

(LNS Experiment : #2543, #2560)

高純度酸化ガドリニウム試薬中のカリウムの光量子放射化分析

大浦泰嗣, 佐々木愛, 海老原充

首都大学東京大学院理工学研究科 (192-0397 東京都八王子市南大沢 1-1)

Photoactivation Analysis of Potassium in High Purity Gadolinium Oxides

Y. Oura, A. Sasaki, and M. Ebihara

*Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Metropolitan University,
1-1 Minami-Ohsawa, Hachioji, Tokyo 192-0372*

A potassium content in high purity gadolinium oxide reagents, which is a component of the detector for the neutrino in the "KASKA" project, was determined by photoactivation analysis. Applying radiochemical processing, 0.1 ppm of upper limit was obtained. The gadolinium oxide reagent determined in this study was confirmed to meet the request for materials in the detector.

§ 1. はじめに

現在世界的にニュートリノに関する大型研究プロジェクトがいくつか進行あるいは計画されている。その中の一つが, "KASKA" プロジェクトである [1]。このプロジェクトは, 原子炉ニュートリノを用いてニュートリノ振動 θ_{13} 現象の解明を目指している。ニュートリノは物質との相互作用がまれなため, 通常, 非常に大きな検出器が用いられるが, KASKAでは, ガドリニウム (Gd) 原子を含んだ液体シンチレータによるニュートリノの検出を計画している。このシンチレータにウラン系列核種, トリウム系列核種, ^{40}K 等の天然放射性核種が存在すると, これらの β 壊変によりニュートリノが放出され, 原子炉ニュートリノ検出の大きな妨げとなる。従って, シンチレータ中の放射性不純物の特定とその低減は, プロジェクトを成功に導くための非常に重要な課題である。

液体シンチレータには Gd を含む化合物を溶解させるが, その化合物合成のための原料の一つは酸化ガドリニウムである。希土類元素であるこの試薬には, 天然アクチノイド元素である U と Th, ならびに環境中に多量に存在する K (^{40}K) が不純物として混入している恐れがある。これまでに, U 濃度と Th 濃度は高感度機器分析法の一つである ICP 質量分析法により定量した。しかし, ICP 質量分析法では, K の定量は難しい。そこで, 放射化分析法により酸化ガドリニウム中の K 濃度の定量を行った。

高感度で高確度な定量値を得ることができる放射化分析法は, 微量元素に対する有用な定量分析法である。一般に, 中性子放射化分析法 (NAA) がよく利用されるが, Gd は中性子捕獲断面積が非常に大きいため, 照射中の中性子の自己吸収を無視することができず, 正確な定量には比較標準試料の調製を注意深く行う必要がある。一方, 試料に制動放射線を照射する光量子放射化分析法 (PAA) で利用する (γ, n) 反応の反

応断面積は標的核種の質量数により系統的に変化し、特定の核種（元素）で共鳴的に大きな断面積を示すことがない。そのため、試料による自己吸収は起こりにくく、本試料においてはNAAよりも正確な定量が可能だと考えられるため、PAAによるKの定量を行った。しかし、Kの定量に用いる ^{38}K の半減期が7.6分と短い点で分析上の制約を受ける。

§2. 実験

純度99.999%の Gd_2O_3 約600mgをAl箔に包み、直径10mmの円板状に整形した。また、比較標準試料である K_2CO_3 も同様に調製した。この2種類の試料を交互に石英管につめ、最大エネルギー25 MeVの制動放射線を10分間照射した。

当初は、照射後、非破壊測定による定量を試みたが、 $^{160}\text{Gd}(\gamma, n)$ 反応で生成した ^{159}Gd (半減期18.5時間)の放射能が強く、検出器に近づけて測定できなかったため、Kの上限値しかえられなかった。そこで、次のような化学分離を迅速に行った。照射後、Al箔から Gd_2O_3 のみ取り出し、あらかじめ既知量の K^+ 担体(約10mgK)を加え加熱しておいた6M硝酸に溶解した。この溶液にアンモニア水を添加して水酸化ガドリニウムを沈殿させた。遠心分離により分離した上澄み液を、さらに、孔径 $0.2\ \mu\text{m}$ のフィルターでろ過して、水酸化ガドリニウム沈殿を完全に除去した。この溶液を試薬瓶に移し、Ge半導体検出器にてガンマ線を測定した。 K_2CO_3 は水に溶解後、 Gd_2O_3 試料と同様な形状にそろえ、ガンマ線を測定した。Kの化学収率は再放射化法により求めた。測定対象であるK同位体を第1表にまとめた。

