

一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：504-1 同位体分離，同位体応用，ウラン濃縮，核種・同位体分析

2025年3月12日(水) 15:45 ~ 16:45 H会場(Zoomルーム8)

[1H12-14] 核種分光・分析

座長:岡村 知拓(東京科学大)

15:45 ~ 16:00

[1H12]

反核子・原子核相互作用の探究のための反陽子カルシウム原子の精密X線分光

*樋口 嵩¹、藤岡 宏之²、日野 正裕¹ (1. 京都大学、2. 東京科学大学)

16:00 ~ 16:15

[1H13]

Calcium Isotope Separation with Crown Ether via SLE method: Cool Plasma ICP-MS Analysis

*Pantiwa Kumsut¹, Ryuta Hazama¹, Takaaki Yoshimoto¹, Chonlada Pitakchaianan¹, Kanyanan Kosinarkaranun¹, Anawat Rittirong² (1. Osaka Sangyo Univ., 2. Osaka Univ.)

16:15 ~ 16:30

[1H14]

東京電力福島第一原子力発電所原子炉建屋内で採取されたスミヤ試料に含まれる⁹⁰Srの迅速スクリーニング分析法の開発

*島田 亜佐子¹、飯田 芳久¹ (1. JAEA)

16:30 ~ 16:45

座長持ち時間

反核子・原子核相互作用の探究のための反陽子カルシウム原子の精密 X 線分光

Precision X-ray Spectroscopy of Antiprotonic Calcium Atoms

for Investigation of Antinucleon-nucleus Interactions

*樋口 嵩¹, 藤岡 宏之², 日野 正裕¹

¹京都大学, ²東京科学大学

Antiprotonic atoms are exotic atoms, in which an antiproton (\bar{p}) replaces an atomic electron and is bound to the nucleus. Characteristic x-rays emitted by \bar{p} atoms can be used to study low-energy antinucleon-nucleus interactions. In this context, we will discuss specific interests in spectroscopy of \bar{p} calcium isotopes with transition-edge microcalorimeters.

Keywords: antimatter, exotic atoms, superconducting microcalorimeters, x-ray spectroscopy, isotope enrichment

1. 背景

物質優勢宇宙の起源の解明は、今日の素粒子物理学の最大の命題のひとつである。物質優勢宇宙が存在する機構として、バリオン数保存を破る反応が必要であると考えられており、その候補のひとつとして探索されているのが、中性子・反中性子振動である。真空中を飛行した中性子が反中性子に変換し対消滅する事象を探索することで、 8.6×10^7 秒の中性子・反中性子振動時間の下限値が定められている[Baldo-Ceolin et al. 1994]。近年、反中性子を反射させる鏡などによってこのような実験探索の感度を飛躍的に向上させる提案がなされ、注目を集めているが、そのために反中性子-原子核の間のポテンシャルの情報が必要になる[Nesvizhevsky et al. 2019 など]。この反中性子-原子核のポテンシャルの理解に重要な役割を果たすのが、反陽子-原子核束縛系である反陽子原子による低エネルギー反陽子-原子核ポテンシャルの研究である。反陽子原子は、通常原子よりも3桁小さいボーア半径をもち、そのエネルギー準位には、反陽子-原子核間の強い相互作用の影響が現れる。

2. 研究目的および実験準備状況

本研究では、反陽子原子の特性 X 線の同位体シフトの高精度測定から、反陽子・原子核ポテンシャルのアイソスピン対称性を検証することを目指す。低エネルギーにおける反陽子・原子核ポテンシャル $V_{\text{opt}}(r)$ は

$$V_{\text{opt}}(r) = -\frac{2\pi}{\mu} \left(1 + \frac{\mu}{M} \frac{A-1}{A} \right) [b_0 \rho(r) + b_1 \delta\rho(r)],$$

と表される[Batty et al. 1997]。 M は核子質量、 μ は反陽子-原子核系の換算質量である。 $\rho(r) = \rho_n(r) + \rho_p(r)$, $\delta\rho(r) = \rho_n(r) - \rho_p(r)$ は、原子核中の中性子密度分布を $\rho_n(r)$ 、陽子密度分布を $\rho_p(r)$ としたとき、中性子-陽子間の密度分布のそれぞれ和と差を表す。 b_0 と b_1 は、 $\rho(r)$ および $\delta\rho(r)$ のポテンシャル $V_{\text{opt}}(r)$ への寄与を表す核子あたり散乱長に相当する。 $V_{\text{opt}}(r)$ にアイソスピン反転 ($b_1 \rightarrow -b_1$) を施すと、反中性子-原子核ポテンシャルが得られる。先行研究では、原子核の中性子分布の不定性が b_1 の決定を妨げていた[Friedman et al. 2005]。本研究では、核子分布について理論・実験両面から研究が進んでいるカルシウム(Ca)原子核に着目し、反陽子 Ca 原子の遷移 X 線の同位体依存性の測定から反陽子-原子核ポテンシャルの b_1 決定を目指す。このために、最新の核子分布の知見とともに最先端の X 線検出器である超伝導転移端センサー(TES)を用いる。これにより、先行研究よりも1-2桁高い分解能で、反陽子 Ca 原子の対消滅直前の $6h \rightarrow 5g$ 遷移 (約 120 keV) を数 eV の精度で測定することを目指す。本講演では、2025年に予定している ^{48}Ca による最初のテスト実験へむけた準備状況を報告し、将来的な同位体濃縮標的を用いた研究に向けてのアイデアを紹介する。

