

# 公募研究：メタルスカベンジャーによる 液体シンチレータ検出器の極低放射能化

新学術「地下素核研究」領域研究会

2017年5月21日

東北大学ニュートリノ科学研究センター

清水 格

# 研究の目的

公募研究：メタルスカベンジャーによる極低放射能化技術の開発

期間：平成27～28年 D01班関連

公募研究：メタルスカベンジャーによる液体シンチレータ検出器の

低放射能化 期間：平成29～30年 D01班関連

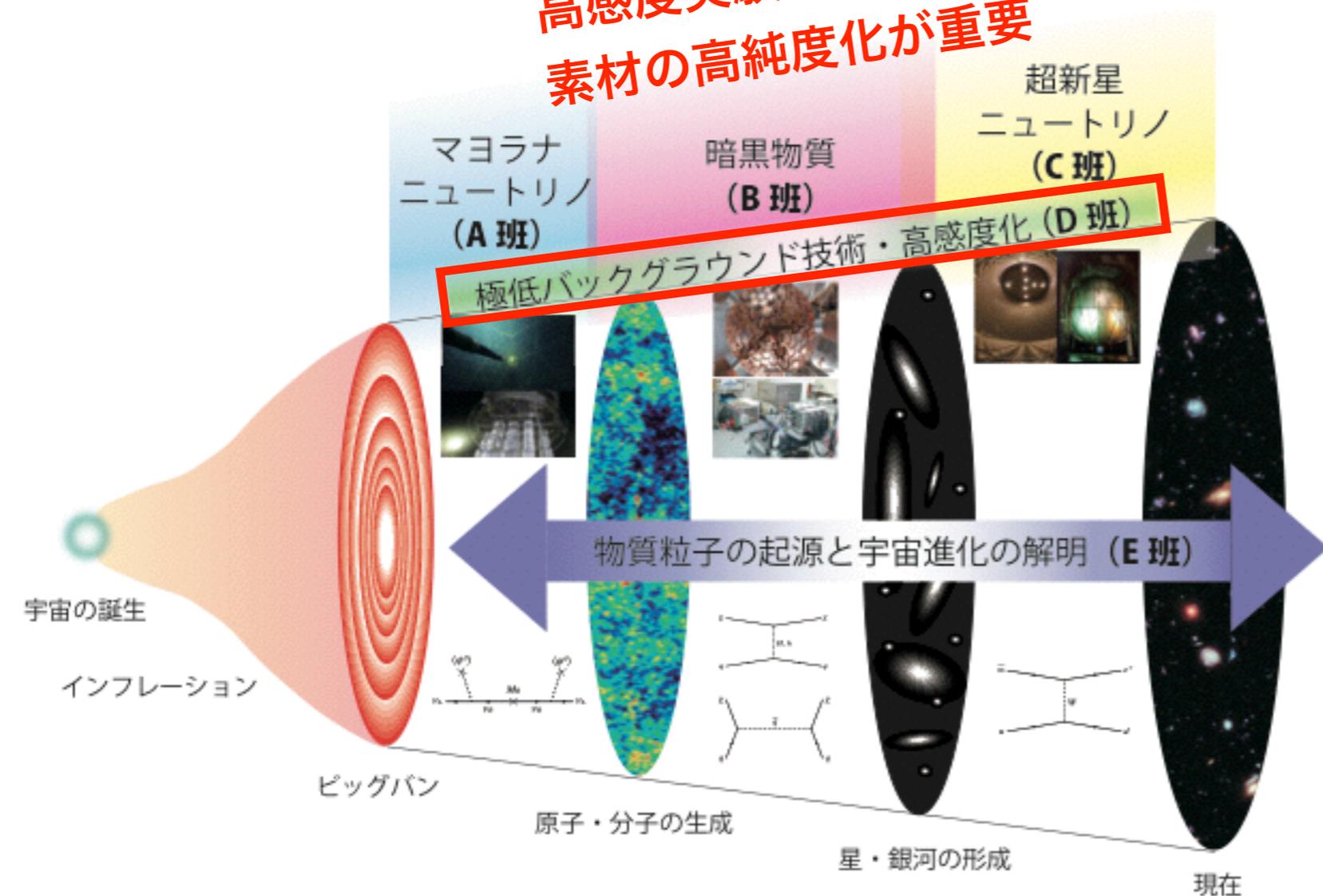
高感度実験のためには  
素材の高純度化が重要

A,B,C班の共通課題

極低放射能のさらなる追求



微量放射性不純物を  
除去する純化技術の  
向上を目指す



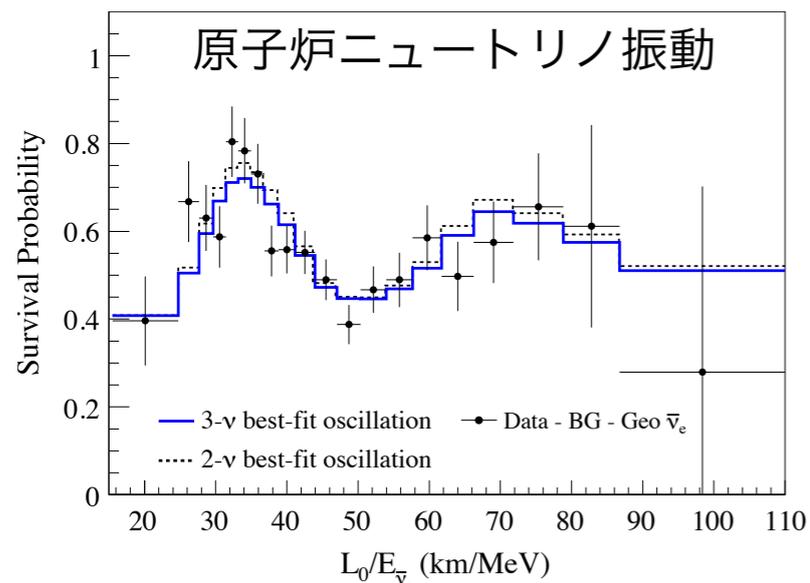
# ニュートリノ観測装置 KamLAND

## KamLAND

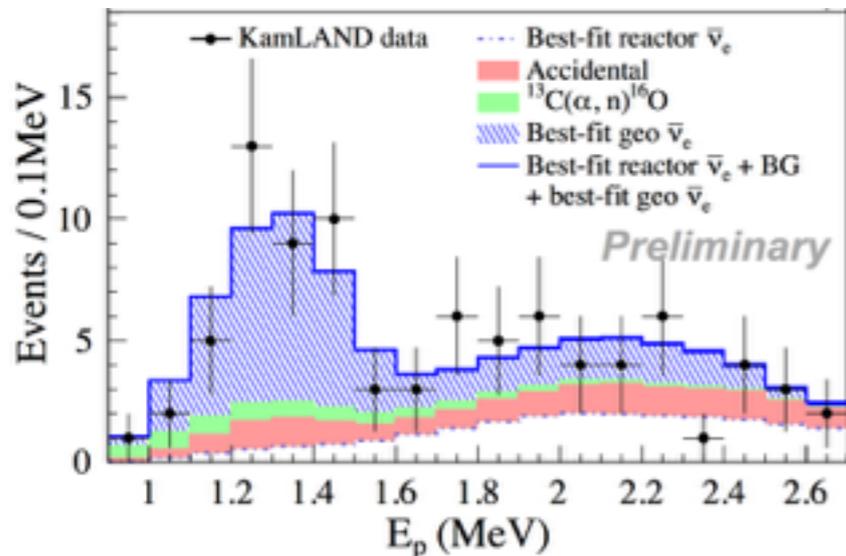
### カムランド液体シンチレータ

ドデカン	80%
プソイドクメン	20%
PPO	1.36 g/liter

### 原子炉・地球反ニュートリノ観測



### 地球ニュートリノ測定

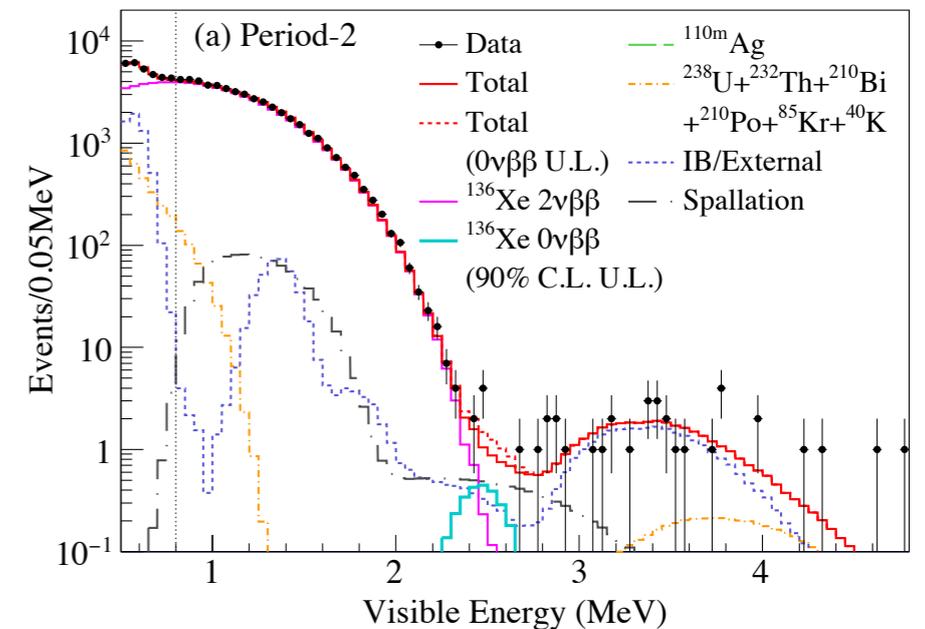


## KamLAND-Zen

### キセノン含有液体シンチレータ

ドデカン	82%
プソイドクメン	18%
PPO	2.7 g/liter
キセノン	2.44 wt%

### $^{136}\text{Xe}$ 含有液体シンチレータを用いた二重ベータ崩壊探索



神岡地下1,000 mに建設

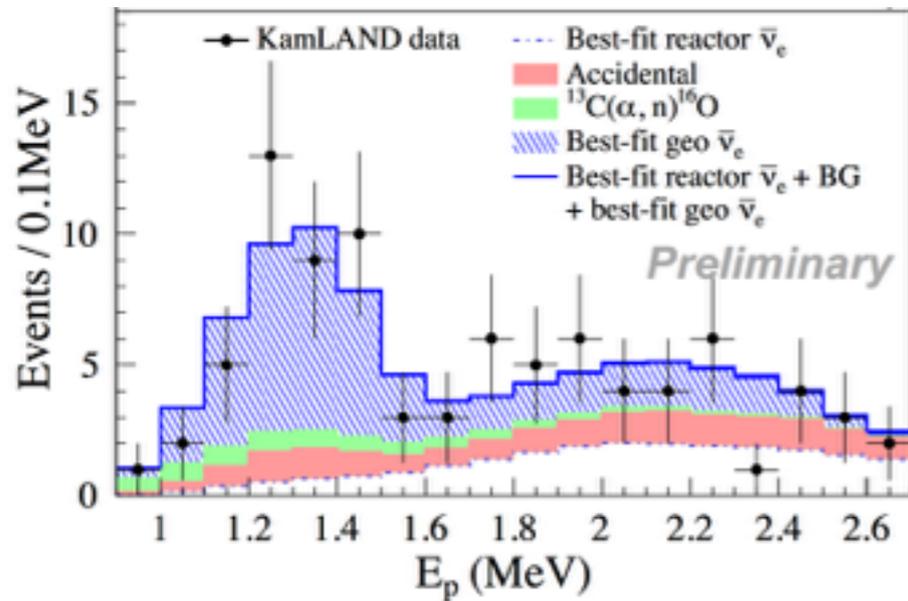
**大容量 (1 kton)**  
**液体シンチレータ**

→ 稀に起きる現象を探す

**高感度化の鍵は極低放射能化**

# 液体シンチレータの純化による成果

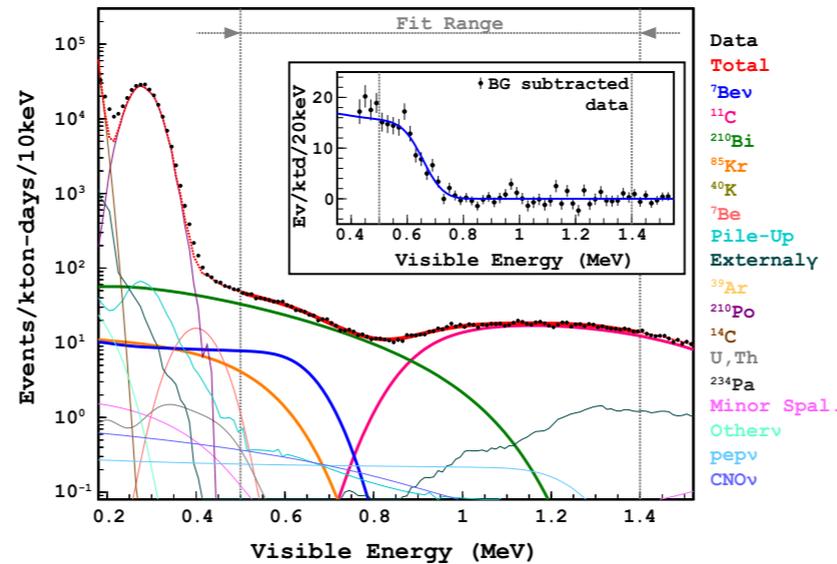
