

# KamLAND2-Zen実験のための、有機物に含まれる極微量放射性元素の高感度測定方法と純化方法の開発・研究

---

東北大学 RCNS 倉澤 真帆

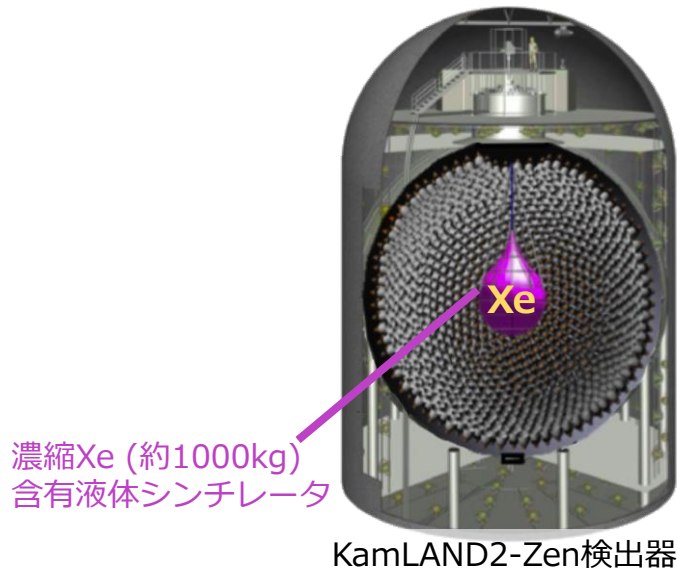
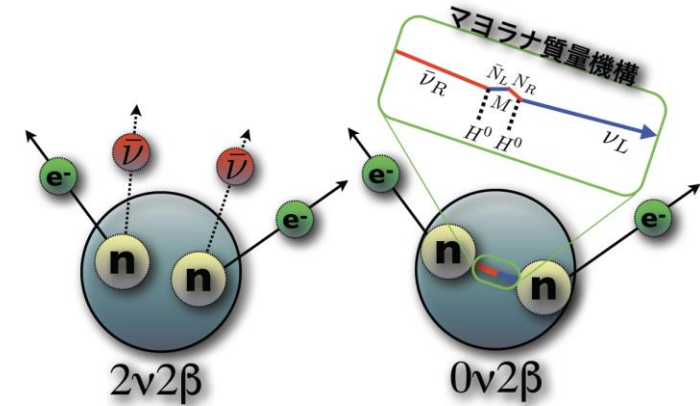


- KamLAND2-Zen実験について
- 本研究のモチベーション
- 研究の流れ
- 有機物中の放射性不純物(RI)量測定方法の確立
- PENフィルムの分析
  - 添加回収実験
  - A社製PEN
  - B社製PEN
- Bis-MSBの分析
  - ロットごとの分析
  - 純化方法の検討
- まとめ

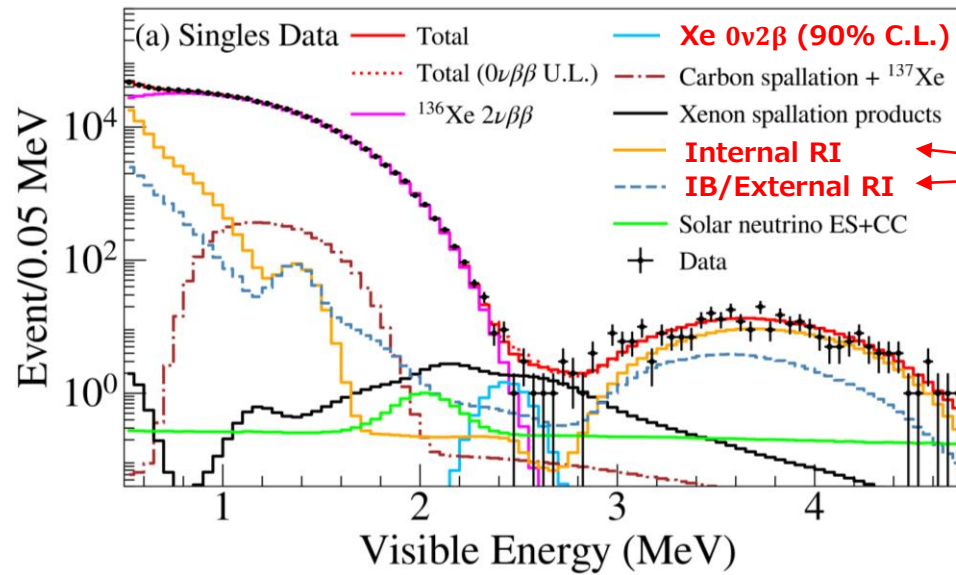
- KamLAND・KamLAND-Zen実験について
- 本研究のモチベーション
- 研究の流れ
- 有機物中の放射性不純物(RI)量測定方法の確立
- PENフィルムの分析
  - 添加回収実験
  - A社製PEN
  - B社製PEN
- Bis-MSBの分析
  - ロットごとの分析
  - 純化方法の検討
- まとめ

# KamLAND-Zen実験

- ニュートリノがマヨラナ粒子(粒子 = 反粒子)であればニュートリノの出ない二重β崩壊( $0\nu 2\beta$ )が起こり得る
  - 物質優勢宇宙の解明の手がかり
- KamLAND-Zen実験：世界最高感度で $0\nu 2\beta$ 事象を探索中
  - 半減期： $> 2.3 \times 10^{26}$  年 (90% C.L.) (arXiv: 2203.02139)
  - KamLAND2-Zen実験：より高感度探索に向けた将来計画

