

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654060

研究課題名(和文) レーザー共鳴イオン化を用いたキセノンからのラドン除去

研究課題名(英文) Rn removal system for Xe-based detectors using resonant ionization

研究代表者

関谷 洋之 (SEKIYA, Hiroyuki)

東京大学・宇宙線研究所・助教

研究者番号：90402768

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円、(間接経費) 870,000円

研究成果の概要(和文)：キセノン(Xe)は、暗黒物質探索、二重ベータ崩壊探索等の稀事象探索に広く用いられる重要な元素であり、バックグラウンドとなる不純物を如何に抑えられるかがキーポイントになる。キセノン中に含まれる放射性希ガス不純物の中で、アルゴン(^{39}Ar)及びクリプトン(^{85}Kr)は蒸留により容易に除去できる。しかし、ラドン(^{222}Rn)は検出器の構成物質からキセノン中へ定常的に放出されるため、長時間にわたり連続的にラドンを除去する手法を開発する必要があった。そこで、本研究ではレーザーを用いた共鳴イオン化技術に着目し、ラドンのみを選択的にイオン化して除去する斬新な手法を導入し、原理検証に成功した。

研究成果の概要(英文)：Radon is one of the major background sources in low energy experiments. Accordingly it is essential to suppress radon events in future large-scale xenon detectors aiming for dark matter and neutrino-less double beta decay. Although the removal of argon and krypton from xenon is well established using distillation, because radon is continuously emanated from all the materials, the technique cannot be used. We propose a new radon removal method for xenon using a resonance-enhanced multiphoton ionization process. A tunable laser is used to promote radon atoms to an electronically excited state via resonant single- or multiple-photon absorption and these excited radon atoms are then ionized by the introduction of another photon. With this method radon impurities can be selectively ionized and removed with an applied electric field. In this study, we have successfully demonstrated this principle.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：宇宙物理 共鳴レーザーイオン化 ラドン

1. 研究開始当初の背景

近年、キセノンを利用した暗黒物質探索実験 (XMASS, XENON, LUX, ZEPLIN 等)、二重ベータ崩壊探索実験 (EXO, NEXT, KamLAND-ZEN 等)が世界各地で行われている。シンチレーターとして発光量が多い、原子番号が大きいこと等、キセノンの性質が稀事象探索に適しているからであるが、どの実験においてもキセノンに含まれる ^{39}Ar , ^{85}Kr , ^{222}Rn といった放射性希ガス不純物の除去が問題となっている。研究代表者はキセノンとこれらの沸点の違いを利用した蒸留装置を開発し、キセノンの超純化手法を確立した [Astropart. Phys. 31, 290-296 (2009)]。しかし、 ^{222}Rn だけは、ウラン系列の放射性不純物が含まれる検出器構成物質から定常的に放出されるため、検出器にキセノンを導入する前に純化するだけでなく、導入後もキセノンを循環させながら連続的に取り除く必要がある。蒸留法ではスピードが遅く大量のキセノンの処理が難しいことから、空気中からのラドン除去に実績のある活性炭、金属ウール等を用いた吸着による除去を試験してきた。これまでにキセノンガスからのラドン除去には一定の効果が確認できたが、ラドンはキセノンと原子の大きさが近く、活性炭等にキセノン自体も吸着してしまい連続使用は難しいことが判明した。水からのラドン除去に実績のある脱気等、他の既存の技術もここでは適用できない。そこで、本研究において ^{222}Rn のレーザー共鳴イオン化を利用した全く新しい除去手法を提案するに至った。

2. 研究の目的

本研究においては、進行中の暗黒物質探索 XMASS 実験のキセノンガスの循環ラインに導入することを想定したレーザー共鳴イオン化による ^{222}Rn の選択的除去システムの開発を目的とした。XMASS 検出器内部に存在する最大 15 mBq のラドン源を 1 桁以上落とし、陽子と暗黒物質の断面積 10^{-45} cm^2 の領域が探索可能となる検出感度を目指すのが最終目標である。

