

地下環境中性子測定に使用する有機液体シンチレーターの  
純化効果の評価

横浜国立大学 理工学部  
数物電子情報系学科 物理工学 EP  
南野研究室

学籍番号 1964104  
近藤 翔太

2023年3月5日

## 概要

銀河の回転曲線の測定に代表される様々な宇宙観測によって、電磁波で直接見ることができない未知の物質「暗黒物質」が宇宙のエネルギーの約 27% を占めることがわかっている。その正体は未解明であるが、有力な候補の 1 つが WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles) と呼ばれる素粒子であり、これを探索する実験が世界中で進められている。その 1 つである直接探索実験では、WIMPs と通常の物質の散乱を観測することで、WIMPs を発見することを目指している。この散乱事象は非常に稀であるため、バックグラウンドを低減する必要がある。複数の信号を用いた波形弁別によって、電子や  $\gamma$  線由来のバックグラウンドは比較的容易に低減できるが、中性子由来のバックグラウンドは残ってしまう。そのため、暗黒物質直接探索実験が行われる地下実験室における環境中性子スペクトラムを測定することが必要である。

有機液体シンチレーターは、波形弁別によって中性子の信号と電子や  $\gamma$  線の信号を区別できるため、環境中性子スペクトラムの測定に最適である。しかし、 $\alpha$  線の信号は波形弁別により除去できないため、環境中性子スペクトラムの測定に必要な感度を達成するためには、検出器材料中の放射性不純物から発生する  $\alpha$  線を低減する必要がある。本研究で開発中の有機液体シンチレーター中性子検出器では、液体シンチレーターの純化を行うことで放射性不純物を除去し、中性子測定のバックグラウンドを低減する取り組みを行なっている。本論文では、純化した液体シンチレーターを用いた  $\alpha$  線バックグラウンドの測定結果、ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析法) を用いた液体シンチレーター中の放射性不純物量の測定結果、及び、それを用いた液体シンチレーターの純化効果の評価について記述する。

# 目次

<b>1 序論</b>	<b>2</b>
1.1 暗黒物質	2
1.1.1 暗黒物質の発見	2
1.1.2 暗黒物質の候補	4
1.1.3 暗黒物質直接探索実験	5
1.2 環境中性子	5
1.2.1 環境中性子の発生源	5
1.2.2 地下環境中性子測定の実況	8
1.3 中性子の相互作用	10
1.4 $\gamma$ 線の相互作用	11
<b>2 有機液体シンチレーター中性子検出器</b>	<b>13</b>
2.1 検出原理	13
2.2 放射線の波形弁別	15
2.3 セットアップ	16
2.4 中性子測定におけるバックグラウンド	18
2.5 液体シンチレーター中の $\alpha$ 線バックグラウンドの測定方法	18
<b>3 <math>\alpha</math>線バックグラウンドの測定</b>	<b>20</b>
3.1 $\alpha$ 線バックグラウンドの低減	20
3.1.1 液体シンチレーターの純化	20
3.1.2 ビューポートに使用する素材の変更	22
3.1.3 液体シンチレーター容器の内側壁面の研磨方法の変更	23
3.1.4 液体シンチレーター容器の溶接箇所の変更	24
3.1.5 液体シンチレーターの直接バブリング	26
3.2 早稲田大学での測定	27
3.2.1 検出器の洗浄	27
3.2.2 液体シンチレーターの純化	28
3.2.3 検出器のエネルギー較正	29
3.2.4 検出器の発光位置の較正	31
3.2.5 $\alpha$ 線バックグラウンドの測定	32
<b>4 ICP-MS を用いた放射性不純物の測定</b>	<b>35</b>
4.1 測定原理	35
4.2 試料液の準備	37
4.2.1 液体シンチレーターのドライアップ	37
4.2.2 試料の灰化処理	40
4.2.3 残留した無機物の酸溶解	41
4.3 放射性不純物の測定	42
<b>5 結論</b>	<b>46</b>

# 1 序論

この章では、暗黒物質とその直接探索実験で主要なバックグラウンドとなる環境中性子、放射線と物質の相互作用について記述する。

## 1.1 暗黒物質

### 1.1.1 暗黒物質の発見

暗黒物質の存在を示す観測結果はいくつかある。ここでは、以下の3つを紹介する。

#### 銀河団の質量

暗黒物質の存在を初めて示唆したのは、1933年にFritz Zwickyが発表した論文である。彼は2つの異なる手法でかみのけ座銀河団に含まれる銀河の速度分散を求め、その差が大きいことから暗黒物質の存在を示唆した。

1つ目の手法は、ビリアル定理

$$\overline{\varepsilon_k} = -\frac{1}{2}\overline{\varepsilon_p} \quad (1.1.1)$$

を用いたものである。ここで、 $\overline{\varepsilon_k}$ は銀河団の単位質量あたりの運動エネルギー、 $\overline{\varepsilon_p}$ は銀河団の単位質量あたりのポテンシャルエネルギーである。銀河団における物質の分布が一様であると仮定すると、当時の観測で得られていた銀河団の情報（銀河の数：800個、半径：100万光年、銀河の平均質量： $10^9$ 太陽質量）から、銀河団の単位質量あたりのポテンシャルエネルギーが

$$\overline{\varepsilon_p} = -64 \times 10^{12} \text{ cm}^2/\text{s}^2 \quad (1.1.2)$$

と求まる。これを(1.1.1)に代入すると、銀河団の単位質量あたりの運動エネルギーが

$$\overline{\varepsilon_k} = \frac{1}{2}\overline{v^2} \quad (1.1.3)$$

と表せることから、銀河の速度分散が

$$\sqrt{\overline{v^2}} = 80 \text{ km/s} \quad (1.1.4)$$

とわかった。ここで、 $\overline{v^2}$ は銀河の二乗平均速度である。

2つ目の手法は、ドップラー効果を用いたものである。運動する銀河が発する光はドップラー効果を受けるため、観測される光の波長のずれから銀河の速度が求められる。当時の観測で、銀河団内の8つの銀河の速度が求められており、その中で速度差は最小で600 km/s、最大で1900 km/sであった。

以上より、2つの速度分散には大きな差があるとわかる。ビリアル定理から求められる速度分散は銀河団の質量の平方根に比例するため、Zwickyは、光を発する物質よりもずっと沢山の暗黒物質が存在する可能性を示唆した。[1]

## 銀河の回転曲線

暗黒物質の存在をより強固なものとしたのが、銀河の回転曲線の測定である。

銀河を可視光で観測すると、中心が最も明るく、外縁部に行くほど暗くなっていくことがわかる。この結果は、自ら光を放つ物質は銀河の中心部に多く存在し、外縁部に行くほど減少していくことを示唆する。そこで、銀河内の物質のほとんどが銀河の中心に存在するとして、外縁部にある物質の運動を考えると、

$$m \frac{v^2(r)}{r} = G \frac{mM}{r^2} \quad (1.1.5)$$

という運動方程式が得られる。ここで、 $m, v(r), r$  は銀河の外縁部で運動する物質の質量、速度、銀河の中心からの距離、 $G$  は万有引力定数、 $M$  は銀河の質量である。これを  $v$  について解くと、

$$v(r) = \sqrt{\frac{GM}{r}} \quad (1.1.6)$$

が得られる。これより、銀河の外縁部にある物質の回転速度は、銀河の中心から離れるほど小さくなっていくことが予想される。

しかし、実際の観測結果はこの予想と異なり、銀河の中心から離れた位置でも物質の回転速度はほとんど変化しないことを示した。これを図 1 に示す。横軸は銀河の中心からの距離、縦軸は物質の回転速度を表す。電磁波による観測で得られた曲線（実線）と光学的に観測できる物質及びガスの寄与（点線及び破線）を比較すると、光学的に観測することができない物質の寄与があるとわかる。この結果は、暗黒物質が銀河の外縁部に多く存在することを示唆する。[2]

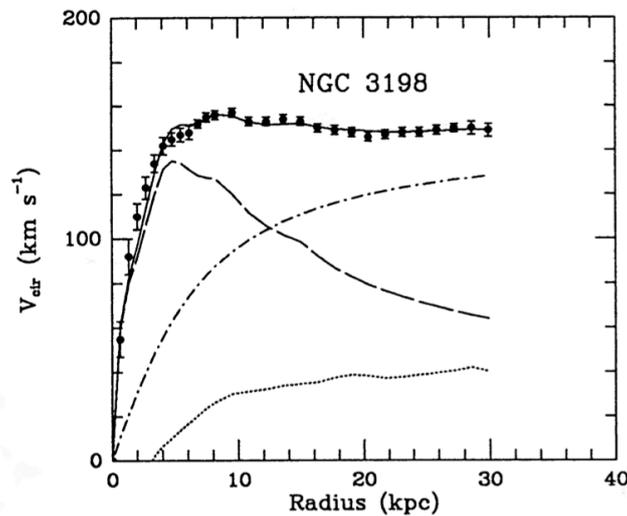


図 1: 銀河の回転曲線 [2]

プロット : 電磁波による観測で得たデータ

実線 : プロットを Fit して得た回転曲線

点線 : 中性水素原子が発する 21 cm 線の観測で得た銀河内に存在するガスの回転曲線

破線 : 銀河内に存在する光学的に観測できる物質の回転曲線

破点線 : 電磁波で観測することができない物質の回転曲線

### 宇宙マイクロ波背景放射の観測

宇宙マイクロ波背景放射（Cosmic Microwave Background, 通称 CMB）とは、宇宙の誕生から約 38 万年後のいわゆる「宇宙の晴れ上がり」の時点で宇宙全体を満たしていた光のことである。CMB は宇宙のあらゆる方向から地球に届いており、その温度（光のエネルギー）は宇宙全体でほとんど一様であるものの、約 10 万分の 1 の温度揺らぎがあることがわかっている。この温度揺らぎの大きさは宇宙のバリオン密度や全物質密度などに依存するため、CMB の観測で得られる温度揺らぎからそれらを求めることができる。Planck 衛星による CMB の観測から、宇宙のエネルギー構成は以下のようになっていることがわかった。（図 2） [3]

通常物質：約 5.0% 暗黒物質：約 27% 暗黒エネルギー：約 68%

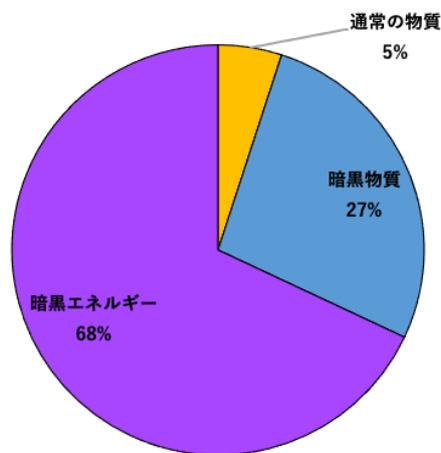


図 2: 宇宙のエネルギー密度 [3]

#### 1.1.2 暗黒物質の候補

暗黒物質の正体は未解明だが、観測結果から以下の性質を満たすことが要求される。

- 電荷を持たない
- 安定である
- 宇宙初期に生成され、残存量が現在の宇宙の組成と合う
- 宇宙の構造形成の頃に非相対論的な運動をする

これらを満たす有力な暗黒物質の候補は、WIMPs（Weakly Interacting Massive Particles）と呼ばれる素粒子と Axion と呼ばれる素粒子である。[4] この節では、本研究に関連する WIMPs に注目する。

### 1.1.3 暗黒物質直接探索実験

WIMPsの探索手法をまとめたものを図3に示す。SMは標準理論の粒子、DMはWIMPsを表す。WIMPsの探索手法には、WIMPsと通常物質の散乱を観測する直接探索、WIMPsの対消滅で生成される標準理論の粒子を観測する間接探索、標準理論の粒子を加速器で衝突させることでWIMPsを生成し観測する加速器実験の3つがある。本研究に関連する直接探索実験では、WIMPsが原子核に衝突して散乱を起こす時に原子核が得る反跳エネルギーを光や熱、電荷に変換して観測を行う。WIMPsと原子核の散乱は非常に稀なイベントであるため、実験環境中の放射線が引き起こすバックグラウンドの放射線が問題となる。 $\beta$ 線や $\gamma$ 線による電子散乱のバックグラウンドは、2つの異なる信号（光と電荷など）を用いた波形弁別により低減することができるが、WIMPsと同じ原子核散乱を起こす中性子は波形弁別で低減することができないため、直接探索実験の最終的なバックグラウンドとなる。そのため、実験環境中の中性子スペクトラムを測定し、直接探索実験のバックグラウンドを理解することが必要である。

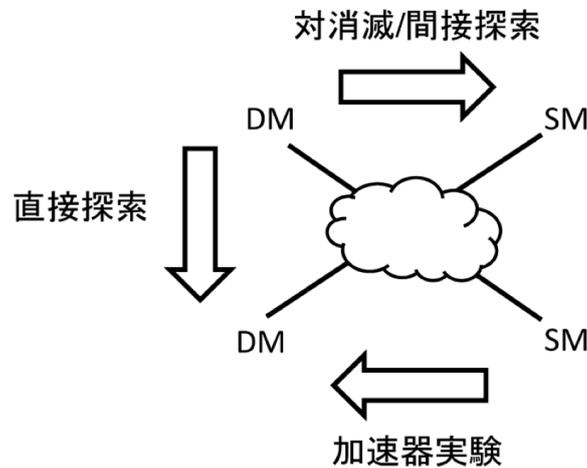


図 3: WIMPsの探索手法 [4] SM: 標準理論の粒子, DM: WIMPs

## 1.2 環境中性子

実験環境中で発生する中性子の内、実験装置以外で生じる中性子を「環境中性子」と呼ぶ。前節で述べたように、環境中性子は暗黒物質直接探索実験における主要なバックグラウンドである。この節では、環境中性子の発生源とそのエネルギースペクトラム測定の現状について記述する。

### 1.2.1 環境中性子の発生源

環境中性子の発生原因は、宇宙線由来のものと岩盤由来のものに大別される。宇宙線由来の原因は以下の5つである。

- 一次宇宙線による原子核破碎
- 二次宇宙線のミューオンによる原子核破碎

- 電磁カスケード中の光子による光核反応
- 核カスケード中のハドロンによる反応
- 原子核捕獲

岩盤由来の原因は以下の2つである。

- 放射性核種の自発核分裂
- 放射性核種の $\alpha$ 崩壊で生じた $\alpha$ 線が起こす $(\alpha, n)$ 反応

特に地下環境で主要な原因は岩盤中の原子核反応である。以下では、地下で実験を行う利点と岩盤中の原子核反応について詳しく記述する。

#### 二次宇宙線のミュオンによる原子核破砕

二次宇宙線のミュオンは、大気中の核カスケードの中で $\pi$ 中間子や $K$ 中間子が崩壊することで発生する。ミュオンは透過力が高いため、地下深くまで到達し、岩盤中の原子核に衝突して原子核破砕を起こす。このとき、二次粒子として中性子が発生する。しかし、図4から分かるように地下環境におけるミュオンフラックスは小さいため、環境中性子バックグラウンドへの寄与は小さい。これより、地下で実験を行うことで、宇宙線由来の環境中性子を低減できるとわかる。

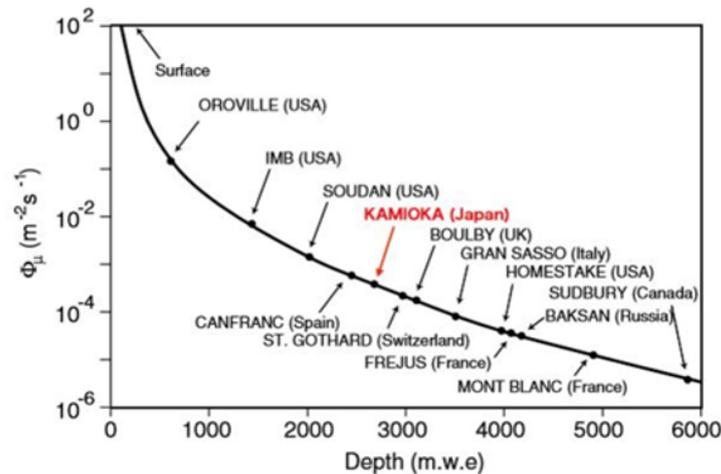


図 4: 世界の地下実験が行われている場所におけるミュオンフラックス [5]

#### 岩盤中の原子核反応

天然に多く存在する放射性核種は図5、図6に示すU系列、Th系列に属している。そのため、環境中性子バックグラウンドへ大きく寄与するのは、岩盤中の $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}$  (U系列)、 $^{232}\text{Th}$  (Th系列) が起こす自発核分裂とU系列、Th系列に属する放射性核種の $\alpha$ 崩壊で生じた $\alpha$ 線が起こす $(\alpha, n)$ 反応である。

