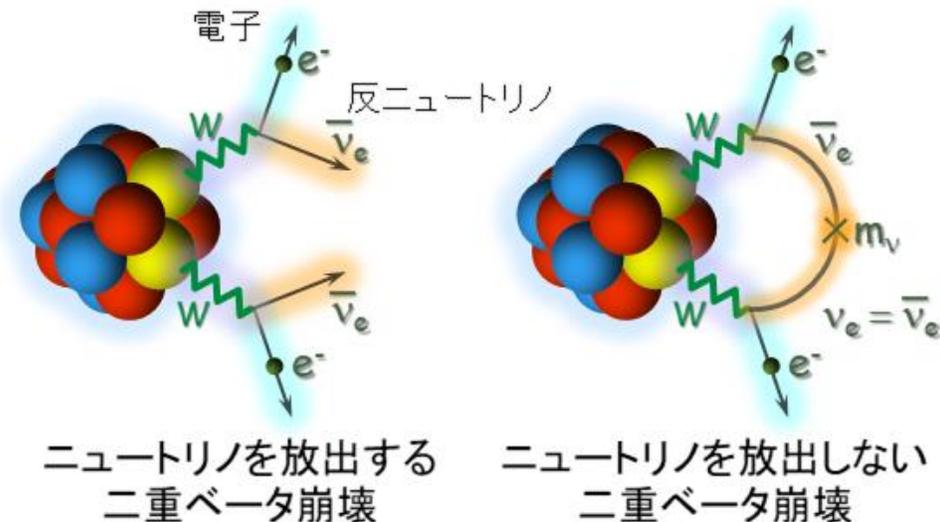
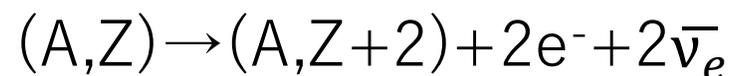


^{48}Ca ベータ崩壊寿命測定用
キレート樹脂のイオン吸着効率
評価

大阪大学 原子核実験研究室
金城直輝

研究背景

二重ベータ崩壊



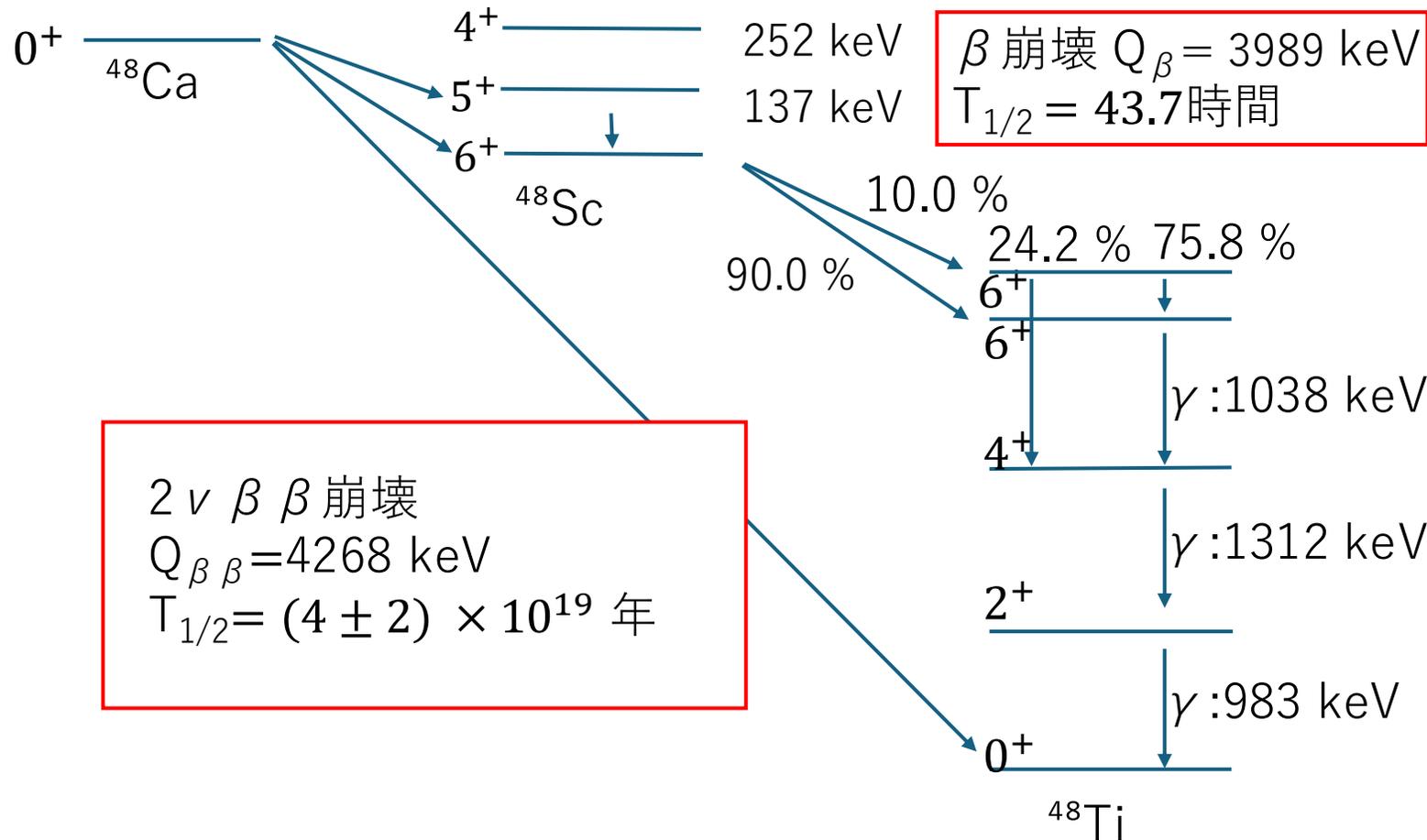
ニュートリノがマヨラナ粒子（粒子反粒子同一）であるなら『ニュートリノレス二重ベータ崩壊($0\nu\beta\beta$)』も起こるはず

候補核： ^{48}Ca ^{76}Ge ^{136}Xe ^{82}Se など

Q-valueが大きい
(バックグラウンドが少ない)

^{48}Ca の β 崩壊様式

β 崩壊 $T_{1/2} = ??$
 $Q_{\beta} = 278 \text{ keV}$ スピン遷移則で強く抑制



β 崩壊 $Q_{\beta} = 3989 \text{ keV}$
 $T_{1/2} = 43.7 \text{ 時間}$

$2\nu\beta\beta$ 崩壊
 $Q_{\beta\beta} = 4268 \text{ keV}$
 $T_{1/2} = (4 \pm 2) \times 10^{19} \text{ 年}$

$^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{48}\text{Sc}$ の β 崩壊

先行研究
 $T_{1/2} > 1.1 \times 10^{20} \text{ 年}$ [1]

理論予測(Shell-model)

- $T_{1/2} = 7.6 \pm 5.3 \times 10^{20} \text{ 年}$ [2]
- $T_{1/2} = 1.1^{+0.8}_{-0.6} \times 10^{21} \text{ 年}$ [3]

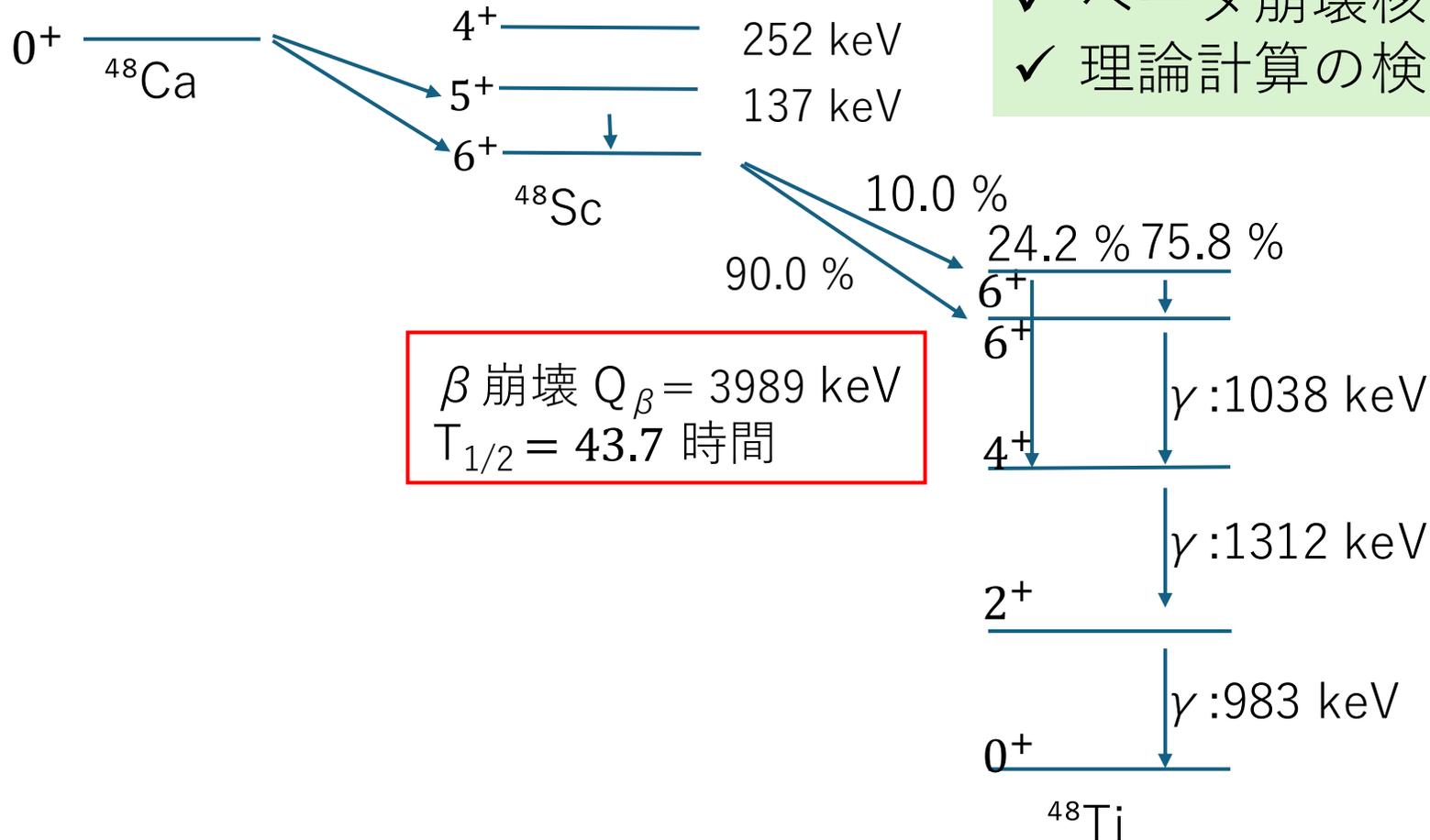
[1] A. Bakalyarov et al.,
 2002 Nuclear Physics A 700 (2002)

[2] E.K. Warburton, 1985
 Phys. Rev. C 31 (1985) 1896.

