レーザー誘起発光を用いた可搬型ガドリニウム濃度モニターの開発

日本原子力研究開発機構[A], 東京大学宇宙線研究所[B]

岩田圭弘[A], 関谷洋之[B]

学術変革「地下稀事象」領域研究会
大阪大学豊中キャンパスΣホール　2024/07/06 (Sat.)

Outline

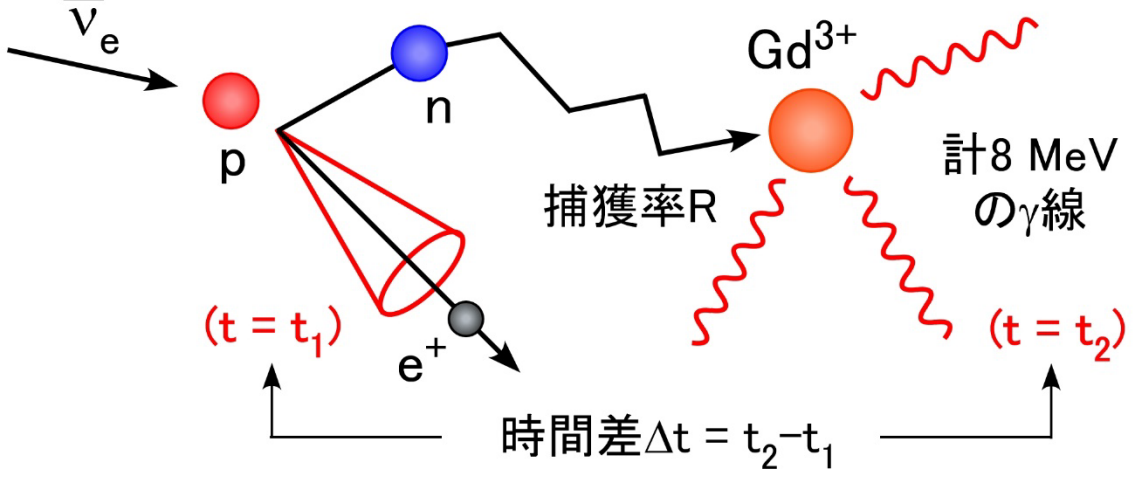
- **SK-Gd実験と水中Gd^{3+}発光について**
  - ＊ Gd^{3+}発光（波長312 nm）をGd濃度モニターに活用
- **水中Gd^{3+}イオンのレーザー誘起発光**
  - ＊ OH^-クエンチング、励起断面積（モル吸光係数）
- **可搬型Gd濃度モニターの開発状況**
  - ＊ 可搬型レーザー光源（固定波長266 nm）
  - ＊ ファイバー伝送＆分光器 → フィルター付PMT
  - ＊ 排水中のGdモニター（感度ppm）への適用可能性
- **まとめ、今後の予定**

SK-Gd実験におけるGd^{3+}イオン発光

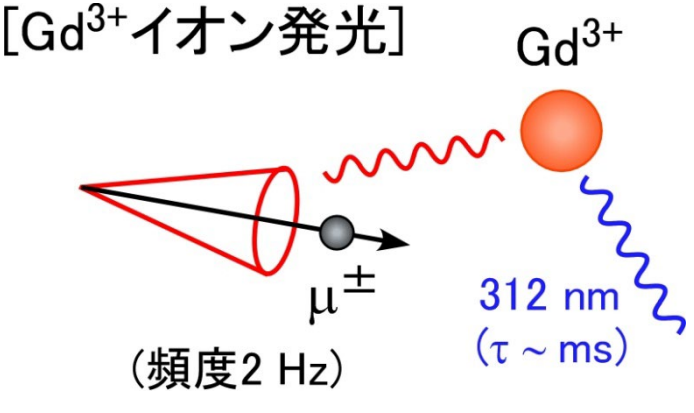
- $\bar{\nu}_e$の逆β崩壊で生じる中性子の検出効率を改善
- 宇宙線$\mu^{\pm}$に起因したGd^{3+}発光BG概算 <0.1 counts/μs
  ⇒ SK-Gd実験への影響は小さいか（新学術）
- Gd^{3+}発光（波長312 nm）をGd濃度モニターに活用

[遅延同時計測]

R = 50%, Δt ~ 120 μs [0.01% Gd]
R = 75%, Δt ~ 60 μs [0.03% Gd, 現状]
R = 90%, Δt ~ 20 μs [0.1% Gd, 最終目標]



宇宙線$\mu^{\pm}$起因BGは
影響小さい（新学術）



[1] W.T. Carnall, “The absorption and fluorescence spectra of rare earth ions in solution”, Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths 3 (1979) pp. 171-208.

