修士論文

濃縮法による
カムランド液体シンチレーター用
高感度ラドン検出器の開発

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻
中島 恭平

平成 18 年

概 要

低エネルギーニュートリノ観測を目的とする KamLAND 実験では、次期計画として太陽内部で発生する ^{7}Be ニュートリノ観測を目指している。しかし 1MeV 以下のエネルギー領域において、液体シンチレータ中に含まれる ^{210}Pb 等の放射性不純物が重大なバックグラウンド源となっている。このため液体シンチレータの純化装置が建設され、2007 年 1 月下旬よりそのテスト稼働が始まった。

純化装置により除去される ^{210}Pb の許容濃度は 1μBq/m^3 であり、親核の ^{222}Rn 濃度は半減期の違いから 1mBq/m^3 となる。^{222}Rn は僅かな漏れによって空気中から液体シンチレータに溶け込んでしまうため、純化後液体シンチレータを検出器へ戻す前に、そのラドン濃度が要求を満たしているかどうか確認する必要がある。

本研究では液体シンチレータ中のラドン濃度 1mBq/m^3 の測定を行うために、濃縮法によるラドン検出器の開発を行った。テスト装置によってラドンの濃縮法を確立し、実機装置のデザインを決定した。これに基づいて実機装置を製作し、その性能評価を行った。

本研究で開発した検出器は液体シンチレータのみならず、窒素ガス中のラドン濃度や物質からのラドンの染み出し率を測定することも可能である。結果、液体シンチレータに対して 7mBq/m^3、窒素ガスに対して 26μBq/m^3、物質に対して 24μBq/day の測定限界 (2σ) を持つラドン検出器の開発に成功し、様々なラドン濃度測定を行った。

目 次

第 1 章　序論 **1**
1.1　ニュートリノ 2
1.2　太陽ニュートリノ問題 3
1.3　標準太陽モデル 4
1.3.1　核融合反応 4
1.3.2　太陽ニュートリノフラックス 6
1.4　太陽ニュートリノ実験 6
1.5　低エネルギー太陽ニュートリノ観測の意義 10

第 2 章　KamLAND 実験 **14**
2.1　KamLAND 実験の研究目的 14
2.2　KamLAND 実験におけるニュートリノの検出原理 14
2.3　KamLAND 検出器 16
2.3.1　検出器の構造と構成要素 17

第 3 章　KamLAND のバックグランドと液体シンチレータの純化 **21**
3.1　第一純化装置 21
3.2　低エネルギー領域におけるバックグラウンド源 25
3.2.1　液体シンチレータ中の放射性不純物 25
3.2.2　空気から混入する放射性元素 28
3.2.3　要求されるバックグラウンドの除去率 30
3.3　第二純化装置 30

第 4 章　ラドン検出器の開発 **38**
4.1　開発動機 38
4.2　ラドン 39
4.3　測定系 41
4.4　静電捕集型ラドン検出器 43
4.4.1　検出原理 43
4.5　テスト装置の性能評価 48
4.5.1　エネルギースペクトル 49
4.5.2　検出効率 49
4.5.3　較正用ラドンモニター Model1027 50
4.5.4　高電圧依存性 52
4.5.5　露点依存性 54
4.5.6　バックグラウンド 54

4.6 濃縮実験 56
4.6.1 吸着実験 57
4.6.2 脱着実験 58
4.6.3 送り込み実験 59
4.7 オイルトラップ実験 64
4.8 窒素バブリングによる抽出効率の測定 67
4.8.1 液体シンチレータの遅延同時計測によるラドン濃度の測定 . . 67
4.8.2 窒素バブリングによる抽出効率 71
4.9 ラドン検出器による液体シンチレータ中のラドン濃度測定 72
4.10 テスト装置による結論と実機装置のデザイン 76

第 5 章 実機装置の性能評価とラドン濃度の測定 78
5.1 ラドン検出器の性能評価 79
5.1.1 エネルギースペクトル 79
5.1.2 検出効率 81
5.2 濃縮実験 87
5.3 バックグラウンド 91
5.4 ラドン測定 96
5.4.1 物質のラドンの染み出し率 97
5.4.2 窒素ガス 100
5.4.3 液体シンチレータ 104
5.5 まとめ 108

第 6 章 結論 110
6.1 まとめ 110
6.2 将来計画 110

付 録 A ^{238}U、^{232}Th、^{235}U 崩壊系列 112

付 録 B ニュートリノ振動 115
B.1 真空中におけるニュートリノ振動 115
B.2 物質中でのニュートリノ振動 116
B.3 ニュートリノ振動パラメータ 118

付 録 C 反応断面積 120
C.1 逆 β 崩壊の反応断面積 120

付 録 D ラドン濃度測定法 123
D.1 Active 法 123
D.2 Passive 法 124
D.3 検出限界のまとめ 125

付 録 E 放射平衡 127

付 録 F 飽和水蒸気量 130

付 録 **G** オイルトラップ実験による液体シンチレータの蒸発量 **131**

付 録 **H** 放射性核種の壊変率とステンレスのラドン染み出し率 **134**

付 録 **I** **KamLAND Collaboration** **135**

図 目 次

1.1 pp 連鎖反応 5
1.2 CNO サイクル 6
1.3 標準太陽モデルによるニュートリノのエネルギースペクトル 7
1.4 標準太陽モデル BS2005 の予測値と観測値の比 10
1.5 地球と太陽距離の季節変動 12

2.1 電子型反ニュートリノの反応過程 15
2.2 電子型ニュートリノと電子の弾性散乱 16
2.3 KamLAND エリアの全体図 17
2.4 KamLAND 検出器の内部構造 18
2.5 液体シンチレータの構成物質 19

3.1 第一純化装置 21
3.2 KamLAND で観測される低エネルギー領域でのスペクトル 23
3.3 ^{222}Rn ∼^{206} Pb の崩壊系列 24
3.4 ^{210}Po のレートの時間変動 24
3.5 ^{40}K の崩壊過程 27
3.6 ^{14}C の崩壊過程 28
3.7 ^{85}Kr の崩壊過程 29
3.8 ^{39}Ar の崩壊過程 29
3.9 液体シンチレータの純化目標達成後にエレクトロニクスの改良によって期待される ^{11}C のバックグラウンドスペクトルの変化 31
3.10 第二純化装置 31
3.11 蒸留装置 33
3.12 窒素パージ塔 34
3.13 高純度窒素製造設備 35
3.14 純化後に予想される低エネルギー領域のバックグラウンドスペクトル 36

4.1 ^{222}Rn と ^{210}Pb の崩壊数の時間変化 39
4.2 ^{222}Rn から ^{210}Pb までの崩壊図 41
4.3 ラドン濃度測定系の概略図 42
4.4 ラドン検出器 44
4.5 Si PIN フォトダイオード 44
4.6 エレクトロニクスハット 45
4.7 前置増幅器回路 46
4.8 高電圧分割回路 46

4.9 PIN フォトダイオードからの信号のデータ収集系 47
4.10 PIN フォトダイオードから CAMAC に送られる信号の様子 47
4.11 ラドン濃度測定系 (one path) 48
4.12 典型的なエネルギースペクトル 49
4.13 テスト装置のエネルギー較正 50
4.14 Model1027 51
4.15 ラドン検出器の検出効率 52
4.16 ピーク位置の高電圧依存性 53
4.17 カウントレートの高電圧依存性 53
4.18 ラドン濃度測定系 (circulation) 54
4.19 検出効率の露点依存性 55
4.20 テスト装置のバックグランド 56
4.21 濃縮によるラドン濃度の時間変化 57
4.22 ラドントラップ容器 58
4.23 吸着実験の測定装置フロー 59
4.24 吸着前後のエネルギースペクトル 60
4.25 吸着実験のカウントレート等の時間推移 60
4.26 脱着実験の測定装置フロー 61
4.27 脱着実験のカウントレートと温度の時間推移 62
4.28 送り込み実験の測定装置フロー 62
4.29 送り込み実験における ^{218}Po のカウントレートの時間変化 63
4.30 水、プソイドクメン、ドデカンの蒸気圧曲線 64
4.31 オイル除去効率測定の装置フロー 65
4.32 モレキュラーシーブ 13X 66
4.33 液体シンチレータの遅延同時計測によるラドン濃度の測定装置の概略と ^{222}Rn の崩壊系列 67
4.34 ^{222}Rn 測定のための遅延同時計測用論理回路 68
4.35 遅延同時計測用論理回路の信号のタイムチャート 68
4.36 遅延同時計測による先発信号、遅発信号とその時間分布 69
4.37 各方法でラドン濃度を評価した場合のラドン濃度の時間変化 70
4.38 窒素バブリングによる抽出効率の窒素ガス体積依存性 71
4.39 窒素バブリングによる抽出効率の窒素ガス流量依存性 72
4.40 液体シンチレータ中のラドン濃度測定装置フロー 73
4.41 ラドン検出器による液体シンチレータ中のラドン測定の結果 1 74
4.42 ラドン検出器による液体シンチレータ中のラドン測定の結果 2 75
4.43 液体シンチレータ中のラドン濃度と検出器におけるカウントレートの較正 76

5.1 実機用ラドン測定装置 78
5.2 ラドン検出器 79
5.3 印加電圧 -1.0kV における典型的なエネルギースペクトル 80
5.4 ラドン検出器のエネルギー較正 81
5.5 ウラン系列、トリウム系列、アクチニウム系列の α 線 81

5.6 ^{211}Bi のカウントレート 82
5.7 ピーク位置の時間変化 82
5.8 Model1027 による Rn 濃度と scaler で読み取った信号数の較正 83
5.9 (^{218}Po +^{214} Po) による検出効率の求め方 84
5.10 ラドン検出器のピーク位置と検出効率の高電圧依存性 85
5.11 露点依存性のための測定系 85
5.12 ラドン検出器の検出効率の露点依存性 86
5.13 Model1027 の測定値とラドン検出器で得られたラドン濃度 86
5.14 1.0/min における吸着実験でのラドン検出器におけるカウントレートの時間推移 88
5.15 脱着実験におけるラドン検出器のカウントレート 89
5.16 送り込み実験 89
5.17 吸着効率の流量依存性 91
5.18 ラドン検出器のバックグランド 92
5.19 ラドントラップ容器 93
5.20 オイルトラップ 94
5.21 バブリングタンク 95
5.22 測定値と ^{222}Rn の信号数の関係 97
5.23 染み出し率測定のための容器 99
5.24 高純度窒素製造設備から KamLAND までの配管ライン 102
5.25 第二純化装置における液体シンチレータのサンプリング 105

A.1 ウラン系列の崩壊系列 112
A.2 トリウム系列の崩壊系列 113
A.3 アクチニウム系列の崩壊系列 114

B.1 ニュートリノ振動パラメータ 1 118
B.2 ニュートリノ振動パラメータ 2 119

C.1 逆 β 崩壊の反応断面積 121
C.2 KamLAND で観測される原子炉ニュートリノのエネルギースペクトル 121
C.3 ニュートリノと電子散乱の反応断面積 122

D.1 活性炭の吸着と脱着 125

E.1 放射平衡 (^{222}Rn $\sim^{210}$ Pb) 128
E.2 放射平衡 (^{222}Rn $\sim^{210}$ Po) 129

F.1 露点と飽和水蒸気量の関係 130

G.1 液体シンチレータの蒸発量の温度依存性 131
G.2 室温 20°C における液体シンチレータの蒸発量の流速依存性 132
G.3 密度計 133

I.1 KamLAND Collaboration 135

表 目 次

1.1 素粒子分類表 3
1.2 太陽に関する基本的諸量 4
1.3 太陽ニュートリノフラックス全体 (BP04) への寄与と理論による不定性 11
1.4 標準太陽モデル BP04 と BS05 におけるニュートリノフラックスの比較 13

2.1 液体シンチレータの性質 20

3.1 純化前後の液体シンチレータ中の放射性不純物量 23
3.2 液体シンチレータ中の ^{238}U 系列のそれぞれの核種の濃度 26
3.3 宇宙線 μ 粒子によって生成される放射性元素 30
3.4 現在のバックグラウンドと要求される除去率 31
3.5 ^{7}Be ニュートリノ、バックグラウンドの純化後の予想イベントレート . 37

4.1 ラドンの化学的性質 40
4.2 Si PIN フォトダイオードの仕様 45
4.3 Model1027 の仕様 51
4.4 ドデカン、プソイドクメン、水のアントワン係数 65
4.5 各効率のまとめ 74

5.1 検出効率のまとめ 87
5.2 ラドンソースのラドン染み出し率 90
5.3 実機用装置のバックグラウンドレートのまとめ 96
5.4 窒素中のラドン濃度の測定限界の流速依存性 101
5.5 テスト純化時における液体シンチレータ中のラドン濃度 106
5.6 各効率のまとめ 108
5.7 ラドン測定のまとめ 108
5.8 物質からのラドンの染み出し率と窒素ガス、液体シンチレータ中のラドン濃度の測定限界 109

D.1 様々なラドン測定法の検出限界 126

E.1 ^{222}Rn $\sim^{210}$ Pb 間の半減期と壊変定数 127

G.1 液体シンチレータの蒸発量比とドデカン · プソイドクメンの蒸気圧比 . 132

H.1 ^{238}U、^{232}Th、^{40}K の半減期と質量数 134

第1章　序論

KamLAND(**Kam**ioka **L**iquid Scintillator **A**nti- **N**eutrino **D**etector) 実験は、素粒子物理学における低エネルギー領域の現象の究明を目的として作られた低エネルギーニュートリノ·反ニュートリノ検出実験である。現在までに原子炉反ニュートリノの検出によりニュートリノ振動の存在を示し、30 年の長きに及んだ太陽ニュートリノ問題を解決した。またニュートリノ振動パラメータの精密測定を行い、ニュートリノ振動解が LMA 解であることを実証した。更に地球内部より発生する反ニュートリノの世界初観測に成功し、地球内部の核反応による総熱量を求めるなど地球内部構造をニュートリノ観測により検証するという新たな手段を確立した。

次期 KamLAND 実験の観測対象は、太陽ニュートリノの中でも低エネルギーかつ全ニュートリノフラックスのうち 7.4%を占める ^{7}Be ニュートリノの世界初分離観測である。^{7}Be ニュートリノ観測は標準太陽モデルの検証やニュートリノの基本的性質の解明に寄与する非常に重要なテーマである。しかしながらこの ^{7}Be ニュートリノは 1MeV 以下の領域で検出されるため、この領域に存在する多くのバックグラウンドの低減を行う必要がある。このためには現在極低レベルバックグラウンド環境にある液体シンチレータ中に含まれる放射性不純物量を更に除去しなければならない。様々な実験の結果、液体シンチレータの蒸留によってこれらの不純物が要求されるレベルまで除去可能であることがテスト実験で確認され、新しく液体シンチレータの純化装置が建設された。

現在太陽ニュートリノ観測に対して最大の障害となっているのが ^{210}Pb、^{85}Kr 起因のバックグラウンドである。このうち ^{210}Pb は空気中に広く分布する ^{222}Rn(ラドン)が崩壊して生成されるものであり、純化により ^{210}Pb を取り除いたとしても配管等に僅かなリークが存在すれば、^{222}Rn が液体シンチレータに溶け込み再び ^{210}Pb が生成されてしまう。現在 ^{210}Pb が液体シンチレータ中に含まれているのも KamLAND 建設時に空気中から ^{222}Rn が入り込んだためと考えられており、新たな混入を防ぐためには厳重に監視する必要がある。

よって純化後の液体シンチレータを KamLAND 検出器に戻す前に、液体シンチレータ中のラドン濃度が太陽ニュートリノ観測のために要求される 1mBq/m^3 以下であることを確認する必要がある。この低レベルのラドン濃度を測定する装置は存在せず、新たに測定限界 1mBq/m^3 のラドン検出器を開発する必要性が生じた。本論文ではそのために行われたラドン検出器の開発について述べ、このラドン検出器を使用して測定された様々なラドン濃度の結果を紹介する。

以下、本論文の構成についてまとめる。

第 1 章 ニュートリノと現在までに行われた太陽ニュートリノ観測実験について、そして太陽ニュートリノの観測意義について。

第 2 章 KamLAND におけるニュートリノの検出原理と KamLAND 検出器について。
第 3 章 現在の KamLAND 検出器における低エネルギー領域のバックグラウンドと液体シンチレータの純化装置について。
第 4 章 検出対象であるラドンについて、またテスト装置によるラドンの濃縮実験と、液体シンチレータ中のラドン濃度測定実験について。
第 5 章 実機装置の性能評価とラドン濃度の測定結果について。
第 6 章 本論文のまとめと将来計画について。

1.1　ニュートリノ

ニュートリノは、1930 年パウリ (W.Pauli) によって初めてその存在が予言された。1914 年チャドウィック (J.Chadwick) が β 崩壊によって放出される電子のエネルギー分布を測定した所、そのスペクトルは予想された線スペクトルではなく連続スペクトルであった。β 崩壊は当時、原子核内で中性子が陽子に崩壊する際に電子を放出する現象として考えられていた。

$$n \rightarrow p + e^{-} \tag{1.1}$$

しかしこれでは β 崩壊においてエネルギー保存則も角運動量も保存しないことになる。そこでパウリは、スピン $\frac{1}{2}$ で電荷を帯びない非常に軽い未知の粒子、ニュートリノ (中性で小さいものという意味) の存在を予言した。そして 1934 年フェルミ (E.Fermi) により、β 崩壊は中性子が陽子に崩壊する際に電子とニュートリノを放出する現象であるという仮説が発表され、式 (1.1) は、

$$n \rightarrow p + e^{-} + \bar{\nu}_e \tag{1.2}$$

と考えられる様になった。

26 年後の 1956 年、ライネス (F.Reines) とコーワン (C.Cowan) らは原子炉内で起こる β 崩壊により発生する反ニュートリノを初めて観測し、ようやくニュートリノの存在が確認された。この様に予言から検出されるまで長い時間を要したのは、ニュートリノが弱い相互作用しかせず観測が非常に困難であったからである。その後 1962 年、レーダーマン (L.Lederman)、シュウォーツ (M.Schwartz)、スタインバーガー (J.Steinberger) らによって、ミュー型ニュートリノ ν_μ が発見され、そして 2000 年にタウ型ニュートリノ ν_τ の存在がようやく実験的に確かめられ、三世代のニュートリノ $\nu_e\nu_\mu\nu_\tau$ の存在が全て確認された。

素粒子物理学における標準理論では、ニュートリノは弱い相互作用しかしない質量ゼロの粒子であるとされているが、現在ニュートリノは質量を持つものと考えられており、その場合に発生するニュートリノ振動が KamLAND 実験で観測されている。

反ニュートリノ

物質を構成する最小単位と考えられている素粒子はクォークとレプトンに分けられ、それぞれ 3 世代に分類される (表 1.1)。

	電荷	第 1 世代	第 2 世代	第 3 世代
クォーク	$\frac{2}{3}$	u (アップ)	c (チャーム)	t (トップ)
	$-\frac{1}{3}$	d (ダウン)	s (ストレンジ)	b (ボトム)
レプトン	0	ν_e	ν_μ	ν_τ
	-1	e (電子)	μ (ミューオン)	τ (タウオン)

表 1.1: 素粒子分類表

KamLAND 検出器が観測している原子炉や地球内部から発生するニュートリノは、電子型ニュートリノ ν_e の反粒子である“反”電子型ニュートリノ $\bar{\nu}_e$ である。反粒子とは粒子と質量や寿命、電荷等の絶対値が等しく、電荷など正負の符号を持つ属性が逆の粒子のことを言う。電子の反粒子は陽電子であり、同様に他の素粒子にもそれぞれ反粒子が存在する。現在の宇宙が反粒子ではなく粒子によって構成されているのは、宇宙誕生時に粒子 · 反粒子間に微妙な破れがあったからであると考えられている。β 崩壊 ($n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e$) により発生した $\bar{\nu}_e$ は、KamLAND 検出器内で逆 β 崩壊 ($p + \bar{\nu}_e \rightarrow n + e^+$) を起こして検出される。

1.2 太陽ニュートリノ問題

我々の最も身近に存在する恒星である太陽は、核融合反応で生成したエネルギーによって常に明るく輝いており、地球の生命は太陽で生成された熱エネルギーを享受することで生命活動を維持することが出来る。この太陽内部における核融合反応により、大量のニュートリノ (太陽ニュートリノ) が生成されている。

1968 年、デーヴィス (R.Davis) らは初めてこの太陽ニュートリノの観測に成功した [1]。しかしその観測値は、標準太陽モデルにより求められる予測値の $\frac{1}{3}$ でしかなかった。これが太陽ニュートリノ問題と呼ばれている現象で、その後 30 年に亘りこの原因が何に起因するか様々な議論が交わされた。

いずれの太陽ニュートリノ実験でも観測値が予想値を下回っていたため、標準太陽モデル、もしくはニュートリノの性質を扱う素粒子物理学の標準理論のどちらかが誤っているのではないか考えられた。そのため太陽ニュートリノ問題以来、標準太陽モデルの見直しや別の手段による太陽構造の観測が試みられてきた。そして 1990 年代、太陽表面の固有振動数スペクトルの解析によって太陽内部構造を観測する日震学の進歩により、標準太陽モデルと内部構造が精度良く一致することが分かり、太陽ニュートリノ問題は標準理論の問題であるという見解が有力になった。

そして現在、KamLAND 検出器が原子炉ニュートリノの観測によってニュートリノ振動の存在を証明し、ニュートリノが地球に飛来する途中に別の種類のニュートリノに変化するために観測量が減少していることが分かり、ようやくここに太陽ニュートリノ問題は解決されることとなった。

1.3 標準太陽モデル

太陽の中心温度は 1500 万度以上で、核融合反応によって毎秒当たり 3.8×10^{26}J のエネルギーが生成されている (表 1.2)。このエネルギーの大部分は光子に変化し、一部がニュートリノになる。太陽内部は超高密度であるために、内部で生成されたエネルギーは外側に向かってゆっくりと浸透して行き、そのエネルギーが光として太陽表面に届くまでに約 17 万年もかかる。一方ニュートリノは物質との反応率が非常に低いため容易に外部に抜け出て、生成されてから太陽表面まで数秒、地球まで約 8 分で届く。よって太陽ニュートリノ観測は現在の太陽内部反応を知る上で、非常に有効な手段となる。

Parameter	Value
半径	$6.960\ \times10^{8}$ m
質量	$1.989\ \times10^{33}$ g
平均密度	$1.409\ \times10^{3}$ kg/m^3
表面温度	5780 K
中心温度	$1.56\ \times10^{7}$ K
地球との平均距離	$1.496\ \times10^{11}$ m
太陽年齢	$4.55\ \times\ 10^{9}$ year
輝度 ($L_\odot$)	$3.827\ \times\ 10^{26}$ J/sec
ニュートリノ輝度	$0.023L_\odot$

表 1.2: 太陽に関する基本的諸量 [2][3][4]

太陽の内部構造は、星の内部構造と進化の理論を用いて知ることが出来る。内部の核融合反応により、星の内部の化学組成は徐々に変化しており、化学組成の変化に伴い星の内部構造も変化していく。この変化を時間と共に追って導いた太陽内部構造モデルを「標準太陽モデル」と呼ぶ。

標準太陽モデルは、静水圧平衡、光子や対流運動によるエネルギー輸送、核反応によるエネルギー生成、元素の存在量の変化を近似法則で仮定し構築される。これに核反応断面積、密度 · 温度を記述する状態方程式を与えることで、太陽の構造を記述する一連の微分方程式が得られる。これに現在の輝度や太陽半径と一致させる様に初期の水素元素の存在比と太陽年齢を与えることで現在の太陽構造が得られ、中心温度や密度などの値を計算することが出来る。また現在のニュートリノフラックスの理論値もこのモデルから算出することが可能である。

1.3.1 核融合反応

太陽内部では、 4 つの水素原子核 (陽子) が 1 つのヘリウム原子核となる水素燃焼反応によって核融合反応が起きている。その反応は

$$4p \rightarrow^{4} \mathrm{He} + 2e^{+} + 2\nu_e + 26.73MeV \tag{1.3}$$

と表され、1 回の過程で 26.73MeV のエネルギーを放出する。このエネルギーはヘリウム原子核の質量が陽子 4 個を合わせた全質量に対して僅かに小さいことから発生する。弱い相互作用による反応であるため断面積が小さく、反応は非常にゆっくりと進行し、太陽は原料の水素原子を急激に失うことなく輝き続けることが出来る。クーロン障壁は原子番号の小さい原子核の方が小さく、水素燃焼が一番低い温度で起こる。

この核融合反応は pp 連鎖と CNO サイクルの 2 つの反応系統を持つ。温度によって支配的な反応が異なり、太陽は中心温度が 1.56×10^7K で pp 連鎖が支配的となっている。CNO サイクルについては 1.8×10^7K 以上の環境下で支配的となる。

pp 連鎖反応

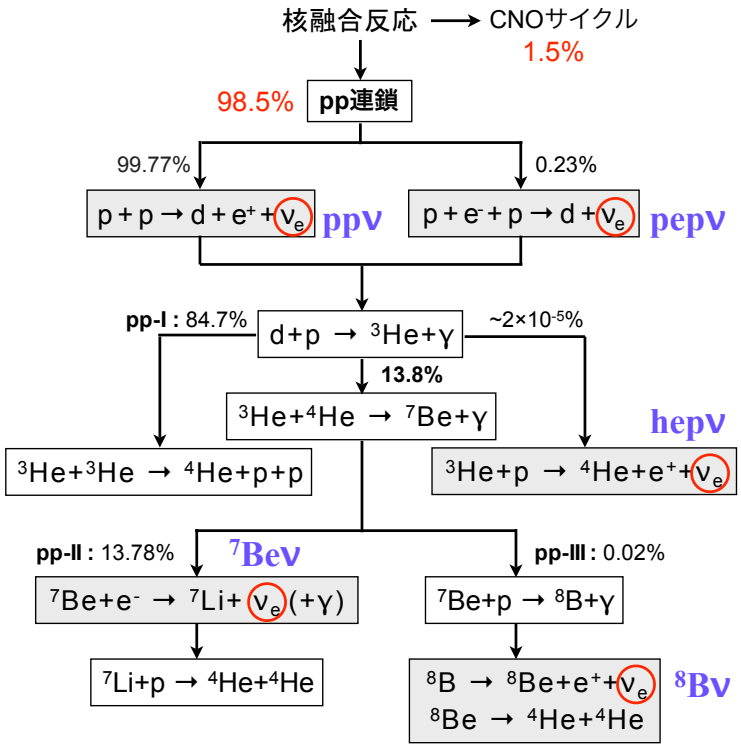

図 1.1: pp 連鎖反応

核融合反応で生成されるエネルギーの 98.5%を占める pp 連鎖反応を図 1.1 に示す。一番最初の反応で pp ニュートリノと pep ニュートリノが生成される。そのうち大部分は pp ニュートリノであるが、エネルギーが低いためにその検出は非常に難しい。pp 連鎖は温度によって以下の様に支配的な反応が異なる。

- 低温 ($0.8 \times 10^7 \sim 1.4 \times 10^7$ K) : ppl
  太陽全体で支配的な反応で、pp 連鎖のうち 85%を占める。
- 中温 ($1.4 \times 10^7 \sim 2.3 \times 10^7$ K) : ppll
  ^{4}He の組成比率が大きい場合にも支配的になる。^{7}Be の電子捕獲の際に ^{7}Be ニュートリノが放出される。

- 高温 ($> 2.3 \times 10^7$ K) : pplll
  太陽中心部分の反応で、僅かな頻度で ^{8}B が ^{8}Be に変わる際に ^{8}B ニュートリノを放出する。

CNO サイクル

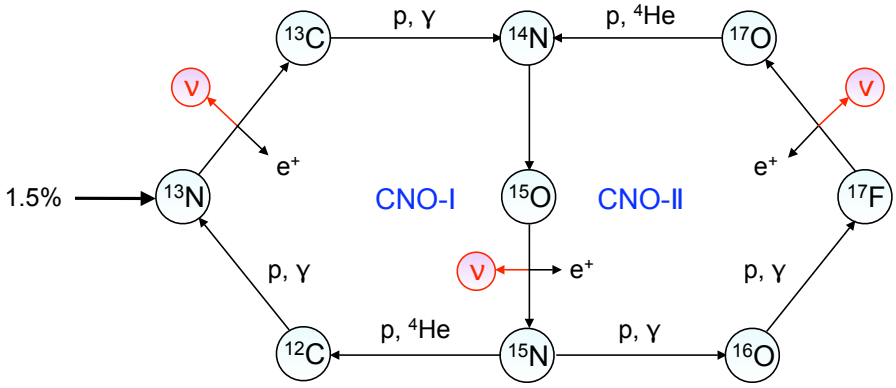

図 1.2: CNO サイクル

図 1.2 に CNO サイクルの反応を示す。1 サイクルの反応を通して 4 つの水素原子核が消費され 1 つのヘリウム原子核が作られる。恒星内部に C、N、O などの重い元素が存在すると、陽子捕獲と β^+ 崩壊を繰り返し、最終的に ^{4}He を形成する。CNO サイクルは太陽よりも重い主系列星のエネルギー源となるとともに、巨星の水素殻燃焼を担っている。CNO-I の反応の最後で水素と ^{15}N が反応する際、高い温度下で極僅かに CNO-II の反応も起きる。この CNO サイクルによって恒星内部の重元素の混合比は変化して行く。

1.3.2　太陽ニュートリノフラックス

標準太陽モデルから太陽内部の元素の構成比や温度分布が推測され、太陽内部で発生するニュートリノフラックスが得られる。図 1.3 にそのエネルギースペクトルを示す。地球に降り注ぐ太陽ニュートリノは 1cm^2 当たり毎秒 660 億個にもなる。

pp ニュートリノや ^{8}B ニュートリノは β 崩壊により生成するため連続スペクトルであるが、^{7}Be ニュートリノや pep ニュートリノは二体反応なので単色エネルギーとなる。$^7\mathrm{Be} + \mathrm{e}^- \rightarrow {}^7\mathrm{Li} + \nu_\mathrm{e}$ の反応で生成する ^{7}Be ニュートリノの 90%は 862keV で、残りの 10%は 384keV となる。いずれになるかは ^{7}Li が基底状態にあるか励起状態にあるかで決まり、そのエネルギー幅は 1keV 程度と精度良く求められている [2]。

1.4　太陽ニュートリノ実験

本節では現在までの代表的な太陽ニュートリノ実験について説明する。大別して放射化学による方法と、ニュートリノ反応による光を直接捉える方法がある。

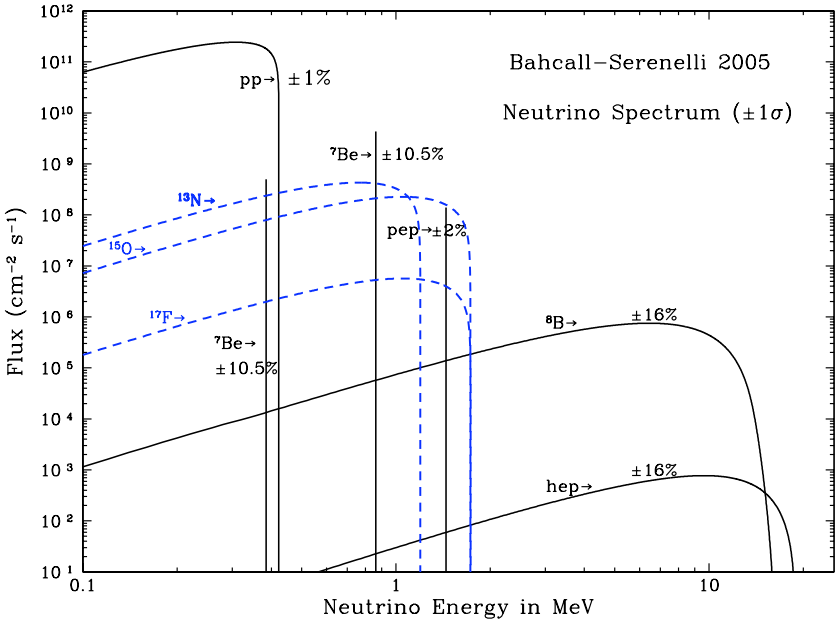

図 1.3: 標準太陽モデルによるニュートリノのエネルギースペクトル。青い点線が CNO サイクルによって生成されるニュートリノ、黒線が pp 連鎖によって生成されるニュートリノ [5]。線スペクトルの縦軸の単位は $\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{sec}^{-1}$、連続スペクトルは $\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{sec}^{-1}\mathrm{MeV}^{-1}$ である。

Homestake 実験 (^{37}Cl)

Homestake 実験 [1] は、^{37}Cl を用いた世界初の太陽ニュートリノ観測実験である。実験は 1964 年からアメリカのサウスダコタ、Homestake 金鉱の地下 1500m(4200m.w.e に相当[1]) で行われた。直径 6m、長さ 15m の円柱形のステンレスタンクに 615 トンのドライクリーニング用の液体 C_2Cl_4 を満たし、その中に含まれる ^{37}Cl とニュートリノが反応して生成する ^{37}Ar を 集めることで、太陽ニュートリノのフラックスを求めることが出来る。

$$\nu_e + {}^{37}\mathrm{Cl} \rightarrow e^- + {}^{37}\mathrm{Ar} \tag{1.4}$$

この反応のエネルギー閾値は 814keV で、太陽ニュートリノのうち ^{8}B と ^{7}Be に感度がある。

生成された ^{37}Ar は放射性希ガス元素で、半減期 34.8 日で電子捕獲により ^{37}Cl に戻る。1ヶ月に 1 度、検出器内にヘリウムガスを送りこんでアルゴンガスを回収し、このアルゴンを活性炭で吸着して集め、^{37}Ar が電子捕獲の際放出する X 線を測定する。Homestake 実験で得られたニュートリノの観測量は

$$\Phi_{\mathrm{Cl}} = 2.56 \pm 0.16(\mathrm{stat}) \pm 0.16(\mathrm{syst})\ \mathrm{SNU}^2 \tag{1.5}$$

[1] meters water equivalent : 水に換算した厚み
[2] solar neutrino unit の略。1 SNU = 1 neutrino reaction per second in 10^{36} targert atoms

となった。これに対して標準太陽モデル BP2000 の予測値は

$$\Phi_{\rm Cl}({\rm SSM}) = 7.6^{+1.3}_{-1.1}\ {\rm SNU} \tag{1.6}$$

であり、約 30%の観測値しか得られなかった。

GALLEX/GNO 実験と SAGE 実験 (^{71}Ga)

ヨーロッパの GALLEX/GNO 実験 [6] とロシアの SAGE 実験 [7] は ^{71}Ga を用いた太陽ニュートリノ観測実験である。その反応は

$$^{71}{\rm Ga} + \nu_e \rightarrow\ ^{71}{\rm Ge} + e^- \tag{1.7}$$

と表され、^{71}Ga を用いることでエネルギー閾値が 233keV と非常に低くなり、太陽ニュートリノの 90%を占める pp ニュートリノを観測することが出来る。

GALLEX(GALLium EXperiment) はイタリアの Grans Sasso の地下 3300m.w.e で 1991 年から 1997 年に行われた実験で、1998 年より後継実験である GNO(Gallium Neutrino Obserbation) が始まっている。ニュートリノ標的として 101 トンの $GaCl_3$-HCl 溶液を使用しており、そのうち 30 トンがガリウムである。Gallex と GNO 両方によるニュートリノ観測量は

$$\Phi_{\rm Ga} = 70.8 \pm 4.5 \pm 3.8\ {\rm SNU} \tag{1.8}$$

となっている [8]。

SAGE(Soviet American Gallium Experiment) はロシアの Caucasus 山 (4700m.w.e) で行われている実験で、ニュートリノ標的として 50 トンの金属ガリウムを用いている。1990 年から 2001 年に得られた観測値は

$$\Phi_{\rm Ga} = 70.8^{+5.3\ +3.7}_{-5.2\ -3.2}\ {\rm SNU} \tag{1.9}$$

となっている。

標準太陽モデル BP2000 によるガリウムを用いたニュートリノ反応の予測値は

$$\Phi_{\rm Ga} = 128^{+9}_{-7}\ {\rm SNU} \tag{1.10}$$

であるため、両実験とも約 55%の観測値しか得られなかった。

Kamiokande, Super-Kamiokande

Kamiokande[9] は 1983 年から 1996 年まで、岐阜県神岡鉱山の現在 KamLAND のある場所に設置されていた実験装置で、素粒子の大統一理論で予測されている陽子崩壊を検出するために建設された[3]。直径 · 高さ 16m の円柱状ステンレスタンクに 3000 トンの純水が蓄えられており、ニュートリノと弾性散乱した電子が放出するチェレンコフ光を光電子増倍管で検出し、ニュートリノの実時間観測を行う。

$$\nu + e^- \rightarrow \nu + e^- \tag{1.11}$$

[3]素粒子標準モデルではその寿命は無限とされている。

Kamiokande におけるエネルギー閾値は 7MeV で ^{8}B ニュートリノに感度がある。そのフラックスは

$$\Phi_{\rm Kam} = (2.80 \pm 0.19 \pm 0.33) \times 10^6 \ {\rm cm}^{-2}{\rm s}^{-1} \tag{1.12}$$

と得られている。

更に 1996 年より後継実験である Super-Kamiokande [10] の稼働が同鉱山内で始まった。この検出器は直径 · 高さ 40m のステンレスタンクに 5 万トンの純水を蓄え、Kamiokande より更に高精度でニュートリノ観測を行うことが出来る。エネルギー閾値は 5MeV で、得られたフラックスは

$$\Phi_{\rm SK} = (2.35 \pm 0.02 \pm 0.08) \times 10^6 \ {\rm cm}^{-2}{\rm s}^{-1} \tag{1.13}$$

となり、標準太陽モデル BP2004 の予測値の約 41%しか得られなかった。

SNO

SNO(Sudbury Neutrino Observatory)[11] は、カナダの Sudbury にある鉱山地下 2070m(6000m.w.e) における太陽ニュートリノ実験で、直径 12m のアクリル容器を 1000 トンの超純重水 (D_2O) で満たし、以下の反応を通して ^{8}B ニュートリノを測定する。

$$\begin{aligned} &\nu_e + d \rightarrow p + p + e^- \ ({\rm CC}) \\ &\nu_x + d \rightarrow \nu_x + p + n \ ({\rm NC}) \\ &\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^- \ ({\rm ES}) \end{aligned} \tag{1.14}$$

ここで CC は荷電カレント反応、NC は中性カレント反応、ES は電子 · ニュートリノの弾性散乱反応を示す。荷電カレント反応は電子型ニュートリノのみに感度があるのに対し、中性カレント反応では 3 世代全てのニュートリノに感度がある。SNO は重水を用いているためこれらの反応を識別してニュートリノ観測を行う事が出来る。

SNO 実験で得られた ^{8}B ニュートリノのフラックスはそれぞれ

$$\begin{aligned} \Phi_{\rm CC}^{\rm SNO} &= (1.59^{+0.08\ +0.06}_{-0.07\ -0.08}) \times 10^6 \ {\rm cm}^{-2}{\rm s}^{-1} \\ \Phi_{\rm NC}^{\rm SNO} &= (5.21 \pm 0.27 \pm 0.38) \times \ 10^6 {\rm cm}^{-2}{\rm s}^{-1} \\ \Phi_{\rm ES}^{\rm SNO} &= (2.21^{+0.31}_{-0.26} \pm 0.10) \times 10^6 \ {\rm cm}^{-2}{\rm s}^{-1} \end{aligned} \tag{1.15}$$

となった。太陽標準モデル BP2000 による ^{8}B ニュートリノのフラックスは

$$\Phi_{^8{\rm B}}({\rm SSM}) = 5.05^{+1.01}_{-0.81} \times 10^6 \ {\rm cm}^{-2}{\rm s}^{-1} \tag{1.16}$$

であり、予測値に対する観測値の比は CC、NC、ES それぞれ 0.35±0.02、1.01±0.13、0.47±0.05 となった。中性カレント反応による測定値と標準太陽モデルの予測値の一致は太陽ニュートリノ問題の解として考えられたニュートリノ振動の存在を強く示唆するもので、中性カレント反応が 3 世代全てのニュートリノに対して感度があることと関連している。

Borexino

Borexino[12] はイタリアの Gran Sasso における太陽ニュートリノ実験で、KamLAND と同じく ^{7}Be ニュートリノ観測を目指している。300 トンの液体シンチレータと 2000 本の PMT(直径 20cm) を用いて、ニュートリノと電子の弾性散乱を観測し、有効体積 100 トンで 1 日当たり 50 イベントの ^{7}Be ニュートリノ検出を見込んでいる。現在まだ建設中で、検出器に液入れが始まった所である。

予測値と観測値のまとめ

以上得られた標準太陽モデルによる予測値と、それぞれの太陽ニュートリノ実験で得られた観測値の比を図 1.4 に示す。SNO 実験の荷電カレント反応による全ニュートリノの観測値のみが予測値と一致する結果を示している。これは電子型ニュートリノが太陽から地球に飛来する途中にミュー型やタウ型のニュートリノに変化してしまうニュートリノ振動 (付録 B 参照) が原因であり、KamLAND 実験の原子炉ニュートリノ解析によってその存在が示された事で 30 年の長きに亘った太陽ニュートリノ問題は解決された。

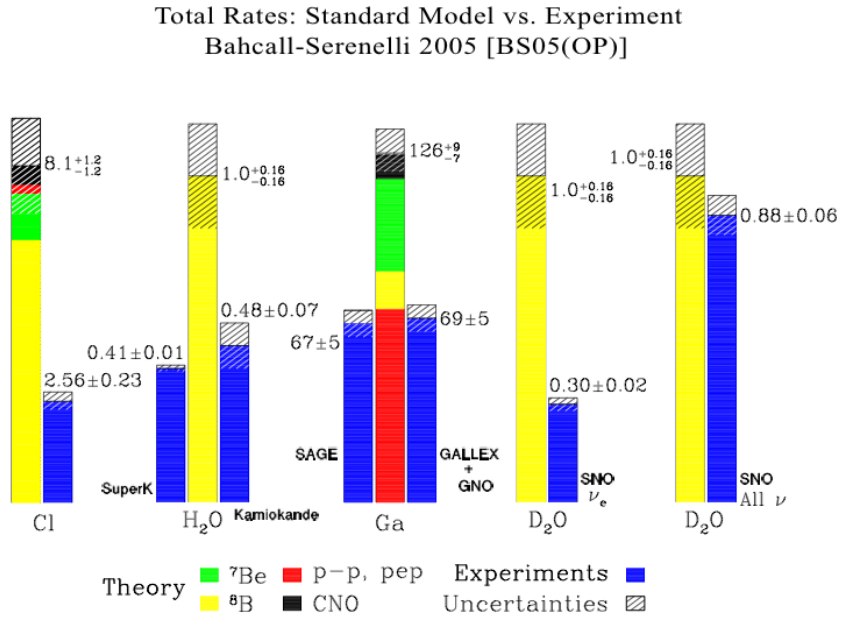

図 1.4: 標準太陽モデル BS2005 の予測値と観測値の比 [5]

1.5　低エネルギー太陽ニュートリノ観測の意義

本節では KamLAND が観測を目指している低エネルギー太陽ニュートリノの観測意義について論ずる。

標準太陽モデルの検証

ニュートリノフラックスを予測する標準太陽モデルを構築するには、原子核反応率、太陽表面での化学組成比などのパラメータが必要である。特に原子核反応率に大きな影響を与えている S 因子は、実験的に求められているエネルギー領域が太陽内部の温度より高いため、低エネルギー領域の値は理論的な補正を加え外挿して求められており、これが最終的にニュートリノフラックスに大きな不定性を与えている (表 1.3)。

ニュートリノ	フラックス比 [%]	理論的誤差 (1σ)
pp	90.707	$\pm 1\%$
^{7}Be	7.421	$\pm 12\%$
pep	0.214	$\pm 2\%$
^{8}B	0.00884	$\pm 23\%$
hep	$\sim 10^{-5}$	$\pm 16\%$
^{13}N	0.872	$^{+37\%}_{-35\%}$
^{15}O	0.768	$^{+43\%}_{-39\%}$
^{17}F	0.00902	$\pm 44\%$

表 1.3: 太陽ニュートリノフラックス全体 (BP04) への寄与と理論による不定性 [13]

