

B05 ICP質量分析器を用いた、スーパーカミオカンデ等、地下実験のための極微量
放射性不純物元素の測定

B06 高純度ゲルマニウム検出器を用いたSK-Gd計画等のための放射性不純物量測定

東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会

2023.02.22

東北大学ニュートリノ科学研究センター 市村 晃一

申請時所属機関とメンバー (B05)

- 東北大：岸本康宏, 市村晃一, 倉澤真帆 (学生)
- 東大宇宙線研：池田一得
- 筑波大：坂口綾, 高久雄一, 榊枝優真(学生)

査定金額と用途

- 採択額：100千円(物件費として) + 200千円(旅費)
 - 旅費：46,000円
 - 物件費：197,868円
 - 繰越し：56,132円 に使わせて頂きました。



ご支援いただき大変有難うございました

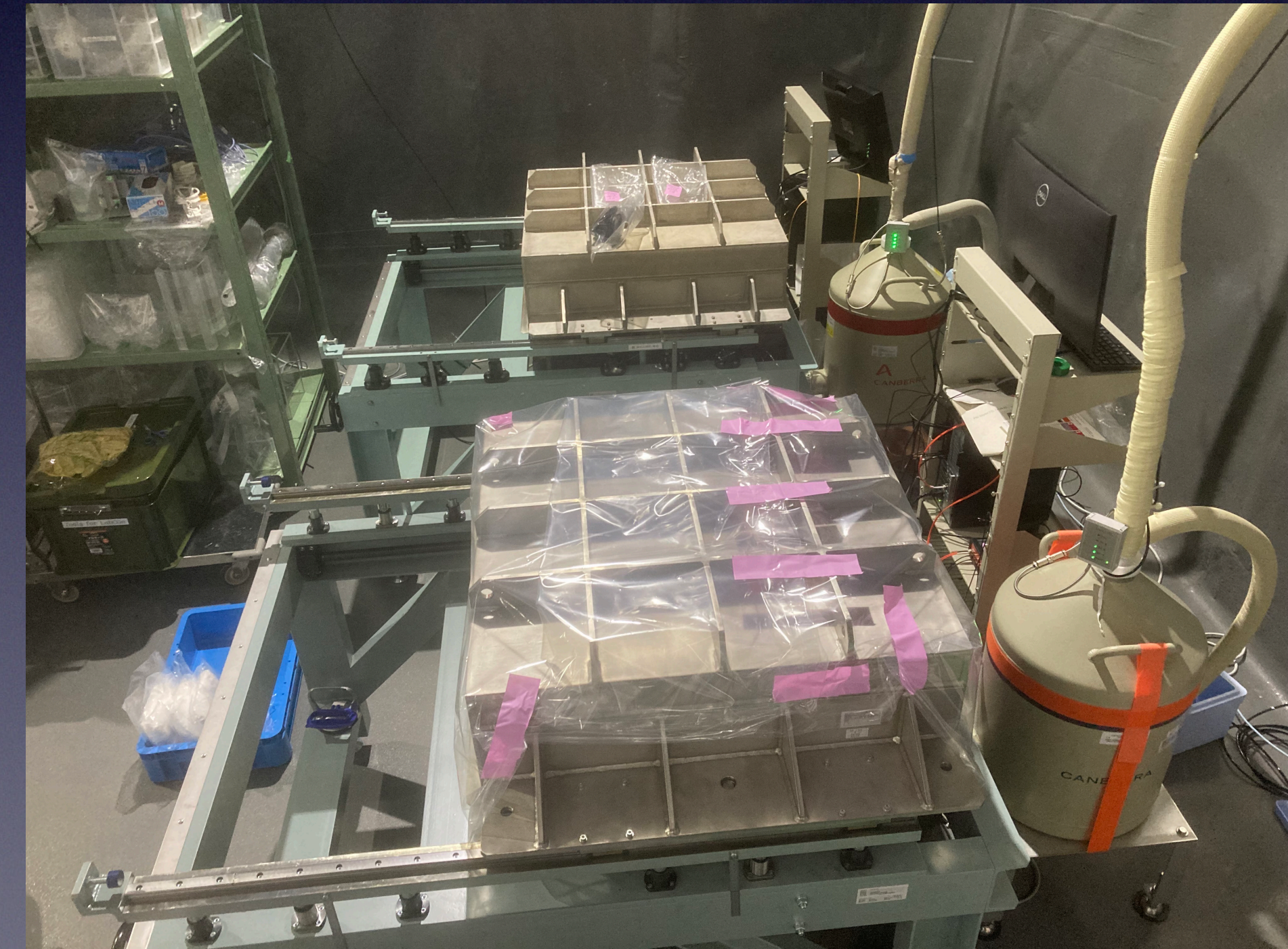
申請時所属機関とメンバー (B06)

- 東北大RCNS：市村晃一, 岸本康宏, 池田晴雄
- 東大宇宙線研：関谷洋之, 竹田敦, 安部航, 池田一得, 細川佳志
- 東大：中島康博
- 東京理科大学：伊藤博士
- 東北大：中村輝石
- 横国大：南野彰宏, 鈴木芹奈 (学生)

