

Gd分析

岡山大学 伊藤慎太郎

C01: 関谷洋之、竹内康雄、伊藤慎太郎、鈴木良一、高久雄一

イントロダクション —C01—

[代表]



関谷洋之 Hiroyuki, SEKIYA

東京大学 准教授 宇宙素粒子実験
統括及び水システム高性能化

[分担]

竹内康雄 Yasuo, TAKEUCHI

神戸大学 教授 素粒子実験
水システム低放射能化、ラドン測定

伊藤慎太郎 Shintaro, ITO

岡山大学 研究員 素粒子実験
ガドリニウム高濃度・低放射能化

鈴木良一 Ryouichi, SUZUKI

産業技術総合研究所 主席研究員 加速器科学
エネルギー較正

高久雄一 Yuichi, TAKAKU

環境科学技術研究所 研究部長 環境科学
ガドリニウム定量分析



硫酸ガドリニウム中の放射線不純物
及び環境中のガドリニウムの定量分析

Gd低放射能化

- SK-Gd中での太陽ニュートリノ観測のため、SKに溶解させる硫酸ガドリニウムを低放射能化させなければならない。
- 高感度での測定のための開発
 - 長寿命の放射性元素(^{238}U , ^{232}Th): ICP-MS
 - 短寿命の放射性元素(^{226}Ra など): Ge検出器
- 現在、基準をクリアした企業の硫酸ガドリニウム(本番用)が神岡に送られてきている。

単位: [mBq/kg]

主な放射性不純物	^{238}U	^{232}Th	^{226}Ra
市販のもの	50	100	5
目標	<5	<0.05	<0.5
Company A	<0.04	0.02 ± 0.01	<0.25
Company B	<0.04	0.06 ± 0.01	<0.18
Company C	0.64 ± 0.10	1.77 ± 0.27	0.7 ± 0.4

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)

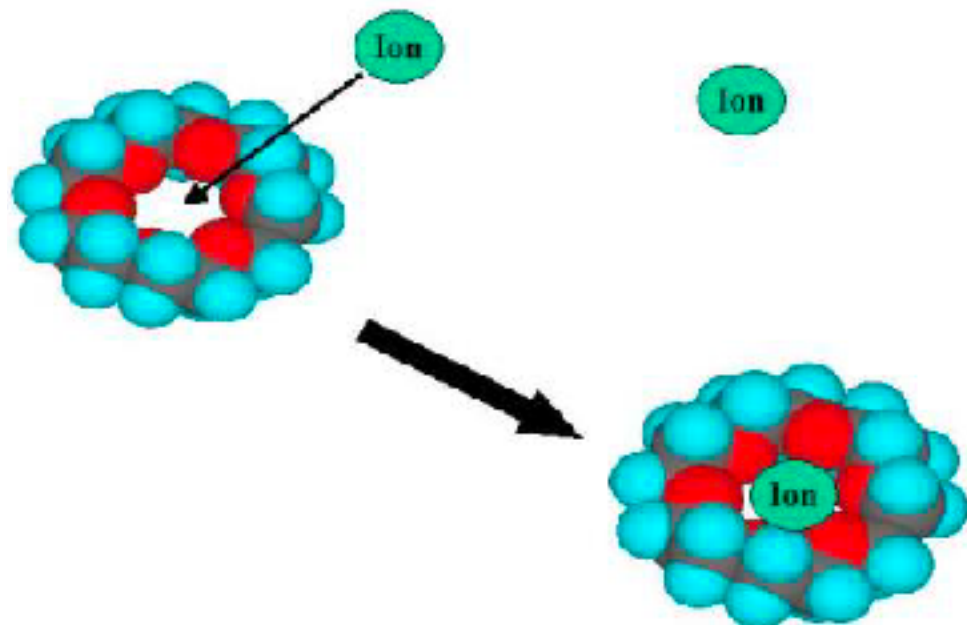


神岡のICP-MS Agilent 7900



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: 詳細は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
- 直接測定だと、1ヶ月の測定で ^{226}Ra の感度は $\sim 0.5\text{mBq/kg}$ 。
- 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。 $\Rightarrow$ 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**
 - **1週間で<0.5 mBq/kg**の感度を得られる(通常は1ヶ月)。
- 試験はほぼ完了しており、まもなく本番用の硫酸ガドリニウムを分析する。



現状

- これまでに開発した手法により、高精度での放射性不純物の測定が可能になった。
- 現在、SK-Gd本番用の硫酸ガドリニウムが送られてきている。
- D01の市村さんや池田さんらと協力しながら、SKへの導入に向けて、現在スクリーニング中。今後はしばらく、スクリーニングが続く。

