

# SK-Gdに向けた ICP-MSとGe検出器による 硫酸ガドリニウム中の不純物測定

岡田 健

2019年10月18日 YMAP宇宙素粒子若手の会 秋の研究会 @名古屋大学

- 自己紹介
- モチベーション
  - SK-Gdプロジェクト
  - 高純度硫酸ガドリニウムとその量産
- 量産硫酸ガドリニウム中不純物の評価方法と現状
- 今後のスケジュール





- 岡田 健 (おかだたけし)
  - 東京大学宇宙線研究所神岡宇宙素粒子研究施設 修士二年
  - 所属プロジェクト：SK,SK-Gd
  - 来歴：東京郊外→神戸(学部四年間+研究生)→神岡
- 趣味：カメラ・天体観測・ロードバイク・製本・ドラム・Twitter等





## - SK-Gd(スーパーカミオカンデガドリニウム)プロジェクト

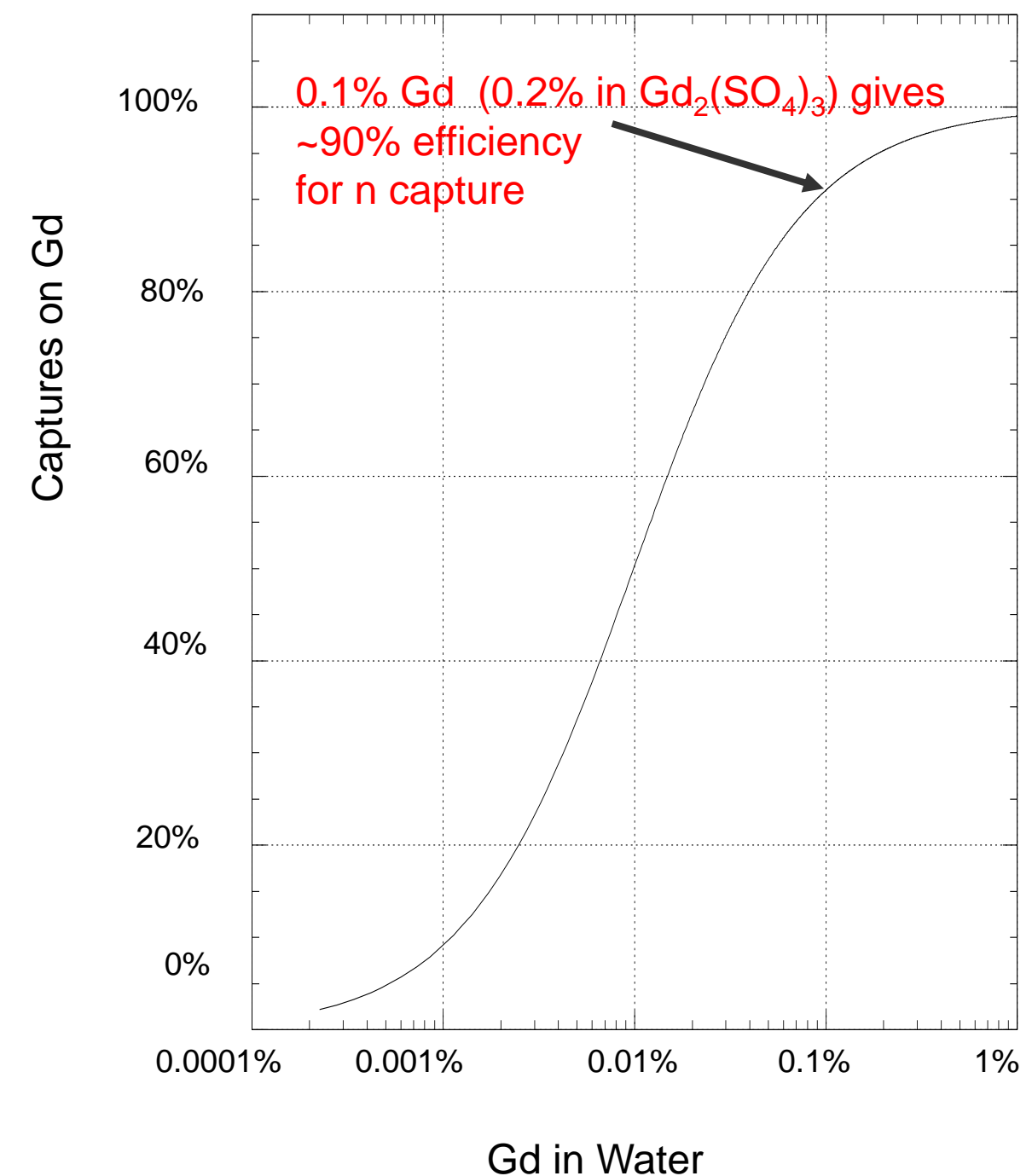
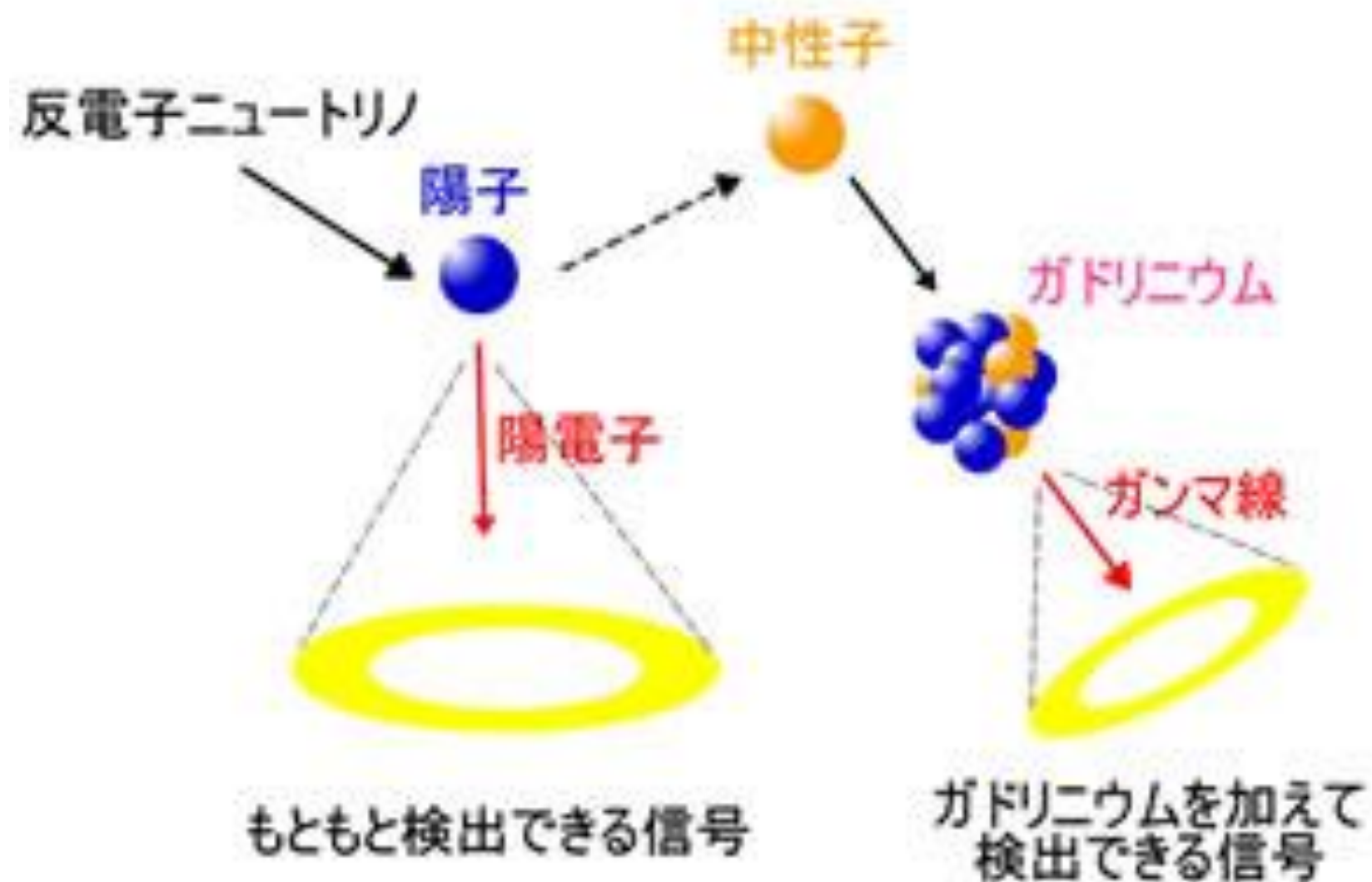
- SK超純水に0.1%のガドリニウム(Gd)[120t,  $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$ ]を導入。

