

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の測定

東京大学 宇宙線研究所 共同利用研究成果発表会

2024 / 2 / 22

東北大 ニュートリノ科学研究センター 岸本 康宏

メンバーと予算など

• 研究メンバー

- 東北大：
 - 岸本 康宏, 市村 晃一, 渡部 一步, 千葉 健太郎, Azzi Marthe Luise Adeie
- 筑波大：
 - 坂口 綾, 高久 雄一
- 東大 宇宙線研 神岡施設：
 - 池田 一得

• 予算

- 総額 356,137円
 - 旅費 200千円
 - その他 100千円
 - 前年度の繰越 56,137円

• 執行額

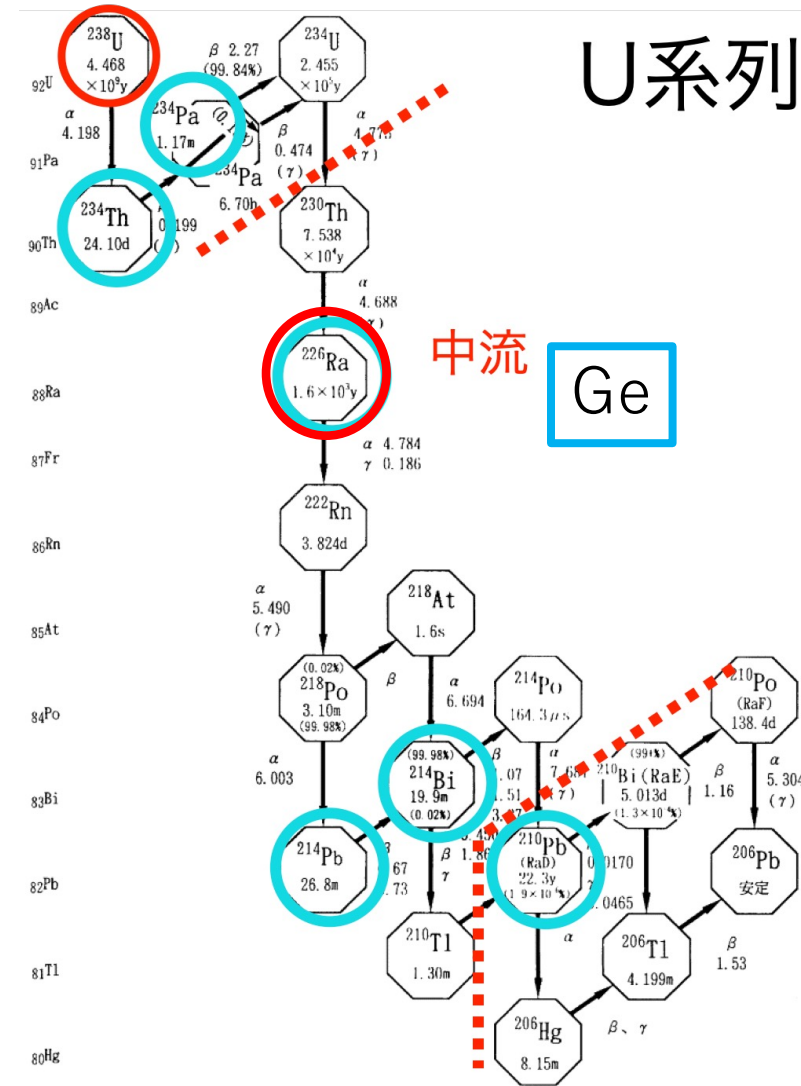
- 総額 355,233円 (ほぼ使い切り)
 - 旅費 152,800円
 - その他 202,433円

ご支援大変ありがとうございました。

ICP-質量分析器の特徴

- ICP質量分析器は**非常に高感度**
 - その特徴を活かして、極微量の安定元素や、長い寿命を持った放射性元素の定量が可能
- 放射性原子核種の測定では、**Ge半導体検出器と相補性が高い**.
 - 長寿命→ ICP質量分析器
 - 短寿命→ Ge半導体検出器