査定金額と使途

- 採択額：100千円(旅費として)
 - 神岡—仙台間の旅費
 - 仙台—本研究成果発表会の旅費
 - 手袋等の消耗品

に使わせて頂きました



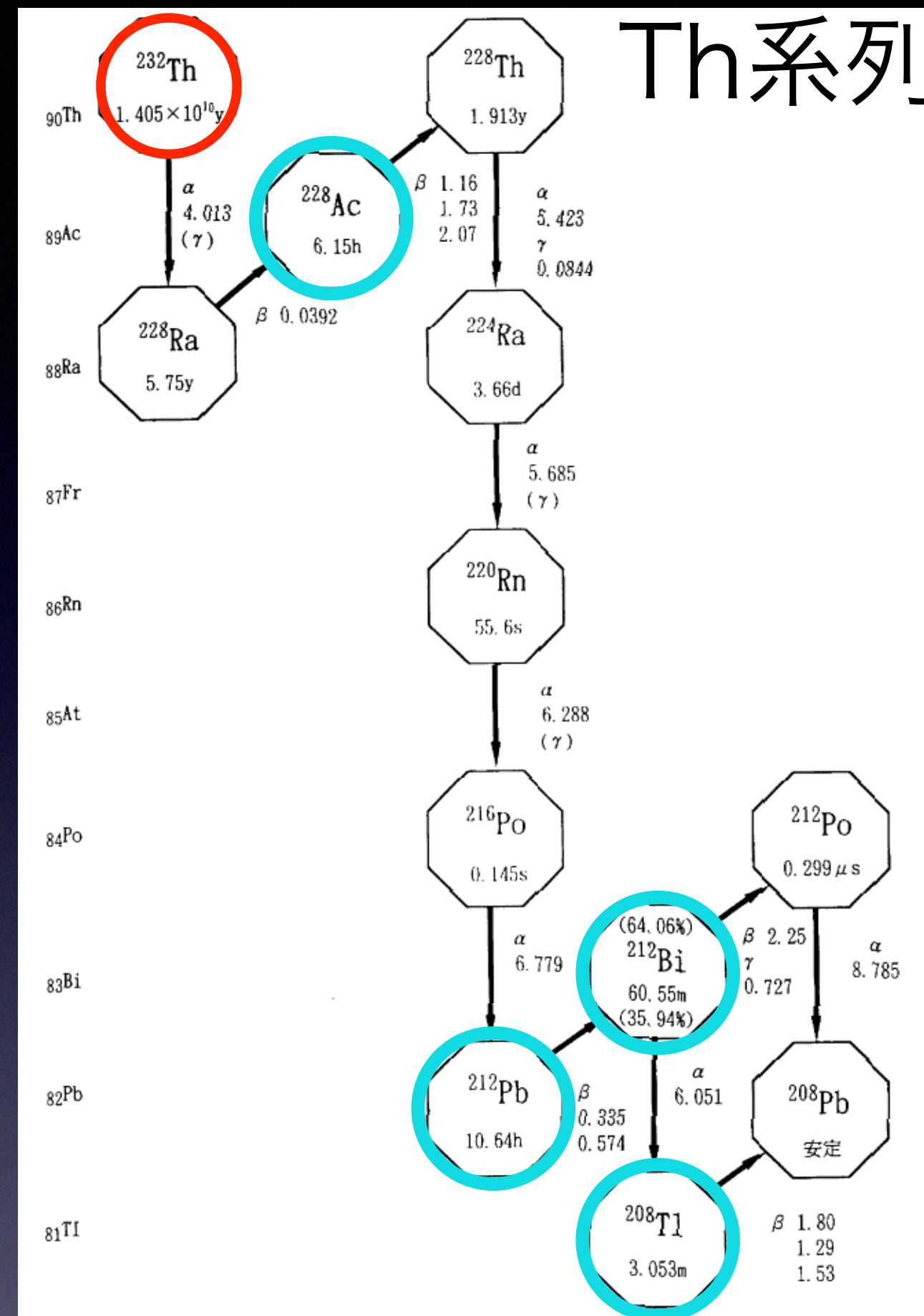
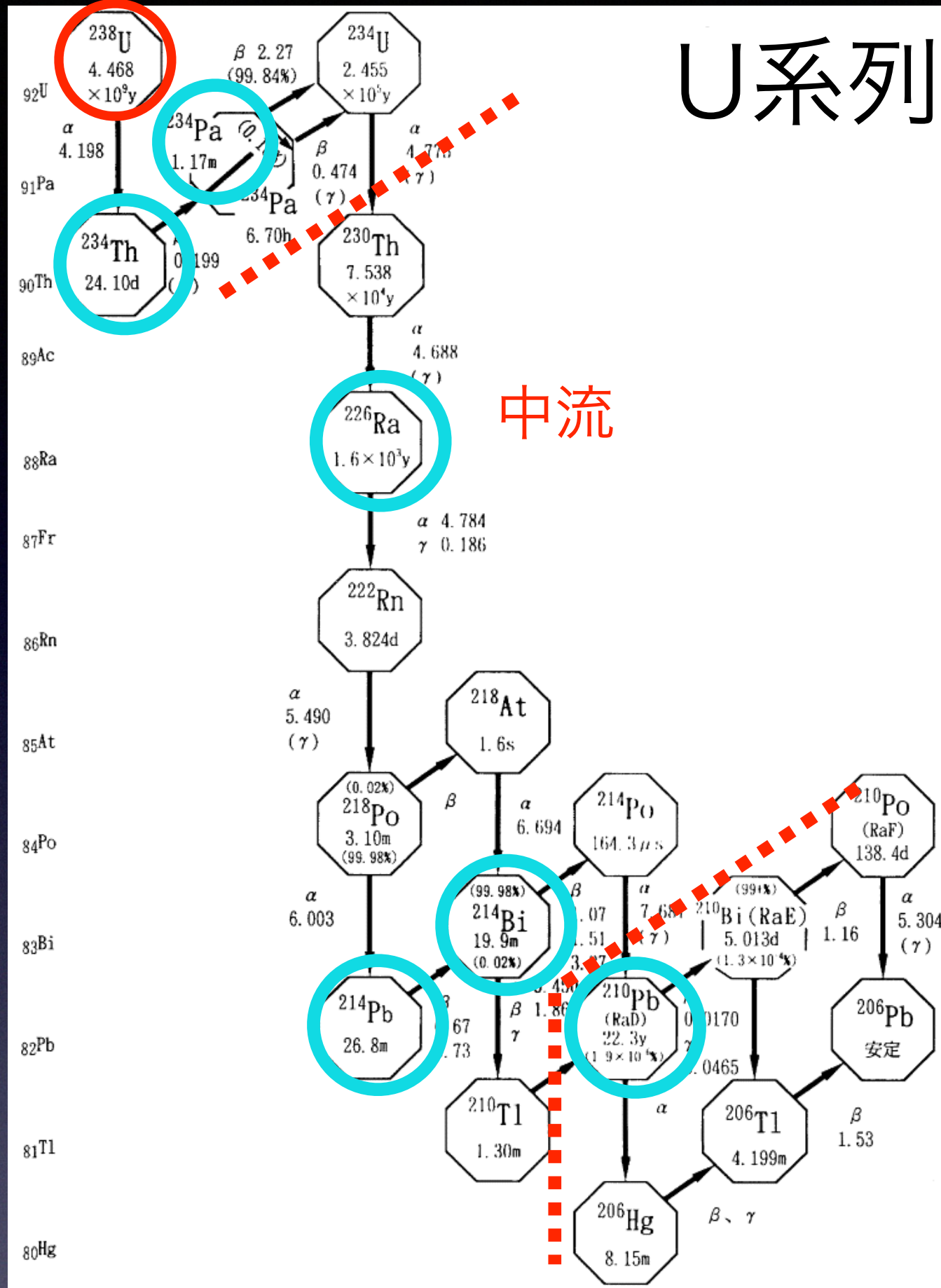
ご支援いただき大変有難うございました

RI測定の意味

青○：GeでRI評価に使っているガンマ線を放出する核

SK-Gd計画での
 硫酸ガドリニウム8水和物 1kg中のRIの要求値

238U : < 5 mBq/kg
 232Th : < 0.05 mBq/kg
 226Ra : < 0.5 mBq/kg
 228Ra : < 0.05 mBq/kg など



- ICP-MS(Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy) : 238Uや232Thを高感度で測定可能
- 高純度ゲルマニウム(HPGe)検出器 : Ge結晶内にエネルギーを落としたγ線を計測 : O(1 keV)の高分解能でRIの特定、定量
 - 感度 : 試料の材質、形状にもよるがウラン中流 (214Pb, 214Bi等) で0.1ppb (~ 1mBq/kg)のレベルで定量可能
 - 226Ra : 娘核の214Bi(Q値3.27 MeV)、 228Ra : 娘核の208Tl(Q値5.00 MeV)はSK実験 太陽ニュートリノ観測のBGに
- 両者の測定 : 相補的な関係

