



# SK-Gdにおける 硫酸ガドリニウム中の 不純物測定の結果

岡山大学 伊藤慎太郎

# 目次

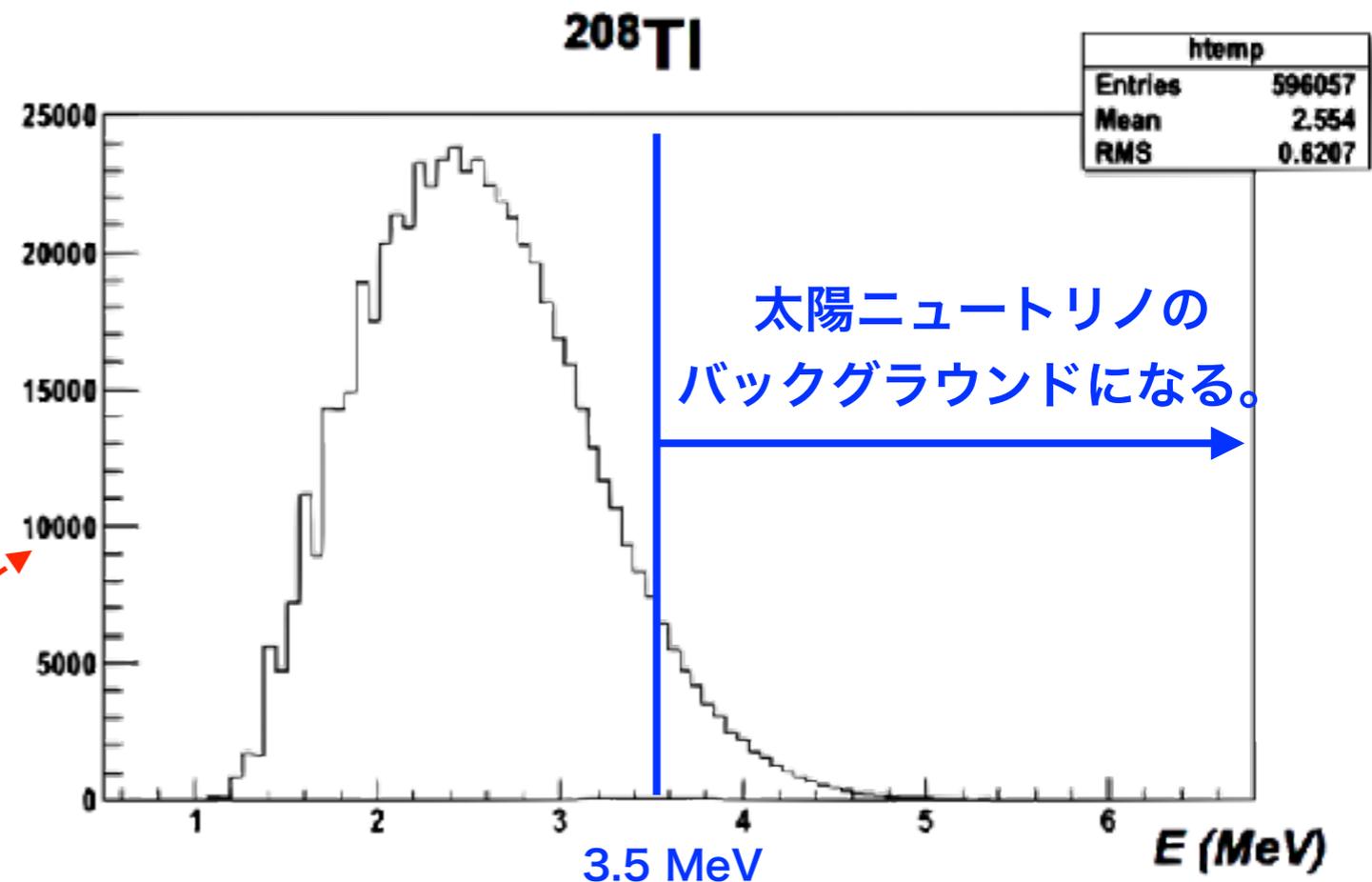
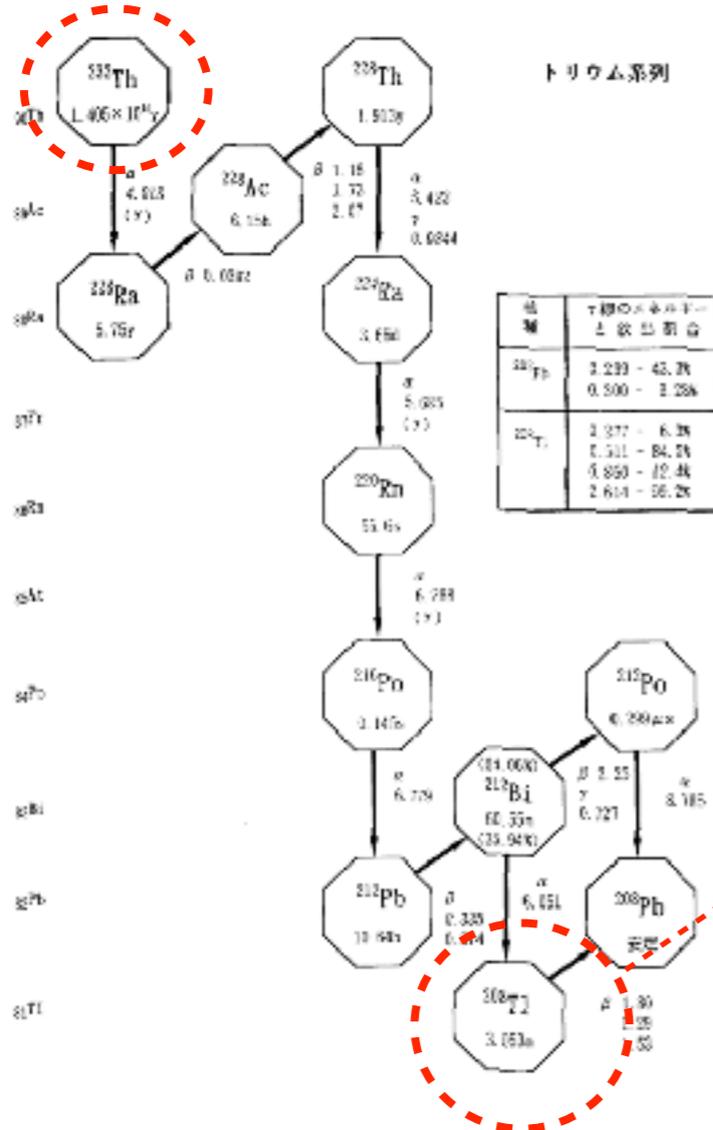
- ・ イントロダクション
- ・ 高純度の硫酸ガドリニウム
- ・ ICP-MS
- ・ Ge検出器
- ・ まとめ



