

KamLAND2-Zen実験のための，四重極質量分析器による 有機物中の極微量放射性元素の高感度測定の開発・研究

倉澤真帆



- 背景
- 研究全容
- 分析方法
- 現在の分析状況
 - サンプル作成方法
 - 測定結果
- まとめ

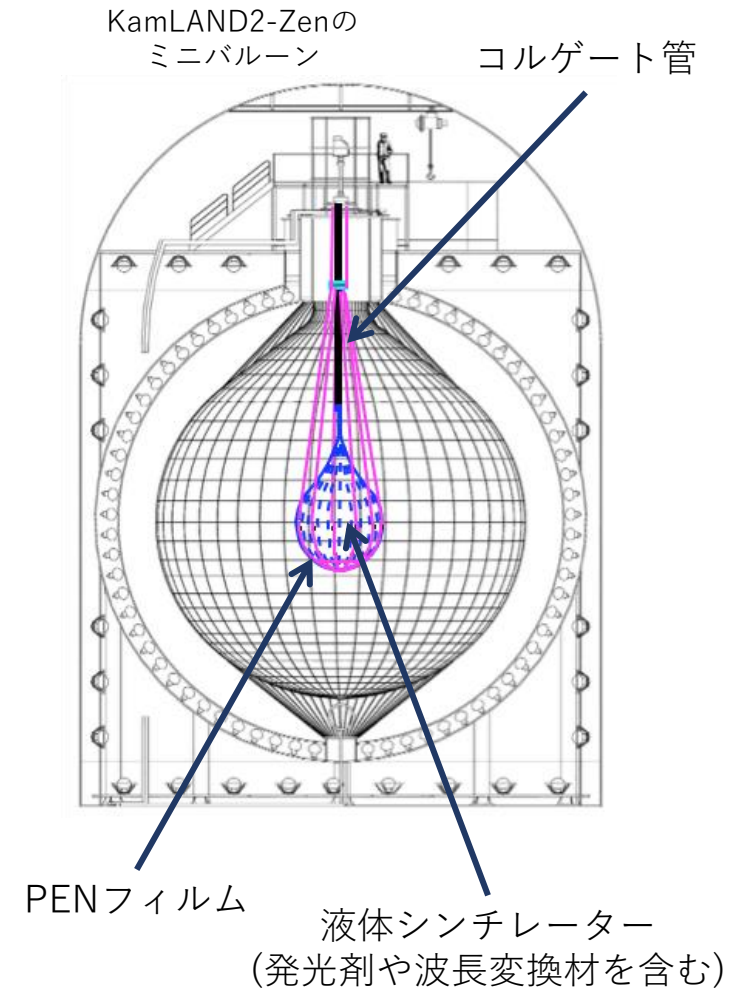
- 現在KamLANDでは液体シンチレーターの放射性不純物(RI)量を検出器に導入する前に測定する手段がない
- KamLAND-Zenにミニバルーンがインストールされたが、関連する全てのパーツのRI量は測定されていない(手段がない)
- KamLAND2-Zenで導入予定のPENフィルムのU,Th量はNTT アドバンステクノロジーによって測定されたが、 **5×10^{-12} 以下の値は測定できていない**(感度の問題)

PENフィルムの過去のU,Th量測定結果

^{238}U [g/g]	^{232}Th [g/g]
3.6×10^{-11}	$< 5 \times 10^{-12}$

要求値はU/Th共に $O(10^{-12})$ [g/g]

⇒ ミニバルーンに関連する部品のRI量、特に $0\nu 2\beta$ のBGであるU/Thを
高感度で測定する手法の確立が必要



PENフィルムを使用する背景

3

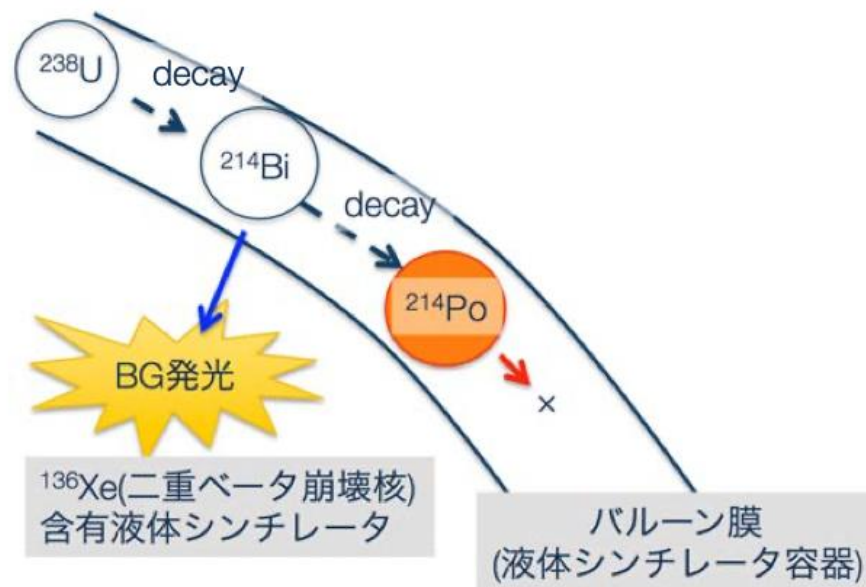
- KamLAND-Zenの $0\nu2\beta$ バックグラウンド

1. 標準理論の枠内で起こる2重 β 崩壊
2. 宇宙線による原子核粉砕
3. ミニバルーンに含まれるU系列の ^{214}Bi のようなRI

KamLAND2-Zenでは、シンチレーションフィルムとしてポリエチレンナフタレート(PEN)使用

⇒ α 崩壊の信号を観測できる

ミニバルーン自体に含まれるRIを減らすことが重要



ミニバルーン起源のBG



KamLAND2-Zenのミニバルーンで使用するPEN フィルム

研究全容

4



PEN フィルム



波長変換剤(Bis-MSB)

KamLAND2-Zenで使用する
他の有機物

RI分析



ICP-MS
(水溶液試料の元素分析)