^{7}Be ニュートリノの観測意義

スーパーカミオカンデや SNO 実験で観測されている ^{8}B ニュートリノは、太陽ニュートリノ全体に対して占める割合が低く理論的不定性が大きいのに対し、KamLAND 実験が検出を目指している ^{7}Be ニュートリノのフラックス量は太陽ニュートリノ全体の 7.4%あり、不確定性が $\pm 12\%$ と ^{8}B ニュートリノに比べて小さい。

現在までに ^{7}Be ニュートリノは放射化学実験によって観測されているが、この方法ではニュートリノ反応数はエネルギー閾値以上の積分値で得られるため、実験的な誤差が $40\%(1\sigma)$ と大きくなっている。一方 KamLAND 検出器は ^{7}Be ニュートリノの分離かつ実時間観測が可能であるため、その測定精度は 10% 以内と期待されており、$\frac{1}{4}$ 程度の実験誤差の改善が見込まれる。更に ^{7}Be ニュートリノ観測によって pp ニュートリノフラックスの実験的誤差も $\frac{1}{2.5}$ の改善が期待される [14]。よって今までにない精度で理論値と実験結果を比較することが出来、標準太陽モデルの精密検証を行うことが可能となる。

更に実時間計測によってニュートリノのエネルギーと時間情報を得ることが出来るため、ニュートリノ観測量の季節変動の観測が期待される。季節変動については、図 1.5 の様に地球と太陽間の距離の変動によるニュートリノフラックスの変動を観測する。地球と太陽の距離 r は

$$r = a(1 - ecos\theta) \tag{1.17}$$

と表される。ここで a は 1 天文単位で 1.496×10^{11}m、e は離心率 0.00167 である [4]。ニュートリノフラックスは表面積で効いてくるため $\frac{1}{r^2}$ に比例し、距離 r の時のフラッ

クス ϕ と距離 a の時のフラックス ϕ_a の比は

$$\begin{aligned} \frac{\phi}{\phi_a} &= \frac{a^2}{a^2(1-ecos\theta)^2} \\ &= (1-ecos\theta)^{-2} \\ &\simeq 1+2ecos\theta \ (\because e \ll 1) \end{aligned} \tag{1.18}$$

と表される。r は図 1.5 の A' 点 (θ=π) の時最大、A 点 (θ=0) の時最小となるので、フラックスは最大 4e、すなわち 0.67%変動することになる。年間を通して安定した低バックグラウンド環境下で測定が実現すれば、この僅かな変動を観測出来る可能性がある。これは残ったバックグラウンド成分と ^{7}Be ニュートリノの成分がより正確に分離可能となる事を意味しており、^{7}Be ニュートリノフラックスの更なる精密測定につながる。

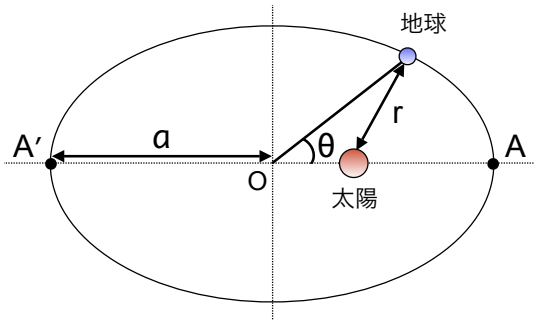

図 1.5: 地球と太陽距離の季節変動

CNO サイクルと pep ニュートリノの観測意義

これまでの太陽ニュートリノ実験では CNO サイクルのニュートリノを観測することが出来ていない。KamLAND で液体シンチレータの純化によってバックグラウンドが大きく減った場合、CNO サイクルのニュートリノと pep 太陽ニュートリノを観測出来る可能性がある。CNO サイクルのニュートリノがあると予測される領域には原子核破砕反応によるバックグラウンドがあるため、現在エレクトロニクスの改良により解析的に除去する方法が研究されている。

CNO サイクルのニュートリノは表 1.4 の様に標準モデル BP2004 と BS2005 でニュートリノフラックスが半分になっている。これは核反応率に用いられる S 因子の値が半分になったためである。これに対して、CNO サイクルと同じエネルギー領域に見られる pep ニュートリノは不定性が ±2% と少ないため、スペクトルから pep ニュートリノを差し引くことで不定性の大きい CNO ニュートリノの反応数を得ることが出来る。

S 因子の不定性の大きさにより、CNO サイクルのニュートリノ観測によって標準太陽モデル以上に太陽内部の C、N、O の存在比の予測をすることは難しいが、S 因子測定実験に対して制約を与えられる可能性がある。また pp 連鎖の ^{7}Be ニュートリノと CNO サイクルのニュートリノをどちらも観測することで、太陽内部の 2 つの核融合反応の比率を実験的に検証することが可能となる。よって CNO ニュートリノと pp ニュートリノを検出することの意義は非常に大きいと言える。

ニュートリノ	最大エネルギー [MeV]	平均エネルギー [MeV]	フラックス [$cm^{-2}s-1$] BP04(Yale)	BS05(OP)
pp	0.420	0.265	5.94×10^{10}	5.99×10^{10}
^{7}Be	0.862(90%)	0.862	4.86×10^{9}	4.84×10^{9}
	0.384(10%)	0.384		
pep	1.442	1.442	1.40×10^{8}	1.42×10^{8}
^{8}B	14.02	6.710	5.79×10^{6}	5.69×10^{6}
hep	18.77	9.62	7.88×10^{3}	7.93×10^{3}
^{13}N	1.199	0.707	5.71×10^{8}	3.07×10^{8}
^{15}O	1.732	0.997	5.03×10^{8}	2.33×10^{8}
^{17}F	1.740	0.999	5.91×10^{6}	5.84×10^{6}

表 1.4: 標準太陽モデル BP04 と BS05 におけるニュートリノフラックスの比較 [15]

振動パラメータへの影響

^{7}Be ニュートリノ観測によるニュートリノ振動パラメータへの影響を述べる。^{7}Be ニュートリノを観測することで、ニュートリノフラックスからニュートリノ振動パラメータである混合角 θ_{12} を決定出来るが、^{7}Be ニュートリノの理論的な不定性が ±12% であるため、KamLAND の原子炉ニュートリノ解析により得られた混合角の範囲より更に制限することは難しい。

一方、KamLAND 実験が示した LMA 解 (大混合角解) を、太陽ニュートリノ観測により直接検証することが出来る。これは季節変動による効果を見るものであり、またニュートリノ振動の MSW 効果による昼夜フラックスの違い、^{8}B ニュートリノのエネルギースペクトルの歪み検出の可能性もある。

第2章　KamLAND実験

2.1　KamLAND実験の研究目的

KamLAND は、Kamioka Liquid Scintillator Anti-Neutriono Detector の略称である。KamLAND 実験の主な研究目的を以下に示す。

- 原子炉反ニュートリノ振動の検出によるニュートリノ振動パラメータの測定
- 地球内部反ニュートリノの検出による地球内部エネルギー量の検証
- 太陽ニュートリノ検出による標準太陽モデルの検証

平成 19 年 1 月 22 日までに、上記 2 点に関する論文 [16][17] [18] が発表されている。現在太陽ニュートリノ検出に向けた検出器の改良が進められている。

2.2　KamLAND実験におけるニュートリノの検出原理

反ニュートリノの検出原理

KamLAND 検出器は 1000 トンの液体シンチレータをニュートリノ標的として、原子炉内部や地球内部より発生する電子型反ニュートリノによる反応を光電子増倍管により検出する事が出来る。その検出に用いられている反応は式 (2.1) の様な逆 β 崩壊である。

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \tag{2.1}$$

反応の閾値は、式 (2.2) の様になる。

$$\begin{aligned} E_{th} &= (m_n + m_e) - m_p \\ &= 1.80\text{MeV} \end{aligned} \tag{2.2}$$

ここで $m_n = 939.60$MeV、$m_p = 938.27$MeV、$m_e = 0.51$MeV である [19]。最初に電子型反ニュートリノが液体シンチレータ中の陽子と反応し、陽電子と中性子を生成する。KamLAND では反応後の粒子はそれぞれ別々の信号として検出される。反応過程の様子を図 2.1 に示す。

先発信号に関して、反応後に生成された陽電子はエネルギーを損失しながら液体シンチレータ中を移動し、電子と対消滅する。その際 0.511MeV の γ 線を 2 本放出し、これらを足し合わせたエネルギーが実際に観測されることになる。中性子は陽電子に

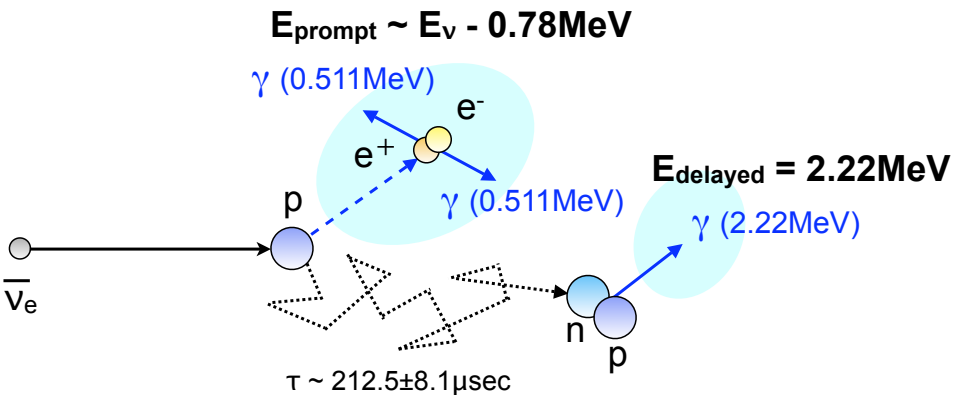

図 2.1: 電子型反ニュートリノの反応過程

比べて質量が十分に大きいため、ニュートリノと陽子の衝突の際に変換されるエネルギーの大半は陽電子が得る。逆 β 崩壊反応はエネルギー保存則より、

$$\begin{aligned} E_{\bar{\nu_e}} + m_p &= (T_{e^+} + m_e) + (T_n + m_n) \\ T_n &\approx 0 \quad (T_x \ : \ \text{粒子 } X \text{ の運動エネルギー}) \end{aligned} \tag{2.3}$$

と書ける。式 (2.3) を用いて、KamLAND で実際に観測される先発信号のエネルギー E_{prompt} を求めると、

$$\begin{aligned} E_{prompt} &= T_{e^+} + 2m_e \\ &= (E_{\bar{\nu_e}} + m_p - m_n - m_e) + 2m_e \\ &\simeq E_{\bar{\nu_e}} - 0.78 \ [\text{MeV}] \end{aligned} \tag{2.4}$$

となる。

次に遅発信号となる中性子捕獲について、生成された中性子は 10keV 程度の反跳エネルギーを持ち、図 2.1 のように液体シンチレータ中で陽子と弾性散乱を繰り返して約 210μsec 後に熱中性子となる。熱中性子は陽子に捕獲され重水素となり、その際放出する 2.22MeV の γ 線が遅発信号として検出される。

このように一つの電子型反ニュートリノ反応に対して二つの信号が得られるので、両信号の時間間隔や空間相関、また各々にエネルギーの選択条件を課すことによって、ニュートリノ反応を他のバックグラウンドと識別することが可能となる。この方法は遅延同時計測法と呼ばれ、非常に多くのバックグラウンドを除去して電子型反ニュートリノの検出を行うことが出来る。

太陽ニュートリノの検出原理

KamLAND において、太陽ニュートリノは弾性散乱で生じた反跳電子によるシンチレーション光によって検出される。この反応は放射線バックグラウンドによる信号と区別が出来ないため、観測を行うためには現在極低レベルのバックグラウンド環境となっている液体シンチレータ中の放射性不純物を更に除去する必要がある。

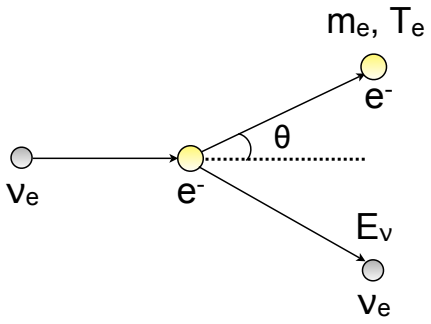

図 2.2: 電子型ニュートリノと電子の弾性散乱

反跳電子のエネルギーは T_e は、図 2.2 の様に反跳角度を θ とすると、

$$T_e = \frac{\frac{2E_\nu^2}{m_e} cos^2\theta}{(1+\frac{E_\nu}{m_e})^2 - (\frac{E_\nu}{m_e})^2 cos^2\theta} \tag{2.5}$$

と書ける。また反跳角度は

$$cos\theta = \frac{1+\frac{m_e}{E_\nu}}{\sqrt{1+\frac{2m_e}{T_e}}} \tag{2.6}$$

となる。^{7}Be ニュートリノのエネルギーは 862keV であり、反跳電子の運動エネルギー T_e はニュートリノのエネルギー E_ν に対して運動学上制限を受ける。

$$T_{max} = \frac{E_\nu}{1+\frac{m_e}{2E_\nu}} \tag{2.7}$$

上記の式より $T_{max} = 665$keV となり、862keV の入射ニュートリノのエネルギースペクトルを反映する 665keV を最大エネルギーとする反跳電子のエネルギー分布が形成される。

2.3 KamLAND 検出器

KamLAND 検出器は、岐阜県飛騨市神岡町にある池の山の山頂より地下約 1000m (2700m.w.e) に建設されている。以前この場所には Kamiokande 検出器が設置されてあったが 1997 年より KamLAND 検出器の建設が始まり、2002 年よりデータ収集を行っている。この様な地下深くに検出器を設置する事で地上に降り注ぐ宇宙線 μ 粒子によるバックグラウンドの影響を抑えることが出来る。約 1000m の岩盤によってそのフラックスは地上の約 10 万分の 1、1.5×10^{-7}cm^{-2}sec^{-1} にまで減少している [20]。

図 2.3 に KamLAND エリアの全体図を示す。KamLAND エリアは池の山の坑道入口より 3km の所に設置されており、同坑内では Super-Kamiokande や XMASS といった他のグループも実験を行っている。図 2.3 のコントロールルームではデータ収集の制御、監視が行われ、純水装置では KamLAND 検出器の外部検出器に満たされている純水の製造が行われている。また第一純化装置エリアでは、KamLAND 建設時に高純度の液体シンチレータを製造していた純化装置が設置されている。また太陽ニュー

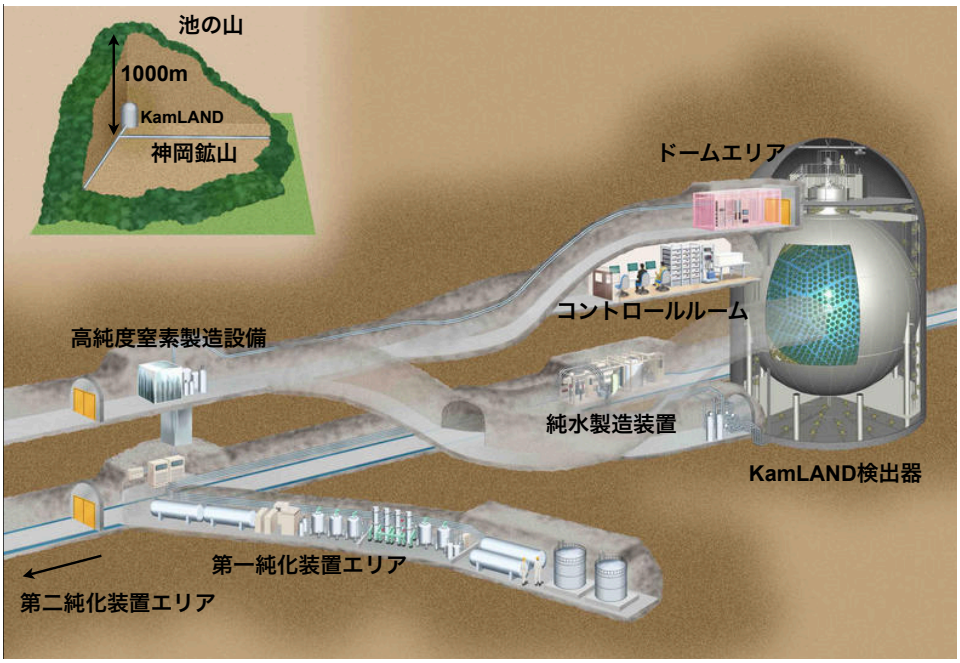

図 2.3: KamLAND エリアの全体図

トリノ観測に向けた液体シンチレータの純化のため、新たに高純度窒素製造設備と第二純化装置が建設された。

鉱山内のラドン濃度は外気より高く、その濃度は夏で最大 3000Bq/m^3 程度、冬で数百 Bq/m^3 程度と季節変動している。KamLAND 検出器の上部にあるドームエリアでは外気を取り込むことで年間安定したラドン濃度になっており、40Bq/m^3 程度となっている。

2.3.1 検出器の構造と構成要素

KamLAND 検出器の主要部は、直径 18m、体積 3000m^3 の球形ステンレスタンクとそれを覆っている円筒形タンクより構成されており、中心のバルーン内にニュートリノ標的である液体シンチレータ 1000 トンが満たされている (図 2.4)。球形タンク内は ID(Inner Ditector)、その外側の円筒形タンク内部は OD(Outer Ditector) と呼ばれている。

ID (Inner Ditector)

中心に直径 13m の透明な球形バルーンがあり、非常に強度の強いケプラー素材の紐で吊られている。バルーンは厚さ 135μm の 5 層構造で、外側 2 層がラドンに対する遮蔽能力の高いエバール (EVOH: エチレン-ビニルアルコール)、内側 3 層が強度・透明度のあるナイロンから構成されている。バルーンに使用されているフィルムは透明度が高く[1]、液体シンチレータ内で発生したシンチレーション光を容易に外側に伝え

[1] 光透過率 0.96 @ 400nm

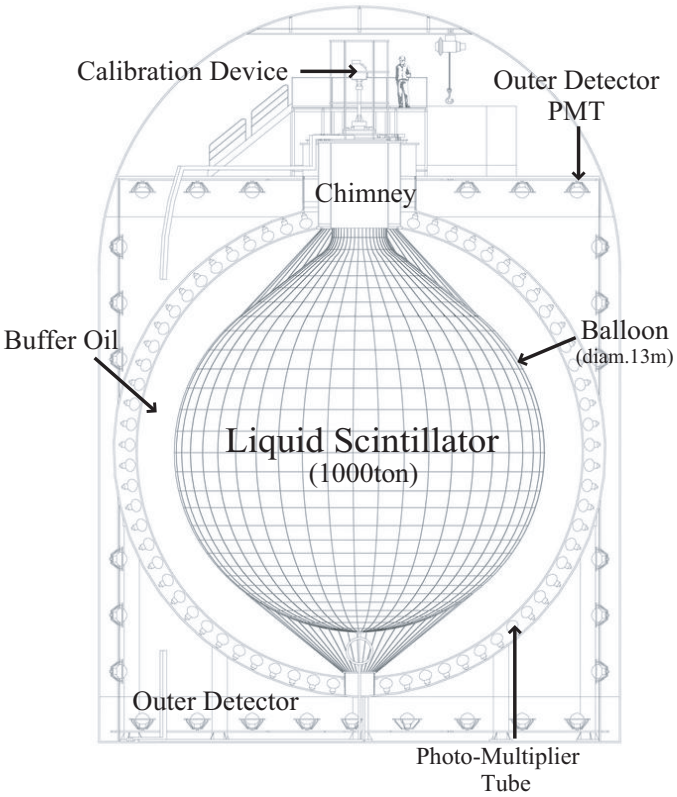

図 2.4: KamLAND 検出器の内部構造

る。バルーンにかかる圧力は内側と外側の液の密度差で決まり、0.01%程度 (全体で約 100kgf/cm^2) で制御されている。

バルーンの外側は透明度の高いパラフィンオイル (ミネラルオイル) [2]で満たされており、直径 18m の球形ステンレスタンクで覆われている。このステンレスタンクの内壁に光電子増倍管 (17 インチが 1325 本、20 インチが 554 本、計 1879 本) が取り付けられてあり、ニュートリノがバルーン内の液体シンチレータで反応を起こした際、発生するシンチレーション光を光電子増倍管で検出する仕組みとなっている。光電面カバー率 (photocathode coverage) は 17 インチ、20 インチでそれぞれ 22%、12%の計 34%、エネルギー分解能はそれぞれ $6.2\%/\sqrt{\mathrm{E(MeV)}}$、$7.3\%/\sqrt{\mathrm{E(MeV)}}$ となっている。

OD (Outer Detector)

球形ステンレスタンクの外側は、直径 19m、高さ 20m の円筒形タンクで覆われており、3000 トンの超純水[3]で満たされている。この OD には 20 インチの光電子増倍管 225 本が取り付けられてあり、地下に入り込んで来る宇宙線 μ 粒子を識別することが出来る。また周りの岩盤中の放射性元素から放出される γ 線や中性子などのバックグラウンドを遮蔽する役割を担っている。

[2] ドデカン ($C_{12}H_{26}$) + イソパラフィン ($C_nH_{2n+2,n\sim15}$)
[3] 純水装置によって、常に高純度に保たれている。

検出器上部

キャリブレーション (較正) 用の装置があり、ここから KamLAND 検出器内部に直接 ^{60}Co などの放射線源を入れてキャリブレーションが出来る仕組みとなっている。KamLAND 検出器上部にはシールガスとして窒素が常に供給されており、漏れやキャリブレーション作業によって液体シンチレータに空気中の酸素やラドンが溶け込むのを防ぐ役割を担っている。

2006 年 12 月までは液体窒素を蒸発させて 4.0l/min で窒素供給を行っていたが、液体シンチレータやバッファーオイル気相部の酸素濃度が従来の 0%から 0.8%程度に上昇しているのが確認された。2007 年 1 月より高純度窒素製造設備の窒素を使用し供給量を 8.0l/min として酸素濃度を下げているが、窒素供給源から検出器上部までの配管、もしくは検出器上部周りの漏れが懸念される。液体シンチレータ純化後は僅かな漏れも許されないため、供給ガスと検出器上部の排気ガス中のラドン濃度を測定し、漏れの原因箇所を特定する必要がある。第 5 章で本研究で開発したラドン検出器による供給ガス中のラドン濃度の測定結果について述べる。

液体シンチレータ (LS)

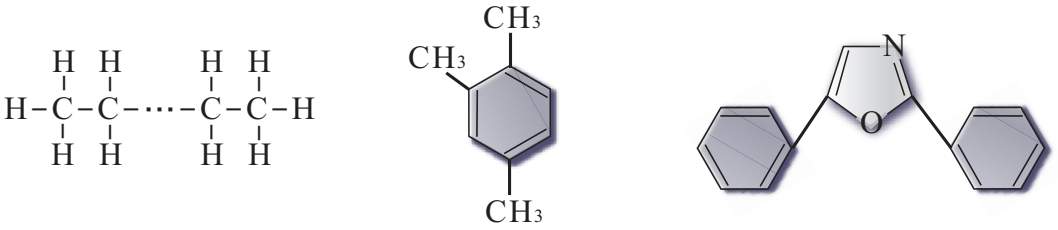

図 2.5: 液体シンチレータの構成物質

KamLAND のニュートリノ標的は液体シンチレータ (**L**iquid-**S**cintillator) と呼ばれる有機溶媒で、直径 13m、質量にして 1000 トン ($1172 \pm 25\mathrm{m}^3$) という大容量を誇っている。シンチレータは荷電粒子が通過すると励起され、そのエネルギーがシンチレーション光として放出される。この発光を効率よく光電子増倍管に届けるためには非常に高い透過度 ($\geq$ 13m@400nm) と発光量 (300p.e.[4]/MeV) が要求される。

この条件を満たす様々な組み合わせが検討された結果、液体シンチレータは図 2.5 に示すプソイドクメン 20%、ドデカン[5]80%、PPO と呼ばれる発光剤 1.52g/l により構成され、その密度は 11.5°C において $0.780\mathrm{g/cm}^3$ となっている。表 2.1 に液体シンチレータの各々の成分の性質を示す。

[4]photo electron (光電子) のこと。
[5]ミネラルオイル (MO)、ノルマルパラフィン (NP) とも呼ばれる。

	ドデカン	プソイドクメンン	PPO
密度 (g/cm^3 at 15°C)	0.78	0.88	-
沸点 (°C at 1 atm)	216	169	360
融点 (°C at 1 atm)	-10	-44	72
引火点 (°C)	76	44	-
発火点 (°C)	-	500	-

表 2.1: 液体シンチレータの性質

第3章　KamLANDのバックグランドと液体シンチレータの純化

本章では KamLAND 建設時に建設された第一純化装置について説明し、現在の KamLAND 実験における低エネルギー領域の主なバックグラウンドを述べる。そして ^{7}Be ニュートリノ観測のために必要なバックグラウンドの低減率と、その除去のために建設された第二純化装置について述べる。

3.1　第一純化装置

KamLAND では液体シンチレータ純化のための装置として、建設時に使用した第一純化装置と、太陽ニュートリノ観測のため新たに建設された第二純化装置がある。本節ではこの第一純化装置について説明する。

KamLAND 建設時に、液体シンチレータとバッファーオイルの純化装置が KamLAND エリア内に建設された。その全体像を図 3.1 に示す。この第一純化装置は液体シンチレータの原料に含まれる ^{238}U 系列、^{232}Th 系列、^{40}K 等の放射性不純物を除去することが出来る。

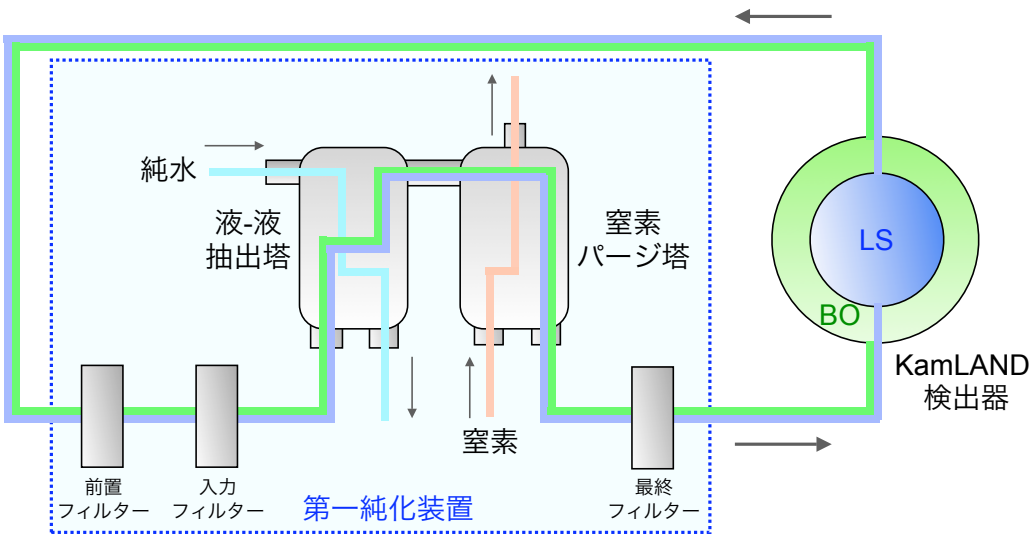

図 3.1: 第一純化装置

純化装置は 2 つの系から構成されており、液体シンチレータとバッファーオイルがそれぞれ独立に純化された。それぞれの系は検出器に直接接続されており、循環運転

が可能となっている。系は 3 つのフィルター (液体シンチレータの濾過用で前置用、入力用、最終用があり、それぞれの目の細かさは 1μm、0.1μm、0.05μm)、液-液抽出塔、窒素パージ塔から構成されている。

液-液抽出塔

液-液抽出法とは互いに混じり合わない 2 液を混合し、一方の液に含まれる溶解物を分配係数の違いを利用して他方に移す方法である。液体シンチレータとバッファーオイルを KamLAND の純水製造装置で精製された純水と混合攪拌し、液内に含まれる不純物を取り除く。

液-液抽出法で純化を実現するための要件は、

- 2 種類の液体が互いに混じり合わずその密度差のために容易に 2 層に分離されること
- 取り除きたい物質が純化したい溶液よりももう一方の溶液に溶け易いこと

である。水分子が極性を持つのに対して液体シンチレータとバッファーオイルの分子は無極性であるため、U、Th、K の様な金属元素は水分子の方へ分配され易くなる。またこの液-液抽出は純水と液体シンチレータ · バッファーオイルを互いの重力で向流させる単純なものであり、特別な化学操作無しに常温、常圧で行える長所がある。

窒素パージ塔

窒素パージ塔は大量の液体シンチレータを窒素でパージする装置で 3 つの効果がある。

- 液-液抽出過程で混入する微量水分の除去、水分による発光率、透過率の悪化防止
- 液体シンチレータに溶け込んでいる酸素ガスの除去、発光量を減少させる酸素クエンチングの防止
- 放射性希ガス元素である ^{222}Rn、^{85}Kr、^{39}Ar の除去による液体シンチレータ中のバックグランドの低減

純化結果

これらの純化装置により、KamLAND 検出器に使用されている液体シンチレータは世界最高レベルの極低放射能環境を実現した。液体シンチレータを作る際に使用された原料と、純化後の液体シンチレータ中の U、Th、K の含有量の値を表 3.1 に示す。

物質	U [g/g]	Th [g/g]	K [g/g]
イソパラフィン (Paraol250)	3×10^{-13}	$\leq 6 \times 10^{-12}$	-
ドデカン (N12D)	$\leq 1 \times 10^{-13}$	$\leq 6 \times 10^{-12}$	$\leq 1.2 \times 10^{-12}$
プソイドクメン (Cosmo)	$\leq 1 \times 10^{-13}$	-	-
PPO (Packard)	1.2×10^{-11}	$\leq 5 \times 10^{-11}$	$\leq 5.3 \times 10^{-11}$
液体シンチレータ (純化後)	$(3.4 \pm 0.4) \times 10^{-18}$	$(5.7 \pm 0.8) \times 10^{-17}$	2.7×10^{-16}

表 3.1: 液体シンチレータの原料と、純化後の液体シンチレータ中の放射性不純物量。原料は ICPMS 測定、液体シンチレータは KamLAND 検出器のバックグラウンドデータから評価された [16]。純化前後で放射性不純物量が 5 桁程度改善しているのが分かる。

太陽ニュートリノ観測に対する第一純化装置の限界

KamLAND が目指している低エネルギー太陽ニュートリノは 1MeV 前後のエネルギー領域に存在する。その観測を実現するためには、現在 KamLAND 検出器においてどの様なバックグラウンドが存在するかを知る必要がある。図 3.2 に現在観測されている 2MeV 以下のエネルギースペクトルを示す。

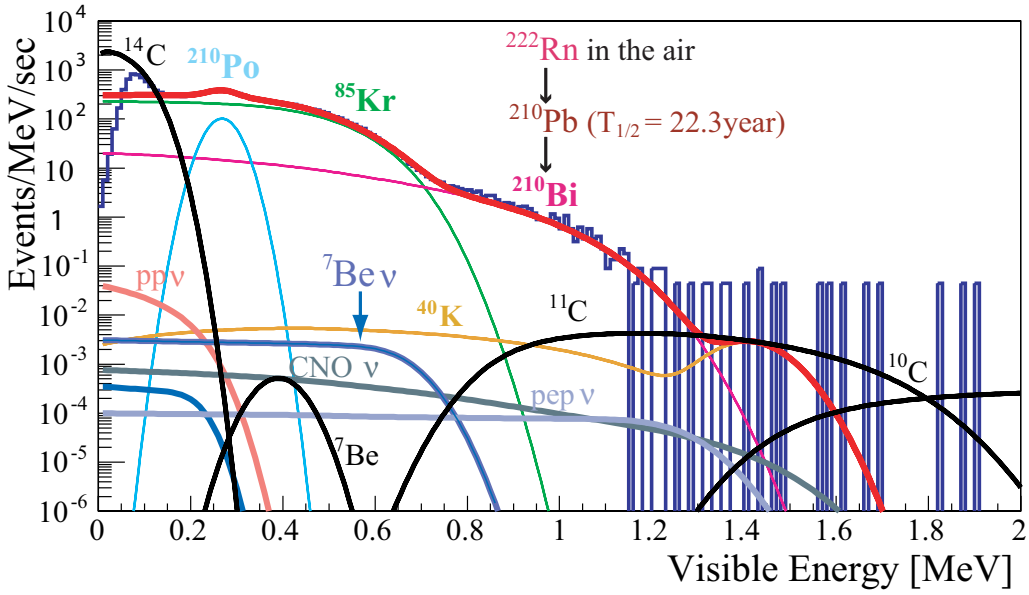

図 3.2: KamLAND で観測される低エネルギー (<2MeV) 領域でのスペクトル [21]。青いヒストグラムは観測されているエネルギースペクトル、赤線は液体シンチレータに含まれる放射性不純物によるバックグラウンドを足し合わせたもの、黒線 (^{14}C、^{7}Be、^{11}C、^{10}C) は宇宙線により生成された同位体によるバックグラウンドを示している。また太陽ニュートリノ (pp、^{7}Be、pep、CNO ニュートリノ) は標準太陽モデル (SSM BP2004) によって予測されるニュートリノフラックスを用い、ニュートリノ振動が無かった場合に KamLAND で観測されるエネルギースペクトルに変換したものである。

図 3.2 の様に ^{7}Be、CNO、pep ニュートリノのスペクトルは完全に埋もれてしまっている。^{7}Be ニュートリノに対しては液体シンチレータ中に含まれる ^{85}Kr、^{210}Bi、^{210}Po、^{40}K が大きなバックグラウンドとなっており、また CNO サイクルのニュートリノと pep ニュートリノに対しては ^{11}C も主要なバックグラウンドとなっている。

このうち ^{210}Bi と ^{210}Po は図 3.3 の系列に属しており、元々空気中に分布している ^{222}Rn が液体シンチレータに溶け込み、半減期 22.3 年の ^{210}Pb となって蓄積されたのが原因であると考えられている。図 3.4 に KamLAND 検出器における ^{210}Po のカウントレートの時間変動を示す。フィッティング結果より、KamLAND 検出器に液体シンチレータを入れた 2001 年 5 月から 9 月にかけて ^{210}Pb のレートが増え始めていることが分かる。(^{210}Po が ^{222}Rn と放射平衡に達するまでにかかる時間については付録 E を参照。)

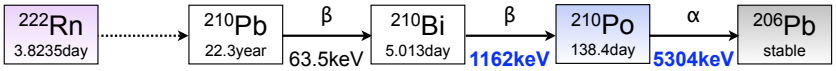

図 3.3: ^{222}Rn ～^{206} Pb の崩壊系列。半減期が長いものだけ示してある。

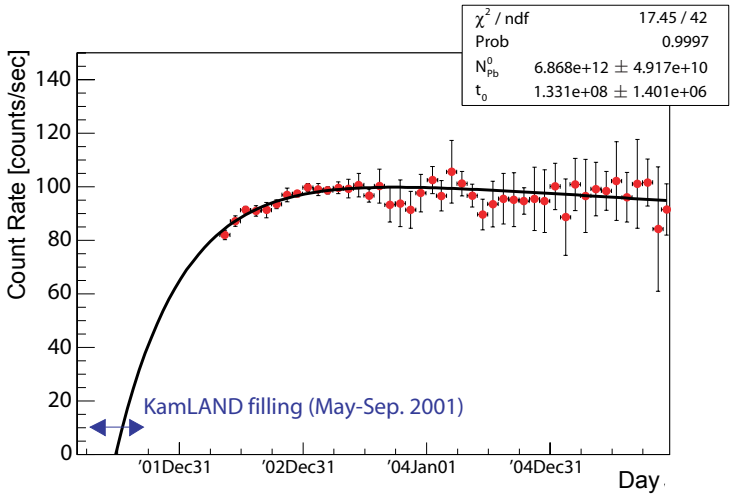

図 3.4: ^{210}Po のレートの時間変動 [22]

建設当時は現在の様に KamLAND エリアに外気 (ラドンフリーエアー) を取り入れラドン濃度を下げておらず、また配管接続部のリークによる ^{222}Rn、^{85}Kr の混入などに対する注意が十分になされていなかった。また太陽ニュートリノ観測のために要求されるレベルが非常に高く、第一純化装置による除去だけでは不十分であったため、KamLAND では新たな純化装置による更なる純化が必要となった。

3.2 低エネルギー領域におけるバックグラウンド源

太陽ニュートリノは、ニュートリノと電子の弾性散乱で検出するため、これまでKamLANDが観測して来た原子炉反ニュートリノ、地球反ニュートリノの様に遅延同時計測法を用いる事が出来ない。よって低エネルギー太陽ニュートリノの観測のためには、液体シンチレータ中の放射性不純物の除去が不可欠である。本章では現在の不純物の定量評価と、低エネルギー太陽ニュートリノ観測に要求される除去率について論じる。

太陽ニュートリノ事象が観測される2MeV以下の低エネルギー領域における現在のKamLAND検出器の主要なバックグラウンドの原因は以下の通りである。

- 液体シンチレータ中に含まれる放射性不純物 ^{238}U、^{232}Th、^{40}K
- 空気中より混入する放射性希ガス元素 ^{222}Rn(^{210}Pb)、^{85}Kr、^{39}Ar
- 周りの岩盤や光電子増倍管より発生するγ線起因の ^{208}Tl
- バルーンを吊っているケプラー紐から発生する ^{40}K
- 宇宙線μ粒子起因の中性子
- 原子核破砕反応によって生じる ^{12}B、^{12}N、^{9}B、^{8}B、^{8}Li、中性子を発生する ^{8}He、^{9}Li

3.2.1 液体シンチレータ中の放射性不純物

ここでは液体シンチレータに含まれている放射性不純物である^{238}U系列、^{232}Th系列、^{40}K、^{14}Cについて述べる。本論文で焦点を当てている^{222}Rnは^{238}U系列に含まれている。

^{238}U系列

ウランは天然に存在する元素で、^{238}Uはウランのうち存在比99.3%を占めている放射性核種である[1]。^{238}Uから^{206}Pbまで崩壊する系列をウラン系列(^{238}U系列)と呼び、^{238}Uが45億年という非常に長い半減期を持つため地球誕生以来広範囲に分布し恒常的なα線やβ線の放出源となっている。その崩壊系列を巻末付録Aに示す。

^{238}Uの壊変率は1.24×10^{4}[Bq/g] (付録H参照)で、岩石中のウラン(^{238}U)濃度は一般的に数ppm (10^{-6}g/g)程度、またステンレスにも数ppb (10^{-9}g/g)含まれている。石油起源の液体シンチレータにも微量ながら含まれている。ICP-MS [2] 測定の結果、バルーンに0.018ppb(0.02Bq)、バルーンを吊るしているケブラー紐に0.08ppb(0.1Bq)のウランが含まれていることが分かっている[23]。

それぞれの核種の含有量を求める際は長半減期核種で放射平衡が崩れている事を考慮して、

[1]残り0.7%は^{235}Uで、付録Aのアクチニウム系列を形成する。

[2]Inductively Coupled Plasma-Mass：誘導結合プラズマ質量分析法。代表的な無機元素分析法で多くの元素に対してppbレベルの超高感度分析が出来る。

- ^{238}U $\rightarrow$ ^{234}Pa (^{238}U : 4.468×10^9 year)
- ^{234}U (^{234}U : 2.455×10^5 year)
- ^{230}Th (^{230}Th : 7.538×10^5 year)
- ^{226}Ra $\rightarrow$ ^{210}Pb (^{226}Ra : 1600 year)
- ^{210}Pb $\rightarrow$ ^{210}Po (^{210}Pb : 22.3 year)

のそれぞれについて考える必要がある。^{238}U $\rightarrow^{226}$ Ra の濃度は ^{234}Pa の β 線 (Q_β=2.27MeV) のシングルスペクトルにより求められ、また ^{226}Ra $\rightarrow^{210}$ Pb は下記の崩壊の遅延同時観測により求められる。

$$^{214}\mathrm{Bi} \xrightarrow[Q_\beta=3.272\mathrm{MeV}]{19.9\mathrm{min}} {}^{214}\mathrm{Po} \xrightarrow[Q_\alpha=7.687\mathrm{MeV}]{164.3\mu\mathrm{sec}} {}^{214}\mathrm{Pb}$$

^{222}Rn はこの系列に含まれる。

^{210}Pb $\rightarrow$ ^{210}Po の崩壊系列の中では、図 3.2 にあるように ^{210}Bi が崩壊したときの β 線 (1.162MeV) が ^{7}Be ニュートリノに対して大きなバックグラウンドとなっており、シングルスペクトルとのフィットによりその濃度を求める事が出来る。

以上、液体シンチレータ中のそれぞれの核種の濃度を表 3.2 にまとめる。最も影響の大きい ^{210}Pb について、^{7}Be ニュートリノを観測するためには 5.0×10^{-7}Bq/m^3 以下に低減する必要があり、要求される低減率は 10^{-5} となる。^{210}Pb を生み出す ^{222}Rn は KamLAND 検出器内でほぼ崩壊し切っているのでこれ以上 ^{210}Pb が生成されることは無いが、液体シンチレータの再純化の際リーク等の存在によって液体シンチレータが ^{222}Rn に汚染される可能性がある。^{7}Be ニュートリノ観測のための許容ラドン濃度は半減期の違いにより 1mBq/m^3 以下となる。

核種	濃度 [Bq/m^3]
^{238}U $\rightarrow$ ^{226}Ra	$< 8.7 \times 10^{-5}$
^{226}Ra $\rightarrow$ ^{210}Pb	$(3.4 \pm 0.5) \times 10^{-8}$
^{210}Pb $\rightarrow$ ^{210}Po	$(5.3 \pm 0.4) \times 10^{-2}$

表 3.2: 液体シンチレータ中の ^{238}U 系列のそれぞれの核種の濃度 [22]

^{232}Th 系列

トリウムは天然に存在する元素で、ほとんどが ^{232}Th として存在している。その半減期は 140 億年と非常に長いため ^{238}U よりも豊富に地殻中に存在している。その壊変率は 4.06×10^3[Bq/g] と ^{238}U よりも低いため、2 核種の環境放射能はほぼ等しくなっている。^{232}Th から ^{208}Pb まで崩壊する系列をトリウム (^{232}Th) 系列と呼ぶ (付録 A 参照)。

ICP-MS による測定よりバルーンから 0.014ppb(0.006Bq)、ケブラー紐から 0.8ppb(0.33Bq) の ^{232}Th が検出されている。

液体シンチレータ中の ^{232}Th $\rightarrow$ ^{208}Pb は下記の崩壊の遅延同時観測により求められる。

$$^{212}\mathrm{Bi} \xrightarrow[Q_\beta=2.254\mathrm{MeV}]{61\mathrm{min}} {}^{212}\mathrm{Po} \xrightarrow[Q_\alpha=8.784\mathrm{MeV}]{299\mathrm{nsec}} {}^{208}\mathrm{Pb}$$

この結果その濃度は 2.87×10^{-7}Bq/m^3 と求められており [22]、^{232}Th 系列の元素が ^{7}Be ニュートリノ検出に影響を及ぼす可能性は低いと言える。

^{40}K

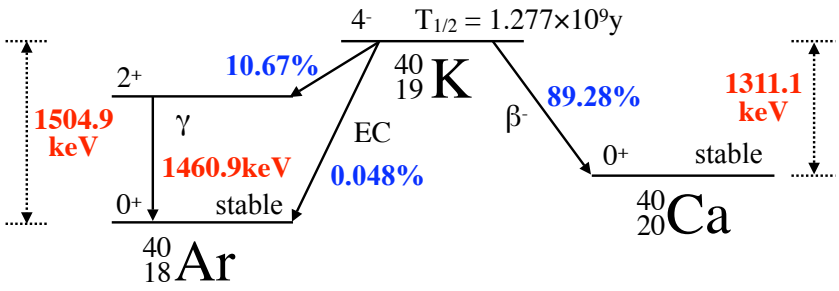

図 3.5: ^{40}K の崩壊過程

^{40}K は存在比が 0.012%で天然に僅かに存在する放射性金属元素である。KamLAND では、主に液体シンチレータやバルーン、ケプラー紐に含まれている。^{40}K の半減期は 13 億年で、β 崩壊 (89.28%、$Q_{\beta^-} = 1311.09$ keV) および電子捕獲反応 (10.72%、$Q_{EC} = 1504.9$ keV) を起こす。図 3.5 に ^{40}K の崩壊過程を示す。