Gd定量分析 環境へのGdの漏れのモニター

- SKの止水の目標を達成したとは言え、環境へのGdが漏れていないかをモニター(SK斜坑水)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12月に神岡に導入。
 - クリーンルーム(Lab1)のセットアップも完了。



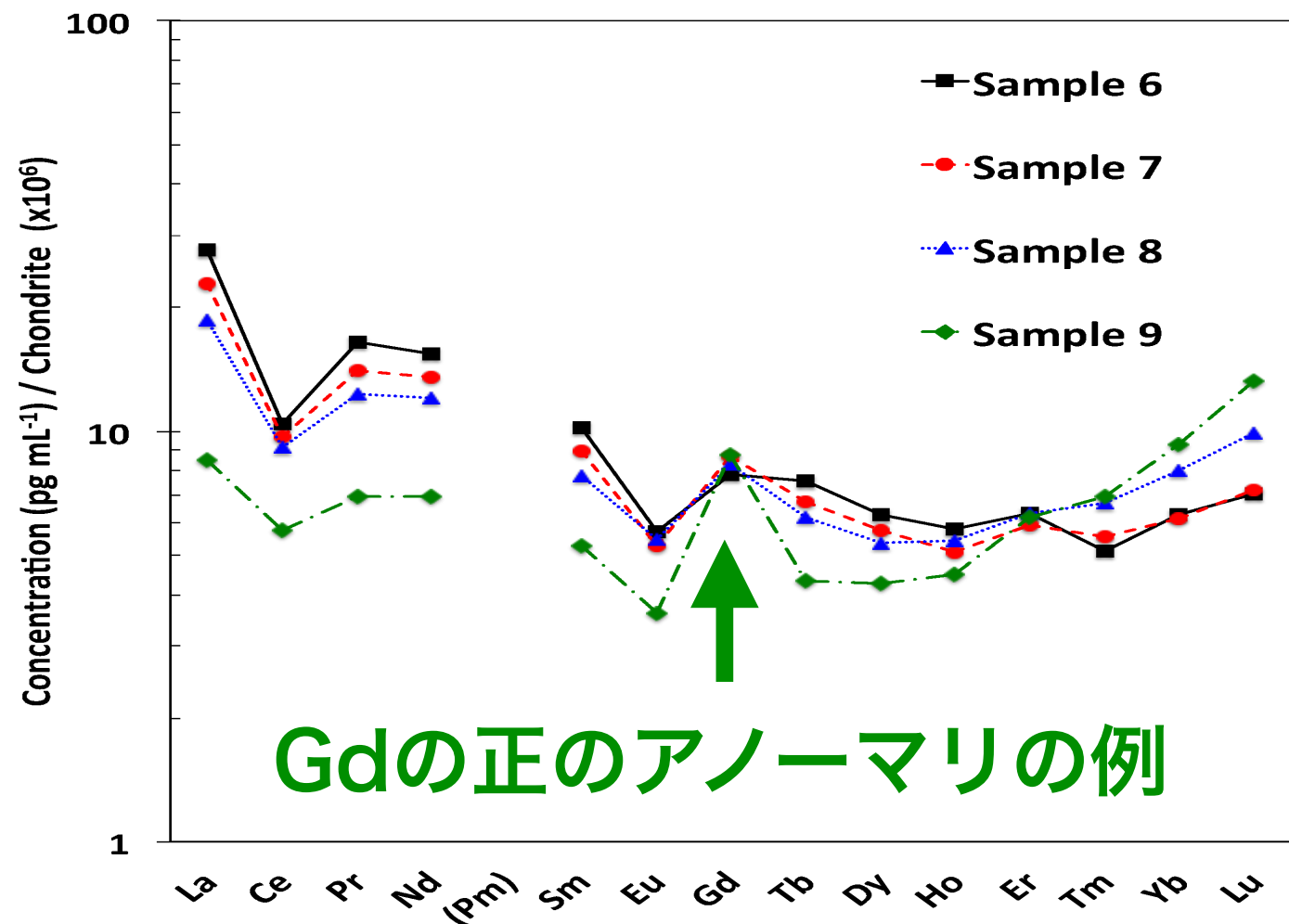
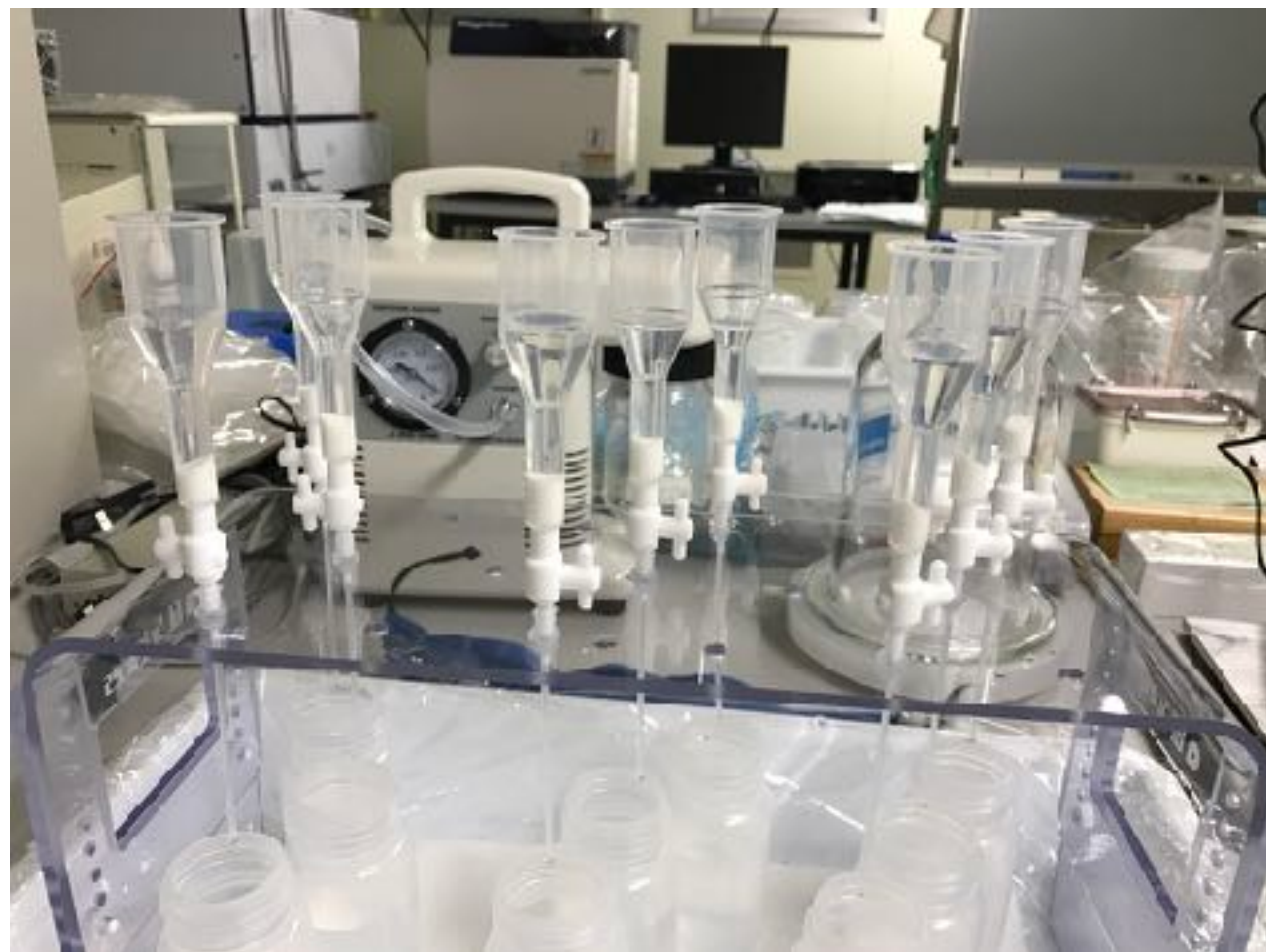
2台目ICP-MSとクリーンブース (Lab1) 8



