

令和 6 年 5 月 29 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01105

研究課題名（和文）次世代宇宙素粒子実験実現のための有機物中RI測定の超高感度化

研究課題名（英文）Development of a method to measure radioisotopes in organic materials with high sensitivity for the next generation of astroparticle physics experiments

研究代表者

市村 晃一（Ichimura, Koichi）

東北大学・ニュートリノ科学研究センター・助教

研究者番号：80600064

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,000,000円

研究成果の概要（和文）：ニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊探索などの極稀にしか起こらない事象を探索するためには検出器の極低放射能化が必要であり、そのような極低放射能検出器部材中の放射性不純物(RI)量を高感度測定するための技術が必要である。本研究では有機物中のウラン、トリウム量を灰化装置と誘導結合プラズマ質量分析法を組み合わせ高感度で測定する手法を開発し、有機物1グラムあたり1ピコグラムの濃度で測定出来る手法を確立したほか、高純度ゲルマニウム検出器の低バックグラウンド遮蔽体を構築し、世界トップレベルの高感度でRI量を測定する手法も確立し、次世代極稀事象探索検出器の部材候補のRI量測定を行うことが出来た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、次世代極稀事象探索検出器のスクリーニングをより高感度で行うことが可能になった。灰化装置と誘導結合プラズマ質量分析法を組み合わせた有機物中の放射性不純物量測定に関し、数グラムの有機物を灰化することが出来ること、および有機物1グラムあたり1ピコグラムの濃度での測定に必要なクリーン環境や実験器具の洗浄方法を提示できた。今後濃縮法との組み合わせやクリーン環境や実験器具の整備を行うことでさらに高感度測定出来ることも示すことができた。極低放射能ゲルマニウム検出器に関しても10 kg程度の試料まで測定することが可能であり、様々な極稀事象探索検出器のための測定に活用することができる。

研究成果の概要（英文）：The development of an ultra-low background detector is necessary for the search for extremely rare events such as neutrinoless double beta decay. It is also necessary to develop a method for measuring radioactivity in the detector components of such ultra-low background detectors with high sensitivity. In this research project, we have established a method for measuring trace amounts of uranium and thorium in organic materials by combining an ashing device and inductively coupled plasma mass spectrometry. The detection limit of the method was found to be one picogram per gram of organic material for now. We also established a method to measure RI amount with world-class high sensitivity by constructing a low-background shielding for the ultra-low background high-purity germanium detector. Using these methods, we measured RI amounts in candidate components for the next generation of extremely rare event search detectors.

研究分野：非加速器素粒子実験

キーワード：極低放射能 放射線計測 微量元素分析 ICP-MS ゲルマニウム検出器

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

素粒子の一種であるニュートリノは Super-Kamiokande 実験や SNO 実験、KamLAND 実験などによるニュートリノ振動現象の発見から、ニュートリノには質量があること、3種類のニュートリノの質量がそれぞれ異なることが分かっている。しかし現在分かっているのは質量の二乗差だけであり、ニュートリノの質量の絶対値や他の素粒子と比べて極端に軽い質量の謎など未解明の部分も多い。

ニュートリノの極端に軽い質量について、超重右巻きニュートリノを预言するシーソー機構による説明が有望視されている。またレプトジェネシスというシナリオでは、この超重右巻きニュートリノの崩壊を通じてレプトン数に非対称性が生じ、さらに宇宙初期にレプトン数の一部がバリオン数に変換されることで現在の物質優勢宇宙が説明出来る。これらシーソー機構、レプトジェネシスの大前提として、ニュートリノが粒子と反粒子を区別しないというマヨラナ性を有する必要がある。ニュートリノのマヨラナ性を検証できる唯一現実的な方法はニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊(以下 $0\nu\beta\beta$ と略す)反応の探索である。この反応はレプトン数保存則を破り、その崩壊率からニュートリノの質量(有効マヨラナ質量)を得ることが出来る。