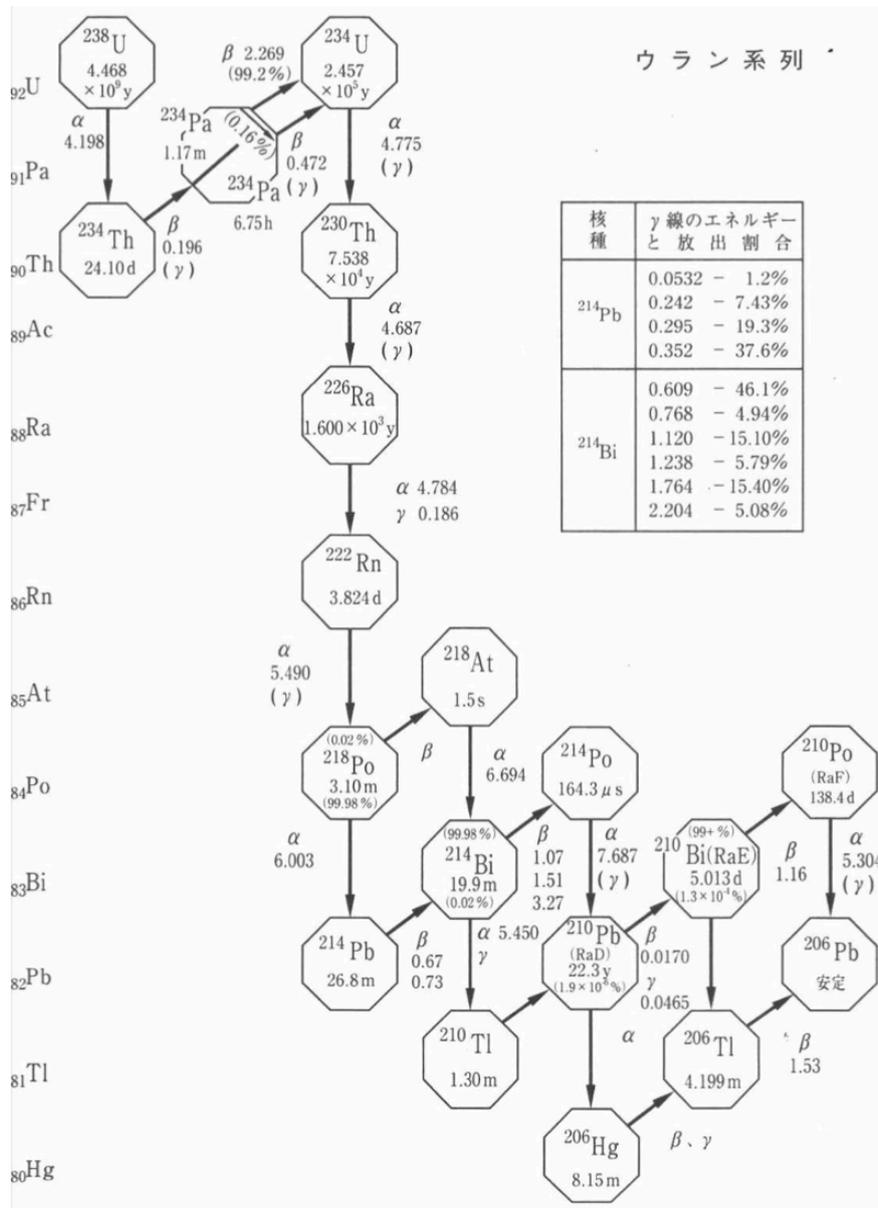


図 5: U 系列の放射性壊変系列 [6]

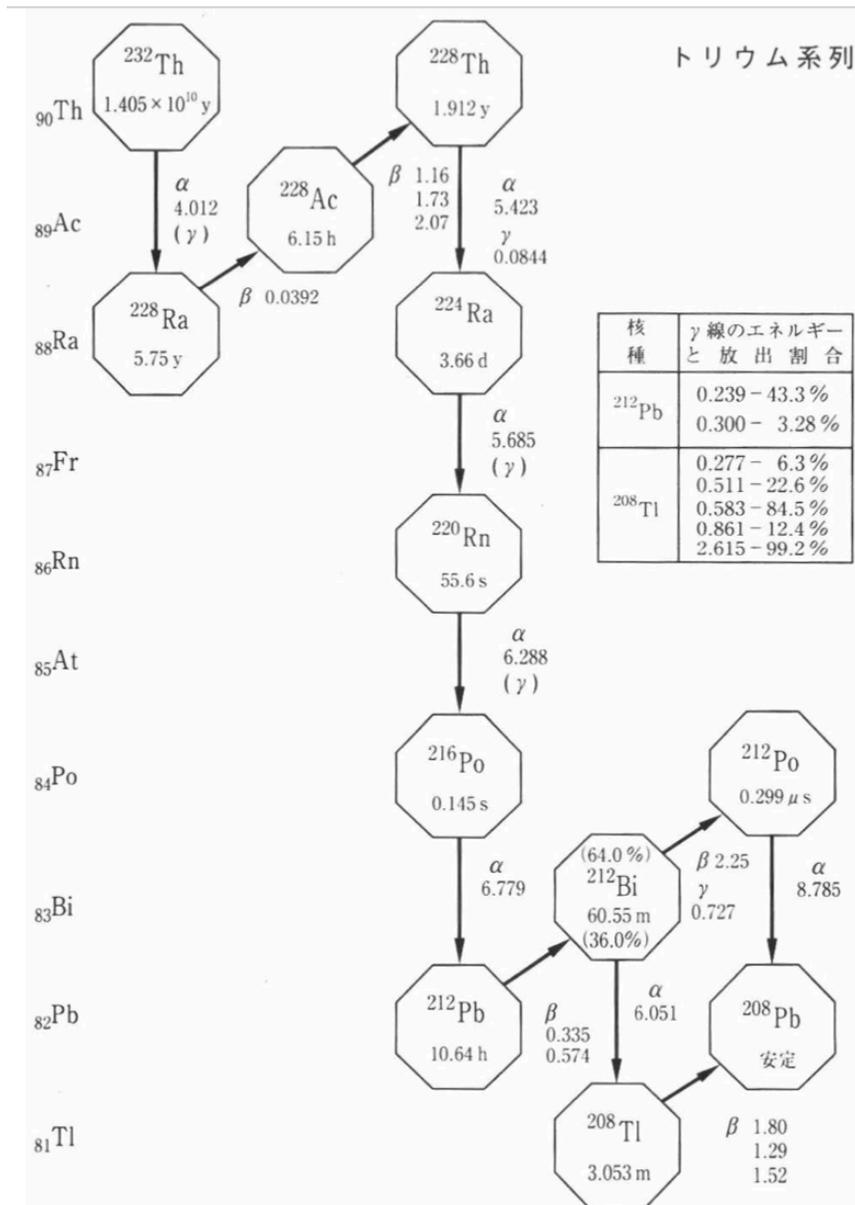


図 6: Th 系列の放射性壊変系列 [6]

### 1.2.2 地下環境中性子測定の実況

これまでに地下環境中性子スペクトラムの直接的な測定は行われていないが、2 台の  $^3\text{He}$  比例計数管とシミュレーションを用いた間接的な測定は行われている。ここでは、横浜国立大学の佐々木遼太氏が行なった研究 [7] を紹介する。

佐々木氏の実験では、 $^3\text{He}$  比例計数管のみを使用したセットアップ A と  $^3\text{He}$  比例計数管にポリエチレン（中性子減速材）、ボロンシート（熱中性子吸収体）を取り付けたセットアップ B で環境中性子を測定し、両者のカウントレート（1 秒当たりの中性子検出数）の比を求めた。

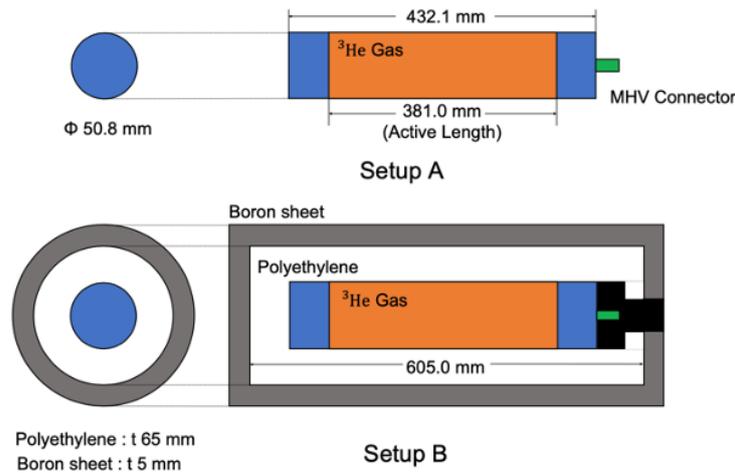


図 7: 佐々木氏が行なった環境中性子測定実験のセットアップ [7]

一方、シミュレーションでは、岩盤の化学組成（表 1）と水素含有量（重量比で岩盤の 0,1,2,3%）を仮定し、Geant4、NeuCBOT を用いて環境中性子スペクトラムを求めた。ただし、このシミュレーションでは、U 系列、Th 系列に属する放射性核種の自発核分裂、 $\alpha$  崩壊に由来する中性子のみを考慮している。表 1 にシミュレーションで仮定した岩盤の化学組成を示す。数値は岩盤成分の重量比を示し、Sample 1 から Sample 3 は神岡地下実験施設 Lab-B の壁面から採取したサンプルの化学組成、JR-1、JA-3 は地球科学標準データベースから引用した神岡に広く分布する岩盤の化学組成である。

表 1: 佐々木氏がシミュレーションで仮定した岩盤の化学組成 (%) [7]

	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>	ZnO	
Sample 1	35.75	11.35	10.95	1.09	0.99	39.37	0.02	0.35	0.10	0.03	
Sample 2	33.74	0.74	23.94	4.63	1.92	34.35	0.32	0.02	0.17	0.17	
Sample 3	25.62	0.25	19.32	3.73	1.16	41.54	0.00	0.02	3.01	5.35	
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	TiO <sub>2</sub>	K <sub>2</sub> O	H <sub>2</sub> O
JR-1	75.45	12.83	0.91	0.10	0.12	0.67	4.02	0.02	0.11	4.41	1.36
JA-3	62.27	15.56	6.38	0.10	3.72	6.24	3.19	0.12	0.70	1.41	0.31

シミュレーションで求めた環境中性子スペクトラムの中から、実験で求めたカウントレートの比を最も良く再現するものを選ぶことで、実験環境における環境中性子スペクトラムを決定した。その結果を図 8 に示す。縦軸は環境中性子フラックス、横軸は環境中性子のエネルギーを表し、図 8 (a) は実験結果を最も良く再現した環境中性子スペクトラム、図 8 (b) は岩盤中の水素含有量を変えた場合の環境中性子スペクトラムの比較である。図 8 (b) より、環境中性子スペクトラムの形は岩盤中の水素含有量によって大きく変わり、特に岩盤中の水素含有量が増加すると、低エネルギー側のフラックスが増加するとわかる。この結果は、岩盤に含まれる水素が中性子の低エネルギー化に関係していることを示唆した。現在、同様のセットアップを用いて、2つのセットアップのカウントレートの比と降雨量の関係などが調べられている。

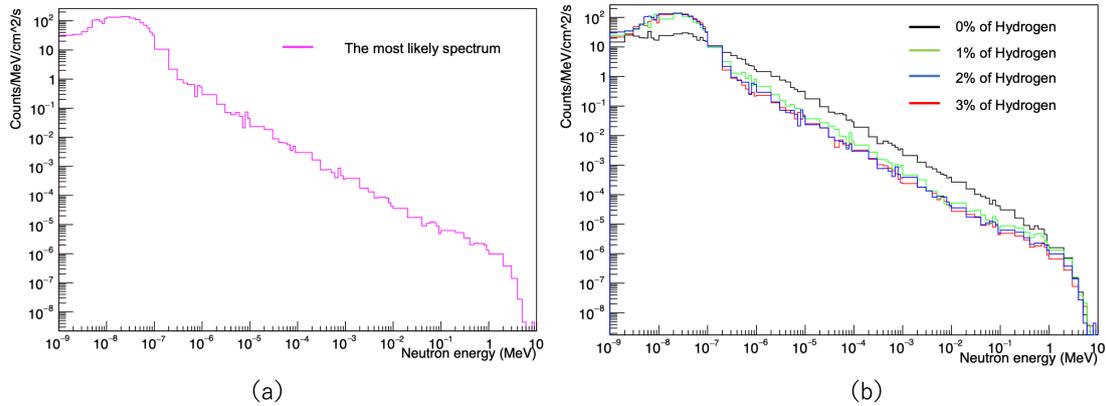


図 8: 佐々木氏が求めた神岡地下実験施設 Lab-B における環境中性子スペクトラム (a) 実験結果を最も良く再現したスペクトラム (b) 岩盤中の水素含有量を変えた場合のスペクトラム [7]

### 1.3 中性子の相互作用

中性子と物質の相互作用は散乱と核反応である。主要な相互作用は中性子のエネルギー毎に異なり、低エネルギーの中性子では核反応と弾性散乱、高エネルギーの中性子では弾性散乱と非弾性散乱である。この節では、これらの相互作用について記述する。

#### 核反応

中性子が原子核に吸収され、別の原子核と 2 次粒子を放出する反応を核反応という。中性子検出では、電荷を持った 2 次粒子を放出する核反応が応用される。代表的な検出器は以下の通りである。

- $^3\text{He}$  比例計数管：  
中性子が  $^3\text{He}$  に吸収され  $(n, p)$  反応を起こすことを応用したガス検出器
- $\text{BF}_3$  比例計数管：  
中性子が  $^{10}\text{B}$  に吸収され  $(n, \alpha)$  反応を起こすことを応用したガス検出器

#### 弾性散乱

弾性散乱では、散乱の前後で運動エネルギーが保存する。よって、図 9 のようにエネルギー  $E$  の中性子が質量数  $A$  の原子核と弾性散乱したとき、散乱後の中性子と原子核のエネルギー  $E', E_N$  は以下の式で与えられる。

$$E' = E \left\{ 1 - \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2 \phi \right\} \quad (1.3.1)$$

$$E_N = E \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2 \phi \quad (1.3.2)$$

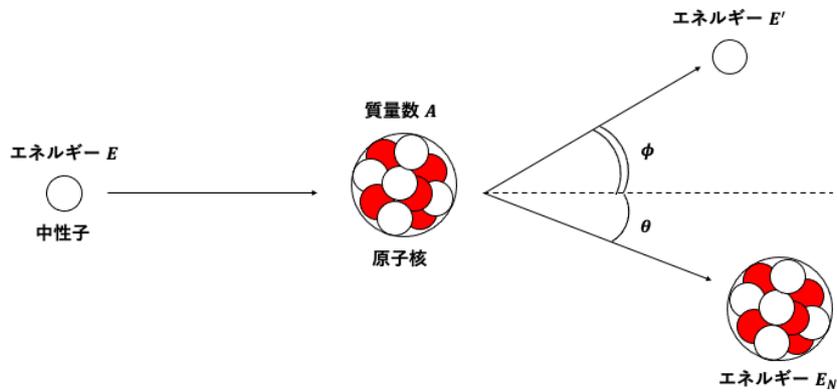


図 9: 実験室系における中性子と原子核の弾性散乱

#### 非弾性散乱

十分大きいエネルギーを持つ中性子は、原子核と非弾性散乱をすることがある。非弾性散乱では、散乱によって原子核が励起するため、散乱の前後で運動エネルギーが保存しない。

### 1.4 $\gamma$ 線の相互作用

$\gamma$  線と物質の相互作用は光電吸収、コンプトン散乱、電子・陽電子対生成である。図 10 のように、主要な相互作用は  $\gamma$  線のエネルギーと吸収体の原子番号毎に異なる。この節では、これらの相互作用について記述する。

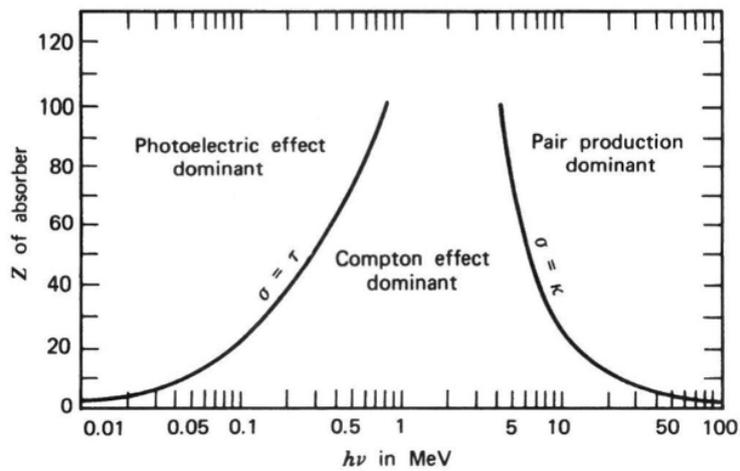


図 10:  $\gamma$  線と物質の反応断面積 [8]