本年度の研究①

B05に関するICP-MS測定

PTEP

Prog. Theor. Exp. Phys. **2023** 013H01(21 pages)

DOI: 10.1093/ptep/ptac170

Development of ultra-pure gadolinium sulfate for the Super-Kamiokande gadolinium project

K. Hosokawa¹, M. Ikeda^{1,*}, T. Okada¹, H. Sekiya^{1,2}, P. Fernández^{3,†}, L. Labarga³, I. Bandac⁴, J. Perez^{4,‡}, S. Ito⁵, M. Harada⁶, Y. Koshio^{2,6}, M. D. Thiesse⁷, L. F. Thompson⁷, P. R. Scovell⁸, E. Meehan⁸, K. Ichimura⁹, Y. Kishimoto⁹, Y. Nakajima¹⁰, M. R. Vagins^{2,11}, H. Ito¹², Y. Takaku¹³, Y. Tanaka¹⁴, and Y. Yamaguchi¹⁴

Table 4. Results from ICP-MS assays of all samples taken from batches which have been approved for use in SK-Gd. The SK requirement on the concentration of each element is indicated at the top of each column.

Sample	Ce (ppb) <50	U (ppt) <400	Th (ppt) <13
17090X	35 ± 1.6	<2.7	4.9 ± 1.8
180702	<10	<3.0	4.8 ± 0.4
180703	<10	<1.4	9.1 ± 2.9
190302	23.5 ± 1.0	<6.4	<9.8
190303	10.4 ± 1.2	<7.3	<19
190304	10.8 ± 0.7	<13	<19
190502	10.0 ± 0.6	<4.9	<7.4
190604	32.5 ± 0.7	4.8 ± 0.5	7.7 ± 0.7
190606	29.0 ± 0.8	<8.9	<17
190607	10.1 ± 0.1	<9.7	11.6 ± 2.3
190608	13.8 ± 1.0	<5.6	<7.7
190702	12.1 ± 0.7	3.9 ± 0.3	<12
190703	9.7 ± 0.6	3.4 ± 0.6	2.1 ± 0.4
190704	13.9 ± 0.5	5.9 ± 0.4	6.3 ± 0.8
190706	5.3 ± 0.6	4.7 ± 0.4	1.2 ± 0.1
190801	4.5 ± 0.5	3.7 ± 0.4	2.1 ± 0.8
190803	6.3 ± 0.6	3.4 ± 0.6	1.9 ± 0.6
190804	6.0 ± 0.3	2.5 ± 0.7	15.5 ± 1.0
190805	6.5 ± 0.6	2.2 ± 0.8	0.2 ± 0.3
190806	5.9 ± 0.4	8.5 ± 1.0	7.8 ± 0.5
190901	8.0 ± 0.9	4.0 ± 0.3	7.2 ± 1.0
190902	5.7 ± 0.4	2.4 ± 0.5	5.0 ± 1.1
190903	5.5 ± 0.4	4.0 ± 1.0	3.8 ± 0.5
190905	6.5 ± 0.4	2.7 ± 0.5	4.4 ± 0.7
200101	6.7 ± 0.8	<4.2	<6.5
200103	4.5 ± 0.2	1.4 ± 0.3	2.1 ± 0.5
200104	4.0 ± 0.4	1.4 ± 0.5	2.5 ± 0.9

- SK-Gd T1 で使用された硫酸ガドリニウムの放射性不純物量についてまとめたスクリーニングペーパーがPublish
 - PTEP Volume 2023, Issue 1, January 2023, 013H01 <https://doi.org/10.1093/ptep/ptac170>
- [ICP-MS \(B05\)、Ge \(B06\)での測定結果が記載](#)

本年度の研究②

B06に関する Ge測定

Table 5. Summary of $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$ assay results by HPGe detectors. The sample identifier is coded as follows: YYMM##, where YYMM is the year and month of production and ## refers to the batch number produced within that month. The measurements of each radioactive chain are separated into the early part of the chain (E) and the late part of the chain (L). The isotopes identified are the longest lived within each sub-chain, and the activities are estimated assuming secular equilibrium (eq.) within each sub-chain.