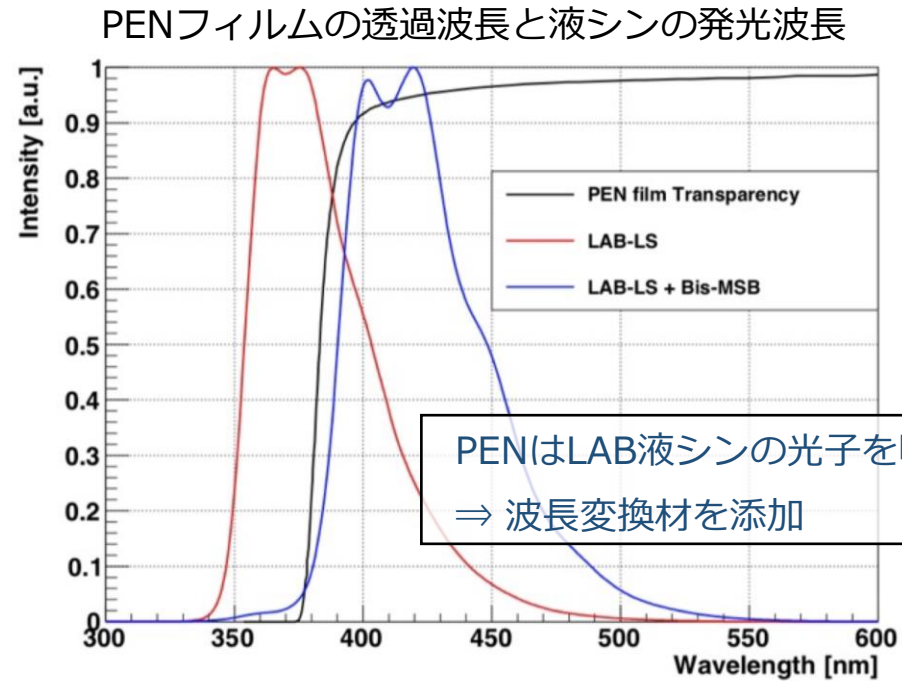
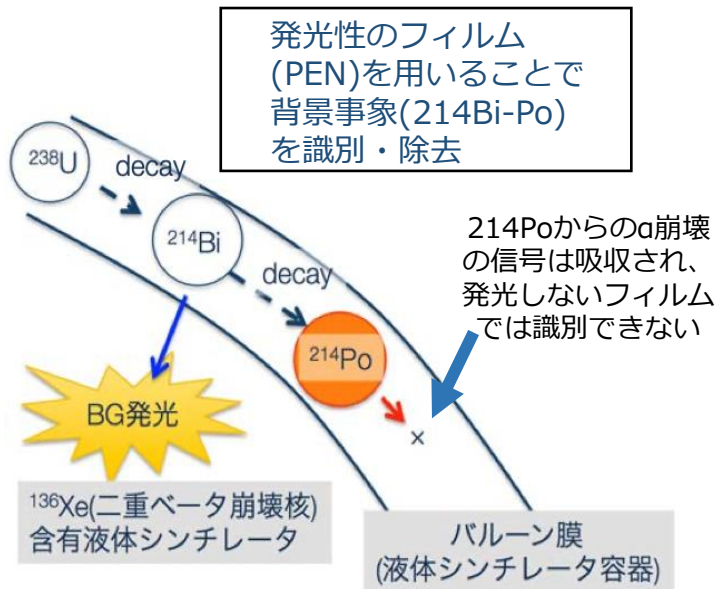
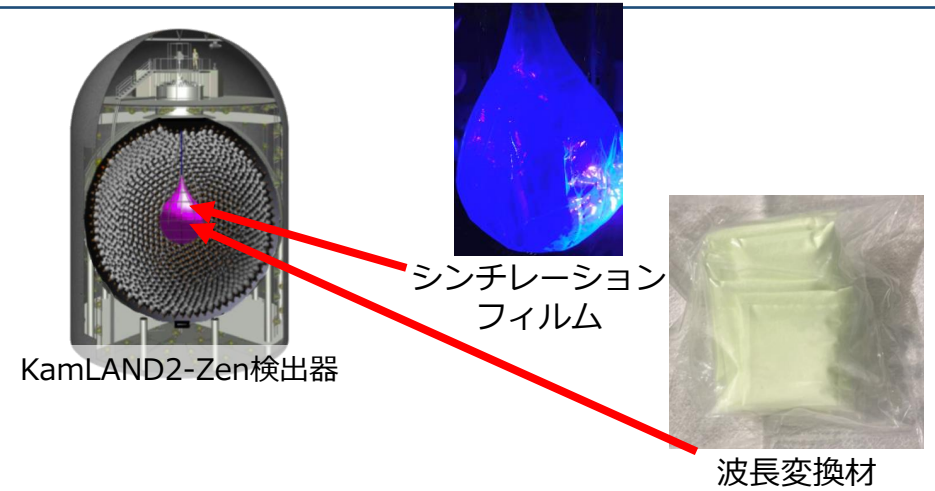


KamLAND-Zen実験のエネルギースペクトル



# KamLAND2-Zen実験

- KamLAND2-Zen実験：より高感度探索に向けた将来計画
  - 新たにシンチレーションフィルムと波長変換材を導入予定
- 検出器内外の極低放射能化が重要



# 本研究のモチベーション

5/21

- **新たに, シンチレーションフィルム(PEN)と波長変換材(Bis-MSB) が KamLAND2-Zenに導入予定**
  - KamLAND2-ZenのRI要求値
    - PEN:  $\mathcal{O}(1)$  ppt\* for U/Th
    - Bis: 30 ppt for U, 100 ppt for Th (0 $\nu$ 2 $\beta$ 探索)
- $\mathcal{O}(0.1)\sim\mathcal{O}(1)$  ppt for U/Th (太陽ニュートリノ観測)
- 通常のICP-MSを使ったUやTh等のRI測定の感度はpptレベルが限界

\*ppt:  $10^{-12}$ g/g



ポリエチレン  
ナフタレート  
(PEN)



Bis-MSB  
(波長変換材)

$\mathcal{O}(0.1)\sim\mathcal{O}(1)$  ppt for U/Th (太陽ニュートリノ観測)

外注の測定結果(PEN)

$^{238}\text{U}$ [ppt]	$^{232}\text{Th}$ [ppt]
36	< 5

← 上限値のみが得られた

- **有機物中のU/Th濃度の超高感度( $10^{-14}$  g/g レベル) 測定手法を開発・確立し, KamLAND2-Zenで使用する部材を選定する**

