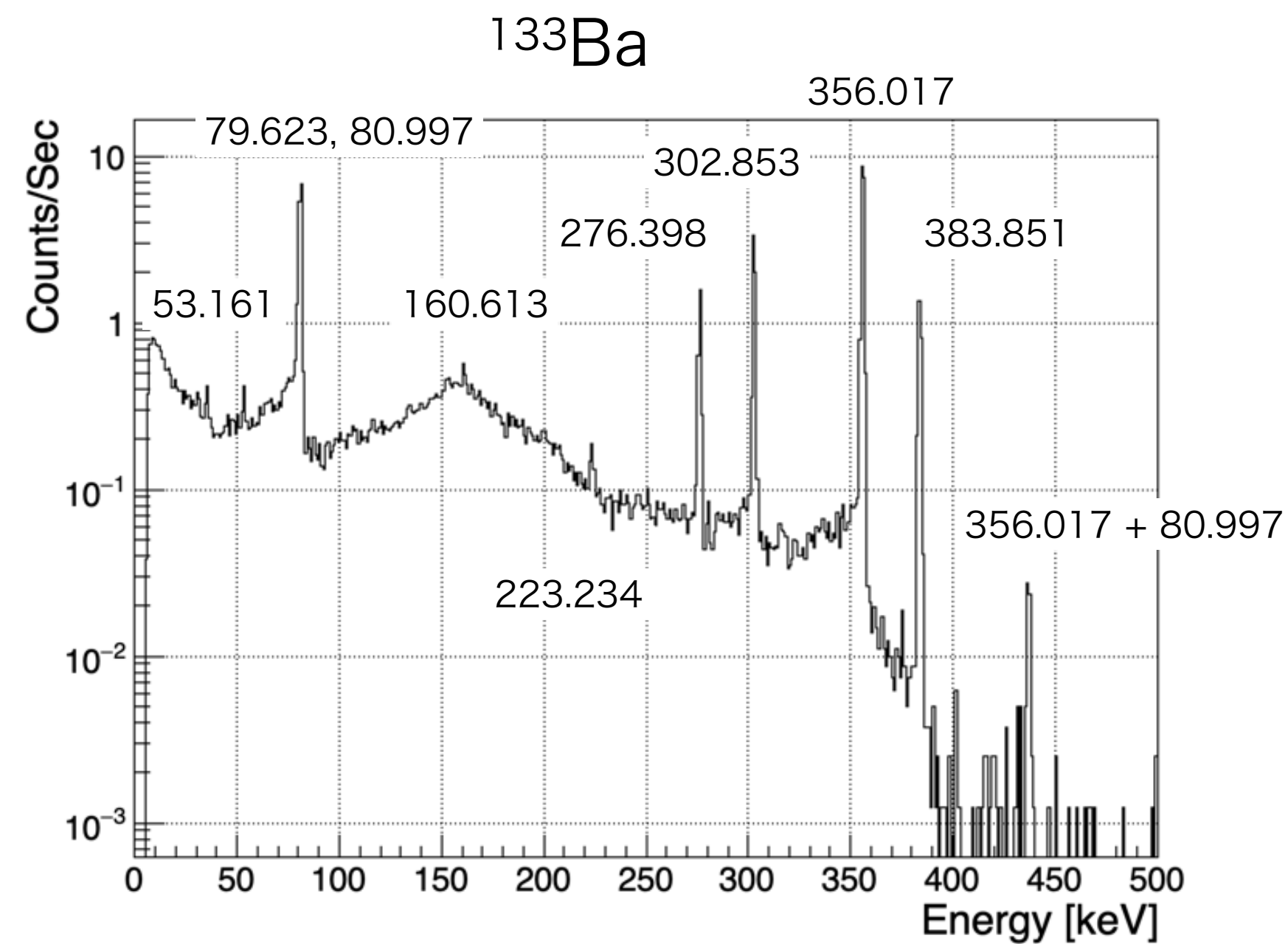
EventNumber = 37, Energy = 0.5 keV, BaseLine = 699.3



- ・ 単純に最初の200 ch ( $2\mu\text{s}$ )の平均値からベースラインを求める
- ・ ベースラインは650に来るように設定 (しきい値は690に設定)
  - ・  $640 < \text{Baseline} < 660$ のイベントを解析に使用
  - ・ 直前のイベントのtailをひっかけたりしている(通常ランでは頻度的には問題無い)
- ➡ Shaping timeの補正、サンプリングレート・ゲート幅の最適化
- ・ ベースラインと波高の最大値の情報を用いてエネルギーを計算

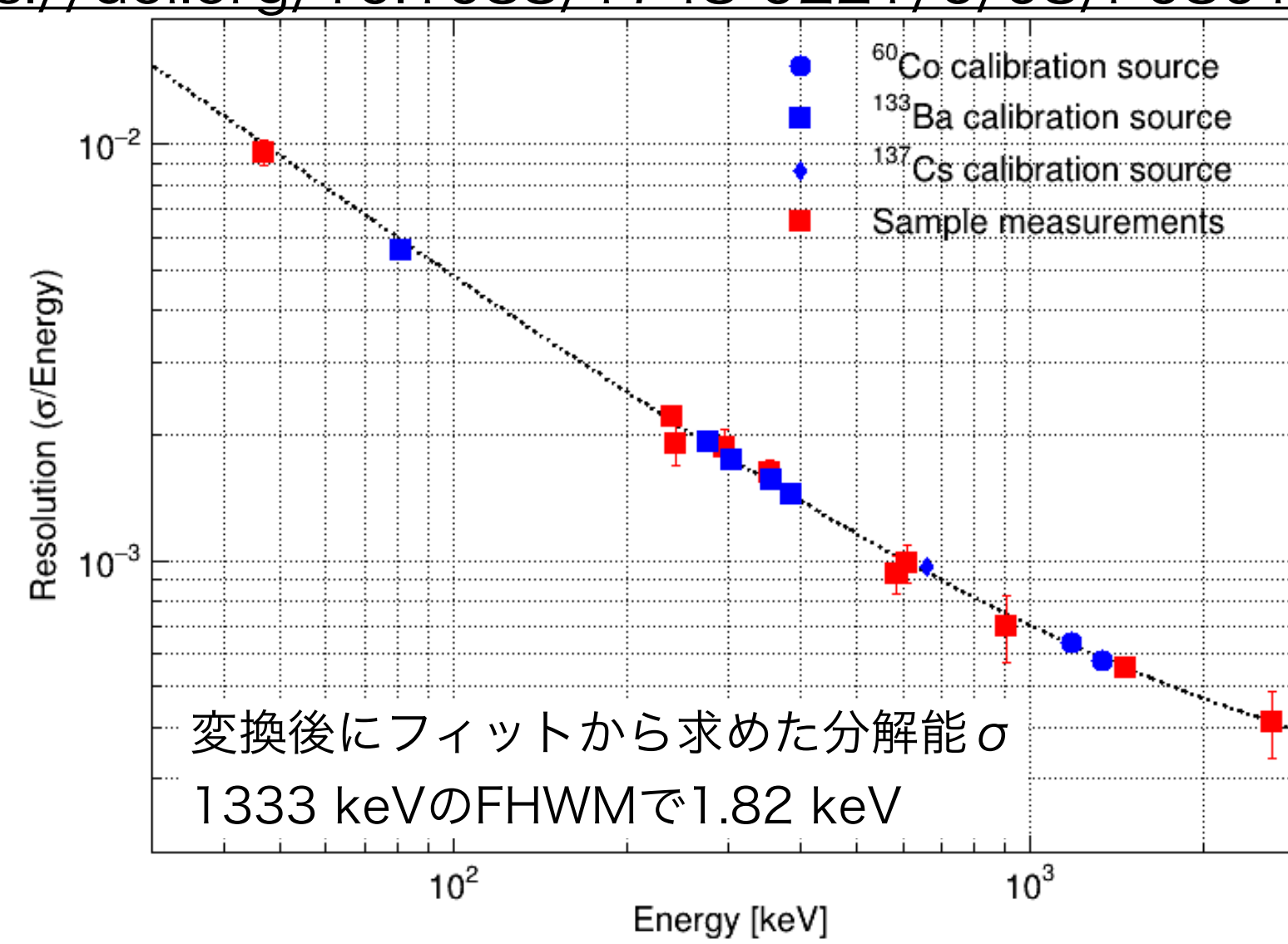
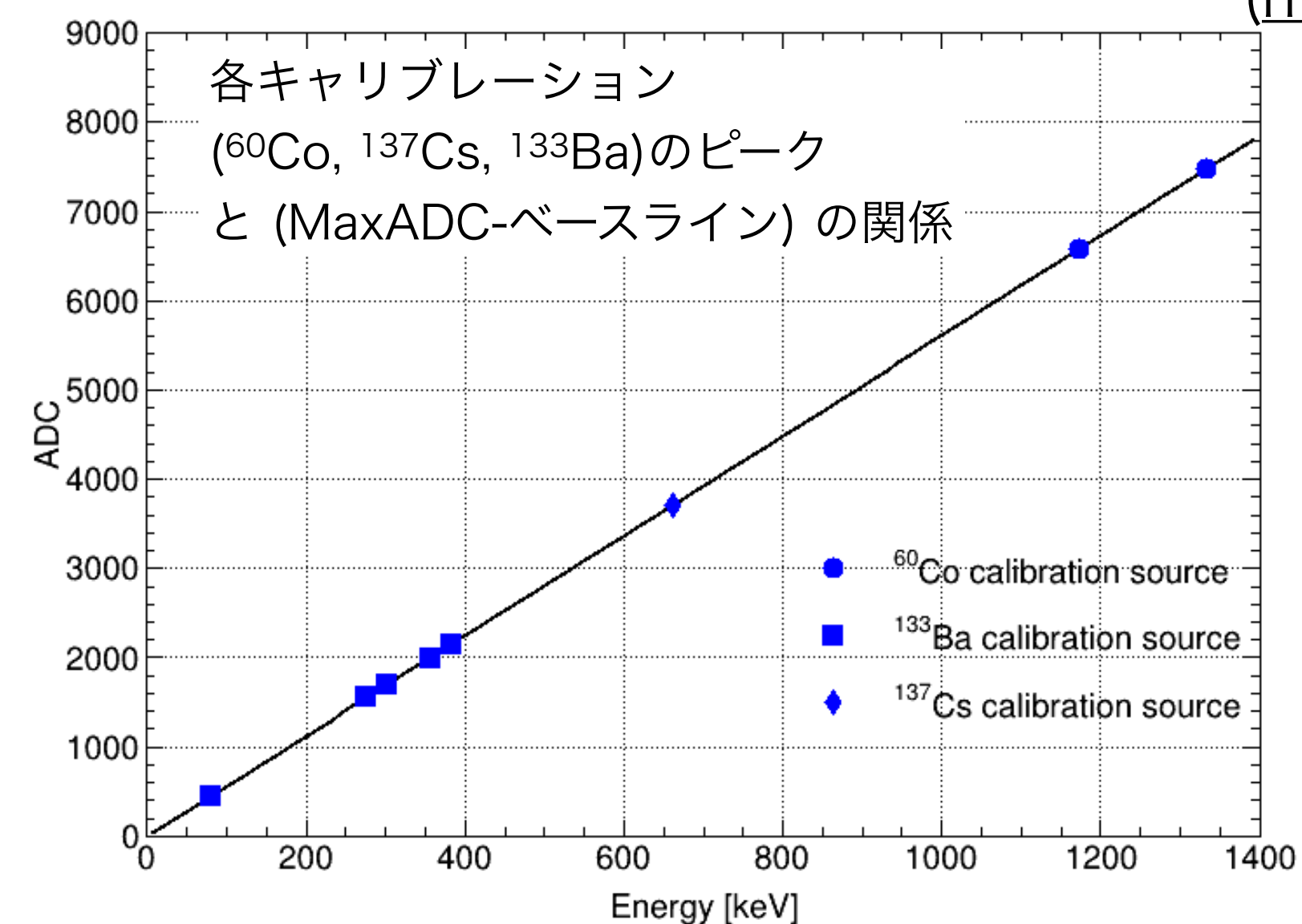


# Calibration runの結果

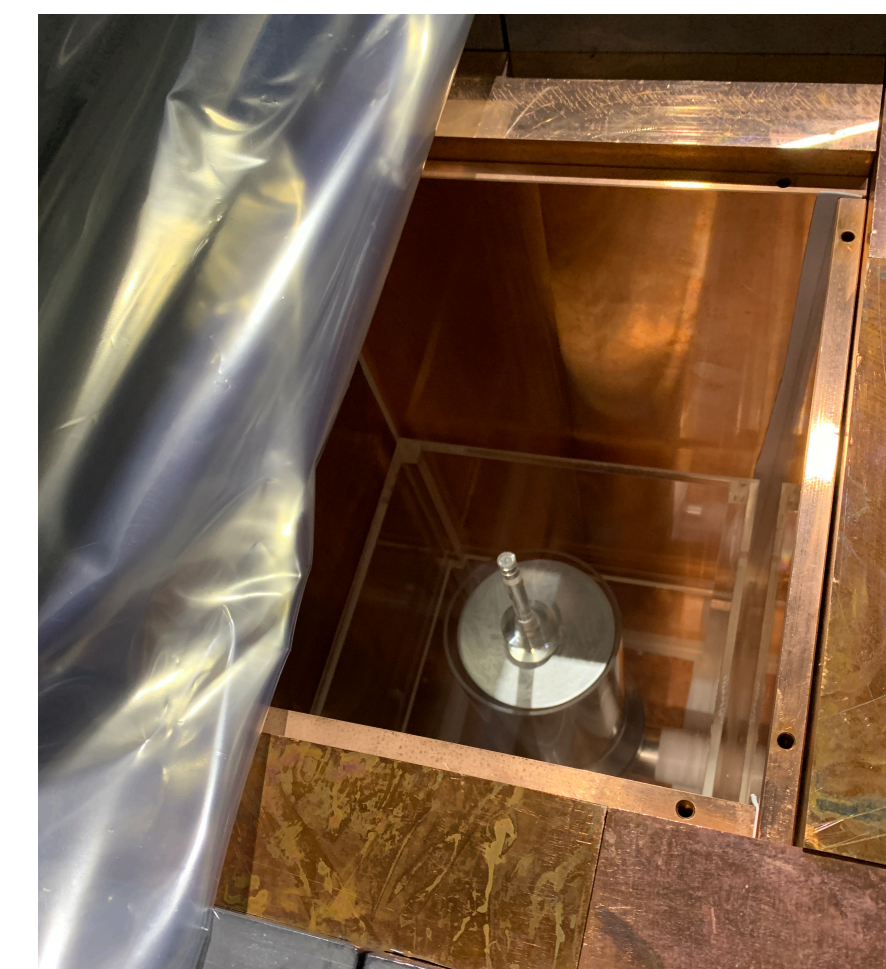


$$\sigma^2(E) = (4.95 \times 10^{-8})E^2 + (2.31 \times 10^{-4})E + 2.09 \times 10^{-1}$$