研究全容

5

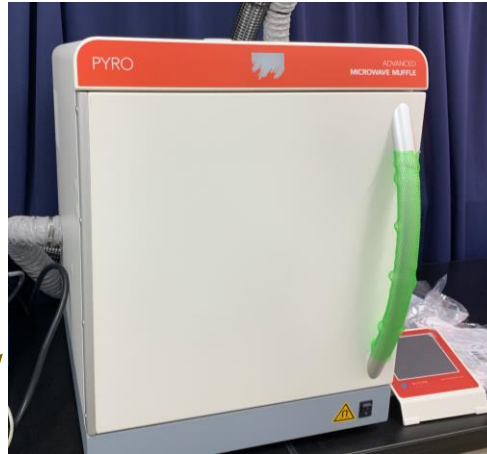


PEN フィルム



波長変換剤(Bis-MSB)

KamLAND2-Zenで使用する
他の有機物



灰化装置

水溶液化

RI分析



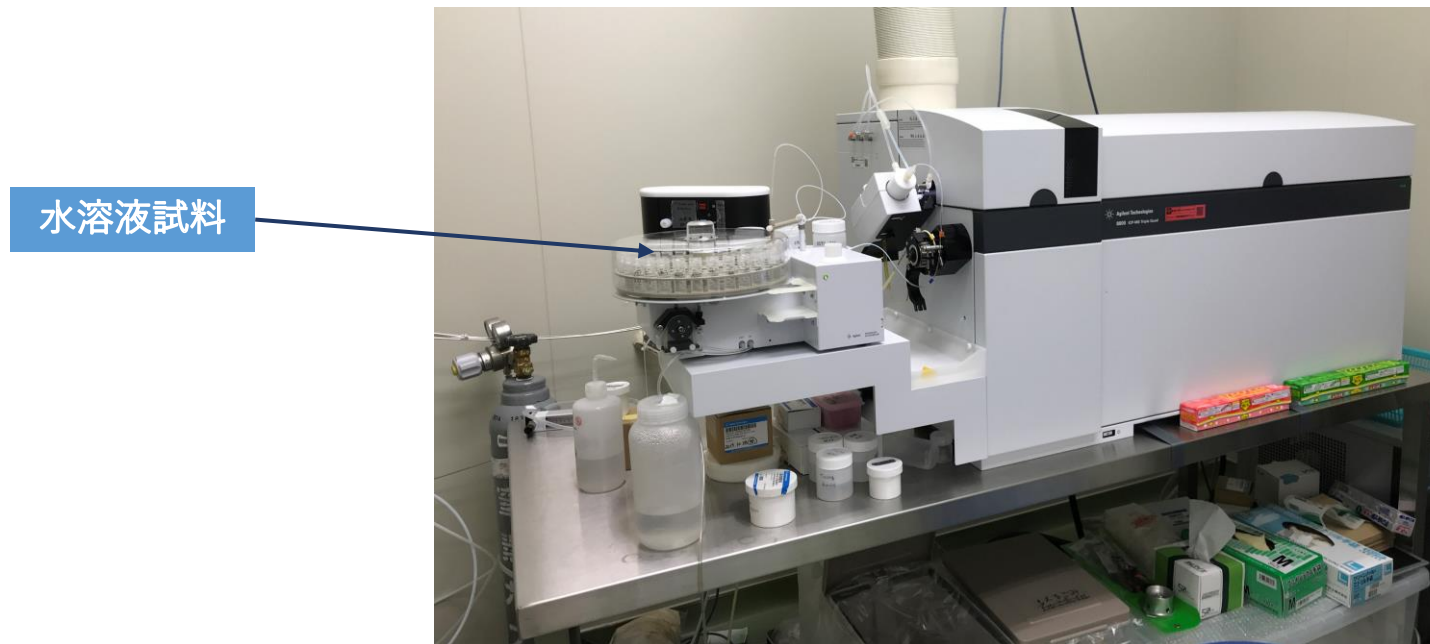
ICP-MS
(水溶液試料の元素分析)

+ 表面洗浄方法, 純化方法の検討

RIの分析方法－ICP-MS

6

- **ICP-MS** (**I**nductively **C**oupled **P**lasma **M**ass **S**pectrometry) = 四重極質量分析器
 - 水溶液試料の元素分析 → 測定する試料は水溶液化する必要がある
 - 通常は水溶液中の元素濃度を ~ 1 [ppt] (10^{-12} [g/g(水溶液)]) の高感度で測定



筑波大学のAgilent 8800を使用する

有機物中のRIの分析方法－水溶液化

- 有機物質資料の溶液化 → 有機物成分を分解し、残ったU/Thなどを硝酸などに溶かす
- 有機物の分解方法：灰化（湿式・乾式）

	湿式灰化	乾式灰化
有機物の分解・除去方法	無機酸で酸化	高温で燃焼
特徴	× 多量の酸が必要であり、 酸中のU/Thの影響の可能性	○ 再現性



極微量のU/Th測定では大きな問題



六ヶ所村の環境技術研究所での湿式灰化の様子(2019)



マイクロ波灰化装置(乾式灰化)を筑波大学に設置

扉の中



有機物中の ^{238}U , ^{232}Th を10 [ppq] (10^{-14} [g/g(試料)]) の高感度で測定する方法を確立する

- 通常ICP-MSで得られる水溶液中の濃度[ppt]よりも2桁高い
 - ICP-MSの溶液導入部の改善
 - 多量の試料を乾式灰化し，少量の酸で水溶液化することで濃縮