## 放射性不純物量の測定方法の確立

- クリーン環境の整備
- 灰化装置の導入
- ICP-MSで分析してU/Th濃度をだす

- 操作や器具のブランク管理
- 添加回収率の確認

## 純化方法の検討

- Bis-MSB(要求値よりU/Th量多い)：液液抽出
- PENフィルム(要求値よりU/Th量多いか不明)：原材料のU/Th量分析、表面洗浄

## 試料に合った前処理方法の確立

- 確立した方法で前処理できない試料(メーカーが違うPENフィルム)の酸分解

## 感度向上のための試料の濃縮

- 液シンなどの液体試料：大量に蒸発乾固
- 固体試料：大量に灰化し化学分離

- KamLAND2-Zen実験について
- 本研究のモチベーション
- 研究の流れ
- 有機物中の放射性不純物(RI)量測定方法の確立
- PENフィルムの分析
  - 添加回収実験
  - A社製PEN
  - B社製PEN
- Bis-MSBの分析
  - ロットごとの分析
  - 純化方法の検討
- まとめ



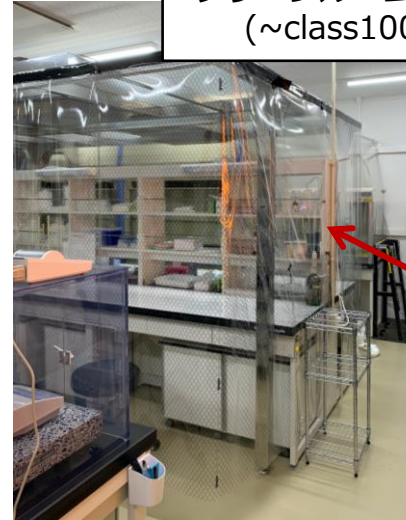
# 有機物中の放射性不純物(RI)量測定方法の確立

## ① クリーン環境の整備

クリーンルーム@東北大  
(~class100)



クリーンルーム@筑波大  
(~class100,000)



Clean bench (~class 1)



PEN film



Bis-MSB

### ① 洗浄



超音波洗浄  
(PENフィルムのみ)

### ② 灰化



灰化装置  
新たに導入

### ③ 溶液化



灰を希硝酸に溶かす

### ④ 分析



ICP-MS

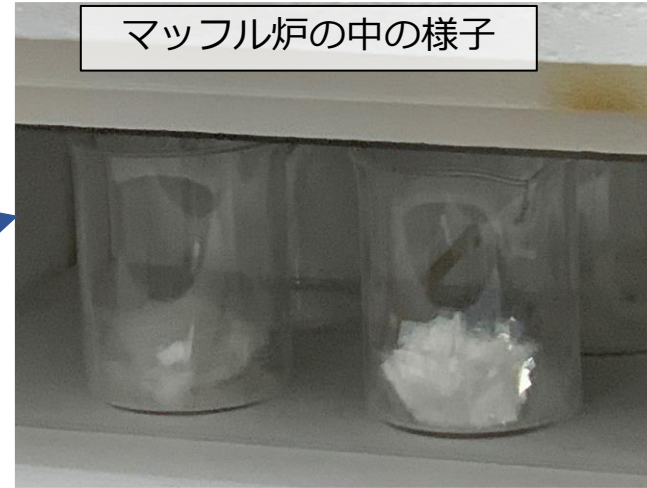
- 水溶液試料中の元素分析
- 感度はpptレベル

# 有機物中のRI測定方法の確立；乾式灰化

目的：ICP-MSで測定するために  
試料を溶液化できるようにする



灰化装置



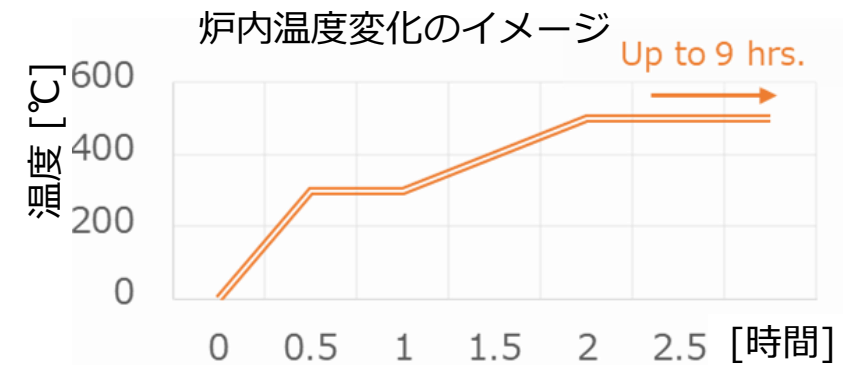
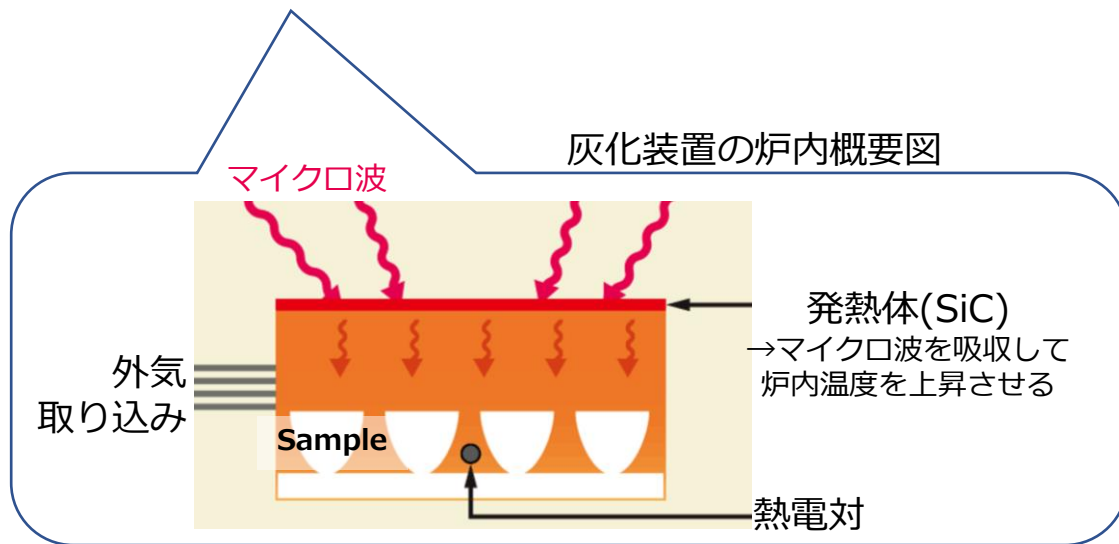
マッフル炉の中の様子