水中のGd^{3+}発光について[1]

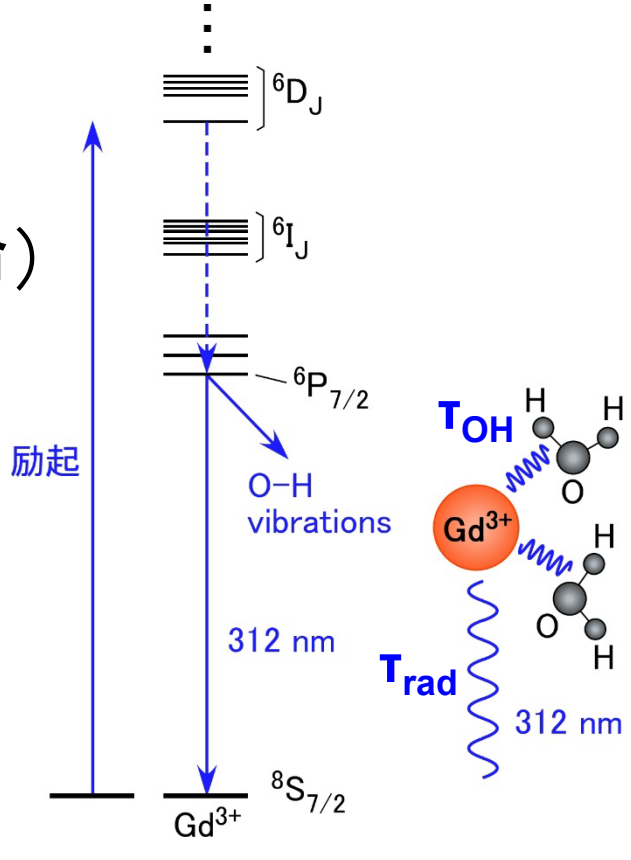
- $^6P_{7/2} \rightarrow {}^8S_{7/2}$ の312 nm発光と、水分子のOH振動への緩和（クエンチ）が競合：

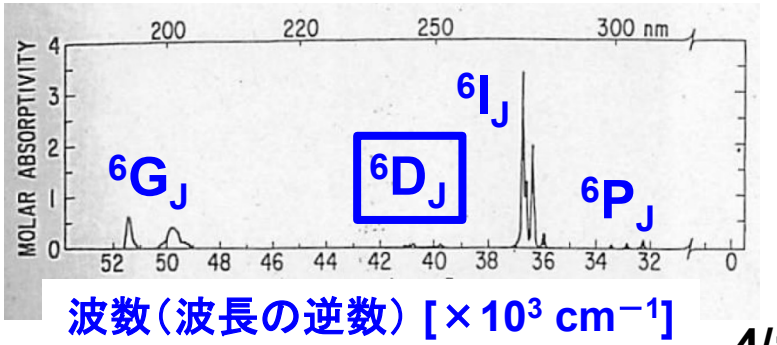
  $1/\tau_{obs} = 1/\tau_{rad} + 1/\tau_{OH}$ （τ_{obs}：観測寿命）

  ~3 ms（測定）　10.9 ms（文献、計算）　（~4 ms）

- モニター用のレーザー励起波長
  ⇒ 266 nm（Nd:YAG第4高調波）

- モル吸光係数ε [$M^{-1}\cdot cm^{-1}$]
  → 透過率 $T = 10^{-\varepsilon LC}$
  （L：光路長、C：Gd^{3+}モル濃度）
  ⇒ ^6D_J共鳴 ε ~ 0.1（文献）
  ⇒ 非共鳴 ε ~ 0.001（測定）



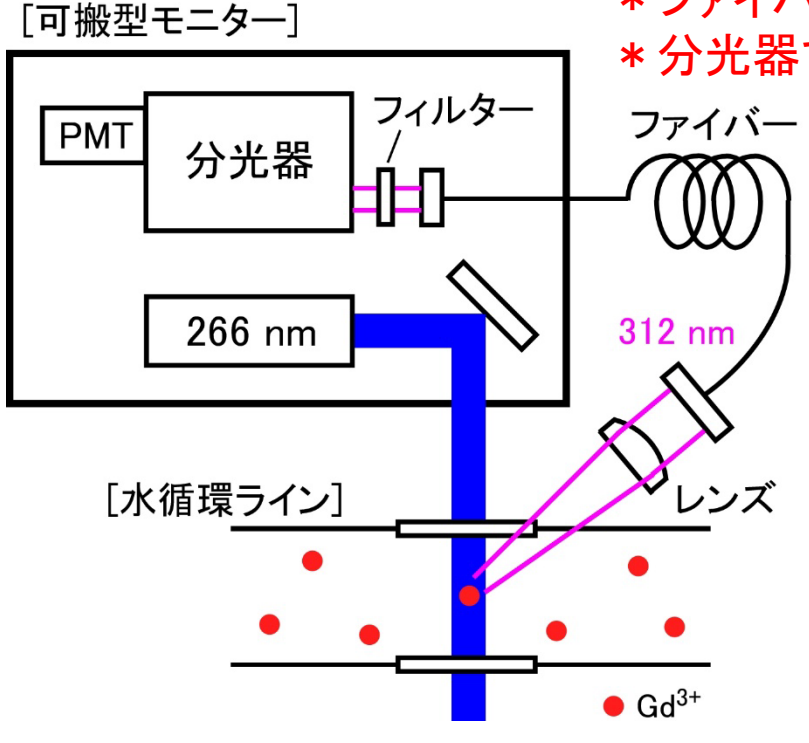


[2] K. Abe et al., Nucl. Instrum. Meth. A 1027 (2022) 166248.