Sample	Laboratory	Detector/method	Activity (mBq/kg, 95% CL)										
			²³⁸ U chain		²³² Th chain		²³⁵ U chain		⁴⁰ K	¹³⁸ La	¹⁷⁶ Lu	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
			E, ²³⁸ U eq.	L, ²²⁶ Ra eq.	E, ²²⁸ Ra eq.	L, ²²⁸ Th eq.	E, ²³⁵ U eq.	L, ²²⁷ Ac eq.					
		SK-Gd Req. →	<5	<0.5	<0.05	<0.05	<30	<30	–	–	–	–	–
17090X	LSC	Asterix	<8.4	<0.21	<0.30	<0.30	<0.42	<1.6	<1.0	<0.14	0.13±0.03	<0.07	<0.13
180702	LSC	Asterix	<4.3	<0.12	<0.22	<0.21	<0.3	<1.1	<0.5	0.13±0.04	0.24±0.03	<0.07	<0.08
180703	LSC	Asterix	<6.3	<0.24	<0.44	<0.38	<0.3	<1.1	<0.5	<0.14	0.22±0.03	<0.07	<0.07
190302	LSC	Asterix	<6.7	<0.32	<0.35	<0.29	<0.42	<0.92	<1.6	0.26±0.1	<0.21	<0.09	<0.09
190303	LSC	Asterix	<5.9	<0.3	<0.44	<0.29	<0.39	<0.81	<1.5	0.45±0.09	0.16±0.12	<0.08	<0.09
190304	LSC	Asterix	<7.7	<0.42	<0.55	<0.36	<0.52	<1.22	<2.1	0.40±0.11	<0.21	<0.13	<0.14
190502	Boulby	Belmont	<5.4	<0.49	<0.95	<0.48	<0.36	<1.7	<2.8	<0.28	0.49±0.08	–	<0.10
190502	Kamioka	Lab-C Ge	<25.0	<0.75	<0.52	<0.36	<9	7.9±0.8	<1.63	<0.37	0.68±0.18	<0.16	<0.22
190604	Boulby	Belmont	<9.80	<0.47	<0.61	<0.50	<0.45	<2.33	<2.45	<0.21	0.97±0.11	–	<0.08
190604	Kamioka	Lab-C Ge	<26.9	<0.68	<0.55	<0.33	<4.6	<1.2	<2.02	<0.36	1.43±0.19	<0.19	<0.34
190606	Boulby	Merrybent	<13.1	<0.84	<0.79	<0.63	<0.37	2.6±0.6	<3.27	<0.29	1.23±0.16	–	<0.13
190606	Kamioka	Lab-C Ge	<17.3	<1.36	<0.91	<0.94	<8.3	2.6±1.3	<3.20	<0.26	0.74±0.29	<0.39	<0.50
190606	Kamioka	Lab-C Ge, Ra Disk	–	<0.31	<0.82	<0.48	–	–	–	–	–	–	–
190607	LSC	GeOroel	<5.0	<0.30	<0.79	<0.42	<0.30	<0.96	<1.59	<0.18	<0.13	<0.12	<0.09
190608	LSC	Asterix	<6.2	<0.53	<0.43	<0.35	<0.40	<0.88	<1.50	<0.14	<0.25	<0.08	<0.09
190608	Kamioka	Lab-C Ge	<23.2	<1.06	<1.38	<0.80	<4.3	<1.8	<2.15	<0.49	<0.51	<0.21	<0.30
190608	Kamioka	Lab-C Ge, Ra Disk	–	<0.63	<0.52	<0.61	–	–	–	–	–	–	–
190702	LSC	GeOroel	<7.7	<0.45	<1.11	<0.50	<0.37	2.4±0.9	<1.5	<0.20	0.23±0.13	<0.12	<0.11
190702	Kamioka	Lab-C Ge	<12.0	<0.63	<1.08	<0.33	<3.4	<1.6	<1.99	<0.28	0.28±0.12	<0.17	<0.28
190703	LSC	Asterix	<5.9	<0.35	<0.51	<0.50	<0.45	1.8±1.0	<1.7	<0.20	0.51±0.13	<0.10	<0.10
190704	Boulby	Belmont	<9.8	<0.44	<0.66	<0.75	<0.29	<1.39	<2.01	<0.25	<0.18	–	<0.10
190706	Boulby	Belmont	<9.5	<0.45	<0.66	0.53±0.12	<0.28	<1.32	<2.09	<0.25	<0.25	–	<0.13
190706	Kamioka	Lab-C Ge	<9.4	<0.69	<0.50	<0.86	<2.26	<1.10	<1.9	<0.29	<0.19	<0.19	<0.26
190801	LSC	GeAnayet	<20	<0.92	<1.5	<0.77	<0.80	<1.17	<1.44	<0.18	2.7±0.2	<0.23	<0.18
190803	LSC	Asterix	<4.9	<0.31	0.39±0.21	0.55±0.22	<0.36	<0.74	<1.4	<0.09	3.5±0.1	<0.08	<0.07
190804	Boulby	Belmont	<11	<0.46	0.67±0.21	<0.67	<0.38	<1.98	<2.57	<0.20	4.60±0.24	–	<0.10
190805	LSC	GeOroel	<6.5	<0.52	0.53±0.44	0.57±0.40	<0.44	<0.98	<1.18	<0.10	9.44±0.10	<0.10	<0.09
190806	Boulby	Merrybent	<8.09	<0.43	0.49±0.11	1.27±0.13	<0.26	<1.23	<1.78	<0.14	9.35±0.22	–	<0.07
190901	LSC	Asterix	<6	<0.30	0.42±0.27	0.37±0.27	<0.46	<1.20	<1.47	<0.15	4.85±0.12	<0.10	<0.13
190902	Boulby	Belmont	<5.52	<0.26	0.53±0.10	0.63±0.09	<0.33	<1.22	<1.32	<0.10	8.78±0.18	–	<0.05
190903	LSC	Asterix	<6.2	<0.37	0.59±0.28	0.35±0.28	<0.54	<1.7	<1.5	<0.14	4.9±0.1	<0.10	<0.09
190905	Kamioka	Lab-C Ge	<8.6	<0.21	0.72±0.20	0.70±0.16	<5.2	<1.1	<1.57	<0.09	6.6±0.2	<0.09	<0.13
190905	Kamioka	Lab-C Ge, Ra Disk	–	<0.29	0.58±0.25	<0.39	–	–	–	–	–	–	–
200101	Kamioka	Lab-C Ge	<6.80	<0.35	0.98±0.18	1.00±0.15	8.24±1.68	<0.54	<0.95	<0.08	6.25±0.17	<0.18	<0.13
200103	Kamioka	Lab-C Ge	<8.46	0.51±0.12	1.42±0.25	0.84±0.17	<2.11	<0.88	<1.43	<0.12	0.18±0.07	<0.13	<0.16
200104	Kamioka	Lab-C Ge	<8.39	<0.36	1.48±0.24	0.84±0.18	<3.45	<0.95	<1.02	<0.08	<0.28	<0.23	<0.11

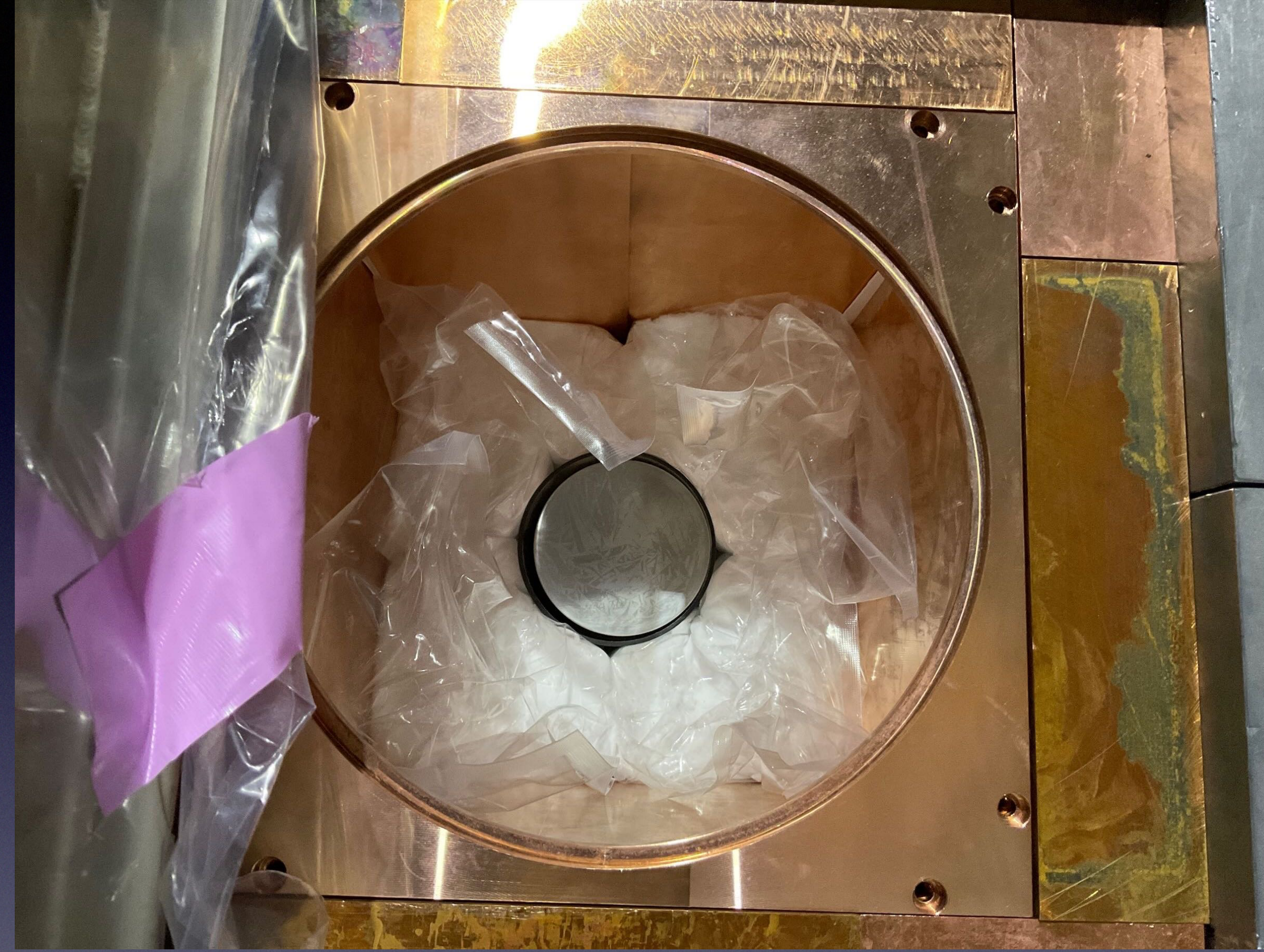
- SK-Gd T1 で使用された硫酸ガドリニウムの放射性不純物量についてまとめたスクリーニングペーパーがPublish
 - PTEP Volume 2023, Issue 1, January 2023, 013H01 <https://doi.org/10.1093/ptep/ptac170>
- [ICP-MS \(B05\)、Ge \(B06\)での測定結果が記載](#)