- Gdは中性子捕獲補断面積が非常に高い(~49,000b)

- 0.1%Gdで90%,0.01%で50%の中性子捕獲効率

- 逆β反応( $\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$ )による陽電子と、Gdによる中性子捕獲ガンマ線の遅延同時計測を行うことで、反電子ニュートリノに対する感度を向上させ、超新星背景ニュートリノ(SRN)の観測を目指す。

ガドリニウムが中性子を捕獲してγ線を出す様子

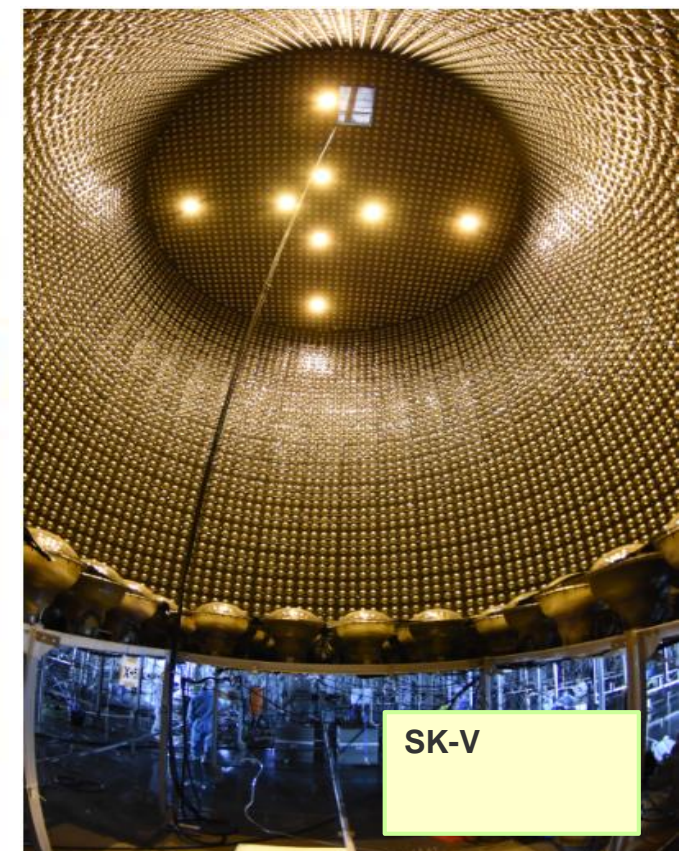
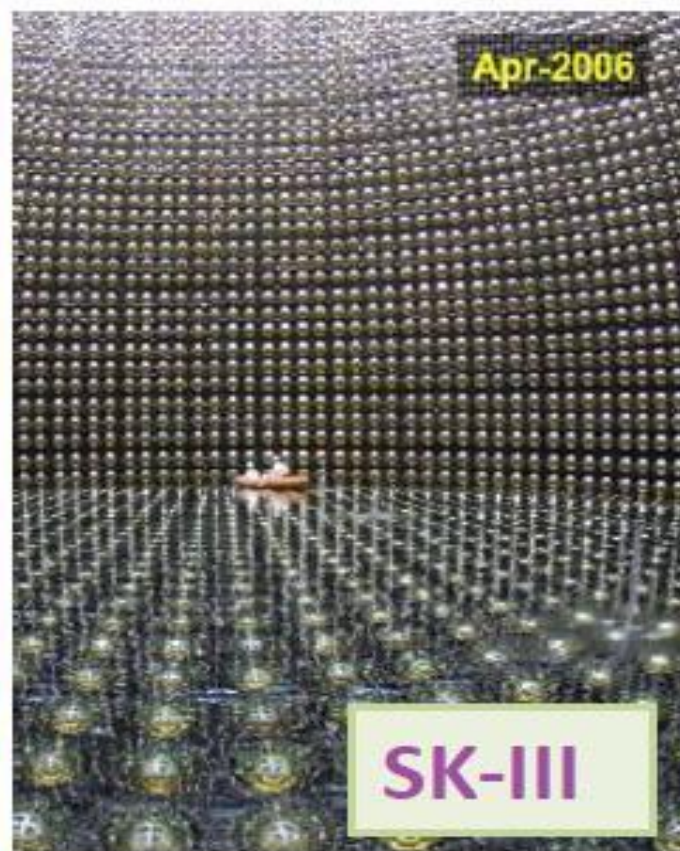
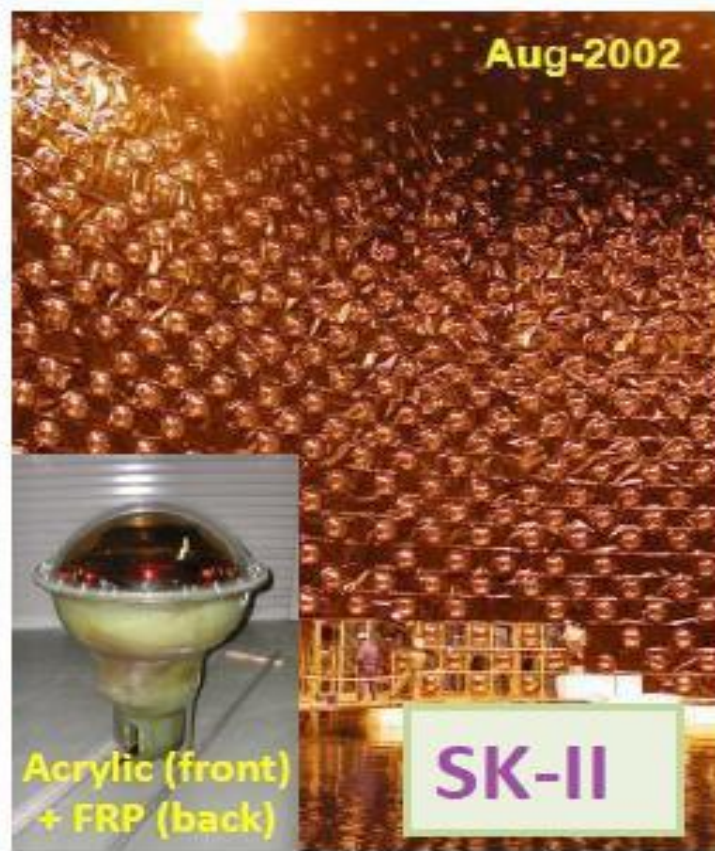
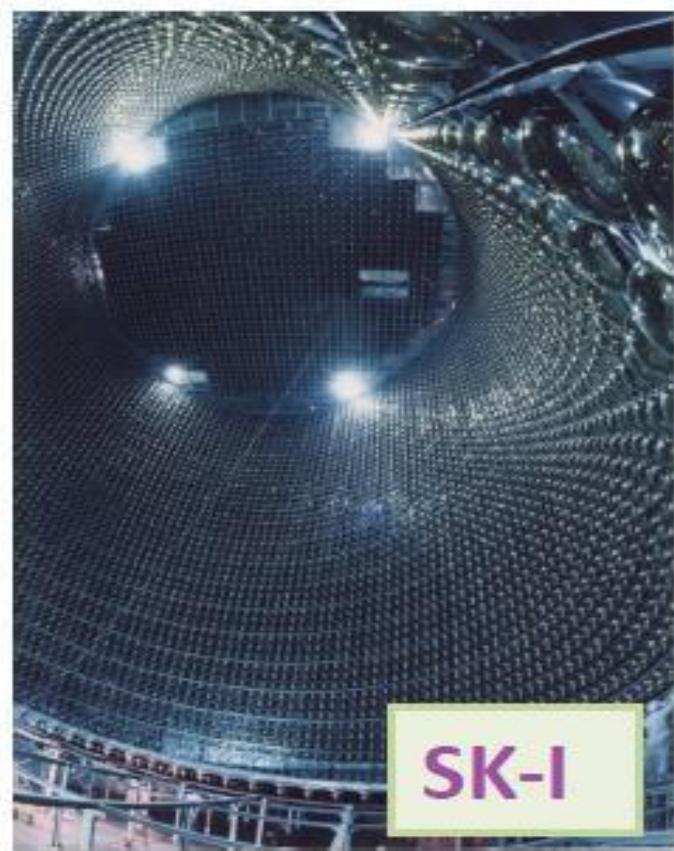