*Takashi Higuchi¹, Hiroyuki Fujioka² and Masahiro Hino¹

¹Kyoto University, ²Institute of Science Tokyo

Calcium Isotope Separation with Crown Ether via SLE method: Cool Plasma ICP-MS Analysis

*Pantiwa Kumsut¹, Ryuta Hazama¹, Takaaki Yoshimoto¹, Kanyanan Kosinarkaranun¹, Chonlada Pitakchaianan¹, Anawat Rittirong², Tadafumi Kishimoto², Toshiyuki Fujii², Yoichi Sakuma³, Satoshi Fukutani⁴, Yuji Shibahara⁴

¹Osaka Sangyo U., ²Osaka U., ³Tokyo Inst. Tech., ⁴Kyoto U.

This study explores calcium isotope separation using solid-liquid extraction (SLE) with DC18C6. The SLE method demonstrated higher reaction coefficient (η) than liquid-liquid extraction (LLE). Calcium isotope analysis using ICP-MS with a cool plasma technique reveals the isotope effect in the organic phase by studying $\text{CaI}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (s). The separation coefficient ($^{48}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$) is -0.005 ± 0.004 .

Keywords: Isotope Separation, Enrichment, Crown-ether, Solid-Liquid Extraction

Introduction

Calcium-48 (^{48}Ca) is a double beta decay nuclide with a high Q-value of 4.27 MeV. It was used to study the neutrinoless double beta decay ($0\nu\beta\beta$) by the CANDLES project. Calcium fluoride for studies of Neutrino and Dark matters by Low Energy Spectrometer (CANDLES) aims to demonstrate the Majorana nature of neutrino [1]. Therefore, a large amount of ^{48}Ca is required.

In this study, the chemical separation of calcium has been studied by focusing on chemical exchange processes using solid-liquid extraction (SLE) with crown ether because of low cost and fast and high productivity [2,3]. Dicyclohexano-18-crown-6 (DC18C6) was applied to use in this research. The internal cavity size of DC18C6 is approximately 2.6–3.2 Å, which closely matches the ionic radius of the calcium ion (Ca^{2+}), about 1.0 Å in hydrated form or ~2.0 Å when dehydrated. Thus, DC18C6 is suitable for calcium ions. The study by the SLE method was motivated by the comparison of the reaction coefficient (η) between SLE and LLE (12M HCl) methods. The reaction coefficient (η) of the SLE method was higher than the LLE method. A higher reaction coefficient (η) increases the proportion of the target isotope extracted into the organic phase in one step. This enhancement increases the efficiency of target isotope extraction when applied in multi-stage processes and affecting the isotope ratio. Therefore, the SLE method is a good candidate for enhancing the production of ^{48}Ca .

The solid phase ($\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (s) or $\text{CaI}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (s)) was mixed with the 10 mL of organic phase (0.07M DC18C6 dissolved in CHCl_3) by a magnetic stirrer for 10 minutes. After mixing, the solid phase was separated with a filter (Millipore, size 0.2 μm) using a low vacuum filter separation system. The loaded solvent was recovered with 10 mL of pure water for back-extraction. The back-extraction time was fixed at 1 minute and standing for 1 minute before separating by using filter (No.2S) size 150 ϕnm .

The ion concentrations in each phase were measured using atomic absorption spectroscopy (AAS; AA-6800). Subsequently, the isotope ratio was analyzed with an ICP-MS (Agilent 7900) employing the newly developed cool plasma technique. This technique represents an advancement over the previous reaction cell ICP-MS method (hot plasma with H_2 gas mode) [3]. The development of the cool plasma technique aims to minimize argon-based interferences and reduce mass bias, thereby enabling more precise and accurate isotope measurements.

Conclusion

Calcium isotope analysis was conducted by using ICP-MS with a cool plasma technique. The result obtained using the chemical form of $\text{CaI}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (s) demonstrates the isotope effect in the organic phase, with the separation coefficient ($^{48}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$) of -0.005 ± 0.004 . Furthermore, this study observes the mass effect of calcium isotope, except ^{43}Ca , which exhibits a spin effect. This result demonstrates promising progress in enhancing the mass production of ^{48}Ca through the solid-liquid extraction (SLE) method, which is a more efficient isotope extraction than the LLE method, as revealed by the reaction coefficient (η).