## ニュートリノ地球科学



$^{210}\text{Po}$ の削減

地球ニュートリノの観測精度の向上

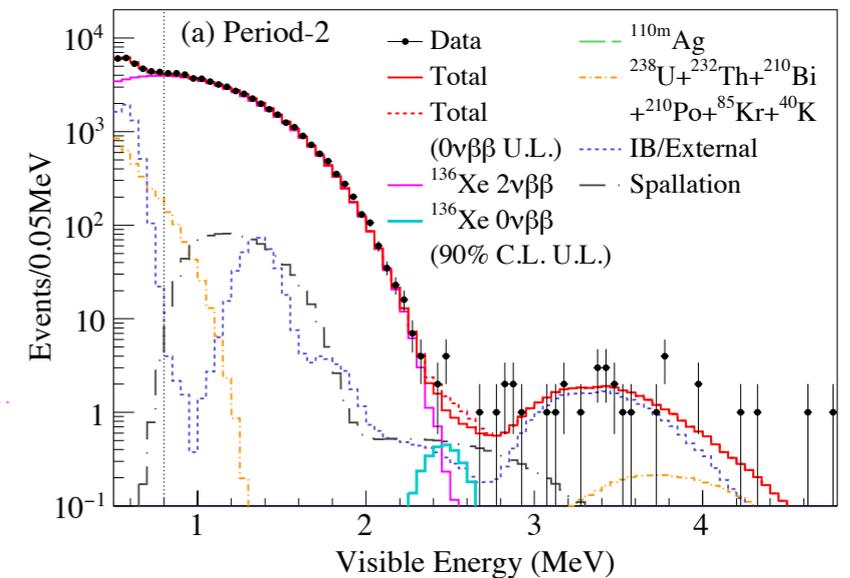
## ニュートリノ天文学



$^{210}\text{Bi}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ の削減

$^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測の実現

## ニュートリノ質量探索



$^{110\text{m}}\text{Ag}$ の削減

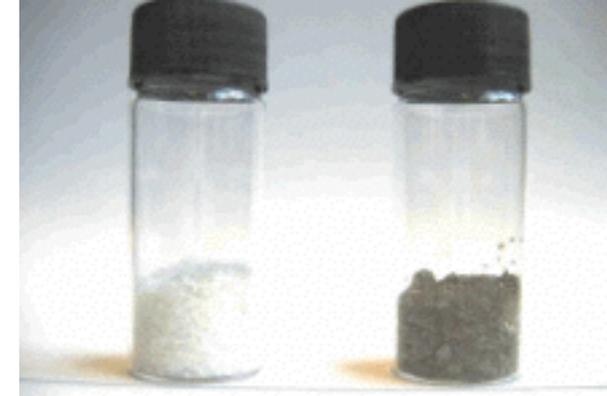
世界最高感度の二重ベータ崩壊探索

## 現在の純化方法（蒸留）の欠点

- 装置の操作が複雑であり、運転状態は常時観測が必要
- キセノン含有液体シンチレータの場合、純化前にキセノン回収作業が必要
- 過去の液体シンチレータの回収・純化の作業には約2年かかった

純化にかかる期間・労力・コストを減らす必要性

# メタルスカベンジャー



メタルスカベンジャーとは？

溶液中に溶存する金属化合物を補足する金属吸着剤

主な利用例

パラジウム・白金・金などの工業的に有用な**希少金属を吸着・回収**する。他の方法に比べ、**高効率・低コスト**。

製品

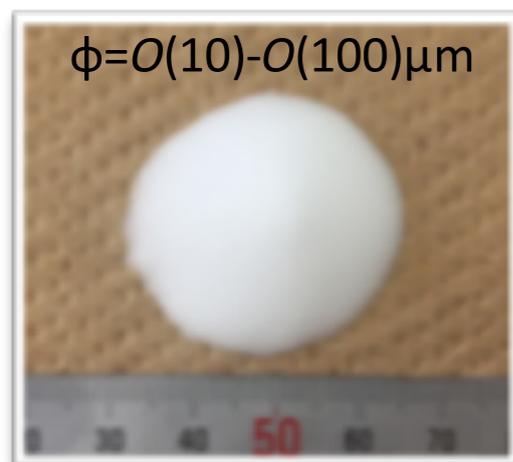
- |            |   |
|------------|---|
| Smopex     | グラフト重合したポリオレフィンベースのファイバー状スカベンジャー。化学的・機械的に安定、多くの金属に適用可能。 |
| QuadraPure | 高密度ポリスチレン樹脂に官能基をつけたビーズ状スカベンジャー。低コストで希少金属除去。             |
| QuadraSil  | 球状シリカに官能基をつけたビーズ状スカベンジャー。高速な希少金属除去。                     |