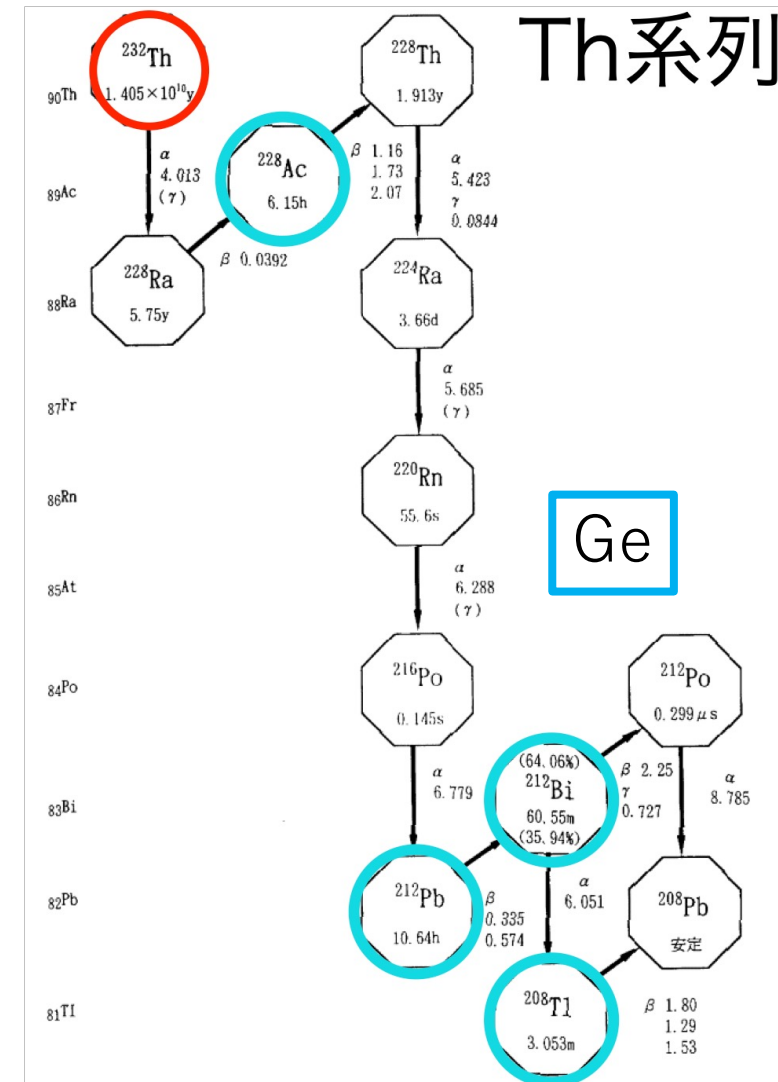
ICP質量分析装置



ICP-質量分析器の特徴

- ICP質量分析器は**非常に高感度**
 - その特徴を活かして、極微量の安定元素や、長い寿命を持った放射性元素の定量が可能
- 放射性原子核種の測定では、**Ge半導体検出器と相補性**が高い。
 - 長寿命→ ICP質量分析器
 - 短寿命→ Ge半導体検出器

ICP質量分析装置



SK-Gd等の地下実験への利用

- SK-Gd, HK

- 導入する $Gd_2(SO_4)_3$ の U, Th, Ra のスクリーニング
- SK-Gd のためのサンプル測定
- U, Th 除去フィルターの開発に利用

➡ 水溶液

- その他の実験

- KamLAND 2 で新たに導入する物質の U, Th 量測定
- CANDLES, POCOLON など

➡ 固体・液体も



神岡施設のICP質量分析器
アジレント7900

本研究での挑戦

- 「コンタミ無く」「水溶液」にして，ICP質量分析装置導入し，「高感度」で測定する。
 - 「高感度」
 - ICP質量分析器の性能を活かす
 - s-レンズの導入など
 - 「水溶液」
 - 乾式，湿式→本研究では乾式
 - 「コンタミ無く」
 - クリーンルーム，クリーンブース
 - 容器の洗浄
 - 高純度試薬



これまでの成果一覧

- 水溶液系

- SK-Gd用硫酸ガドリニウム粉末のU, Th, Raのスクリーニング
- SK-GdのためのGd測定
 - 例：廃液にどれくらいGdが含まれているか測定
- HKや将来の純水装置のための，新水フィルター開発

- 非水溶液系

- カムランド 2 - 禅で使用予定の，
 - シンチレーション樹脂 (PEN) フィルム
 - 第二発光溶質 (bis-MSB)

のU, Thの高感度定量

SK-Gd用硫酸ガドリニウム粉末のU, Th, Raのスクリーニング

- 近年の投稿論文：

- 極低放射能硫酸ガドリニウム開発とスクリーニングについて：

- Hosoawa et al. PTEP, 2023, 1, January 2023, 013H01

- **ICP-MSを用いたRa測定について**

- Sakakieda et al. PTEP, 2023, 10, October 2023, 103H01

- **Raの測定限界 0.43 mBq/kg**

- Cf: SK-Gd allowable limit: 0.45 mBq/kg

JOURNAL ARTICLE

analysis of ²²⁶Ra in ultrapure gadolinium sulfate octahydrate

Y Sakakieda, K Hosokawa, F Nakanishi, Y Hino, Y Inome, A Sakaguchi, Y Takaku, S Yamasaki, K Sueki, M Ikeda, H Sekiya

Progress of Theoretical and Experimental Physics, Volume 2023, Issue 10, October 2023, 103H01, <https://doi.org/10.1093/ptep/ptad117>