探索で世界をリードしているのが KamLAND-Zen 実験であり、キセノン 136 の半減期で 2.3×10^{26} 年 (90%下限値)という制限が得られ、半減期から有効マヨラナ質量への変換で不定性による幅を有するが有効マヨラナ質量について 36 - 156 meV という逆階層領域と呼ばれるニュートリノ質量領域に到達した 90%上限値も得られている(S. Abe et al., Phys. Rev. Lett. 130 051801 (2023))。KamLAND-Zen 実験の他にゲルマニウム 76 を使った GERDA 実験、テルル 130 を使った CUORE 実験なども高感度 $0\nu\beta\beta$ 探索を行っているが、未だ有意な信号は観測されていない。今後さらに $0\nu\beta\beta$ 探索感度を向上するためには $0\nu\beta\beta$ 崩壊核を多量に含有し、雑音事象となる放射性不純物を極限まで低減した極低放射能検出器が必要である。

2. 研究の目的

本研究の目的は KamLAND-Zen 実験の次世代実験(KamLAND2-Zen 実験)で用いる計画のあるシンチレーションフィルムや波長変換材などの有機物材料中に含まれる放射性不純物量の高感度測定手法の確立と、その手法を用いた検出器部材のスクリーニングを行うことである。これにより次世代検出器の極低放射能化を達成し、 $0\nu\beta\beta$ 探索の高感度化を目指す。これら次世代検出器部材中の放射性不純物量の要求値としては、シンチレーションフィルムに関しては先行研究(S. Obara et al., PTEP 073H01 (2019)) からフィルム 1 g あたりに含まれるウラン 238、トリウム 232 量について 10 pg 未満、波長変換材に関しては 1 g あたりウラン 238 は 30 pg、トリウム 232 については 100 pg 未満である。これらの要求値を満たしているか判断できる、有機物中の放射性不純物量の高感度測定手法を確立する。またウラン系列の場合には壊変の途中でラジウム 226 (半減期 1600 年) のような長寿命核を含むことから放射平衡が崩れている場合が散見される。そのためラジウム 226 より下流の放射性不純物量についても高感度測定する手法も確立する。

3. 研究の方法

(1)ウラン 238・トリウム 232 の高感度測定手法として誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)がある。本研究で ICP-MS を用いた測定を行うには有機物成分を除去した試料溶液を作成する必要があり、除去手法としてマイクロ波灰化装置を用いた乾式灰化手法を採用した。シンチレーションフィルムや波長変換材などの有機物は秤量した後石英ビーカーに入れ、マイクロ波灰化装置にて灰化した(図 1)。得られた灰分を硝酸水溶液で溶解し、ICP-MS にて測定を行った。環境からの汚染を低減するための実験環境のクリーン化や実験器具、および測定試料の洗浄方法なども確立し、脱溶媒ネプライザーなど ICP-MS 自体の検出感度向上についても行った。



図 1 灰化装置および灰化前後の試料の様子

(2)ラジウム 226 の高感度測定手法としてその娘核(ビスマス 214 や鉛 214 など)のガンマ線を高純度ゲルマニウム (HPGe) 検出器で検出する手法がある。本研究では図 2 に示す極低放射能 HPGe 検出器の測定感度を向上するために、検出器近傍の遮蔽体部材(高純度銅および極低放射能鉛ブロック)の洗浄を行い、部材表面に付着しやすいと考えられる鉛 210 などの放射性不純物の除去を試みた。遮蔽体を組み上げた後は長期間のバックグラウンドデータ取得や実際にサンプルを

測定し放射性不純物量の評価を行った。

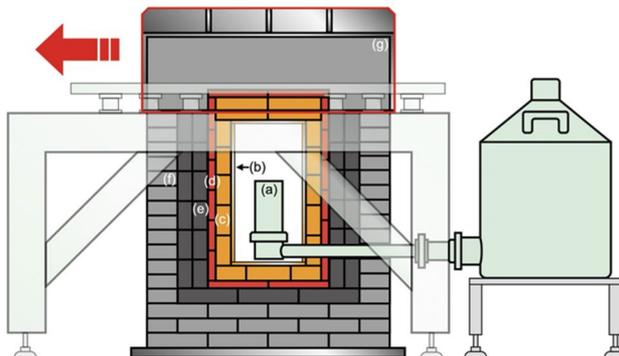
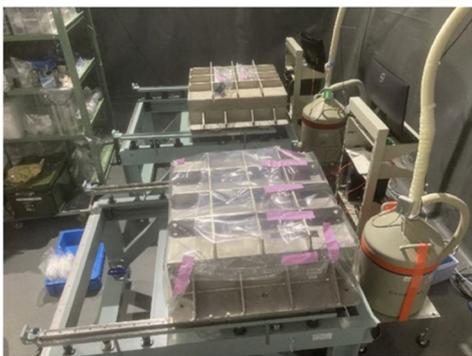