# 液体シンチレータの純化手法

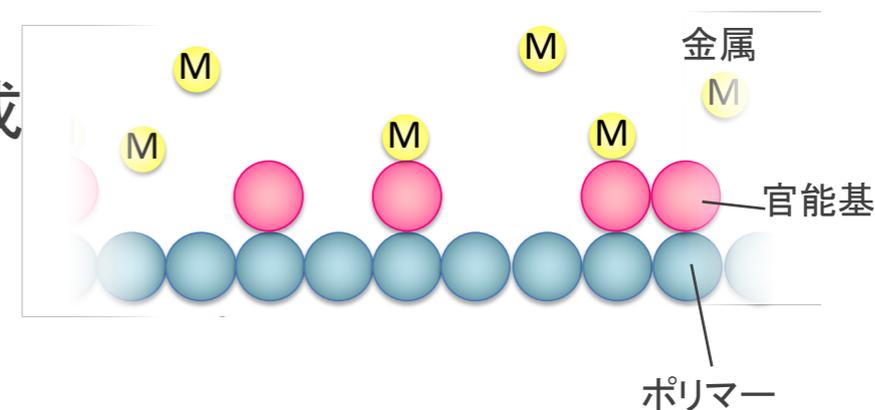
※先行研究から予想

	濾過	液液抽出	蒸留	スカベンジング
除去効率	△ コロイド・粉塵のみ	△ 極性成分のみ	◎	○
成分変化	◎	○	△ 揮発成分のロス	◎
処理速度	◎	◎	△	○
コスト 費用的・ 労働力的	○	◎	×	○

## 金属スカベンジャー



- 薬学の分野で用いられている**金属吸着剤**
- 配位結合で化学吸着
- 先行研究で>90%の鉛除去達成
- 製品によっては**再生可能**



# 二重ベータ崩壊実験での目標

## $^{136}\text{Xe}$ $0\nu$ 信号領域の金属BG

連続スペクトル  $^{238}\text{U}$  ( $^{214}\text{Bi}$ ),  $^{232}\text{Th}$  ( $^{212}\text{Bi-Po}$ )

単色ピーク  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{208}\text{Bi}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{60}\text{Co}$

0ν信号らしいピークが検出？

高速な純化によって金属バックグラウンドの可能性を排除

0ν信号の発見主張

## 低エネルギー領域の金属BG

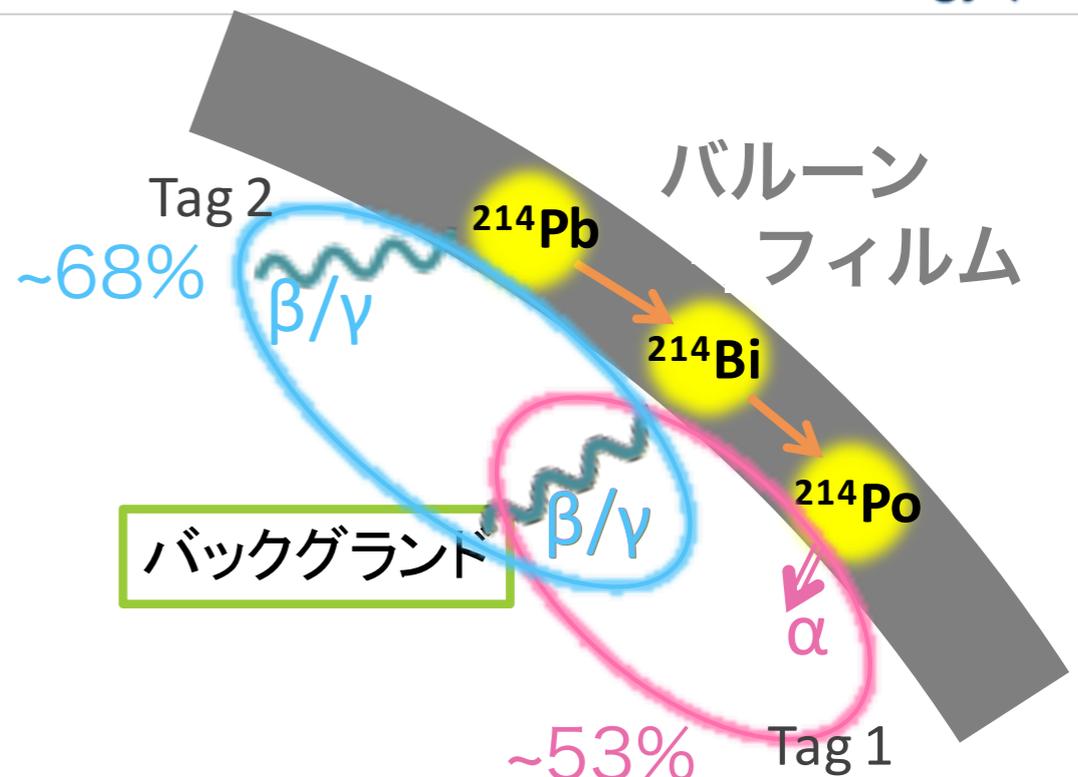
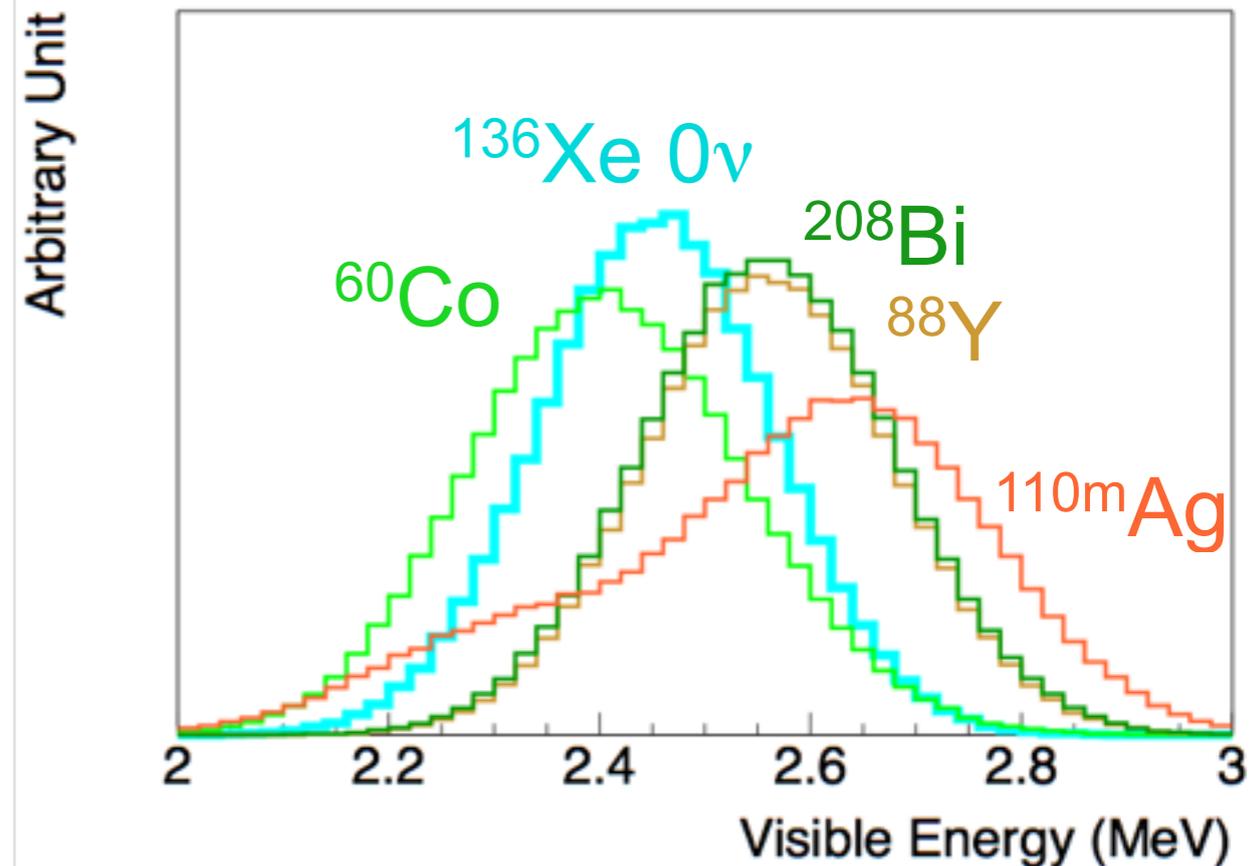
液体シンチレータ中  $^{210}\text{Pb}$  ( $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ),  $^{40}\text{K}$