第1表 定量にもちいたK同位体の核データ。

核種	半減期	ガンマ線エネルギー	
^{38}K	7.6分	2167keV	$^{39}\text{K}(\gamma, n)$
^{42}K	12時間	1525keV	$^{41}\text{K}(n, \gamma)$, 再放射化法

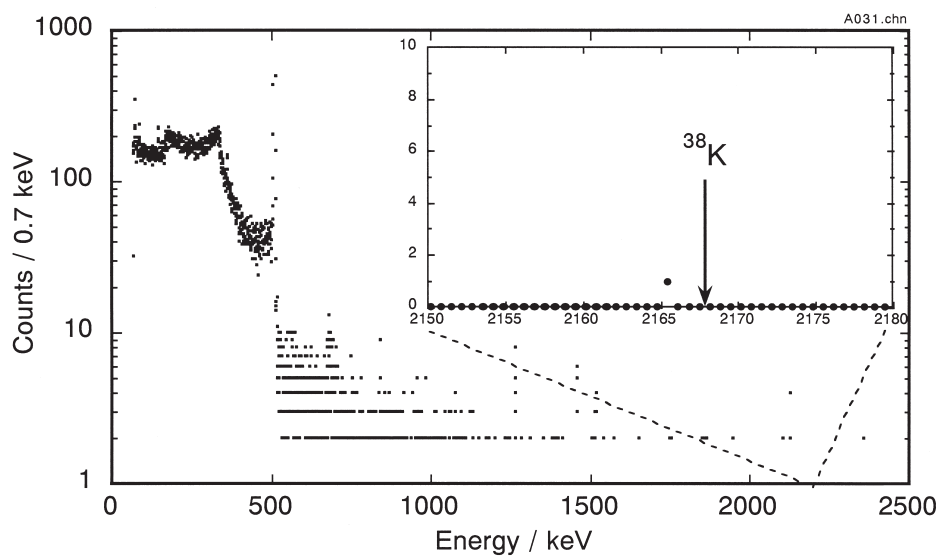
§3. 結果と考察

異なる照射で定量を2回(試料Aと試料B)行った。化学分離は約15分で終了し、化学収率はそれぞれ30%と51%であった。高い化学収率よりも短時間での化学分離を目指したため、水酸化ガドリニウムの精製を行わなかったのが低い化学収率の原因であろう。

第1図に試料Bでの照射終了23分後のガンマ線スペクトルを示す。化学分離操作によりガンマ線測定の妨害となる ^{159}Gd はほとんど除去できた。また、 ^{38}K が放出するガンマ線のエネルギーは、 (γ, n) 反応で生成する核種から放出されるガンマ線のエネルギーの中ではもっとも高エネルギーなものの一つであることも幸いし、そのエネルギー領域ではコンプトン散乱によるバックグラウンドがほとんど0の状態での測定を行うことができた。試料Aでも同様であった。

^{38}K のガンマ線を検出できず、さらにバックグラウンドも0であったので、1カウント検出できた時の濃度を上限値として算出した。試料AとBでそれぞれ、0.6ppmと0.1ppmとなった。試料Bの方が分析条件がよかったので、 Gd_2O_3 試料中のK濃度は0.1ppm以下と決定した。よって、本研究で分析に供した Gd_2O_3 試薬はKASKA実験で要求されるK濃度(1ppm)を十分満たしていることが確認できた。

ここでは詳細を省略するが、NAAによる定量も行った。日本原子力研究開発機構JRR4の簡易照射筒にて6時間照射し、放射化学分離後ガンマ線を測定した。上限値として0.9ppmを得た。NAAでは試料の自己吸収により中性子束が見かけ上約1/10になることを別の実験より確認しており、これがPAAの方がNAAよ



第1図 放射化学分離によるカリウムフラクションのガンマ線スペクトル。照射終了23分後から300秒間測定。

りも低い上限値を得ることができた理由と考えられる。中性子吸収断面積が大きな元素で構成されるマトリックスを持つ試料の場合は、PAAが非常に有効であることを示している。

§4. まとめ

高純度酸化ガドリニウム試薬中のカリウム濃度を光量子放射化分析法により調べた。カリウムの上限値として0.1ppmを得た。KASKAプロジェクトで要求される条件を十分満たしていることを確認できた。

謝 辞

本研究を行うにあたり良質な電子ビームを供給していただいた東北大学原子核理学研究施設マシングループの方々と試料照射ならびに放射線測定でお世話になった大槻勤助教授と結城秀行博士に深く感謝する。

参 考 文 献

- [1] M. Kuze and the KASKA Collaboration: Nucl. Phys. **B149** (2005) 160.