灰化後の試料



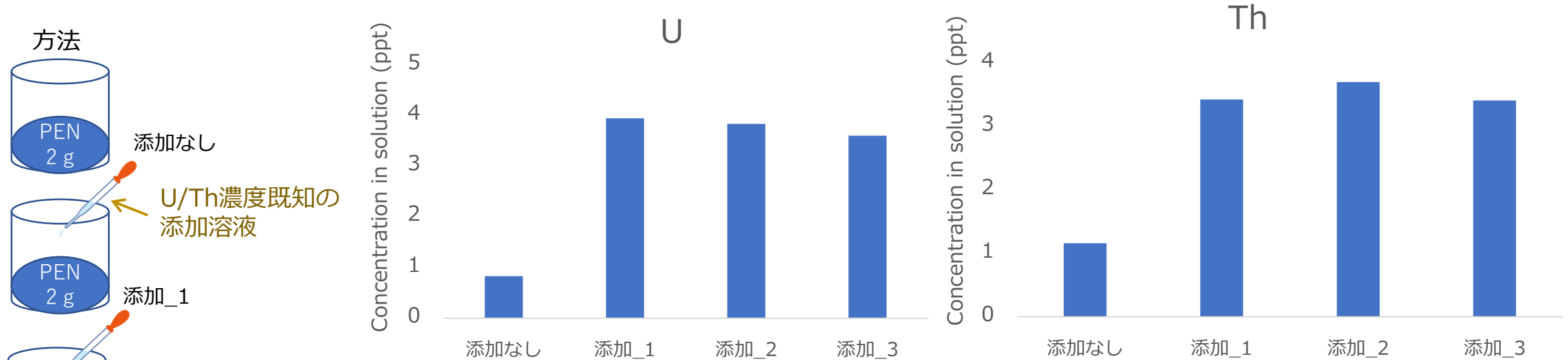
硝酸で溶かし  
ICP-MSで測定



- KamLAND2-Zen実験について
- 本研究のモチベーション
- 研究の流れ
- 有機物中の放射性不純物(RI)量測定方法の確立
- **PENフィルム**の分析
  - 添加回収実験
  - A社製PEN
  - B社製PEN
- Bis-MSBの分析
  - ロットごとの分析
  - 純化方法の検討
- まとめ

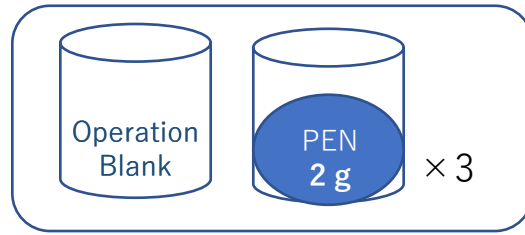
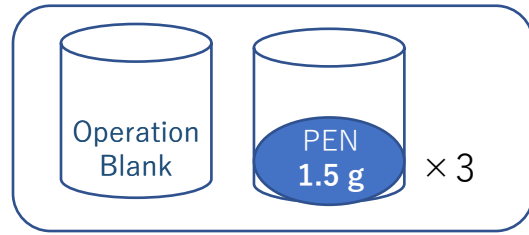
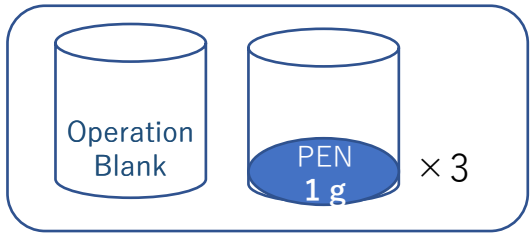
# 添加回収実験(A社製50 $\mu$ mPENフィルム)

- 新たに確率してRI測定工程(灰化や溶液化)でU/Thが回収できているかを確認 (蒸発や溶け残り等でU/Thが失われていないか)



	U	Th
実際の添加量 (ppt)	2.85 ± 0.06	2.50 ± 0.13
測定された添加量(ppt) ({添加_1,2,3の平均値}-{添加なしの値})	2.96 ± 0.05	2.35 ± 0.07
<b>回収率(%)</b>	<b>103.7 ± 2.8</b>	<b>94.1 ± 5.6</b>