$^{210}\text{Bi}$ によって0ν信号のBGとなるバルーンフィルム内部の $^{214}\text{Bi}$ のタグging効率が低下

$^{210}\text{Pb}$ の削減によって $^{214}\text{Bi}$ を~68%タグ

低BG体積の拡大による感度改善

BG候補のエネルギースペクトル

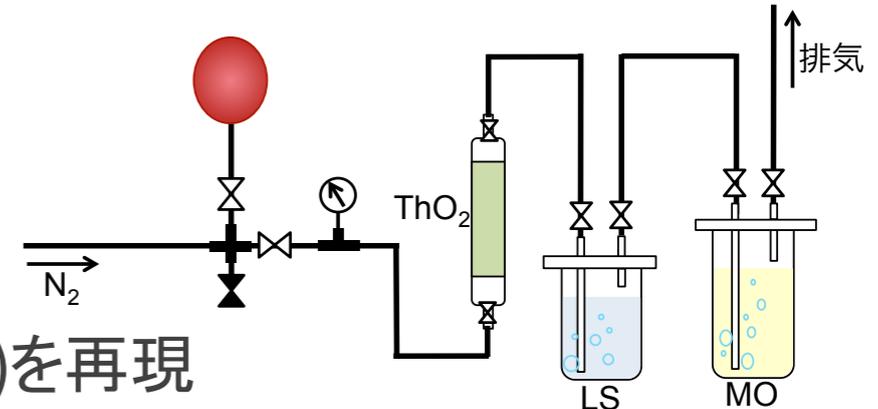


# 実験方法

東北大学アルファ放射体実験室

## 1 $^{212}\text{Pb}$ 溶かし込み

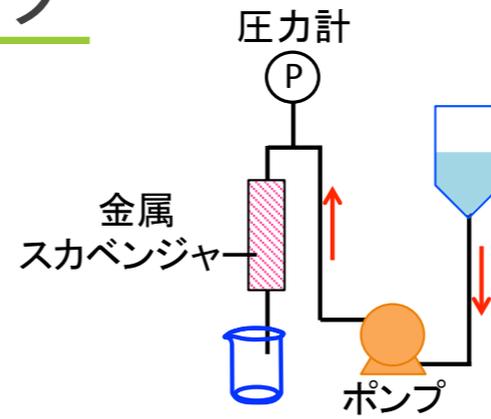
- LS中の鉛の生成過程( $\alpha$ 崩壊)を再現
- 希ガスの $^{220}\text{Rn}$ をLSにバブリング
- 3.5時間で4.5kBq/500mLのLSができる



## 2 金属スカベンジング



バッチプロセス



カラムプロセス

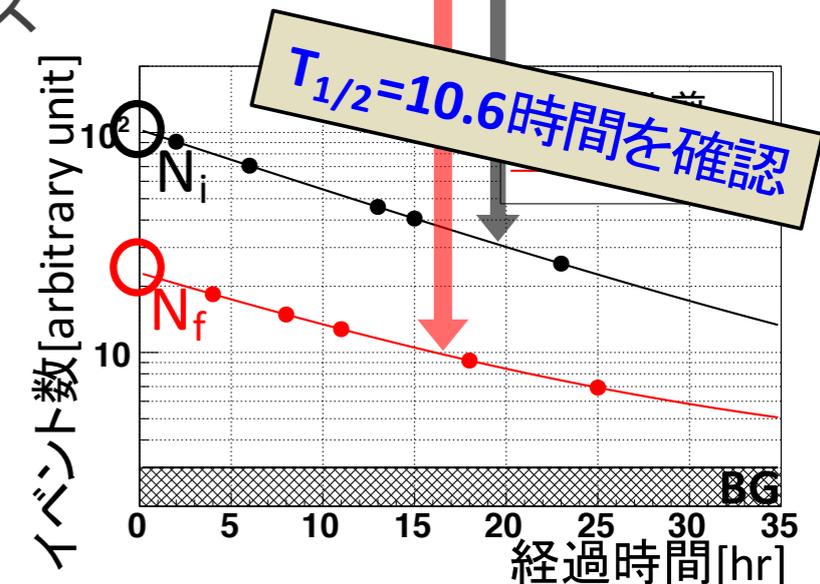
## 3 測定

### $^{212}\text{Pb}$ を用いる利点

- ① 生成過程が $^{210}\text{Pb}$ と同じ
- ②  $T_{1/2}$ が最適
  - 放射能が十分高い
  - 操作時間の猶予がある
- ③ Bi-Poの検出効率が高い

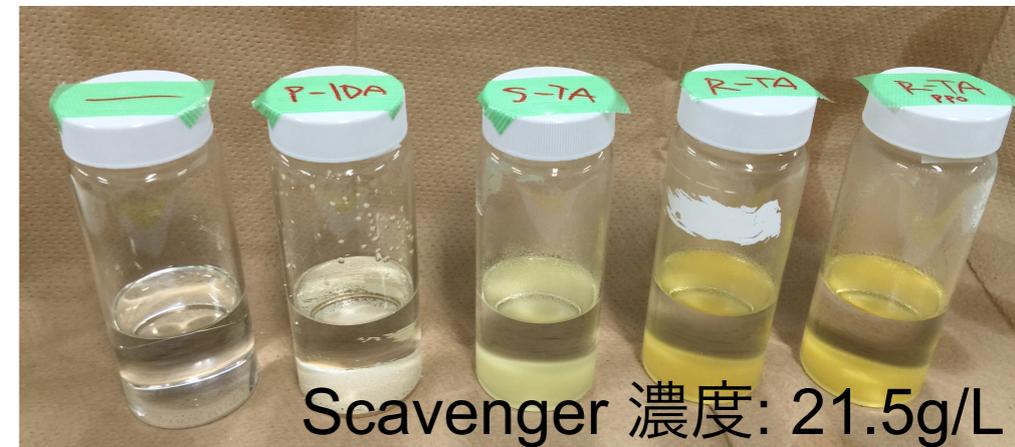
- シンチレーション法での $^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測

• 除去率 =  $\frac{N_i - N_f}{N_i}$



# 候補選別

KamLANDでの有力候補12製品を購入  
候補を絞るために**バッチプロセス**を行った



Structure	KL LS		LAB LS	
	Pb removed	PPO residue	Pb removed	PPO residue
R-Cat-Sil TA	73.6±1.3	48.8	82.8±1.2	75.6
QuadraSil TA	77.4±1.1	49.8	82.8±1.2	76.0
SiliaMets TA	46.0±2.7	---	73.7±1.9	93.6
R-Cat-Sil AP	82.5±0.9	85.2	82.6±1.2	90.2
QuadraSil AP	79.2±1.1	98.2	82.9±1.2	90.5
R-Cat-Sil MP	83.4±0.9	60.4	86.4±1.0	26.2
QuadraSil MP	79.6±1.0	60.5	81.5±1.3	23.7
QuadraPure IDA	59.3±2.1	89.7	61.6±2.7	91.4
Smopex-234 FG	52.5±2.4	---	75.8±1.5	88.8
Smopex-102 FG	51.5±2.5	---	67.7±2.3	84.8
Smopex 111FG	43.1±2.9	---	78.2±1.5	92.7
Smopex 105FG	34.8±3.3	---	82.8±1.2	91.0