### 光電吸収

$\gamma$  線が原子核に束縛された電子に吸収される反応を光電吸収という。光電吸収は低エネルギーの  $\gamma$  線に対して支配的な相互作用である。

### Compton 散乱

$\gamma$  線を物質に照射した時、散乱された  $\gamma$  線の波長が入射時より長くなる現象を Compton 効果といい、これが起こる散乱を Compton 散乱という。図 11 のように、エネルギー  $h\nu$  の  $\gamma$  線が質量  $m_e$  の電子と散乱したとき、散乱後の  $\gamma$  線と電子のエネルギー  $h\nu', E_e$  は以下の式で与えられる。

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_e c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (1.4.1)$$

$$E_e = h\nu \left\{ 1 - \frac{1}{1 + \frac{h\nu}{m_e c^2}(1 - \cos\theta)} \right\} \quad (1.4.2)$$

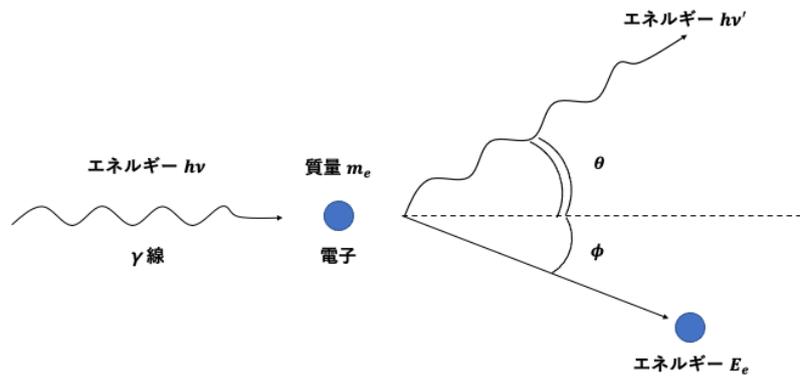


図 11: 実験室系における  $\gamma$  線と電子の Compton 散乱

### 電子・陽電子対生成

電子と陽電子の静止エネルギーの合計である 1.02 MeV 以上のエネルギーを持つ  $\gamma$  線は、電子・陽電子対を生成することがある。

## 2 有機液体シンチレーター中性子検出器

この章では、本研究で開発を進めた有機液体シンチレーター中性子検出器の検出原理とセットアップ、および、中性子測定におけるバックグラウンドについて記述する。

### 2.1 検出原理

本研究で開発を進めた中性子検出器は、有機液体シンチレーターと光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube、通称 PMT) を組み合わせた物である。この節では、この検出器の検出原理について記述する。

#### 有機液体シンチレーターの発光原理

有機液体シンチレーター (以下、液体シンチレーターと呼称する) は、溶媒、有機蛍光体の2つで構成される。これらに加え、波長変換材が入っている場合もある。その発光原理は以下の通りである。

液体シンチレーターに荷電粒子が入射すると、荷電粒子が溶媒分子を励起させる。蛍光体は溶媒分子の励起エネルギーを受け取って励起し、脱励起するときにシンチレーション光を放出する。非荷電粒子の中性子や  $\gamma$  線が入射すると、溶媒中の原子核や電子と相互作用し、エネルギーを持った荷電粒子が生じる。この荷電粒子が上記のプロセスでシンチレーション光の放出を引き起こす。波長変換材が入っている場合、シンチレーション光は波長変換材に吸収され、より長い波長の光が放出される。

有機蛍光体の多くは  $\pi$  電子構造を持つ分子で構成されており、その脱励起の仕方は図 12 のように大きく3通りに分けられる。1つ目は、スピン一重項の第一励起状態 ( $S_1$ ) から基底状態 ( $S_0$ ) へと脱励起するプロセスである。このプロセスは非常に速く行われるため、脱励起によって放出されるシンチレーション光の減衰時間は短く数 ns である。この時放出されるシンチレーション光は「即発蛍光」と呼ばれる。2つ目は、スピン一重項の第一励起状態からスピン三重項の第一励起状態 ( $T_1$ ) を経て基底状態へと脱励起するプロセスである。このプロセスはスピン三重項の励起状態が安定しているため時間がかかり、脱励起によって放出されるシンチレーション光の減衰時間は非常に長く数 ms である。この時放出されるシンチレーション光は「燐光」と呼ばれる。3つ目は、スピン三重項の第一励起状態からスピン一重項の第一励起状態に戻る過程を経て基底状態へと脱励起するプロセスである。このプロセスはスピン三重項の励起状態を経る分時間がかかるため、脱励起によって放出されるシンチレーション光の減衰時間は長く数百 ns である。この時放出されるシンチレーション光は「遅発蛍光」と呼ばれる。

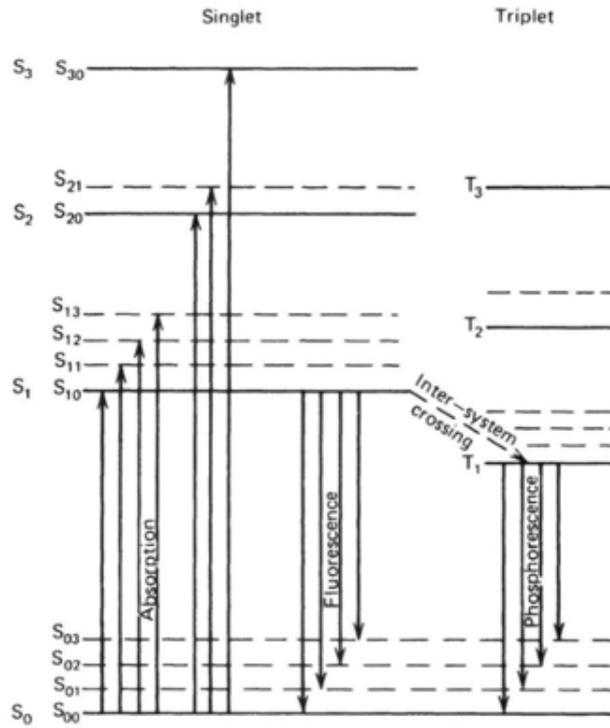


図 12:  $\pi$  電子構造を持つ有機蛍光体の脱励起過程 [8]

### 光電子増倍管の動作原理

図 13 のように、光電子増倍管は主に光電面、電子増倍部の 2 つで構成される。シンチレーターが発するシンチレーション光は弱いため、光電子増倍管を使って信号を増幅することで検出を可能にする。その動作原理は以下の通りである。

シンチレーターが発したシンチレーション光は、光電子増倍管のガラス面を通過して光電面に入射する。入射した光は光電効果によって電子に変換され、管に印加された電圧によって加速されながら増倍部へと移動し、ダイノードに入射する。加速された電子は運動エネルギーを持つため、ダイノードに入射すると多数の電子にエネルギーを与える。エネルギーを得た電子はダイノードを飛び出し、管に印加された電圧によって加速され、次のダイノードへと入射する。これが繰り返されることで電子が増幅される。

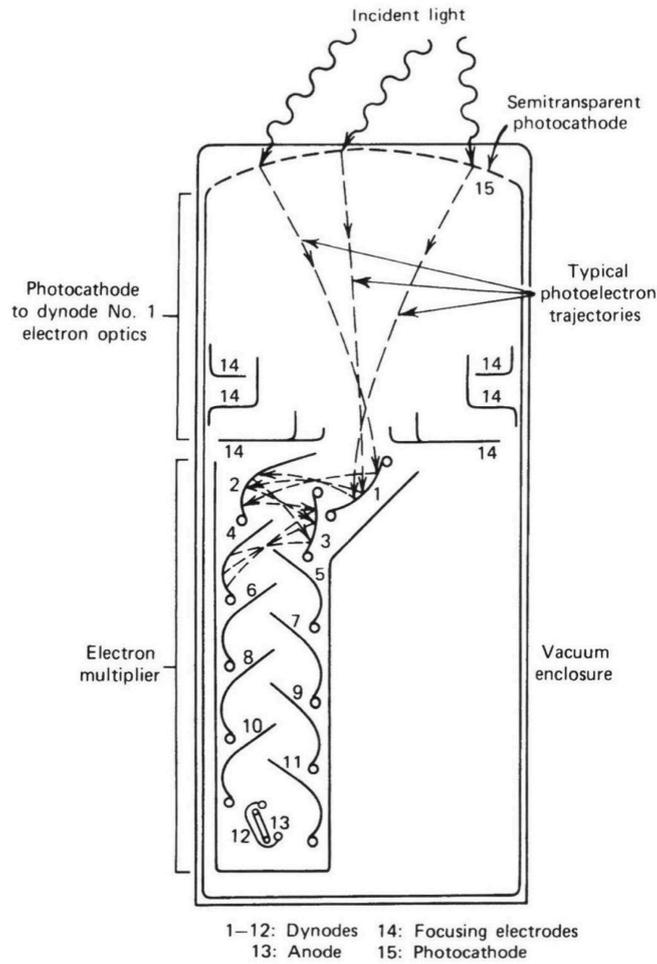


図 13: 光電子増倍管の構造 [8]

## 2.2 放射線の波形弁別

この節では、液体シンチレーターにおける入射粒子の弁別方法について記述する。

前節で記述したように、シンチレーション光には即発蛍光のように減衰時間が短い「速い成分」と燐光のように減衰時間が長い「遅い成分」がある。燐光はスピン三重項の分子に起因するが、このような分子の生成量は、入射粒子の阻止能の大きさ  $dE/dx$  に依存する。よって、図 14 が示すように、シンチレーション光全体に対する遅い成分の割合を用いて入射粒子を弁別することができる。これを波形弁別法 (Pulse Shape Discrimination、通称 PSD) という。本実験では、PSD を用いて  $\beta$  線・ $\gamma$  線入射イベントと  $\alpha$  線・中性子入射イベントを弁別した。

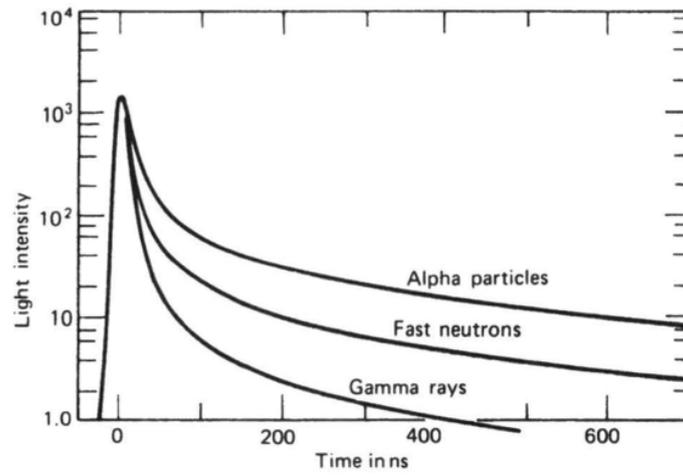


図 14: 液体シンチレーターに入射した粒子とそのシンチレーションパルス波形 [8]

### 2.3 セットアップ

本研究で開発を進めた中性子検出器のセットアップを図 15、図 16 に示す。

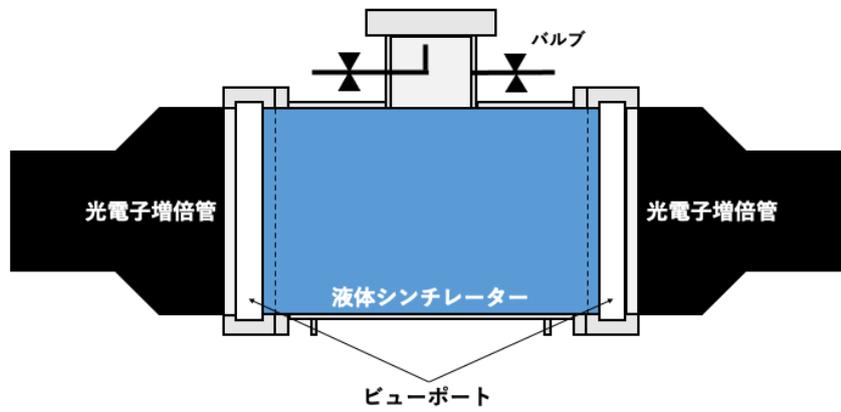


図 15: 中性子検出器の概略図



図 16: 実際の中性子検出器

図 15 は中性子検出器を真横から見た概略図、図 16 は中性子検出器を真上から撮影した写真である。液体シンチレーター容器はステンレス製（SUS304 製）で、長さ 32.4 cm、底面の直径が 13.98 cm の円筒形である。容器の内側表面は電解研磨という方法で研磨されている。容器の上部についた煙突部にはステンレス管（SUS304 製）が通っており、そこを通じて液体シンチレーターの出し入れを行う。両サイドにあるビューポートは厚さ 1.2 cm、直径 16 cm の合成石英ガラスで、厚さ 4 mm、直径 14 cm のアクリルでできたスペーサーを挟んで光電子増倍管（浜松ホトニクス社製 H6527）と接続する。なお、ビューポートとスペーサー、スペーサーと光電子増倍管のガラス面の間はグリース（EJ-550）で接着した。合成石英ガラス、アクリル、光電子増倍管のガラス面、グリースの屈折率はほとんど同じ（1.51）であるため、境界における全反射は無視できると考えて良い。

本研究に使用した液体シンチレーターは、Eljen Technology 社製の EJ-301 である。EJ-301 の物理的な性質を表 2 に示す。

アントラセンを 100 とした光量 [%]	78
シンチレーション効率 [photons/1 MeV e <sup>-</sup> ]	12,000
光量が最大となる波長 [nm]	425
減衰時間 [ns]	3.16, 32.3, 270
密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	0.874
屈折率	1.505
発火点 [°C]	26
1 気圧における沸点 [°C]	141
20°C における蒸気圧 [mm Hg]	6
水素原子の数密度 [ $\times 10^{22}/\text{cm}^3$ ]	4.82
炭素原子の数密度 [ $\times 10^{22}/\text{cm}^3$ ]	3.98
電子の数密度 [ $\times 10^{23}/\text{cm}^3$ ]	2.27

## 2.4 中性子測定におけるバックグラウンド

図 14 から分かるように、 $\alpha$  線に由来するシンチレーション光と中性子に由来するシンチレーション光は共に遅い成分を持つため、この 2 つを PSD で区別することは難しい。このため、中性子測定実験では  $\alpha$  線がバックグラウンドとなる。この節では、本研究で開発を進めた中性子検出器における  $\alpha$  線バックグラウンドの発生機構について記述する。

本研究で開発を進めた中性子検出器における  $\alpha$  線バックグラウンドは、元々液体シンチレーターに含まれていた放射性不純物に由来するもの、液体シンチレーター容器の内側壁面から染み出した U 系列の放射性核種  $^{222}\text{Rn}$  に由来するものである。 $^{222}\text{Rn}$  の染み出しは図 17 のように、容器を構成するステンレスに含まれる U 系列の放射性核種  $^{226}\text{Ra}$  が容器の内側壁面近傍で  $\alpha$  崩壊した時に起こる。図 5 から分かるように、 $^{222}\text{Rn}$ 、及び、その下流に存在する U 系列の放射性核種  $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Po}$  の半減期は 3.824 days、3.10 min、164.3  $\mu\text{s}$  であるため、長期間に及ぶ地下環境中性子測定において深刻なバックグラウンドとなる。

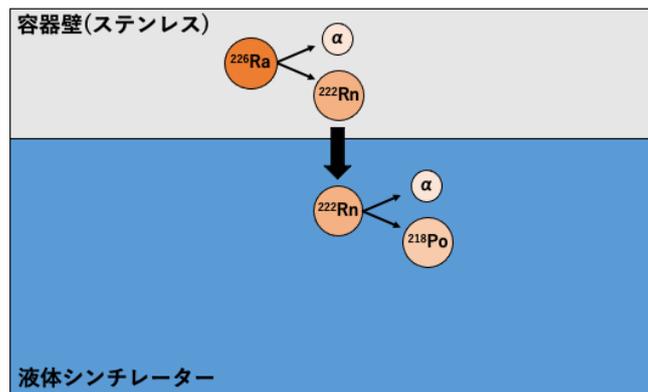


図 17: 液体シンチレーター容器から染み出す  $^{222}\text{Rn}$

## 2.5 液体シンチレーター中の $\alpha$ 線バックグラウンドの測定方法

前節で記述したように、 $\alpha$  線バックグラウンドを PSD だけで同定することは難しい。そこで、U 系列の放射性核種である  $^{214}\text{Po}$  の半減期が非常に短いことを利用し、 $^{214}\text{Po}$  の崩壊で生成された  $\alpha$  線によるイベントを抽出して、 $\alpha$  線バックグラウンドを見積もる。この節では、その具体的な内容について記述する。