図 2 本研究で用いた HPGe 検出器(左図下側, Hosokawa et al., PTEP 013H01 (2023) 図 5)およびその遮蔽体の概略図(右図, Ichimura et al., PTEP 123H01 (2023) 図 1)。右図中(b)で示した高純度銅と(d)で示した極低放射能鉛の表面洗浄による放射性不純物の低減を行った。

4. 研究成果

(1) ICP-MS を用いた有機物中のウラン 238・トリウム 232 量の高感度測定

本研究で測定の対象とした有機物試料はまず東北大学ニュートリノ科学研究センターの ISO 14644-1 規格クラス 5 のクリーンルーム内において洗浄などの前処理を行い、筑波大学の同クラス 8 のクリーンルーム、およびクラス 3 のクリーンベンチを用いて灰化プロセスを行った。これらの前処理や測定に用いる石英ピーカー類の洗浄には高純度硝酸水溶液および超純水を用いた。約 8 時間の灰化プロセスによって 2 g 程度の有機物試料は灰化することが出来た。また試料の重量を変えた測定から、5g 程度の試料では約 1 日の灰化プロセスで灰化出来る事が分かった。

灰化した後の残渣はクラス 3 のクリーンベンチ内にて高純度硝酸水溶液を用い ICP-MS で測定するための溶液を作成した。ICP-MS は筑波大学放射線・アイソトープ地球システム研究センターのものを、ウラン 238・トリウム 232 量の高感度測定用に調整して用いた。

ウラン 238・トリウム 232 量の評価は測定試料の量と含まれるウラン 238・トリウム 232 量の線形性関係を用いて行った。図 3 にシンチレーションフィルムでの測定結果を示す。この傾きがシンチレーションフィルム 1 g あたりのウラン 238・トリウム 232 量に相当する。結果本研究で測定したシンチレーションフィルム中のウラン 238 量は 5.4 ± 0.7 pg、トリウム 232 量は 6.2 ± 0.5 であり、KamLAND2-Zen 実験で要求されるレベルと同じ pg のオーダーであることが分かった。

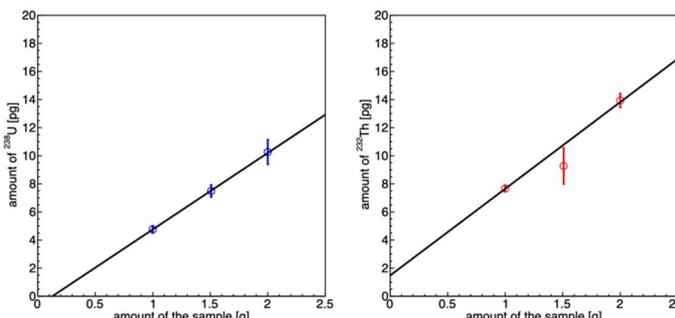


図 3 灰化した有機物試料量と ICP-MS 測定で得られたウラン 238、トリウム 232 量 (Ichimura et al., PTEP 誌掲載決定論文 ptae071 図 4)

またこの手法で有機物中のウラン 238・トリウム 232 が測定試料に回収されているかを確認するための添加回収実験も行った。既知の濃度の標準溶液をシンチレーションフィルムに添加した後灰化・溶液化・ICP-MS による測定を行った。図 4 にシンチレーションフィルムでの添加回収実験結果を示す。結果ほぼ 100%のウラン 238・トリウム 232 量を回収出来ていることが分かり、この一連の手順による散逸が無いことが示された。

実験環境や実験器具に起因する汚染による検出下限の評価も行った。一連の手順を測定試料を添加せずに行い(ブランクサンプル)、作成した溶液を ICP-MS を用いて測定した。結果、検出下限は溶液 1 mL あたりウラン 238・トリウム 232 とも 1 pg 程度であり、本研究のシンチレーションフィルムでの測定の要求(1g の試料に対して 10 pg 未満)の評価に問題無いことが分かった。ICP-MS 自体の検出下限は超純水を用いた測定から、溶液 1 mL あたりウラン 238・トリウム 232 とも 0.01 pg 以下であることも分かった。今後よりクリーンな環境の整備や実験器具の高純度化をすることで一連の手順に含まれる汚染を低減することができればより高感度な測定が出来る見通しがたった。