References

- [1] S. Ajimura et al. Low background measurement in CANDLES-III for studying the neutrinoless double beta decay of ^{48}Ca . PHYSICAL REVIEW D 103, 092008 (2021), DOI: 10.1103/PhysRevD.103.092008.
- [2] A. Rittirong et al. Journal of Physics: Conference Series. (2022), 2147.
- [3] A. Rittirong, Doctor Thesis, OSU (2022).

東京電力福島第一原子力発電所原子炉建屋内で採取されたスミヤ試料に含まれる⁹⁰Srの迅速スクリーニング分析法の開発

Development of rapid screening analytical method for ⁹⁰Sr in smear sample collected at the Fukushima

Daiichi Nuclear Power Station

*島田 亜佐子¹, 飯田 芳久¹

¹JAEA

東京電力福島第一原子力発電所(1F)原子炉建屋内で採取されたスミヤ試料の迅速な⁹⁰Srのスクリーニング分析法として、スミヤ試料をそのまま試料としてβ線スペクトルを測定し、高エネルギー側の⁹⁰Yの測定により⁹⁰Srを定量する手法を開発した。

キーワード：⁹⁰Sr, スクリーニング分析, 東京電力福島第一原子力発電所, 迅速分析,

1. 緒言

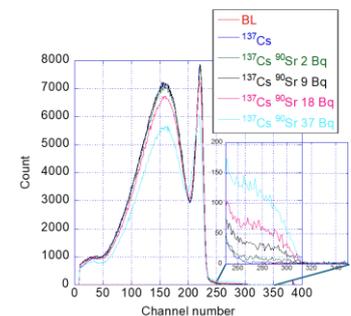
1F事故分析を目的とし、原子炉建屋内で採取されたスミヤ試料の分析を行っている。炉心損傷時の雰囲気条件を推定する指標となりうる核種として、還元性雰囲気中で燃料から放出されやすいFPである⁹⁰Srを分析対象としている。一般に⁹⁰Srの分析では、固体試料は溶液化した後、煩雑な化学分離を行って⁹⁰Srを精製してから、2週間ほど⁹⁰Yとの平衡を待ち、液体シンチレーションカウンタ(LSC)などで定量するため、時間がかかる。ここで、スミヤ試料のγ線測定の結果、⁶⁰Co、¹²⁵Sb、¹³⁴Cs、¹³⁷Csが検出されたが(¹³⁷Csが数桁高い)、それ以外のγ線放出核種は検出されなかった。これらの核種及び炉内で生成する主な純β核種である³H、¹⁴C、⁹⁹Tcのβ線の最大エネルギーは⁹⁰Srの娘である⁹⁰Yのβ線の最大エネルギーよりも低く、⁹⁰Yの起源は⁹⁰Srのみで、事故から10年以上たった現在では平衡に達していると考えられるため、高エネルギー側の⁹⁰Yのβ線を測定することにより⁹⁰Srを定量する検討を行った。

2. 実験

1Fの2号機の1階、2階、3階、4階の壁で採取されたスミヤ試料(1FW,2FW,3FW,4FW)を5分割し、小袋に密封してGe半導体検出器(ミリオンテクノロジー・キャンベラ製)でγ線をピコベータ(富士電機製)でβ線のスペクトルを測定した。¹³⁷Csを4467 Bqと⁹⁰Srを0~37 Bqをろ紙にしみこませた試料のβ線スペクトルから⁹⁰Srの検量線を作製した。スミヤ試料を酸で溶液化した後、Srレジンをを用いてSrを精製後、LSCにより⁹⁰Srを定量した。

3. 結果

分割前のスミヤ試料には極低濃度の¹²⁵Sb及び⁶⁰Coも観測される試料もあったが、分割後では¹³⁴Cs及び¹³⁷Csのみが観測された。図に検量作成のために取得したβ線スペクトルを示す。250 ch付近より高い領域では¹³⁷Csのみの試料ではバックグラウンドレベルとなり、主に⁹⁰Srに起因する計数が観測された。この領域の計数の積分値を⁹⁰Sr添加量に対してプロットすると相関係数0.9985



の直線が得られた。この検量線を用いてスミヤ試料のβ線スペクトルから⁹⁰Srを定量し、2011/3/11に減衰補正して¹³⁷Csとの放射能比を取ると、0.0096、0.014、0.0028、0.0024であった。一方、化学分離後にLSCで求めた溶解液中の⁹⁰Sr放射能濃度と溶解液中¹³⁷Cs放射能濃度の比は、0.011、0.011、0.0023、0.0023であり、同程度の値となり、簡易迅速に⁹⁰Srの定量が可能であることが分かった。

本研究は、原子力規制庁からの受託事業「令和6年度東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査事業」の成果を含む。

*Asako Shimada¹, Yoshihisa Iida¹ ¹Japan Atomic Energy Agency