図 5 を見ると、U 系列の放射性核種である  $^{214}\text{Bi}$  の  $\beta$  崩壊 (半減期 19.9 min) の後、 $^{214}\text{Po}$  の  $\alpha$  崩壊 (半減期 164.3  $\mu\text{s}$ ) がすぐに起きるとわかる。従って、PSD で抽出した  $\alpha$  線・中性子イベントのデータに対して、前のイベントが発生してからの経過時間が短いという選別 (以下、Bi-Po cut と呼称する) をかけることで、 $^{214}\text{Po}$  に由来する  $\alpha$  線イベントを抽出することができる。図 18 に Bi-Po cut をかける前後のデータを示す。縦軸は全光量に対する遅い成分の割合、横軸は光量、色はイベント数を表す。図 18 (a) と図 18 (b) を比べると、Bi-Po cut をかけることで、光量が 800~1200 keV<sub>ee</sub> の辺りにまとまったイベントが現れたことがわかる。 $^{214}\text{Po}$  に由来する  $\alpha$  線イベントは、放出される  $\alpha$  線

のエネルギー 7.687 MeV に対応する光量を平均値としたガウス分布に従うため、このまとまったイベントが  $^{214}\text{Po}$  に由来する  $\alpha$  線イベントであるとわかる。これより、PSD で抽出した  $\alpha$  線・中性子イベントのデータに対して Bi-Po cut をかけることで、 $^{214}\text{Po}$  に由来する  $\alpha$  線イベントを選択できていることがわかる。

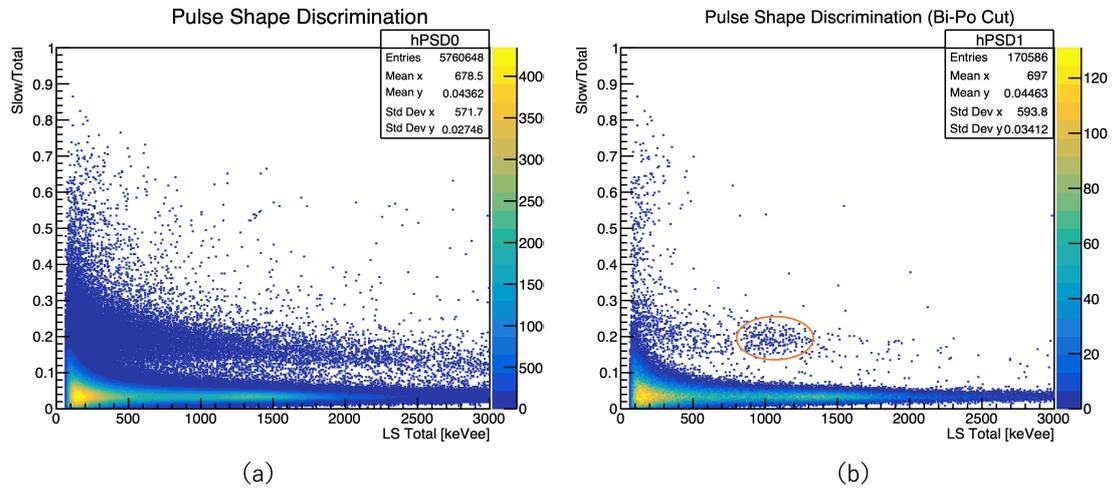


図 18: Bi-Po cut をかける前後のイベント分布 (a) Bi-Po cut 前 (b) Bi-Po cut 後

### 3 $\alpha$ 線バックグラウンドの測定

この章では、2.4で記述した $\alpha$ 線バックグラウンドを低減するための取り組みと $\alpha$ 線バックグラウンド測定の結果について記述する。

#### 3.1 $\alpha$ 線バックグラウンドの低減

これまでに行われた $\alpha$ 線バックグラウンドの低減に向けた取り組みは以下の5つである。

##### 3.1.1 液体シンチレーターの純化

液体シンチレーターに含まれている可能性がある $\alpha$ 崩壊する放射性不純物は以下の通りである。

- U 系列  
 $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{222}\text{Rn}$ 、 $^{218}\text{Po}$ 、 $^{218}\text{At}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{214}\text{Po}$ 、 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{210}\text{Bi}$ 、 $^{210}\text{Po}$
- Th 系列  
 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{228}\text{Th}$ 、 $^{224}\text{Ra}$ 、 $^{220}\text{Rn}$ 、 $^{216}\text{Po}$ 、 $^{212}\text{Bi}$ 、 $^{212}\text{Po}$

この内、Rn と At 以外の放射性不純物は金属元素のため、極性を持つ水に溶解しやすく、超純水を用いた液液抽出によって除去することができる。図 19、図 20 に示す液体シンチレーターの純化装置は、液体シンチレーター中の金属元素を液液抽出により除去する装置である。一方、希ガス元素の Rn は液液抽出で除去できないため、液液抽出をする際に混合タンクに窒素ガスを注入して分圧を下げることで、液体シンチレーターから追い出す。なお、 $^{218}\text{Po}$  から  $^{218}\text{At}$  への崩壊は非常に稀であるため、At の存在は無視する。

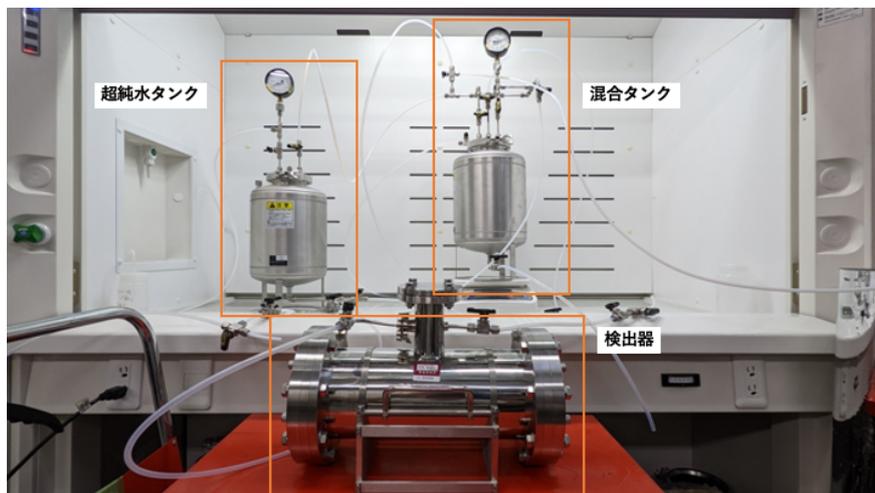


図 19: 超純水による液体シンチレーターの液液抽出を行うためのセットアップ

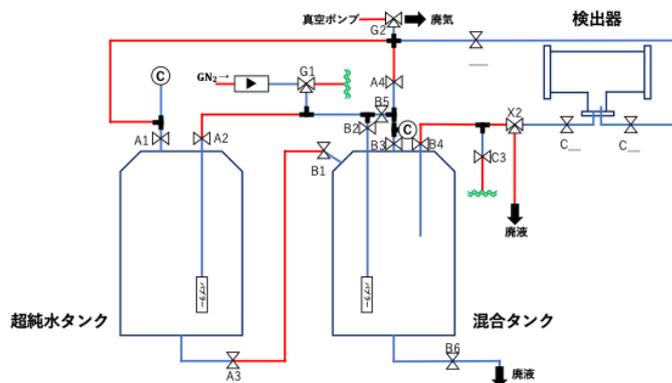


図 20: 超純水による液体シンチレーターの液液抽出を行うためのセットアップの配管図

図 19 は純化装置を正面から撮影した画像、図 20 は純化装置の配管図である。純化装置は超純水を入れる超純水タンク (SUS304 製)、超純水と液体シンチレーターを混合する混合タンク (SUS304 製) で構成され、ステンレス管 (SUS304 製、図 20 の青線) とナフロンチューブ (図 20 の赤線) で繋がっている。液体の移送やガスの注入は、バルブ (図 20 の白抜き三角形) の開閉によって操作する。また、空気中に含まれる  $Rn$  などの放射性不純物が液体シンチレーターに混入するのを防ぐため、純化装置は外気から遮断された構造となっている。

純化の手順は以下の通りである。

### 1. リークチェック

液体シンチレーターは可燃性であるため、検出器や純化装置から漏れ出ることがないようにしなければならない。そのため、チューブの結合部の緩みなど、漏洩の可能性が疑われる箇所がないかを確認する必要がある。この作業をリークチェックという。リークチェックでは、窒素ガスを注入して装置全体を大気圧以上に加圧し、しばらく静置した後に減圧があるかを確認する。もし減圧があった場合は、SNOOP という石鹼水を結合部などにかき、泡が発生するかを確認することでリーク箇所を特定する。

### 2. バッチパーズ

空気中に含まれる  $Rn$  などの放射性不純物が液体シンチレーターに混入するのを防ぐため、純化装置内の空気はあらかじめ除去しておく必要がある。この空気を除去する作業をバッチパーズという。バッチパーズでは、窒素ガスを注入して装置全体を大気圧以上に加圧し、ガスを排気して真空にするという作業を 3 回繰り返す。

### 3. 超純水を混合タンクへ移送

窒素ガスを注入して超純水タンクを加圧し、混合タンクとの圧力差を利用して、超純水タンクから混合タンクへと超純水を移送する。

#### 4. 液体シンチレーターを混合タンクへ移送

混合タンクを大気圧以下に減圧し、液体シンチレーターが保存されている瓶に移送用のチューブを入れることで、大気圧との圧力差を利用して、瓶から混合タンクへと液体シンチレーターを移送する。

#### 5. 混合タンクを攪拌

純化装置が外気から遮断されていることを確認した後、混合タンクを振って、超純水と液体シンチレーターを攪拌する。

#### 6. 混合タンクのバブリング

窒素ガスを注入して混合タンクをバブリングする。気泡を発生させることで液体シンチレーターと窒素ガスの接触面積を増やし、液体シンチレーターへの窒素ガスの溶解を促進させる。これにより、液体シンチレーターに溶解している  $Rn$  とクエンチング要因となる酸素の分圧が下がるため、これらの気体を追い出すことができる。

#### 7. 層分離

バブリングを止めて混合タンクを静置し、超純水と液体シンチレーターを分離させる。水の密度は  $1.0 \text{ g/cm}^3$ 、液体シンチレーター EJ-301 の密度は  $0.874 \text{ g/cm}^3$  であるため、水が下層、液体シンチレーターが上層となる。

#### 8. 液体シンチレーターを検出器へ移送

窒素ガスを注入して混合タンクを加圧し、検出器との圧力差を利用して、混合タンクから検出器へと液体シンチレーターを移送する。

### 3.1.2 ビューポートに使用する素材の変更

早稲田大学の小津龍吉氏が神岡宇宙素粒子研究施設 Lab-B で行なった  $\alpha$  線バックグラウンド測定の結果を図 21 (a) に示す。ここで、縦軸は  $\alpha$  線イベントの数を測定日数で規格化した量、横軸は検出器の中央を  $0 \text{ cm}$  とした  $\alpha$  線イベントの発生位置を表す。U 系列の放射性核種  $^{226}\text{Ra}$  由来の  $\alpha$  線バックグラウンドを示す赤線を見ると、検出器の中央から離れる程イベント数が増える傾向が見られる。これより、検出器の両端に位置する窓部材が  $\alpha$  線源である可能性が示唆された。また、神戸大学が所有する AICHAM 使用した窓部材の表面  $\alpha$  線測定の結果からも同様の可能性が示唆された。そこで、窓部材を  $Ra$  を含む金属不純物が少ない合成石英ガラスに交換すると、図 21 (b) の赤線が示すように、検出器の両端における  $\alpha$  線イベントの減少が確認された。[10]

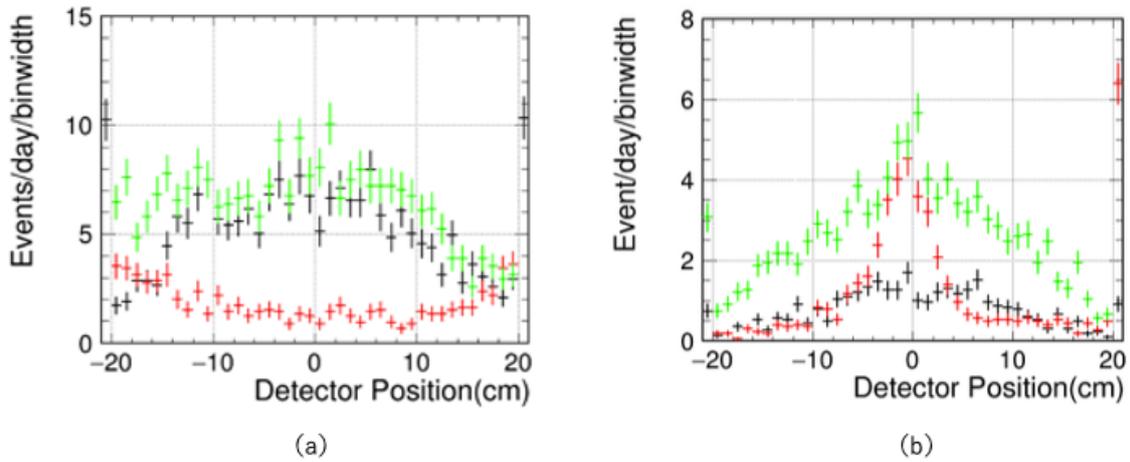


図 21:  $\alpha$  線イベントの発生位置 (a) 窓部材交換前 (b) 窓部材変更後 [10]

### 3.1.3 液体シンチレーター容器の内側壁面の研磨方法の変更

2.4で記述したように、本研究で開発を進めた中性子検出器において特に問題となるのは、液体シンチレーター容器の内側壁面から染み出すU系列の放射性核種 $^{222}\text{Rn}$ である。そこで、容器の内側壁面に電解複合研磨という表面処理を施した。それまで行っていた電解研磨という表面処理よりも高い研磨効果があるため、内側壁面の表面積が減少し、 $^{222}\text{Rn}$ の染み出しが低減すると期待された。神岡地下実験施設で行われた、電解研磨を施した検出器による $\alpha$ 線バックグラウンド測定の結果と電解複合研磨を施した検出器による $\alpha$ 線バックグラウンド測定の結果を図22に示す。縦軸はU系列の放射性核種である $^{214}\text{Po}$ の崩壊レート、横軸は測定時間を表す。図22(a)の電解研磨を施した検出器と比べて、図22(b)の電解複合研磨を施した検出器の方が定常状態における $^{214}\text{Po}$ の崩壊レートが小さいことがわかった。(a) 1.3 mBq (b) 0.8mBq) [11]

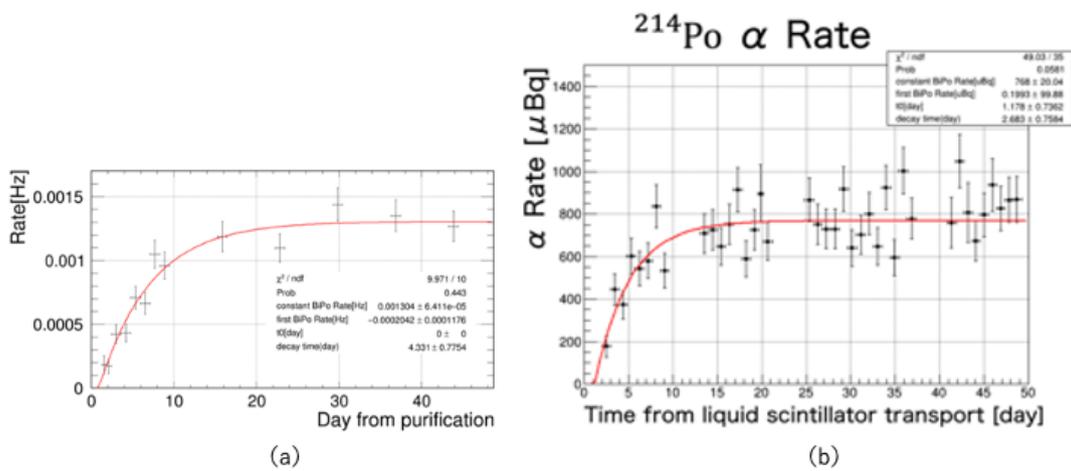


図 22:  $^{214}\text{Po}$  の崩壊レートの時間推移 (a) 電解研磨 (b) 電解複合研磨 [11]

### 3.1.4 液体シンチレーター容器の溶接箇所の変更

図 15 で示したように、液体シンチレーター容器には煙突と液体シンチレーター移送用の管が付いており、これらは図 23 (a) の赤点で示した箇所で溶接されていた。この溶接部分は研磨がしにくいいため、U 系列の放射性核種である  $^{222}\text{Rn}$  の染み出しを低減するための表面処理が不十分である可能性があった。そこで、溶接部分を図 23 (b) の赤点で示した箇所に変更し、研磨がしやすい形にした。