超純水製造装置(自作)

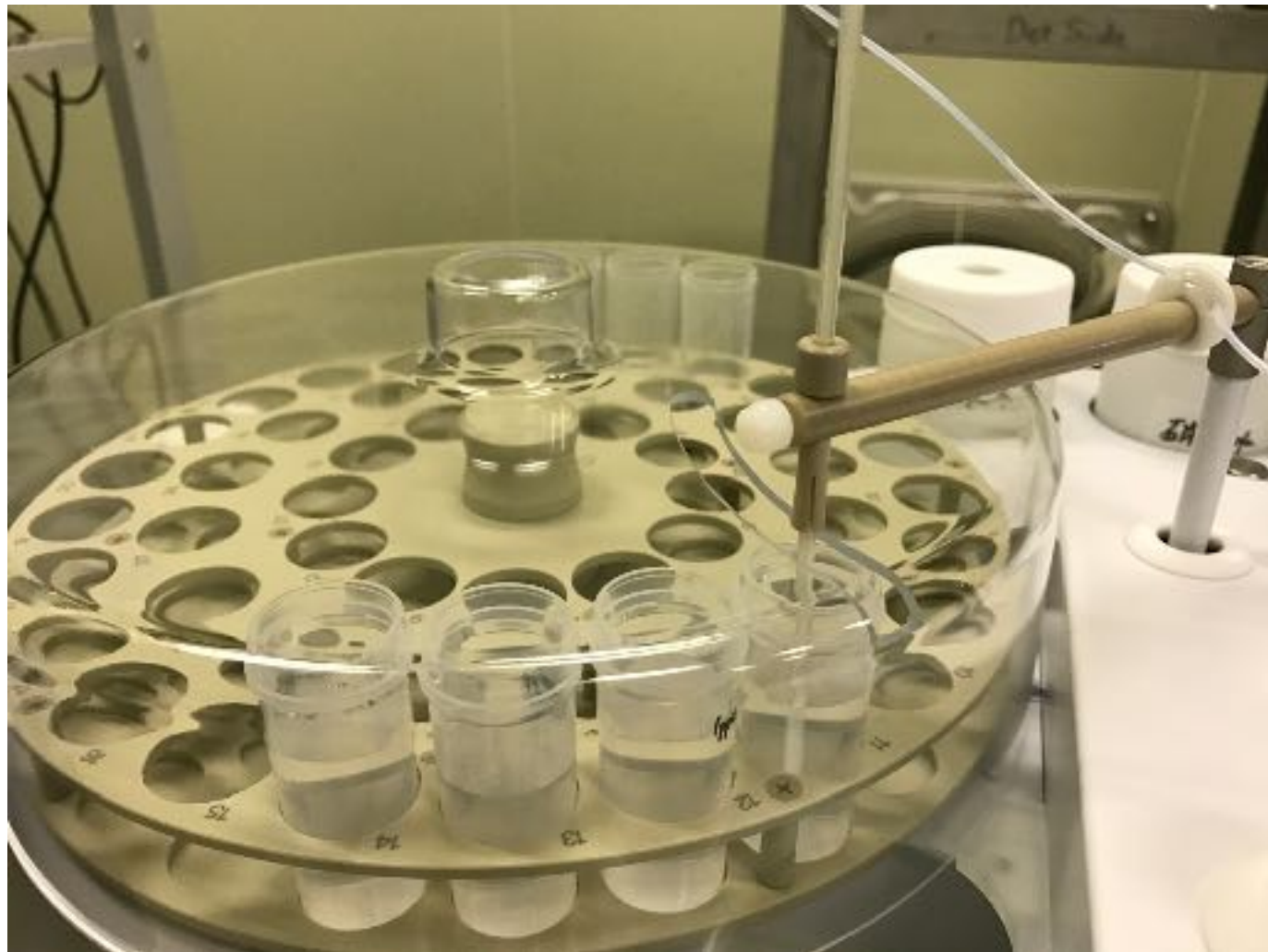
Gd定量分析 環境へのGdの漏れのモニター

- より高精度で環境中のGdの分析を行うには、
 - バックグラウンド(アルカリ金属、アルカリ土類金属)の除去
 - Gdを含めた希土類元素の濃縮
- **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
 - 希土類元素のパターンの分析によるGdの漏れのモニター。



Gd高濃度化に向けて(来年度以降)

- これまでは、前述の操作を人の手で行っていた。
- 今後は、Gd高濃度化に向けて、硫酸ガドリニウムが大量にくる。
➡ 人力での分析も限界が、、、
- **ICP-MSでのU、Th、Gd分析を自動化させる。**
- 具体的には、ICP-MSのオートサンブラを改良して、自動化させる。



通常のオートサンブラ。

ここに、カラムやバルブなどを追加して、分離作業を全てオンラインで操作できるようにする。

まとめ

- SKへのGd導入に向けての低放射能化及び高濃度化を目指す。
D01の市村さん、池田さんらと協力しながら、
 - 現在、本番用の硫酸ガドリニウムのスクリーニング中。
 - 高感度での分析のための分析技術の開発。
- また、SK-Gd実験中は環境へのGdの漏れのモニターも必要。
 - クリーンルームのセットアップ。
 - 分析手法の開発。
- 今後は、Gdの高濃度化のため、より短時間で効率的な手法を開発していく。