Aridus 3

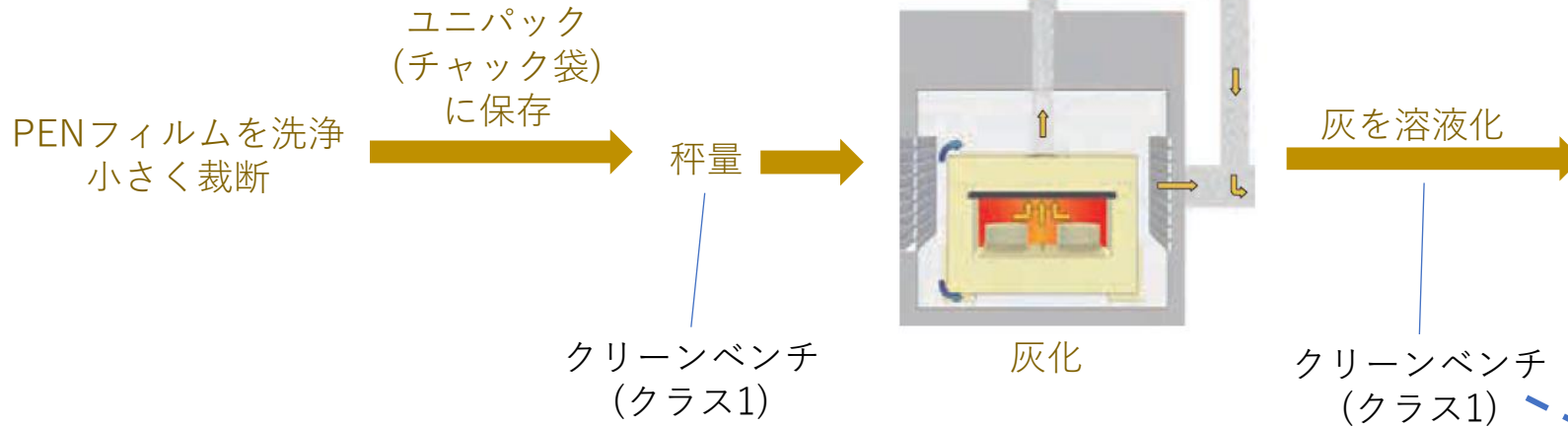


感度を向上させるICP-MS試料導入部のアクセサリーを導入した

- 初めに，予備実験で灰化可能だった**PENフィルム**の測定方法を確立する
- 加えて，KamLAND2-Zenで使用予定のBis-MSB（詳しくは次の後藤さんのトークで）
→ 灰化ができるか検証

PENフィルム中のTh/Uの分析の流れ

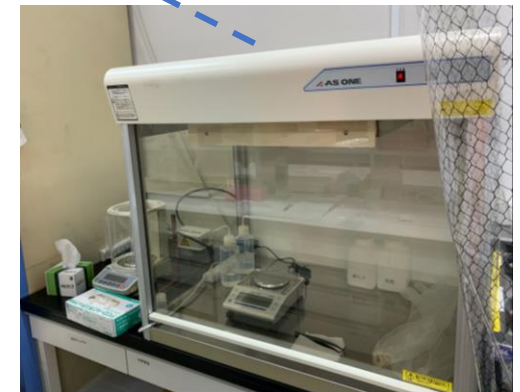
9



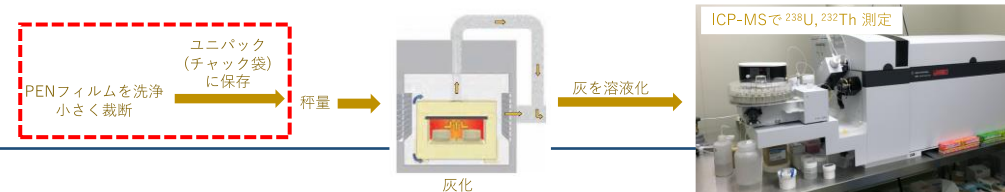
東北大学クリーンルーム
(クラス100)



筑波大
クリーンルーム



PENフィルム－洗浄・裁断



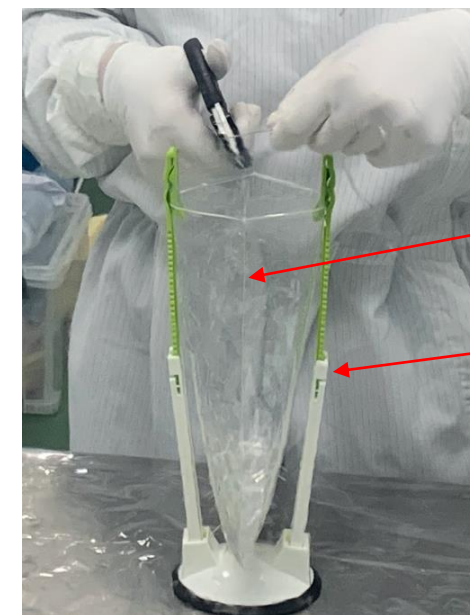
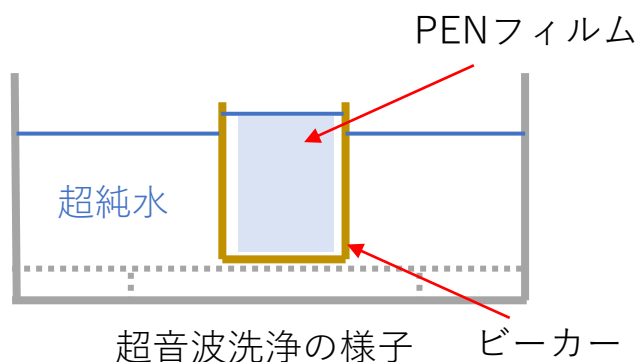
10

PENフィルムを超音波洗浄
(5分洗浄→超純水を交換→5分洗浄)

小さくカット(~0.5 mm角)



超音波洗浄(500W)



ユニパック
(チャック袋)

ユニパック固定用のスタンド

※ 使用する器具は事前に硝酸か超純水+超音波洗浄機で洗浄



器具の洗浄に使用する硝酸
(超高純度試薬)