大量の液体や気体を検出器とする低バックグラウンド実験において、ラドンの除去は直接、検出感度の向上、新たな物理の発見へ直結する。ラドンはすべての物質からガスとして放出され、内部に入り込んでしまう最も手ごわいものであり、最後まで残るバックグラウンド源だからである。例えば、スーパーカミオカンデ実験では、真空脱気や膜脱気等により水からのラドンを極力除去してエネルギー閾値を大幅に下げること成功し、低エネルギー 8B 太陽ニュートリノの検出が可能となったことで太陽ニュートリノ問題の解決に大きな寄与をした。現在、キセノンを用いた実験においても、ラドンを取り除く

技術の確立が最も望まれていることであり、暗黒物質探索の感度向上に直接寄与することを目指す。

3. 研究の方法

開発すべきラドン除去装置の概念を図 1 に示す。

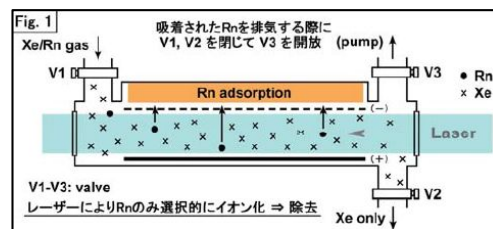


図1 レーザーを用いたラドンの選択的除去の概念図

キセノンガス循環ラインに狭線幅のレーザーを照射し、不純物のラドンのみを選択的にイオン化する。キセノンとラドン原子の電子エネルギー準位が大きく異なるため、図 2 のようにラドンの励起エネルギー差に相当した波長のレーザーによりラドン原子のみ選択的に共鳴イオン化させることができる。

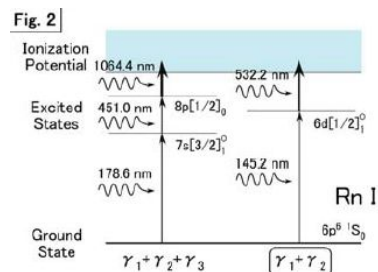


図2 1光子共鳴励起によるラドン共鳴イオン化スキーム

次に、生成したラドンイオン(Rn+)を電場でドリフトし、イオンポンプ等の要領で吸着して除去する。

本手法では、波長 200nm 以下の真空紫外光が必要となるため、高効率で共鳴イオン化を行うには高出力かつ狭線幅のVUV光を安定的に生成するレーザーの開発が非常に重要なポイントとなる。

4. 研究成果

(1) 光源の開発

178.6nm 光源

^{222}Rn の共鳴イオン化自体前例がなかったため、まずは使用実績のある光パラメトリック発振(OPO)レーザーシステムを利用して、 ^{222}Rn の1光子励起に必要な波長である 178.6nm の真空紫外レーザー光(図2の左側のスキーム)の開発を行った。既存の OPO レーザーシステムでは波長 200 nm 以下のレーザー光を生成できないため、図3のように 1.5atm のクリプトンガスセルを非線形媒質

として用いて波長変換を行い、共鳴4波混合による178.6nmの生成を行った(図4)

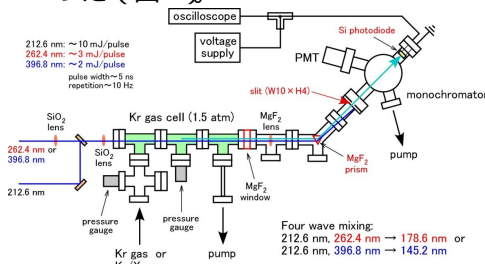


図3 Kr ガスを用いた VUV 光発生セットアップ

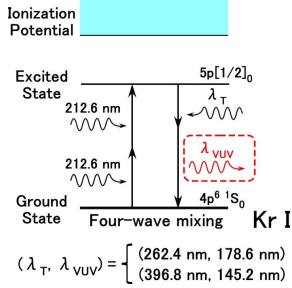


図4 共鳴4波混合によるVUV光発生の概念

212.6nmのレーザーによりクリプトンを2光子共鳴励起させ、それと262.4nmの差周波混合により178.6nmの光を得る仕組みである。図3のようにプリズムとSiフォトダイオードを使い4μJ/pulseの強度で178.6nmの光源が実現できたことを確認した。

