



SK-Gd実験に向けた 準備状況及び将来計画

岡山大学 伊藤慎太郎

2020年1月6日 第六回超新星ニュートリノ研究会

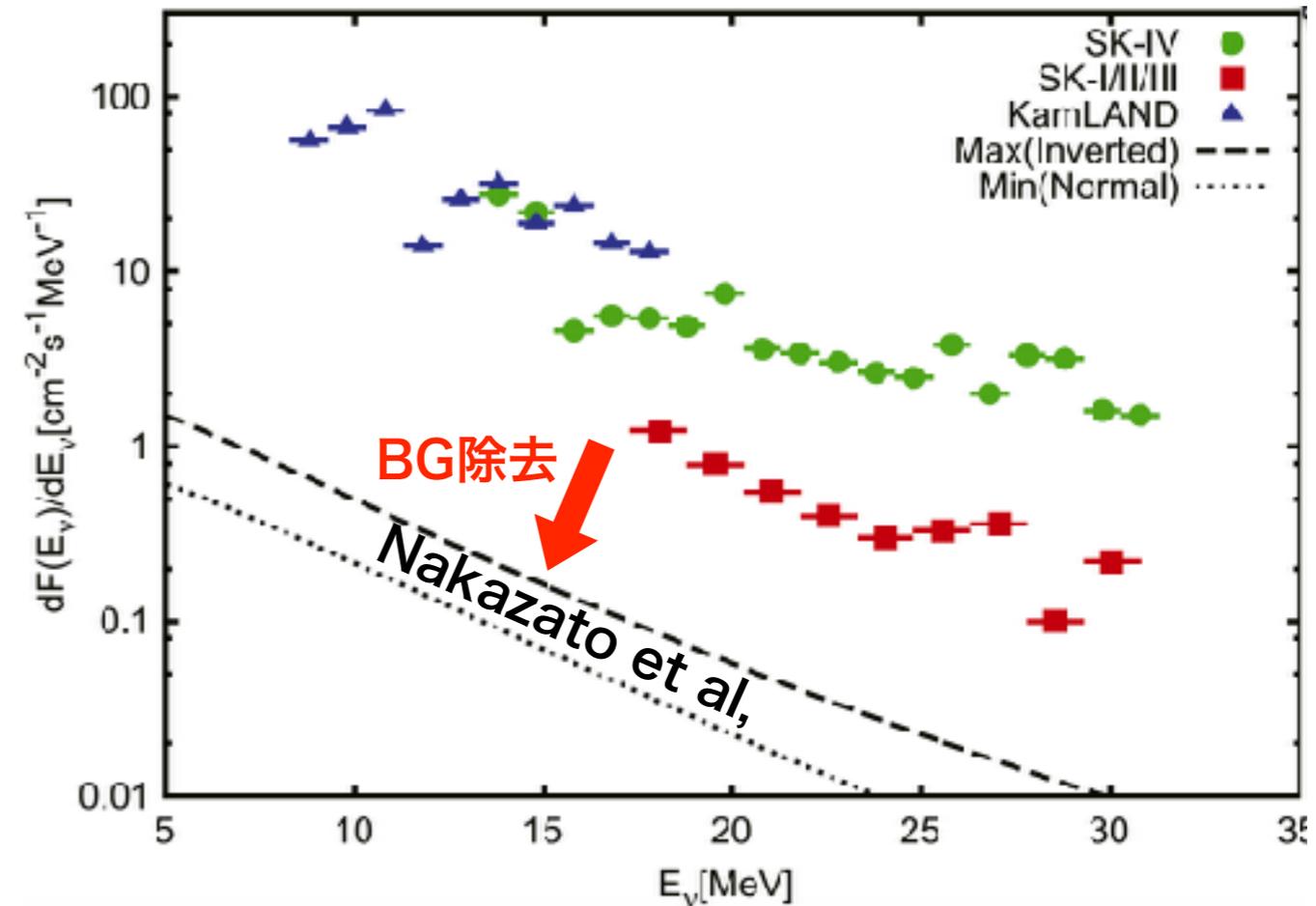
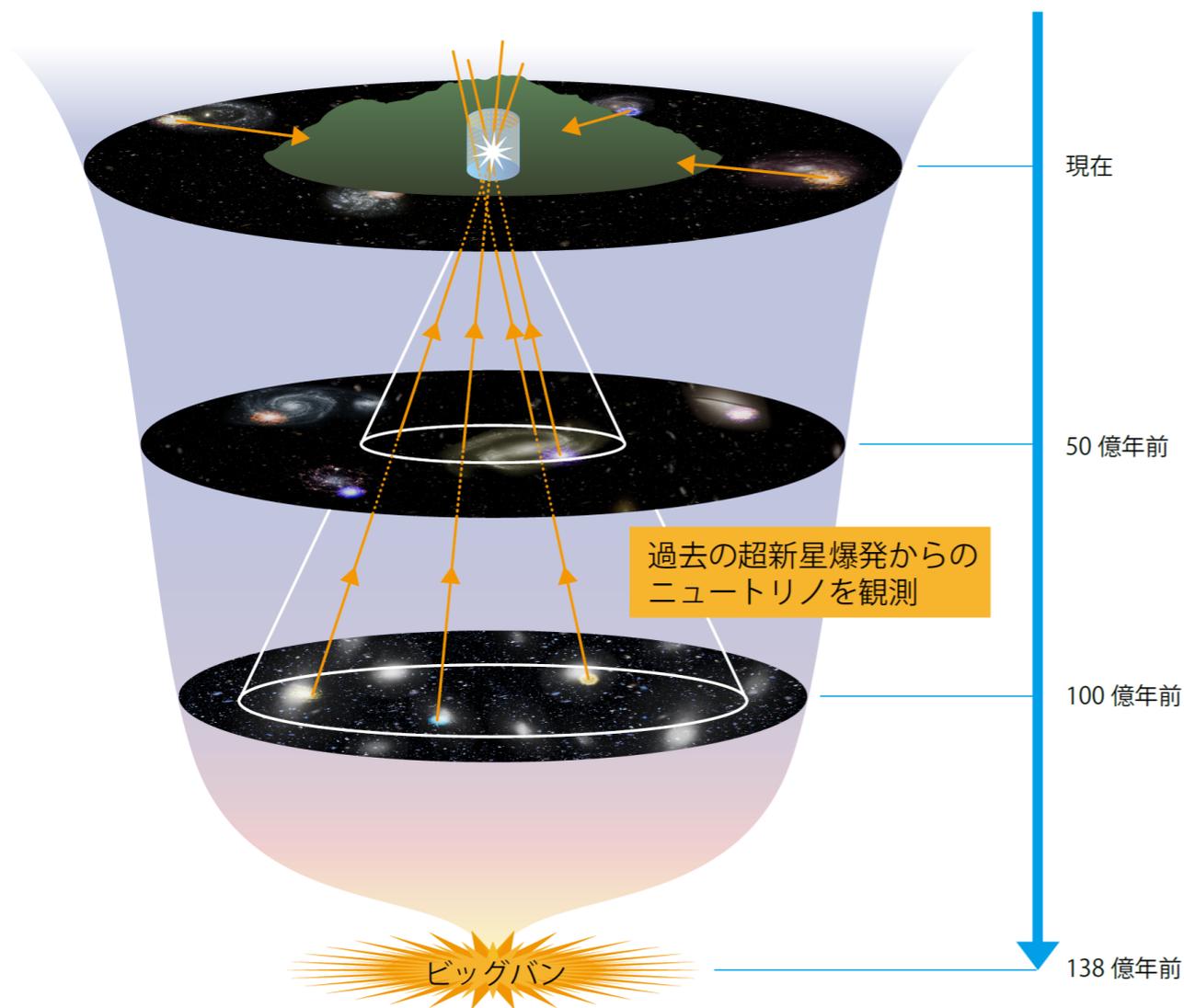
目次

- イントロダクション —SK-Gdプロジェクト—
- タンクオープン作業
- 硫酸ガドリニウムのスクリーニング
- 環境中の希土類元素の分析
- 今後の予定
- まとめ



イントロダクション —SK-Gdプロジェクト—

- Super-Kamiokande (SK):5万トンの超純水チェレンコフ検出器。
→ 様々なニュートリノの観測や陽子崩壊の探索を行ってきた。
- **超新星背景ニュートリノ (SRNs):**未だ観測されていない。
→ 大気ニュートリノ起源のバックグラウンドが支配的。

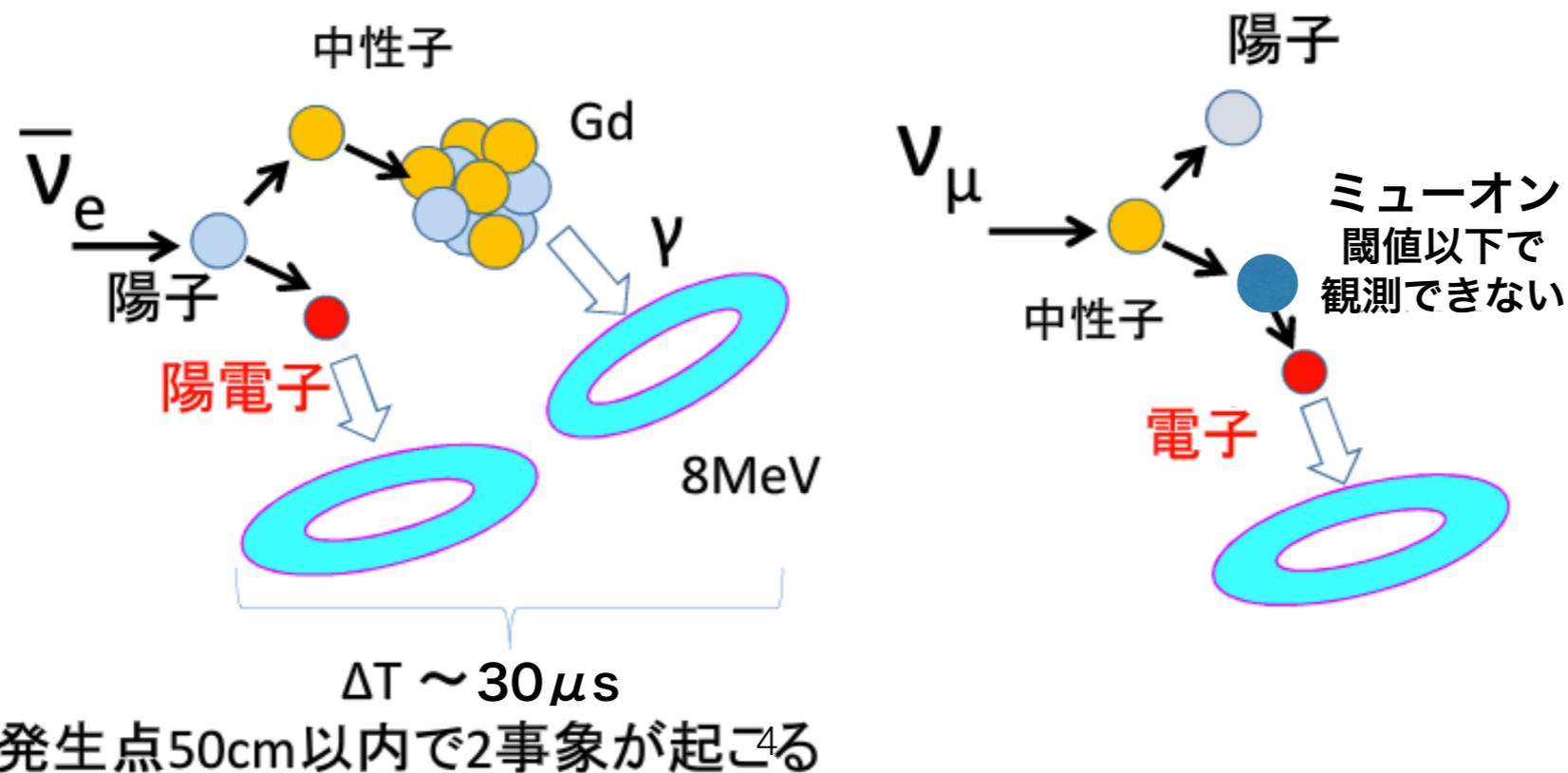


イントロダクション —SK-Gdプロジェクト—

- SKに高純度の**硫酸ガドリニウム**を溶解させる(SK-Gd)。
 - ガドリニウム(Gd)と中性子との反応断面積は大きい(~49,000b)。
 - 逆ベータ反応($\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$)より発生する陽電子と、Gdと中性子との反応より発生する γ 線との遅延同時計測を可能にさせる。
 - これにより、支配的だったバックグラウンドを除去できる。
- 0.2%の高純度の硫酸ガドリニウムを溶解させることで(Gdで約0.1%)、**約90%の中性子捕獲効率**が得られる。