PENフィルム－灰化

PENフィルムを洗浄
小さく裁断

ユニパック
(チャック袋)
に保存

秤量

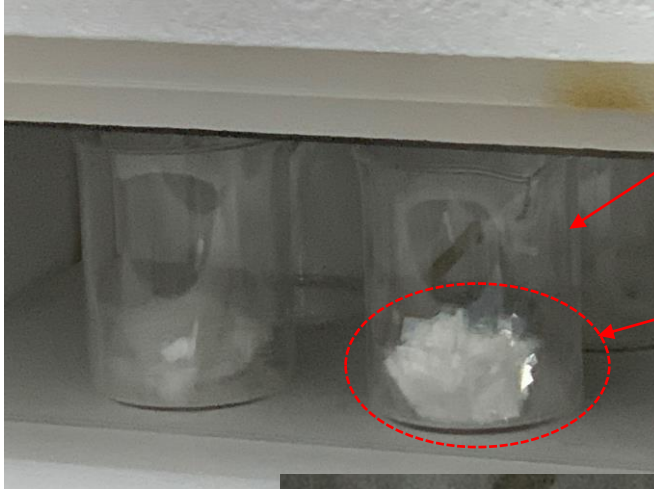
灰化

灰を溶液化

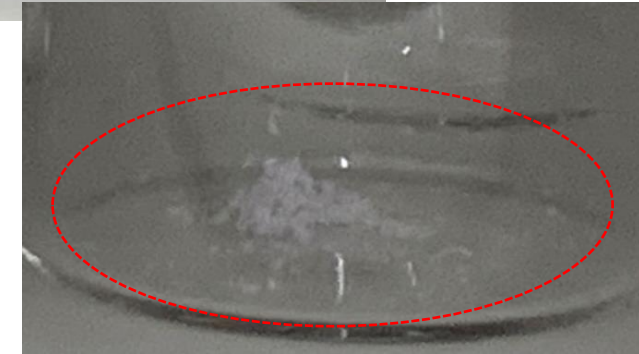
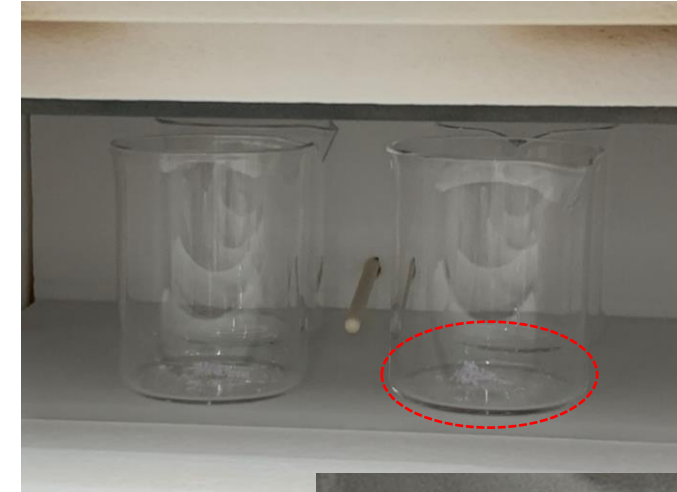


11

秤量

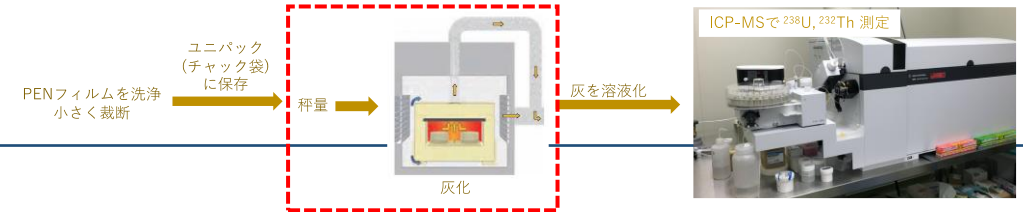


灰化



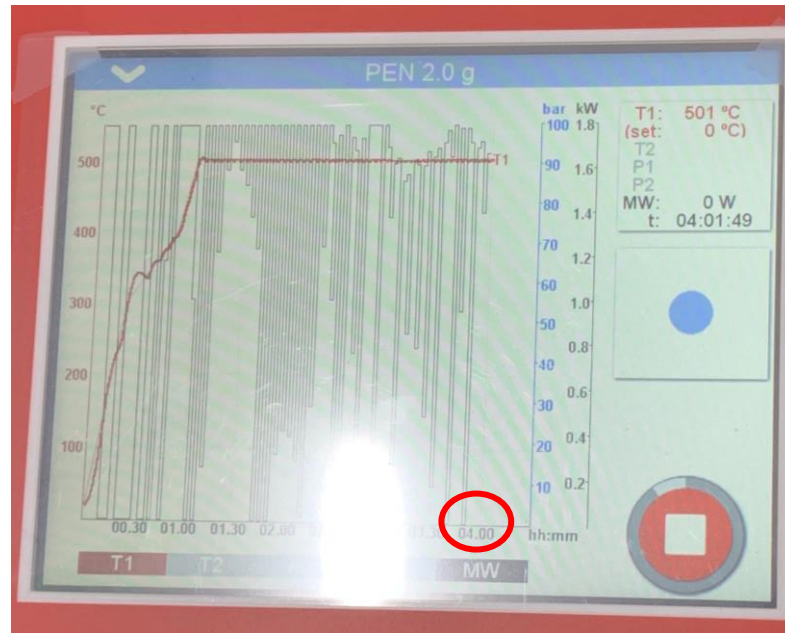
10 gのPENフィルムの灰化に成功

PENフィルム－灰化

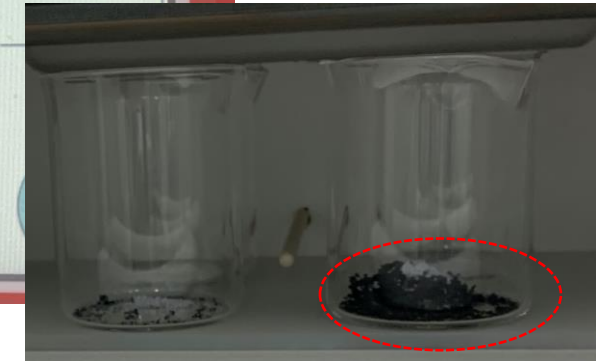
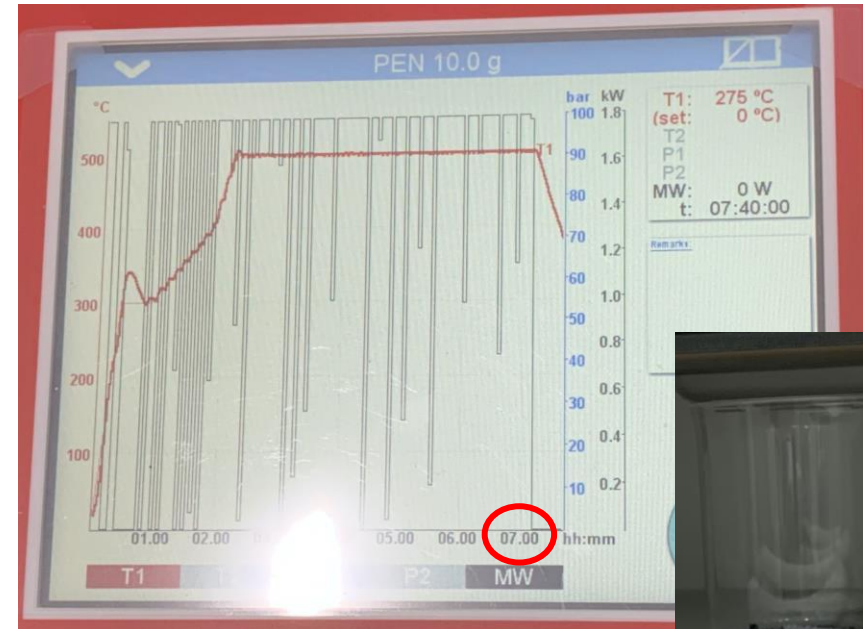