^{40}K の壊変率は 2.59×10^5[Bq/g] で、Flame atomic absorption[3] 分析によってバルーンから 7.2Bq、またゲルマニウム検出器によってケプラー紐から 31Bq の ^{40}K が検出され、大きなバックグラウンドとなっている。このためデータ解析では、半径 6.5m のうち 5.5m 以内を有効体積として ^{40}K の影響を減らしている[4]。^{40}K のシングルスペクトルフィットにより、液体シンチレータ中の存在量は $< 5.5\times10^{-5}$Bq/m^3 ($< 2.7\times10^{-16}$ g/g) と求められている [16]。また液体シンチレータの成分の中では特に PPO が ^{40}K 含有量が多いことが分かっており、液体シンチレータ純化の際新たに使用する PPO は液-液抽出により ^{40}K を除去したものが使用される。

図 3.2 の様に ^{40}K のピークは β 線と γ 線を重ね合わせた形になっており、太陽ニュートリノに対して大きなバックグラウンドとなっているのが分かる。CNO サイクルのニュートリノと pep ニュートリノまで観測する場合には、10^{-2} 程度減少させる必要がある。

^{14}C

自然界には 3 種類の C(炭素) が存在し、その存在比は、^{12}C : ^{13}C : ^{14}C = 0.989 : 0.011 : 1.2 $\times10^{-12}$ となっている。このうちバックグラウンド源となる半減期 5730 年

[3] フレーム原子吸光分析法 : 微量成分の測定に用いられる分光技術の一つ。
[4] fiducial cut と呼ばれる手法。

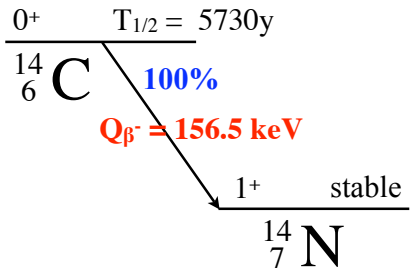

図 3.6: ^{14}C の崩壊過程

の ^{14}C は、宇宙線 μ 粒子によって作られる中性子と大気中の ^{14}N が核反応することで生成される。

^{14}C は半減期 5730 年で β 線 (0.156MeV) を放出する (図 3.6)。液体シンチレータを構成するノルマルパラフィンやプソイドクメンの分子は炭素を含んでいるため存在比を考えると ^{14}C が存在することになるが、石油起源の炭素であるため半減期を考慮すると既に崩壊していると期待される。しかし KamLAND の液体シンチレータ中の ^{14}C の濃度は 0.76Bq/m^3 と求められており、石油の精製段階で混入したか、もしくは PPO に含まれていると考えられている。

図 3.2 より、^{14}C が 0.3MeV 以下に大きなバックグラウンドとして存在しており、太陽ニュートリノの中で最もフラックスの大きい pp ニュートリノの観測を困難にしている。また、^{14}C により ^{7}Be 太陽ニュートリノの反跳電子エネルギースペクトルの観測下限値が 0.3MeV 付近と制限される。

3.2.2 空気から混入する放射性元素

ここでは、空気中から混入する放射性希ガス元素 ^{39}Ar、^{85}Kr について説明する。^{222}Rn も同様に空気から混入する希ガス元素であるが、^{238}U の項目で既に述べているのでここでは省略する。

^{85}Kr

^{85}Kr は天然には存在しない放射性希ガス元素である。原子炉から使用済み核燃料を取り出す際、化学反応性が極めて低いので容易に大気中に放出される。世界の核再処理工場で ^{85}Kr は除去されることなく工場排気として環境中に放出され、現在大気中の濃度は約 1Bq/m^3 となっている。

^{85}Kr は半減期 10.76 年で β 崩壊する (図 3.7)。半減期が長いため KamLAND 内部に混入した ^{85}Kr はバックグラウンドとして存在し続け、図 3.2 の様に ^{7}Be ニュートリノの観測領域を完全に覆ってしまっている。^{85}Kr の量は有効体積 R $\leq$ 5.5m 内におけるシングルスペクトルのフィットにより見積もられ、$(4.56 \pm 0.96) \times 10^{-2}$Bq/m^3 となっている [22]。^{7}Be ニュートリノを観測するためには 10^{-6}Bq/m^3 程度まで低減する必要があり、現在の Kr レベルから 10^{-5} の削減が必要である。

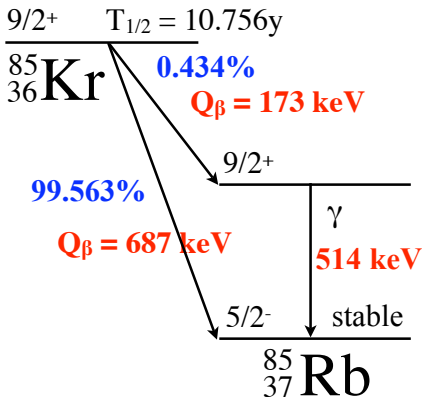

図 3.7: ^{85}Kr の崩壊過程

^{39}Ar

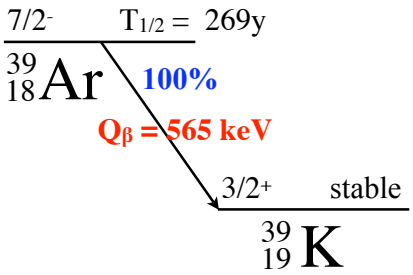

図 3.8: ^{39}Ar の崩壊過程

Ar は無色・無臭の希ガス元素で、空気中に 0.93%存在しており、希ガス元素の中では最も多く空気中に存在している。

放射性希ガス元素 ^{39}Ar は半減期 269 年で β 崩壊する (図 3.8)。大気中に約 1.68×10^{-3}Bq/m^3 存在し、KamLAND 検出器内の液体シンチレータの濃度は 2.07×10^{-2}Bq/m^3 以下と求められている [22]。^{7}Be ニュートリノ観測のためには 10^{-6}Bq/m^3 まで低減する必要があり、10^{-5} の除去率が必要である。但し Ar は Kr より軽い元素で液体シンチレータへの溶解度も低く必要とされる除去率も Kr より低いので、Kr の除去率が純化によって達成されるのならば Ar に関しては問題ないと考えられる。

ミューオンによる原子核破砕反応

KamLAND 検出器は地下 1000m に設置されているため宇宙線 μ 粒子の影響が地上に比べ約 10 万分の 1 と少なくなっており、KamLAND 検出器におけるカウントレートは 0.34cps となっている。そのうち高エネルギーの宇宙線 μ 粒子が検出器内で原子核破砕反応 (spallation) を起こし、中性子や様々な不安定核 (spallation products) を生成する。表 3.3 にそれぞれの放射性元素についてまとめる。

元素	崩壊モード	崩壊寿命	エネルギー (MeV)	イベントレート (events/day/kton)
^{11}C	β^+	29.4min	0.9602	1039
^{10}C	β^+	27.8sec	1.91	139
^{9}C	$\beta+$	0.1825sec	16.0	5.5
^{12}B	β^-	0.291sec	13.4	63
^{8}B	$\beta+$	1.11sec	13.7	8
^{11}Be	$\beta+$	19.9sec	11.5	> 2.0
^{8}Li	$\beta-$	1.21sec	16.0	5
^{6}He	β^-	0.116sec	3.5	19
^{8}He	$\beta^-(84\%)$、$\beta^- n(16\%)$	0.1717sec	10.7	2.4
^{9}Li	$\beta^-(50\%)$、$\beta^- + n(50\%)$	0.2572sec	13.6	

表 3.3: 宇宙線 μ 粒子によって生成される放射性元素 [24]

これらの励起原子核は β 線や γ 線、中性子を放出する。この中で特に中性子は遅延同時計測に対して非常に大きなバックグラウンドとなっている。また高エネルギー領域ではミューオンを先発信号とし、その際に放出される中性子を遅発信号とするバックグラウンドも存在する。一方、中性子が陽子や炭素原子に捕獲された際に放出する γ 線はエネルギーが正確に分かっているので、キャリブレーションにも用いられている。

この中で ^{11}C が ^{7}Be ニュートリノ、CNO ニュートリノ、pep ニュートリノ観測に対する大きなバックグラウンドとなっている。^{11}C は元々液体シンチレータに含まれている元素ではないので純化によって取り除く事は出来ない。^{11}C を検出するためにはその生成起因である中性子と原子核破砕反応による β 線を観測すればよいが、現在の KamLAND のエレクトロニクスでは宇宙線 μ 粒子通過後に生成される中性子によって ATWD に不感時間が発生するためこのイベントを捕らえる事が出来ない。よって不感時間を持たないエレクトロニクスを導入するための開発が行われている。この電子回路の開発によって ^{11}C の 95%を識別可能となれば CNO、pep ニュートリノ観測が期待出来る。図 3.9 に液体シンチレータの純化と ^{11}C のバックグラウンドが 95%除去出来た際に期待されるスペクトルを示す。

3.2.3 要求されるバックグラウンドの除去率

以上述べた太陽ニュートリノ観測に対するバックグラウンドについて表 3.4 にまとめる。

3.3 第二純化装置

KamLAND では低エネルギー領域の太陽ニュートリノ観測 (solar phase) のための純化装置が 2006 年秋に完成し、2007 年 1 月下旬よりその稼働が始まる。図 3.10 に第二純化装置システムの全体図を示す。この装置は蒸留精製法によって、液体シンチレー

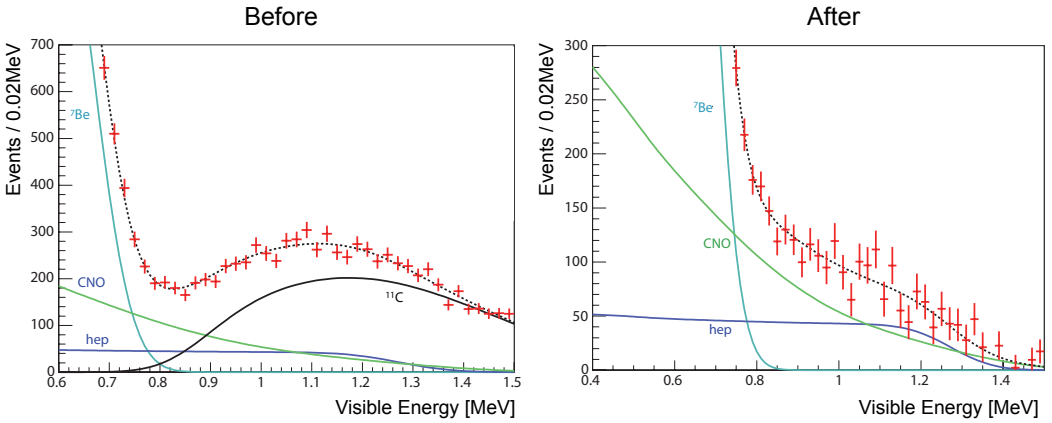

図 3.9: 液体シンチレータの純化目標達成後にエレクトロニクスの改良によって期待される ^{11}C のバックグラウンドスペクトルの変化。左が改良前で右が改良後。

核種	現在の濃度 [Bq/m^3]	目標濃度 [Bq/m^3]	目標削減率
^{210}Pb	$(5.3 \pm 0.4) \times 10^{-2}$	5×10^{-7}	10^{-5}
^{40}K	$< 5.5 \times 10^{-5}$	2×10^{-7}	10^{-2}
^{222}Rn	$(3.4 \pm 0.5) \times 10^{-8}$	10^{-3}	-
^{85}Kr	$(4.56 \pm 0.96) \times 10^{-2}$	10^{-6}	10^{-5}
^{39}Ar	2.07×10^{-2}	10^{-6}	10^{-5}

表 3.4: 現在のバックグラウンドと要求される除去率

タ中に含まれる ^{210}Pb、^{40}K 等の不純物を除去し、高純度窒素ガスを使用したパージ法によって ^{222}Rn、^{85}Kr 等の放射性希ガス元素を除去する仕組みとなっている。

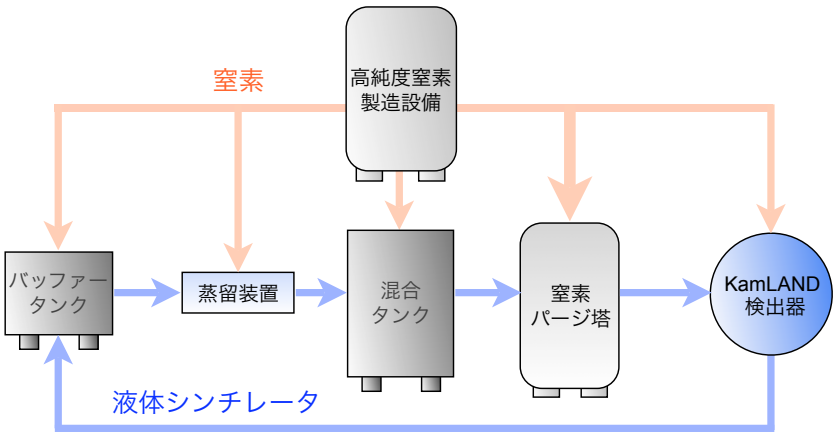

図 3.10: 第二純化装置

蒸留装置

図 3.11 に蒸留装置の全体像を示す。まず KamLAND 検出器内部のバルーンより直接接続された配管を通じてバッファータンクに液体シンチレータが送られ、その後各蒸留塔で沸点の低い順に各成分が蒸留される。以下に各蒸留塔における圧力と温度条件を示す。

1. プソイドクメン (PC、沸点 169°C) の蒸留。圧力 1.6kPa、温度 60°C。
2. ドデカン (NP、 沸点 216°C) の蒸留。圧力 2.2kPa、温度 110°C。
3. PPO(沸点 360°C) の蒸留。圧力 0.6kPa、温度 190°C。

図 3.11 でバッファータンクから PC 塔に液体シンチレータ (20°C) が送られる際、蒸留後の製品である NP (95°C) と熱交換が行われる。これにより液体シンチレータの温度は PC 塔の温度条件に近い 55°C 程度まで上昇し、蒸留塔における加熱がよりスムーズに行われる。熱交換器はステンレス製電解研磨管の 2 重構造となっており、ラドンの染み出しは極力抑制されている。

各々の蒸留塔で液体シンチレータはリボイラーによりそれぞれの温度条件まで加熱される。PC 塔と NP 塔において、蒸留後の蒸気は凝縮塔に送られここで凝縮しない成分はベントコンデンサーで 20°C 程度まで冷却される。凝縮塔とベントコンデンサーにより凝縮した液は再び蒸留塔に戻る経路を持ち、製品として取り出さずに各蒸留塔で自己循環する事が出来る。

NP 塔では蒸留後の残液 (NP+PPO) は PPO 濃縮塔に送られ 140°C まで加熱される。残液に僅かに含まれる NP 成分は低圧下で蒸発して蒸留塔に戻り、濃縮された高温の PPO 液が PPO 塔に送られる。NP 塔で蒸留された製品の NP はバッファータンク後の熱交換器と冷却水で冷やされ、混合タンクへ送られる。

PPO 塔で蒸留された蒸気成分の PPO は初めのコンデンサーで 80°C まで冷却され、凝縮した PPO は再び PPO 塔に戻り自己循環される。凝縮されなかった成分は次のコンデンサーで 20°C まで冷却され廃棄される。PPO 塔の蒸留後の残液は濃縮された ^{210}Pb 等の放射性不純物を含み廃液となる。製品である PPO は高温の液状で、途中 PC と混ざり溶けた状態で調整タンクへ送られる。製品の PC は蒸留後冷却され、PPO は PC に対して量が少ないので調整タンクで温度は低い状態となる。

混合タンクでは蒸留後の製品の流量と調整タンクによって液体シンチレータの成分が調整される。調整による密度の精度は $\frac{1}{1000}$g/cm ^{3} であり、その後液体シンチレータはテフロン製のフィルターを通して窒素パージ塔へ送られる。そして更に目の細かいフィルターを通った後、液体シンチレータは KamLAND 検出器へ送られる。

蒸留後の液体シンチレータの性質に問題があった場合、純化後の液は検出器へ送られずに再びバッファータンクへ送ることが出来、再度蒸留を行う事が可能となっている。蒸留装置の立ち上げ時にもこの経路で蒸留を行い各蒸留装置が安定稼働状態に入ったのを確認後、KamLAND 検出器から液体シンチレータが蒸留装置へ送られることになる。

以上、液体シンチレータの蒸留速度は 1.5m^3/hour であり、KamLAND の液体シンチレータを 1 サイクル蒸留するのに約 1ヶ月を要する。

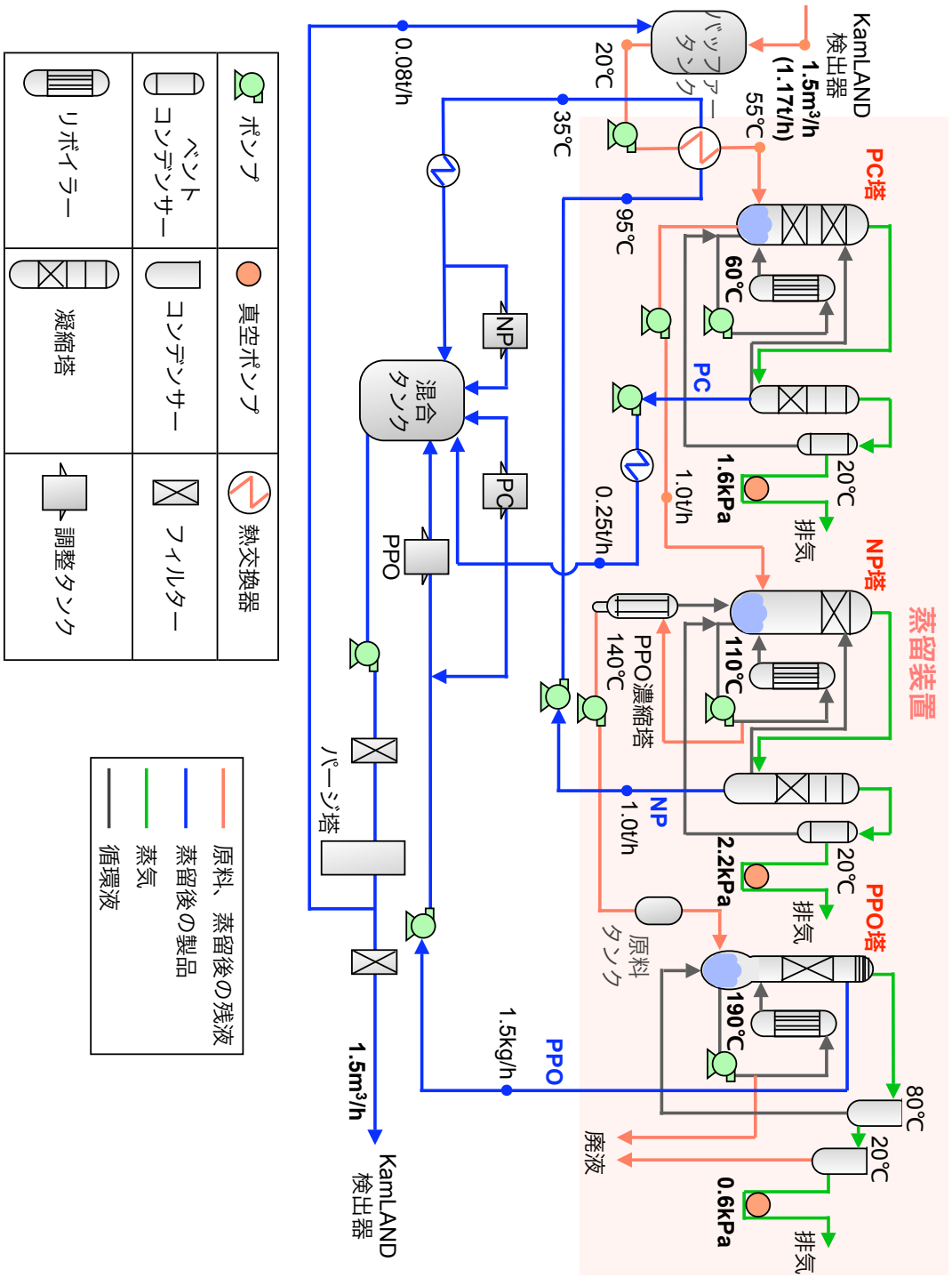
KamLAND
検出器
1.5m³/h
(1.17t/h)
55℃
バッファータンク
20℃
0.08t/h
35℃
95℃
蒸留装置
PC塔
60℃
PC
1.6kPa
20℃
排気
1.0t/h
0.25t/h
NP塔
110℃
PPO濃縮塔
140℃
NP
1.0t/h
2.2kPa
20℃
排気
原料
タンク
PPO塔
190℃
PPO
1.5kg/h
80℃
20℃
0.6kPa
排気
廃液
NP
PC
混合
タンク
PPO
パージ塔
1.5m³/h
KamLAND
検出器
ポンプ
真空ポンプ
熱交換器
ベント
コンデンサー
コンデンサー
フィルター
リボイラー
凝縮塔
調整タンク
原料、蒸留後の残液
蒸留後の製品
蒸気
循環液

図 3.11: 蒸留装置

窒素パージ塔

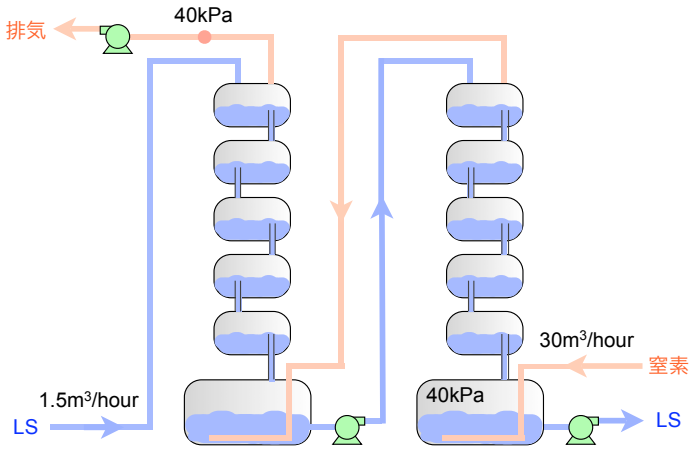

図 3.12: 窒素パージ塔

図 3.12 に窒素パージ塔を示す。新窒素パージ塔は建設時の旧窒素パージ塔と同様に放射性希ガス元素である ^{222}Rn、^{85}Kr、^{39}Ar を除去する事を目的としている。蒸留され高沸点成分の不純物 (主として ^{210}Pb、^{40}K) が除去された液体シンチレータがこの窒素パージ塔へ送られる。

新窒素パージ塔は希ガス除去性能の向上のため大型化されており、大量の高純度窒素が要求される。窒素流量は液体シンチレータ流量 1.5m^3/hour の 20 倍である 30m^3/hour となっており、ポンプでパージ塔全体を 40kPa に減圧している。このパージ塔は液体シンチレータと窒素の流れの向きが逆であるため、最も純度の高い窒素で最も放射性希ガス量の少ない液体シンチレータをパージ出来る 2 塔構造となっており、高い希ガス除去率が期待される。通常 20 倍の窒素流量ではラドン濃度は 20%程度にしか減少しないと考えられるが、減圧下であることとパージ塔の構造より $\frac{1}{100}$ 程度になることが期待されている。

高純度窒素製造設備

高純度窒素製造設備は跡津坑口より坑内 KamLAND エリアへ送られているラドンフリーエアーを原料として窒素を分離精製している。図 3.13 に窒素製造設備の全体概略図を示す。

まず 200m^3/hour のラドンフリーエアーが原料空気圧縮機で加圧され、前処理ユニットである吸着塔へ送られる。吸着塔ではゼオライト吸着剤により原料中の水分、二酸化炭素成分が除去される。吸着塔は 8 時間毎に A、B 塔が交互運転しており、吸着工程と脱着 · 再生工程が繰り返される。前処理された原料空気はコールドボックス内の精留塔へ送られ、窒素の分離 · 精製が行われる。

コールドボックス内には 3 塔の精留塔が設置されており、各塔間の送りガスは窒素圧縮機を通して行われる。窒素圧縮機はコールドボックス外に設置されており、圧縮機を通る間にガスは昇温され、大きな熱損失が生じる。そこで熱効率を上げるために、

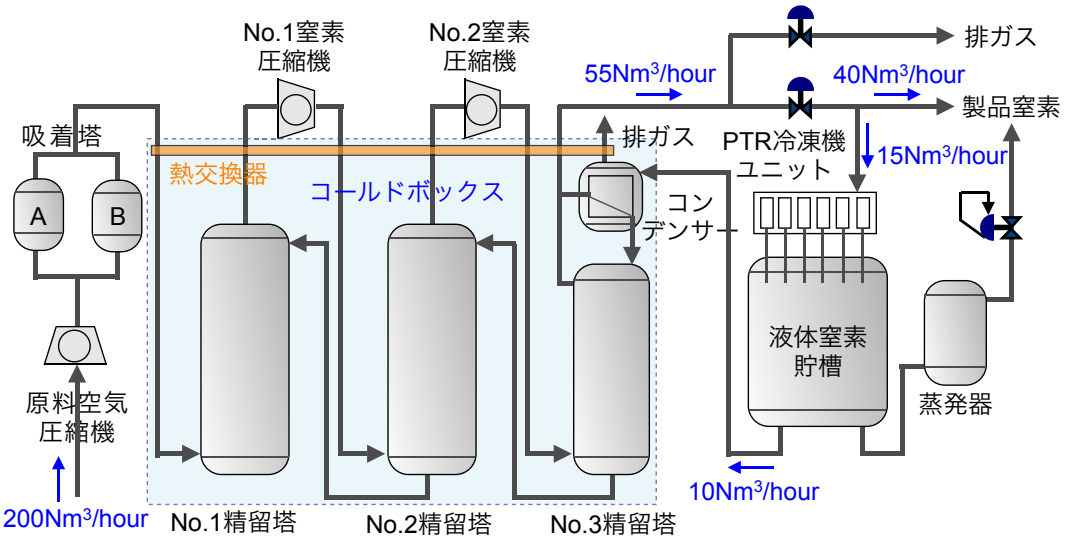

図 3.13: 高純度窒素製造設備

コールドボックスの入出口に熱交換器が設置されており、各精留塔間の送りガスによる熱損失を最小限に抑えている。

3 塔の精留塔と 3 塔目に設けられたコンデンサーの間で還流をさせる事により、最終的にコールドボックスから 55m^3/hour の高純度窒素が製造される。製造された高純度窒素は 40m^3/hour が窒素パージ塔を初めとする蒸留装置と KamLAND 検出器等へ送られ、15m^3/hour が 15 台の PTR 冷凍機を通して液化された貯槽へ送られる。液化された液体窒素のうち 10m^3/hour 程度は精留のためにコンデンサーへ常時供給されるため、実質的には 5m^3/hour が液体窒素としてタンクに備蓄される事になっている。貯槽の容積は 580ℓ(約 350Nm^3) であり、停電等の非常時には蒸発機を通して 5m^3/hour の窒素ガスが供給出来る様、バックアップとしての重要な役割を担っている。

高純度窒素製造設備で製造された窒素ガス中の放射性希ガス元素 ^{222}Rn、^{85}Kr、^{39}Ar の設計濃度はそれぞれ 5μBq/m^3、$\ll$ 1μBq/m^3、$<$ 0.2μBq/m^3 となっており、非常に高純度の窒素ガスが液体シンチレータの純化に使用されることになる。

第二純化装置の性能評価

第二純化装置による液体シンチレータの純化後、液体シンチレータの性質に変化や劣化が無いか、また高純度窒素製造設備の不純物除去性能を調べる必要がある。以下に分析が計画されている項目について並べる。

- 液体シンチレータの透過率、発光量
- 液体シンチレータの密度
- 液体シンチレータ中の ^{222}Rn、^{85}Kr 濃度
- 高純度窒素ガス中の ^{222}Rn、^{85}Kr 濃度

液体シンチレータ中のラドンを測定するために、KamLAND では 2 種類のラドン検出器の開発が行われている。1 つは縦横 15cm、長さ 100cm の液体シンチレータが入ったセグメント 16 個より構成される miniLAND と呼んでいる検出器である。液体シンチレータの総体積は 0.36m^3 で、セグメント毎にアクリル製の容器に入れられ、5 インチの光電子増倍管が両脇にそれぞれ取り付けられている。この検出器はラドンの娘核である ^{214}Bi と ^{214}Po を遅延同時観測することでラドン濃度を決定する。もう一方の検出器が本研究で開発する濃縮法を用いたラドン検出器である。この検出器は静電捕集法によってラドンの娘核 ^{218}Po、^{214}Po の崩壊による α 線を検出し、ラドン濃度を決定する。詳細については第 4 章で述べる。

またガス中のラドン濃度については、本研究で開発するラドン検出器を用いて測定を行っている。これについては第 5 章で述べる。

純化後に予想されるバックグラウンドスペクトル

図 3.2 の現在の KamLAND の低エネルギー領域のスペクトルに対してテストベンチによる蒸留実験で得られている除去率の上限値を当てはめると、図 3.14 の様になる。

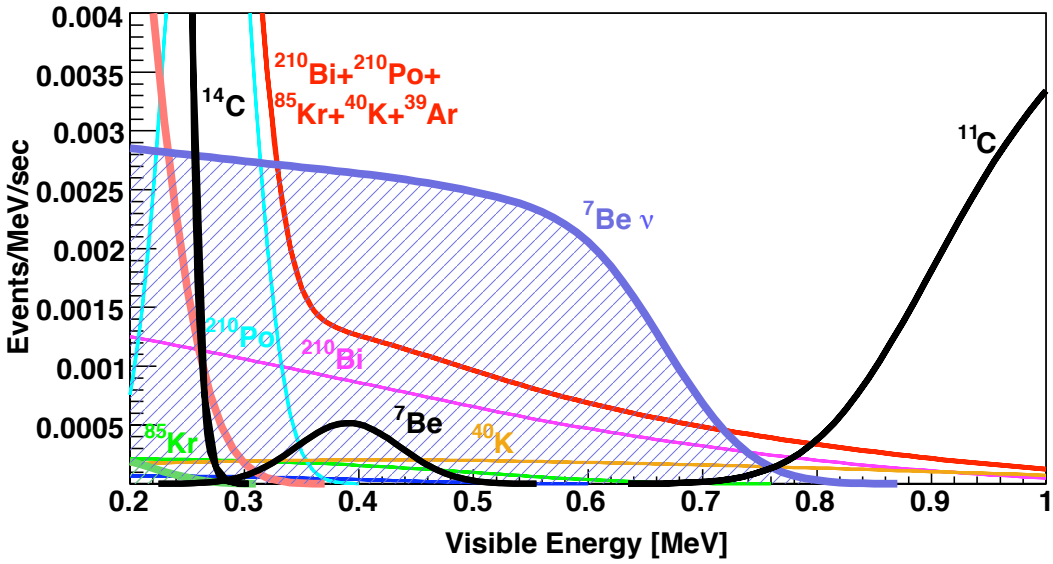

図 3.14: 純化後に予想される低エネルギー領域のバックグラウンドスペクトル

図 3.14 の 0.5MeV∼0.8MeV の領域において予想される ^{7}Be ニュートリノとその他のバックグラウンドのイベント数を表 3.5 に示す。^{7}Be ニュートリノイベントの事象数がバックグラウンドイベントの総数よりも多くなっている事が分かり、予想される除去率が得られれば ^{7}Be ニュートリノが観測可能であることが分かる。

	イベントレート [events/day/fiducial]
^{7}Be ν	34.5
^{210}Bi	10.7
^{85}Kr	0.8
^{40}K	4.4

表 3.5: ^{7}Be ニュートリノ、バックグラウンドの純化後の予想イベントレート [25]。S/N=2.2 となっている。^{7}Be ニュートリノはニュートリノ振動が無い場合を仮定している。

第4章　ラドン検出器の開発

本章では液体シンチレータ中のラドン濃度 1mBq/m^3 の測定を目指して行われたラドン検出器の開発について述べる。

4.1　開発動機

KamLAND 実験では次期ターゲットとして、太陽内部より発生する ^{7}Be ニュートリノの検出を目指している。この ^{7}Be ニュートリノは数百 keV 領域で検出されるため、この領域に存在する多くのバックグラウンドの低減を行わなければならない。

主要なバックグラウンド源である ^{210}Bi と ^{210}Po について、これらは現在液体シンチレータ中に含まれている ^{210}Pb が崩壊して生成される核種であり、この ^{210}Pb は蒸留法によって液体シンチレータより取り除かれる予定である。しかしこの純化の際配管等に漏れが存在した場合、空気中に存在する ^{222}Rn が液体シンチレータに溶けてしまう可能性がある。この ^{222}Rn は半減期 3.82 日で崩壊して行き、崩壊系列の下流で半減期 22.3 年の ^{210}Pb を生成する。そのため純化後、液体シンチレータを KamLAND 検出器に戻す前に ^{222}Rn がどの程度溶け込んでいるか確認し、正しく液体シンチレータの純化が行われているかを見極める必要がある。

^{7}Be ニュートリノを確認するためには、^{210}Bi と ^{210}Po のバックグラウンドから ^{210}Pb の濃度を現在の 10^{-5} レベルにまで低減する必要があり、その濃度は約 1μBq/m^3 であるため、^{210}Pb と ^{222}Rn の半減期の比から求められる ^{222}Rn の許容濃度は 1mBq/m^3 ということになる。

今、時刻 t における ^{222}Rn と ^{210}Pb の個数をそれぞれ $N_1(t)$、$N_2(t)$、崩壊定数 ln2/(半減期) を λ_1、λ_2 とする。^{210}Pb の崩壊数は、

$$\begin{aligned} N_2(t) &= \lambda_2 \times \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0)(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \\ &\simeq \lambda_2 N_1(0) e^{-\lambda_2 t} (\because \lambda_1 \gg \lambda_2) \\ &\simeq \lambda_2 N_1(0) = 1\mu\mathrm{Bq/m}^3 \end{aligned} \tag{4.1}$$

となるので、^{222}Rn の崩壊数は、

$$\begin{aligned} N_1(t) &= \lambda_1 N_1(0) \\ &= \lambda_1 \frac{1\mu\mathrm{Bq/m}^3}{\lambda_2} \\ &= \frac{22.3 \times 365}{3.82} \times 1\mu\mathrm{Bq/m}^3 \\ &\simeq 2\mathrm{mBq/m}^3 \end{aligned} \tag{4.2}$$

となる。ここで ^{222}Rn と ^{210}Pb の半減期をそれぞれ 3.82 日、22.3 年とした。図 4.1 に ^{222}Rn と ^{210}Pb の崩壊数の時間変化を示す。^{210}Pb が放射平衡に達して 1μBq/m^3 となる時、^{222}Rn の始状態の濃度は 2mBq/m^3 であることが分かる (放射平衡式については付録 E を参照の事)。

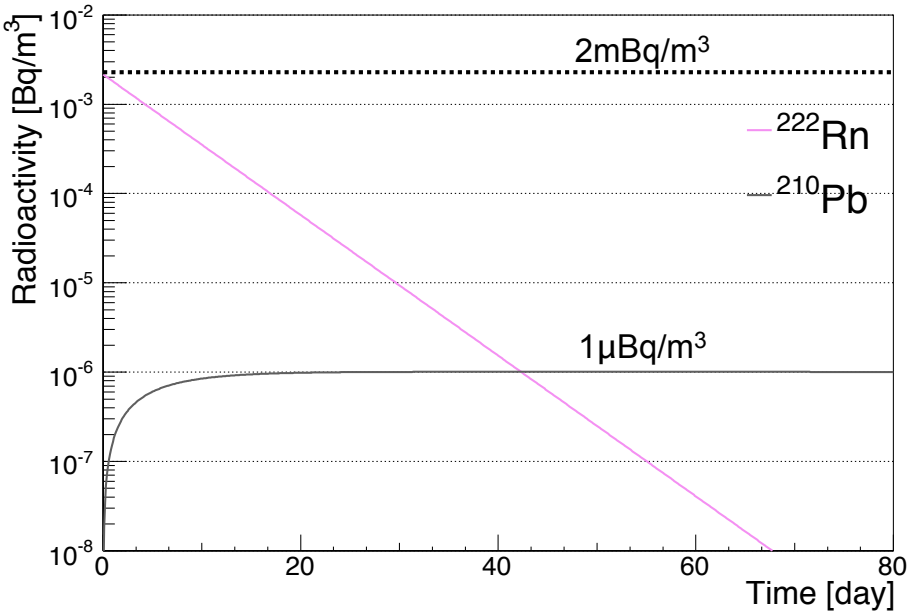

図 4.1: ^{222}Rn と ^{210}Pb の崩壊数の時間変化

空気中のラドン濃度の測定限界は市販品で数十 Bq/m^3、活性炭を用いた測定法で 50mBq/m^3 程度であり、実際に 150ml のバイヤルを用いて行った液体シンチレーション法の測定限界は 80Bq/m^3 であった (付録 D 参照)。これに対して本研究の目指す測定限界は 5 桁低いレベルであるため、新たに装置を開発する必要性が生じた。

4.2 ラドン

ラドンの性質

ラドン (Rn) は連鎖的に崩壊するウラン系列、トリウム系列に属する無色 · 無臭の放射性希ガス元素である。一般的にウラン系列中のラドン (^{222}Rn) はラドン、トリウム系列中のラドン (^{220}Rn) はトロンと呼ばれている。土壌や岩石等がウラン ^{238}U、トリウム ^{232}Th を含んでいるため、その崩壊によってラドンが生成され空気中に染み出し、広く自然界に存在している。

ラドンの化学的性質を表 4.1 に示す。ラドンは希ガスであるため非常に単体性が強く、化学的に安定である。融点と沸点は液体窒素温度 -196°C に比べて高いため、冷却することでラドンをトラップ出来る可能性がある。 またラドンは有機溶媒に非常に溶け易い性質を持っており、その溶解度は水に比べて約 46 倍である。そのため液体シンチレータの純化の際、空気に触れてしまうことでラドンが溶け込んでしまう可能性がある。

原子番号	86
原子量	222
原子半径	2.4Å
融点	$-71°C$
沸点	$-61.9°C$
密度	9.96 g/l
イオン化エネルギー	10.748 eV
電子親和力	0 eV

表 4.1: ラドンの化学的性質

環境ラドン濃度

ラドンの濃度は一般的に外気で数 Bq/m^3、室内では平均 $30 \sim 80Bq/m^3$ である。地下ではラドン濃度が高くなっていることが知られており、地下水で $3000 \sim 4000Bq/m^3$ 程度である。KamLAND エリア内は外気の導入により $40Bq/m^3$ 程度となっている。

この濃度の空気中に液体シンチレータを触れさせ飽和させた場合、ラドンの液体シンチレータに対する溶解度からその濃度は約 $400Bq/m^3$ となる [25]。そのため純化の際漏れが存在した場合、許容レベルである $1mBq/m^3$ に対して致命的な問題となってしまうので、液体シンチレータ中のラドン濃度測定が必要となる。

ラドンの測定法

液体シンチレータ中のラドン濃度 $1mBq/m^3$ を測定するために、KamLAND グループでは大量の液体シンチレータを用意し直接その信号を捕らえる液体シンチレーション法と、ラドンを液体シンチレータから抽出 · 濃縮して測定する 2 通りの方法による開発研究が行われている。

液体シンチレーション法は アクリル等の透明容器に液体シンチレータを入れ、直接取り付けた光電子増倍管によりシンチレーション光を捉える。図 4.2 に ^{222}Rn から ^{210}Pb までの崩壊図を示す。^{222}Rn の娘核である ^{214}Po が半減期 164.3μ 秒という短い時間で崩壊することを利用して、^{214}Bi の Q 値 3272keV の β 線 (γ 線も含む) と、^{214}Po の 7687keV の α 線を遅延同時観測する。これにより大きくバックグランドを減らして ^{222}Rn の濃度を実時間測定することが出来る。

この測定法の長所は、液体シンチレータ中のラドンの崩壊の実時間観測、連続観測が可能であり、測定に要する時間が短くて済むという点である。一方測定限界を向上しようとする程装置全体の規模が大きくなってしまう欠点がある。この測定法のバックグラウンド源は周りの岩盤やコンクリート中のウランやトリウム等の放射性不純物、また光電子増倍管の使われているガラスに含まれる ^{40}K の崩壊によって発生する γ 線である。これを遮蔽するために鉛等で検出器を囲む必要があり、大容量の液体シンチレータ量を覆うためには相当量の鉛が必要となる。また検出器である光電子増倍管も液体シンチレーションの体積に応じて本数が必要となるので、その分コストが嵩んでしまう。

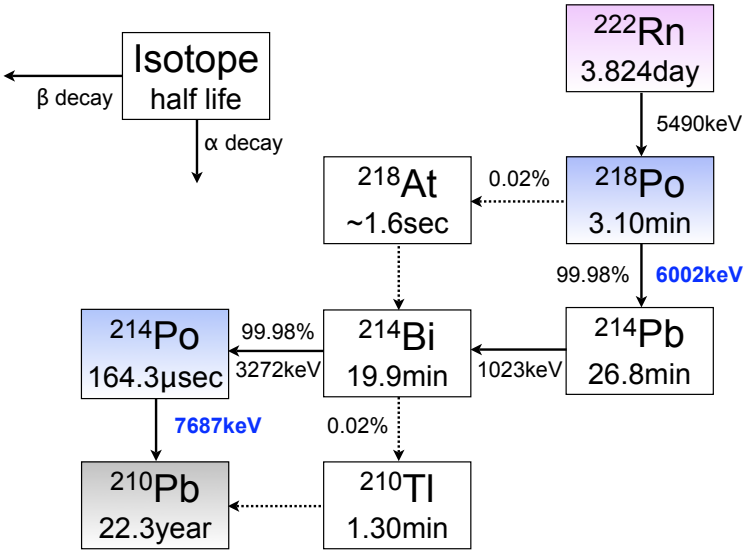

図 4.2: ^{220}Rn から ^{210}Pb までの崩壊図

一方、本研究ではラドンの測定法として静電捕集法を採用した。図 4.2 の ^{218}Po、^{214}Po が正に帯電しているを利用し、電場をかけてそれらを検出部まで捕集し、崩壊後の α 線を測定する。この測定法はエネルギー分解能が良いため容易に信号を識別出来、低レベルのバックグラウンド環境を比較的容易に作り上げる事が可能である。一方検出効率が気体中の不純物の影響を受けやすいので、安定した測定のために水分や油分を除去する必要がある。また液体シンチレーション法に比べて検出効率が低い[1]。

静電捕集法を用いて液体シンチレータ中のラドンを測定するためにはラドンを気相部に抽出する必要があるが、上手くラドンを集めそれを効率良く検出器に送ることに成功すれば、検出器自体は小型化され濃縮の出来る限り検出感度を上げることが可能となる。但し抽出 · 濃縮という過程を経るためにラドン濃度の変化に対応出来ず、連続測定を行う事は出来ない。

4.3 測定系

測定系の全体フロー

現在太陽ニュートリノ観測に対して大きな障害となっているバックグラウンド源の一つ ^{210}Pb は、純化により液体シンチレータから除去されるが、空気中に存在する ^{222}Rn の混入により再び生成される可能性がある。この ^{210}Pb の許容濃度は 1μBq/m^3 であり、半減期の違いから ^{222}Rn の許容濃度は 1mBq/m^3 となる。

図 4.3 はラドンの抽出 · 濃縮 · 検出を行う測定系の概念図である。液体シンチレータからラドンを取り出すために、窒素バブリングによってラドンを追い出す方法と、マカロニ状のテフロン性中空糸膜を用いて液相部から気相部にラドンを抽出する方法が研究されてきた。大量の液体シンチレータから短時間でラドンを抽出するためには窒

[1]液体シンチレーション法の検出効率 0.8~0.9 に対して、静電捕集法は 0.1~0.5。

素バブリングの方がシンプルかつ装置も単純なもので済むことから、こちらを採用することとした。

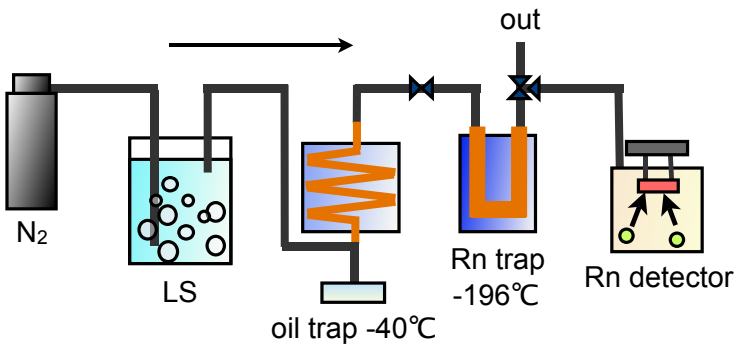

図 4.3: ラドン濃度測定系の概略図

バブリングによる抽出法では出口側のガス中に液体シンチレータの蒸気が含まれることになり、その先の系内が液体シンチレータで汚染されてしまう可能性がある。ここで使用する検出器のセンサー部は有機溶剤に弱く、また検出効率の低下が懸念されるため、オイルトラップを設置しガス中から液体シンチレータの蒸気を取り除くことにした。オイルトラップの銅管はエタノール冷媒で -40°C 付近まで冷却され、液体シンチレーションを含むガスが銅管を通って冷やされ蒸気圧量の変化により液体シンチレータが凝縮される。