超新星背景ニュートリノ(SRN)事象

バックグラウンド事象

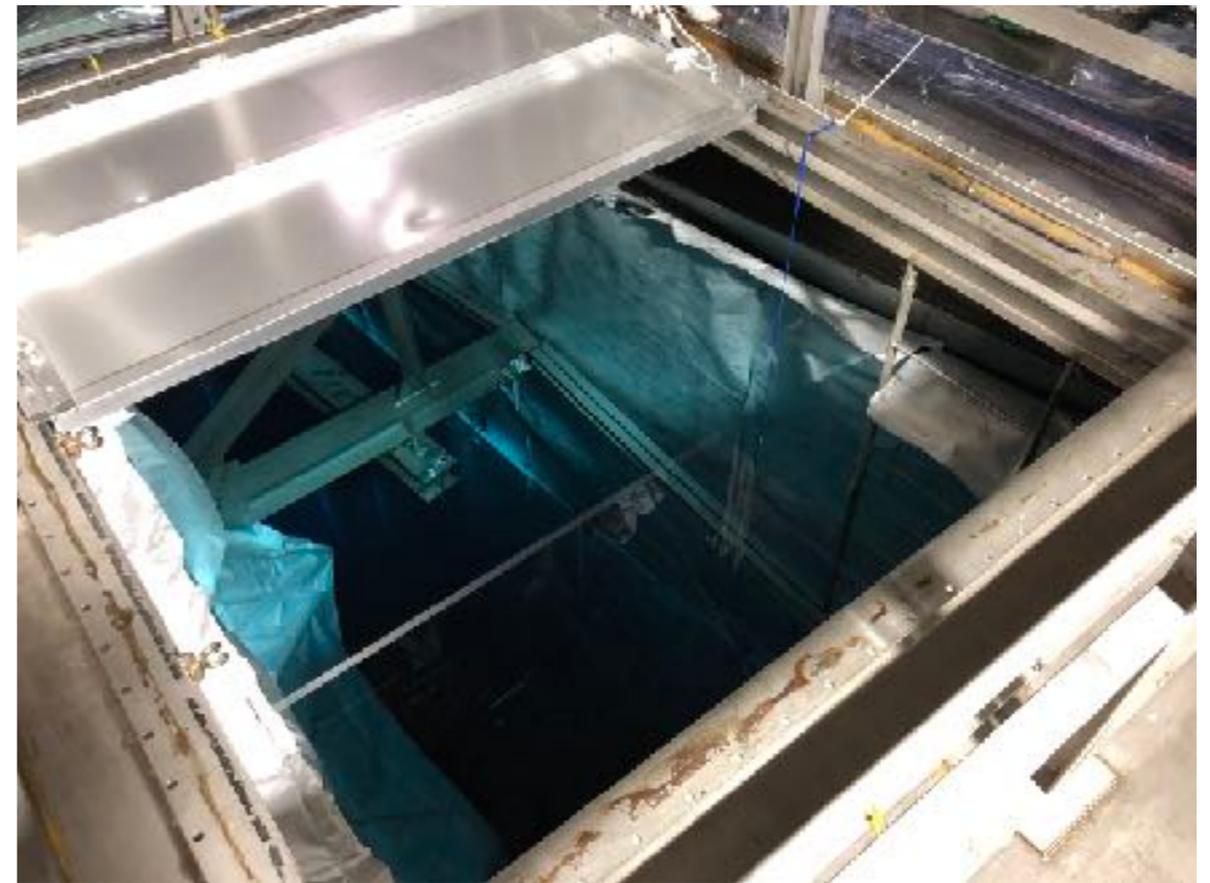


タンクオープン

- 2018年5月の時点で、SKは水漏れ(約1トン/day)があった。
- 環境へのGdの漏れを防ぐため、Gdを溶解させる前に、**SKタンクの水漏れを修繕しなければならない(目標:<0.03 トン/day)**。
- 2018年5月31日、SKでのニュートリノ観測を中断し、約12年ぶりにSKタンクを開けて改修工事、不具合のあるPMTの交換、クリーニング、配管増強作業などを行った。



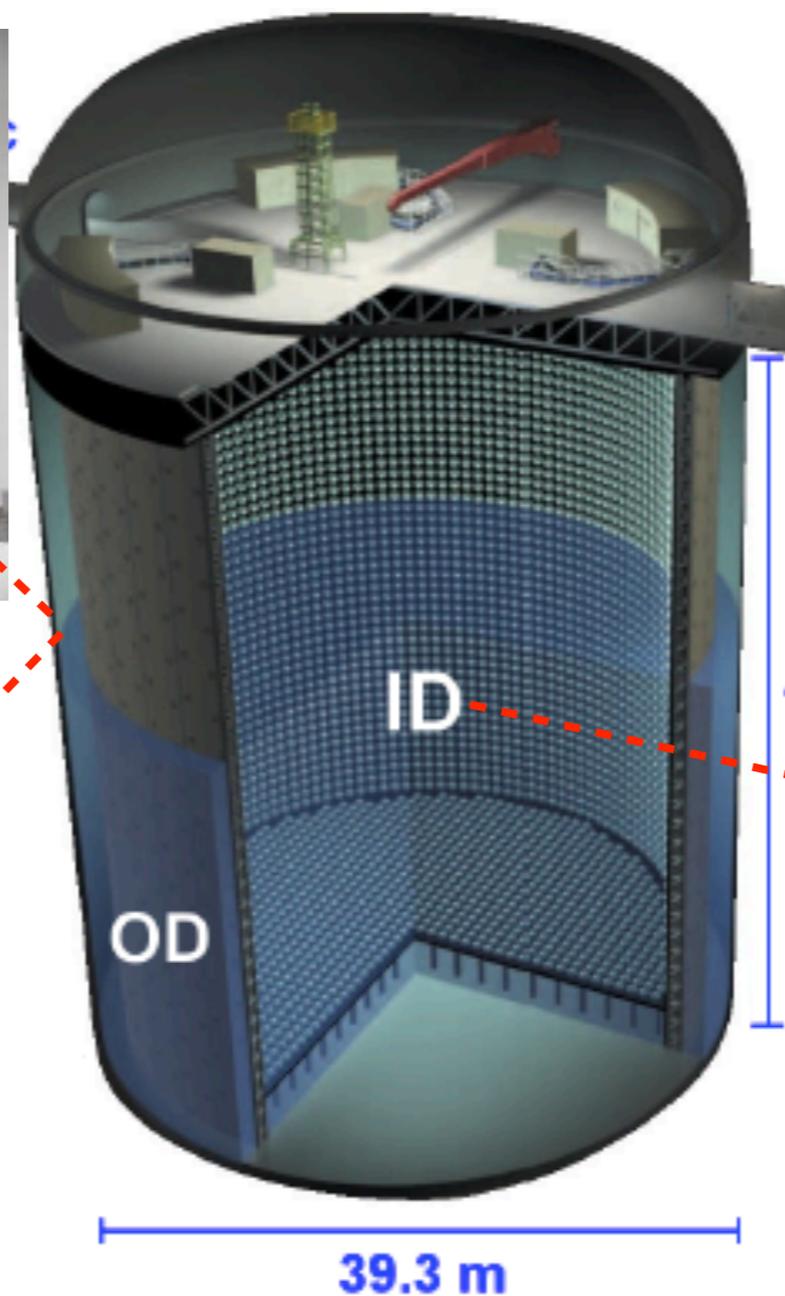
SKの観測を止める直前の最後のイベント
2018/5/31



床を外し(SKでのトップ側)、
タンクオープン作業開始。

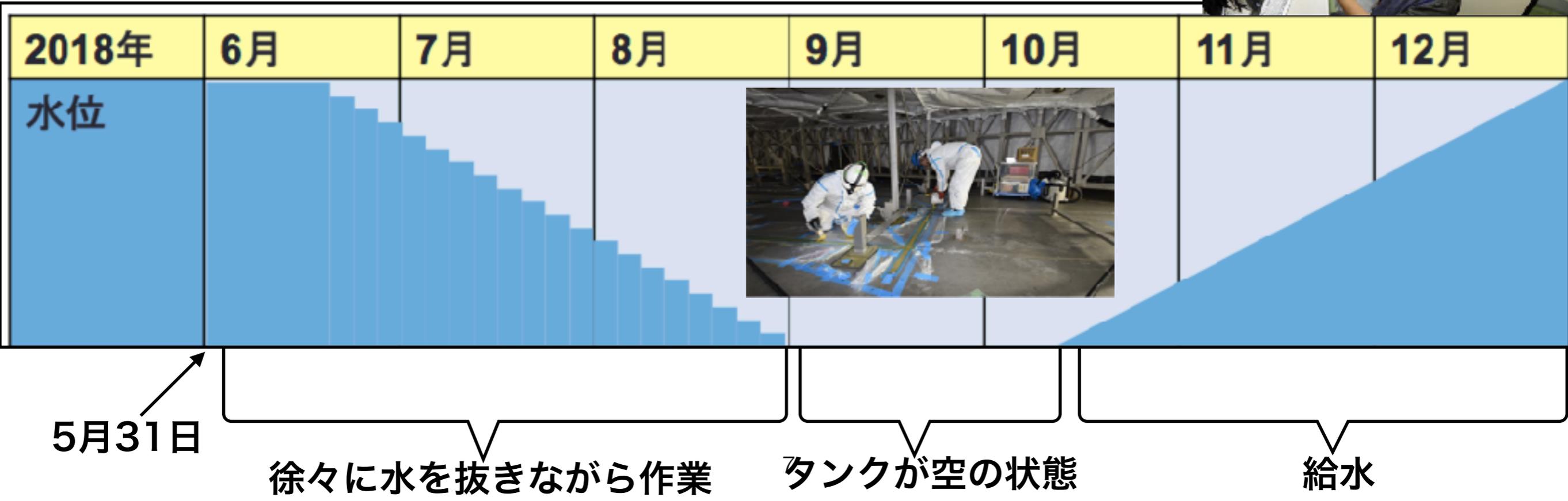
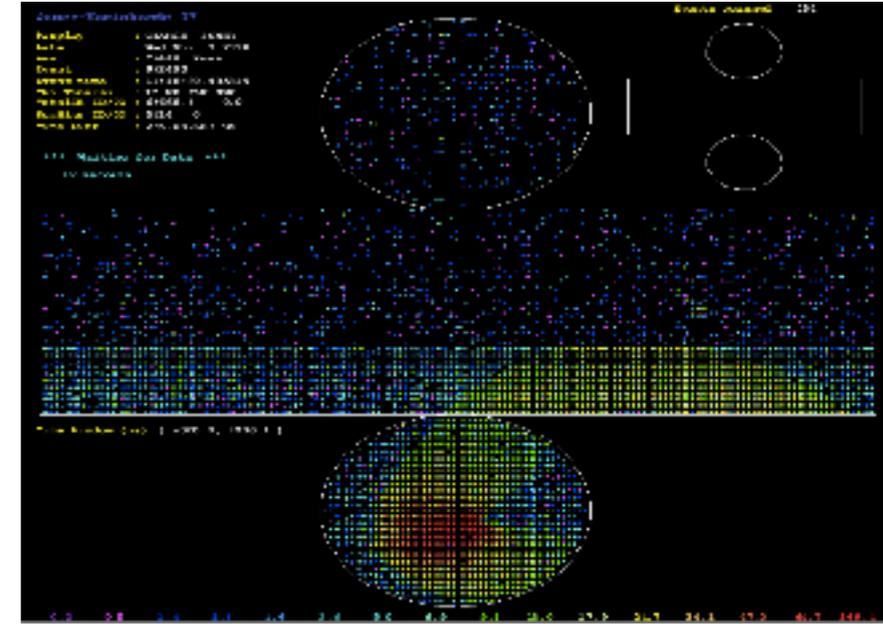
タンクオープン

- 浮床で作業。ゴンドラで出入り。
- 水抜き→タンクのクリーニング、止水作業、不具合のあるPMTの交換→水抜き→…
- 外壁の溶接部分を止水剤で塞ぐ。



タンクオープン

- 2018年8月末: タンクの水が全て抜けた。
- 2018年10月13日: 給水開始。
 - SK純水装置で給水(~30t/h)。
 - SK-Gd装置で純化(~60t/h)。
- 2018年11月7日: 観測を再開(約10m)。
- 2019年1月29日: 満水。全作業の完了。
 - 観測(SK-V)の再開と水漏れの量の測定を開始。