[3] M. Aunola et al. 1999
 Europhys. Lett., 46 (5), pp. 577-582

^{48}Ca の β 崩壊様式

β 崩壊 $T_{1/2} = ??$
 $Q_{\beta} = 278 \text{ keV}$



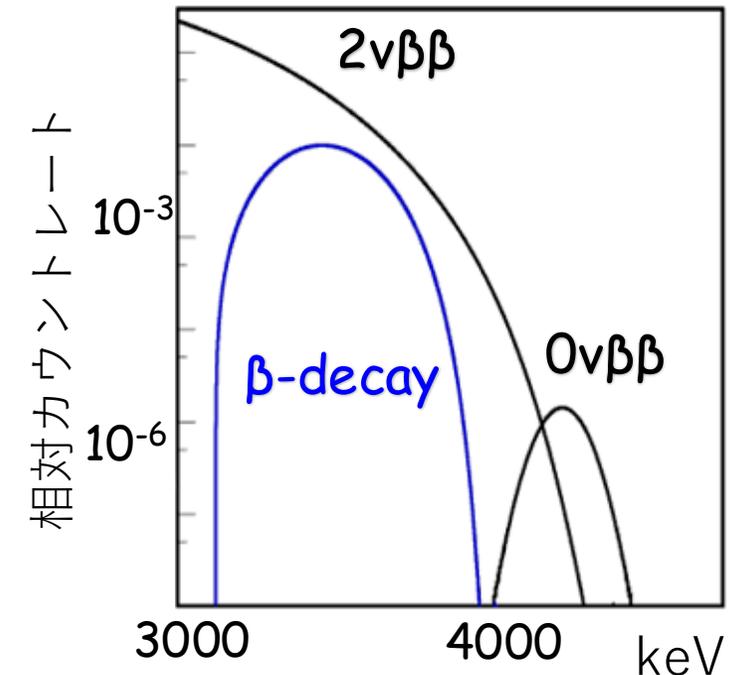
β 崩壊 $Q_{\beta} = 3989 \text{ keV}$
 $T_{1/2} = 43.7 \text{ 時間}$

✓ $0\nu\beta\beta$ 崩壊の正しいバックグラウンド評価
 β 崩壊の半減期により、 $2\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期の見積が変わる可能性がある

有限な半減期が求めれば、

- ✓ ベータ崩壊核として世界最長半減期の測定
- ✓ 理論計算の検証が可能

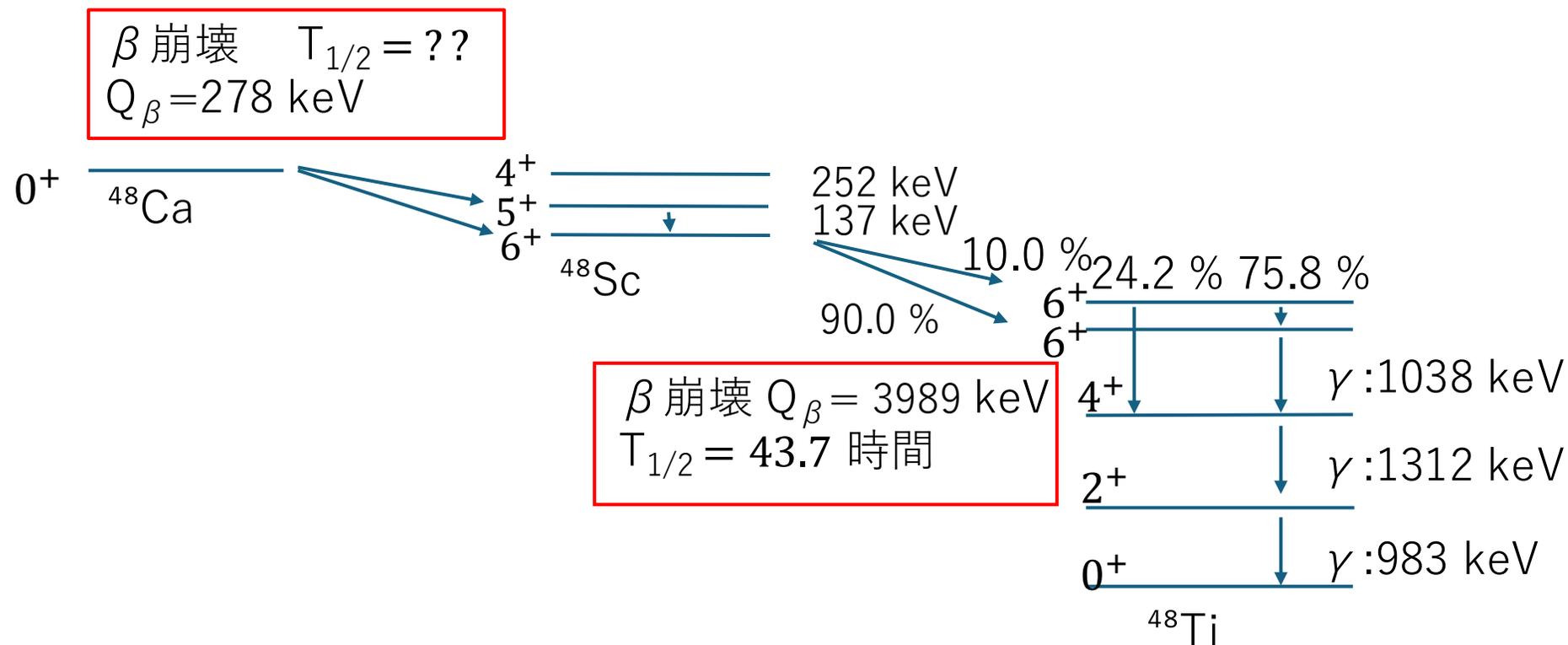
期待されるエネルギースペクトル



観測されるエネルギー 4

β 崩壊の半減期の測定方法

- ^{48}Sc の半減期は ^{48}Ca に比べて極めて短い \rightarrow 放射平衡
(^{48}Ca の崩壊数 = ^{48}Sc の崩壊数)
- ^{48}Sc の β 崩壊では3本の γ 線を放出する
- 3本の γ 線同時計測 \rightarrow 低バックグラウンドで ^{48}Sc の β 崩壊の計測が可能



測定目標と課題

目標： 1×10^{22} 年（先行研究 $T_{1/2} > 1.1 \times 10^{20}$ 年）

下限値

$$T_{1/2} > \frac{\ln 2 \cdot \varepsilon \cdot N \cdot t}{\sqrt{N_{BG}}}$$

半減期 $T_{1/2}$

検出効率 ε

目的粒子(^{48}Ca)の数 N

測定時間 t

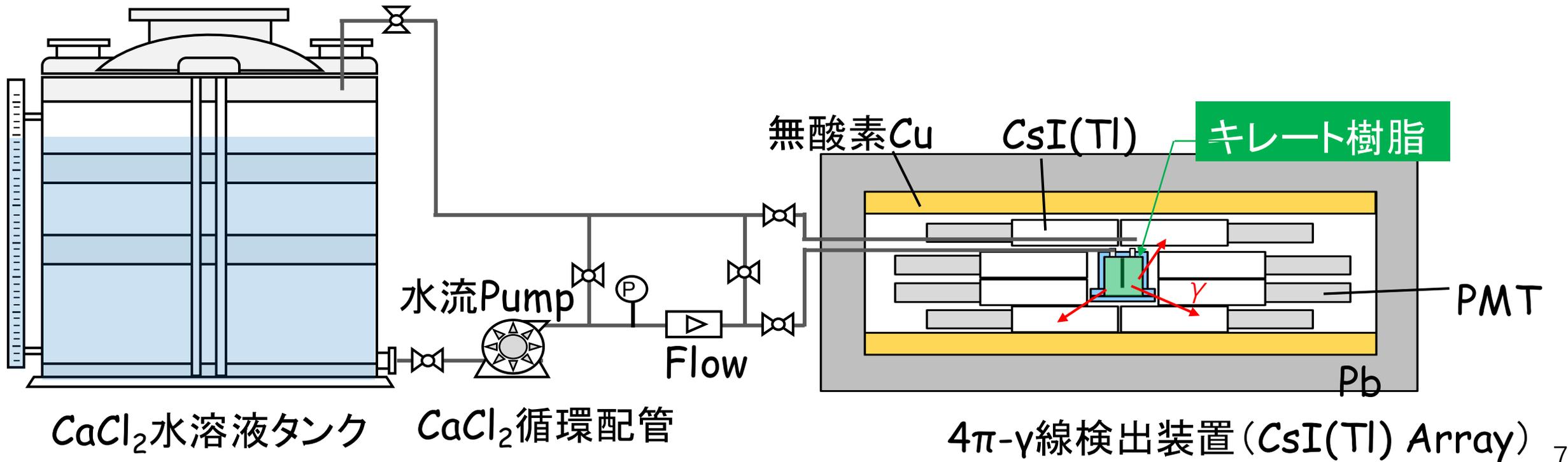
バックグラウンドの数 N_{BG}

^{48}Ca ：天然での同位体存在比が0.186 %
半減期 10^{22} 年を 1 年程度の測定で達成するには
100 kg程度の $^{\text{nat}}\text{Ca}$ （200 g程度の ^{48}Ca ）が必要

100 kgの試料からの γ 線検出 効率が低い

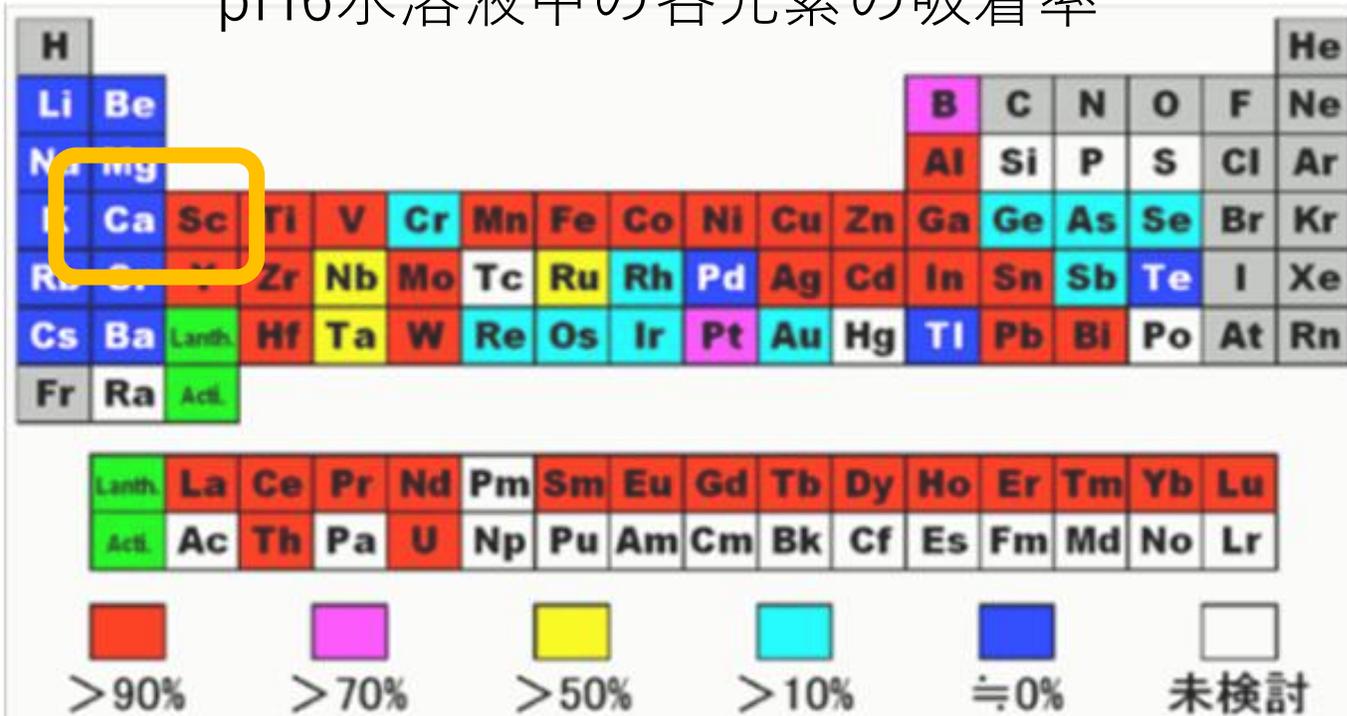
実験計画

- 水680 L中に230 kgの CaCl_2 を溶解し、ポンプで循環させる
- Ca^{2+} は吸着せず、 Sc^{3+} のみを吸着する特殊な樹脂を用いてScを濃縮する
- 大量のCaを使用して実験を行うことが可能
- 高い検出効率で3本の γ 線同時計測を行うことが可能