ガスは次のラドントラップで液体窒素温度 (-196°C) まで冷やされる。ラドンの融点と沸点はこれよりずっと高いため、冷却によりラドンは捕獲されることになる。この後ガスは排気され、ラドントラップにラドンが濃縮され続ける。トラップ終了後トラップ容器を自然昇温させラドンを脱着し、内部のガスを検出器へ送り込んでラドンの崩壊を検出する。

ラドン濃度測定の評価法

前節で述べた系で液体シンチレータ中のラドン濃度を求める場合、ラドンの抽出から検出するまでの間の様々な効率を求め、ラドンの濃縮過程を正しく理解する必要がある。以下に評価すべき効率を示す。

1. バブリングによる抽出効率 $\varepsilon_{extract}$
2. オイルトラップによる非吸着効率 ε_{oil}
3. ラドントラップにおける吸着効率 ε_{trap}
4. ラドントラップにおける脱着効率 ε_{desorp}
5. ラドントラップから検出器への送り込み効率 ε_{trans}
6. 検出器の検出効率 ε_{det}

更にラドンのトラップ終了から検出までの間に経過した時間による半減期 3.82 日のラドンの崩壊率 D を求め、これと上記の効率によって最終的に始状態でどれだけのラドンがあったかを求める。ラドン濃度を R[Bq/m^3]、液体シンチレータの体積を V[m^3] とすると、検出器におけるカウントレート N[cps[2]] は

$$N = RV\varepsilon_{extract}\varepsilon_{oil}\varepsilon_{trap}\varepsilon_{desorp}\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det}D = RV\varepsilon_{total}D \tag{4.3}$$

となる。

4.4 静電捕集型ラドン検出器

4.4.1 検出原理

今回開発を目指しているラドン検出器は静電捕集型である。静電捕集とはラドンの娘核であるポロニウム (Po) が正に帯電している事を利用してそれを静電場で PIN フォトダイオード表面に集め、α 崩壊時に照射される α 線を検出する方法である。

静電捕集法を特徴づける重要な性質は、検出効率の印加電圧依存性と露点依存性である。静電場を形成するための印加電圧が Po の捕集効率に影響を与えるということは容易に想像が出来る。もう一方の露点依存性について、^{222}Rn の娘核である ^{218}Po や ^{214}Po は 90%以上が陽イオン化していて ^{218}Po$^+$、^{214}Po$^+$ の状態で存在している[3]。

$$^{222}\mathrm{Rn} \ \rightarrow \ ^{218}\mathrm{Po}^{\mathrm{n}+} + \alpha + (\mathrm{n}+2)\mathrm{e}^- \ (\mathrm{n} \geq 1 \text{ for } 90\%,\ \mathrm{n} = 0 \text{ for } 10\%) \tag{4.4}$$

ポロニウムのイオン化エネルギーは 8.42eV と陽イオン化し易い状態になっている。また水分子のイオン化エネルギーも 12.56eV と高く、放射性分解及び電場内のガス中に単体で存在する電子との衝突により、次式に示す形で存在している。

$$\begin{aligned} \mathrm{H_2O} &\rightarrow \mathrm{H} + \mathrm{OH} \\ \mathrm{OH} + \mathrm{e}^- &\rightarrow \mathrm{OH}^- \end{aligned} \tag{4.5}$$

このためガス中に水蒸気が含まれていると、^{218}Po$^+$ や ^{214}Po$^+$ は電気的に中和されてしまい、静電場で捕集出来なくなるので検出効率が悪化してしまう。以上の理由により、検出効率を求める際には印加電圧依存性と露点依存性を調べる必要がある。

検出容器

図 4.4 は今回テスト装置用に使用したラドン検出器の外観である。濃縮 · 抽出によるラドン測定を目指しているため体積は小さくて済み 0.5ℓ となっている。このガラス製容器に配管を接続しガス中のラドンを測定する。ガラス製である必要は特になく、ノイズを抑えるために遮光が不可欠であるので、容器に光が入り込まない様ブラックシートなどで覆いをする必要がある。

---

[2] counts/sec

[3] 通常の空気中では酸素と即座に反応して ^{218}PoO$_2^+$、^{214}PoO$_2^+$ の状態で存在している。

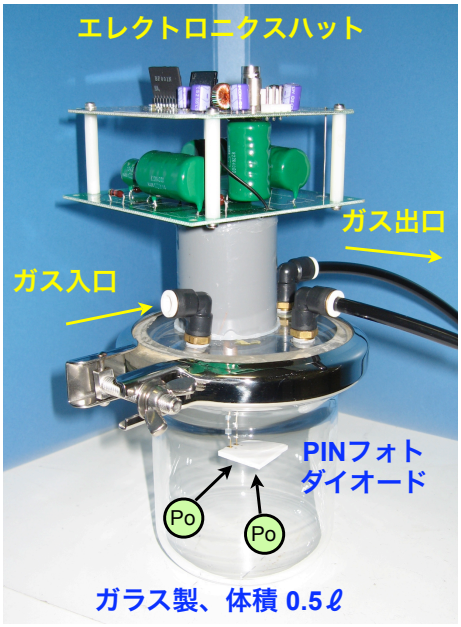

図 4.4: ラドン検出器

Si PIN フォトダイオード [26]

図 4.5 にラドンの娘核の α 崩壊を捕らえる検出部、浜松ホトニクス社製 Si PIN フォトダイオード (型式 S3204-06) を示す。以下にその特徴と、表 4.2 にその仕様を記す。

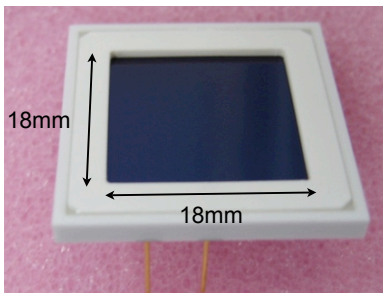

図 4.5: Si PIN フォトダイオード

- 優れた α 線エネルギー分解能
- 広範囲のエネルギーにおける、パルス波高と放射線エネルギーの応答特性の優れた比例性、高速応答
- 小型かつ高い検出効率
- 真空中で動作可能
- 磁場の影響を受けにくく、超寿命

受光面サイズ	18 × 18mm
消費電力	100mW
感度波長範囲	320 ∼ 1120nm
最大感度波長	980nm
暗電流	15nA(typical), 50nA(Max)
端子間容量	80pF
動作温度	−20 ∼ 60°C

表 4.2: Si PIN フォトダイオードの仕様

Si PIN フォトダイオードは p 層と n 層との間に i 層を設けて応答速度を高めており、逆電圧を印加して高速動作させる。このフォトダイオードに α 線が照射されると結晶中の電子が光励起され、エネルギーギャップ以上のエネルギーであると電子 · 正孔対が生成され電荷が極に偏る。それを電子回路で導いてやることで、エネルギーに応じたスペクトルが得られることになる。

このフォトダイオードは表面が化学的に反応しにくい様にパッシベーション処理を施している。パッシベーション処理とは表面周辺部を電気絶縁材料であるポリイミド樹脂でコーティングすることで、更に周辺電極部はセラミックカバーで覆われている。本来フォトダイオード表面にはガラス製カバーが取り付けてあるが、α 線が遮蔽されないように取り外してある。このままでは周辺電極部にガス中のイオン性の塵が付着し暗電流の増加によって短時間測定が不可能になってしまうが、パッシベーション処理により対塵性が向上しているため影響は無い。またポリイミド樹脂にはセラミックカバーがされ、水蒸気に弱いという弱点が克服されている。

プリアンプモジュールと高電圧分割回路 [26][27][28]

図 4.6: エレクトロニクスハット

Si PIN フォトダイオードと図 4.6 のエレクトロニクスハットはフィードスルーで接続されている。エレクトロニクスハットはフォトダイオードから得られた信号を増幅するプリアンプモジュールと、検出器に静電場を形成するための高電圧分割回路とから構成されている。

図 4.6 の写真上段の基盤に前置増幅器 · 高電圧電源入力 · 信号入出力の回路 (図 4.7)、下段に高電圧分割回路 (図 4.8) が備わっている。フォトダイオードに逆バイアス電圧 100V が与えられると、高電圧分割回路によって検出器内の静電場形成のための高電圧が p 相と検出器壁面との間にかけられる。高電圧電源から供給される電圧は抵抗分割され n 相に p 相より高い電圧がかかり、フォトダイオードの逆バイアス電圧と静電捕集用電圧が同時にかけられるようになっている。このため高電圧電源にノイズがある場合フォトダイオードに影響し、エネルギー分解能が悪くなってしまう。そのため入念なノイズ対策が必要となる。

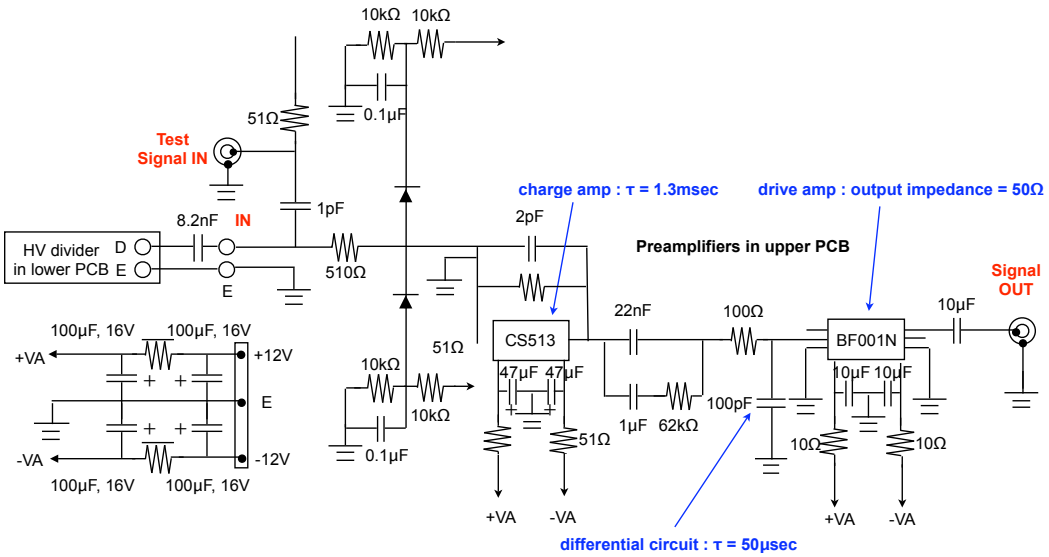

図 4.7: 前置増幅器回路 (上段)

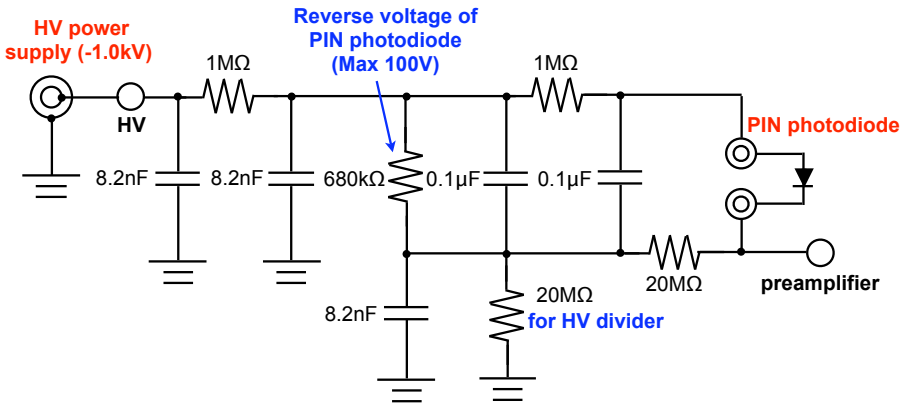

図 4.8: 高電圧分割回路 (下段)

データ収集システム

図 4.9 にデータ収集のフローを示す。PIN フォトダイオードからの信号は、NIM 規格のシェイピングアンプ (4429 型 8ch 波形整形増幅器) に送られる。ここでネガティブパルスは反転増幅かつ整形される。その後この信号は 2 つに分けられ、一方はそのまま CAMAC の ADC へ、もう一方は discremenator で整形後 gate generator でパルス幅を約 200μsec まで拡張され、CAMAC の Gate へ送られる。CAMAC に送られた信号は peak hold 型の ADC で AD 変換され、高エネルギー実験用データ収集システムによりデータ収集される。図 4.10 は CAMAC の ADC と Gate に送られる信号をオシロスコープで見たものある。

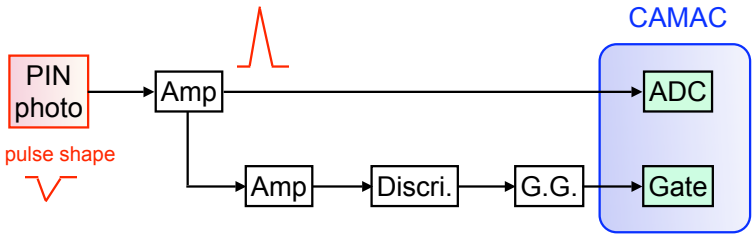

図 4.9: PIN フォトダイオードからの信号のデータ収集系

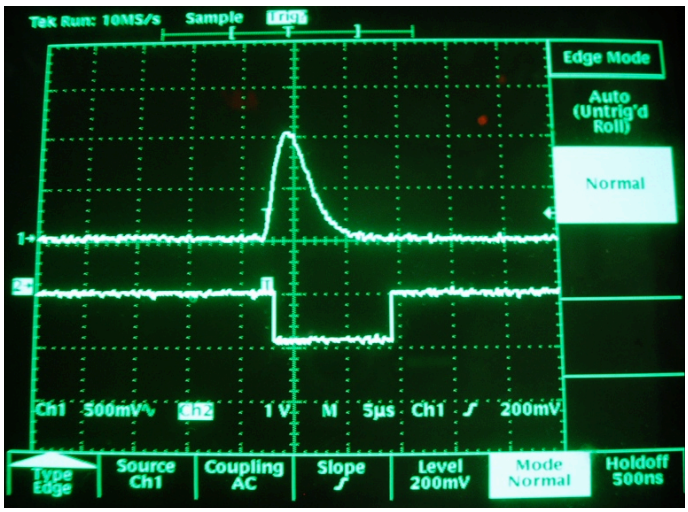

図 4.10: PIN フォトダイオードから CAMAC に送られる信号の様子。Ch1 が ADC へ、Ch2 が Gate へ送られる。

4.5　テスト装置の性能評価

テスト装置の性能評価すべき点は以下の通りである。

- エネルギースペクトル：PIN フォトダイオードの信号の線形性について。
- 検出効率：ラドン濃度の較正可否について。
- 高電圧·露点依存性：安定した信号位置と高い検出効率の得られる条件について。
- バックグラウンド：テスト装置の測定限界について。

以上の測定を行うために、図 4.11 の様な配管系を組んだ。この配管系は以下に示すものから成り立っている。

1. 窒素ボンベ
2. 流量コントローラ (0.1 ∼ 20 l/min)
3. ラドンソース (人形峠で採取された 12.5g の鉱石。粉末状でガラス容器内のシャーレに収められており、飛散しない様ガーゼで包んである。)
4. ラドン検出器 (体積 0.5ℓ)
5. 露点計 (MICHELL Instruments 社製)
6. ラドン濃度較正用装置 Model1027 (Sun Nuclear 社製)
7. 配管系 (外径 $\frac{1}{4}$ インチのシンフレックスチューブとステンレス管、swagelok)

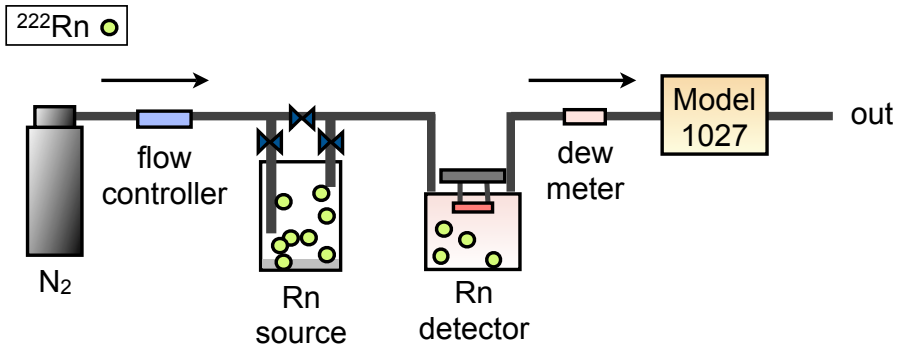

図 4.11: ラドン濃度測定系 (one path)

空気中にもラドンは存在しているが同時に水分を多く含んでいるので、安定した検出効率を得るために窒素をラドンソースの入った容器に流し込みながら検出器にラドンを送り込むようにしている。ラドン濃度は流量コントローラで流す窒素の量を変えることで調整可能となっている。

4.5.1 エネルギースペクトル

典型的なエネルギースペクトルを図 4.12 に示す。低チャンネル側に立っている緩やかな山はノイズで、それから右に向かって ^{218}Po (6002keV)、^{214}Po (7687keV)、^{212}Po (8784keV) とピークが見える[4]。^{218}Po と ^{214}Po はウラン系列に属する ^{222}Rn の娘核であるが、^{212}Po はトリウム系列の ^{220}Rn の娘核である。使用しているラドンソースからトリウム系列の ^{220}Rn も染み出ている事が分かるが、レートが低いためトリウム系列の他の核種のピークは確認出来ていない。

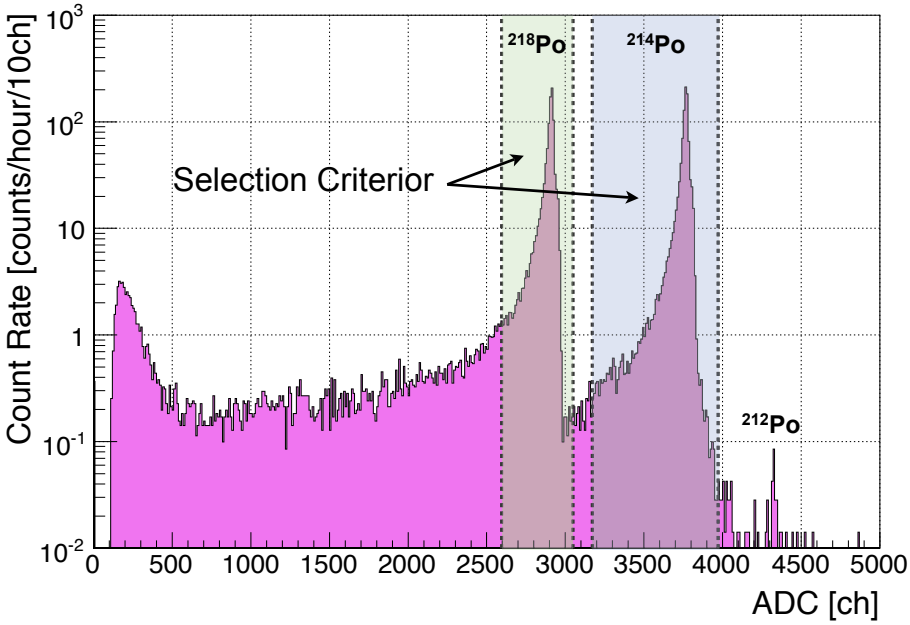

図 4.12: 典型的なエネルギースペクトル。緑色の領域が ^{218}Po、青の領域が ^{214}Po の信号選択範囲。

図 4.12 中の緑と青の領域はそれぞれ ^{218}Po と ^{214}Po の選択範囲である。^{218}Po の方が領域が狭いのは、長時間経過した際に影響が見られる ^{210}Po の 5304keV の α 線が入ってこない様考慮したためである (付録 E 参照)。またそれぞれのピークが低エネルギー側にテールを引いているのは、α 線が検出部の端方向に放出される場合に、検出部以外でエネルギー損失を起こすためである。

図中の 3 点のピーク位置を用いてエネルギー較正を行った。結果を図 4.13 に示す。エネルギーと ADC チャンネルには非常に良い線形性があることが分かる。

4.5.2 検出効率

崩壊系列において ^{222}Rn の崩壊と ^{218}Po、^{214}Po の崩壊は一対一対応する[5]。よって ^{218}Po もしくは ^{214}Po の計測数を ^{222}Rn の計測数と見なして検出効率を求めることが

[4] ここで、α 線のエネルギーは Q_α では無く、粒子が持つ運動エネルギーである。付録 A のウラン系列の Q_α と比較されたい。

[5] 厳密には ^{214}Po の崩壊は ^{222}Rn に対して 99.98%。図 4.2 参照。

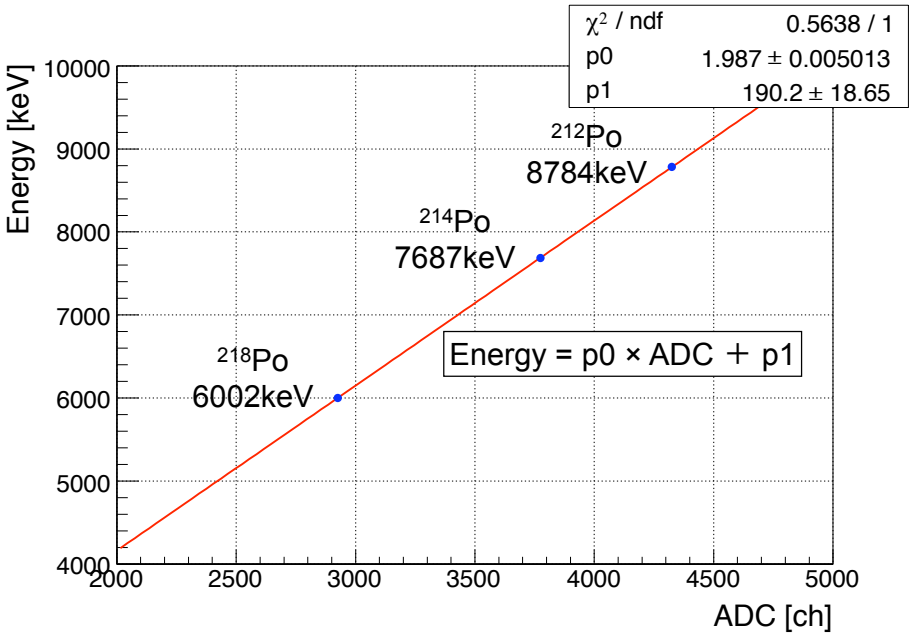

図 4.13: テスト装置のエネルギー較正。ADC チャンネルのエラーはビン幅内ということで ±5ch としてある。

出来る。ここで ^{218}Po と ^{214}Po のカウントレートは必ずしも等しくならないということに注意が必要である。^{218}Po は PIN フォトダイオードの表面に捕集され、崩壊した後娘核の ^{214}Po になるが静電捕集で捕まっていない ^{218}Po も存在し、^{214}Pb もしくは ^{214}Bi の形で留まっている。それが崩壊して静電場の形成されている領域で ^{214}Po が生成されると、PIN フォトダイード表面に捕集されて計測されることになる。つまり ^{218}Po の状態で捕集されていない ^{214}Po も若干ながら計測されるという事である。また ^{218}Po の方が ^{214}Po に比べて露点の影響を受け易い事が実験的に判明し、それらの増加分が加わって ^{214}Po は ^{218}Po に対して最大 10% 程度多く計測されている。

検出効率は、Rn detector のカウントレートと較正用の装置 Model1027 で得られたラドン濃度を比較することで導出出来る。

4.5.3　較正用ラドンモニター Model1027

検出効率の測定に要した較正済みラドン (^{222}Rn) モニターは Sun Nuclear Corporation 社の Model1027 である。Model1027 の外観を図 4.14 に示す。

Model1027 も PIN フォトダイオードで α 線を検出する装置で、閾値以上の α の数を計測してラドン濃度を決定する。表 4.3 に Model1027 の仕様を記す。検出可能な α 線の閾値は仕様書の表記より 3416 ± 18keV と見積もられている。

Model1027 は環境ラドン濃度を測定するために作られた装置であり、屋内等の測定したい箇所に長時間設置しラドン濃度を決定する。測定範囲は一般的な室内レベルである数十 Bq/m^3 以上であり、我々が求めようとしている 1mBq/m^3 レベルには感度が無い。

図 4.14: Model1027

測定範囲	37 ∼ 37000 Bq/m^3
動作温度	7 ∼ 35°C
精度	±25% or 37Bq/m^3 24 時間の測定で大きい方
湿度による精度	±10% @ 相対湿度 10 ∼ 95%
感度	2.5 counts/hour/(37Bq/m^3)
バックグラウンド	< 3.7 Bq/m^3

表 4.3: Model1027 の仕様

検出効率 ε_{det} の求め方

Mode1027 で得られるラドン濃度は、PIN フォトダイオードで検出される閾値以上の α 線のカウントレート、すなわち ^{218}Po と ^{214}Po を足し合わせたカウントレートで決定される[6]。このため、同様にラドン検出器の ^{218}Po と ^{214}Po を足し合わせたカウントレートを放射平衡を待つ事無く較正する事が出来る。また放射平衡に達した後は (ラドン濃度変化後約 200 分。付録 E 参照。)、ラドン検出器の ^{218}Po、^{214}Po いずれか単独のカウントレートと Mode1027 で得られたラドン濃度で較正する事も出来る。

テスト装置では ^{218}Po と ^{214}Po を足し合わせたカウントレートより検出効率を求める。この場合は放射平衡を待つ必要が無いので多くの較正点が得られる。得られた結果を図 4.15 に示す。この検出効率は露点が -50 ℃以下、高電圧値 -1.0V という条件の元で得られ、Model1027 のエラーを 25%としてある。

検出効率 ε_{det} は以下の様に求められる。ラドン検出器のカウントレートを N[cpm[7]]、ラドン濃度を R[Bq/m^3] とすると較正定数 $C.F.$(Calibration Factor) は、

$$C.F.[\mathrm{cpm}/(\mathrm{Bq/m^3})] = \frac{N[\mathrm{cpm}]}{C[\mathrm{Bq/m^3}]} \tag{4.6}$$

と表される。よって検出効率は、

$$\varepsilon_{det} = \frac{C.F.[\mathrm{cpm}/(\mathrm{Bq/m^3})] \ / \ 60[\mathrm{sec/min}] \ \times R[\mathrm{Bq/m^3}]}{R[\mathrm{Bq/m^3}] \times V[\mathrm{m^3}] \times 2} \tag{4.7}$$

[6]長期間経った場合、^{210}Po の影響も見られる。
[7]counts/minute

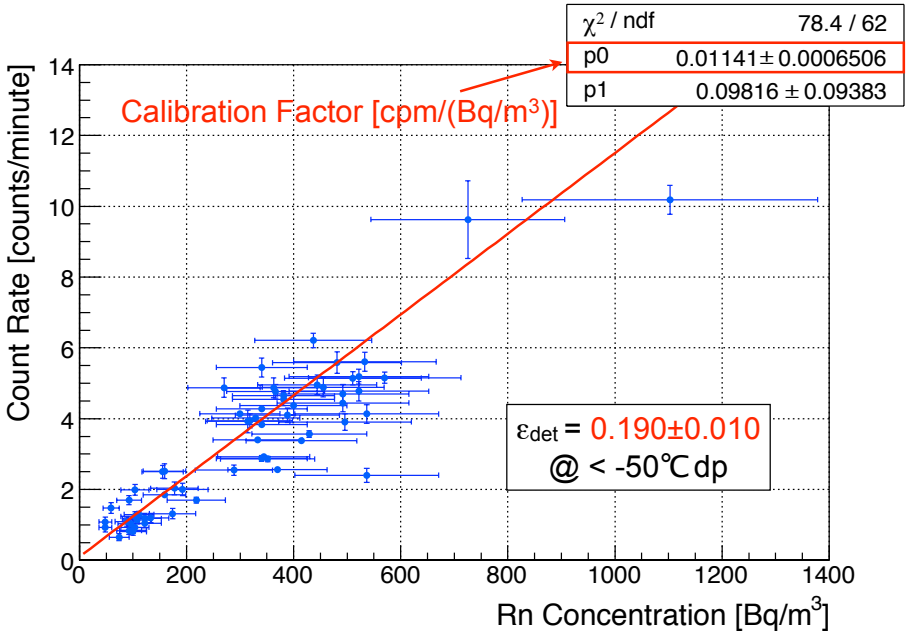

図 4.15: ラドン検出器の検出効率

となる。分母の 2 は、^{222}Rn の崩壊に対して ^{218}Po と ^{214}Po の 2 核種が崩壊することを考慮したものである。検出器の体積は 0.5ℓ なので、検出効率 $\varepsilon_{det} = 0.190 \pm 0.010$ と求められた。

4.5.4　高電圧依存性

α 線のカウントレートとピーク位置の高電圧依存性を見るための実験を行った。測定条件を以下に示す。

- 系は図 4.11 と同様。
- 流速は 0.8 l/min に設定し、ラドン濃度を一定に保つ様にしてある。
- 高電圧電源は初め -1.0kV からスタートし、 -3.0kV まで 0.5kV 刻みで変化させ、その後結果を見て -0.5kV のデータを取った。
- 電圧を変えた後、放射平衡のために 200 分待つ。

ピーク位置の高電圧依存性の結果を図 4.16 に示す。ピーク位置の変動は -0.5kV から -3.0kV の間で約 5%と、PIN フォトダイオードの安定した動作性が確認された。

次にカウントレートの高電圧依存性の様子を図 4.17 に示す。露点は測定中徐々に下がって行くため安定した状態を得るのが難しく、一連の測定は露点が -52∼ -58°C の間で行っている。測定結果は予想と反し、高電圧になる程カウントレートが低くなる傾向がある様に見える。つまり静電場を形成する電圧が高い程捕集効率が低くなっているということである。 -1.0kV から -3.0kV までデータを取っている間にラドン濃度

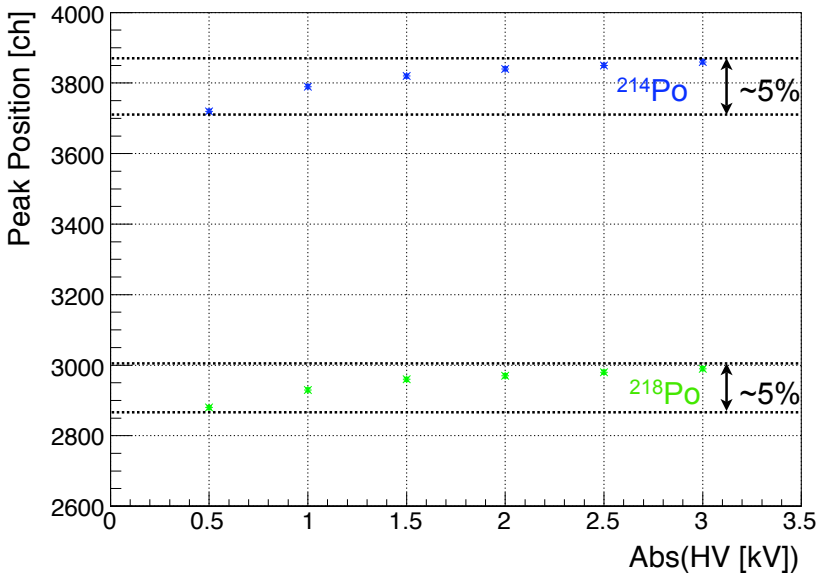

図 4.16: ピーク位置の高電圧依存性

が低くなっていることを懸念し、その後再び低い電圧に戻ってカウントレートを調べたが、値はエラーの範囲で一致していた。

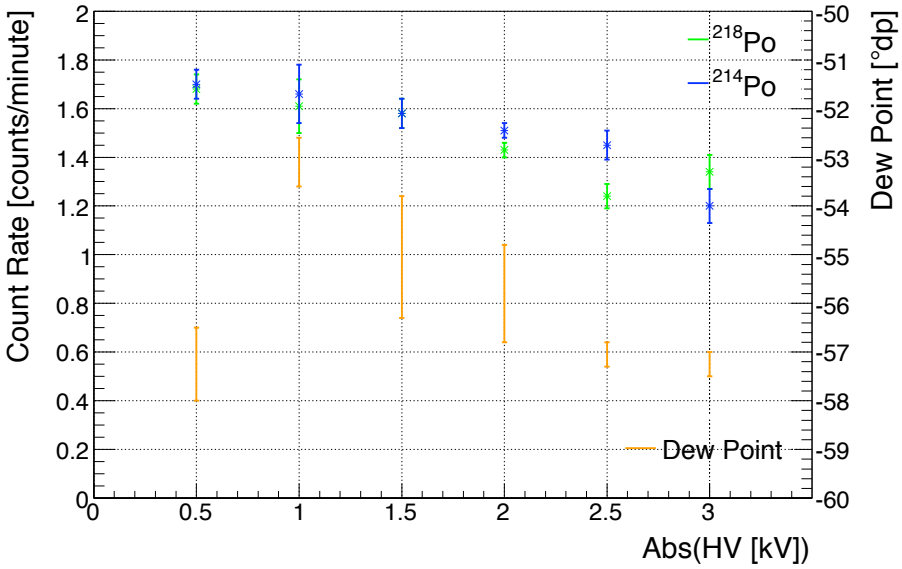

図 4.17: カウントレートの高電圧依存性。測定中の露点範囲を同時にプロットしてある。カウントレートは測定中の平均値で、統計エラーをつけてある。

今回の実験では、ピーク位置が移動した分だけ信号の選択範囲も移動している。実際には高電圧の変化によって信号の選択範囲の占める割合が変化する可能性もあるので、ピークの高さに対して $\frac{1}{100}$ になる高さまでを選択範囲にするなど、ピーク位置の変化に対して同じ条件を設定する必要がある。この測定を行うためには十分な統計が

必要となるので、-数 kV の高電圧依存性を厳密に調べるためには更に高い濃度のラドンを流すか測定時間を増やす必要がある。

テスト装置では安定した検出効率とピーク位置が得られた -1.0kV を高電圧値として採用することとする。

4.5.5　露点依存性

検出効率の露点依存性を見るため、図 4.18 に示す循環系で測定を行った。露点と水分量の関係は付録 F に示す。図 4.11 の様に窒素を流し続ける系に対して、循環系では露点の高いデータが得られている。露点が高いのは、Model1027 を入れる適した密閉容器を持っていなかったため漏れが抑えられず、循環中に空気中の水分が入り込んで来るためである。Model1027 とラドン検出器の検出原理は同じであるため、^{218}Po と ^{214}Po を足し合わせたカウントレートと Model1027 で一時間以上経って得たラドン濃度を放射平衡を待たずに比較し、検出効率を求めた。結果を図 4.19 に示す。

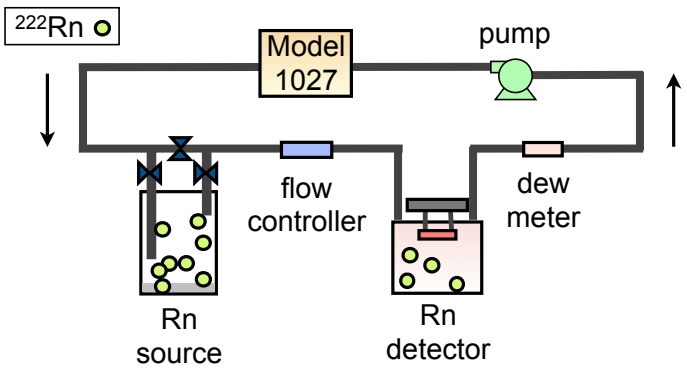

図 4.18: ラドン濃度測定系 (circulation)

今回の測定では検出効率の露点依存性は見られなかった。これは検出器の体積が 0.5ℓ と小さいために Po が PIN フォトダイオードに捕集されるまでに移動する距離が短くなり、中和される確率が低くなったためと考えられる。

テスト装置では露点依存性は見られなかったものの、今後の測定では実験前に十分なパージをして露点を下げ、また濃縮したラドンを送り込む場合にはトラップと検出器の間に水分を吸収するモレキュラーシーブ (Molecular Sieves)3A [8]を設置し、出来る限り検出器に水分が送り込まれないよう配慮することとした。

4.5.6　バックグラウンド

テスト装置の測定限界と漏れの影響を調べるため、以下 2 点のバックグラウンドを調べた。

1. ラドン検出器の閉じ込め系 (十分に窒素パージ後)

[8]3A とは空孔の大きさが 3Å であることを表している。水の分子半径は約 3Å であるため容易に吸着される。

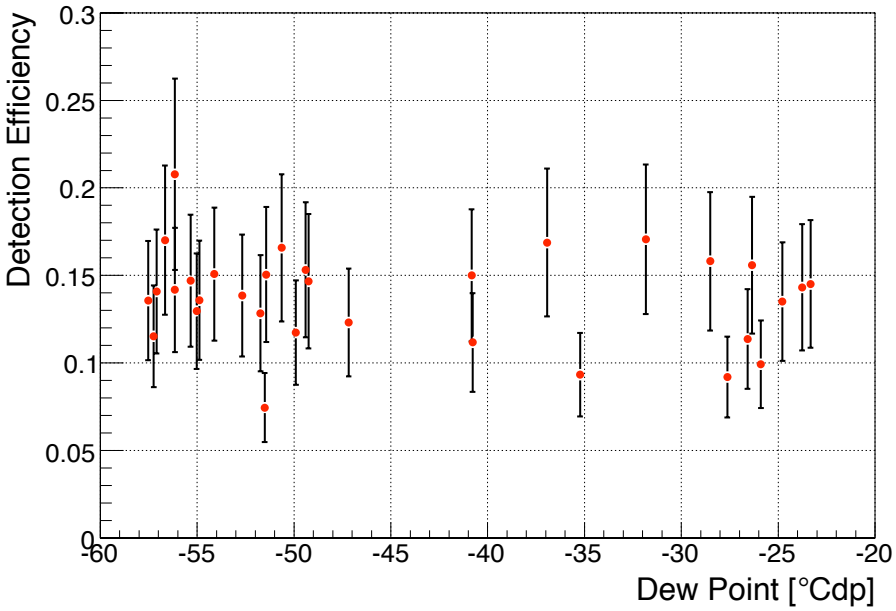

図 4.19: 検出効率の露点依存性

2. ラドン検出器を 1.0l/min で窒素パージ

検出器を窒素パージする事で、漏れの影響を無視した環境における測定を行う事が出来る。バックグラウンドの測定結果を図 4.20 に示す。

2 つのバックグラウンドスペクトルを見比べると、窒素パージの方が閉じ込め系に比べて中心部分のノイズが多い。これはバックグラウンド測定の前に行っていた実験の影響によるものと思われ、ラドンソースを通してガスを流していた際に系内にトリウム系列やアクチニウム系列の核種が残り、それが窒素パージにより検出器に運ばれて来たものと考えられる。これらの系列の核種については第 5 章の 5.1.1 節でより詳しく説明する。

よってこのバックグラウンド測定ではノイズ成分が入らない様に信号の選択範囲を狭めてカウントレートを得ている。図 4.20 の左上のエネルギースペクトルより、この選択範囲でほとんどの信号が得られていることが分かる。

閉じ込め系と窒素パージを比べると、閉じ込め系の方が遥かにカウントレートが高い。よってテスト検出器は漏れの影響が非常に大きい事が分かる。また窒素パージのバックグラウンドを見ると、^{214}Po に比べて ^{218}Po のカウントレートが高くなっており、低エネルギー領域の方がノイズが入り込みやすいことが分かる。

窒素パージによって検出器の漏れとガラス表面からのラドンの染み出しの影響を無視することが出来るので、漏れと染み出しが無い場合にバックグラウンドは 0.5cpd[9]程度にまで抑えられる事が予想される。測定時間を T[sec]、大気圧を P[Pa]、室内のラドン濃度を R[Bq/m^3]、カウントレートを C[cps] とすると、閉じ込め系における漏れ

[9]counts/day

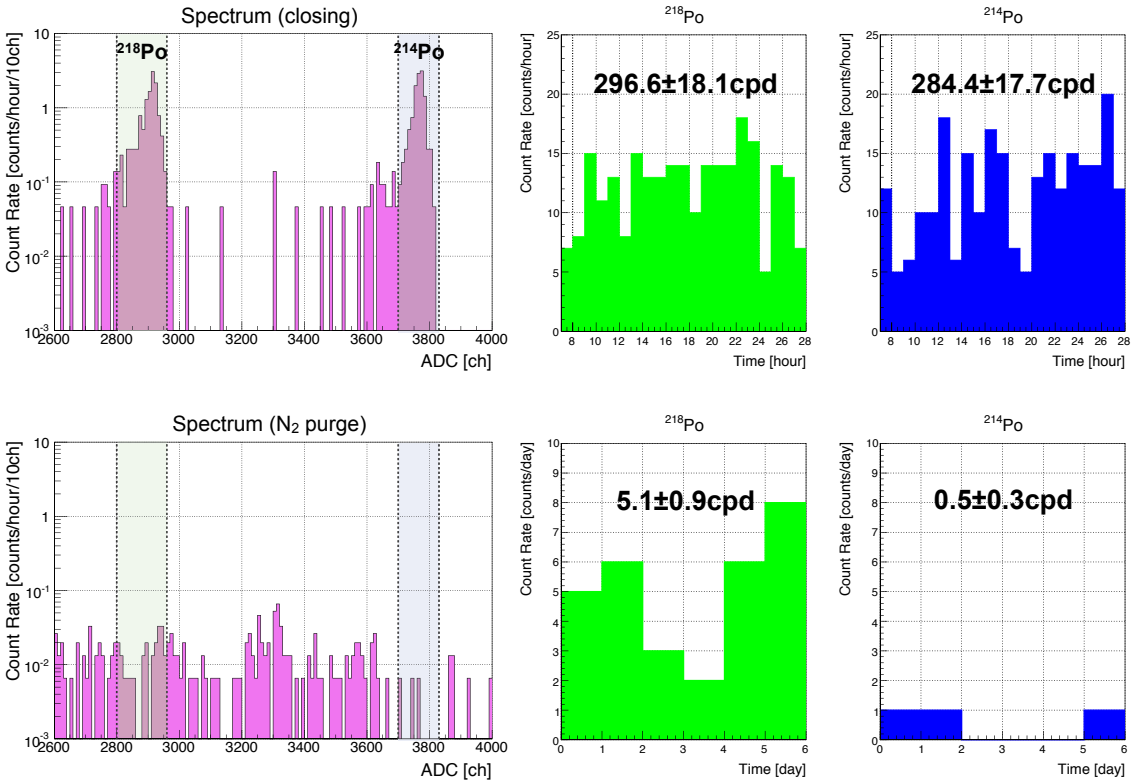

図 4.20: 閉じ込め系 (上)、窒素パージ中 (下) のバックグラウンド。それぞれ左から信号スペクトル、^{218}Po、^{214}Po のカウントレートとなっている。

率 $L[\mathrm{Pa\cdot m^3/sec}]$ は、

$$L[\mathrm{Pa\cdot m^3/sec}] \times \frac{R[\mathrm{Bq/m^3}]\ T[\mathrm{sec}]}{P[\mathrm{Pa}]}\ \varepsilon_{det} = C[\mathrm{cps}] \tag{4.8}$$

と求められる。室内の平均ラドン濃度 R は Model1027 により $64.6\pm3.3\mathrm{Bq/m^3}$ と求められおり、測定時間 $T = 102060$ sec、大気圧 $P = 10^5$ Pa、検出効率 $\varepsilon_{det} = 0.190\pm0.010$、及び図中の ^{214}Po のカウントレート $N = (284.4 \pm 17.7)/86400$ cps を代入し、漏れ率 $L = (3.4 \pm 0.3) \times 10^{-4}[\mathrm{Pa\cdot m^3/sec}]$ と求められた。本番用の検出器では、仮にバックグラウンド量を 1cpd 許すとした場合、漏れ率は $10^{-6}[\mathrm{Pa\cdot m^3/sec}]$ 以下にしなければならない。