一方粉末状の波長変換材については添加回収実験で約 60%と比較的小さめの回収率となっており、また回収率で補正後のウラン 238 量は 167 ± 5 pg、トリウム 232 量は 192 ± 7 pg であった。

このため波長変換材は純化プロセスが必要であり、有機相に波長変換材を溶かした液と超純水などの水相を用いた液-液抽出法を中心に純化の方法の検討と、純化した波長変換材の放射性不純物量の評価手法の検討を進めている。

(2)HPGe 検出器を用いたラジウム 226 量の高感度測定

本研究では神岡地下に設置された極低放射能 HPGe 検出器の環境放射線の遮蔽体の洗浄などによるバックグラウンド事象の低減を行い、高感度ラジウム 226 量の測定方法の確立を行った。

HPGe 検出器に近い高純度銅、および極低放射能鉛は高純度硝酸、および超純水により洗浄を行った後窒素雰囲気下で乾燥させた。その後遮蔽体の組み上げ、遮蔽体開閉機構の設置、データ取

得系の整備を行った。図 5 にバックグラウンド (BG) スペクトルの経時変化を示す。コバルト 58 などの遮蔽体や HPGe 検出器が地表にあった時の宇宙線による原子核破砕に起因するピークが低減していることが分かる。表 1 に世界の他実験でスクリーニングに用いられている HPGe 検出器の BG カウントレートとの比較を示す。このように世界トップレベルの低 BG カウントレートの HPGe 検出器を構築した。この検出器を用い、440 g のシンチレーションフィルムの原材料や 20 g の波長変換材のラジウム 226 量測定を行った。結果ラジウム 226 を含め放射性不純物による有意なピークは検出されず、シンチレーションフィルム原材料中のラジウム 226 量の 90% 上限値として 2.60 mBq/kg、波長変換材中のラジウム 226 量の 90% 上限値として 17.2 mBq/kg という上限値が得られた。

以上のように次世代 0 探索のための極低放射能検出器の要求するレベルでの放射性不純物量測定手法の開発と、その手法を用いた様々な部材の測定に着手することが出来た。引き続き様々な検出器部材のスクリーニングを行うことで 0 探索感度の向上を目指す。

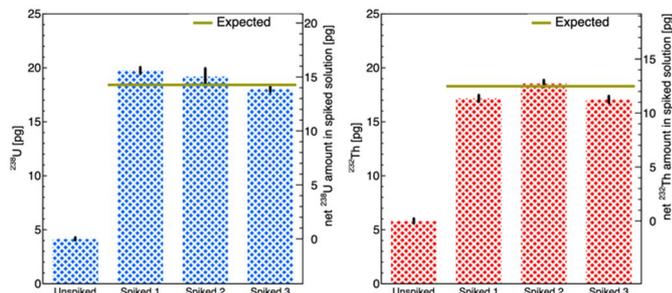


図 4 2g の有機物試料量に既知の量のウラン 238、トリウム 232 を添加したものから得られたウラン 238、トリウム 232 量。(Ichimura et al., PTEP 誌掲載決定論文 ptae071 図 3)

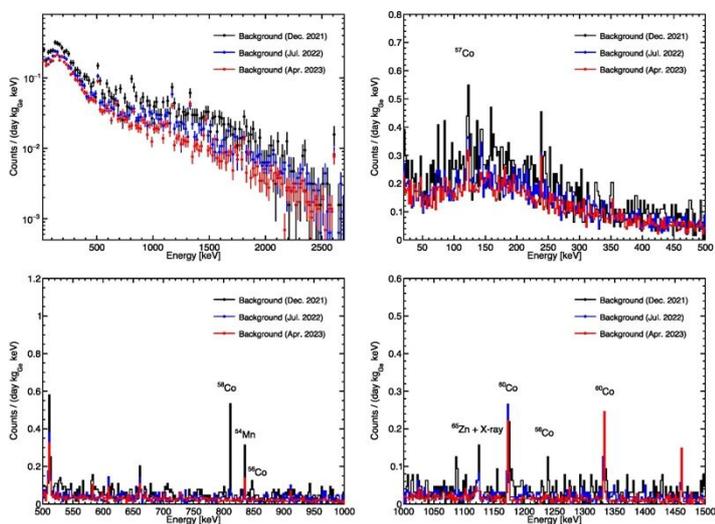


図 5 BG スペクトルの経時変化 (Ichimura et al., PTEP 123H01 (2023) 図 5)