12

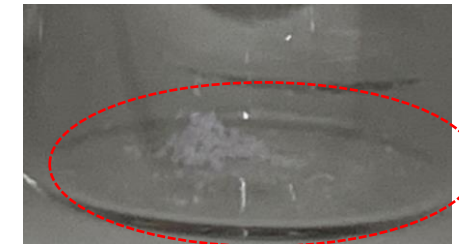
2 gのPEN → 4時間で灰化した



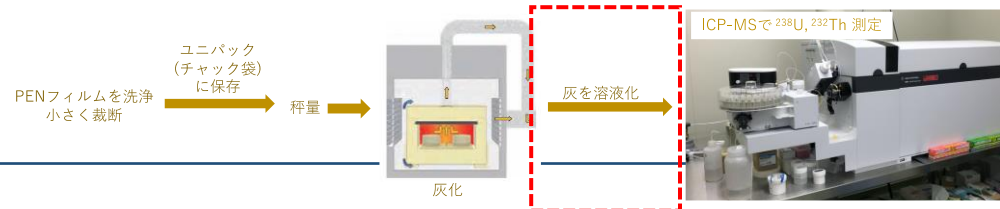
10 gのPEN → 7時間では完全には灰化しなかった



追加で2時間焼くと灰化した



PENフィルム－溶液化



13

- 2 gのPENの灰：9 gの硝酸に溶けた
- 5 gのPENの灰：5 gの硝酸に溶けなかった



ビーカーの側面も洗い出す



使用するマイクロピペットの
チップも事前に洗浄



溶け残った灰の成分

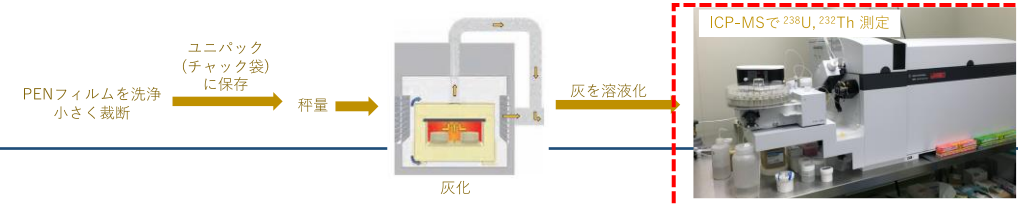