# イントロダクション

- SK-Gd:スーパーカミオカンデ(SK)に硫酸ガドリニウム $Gd_2(SO_4)_3$ を0.2% (Gdで0.1%)を導入。まずは、0.01%のGdを溶解した。
  - 中性子の同時計測を可能にする。
  - 初の超新星背景ニュートリノの観測を目指す。
- SK:太陽ニュートリノ検出のため、高純度の超純水を使用

→ 導入する硫酸ガドリニウムも超高純度でなければならない。



3  $^{208}\text{Tl}$ の $\beta$ 崩壊のエネルギースペクトラム。

# イントロダクション

- いくつかの企業と一緒に超高純度硫酸ガドリニウムを製造してきた。
- 超微量の放射性不純物を高感度で測定する手法を開発。
  - 長寿命の核種 ( $^{238}\text{U}$  (4.5e9 y),  $^{232}\text{Th}$  (1.4e10 y)): **ICP-MS**
  - 短寿命の核種 ( $^{226}\text{Ra}$  (1.6e3 y) など): **Ge detector**
- これまでのR&Dの結果、一社がついにSK-Gdの要求を満たした。
  - 実際にSKに溶かす硫酸ガドリニウム13.2トン(0.01% Gd)のマस्पロ。
  - 7/14に溶かし始めて、8/17に全てを溶かし終えた。