表 1 世界の他実験でスクリーニングに用いられている HPGe 検出器の BG カウントレートとの比較 (Ichimura et al., PTEP 123H01 (2023) 表 2)

Site	Detector	Crystal mass [kg]	Relative efficiency [%]	FWHM at 1333 keV [keV]	BG rate 60 - 2700 keV [kg ⁻¹ Ge d ⁻¹]
Kamioka	Ge02 (This work)	1.68	80	1.82	81.3±0.7
	Ge01 [2]	1.68	80	2.39	104.5
LNGS	Gator [16]	2.2	100.5	1.98	89.0±0.7
	GeMPI [16]	2.2	98.7	2.20	24±1
BUGS	Belmont [2]	3.2	160	1.92	90.0
	Merrybent [2]	2.0	100	1.87	145.0
LSC	GeOroel [2]	2.31	109	2.22	128.7
	Asterix [2]	2.13	95.1	1.92	171.3
	GeAnayet [2]	2.26	109	1.99	461.2
BHUC	Maeve [17]	2.0	85	3.19	956.1
LVdA	GeMSE [16,18]	2.0	107.7	1.96	88±1

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Ichimura K, Ikeda H, Kishimoto Y, Kurasawa M, Suzuki A A, Gando Y, Ikeda M, Hosokawa K, Sekiya H, Ito H, Minamino A, Suzuki S	4. 巻 2023
2. 論文標題 Development of a low-background HPGe detector at Kamioka Observatory	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Progress of Theoretical and Experimental Physics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/ptep/ptad136	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ichimura K, Chiba K, Gando Y, Ikeda H, Kishimoto Y, Kurasawa M, Nemoto K, Sakaguchi A, Takaku Y, Sakakieda Y	4. 巻 -
2. 論文標題 Development of a method to measure trace levels of uranium and thorium in scintillation films	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Progress of Theoretical and Experimental Physics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/ptep/ptae071	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ichimura Koichi for the KamLAND-Zen Collaboration	4. 巻 -
2. 論文標題 Recent results from KamLAND-Zen	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceeding of science	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.22323/1.421.0067	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 4件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 千葉健太郎	
2. 発表標題 KamLAND2-Zen実験のためのPENフィルムの性能評価	
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会	
4. 発表年 2023年	

1. 発表者名 Chiba Kentaro
2. 発表標題 Development of a method to measure trace level of uranium and thorium in scintillation films
3. 学会等名 UGAP2024 workshop (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 市村晃一
2. 発表標題 極低放射能ゲルマニウム検出器の構築と運用
3. 学会等名 「第9回極低放射能技術」研究会 (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 高久雄一
2. 発表標題 ICP-MSの高感度化と低バックグラウンド実験施設の構築
3. 学会等名 「第9回極低放射能技術」研究会 (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 倉澤真帆
2. 発表標題 次世代宇宙素粒子実験のための、四重極質量分析器による有機物中極微量放射性元素の高感度測定の開発・研究
3. 学会等名 プラズマ分光分析研究会2022筑波セミナー
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 倉澤真帆
2. 発表標題 次世代宇宙素粒子物理学実験、KamLAND2-Zen実験のための、有機物中の極微量放射性元素の高感度測定の開発・研究
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 倉澤真帆
2. 発表標題 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
3. 学会等名 第3回新学術「地下宇宙」若手研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 市村晃一
2. 発表標題 D01班: 神岡Geスクリーニング
3. 学会等名 「第8回極低放射能技術」研究会(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 市村晃一
2. 発表標題 Recent results from KamLAND-Zen
3. 学会等名 NOW (Neutrino Oscillation Workshop) 2022(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Maho Kurasawa
2. 発表標題 Research and development of high-sensitive measurement of trace amount of radioactive elements in organic materials for KamLAND2-Zen
3. 学会等名 UGAP2022 workshop (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Aya Sakaguchi
2. 発表標題 Development a method to measure radioactivity in organic materials at the trace level for the next generation experiment
3. 学会等名 環境放射能研究所第9回成果報告会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 倉澤真帆
2. 発表標題 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
3. 学会等名 第2回新学術領域「地下から解き明かす宇宙の歴史と物質の進化」若手研究会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	坂口 綾 (Sakaguchi Aya) (00526254)	筑波大学・数理物質系・教授 (12102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------