145.2nm光源

しかし、図2にあるように、178.6nmによる励起先はs軌道であり、p,d軌道と比較してイオン化断面積が二桁以上小さく、共鳴励起を一段追加するための光学系が複雑となる。そこで、d軌道に共鳴励起させる波長145.2nm(図2の右側)の開発を行った。178.6nmの場合と同様に、クリプトンのガスセルと396.8nmのレーザーを使用することで145.2nmの光を得られたが、非常に弱くガスセルの圧力を0.3atmまで下げることによってはじめて確認できた。これは、クリプトン屈折率の波長依存性によるphase mismatchのため、ガスセル内で生成した短い波長である145.2nmの光が減衰してしまうためだと考えられた。そこで145.2nmの光に対してより屈折率の小さいキセノンを混ぜることで位相整合を行い、出力の向上を図った。最終的にマスフローコントローラーを用いてキセノン/クリプトン比を0.073に調整し、7μJ/pulseの強度で145.2nmの光源を作り出すことに成功した。

(2) ラドンソースの準備

レーザー装置のある日本原子力開発機構にラドンソースを持ち込めないことが判明したので、夏場のラドン濃度の高い神岡坑内の空気を冷却活性炭に濃縮し、そこからラドンを脱離させる装置の開発を行った。

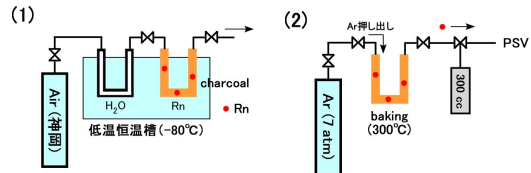


図5 ラドン源の製作方法

図5のように、-80の恒温槽にU字管を二つ用意し、一つ目の空のU字管で水分を除去した神岡坑内の空気を、二つ目の活性炭の入ったU字管に通すことで、Rnを吸着回収する。その活性炭入りU字管を300でベーキングしつつ、アルゴンやキセノンガスで押し出してRn放出させるシステムを構築した。(1)の光源は冬に完成したので、その時期神岡坑内のラドン濃度が低くなってしまい、光源と組み合わせた実験は実行できていない。

(3) 共鳴イオン化およびイオンのドリフト

以上のように、基本的なシステムの構築は完了できたが、ラドンが使えないため、キセノン中のラドンの代わりに、同じく希ガスの組み合わせで、不純物としてクリプトンを含むアルゴンでの実験に切り替えた。

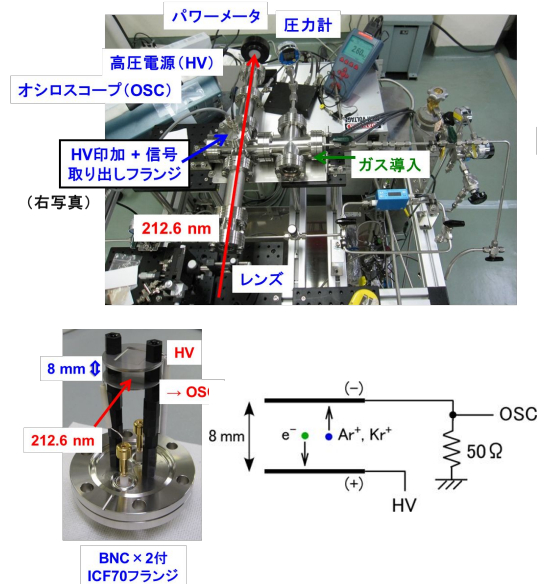


図6 クリプトンの共鳴イオン化とイオンドリフト回収のための装置

図6のように1kV/cm程度の電場を加えた電極プレート間に、~10ppmのクリプトンを含むアルゴンを大気圧で封入した状態で212.6nm(5ns pulse)を集光し、クリ

プトンを(2 +)共鳴イオン化させた。すると図7のようにオシロスコープで電極に陽イオンによるシグナルを確認できた。これはレーザーによって共鳴イオンされたクリプトンの収集に成功したことを示している。