キレート樹脂 (NOBIAS-CHELATE-PA1)

pH6水溶液中の各元素の吸着率



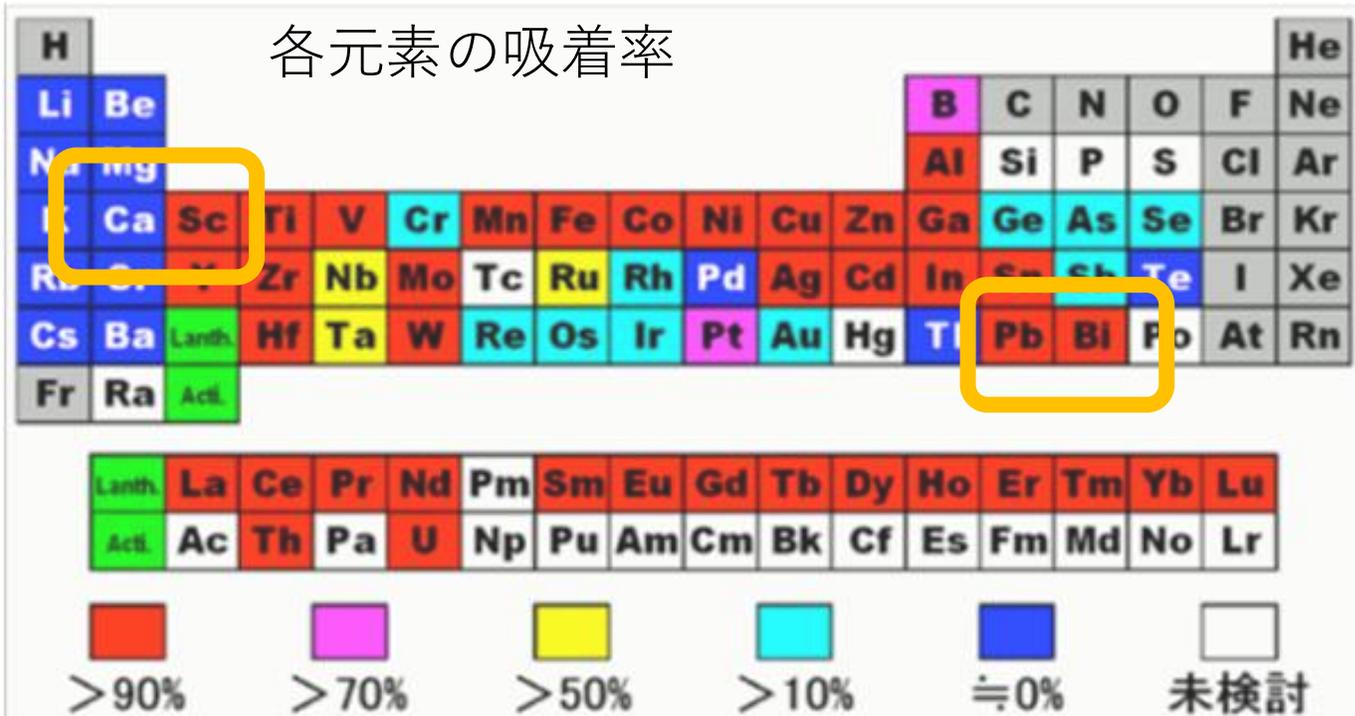
必要な調査項目

大量のCa中で発生したScイオンも捕集可能か

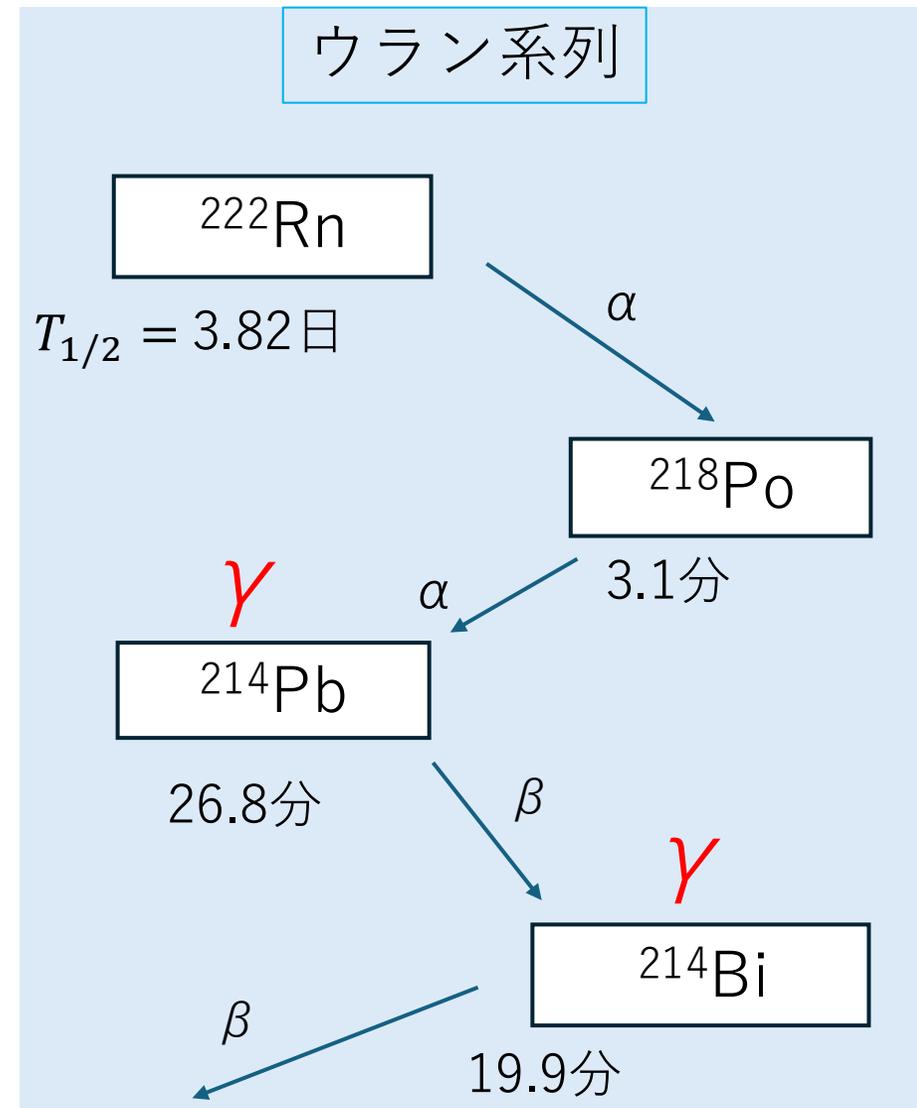
化学分析では
Scは90%以上を吸着する
Caはほとんど吸着しない

原子数個に対して
放射線計測による確認が必要

吸着効率の評価方法の確認



- 放射性Sc (^{46}Sc) は入手が難しい
- 放射性PbやBiはラドンより得られるので入手しやすい
- ^{214}Pb や ^{214}Bi の吸着で樹脂の性能を確認
(実験方法の検討)



本研究で行うこと

・ ^{222}Rn が溶けた水を作成する

→ ^{222}Rn の崩壊によって発生する ^{214}Pb と ^{214}Bi の γ 線をHPGe検出器で測定

・ キレート樹脂の ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着効率を測定する

→ラドン水溶液を樹脂に通して ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着を行う

主な放出ガンマ線 (強度比)

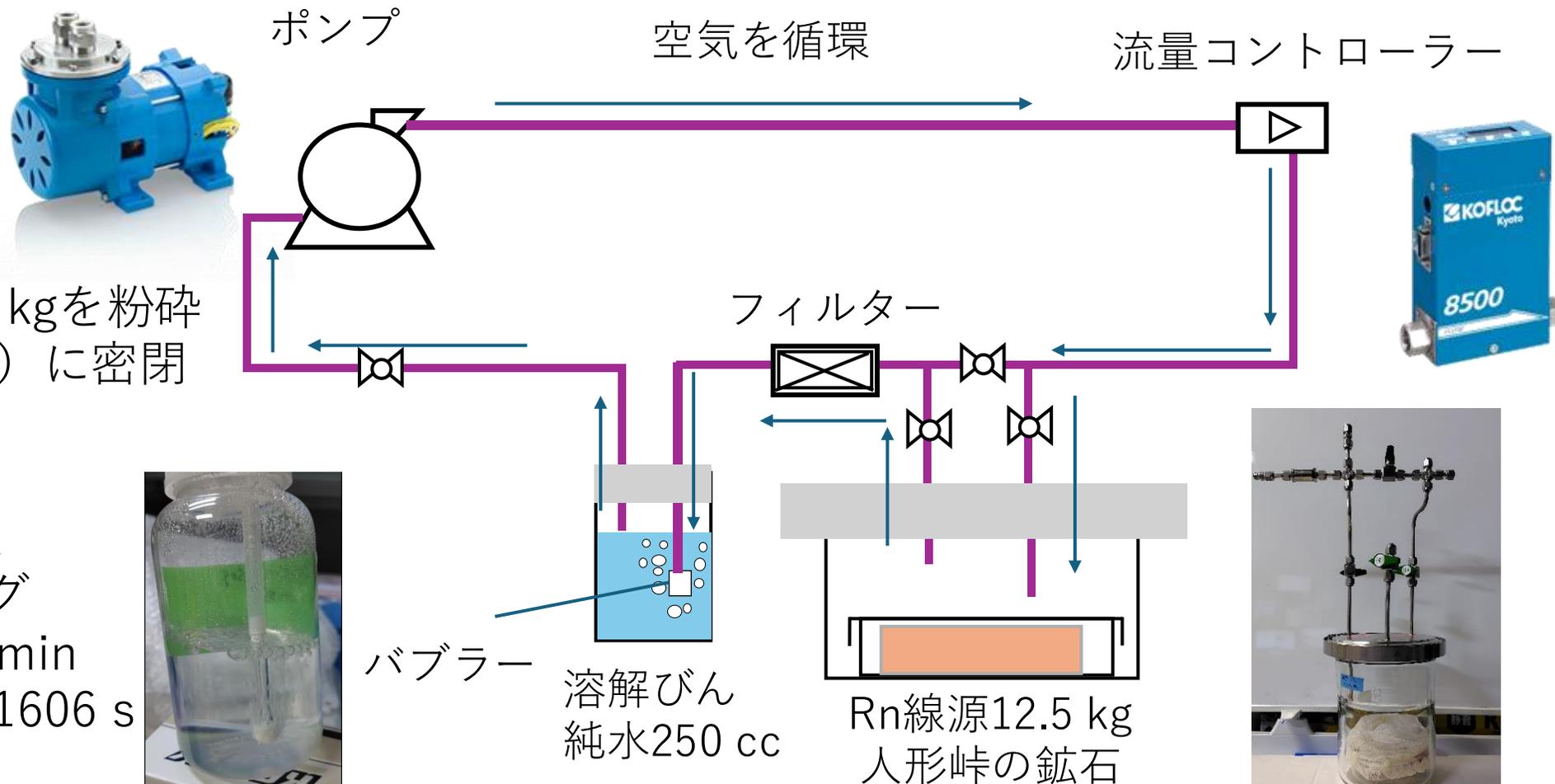
^{214}Pb

- 242 keV(7.26 %)
- 295 keV(18.5 %)
- 352 keV(35.7 %)

^{214}Bi

- 609 keV(45.4 %)
- 1120 keV(14.9 %)
- 1764 keV(15.3 %)
- 2204 keV(4.9 %)

ラドン水溶液の作成

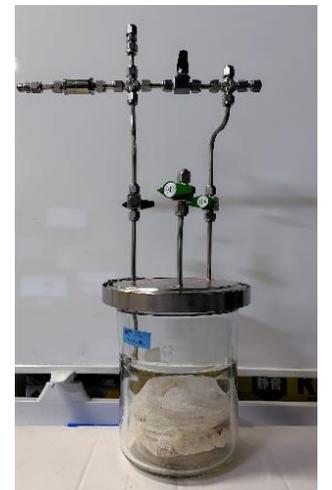
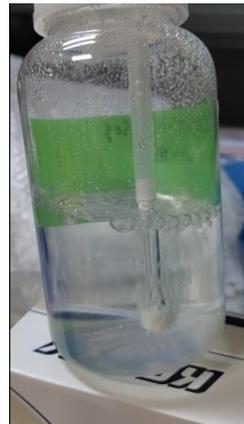