- SK-Gdプロジェクトでは、年度内に0.01%Gd濃度でのSK-Gdの開始を目指している
- それに向け14トンの硫酸Gd[28ロット(500kg/lot)]の製造がされている
  - 先日全ロットが神岡に到着
  - SK-Gdでの太陽ニュートリノとSRN探索のBGとなる為、導入する硫酸Gd中の放射性不純物について以下の要求値が設定されている
    - ( $^{238}\text{U}$ からの $n$ がSRN/太陽 $\nu$ のBGに、Th/Raからの $\beta, \gamma$ が太陽 $\nu$ のBGになる)
- チェレンコフ光の波長変換がなされてしまうため、Ceの要求値も設定されている
- →それぞれについて迅速かつ高感度な測定が必要

系列	対象同位体	要求値 [mBq/kg]	
		超新星背景 $\nu$	太陽 $\nu$
238U	$^{238}\text{U}$	< 5	< 5
	$^{226}\text{Ra}$	-	< 0.5
232Th	$^{228}\text{Ra}$	-	< 0.05
	$^{228}\text{Th}$	-	< 0.05
235U	$^{235}\text{U}$	-	< 30
	$^{227}\text{Ac} / ^{227}\text{Th}$	-	< 30
	対象同位体	要求値 [ppb]	
140Ce	$^{140}\text{Ce}$	< 50 ppb	



- スーパーカミオカンデ(SK)
  - 5万トンの超純水を湛えた水チェレンコフ検出器
  - 神岡の地下1000m(水等量2700m)
  - 約1万3千本のPMT( ID11129本,OD1885本 )
- 2018夏季に12年ぶりにタンクを開け改修を行った→今年1月末から通常運用





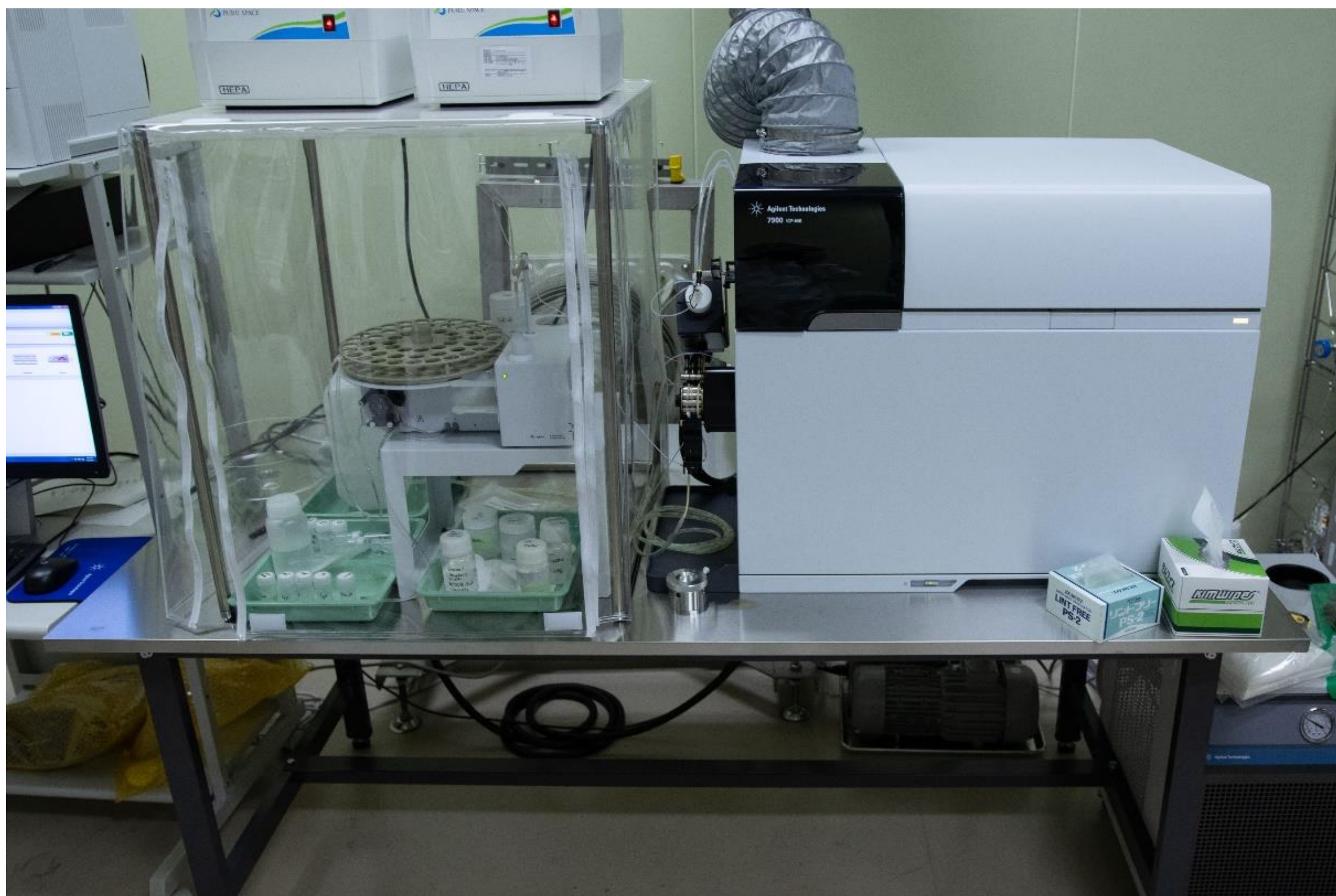
- スーパーカミオカンデ(SK)
  - 5万トンの超純水を湛えた水チェレンコフ検出器
  - 神岡の地下1000m(水等量2700m)
- 2018夏季に12年ぶりにタンクを開け改修を行った→今年1月末から通常運用