高感度化には多量の試料を少量
の酸で水溶液化することが必要

沈殿物の対処方法
化学分離による濃縮

} を検討する

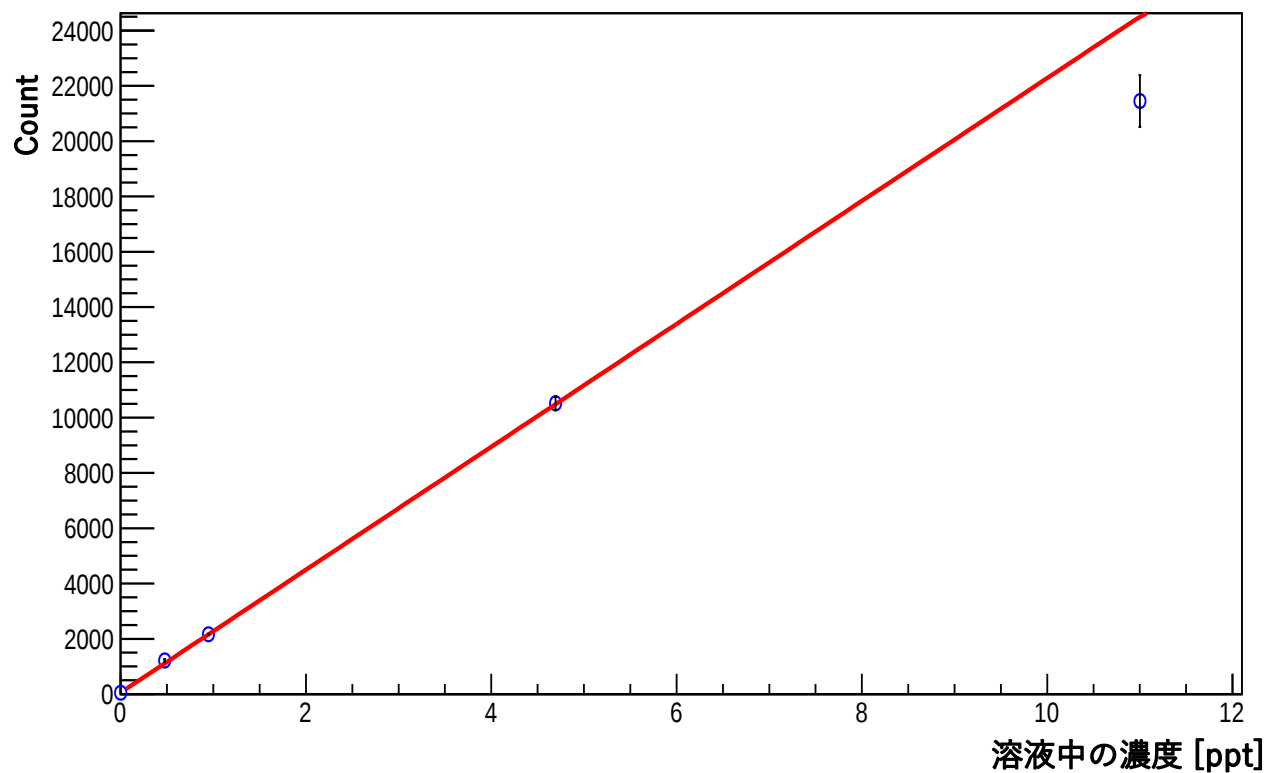
PENフィルム－測定



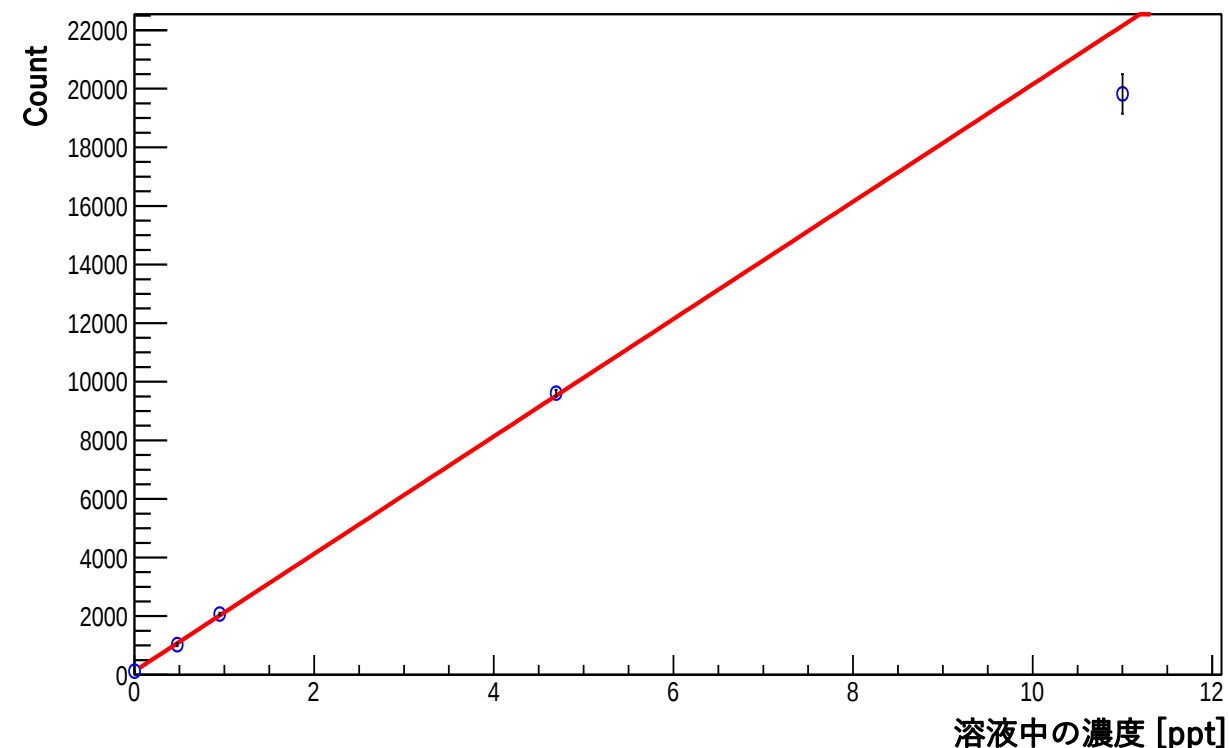
14

濃度が既知の標準溶液を用いて検量線を作成

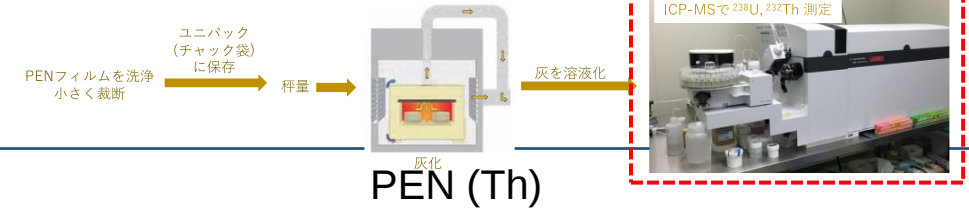
Th



U

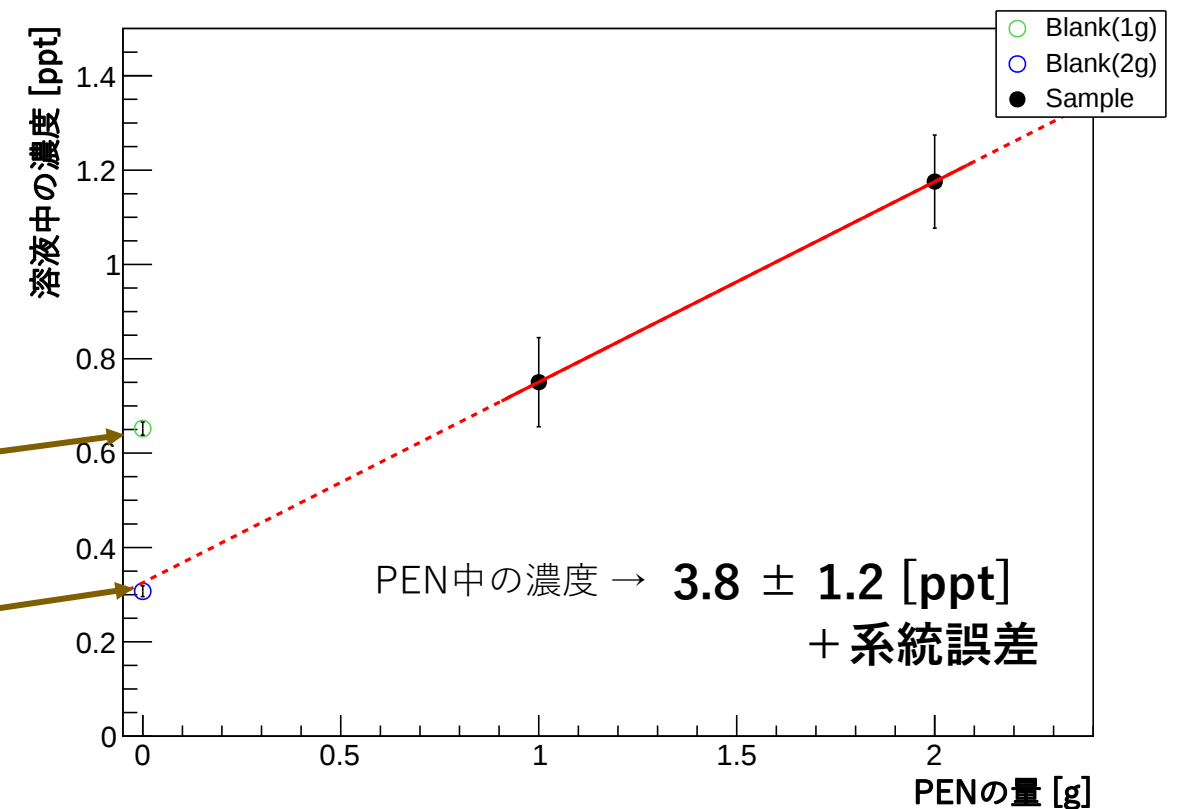
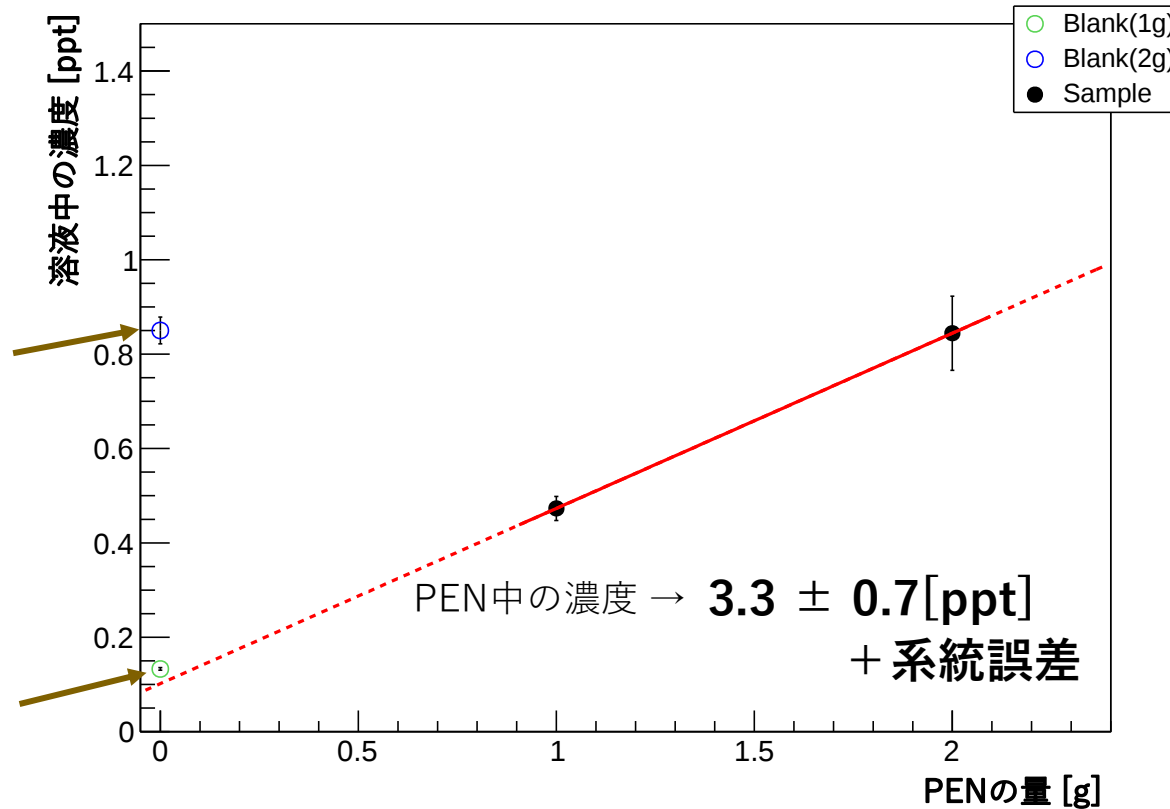