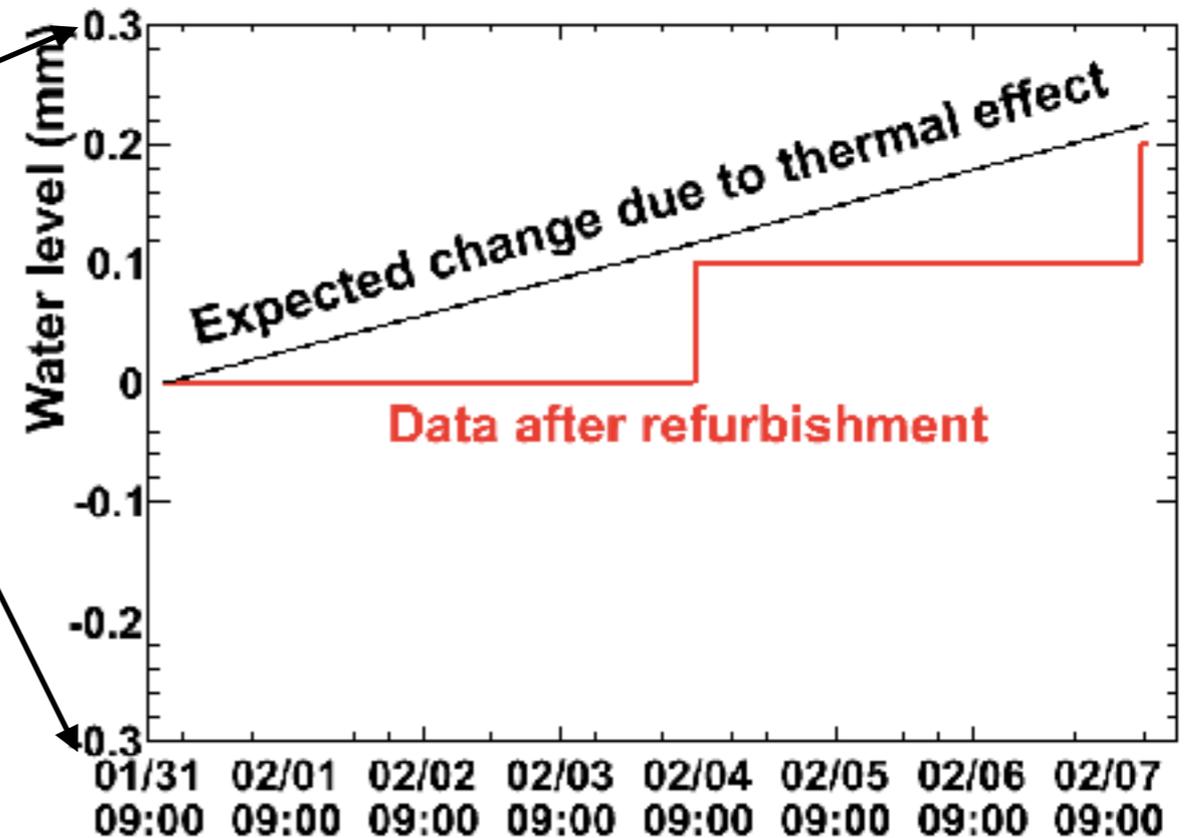
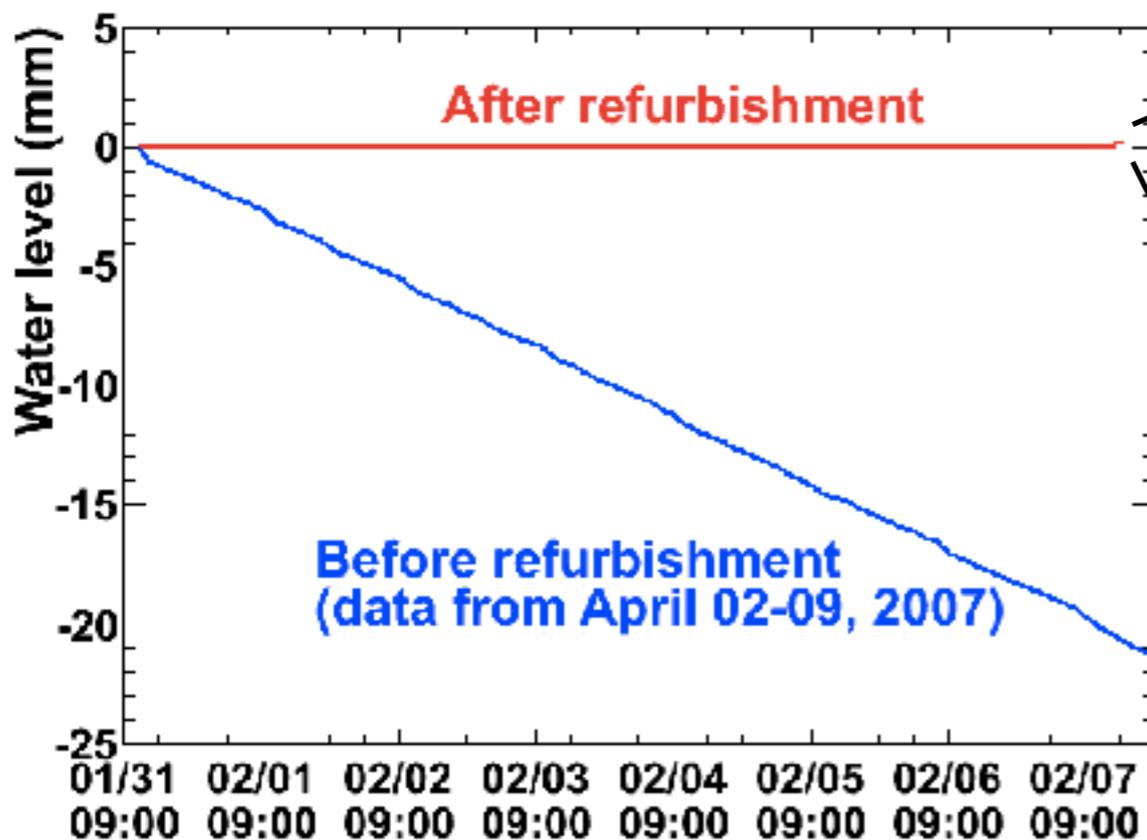
水漏れの量の測定

- 止水工事が完了したので、実際に水漏れがどれだけ抑えられたのかを測定した。
- 1/31 11時30分より、給水・循環を止めて、水位のモニターを開始した。
- 水漏れを精度良く観測するため、0.1mm(0.12トンに相当する)の精度の水位計をSKに導入した(改修工事前は約3 mm/day)。
- 2/7 15時52分まで測定を行った(合計 7日4時間22分)。

水漏れの量の測定

- 止水工事が完了したので、実際に水漏れがどれだけ抑えられたのかを測定した。
- 1/31 11時30分より、給水・循環を止めて、水位のモニターを開始した。
- 水漏れを精度良く観測するため、0.1mm(0.12トンに相当する)の精度の水位計をSKに導入した(改修工事前は約3 mm/day)。
- 2/7 15時52分まで測定を行った(合計 7日4時間22分)。

Zoom-in



水漏れの量の測定

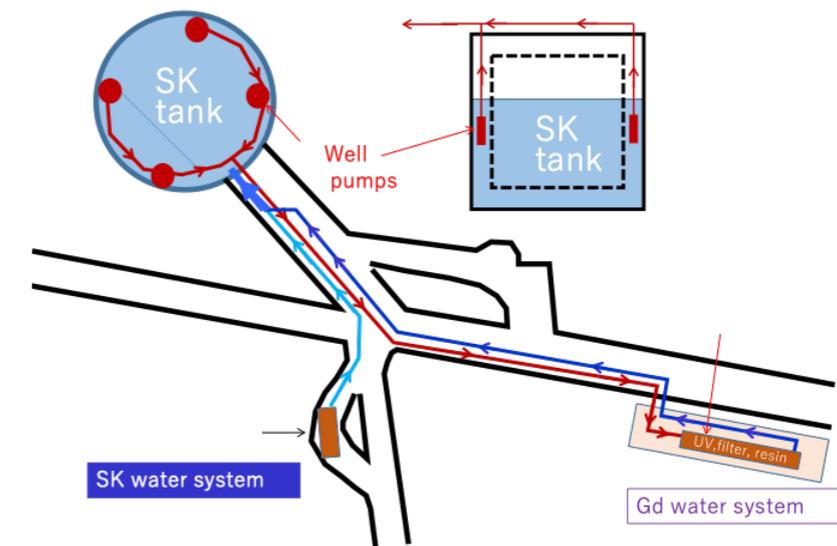
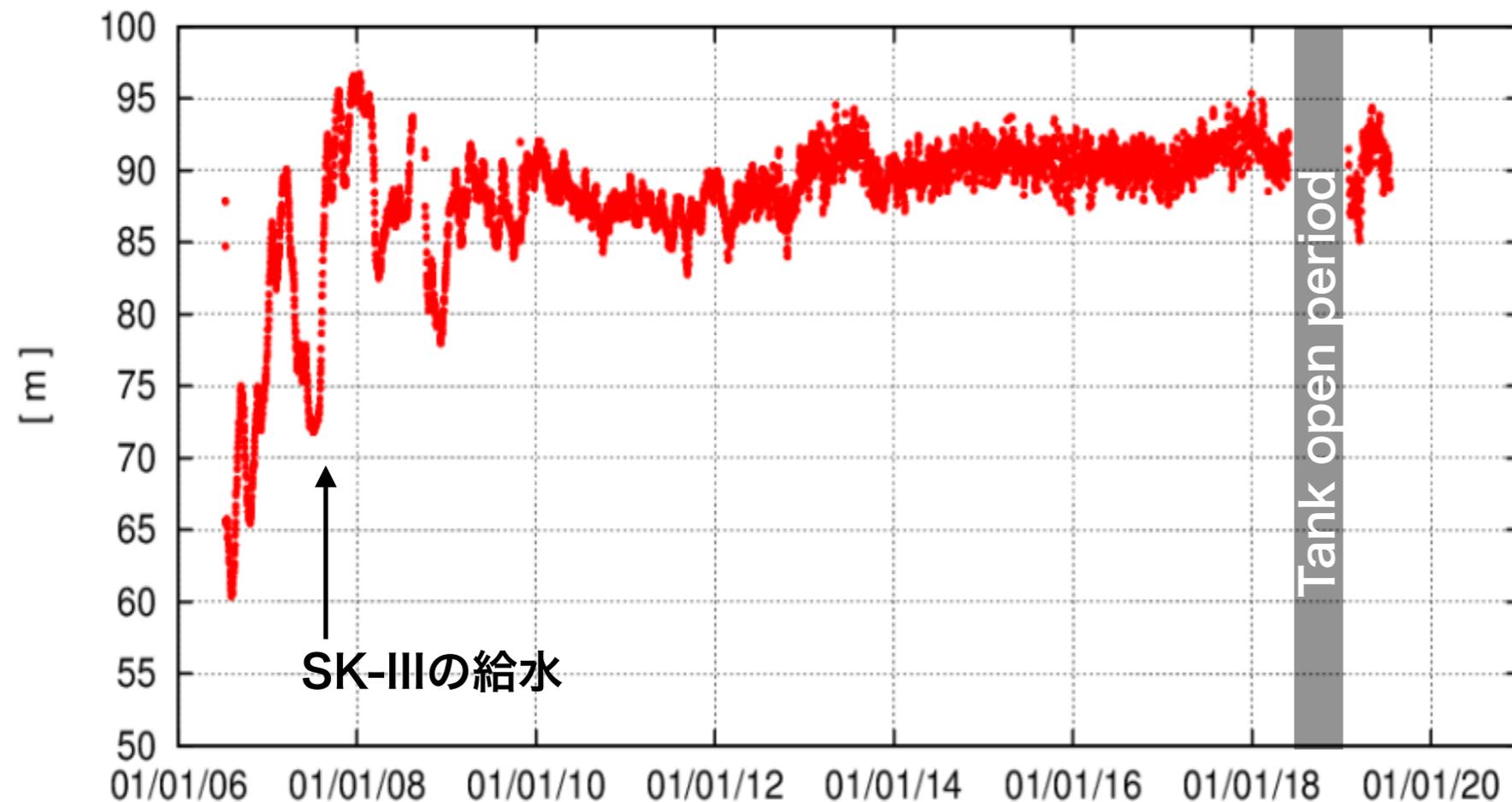
- 止水工事が完了したので、実際に水漏れがどれだけ抑えられたのかを測定した。
- 1/31 11時30分より、給水・循環を止めて、水位のモニターを開始した。
- 水漏れを精度良く観測するため、0.1mm(0.12トンに相当する)の精度の水位計をSKに導入した(改修工事前は約3 mm/day)。
- 2/7 15時52分まで測定を行った(合計 7日4時間22分)。
 - 有意な水位の減少が見られなかった。
 - 水漏れ量の上限値: <0.017トン/day (目標: 0.03トン/day)
 - タンク改修工事前と比べて<1/200。
- これで、予定通りSKに硫酸ガドリニウムを導入することができる。

SK collaborationのofficial statement

Currently we do not observe any water leakage from the SK tank within the accuracy of our measurement, which is less than 0.017 tons per day. This is less than 1/200th of the leak rate observed before the 2018/2019 tank refurbishment.