Chain	Part of the chain	Typical	DSNB	Solar	Company A	Company B	Company C
$^{238}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	50	<5	–	<0.04	<0.04	<0.04
	$^{226}\text{Ra}$	5	–	<0.5	<0.2	<0.2	1
$^{232}\text{Th}$	$^{232}\text{Th}$	10	–	<0.05	0.02	0.06	0.09
	$^{228}\text{Th}$	100	–	<0.05	<0.3	<0.26	2
$^{235}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	32	–	<30	<0.4	<0.3	<1.3
	$^{227}\text{Ac}/^{227}\text{Th}$	300	–	<30	<1.5	<1.2	<3.1

# 放射性不純物の測定

- 昨年度に約30ロット (~500 kg/ロット)、SKに溶かす硫酸ガドリニウム合計13.2トンが納品された(0.01% Gd)。
- 各ロットが本当に実験要求値を満たしているか、硫酸ガドリニウムをSKに溶かす前に、ICP-MS-Geを使って全て測定した。



# ICP-MS U/Th測定

- ICP-MS (誘導結合プラズマ-質量分析) と 化学樹脂(UTEVA resin) を用いた、高感度でのU, Thの分析。
  - ➡ Gdによる干渉により、直接測定では感度に限界がある。
  - ➡ 樹脂を用いて、**硫酸ガドリニウムからU, Thを抽出して、**感度を上げる。 (S. Ito et al., PTEP 2017 11 113H01)