4.6　濃縮実験

濃縮法は、液体窒素温度まで冷えたラドントラップにガスを流し込んでラドンを吸着させ、その後トラップ容器を暖めラドンを脱着し、検出器に送り込むというステップを踏むことで完了する。ラドンの崩壊数と吸着量が平衡状態に達するまでは、時間が長い程ラドンを濃縮する事が可能となる。ラドンの崩壊率を λ、吸着効率を ε_{trap} と

すると、トラップ容器内に濃縮されるラドン濃度 R の時間変化率は

$$\frac{dR}{dt} = \kappa t - \lambda R \tag{4.9}$$

と表される。これを積分すると、図 4.21 に示す様にトラップ内のラドン濃度の時間変化式が求められる。

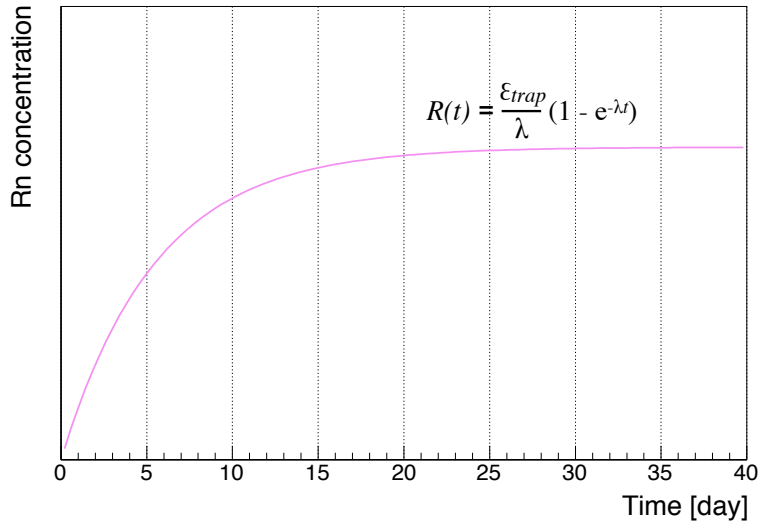

図 4.21: 濃縮によるラドン濃度の時間変化。横軸はラドンの濃縮時間、縦軸はトラップ容器内のラドン濃度である。

本節ではラドンの濃縮実験について述べ、4.3 節で述べた吸着効率 ε_{trap}、脱着効率 ε_{desorp}、送り込み効率 ε_{trans} をそれぞれ評価する。

濃縮実験に使用したラドントラップ容器の写真を図 4.22 に示す。この容器はステンレス製で体積が 226cm^3 あり、フランジにステンレス管が溶接して取り付けてある。またフランジ中央から熱電対を差し込み、トラップ底の温度を測定出来る様になっている。

容器内に入れるラドンの吸着材の候補として、活性炭と銅ウールを考えた。活性炭は常温もしくは低温でラドンを吸着する性質がある (付録 D 参照)。しかし本研究で要求する感度を達成するためにはバックグラウンドを出来る限り低減する必要があり、活性炭ではラドンの染み出しが懸念されるため、金属で熱伝導性の良い銅ウールを吸着剤として選んだ。この銅ウールを液体窒素温度まで冷やし、そこにラドンの混じった窒素ガスを流してラドンのトラップを試みる。

4.6.1 吸着実験

ラドントラップにおける吸着効率の測定は、図 4.23 に示す以下の測定手順で行った。

1. 室温下でラドンソースに窒素ガスを流しながら、染み出て来るラドンのカウントレートを測定

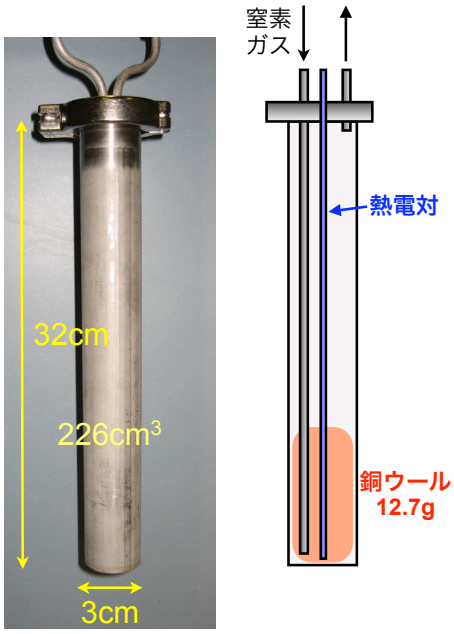

図 4.22: ラドントラップ容器

2. 液体窒素下にラドントラップを沈めラドンを吸着出来る状態にしてカウントレートを測定

この 1 と 2 の状態におけるカウントレートの変化を調べて ε_{trap} を評価した。

エネルギースペクトルの変化を図 4.24 に示す。吸着前と吸着中でカウントレートが大きく減少しているのが分かる。また図 4.25 に ^{218}Po と ^{214}Po のカウントレート、露点、トラップ底部の温度の時間変化の様子を示す。温度変化より、測定開始後 590 分からトラップ容器を液体窒素に沈めた様子が分かる。露点は -56.7°C 以下の低い状態で実験が行われており、吸着中は水分もトラップされるので若干減少している。^{218}Po、^{214}Po は半減期に従ってそれぞれ 30 分、200 分後に放射平衡に達したものと見なしカウントレートを求めた。

^{218}Po、^{214}Po のカウントレートの変化より求められた ε_{trap} は、それぞれ 0.779 ± 0.015、0.769 ± 0.017 となり、その最適推量値は 0.775 ± 0.011 となった。

4.6.2　脱着実験

ラドントラップにおける脱着効率を図 4.26 に示す循環系を使用して、図中の 2 → 1 → 2 の手順で測定を行った。

1. ラドントラップを液体窒素下に沈め、循環系内のラドントラップを吸着中。

2. ラドントラップは室温下で、循環系内のラドンは一様に分布。

図 4.27 に ^{218}Po のカウントレートと温度の時間変化の様子を示す。測定開始後 60 分から 140 分までトラップを液体窒素に沈めている。吸着中のカウントレートが 4.6.1

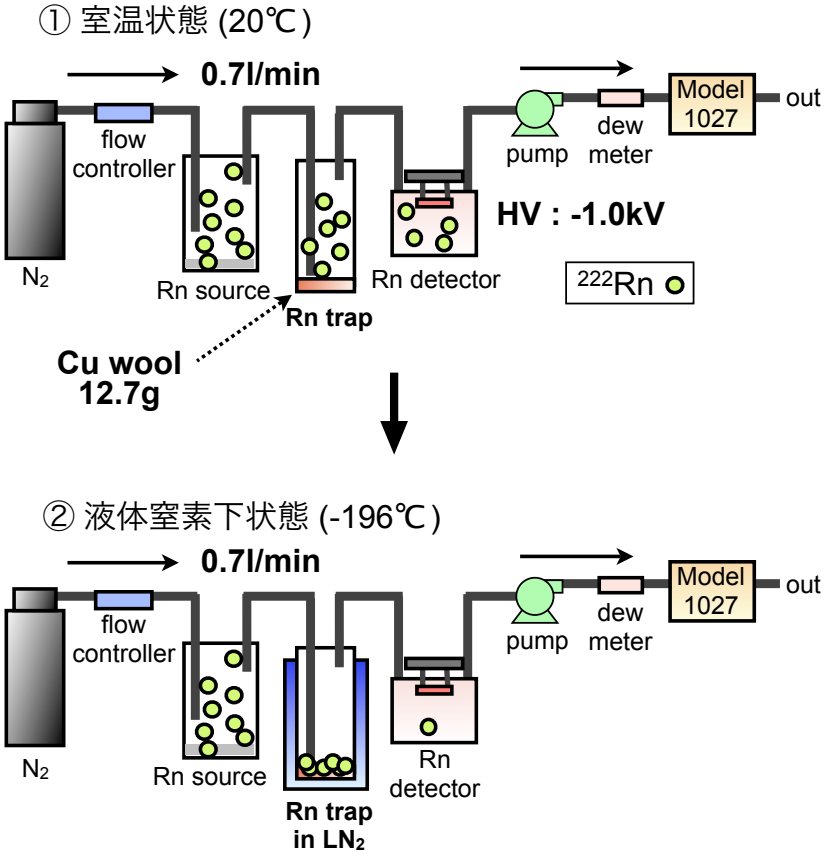

図 4.23: 吸着実験の測定装置フロー

節で説明した吸着効率 0.775 ± 0.011 以上に減少しているのは、循環系で測定が行われているためにラドントラップ中をガスが複数回通過するからである。

脱着効率は測定時間の短縮のため ^{218}Po を用いて求めている。4.5.6 節のバックグラウンド測定の結果より、^{214}Po の方がバックグラウンドが少なくラドン濃度測定の際はこちらを採用すると述べたが、今回の様な 100cpm 程度の高いカウントレートではバックグラウンドの影響はなく、レートの変化から効率を評価する際は ^{218}Po を用いても問題ない。ラドンの崩壊率を考慮に入れると、ε_{desorp} は 0.997 ± 0.017 となった。

4.6.3 送り込み実験

トラップから検出器への送り込み効率 ε_{trans} を評価するための測定装置フローを図 4.28 に、手順を以下に示す。

1. 室温下、循環系でラドンを計測。この時系全体の体積約 820cm^3 に対して検出器の体積は 500cm^3。

2. 液体窒素下にラドントラップを沈め、系内のラドンをトラップに吸着して一カ所に集める。

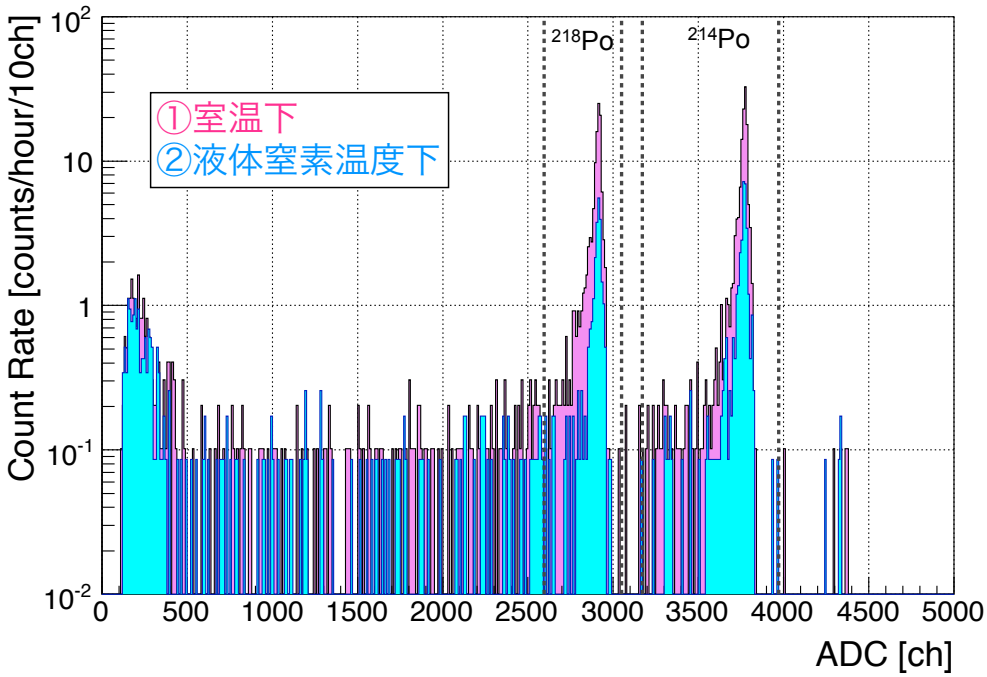

図 4.24: 吸着前後のエネルギースペクトル。ピンクが吸着前で、スカイブルーが吸着中。

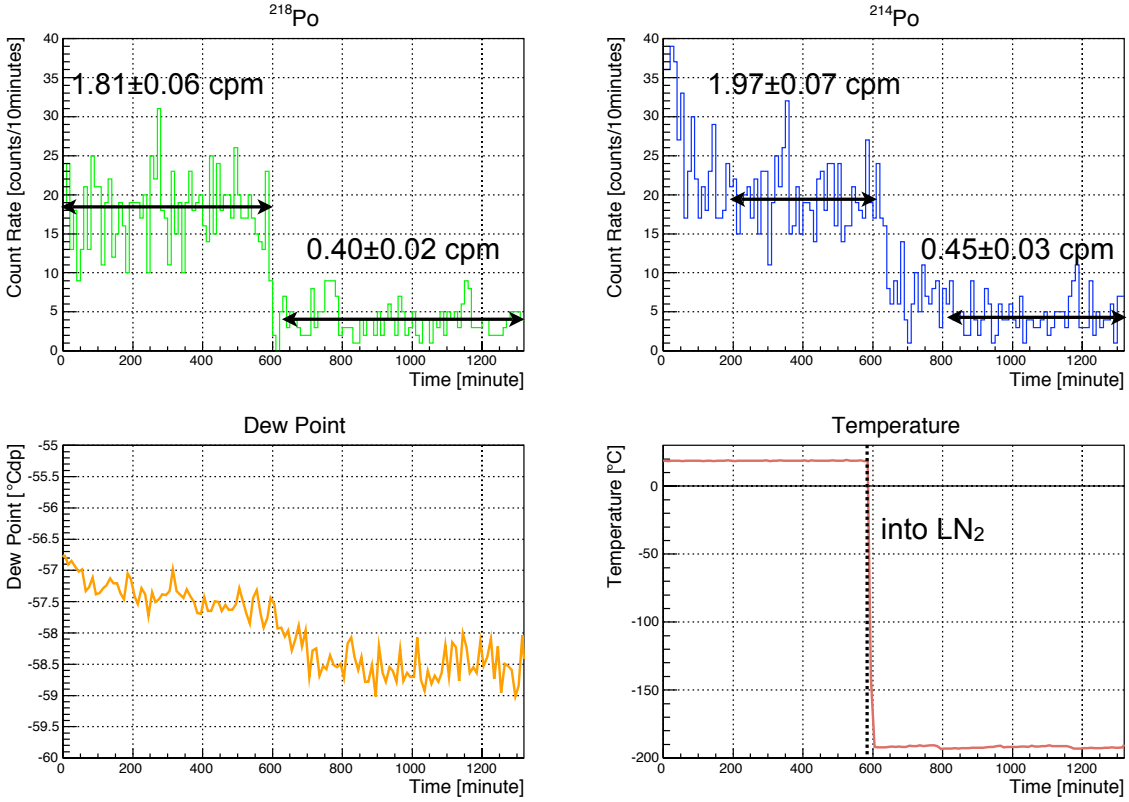

図 4.25: 吸着実験中の ^{218}Po、^{214}Po のカウントレートと、露点、トラップ容器底の温度の時間変化。

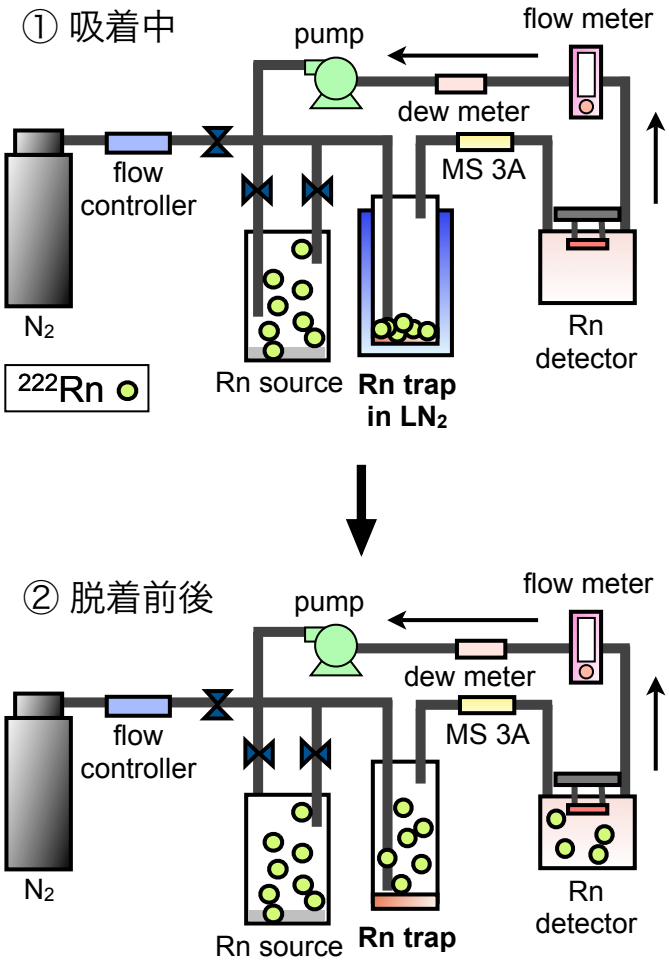

図 4.26: 脱着実験の測定装置フロー。系内の水分量を減らすためにモレキュラーシーブ (MS3A) を入れてある。

3. 効率良く検出器へラドンを送るため、トラップと検出器内をポンプで排気する (ゲージ圧で約 -0.052MPa)。

4. トラップが 10°C 程度になったら、トラップと検出器間のバルブを開き、窒素ガスを流し込みながらラドンを検出器へ送り込む。

結果を図 4.29 に示す。ラドンが効率よく吸着され、その後送り込みが上手く行われているのが見て取れる。送り込み前後のカウントレートをそれぞれ C_{before}、C_{after} とすると、ε_{trans} は以下の様にして求められる。

$$C_{before}[\mathrm{cpm}]\ \frac{V_{total}}{V_{detector}}\ D\varepsilon_{trans} = C_{after}[\mathrm{cpm}] \tag{4.10}$$

配管、トラップを含む全体の体積を $820 \pm 20\mathrm{cm}^3$ として計算すると、ε_{trans} は 0.880 ± 0.024 と求められた。

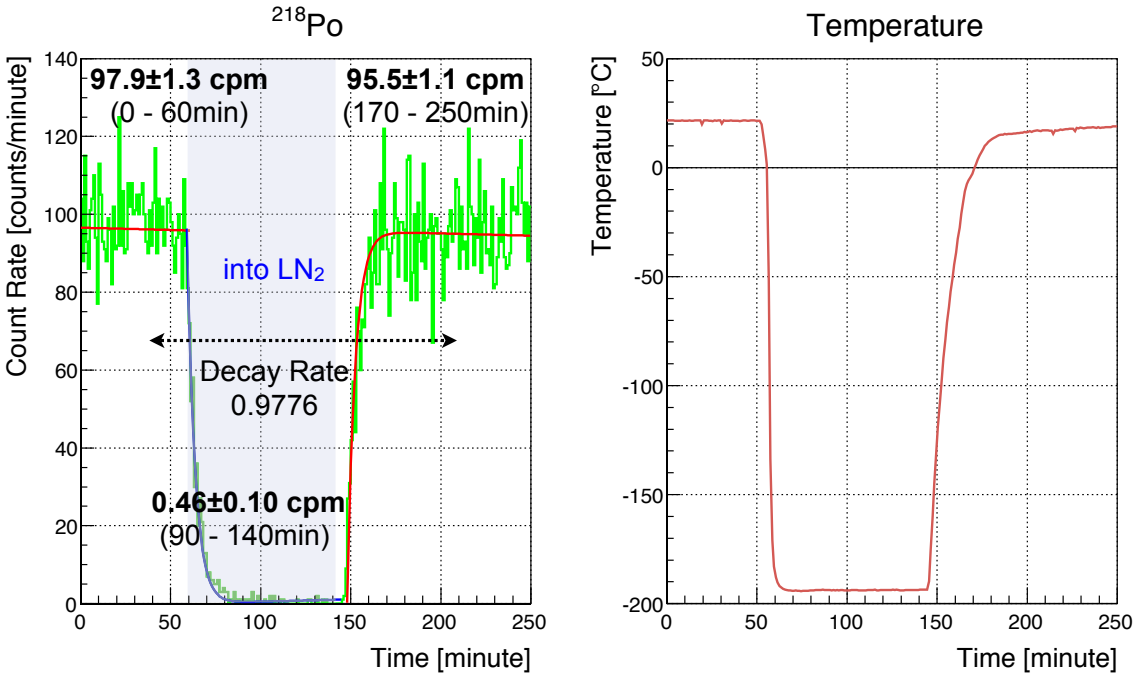

図 4.27: 脱着実験中の ^{218}Po のカウントレートと温度の時間変化。^{218}Po は放射平衡を表す式 (付録 E 参照) と共にプロットしてある。

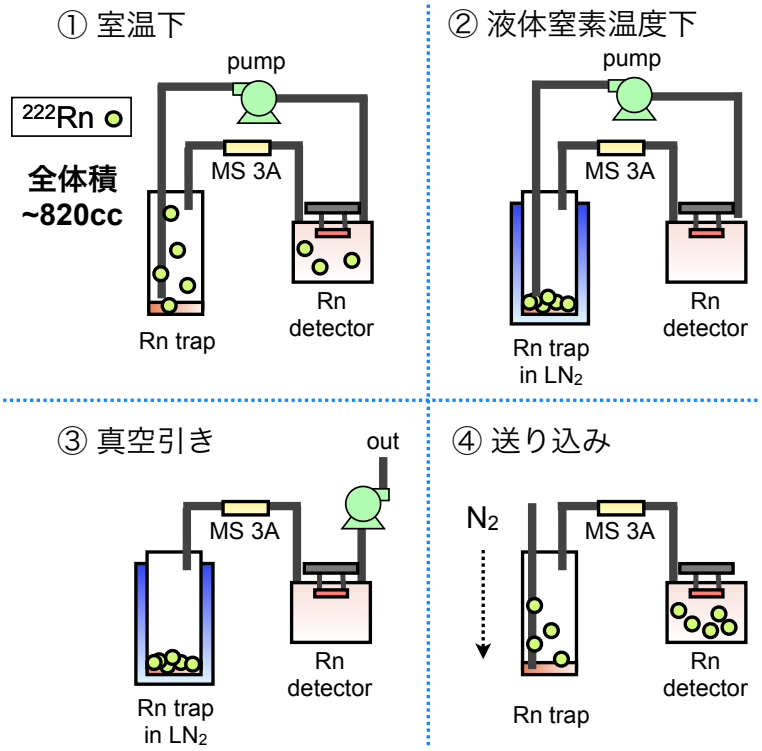

図 4.28: 送り込み実験の測定装置フロー

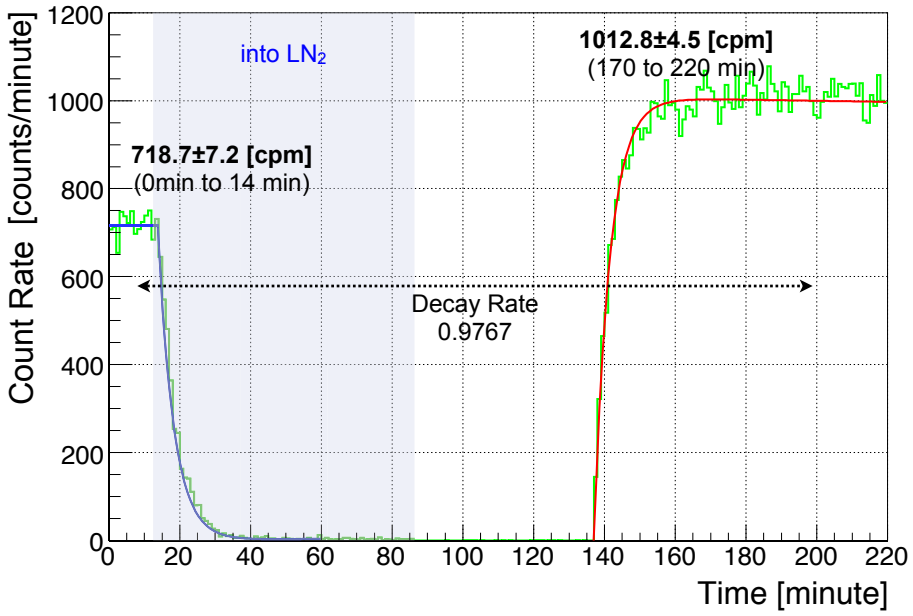

図 4.29: 送り込み実験における ^{218}Po のカウントレートの時間変化。測定開始後 14 分からトラップを液体窒素に沈め、ラドンが減ったのを確認後、86 分より 137 分までデータ収集を中断し、送り込み操作後データ収集を再開している。

4.7　オイルトラップ実験

検出部である PIN フォトダイオードには防油加工がなされておらず、またオイル成分によって検出効率が低下する可能性がある。そのため窒素バブリング後の出口側のガス中に含まれる液体シンチレータの成分をオイルトラップにより除去する。

オイルトラップ効率の見積もり

オイル成分を除去するため、冷却したエタノールに銅管を沈めたコールドトラップを使用する事にした。この際あまり銅管を冷やし過ぎると融点が -71°C であるラドンがトラップされてしまう可能性があるため、冷却温度はそれ以上でなければならない。また液体シンチレータの成分であるドデカン、プソイドクメンの融点がそれぞれ -10°C、-44°C であるため、液が凍ってガスが流れなくなってしまう可能性もある。

どの位の冷却温度で、どの程度のオイルがトラップされるか予想する。参考に、図 4.30 にアントワン (antoine) 式という実験式により得られた蒸気圧の温度変化 [29] を示す。

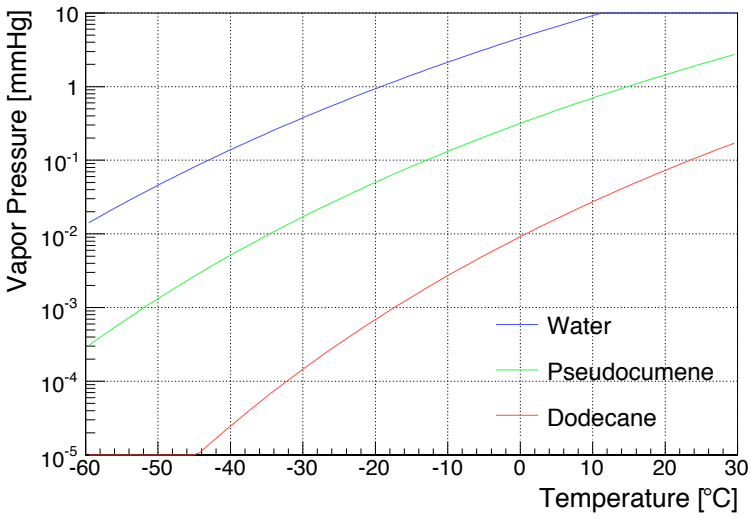

図 4.30: 水、プソイドクメン、ドデカンの蒸気圧曲線。低温度領域は外挿している。

$$\log_{10}(\mathrm{P[mmHg]}) = \mathrm{A} - \frac{\mathrm{B}}{\mathrm{C} + \mathrm{T[^\circ C]}} \tag{4.11}$$

A、B、C はアントワン定数と呼ばれ、物質毎に数値が異なる。それぞれの係数を表 4.4 に表す。アントワン式は 1 ∼ 1500mmHg の範囲でよく使われており、本研究で注目する範囲はこれよりもずっと低いが、参考までにトラップ効率を予想する。仮に 20°C のドデカン、プソイドクメンを -40°C まで冷却した場合、蒸気圧の比 $\mathrm{P}_{-40^\circ\mathrm{C}}/\mathrm{P}_{20^\circ\mathrm{C}}$ はそれぞれ 3.4×10^{-4}、3.5×10^{-3} となる。よって -40°C まで冷却すれば液体シンチレータの成分は $\frac{1}{1000}$ に除去出来ると見積もった。

物質	A	B	C
ドデカン	6.98059	1625.928	180.311
プソイドクメン	7.0438	1573.27	208.56
水	8.184254	1791.3	238.1

表 4.4: ドデカン、プソイドクメン、水のアントワン係数 [25]

測定方法

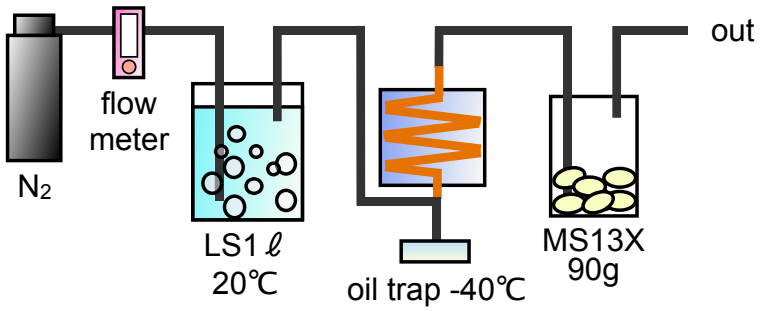

図 4.31: オイル除去効率測定の装置フロー

オイルトラップによる液体シンチレータ (LS) のトラップ効率を求めるための測定装置フローを図 4.31 に示す。窒素ガスで液体シンチレータをバブリングし、その後オイルトラップでガスは冷えたエタノール中の銅管を下から上へ向かって流れて行く。その過程で液化した液体シンチレータ成分は下へ落ちてドレンに溜まる。

オイルトラップの後ろにはモレキュラーシーブ (MS)13X[10]を取り付けてある。MS13X は液体シンチレータの成分を吸着することが可能で、オイルトラップの出口側のガス中にどの程度の液体シンチレータが含まれているか確認する事が出来る。但しラドンの染み出しの影響を考慮してオイルトラップには使用しない事とした。実際に MS13X の染み出し率の測定を行っており、第 5 章でその結果について述べる。オイルトラップ効率は以下の重さを量ることで求める。

- バブリング前の液体シンチレータと MS13X の重さ W_{LS1}、W_{MS1}
- バブリング後の液体シンチレータと MS13X の重さ W_{LS2}、W_{MS2}

MS13X がどれだけの効率 (ε_{MS}) で液体シンチレータを吸着出来るか分かっていれば、オイルトラップ効率 ε_{oil} は

$$\varepsilon_{oil} = 1 - \frac{(W_{MS2} - W_{MS1})/\varepsilon_{MS}}{W_{LS2} - W_{LS1}} \tag{4.12}$$

と求まる。ε_{MS} については実際に測定を行って求めている。ドレンに溜まった液の重さ W_{drain} が効率を求める際に使われていないが、それは銅管の内壁に液として付着

[10]空孔が 10 Å 程度で芳香族等の大きな分子を吸着する。有機溶媒を乾燥させることが出来る。

する分が存在し、ドレンの重さが蒸発した重さよりも軽くなるからである。液体シンチレータの蒸発量の温度依存性、流量依存性及び蒸発成分については付録 G を参照されたい。

モレキュラーシーブ 13X の吸着効率

流速 1.0l/min、室温状態におけるモレキュラーシーブの液体シンチレータに対する吸着効率を調べた。MS13X は図 4.32 の様に 150ml のガラスバイヤルに 90g 入れ、そこにオイルトラップ後のガスを流してバブリング前後での重さを比較した。

図 4.32: モレキュラーシーブ 13X

結果は液体シンチレータの蒸発量 14.3g に対し、MS13X の増加量は 14.2g であった。よってその吸着効率は 0.993 となり、ほぼ 100%の液体シンチレータをトラップ出来ている事が分かった。

オイルトラップ効率

液体シンチレータの蒸発量を増すため、温度を約 80°C にまで上げて実験を行った。オイルトラップを構成する銅管のサイズは外径 0.635cm、内径 0.475cm で全長は約 5.5m あり、冷却したエタノール中に螺旋状に巻いて沈めてある。エタノールは投げ込み式クーラで冷やしており、 -40°C 程度まで冷却されている。

吸着効率の結果は、流速 1.01 ± 0.13 l/min、1.44 ± 0.20 l/min に対して式 (4.12) よりそれぞれ 0.998 ± 0.003、0.974 ± 0.002 と得られた。この結果より 99%以上の吸着効率が得られる流速は 1.0 l/min で、これ以上の流速では吸着し切れないオイルが出てくる事になる。またこの時銅管内をガスが通る接触時間は約 5.8 秒、銅管内の表面積は 820cm^2 である。より速い流速でオイルを効率よくトラップするためには、更に銅管を長くし、接触時間と表面積を増やす必要がある。

4.8 窒素バブリングによる抽出効率の測定

窒素バブリングによる抽出効率を求めるため、手法が確立している液体シンチレータの遅延同時計測によってラドン濃度を測定する事とした。この方法により正確にラドン濃度を求める事が出来る。またラドンを抽出 · 濃縮して静電捕集法により液体シンチレータ中のラドン濃度を測定する場合、初めに既存ラドン濃度である液体シンチレータを用意し、得られる信号数とラドン濃度を較正する必要がある。この場合にも液体シンチレータの遅延同時計測を用いることになる。

4.8.1 液体シンチレータの遅延同時計測によるラドン濃度の測定

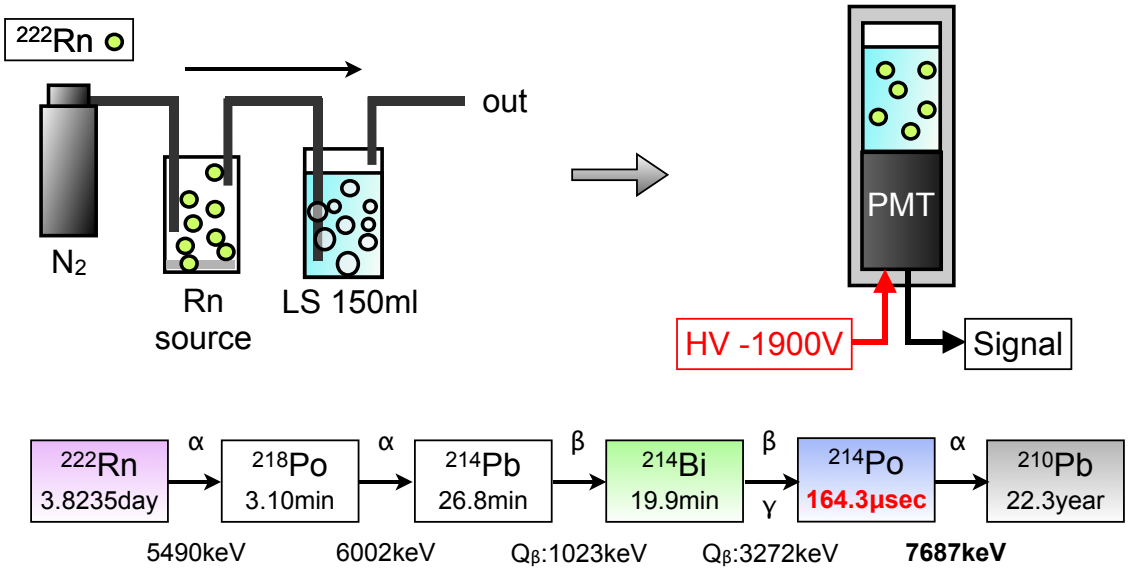

図 4.33: 液体シンチレータの遅延同時計測によるラドン濃度の測定装置の概略と ^{222}Rn の崩壊系列

光電子増倍管を用いて、液体シンチレータ中のラドン濃度の測定を行った。図 4.33 の様に、初めに窒素ガスをラドンソースに通して 150ml の液体シンチレータにラドンを溶かす。その後放射平衡のため 200 分以上待ち、液体シンチレータの入ったバイヤルを 2 インチの PMT (光電子増倍管) の上にセットする。この際発光した光を効率良く光電面に届かせるために、バイヤルと光電面はオプティカルグリースでカップリングしている。またバイヤルの周りは遮光し、ノイズが発生しない様にしている。^{222}Rn を測定するために、娘核の ^{214}Bi の崩壊による β 線/γ 線と、その後半減期 164.3μsec で崩壊する ^{214}Po の α 線を遅延同時計測し、大きくバックグラウンドを減少させる。

この信号を捕らえるための遅延同時計測用の論理回路を図 4.34 に、各信号のタイムチャートを図 4.35 に示す。ADC0 で先発信号 (prompt signal)、ADC1 で遅発信号 (delayed signal) のエネルギーを測定する。遅発信号に来るべき ^{214}Po の半減期が 164.3μsec であるので、先発信号後約 1msec の間、遅発信号を同時計測する様にゲート

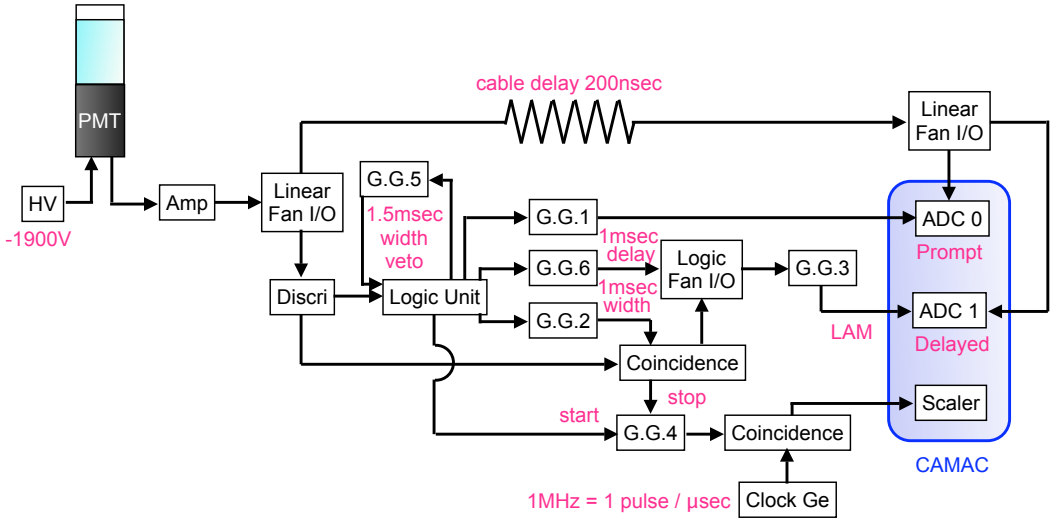

図 4.34: ^{222}Rn 測定のための遅延同時計測用論理回路

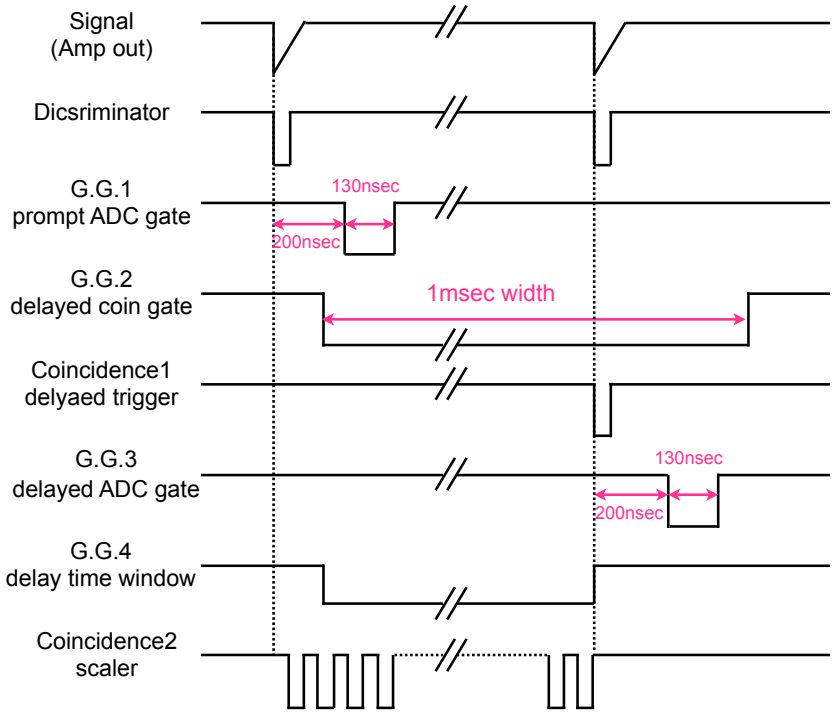

図 4.35: 遅延同時計測用論理回路の信号のタイムチャート

幅を調整してある。Scaler は TDC の代わりに導入した回路で[11]、先発信号から 1msec の間に入った信号の時間分布を測定し、半減期が 164.3μsec であることを確認する。またこの回路では、信号が来てから次に測定可能状態になるまでの不感時間 (dead time) を 1.5msec と設定してある。イベントレートが高い場合、実際の測定時間に対して不

[11] 一般の TDC は 1μsec までしか測定出来ない。

感時間が大きくなるので、この様に回路を組む事で正確なデータ収集時間を見積もる事が出来る。

この回路を用いて実際に測定した結果を図 4.36 に示す。ラドン濃度を評価するための最適な方法を調べるため、以下 3 点の方法で評価を試みた。

1. (先発信号の 400~820ch の積分値 - バックグラウンド (台形近似)) / 2
2. 遅発信号の 600~1200ch の積分値 - 偶発信号
3. 遅発信号の時間分布の積分値 - バックグラウンド (フィッティングにより得られた p2 × $\mathrm{Time_{max}}$ で表される長方形)

1 番目の方法 (Method1) は ^{222}Rn と ^{218}Po を計測しているため 2 で割っている。2 番目 (Method2)、3 番目 (Method3) の方法は ^{214}Bi $\rightarrow^{214}$ Po を計測している。

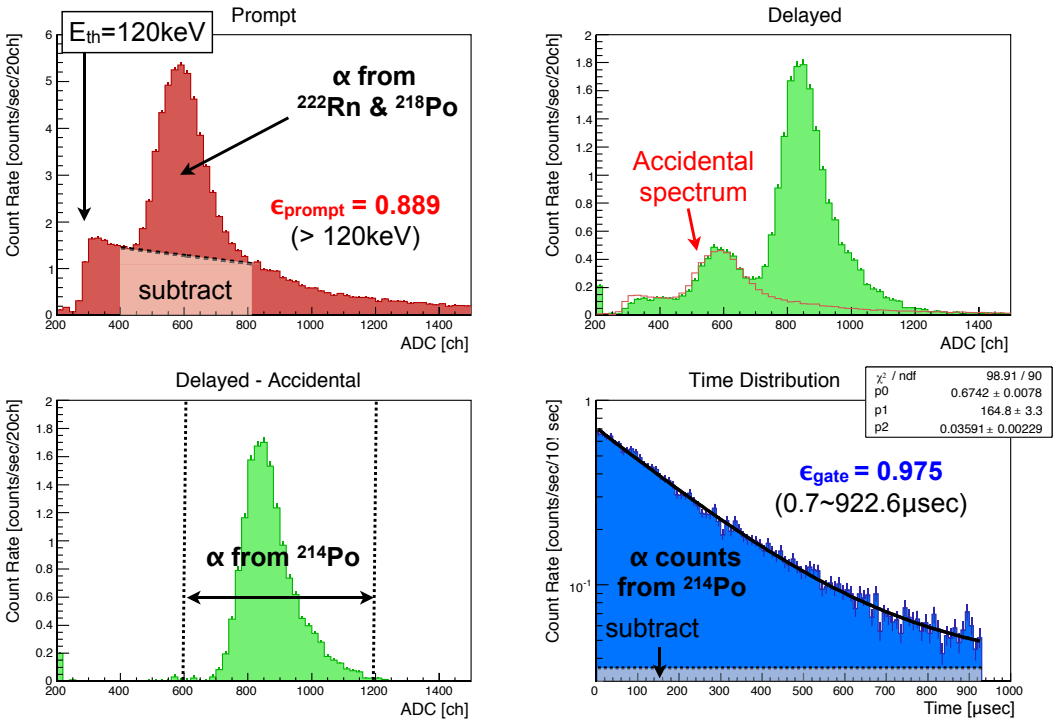

図 4.36: 先発信号 (左上)、遅発信号 (右上)、遅発信号 - 偶発信号 (左下)、遅発信号の時間分布 (右下)。先発信号 (左上) の 600ch 辺りに見られるピークは、^{222}Rn と ^{218}Po の 5490keV、6002keV の α 線で、エネルギーが近いために重なって 1 つのピークに見えている。遅発信号 (右上) の 800ch 付近のピークは ^{214}Po の 7687keV の α 線で、低チャンネル域に偶発信号が入り込んでいるのが分かる。それを差し引いたものが左下の図で、クリアにピークが抽出されているのが見て取れる。α 線のピークが高エネルギー側にテイルを引いているのは 150ml バイヤルの形状に起因するもので、光電面付近で崩壊した場合にシンチレーション光が直接光電面に届く割合が増えることによる。また遅発信号の時間分布 (右下) は p0 $\exp(-\frac{\ln 2}{\mathrm{p1}}\mathrm{t})+\mathrm{p2}$ でフィッティングしてあり、p1 と ^{214}Po の半減期 164.3μsec と非常に良い一致を示している事が分かる。