本年度の研究③：B05 T1.5用硫酸ガドリニウムの測定

- SK-Gd T1.5で用いる全37ロットのICP-MS測定
- 全てのロットで要求を満たしていることを確認
- T1で用いた硫酸ガドリニウムよりも不純物量が安定して少ないことを確認

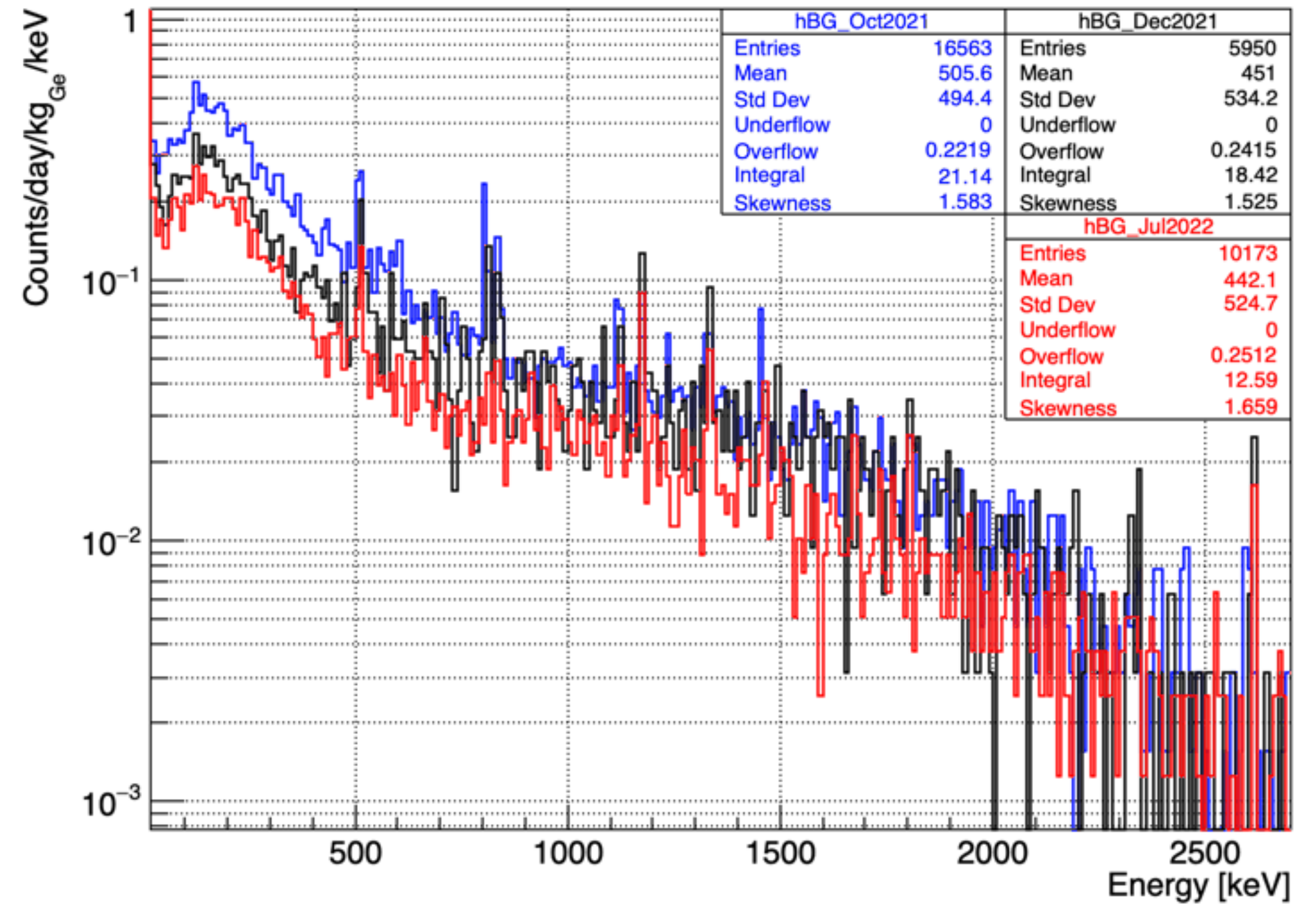
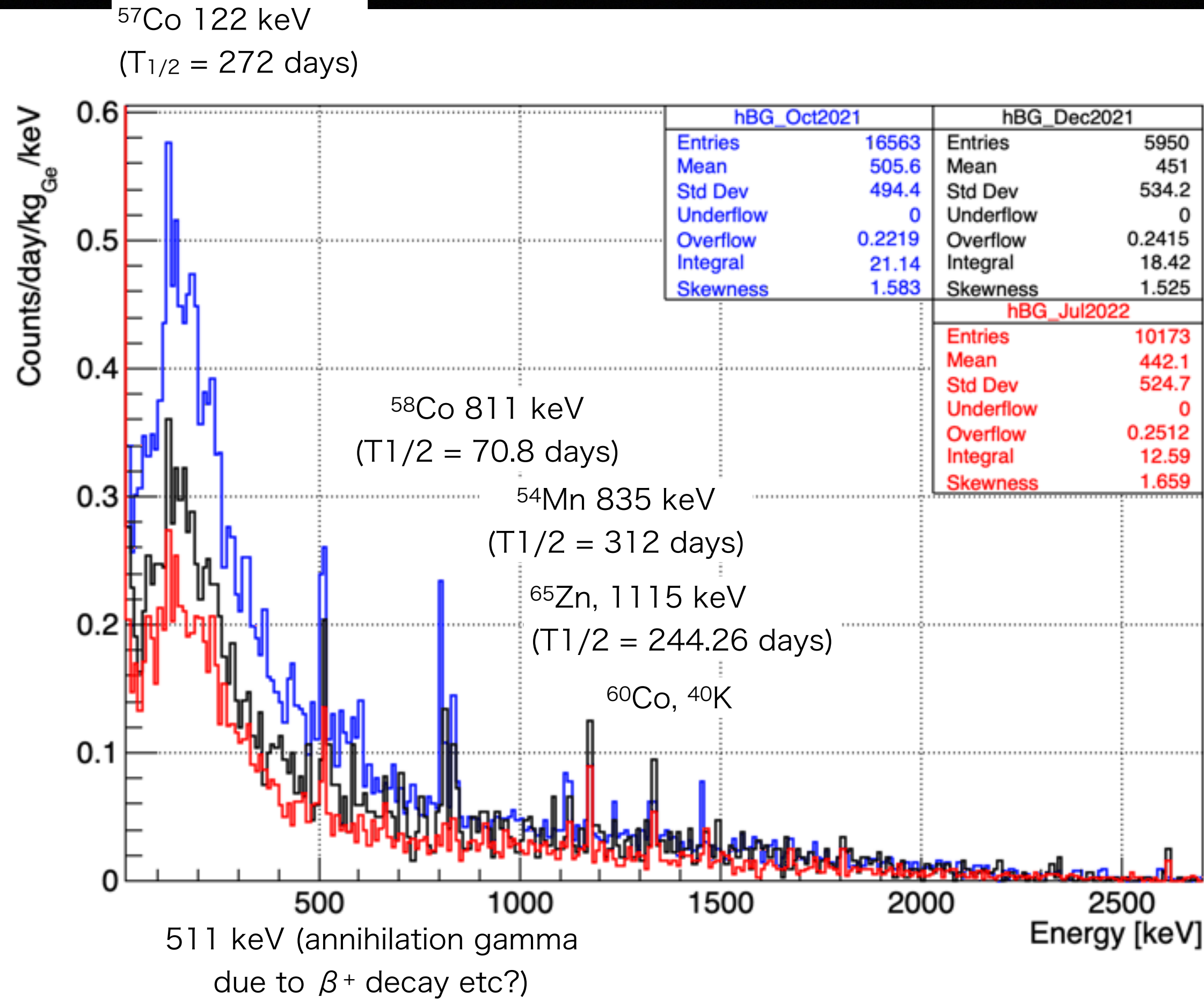