Rn線源

- 人形峠の鉱石 12.5 kgを粉碎
- ガラス容器 (3.0 L) に密閉

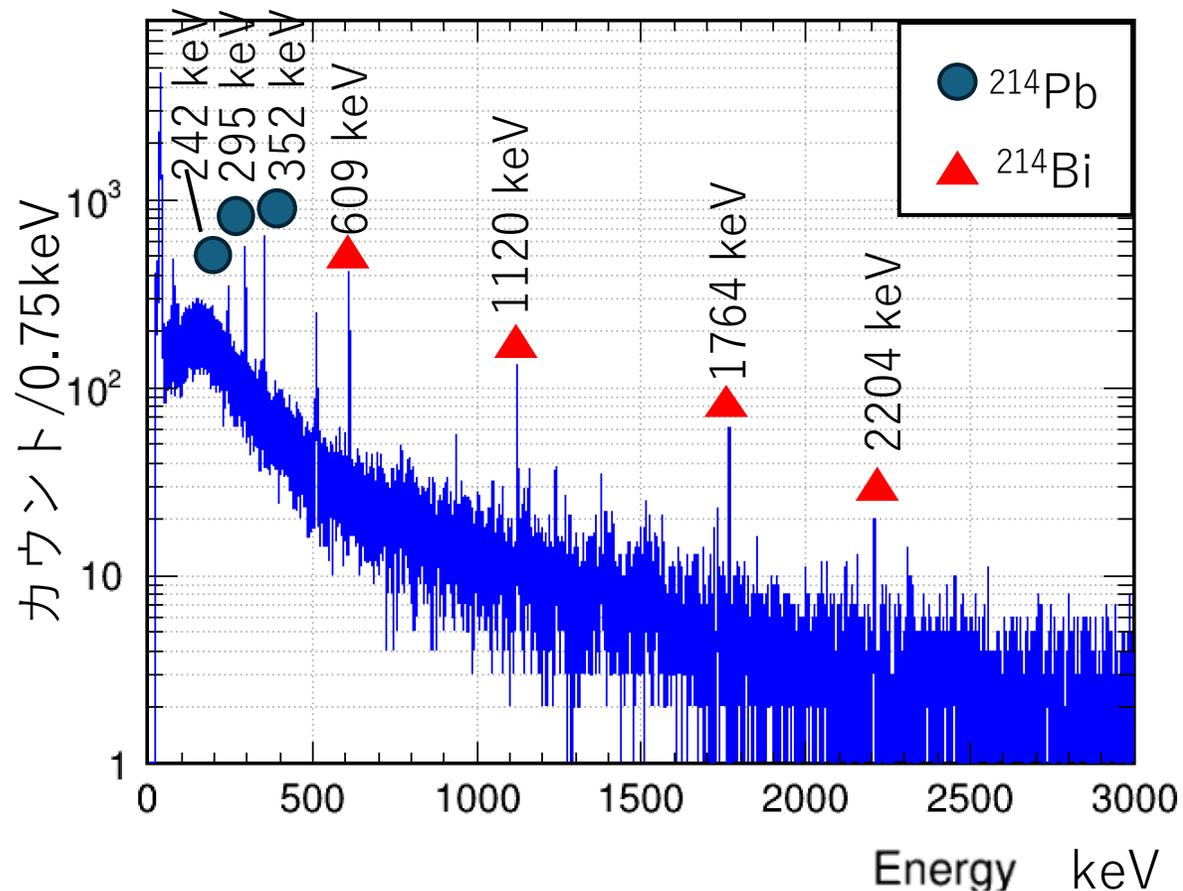
Rn水溶液の作成

- Rn-richガスを循環
- 純水中でバブリング
- 循環流量：0.20 L/min
- 循環時間：978 s~1606 s

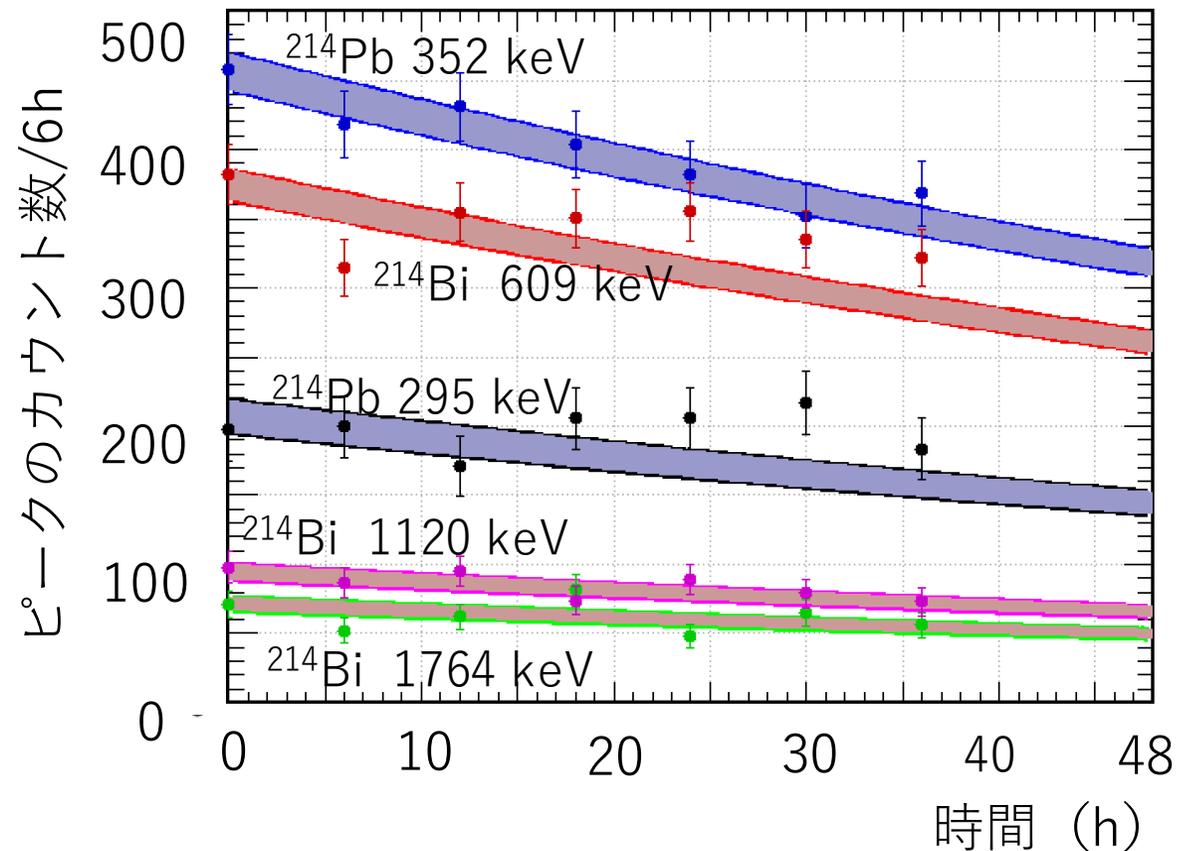


ラドン水溶液からのガンマ線スペクトル

ラドン水溶液の24hスペクトル



γ 線カウント数
予想減衰曲線と6hごとのカウント数



ウラン系列のラドン（半減期3.8日）が溶けている

樹脂の吸着効率測定の設定アップ

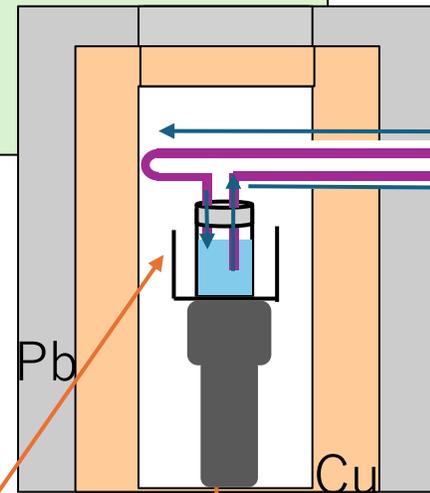
- ゲルマニウム検出器の直上にラドン水溶液を設置
- ポンプでラドン水溶液を輸送できるようにする
- 循環前の ^{214}Pb や ^{214}Bi を測定
- 循環中、キレート樹脂に吸着されていない ^{214}Pb や ^{214}Bi を測定
- ガンマ線カウントレートを比較

ラドン水溶液
250 mL

HPGe検出器

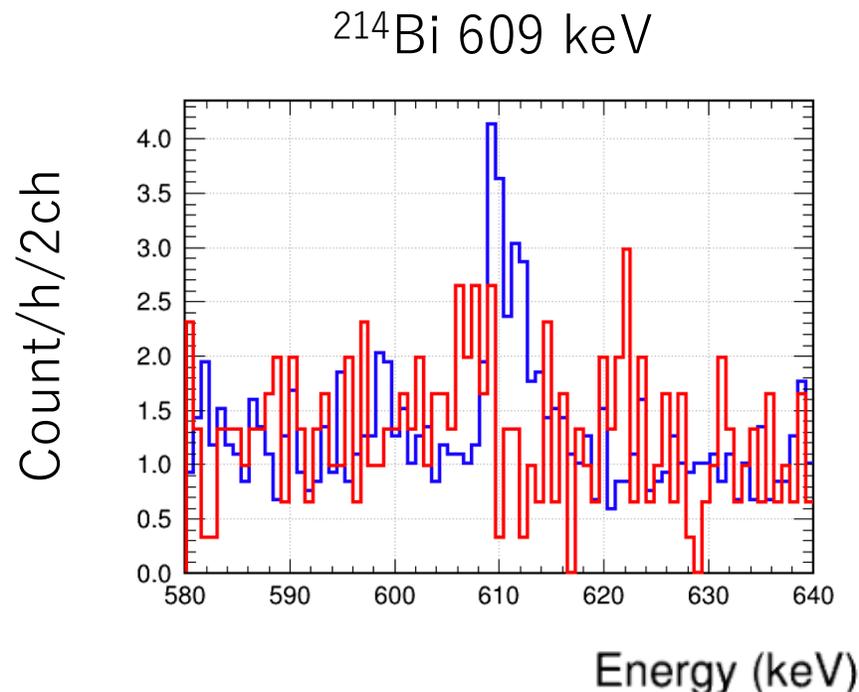
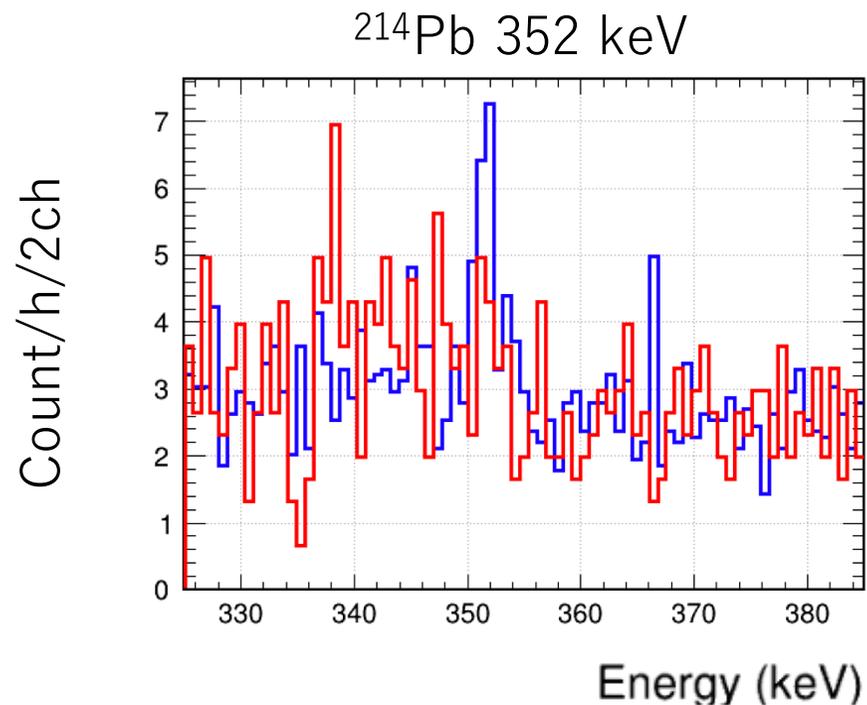
キレート樹脂
PTFEフィルターに0.3 g挟む

水流ポンプ



キレート樹脂への ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着結果

循環中によるスペクトル変化 循環時間3時間 循環流量：69 mL/min



青：循環前 (11.3時間)
赤：循環中 (3.0時間)
(吸着されなかったもの)