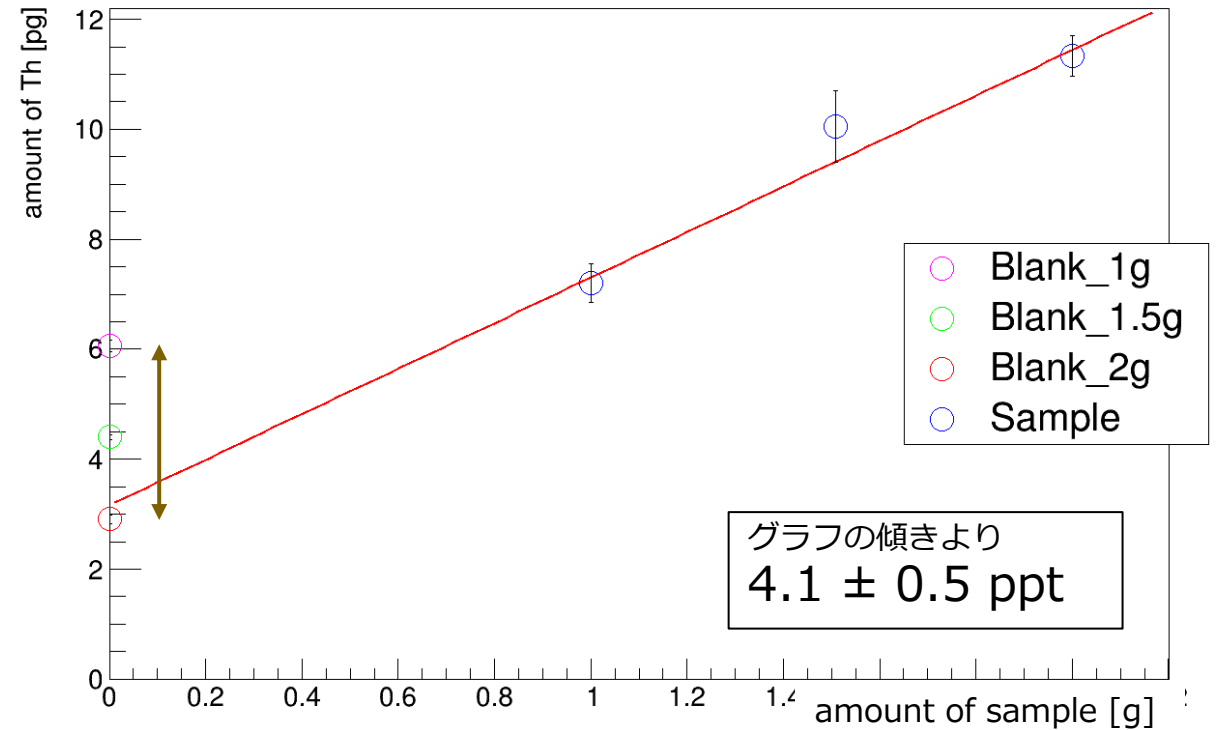
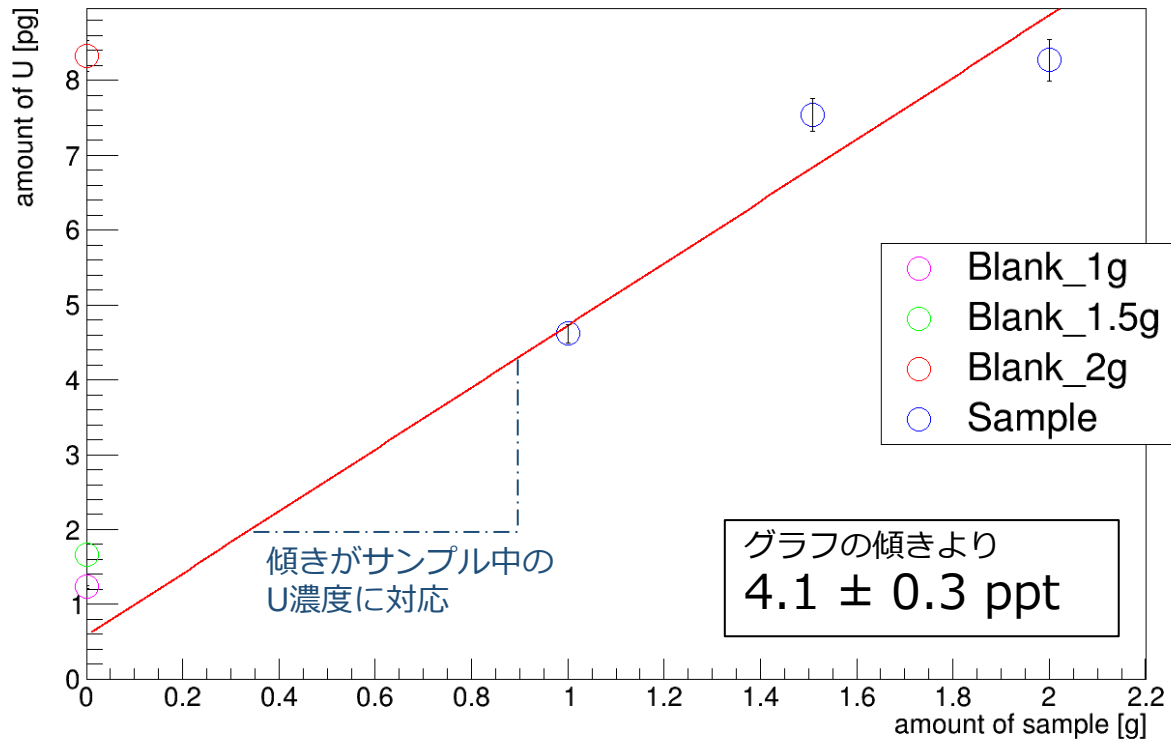
# PENフィルムのU/Th量 (A社製)



- サンプル量の異なる試料を測定してその線形性から濃度を計算する

PEN (U)

PEN (Th)



- pptレベルの分析ができた
- U/ThのKamLAND2-Zenの要求値(0(1) ppt)を満たす
- A社PEN事業撤退!

# PENフィルム(B社製)

- 溶液化の過程で問題：少量の灰でも硝酸に溶け残る → 沈殿があるとU/Thが取り込まれて正しい濃度が測定できない可能性
- 電子顕微鏡で灰を元素分析 → Siが主成分 = 硝酸では溶けない
- 硝酸 + Siを溶かす試薬で溶液化するが沈殿物が残る