SK観測の現状

- 水漏れの測定と並行して、SK観測も開始した。
 - 給水中に循環も同時に行ったため、**タンクオープン前と同等の超純水の透過率**で観測を開始することができた。
 - また、検出器の校正やPMTのHVの調整なども行ってきた。
- ➔ 現在SK-Vのデータを解析中。



宇宙線ミュオンによる水の透過率

Gd導入に向けて —スクリーニング—

- ^{238}U 、 ^{232}Th といった長寿命の放射性元素やCe: ICP-MS
- ^{226}Ra などの短寿命の放射性元素: Ge検出器
- SK-Gdの要求値:
 - ^{232}Th : **0.05** mBq/kg (**13ppt**)
 - ^{238}U : **5** mBq/kg (**400ppt**)
 - Ce: 50ppb (ICP-MSで直接測定可能)
 - ^{226}Ra : **0.5** mBq/kg

硫酸ガドリニウム

- まずは、0.02%の硫酸ガドリニウムをSKに溶解する。
 - ➡ Gd用水循環装置の樹脂用と合わせて、**合計14トン**。
 - ➡ すでに、神岡に納品済み。
- 1バッチ500kg (一部500kg未満のものあり) ⇒ **合計29バッチ**。
- 各バッチ毎にトリウムとウラン、セリウムを分析。



スクリーニング —ICP-MS—

- 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, Ce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)

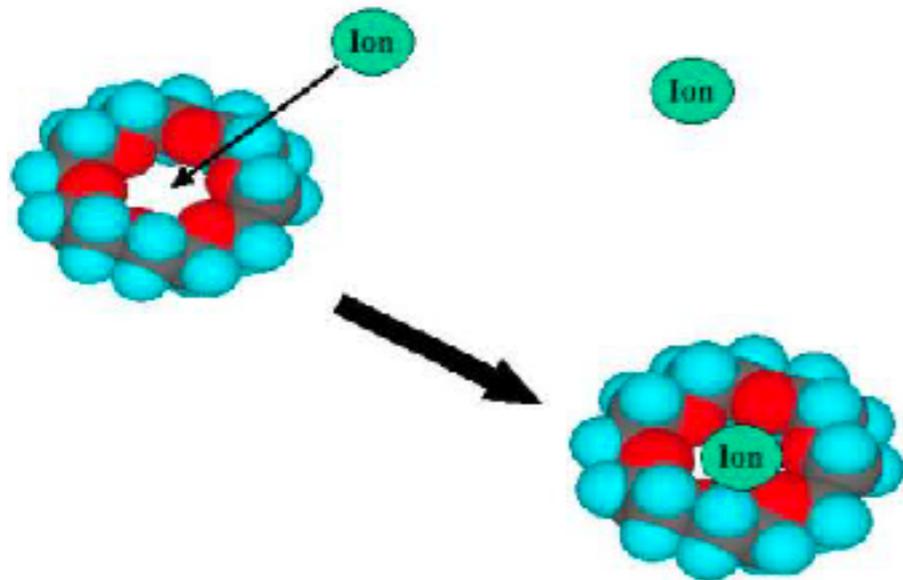


神岡のICP-MS Agilent 7900



スクリーニング —Ge検出器—

- Raなどの短寿命の放射性元素はGe検出器で測定する。
- 主なGe検出器
 - 神岡LabC Ge検出器: (D01の市村さん)
 - 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}Ra を含む様々な放射性核種の測定。
 - 1ヶ月の測定で ^{226}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

スクリーニング —Ge検出器—

- 現在、より高感度かつ短い作業時間での操作を開発中。
- 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。**
 - ディスクをGeで直接測定: 検出効率が**10倍以上**
 - **1週間で<0.5 mBq/kg**の感度が得られる(通常は1ヶ月)。
- 試験は完了しており、本番用の硫酸ガドリニウムを分析中。



スクリーニング —まとめ—

- ICP-MSによる分析は29ロット全て終了。
 - ^{238}U (<400ppt) と Ce (50ppb) は全バッチが基準を満たしている。
 - ^{232}Th (<13ppt) は1バッチが基準をオーバー (~30ppt)。
 - ➔ SKには溶かさず、循環装置の樹脂に使用予定。
 - ➔ オーバーした原因を企業と協議中。
- Ge検出器による分析。
 - 約2/3の分析が終了している。
 - 概ね基準を満たしているが、一部 ^{226}Ra が少し高い???
 - ➔ ディスクでの高感度分析中。
 - SK導入までに、残り1/3を終える。
- 2020年春に硫酸ガドリニウムの溶解を目指す。

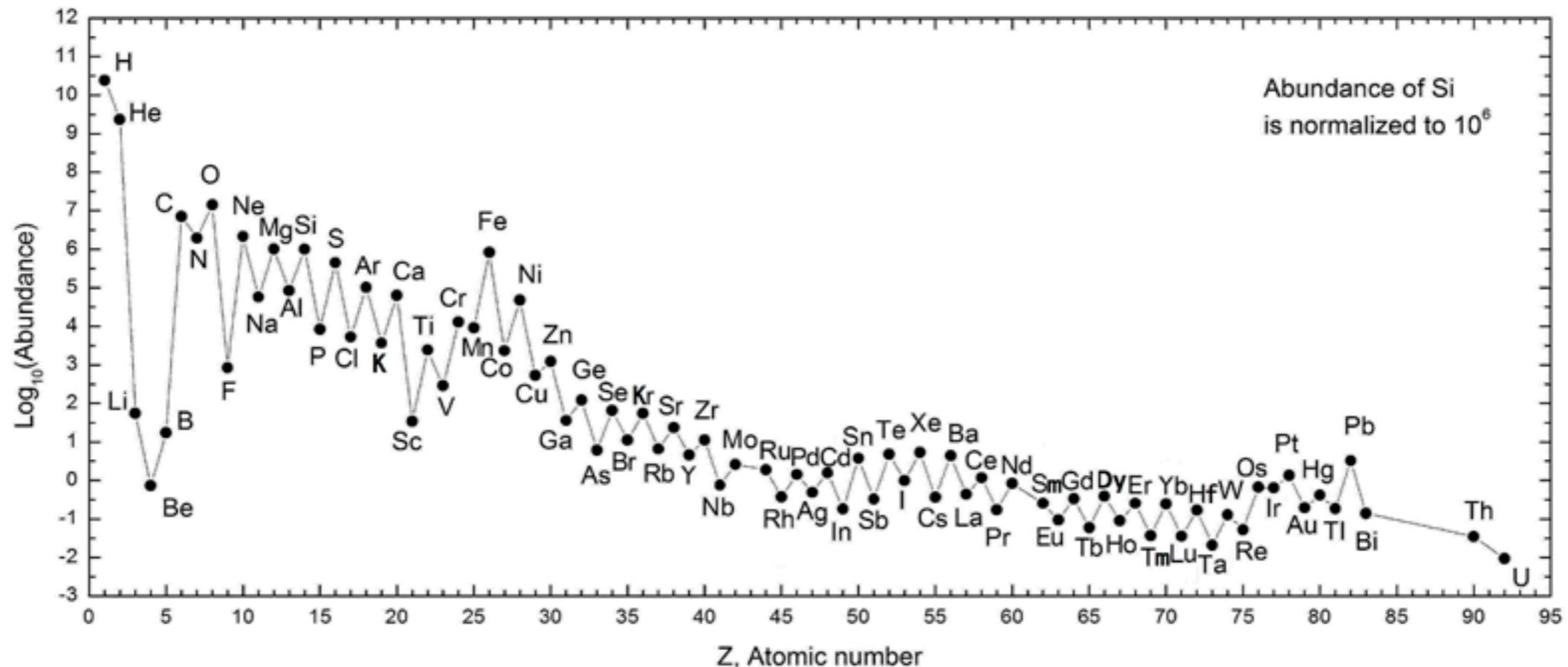
Gd導入に向けて —Gd定量分析—

- 今後も環境へのGdが漏れていないかをモニター(SK周辺の湧水)することは大変重要である。
- pptレベルのGdの濃度をモニターする必要がある。
 - 2台目のICP-MS (Agilent 7900)を昨年度に神岡に導入。
 - 希土類分析用にクリーンルームのセットアップも完了。
 - キレート樹脂を用いた希土類元素の高精度分析に成功。
 - S. Ito et al., PTEP 2019 6 063H03



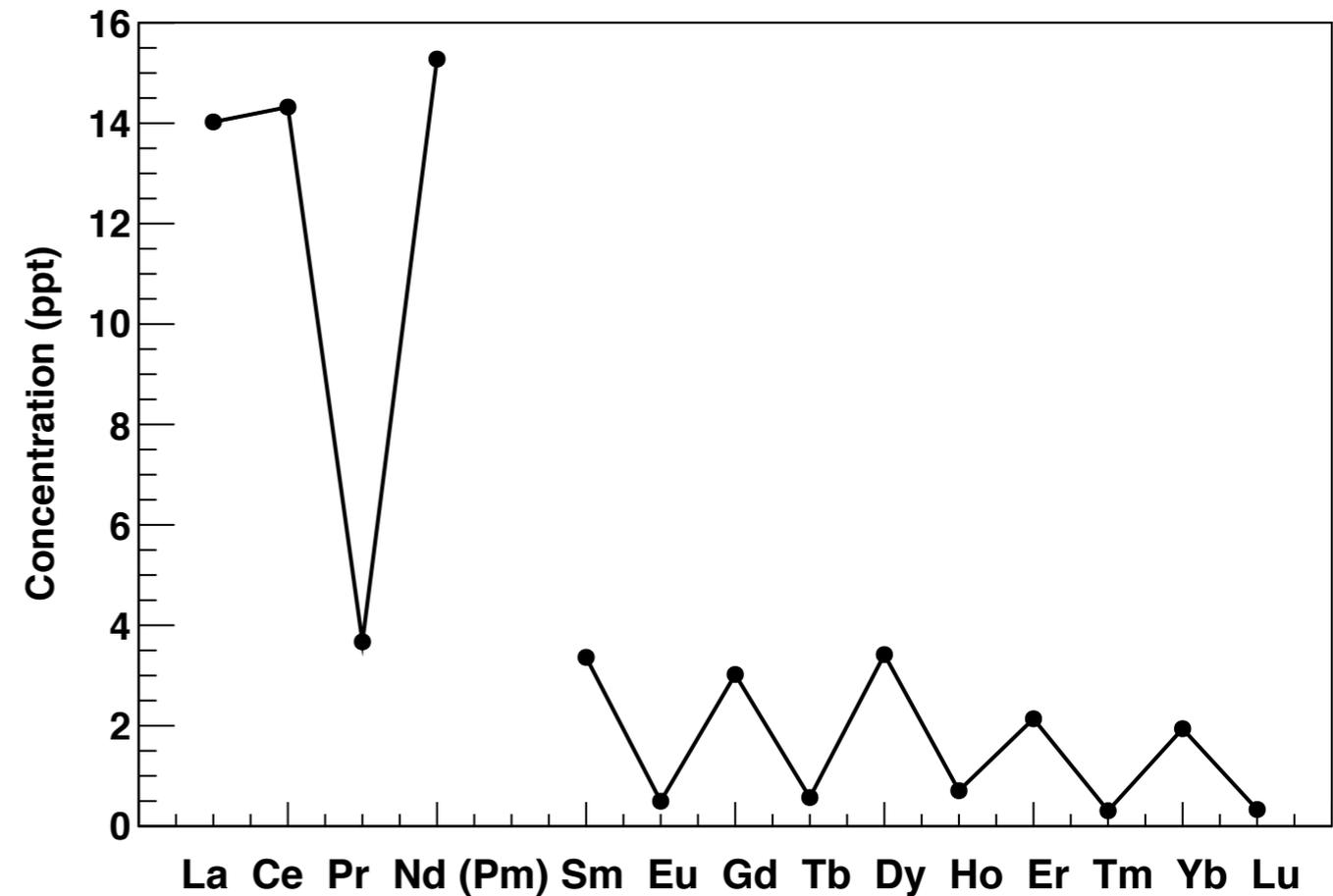
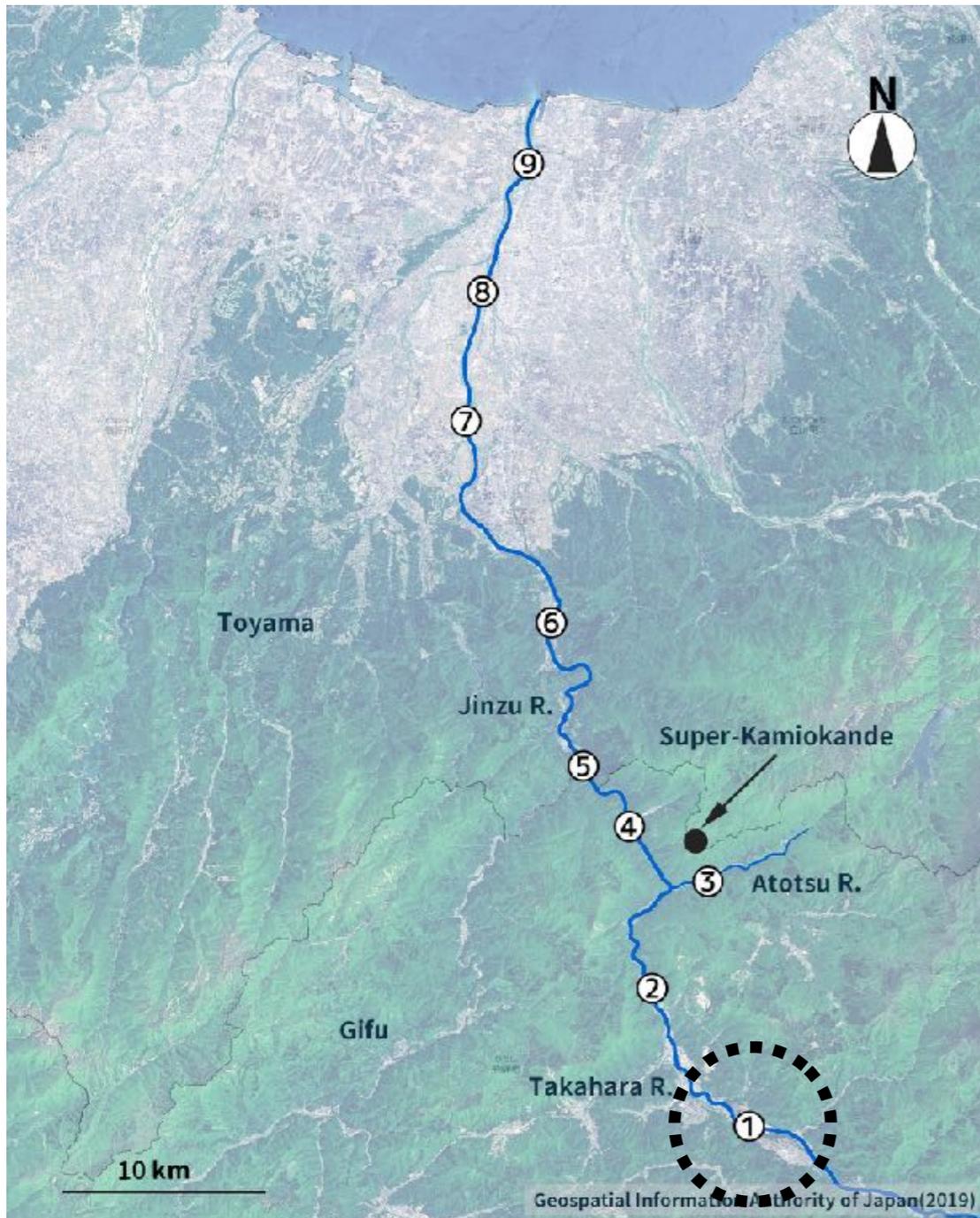
自然界での元素の存在比