^{214}Pb : 295 keVと352 keV ^{214}Bi : 609 keVと1120 keVと1764 keV から計算

ラドン水溶液からの
消失率

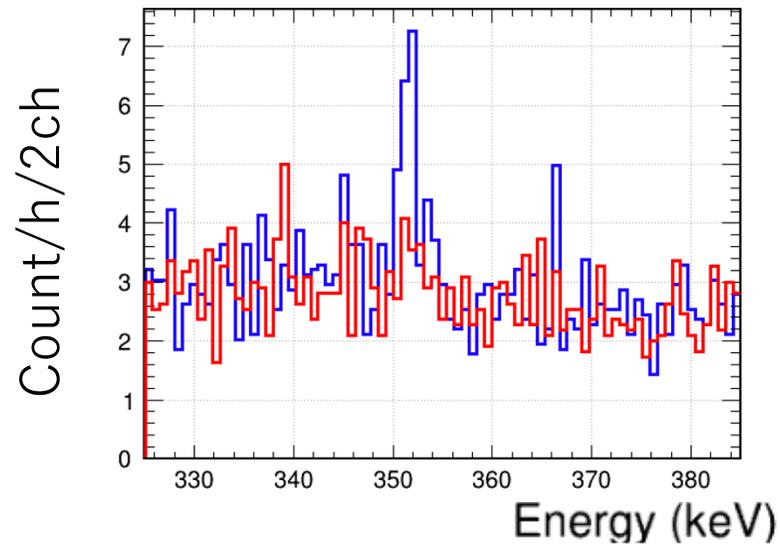
^{214}Pb : 0.95 ± 0.08

^{214}Bi : 0.96 ± 0.05

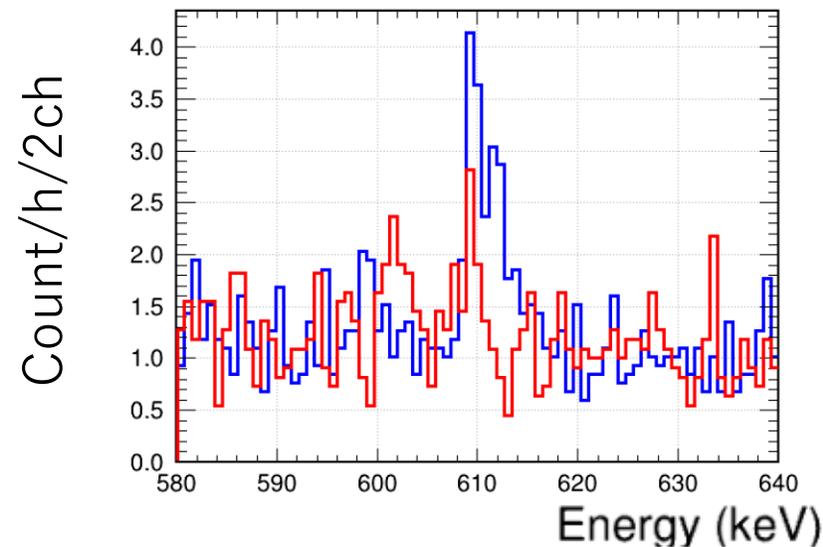
キレート樹脂への ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着結果

循環中によるスペクトル変化 循環時間3時間 循環流量：69 mL/min

^{214}Pb 352 keV



^{214}Bi 609 keV



青：循環前 (11.3時間)
赤：循環後 (11.0時間)

明らかにピークが小さくなっている→溶けているラドンが減少した

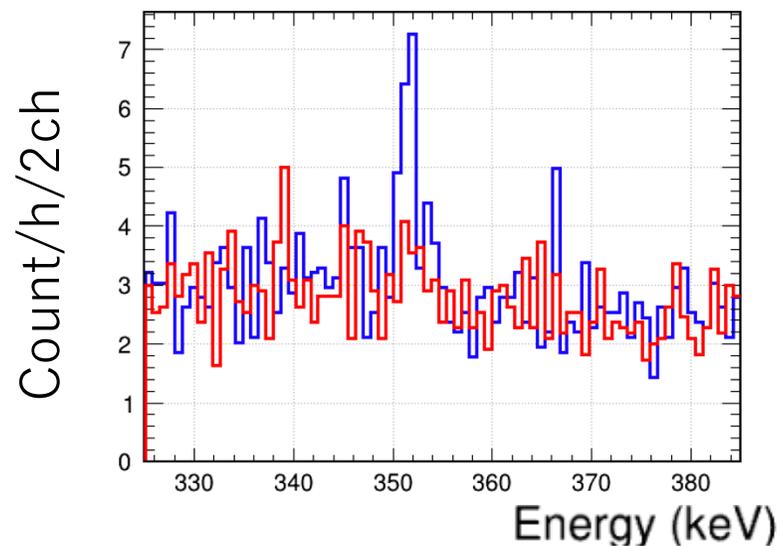
Rn逃げてしまった割合

0.69 ± 0.10

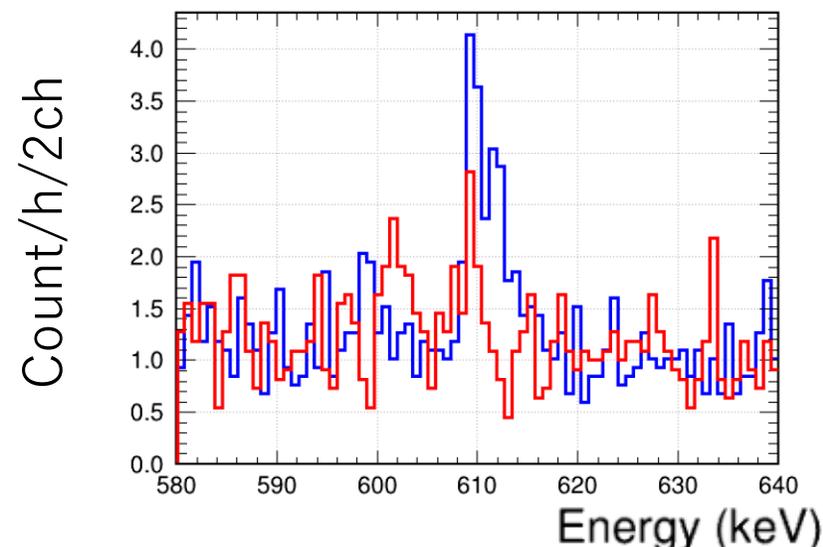
キレート樹脂への ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着結果

循環中によるスペクトル変化 循環時間3時間 循環流量：69 mL/min

^{214}Pb 352 keV



^{214}Bi 609 keV



青：循環前（11.3時間）
赤：循環後（11.0時間）

- ラドン水溶液を入れていた容器の上部にはホースの体積分（直径6 mm×長さ240 cm）だけ気層があり、循環過程でラドンが気層に移ってしまったと考えられる。

キレート樹脂への ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着結果

測定条件 循環時間3時間 循環流量：69 mL/min

ラドン水溶液からの
消失率

$^{214}\text{Pb} : 0.95 \pm 0.08$

$^{214}\text{Bi} : 0.96 \pm 0.05$

逃げてしまったRn

0.69 ± 0.10

吸着効率=ラドンとして逃げた以外の理由で水溶液中から消失した割合

吸着効率

$^{214}\text{Pb} : 0.84 \pm 0.14$

$^{214}\text{Bi} : 0.87 \pm 0.13$

原子1個のPbやBiを吸着することができた

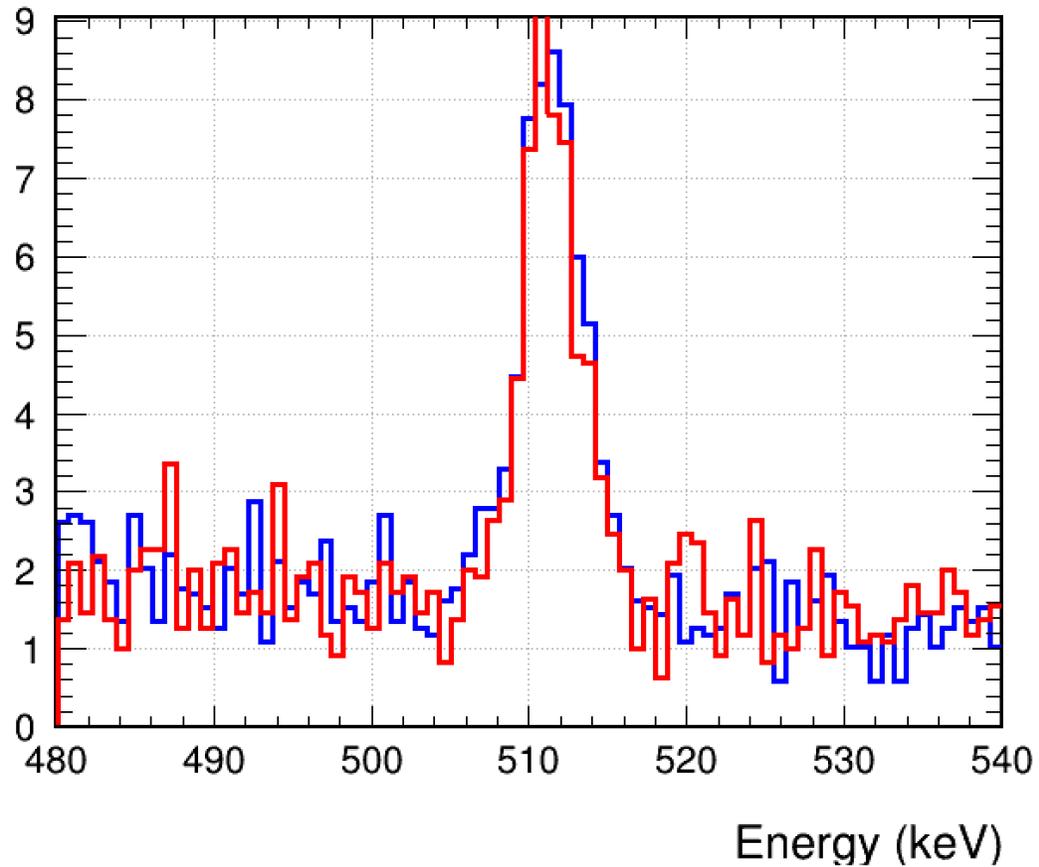
まとめ

- 大量のCaを用いた実験に必要なキレート樹脂のイオン吸着効率について調べた。
- ラドン水溶液を作成後、樹脂を通る循環経路を作り、
 ^{214}Pb や ^{214}Bi のガンマ線カウント数を比較して吸着効率を算出した。
- キレート樹脂の吸着効率 ^{214}Pb : 0.84 ^{214}Bi : 0.87
- 原子1個の吸着ができた

今後

- Rn水溶液に CaCl_2 を溶解して、同様の測定を行う。
- 測定装置の都合で吸着した樹脂の方を測定できていないのでPbやBiのガンマ線が樹脂から観測できることを確認する