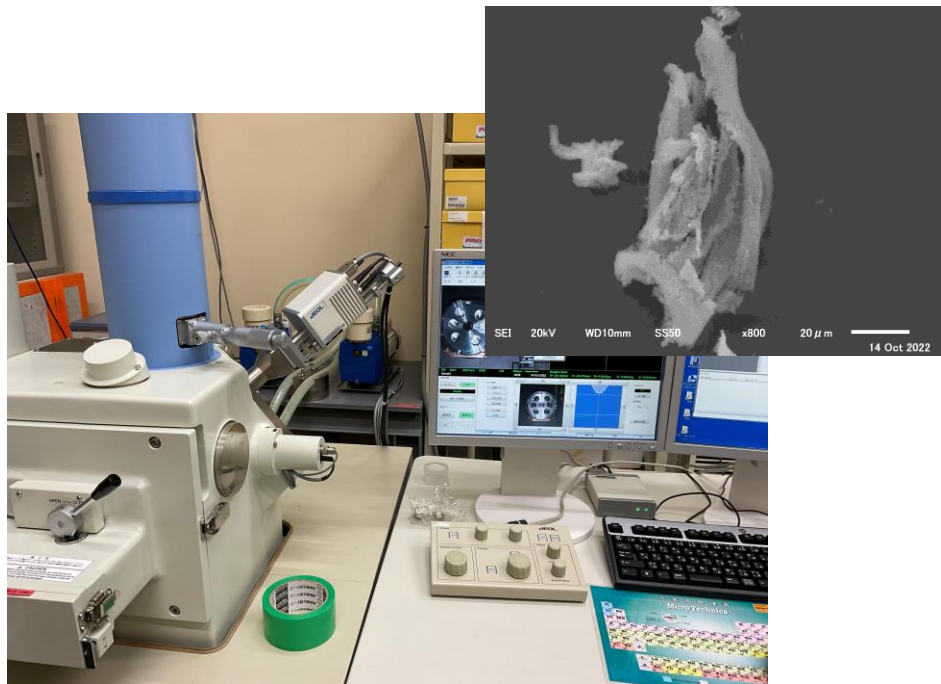
A社製のPEN

灰化 → 硝酸で溶液化

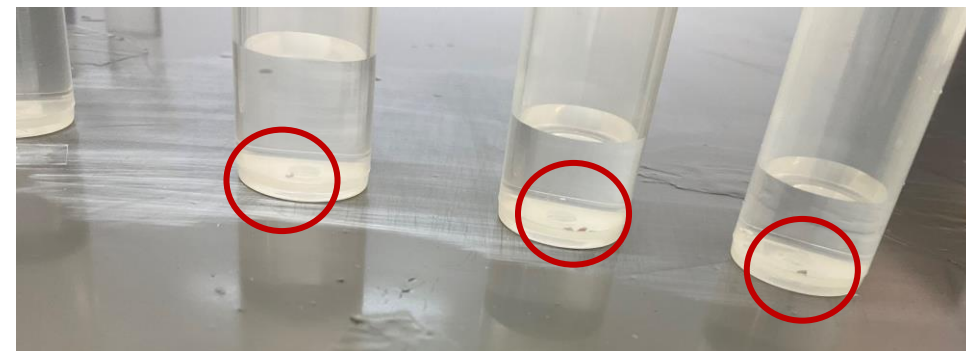
B社製のPEN

灰化

→ フッ酸で石英ビーカーからPTFEビーカーに洗い出す  
→ 硝酸・フッ酸・過塩素酸を加えて加熱  
→ 硝酸で溶液化



電子顕微鏡での分析



HNO<sub>3</sub>, HF, HClO<sub>4</sub>での溶液化後の沈殿

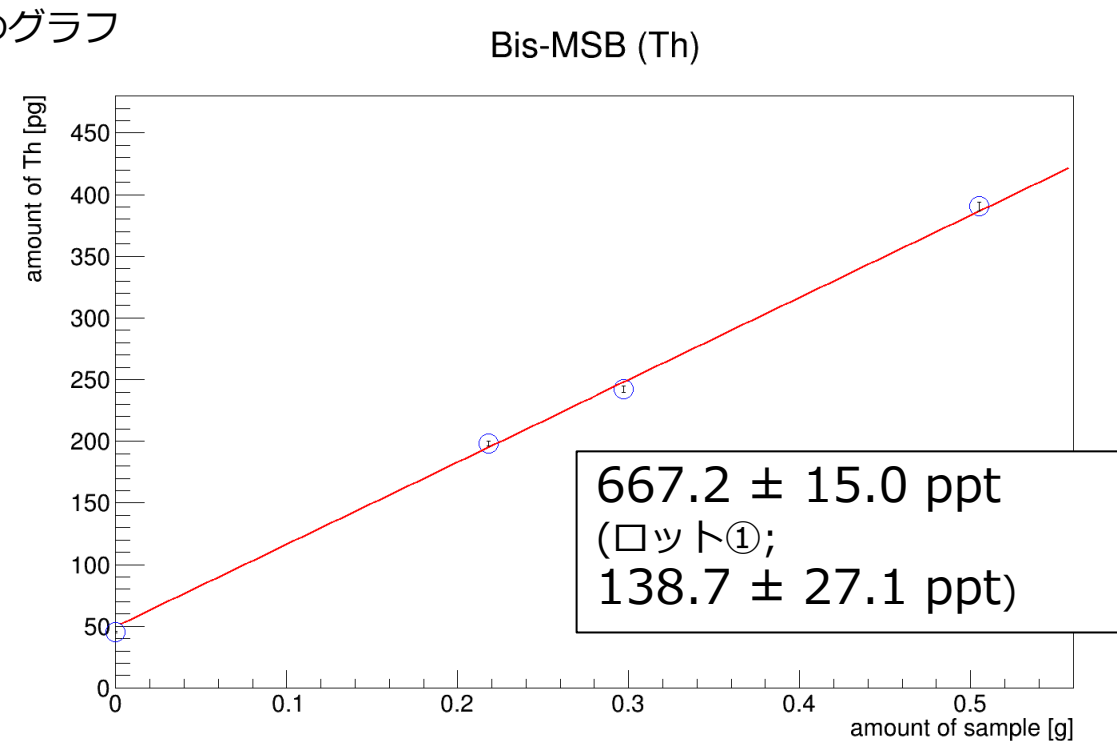
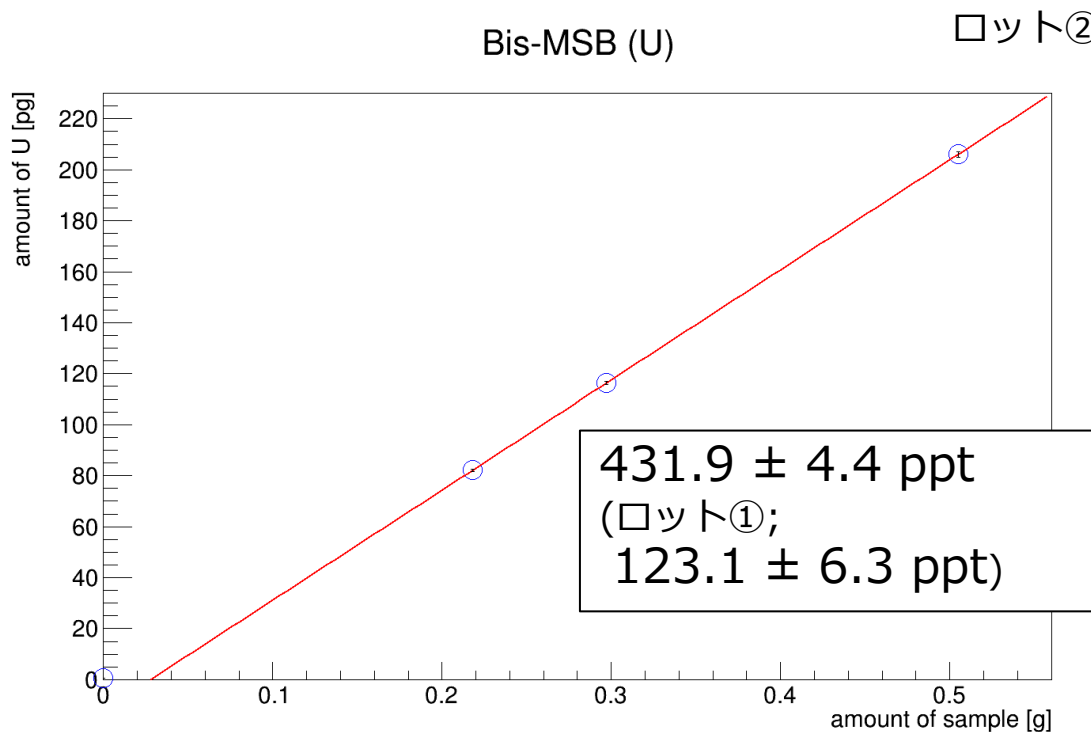
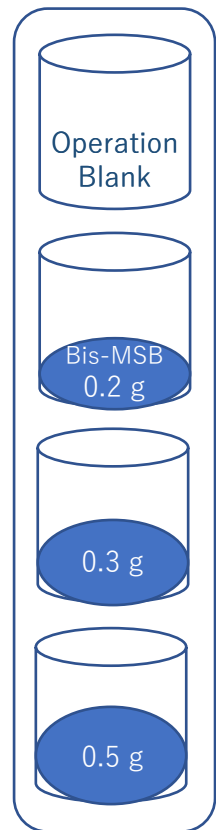
- 沈殿物をろ過してICP-MSで測定するが回収率が悪い
  - U : 約66%
  - Th : 定量不可(添加試料の方がTh値が低い)
    - 沈殿に取り込まれた可能性が高い(特にTh)
- 使用する薬品の量など条件を変更して沈殿を完全に溶かす方法の確立
  - +ブランクの管理が必要