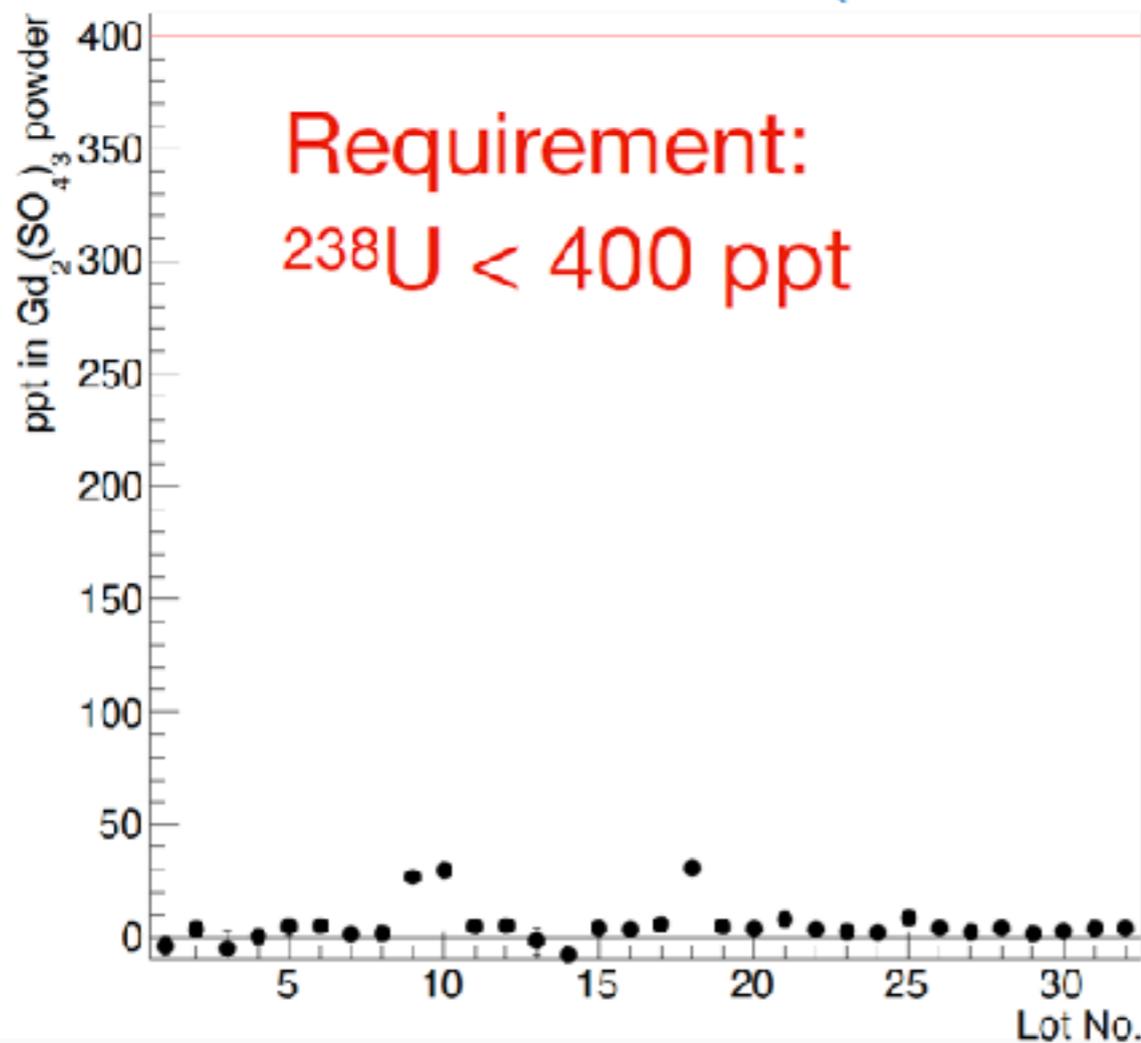
神岡のICP-MS Agilent 7900



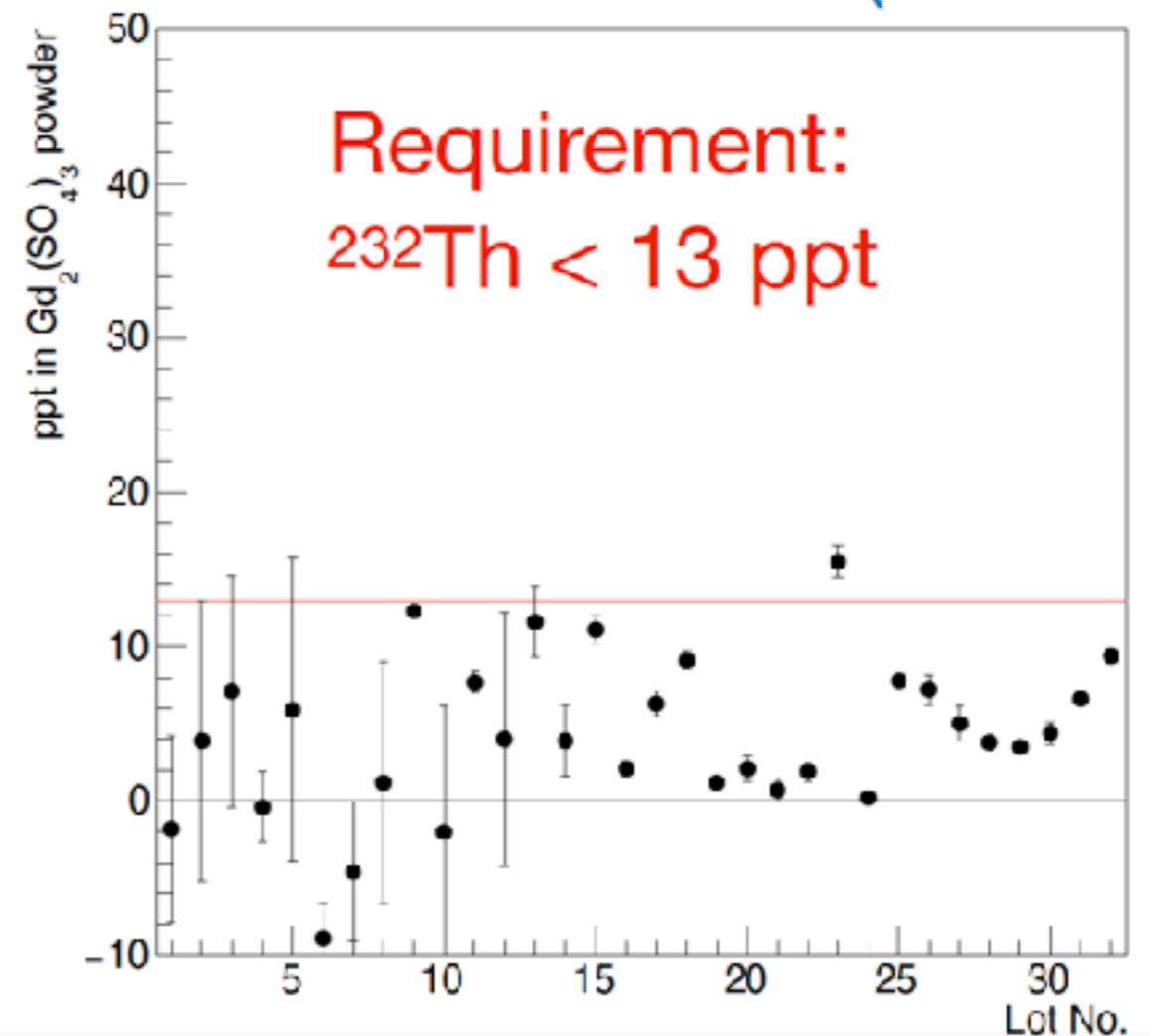
# ICP-MS U/Th測定

- 全ロットのICP-MS測定を行った。
    - $^{238}\text{U}$ は全ロット、要求値を満たしていることを確認。
    - $^{232}\text{Th}$ は1ロット、わずかに要求値をオーバー。
- ➡SKには溶かさずに、循環装置の樹脂用に使用。

## U contamination (ICP-MS)

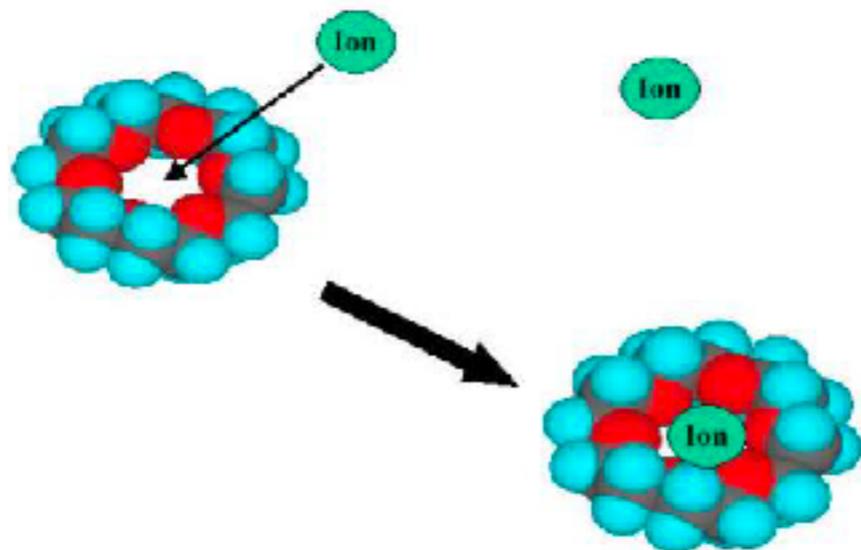


## Th contamination (ICP-MS)



# Ge検出器 Ra測定

- Raなどの短寿命の放射性元素はGe検出器で測定する。
  - 神岡 Ge検出器
  - Canfranc (スペイン) Ge検出器
  - Boulby (イギリス) Ge検出器 などなど
- 直接測定で、 $^{226}\text{Ra}$ を含む様々な放射性核種の測定。
  - ➔ 1ヶ月の測定で $^{226}\text{Ra}$ の感度は $\sim 0.5\text{mBq/kg}$
- より高感度かつ短時間でRaを測定するために、**Raの分離・濃縮。**
  - 特定のイオン半径をもつものを吸着する、分子認識樹脂に着目。
  - これを用いて、いくつか試験を行い、Raの濃縮が可能であることを確認。 ➔ S. Ito et al., PTEP 2018 9 091H01



分子認識樹脂の概略図

# Ge検出器 Ra測定

- 前述の試験結果をもとに、短い作業時間かつ高回収率の分析手法を研究。
- 前述の樹脂が埋め込まれたフィルター(通称ディスク)を使用。
  - 吸引ろ過を利用: **大量のサンプルを短時間で処理できる。**
  - Ra濃縮ディスクをGeで直接測定: 検出効率が**10倍以上**
    - **1週間の測定で<0.5 mBq/kg**の感度が得られる(通常は1ヶ月)。