可搬型Gd濃度・発光寿命モニターの開発

- SK水循環ライン[2]にレーザー照射及び発光検出ポートを設けて、Gd^{3+}発光信号（信号強度、発光寿命）をモニター
  ⇒ サンプリング不要で、コンタミの影響なし
- 可搬型のレーザー光源・検出器が必要

＊ファイバーで発光伝送
＊分光器で散乱光抑制



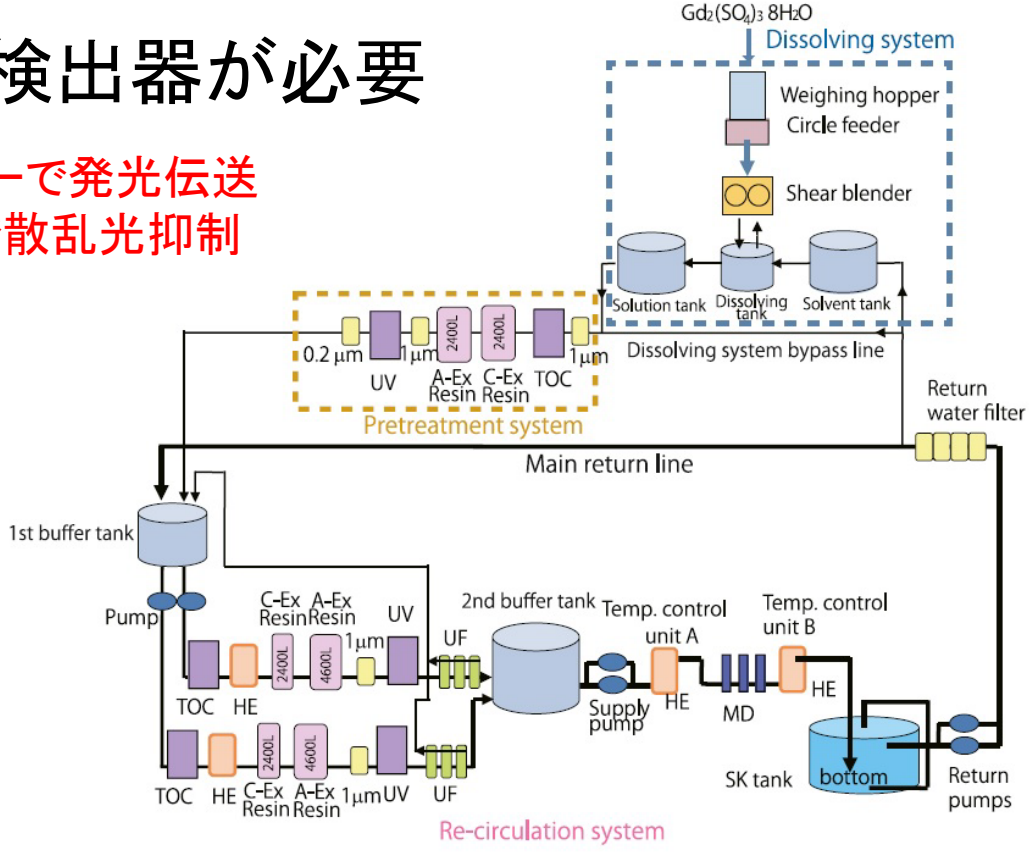
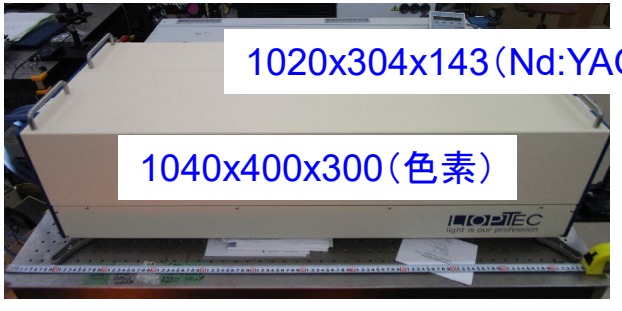


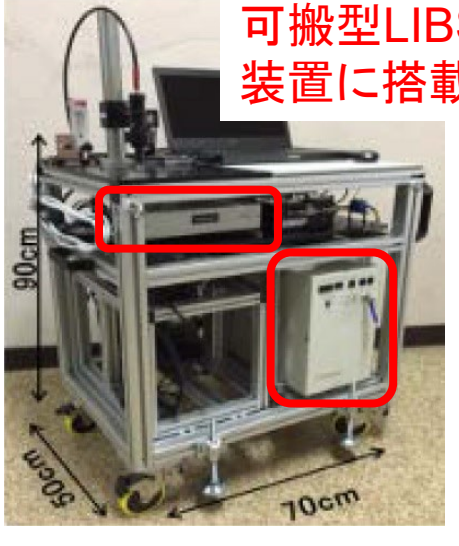
Fig. 1. Schematic diagram of SK-Gd water system.

可搬型レーザー光源（購入予定）

- 小型Nd:YAGレーザーMinilite II
  - ○ 軽量コンパクトで可搬
  - ○ AC100Vコンセント
  - ○ 使用実績あり（可搬型LIBS）
  - × 非共鳴波長266 nm
    - ⇒ Gd検出感度を評価