(<https://doi.org/10.1088/1748-0221/6/08/P08010> を参考に)



線源を検出器軸上に配置  
エンドキャップ表面から  
90.9mm離れた場所に線源部

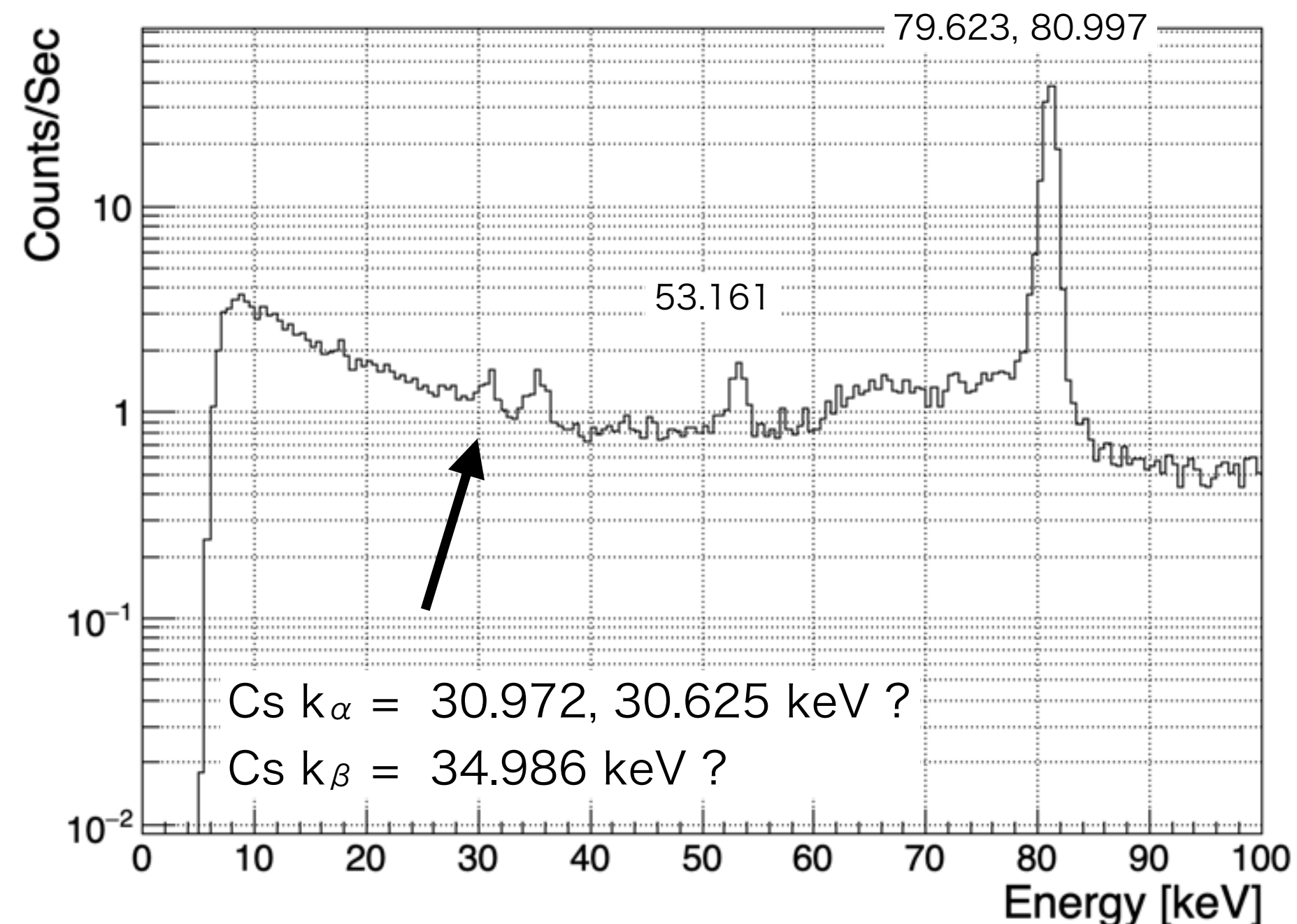




# Calibration runの結果 (低エネルギー部分)

$^{133}\text{Ba}$

(線源は結晶軸上 エンドキャップから13.1mm)

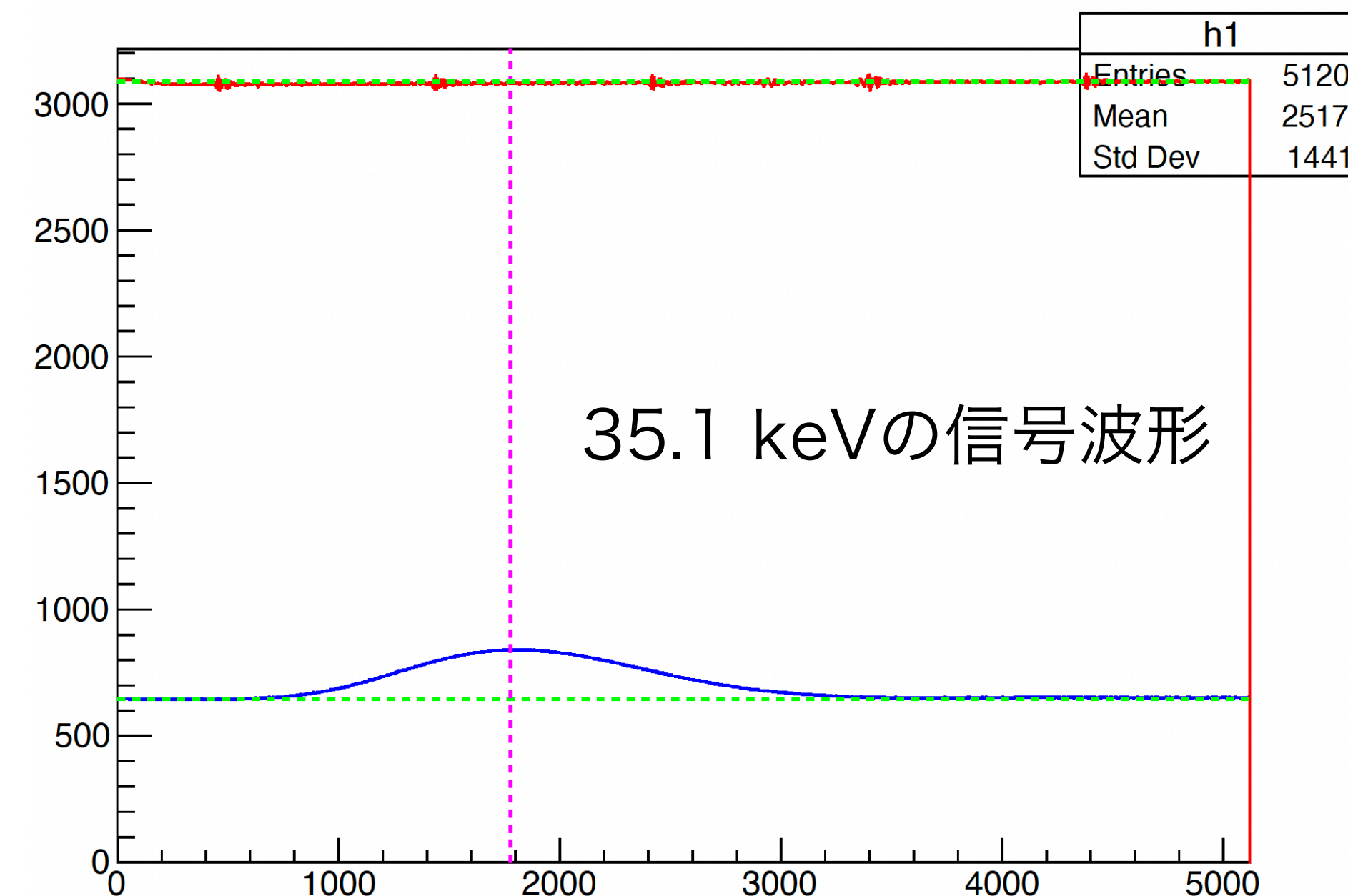


しきい値 : 8 keV ~ 10 keVあたり

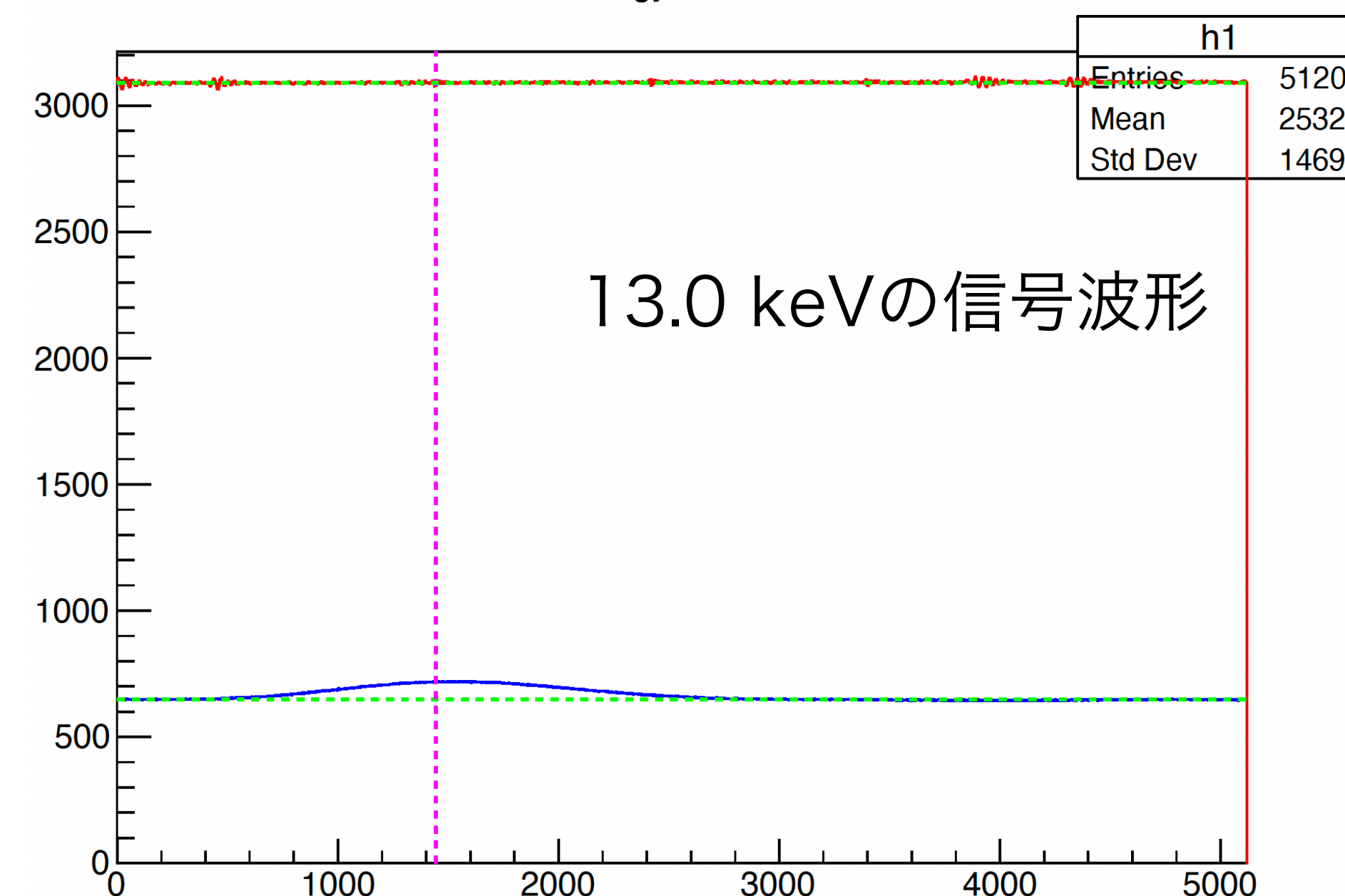
今後 : ①ノイズ事象の除去(サンプリングレート、ゲート幅、Shaping timeの最適化)をした上で5dB attenuator無しの波形も見てみる

② 低エネルギー線源 ( $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{241}\text{Am}$ など)でも応答を評価してみたい