- U,Th,Ce
  - ICP-MS ( Agilent 7900 )
    - 半減期の長いU,Thと安定元素のCeに対してはICP-MS(質量分析装置)で測定可能
    - U,Thに関しては感度を上げるために化学分離(固相抽出法)を行う
- Ra
  - Ge検出器
    - 半減期が短いため、Ge検出器で測定する必要がある
    - 感度を上げるためにDisc法を用いて抽出を行う



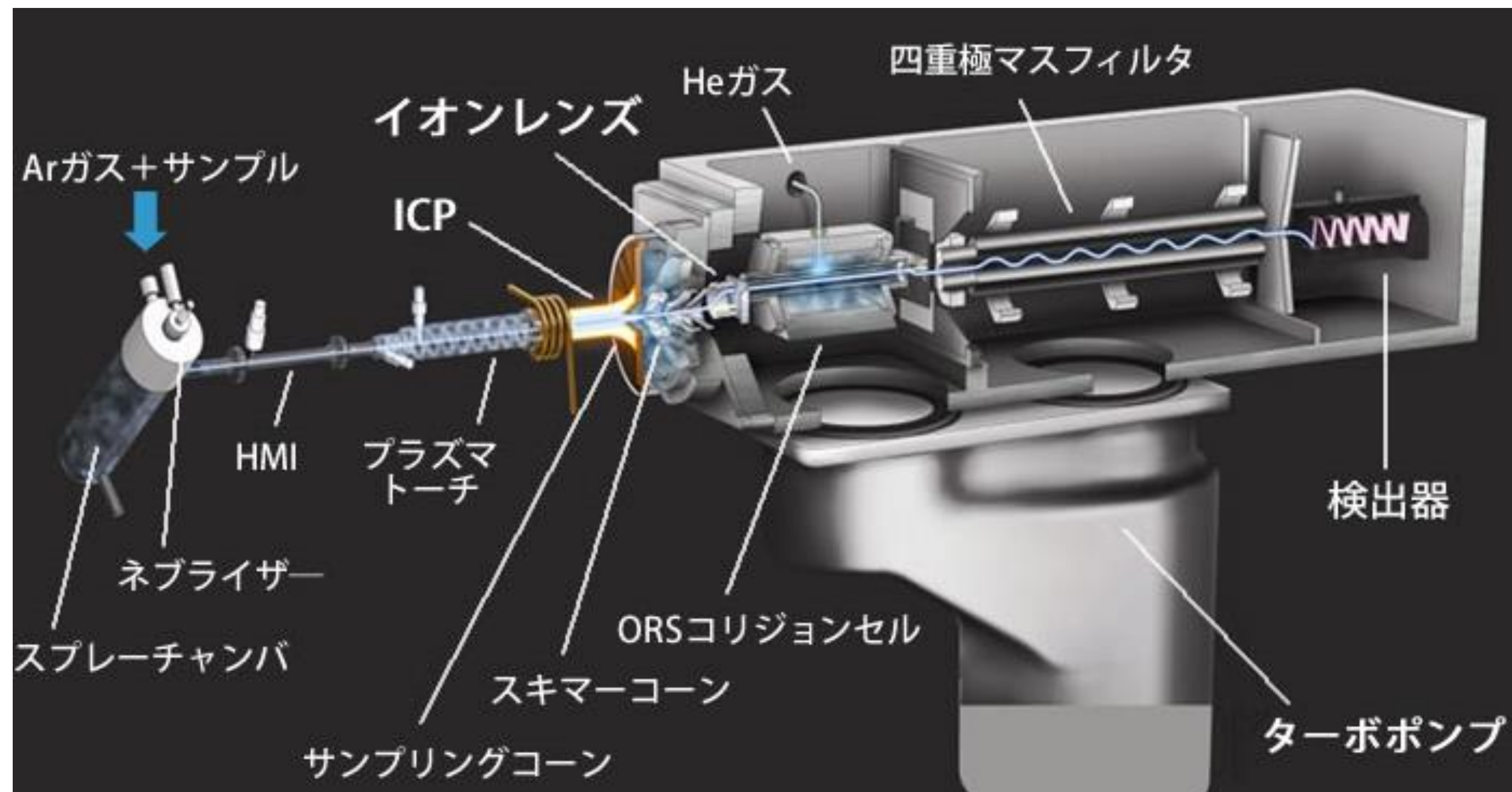
- 装置  
誘導結合プラズマ質量分析計( Agilent ICP-MS 7900 )
- 特徴
  - 高感度・低バックグラウンドな測定が可能(ppm~ppt)
  - 複数元素を同時に測定可能、かつダイナミックレンジが広い
  - 一度に複数サンプルの測定が可能