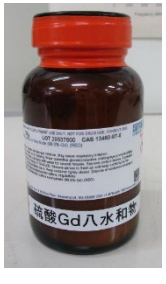
波長可変レーザー
（Nd:YAG励起色素レーザー）

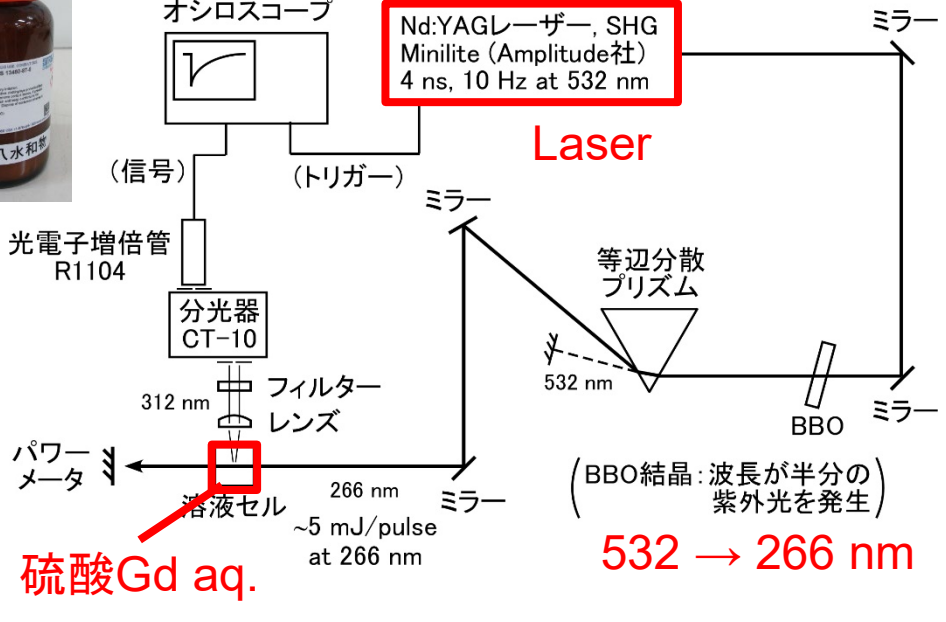


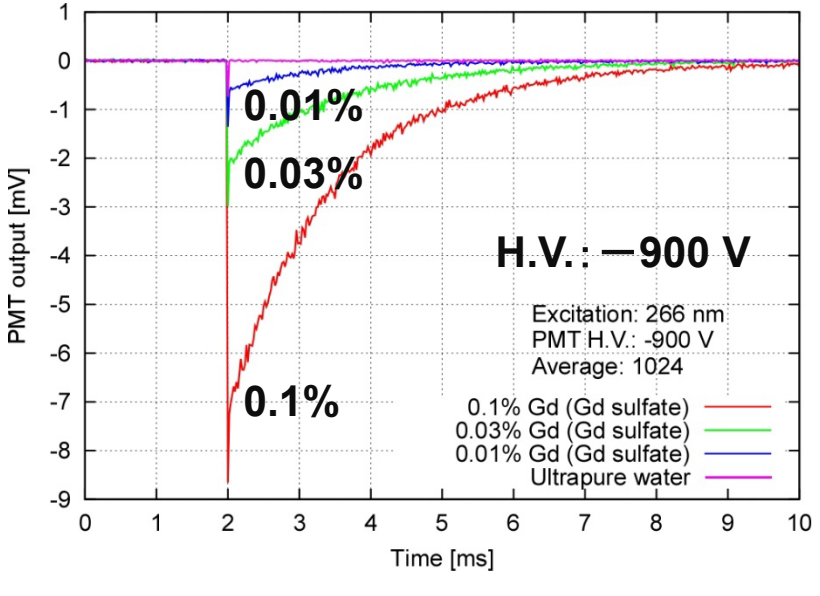


可搬型レーザーを用いたGd^{3+}発光測定

- Gd^{3+}発光（波長312 nm）を空間とばして分光器で観測
- 分光器スリットを少し広げて（分解能を落として）光量増加
  ⇒ 0.01%, 0.03%, 0.1% Gdの発光信号を観測
- 励起光（266 nm）の散乱BGは抑制できているが、分光器の使用により検出効率低下