- Gdの微量分析法の開発を兼ねた、SK周辺の河川水中の希土類元素や重金属元素の調査を行った(2018年11月、2019年4, 8月)。
- 太陽系での元素存在度は**原子番号毎にジグザグなパターンとなっていて(偶数の原子番号が高い)存在している**(Oddo-Harkins rule)。
- このジグザグのパターンは、環境や水量、季節など様々な要因により変化する。
- 特に希土類元素は顕著で、環境の調査の指標に用いられる。



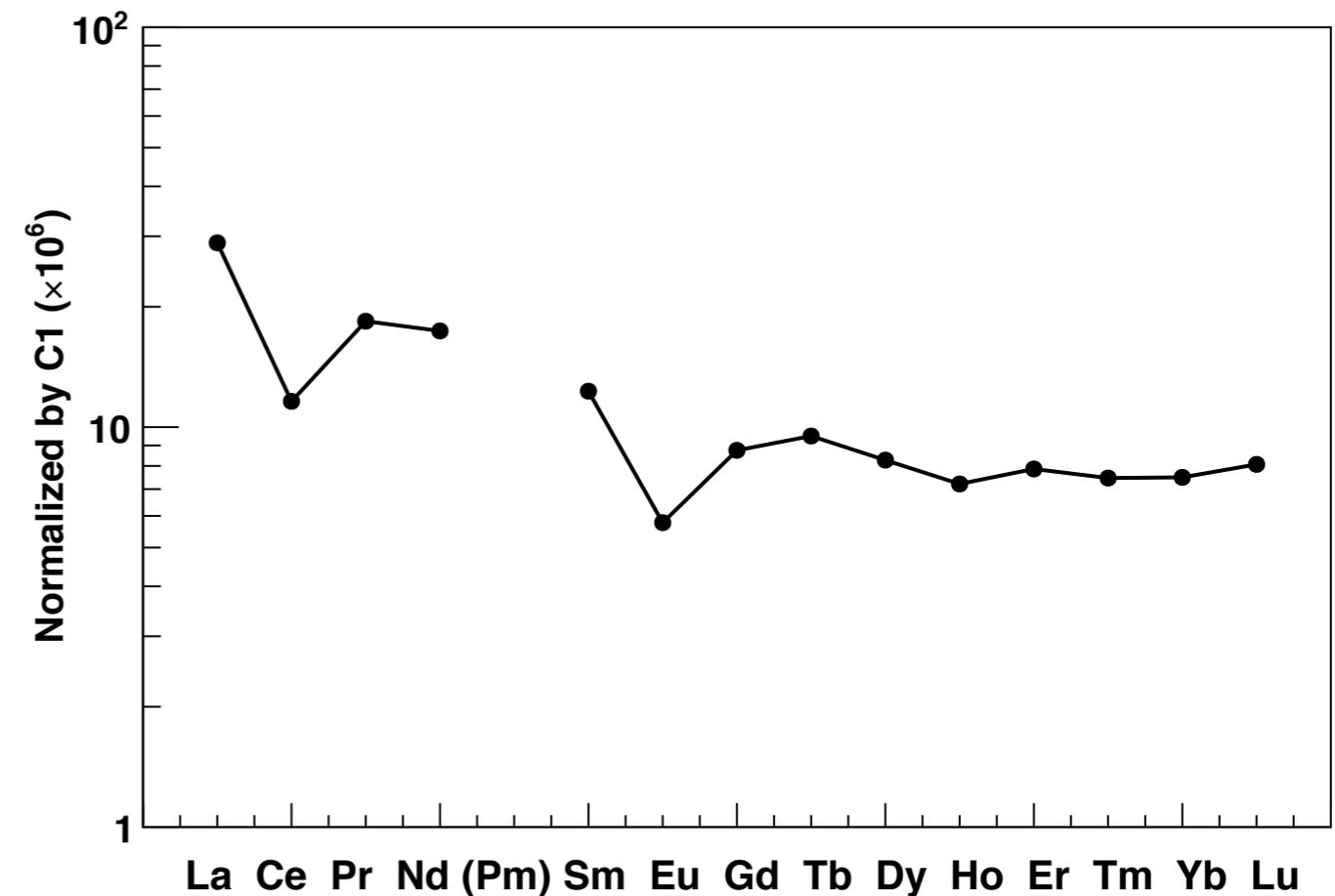
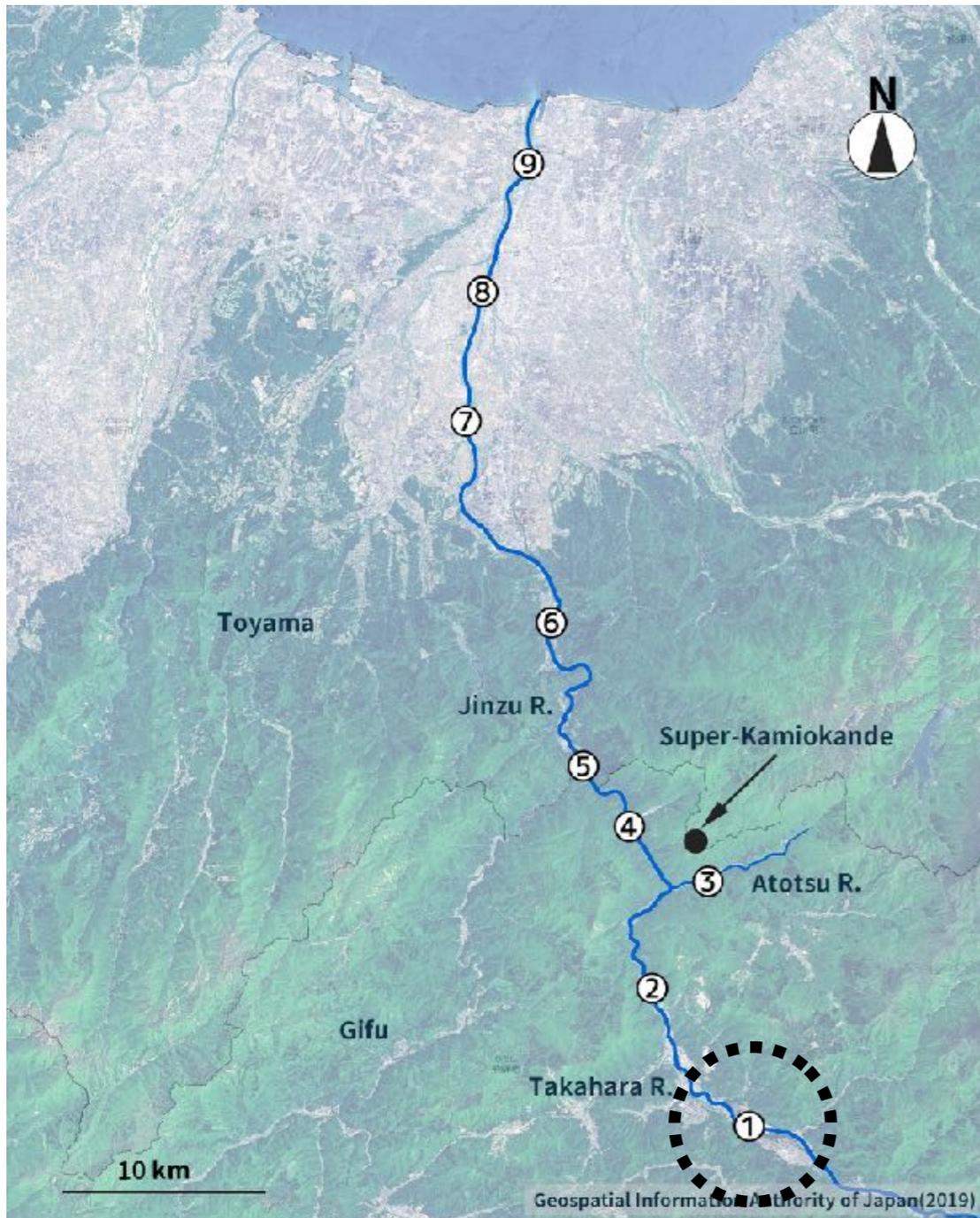
河川での希土類元素

- 例えば、高原川上流(①)。
- 希土類元素の濃度だけを見ると、ジグザグパターンのせいで、よく分かりにくい(Pmは放射性元素のため、測定不可)。



河川での希土類元素

- 例えば、高原川上流(①)。
- 希土類元素の濃度だけを見ると、ジグザグパターンのせいで、よく分かりにくい。⇒**隕石の成分(C1コンドライト)で規格化。**
スムーズな分布になる。