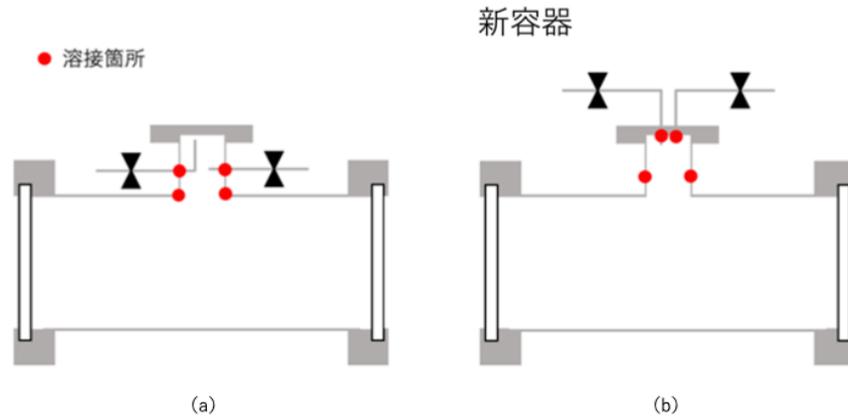


図 23: 液体シンチレーター容器の溶接箇所 (a) 旧容器 (b) 新容器 [11]

電解研磨を施した新容器で  $\alpha$  線バックグラウンドを測定した結果を図 24 に示す。縦軸、横軸が表す量は図 22 と同じである。青線は、混合タンクが汚れていたことを受けて、混合タンクの洗浄・検出器の洗浄・純化回数の増加を行った後の測定結果、黒線はそれらを行う前の測定結果である。いずれも図 22 (a) と比べて、U 系列の放射性核種である  $^{214}\text{Po}$  の崩壊レートが大きいことがわかる。(黒線：2.5 mBq 青線：2.0mBq)

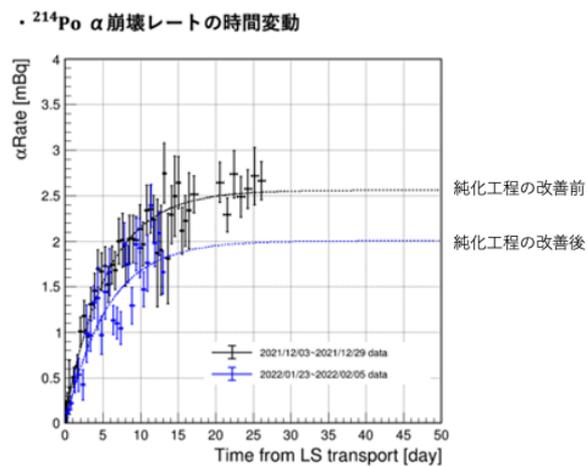


図 24: 新容器で測定した  $^{214}\text{Po}$  の崩壊レートの時間推移 [11]

ここで、新容器を用いた測定で検出された $\alpha$ 線スペクトラムを図25、 $\alpha$ 線イベントの発生位置を図26に示す。図25より、この測定で使用した液体シンチレーターに $^{226}\text{Ra}$ が含まれていた可能性が疑われた。また、図26より、 $\alpha$ 線を放出する放射性不純物が液体シンチレーター全体に分布していることがわかった。以上の結果は、この測定にあたって行った液体シンチレーターの純化が不十分である可能性を示唆しており、図22(a)の結果と比べて $^{214}\text{Po}$ の崩壊レートが大きくなった原因であると考えられる。[11]

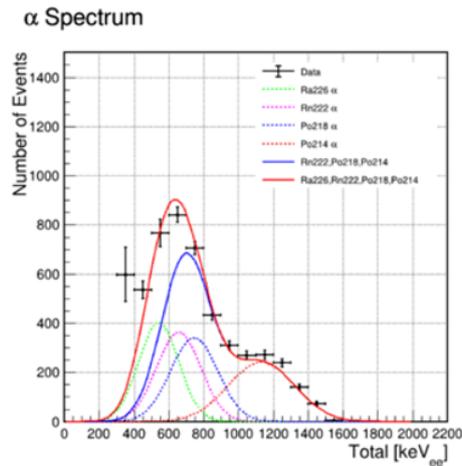


図 25: 新容器を用いた測定で検出された $\alpha$ 線スペクトラム [11]

黒線 : 測定値

赤点線 : 測定値から得た $^{214}\text{Po}$ のスペクトラム

緑点線 :  $^{214}\text{Po}$ のスペクトラムから見積もられた $^{226}\text{Ra}$ のスペクトラム

紫点線 :  $^{214}\text{Po}$ のスペクトラムから見積もられた $^{222}\text{Rn}$ のスペクトラム

青点線 :  $^{214}\text{Po}$ のスペクトラムから見積もられた $^{218}\text{Po}$ のスペクトラム

赤実線 :  $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{222}\text{Rn}$ 、 $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Po}$ を足し上げたスペクトラム

青実線 :  $^{222}\text{Rn}$ 、 $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Po}$ を足し上げたスペクトラム

**$^{214}\text{Po}$   $\alpha$  事象の位置依存性**

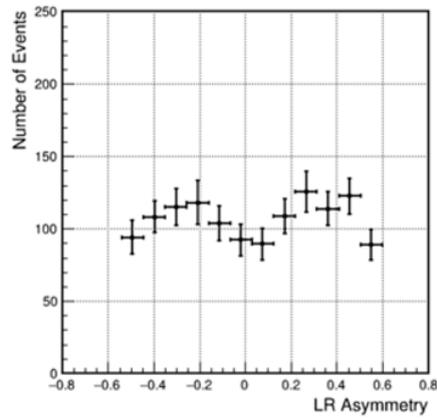


図 26: 新容器で測定した  $^{214}\text{Po}$  の崩壊イベントの発生位置 [11]

### 3.1.5 液体シンチレーターの直接バブリング

図 24 より、純化直後における U 系列の放射性核種  $^{214}\text{Po}$  の崩壊レートは非常に小さいとわかる。時間経過に伴う崩壊レートの増加は、 $^{214}\text{Po}$  の上流に存在する U 系列の放射性核種  $^{222}\text{Rn}$  の増加に起因すると考えられるため、 $^{222}\text{Rn}$  を適時除去することで、純化直後の非常に小さいカウントレートを維持できるのではないかと期待された。そこで、検出器に移送した純化後の液体シンチレーターを窒素ガスで直接バブリングするという手法が検討された。図 27 にそのセットアップを示す。

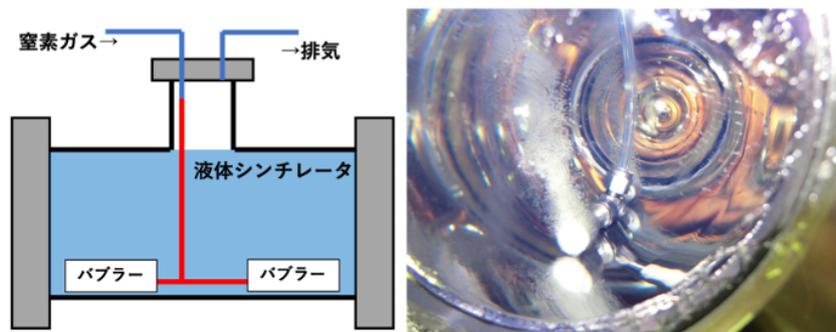


図 27: 液体シンチレーターの直接バブリングのセットアップ [11]

液体シンチレーターの直接バブリングを行った上で  $\alpha$  線バックグラウンドを測定した結果を図 28 に示す。縦軸、横軸が表す量は図 22 と同じである。青線は直接バブリングをする前、緑線は 0.2 L/min の流量で 60 分直接バブリングをした後、紫線は 0.1 L/min の流量で 180 分直接バブリングをした後

の測定結果である。緑線ではカウントレートが増加しているが、紫線では直接バブリングによってカウントレートが約 20% 程減少したことがわかる。この結果から、この測定で流した流量の約 10 倍の窒素ガスで直接バブリングを行うことで、十分な  $\alpha$  線バックグラウンド低減効果が見られると推定された。なお、緑線の増加は、バブラーを入れるために煙突の蓋を開けたことで、空気中の  $^{222}\text{Rn}$  が混入したのが原因と考えられる。[11]

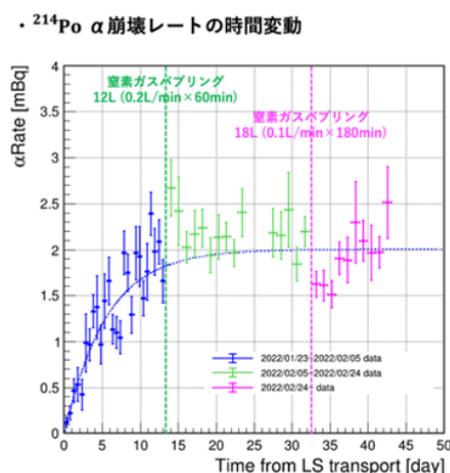


図 28: 液体シンチレーターの直接バブリング後の  $\alpha$  線イベントレートの時間推移 [11]

## 3.2 早稲田大学での測定

3.1.4 で記述したように、液体シンチレーターの純化が不十分である可能性が疑われる。また、3.1.5 で記述した液体シンチレーターの直接バブリングに関して、窒素ガスの流量を大きくすると、液体シンチレーター容器の排気管から液体シンチレーターが漏れ出るといった問題がある。これらの問題を神岡にあるセットアップで検証するのは大変であることから、早稲田大学に同様のセットアップ (図 19) を構築し、純化工程の見直し、直接バブリングに最適なガスの流量の決定を行う予定である。

早稲田大学における上記の検証は地上で行われる。地上は地下と比べて放射線バックグラウンドが大きいので、液体シンチレーター中の  $\alpha$  線バックグラウンドが自然の放射線バックグラウンドに埋もれないようにする必要がある。この節では、これまでと同様の純化工程の下、地上で  $\alpha$  線バックグラウンドを見ることができると検証した結果を記述する。

### 3.2.1 検出器の洗浄

この測定で使用した検出器は 2.3 で示したものである。この検出器を以下の手順で洗浄した。

#### 1. 検出器を分解

## 2. 部品を超音波洗浄

部品を ziplock に入れ、洗浄で落ちた汚れが再び部品に付着しないようにエタノールを少量注いだ。エタノールを使用したのは揮発性が高く、部品に残りにくいいためである。ziplock を超音波洗浄機に入れ、30 分の超音波洗浄を 2 回行った。なお、1 回目の超音波洗浄で使用したエタノールは廃液し、2 回目では新しいエタノールを注いだ。

## 3. 検出器の組み立て

部品に残ったエタノールや汚れをキムワイプで拭き取り、検出器を組み立てた。

## 4. 検出器の超音波洗浄

組み立てた検出器の中に、水を入れて封をした EVOH<sup>1</sup>袋を 3 つ入れ、エタノールを少量注いだ。水を入れた EVOH 袋を入れたのは、エタノールの使用量を減らすためである。検出器を超音波洗浄機に入れ、30 分の超音波洗浄を 2 回行った。なお、1 回目の超音波洗浄で使用したエタノールは廃液し、2 回目では新しいエタノールを注いだ。また、2 回目は検出器の上下を 1 回目と逆にして行った。



(a)



(b)

図 29: 超音波洗浄 (a) 部品 (b) 検出器

5. EVOH 袋を取り出し、検出器に残ったエタノールや汚れをキムワイプで拭き取った。

### 3.2.2 液体シンチレーターの純化

図 19 に示す純化装置を用いて、液体シンチレーターの純化を行った。なお、混合タンクに移送した液体シンチレーターは 4.94 L で、バブリングは 4 L/min の流量で 60 分行った。最終的に検出器に移送した液体シンチレーターの量は 4.81 L である。混合タンクに移送する液体シンチレーターの量の計算が誤っていたため、容器いっぱい (4.84 L) とはならなかった。

<sup>1</sup>ガスや化学物質を通しにくい樹脂

### 3.2.3 検出器のエネルギー較正

検出器から送られてくる電気信号はFADCでデジタル変換され、FADC Countとしてコンピューターに送られた後、コンピューター内のデータ収集プログラムによって波形の再構成が行われ、それがコンピューターに記録される。そのため、各波形のFADC Countの積分値と液体シンチレーターで発生したシンチレーション光の光量に対応づけるために、検出器のエネルギー較正をする必要がある。この測定では、 $^{137}\text{Cs}$ が放出する $\gamma$ 線のBack Scatterを利用して較正を行った。

エネルギー較正のセットアップを図30、図31に示す。Pbブロックを用いてコリメートした $\gamma$ 線を検出器の中央に当て、図11で $\theta = \pi$ の方向に散乱した $\gamma$ 線をNaIシンチレーター検出器で検出した。ただし、左右の光電子増倍管の光量が一致するように印加電圧を調整してある。(図30左側：1500 V、右側：1600 V)

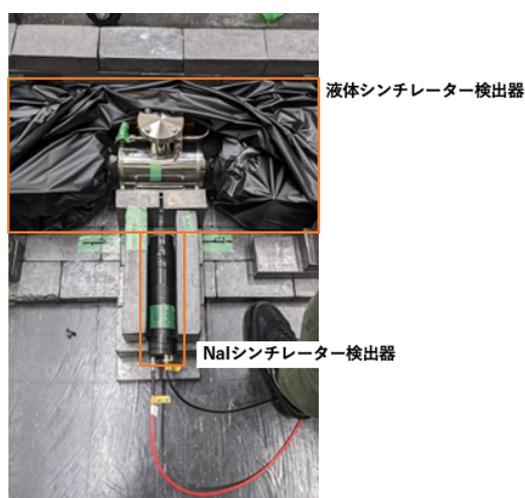


図 30: 実際のエネルギー較正のセットアップ

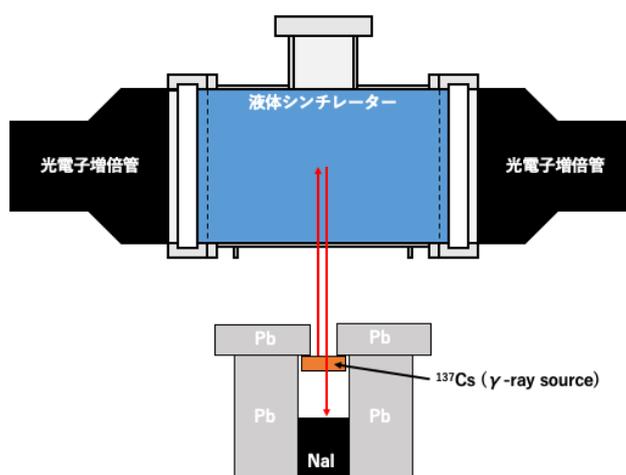


図 31: エネルギー較正のセットアップの概略図

エネルギー較正の結果を図 32 に示す。図 32 (a) の縦軸は液体シンチレーター検出器から送られてきた信号の FADC Count の積分値、横軸は NaI シンチレーター検出器から送られてきた信号の FADC Count の積分値、色はイベント数を表す。なお、液体シンチレーター検出器から送られてきた信号の FADC Count の積分値は、左右の光電子増倍管から送られてきた信号の FADC Count の積分値を加えたものとした。①で示した領域は液体シンチレーター検出器の FADC Count の積分値が大きく、NaI シンチレーター検出器の FADC Count の積分値が小さい。②で示した領域はその逆である。ここで、(1.4.2) 式に

$$\begin{aligned} {}^{137}\text{Cs の } \gamma \text{ 線エネルギー } \quad h\nu &= 662 \text{ keV} \\ \gamma \text{ 線の散乱角 } \quad \theta &= \pi \\ \text{電子の質量 } \quad m_e c^2 &= 0.511 \text{ MeV} \end{aligned}$$

を代入すると、

$$\begin{aligned} \text{散乱 } \gamma \text{ 線のエネルギー } \quad h\nu' &= 184 \text{ keV} \\ \text{散乱電子のエネルギー } \quad E_e &= 478 \text{ keV} \end{aligned}$$