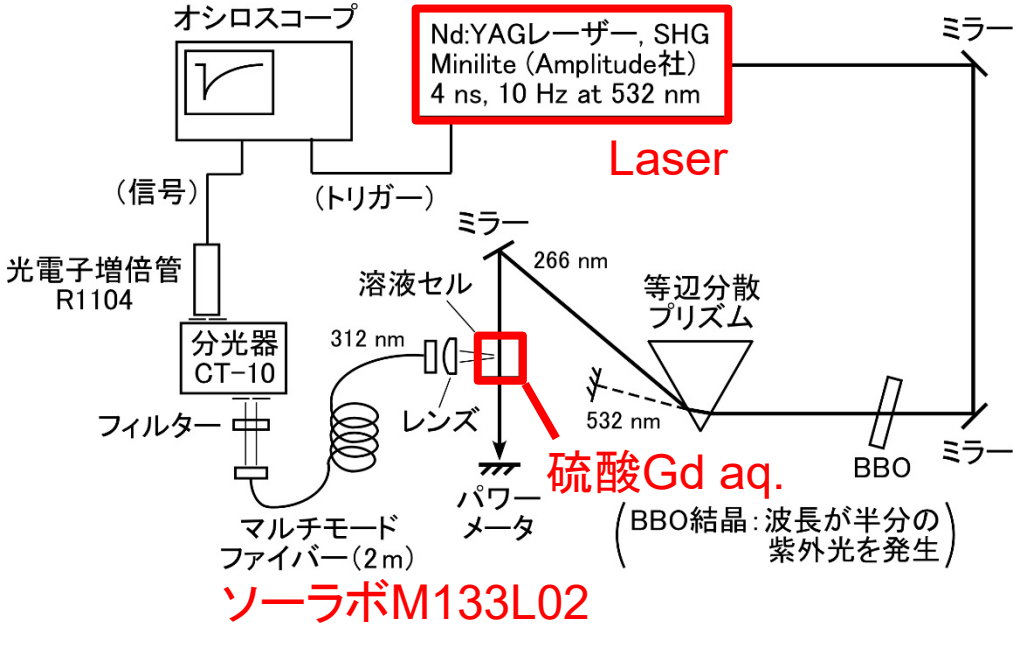


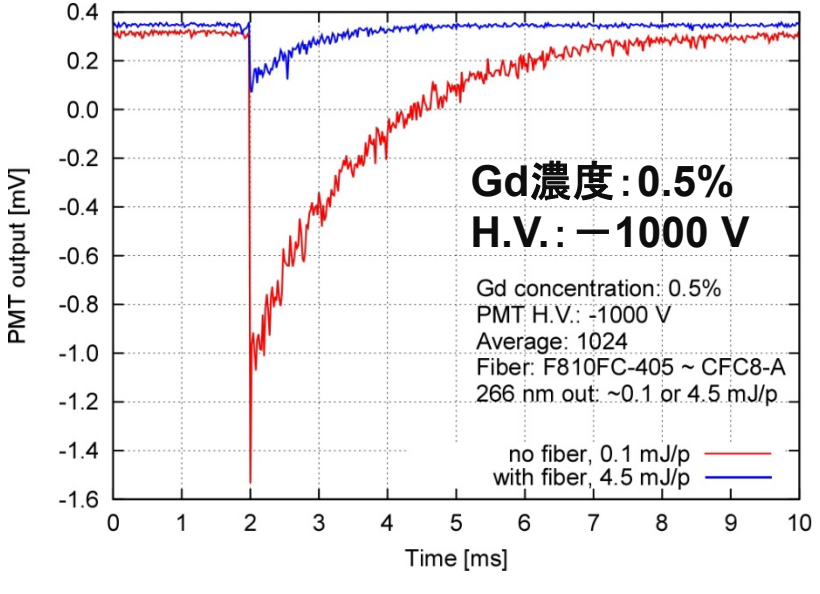




ファイバー伝送効率（分光器あり）

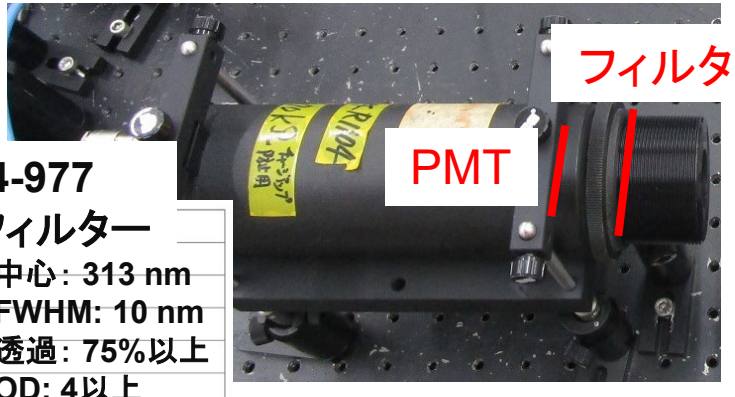
- 溶液セルとレンズを移動し、レンズ・フィルター間に長さ2 mの高OHマルチモードファイバー（両端にコリメータ）をはさみ、Gd^{3+}発光（312 nm）の信号強度を比較
- （赤）ファイバーなし・出力1/45倍、（青）ファイバー伝送
- 伝送効率 ~ 1/45 × 1/6 ~ 0.4% ⇒ 0.03% Gd難しい