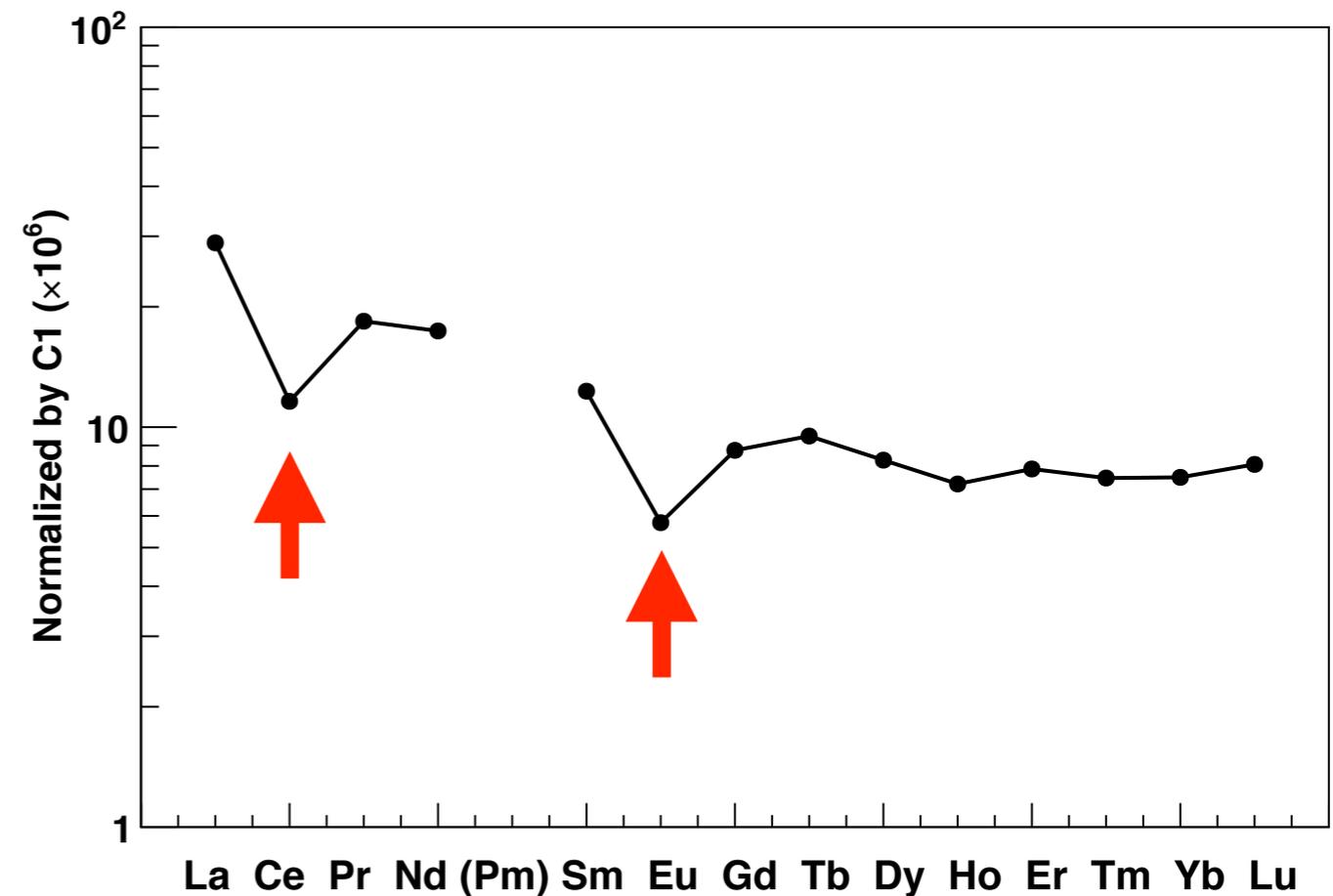
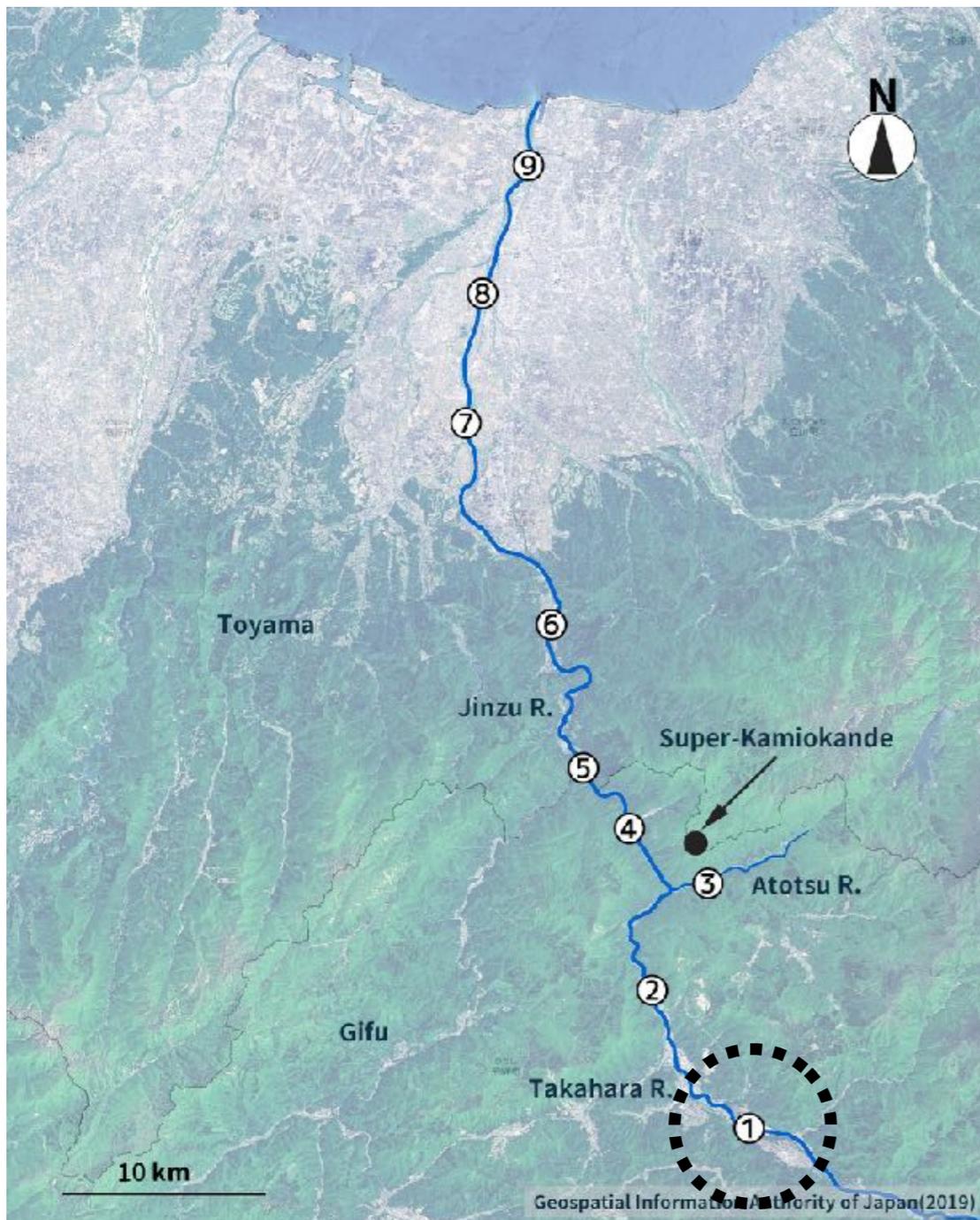


河川での希土類元素

- 例えば、高原川上流(①)。
- 希土類元素の濃度だけを見ると、ジグザグパターンのせいで、よく分かりにくい。⇒**隕石の成分(C1コンドライト)で規格化。**
スムーズな分布になり、アノーマリが

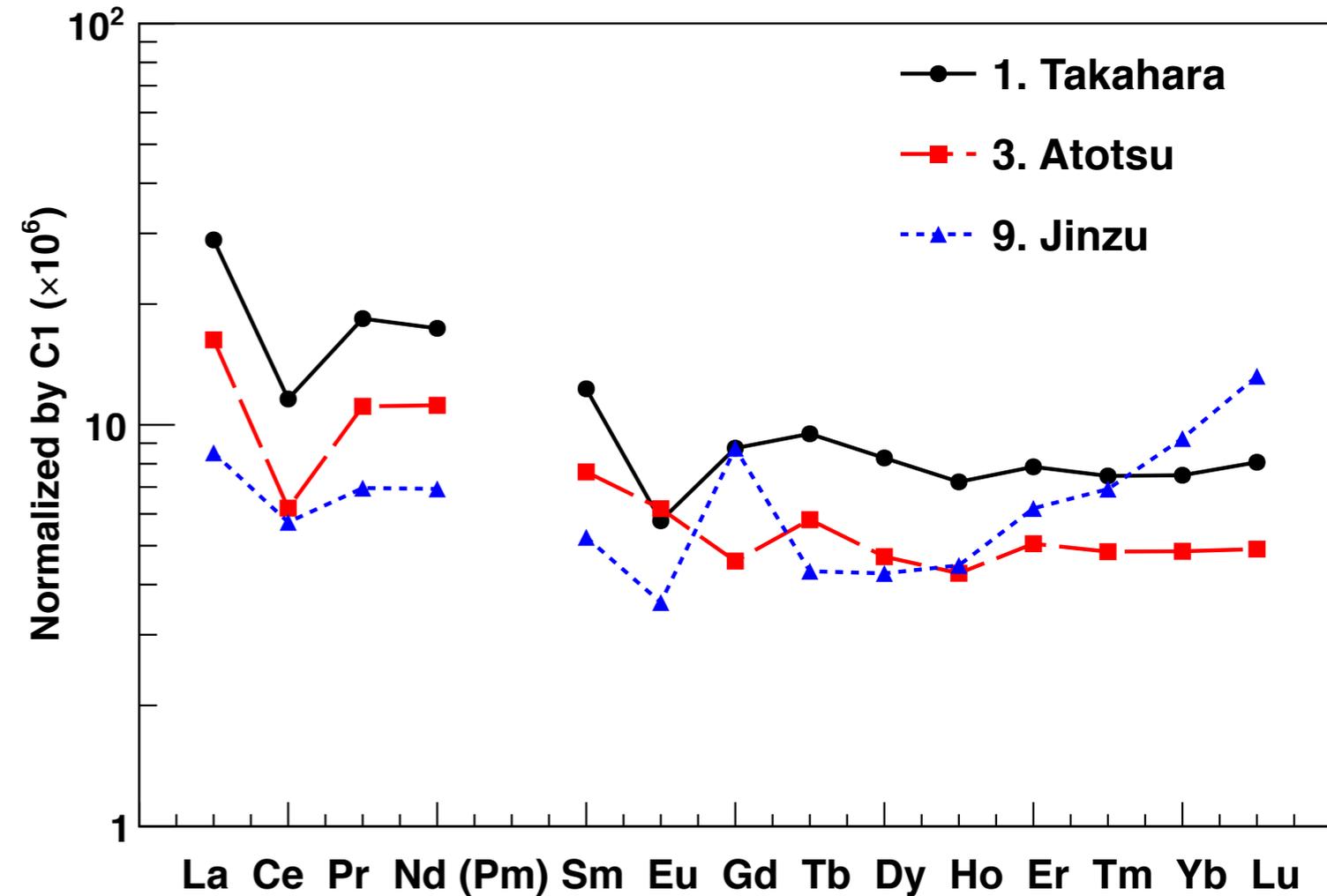
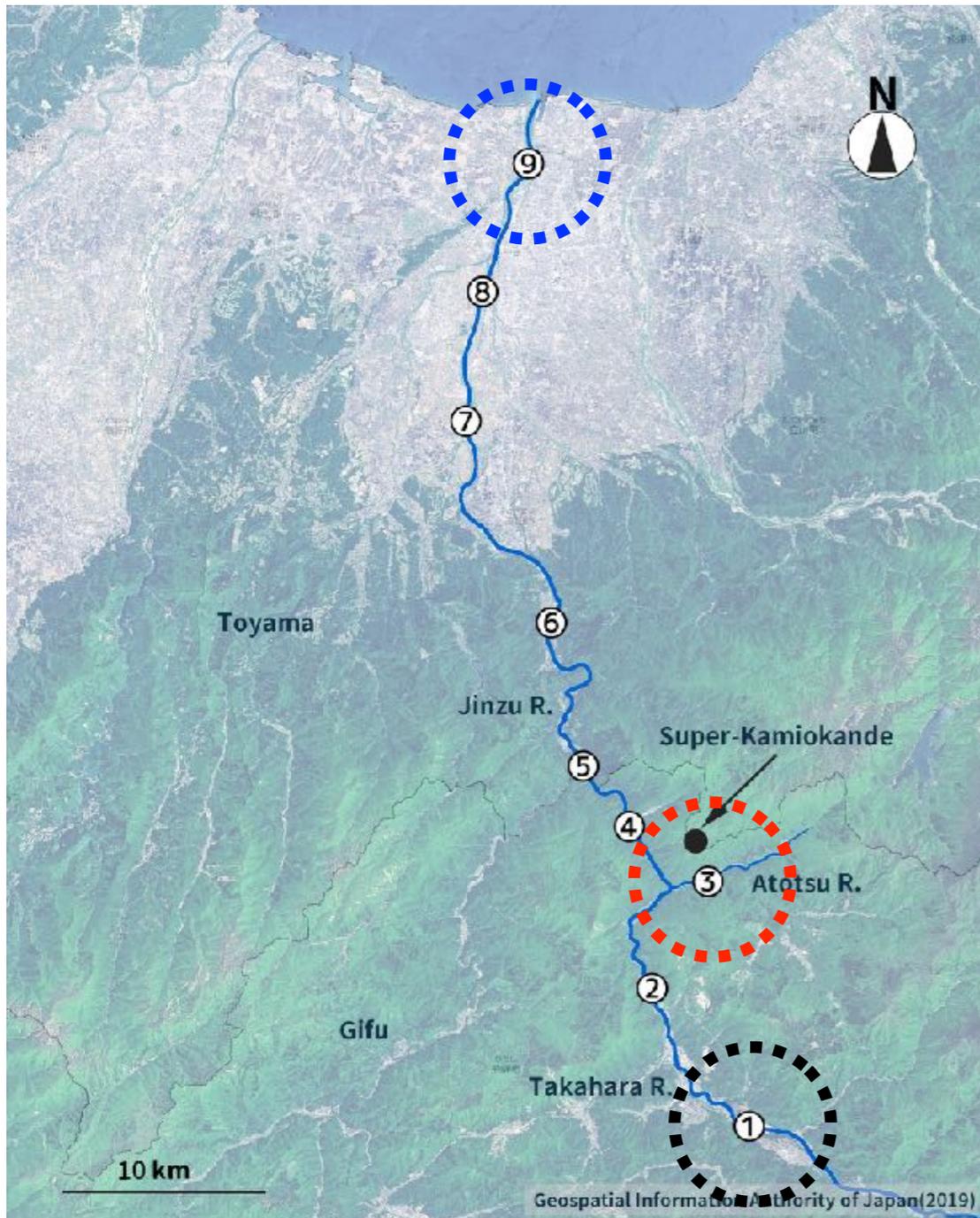
存在するかどうか分かる。