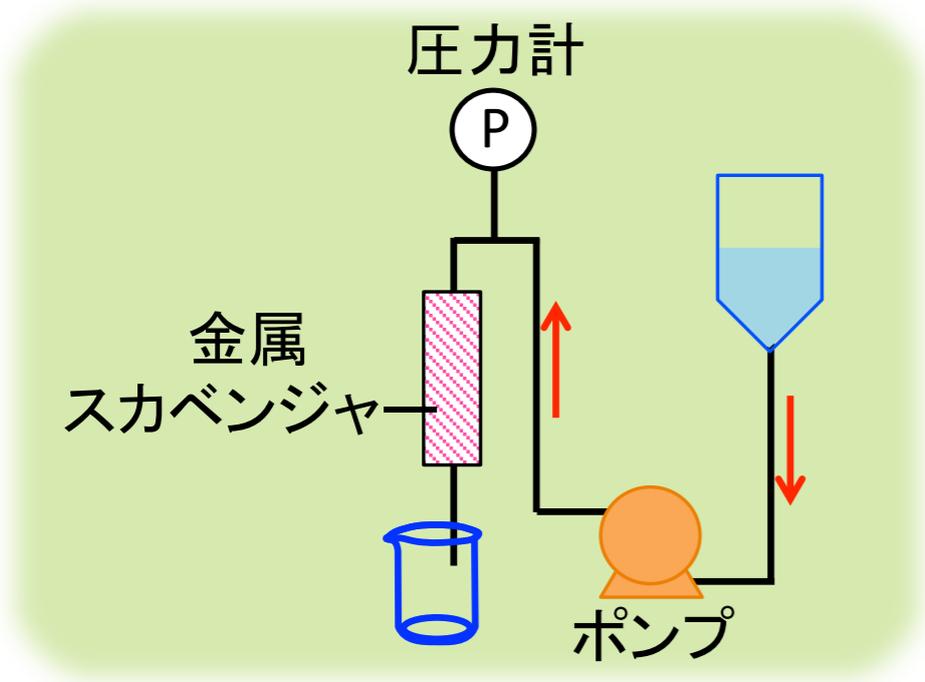
unit: %

- ①Pb除去率が高いこと
- ②残留PPOが多いこと

で選別

**R-Cat-Sil AP**が選ばれた

# カラムプロセス



添加量 & 流速を変化させ  
除去率 & 圧力を測定 @ 室温

KamLANDで効率的に純化ができるように  
パラメタを最適化

## 条件

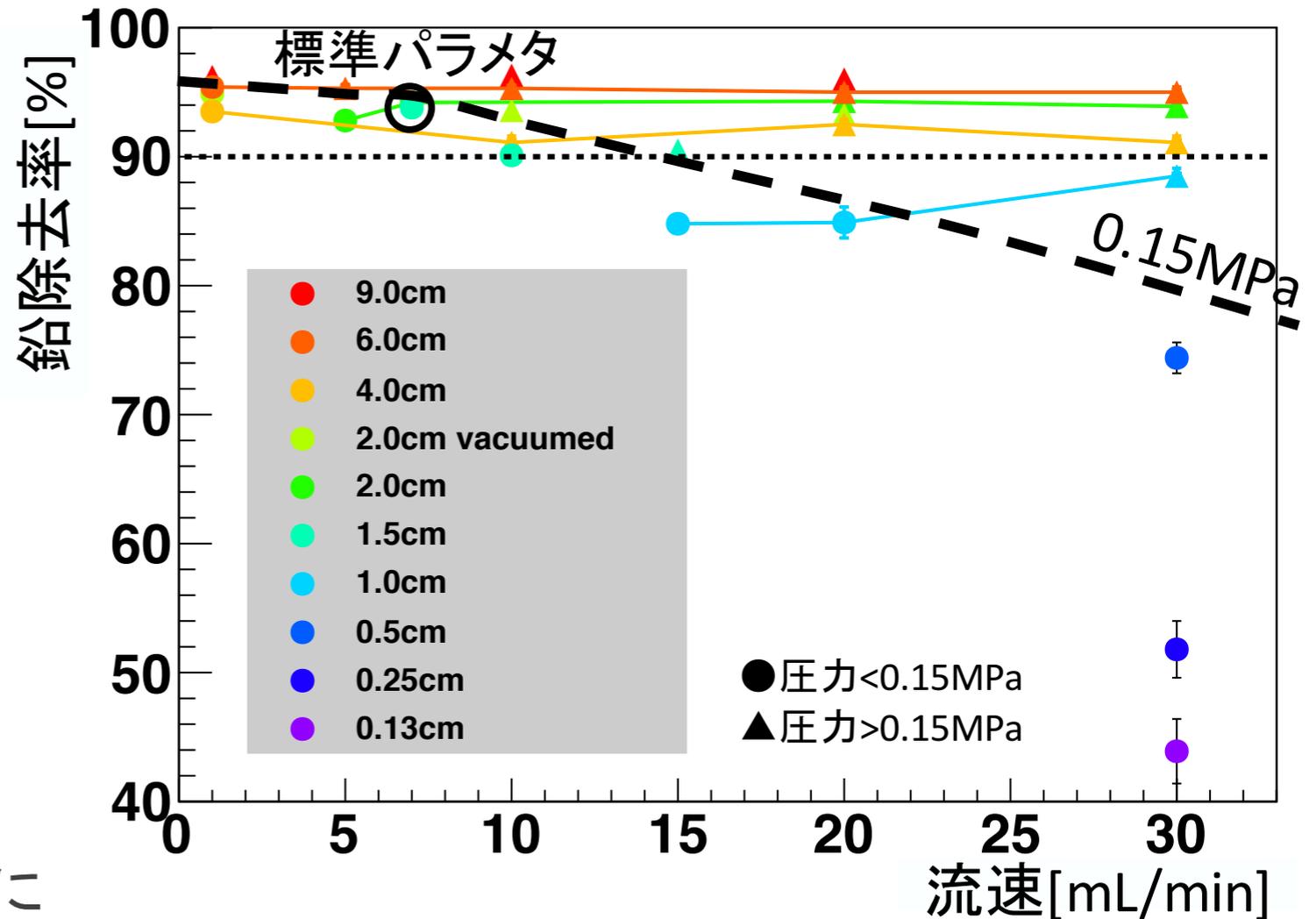
1. 鉛除去率 > 90%
2. 最大圧力 < 0.15MPa
3. より高流速
4. より少量のスカベンジャー

結果

## 標準パラメタ

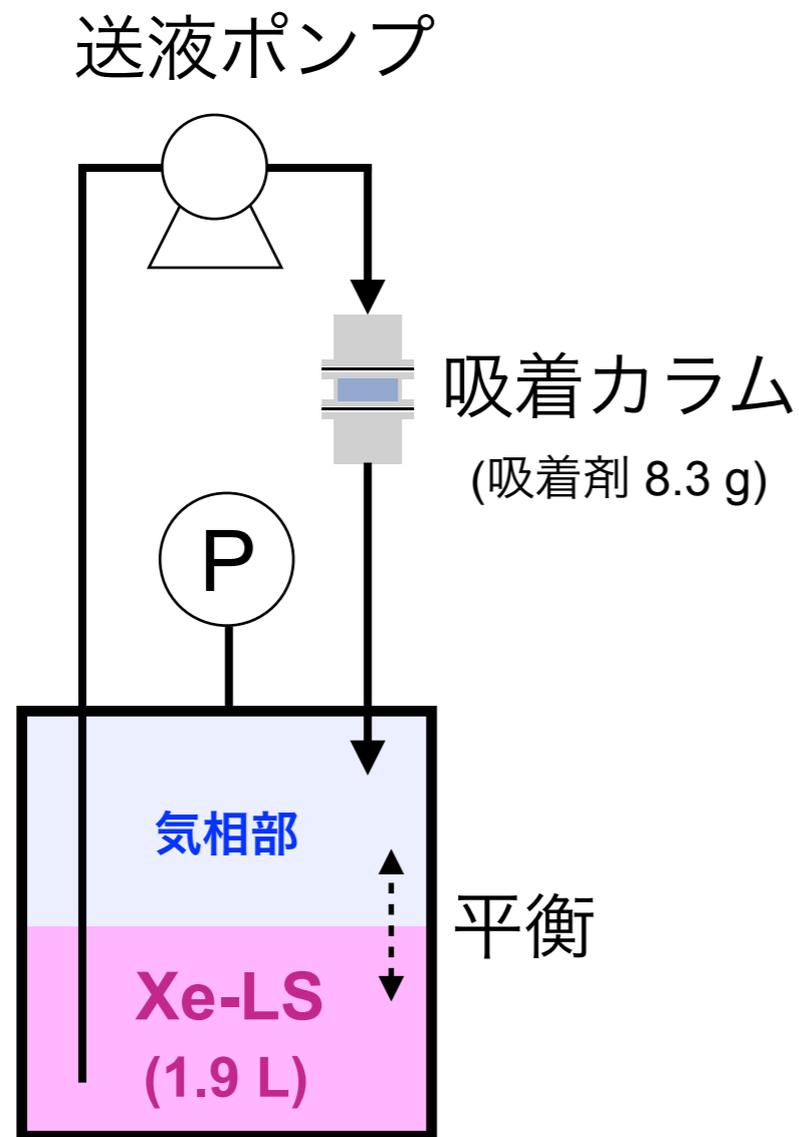
スカベンジャー量	厚さ1.5cm
流速	8.9mL/min/cm <sup>2</sup>
最大圧力	0.10MPa
鉛除去率	~94%