PENフィルム－測定結果



15

PEN (U)



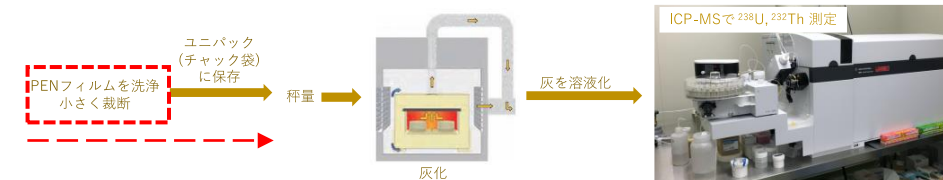
- PEN 1 g, 2 gの灰をどちらも9 gの硝酸で溶かし, 3サンプルずつ測定
 - pptレベルでU/Thの値が得られた
 - サンプルごとのばらつき・ブランク(PENを入れていない以外は同じ条件で作った溶液)のばらつきが大きい → **安定していない原因の調査と対策を進める**

・超純水洗浄と界面活性剤(TMSC)での洗浄の比較

界面活性剤の方がきれいそう

TMSC洗浄と超純水洗浄したPENフィルムのU/Thカウント数

	U	Th
TMSC_1	2091	3515
TMSC_2	1822	3467
超純水_1	2029	3680
超純水_2	3780	3844



・切ったPENを入れていたユニパックの表面汚染を測定

おおよそきれいだったが、ブランクよりはU/Thが多く含まれていた
→ ブランクのU/Th値に近づくよう洗浄方法を開発

ユニパックをすすいだ硝酸とすすいでいない硝酸のU/Thカウント数

	U	Th
ユニパック_1	98	111
ユニパック_2	59	57
ユニパック_3	65	54
ブランク	32	27

Bis-MSB – 灰化

17