**Accepted in PTEP**  
**(S. Ito et al., arXiv: 2006.09664)**



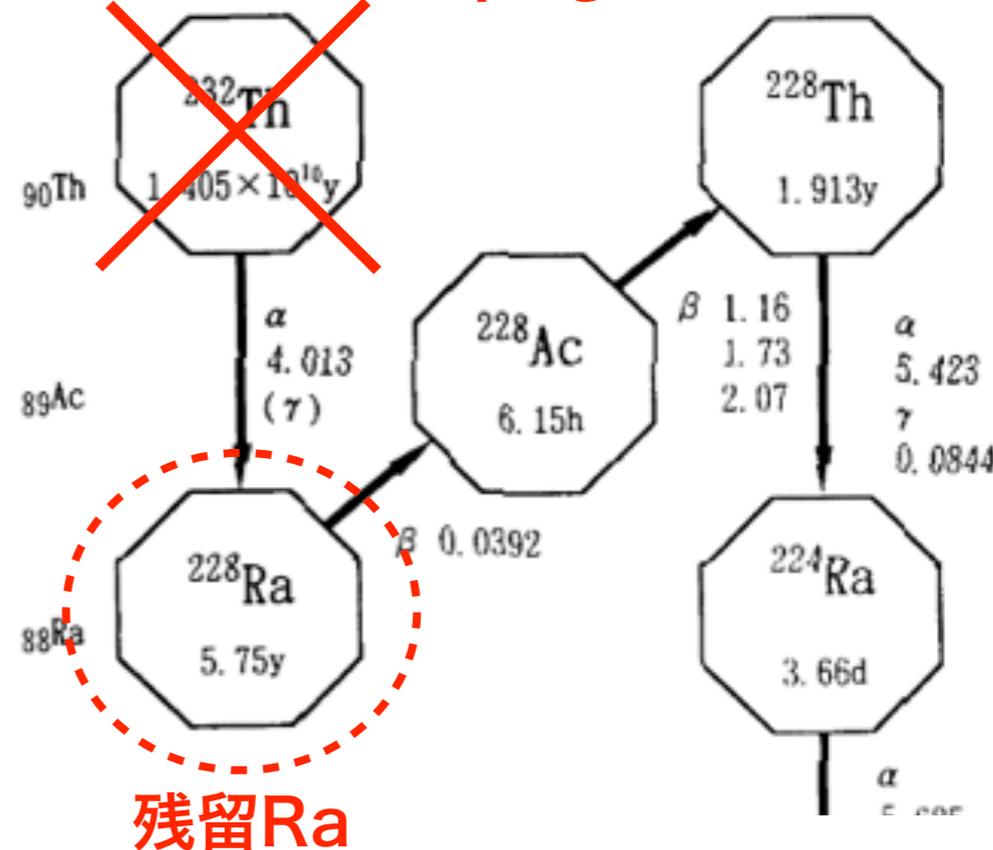
# Raに関して

- $^{226}\text{Ra}$ に関しては、要求値(<0.5 mBq/kg)を満たしていることを確認した。
- しかし、一部のロットで $^{228}\text{Ra}$ (トリウム系列、要求値<0.05 mBq/kg)が残っていることが分かった。
  - 製造の過程で、Thは除去できているが、Raの除去が不十分。
  - Raの量は原料(酸化ガドリニウム)に大きく依存する。
- 実験要求値は、0.1%Gdを想定した値であり、現時点では大きな問題にはならない。
- 将来、Gdを高濃度化する上で、製造過程でRaの除去率を上げる必要がある。