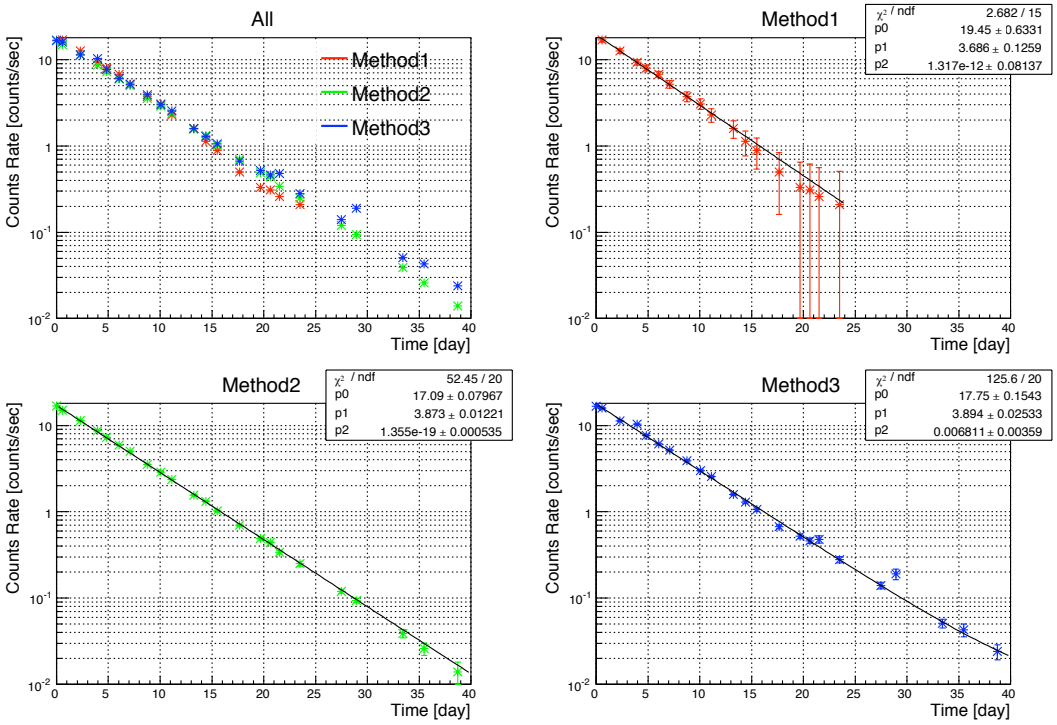

図 4.37: 各方法でラドン濃度を評価した場合のラドン濃度の時間変化。p0 $\exp(-\frac{\ln 2}{\mathrm{p1}}\mathrm{t})+$ p2 でそれぞれフィッティングしており、p1 がラドンの半減期を示す。

初めに高濃度のラドンを溶かし込んだ液体シンチレータを用意し、半減期 3.82 日の崩壊による時間変化を追った。結果を図 4.37 に示す。この回路では ^{214}Po が 20cps 以上のレートでは正しくデータを取得する事が出来なかった。これについて、放射平衡に達した後図 4.2 より ^{222}Rn の 1 崩壊に対して ^{210}Pb まで合計 5 つの核種が崩壊することになる。このため ^{214}Po が 20cps 以上の時全体のレートは 100cps 以上となり、1 信号当たり 1.5msec の不感時間があるので、1 秒当たりの不感時間は計 0.15sec となる。この様にレートが高くなると測定時間に対する不感時間の割合が大きくなるので、データ収集が正常に作動しなくなってしまうことになる。

また Method1 では約 0.2cps でピークが同定出来なくなり、これ以下の濃度には不適応であることが判明した。その後 Method2 と Method3 は約 0.01cps まで計測することが出来たが、Method3 では統計量が足りない際にフィッティングが上手く行かないことがあり、図 4.37 では崩壊曲線とずれた測定があることが分かる。以上の結果より、0.01∼20cps を測定可能な Method2 を採用する事とした。

Method2 で得られた α 線のカウントレート C[cps] から、ラドン濃度 R[Bq/l] は以下の様に決定される。

$$R[\mathrm{Bq/l}] = \frac{C[\mathrm{cps}]}{\varepsilon_{prompt}\varepsilon_{gate}V[\ell]} \tag{4.13}$$

ε_{prompt} は先発信号である ^{214}Bi がデータ収集の閾値である 120keV 以上液体シンチレータでエネルギー損失を起こす効率で、Geant4 を用いたシミュレーション結果より 0.889 と求められている。また ε_{gate} は半減期 164.3μsec の ^{214}Po が 0.7 ∼ 922.6μsec

で崩壊する効率で、0.975 と求められる。また $V[\ell]$ は液体シンチレータの体積で 0.15ℓ である。ε_{prompt} と ε_{gate} の積を取って全効率は 0.867 となり、測定可能なラドン濃度範囲は $77 \sim 1.5 \times 10^5 [\mathrm{Bq/m^3}]$ となった。

4.8.2 窒素バブリングによる抽出効率

どの程度の窒素ガスで液体シンチレータをバブリングすれば、効率良くラドンを抽出する事が出来るか調べるため、ラドンの抽出効率について流した窒素ガスの体積依存性を調べた。測定法は以下の通りである。

1. バイヤルに 150ml の液体シンチレータを入れ、ラドンを溶かし込む。
2. 放射平衡のため、200 分以上待つ。
3. ラドン濃度を測定する。
4. 液体シンチレータに対して、1.0l/min で 5~30 倍まで 5 倍づつ体積を増やして素を流す。

結果を図 4.38 に示す。抽出効率には体積依存性があるのが分かる。試験実験では、9 割近い抽出効率が得られる 25 倍の体積で液体シンチレータをバブリングすることとした。

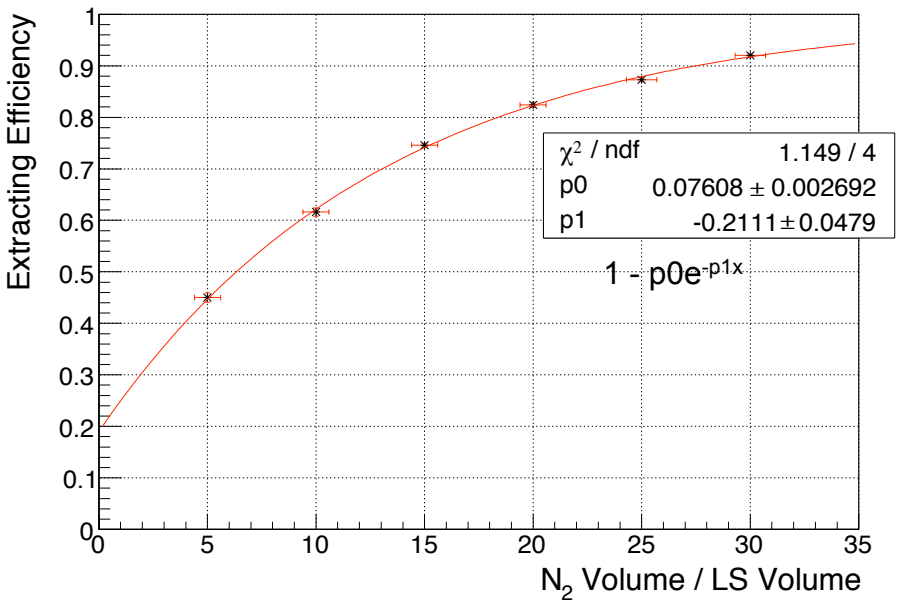

図 4.38: 窒素バブリングによる抽出効率の窒素ガス体積依存性。液体シンチレータ中のラドンの残存効率はパージした窒素の体積が多い程小さくなり、体積を x 倍とするとその依存性は $\mathrm{p0e^{-p1x}}$ で表される。抽出効率の依存性は、始状態 1 から残存効率 $\mathrm{p0e^{-p1x}}$ を差し引いた式で表される。

また抽出効率の流量依存性についても調べた。バブリングする窒素の量は液体シンチレータの 25 倍に固定し、流量は 0.5~2.0l/min とした。得られた結果を図 4.39 に示す。抽出効率は 3.3%の範囲内で得られており、流量の抽出効率に対する影響は小さいと言える。

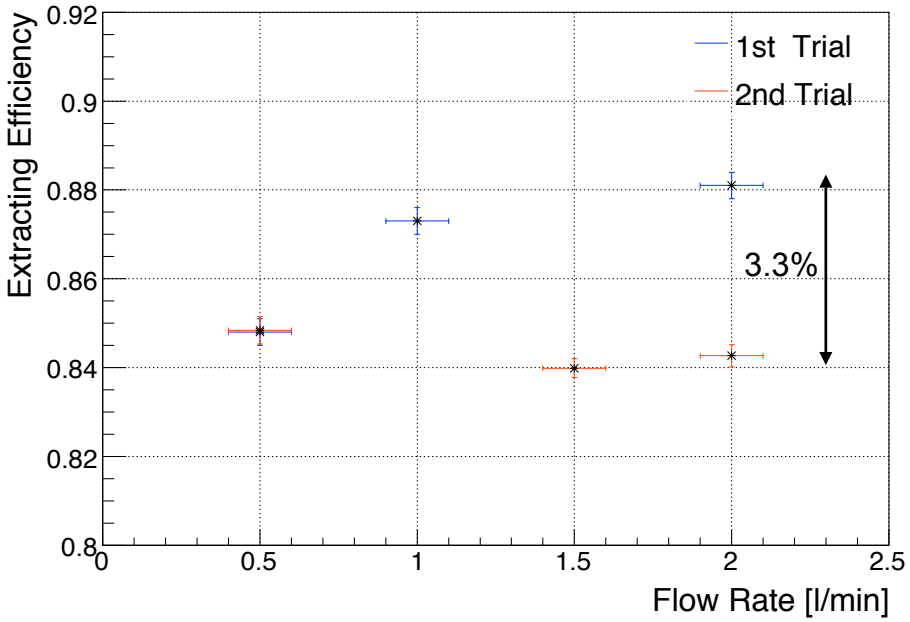

図 4.39: 窒素バブリングによる抽出効率の窒素ガス流量依存性。流量のエラーはフローコントローラによるもので 0.1l/min である。

4.9　ラドン検出器による液体シンチレータ中のラドン濃度測定

テスト装置による液体シンチレータ中のラドン濃度の測定実験を行った。本実験は、液体シンチレータ中のラドン濃度とラドン検出器の計測率の較正実験であり、ラドン検出器で正しく液体シンチレータ中のラドン濃度を測定することが出来るかを判断する上で重要な測定である。また今まで求めた様々な効率が正しく求められているかを確認し、1mBq/m^3 のラドン測定用のデザインを決定するための実験でもある。

実験手順

較正実験は図 4.40 に示す装置で行った。流速は吸着効率を求めた条件と同じ 0.7l/min とし、液体シンチレータは 1.0ℓ 用意した。測定手順を以下に示す。各手順項目の詳細については既に説明したので省略する。

1. 150ml の液体シンチレータにラドンを溶かし込み、ラドン濃度を測定する。その後十分に窒素パージしラドン濃度が無視出来る 850ml の液体シンチレータに混ぜ合わせ、既知のラドン濃度である 1.0ℓ の液体シンチレータを用意する。

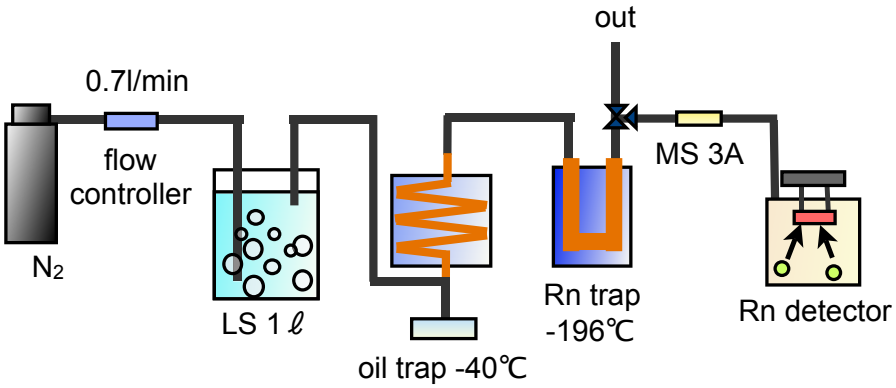

図 4.40: 液体シンチレータ中のラドン濃度測定装置フロー

2. 測定系をあらかじめ窒素パージしておき、ラドントラップは液体窒素下に沈めておく。その後窒素が液化しない様に、ラドントラップはポンプで負圧に引いておく。

3. 0.7l/min でバブリングを開始する。窒素ガス量は液体シンチレータの体積の 25 倍である 25ℓ とする。

4. トラップ終了後、効率良くラドンを送るためにラドントラップと検出器をポンプで負圧に引く (図 4.28 参照。)。

5. トラップを液体窒素から抜き、室温でしばらく放置する。

6. トラップ内の温度が 10°C 程度になったのを確認後、バルブ操作と窒素ガスによりラドンを検出器へ送り込む (4.6.3 節参照)。

7. データ収集を始める。

8. 測定終了後、1.0ℓ の液体シンチレータから 150ml を採集し、光電子増倍管によりラドン濃度を測定する。

液体シンチレータ中のラドン濃度はバブリング前は 12.9 ± 0.1[Bq/l] で、実験終了後液体シンチレータ 1.0ℓ から 150ml を採集して測定した所 1.68 ± 0.07[Bq/l] であった。2 つの測定間の時間は 0.73 日で、ラドンの崩壊率を考慮に入れ抽出効率 $\varepsilon_{extract}$ を見積もった所、0.852 ± 0.006 となった。前節で説明した、150ml の液体シンチレータを 25 倍の体積でバブリングした際得られた抽出効率は 0.873 ± 0.004 であったので、異なるバブラーと流量でラドンを追い出してもほぼ近い抽出効率が得られていることが分かる。

実験結果

液体シンチレータ中のラドンを濃縮しラドン検出器へ送り込んだ後のカウントレートを図 4.41 に示す。^{214}Po を放射平衡の式でフィッティングし、データ収集開始時の ^{222}Rn のカウントレートを求めている。(放射平衡式については、巻末付録 E を参照。)

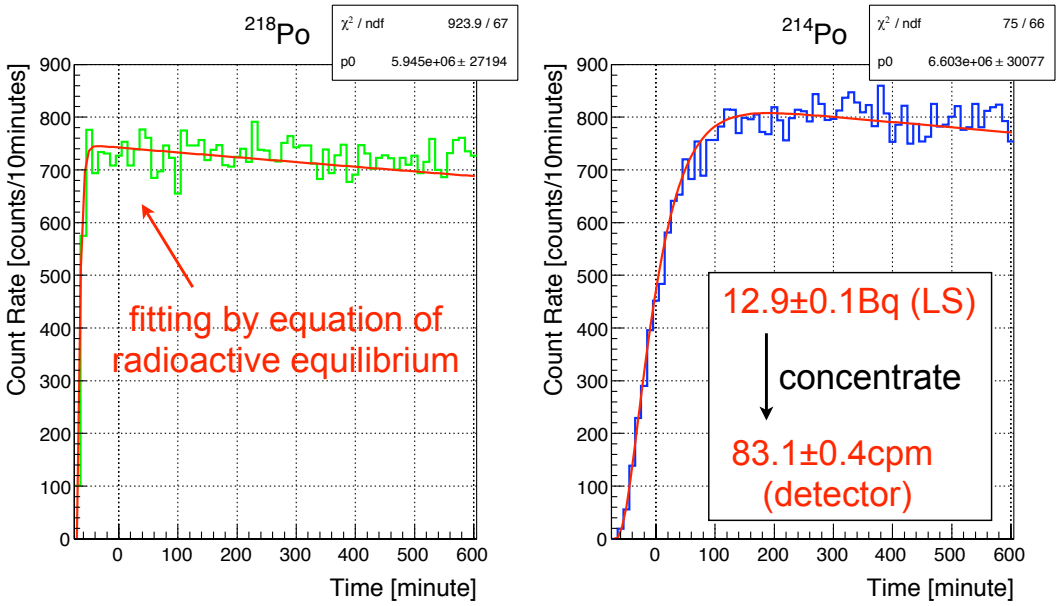

図 4.41: ラドン検出器による液体シンチレータ中のラドン測定の結果 1

得られたカウントレートについて考察する。これまでの予備実験で測定された各効率を表 5.6 に示す。但しここには 4.3 節で示したオイルトラップによる非吸着効率は入っていない。

種類	効率
抽出効率 $\varepsilon_{extract}$	0.852 ± 0.006
吸着効率 ε_{trap}	0.775 ± 0.011
脱着効率 ε_{desorp}	0.997 ± 0.017
送り込み効率 ε_{trans}	0.880 ± 0.024
検出効率 ε_{det}	0.190 ± 0.010
全効率 ε_{total}	0.110 ± 0.007

表 4.5: 各効率のまとめ。吸着効率は 0.7l/min において求められたもの。

ラドン検出器で得られるカウントレートは、各効率の積にラドンの崩壊率を補正したものとして与えられる (式 (4.3))。これよりオイルトラップによるラドンの非吸着効率 ε_{oil} を求める。ラドン抽出前の液体シンチレータのラドン濃度は 12.9 ± 0.1[Bq/l]、トラップ終了から測定開始までの時間 56 分によるラドン崩壊率は 0.993、検出器で得られたカウントレートは 83.1 ± 0.4cpm である。以上から $\varepsilon_{oil} = 1 - (0.0193 \pm 0.067)$ と求まる。この結果はオイルトラップによるラドンの損失がほぼ無いことを示しており、個別に求めた個々の効率が精度良く求まり実験結果と矛盾していない事が分かる。この結果より正確にラドンの濃縮過程を理解する事が出来たと言える。

また今回の測定による一連の抽出 · 濃縮操作による全効率 ε_{total} は 0.108 ± 0.001 となった。この方法で全効率を求めた場合その誤差は小さく抑えられ、精度良くラドン

濃度と検出器のカウントレートの較正が出来る。

更にこの結果の再現性を調べるため、連続して同じ手順の実験を繰り返した。但し測定後の液体シンチレータ中のラドン濃度は低くなっているため、抽出効率の再確認はしていない。結果を図 4.42 に示す。データ収集開始時のカウントレートは 10.8±0.2cpm、送り込み操作に要した時間は 43 分であったので、これより全効率 ε_{total} は 0.107±0.004 となり、良い再現性が確認出来た。これらの結果より得られた液体シンチレータ中のラドン濃度と検出器におけるカウントレートの較正図を図 4.43 に示す。

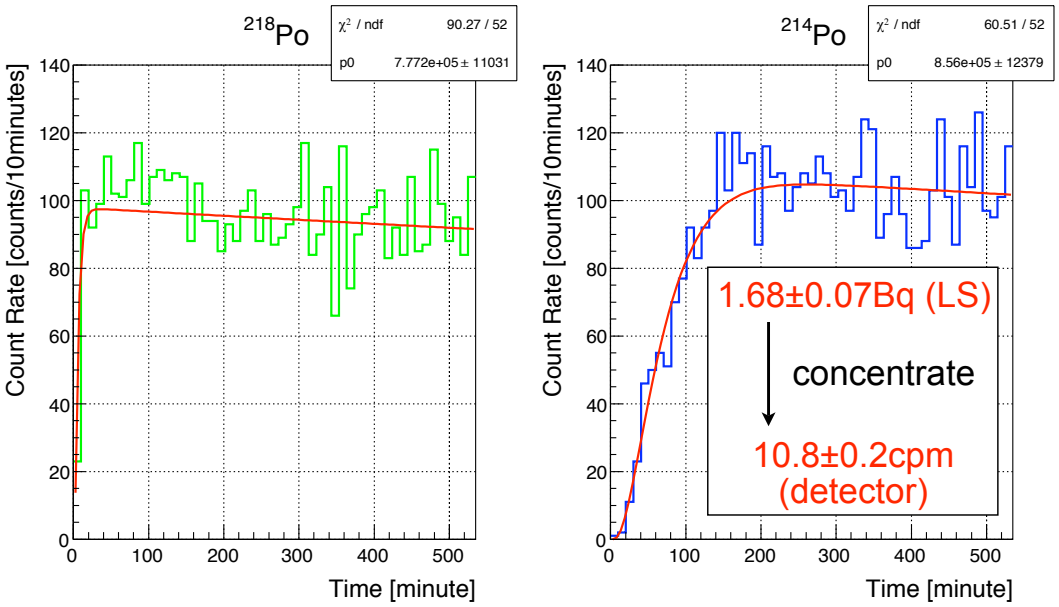

図 4.42: ラドン検出器による液体シンチレータ中のラドン測定の結果 2

測定限界

2 回の測定により得られた ε_{total} の最適推量値 0.108 ± 0.001 と、4.5.6 節の図 4.20 で示した閉じ込め系のバックグラウンド 284.4 ± 17.7cpd から、テスト装置における測定限界が求められる。ラドン起源の信号率を N_S、バックグラウンドを N_N とすると、実際に得られる信号数 $N_{total} = N_S + N_N$ となる。2σ の信頼性で信号を有為に検出するには

$$\begin{aligned} N_{total} - N_N &\geq 2\sqrt{N_{total} + N_N} \\ N_S &\geq 2\sqrt{N_S + 2N_N} \end{aligned} \tag{4.14}$$

となれば良いので、N_N=284.4 を代入すると $N_S \geq 49.7$ と求められる。測定時間を 1 日とした時、ラドンの平均崩壊率は

$$\frac{\int_0^1 exp(-\frac{ln2}{T_{\frac{1}{2}}}t)}{1[\mathrm{day}]} = 0.9146\ [\mathrm{day}^{-1}] \tag{4.15}$$

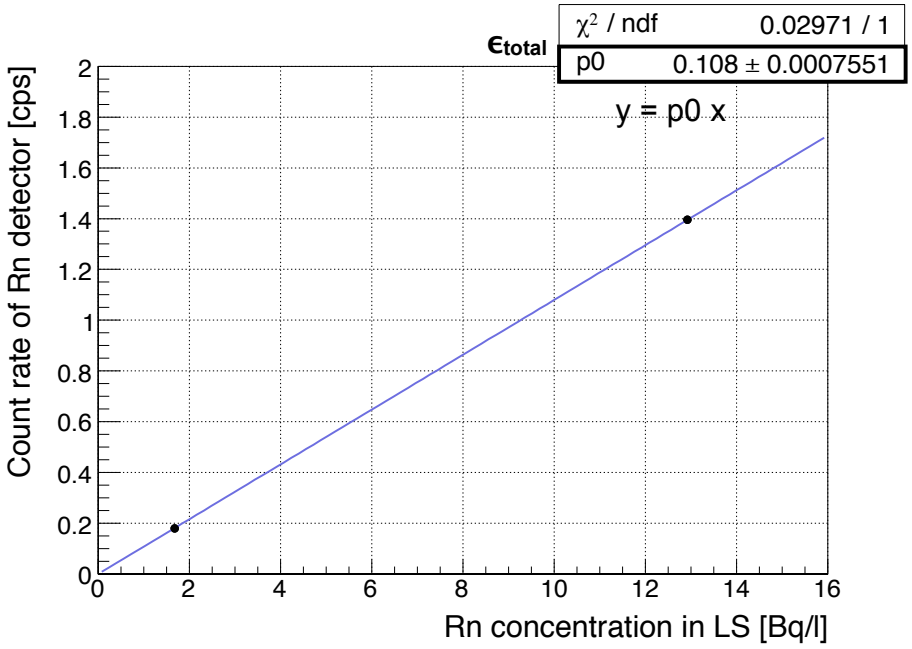

図 4.43: 液体シンチレータ中のラドン濃度と検出器におけるカウントレートの較正

となる。ここでラドンの半減期 $T_{\frac{1}{2}} = 3.824[\mathrm{day}]$ を代入した。液体シンチレータの体積 1ℓ、全効率 0.108 より、測定限界 $x[\mathrm{Bq/m^3}]$ は、

$$\begin{aligned} x[\mathrm{Bq/m^3}] \times \frac{1}{1000}[\mathrm{m^3}] \ \times \ 0.108 \times 86400[\mathrm{sec}] \times 0.9146 \geq 49.7[\mathrm{cpd}] \\ x \geq 5.82[\mathrm{Bq/m^3}] \end{aligned} \tag{4.16}$$

となる。よって 2σ の測定限界は $5.8\mathrm{Bq/m^3}$ となる。

今回の実験では液体シンチレータを 1.0ℓ しか用意しなかったため測定限界は $\mathrm{Bq/m^3}$ のオーダーであるが、100 倍の体積である液体シンチレータ 100ℓ を用意しバックグラウンドを $\frac{1}{100}$ に低減すれば (統計エラーは $\frac{1}{10}$)、測定限界は 3 桁低い $\mathrm{mBq/m^3}$ のレベルとなり、我々の目的を達成する事が出来る。よって実機用の装置では真空容器を使用し、漏れを徹底的に抑える事でバックグラウンドを大きく減らす必要がある。

4.10　テスト装置による結論と実機装置のデザイン

本研究によりテスト装置を用いてラドンの抽出·濃縮法を確立し、液体シンチレータ中のラドン濃度の測定に成功した。またその過程における様々な効率を個別に求め、全効率と比較しても一致する結果が得られた。テスト装置における測定限界は $5.8\mathrm{Bq/m^3}$ となり、$1\mathrm{mBq/m^3}$ の測定を達成するには更に大量の液体シンチレータをバブリングし、検出器の漏れを抑えバックグラウンドを低減する必要があることが判明した。

実機装置ではより多くのラドンを集めるため、大量の液体シンチレータを用意する必要がある。9 割近い抽出効率が得られる 25 倍の体積の窒素でバブリングするので、ガスの流速はテスト装置実験に比べて相当速くなる。このためテスト装置で使用した

オイルトラップ、ラドントラップでは対応出来なくなり、より大型の装置が必要となる。仮にテスト装置の 100 倍である $0.1m^3$ の液体シンチレータを用意した場合について必要な装置を考察する。

実機装置のデザイン

^{222}Rn の半減期は 3.8 日であるため、抽出 · 濃縮期間を半日、検出期間を 4 日程度と設定する。バブリングする窒素量は液体シンチレータの体積 $0.1m^3$ の 25 倍、$2.5m^3$ となるので、半日でバブリングする場合のガスの流速は 3.5l/min となる。

オイルトラップ テスト装置で 1.0l/min におけるオイルトラップの吸着効率は 0.998 ± 0.003 と得られ、その時の条件は $\frac{1}{4}$ インチの銅管 (内径 0.475cm) が 5.5m、表面積 $820cm^2$、接触時間 5.8 秒と得られている。3.5l/min の流速ではこの約 3.5 倍の能力が必要になり、$\frac{1}{4}$ インチの銅管だけで構成した場合その全長は約 19m となる。また 3.5l/min における液体シンチレータの蒸発量は 22g 程度と予想される (付録 G 参照)。

ラドントラップ 更に早い流速における吸着効率を調べるため、銅ウールを今までの約 2 倍の 24.8g 入れ、縦長のデュワーを用意して容器全体を液体窒素に沈めて実験を試みている。(テスト実験では半分程度まで浸かるデュワーを使用。) 結果、4.0l/min で吸着効率は 0.947 ± 0.034 と得られ、3.5/min では同じ程度の体積のトラップ容器で十分な効率が得られであろうと考えられる。

検出器 送り込み操作による効率を更に高めるため、検出器の体積は　テスト装置の 0.5ℓ よりも大きい 2ℓ 程度とする。高い密閉性が必要であるため、ステンレス製の真空容器を作製することにし、またバックグラウンドを出来るだけ抑えるため内面を電解研磨加工し表面の汚れを除去する。

バブリング用タンク $0.1m^3$ のタンクを用意した場合、タンクだけで相当の表面積になってしまう。コスト節約のため、電解研磨による加工を施す代わりに内面をラドンの侵入を防ぐ EVOH シートで覆う事とする。

配管等 バックグラウンドを抑えるため、系全体の配管もステンレス製の電解研磨管を使用し、オイルトラップ、ラドントラップは熱伝導性を考慮して銅管を使用することにする。

その他 テスト実験と同様、水分を吸着させるためにモレキュラーシーブを送り込み時に使用する。

以上がテスト装置実験により得られた実機装置のデザインである。

第5章　実機装置の性能評価とラドン濃度の測定

テスト装置によってラドンの濃縮法を確立し、液体シンチレータ中のラドン濃度を測定する事に成功した。テスト装置で得られた結果に基づき、液体シンチレータ中の $1\mathrm{mBq/m^3}$ のラドン濃度測定のためのデザインを行い、実機用装置を製作した。図 5.1 に液体シンチレータ測定用の装置の全体図を示す。

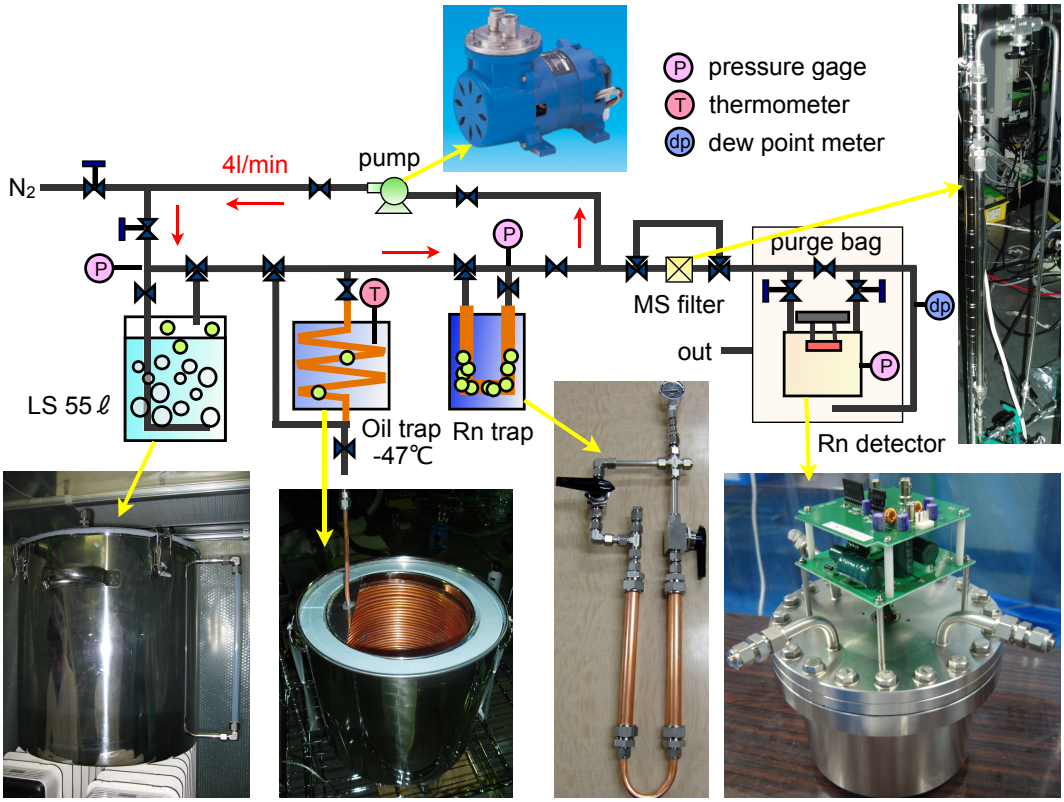

図 5.1: 実機用ラドン測定装置

この装置は液体シンチレータのバブリングタンク、オイルトラップ、ラドントラップ、循環用ポンプ、モレキュラーシーブ、ラドン検出器から成り立っている。本章では初めにラドン検出器の性能評価を行い、濃縮過程における各効率について述べる。そしてそれぞれの項目のバックグラウンド測定について説明し、最後に窒素ガスや液体シンチレータ中のラドン濃度測定、物質からのラドン染み出し率測定について述べる。

5.1 ラドン検出器の性能評価

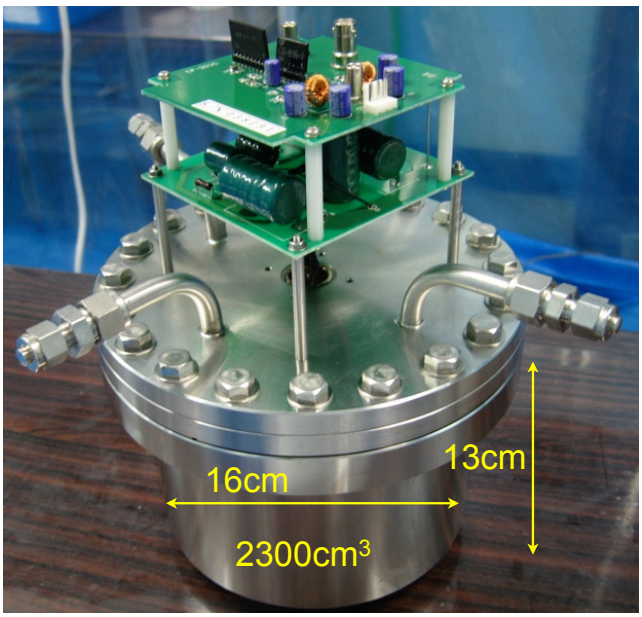

図 5.2: ラドン検出器 (体積 2.3ℓ)

今回製作した実機用のラドン検出器を図 5.2 に示す。体積は 2.3ℓ でラドントラップに対して十分な容量となっており、送り込み時に高い効率が得られる様になっている。また内面はバックグラウンド対策のため電解研磨加工が施されている。この容器は真空用で、リークによるラドンの侵入を抑制するためにコンフラットフランジと銅メタルガスケットを使用している。フランジにはステンレス製の電解研磨管が 3 本溶接されており、ガスの入出力、圧力計用に確保してある。中心のフィードスルーはハーメチックタイプを使用し、リークを極力抑えている。

5.1.1 エネルギースペクトル

ラドンソースに窒素ガスを通して検出器へ流し、実機用ラドン検出器の動作確認を行った。印加電圧 -1.0kV において得られた典型的なエネルギースペクトルを図 5.3 に示す。実機装置では新しい PIN フォトダイオードを使っており、テスト装置と比べて若干 ^{218}Po と ^{214}Po のピーク位置に変化が見られているが、図 5.4 に示す通りエネルギーと ADC ピークチャンネルには良い線形性が確認されている。

図 5.3 で他に幾つかの小さなピークが見受けられたため、ウラン系列以外に図 5.5 のトリウム系列、アクチニウム系列の核種を調べた。ラドンソースにトリウム系列、アクチニウム系列が含まれているとすると、Po やその後生成する Bi の α 線が観測される事になる。以下に調べた項目を列挙する。

- 各ピーク点をエネルギー順に並べる。 → エネルギー較正図より ^{211}Bi、^{206}Po と同定。

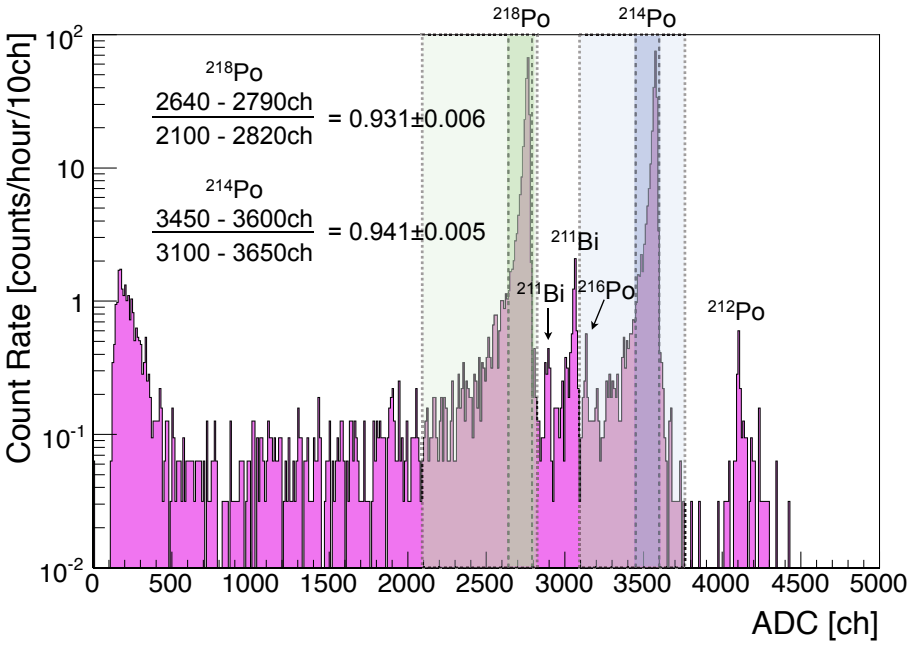

図 5.3: 印加電圧 -1.0kV における典型的なエネルギースペクトル。緑色の濃い領域は ^{218}Po、青色の濃い領域は ^{214}Po の選択範囲。バックグラウンドを抑えるために、テスト装置の時よりも範囲を狭めている。また色の薄い領域に対する濃い領域の積分値は ^{218}Po、^{214}Po がそれぞれ 0.931±0.008、0.941±0.005 となり、この範囲内で十分な信号が選択されていることが分かる。

- レートの高い ^{211}Bi の 6623keV の α 線の半減期を調べる。 → ^{219}Rn から ^{214}Bi の半減期と一致 (図 5.6)。
- ^{211}Bi の 6623keV と 6278keV のピークの高さの比を調査。→ ピーク比 5.05±0.91 と、崩壊系列の α 線分岐比 5.17 が一致 (分岐比はそれぞれ 83.8%、16.2%)。

以上からトリウム系列、アクチニウム系列の核種であることが分かった。トリウム系列では ^{216}Po と ^{212}Po が観測されているが、レートの高い ^{218}Po に隠れて ^{212}Bi が観測されていない。しかし ^{218}Po は半減期 3.1 分で崩壊して行くのに対して、^{212}Bi は親核の ^{212}Pb が半減期 10.64 時間であるため崩壊し切るのに数十時間以上かかる。これは低レベルの信号を測定する際に問題になってくると考えられ、^{218}Po の信号選択範囲内にノイズとして ^{212}Bi が入ってくる可能性がある。

よってラドンソースからトリウム系列、アクチニウム系列のラドンも染み出ている事が判明した。テスト検出器ではラドントラップを通してガスを検出器へ流していたが、この測定ではラドンソース後のガスを直接検出器へ送っていたため、短い半減期のアクチニウム系列のラドンの娘核が検出されている。

次に ^{214}Bi と ^{214}Po のピーク位置の時間変化について調べた。長期間に亘るピーク位置の安定性を確認する事で、一度決めた信号の選択範囲を適用し続ける事が出来るか判断する。図 5.7 の通り 1ヶ月に亘る別々の測定において ^{218}Po は 2765±10ch、^{214}Po は 3575±10ch と安定しており、ピーク位置の安定性が確認されている。

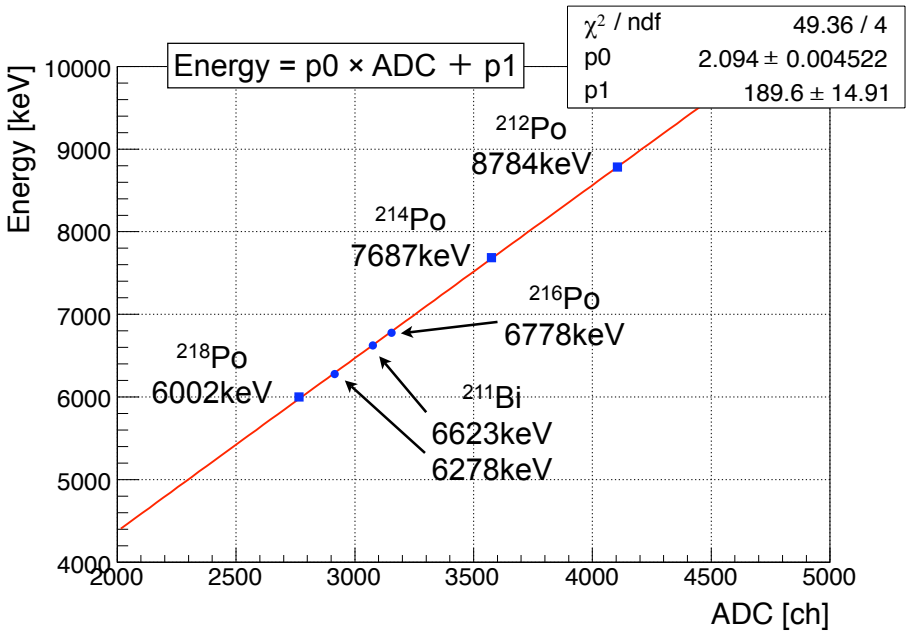

図 5.4: ラドン検出器のエネルギー較正。四角のプロットはテスト装置の較正時に判明している核種である。

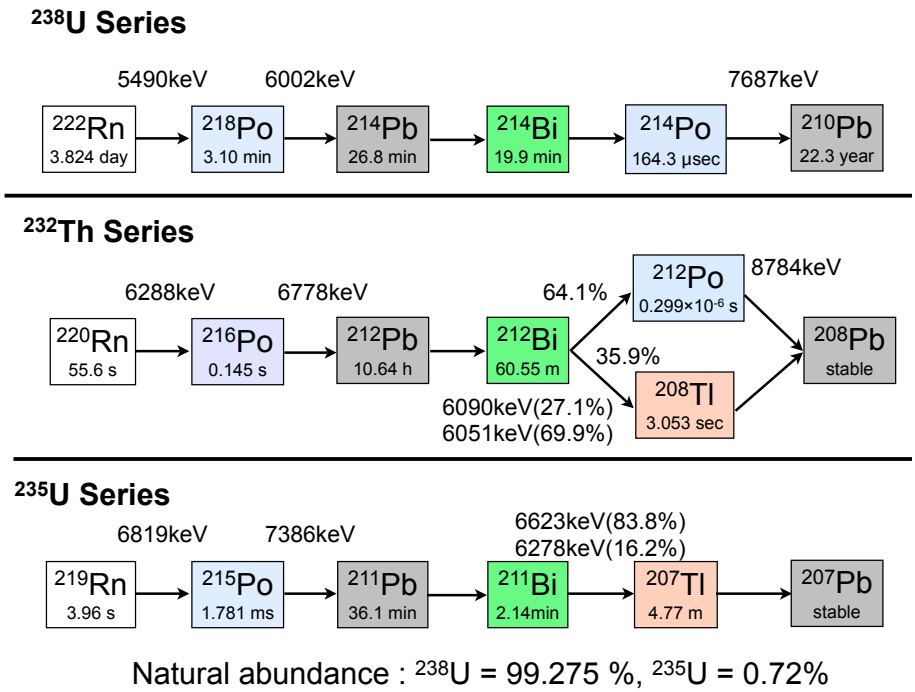

図 5.5: ウラン系列、トリウム系列、アクチニウム系列の α 線

5.1.2 検出効率

Scaler による Model1027 のラドン濃度の較正

実機用装置では Model1027 で得られるラドン濃度をデジタル信号で取り出して検出効率を求められるようにした。これまでは Model1027 のボタンを押してディスプレイ