ppt (parts per trillion) =  $10^{-12}$

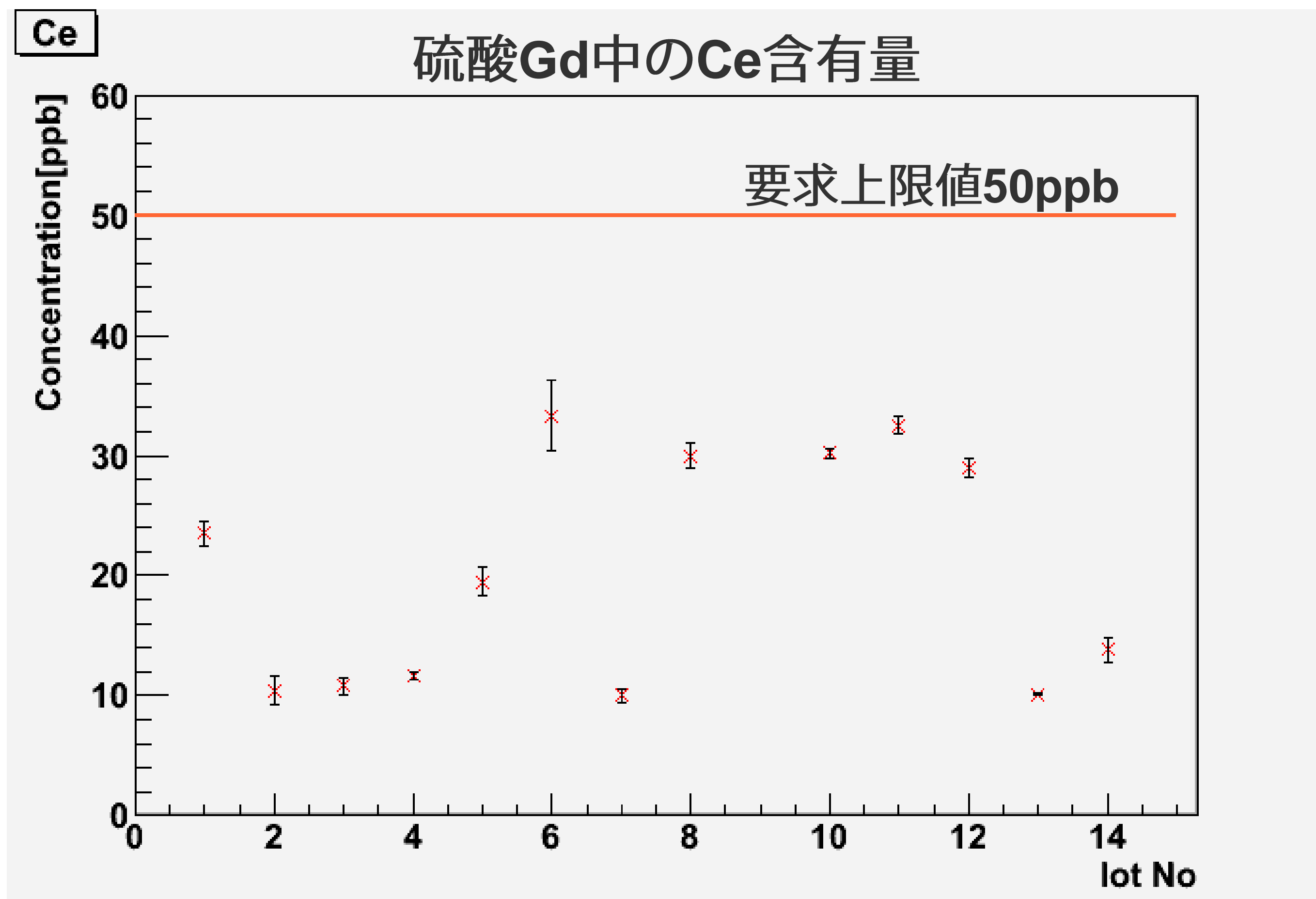


- 試料溶液を霧状にし、Arプラズマでイオン化させる。
- イオンを収束、四重極磁石で質量選択
- PMTでイオン数をカウントして濃度を見積もる

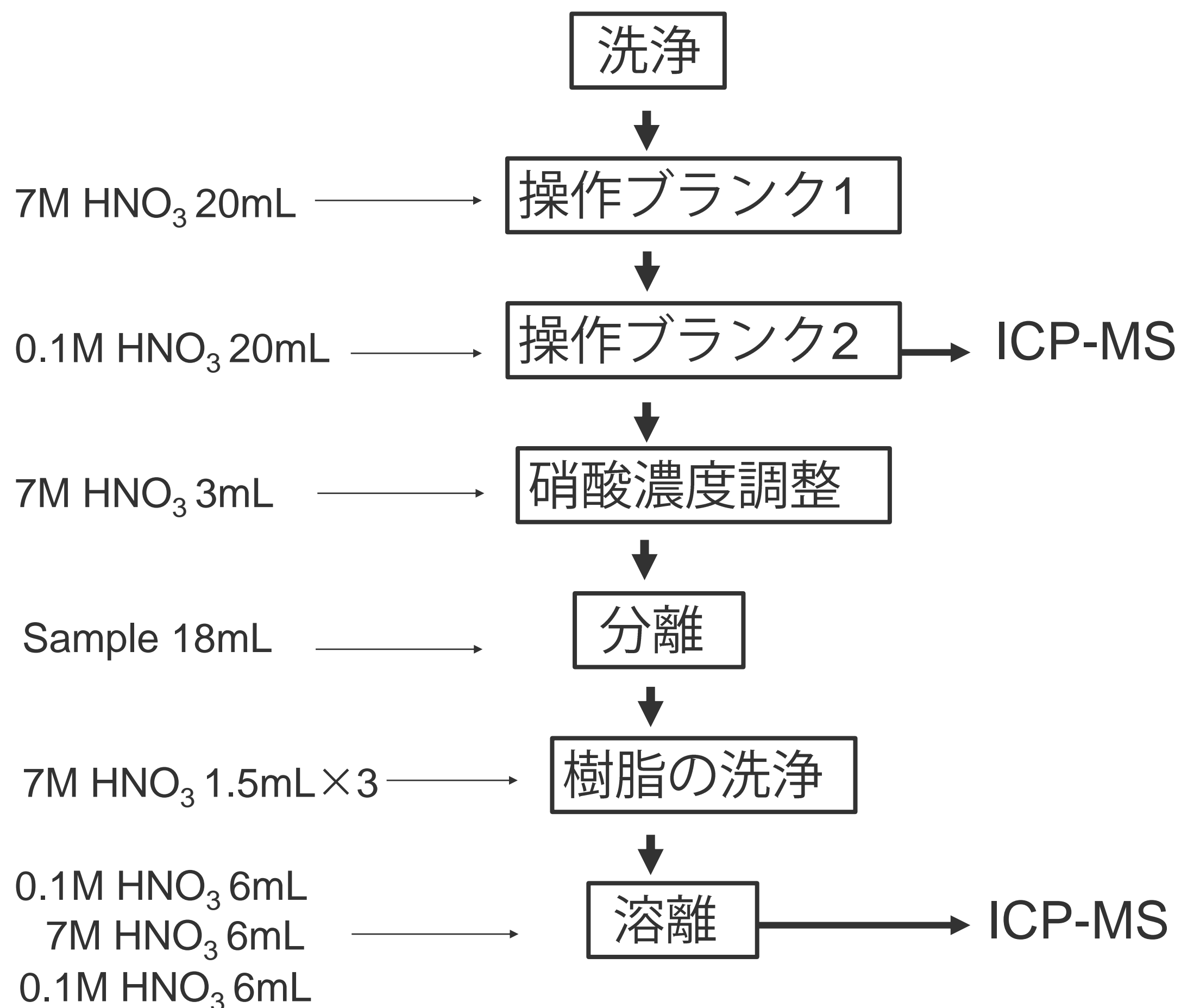




- 製造済みの20ロットのうち13ロットについて測定
  - SK導入用硫酸Gdロット#1~14(9を除く)の一回目の測定結果を示す。
  - 全てのサンプルが要求値を満たしている