本年度の研究④：B06 T1.5用硫酸ガドリニウムの測定



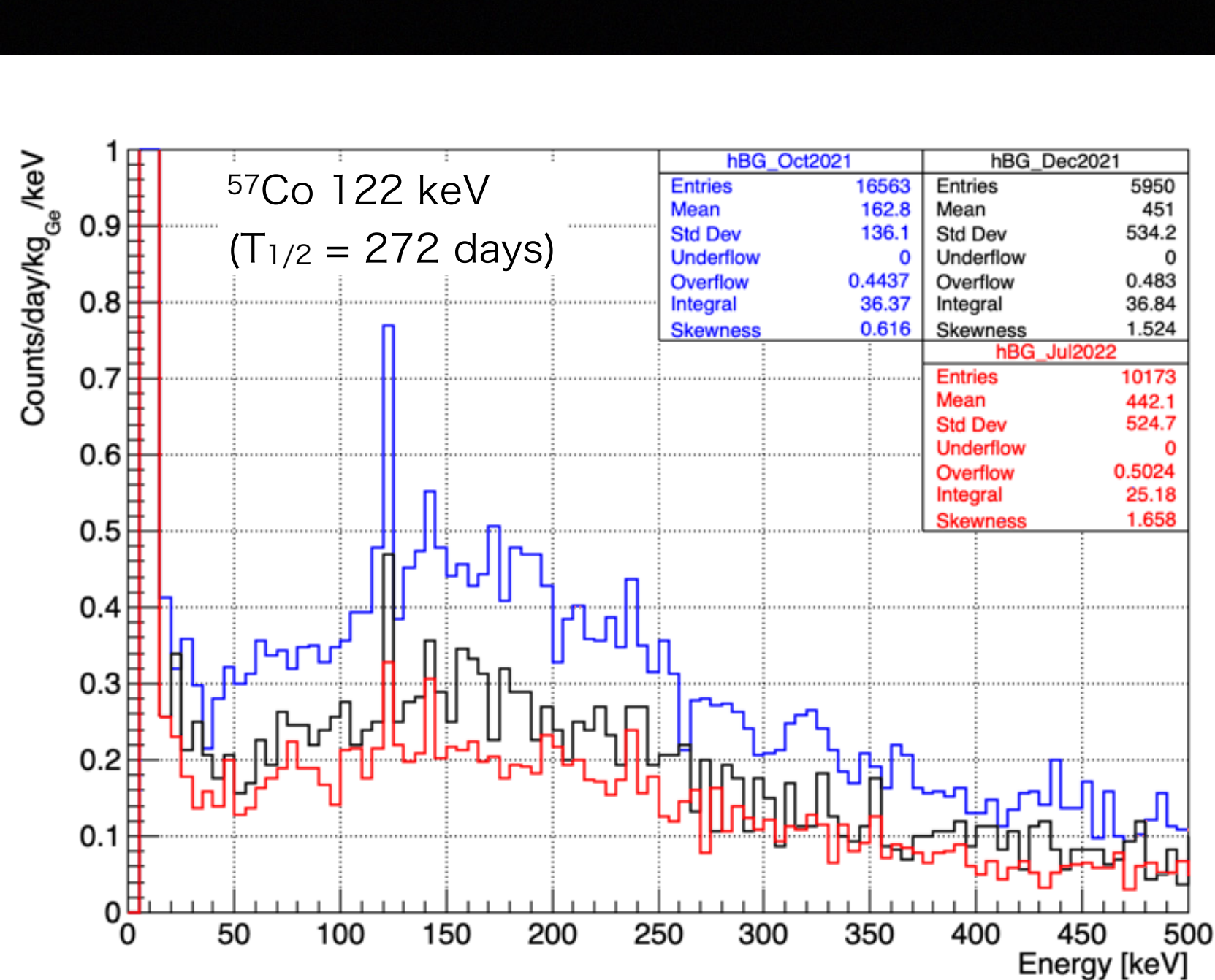
- 2台のゲルマニウム検出器を活用し、ほぼ全てのロットを溶解前に測定
 - 昨年度の研究成果発表回で紹介させて頂いた2022年導入のHPGe検出器では合計15サンプル測定
 - 10日の測定で ^{226}Ra の要求値 ($< 0.5 \text{ mBq/kg}$) の感度に到達