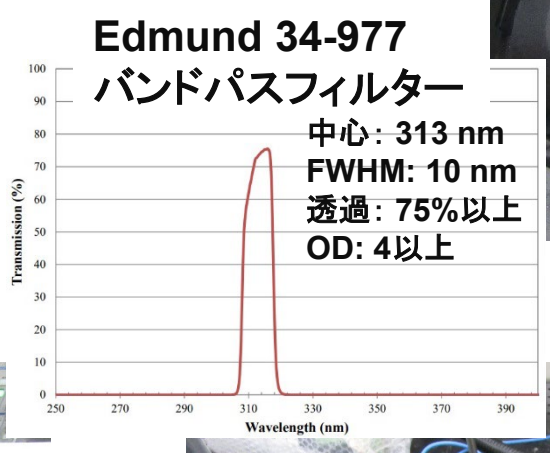


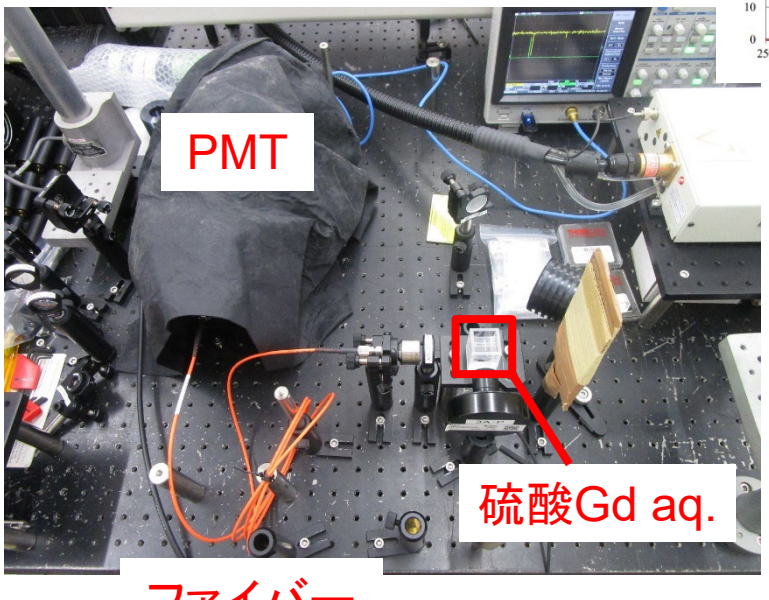


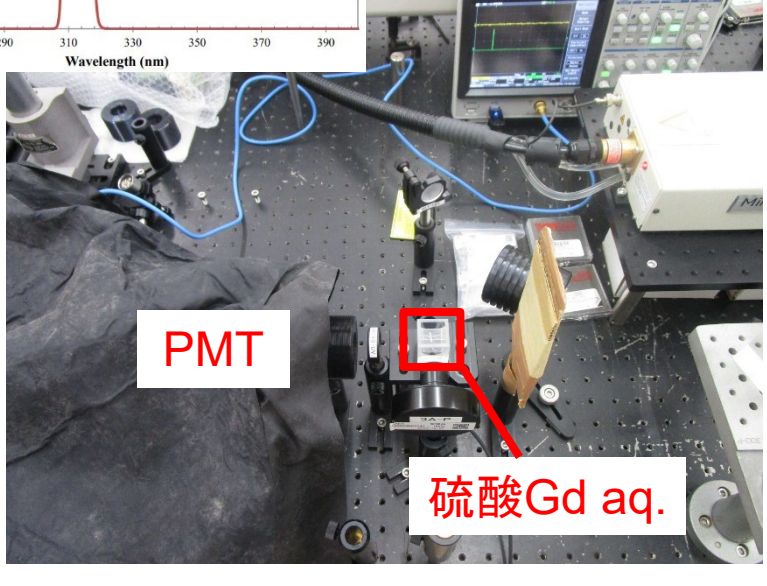
分光器 → フィルター付PMT

- 分光器をはずして、PMT入口にフィルター内蔵アダプター
- 266 nm散乱の抑制はフィルター1枚で十分か
- ファイバー伝送効率？





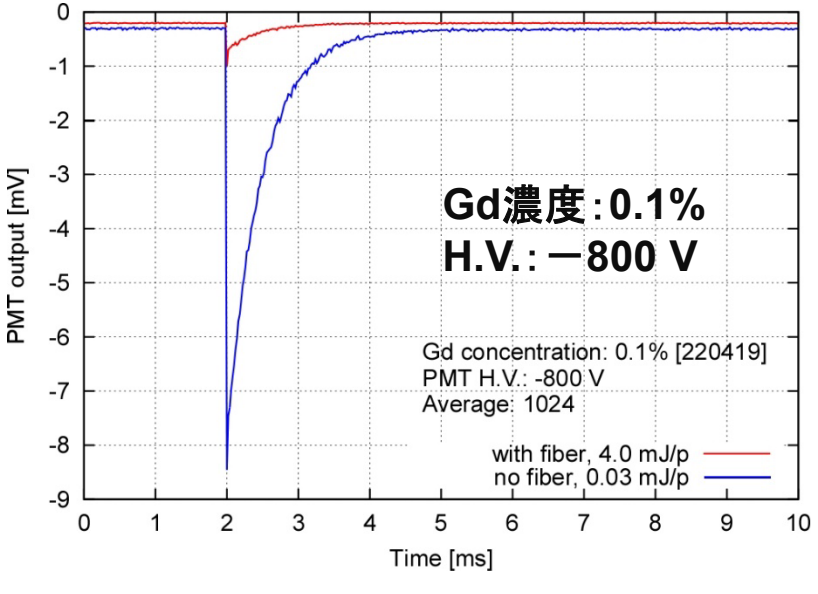


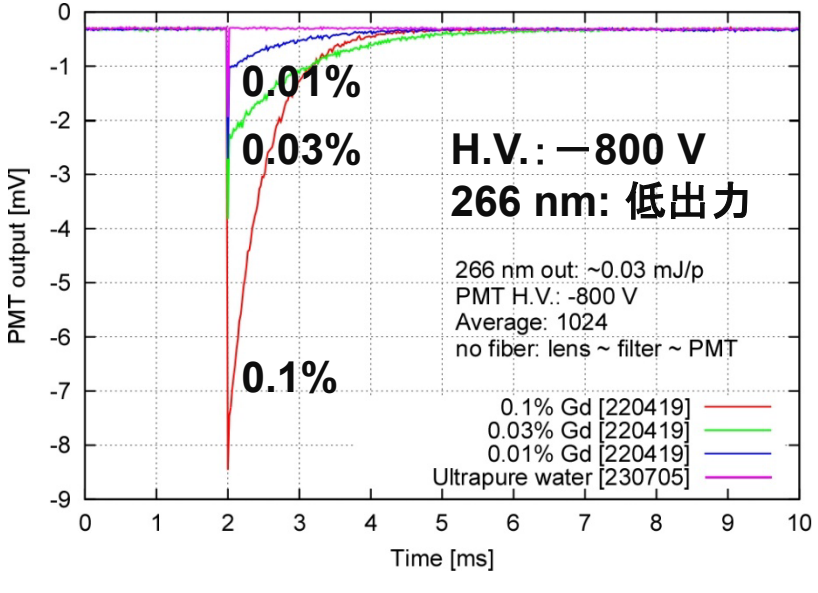


ファイバー伝送効率（フィルター付PMT）

- [左]（赤）ファイバー伝送、（青）ファイバーなし・低出力
- 伝送効率 ~ 1/50 × 1/15 ~ 0.1%
- [右] ファイバーなし・低出力で、Gd濃度を変えて測定
  ⇒ 0.1% Gdは、試料の再利用によりコンタミ大
- 定格出力で、Gd^{3+}信号2桁増加 ⇒ 感度 < ppm