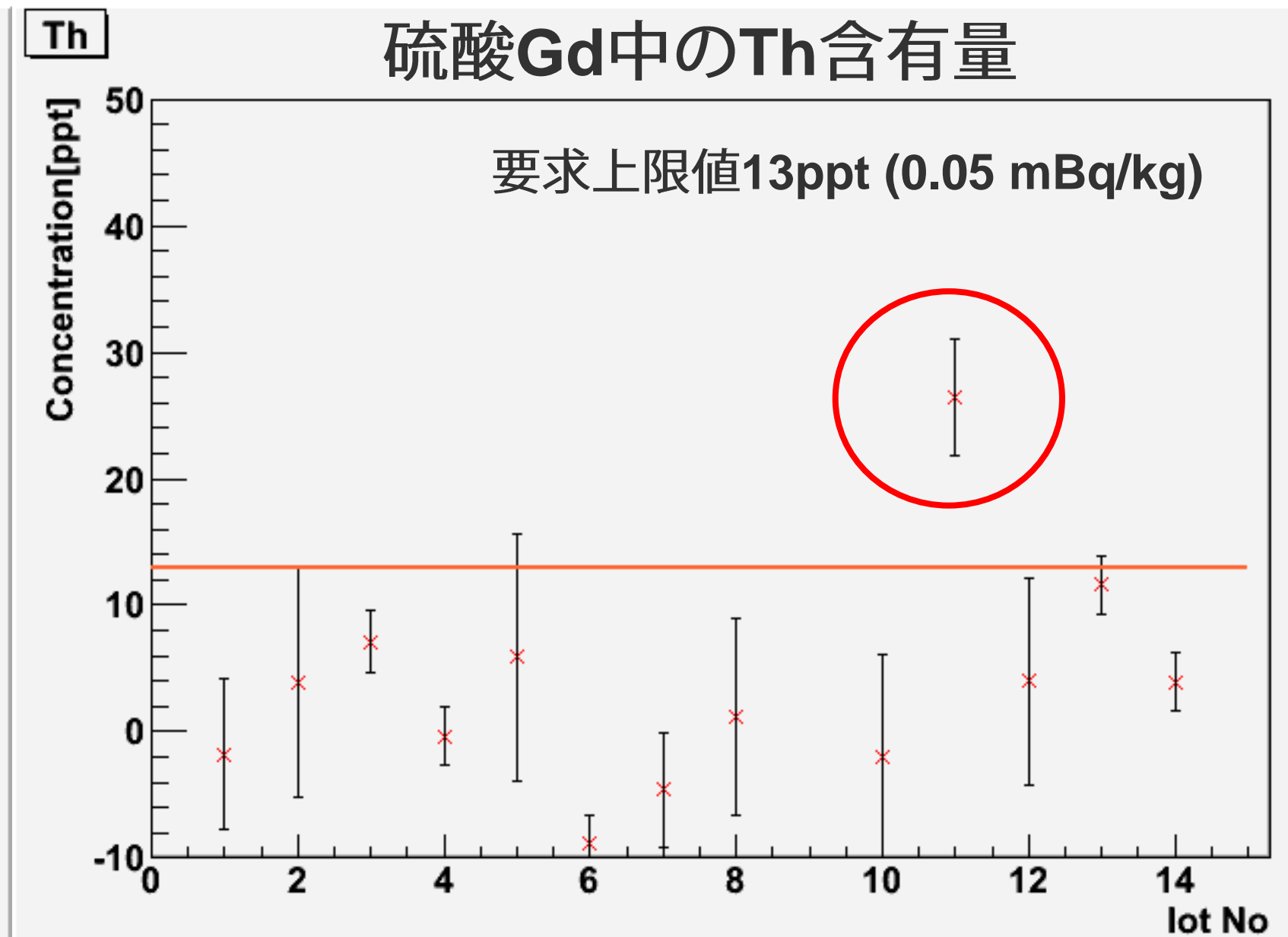
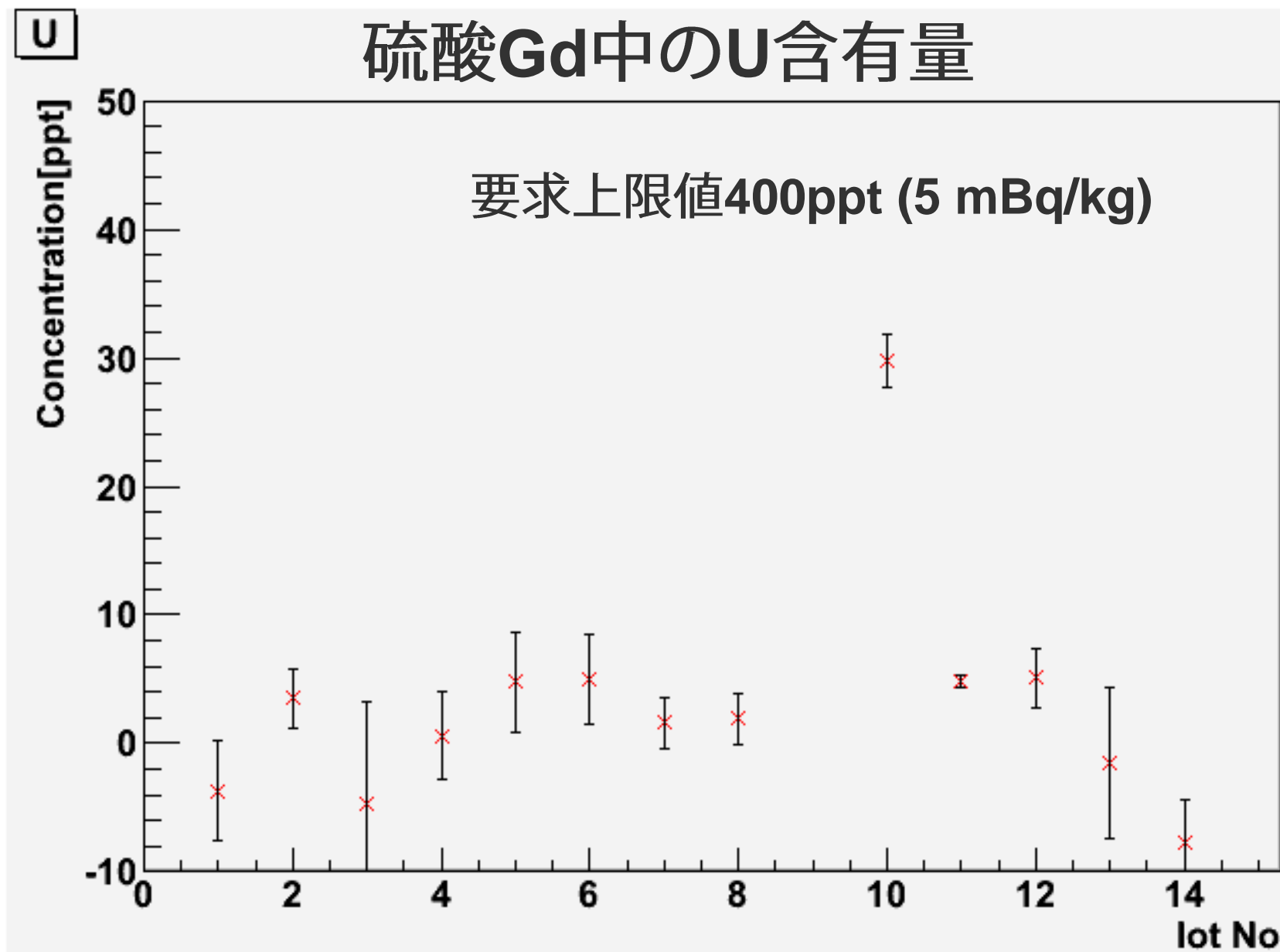