と求まる。これより、①の領域は  $\gamma$  線が液体シンチレーター検出器で Back Scatter を起こし、散乱  $\gamma$  線が NaI シンチレーター検出器で検出されたイベント、②の領域は  $\gamma$  線が NaI シンチレーター検出器で Back Scatter を起こし、散乱  $\gamma$  線が液体シンチレーター検出器で検出されたイベントを示すとわかる。そこで、①の領域を

$$\text{LS Total : 2400 から 3600} \qquad \text{NaI Total : 2000 から 2500}$$

と定義し、2次元ヒストグラムを縦軸に射影すると、図 32 (b) の1次元ヒストグラムが得られる。なお、赤線は上記の LS Total の範囲を Gaussian で Fit したものである。この Fit の統計平均 2943 FADC Counts と  $\gamma$  線が液体シンチレーターに落とすエネルギー 478 keV を用いると、

$$\text{Calibration Factor} = \frac{478}{2943} = 0.162$$

が得られた。

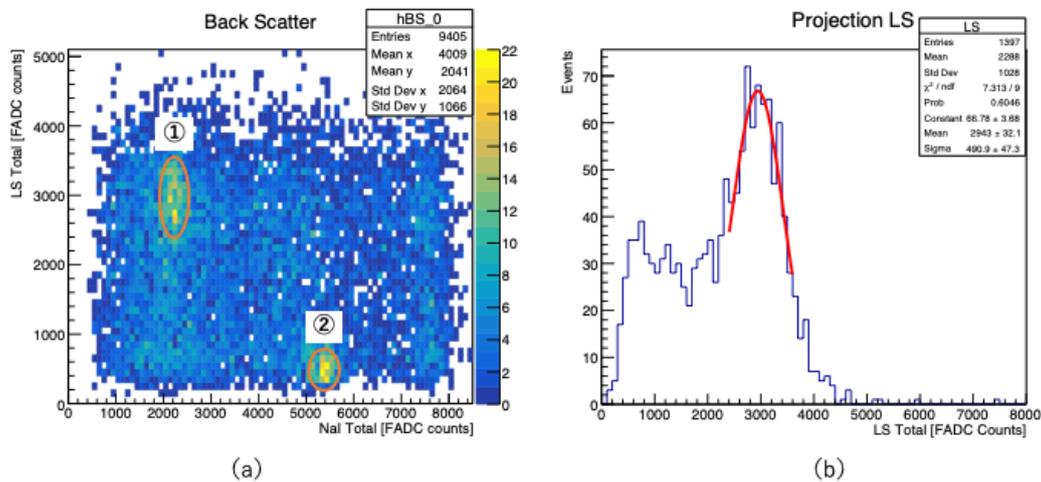


図 32: 液体シンチレーター検出器のエネルギー較正の結果 (a) 液体シンチレーター検出器の FADC Count の積分値 vs. NaI シンチレーター検出器の FADC Count の積分値 (b) ①の領域を縦軸に射影したヒストグラム

### 3.2.4 検出器の発光位置の較正

液体シンチレーター中の  $\alpha$  線バックグラウンドの分布は、左右の光電子増倍管の光量差と発光位置を対応づけることで見る事ができる。この測定では、検出器の中央を 0 cm として、-15 cm、-10 cm、-5 cm、0 cm、+5 cm、+10 cm、+15 cm の位置に  $\gamma$  線を当て、発光位置の較正を行った。なお、セットアップはエネルギー較正に使用したものと同じである。

発光位置を較正した結果を図 33 に示す。縦軸は次の式で定義される *LR-Asymmetry*、横軸は  $\gamma$  線を当てた位置を表す。なお、赤線はプロットを誤差関数で Fit したものである。

$$LR-Asymmetry = \frac{(\text{右の光電子増倍管の FADC Counts の積分値}) - (\text{左の光電子増倍管の FADC Counts の積分値})}{(\text{右の光電子増倍管の FADC Counts の積分値}) + (\text{左の光電子増倍管の FADC Counts の積分値})}$$

ここで、*LR-Asymmetry* は、エネルギー較正と同様の手順で Back Scatter イベントを抽出し、*LR-Asymmetry* のヒストグラムを Gaussian で Fit することで得られる統計平均とした。また、光量不足で Back Scatter イベントの領域が定義できなかったため、-15 cm のデータは使用しなかった。

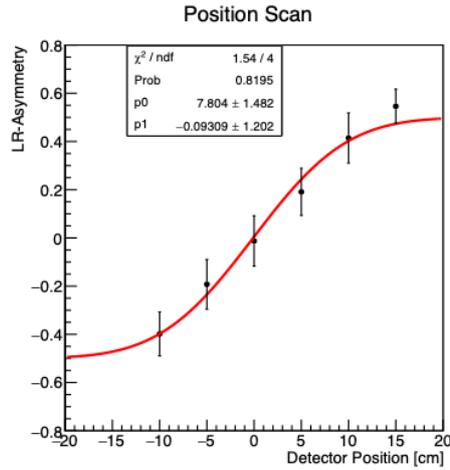


図 33: 検出器の発光位置の較正

### 3.2.5 $\alpha$ 線バックグラウンドの測定

図 34 のように、Pb ブロック、Cu ブロック、ポリエチレンで構築した厚さ 10 cm のシールドに検出器を入れ、 $\alpha$ 線バックグラウンドの測定を行った。なお、Pb ブロックは外部から来る放射線の遮蔽、Cu ブロックは Pb ブロックと外部から来る放射線の反応で生じる放射線の遮蔽を担う。測定時間は 227034 秒（約 63 時間）である。

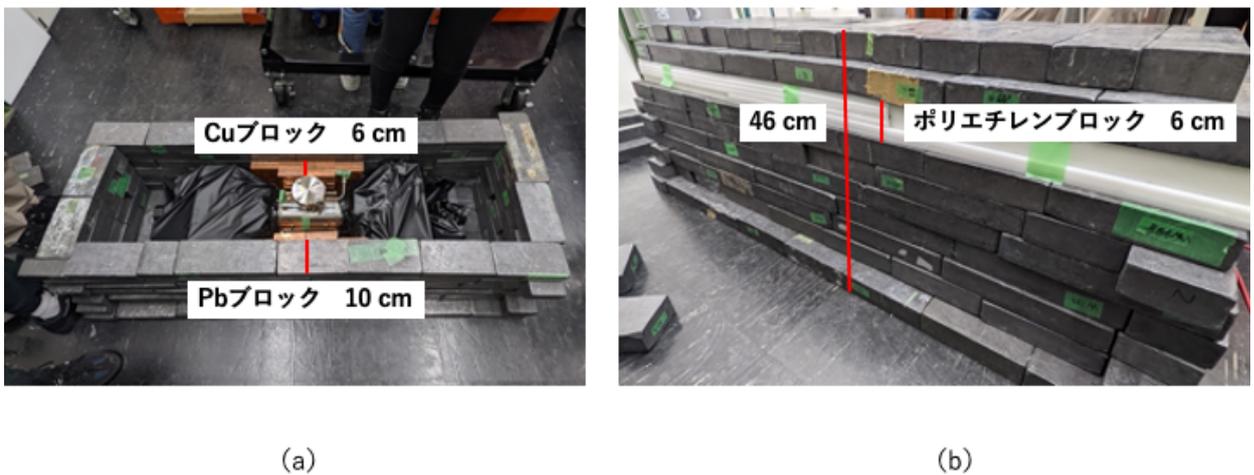


図 34:  $\alpha$ 線バックグラウンドの測定のセットアップ (a) 上から見た場合（遮蔽体の天井なし）(b) 横から見た場合（遮蔽体の天井あり）

図 35 に  $\alpha$ 線バックグラウンドの測定で得たヒストグラムを示す。縦軸、横軸が表す量は図 18 と同じである。なお、Slow と Total は次のように定義した。Total の始点は波形に見える鋭いピークの位

置で最も早い時刻、Slow の始点は波形に見える鋭いピークの位置で最も遅い時刻とし、Total の終点、および、Slow の終点は光電子増倍管のアフターパルスを含まないギリギリの時刻とした。

Slow : トリガー時刻の  $0.268 \mu\text{s}$  前から  $0.08 \mu\text{s}$  後までの領域  
 Total : トリガー時刻の  $0.348 \mu\text{s}$  前から  $0.08 \mu\text{s}$  後までの領域

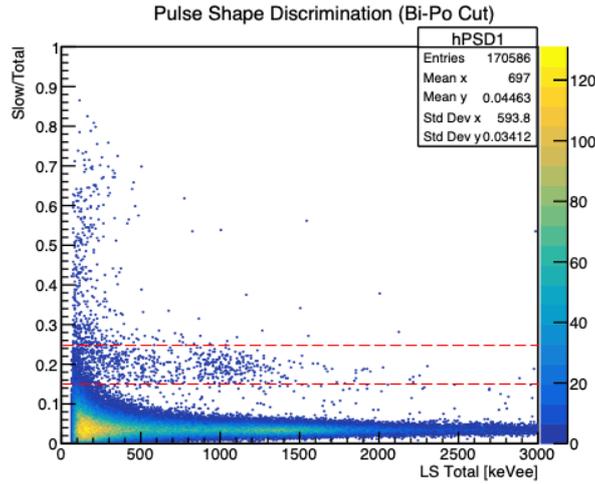


図 35: Bi-Po cut をかけた後のイベント分布

図 35 において、 $\alpha$  線バックグラウンドの分布を Slow/Total が 0.15 以上 0.25 以下の領域（赤点線で囲った領域）と定義して横軸に射影すると、図 36 のヒストグラムが得られる。なお、図 36 の右上図は光量が  $300 \text{ keV}_{\text{ee}}$  から  $3000 \text{ keV}_{\text{ee}}$  の領域を拡大したものである。また、U 系列の放射性核種である  $^{214}\text{Po}$  の崩壊イベントを光量が  $800 \text{ keV}_{\text{ee}}$  から  $1200 \text{ keV}_{\text{ee}}$  の領域と定義して Gaussian で Fit したものが赤い曲線である。

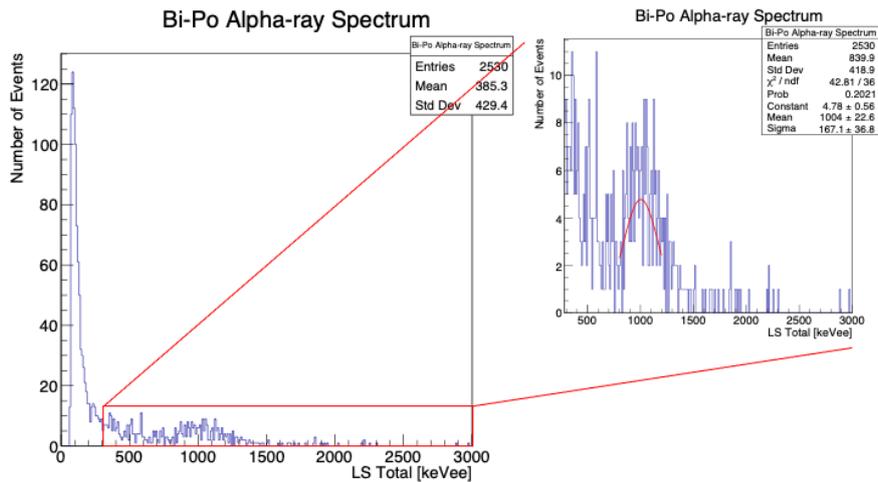


図 36: 測定した  $\alpha$  線バックグラウンドスペクトラム

Fitした領域を積分しバックグラウンドを差し引くと、 $^{214}\text{Po}$ の崩壊イベント数が178 eventsとわかった。これを測定時間227034秒で割ると、 $^{214}\text{Po}$ の崩壊レートが $0.784 \pm 0.059$  mBqとわかった。これは、3.1.3の神岡地下実験施設における $\alpha$ 線バックグラウンド測定で得られた $^{214}\text{Po}$ の崩壊レートと同程度である。これより、今回早稲田大学に構築したセットアップを用いることで、地上においても、地下と同様に液体シンチレーター中の $\alpha$ 線バックグラウンドを測定できることが確かめられた。今後は、このセットアップを用いて、液体シンチレーターの純化工程の改善と液体シンチレーターの直接バブリングに最適な窒素ガスの流量の決定に取り組む予定である。

## 4 ICP-MS を用いた放射性不純物の測定

3.1.4 で記述したように、液体シンチレーターの純化が不十分である可能性が疑われる。そこで、ICP-MS という分析法を用いて純化前後の液体シンチレーターに含まれる放射性不純物を定量・比較し、純化効果の評価を行った。この章では、ICP-MS の概要、及び、ICP-MS を用いた純化効果の評価について記述する。

### 4.1 測定原理

ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, 誘導結合プラズマ質量分析法) とは、高温のプラズマでイオン化したサンプルを質量電荷比 ( $m/z$ ,  $m$  は質量数、 $z$  は原子番号) で分離・検出する元素分析法である。図 37 に ICP-MS 装置の概略図を示す。

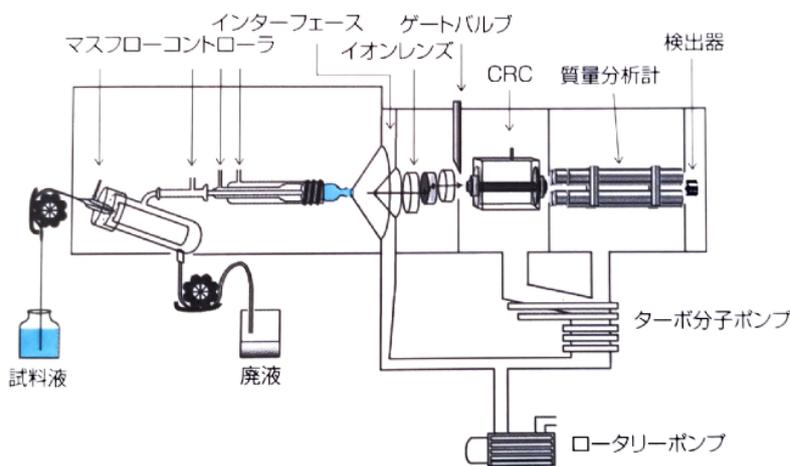


図 37: ICP-MS 装置の概略図 [12]

ICP-MS 装置は主にイオン化部と質量分析部からなる。以下で、それぞれについて詳しく記述する。

#### イオン化部

ICP-MS では、試料を何らかの溶媒に溶解して装置に導入する。この試料液はネブライザーで霧状にされた後、ガスでイオン化部に導入される。このとき、粒径の大きい液滴は溶質と溶媒の分離が不十分となりノイズの原因となるため、ネブライザーとイオン化部の間にあるスプレーチェンバーで取り除かれる。イオン化部に導入された試料は、高温のプラズマ (ICP) により溶媒から分離・単原子化された後、プラズマが放出する高速の電子によって励起・イオン化される。なお、ICP は、図 38 に示すように、コイルに高周波電力を印加して Ar ガスをプラズマ化することで生成される。

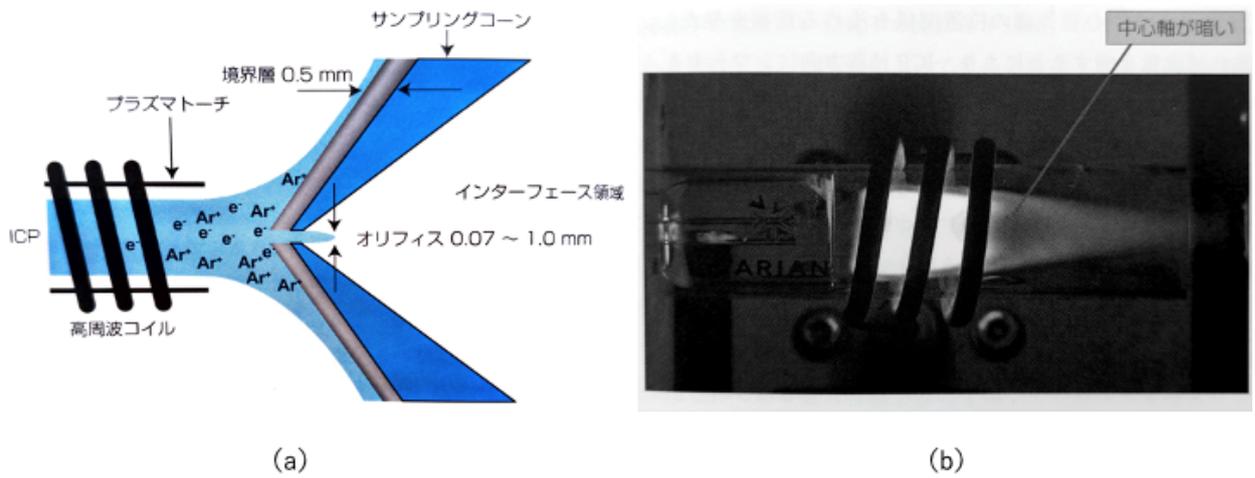


図 38: (a) ICP の概略図 (b) 実際の ICP[12]

#### 質量分析部

イオン化された試料は、インターフェース、イオンレンズを通して電子などのイオン以外の物が取り除かれた後、質量分析部に導入される。図 39 に示すように、質量分析部は 4 つの電極から構成され、対向する 2 つの電極で 1 つの組をなす。2 つの組には互いに逆の電圧が印加され、電極の軸方向に進行するイオンを振動させる。このとき、直流電圧  $U$ 、交流電圧  $V$ 、角周波数  $\omega$  を調節することで、ある特定の質量電荷比を持つイオンだけが検出器に辿り着き、それ以外のイオンは電極の外側に弾き出されるようにすることができる。これにより、試料の構成元素を同定することができる。このようにして選別されたイオンは検出器に導入され、イオン数がカウントされる。