ピークずれてない？

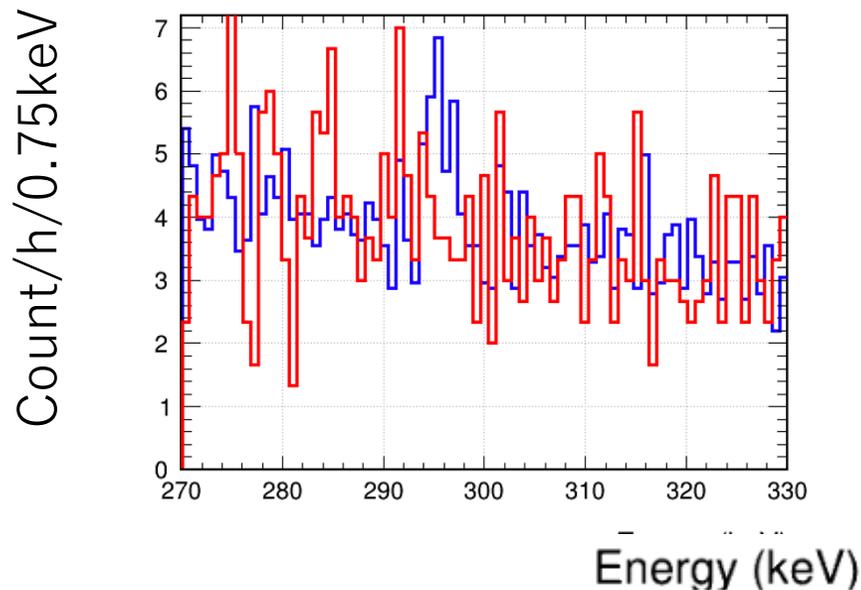


511keVの対消滅 γ 線ピークが1箇所にあることからそのようなことは起こっていないと考える

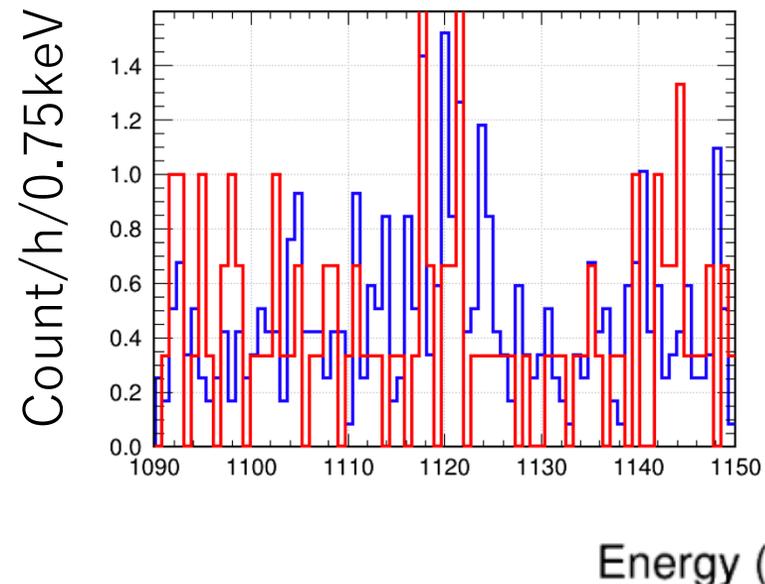
キレート樹脂への ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着結果

循環中によるスペクトル変化 循環時間3時間 循環流量：69mL/min

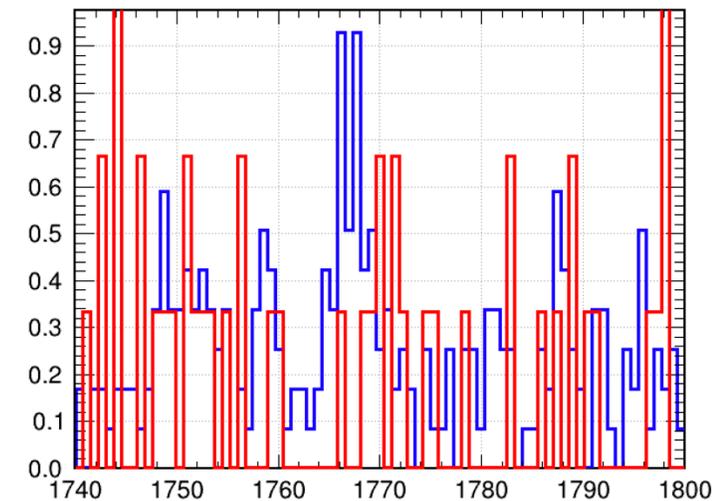
^{214}Pb 295keV



^{214}Bi 1120keV



^{214}Bi 1764keV



青：循環前 (11.3時間)
赤：循環中 (3.0時間)
(吸着されなかったもの)

ラドン水溶液からの
消失率

^{214}Pb : 0.95 ± 0.08

^{214}Bi : 0.96 ± 0.05

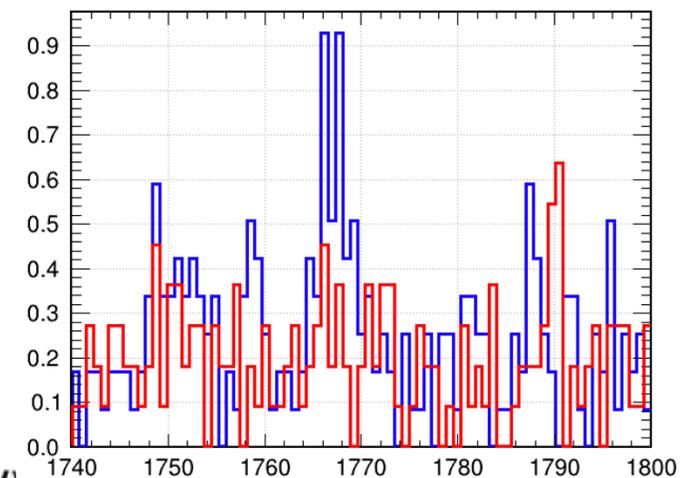
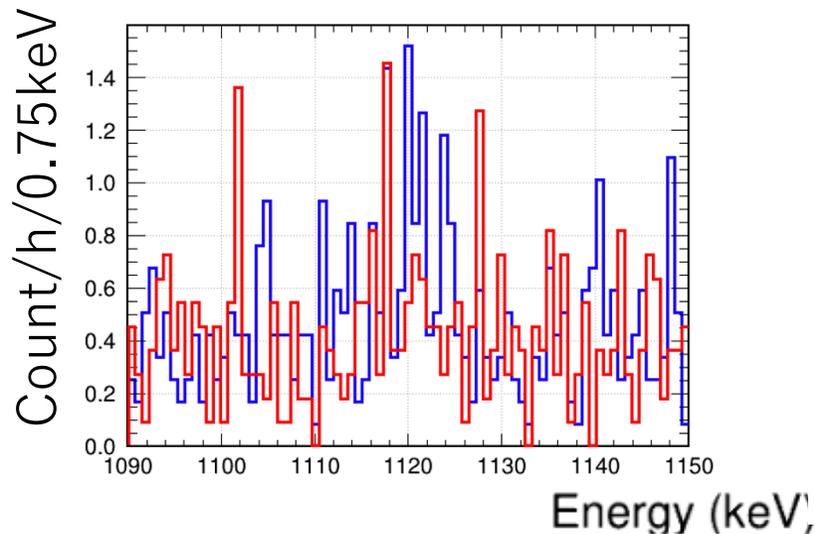
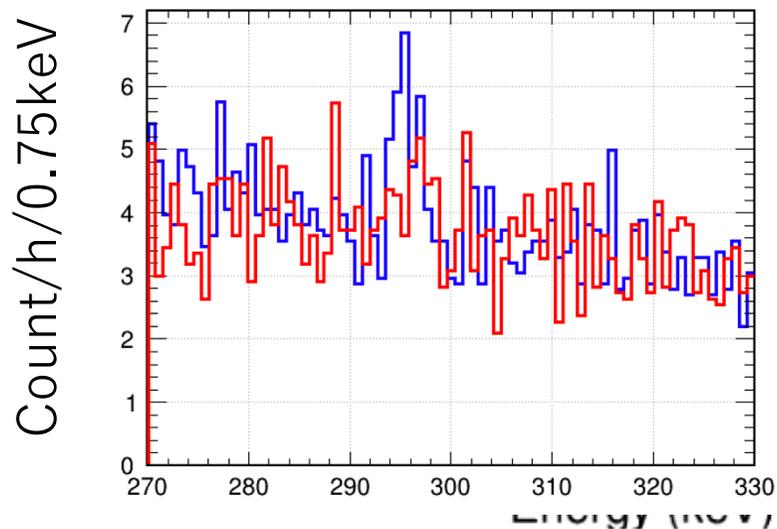
キレート樹脂への ^{214}Pb と ^{214}Bi の吸着結果

循環中によるスペクトル変化 循環時間3時間 循環流量：69mL/min

^{214}Pb 295keV

^{214}Bi 1120keV

^{214}Bi 1764keV



青：循環前 (11.3時間)

赤：循環後 (11.0時間)

明らかにピークが小さくなっている→溶けているラドンが減少した

Rn逃げてしまった割合

0.69 ± 0.10

ラドン水溶液の作成

より簡単に作成するため、市販のセラミック固化物質（ラジウムボール）やそれを粉末状にした物を用いて、同じ経路で時間や流量を変えて行うもうまくいかなかった。



セラミック固化物質
（ラジウムボール）



すり鉢ですりつぶしたもの

考えられる原因

- 線源が弱い、もっと大量に必要
- 気体ラドンが出てきていない大きさかも

使用した線源

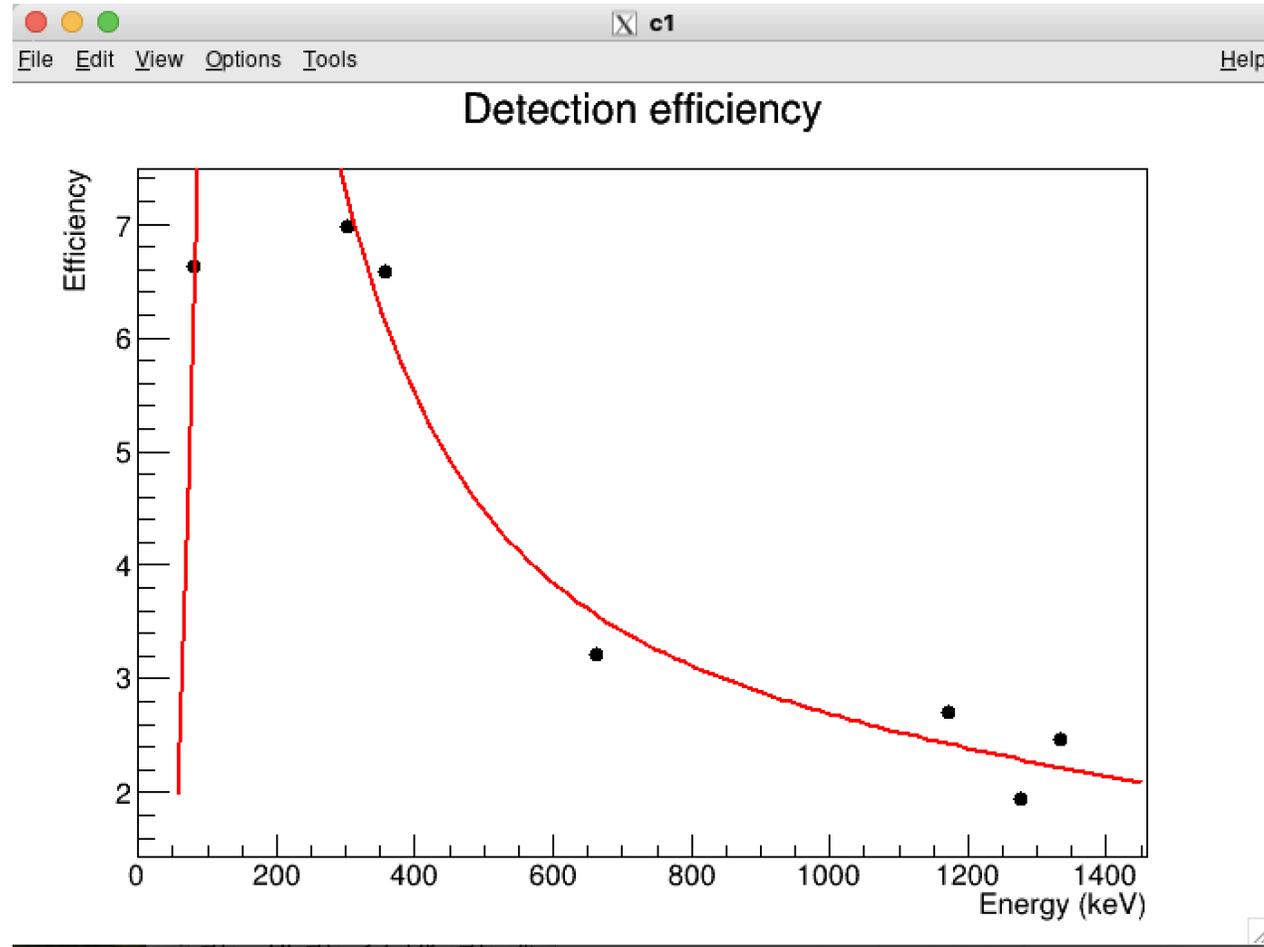
ラジウムボール粉末：42g

鉍石：12.5kg

解析方法

- ガウスフィットで中心とシグマを出す
- (目視でピークが2つに割れていたらそれぞれでフィット)
- 中心 \pm FWHMの幅に含まれるBinに入っているカウント数を計上
- バックグラウンドをひく
- 時間経過による減衰係数をかける計算
- カウントレートにして比較