- U,Thに対しては固相抽出法を用いて、硫酸ガドリニウム溶液中からU,Thのみを抽出する。

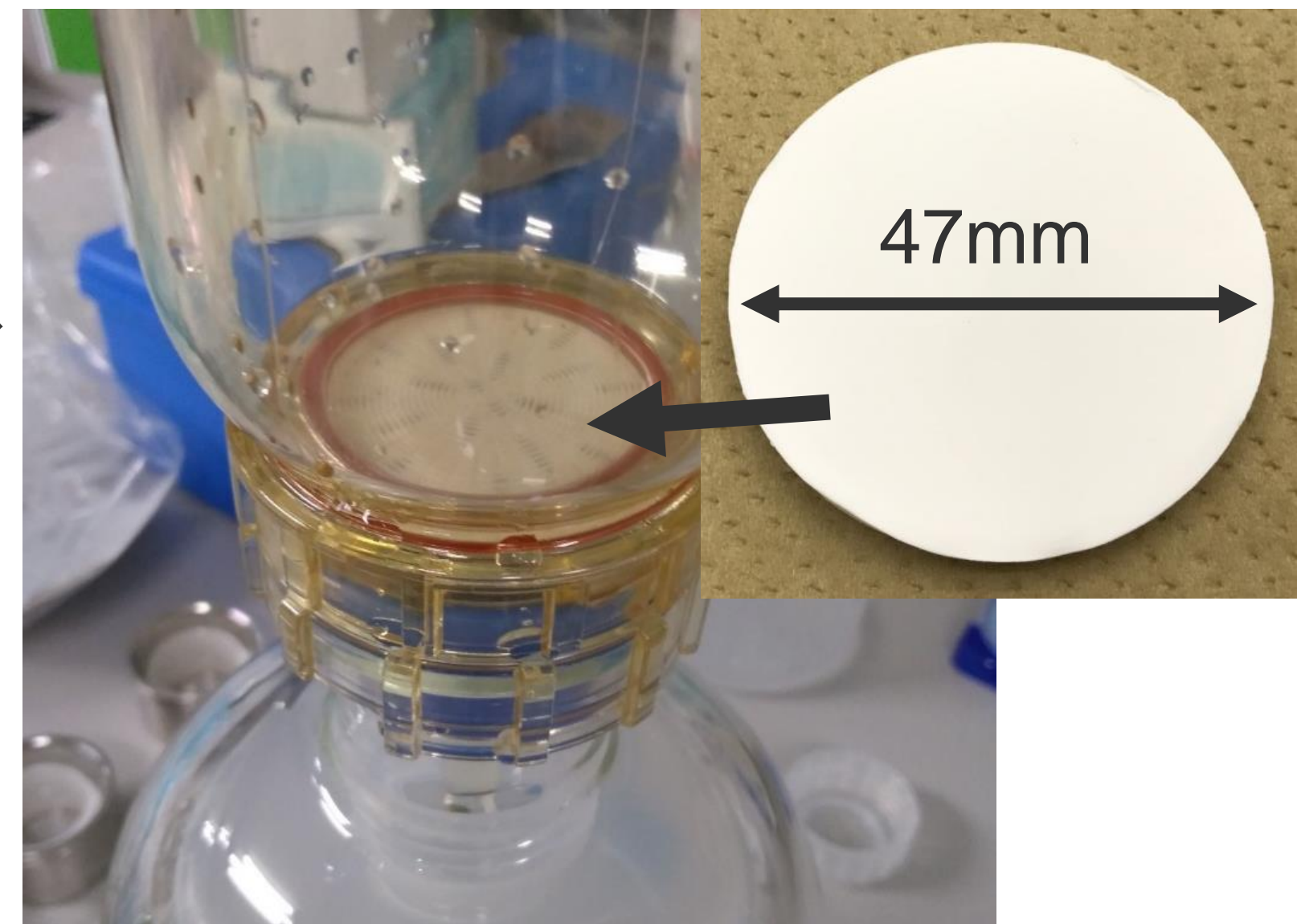




- 製造済みの20ロットのうち13ロットについて測定
  - SK導入用硫酸Gdロット#1~14(9を除く)の一回目の測定結果を示す
- ロット11で要求値以上の値が出た
  - 次回該当ロットの再測定を行う
  - 要求値を満たしていないことを確認した場合SKには導入しない