小型装置で94%の除去効率を達成



# キセノン損失の影響

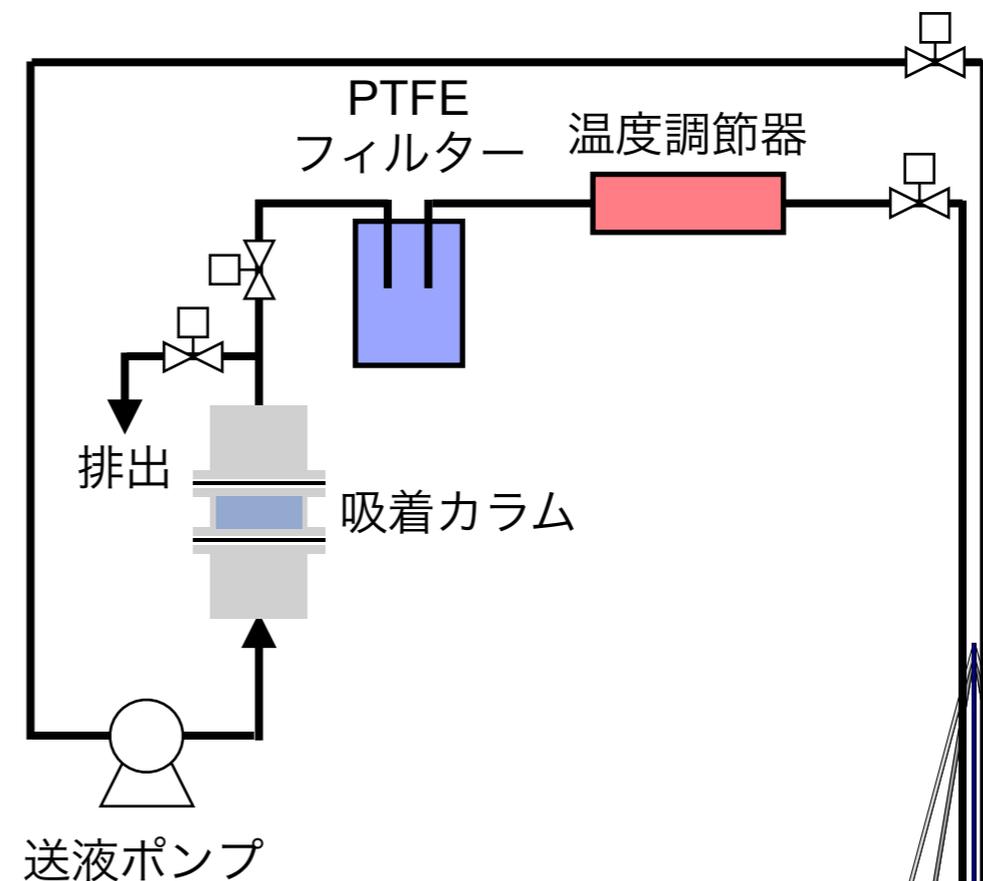
## キセノン吸着試験



循環しても圧力変化無し

**キセノン吸着量 < 0.6 mmol/g**  
**十分に小さい**

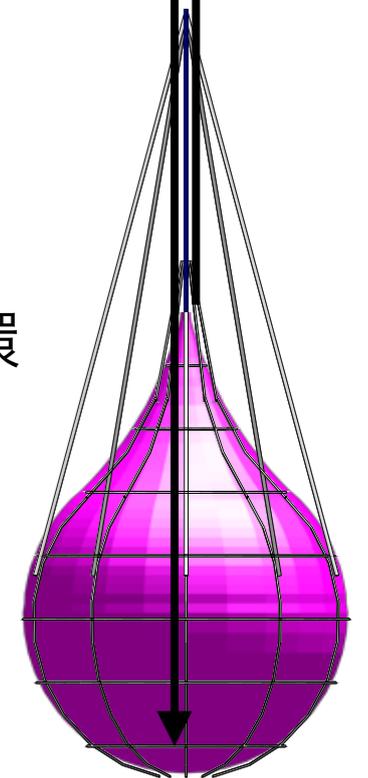
## キセノン含有液体シンチレータ純化



キセノンを溶解させたまま循環  
モードで吸着装置を運転

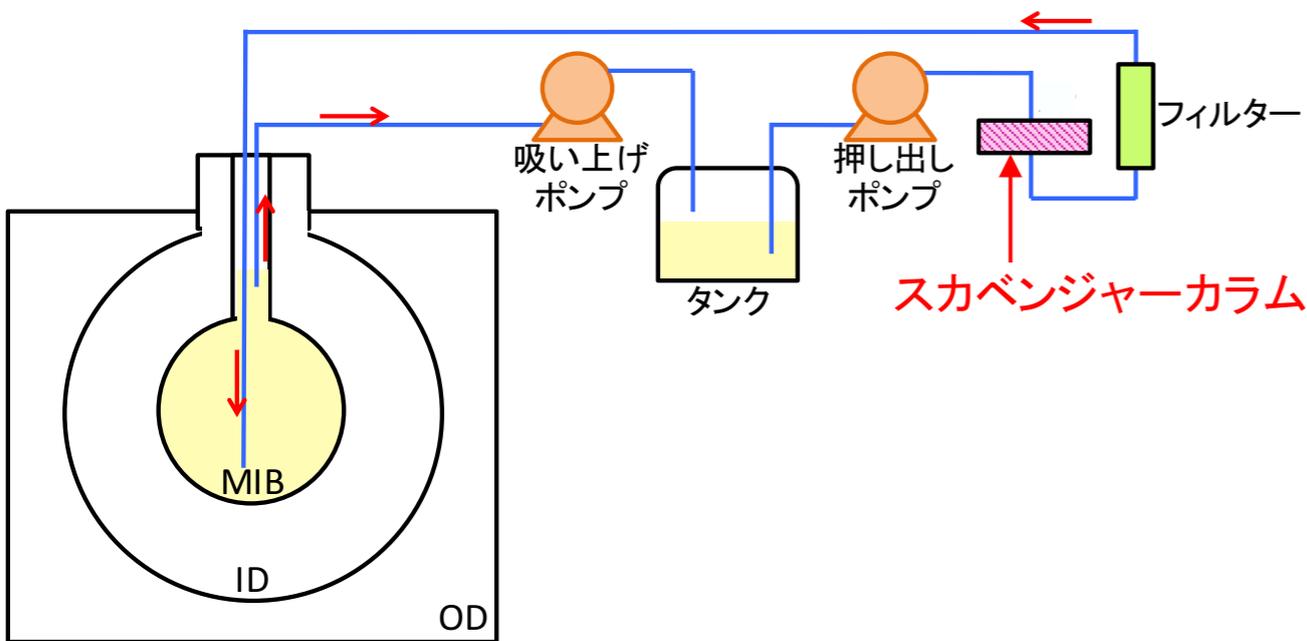


**二重ベータ崩壊観測**  
**と並行して純化できる**



# 実機的设计

Inner LSスカベンジング系

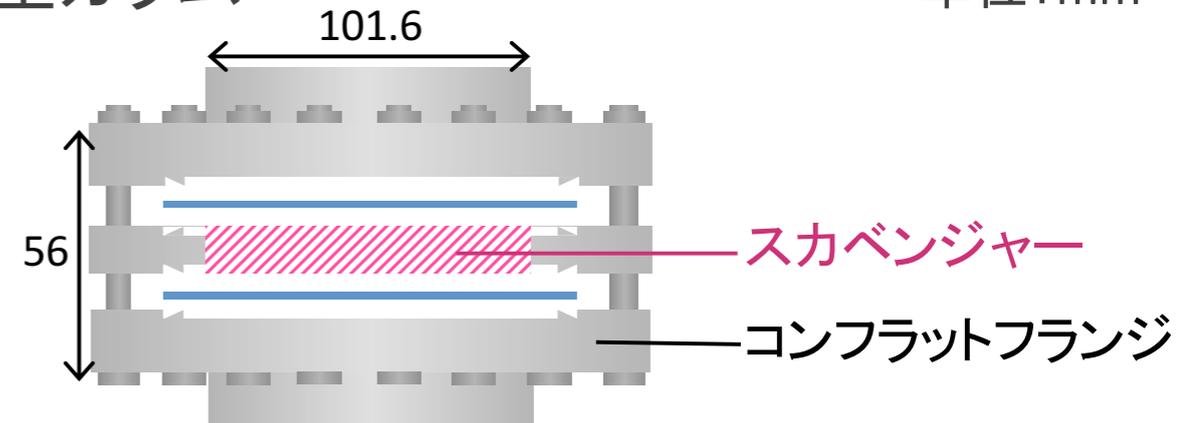


流速制限: <250L/hr

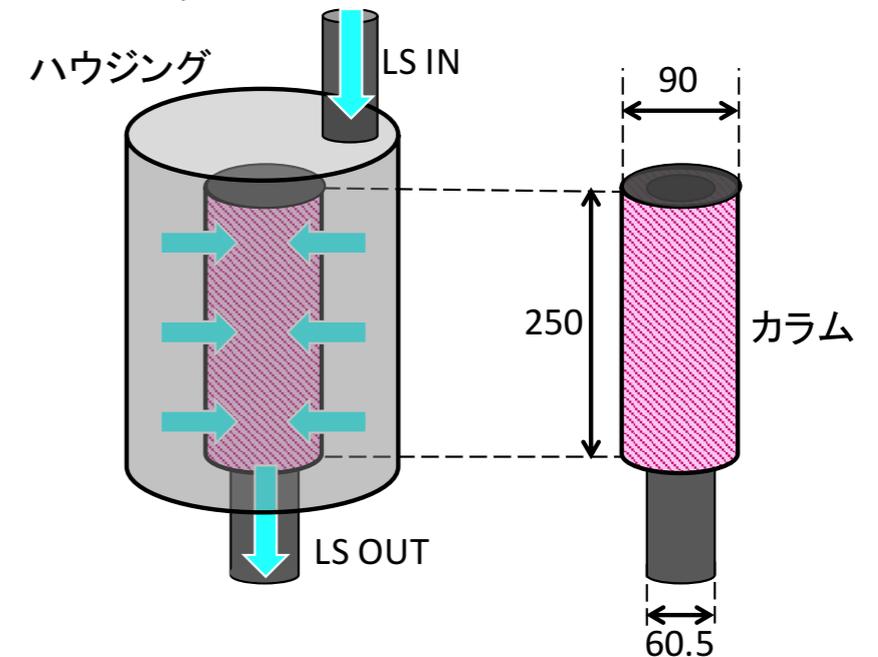
カラム圧力損失制限: <0.15MPa