KamLAND2-Zenで使用予定のBis-MSBのU/Thは測定されていない(詳しくは次の後藤さんのトークで)
→ 灰化ができるか検証

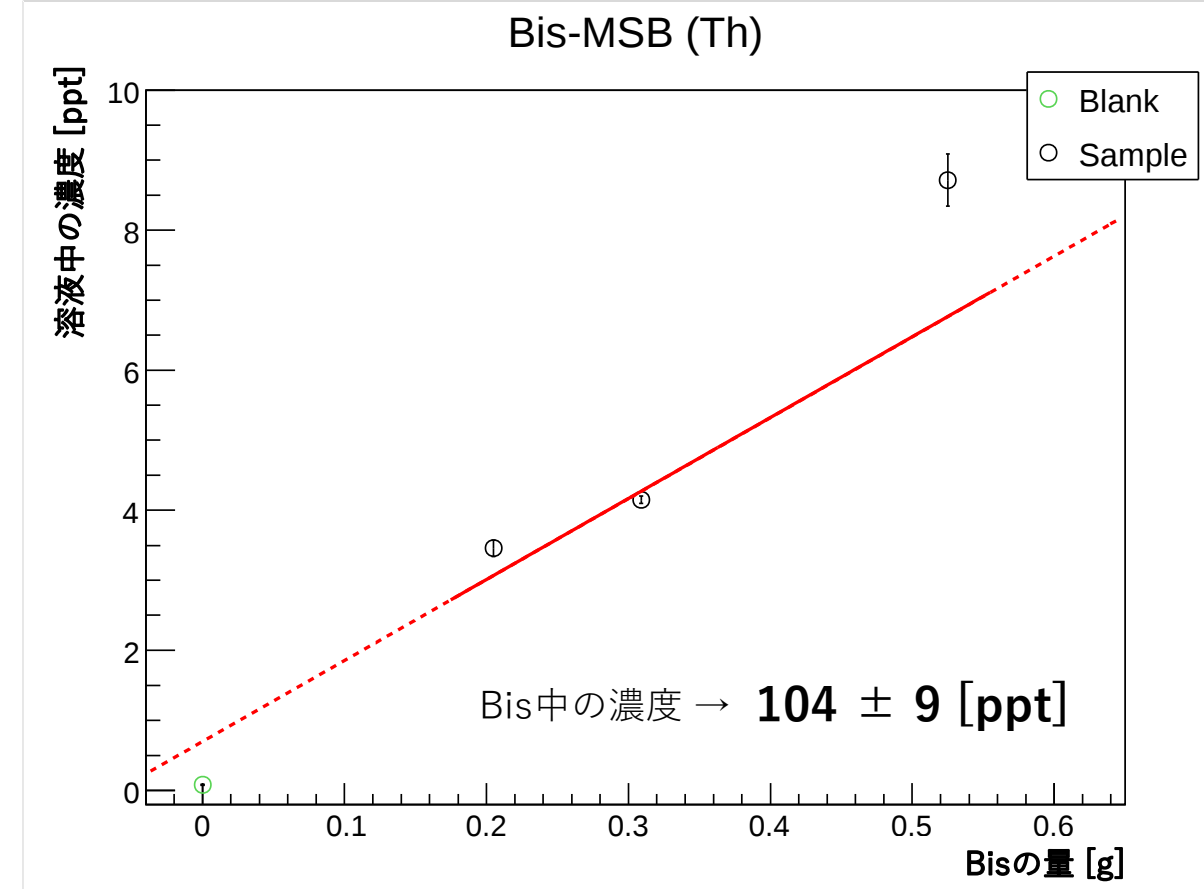
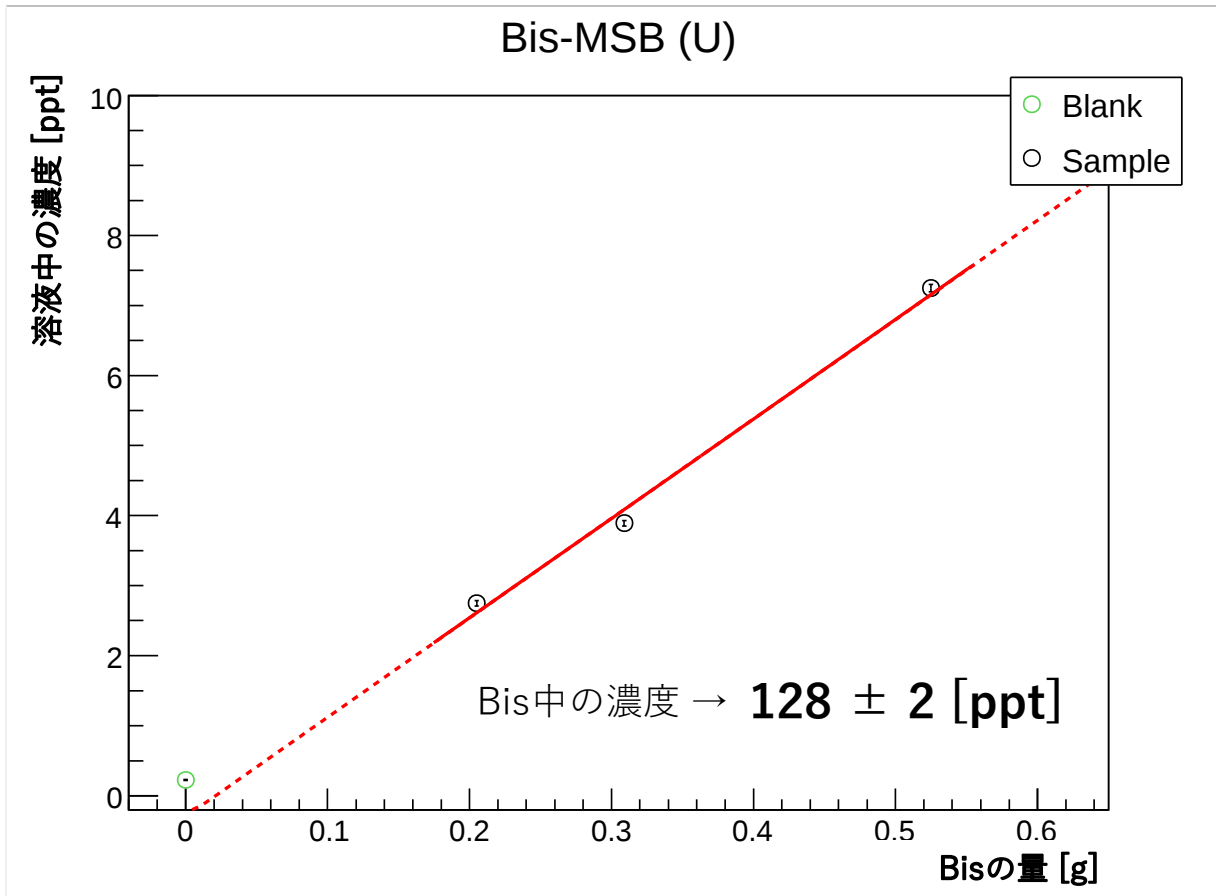


灰化



Bis-MSB – 測定結果

18



- 0.2 g, 0.3 g, 0.5 gの灰を9 mLの硝酸で溶かし 1 サンプルずつ測定
- 液シンから要求されるU,Th量(pptレベル(10^{-12} [g/g(試料)]))より 2 桁多い
→ 純化方法の検討

- ✓ KamLAND2-Zen実験のミニバルーンで使用する物質のRIを高感度で測定する方法の開発・研究をスタートした
 - ✓ 乾式灰化 → ICP-MSで測定という手法を確立
 - ✓ PENフィルム(2 g)でpptレベルの測定を実現
 - ✓ 将来に向けて10ppqの感度での測定手法確立を目指す
 - ブランクのU/Thの数値が高い→ 低減を目指す
 - U/ThがPENの表面起源か内部起源かの判別 → より良い表面の洗浄方法を確立
 - 高感度化には多量の試料を少量の酸で水溶液化することが必要 → 沈殿物の対処や化学分離による濃縮方法を検討
 - ✓ Bis-MSB中の濃度測定
 - 純化方法を検討