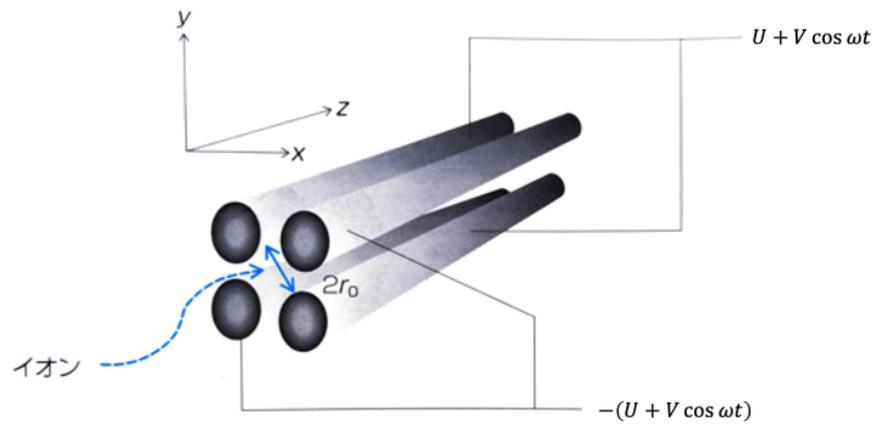


図 39: 四重極型質量分析計の概略図 [12]

## 4.2 試料液の準備

本研究では、 $\alpha$ 線バックグラウンド測定に使用した純化済みの液体シンチレーターから3つ、未純化かつ未使用の液体シンチレーターから3つの試料を作成し、筑波大学のICP-MS装置を用いて放射性不純物の測定を行った。表3に作成した試料の質量と体積を示す。なお、試料番号は図49のものをを用いた。

表 3: ICP-MS を用いて放射性不純物の測定を行った液体シンチレーターの質量と体積

試料番号	質量 (g)	体積 (ml)
11. 純化済み	40.98	46.89
12. 純化済み	39.62	45.33
13. 純化済み	40.10	45.88
14. 未純化かつ未使用	40.77	46.65
15. 未純化かつ未使用	41.08	47.00
16. 未純化かつ未使用	42.24	48.33

有機物をICPに導入すると、炭素の燃焼にエネルギーが使われることでプラズマが不安定化したり、燃焼し切らなかった炭素が析出してイオンの通り道を塞いでしまうことがある。このため、液体シンチレーターから無機物の試料のみを抽出し、それを硝酸に溶解させることで試料液を作成した。この節では、その工程について記述する。

### 4.2.1 液体シンチレーターのドライアップ

試料作成の最初の工程は、液体シンチレーターの溶媒であるキシレンのドライアップ（揮発）である。この作業は液体シンチレーターをガラス容器に入れて加熱するという方法で行うが、ドライアップに要する時間やドライアップ後の試料の状態が不明であったため、試料作成の前にドライアップ試験を行った。そのセットアップを図40に示す。ガラスビーカーに未純化かつ未使用の液体シンチレーター50 mlを入れて市販のIH用フライパンの上に乗せ、調理用のIHホットプレートの上で加熱した。使用したホットプレートは出力を消費電力で表示する仕様であったため、放射温度計でビーカーの温度を計りながら、その温度がキシレンの沸点である144 °Cよりも高い150 °Cから180 °Cになるように調節した。また、キシレンの引火点は32 °Cと低く、かつ、揮発したキシレンの量が空気中の体積の0.9~6.7%を超えると爆発が起こる危険があるため、周囲に火がないように十分注意し、ドラフトの中で換気をしながら行った。



図 40: ドライアップ試験のセットアップ

ドライアップ試験の結果を図 41 に示す。約 40 分でドライアップは終了し、ビーカーの縁と内側側面には白い結晶が、底には黄色の結晶が残った。ビーカーの上部が底部よりも低温であったことから、白い結晶はキシレンと一緒に揮発した溶質がビーカーの縁と内側側面で再結晶した物と考えられる。黄色の結晶は液体シンチレーターに溶解していた溶質と考えられる。

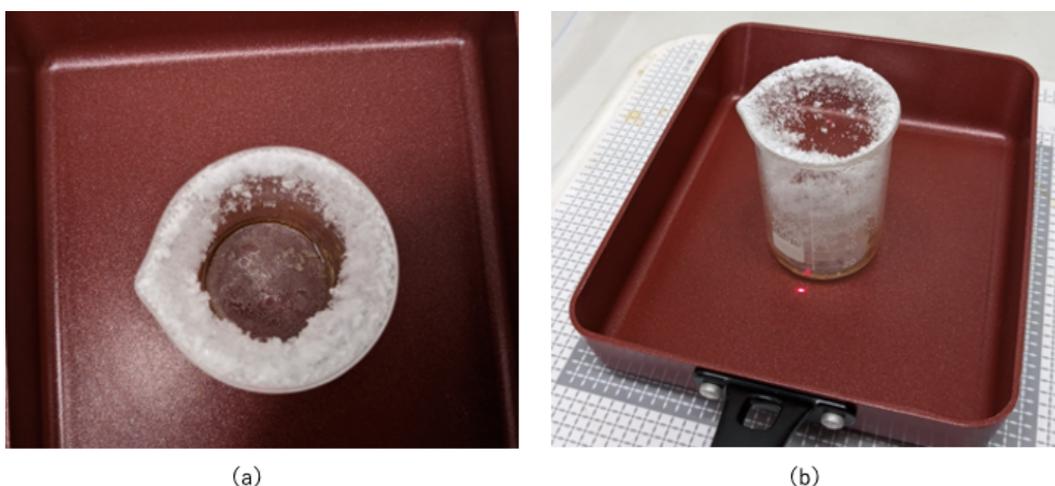


図 41: ドライアップ試験の結果 (a) 上から見た場合 (b) 横から見た場合

ビーカーに大量の有機物が残っていると、灰化処理の際に揮発して灰化装置内を汚してしまう可能性がある。そのため、有機物の結晶がなるべく残らない工夫をして、試料作成のためのドライアップを行った。そのセットアップを図 42 に示す。左右のホットプレートの上にガラス容器を 4 つずつ乗せ、左側の 3 つに純化済みの液体シンチレーターを約 10 mL ずつ、右側の 3 つに未純化かつ未使用の液体シンチレーターを約 10 mL ずつ入れて、180°C で加熱した。残る 2 つのガラス容器は、バックグラウンド測定用のブランクである。なお、有機物の結晶が残らないように、ガラス容器には底が浅く口が

広い物を使用し、液体シンチレーターを少しずつ注ぎ足しながらドライアップを行った。こうすることで、揮発した有機物が容器の縁や内側側面にぶつかって再結晶するのを防げると考えた。



図 42: 1 回目のドライアップのセットアップ

ドライアップが完了するまでに約6時間を要した。結果を図43に示す。ガラス容器の底部に黄色の結晶が残ったことがわかる。また、ガラス容器の縁で再結晶が起こるのは防げたものの、容器の内側側面に白い結晶が残ったことがわかる。原因はドライアップ試験の時と同じく、ガラス容器の側面が底部よりも低温であったことだと考えられる。

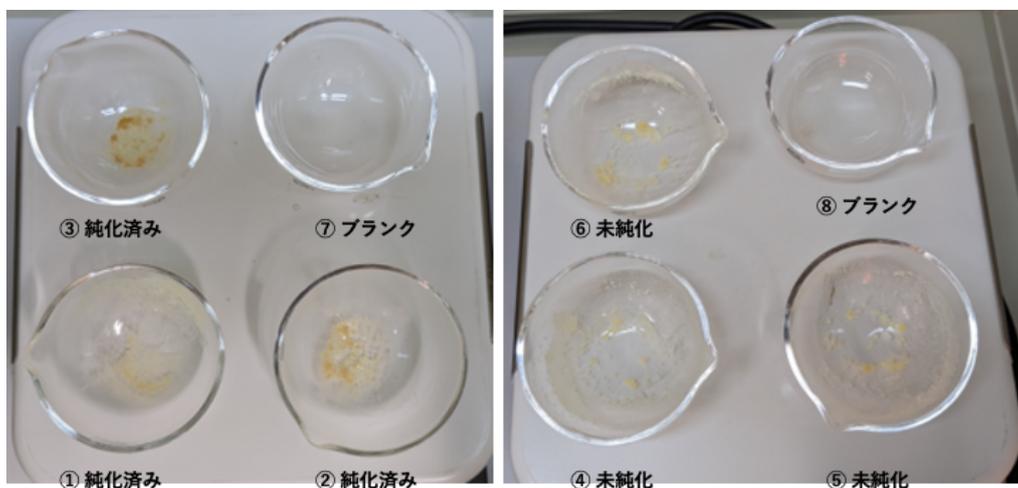


図 43: 1 回目のドライアップの結果

ガラス容器の内側側面に残った結晶を無くすために、赤外線ストーブによる加熱を加えて2回目のドライアップを行った。そのセットアップを図44に示す。ホットプレートによる加熱に加え、赤外線ストーブによる上からの加熱を行うことで、ガラス容器全体が加熱されるようにした。また、液体のキシレンはないため、ホットプレートの温度を最大出力の500℃に設定した。



図 44: 2 回目のドライアップのセットアップ

2 回目のドライアップの結果を図 45 に示す。ガラス容器に残っていた結晶が全て無くなり、黒い斑点だけが残ったことがわかる。

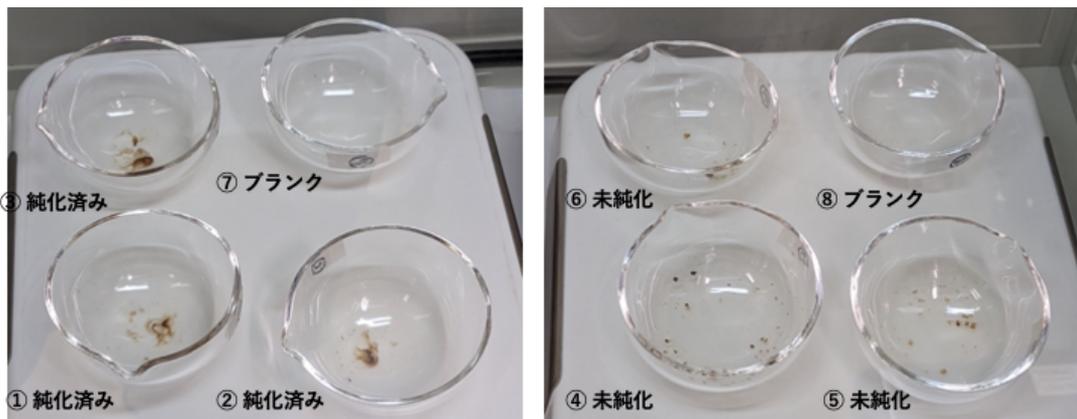


図 45: 2 回目のドライアップの結果

#### 4.2.2 試料の灰化処理

次の工程は、残留した有機物の灰化処理である。ドライアップ後のガラス容器には、有機物と液体シンチレーターに溶解していた無機物が残留している。残留した有機物は除去しておく必要があるため、ガラス容器をマイクロ波マッフル炉に入れ、600 °C の高温で灰化処理を行った。セットアップを図 46 に示す。炉の中にはアルミナブロックで組み立てられた窯があり、天井に金属板が設置されている。炉を作動させると、炉内にマイクロ波が発生し、天井の金属板が加熱される。加熱された金属板は放射熱を放出するため、これによって窯の中のガラス容器が加熱される。なお、窯の奥から突き出た温度計によって、炉内の温度は自動でフィードバック制御される。炉内には外部から空気が供給されているため、高温で処理を行うことで炭素を二酸化炭素にし、有機物を除去することができる。



図 46: 灰化処理のセットアップ (a) マイクロ波マッフル炉 (b) アルミナ製の窯

灰化処理後のガラス容器を図 47 に示す。ドライアップ後に残っていた黒い斑点が消失したことがわかる。

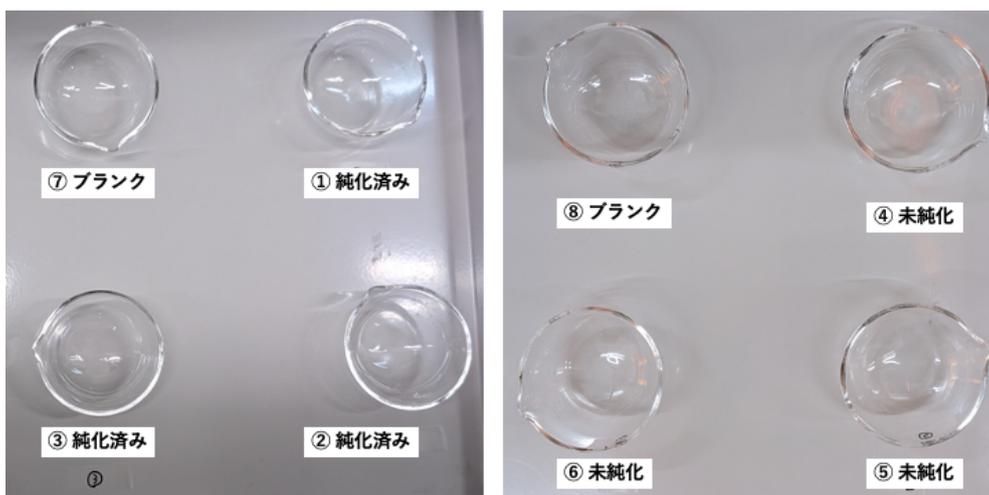


図 47: 灰化処理後のガラス容器

#### 4.2.3 残留した無機物の酸溶解

最後の工程は、残留した無機物の酸溶解である。灰化処理後のガラス容器には、液体シンチレーターに溶解していた無機物のみが残留しており、そこには測定対象の放射性不純物が含まれていると考えられる。このガラス容器に 0.45 mol/L の硝酸約 3 ml を加え軽くゆすぐことで残留物を溶解し、硝酸溶液を作成した。この溶液をマイクロピペットで採取し、電子天秤に乗せて零点調整したボトルに入れた。これを数回繰り返して 18 g の溶液を集めた後、2 g の硝酸を加えて試料液とした。

### 4.3 放射性不純物の測定

作成した試料液の一部をシリンジに移し、図 48 に示す ICP-MS 装置 (Agilent Technologies 7700 Series ICP-MS) を用いて放射性不純物量の測定を行った。測定結果は、1 秒当たりの検出数 (counts per second, cps) と試料液 1 L 当たりの質量濃度 (parts per trillion, ppt = pg/L) で出力される。今回測定を行った放射性不純物は、Th 系列の放射性核種  $^{232}\text{Th}$  と U 系列の放射性核種  $^{238}\text{U}$  である。



図 48: 放射性不純物の測定に使用した ICP-MS 装置

図 49 に測定を行った試料液を示す。測定の手順は以下の通りである。なお、1 つの測定が終了する毎に、試料液を吸引するノズルは自動で洗浄される。

1. ICP-MS 装置を起動し、動作が安定するまで待機
2. 試料液をセットして測定を開始
3.  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量の零点調整  
超純水、0.15 mol/L の硝酸 (図 49 の 17,18) に含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量を測定し、検出数の零点調整を行った。
4. 検量線の作成  
 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の濃度が既知の溶液 (図 49 の 1~6) に含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量を測定し、1 秒当たりの検出数 (cps) と濃度 (ppt) の検量線を作成した。
5. ノズルが洗浄されていることの確認  
0.15 mol/L の硝酸 (図 49 の 7,8) に含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量を測定し、洗浄によって検出数が下がっていることを確認した。
6. 4.2 で作成した試料液の測定  
ブランクから作成した試料液 (図 49 の 9,10)、純化済みの液体シンチレーターから作成した試料液 (図 49 の 11~13)、未純化かつ未使用の液体シンチレーターから作成した試料液 (図 49 の 14~16) の順で測定を行った。

#### 7. 測定感度の変化がないことの確認

硝酸（図 49 の 18）に含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量を再度測定し、洗浄によって検出数が下がっていることを確認した。その後、 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の濃度が既知の溶液（図 49 の 1,6）に含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量を再度測定し、ここまでの測定で検出数が変化していないことを確認した。

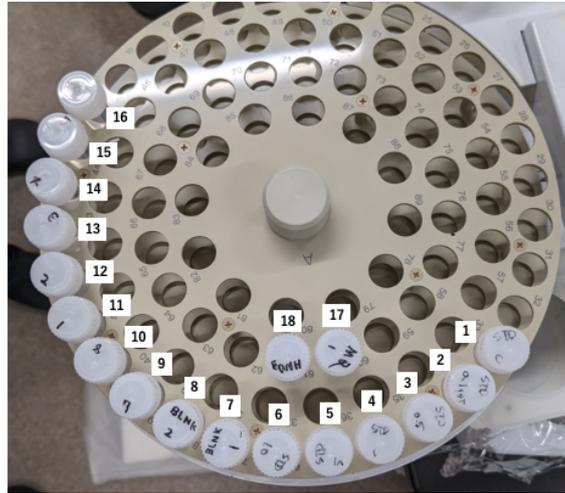


図 49: 放射性不純物の測定に使用した試料液

- 1～6 :  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の濃度が 0 ppt, 0.1 ppt, 0.5 ppt, 1 ppt, 5 ppt, 10 ppt の硝酸溶液
- 7～8 : 0.15 mol/L の硝酸
- 9 : 純化済みの液体シンチレーターと共に前処理を行ったブランクの試料液
- 10 : 未純化かつ未使用の液体シンチレーターと共に前処理を行ったブランクの試料液
- 11～13 : 純化済みの液体シンチレーターから作成された試料液
- 14～16 : 未純化かつ未使用の液体シンチレーターから作成された試料液
- 17 : 超純水
- 18 : 0.15 mol/L の硝酸