排水監視にも有用？





検出光子数の概算（1 ppm Gd）

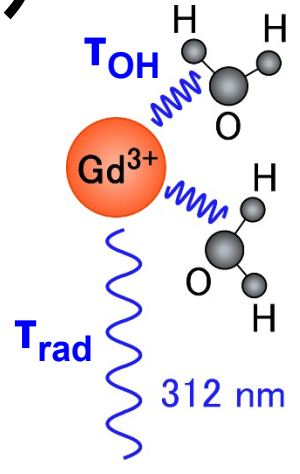
- 定格出力：4 mJ/p at 266 nm（~4.7 eV）
- Gd濃度：1 ppm ⇒ 6.4×10^{-6} M（M ≡ mol/L）
- 非共鳴モル吸光係数：ε ~ 0.001 $M^{-1}\cdot cm^{-1}$
- 入射光子数（パルスあたり）：

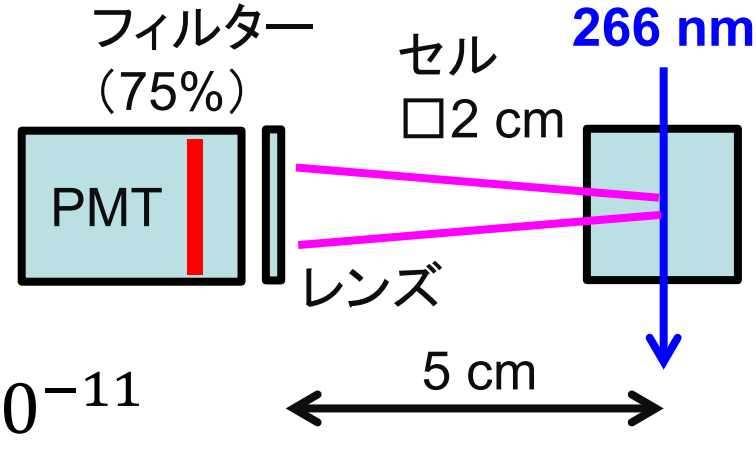
$$\frac{4\times10^{-3}}{1.6\times10^{-19}}\,\mathrm{eV}\Big/\,4.7\ \mathrm{eV}\sim 5.3\times10^{15}$$

- 検出効率：

$$\left(1-10^{-0.001\times(6.4\times10^{-6})\times2}\right)\times\left(\frac{3\ \mathrm{ms}}{10.9\ \mathrm{ms}}\right)\times\left(\frac{\pi\cdot1^2}{4\pi\cdot5^2}\times0.75\right)\sim6\times10^{-11}$$