EventNumber = 351, Energy = 35.1 keV, BaseLine = 645.7

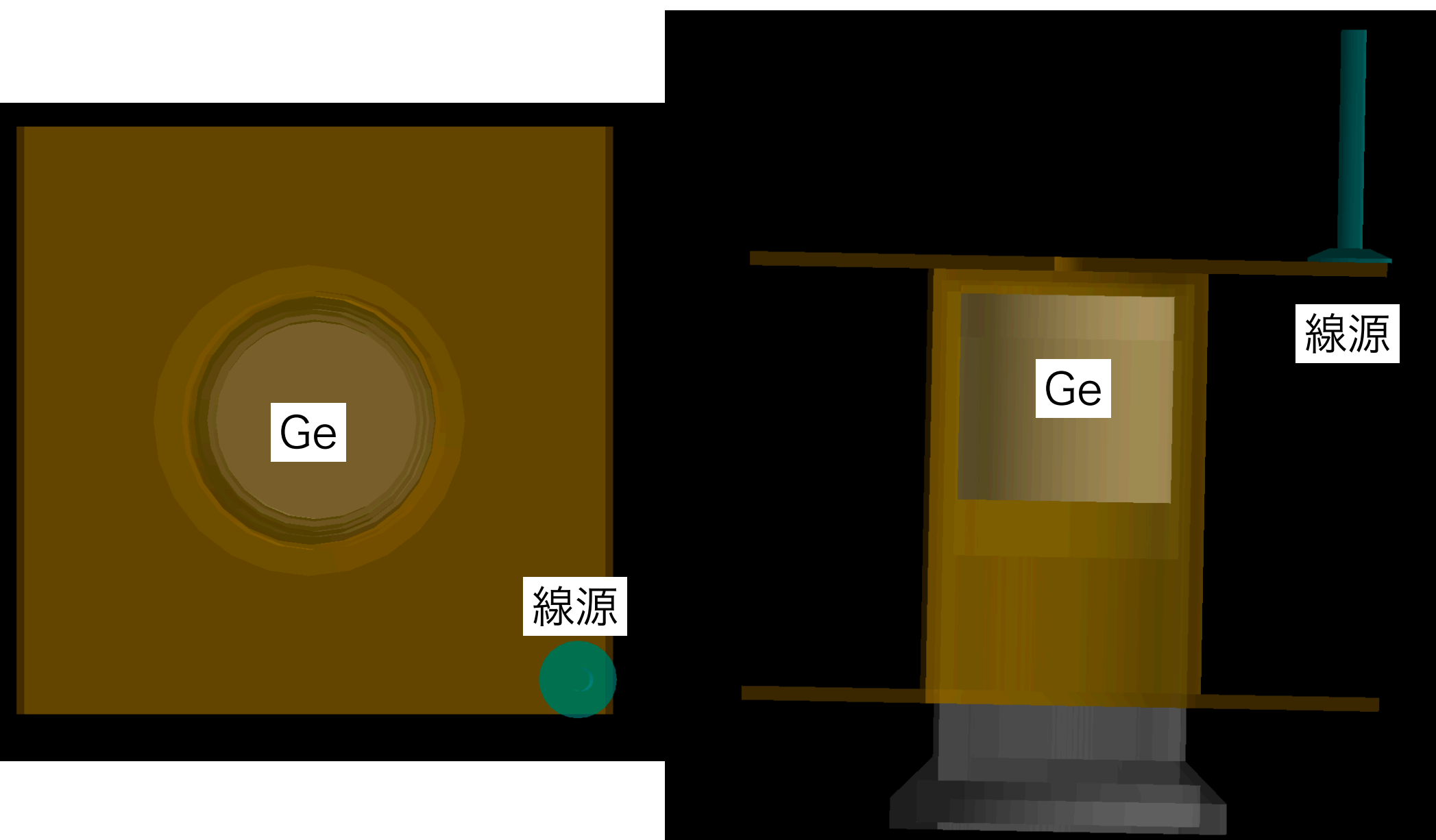
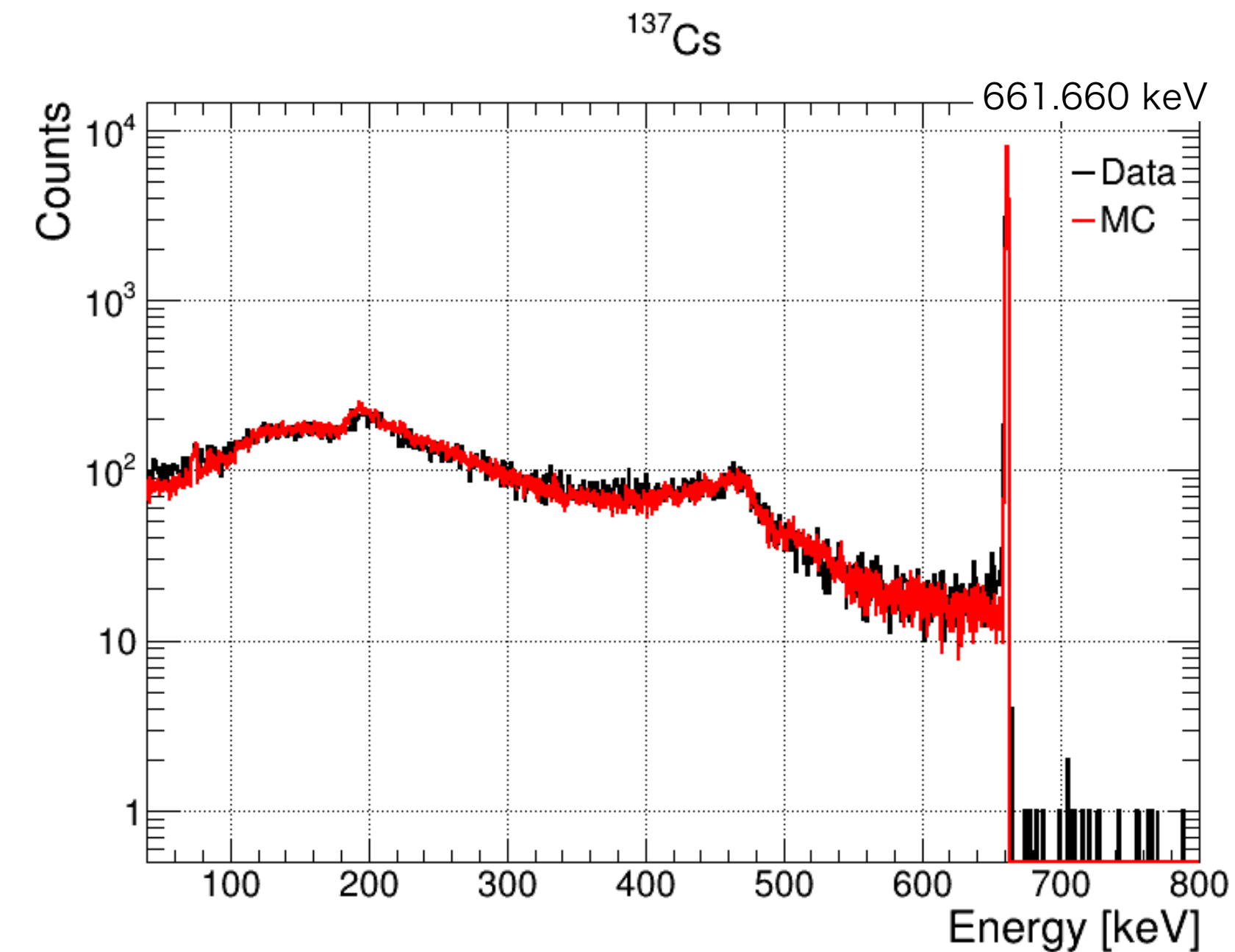
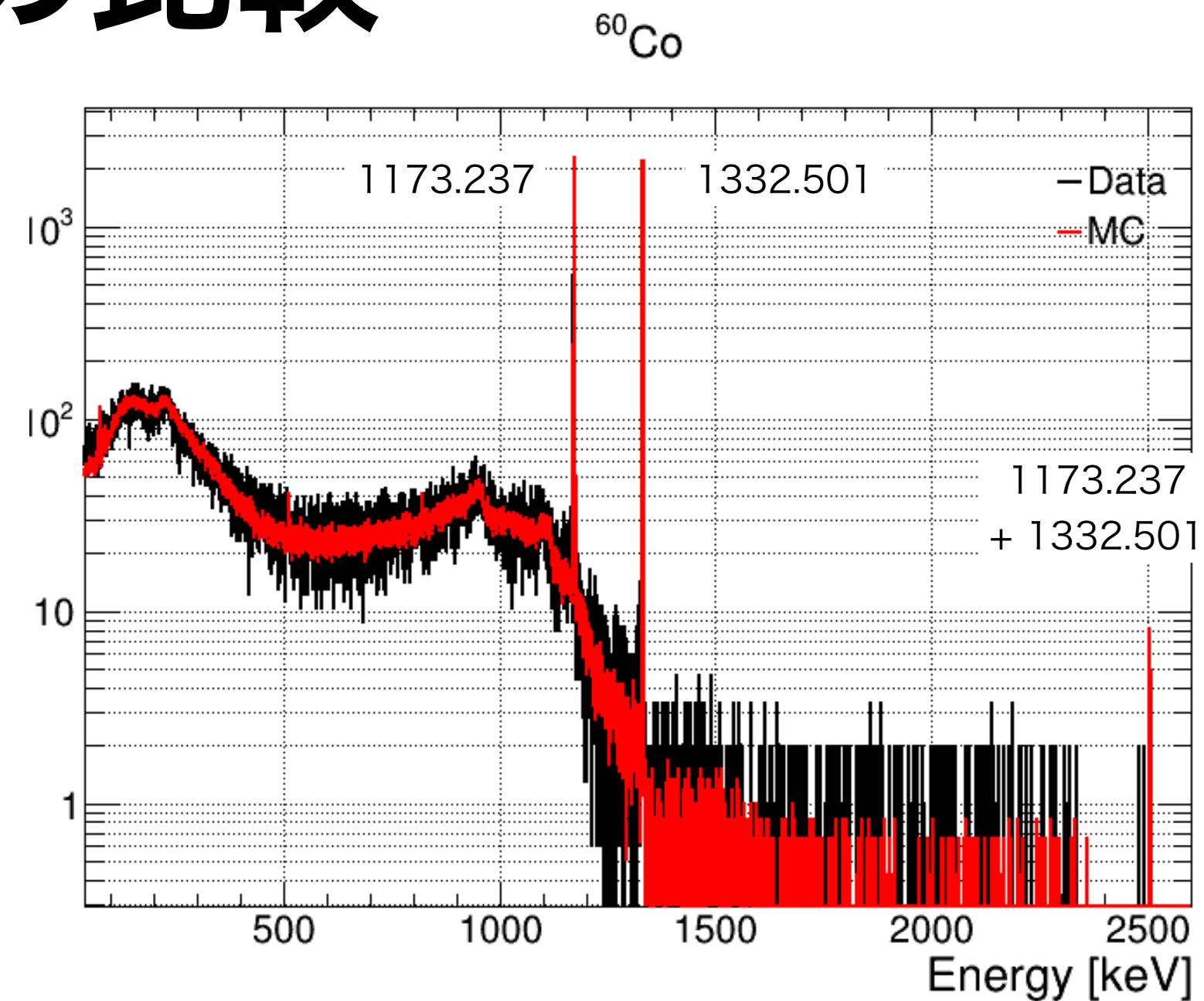
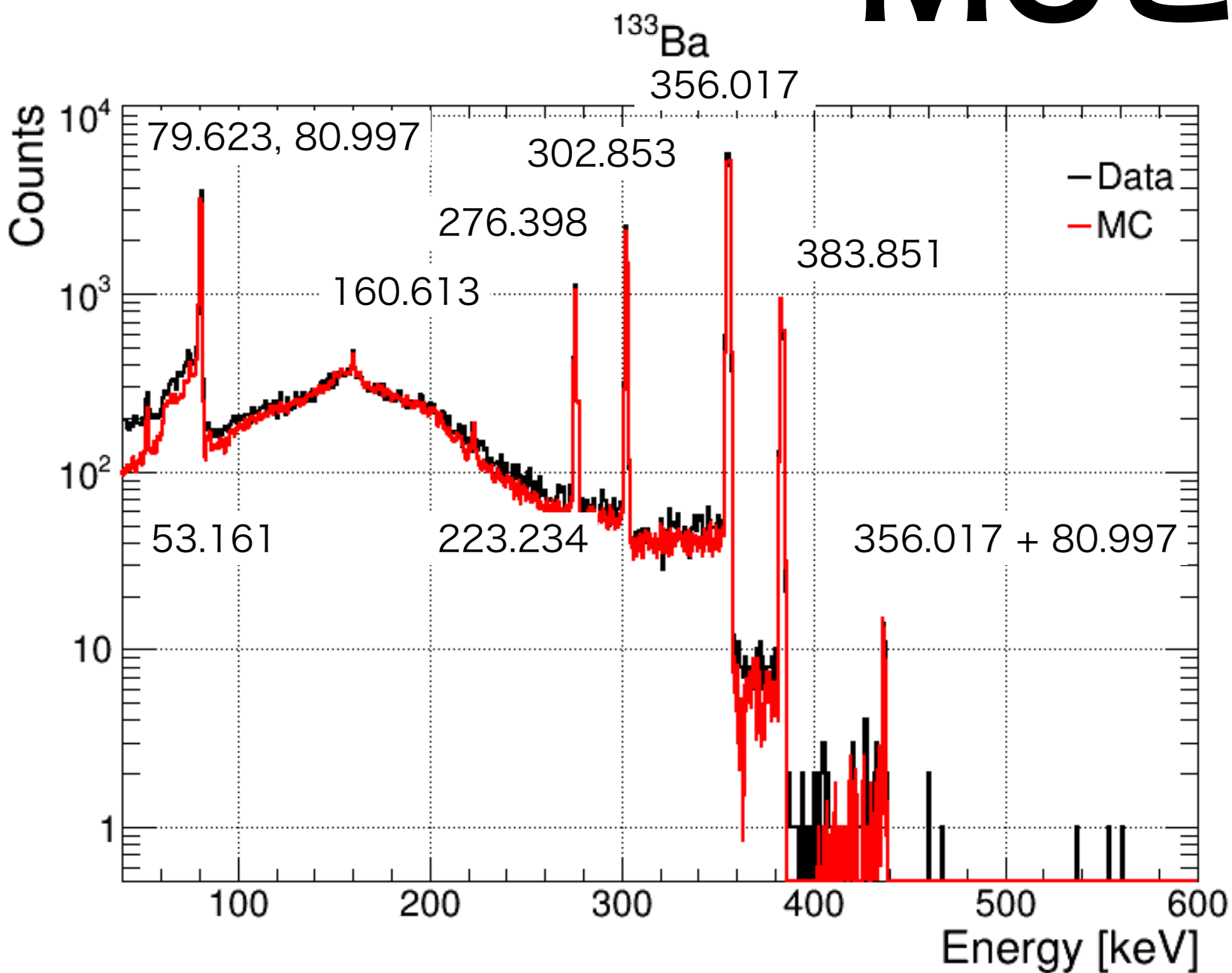