ゲルマニウム検出器の検出効率



用いた線源

- ^{133}Ba
- ^{60}Co
- ^{137}Cs

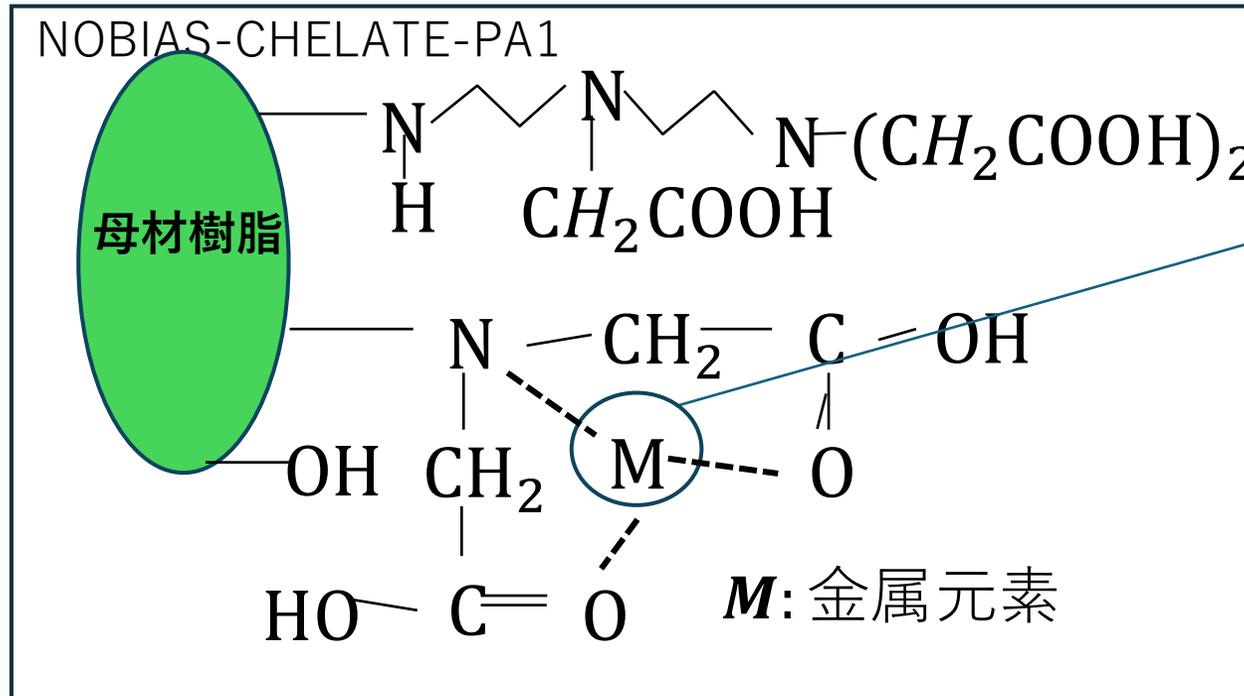
^{60}Co 1333keV

$\sigma = 0.84\text{keV}$

FWHM=1.97 keV

$$\varepsilon = a_1 * \text{EXP}(a_2 + a_3 * \text{LN}(E/1000) + a_4 * (\text{LN}(E/1000))^2 + a_5 * (\text{LN}(E/1000))^3)$$

キレート樹脂について



金属元素との配位結合

ラドン水溶液の作成

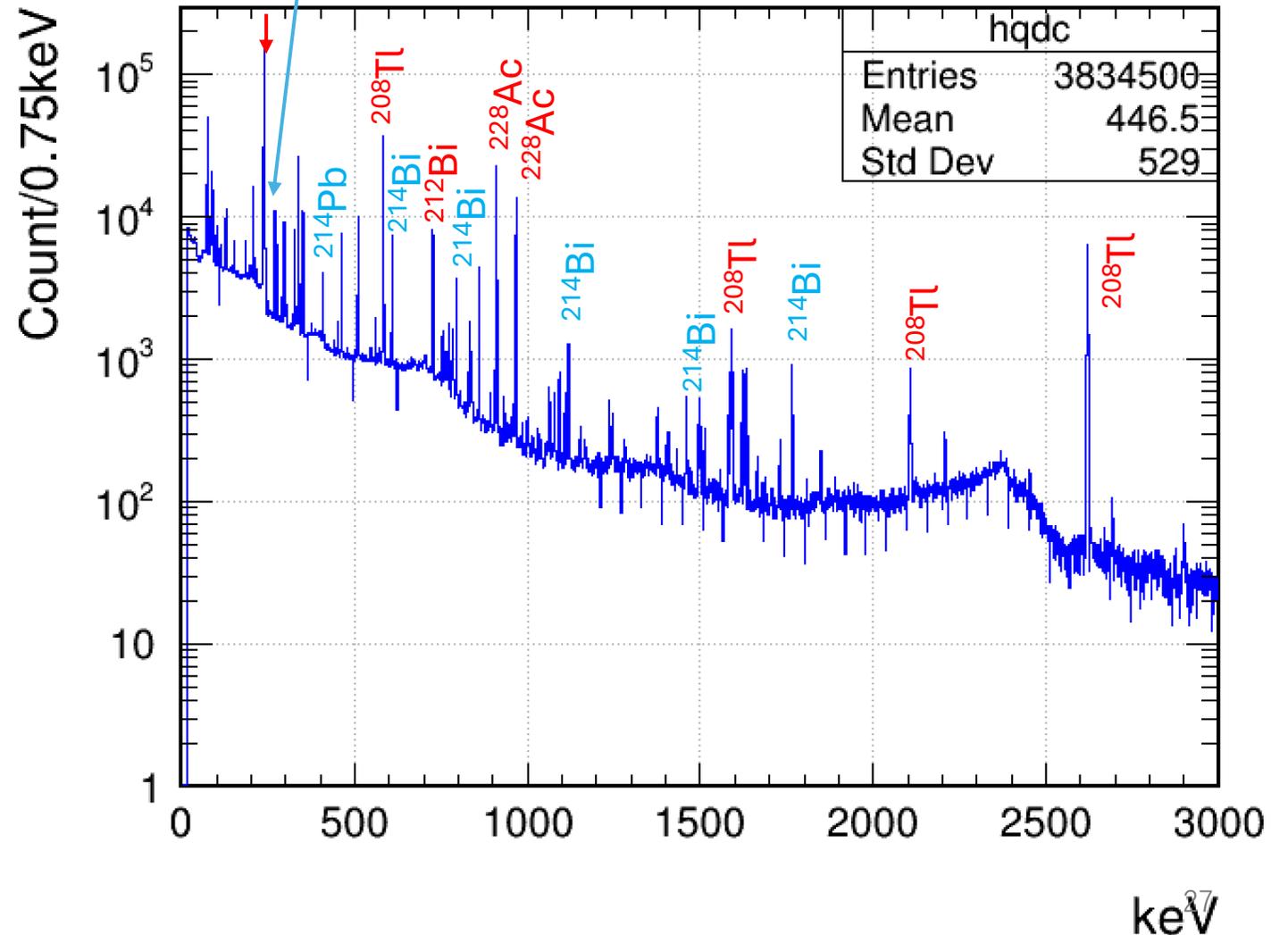
市販のセラミック固化物質
(ラジウムボール)