この場合は、CeとEuに負のアノーマリが見える(Ce^{4+} , Eu^{2+} によるもの)。



河川での希土類元素

- 高原川上流(①)、跡津川(③)、神通川下流(⑨)を比較。
- 跡津川(③)にはEuの負のアノーマリは見えない。
- 神通川下流(⑨)には、Gdの正のアノーマリが見える。
また、分布も異なる。



まとめと今後

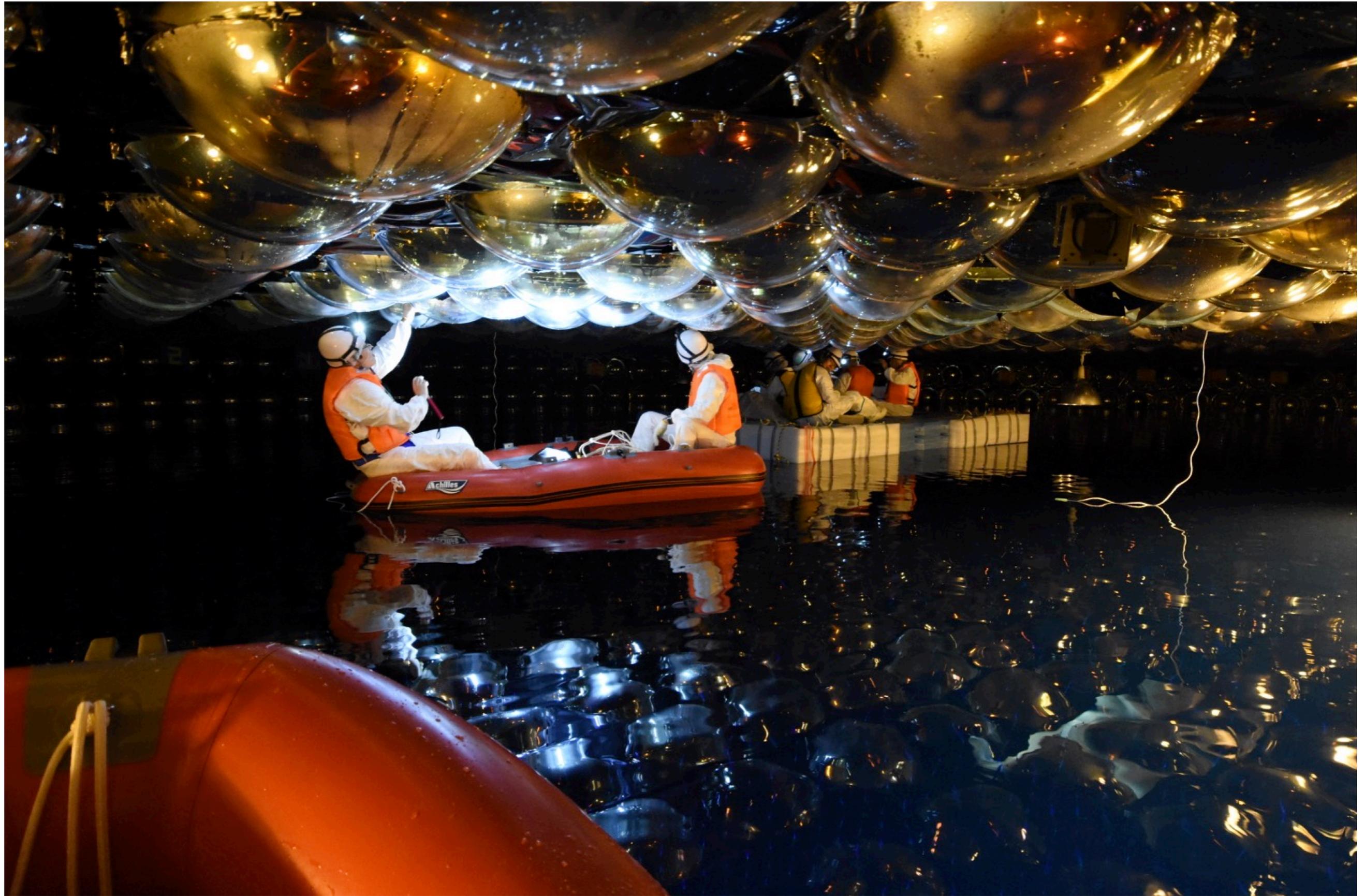
- SRNsの観測を目指したSK-Gdプロジェクトが進行中。
- Gd導入に向けて、SKタンクの補修工事を行った。
- 水漏れの測定の結果、**有意な水漏れは観測されなかった。**
 - 上限値: **0.017 トン/day** (目標:0.03 トン/day)
 - 補修工事前と比べて、**<1/200.**
- 水の透過率も、タンクオープン前と同等であり、SK観測も順調に再開された。
- 硫酸ガドリニウムのスクリーニングも進んでいる。
- SK周辺の湧水中のGdのモニターの準備もできている。

今後

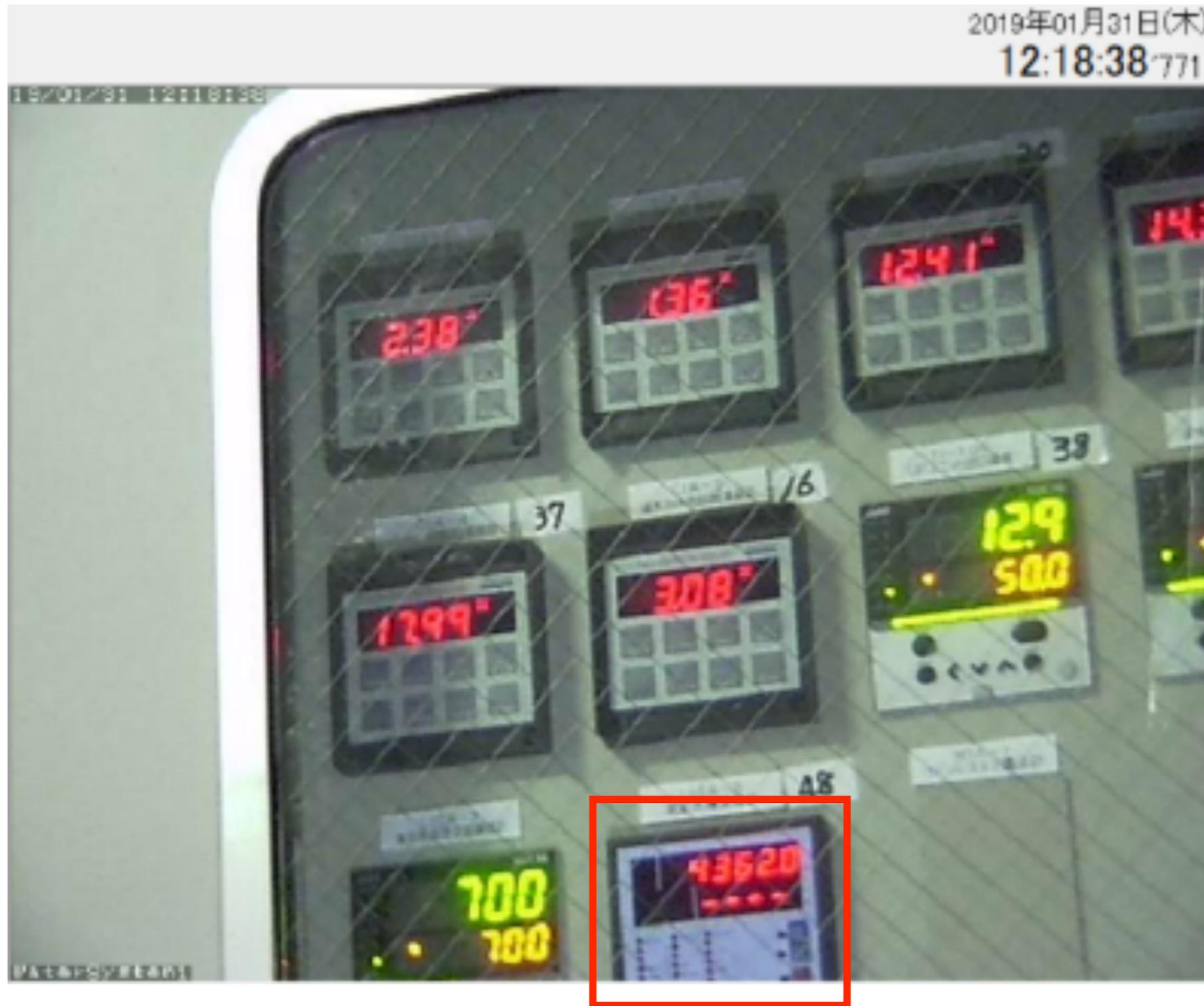
- 今春に10トンの硫酸ガドリニウム(Gdで0.01%相当、中性子捕獲効率50%)をSKに溶解させ、SK-Gdを開始させる予定。
- 来年度はGdで0.01%の濃度で走らせる。そして、今後濃度を上げていく予定。

バックアップ

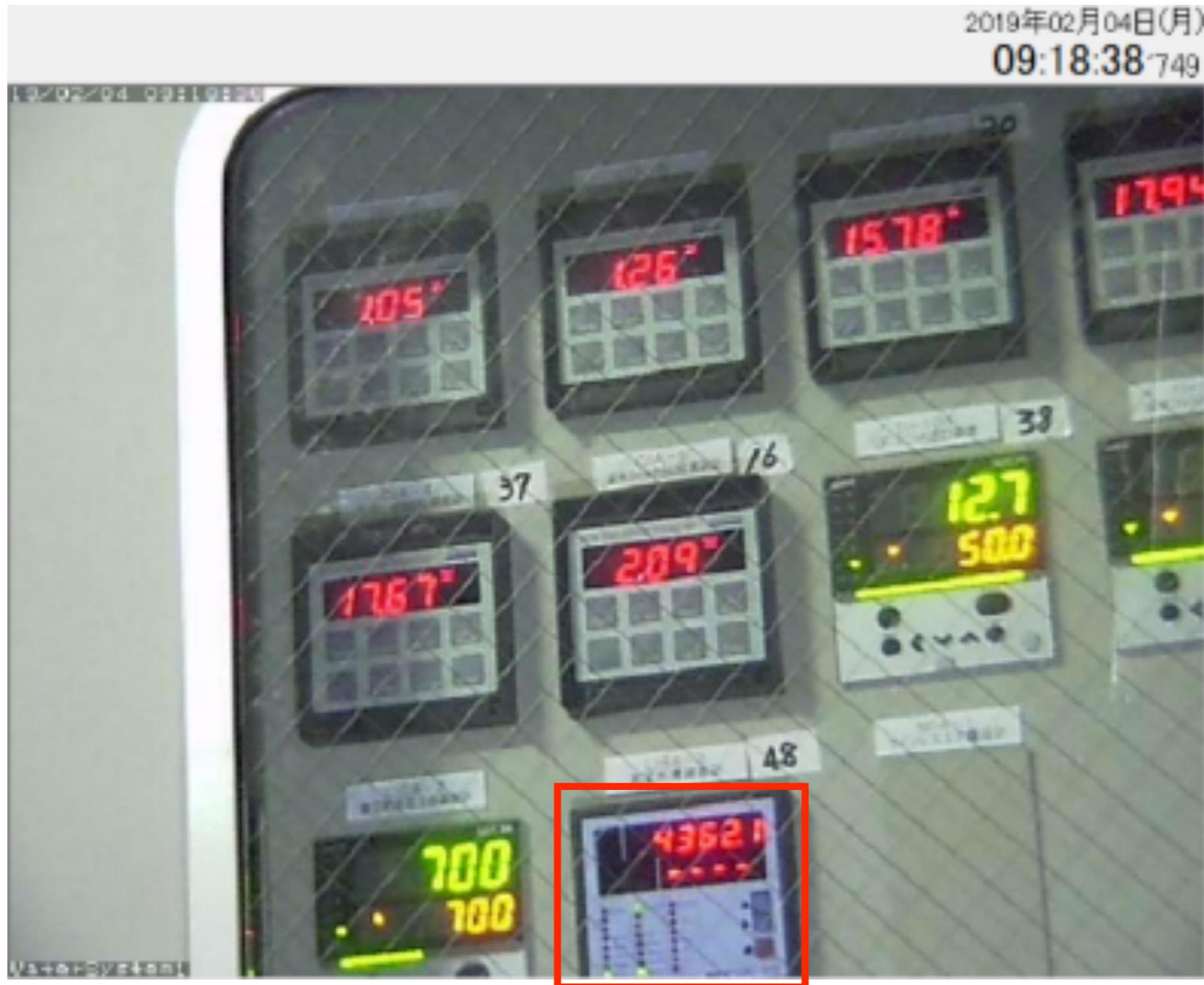




1/31 12:18



2/4 9:18



2/7 15:46



考察 (Page 1)