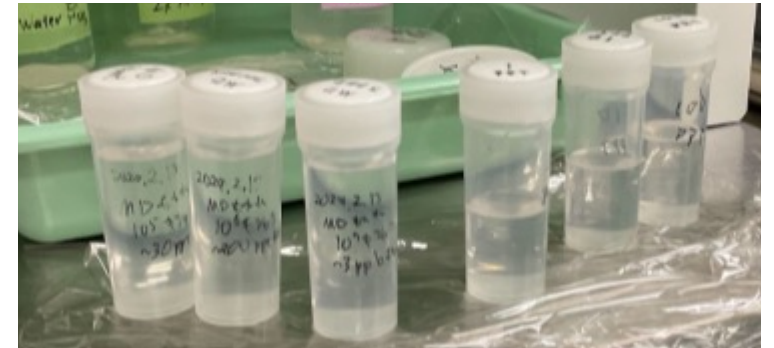
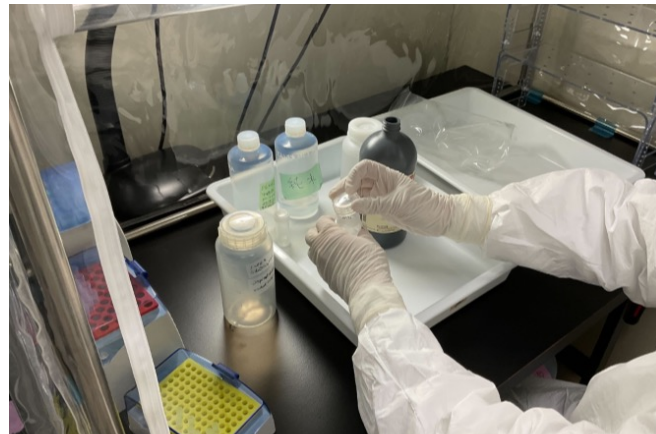
Published: 14 September 2023 Article history

PDF Split View Cite Permissions Share

SK-Gdのためのサンプル測定

- 廃液中のGd分析
 - 実験で出た廃液中のGd分析：
 - 環境中にGdを放出しないようにするための対策
 - 希釈度を調整または樹脂による分離を用いることで、サンプル中のGd濃度が、pptからppmまで広い範囲で分析できる。
 - 濃度に応じた適切な廃棄方法を検討する。

実験の様子



キレート繊維を用いたフィルターの評価

- 放射線グラフト重合法を用いて作成したキレート繊維を用いたフィルターの評価

- キレート繊維フィルターの特徴

- 純水装置でもよく用いられる糸巻フィルターと同じように手軽に扱うことができる。
- イオン交換樹脂のようにターゲットのイオンを吸着することができる。

- 結果

- 通水速度：12ml/min から 500ml/minでのU, Th 吸着効率を測定
- ppt レベルの低U, Th濃度でも、90%以上の吸着を確認した。**
- 結果をまとめて論文にする予定。



キレート繊維フィルター



通水試験の様子

カムランド2 – 禅で使用予定の、シンチレーション樹脂フィルム、第二発光溶質のU, Thの高感度測定

- オープンで試料を灰化し，硝酸水溶液の形で，ICP 質量分析装置に導入して測定
 - 一連の手順中における，コンタミの混入，被測定物(U, Th)の回収の割合について詳しく研究
 - シンチレーション樹脂（PEN）フィルムについての成果を，**2024/2/14にPTEPに投稿**



クリーンブース内での灰化試料の取扱の様子

PTEP

Prog. Theor. Exp. Phys. **2015**, 00000 (9 pages)
DOI: 10.1093/ptep/0000000000

Development of a method to measure trace level of uranium and thorium in scintillation films

K. Ichimura^{1, *}, K. Chiba¹, Y. Gando^{1,4}, H. Ikeda¹, Y. Kishimoto^{1,5}, M. Kurasawa¹, K. Nemoto¹, A. Sakaguchi², Y. Takaku², and Y. Sakakieda³

- PEN中のU, Th

- **U : 5.4 ± 0.7 pg g(PEN)⁻¹ Cf: 測定限界 : 0.69 pg g(PEN)⁻¹**
- **Th: 6.2 ± 0.5 pg g(PEN)⁻¹ Cf: 測定限界 : 1.13 pg g(PEN)⁻¹**
- → このPENフィルムは, カムランド2-禅の要求を満足

- Bis-MSB中のU, Th

- **ロット 1 : U : 167 ± 5 pg g⁻¹, Th: 192 ± 7 pg g⁻¹**
- **ロット 2 : U : 603 ± 21 pg g⁻¹, Th: 352 ± 8 pg g⁻¹**
- → ロット依存性がある.
- どちらの場合でも, bis-MSBは, U, Thを削減して, 目標値以下とする必要がある.
 - 目標値は, **U : ~ 10 pg g⁻¹, Th : ~ 30 pg g⁻¹**
- **純化手法を開発中**
 - この開発でもICP質量分析器が活用されている.



図 5.11 分液漏斗模式図



図 5.12 振盪の様子

まとめと今後

- SK-Gd を始めとする，地下極低放射能実験のために，ICP質量分析装置を用いて，極微量元素の定量を行った
 - SK-Gd … Gd中のU, Th, Raの定量など
 - その他 … フィルターの開発，カムランド 2 禅のための新規材料中のU, Th の定量など
- SK-Gd のガドリニウム導入が完了し，1つの節目を迎えた。
 - 広く極低放射能実験のためのICP質量分析装置を利用に重点を移して研究を継続