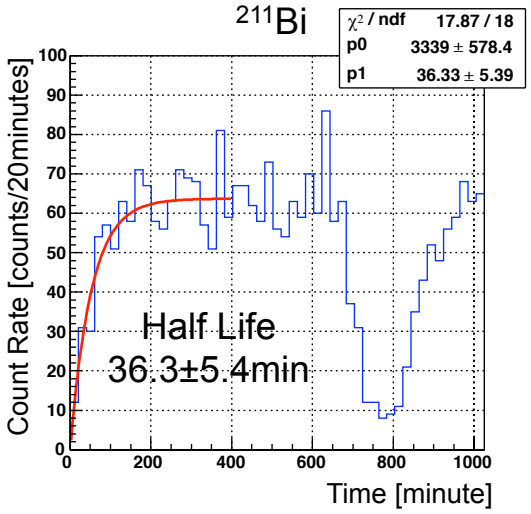

図 5.6: ^{211}Bi のカウントレート

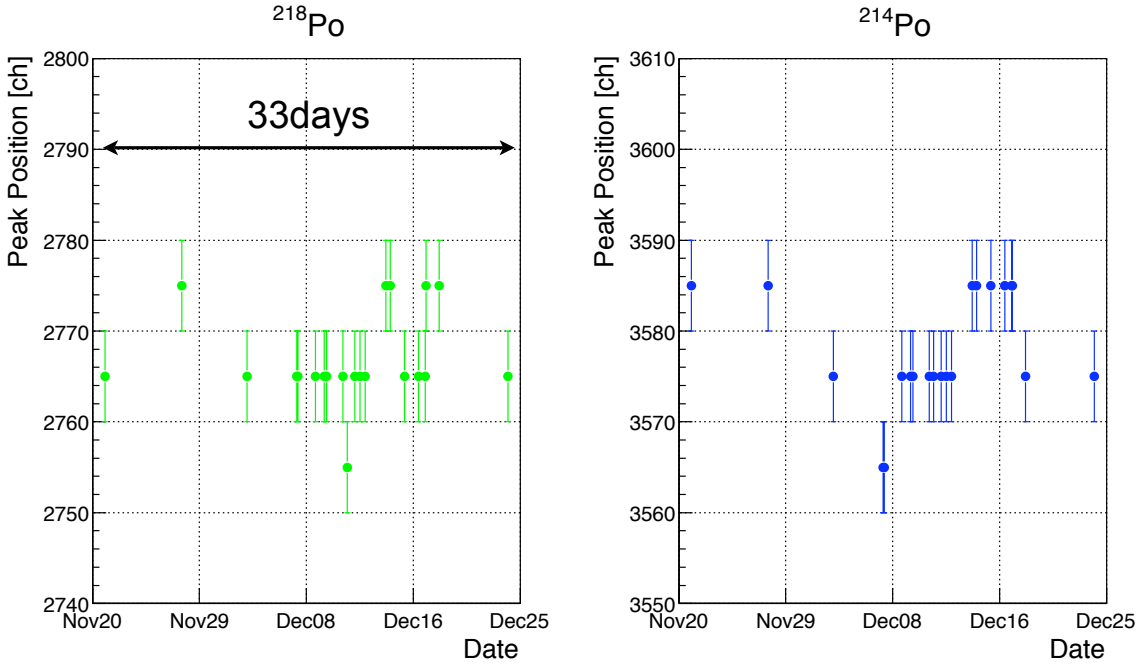

図 5.7: ピーク位置の時間変化。^{218}Po が 2675±10ch、^{214}Po が 3575±10ch と測定期間において安定しているのが分かる。それぞれのプロットのエラーはビン幅 ±5ch としている。

に表示されていた値を取得していたが、今後は scaler でデータを読み取る。1 時間当たりに得られる信号数と Model1027 のラドン濃度の較正を行った所、図 5.8 の様に良い比例関係が得られた。

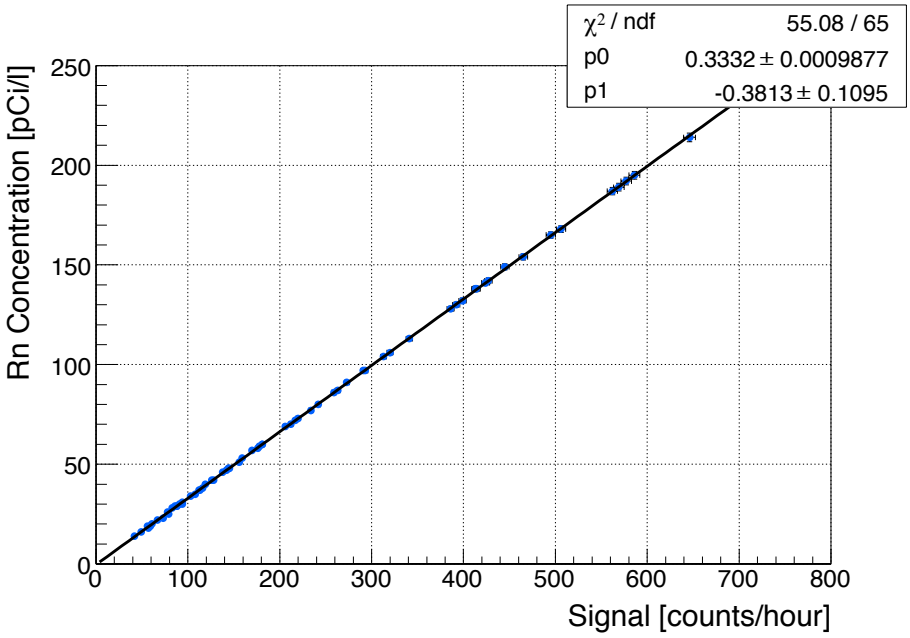

図 5.8: Model1027 による Rn 濃度と scaler で読み取った信号数の較正。1pCi/l = 37Bq/m^3 である。

フィッティング結果より、ラドン濃度は

$$\text{Rn Concentration [pCi/l]} = \text{Signal [counts/hour]} \times 0.3332 - 0.3813 \tag{5.1}$$

と得られた。非常に良く較正出来ているため、今後は scaler で得た信号数から式 (5.1) によってラドン濃度を求める事にする。

(^{218}Po + ^{214}Po) による検出効率の求め方

^{218}Po と ^{214}Po はそれぞれ単独で検出効率を求められる一方、^{218}Po と ^{214}Po の両方を用いて検出効率を求める事が出来る。^{222}Rn の 1 崩壊に対して ^{218}Po と ^{214}Po の“少なくともいずれか一方”を検出する方法で検出効率を求めれば、単独で求められる検出効率よりも高い値が得られる。テスト装置でも ^{218}Po と ^{214}Po の足し合わせで検出効率を求めていたが、この場合は ^{218}Po と ^{214}Po それぞれの検出効率の平均であった。

Po が PIN フォトダイオードに捕集され崩壊する際に α 線が検出されるのは、α 線が PIN フォトダイード向きに照射される時だけである (図 5.9 参照)。すなわち仮に 100%Po を捕集出来たとしても、最大検出効率は 50%となる。

^{222}Rn の 1 崩壊に対して、^{218}Po と ^{214}Po の計 2 つが崩壊がするため、“少なくともいずれか一方”が検出される確率は図 5.9 より $\frac{3}{4}$ となる。よって ^{218}Po と ^{214}Po を足し合わせた信号数にこの確率 $\frac{3}{4}$ を掛ける事で“少なくともいずれか一方”を検出した場合の検出効率を求める事が出来る。この方法を使って実機装置の検出効率の高電圧依存性、露点依存性を確かめる。

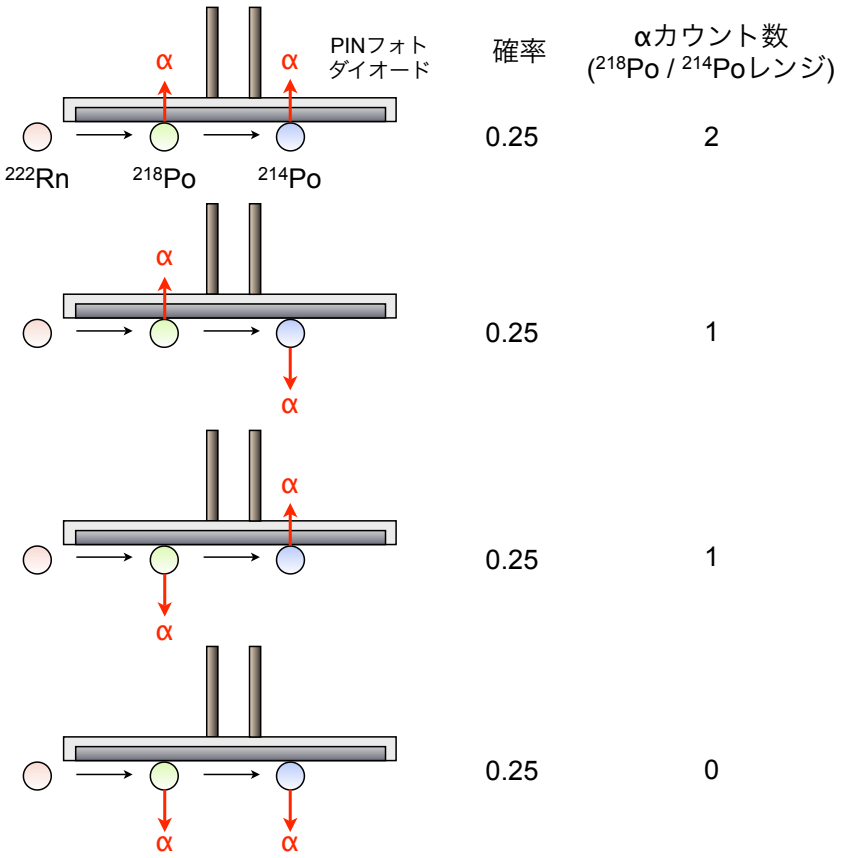

図 5.9: (^{218}Po +^{214} Po) による検出効率の求め方

高電圧依存性

テスト用ラドン検出器では -0.5～ -3.0kV の高電圧依存性を調べたが、低電圧における検出効率の低下が確認されなかったため、今回の測定では -0.5～ -3.0kV に付け加えて -0.1～ -0.5kV の依存性も調べた。

図 5.10 に ^{218}Po、^{214}Po のピーク位置と検出効率の高電圧依存性の結果を示す。低電圧側でピーク位置が下降しているのが分かる。電圧値が変わる度にピーク位置も変わるため、信号の選択範囲を決め直す必要がある。ここではピークの最大値に対して $\frac{1}{100}$ の高さになる範囲を信号の選択範囲として検出効率を求めた。

ここでも予想と反し、低電圧側で検出効率が高くなっている傾向が見られた。しかし静電場を形成する印加電圧が小い程捕集効率が高くなるということは物理的に明らかにおかしい。この様な結果が得られた原因として、低電圧ではピーク位置が低チャンネル側に下降するため、全信号に対して選択範囲内に入る信号の割合が増しているということが考えられる。 -1.0kV 以上ではピーク位置が安定しているため、検出効率も安定しているとするとつじつまが合う。実際には検出効率もピーク位置の様な形になると予想され、 -0.1kV では検出効率が低くなっている事が確認出来る。

採用する高電圧値の条件は、安定したピーク位置と検出効率である。本実験の結果より、低電圧域では電圧値に対するピーク位置の変動の割合が増していることが判明

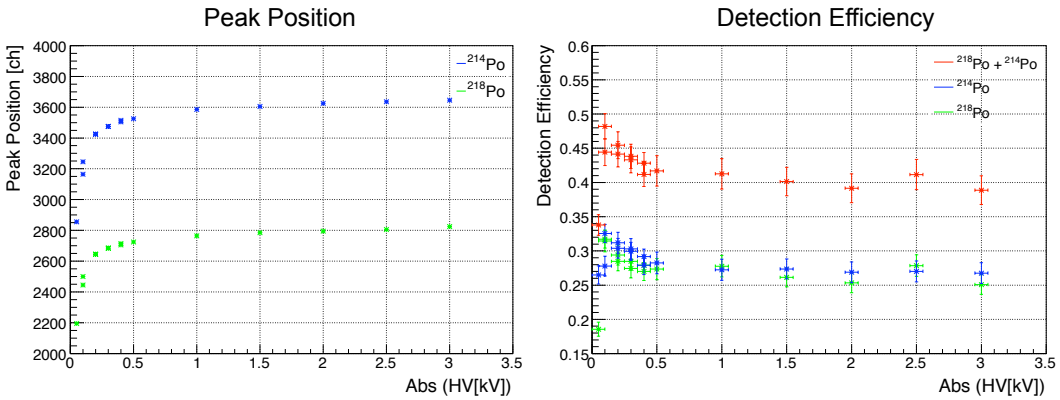

図 5.10: ラドン検出器のピーク位置と検出効率の高電圧依存性

したため、安定したピーク位置と検出効率が得られている -1.0kV をラドン検出器にかける印加電圧値として採用する。

露点依存性

テスト装置による測定では露点をコントロールすることが出来なかったため、図 5.11 の様な系内の水分量を自由にコントロール出来る配管系を組んだ。この系で水分量を変化させてラドン検出器で得られるカウントレートと、Model1027 で得られたラドン濃度から検出効率を求める。ラドンソースに流す窒素の流量が一定の状態ではラドン濃度はほぼ一定と考えられ、この時露点を変化させても Model1027 で得られるラドン濃度には変化が見られなかったため、Model1027 を較正装置として利用する。

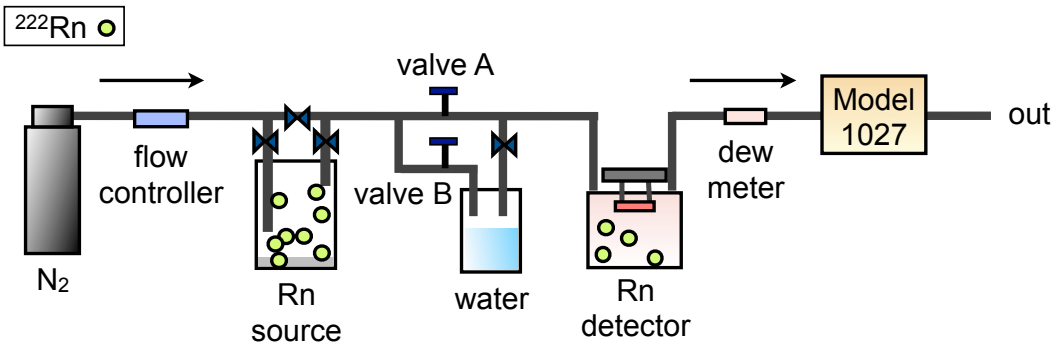

図 5.11: 露点依存性のための測定系。バルブ A とバルブ B を調節する事で系内の水分量を調節する。

測定された検出効率の露点依存性を図 5.12 に示す。図の様に露点が高い状態で検出効率の低下が見られる。これは 4.4.1 節で説明した通り、静電場内で水分が存在するために捕集効率が低下しているのだと考えられる。

図 5.12 で得られた ^{218}Po と ^{214}Po の検出効率のフィッティング結果を利用すれば、露点に依存する事なくラドン検出器によってラドン濃度を求める事が出来る。Model1027

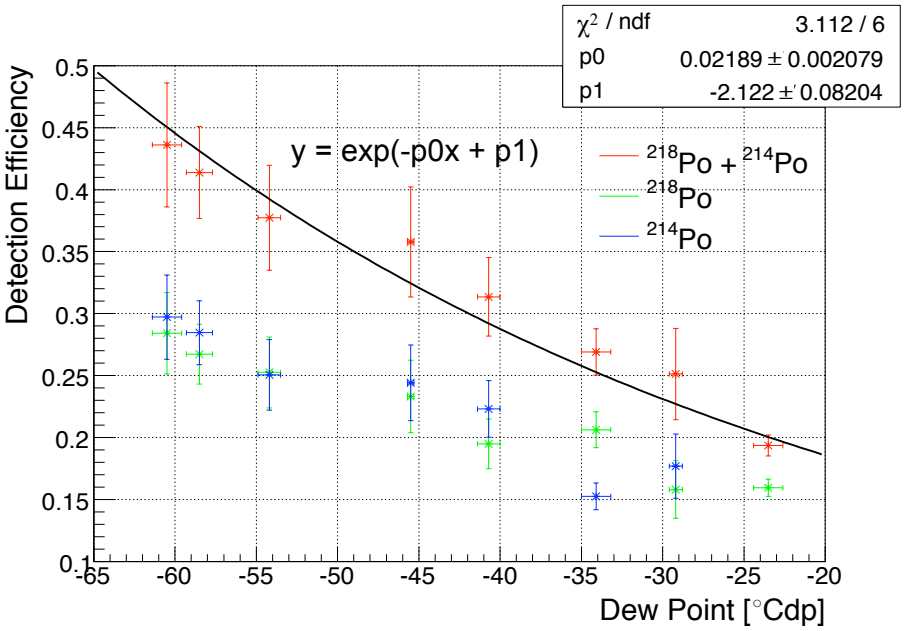

図 5.12: ラドン検出器の検出効率の露点依存性

で得られたラドン濃度と、ラドン検出器の補正後のラドン濃度を重ねてプロットした様子を図 5.13 に示す。Model1027 で得られたラドン濃度と、ラドン検出器で得られたラドン濃度について、露点変化中においても正しい濃度が得られている。

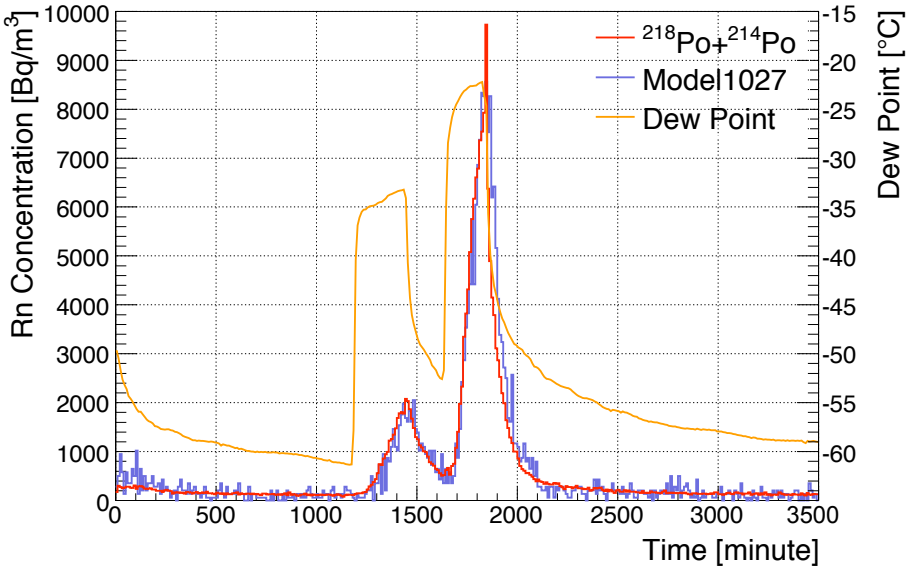

図 5.13: Model1027 の測定値とラドン検出器で得られたラドン濃度。ラドン検出器のラドン濃度は露点に応じて補正してある。露点に依存する事無くラドン濃度を求める事が出来ている。

本測定よりラドン測定の際は出来る限り露点の低い状態で実験を行うことが望ましいことが判明し、また露点に関係なくラドン濃度を補正出来ることが明らかになった。実機用装置でもラドントラップから検出器へ送り込む際は、モレキュラーシーブを通して水分を吸着させ、出来る限り検出効率の高い状態で測定を行う事とする。

低露点における検出効率

露点が -60°C と低い状態における、2 度の測定による検出効率の結果を示す。露点が低い状態でラドン濃度を調べる際は、最適推量値を検出効率として利用する。

trial	^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po $+^{214}$ Po
1st	0.285±0.033	0.298±0.035	0.437±0.050
2nd	0.268±0.019	0.274±0.019	0.406±0.028
最適推量値	0.272±0.016	0.279±0.017	0.413±0.025

表 5.1: 検出効率のまとめ

5.2 濃縮実験

実機用ラドントラップを用いて吸着効率、脱着効率、送り込み効率を求めた。効率を求める方法はテスト装置による実験と同じであるのでここでは説明を省略する。

吸着効率

まず初めにテスト装置と同じ方法で 1.0l/min における吸着効率を求めた。結果を図 5.14 に示す。これより吸着効率は 1.000 ± 0.028 と求められた。実機用のラドントラップは更に速い流速に対応する様に設計されてあり、1.0l/min 以上の流速において高い吸着効率が期待される。

しかしより速い流速において、ラドンソースにガスを流して検出器でラドンの崩壊を捕らえるという方法では、流速が速くなればなる程得られるカウントレートが低くなってしまう。そのため十分な統計をためるのに速い流速ほど時間がかかってしまうことになる。

よって実験方法を変更して、速い流速における吸着効率を求めることにする。ラドンソースから染み出すラドンの量が単位時間当たり一定であるとすると、吸着時間が同じであればラドントラップにたまるラドンの量は吸着効率にのみ依存し、流速には依存しなくなる。その後の操作による脱着、送り込み効率にも流速依存性がないため、ラドン検出器における信号のカウントレートは吸着効率に依存することになる。この実験ために必要な脱着効率と送り込み効率、ラドンソースの染み出し率についてまず評価する。

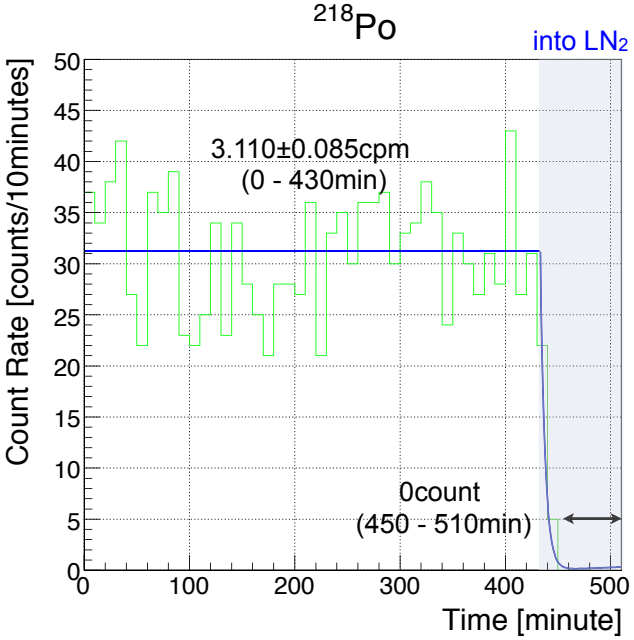

図 5.14: 1.0/min における吸着実験でのラドン検出器におけるカウントレートの時間推移。測定開始後 430 分より吸着を開始している。

脱着効率

脱着効率はテスト実験と同様に循環系で求められ、図 5.15 より 1.014 ± 0.029 と求められた。脱着によりラドンが増える事はないので上限値を 1.000 とすると、脱着効率は 1.000 ± 0.014 となる。

送り込み効率

送り込みを行う際は、ラドントラップの温度に注意する必要がある。送り込み時の温度を変えて実験した結果、ラドントラップの温度が -5°C 程度の場合に十分にラドンが脱着されていないことが判明した。よって送り込みは 10°C 程度までトラップ内の温度が自然昇温してから行うことにする。

後述するバックグラウンド測定において、ラドントラップに設置した熱電対がバックグラウンド源になることが判明した。しかし本実験は高いカウントレート下で測定を行っているので、熱電対のバックグラウンドは問題にならない。またラドントラップは吸着後、室温約 20 °C の環境では液体窒素から引き上げて約 60 分で 10 °C まで昇温することが分かったので、本測定以降熱電対無しに 60 分程度待つことでラドンを脱着させることにする。

実験の結果を図 5.16 に示す。この実験では循環系でラドンを計測した後、230 分よりラドントラップを液体窒素下に沈めている。320 分よりトラップの昇温を開始し、その後送り込み操作を行っている。循環系全体の体積を $2800 \pm 100 \mathrm{cm}^3$、検出器の体積を $2300 \pm 50 \mathrm{cm}^3$ として送り込み効率を求めた所 0.849 ± 0.038 と求められた。

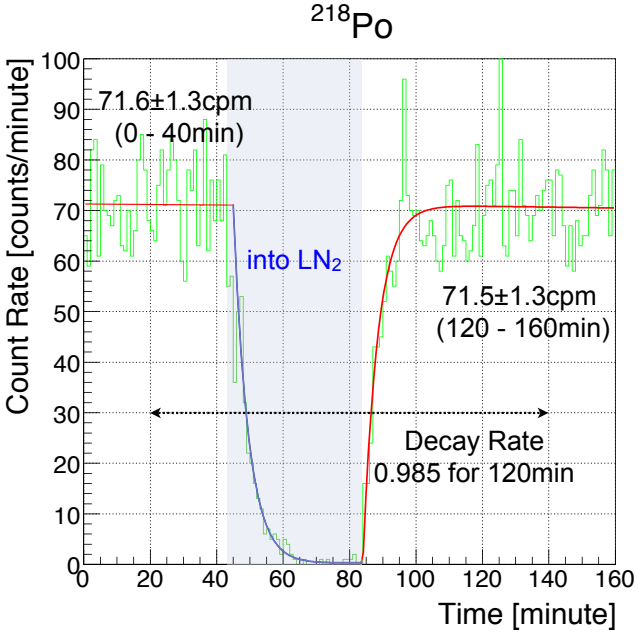

図 5.15: 脱着実験におけるラドン検出器のカウントレート

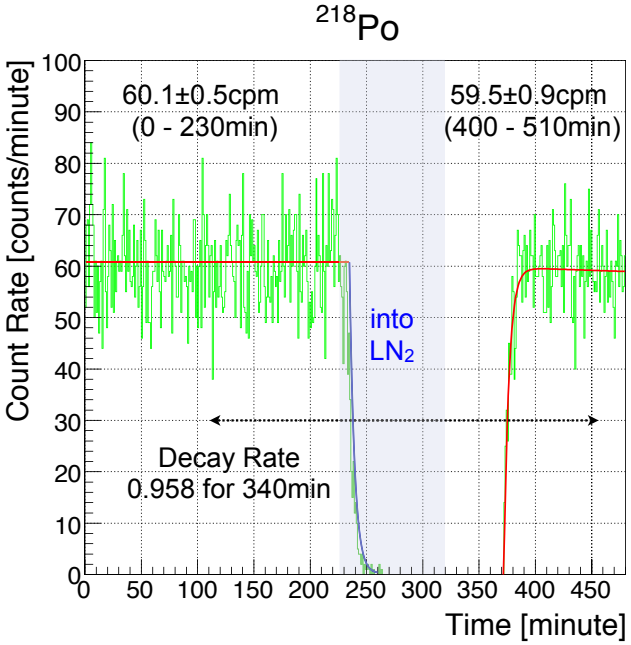

図 5.16: 送り込み実験

ラドンソースのラドン染み出し率

ラドンソースのラドン染み出し率は、系内のラドン濃度 [Bq/m^3] をガスの流速 [m^3/sec] で割って求められる。ここでは染み出し率に流速依存性がないかどうかも調べた。結果を表 5.2 にまとめる。ラドン濃度は Model1027 により求められており、これ以上の

流速 [l/min]	ラドン濃度 [Bq/m^3]	染み出し率 [Bq/sec]
0.5	173.1 ± 5.0	1.44 ± 0.04
1.0	93.1 ± 3.3	1.55 ± 0.06
2.5	46.4 ± 4.0	1.55 ± 0.13

表 5.2: ラドンソースのラドン染み出し率

流速では統計をためるのに時間がかかるため行わなかった。表 5.2 より染み出し率に流速依存性がないことが分かり、その最適推量値は 1.49±0.03Bq/sec と求められた。

吸着効率の流量依存性

以上の実験より吸着効率の流量依存性を求めるための条件が整った。

- 吸着効率 $\varepsilon_{trap} = 1.000 \pm 0.028$ (1.0l/min)
- 脱着効率 $\varepsilon_{desorp} = 1.000 \pm 0.014$
- 検出効率 $\varepsilon_{det} = 0.279 \pm 0.017$ (^{214}Po)
- ラドンの染み出し率 $E = 1.49 \pm 0.03$Bq/sec

吸着効率の流量依存性を求めるための実験手順を下記に示す。

1. あらかじめ吸着効率を求めたい流速で十分にラドンソースをパージし、出口側のガス中ラドン濃度を一定にする。
2. ラドントラップを液体窒素に沈め十分に冷やしておく。同時に窒素が液化しない様にポンプで負圧に引いておく。
3. 40 分間ラドントラップにガスを流し込み、ラドンを吸着させる。
4. 脱着、送り込み操作を行い、データ収集を開始する。

吸着効率の流量依存性の結果を図 5.17 に示す。6.0l/min 以上の流速において吸着効率の低下が見られる。また流速が速くなる程ラドントラップにおける圧力損失が高くなり、窒素が液化するという現象が見られた。今回の実験の様に短い時間であれば液化しても問題にならないが、長時間トラップする場合は 4.0l/min 以下で行う必要がある。4.0l/min の吸着効率は 0.977±0.095 と求められた。

各効率のまとめ

以上得られた各効率についてまとめる。

- 吸着効率 $\varepsilon_{trap} = 0.977 \pm 0.095$ (4.0l/min)
- 脱着効率 $\varepsilon_{desorp} = 1.000 \pm 0.014$
- 送り込み効率 $\varepsilon_{trans} = 0.928 \pm 0.067$

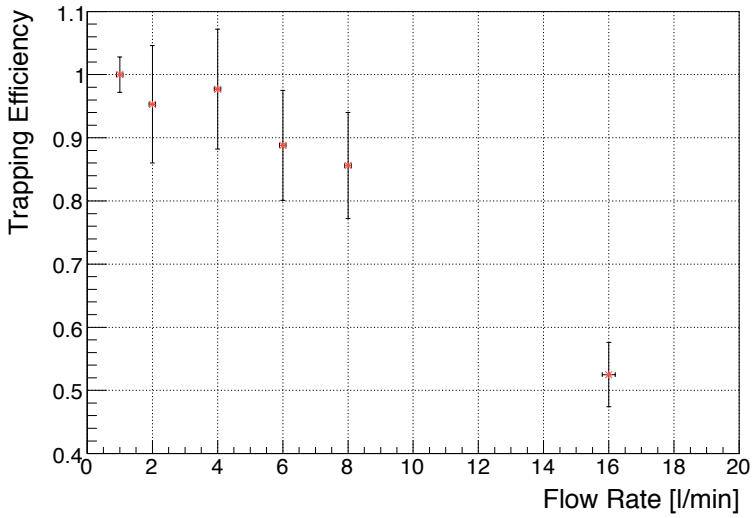

図 5.17: 吸着効率の流量依存性

5.3 バックグラウンド

以下の項目のバックグラウンド測定を行った。特定の装置のバックグラウンドが大きい場合は対策が必要となる。

- ラドン検出器
- ラドントラップ (熱電対無し)
- ラドントラップ (熱電対あり)
- オイルトラップとダイアフラムポンプ
- バブリングタンク

ダイアフラムポンプとバブリングタンクのバックグラウンドは、液体シンチレータ中のラドン濃度測定の際に影響してくる。

ラドン検出器

実験開始前に十分窒素パージし露点を-61.7°C まで下げた後、ラドン検出器のバルブを閉めてそのまま放置した。この測定は仙台の研究室で行われており、室内のラドン濃度は約 65Bq/m^3 である。結果、測定時間 0.903 日に対して ^{218}Po が 6 カウント (6.6±2.7cpd)、^{214}Po が 1 カウント (1.1±1.1cpd) 得られた。テスト装置のラドン検出器のバックグラウンド 284.4±17.7cpd(^{214}Po) に比べて、実機用のラドン検出器のバックグラウンドは格段に向上しているのが分かる。これは実機用のラドン検出器の漏れが非常に低いレベルであることを示しており、テスト用ラドン検出器のバックグラウンド測定で予想した漏れが無い場合のカウントレート 0.5cpd と一致している。また低エネルギー側にある ^{218}Po の方が ^{214}Po に比べて信号数が多い。これは低エネルギー

側にノイズが入り込み易いことを示しており、その原因としてラドンの娘核の β 線、PIN フォトダイオードのホワイトノイズ、また 5.1.1 節で説明した ^{212}Bi の影響が考えられる。高い検出効率を得るために ^{218}Po と ^{214}Po 両方の信号を使う事が考えられたが、低レベルのラドン濃度測定を目指しているためバックグラウンドは極力低い方が良く、今後は ^{214}Po によりラドン濃度を決定する事にする。

バックグラウンドの統計を増やし精度を良くするためには、更に測定時間を長くする必要がある。非常に低レベルの漏れの影響を更に小さくするため検出器全体を袋で多い、中に窒素を流し込みながらバックグラウンド測定を行った。この測定が行われた鉱山内のドームエリアにおけるラドン濃度は 30Bq/m^3 程度で、袋内の空間の酸素濃度を測った所 0.1%以下であったため内部のラドン濃度は $\frac{1}{200}$ 以下であることが予想される。測定結果は図 5.18 の様になり、測定期間 4.132 日に対して 4 カウントの ^{214}Po が検出されバックグラウンドは 1.0 ± 0.5cpd となった。検出器周りのラドン濃度を低濃度としても図 5.18 と同様の結果が得られたことから、漏れの影響は無視出来るレベルである事が分かる。ラドン検出器のバックグラウンドの原因としては、内面の電解研磨されたステンレス表面や配管とフィードスルーの溶接部分からのラドンの染み出しが考えられる。

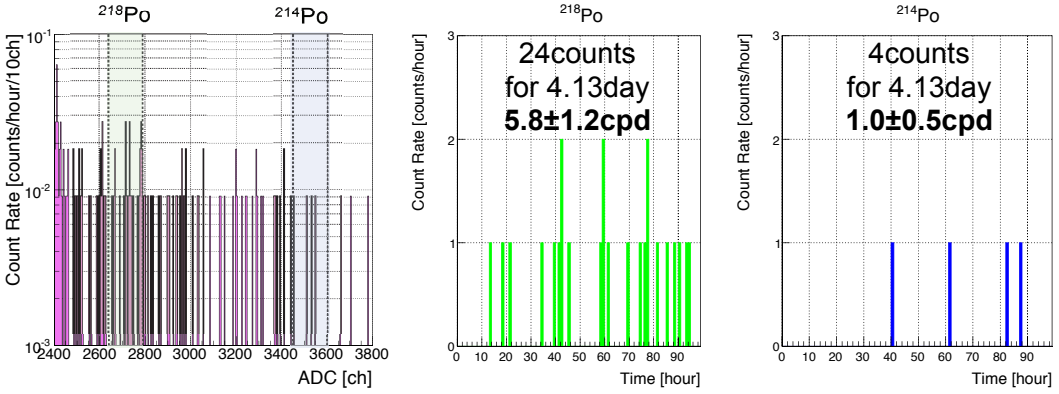

図 5.18: ラドン検出器のバックグランド。信号スペクトル (左)、^{218}Po、^{214}Po のカウントレート (右)。

低レベルのラドン濃度を調べる際は、半減期 3.8 日を考慮して測定期間を 4 日間程度とする。以上より、ラドン検出器のバックグラウンドは 1.0 ± 0.5cpd と求められた。

ラドントラップ (熱電対無し)

図 5.19 に実機用に製作されたラドントラップの外観を示す。ラドントラップは 1 インチと $\frac{1}{2}$ インチの銅管と、$\frac{1}{2}$ インチの電解研磨ステンレス管で構成され、銅部分が液体窒素下に沈められる。内部には銅ウールが 100g 入れてある。この銅トラップには熱電対用の入り口が付けられており、ラドントラップ内の温度を測る事が出来る様になっている。

熱電対を抜いた状態でラドントラップを十分に窒素パージしてバルブを閉じ 1.06 日放置し、その後内部のガスをラドン検出器へ送り込んでバックグラウンドを測定した。

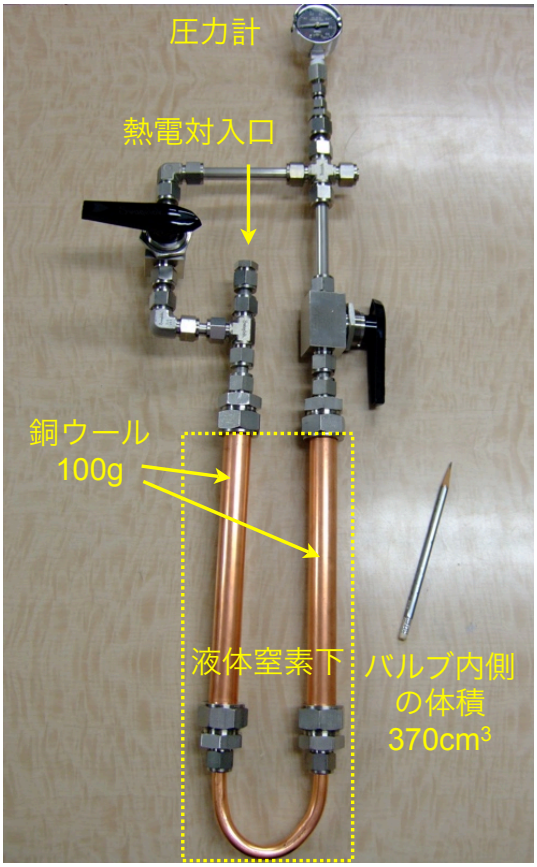

図 5.19: ラドントラップ容器

結果、測定期間 1.22 日に対して ^{214}Po は 0 カウントであった。これは銅管、銅ウール、バルブとの間の電解研磨ステンレス管によるラドンの染み出し率が非常に低いレベルである事を示している。

ラドントラップ (熱電対あり)

熱電対を設置してバックグラウンドを測定した。この熱電対は感温度がステンレス製で、全長 50cm ある。1.124 日ラドントラップ内を閉じ込め内部のガスを送り込んで測定した所、測定期間 0.586 日で 4 カウント (6.9±3.4cpd) の ^{214}Po が得られた。ラドン検出器のバックグラウンドは 1.0±0.5cpd に対して熱電対は有意にバックグラウンドとなっていることが判明したので、実機装置ではラドントラップに熱電対を設置しないことにする。

オイルトラップとダイアフラムポンプ

図 5.20 に実機用オイルトラップを示す。吸着効率の流量依存性実験より、ラドン濃度測定時の流速は 4.0l/min と決定した。テスト装置では $\frac{1}{4}$ インチ銅管 5.5m を使用し、

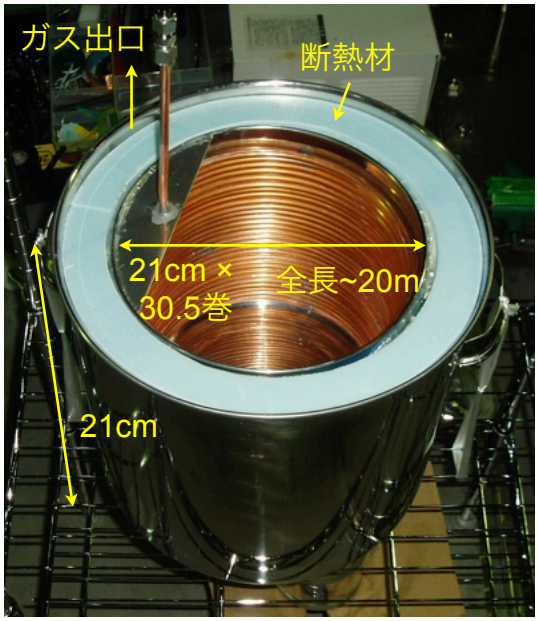

図 5.20: オイルトラップ

-40°C、1.0l/min で 99%以上の液体シンチレータをトラップ可能であるという結果が得られており、4.0l/min で必要な銅管の長さを単純に比で求めると 20m 程度の銅管が必要ということになる。よって実機装置では 20m の銅管を使用しオイルトラップを製作した。

この銅管をエタノール冷媒に沈めて冷却する。実機用に製作したオイルトラップは断熱性が高まっており、温度コントローラを用いて -47°C に調整出来る様になっている。オイルトラップは銅管とステンレス管 (ドレン) より構成されているため、バックグラウンド源にはなり得ないと予想される。

次にポンプについて説明する。ラドンの送り込みの際のラドントラップとラドン検出器の脱気、また循環系における系内ガスの循環のために、東京硝子器械社製のダイアフラムポンプ MX-808ST-S を使用した。このポンプの仕様は吐き出し風量 25l/min、吐き出し圧力 147kPa、到達真空圧力 -60kPa となっており、接ガス部材質はテフロンとステンレスでラドンの染み出しの少ない素材となっている。

液体シンチレータの測定は窒素ガス中のラドンの影響を出来る限り抑えるため、循環系で行う事を予定している。こうする事で使用する窒素ガス量を最小限に抑える事が出来、バックグラウンドの低減につながる。その際ポンプを使用する事になるので、そのバックグラウンドの影響をあらかじめ調べておく必要がある。

系内の各装置を十分にパージしておき、その後図 5.1 においてバブリングタンクをバイパスしてポンプ → オイルトラップ → ラドントラップで循環を行い、バックグラウンド測定を行った。後述する液体シンチレータ測定の際の条件、流速 4.0l/min で積算して 1375ℓ の窒素を流した。この時実際の測定と同様ラドントラップは液体窒素下にある。その後ラドントラップを昇温させ、検出器へガスの送り込みを行った。結果、測定時間 0.755 日に対して 3 カウントの信号 (4.0±2.3cpd) が得られた。

得られた結果はオイルトラップ、ポンプ、循環系の配管のバックグラウンドであり、検出器のバックグラウンドが 1.0±0.5cpd である事を考えると、これらのバックグラウンドの信号の影響は 3.0±2.4cpd となる。統計量が少ないためエラーが大きいが、無視出来ないレベルのバックグラウンドである可能性がある。

バブリングタンク

図 5.21: バブリングタンク (左) とバブラー (右)。バブラーには多孔質性のチューブを 10m 使用している。

図 5.21 が実機装置用に製作されたステンレス製バブリングタンクである。タンクの体積は 65ℓ で液体シンチレータを 55ℓ まで入れる事が出来る。内面はラドンの染み出しを防ぐために EVOH シートが張られてあり、極力バックグラウンドを抑える工夫がなされている。

内部には図 5.21 の右の写真に示す内径 4mm のバブラーが 10m 渦巻き状に設置されている。このバブラーは四フッ化エチレン単体の多孔質性材料からなるテフロンチューブで、酸やアルカリ、溶剤に安定である。内部に入れてある物質は EVOH シートに巻かれたステンレス配管、テフロンチューブ、フッ素樹脂性のコネクタ、チューブ固定用のナイロン製ケーブルタイと銅線で、ラドンの染み出しが少ない素材を選定してある。

更にタンクの外側には透明なテフロン性チューブが取り付けられてあり、タンク内の液の高さを蓋の開閉無しに確認出来る様になっている。この液面計で 55ℓ まで内部の液量を確認する事が出来る。目視で体積のエラーは 3%程度と見積もっている。またタンクの蓋部分は窒素の入出力と液体シンチレータの入出力、中央に開閉可能なフランジが取り付けられており、蓋とタンクはリークを抑えるために樹脂製の接着剤で固められて取り外しが出来ない様になっている。

オイルトラップとポンプに更にこのバブリングタンクを加えてバックグラウンドの測定を行った。本測定は液体シンチレータ測定の際のバックグラウンドとなり、液体

シンチレータ中のラドン濃度の測定限界を決定する重要な測定である。タンク内に液体シンチレータ 55ℓ を用意し十分に窒素パージを行った後、循環系において 4.0l/min の流速で 1375ℓ(液体シンチレータの 25 倍の体積) のバブリングを行った (図 5.1 の循環系)。その後ラドントラップを昇温し、検出器へガスを送り込んだ。結果、測定時間 3.900 日で 30 カウントの信号 (7.7±1.4cpd) が得られた。バブリングタンク無しのバックグラウンド測定結果は 4.0±2.3cpd であったので、バブリングタンクのバックグラウンドの影響は 3.7±2.3cpd となり、これも無視出来ないレベルであることが確認された。

バックグラウンドレートのまとめ

以上より求められたバックグラウンドレートをまとめる。ここで熱電対、オイルトラップとポンプ、バブリングタンクのバックグラウンドレートは実際の測定で得られたレートであり、検出器のバックグラウンドも含んでいる事になる。バブリングタンクのバックグラウンドは液体シンチレータ測定の際のバックグラウンドとなる。

装置	バックグラウンドレート [cpd]
ラドン検出器	1.0 ± 0.5
ラドントラップ	0
熱電対	6.9 ± 3.4
オイルトラップとポンプ	4.0 ± 2.3
バブリングタンク	7.7 ± 1.4

表 5.3: 実機用装置のバックグラウンドレートのまとめ

5.4　ラドン測定

ここでは実機装置を用いて行われた様々なラドン測定について述べる。本研究で開発されたラドン装置は

- 物質からのラドンの染み出し率
- 気体中のラドン濃度
- 液体シンチレータ中のラドン濃度

を測定することが出来る。液体シンチレータ中のラドン濃度を測定することが第一の目的であるが、窒素バブリングによってガス中にラドンを抽出するという手順を踏んでいるため、この様に様々なラドン測定を行うことが可能となっている。

5.4.1 物質のラドンの染み出し率

物質のラドンの染み出し率を求めることには以下の意義がある。

1. 開発したラドン測定装置系のバックグラウンド抑制のための材料選定
2. KamLAND を初めとする低バックグラウンド検出器の構成材料選定への有用な情報

物質を密閉容器に保存し、一定期間経った後検出器へ内部のガスを送ることでラドンを検出し、物質のラドンの染み出し率を求める。

熱電対

熱電対のラドン染み出し率の測定は 5.3 節で述べた通りであり、ここでは得られたカウント数からラドンの染み出し率を求める方法を説明する。

ラドンの染み出し率を E[Bq/day]、ラドンの崩壊率を λ_1[day^{-1}] $(= \frac{ln2}{T_{\frac{1}{2}}})$ とすると、時刻 t_1[day] におけるトラップ容器内のラドン濃度 $C(t_1)$[Bq] は

$$\begin{aligned} \frac{dC(t_1)}{dt_1} &= E - \lambda_1 C(t_1) \\ C(t_1) &= \frac{E(1-e^{-\lambda_1 t_1})}{\lambda_1} \end{aligned} \tag{5.2}$$