直管型カラム

単位: mm



カートリッジ型カラム



Inner LSは約7日間, Outer LSは約23日で純化可能 **速い**

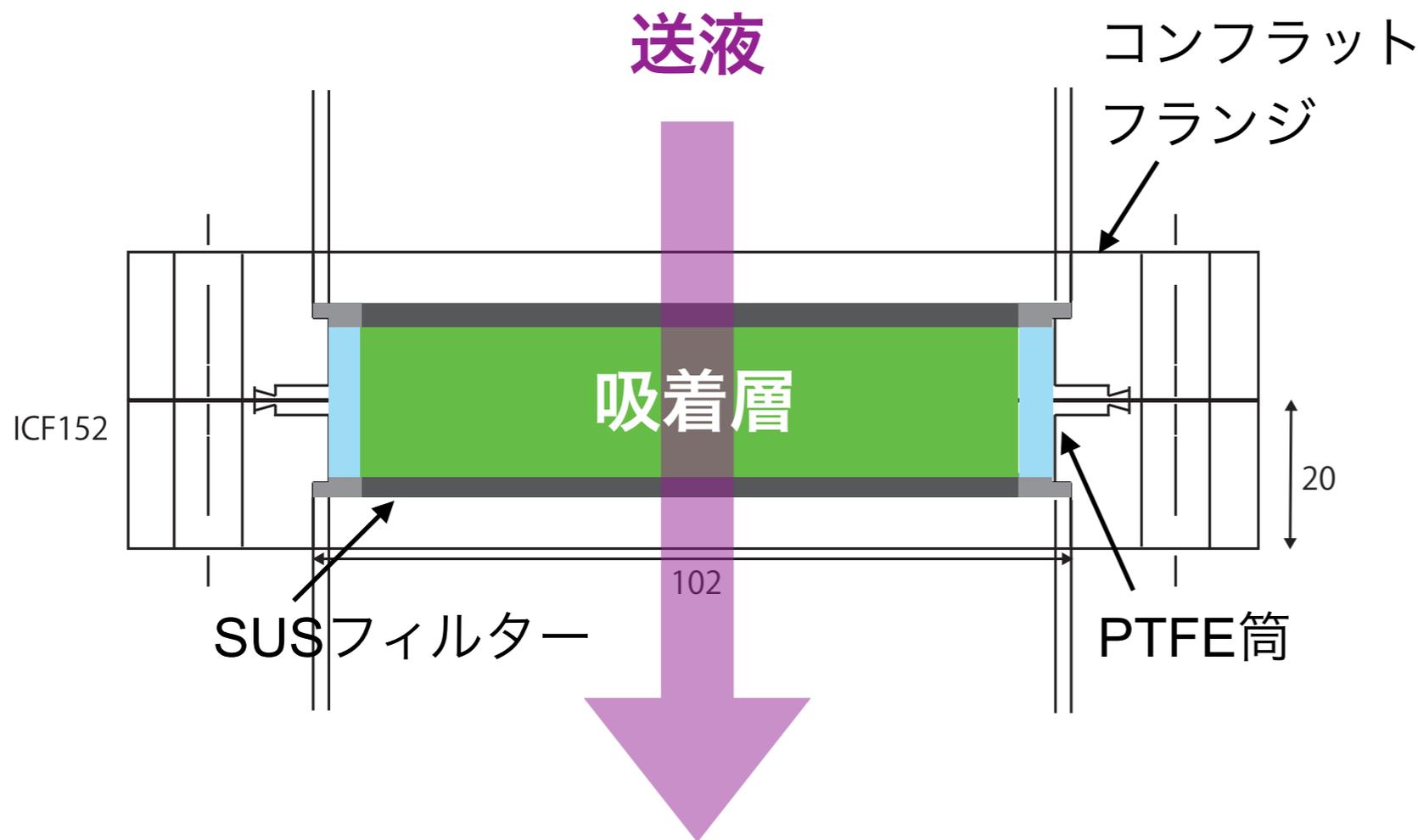
スカベンジャー量: 380g, コスト: 16.7万円 **安い**

$2 \times 10^5 \text{m}^3$ 以上の純化能力→再生作業不要

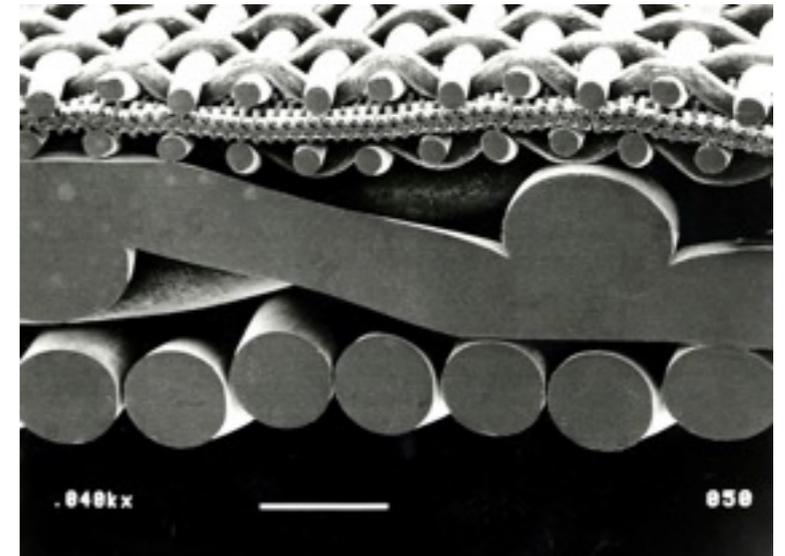
# 大型カラム

## 大型カラムの設計

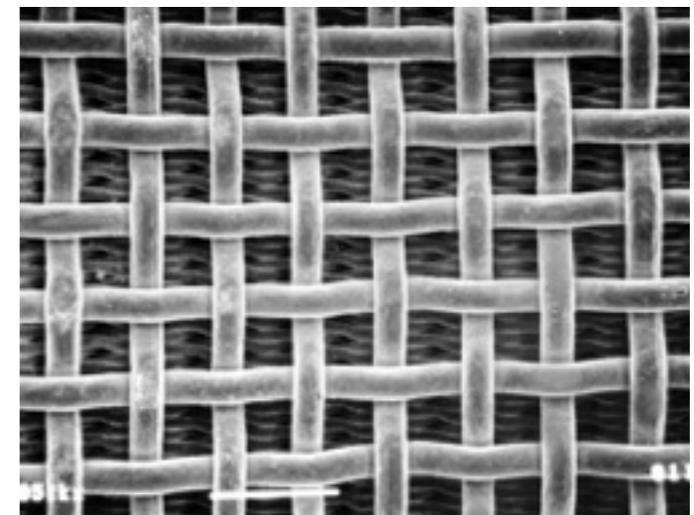
- 直管型吸着層 **直径 10 cm, 厚み 2 cm**
- SUSフィルター **1  $\mu\text{m}$**  (粒子径 : 50  $\mu\text{m}$ )
- 送液ポンプ **流量 150 L / h**



フジプレート



多層構造 (ろ過・補強・保護層)



