

機関番号：14401

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2010

課題番号：20310029

研究課題名（和文） 極低バックグラウンド核分光法による ppt レベルでの U, Th 検出

研究課題名（英文） Detection method for U and Th isotopes at ppt order
with ultra low-background nuclear β - γ spectroscopy

研究代表者

嶋 達志 (SHIMA TATSUSHI)

大阪大学・核物理研究センター・助教

研究者番号：10222035

研究成果の概要（和文）：材料や環境中の微量な U、Th 系列を検出する新しい手法として、極低バックグラウンド・核分光法に基づく大面積・積層型検出器を開発し、大阪大学核物理研究センター・大塔地下観測所において長期間測定試験を行なった。その結果、 ^{238}U 系列、 ^{232}Th 系列に対して検出感度 $10 \cdot \text{Bq/kg}$ を達成した。これによって、試料中の U、Th 濃度に対してそれぞれ 0.8ppt 、 2.2ppt という高い感度が実現した。

研究成果の概要（英文）：A new method for high-sensitivity detection of radioisotopes in U and Th chains was developed. It is based on an ultra low-background beta-gamma spectroscopy, and the detector is made of stacked inorganic scintillator plates with areas as wide as $180\text{mm} \times 180\text{mm}$. A long-time run was performed in the Oto underground laboratory to investigate the performances of the detector, and the sensitivities of 0.8ppt and 2.2ppt were achieved for the contaminations of U and Th, respectively.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	9,000,000	2,700,000	11,700,000
2009年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	13,300,000	3,990,000	17,290,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学 放射線・化学物質影響科学

キーワード：放射線計測、核分光法、ウラン系列、トリウム系列、シンチレーション検出器

1. 研究開始当初の背景

(1) U、Th 等の放射性アクチノイドの環境中・物質中における濃度、動態を調べることは、原子力燃料の安全管理、放射性ラドンの人体への影響、劣化ウランの残留量測定、半導体素子における内部放射性崩壊による誤動作の低減等、放射線安全管理、環境科学、保健、産業などの様々な分野において重要である。

(2) 一方、基礎科学研究においても、たとえ

ばニュートリノ質量に敏感な二重ベータ崩壊や宇宙暗黒物質粒子の探索実験において、放射性不純物の混入量が $\sim 10 \cdot \text{Bq/kg}$ ($\sim 1\text{ppt}$) 以下であるような検出器材料の開発が急務となっている。

(3) 長寿命核種の高感度測定は、考古学試料、宇宙・地球化学試料の年代測定においても重要である。中でも天然に存在する U、Th は、超新星爆発における速い中性子捕獲過程に

よって合成されるが、その存在比が爆発時の環境物理変数に強く依存しないことが最近の理論計算によってつきとめられ、他の長寿命核種に比べて格段に高精度な“宇宙核時計”として注目されている。

(4) 原子核または放射能の性質を利用した微量元素分析法としては、質量分析法と中性子放射化分析法が代表的である。前者は優れた分析感度（～1ppt）を持つ一方、基本的に破壊検査であり分析によって試料が損なわれてしまうこと、一度に分析可能な試料が極めて微量という弱点がある。また後者は非破壊検査でありバルクな試料を測定できるが、分析感度はたかだか100～1000pptである。

(5) 上記の状況に対して我々は、以前二重ベータ崩壊研究のために開発を行なった複合型放射線測定装置 ELEGANT-5 の経験から、その基礎となっている極低バックグラウンド・・・核分光の技術を応用し、専用の検出器を開発することで、大量の試料に対して ppt オーダーの感度での U、Th のサーベイを実現できるのではないかと考えた。

2. 研究の目的

極低バックグラウンド核分光法にもとづく高感度 U、Th サーベイシステムとして、複数の放射線検出器を組み合わせた複合型検出器を開発する (Fig. 1)。

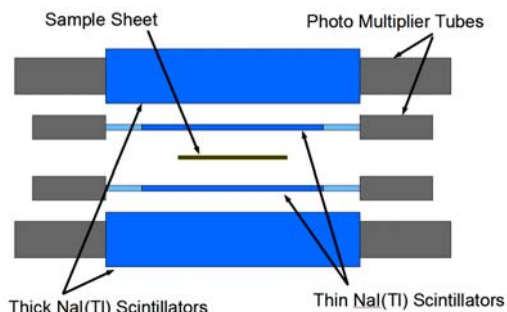


Fig. 1. 高感度・・・核分光器 (側面図)

この検出器は、検査試料から放出される・線、・線を検出することによって、放射性崩壊が起こった場所、時刻、崩壊パターンを1イベントごとに識別する機能を持つ。この装置を用いて地上および地下実験室において数ヶ月以上の連続測定を行い、性能評価を行なう。U、Th の検出感度1～2ppt を目標とする。