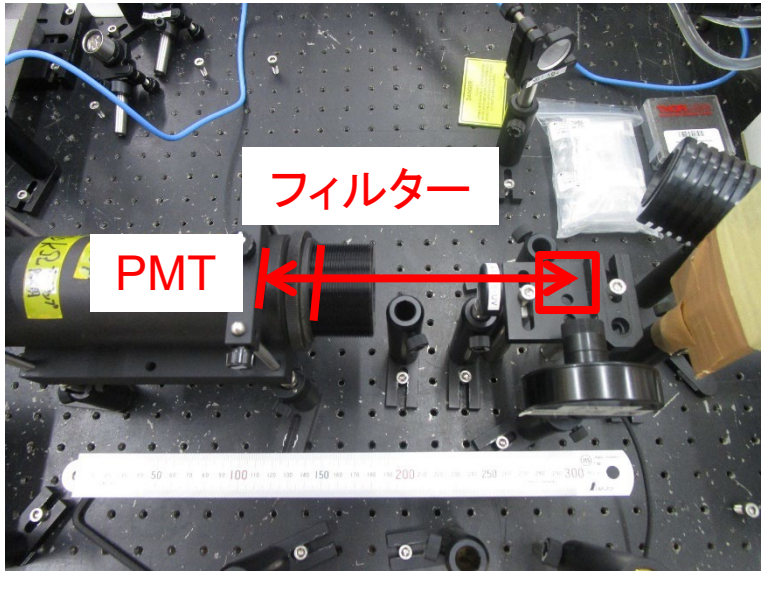
- 検出光子数（τ~3 ms）：~ 3×10^5

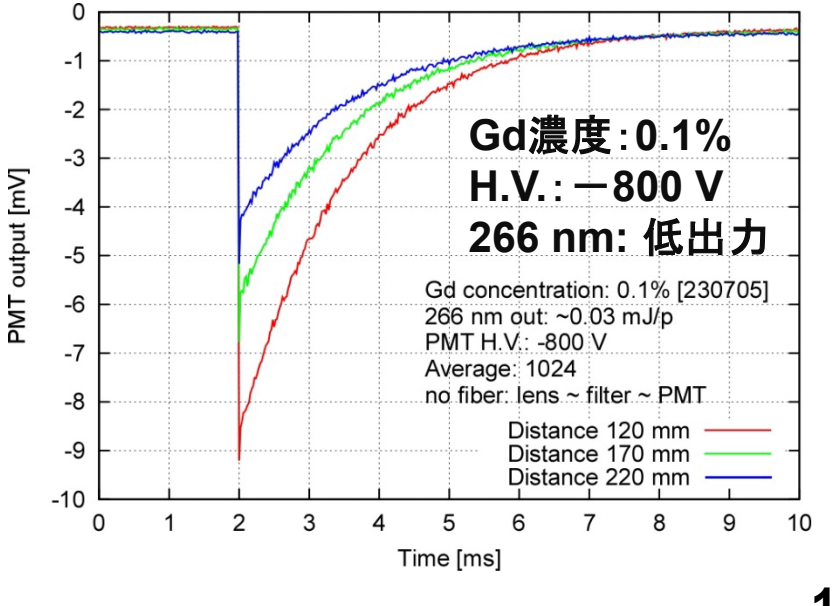




PMT位置依存性

- 溶液セル～PMT距離を離して測定（Gd試料を変更）
- セル中心からPMT検出面： 120, 170, 220 mm（概算）
- レンズがあるため、$\propto 1/r^2$ではなく、距離2倍で信号約1/2
- ファイバー＆分光器は使用せず、フィルター付PMTを設置
- 濃度計測には、時間積分ではなくt = 0での電圧値を使用

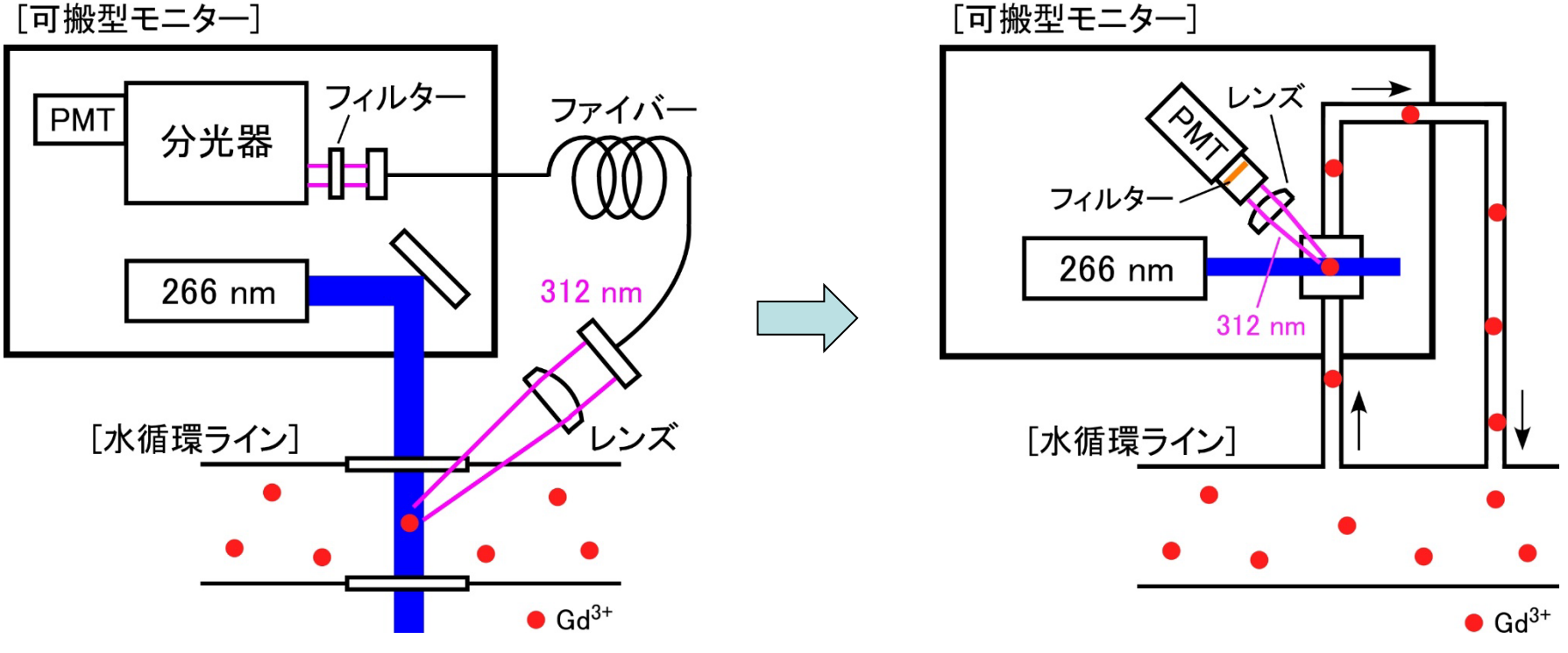




可搬型Gd濃度モニターの配置

- ファイバー伝送せず、モニター付近までチューブ配管を引き、レーザー（Φ2-3 mm）照射セルを接続する
- 最初のみ分光器で発光波長を確認し、以降はフィルター付PMTを近づけて測定する

＊266 nm出力を減衰器で調整し、水循環ライン/排水系に適用



まとめ、今後の予定

- **水中Gd^{3+}イオンのレーザー誘起発光**
  - ＊ OH^-クエンチングにより、発光寿命 ~ 3 ms
  - ＊ モニター用途には、共鳴波長より可搬性を優先
- **可搬型Gd濃度モニターの開発状況**
  - ＊ 可搬型レーザー光源：Minilite IIを新規に購入予定
  - ＊ 検出効率を優先し、フィルター付PMTを近づけて測定
  - ＊ 実験系と同様 ⇒ 検出感度<ppmで排水監視にも有用
- **今後の予定**
  - ＊ チューブ配管＆レーザー照射セルの設計・試作
  - ＊ 模擬配管でテスト測定（キャリブレーション、検出限界）