ろ孔が均一・大面積にも対応

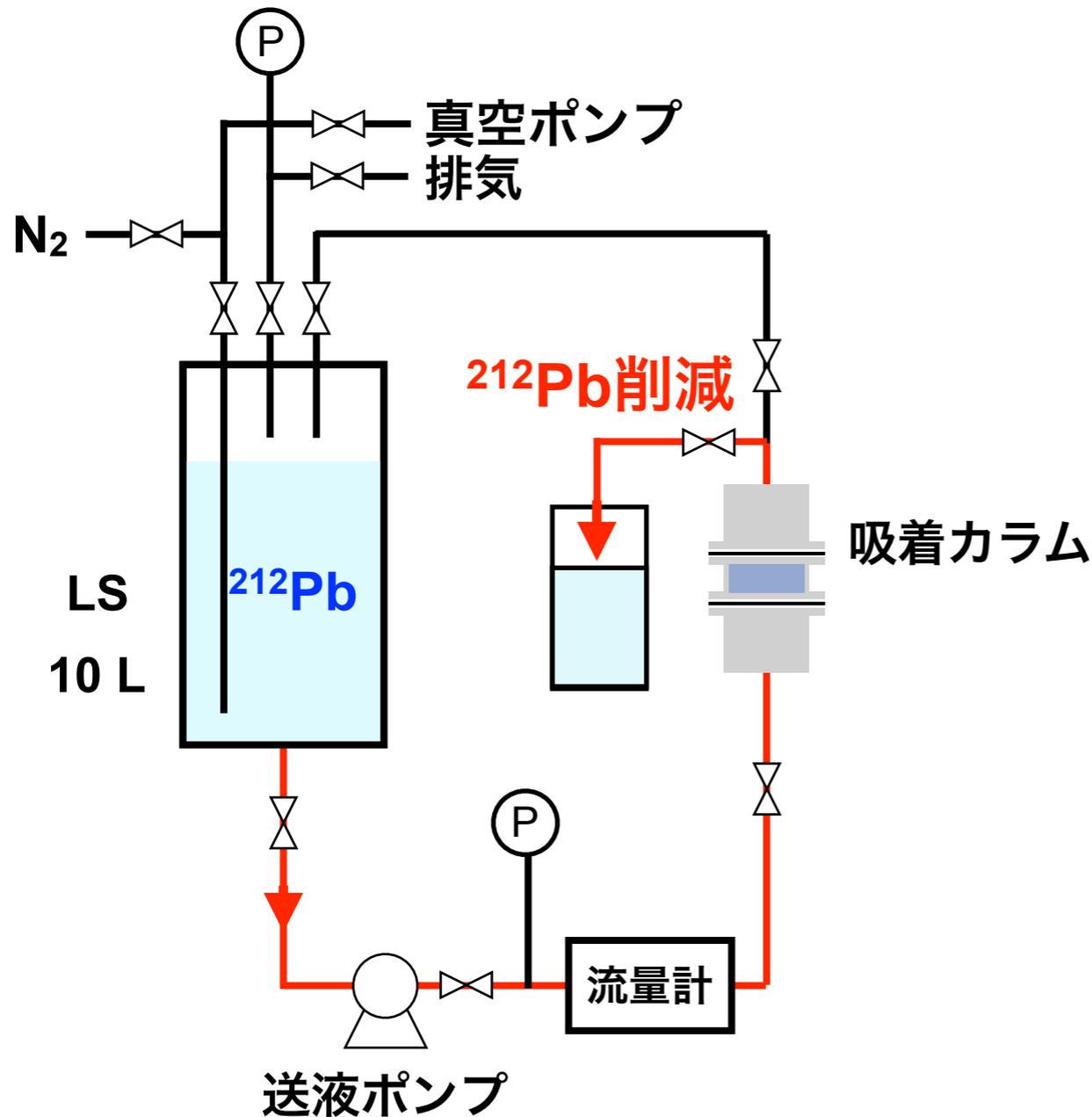
フジフィルター工業：フジプレート

<http://www.fujifilter.co.jp/element/fujiplate/>

カラムの大面積化で基本設計を変えずに大流量に対応

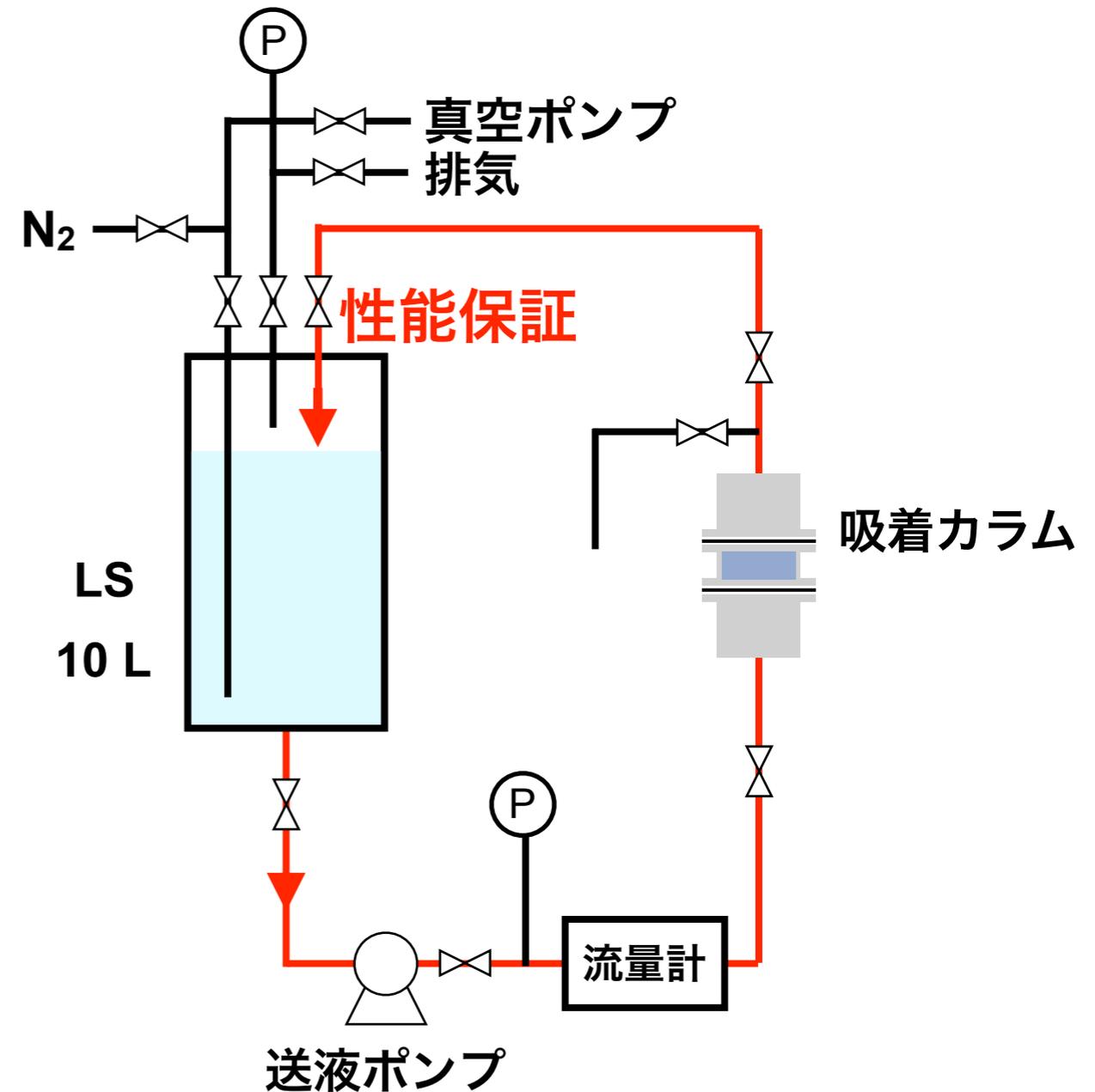
# 実証試験

## 純化効率試験



小型装置の純化効率が維持できるように圧力・流量を最適化

## 性能保証試験



自己循環モードで $30 \text{ m}^3$ の運転後に液体シンチレータの性能確認

# 性能保証試験

製作した吸着カラムを用いて大流量でも純化効率を維持できることを確認するだけでなく、KamLANDでの導入に向けて以下の性能保証試験を行う

## 試験項目

1. 発光量・透過率など**液体シンチレータの性能**への影響が無い
2. 送液する液体シンチレータの**圧力・流量・温度を安定**に維持できる
3. ウラン・トリウム等の**放射性不純物**の新たな混入が無い

実機と同じ**圧力・流量・温度**で吸着純化装置を運転、**自己循環モード**で**30 m<sup>3</sup>**の吸着純化を行い、1~3の性能を保証する

# 放射性不純物量の評価

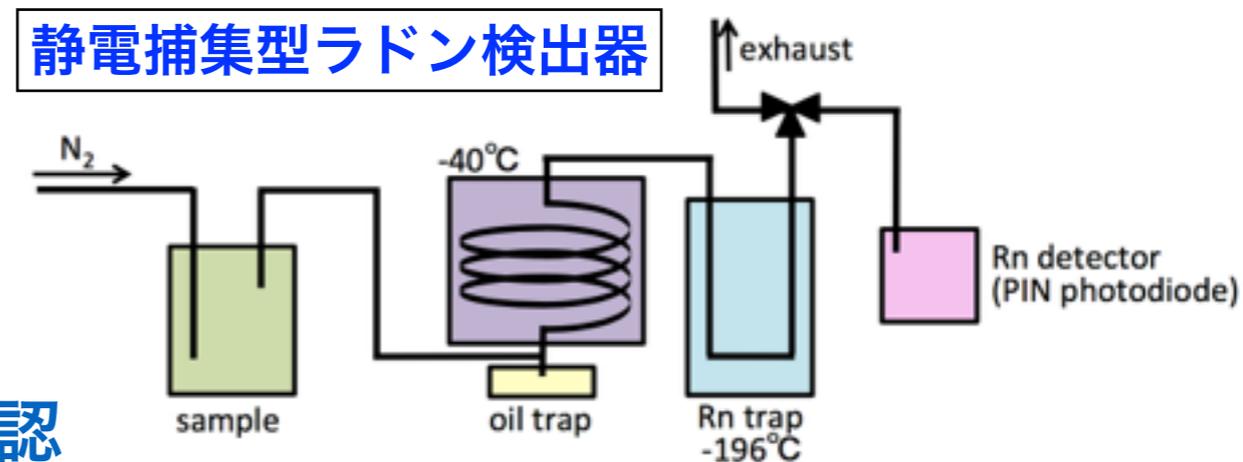
自己循環モードで長時間運転 → LS中の放射性不純物の蓄積を評価

## 1. ラドンエマネーションの評価

N<sub>2</sub>バブリング+冷却で<sup>222</sup>Rn回収

↓  
<sup>222</sup>Rn ~ <sup>210</sup>Pbの増加量を評価

放射性鉛の蓄積の影響が小さいことを確認



## 2. ウラン・トリウム濃度の評価

ICP-MS感度 LS 0.5 L → 30 m<sup>3</sup>の自己循環 (濃縮を考慮)

<sup>238</sup>U : 5 x 10<sup>-12</sup> g/g → <sup>238</sup>U : 8 x 10<sup>-17</sup> g/g

<sup>232</sup>Th : 5 x 10<sup>-12</sup> g/g → <sup>232</sup>Th : 8 x 10<sup>-17</sup> g/g

二重ベータ崩壊探索の要求レベルの感度はある

## 3. 低バックグラウンド環境でのイベントレートの評価

ウランの放射平衡は崩れているかも...

<sup>214</sup>Bi崩壊レートに対する要求 < 1 event/day (KamLAND-Zenバルーンの目標レベル)

低放射能検出器が必要 (要検討) (例) 低放射能容器を使ってKamLAND内部で測定

# まとめ

- メタルスカベンジャーの使用によって液体シンチレータに対して高効率・簡単・低コストな純化が期待できる
- 液体シンチレータの性能への影響は無い
- キセノンを溶解させたまま循環モードで吸着装置を運転することもできる
- 今後はKamLAND-Zen実験にも使用できるスケールの装置を試作し、性能確認を行う