**現在、企業と高濃度化に向けた製造の打ち合わせ中。製造過程に新たなRa除去プロセスの導入を検討中。**

**除去 <0.05 mBq/kg**



# カウントレート Counts/Day in 4.5~5.5 MeV

タンクの上側

中心

タンクの底面

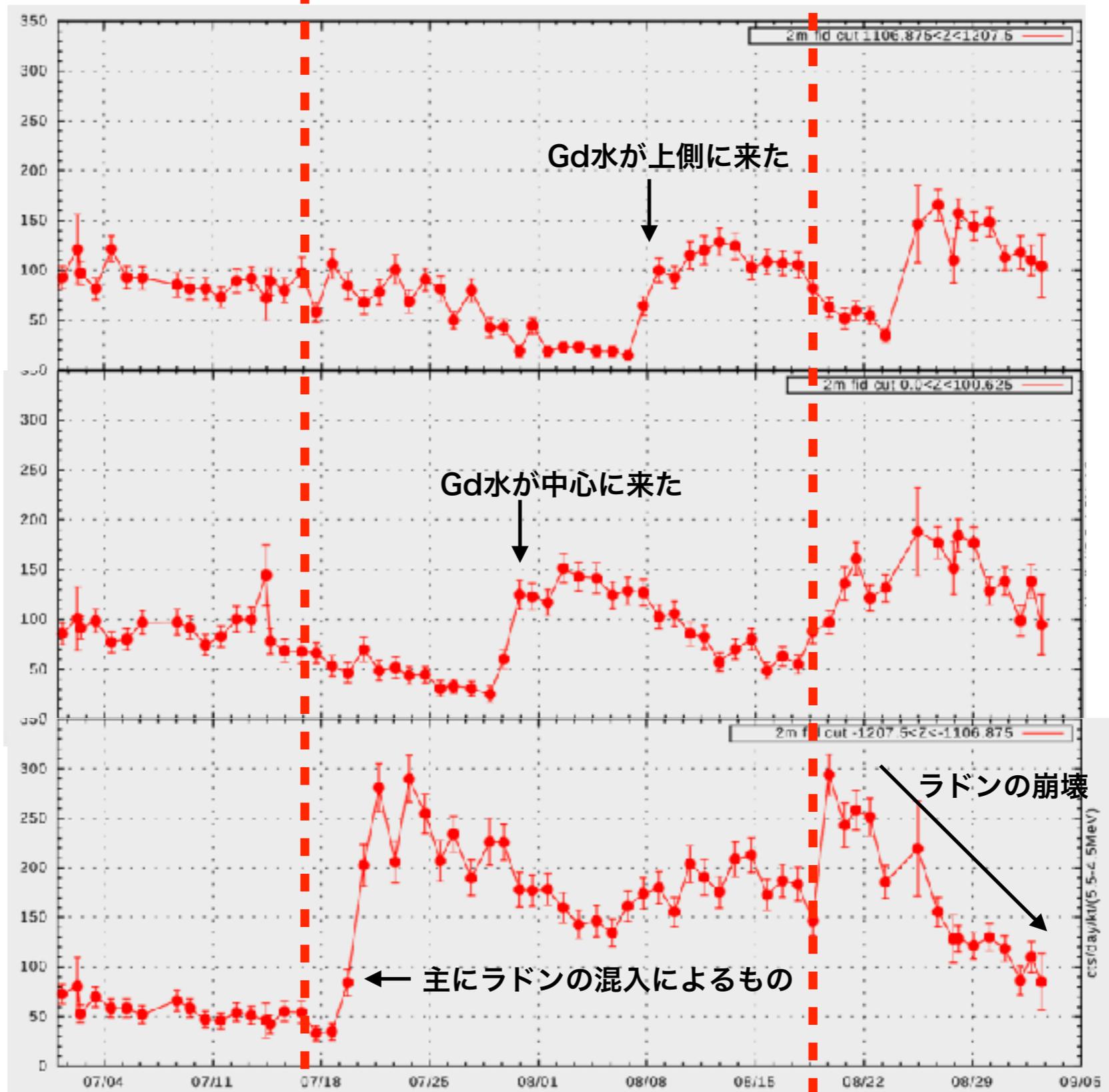
Z=+12m

Z=0m

Z=-12m

Gdを溶かし始めた日

Gdを溶かし終えた日



# まとめ

- SKに硫酸ガドリニウムを溶解して、中性子同時計測を可能にすることで、超新星背景ニュートリノの観測を目指したSK-Gdがついに開始した。
- まずは、13.2トンの硫酸ガドリニウム(Gdで0.01%, 約50%の中性子捕獲効率)を溶解。
- 実際にSKに溶解する硫酸ガドリニウム全てを分析。
  - $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ は基準を満たした( $^{232}\text{Th}$ は1ロットだけ、樹脂へ)。
  - 一部、 $^{228}\text{Ra}$ が残っていることが分かった。
    - ➡Gd高濃度化に向けて、企業と打ち合わせ中。
- カウントレートも大きな変動は見えない。
  - ➡対流を起こしてGdの濃度を均一にした後、より詳細に調査する。