測定結果を表 4 に示す。網掛け部分は、4.2 で作成した試料液の測定結果である。なお、結果は上から測定順に並べている。まず、試料番号 18,1,6 の 1 回目と 2 回目の測定結果を比較すると、ほとんど同じ値であることがわかる。これより、測定中に装置の測定感度が変わっていないことが確かめられた。次に、純化済みの液体シンチレーターから作成した試料番号 11～13 を比較すると、多少のばらつきはあるものの、およそ同じ値であることがわかる。未純化かつ未使用の液体シンチレーターから作成した試料番号 14～16 についても、同様のことがわかる。また、試料番号 11～13 と 14～16 を比較すると、純化によって  $^{232}\text{Th}$  が減少していることがわかる。一方で、 $^{238}\text{U}$  は純化によって減少していないことがわかる。最後に、ブランクである試料番号 9,10 を比べると、10 の方は  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量が非常に小さいものの、9 の方は大きいことがわかる。9 の  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量は試料番号 14,15,16 とおおよそ同じ値であることから、試料液をシリンジに移す際に、誤って試料番号 14,15,16 のいずれかを

入れてしまったことが考えられる。よって、これ以降の議論では、ブランクとして試料番号 10 の値のみを用いるとする。

表 4: ICP-MS を用いた  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量の測定結果

試料番号	$^{232}\text{Th}$		$^{238}\text{U}$	
	1 秒当たりの検出数 (cps)	濃度 (ppt)	1 秒当たりの検出数 (cps)	濃度 (ppt)
17	$18.6 \pm 2.3$	-	$18.1 \pm 4.7$	-
18	$41.3 \pm 1.4$	-	$21.9 \pm 3.4$	-
1	$52.9 \pm 7.1$	0	$23.1 \pm 2.2$	0
2	$97.4 \pm 9.5$	$0.108 \pm 0.023$	$68.0 \pm 6.5$	$0.105 \pm 0.015$
3	$262 \pm 15$	$0.505 \pm 0.036$	$242 \pm 6$	$0.512 \pm 0.015$
4	$460 \pm 8$	$0.985 \pm 0.019$	$471 \pm 15$	$1.05 \pm 0.04$
5	$2.11 \times 10^3 \pm 34$	$4.98 \pm 0.08$	$2.19 \times 10^3 \pm 29$	$5.07 \pm 0.07$
6	$4.20 \times 10^3 \pm 45$	$10.0 \pm 0.1$	$4.28 \times 10^3 \pm 75$	$9.96 \pm 0.18$
7	$31.6 \pm 1.2$	<0.00	$20.2 \pm 3.9$	<0.00
8	$27.4 \pm 2.8$	<0.00	$22.4 \pm 0.8$	<0.00
9	$5.17 \times 10^3 \pm 17$	12.4	$115 \pm 2$	$0.214 \pm 0.005$
10	$89.2 \pm 11$	$0.0878 \pm 0.0266$	$42.2 \pm 1.0$	$0.0447 \pm 0.0024$
11	$1.31 \times 10^3 \pm 1$	3.03	$87.0 \pm 3.9$	$0.149 \pm 0.009$
12	$1.18 \times 10^3 \pm 47$	$2.71 \pm 0.11$	$54.2 \pm 6.1$	$0.0727 \pm 0.0143$
13	$1.34 \times 10^3 \pm 19$	$3.10 \pm 0.05$	$71.2 \pm 2.2$	$0.113 \pm 0.005$
14	$5.33 \times 10^3 \pm 17$	12.8	$61.1 \pm 4.7$	$0.0889 \pm 0.0111$
15	$5.68 \times 10^3 \pm 30$	$13.6 \pm 0.1$	$67.1 \pm 4.7$	$0.103 \pm 0.011$
16	$5.10 \times 10^3 \pm 67$	$12.2 \pm 0.2$	$88.4 \pm 7.2$	$0.153 \pm 0.017$
18	$29.3 \pm 5.5$	<0.00	$23.2 \pm 2.3$	<0.00
1	$36.2 \pm 3.2$	<0.00	$20.7 \pm 7.2$	<0.00
6	$4.09 \times 10^3 \pm 80$	$9.75 \pm 0.19$	$4.14 \times 10^3 \pm 23$	$9.63 \pm 0.05$

表 4 の濃度は、試料液 20 g 中に含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の質量/体積濃度である。また、試料液はほとんど 0.45 mol/L の硝酸できており、その比重は 1.0 であることから、試料液 20 g の体積は 20 mL と求まる。よって、試料作成に用いた液体シンチレーターの体積 (表 3) と試料液の体積の比をかけることで、液体シンチレーターに含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の濃度が求まる。さらに、求めた濃度に  $\alpha$  線バックグラウンドの測定に用いた液体シンチレーターの体積 4.81 L をかけると、この液体シンチレーターに含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の質量がわかる。このようにして求めた  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の濃度と質量を表 5 に示す。ただし、表中の値は、試料番号 11~13 (純化済み)、及び、試料番号 14~16 (未純化かつ未使用) の濃度から試料番号 10 (ブランク) の濃度を差し引いた値を用いて計算した。また、平均値は、各試料液を作成するのに用いた液体シンチレーターの体積 (表 3) で重み付けして計算した。

表 5: 液体シンチレーター 4.81 L に含まれる  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$  の量

試料番号	$^{232}\text{Th}$		$^{238}\text{U}$	
	濃度 (ppt)	質量 (pg)	濃度 (ppt)	質量 (pg)
11. 純化済み	$1.25 \pm 0.01$	$6.04 \pm 0.06$	$0.0445 \pm 0.0040$	$0.214 \pm 0.019$
12. 純化済み	$1.16 \pm 0.05$	$5.56 \pm 0.24$	$0.0124 \pm 0.0064$	$0.0594 \pm 0.0308$
13. 純化済み	$1.31 \pm 0.02$	$6.32 \pm 0.12$	$0.0298 \pm 0.0024$	$0.143 \pm 0.012$
平均	$1.24 \pm 0.02$	$5.97 \pm 0.09$	$0.0291 \pm 0.0026$	$0.140 \pm 0.013$
14. 未純化かつ未使用	$5.45 \pm 0.01$	$26.2 \pm 0.1$	$0.0189 \pm 0.0049$	$0.0911 \pm 0.0234$
15. 未純化かつ未使用	$5.75 \pm 0.04$	$27.7 \pm 0.2$	$0.0248 \pm 0.0048$	$0.119 \pm 0.023$
16. 未純化かつ未使用	$5.01 \pm 0.08$	$24.1 \pm 0.4$	$0.0291 \pm 0.0071$	$0.216 \pm 0.034$
平均	$5.40 \pm 0.03$	$26.0 \pm 0.2$	$0.0297 \pm 0.0033$	$0.143 \pm 0.016$

表 5 で求めた  $^{232}\text{Th}$  と  $^{238}\text{U}$  の平均の質量より、純化済みの液体シンチレーターに含まれる  $^{232}\text{Th}$  の原子数と  $^{238}\text{U}$  の原子数は次のように求めた。ただし、 $^{232}\text{Th}$  の原子量を 232、 $^{238}\text{U}$  の原子量を 238、アボガドロ定数を  $6.02 \times 10^{23} / \text{mol}$  とした。

$$^{232}\text{Th} \text{ の原子数} : (1.55 \pm 0.02) \times 10^{10} \quad ^{238}\text{U} \text{ の原子数} : (3.53 \pm 0.32) \times 10^8$$

ここで、U 系列、Th 系列において放射平衡が成り立っていると仮定する。この時、U 系列の放射性核種の崩壊レートは全て同じであり、Th 系列の放射性核種の崩壊レートも全て同じである。すなわち、U 系列、Th 系列の放射性核種の崩壊レートは、それぞれ  $^{238}\text{U}$  の崩壊レートと  $^{232}\text{Th}$  の崩壊レートに一致する。よって、放射性核種の量  $N$  が従う関係式

$$-\frac{dN}{dt} = \frac{\log 2}{\tau} N \quad (4.3.1)$$

と純化済みの液体シンチレーターに含まれる  $^{232}\text{Th}$  の原子数、 $^{238}\text{U}$  の原子数から、U 系列、Th 系列の放射性核種の崩壊レートは次のように求めた。ただし、 $\tau$  は放射性核種の半減期を表す。

$$\text{Th 系列の放射性核種の崩壊レート} : (2.42 \pm 0.03) \times 10^{-5} \text{ mBq}$$

$$\text{U 系列の放射性核種の崩壊レート} : (1.74 \pm 0.16) \times 10^{-6} \text{ mBq}$$

これを 3.2.5 で記述した  $\alpha$  線バックグラウンド測定の結果と比較すると、液体シンチレーター中の  $^{238}\text{U}$  に由来する  $^{214}\text{Po}$  の崩壊は、 $\alpha$  線バックグラウンド測定の結果に全く寄与していないとわかった。これより、純化済みの液体シンチレーターにおいて、少なくとも U 系列の放射平衡は崩れているとわかった。今後、 $^{238}\text{U}$  より下流の放射性核種について同様の測定を行い、 $\alpha$  線バックグラウンド測定の結果に占める割合を求める必要がある。 $\alpha$  線バックグラウンド測定の結果に占める割合が高い場合、液体シンチレーターの純化で取り除けなかった放射性核種が  $\alpha$  線バックグラウンドに大きく寄与していると結論づけられ、純化工程を改善する必要性が高まる。一方、 $\alpha$  線バックグラウンド測定の結果に占める割合が低い場合、液体シンチレーターの純化で取り除けなかった放射性核種は  $\alpha$  線バックグラウンドに寄与していないと結論づけられ、純化効果が十分であるとわかる。同時に、ICP-MS を用いて測定することができない  $^{222}\text{Rn}$  が主要な  $\alpha$  線バックグラウンド源である可能性が高まり、液体シンチレーターの直接バブリングの必要性が高まる。

## 5 結論

本研究では、早稲田大学に液体シンチレーターの純化装置を構築し、有機液体シンチレーター中性子検出器を用いた $\alpha$ 線バックグラウンドの測定とICP-MSを用いた液体シンチレーターに含まれる放射性不純物の測定を行った。

$\alpha$ 線バックグラウンドの測定には、純化装置で超純水による液液抽出と窒素ガスによるバブリングを行った純化済みの液体シンチレーターを使用した。測定の結果、 $\alpha$ 線バックグラウンドは $^{214}\text{Po}$ の崩壊レートで0.784 mBqであることがわかった。これは、神岡地下実験施設における測定 [11] で得られた $^{214}\text{Po}$ の崩壊レートと同程度であり、地下と比べて放射線バックグラウンドが大きい地上においても、地下と同様に液体シンチレーター中の $\alpha$ 線バックグラウンドが測定できることが確かめられた。今後は、このセットアップを用いて、液体シンチレーターの純化工程の改善と液体シンチレーターの直接バブリングに最適な窒素ガスの流量の決定に取り組む予定である。

ICP-MSを用いた測定では、純化前後の液体シンチレーターに含まれるTh系列の放射性核種 $^{232}\text{Th}$ とU系列の放射性核種 $^{238}\text{U}$ の測定を行った。その結果、液体シンチレーターの純化によって $^{232}\text{Th}$ は減少しているものの、 $^{238}\text{U}$ は減少していないことがわかった。また、測定した $^{238}\text{U}$ の量から求められた $^{238}\text{U}$ 由来の $^{214}\text{Po}$ の崩壊レートは $(1.74 \pm 0.16) \times 10^{-6}$  mBqで、 $\alpha$ 線バックグラウンド測定の結果に全く寄与していないとわかった。これは、純化済みの液体シンチレーターにおいて、少なくともU系列の放射平衡が崩れていることを示す。このため、今後、 $^{238}\text{U}$ より下流の放射性核種について同様の測定を行い、 $\alpha$ 線バックグラウンドの測定結果に占める割合を求める必要がある。 $\alpha$ 線バックグラウンドの測定結果に占める割合が高い場合、液体シンチレーターの純化で取り除けなかった放射性核種が $\alpha$ 線バックグラウンドに大きく寄与していると結論づけられ、純化工程を改善する必要性が高まる。一方、 $\alpha$ 線バックグラウンドの測定結果に占める割合が低い場合、液体シンチレーターの純化で取り除けなかった放射性核種は $\alpha$ 線バックグラウンドに寄与していないと結論づけられ、純化効果が十分であるとわかる。同時に、ICP-MSを用いて測定することができない $^{222}\text{Rn}$ が主要な $\alpha$ 線バックグラウンド源である可能性が高まり、液体シンチレーターの直接バブリングの必要性が高まる。

## 謝辞

本研究を進めるにあたって、多くの方々にご指導、ご協力していただきました。ここに厚く御礼申し上げます。

指導教員の南野教授には、ROUTEに参加してから今日まで、研究の進め方やポスター、論文作成のアドバイス等、様々なことをご指導していただきました。また、出張に係る申請書類の作成や研究プログラムの応募に係る推薦書の作成、応募書類の添削等もしていただきました。心より感謝いたします。秘書の山田さんには、書類提出の際に大変お世話になりました。心より感謝いたします。

早稲田大学の田中准教授には、早稲田大学で実験を行う際にご指導いただきました。また、実験の様子を撮影し、写真を共有していただきました。心より感謝いたします。同じく早稲田大学の岩澤さんには、実験や解析の手順、研究に関わる知識を教えてくださいました。ご自身が修論執筆や研究で多忙の中、私の質問に丁寧にお答えいただき、研究への理解が深まりました。心より感謝いたします。

筑波大学の高久研究員には、筑波大学で実験を行う際にご指導いただきました。測定試料の作成から実際の測定までの手順を丁寧に説明していただいたこと、心より感謝いたします。筑波大学 ERAN 事務局の佐藤さんには、筑波大学への出張に係る申請書類の作成の際に大変お世話になりました。心より感謝いたします。

同期の伊藤くん、長村さんとは、研究に関する議論や雑談をする機会があり、息抜きになりました。また、自主ゼミで一緒だった佐藤研究室の関川さん、小池くん、戸田くん、長谷川くん、中村研究室の近藤くんとは、ゼミ終わりに雑談をする機会があり、息抜きになりました。心より感謝いたします。

最後に、「宇宙、素粒子の研究がしたい」という私の意志を尊重し、様々な面で私を支えてくれた両親、祖父母に心より感謝いたします。

## 参考文献

- [1] Fritz Zwicky. THE REDSHIFT OF EXTRAGALACTIC NEBULAE (Translated by H. Ander-nach). Helvetica Physica Acta. 1933, vol. 6, p. 110-127. <https://arxiv.org/abs/1711.01693>.
- [2] K.G. Begeman, et.al. Extended rotation curves of spiral galaxies: dark haloes and modified dynamics. Royal Astronomical Society. 1991, vol 249, p. 523-537.
- [3] Planck Collaboration. Planck 2018 results I. Overview and the cosmo-logical legacy of Planck. Astronomy & Astrophysics. 2020, vol. 641. <https://www.aanda.org/articles/aa/pdf/2020/09/aa33880-18.pdf>.
- [4] 身内賢太郎, 濱口幸一. 宇宙のダークマター探索の現状. 日本物理学会誌. 2020, vol. 75, no. 2, p. 68-76. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/butsuri/75/2/75\\_68/\\_pdf/-char/ja](https://www.jstage.jst.go.jp/article/butsuri/75/2/75_68/_pdf/-char/ja).
- [5] J.M. Carmona, et.al. Neutron background at the Canfranc under ground laboratory and its contribution to the IGEX-DM dark matter experiment. Astroparticle Physics. 2004, vol. 21, p. 523-533.
- [6] 社団法人 日本アイソトープ協会. アイソトープ手帳. 10 版, 丸善株式会社, 2002, 164p.
- [7] 佐々木遼太. 地下実験施設における環境中性子測定. 横浜国立大学 理工学府 修士論文. 2021.
- [8] Glenn F. Knoll. Radiation Detection and Measurement. 4th ed., John Wiley and Sons, Inc., 2010, 829p.
- [9] ELJEN TECHNOLOGY. "NEUTRON/GAMMA PSD EJ-301, EJ-309". ELJEN TECHNOL-OGY. 2021-Jul. <https://eljentechnology.com/products/liquid-scintillators/ej-301-ej-309>, (ac-cessed 2022-Dec-28).
- [10] 小津龍吉. 液体シンチレータ検出器の低バックグラウンド化による環境中性子測定感度向上. 早稲田大学 先進理工学研究科 修士論文. 2021.
- [11] 岩澤広大. 神岡地下環境中性子測定のための液体シンチレータ検出器の極低バックグラウンド化. 早稲田大学 先進理工学研究科 修士論文. 2022.
- [12] 田尾博明, 他. 誘導結合プラズマ質量分析. 共立出版, 2015, 268p., (分析化学実技シリーズ, 機器分-析編・17).