EventNumber = 492, Energy = 13.0 keV, BaseLine = 648.4





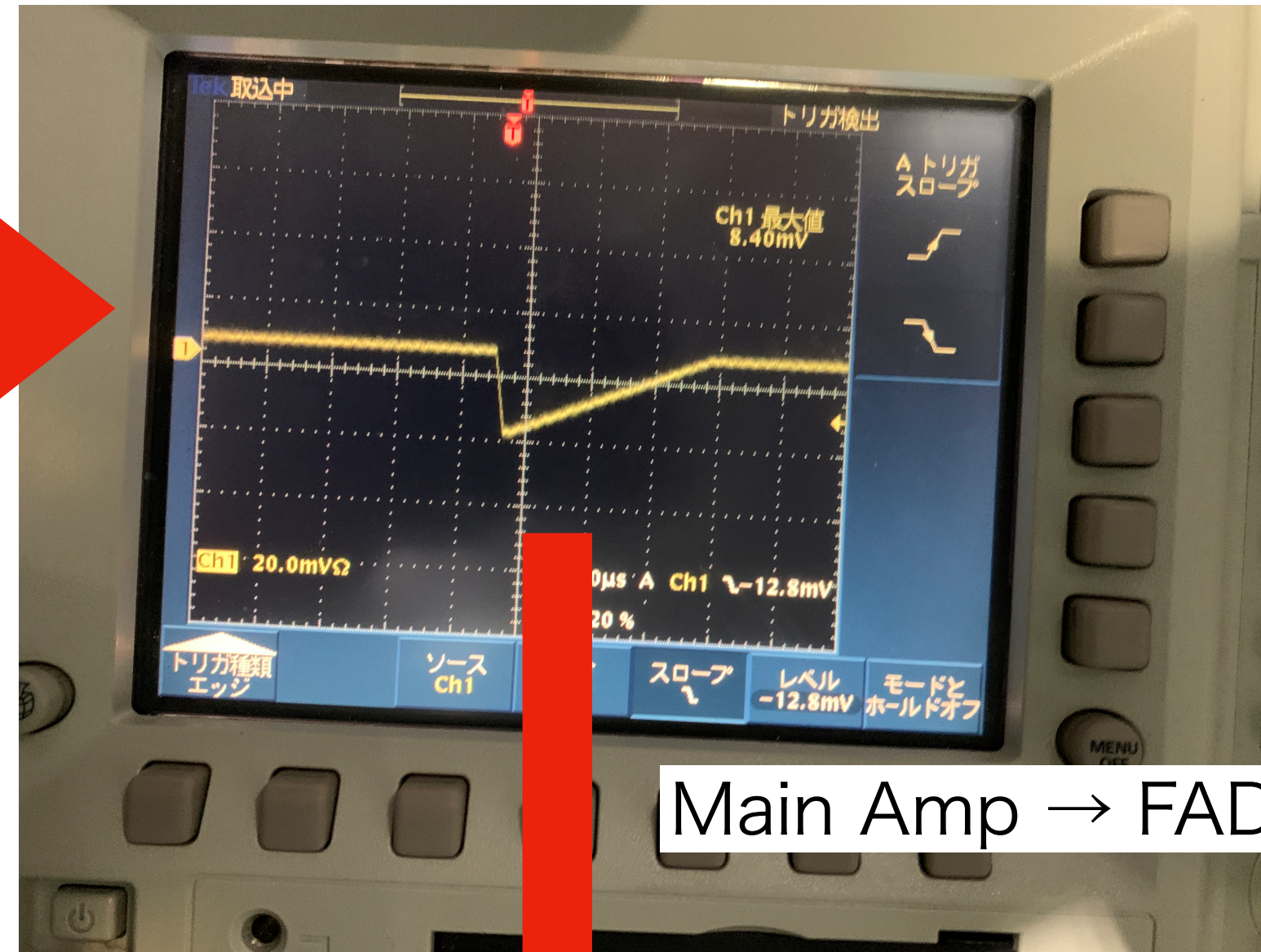
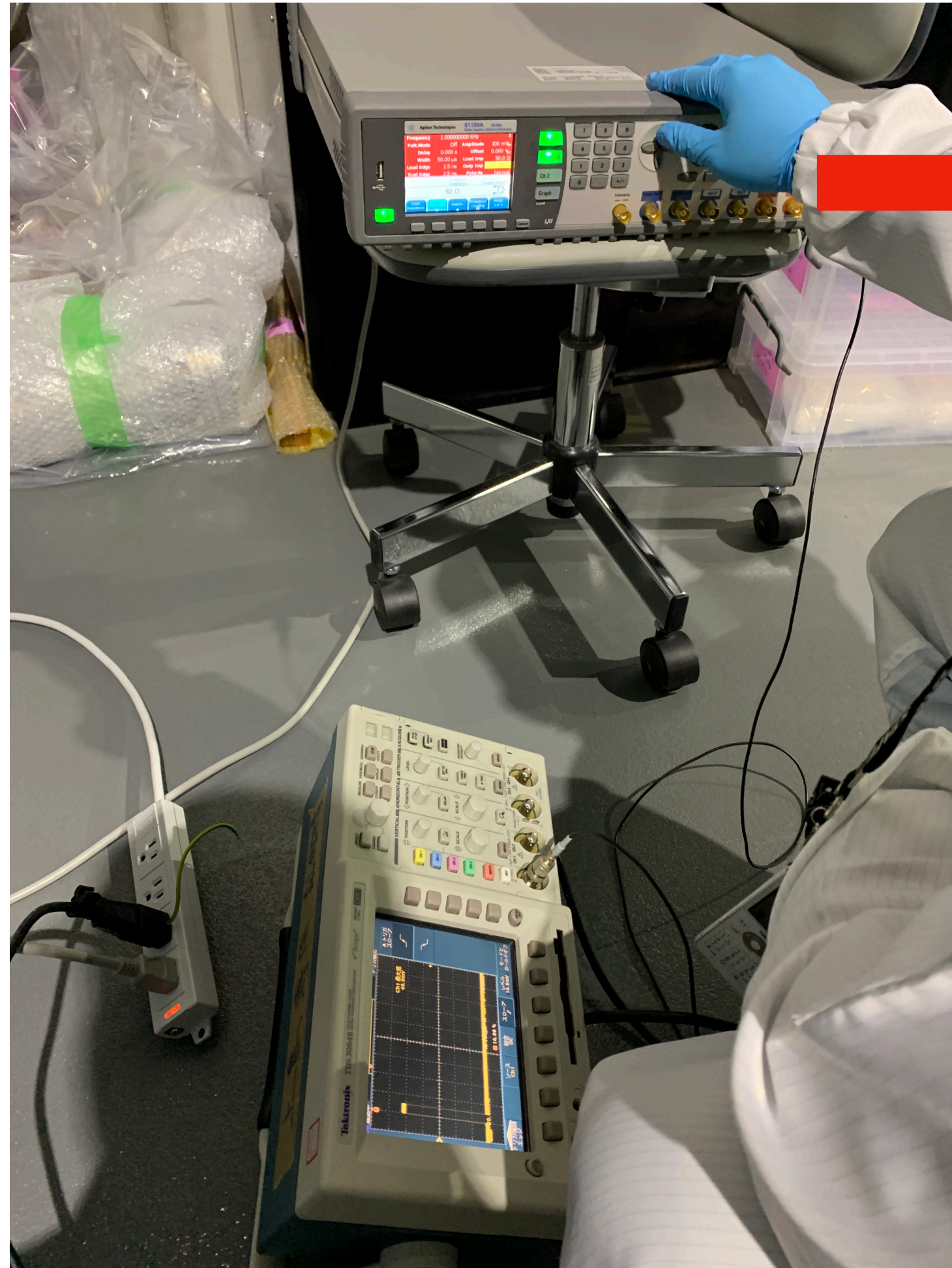
# MCとの比較



- ・ 1号機のHPGeジオメトリを流用
- ・ Geant4はg4.11.00.p03を使用
- ・ エネルギー分解能：データで得られた関数を使用
- ・ アクリル台端に置いた線源データとMCの比較  
全吸収ピークについて ~10% で一致
- ・ 今後：パラメータチューンしてより合致するかも調べる

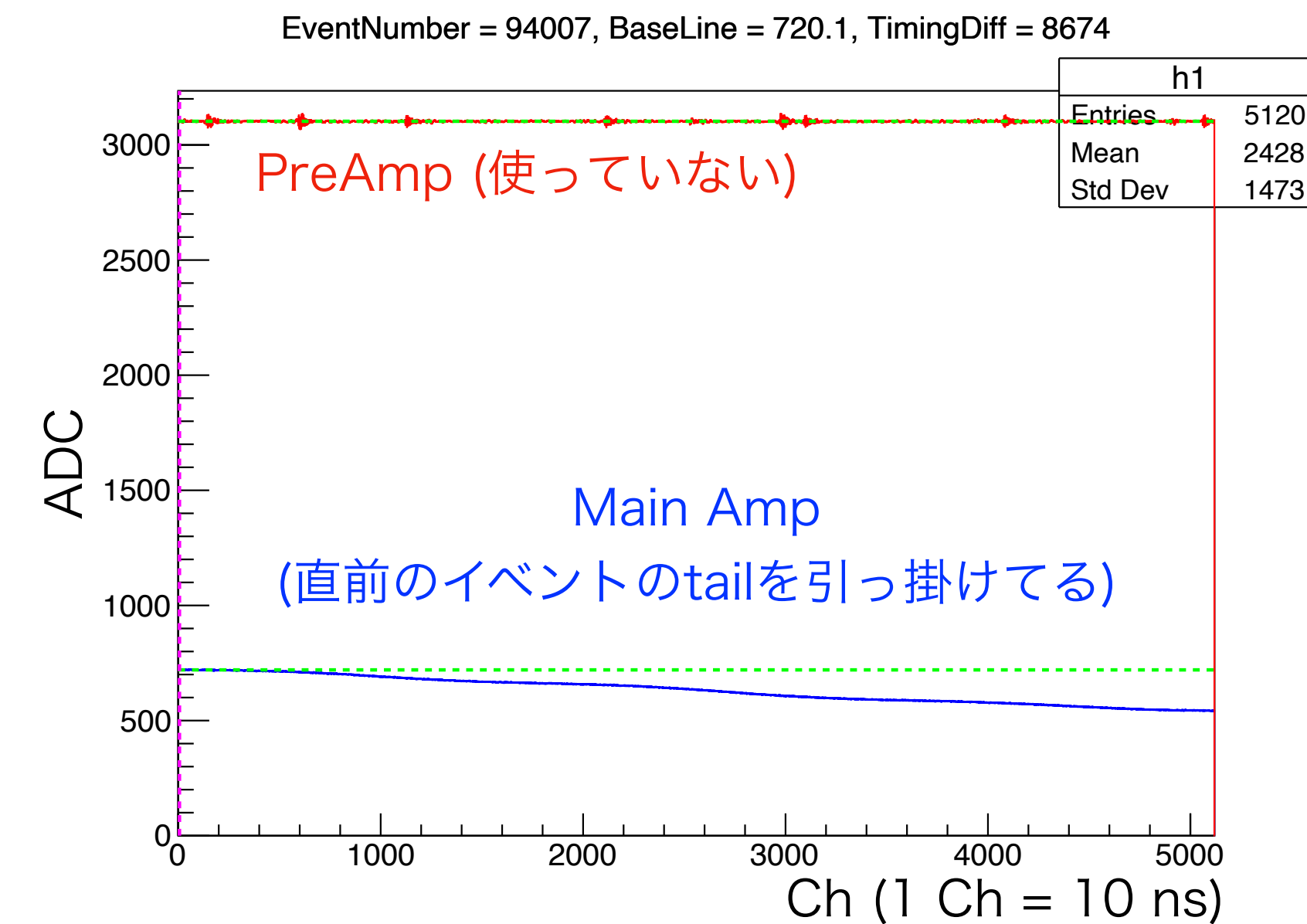
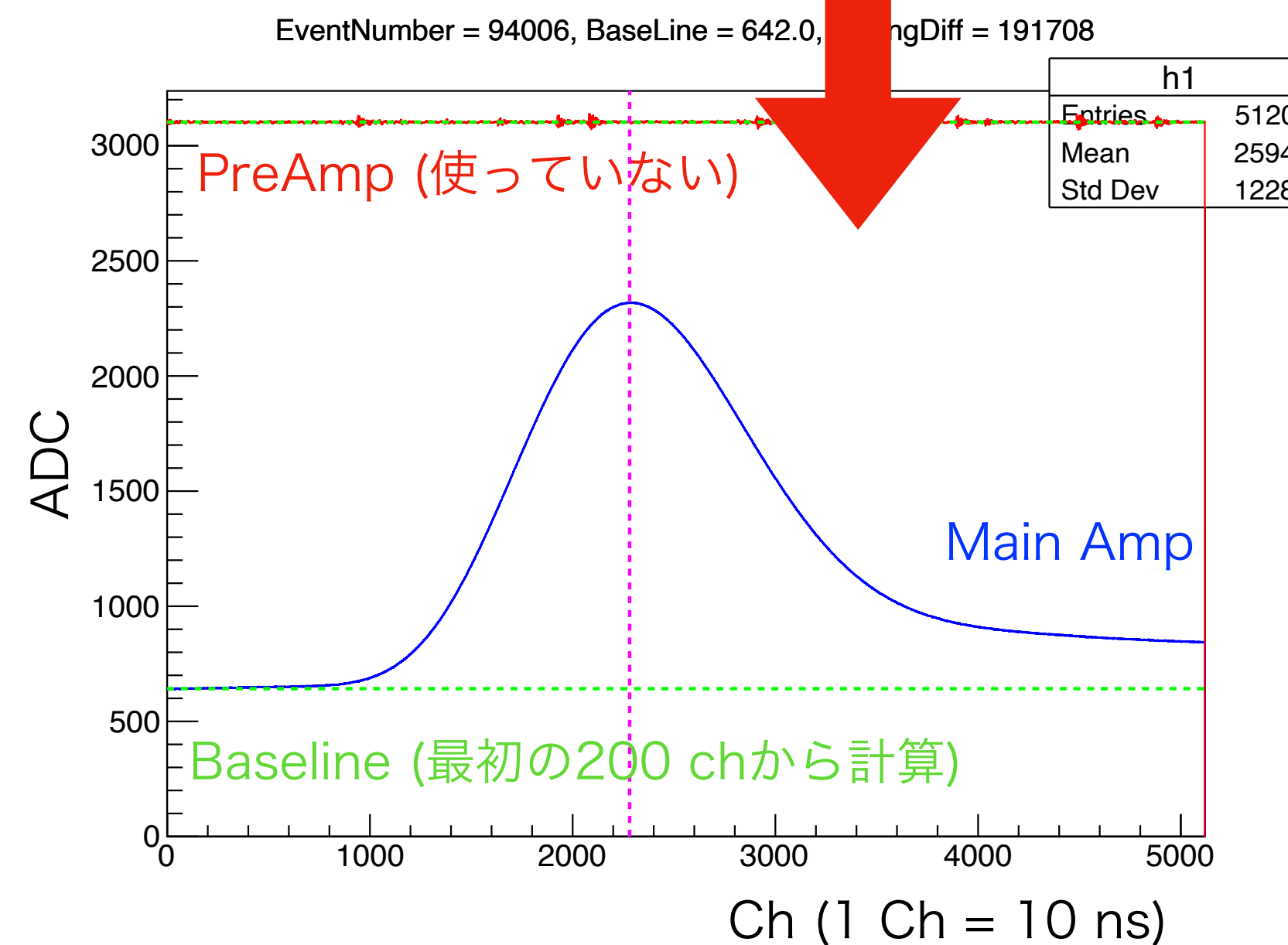