1kBq程度のトリウム系列元素
0.1kBq程度のウラン系列の元素
が含まれる

ウラン系列
トリウム系列

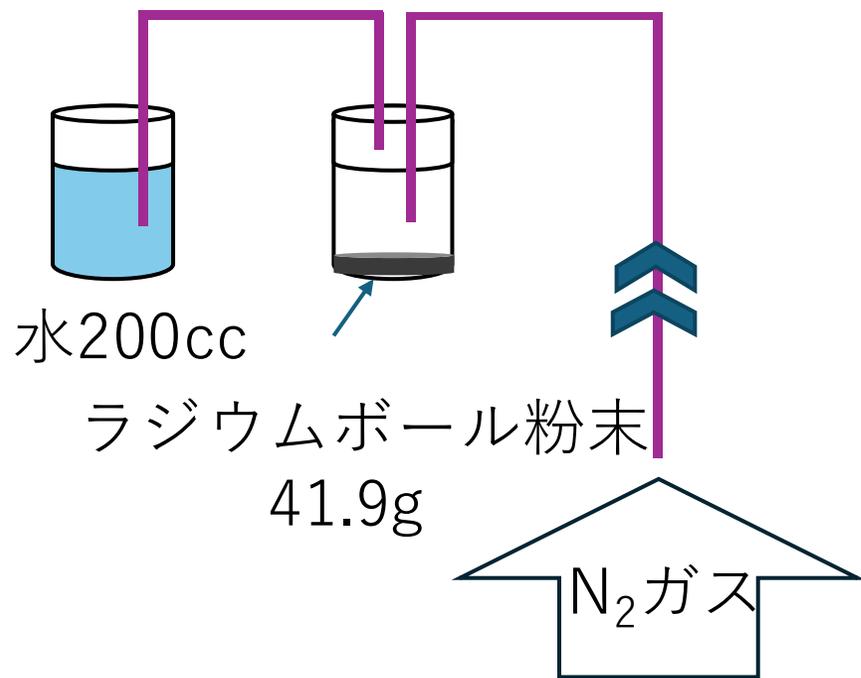
RaBall 4.5g 10h



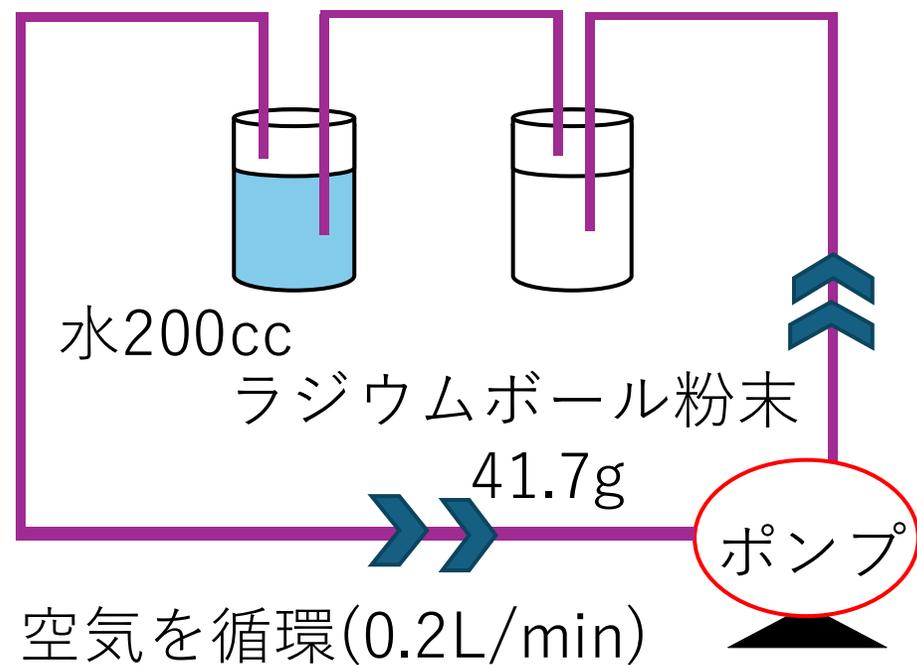
ラドン水溶液の作成

ラジウムボールを細かくして、気体のラドンが出てきやすいようにする

①粉末を密閉して、 N_2 ガスで水に送る

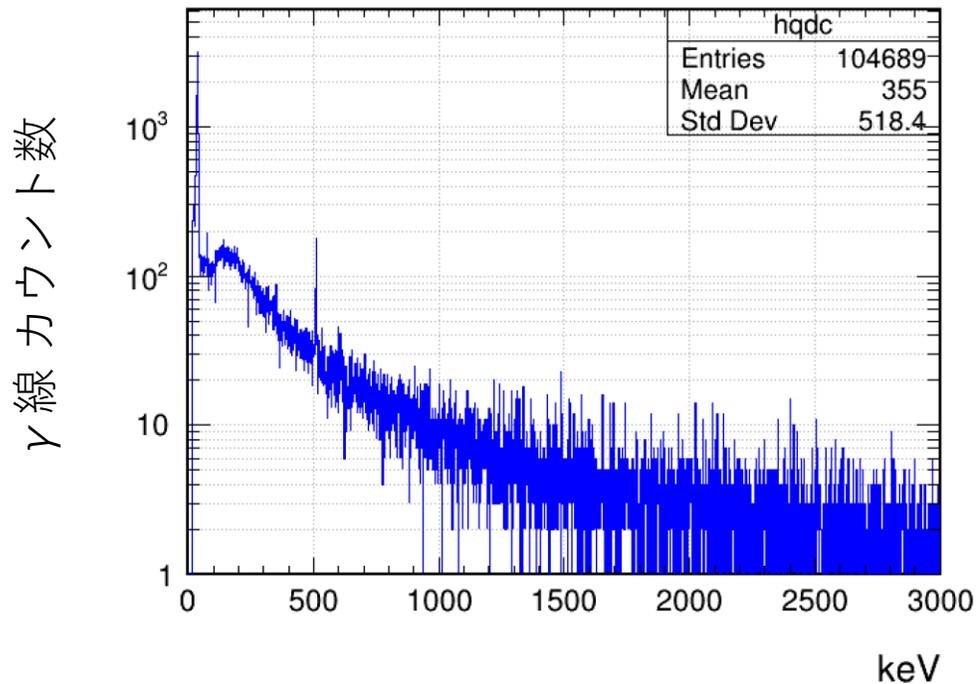


②ポンプを用いて気相を循環させ
水に送り続ける

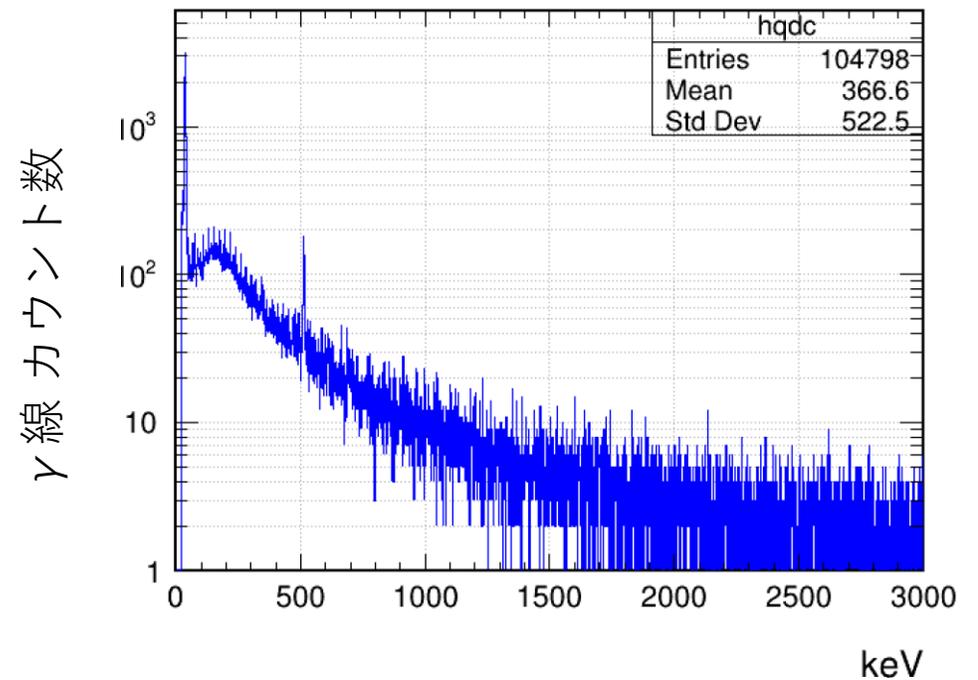


ラドン水溶液の作成

N₂送付スペクトル



循環7.5分 スペクトル



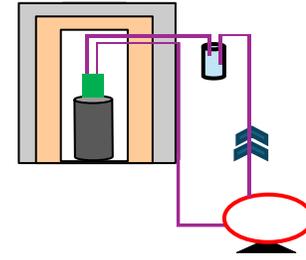
ウラン系列、トリウム系列ともに放射能不足



吸着効率のテストには使用できない

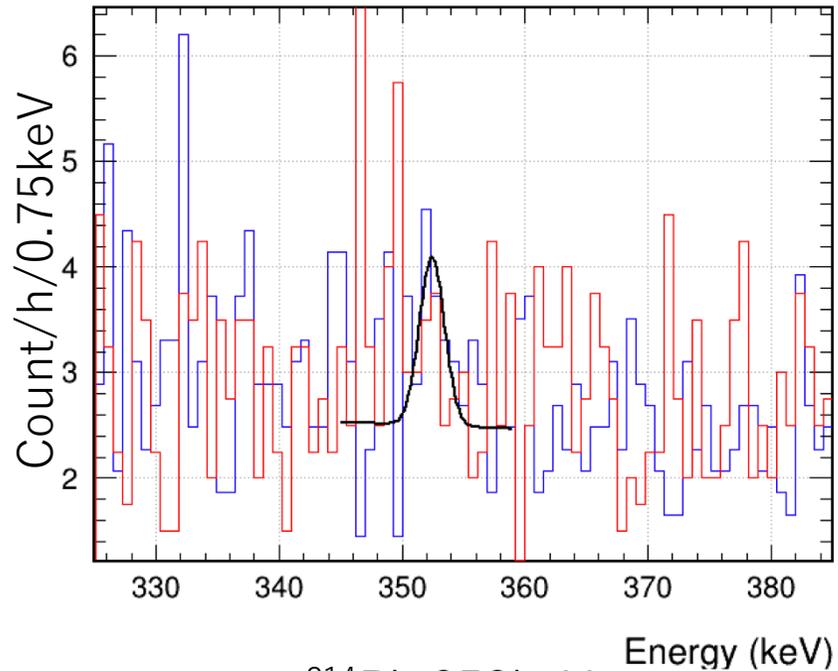
3本目																			
循環前																			
3h~	ウラン系列	循環(h)	3			測定時間(min)	710												
	核種	エネルギー(k)	崩壊強度(%)	カウント	BG	カウント-BG	平均	sigma	BG(周り20ke)	中心	BG揺らぎ	カウント誤差	誤差伝播						
	214Pb	241.995	7.26			0					0	0	0						
	214Pb	295.224	18.47	420	353.5875	66.4125	#DIV/0!	1.09637	1347	295.469	18.80392246	20.49390153	27.813441						
	214Pb	351.932	35.72	344	188.0625	155.9375	#DIV/0!	0.715664	1003	351.506	13.71358815	18.54723699	23.06648001						
	214Bi	609.321	45.44	299	167.0625	131.9375	#DIV/0!	1.66428	405	610.74	12.92526595	17.29161647	21.58848072						
	214Bi	1764.491	15.29	57	30.375	26.625	#DIV/0!	1.52845	81	1767.35	5.511351921	7.549834435	9.347459548						
	214Bi	1120.294	14.9	165	92.25	72.75	#DIV/0!	3.14813	123	1120.64	9.604686356	12.84523258	16.03901493						
循環中																			
14h51min~	ウラン系列	循環(h)	3			測定時間(min)	181												
	核種	エネルギー(k)	崩壊強度(%)	カウント	BG	カウント-BG	平均	sigma	BG(周り20ke)	中心	BG揺らぎ	カウント誤差	誤差伝播						
	214Pb	241.995	7.26			0					0	0	0						
	214Pb	295.224	18.47	82	90.13991197	-8.139911972	#DIV/0!	1.09637	1347	295.469	9.494204125	9.055385138	13.12021006						
	214Pb	351.932	35.72	67	47.94269366	19.05730634	#DIV/0!	0.715664	1003	351.506	6.924066266	8.185352772	10.72113304						
	214Bi	609.321	45.44	49	42.58917254	6.410827465	#DIV/0!	1.66428	405	610.74	6.526038043	7	9.570223223						
	214Bi	1764.491	15.29	5	7.743485915	-2.743485915	#DIV/0!	1.52845	81	1767.35	2.782711971	2.236067977	3.569801943						
	214Bi	1120.294	14.9	28	23.51725352	4.482746479	#DIV/0!	3.14813	123	1120.64	4.849459096	5.291502622	7.177552056						
循環あと																			
17h53min~	ウラン系列	循環(h)	3			測定時間(min)	1327												
	核種	エネルギー(k)	崩壊強度(%)	カウント	BG	カウント-BG	平均	sigma	BG(周り20ke)	中心	BG揺らぎ	カウント誤差	誤差伝播						
	214Pb	241.995	7.26			0					0	0	0						
	214Pb	295.224	18.47	626	621.6	4.4	#DIV/0!	1.09637	2368	295.469	24.93190727	25.01999201	35.32138163						
	214Pb	351.932	35.72	421	354.375	66.625	#DIV/0!	0.715664	1890	351.506	18.8248506	20.51828453	27.8455562						
	214Bi	609.321	45.44	315	306.075	8.925	#DIV/0!	1.66428	742	610.74	17.49499929	17.74823935	24.92137637						
	214Bi	1764.491	15.29	45	35.25	9.75	#DIV/0!	1.52845	94	1767.35	5.937171044	6.708203932	8.958236434						
	214Bi	1120.294	14.9	227	170.25	56.75	#DIV/0!	3.14813	227	1120.64	13.04798835	15.06651917	19.93113143						

キレート樹脂の吸着結果



実験2.

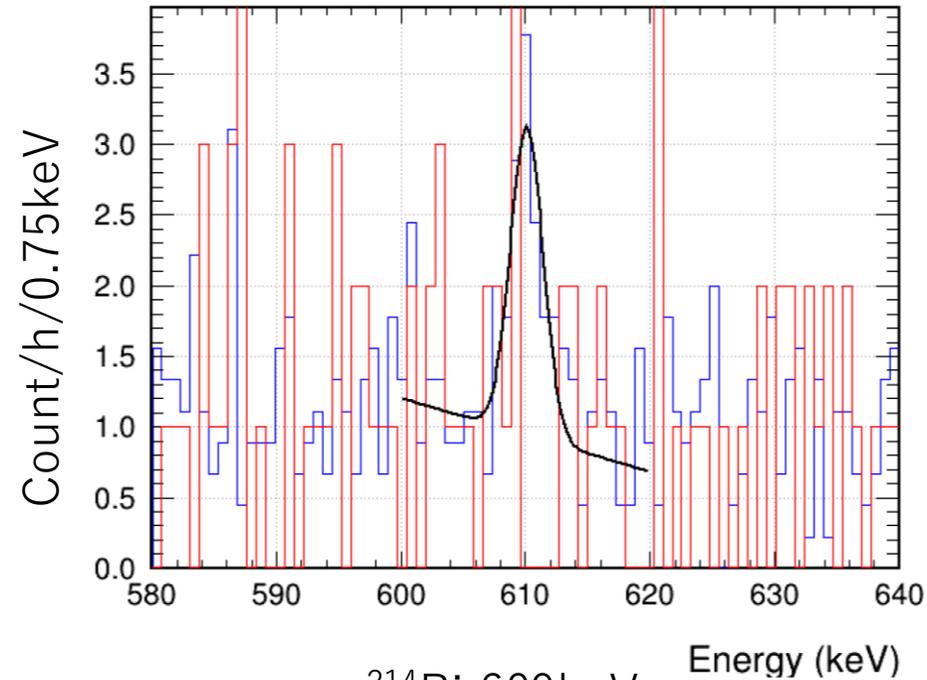
キレート樹脂を測定



^{214}Pb 352keV

青一赤

1.37 ± 4.28



^{214}Bi 609keV

3.96 ± 3.25

赤：循環前

青：循環中
(吸着できたもの)