大きな課題

- KamLAND2-Zen実験について
- 本研究のモチベーション
- 研究の流れ
- 有機物中の放射性不純物(RI)量測定方法の確立
- PENフィルムの分析
  - 添加回収実験
  - A社製PEN
  - B社製PEN
- Bis-MSBの分析
  - ロットごとの分析
  - 純化方法の検討
- まとめ



- 2つのロットのBis-MSBを分析



- 前のロットに比べて高いU/Th量
- ロットによる差が大きい可能性

- KamLAND2-Zenの要求値よりも高い**

- KamLAND2-Zen実験の要求値とBisのRI測定値

	U conc. (ppt)	Th conc. (ppt)
0 $\nu$ 2 $\beta$ 探索要求値	30	100
solar $\nu$ 解析要求値	0(1)	0(0.1)
測定値; ロット①	123.1 $\pm$ 6.3	138.7 $\pm$ 27.1
測定値; ロット②	431.9 $\pm$ 4.4	667.2 $\pm$ 15.0

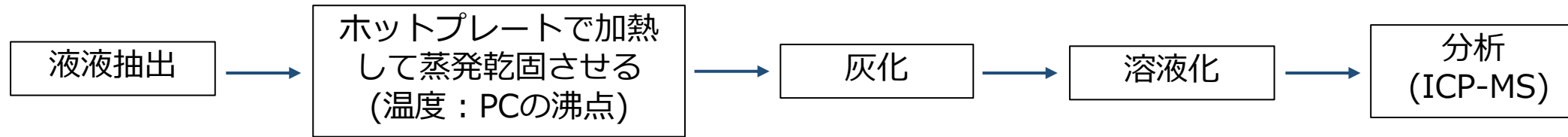
**純化が必要**

- 純化方法

- 蒸留 – Bis-MSBは熱に弱い&沸点のデータがないため難しそう
- **液液抽出** – 有効である可能性  $\longrightarrow$  プソイドクメン(PC)で試す
  - PCにBis-MSBを溶かし超純水と振り混ぜ、U/Thを水層側に取り除く (Bis-MSBは水に不溶)
  - 液液抽出後はBisが溶けているPCごとU/Th値を分析する

# Bis-MSB中の純化（液液抽出）

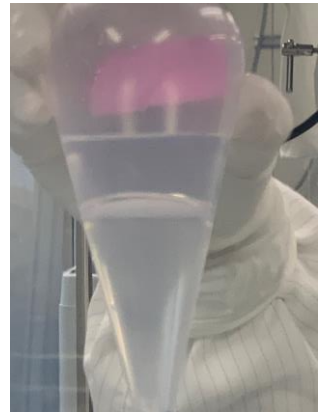
## • RI 分析の流れ



※ この手法でも添加回収実験が必要

液液抽出有/無のサンプルで比較

- 苦戦中…
- 回収率の確認 & 液性を変えるなど色々な条件で純化方法を引き続き検討
  - 超純水
  - HNO<sub>3</sub>
  - TMSC：強アルカリに界面活性剤が混ざったもの、シリコンウエハーなどの洗浄に使われる