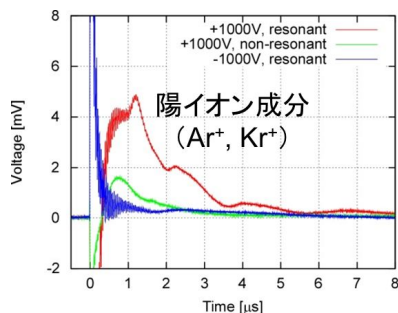


図7 オシロスコープによる陽イオンシグナル

(4) 光源の安定化

また、1光子励起によるラドン共鳴イオン化用に開発した145.2nm高出力VUV光の安定性を向上するため、図4に示した共鳴4波混合の入力光である212.6nm光の波長・出力安定化に取り組んだ。具体的には、図8(a)のような共振器ありの系から(b)のような共振器なしで光パラメトリック発生(OPG)させる光学系に改良した。1072.8nmの半導体レーザーを励起光の354.8nm Nd:YAGレーザーとオーバーラップさせてBBO結晶4つに入射し、波長・出力が安定した530.2nmの光を生成した。この光を増幅後、励起光との和周波発生により212.6nmの光を生成した。従来の共振器構造と比較して、同程度の出力約10mJ/pulseが得られ、波長・出力安定性の向上に成功した。

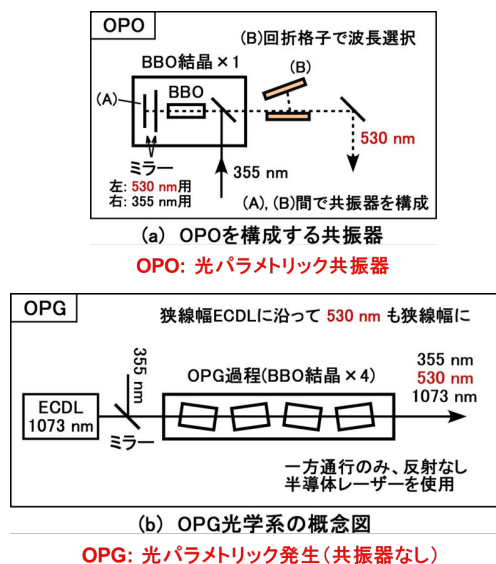


図8 改善した530nm入力光生成

(5) まとめ

以上、本研究によって、共鳴イオン化によって原理的に希ガス不純物を取り除けるこ

とを示し、安定に長時間ラドンの共鳴イオン化を実現できる環境を整えた。

5. 主な発表論文等

[学会発表](計6件)

岩田圭弘「レーザー共鳴イオン化を用いたキセノン中ラドン除去の検討」日本物理学会2012年秋季大会 2012年9月14日 京都産業大学(京都市)

岩田圭弘「キセノン中のラドン除去に向けた真空紫外レーザーの開発」日本物理学会第68回年次大会 2013年03月27日 広島大学東広島キャンパス(広島市)

岩田圭弘「キセノン中のラドン除去に向けたラドン共鳴イオン化の観測」日本物理学会2013年秋季大会 2013年09月20日 高知大学朝倉キャンパス(高知市)

岩田圭弘「レーザー共鳴イオン化を用いた希ガス不純物の安定的な除去に関する研究」平成25年度東京大学宇宙線研究所共同利用成果発表会 2013年12月20日 東京大学柏キャンパス(柏市)

岩田圭弘「レーザー共鳴イオン化を用いたラドン除去手法の開発状況」日本物理学会第69回年次大会 2014年03月30日 東海大学湘南キャンパス(平塚市)

Hiroiyuki Sekiya, "Development of a Rn removal system for future Xe-based neutrino detectors using resonant ionization" XXVI Conference on Neutrino Physics and Astrophysics (Neutrino 2014) June 4, 2014 Boston University's Charles River Campus (MA, USA)

[その他]

ホームページ

<http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/~sekiya/RIRnRemoval>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

関谷 洋之 (SEKIYA, Hiroiyuki)
東京大学・宇宙線研究所・助教
研究者番号：90402768

(2) 研究分担者

岩田 圭弘 (IWATA, Yoshihiro)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・大洗研究開発センター・研究員
研究者番号：20568191