# どれくらいのレートまで取れるのかの研究(1)



オシロで確認

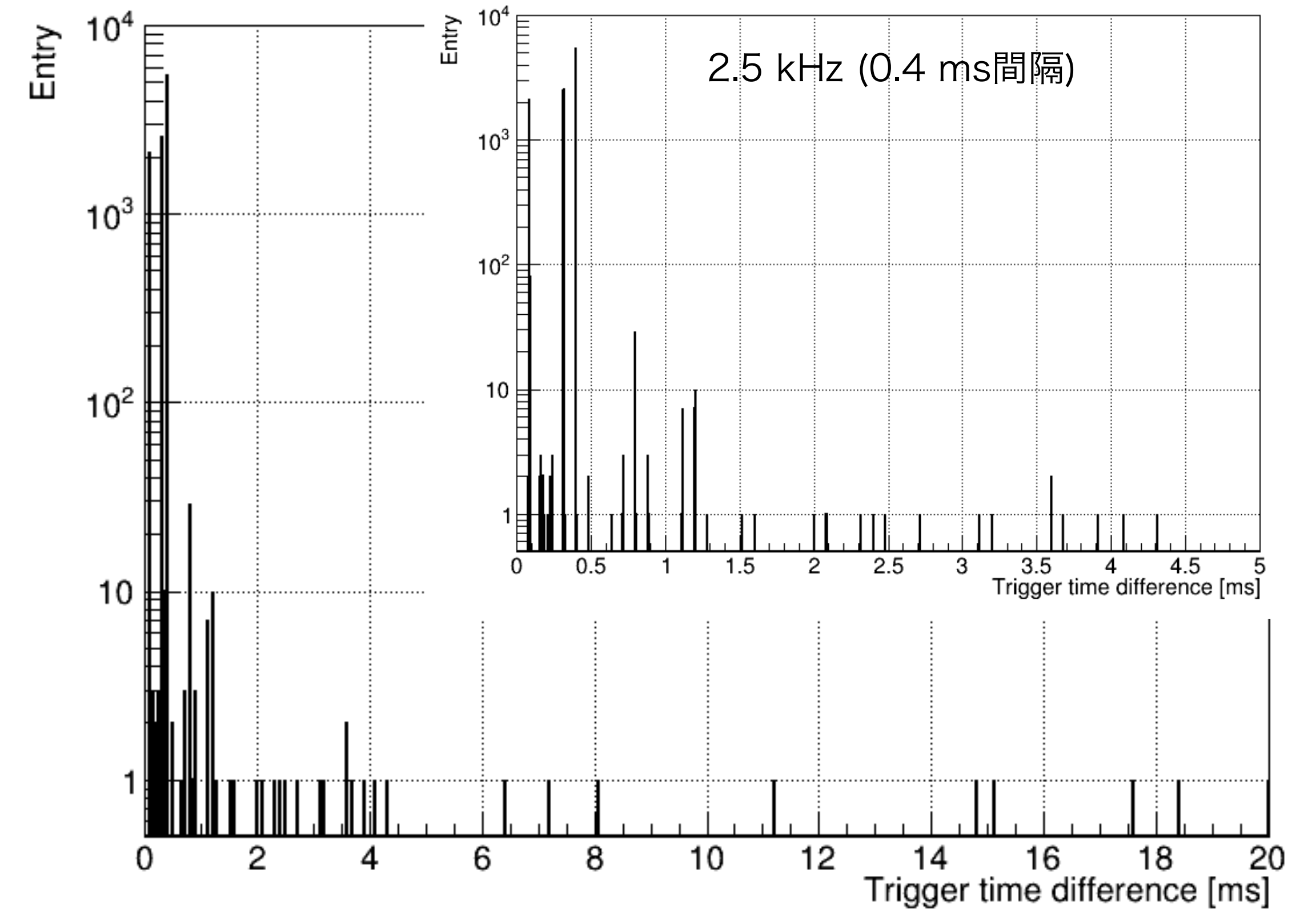
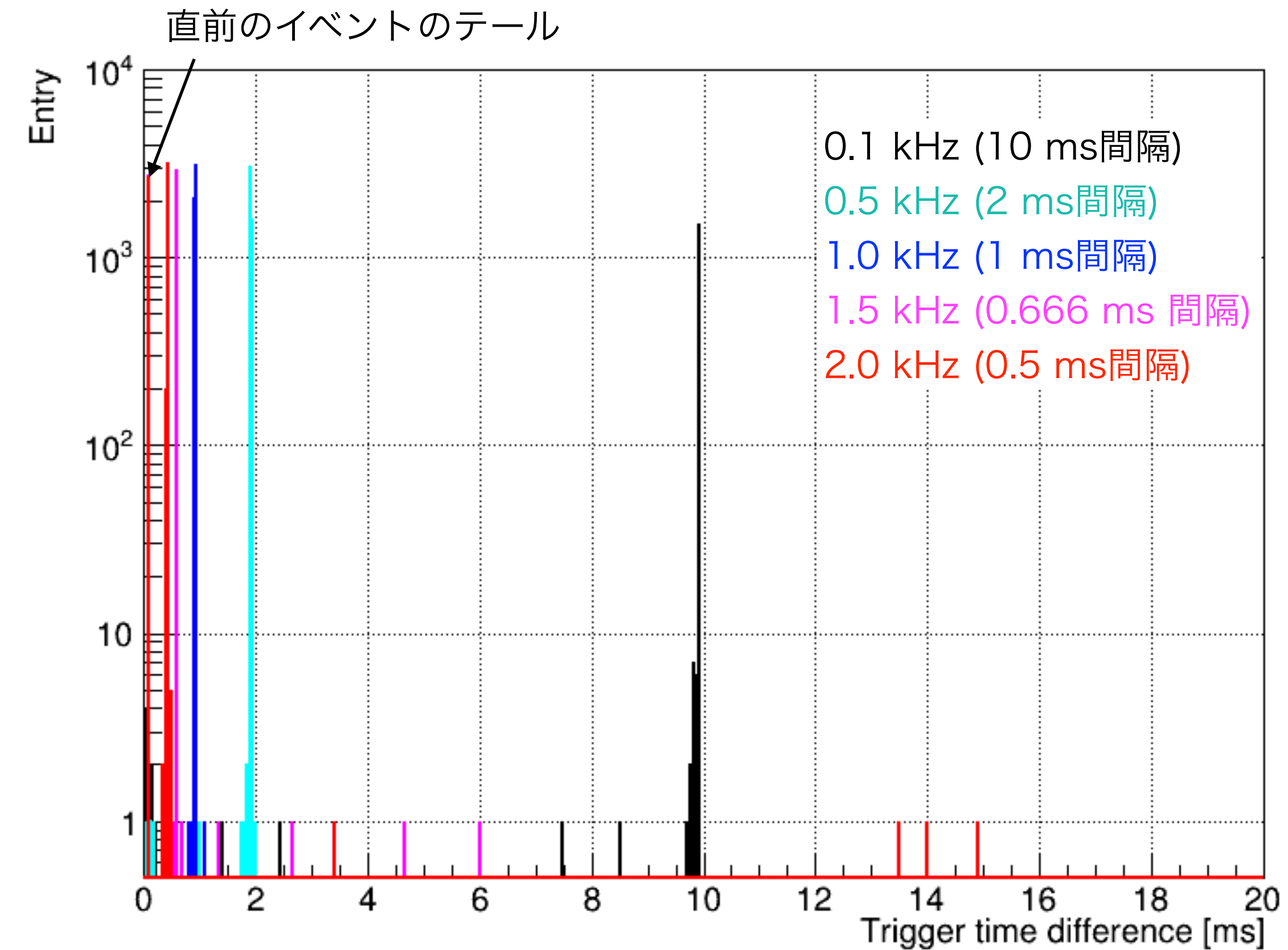
Main Amp → FADCでデータ取得



- Pulse Generatorでプリアンプを通した波形の疑似波形を作成 → Main Ampに通す
- 波形のレートを変えて時間差を見してみる



# どれくらいのレートまで取れるのかの研究(2)



- 2.0 kHzまでは期待通りの時間間隔
- レートが高いと時間差が大きいイベントが稀に来る：buffer full?
- 2.5 kHzからは期待の時間間隔よりも大きいところに来るイベントが顕著： 2 kHzくらいまでが限界？

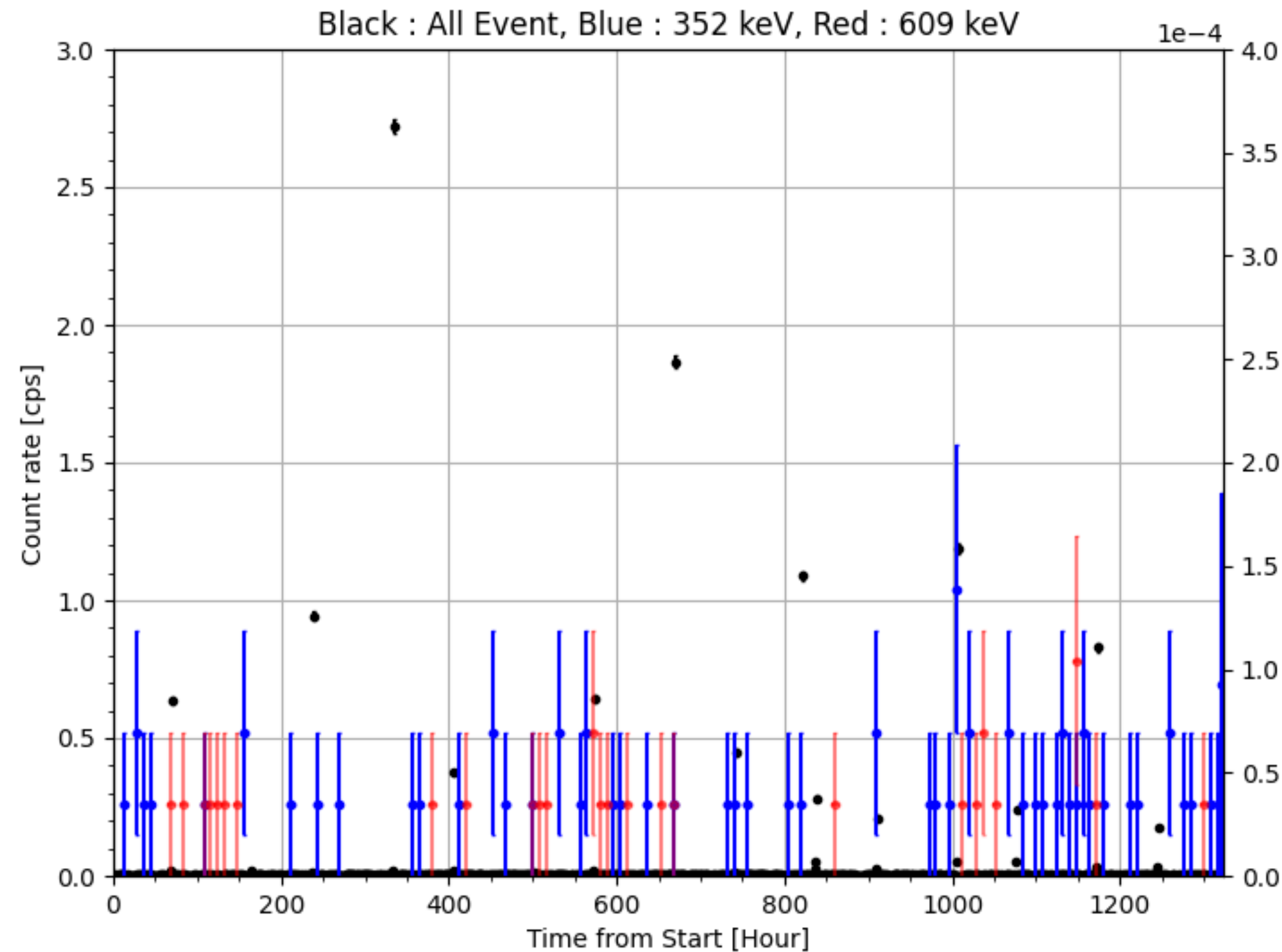
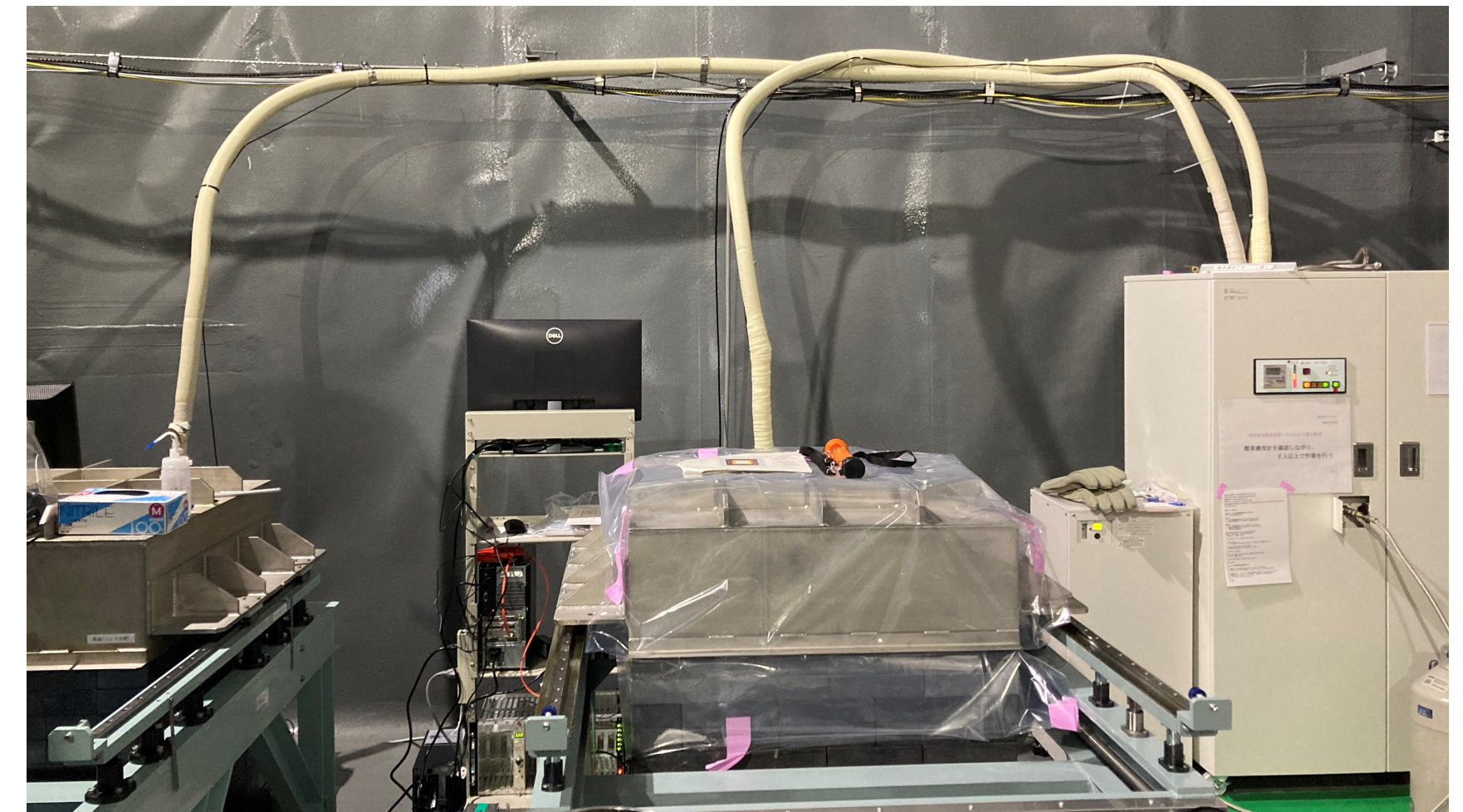