本年度の研究⑤：B06 Ge検出器のBGの時間変化

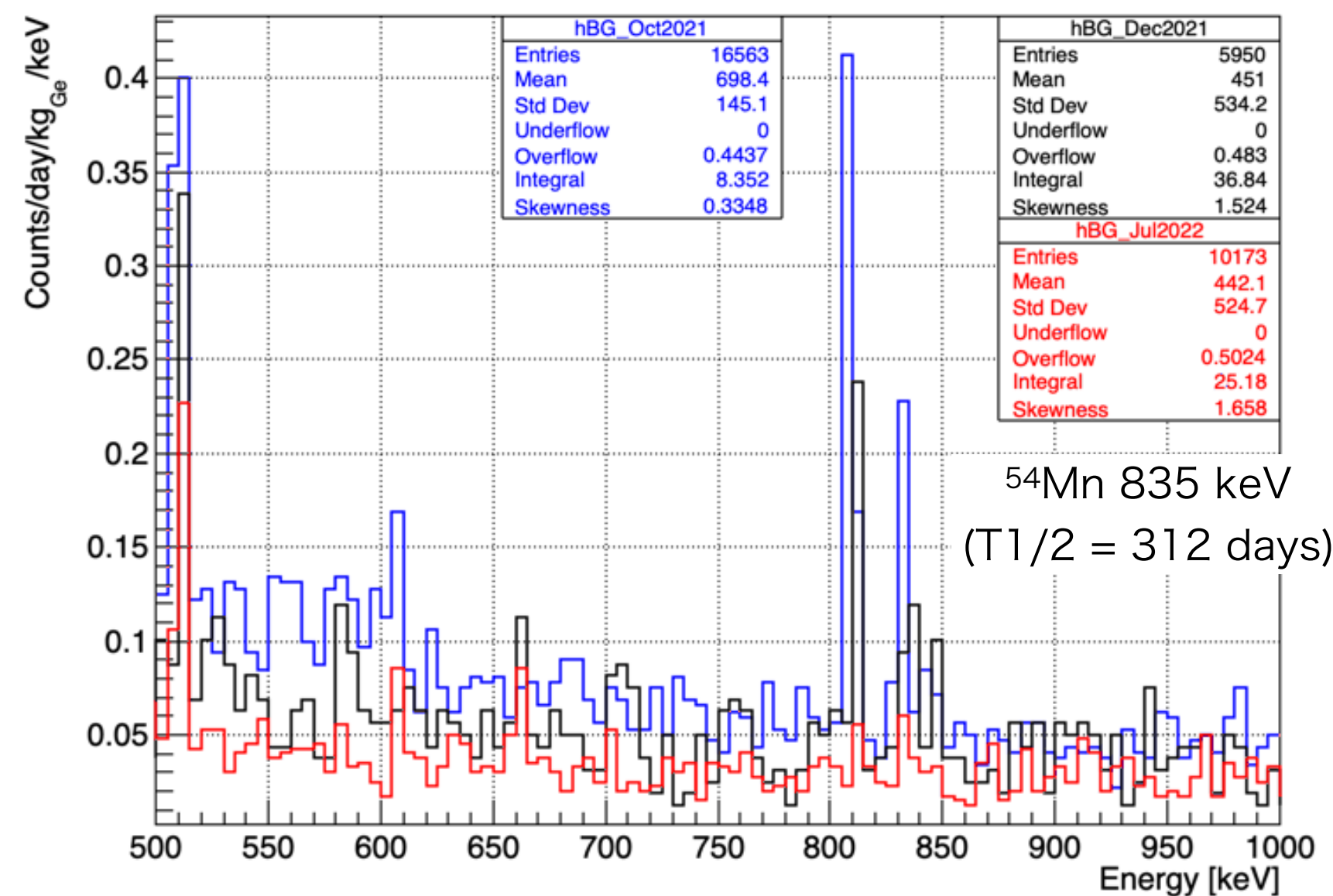


- 青：2021年10月 (追加の銅ブロックインストール前, $LT = 38.14$ d)
- 黒：2021年12月 (追加の銅ブロックインストール後, $LT = 19.0$ d)
- 赤：2022年7月 ($LT = 47.2$ d)
- 40–2700 keVのカウントレート： $205 \text{ cpd/kg}_{\text{Ge}} \rightarrow 140 \text{ cpd/kg}_{\text{Ge}} \rightarrow 100 \text{ cpd/kg}_{\text{Ge}}$