3. 研究の方法

(1) 高感度・・・核分光器の開発

測定試料からの・線を検出するための薄型シンチレーション検出器と、それを挟んで

・線を検出するための大型シンチレーション検出器で構成される高感度・・・核分光器を開発する。

一度に大量の試料を測定できるように、15cm×15cm 程度の広い面積を持つものとする。また、各シンチレーション結晶の発光は結晶を囲む四辺に設置した光電子増倍管によって読み出し、電気信号に変換した後、データ収集回路系にて処理・収集する。

(2) 各検出器の単体での性能試験

各シンチレーション検出器の、単体での性能試験を行なう。具体的には、標準ガンマ線源を用いたエネルギー分解能を確認する。また薄型シンチレーション検出器については、特に場所によるエネルギー分解能の不均一性、および各光電子増倍管で検出される光量の分布を用いた放射線入射位置の決定精度も確認する。

(3) 大塔地下観測室での連続測定による性能評価

検出器 (核分光器) 全体を大阪大学核物理研究センター・大塔地下観測所 (奈良県五條市) に設置し、長期間連続測定を実施する。大塔地下観測所は地下約 470m にあり、宇宙線および中性子によるバックグラウンドが地上に比べてそれぞれ 1/4000、1/200 に低減されている。このような低バックグラウンド環境で長時間測定を行なうことにより、検出器自身が持つバックグラウンドを定量し、測定感度を確認する。

4. 研究成果

(1) 18cm×18cm×厚さ 5mm の大面積・薄型の NaI(Tl) シンチレータ結晶を製作し (Fig. 2)、側面 4 辺に従来よりも 1.5 倍高い量子効率を持つ新しい光電子増倍管を配置することにより、¹³⁷Cs 標準線源からの 662keV ガンマ線に対して半値幅 8.9% のエネルギー分解能 (Fig. 3)、および検出可能なエネルギーの下限として約 2keV という、通常の間筒形または直方体形状の検出器に匹敵する良好な性能が達成された。また、・・・崩壊の起こった場所に対する位置分解能として 5mm (半値幅) が得られた (Fig. 4)。

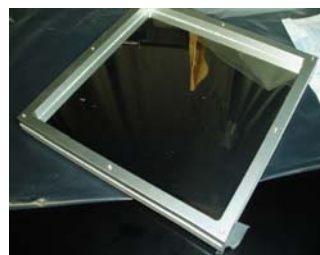


Fig. 2. 薄型 NaI(Tl) シンチレータ (厚さ 5mm)

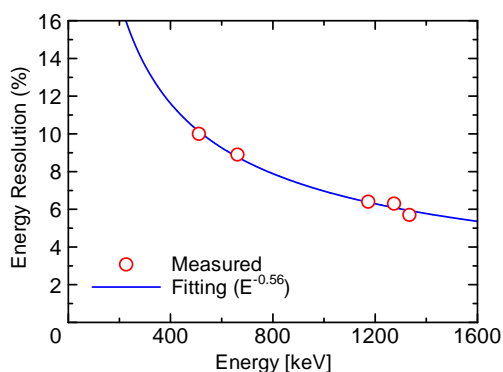


Fig. 3 薄型 NaI(Tl) シンチレーション検出器の辺縁光読み出しによるエネルギー分解能

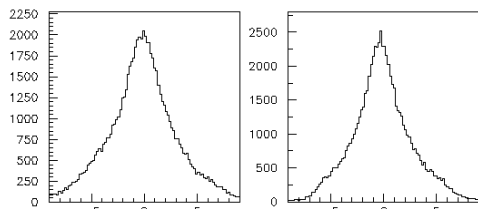


Fig. 4. コリメートされた g 線に対する位置分解能。左：x 方向、右：y 方向。横軸の単位は mm、縦軸はカウント数。

(2) 16cm×16cm×厚さ 40mg/cm²、全質量約 10 グラムまでの試料であれば、上記のエネルギー分解能をほとんど損なわずに一度に測定可能である。

(3) 大阪大学核物理研究センター・大塔地下観測所において 2 ヶ月間の連続測定試験を行なった (Fig. 4)。その結果、²³⁸U 系列、²³²Th 系列に対して検出感度 10mBq/kg を達成した。これによって、試料中の U、Th 濃度に対してそれぞれ 0.8ppt、2.2ppt という高感度が実現した。

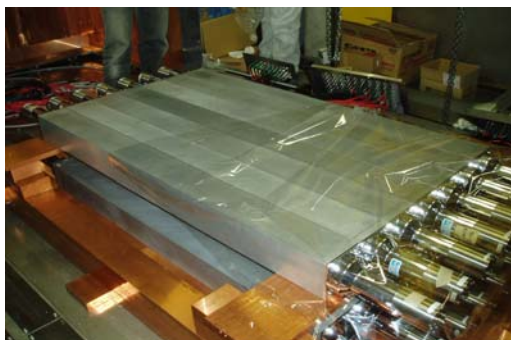


Fig. 4. 大塔地下観測所 (地下 470m) に設置

された高感度・・・核分光器

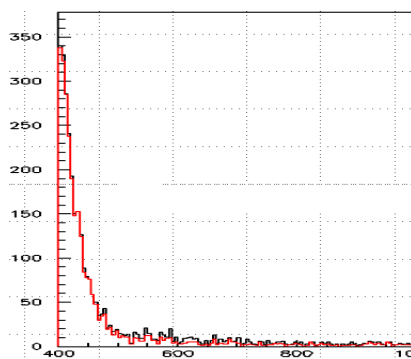


Fig. 5. 大塔地下におけるバックグラウンドスペクトル；横軸のスケールは 1ch=5eV.