# 2号機のBKGレベルの改善の歴史

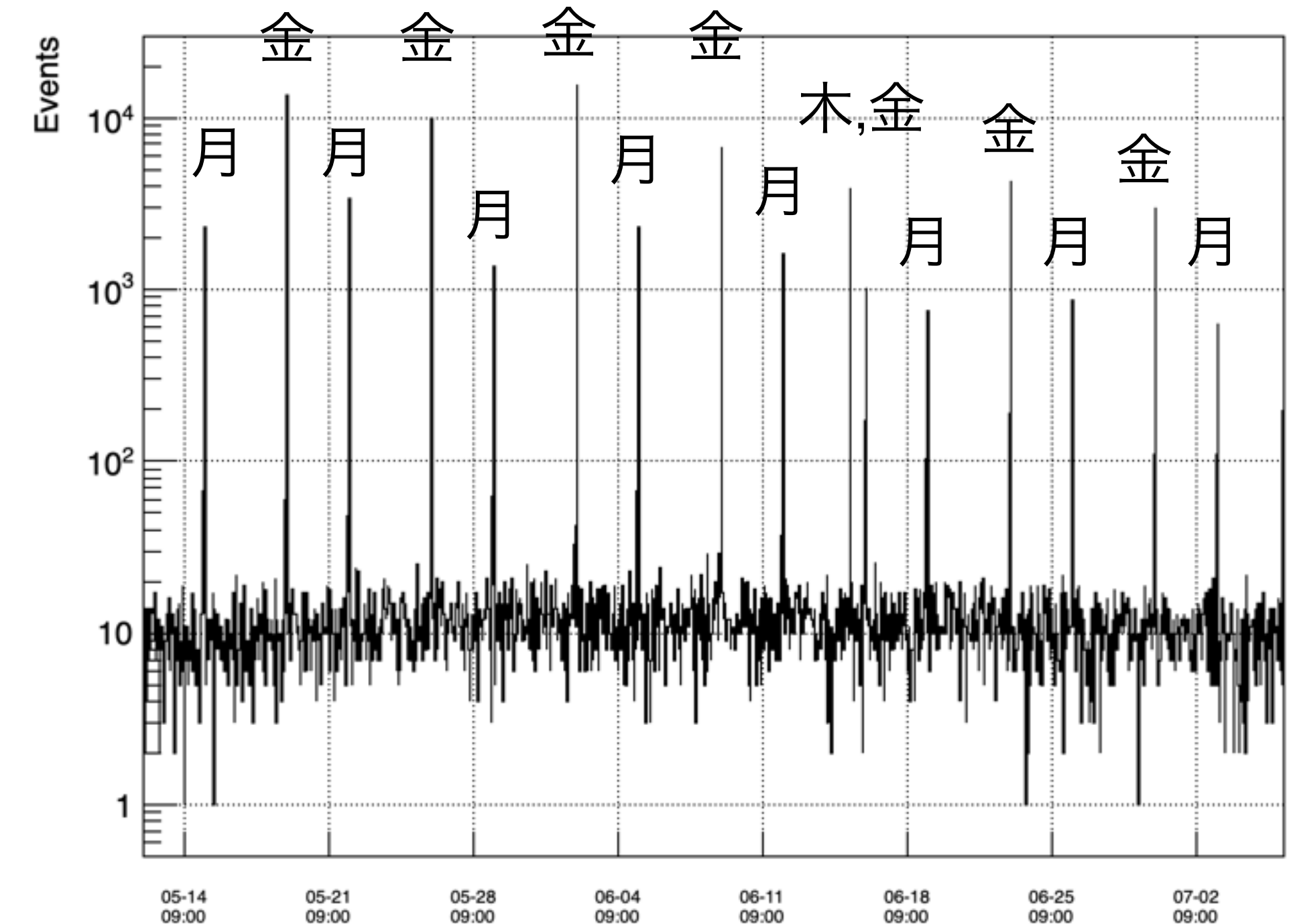


# BGランやサンプルありデータの解析

LN2自動供給装置

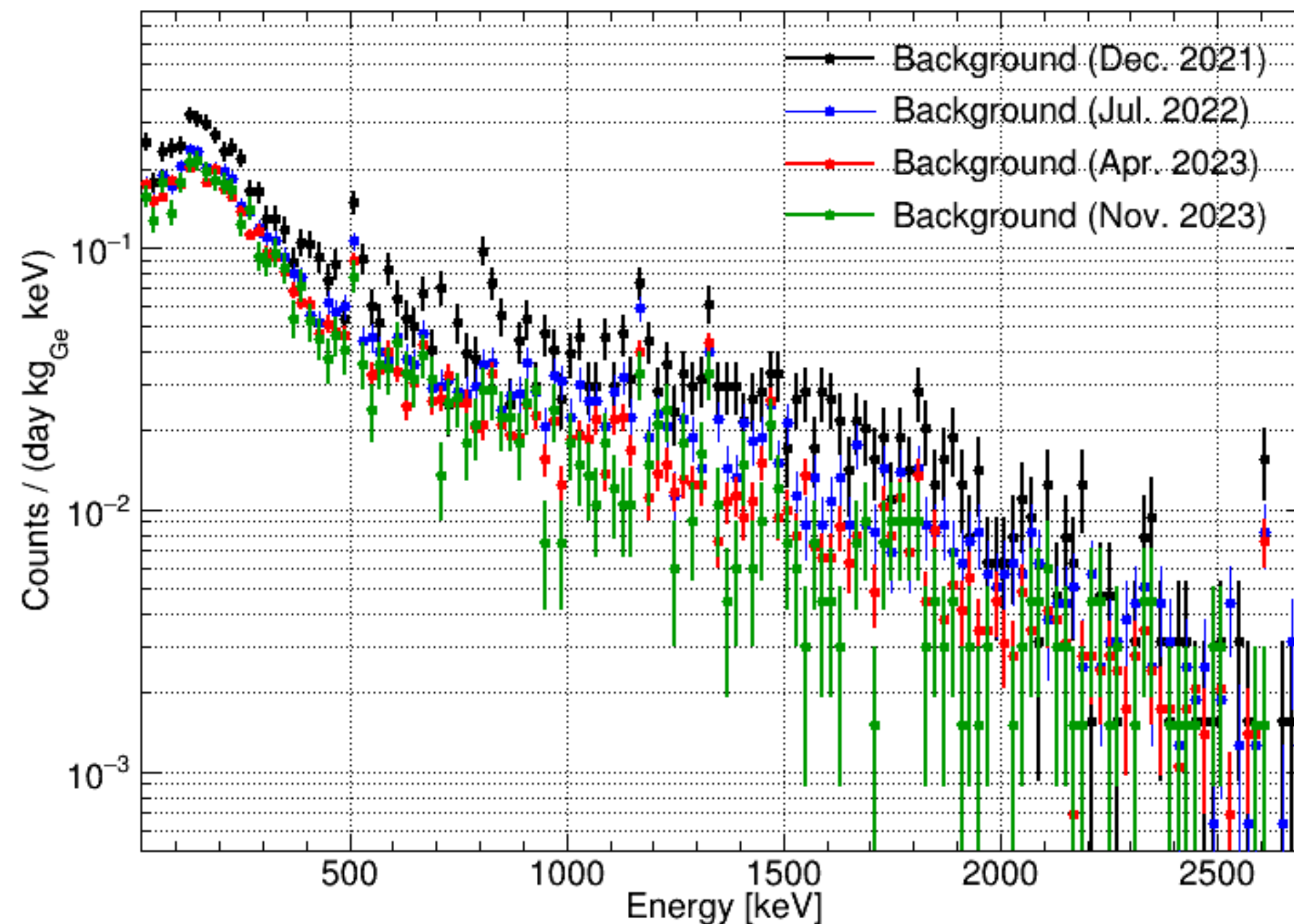
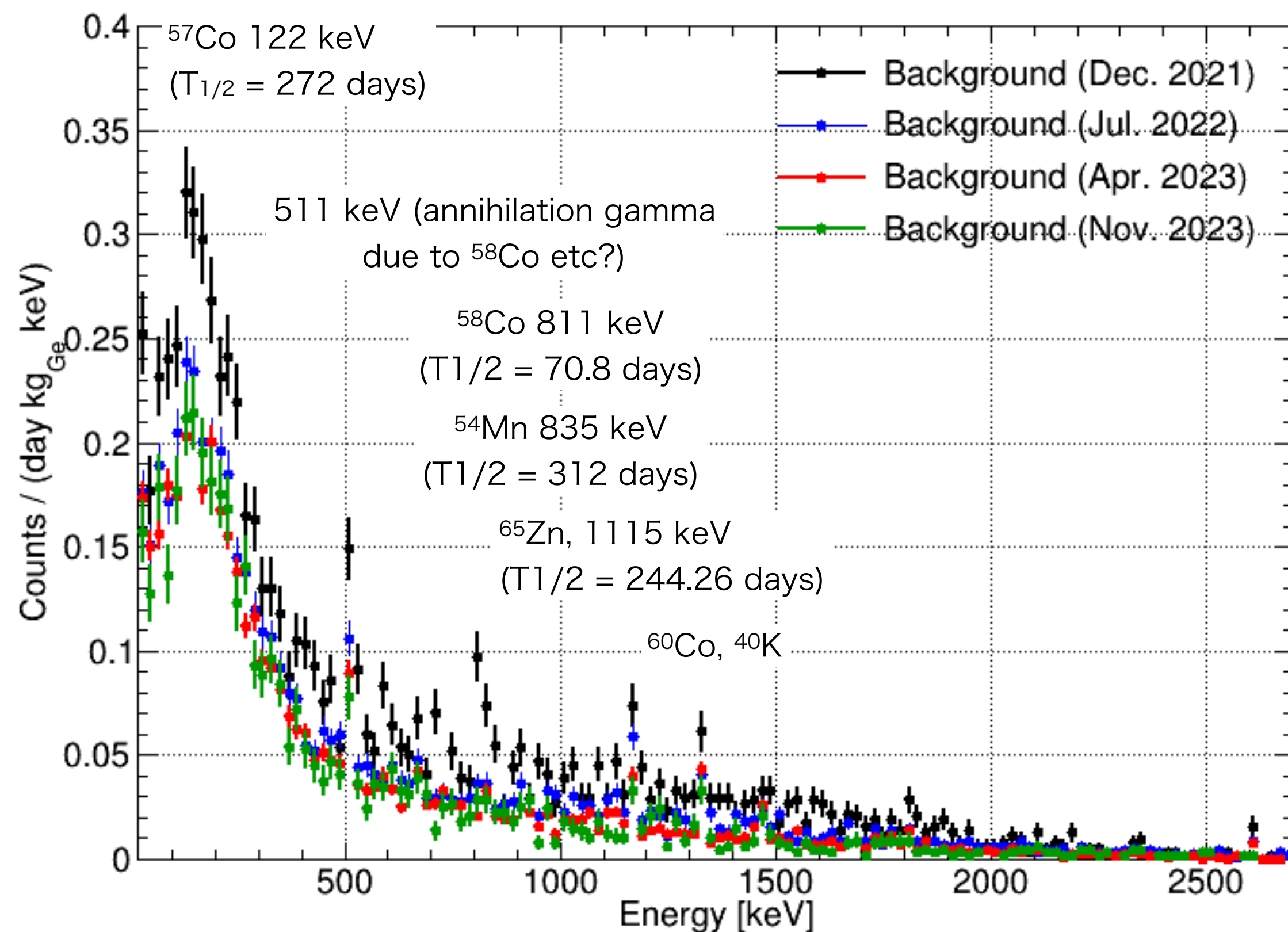


- ・波形解析手法はキャリブレーションデータと同じ
- ・サンプル交換に係る遮蔽体の開閉から最初の12時間はveto
- ・1時間毎のイベントレートを見て異常に多かったらveto  
→LN2供給のタイミングと合致(月曜と金曜の朝9時)