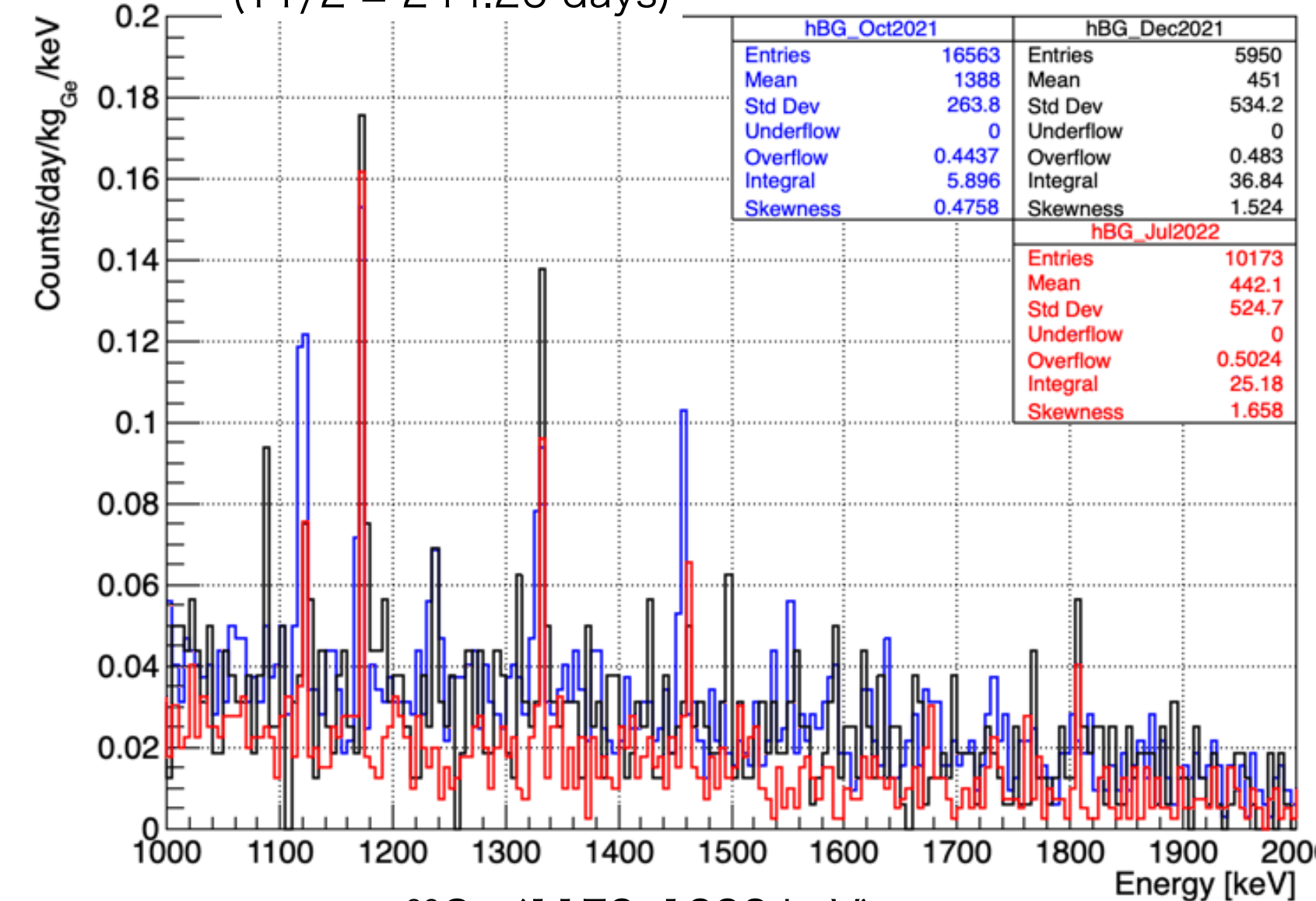
本年度の研究⑤：B06 Ge検出器のBGの時間変化



^{58}Co 811 keV
($T_{1/2} = 70.8$ days)



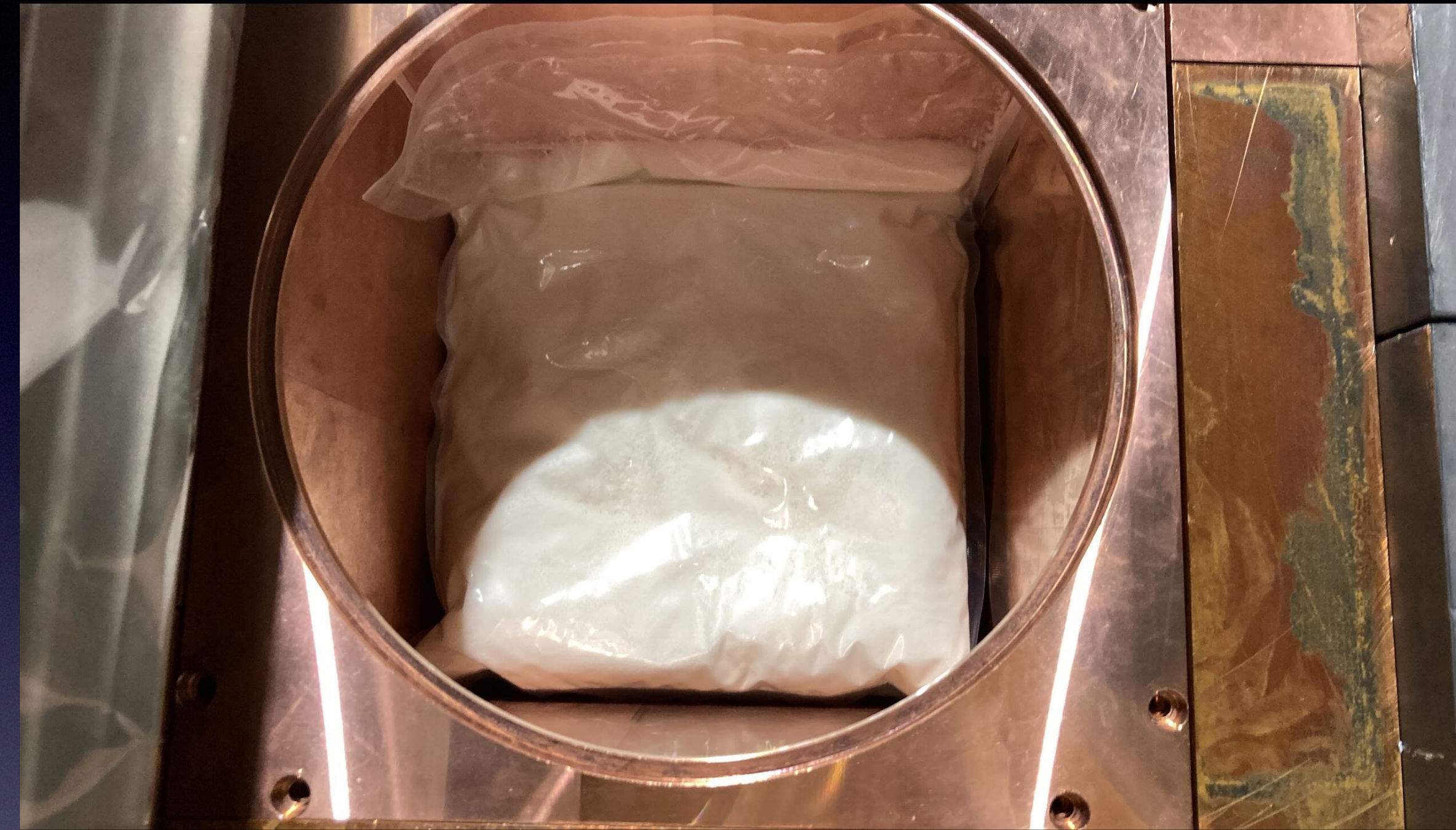
^{65}Zn , 1115 keV
($T_{1/2} = 244.26$ days)



^{60}Co (1173, 1332 keV)
 ^{40}K (1461 keV)

- 青：2021年10月（追加の銅ブロックインストール前, $LT = 38.14$ d)
- 黒：2021年12月（追加の銅ブロックインストール後, $LT = 19.0$ d)
- 赤：2022年7月 ($LT = 47.2$ d)
- 半減期の短い ^{58}Co 等のガンマ線成分は順調に減ってきている。
- 連続成分の理解のためのシミュレーションも行っている。

本年度の研究⑥：B06 Ge検出器での測定



- 硫酸ガドリニウム測定完了後もSK純水装置で用いるイオン交換樹脂（使用前後）の測定や、EVOH袋（Ge検出器で測定するサンプルの梱包に使用）の含有物の測定など、引き続きSK関係のサンプルを中心に測定を行っている。

まとめと今後

- ICP-MSおよび極低バックグラウンド HPGe検出器を用いたスクリーニングをSK-Gd計画で導入する硫酸ガドリニウムを中心に行った。
 - T-1.5で用いた硫酸ガドリニウムについて全てのロットでICP-MS測定を行い、ほとんど全てのロットのGe検出器での測定を溶解前に行うことが出来た。
 - 全てのロットで要求値を満たすことを確認した。
- 硫酸ガドリニウム測定完了後も純水装置に用いるイオン交換樹脂やEVOH袋の添加物など、SK検出器に影響のあるサンプルを中心に測定を行っている。
 - 引き続き継続して様々なサンプルの測定を行い、フィードバックをする。