- 3日強あたり0.1mmの水位上昇は、熱による水の膨張によるものと考えられる。

- ✓ 熱量～13kW: 光電子増倍管の高電圧(6.5kW)、磁気補償コイル(6.56kW)

- ✓ $1.3 \times 10^4 \text{ J/秒} \times 3600 \text{ 秒} \times 24 \text{ 時間} = 1.1 \times 10^9 \text{ J/日} = 2.7 \times 10^8 \text{ cal/日}$

- ✓ タンク内の水 : 50000トン = $5 \times 10^{10} \text{ g}$

- ✓ $2.7 \times 10^8 / 5 \times 10^{10} = 5.3 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C} / \text{日}$

- ✓ 温度1°Cあたりの水の密度変化(13°C):
 $(999.418 - 999.284) / 999.284 = 1.34 \times 10^{-4}$

(<https://www.ryutai.co.jp/shiryuu/liquid/water-mitsudo-1.htm>)

(次ページへ続く)

考察 (Page 2)

(前ページより)

- ✓ タンク内の水の1日あたり $5.3 \times 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}$ の温度変化は $5.3 \times 10^{-3} \times 1.34 \times 10^{-4} = 7.2 \times 10^{-7}$ の体積割合変化に相当する。
- ✓ 50000トンの水の体積変化は $50000 \times 7.2 \times 10^{-7} = 0.036 \text{ トン/日} = 36 \text{ リットル/日}$ となる。
- ✓ タンクにおける 0.1mm の水位は、
 $20\text{m} \times 20\text{m} \times 3.14 \times 0.001\text{m} = 0.12\text{m}^3 = 0.12 \text{ トン}$ に相当
- ✓ 0.1mm の水位上昇には $0.036 / 0.12 = 3.3$ 日かかることになる。
- ✓ これは今回の水位上昇時間と概ね一致する。

Leak-fixing plan

- Paint all the welding lines with sealing materials
 - **Bio-seal 197**: Fill pinholes and cracks in steel plates
 - **Poly-urea based sealant**: Newly-developed, flexible and low-background material.
- The poly-urea based sealant:
 - Mechanical strength
 - No problem after applying 5 atm pressure in Gd-loaded water for 5 months so far
 - Passed the JIS standard for attachment strength
 - Soak-test
 - Effect in light yield less than 2.4%
 - Radon emanation
 - $\sim 0.3 \text{ mBq/m}^2 \rightarrow \sim 80 \text{ Bq / SK}$

No problem for solar ν measurement

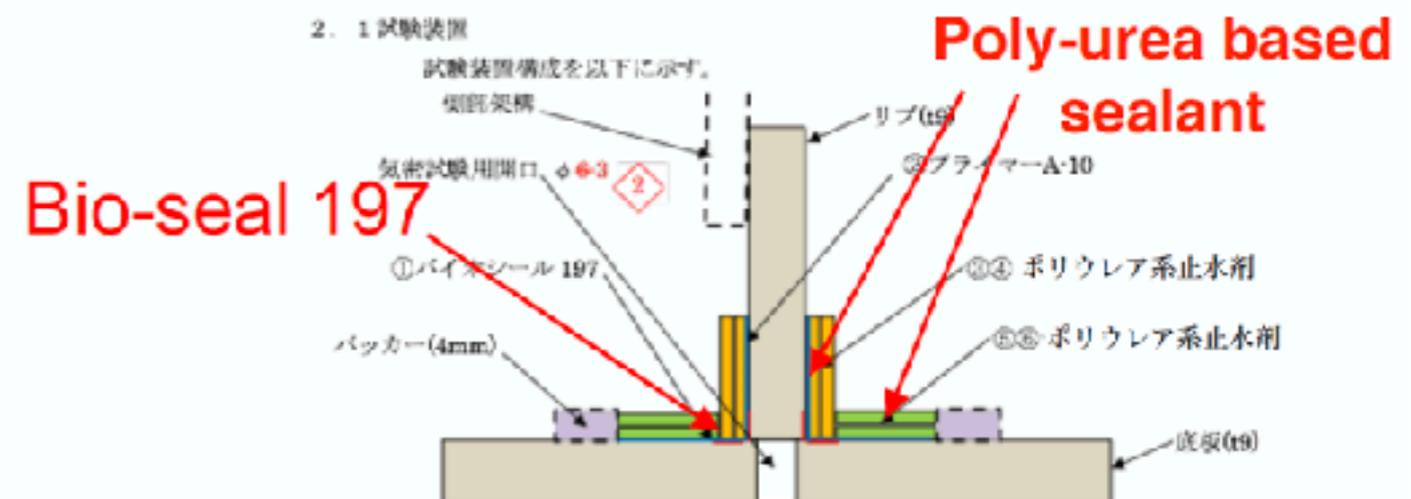
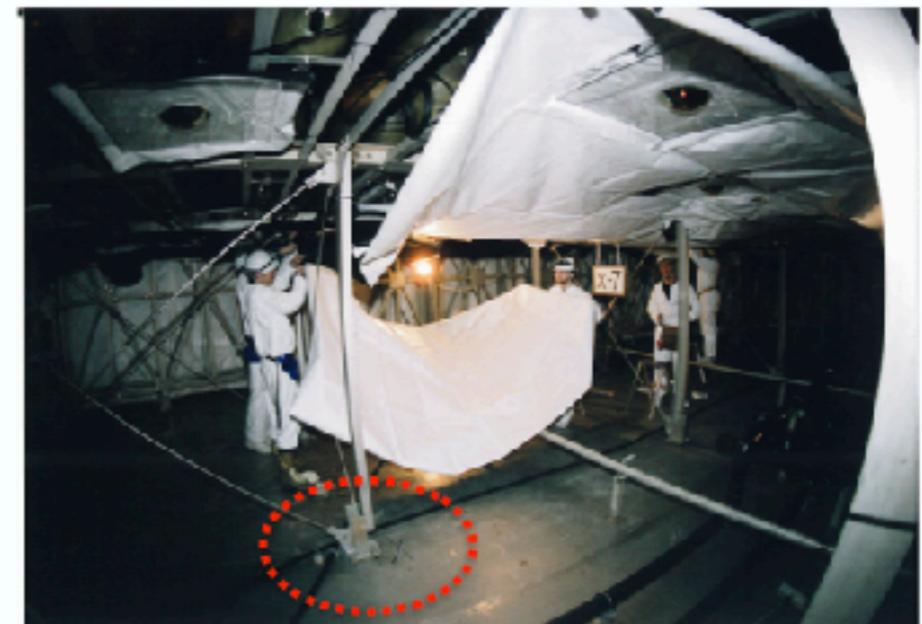
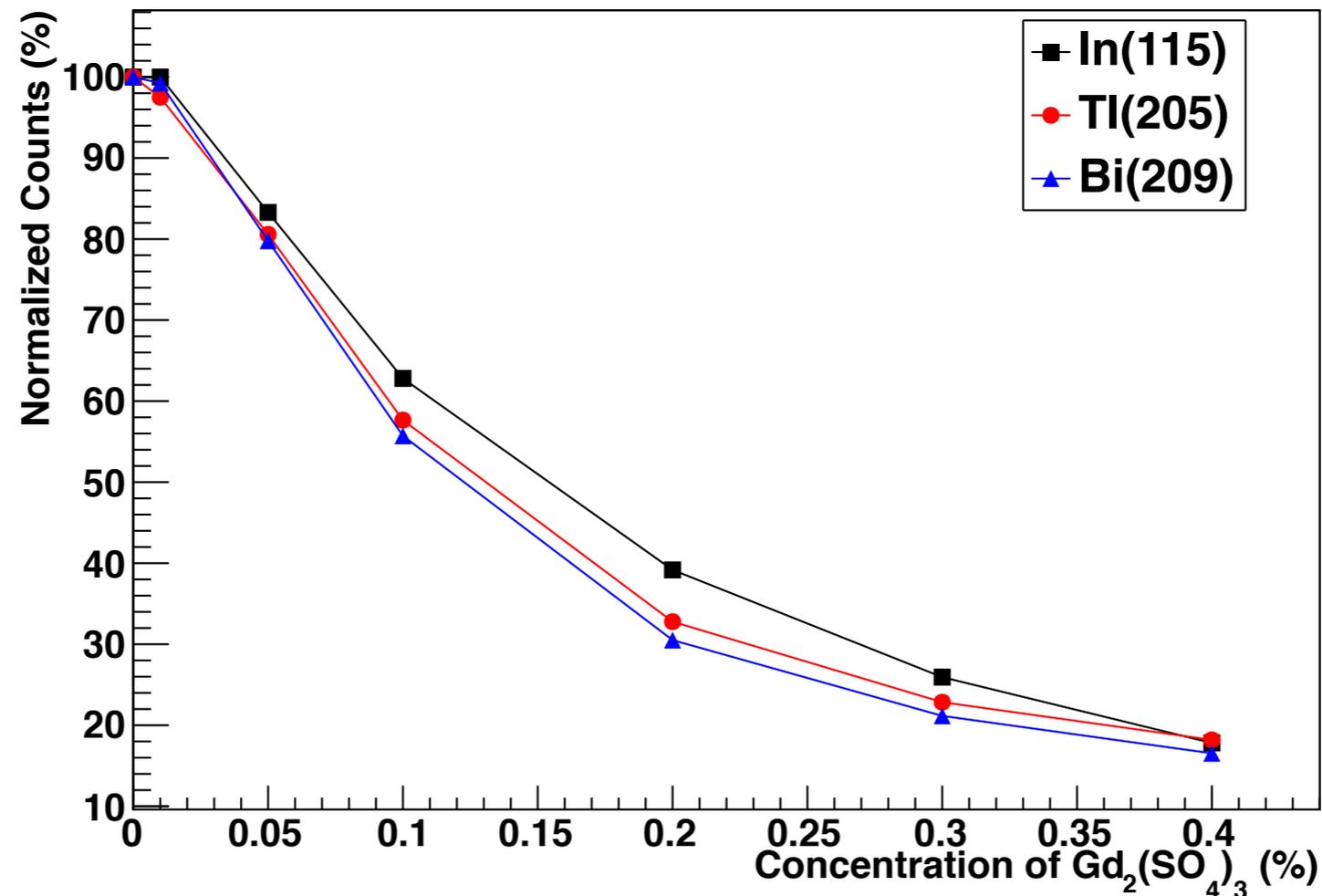


図-1 底面側部架橋用リブ止水試験装置 概要図

ICP-MS —マトリックス効果—

マトリックス効果

- マトリックスとは: 目的元素(Th/U)以外の物質(Gd)
- 目的元素(Th/U)のイオン化が高濃度マトリックス(Gd)により妨害される ⇒ **目的元素の測定感度が落ちる。**
- マトリックス効果の例: In, Tl, Biの標準溶液を添加した場合の硫酸ガドリニウム中での感度の変動
➔ 感度が落ちるので、高濃度Gd中の超微量元素の測定が難しい。



化学分離

- 硫酸ガドリニウム中の微量のトリウム、ウランを分析するには、**化学分離を行い、硫酸ガドリニウムからトリウム、ウランを抜き出すしかない。**

UTEVA resin

- 6価のUや4価のアクチノイド(Th)は吸着。
- 硝酸の濃度により吸着率が変わる。
 - 7M 硝酸で吸着、0.1M 硝酸で溶離。
 - Gdは3価の希土類なので、ひっつかない。