分液ロートで振とうさせた後の様子

# 液液抽出後の液シン性能

- Bis-MSBの波長変換材としての性能が液液抽出によって損なわれていないか確認
  - 発光量測定
  - 蛍光スペクトル測定

- サンプル作成

## 液液抽出ありのサンプル

1. PC 80mL
2. Bis 0.4mg (5mg/L)加える
3. 液液抽出
4. PPO 160mg (2g/L)加える  
発光剤



分液漏斗で液液抽出を行う様子

## 液液抽出なしのサンプル

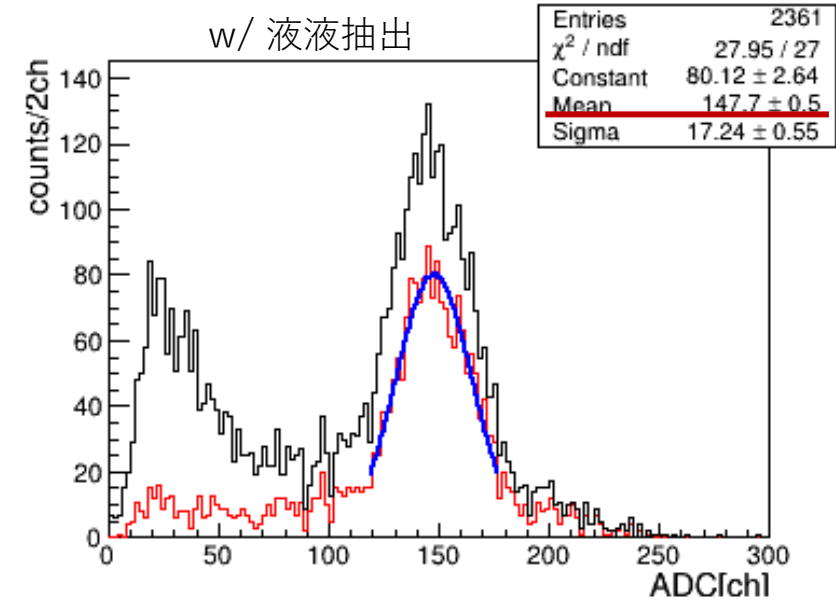
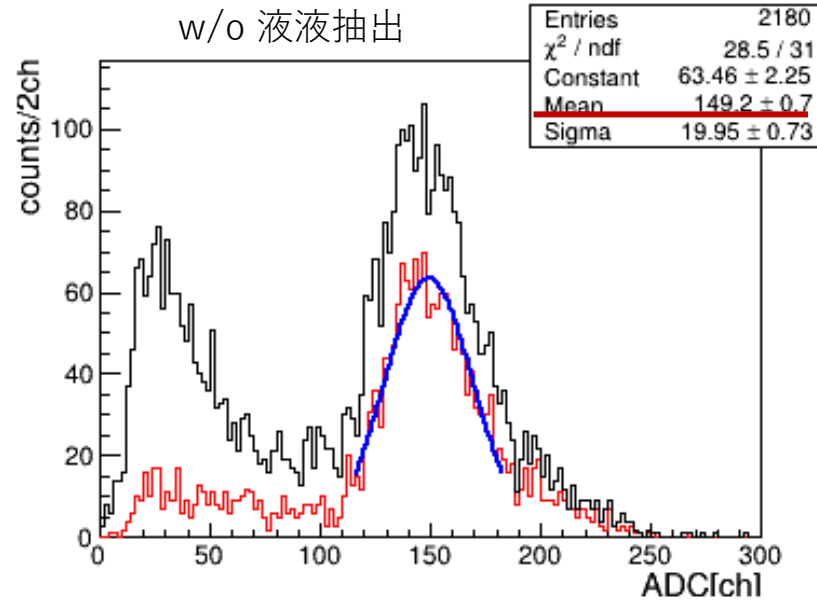
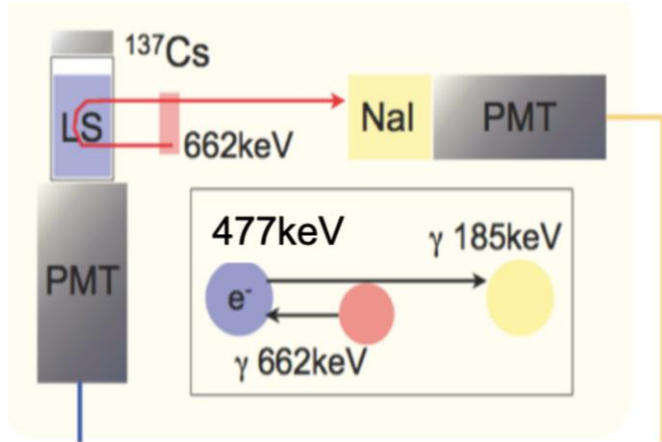
1. PC 80mL
2. Bis 0.4mg (5mg/L)加える
3. PPO 160mg (2g/L)加える

KamLAND2-Zenの液シンと同濃度

# 液液抽出後の液シン性能：発光量

## 測定方法

同時計測を用いた  
後方散乱測定 (線源:  $^{137}\text{Cs}$ )



発光量 (デジタル値に変換)

	Scintillation yield
w/o WE	$149.2 \pm 0.7$
w/ WE	$147.7 \pm 0.5$

- 液液抽出も発光量は損なわれない
- 蛍光スペクトル測定も行う

- 有機物中のRI測定方法の基本的な流れを確立した
- PNEフィルム ;
  - A社製のPENフィルムをpptレベルで測定できた
  - 全ての有機物を測定できるわけではない(B社製PENフィルム)
    - 溶液化の際に沈殿を完全に溶かす**前処理方法の確立**が必要
- Bis-MSB ;
  - KamLAND2-Zenの要求値よりも高いU/Th濃度であること・ロットの差が大きいことが分かった
  - Bis-MSBの液液抽出を行っているが苦戦中
    - 条件を変えながら引き続き純化可能な条件の探索を行う(HNO<sub>3</sub>, TMSO)
    - 液液抽出後の液シンの性能(発光量・蛍光スペクトル)も確認する

	U conc. (ppt)	Th conc. (ppt)
A社製PENフィルム	4.1 ± 0.3	4.1 ± 0.5
KamLAND2-Zen要求値	0(1)	0(1)

	U conc. (ppt)	Th conc. (ppt)
0ν2β探索要求値	30	100
solar ν解析要求値	0(1)	0(0.1)
測定値; ロット①	123.1 ± 6.3	138.7 ± 27.1
測定値; ロット②	431.9 ± 4.4	667.2 ± 15.0