(4) 本システムを利用した研究の最初の試みとして、ガンマ線照射試料の放射化分析による光核反応断面積の測定を実施した。兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・ニュースバル放射光施設で提供される高輝度ガンマ線ビームを高純度炭素標的およびモリブデン標的に照射し、照射後の試料からの β -線、 γ -線を本システムによって分析することにより、¹²C、⁹²Mo、⁹⁴Mo、⁹⁶Mo、⁹⁷Mo、¹⁰⁰Mo の光核反応断面積の測定に成功した。これらは、単色エネルギーのガンマ線と放射化法を組み合わせた実験としては世界初の成果である。これらの結果を踏まえ、今後、中性子放射化分析による中性子捕獲断面積測定、隕石試料中の微量放射能分析等への応用を計画している。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

① H. Ejiri, “MOON for symmetry studies of neutrinos by double beta decays and neutrino nuclear responses”, Nuclear Physics A, 査読有, Vol. 844, (2010), 10c-13c

② K. Fushimi, H. Ejiri, K. Harada, R. Hazama, K. Imagawa, Y. Kameda, E. Matsumoto, S. Nakayama and T. Shima, “PICO-LON project to search for cosmic dark matter”, AIP Conference Proceedings, 査読有, Vol. 1269, (2010), 283-288

③ K Fushimi, Y Kameda, K Harada, S Nakayama, H Ejiri, T Shima, K Yasuda,

R Hazama and K Imagawa,
“MOON for Double-Beta Decays and Neutrino Nuclear Responses”, Journal of Physics, 査読有, Vol. 203, (2010), 012064

④ K. Fushimi, Y Kameda, K Harada, S Nakayama, H Ejiri, T Shima, K Yasuda, S Umehara, R Hazama and K Imagawa,
“Dark matter search by means of segmented scintillator (PICO-LON)”, Journal of Physics, 査読有, Vol. 203, (2010), 012046

⑤ T. Shima, Y. Nagai, et al.,
“Experimental Study of Nuclear Astrophysics with Photon Beams”, AIP Conference Proceedings, 査読有, Vol.1235, (2009), 315-321

⑥ J.D. Vergados, H. Ejiri and I. Giomataris,
“Solar Neutrinos as Background in Direct Dark Matter Searches”, AIP Conference Proceedings, 査読有, Vol.1115, (2009), 7-12

[学会発表] (計7件)

① 嶋 達志、宮本修治、天野 壯、堀川 賢、
“(・, p)反応断面積測定のための能動標的の開発”、日本物理学会秋季大会、2010. 9. 14、九州工業大学

② 伏見賢一、原田克也、中山信太郎、折戸玲子、嶋達志、江尻宏泰、裕隆太、今川恭四郎、松本絵里佳、
“積層型シンチレータ PICO-LON による宇宙暗黒物質探索”、日本物理学会秋季大会、2010. 9. 14、九州工業大学

③ T. Shima, “Laser MeV photons and few body physics”, The 4th Yamada Symposium on Advanced Photons and Science Evolution 2010 (APSE2010), 2010. 6. 15, Osaka, Japan

④ T. Shima, “Experimental Study of Nuclear Spin-Isospin Responses For Astrophysics with Photon and Hadron Probes”, JUSTIPEN-EFES Workshop, 招待講演, 2009. 12. 7, 東京大学

⑤ T. Shima, “Experimental Study of Nuclear Astrophysics with Photon Beams”, The 7th Japan-China Joint Nuclear Physics Symposium, 招待講演, 2009. 11. 13, 筑波大学

⑥ T. Shima, “Experimental studies of

photonuclear reactions relevant to astrophysical nucleosynthesis”, 第3回日米合同物理学会, 招待講演, 2009. 10. 15, Hawaii

⑦ 嶋達志、“超新星爆発に關与する光核反応の実験的研究”、日本物理学会秋季大会、2008. 9. 20、招待講演、北海道大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

嶋 達志 (SHIMA TATSUSHI)
大阪大学・核物理研究センター・助教
研究者番号：10222035

(2) 研究分担者

高久 圭二 (TAKAHISA KEIJI)
大阪大学・核物理研究センター・助教
研究者番号：30263338

江尻 宏泰 (EJIRI HIROYASU)
大阪大学・名誉教授
研究者番号：80013374