# 2号機のBGスペクトルの変化

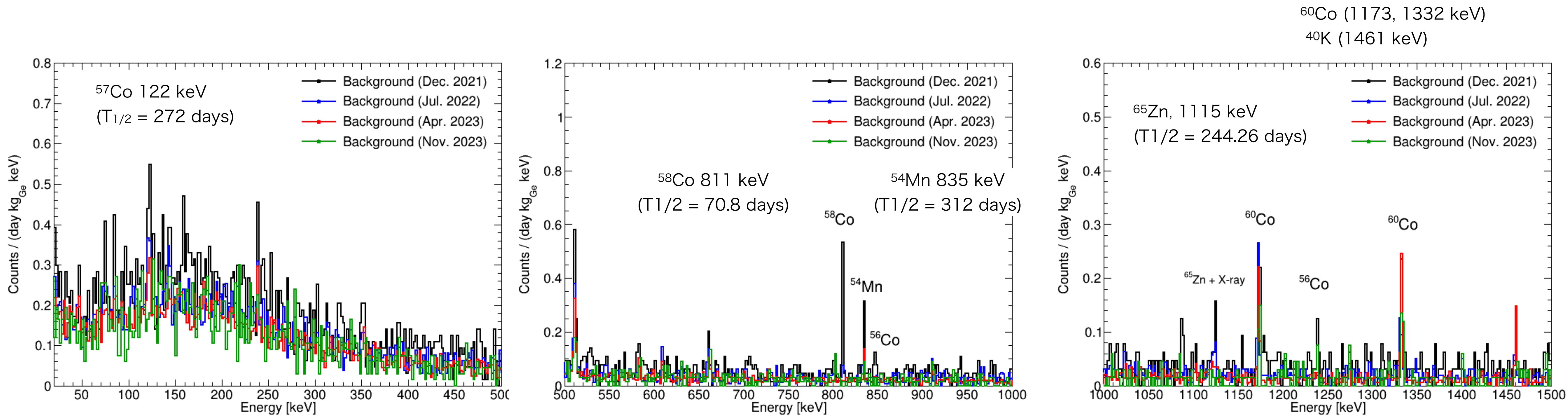


- ・ 黒：2021年12月 (LT = 19.0 d)
- ・ 青：2022年07月 (LT = 47.2 d)
- ・ 赤：2023年04月 (LT = 82.2 d)
- ・ 緑：2023年12月 (LT = 19.9 d)

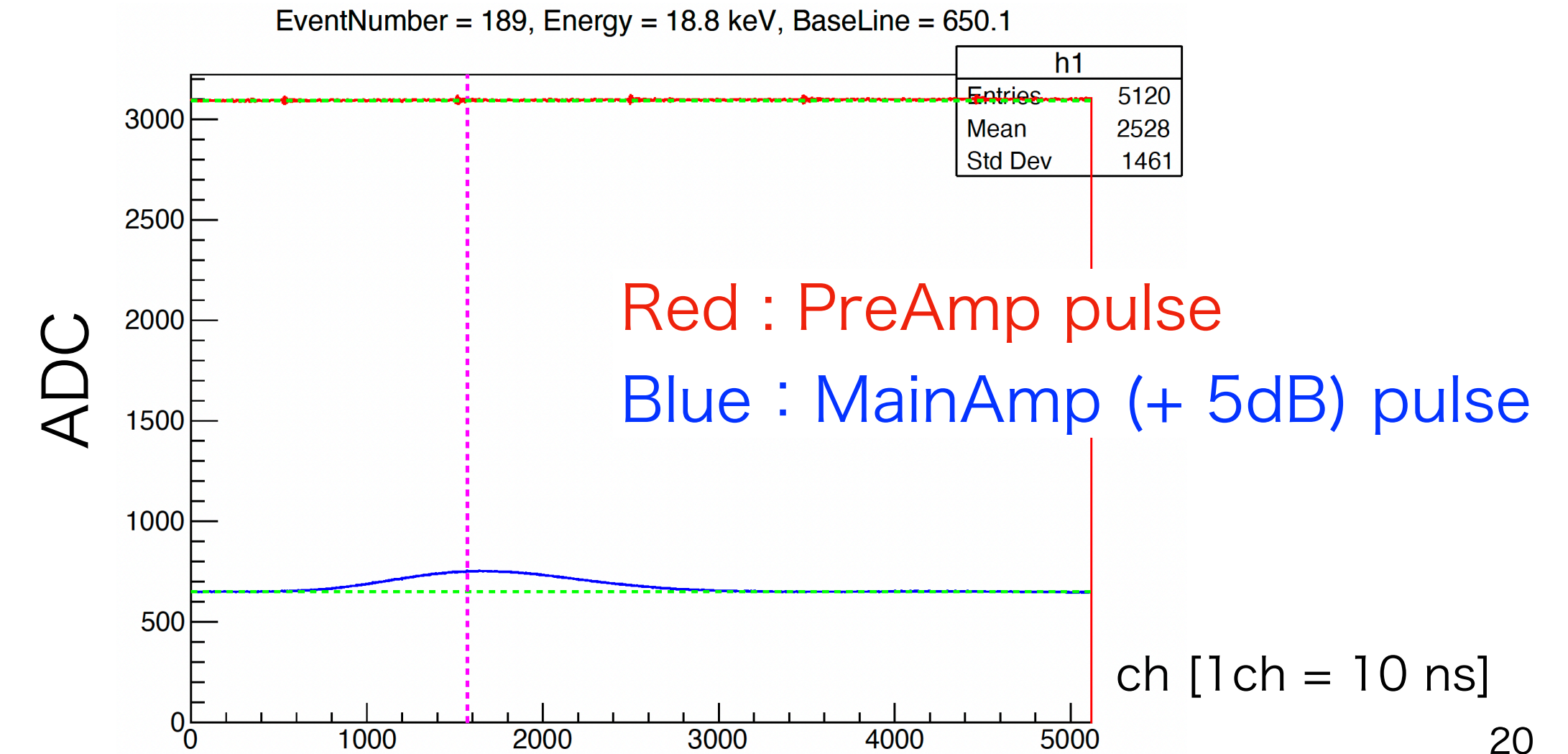
・ 40–2700 keVのカウントレート：  $140.3 \pm 2.1$  cpd/kg<sub>Ge</sub> →  $100.0 \pm 1.1$  cpd/kg<sub>Ge</sub> →  $84.3 \pm 0.8$  cpd/kg<sub>Ge</sub> →  $80.0 \pm 1.5$  cpd/kg<sub>Ge</sub>



# 2号機のBGスペクトルの変化(拡大図)

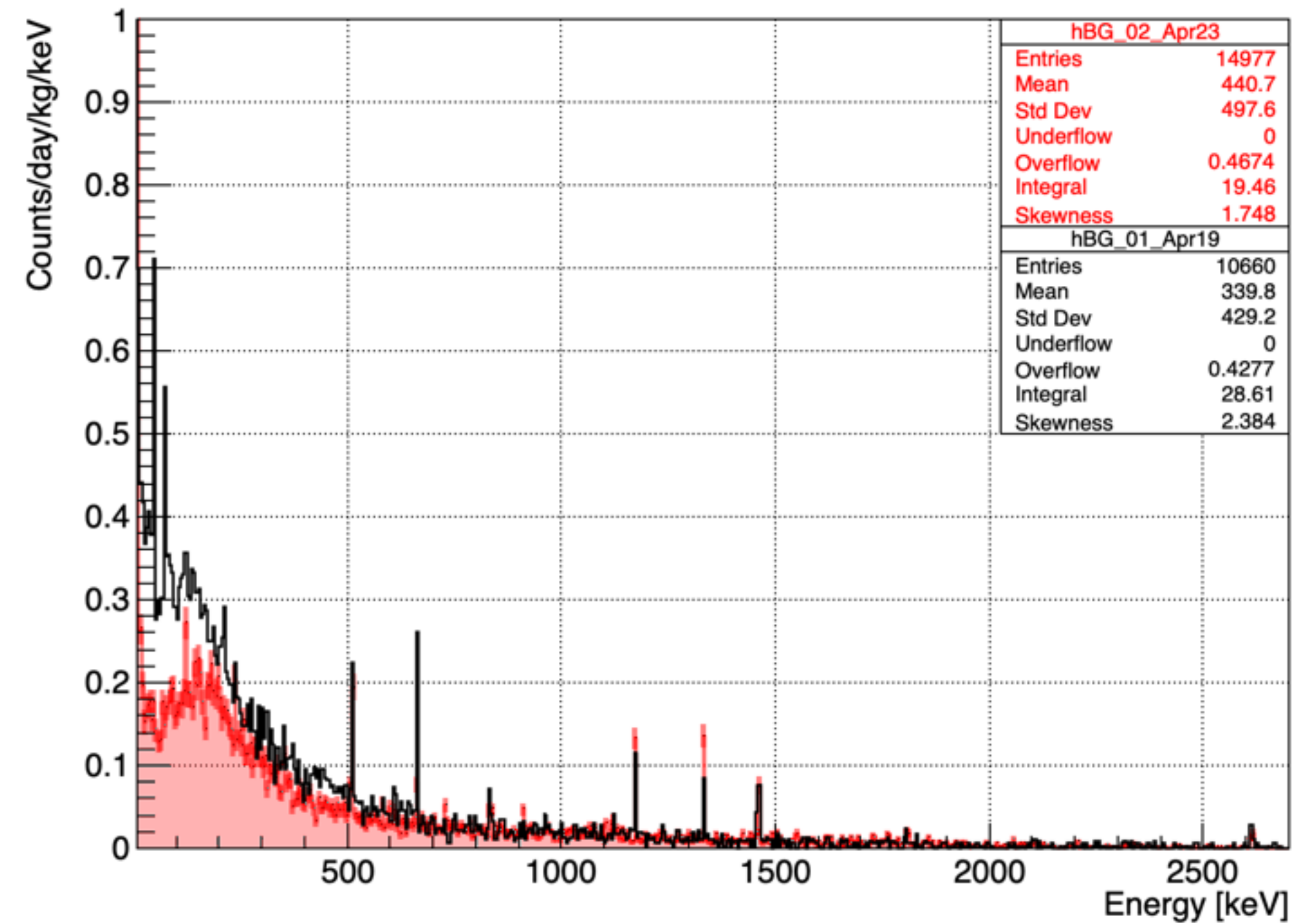
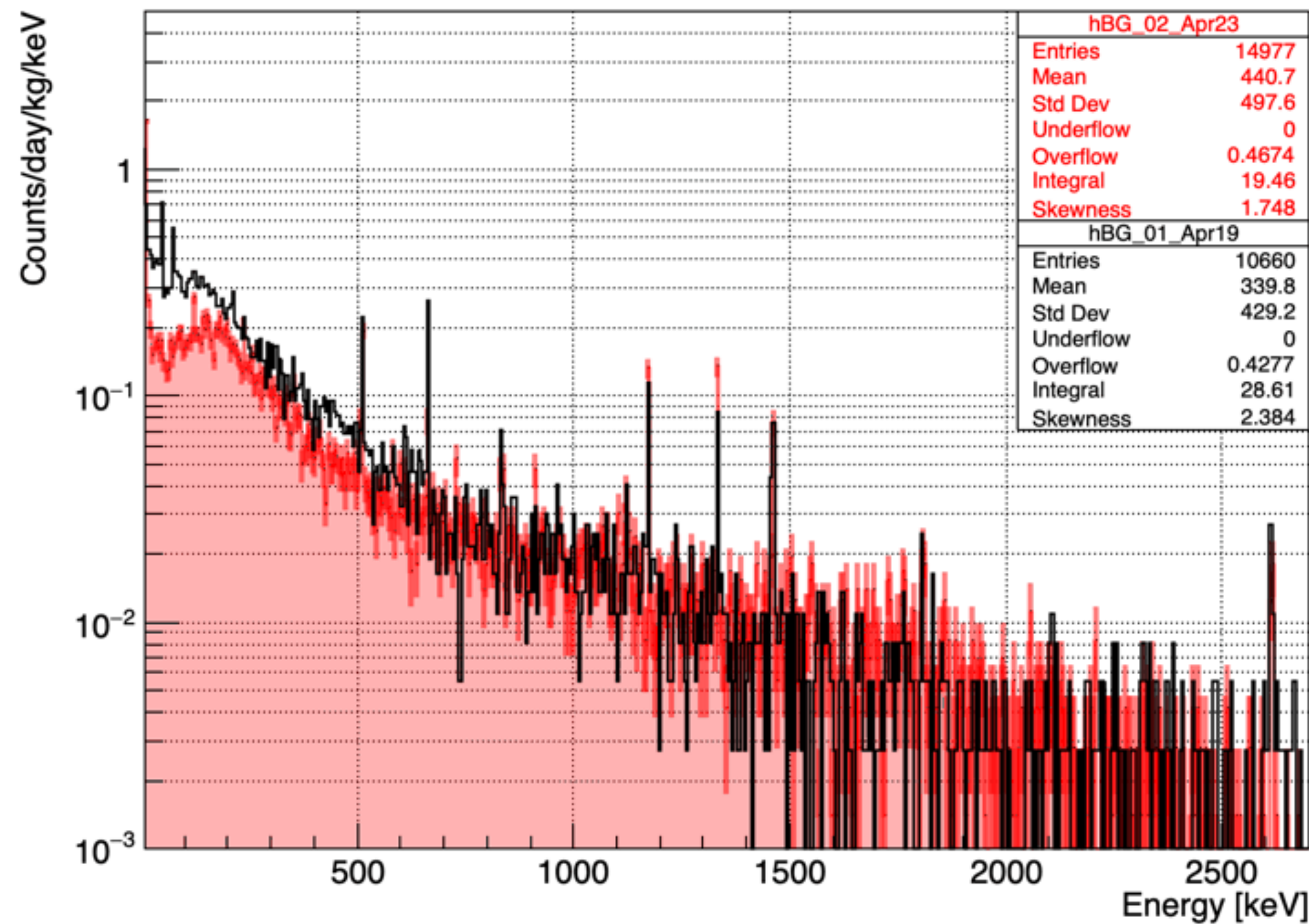


- ・ 黒：2021年12月 (LT = 19.0 d)
- ・ 青：2022年07月 (LT = 47.2 d)
- ・ 赤：2023年04月 (LT = 82.2 d)
- ・ 緑：2023年12月 (LT = 19.9 d)
- ・ [https://doi.org/10.1016/0920-5632\(92\)90184-T](https://doi.org/10.1016/0920-5632(92)90184-T) とか <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.01.029> にあるようなRI
- ・ 半減期が比較的短いものは順調に減ってきている