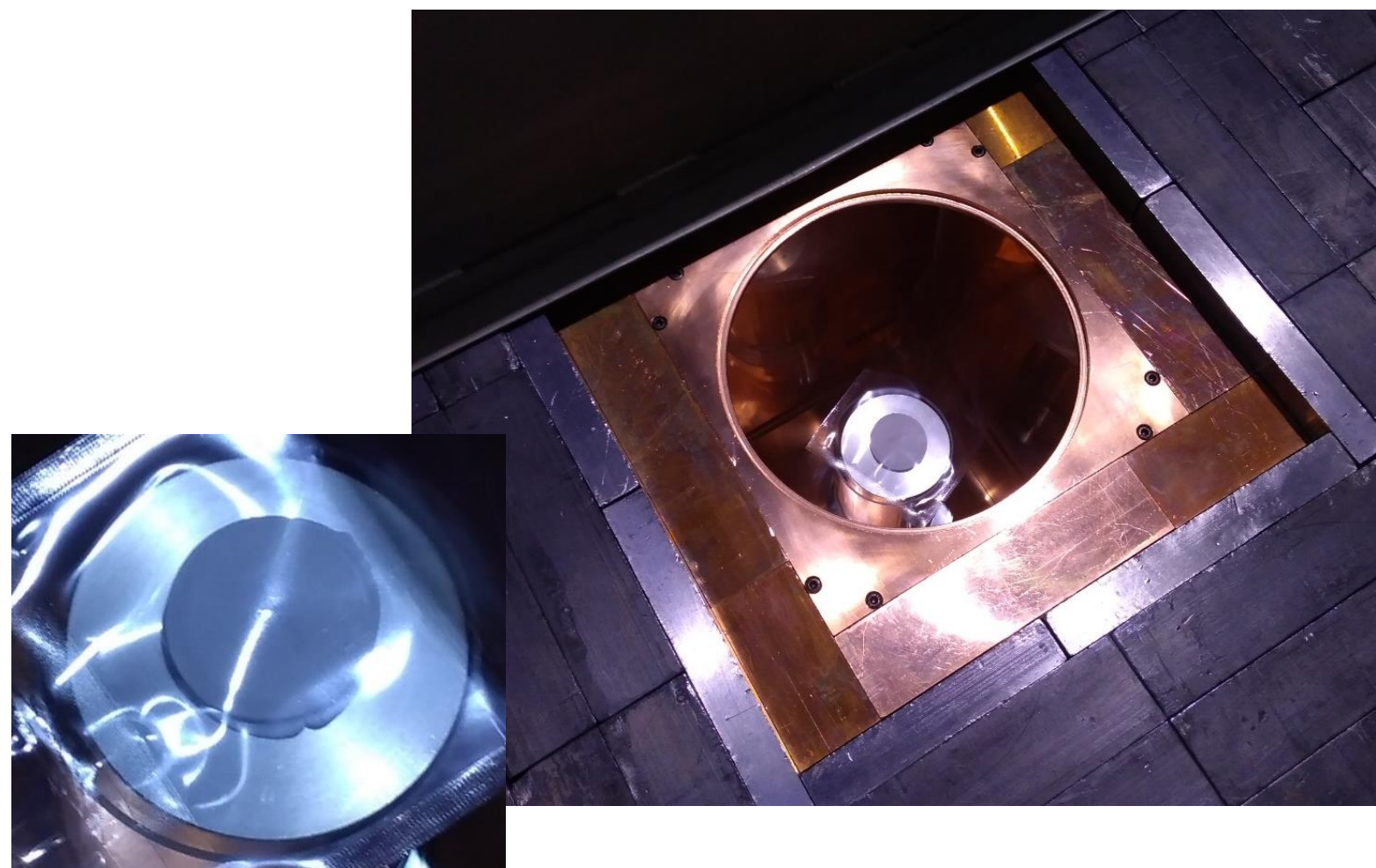


- Disk法
- ディスク(Empore Radium Rad Disk, 3M社) を使用
  - ➡濾紙にAnaLigRa-01が埋め込まれている
- AnaLigRa-01
  - 特定のイオン半径を持つイオンを吸着する分子認識樹脂
    - ➡Raの補足力が高く、他のイオンの干渉を受けにくい。
    - ➡化学的性質とイオン半径の近いBaを添加、ICP-MSで回収率を見積もる
  - pHによらず補足できる
- これに硫酸ガドリニウム溶液を通液させ、**Raを濃縮したサンプルを作成**
- 回収率はほぼ100%
- 測定はGe測定器@神岡を使用
- Raを含むサンプル(温泉水)を添加したものと、ソースを用いた試験で、感度も確認

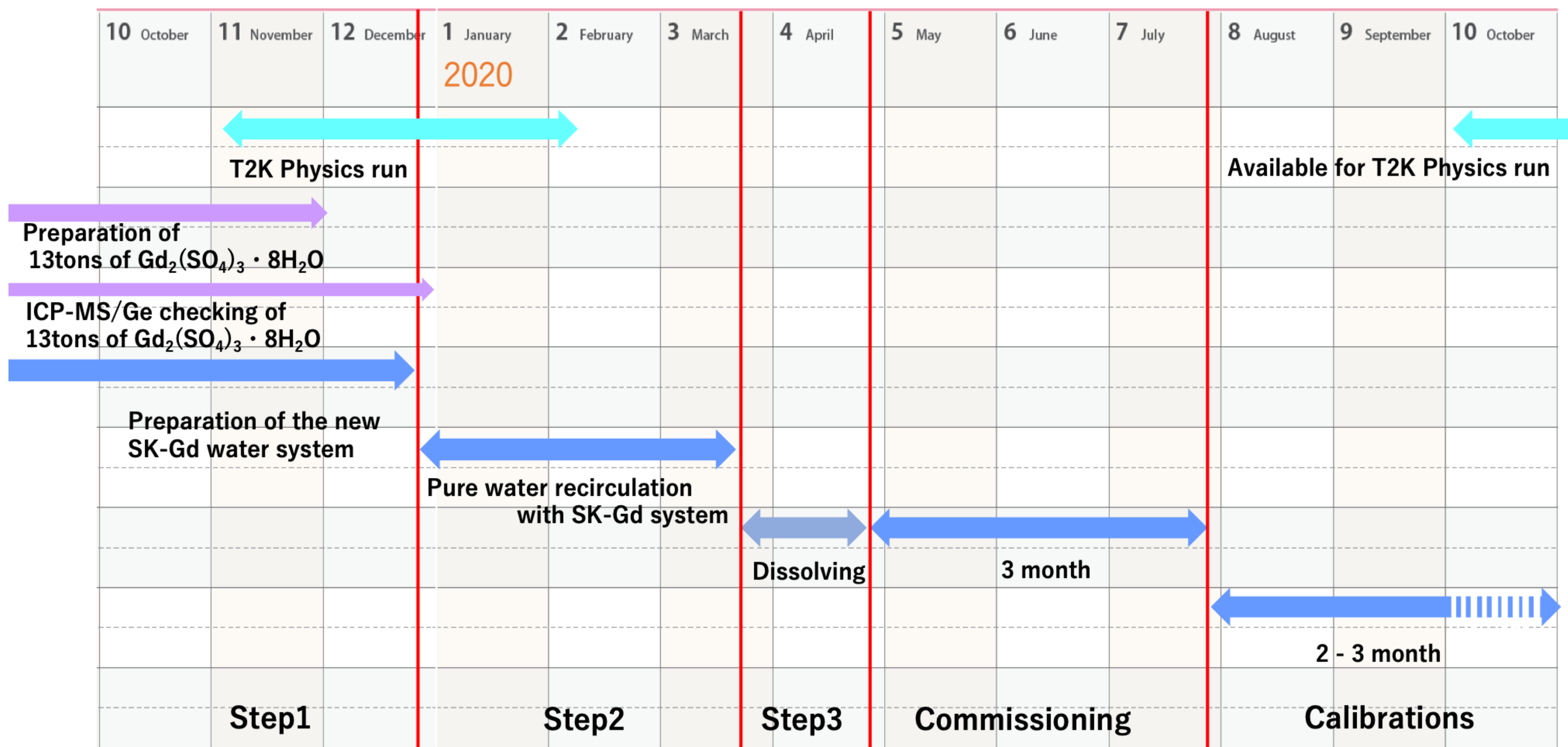




- 現在まで1ロット分測定を行った
  - ロット#6 硫酸Gd 520gを溶解した溶液からRaのみをディスクに吸着させたサンプルを測定
  - (測定時間4日間)
- 結果は $0.08 \pm 0.13$  mBq/disk (**< 0.47 mBq/kg at 90% C.L.**)
  - このサンプルについて要求値(**< 0.5 mBq/kg**)を満たすことを確認
- 現在、他のロットのディスクサンプルを作成中
  - 月末に第二弾を測定



- 2020年3月の0.01%のGd導入を目指している。
  - 今後も順次測定を行い、すべて(全28ロット分)の硫酸Gdについて不純物の測定を行う。
  - 要求値に満たさないものは使用しない。





- 年度内に0.01%Gd濃度でのSK-Gdを開始するため、硫酸ガドリニウムのスクリーニングを行っている。
- 各不純物の
  - Ce 測定
    - ここまで測定した13ロットのサンプルに関しては要求値を満たしている。
  - U,Th測定
    - ここまで測定した13ロットのサンプルの要求値を確認
    - ロット#11は再測定する
  - Ra測定
    - 要求値までの測定感度を確認、
    - ロット#6が要求値を満たしていることを確認
    - 現在、他のロットのディスクサンプルを作成中
- 今後も順次測定を行い、すべての硫酸Gdについて不純物の測定を行う
  - (Ce,U,Th測定の進捗は13/28ロット、Raの測定の進捗は1/28ロット)