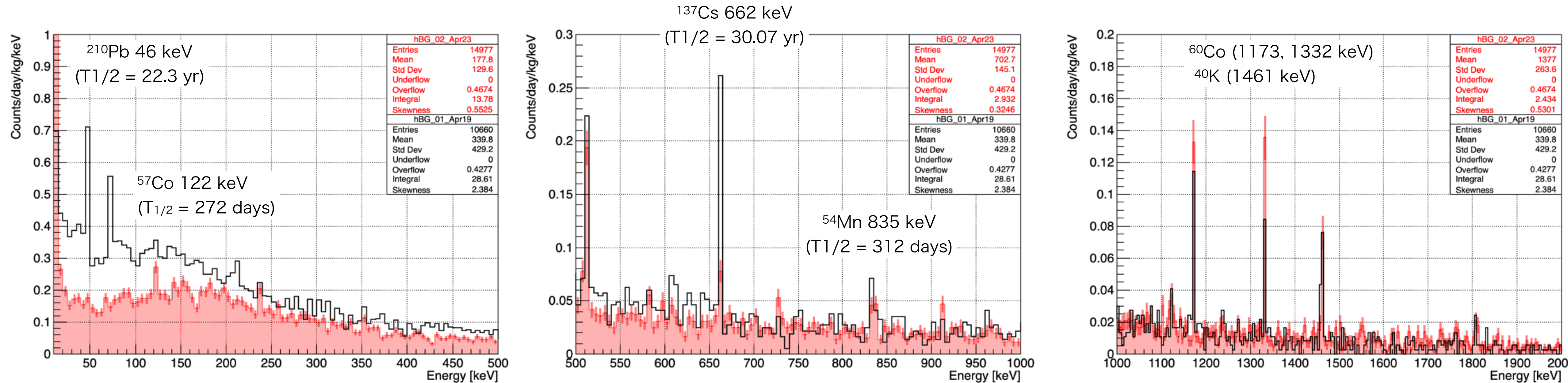
# 1号機との比較



- ・ 黒：1号機のBGスペクトル (2018年10月と2019年4月に取った約44日分のデータ)
- ・ 赤：2号機のBGスペクトル (2023年4月~7月に取った約86.2日分のデータ)
- ・ 低エネルギーの連続成分部分で改善
- ・ 40-2700 keVのカウントレート： 119 cpd/kg<sub>Ge</sub> → 84.3 cpd/kg<sub>Ge</sub> (30%改善)



# 1号機との比較(拡大図)



$^{65}\text{Zn}$ , 1115 keV  
( $T_{1/2} = 244.26$  days)

- ・ 黒：1号機のBGスペクトル (2018年10月と2019年4月にとった約44日分のデータ)
- ・ 赤：2号機のBGスペクトル (2023年4月~7月にとった約86.2日分のデータ)
- ・  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{210}\text{Pb}$ のピークが劇的に改善、600 keV以下の連続成分も改善
- ・ 低減に向けた残りのBGの理解：検出器部材や遮蔽体に含まれるRIによる影響の評価
  - ・ 横国大 鈴木さん修論をベースにシミュレーションによる評価を進める



# BGの経時変化をまとめた表

| Detector                                                     | Ge01            | Ge02            |                 |                 |                 |
|--------------------------------------------------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| Date                                                         | Dec. 2019       | Dec. 2021       | Jul. 2022       | Apr. 2023       | Nov. 2023       |
| Measurement time (d)                                         | 23.0            | 19.0            | 47.2            | 86.2            | 19.9            |
| Count rate ( $\text{kg}_{\text{Ge}}^{-1} \text{ day}^{-1}$ ) |                 |                 |                 |                 |                 |
| Integral 40 – 2700 keV                                       | 112.6           | 140.2           | 100.0           | 84.3            | 80.0            |
| $^{208}\text{Tl}$ , 2614 keV                                 | $0.08 \pm 0.04$ | $0.25 \pm 0.09$ | $0.16 \pm 0.05$ | $0.13 \pm 0.03$ | $0.03 \pm 0.03$ |
| $^{214}\text{Bi}$ , 609 keV                                  | $0.39 \pm 0.10$ | $0.25 \pm 0.09$ | $0.38 \pm 0.07$ | $0.23 \pm 0.04$ | $0.24 \pm 0.08$ |
| $^{60}\text{Co}$ , 1333 keV                                  | $0.41 \pm 0.10$ | $0.66 \pm 0.14$ | $0.48 \pm 0.08$ | $0.68 \pm 0.07$ | $0.48 \pm 0.12$ |
| $^{40}\text{K}$ , 1461 keV                                   | $0.44 \pm 0.11$ | $0.31 \pm 0.10$ | $0.44 \pm 0.07$ | $0.42 \pm 0.05$ | $0.18 \pm 0.07$ |
| $^{137}\text{Cs}$ , 662 keV                                  | $1.29 \pm 0.18$ | $0.53 \pm 0.13$ | $0.38 \pm 0.07$ | $0.32 \pm 0.05$ | $0.42 \pm 0.11$ |
| $^{210}\text{Pb}$ , 46.5 keV                                 | $3.24 \pm 0.29$ | $0.69 \pm 0.14$ | $0.64 \pm 0.09$ | $0.59 \pm 0.06$ | $0.27 \pm 0.09$ |

<https://doi.org/10.1093/ptep/ptad136> の表1に2023年11月の結果も追記

連続成分は順調に減っている



# 世界のHPGe検出器の結果と比べた表

|                                   | Site    | Detector         | Crystal mass<br>[kg] | Relative efficiency<br>[%] | FWHM at 1333 keV<br>[keV] | BG rate<br>60 – 2700 keV<br>[kg <sub>Ge</sub> <sup>-1</sup> d <sup>-1</sup> ] |
|-----------------------------------|---------|------------------|----------------------|----------------------------|---------------------------|-------------------------------------------------------------------------------|
| 日本：                               | Kamioka | Ge02 (This work) | 1.68                 | 80                         | 1.82                      | 81.3±0.7                                                                      |
|                                   |         | Ge01 [2]         | 1.68                 | 80                         | 2.39                      | 104.5                                                                         |
| イタリア：                             | LNGS    | Gator [16]       | 2.2                  | 100.5                      | 1.98                      | 89.0±0.7                                                                      |
|                                   |         | GeMPI [16]       | 2.2                  | 98.7                       | 2.20                      | 24±1                                                                          |
| イギリス：                             | BUGS    | Belmont [2]      | 3.2                  | 160                        | 1.92                      | 90.0                                                                          |
|                                   |         | Merrybent [2]    | 2.0                  | 100                        | 1.87                      | 145.0                                                                         |
| スペイン：<br>(詳しくは3月の新学術国際会議で)        | LSC     | GeOroel [2]      | 2.31                 | 109                        | 2.22                      | 128.7                                                                         |
|                                   |         | Asterix [2]      | 2.13                 | 95.1                       | 1.92                      | 171.3                                                                         |
|                                   |         | GeAnayet [2]     | 2.26                 | 109                        | 1.99                      | 461.2                                                                         |
| アメリカ：<br>LZ関係の試料を測定               | BHUC    | Maeve [17]       | 2.0                  | 85                         | 3.19                      | 956.1                                                                         |
| スイス：<br>XENON, DARWIN関係の<br>試料を測定 | LVdA    | GeMSE [16,18]    | 2.0                  | 107.7                      | 1.96                      | 88±1                                                                          |

<https://doi.org/10.1093/ptep/ptad136> の表2

世界のスクリーニングに用いているトップレベルHPGeと比べて負けないレベル (GeMPIを除く)



# 世界のHPGe検出器の結果と比べた表'



## Background of selected HPGe detectors

| detector | total and peak background count rate [d <sup>-1</sup> kg <sup>-1</sup> <sub>Ge</sub> ] |             |             |             |
|----------|----------------------------------------------------------------------------------------|-------------|-------------|-------------|
|          | 40-2700 keV                                                                            | 352 keV     | 583 keV     | 1461 keV    |
| GeMi     | 555 ± 7                                                                                | 4.1 ± 1.0   | 1.4 ± 0.5   | 6.1 ± 0.8   |
| GePV     | 498 ± 5                                                                                | 2.6 ± 0.7   | 1.8 ± 0.4   | 3.2 ± 0.4   |
| GsOr     | 442 ± 5                                                                                | 2.0 ± 0.5   | 0.76 ± 0.35 | 4.2 ± 0.5   |
| GePaolo  | 222 ± 2                                                                                | 1.1 ± 0.3   | 0.31 ± 0.16 | 1.8 ± 0.2   |
| GeCris   | 115 ± 2                                                                                | 0.29 ± 0.22 | < 0.13      | 0.88 ± 0.22 |
| GeMPI    | 71 ± 2                                                                                 | < 0.07      | < 0.06      | 0.24 ± 0.03 |

[https://indico.cern.ch/event/1199289/contributions/5445811/attachments/2703449/4693364/TAUP\\_2023\\_STELLA\\_Laubenstein.pdf](https://indico.cern.ch/event/1199289/contributions/5445811/attachments/2703449/4693364/TAUP_2023_STELLA_Laubenstein.pdf)  
のスライドから

LabC02      84.3± 0.8      0.44± 0.05      0.25± 0.04      0.42± 0.05

←ピーク±3σの領域のカウント数から計算



サンプル測定中の写真



# サンプル測定中の写真

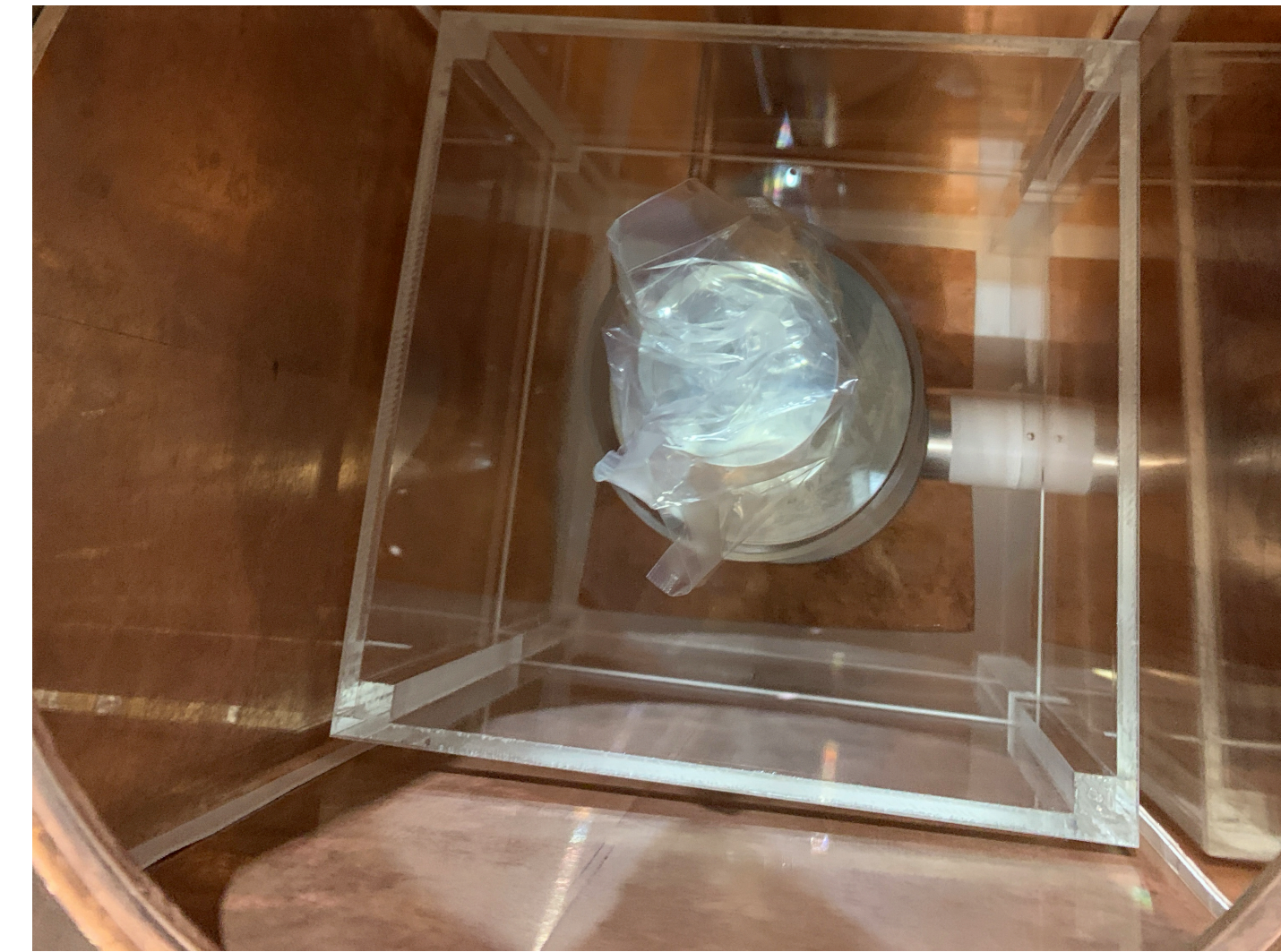
硫酸ガドリニウム 10 kg



磁気シールド  
(for Kamioka Cryolab)



ZnWO<sub>4</sub>結晶とその発光を捉えるPMT, 基板



- ・ 東大宇宙線研細川くんにサンプル交換はお任せ (細川様ありがとうございます)
  - ・ 硫酸ガドリニウムや純水装置に用いているイオン交換樹脂
  - ・ Kamioka Cryolab関係の部材 (詳細は物理学会の石徹白さん、Khaiさんのトーク)
  - ・ ZnWO<sub>4</sub>結晶やその周辺の部材 (詳細は東大宇宙線研河内さんの修論、物理学会のトーク)
- などを測定している



# まとめ

- LabC 2台目の極低放射能HPGe検出器を2022年1月から運用
- 低ノイズ化、エネルギー分解能の関数の評価、Calobration runとの比較 etc.
- BGレートは順調に低減している
  - 1号機と比べて $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ のRI量で大きく改善
  - 連続成分のカウントレートは世界のHPGe検出器と比べて遜色ないレベル
- Ge2号機の性能評価に関する論文が出ました
  - PTEP Volume 2023, Issue 12, December 2023, 123H01 (2003)
  - <https://doi.org/10.1093/ptep/ptad136>
- SK-Gd, KamLAND他様々な実験 + R&D関係のサンプル測定を継続していきます。