と表される。実際に測定されるカウントレートはトラップ内のラドン濃度に送り込み効率と検出効率を掛けて $C(t_1)\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det}$ となる。

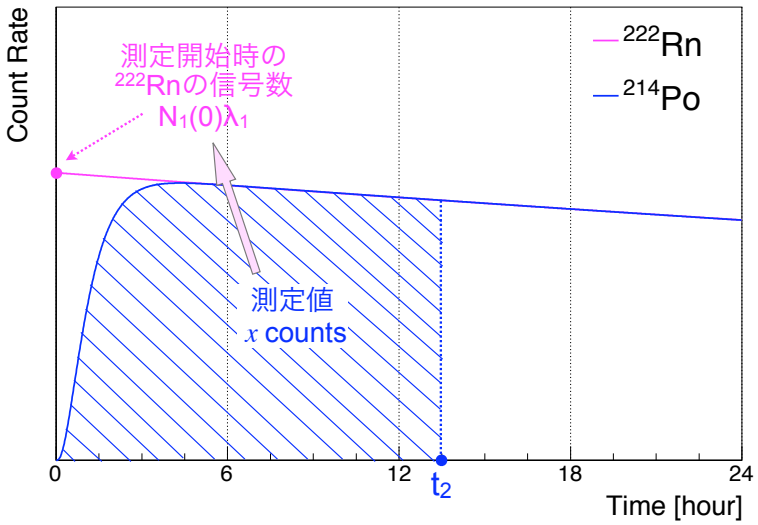

図 5.22: 測定値と ^{222}Rn の信号数の関係

検出器では ^{214}Po の信号を測定しており、これより ^{222}Rn の信号数を求める。図 5.22 に示す様に検出器のバックグラウンドを差し引いて測定時間 t_2 で x カウントの ^{214}Po

が得られる時、測定開始時における ^{222}Rn の信号数 $N_1(0)\lambda_1$ をまず求める。

$$\begin{aligned} x &= \int_0^{t_2} (equation\ of\ radioactive\ equilibrium\ of\ ^{214}Po)\ dt \\ &= N_1(0)\lambda_1\lambda_2\lambda_3\lambda_4(\frac{1-e^{-\lambda_1 t_2}}{C_1\lambda_1} + \frac{1-e^{-\lambda_2 t_2}}{C_2\lambda_2} + \frac{1-e^{-\lambda_3 t_2}}{C_3\lambda_3} + \frac{1-e^{-\lambda_4 t_2}}{C_4\lambda_4}) \end{aligned} \tag{5.3}$$

ここで式 (5.3) で付録 E に示す ^{214}Po の放射平衡式 (E.6) を積分している。λ_1、λ_2、λ_3、λ_4 の値はそれぞれ 0.1813、322、37.2、50.2[day^{-1}]、C_1、C_2、C_3、C_4 の値はそれぞれ 5.961×10^5、-2.491 $\times 10^7$、-1.363 $\times 10^5$、1.755×10^5 である。

この式より $N_1(0)$ が求まり、$N_1(0)\lambda_1$ が得られる。測定開始時における ^{222}Rn の信号数 $N_1(0)\lambda_1$ は

$$\frac{N_1(0)\lambda_1}{86400}[\mathrm{cps}] = C(t_1)\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det} \tag{5.4}$$

と表されるので、式 (5.2)、(5.3)、(5.4) よりラドンの染み出し率 E を求めることが出来る。

$$\begin{aligned} E = &\frac{\lambda_1 x}{86400\lambda_2\lambda_3\lambda_4\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det}} \times \\ &(1-e^{-\lambda_1 t_1})^{-1}(\frac{1-e^{-\lambda_1 t_2}}{C_1\lambda_1} + \frac{1-e^{-\lambda_2 t_2}}{C_2\lambda_2} + \frac{1-e^{-\lambda_3 t_2}}{C_3\lambda_3} + \frac{1-e^{-\lambda_4 t_2}}{C_4\lambda_4})^{-1} \end{aligned} \tag{5.5}$$

また ^{214}Po が放射平衡に達する時間に対して測定時間が十分に長い場合、式 (5.3) で ^{214}Po の放射平衡式を ^{222}Rn の崩壊式 $e^{-\lambda_1 t}$ と見なして式 (5.4) を以下の様に近似することも出来る。

$$E = \frac{\lambda_1^2 x}{86400\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det}(1-e^{-\lambda_1 t_1})(1-e^{-\lambda_1 t_2})} \tag{5.6}$$

5.3 節で熱電対のバックグラウンドは 4count/0.576day (6.9±3.4cpd)) と得られ、これから検出器のバックグラウンドの寄与 1.0±0.5cpd を差し引いて熱電対のラドンの染み出し率を求めることが出来る。閉じ込め時間 $t_1 = 1.124$day、測定時間 $t_2 = 0.576$day、x = 4 - (1.0±0.5) ×0.576 count、ε_{trans} = 0.928±0.067、ε_{det} = 0.279±0.017 より、熱電対のラドンの染み出し率 $E = (3.0 \pm 1.8) \times 10^{-4}$[Bq/day] と求められた。

仮に閉じ込め時間 1 日、測定時間 1 日で 1 カウントの信号が得られるとすると、その染み出し率は 5.6×10^{-5}[Bq/day] となる。よってバックグラウンドの寄与を無視出来るレベルは 10^{-6} 以下ということになる。この許容レベルと比較すると熱電対はラドン測定系に使用出来ないことが分かる。

モレキュラーシーブ 13X

モレキュラーシーブ 13X は液体シンチレータを吸着可能であるため、オイルトラップの候補に挙げられた。ラドンの染み出し率が少なければ使用出来る可能性がある。

モレキュラーシーブを図 5.23 の様な容器の中に設置した。ラドントラップ容器と酷似しており、下部は銀ロウ付けにより加工されている。モレキュラーシーブのバックグラウンドを求めるためには、まずこの容器のバックグラウンドを調べる必要がある。1.328 日ガスを封じた後に検出器に送り込んで 0.838 日測定した所 1 カウント

図 5.23: ラドンの染み出し率測定のための容器

(1.2±1.2cpd) の信号が得られた。この結果は検出器のバックグラウンドレベルであるため、銀ロウ付けによるバックグラウンドの影響はないものとして話を進める。

モレキュラーシーブ 107.5g を容器内に設置し、1.858 日閉じ込めた後内部のガスをラドン検出器に送り込んだ所、測定時間 0.631 日で 68 カウント (108±12cpd) の信号が得られた。熱電対と同様にモレキュラーシーブのラドンの染み出し率を求めると、$(3.5 \pm 0.5) \times 10^{-3}$ [Bq/day/100g] と求められた。これは許容レベルより 3 桁大きい染み出し率であるため、オイルトラップには使用出来ないことが判明した。

物質からのラドンの染み出し率の測定限界

トラップ容器内に物質を閉じ込めた時、容器内のラドン濃度は図 4.21 の様に約 1ヶ月で平衡状態に達する。ここではトラップ容器内のラドン濃度を平衡状態になるまで閉じ込め、4 日間の測定を行った場合の測定限界について論じる。式 (5.5) において $t_1 = \infty$、$t_2 = 4$ とすると、ラドンの染み出し率と信号数の関係は

$$E = (2.87 \pm 0.27) \times 10^{-6}[(\mathrm{Bq/day})/(\mathrm{counts/4days})] \tag{5.7}$$

となる。物質からのラドン起源の信号を N_S、バックグランドを N_N とすると、信号の統計エラーの割合は式 (4.14) より $\frac{\sqrt{N_S+2N_N}}{N_S}$ となるので、ラドンの染み出し率は

$$E = 2.87 \times 10^{-6} N_S \ (1 \pm \sqrt{0.094^2 + \frac{N_S + 2N_N}{N_S^2}}\ ) \tag{5.8}$$

と表される。よって 2σ でラドンを検出するための条件は

$$1 \geq 2\sqrt{0.094^2 + \frac{N_S + 2N_N}{N_S^2}} \tag{5.9}$$

となり、$N_N = 4$ を代入すると $N_S \geq 8.2$ と得られる。よって式 (5.7) より 2σ の測定限界は 24μBq/day と得られた。

5.4.2　窒素ガス

高純度窒素製造設備の窒素ガス

太陽ニュートリノ検出のため新たに建設された高純度窒素製造設備による窒素ガス中のラドン濃度を測定した。この窒素ガスは第二純化装置の窒素パージ塔で使用されるため、液体シンチレータ中のラドン濃度が 1mBq/m^3 以下であるためには 20μBq/m^3 以下である必要がある。ここでラドンが液体シンチレータに約 50 倍溶け込むものとして計算している。高純度窒素製造設備の窒素ガス中の設計ラドン濃度は 5μBq/m^3 であり、正しく高純度の窒素が製造されているか検証する。また液体シンチレータ中のラドン濃度を測定する際バブリング用にこの窒素を使用する予定であるため、そのバックグラウンド量を見積もるという点においてもこの測定は重要となる。

測定では 5.2 節で述べた吸着効率の流量依存性実験で得られた結果より 4l/min で 1 日ラドンをトラップする。濃縮される窒素体積は流量計の誤差を含め $5760\pm144\ell$ となる。窒素ガスの流速を F[m^3/day]、ラドン濃度を R[Bq/m^3] とすると、式 (5.2) と同様に時刻 t_1[day] におけるトラップ容器内のラドン濃度 $C(t_1)$ は

$$\begin{aligned} \frac{dC(t_1)}{dt_1} &= FR\varepsilon_{trap} - \lambda C(t_1) \\ C(t_1) &= \frac{FR\varepsilon_{trap}(1 - e^{-\lambda t_1})}{\lambda} \end{aligned} \tag{5.10}$$

と表される。トラップ終了後の脱着と送り込み操作に要する時間によるラドンの崩壊率 D を考慮すると、検出器で得られるカウントレートは

$$\frac{N_1(0)\lambda_1}{86400}[\text{cps}] = C(t_1)\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det}D \tag{5.11}$$

となる。以上、式 (5.3)、(5.10)、(5.11) より窒素中のラドン濃度 R[Bq/m^3] が求められる。

$$\begin{aligned} R = \frac{\lambda_1 x}{86400F\lambda_2\lambda_3\lambda_4\varepsilon_{trap}\varepsilon_{desorp}\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det}D} &\times \\ (1 - e^{-\lambda_1 t_1})^{-1}&(\frac{1 - e^{-\lambda_1 t_2}}{C_1\lambda_1} + \frac{1 - e^{-\lambda_2 t_2}}{C_2\lambda_2} + \frac{1 - e^{-\lambda_3 t_2}}{C_3\lambda_3} + \frac{1 - e^{-\lambda_4 t_2}}{C_4\lambda_4})^{-1} \\ = -\frac{(1.444 \pm 0.200) \times 10^{-11}x}{D}&\ (\frac{1 - e^{-\lambda_1 t_2}}{C_1\lambda_1} + \frac{1 - e^{-\lambda_2 t_2}}{C_2\lambda_2} + \frac{1 - e^{-\lambda_3 t_2}}{C_3\lambda_3} + \frac{1 - e^{-\lambda_4 t_2}}{C_4\lambda_4})^{-1} \end{aligned} \tag{5.12}$$

また式 (5.6) 同様に近似式は

$$\begin{aligned} R &= \frac{\lambda_1^2 x}{86400 F \varepsilon_{trap} \varepsilon_{desorp} \varepsilon_{trans} \varepsilon_{det} D} (1 - e^{-\lambda_1 t_1})^{-1} (1 - e^{-\lambda_1 t_2})^{-1} \\ &= \frac{(1.575 \pm 0.217) \times 10^{-6} x}{D(1 - e^{-\lambda_1 t_2})} \end{aligned} \tag{5.13}$$

となる。

測定の結果、測定時間 4.106 日で 8 カウント (1.9±0.7cpd) の信号が得られた。脱着と送り込み操作にかかった時間 120 分を考慮すると (崩壊率 0.985)、ラドン濃度は 12±11[μBq/m^3] と求められ、設計ラドン濃度 5μBq/m^3 とエラーの範囲内で一致した。この測定結果より、高純度窒素製造設備で製造された窒素は純化に使用可能であると結論される。

このラドン濃度は本研究で開発されたラドン検出器の測定限界レベル (1σ) であるため、より低レベルのラドン濃度を測定するためには 1 日以上トラップを続けるか、4.0l/min 以上の流速で窒素ガス中のラドンを濃縮する必要がある。仮に 2 日間トラップした場合同じ数の信号が得られるとすると、ラドン濃度は 7±6μBq/m^3 となる。また窒素の液化を無視した場合、更に流速を上げた場合のラドン濃度は表 5.4 の様になる。

流速 [l/min]	吸着効率	濃縮量 [m^3]	ラドン濃度 [μBq/m^3]
4.0	0.977±0.095	5.76	12±11
6.0	0.888±0.087	8.64	9±8
8.0	0.856±0.084	11.5	7±6
16.0	0.525±0.051	23.0	6±5

表 5.4: 窒素中のラドン濃度の測定限界の流速依存性

KamLAND 検出器手前の窒素ガス

KamLAND 検出器のバルーンを満たしている液体シンチレータの上部は、酸素濃度の抑制と空気中のラドンの侵入を防ぐために窒素パージが行われている。この窒素ガスは高純度窒素製造設備で作られたもので、KamLAND 検出器手前におけるラドン濃度が高いと純化後の液体シンチレータにラドンが溶け込み ^{210}Pb が増加するため、液体シンチレータを純化した意味が失われてしまう。よってそのラドン濃度を測定する必要がある。

高純度窒素製造設備のガス中のラドン濃度は既に測定済みであるが、図 5.24 の様に高純度窒素製造設備から KamLAND 検出器手前の窒素ガスをサンプリングしたポートまで、長さ約 103m の $\frac{1}{2}$ インチのステンレス製電解研磨 (表面積 1.68m^2) が存在し、その後ろに表面積 0.71m^2 の内面が電解研磨されていないステンレス製の窒素用バッファータンクがあるため、この部分からのラドンの染み出しによるラドン濃度の増加が懸念される。

KamLAND 検出器の直前にある配管ポートから窒素を分岐し、そのラドン濃度を測定した。方法は高純度窒素製造設備の窒素ガス測定と同じである。結果、1.934 日

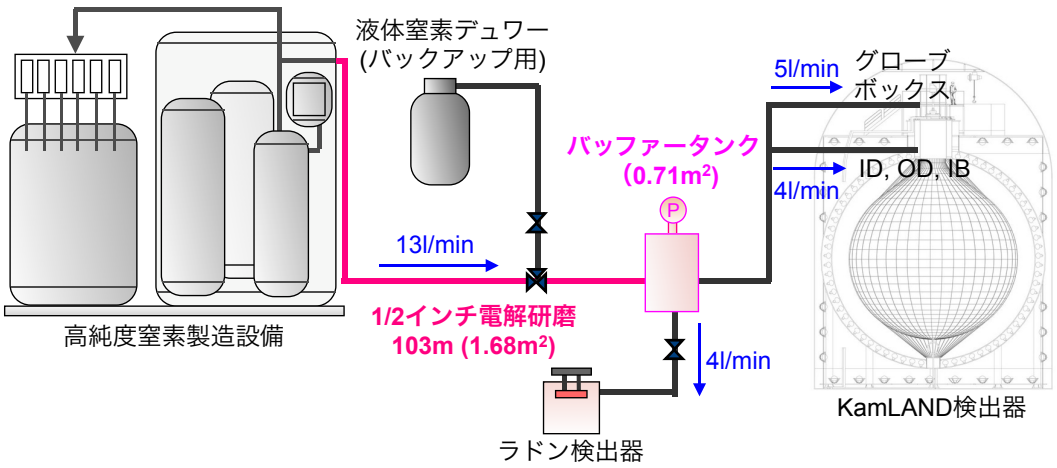

図 5.24: 高純度窒素製造設備から KamLAND までの配管ライン

の測定で 29 カウント (15±3cpd) の信号が得られた。脱着 · 送り込み操作に要した 94 分を考慮すると、ラドン濃度は $150 \pm 40\mu\mathrm{Bq/m^3}$ と得られた。高純度窒素ガスのラドン濃度 $12 \pm 11\mu\mathrm{Bq/m^3}$ を差し引くと、物質の染み出しに起因するラドン濃度は $140 \pm 40\mu\mathrm{Bq/m^3}$ となる。

得られたラドン濃度が高純度窒素設備の窒素ラドン濃度に比べて高い原因の一つとしてリークが考えられるが、リークを確認するためにバックグラウンド測定を行っており、リークレートは $< 10^{-8}\mathrm{Pa \cdot m^3/sec}$ と得られその可能性は排除される。よってこのラドン濃度はステンレス表面からのラドンの染み出しによるものと考えられ、その値がステンレスの染み出し率から考えて妥当であるか考察する。

BOREXINO 実験で測定された電解研磨ステンレスのラドンの染み出し率の上限値 15.6[decay/day/m^2][30] を図 5.24 のステンレス製電解研磨配管 (表面積 0.71m^2) に、また一般のステンレス表面の染み出し率 1.6 $\times 10^2$[decay/day/m^2](付録 H 参照) をバッファータンク (表面積 0.71m^2) に適用し、全体で使用されている窒素 13l/min の内 4l/min をラドン測定用に使用していることを考慮すると、ラドンの染み出しによるバックグラウンドは

$$
\begin{aligned}
&(1.68 \times 15.6 + 0.71 \times 160) \times \varepsilon_{trap}\varepsilon_{desorp}\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det} \times \frac{4}{13} \\
&= 140 \times (0.977 \pm 0.095) \times (1.000 \pm 0.014) \times (0.928 \pm 0.067) \times (0.279 \pm 0.017) \times \frac{4}{13} \\
&= 11 \pm 1[\mathrm{cpd}] \qquad (5.14)
\end{aligned}
$$

と得られる。本測定結果 15±3cpd より高純度窒素製造設備の出口における窒素ガス測定のバックグラウンド 1.9±0.7cpd を差し引くと 13±3[cpd] の信号が得られるため、求めたステンレスのラドンの染み出し率と測定結果が一致していることが分かる。

第二純化装置エリアにおける窒素ガス

高純度窒素製造設備より第二純化装置まで、窒素は呼び径 25A(内径 2.76cm) のステンレス製電解研磨約 100m(表面積 8.67m^2) を通じて送られる。この間にラドン濃度の増加が無いかを調べるため、第二純化装置入口において窒素中のラドン濃度を測定した。

結果、測定時間 4.298 日で 13 カウント (3.0±0.8cpd) の信号が得られ、脱着 · 送り込み操作に要した 70 分によるラドン崩壊率 0.9912 を考慮するとラドン濃度は 26±13 μBq/m^3 となった。

窒素はパージ塔に 30m^3/hour、ラドン測定用に 0.24m^3/hour(4.0l/min) 使用しているので、ステンレス表面からのラドンの染み出しの影響は

$$\begin{aligned} & 15.6[\mathrm{decay/day/m^2}] \times 8.67[\mathrm{m^2}] \times \varepsilon_{trap}\varepsilon_{desorp}\varepsilon_{trans}\varepsilon_{det} \times \frac{0.24}{30.0} \\ & = 0.274 \pm 0.037[\mathrm{cpd}] \end{aligned} \tag{5.15}$$

となり、測定で得られた信号数に対して無視出来るレートであることが分かる。

本測定結果は高純度窒素製造設備における窒素中のラドン濃度 $12 \pm 11\mu$Bq/m^3 とエラーの範囲内で一致し、第二純化装置における窒素純度はその使用において問題無い事が判明した。

窒素ボンベ

テスト測定として、容積 47l、充填圧力 14.7MPa(大気圧換算で体積 7000ℓ) の窒素ボンベ中のラドン濃度を測定したので紹介する。

測定時間 1.083 日で 85 カウント (79±9cpd) の信号が得られ、脱着と送り込み操作に要した 82 分でのラドン崩壊率 0.9897 を考慮すると、ラドン濃度は 780±140μBq/m^3 となった。窒素ボンベは内部のラドンの染み出しによってラドン濃度が平衡状態に達していると考えられ、窒素ガス測定の中では最も高いラドン濃度が得られた。

窒素ガス中のラドン濃度の測定限界

窒素ガス中のラドン濃度の測定限界 (2σ) について述べる。ラドンのトラップ時間 (t_1) を 1 日、測定時間を 4 日 (t_2) とすると、式 (5.12) よりラドン濃度 R は

$$R = (3.08 \pm 0.43) \times 10^{-6}[(\mathrm{Bq/m^3})/(\mathrm{counts/4days})] \tag{5.16}$$

となる。物質のラドンの染み出し率の測定限界を求めた場合と同様に、窒素ガス中のラドン起源の信号を N_S、バックグランドを N_N とすると、そのラドン濃度は

$$R = 3.08 \times 10^{-6} N_S \ (1 \pm \sqrt{0.139^2 + \frac{N_S + 2N_N}{N_S^2}} \ ) \tag{5.17}$$

と表される。よって 2σ の測定限界が得られる条件は

$$1 \geq 2\sqrt{0.139^2 + \frac{N_S + 2N_N}{N_S^2}} \tag{5.18}$$

となり、$N_N = 4$ を代入して $N_S \geq 8.4$ と求められる。よって式 (5.16) より測定限界は $26\mu\mathrm{Bq/m^3}$ と得られた。

5.4.3　液体シンチレータ

純化後の液体シンチレータを測定するために、液体シンチレータ中のラドン濃度と検出器で得られる信号の較正を行う。測定は図 5.1 の様な循環系で行い、窒素ガス中のラドンの影響を極力抑える。

抽出効率

実機用に製作されたバブリングタンクによるラドンの抽出効率を評価した。初めにバブリングタンクに液体シンチレータ 55ℓ を入れ、内部にラドンソースを通してガスを流しラドンを溶かし込む。放射平衡を待った後 150ml の液体シンチレータを抜き取り測定し、55ℓ の 25 倍の 1375ℓ の体積分窒素パージを行い、その後放射平衡を待った後に 150ml を取って再度測定を行った。

2 つのサンプルの測定結果はバブリング直前のラドン濃度が (0.237±0.005)Bq、バブリング終了時のラドン濃度が (0.0307±0.0024)Bq となったので、抽出効率は

$$\begin{aligned} (0.237 \pm 0.005) \ \times \ \frac{54850}{55000} \times (1 - \varepsilon_{extract}) &= 0.0307 \pm 0.0024 \\ \varepsilon_{extract} &= 0.870 \pm 0.011 \end{aligned} \tag{5.19}$$

と求められた。

現在までに 3 種類のバブラーによる抽出効率が得られている。それぞれ 150ml、1ℓ、55ℓ の液体シンチレータのバブリング用で、抽出効率はそれぞれ 0.873±0.004、0.852±0.006、0.870 ± 0.011 と求められている。エラーは ^{214}Po の α 線測定の統計エラーである。体積が異なる液体シンチレータを異なる流速とバブラーでバブリングしても抽出効率は数%以内で安定して得られており、抽出効率はほとんどバブリングする窒素体積に依存していることが分かる。但しどの測定でも十分細かな気泡が発生するバブラーを使用しており、単純にガスを流してこの抽出効率が得られるかどうかは定かではない。本研究ではそれらの厳密な条件を求めるは必要なく、25 倍の体積で窒素パージした際に安定した抽出効率が得られれば良い。

ラドン濃度の較正

十分に液体シンチレータを窒素パージ後、150ml のラドン濃度を測定済みの液体シンチレータをバブリングタンクに溶かし、55ℓ の既知ラドン濃度である液体シンチレータを用意した。流速 4.0l/min で 55ℓ の 25 倍の体積である 1375ℓ の窒素で液体シンチレータをパージし、トラップ終了後吸着剤であるモレキュラシーブ (3A と 13X を混ぜ合わせたもの) 19.5g を通じて検出器へガスを送り込む。

用意した液体シンチレータのラドン濃度は $(3.11 \pm 0.26) \times 10^{-2}\mathrm{Bq}/55\ell = (565 \pm 26)\mathrm{mBq/m^3}$ で、測定時間 0.553 日に対して 251 カウントの信号 (456±29cpd) が得ら

れた。液体シンチレータ中のラドン濃度のバックグラウンドレート 7.7 ± 1.4cpd と、トラップ終了から測定開始までに要した 108 分によるラドンの崩壊率 0.9865 を考慮すると、得られた効率は 0.193±0.015 となった。

更に連続して 2 回目の測定を行った。液体シンチレータのラドン濃度は抽出効率と経過した時間より $(3.52 \pm 0.17) \times 10^{-3}\mathrm{Bq}/55\ell = (63.9 \pm 3.1)\mathrm{mBq/m^3}$ と求められて、測定時間 1.573 日で 85 カウント (54±6cpd) の信号が得られた。ラドンの崩壊率 0.9870(104min) を考慮し、効率は 0.183±0.025 と得られた。

2 回の測定で得られた効率の最適推量値は 0.191±0.013 となり、個別に求めた各効率の積による全効率 0.220 ± 0.031 とエラーの範囲内で一致し、液体シンチレータ中のラドン濃縮の過程を正しく理解出来ていることが分かる。

テスト純化時における液体シンチレータ中のラドン濃度

液体シンチレータの原料であるプソイドクメン、ドデカン、PPO を第二純化装置に送り込みテスト純化が始まった。この時点で KamLAND 検出器からの液体シンチレータはまだ第二純化装置には送られていない。バブリングタンクを第二純化装置に持ち込み第二純化装置の混合タンクから液体シンチレータをサンプリグし、その後バブリングタンクを KamLAND 検出器のあるドームエリアに運び液体シンチレータのバブリングを行う。

サンプリング時の様子を図 5.25 に示す。空のバブリングタンクを 5l/min で 2~3 時間程度窒素パージした後、混合タンクのサンプリングポートから液をバブリングタンクに移す。サンプリングポートとバブリングタンクはステンレス製電解研磨管で接続されており、配管中のガスと液抜きのためにサンプリング直前に 1ℓ 程度液を抜き取ってから開始する。バブリングタンクは混合タンク内の液面の高さより低いため、バルブを開閉するだけで液は重力によって自然にタンクに流れ込む。流量は 0.5l/min 程度で 55ℓ を採取するのに 110 分程度を要する。サンプリング時バブリングタンク周りは窒素パージを行いリークによるラドンの混入を防いでおり、またタンクの出口ガスはシールポッドを通して排気するので空気の逆流を防ぐ事が出来る。

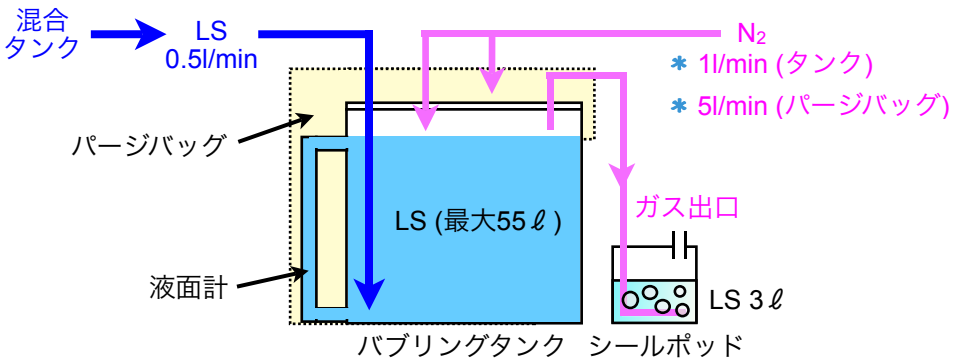

図 5.25: 第二純化装置における液体シンチレータのサンプリング

液体シンチレータの体積 $V(55\ell \pm 3\%)$、効率を $\varepsilon(0.191 \pm 0.013)$、サンプリング終了からバブリング開始までの時間によるラドン崩壊率を D_1、脱着と送り込み操作に

要する時間によるラドン崩壊率を D_2、測定開始時における ^{222}Rn のカウントレートを C[cps] とすると、ラドン濃度 R[Bq/m^3] は

$$RV\varepsilon D_1 D_2 = C \tag{5.20}$$

より求められる。仮に測定期間を 4 日間とした場合、ラドン濃度は

$$R = (4.0 \pm 0.4) \times 10^{-4} [(\mathrm{Bq/m^3})/(\mathrm{counts/4days})] \tag{5.21}$$

となる。

液体シンチレータの測定結果と、測定時の第二純化装置の稼働状況を表 5.5 にまとめる。本測定が行われた段階において第二純化装置は PPO を除きテスト稼働しており、PC と NP は蒸留された後混合タンクへ運ばれ、その後窒素パージされてバッファータンクに戻った後再び蒸留される (図 3.11 参照)。

測定番号	サンプル量 [ℓ]	シールガス	蒸留の循環	ラドン濃度 [Bq/m^3]
1	55	×	○	16.7±1.3
2	55	○	×	1.44±0.13
3	55	○	○	0.28±0.04
4	15	○	○	0.44±0.07
5	0	-	-	(0.040±0.007)

表 5.5: テスト純化時における液体シンチレータ中のラドン濃度。5 番目の測定はバックグラウンド測定で、ラドン濃度は 55ℓ に換算して求めている。

表 5.5 において、測定番号順に状況を説明する。

1. 混合タンクの気相部にシールガスが流れていない状態の測定。蒸留の循環は行われている。

2. 1 回目の測定でラドン濃度が非常に高いレベルであることが判明し、混合タンクにシールガスを流した所ラドン濃度の減少が確認された。蒸留の循環はされておらず、混合タンクに液が保持されている状態。

3. シールガス、蒸留の循環が共に行われている状態。ラドン濃度が予想より随分高かったため、サンプル量を減らしてラドン濃度が正しく求められているか確認する事とした。

4. サンプル量 15ℓ の測定。若干 3 回目の測定より高い濃度が得られているが、本測定と併せて液体シンチレータのラドン濃度は数百 mBq/m^3 であることが判明した。

5. バックグラウンド測定。バブリングタンクを空にした状態で、55ℓ の測定時と同じ条件で測定を行った。1~4 回目の測定のラドン濃度はバックグラウンドのカウントレートを差し引いて求めてある。

液体シンチレータ測定時のバックグラウンドは 5.3 節より 7.7±1.4cpd と求められているが、本測定におけるバックグラウンドは 37.1±4.5cpd であった。5.3 節のバックグラウンド測定ではバブリングタンクの移動を行っておらず、液体シンチレータのサンプリング作業によるラドンの混入が予想される。以下にその原因となる可能性がある項目を並べる。

- サンプリング前にバブリングタンク内に残っている液の影響。
- バブリングタンクの移動中のラドンの混入。
- パージに使用する窒素の純度。

サンプリング開始前にバブリングタンク内の液抜きを行っており、若干量の液がそのまま内部に残ってしまう。この時液中にラドンが溶け込んでしまう可能性があるがサンプリング前に十分窒素パージを行っており、仮に残存液中のラドン濃度が高くても接ガス部よりラドンが抜けていると期待している。またバブリングタンクの移動に要する時間は 10 分以内であり、この時タンク内は数 kPa の正圧となっている。ラドンの混入の可能性については別測定で確かめており、数百 $\mathrm{Bq/m^3}$ の鉱山空気中に 55ℓ の液体シンチレータが入ったバブリングタンクを 4 時間放置後測定を行っている。結果 50.5 ± 8.9cpd の信号が得られ (0.049±0.011$\mathrm{Bq/m^3}$)、若干のラドンの混入が確認された。しかし鉱山空気に接している時間は十分に短いため、ラドン混入の影響は少ないものと考えられる。またパージに使用した窒素純度は 5.4.2 節で述べた様に高純度である事が確認されている。

以上より現段階でバックグラウンドの原因は特定されていないが、テスト純化時における液体シンチレータ中のラドン濃度は有意に高い事が確認されている。ラドン濃度は混合タンクにシールガスを流した際に減少が確認されているため、混合タンク周りの漏れが懸念される。しかし混合タンク後窒素パージが行われラドンは除去されるので、今後窒素パージ後の液体シンチレータを測定を行いラドン濃度を確認する予定となっている。

液体シンチレータ中のラドン濃度の測定限界

以下の条件を元に液体シンチレータ中のラドン濃度の測定限界を求める。

- 測定期間 4 日間
- 液体シンチレータの体積 $0.055\mathrm{m^3} \pm 3\%$
- 効率 0.191±0.013
- バックグラウンド 7.7±1.4cpd
- 4 日間の平均ラドン崩壊率 0.711

液体シンチレータの体積と効率、バックグラウンドと信号の統計エラーを考慮すると、2σ の有意さでラドンを検出可能な条件は

$$1 \geq 2\sqrt{0.03^2 + (\frac{0.013}{0.191})^2 + \frac{N_S + 2N_N}{N_S^2}} \tag{5.22}$$

となる (式 (5.18) 参照)。4 日間の装置のバックグラウンド 30.8 カウントを N_N に代入すると N_S =18.1 と得られるので、液体シンチレータ中のラドン濃度 x[Bq/m^3] は、

$$\begin{aligned} x[\mathrm{Bq/m^3}] \times 0.055[\mathrm{m^3}] \times 0.191 \times 86400[\mathrm{sec/day}] \times 4[\mathrm{day}] \times 0.711 &= 18.1[\mathrm{counts}] \\ x &= 7.0 \times 10^{-3}[\mathrm{Bq/m^3}] \end{aligned} \tag{5.23}$$

と求められる。よって 2σ の測定限界は 7mBq/m^3 となった。

液体シンチレータの純化は 2007 年 1 月 22 日現在、テスト純化が開始した所である。我々が開発したラドン検出器を用いて純化後の液体シンチレータを測定し、太陽ニュートリノ観測が可能であるかどうか判断を下す。

5.5　まとめ

これまでに求めた各効率を表 5.6 にまとめる。また実際の測定で得られた液体シンチレータ中のラドン濃度測定の効率は 0.191±0.013 となっている。

種類	効率
抽出効率 $\varepsilon_{extract}$	0.870 ± 0.011
吸着効率 ε_{trap}	0.977 ± 0.095
脱着効率 ε_{desorp}	1.000± 0.014
送り込み効率 ε_{trans}	0.928 ± 0.067
検出効率 ε_{det}	0.279 ± 0.017
全効率 ε_{total}	0.220 ± 0.031

表 5.6: 各効率のまとめ

以下に本研究により開発したラドン検出器による種々のラドン濃度測定の結果をまとめる。

測定項目	ラドン濃度または染み出し率
熱電対	$(3.0 \pm 1.7) \times 10^{-4}$ [Bq/day]
MS13X	$(3.5 \pm 0.5) \times 10^{-3}$ [Bq/day/100g]
高純度窒素ガス	12±11 [μBq/m^3]
第二純化装置における窒素ガス	26±13 [μBq/m^3]
KamLAND 手前の窒素ガス	150±40 [μBq/m^3]
窒素ボンベ	780±140 [μBq/m^3]
テスト純化中の液体シンチレータ	280±40 [mBq/m^3]

表 5.7: ラドン測定のまとめ

最後に物質からのラドンの染み出し率、窒素ガスと液体シンチレータ中のラドン濃度の測定限界をまとめる。

種類	測定限界
物質	24μBq/day
窒素ガス	26μBq/m^3
液体シンチレータ	7mBq/m^3

表 5.8: 物質からのラドンの染み出し率と窒素ガス、液体シンチレータ中のラドン濃度の測定限界

第6章　結論

6.1　まとめ

本研究によりラドンの濃縮法の確立し、液体シンチレータ中や窒素ガス中のラドン濃度、及び物質からのラドンの染み出し率を測定可能な検出器の開発に成功した。2σの有意さで検出可能な測定限界は、

- 液体シンチレータ：7mBq/m^3
- 窒素ガス：26μBq/m^3
- 物質：24μBq/day

となった。

2007年1月下旬より液体シンチレータの純化装置がテスト稼働を始めた。純化後の液体シンチレータ中のラドン濃度を測定し純化が正しく行われているか、またラドンの混入が無いかを調べ、太陽ニュートリノ検出が可能であるか判断を下すことになる。

6.2　将来計画

本研究で開発されたラドン検出器は小型であるため、様々な場所に装置を設置してラドンを測定することが可能である。今後の方針として、様々な物質からのラドンの染み出し率を測定するため数十ℓサイズの低バックグラウンド容器を製作し、KamLAND実験で今後使用される種々の道具を測定するための環境を整える。

ラドン検出器の感度を更に上げるために、最適な静電場を形成する様シミュレーションによって検出器の形状を決定し検出効率を向上させる方法がある。現在の検出効率は0.279で、検出原理上検出効率は0.5近くまで向上すると予想される。

現在の装置を用いて行う予定である測定を以下に列挙する。

- 純化後の液体シンチレータ中のラドン濃度測定
- 検出器のバックグラウンドの精密測定
- KamLAND検出器の窒素出力ガス中のラドン濃度測定
- KamLAND検出器上部のグローブボックス内のラドン濃度測定

KamLAND検出器の出力ガス測定は、KamLAND検出器周りに漏れが無いかを確認するためのものである。またグローブボックス内の測定は、KamLANDのキャリブ

レーションの際にラドンが液体シンチレータに溶け込む可能性を確認するために必要である。

以上、本研究で開発したラドン検出器を用いて様々な低レベルのラドン濃度測定を行う事が可能であり、今後様々な場面でこの装置の活躍が期待される。

付 録A　^{238}U、^{232}Th、^{235}U崩壊系列

図 A.1: ウラン系列の崩壊系列

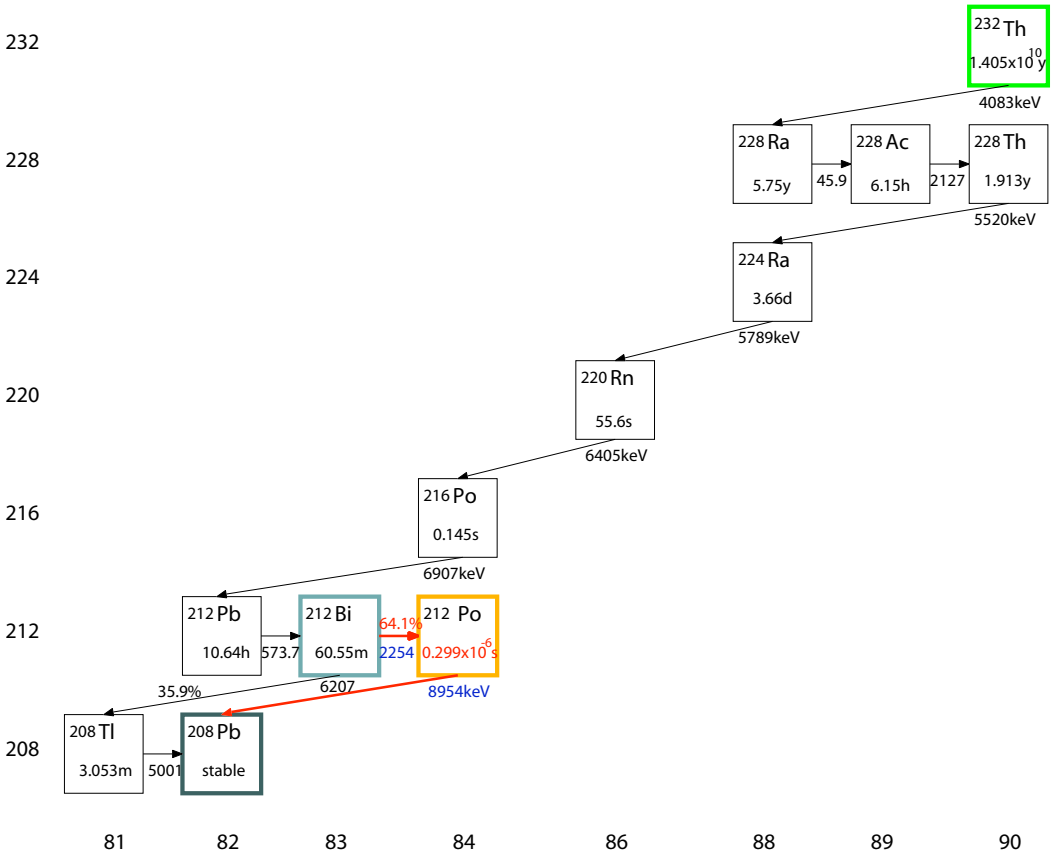

図 A.2: トリウム系列の崩壊系列

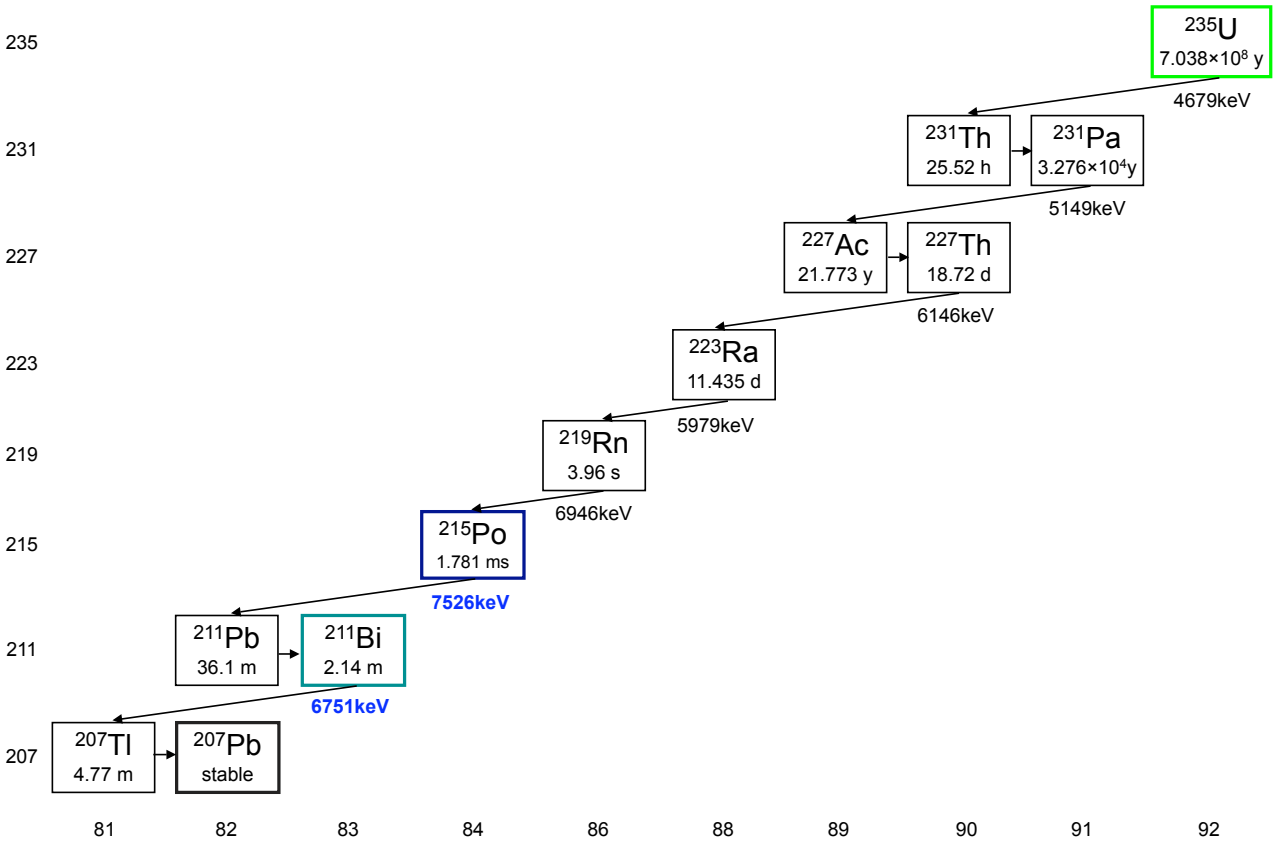

図 A.3: アクチニウム系列の崩壊系列

付 録B　ニュートリノ振動

太陽ニュートリノ問題の原因であったのがこのニュートリノ振動である。粒子の崩壊などにより生成されたニュートリノは3種類のニュートリノ (質量の固有値) の混合状態になっている。この固有状態が、ニュートリノの伝播と共に異なる固有状態に移る現象をニュートリノ振動という。ニュートリノ振動の存在はニュートリノが質量を持っていることを示すものであり、標準理論の枠組みを超える現象であるため、ニュートリノ振動を観測することは重要な意味を持つ。

B.1　真空中におけるニュートリノ振動

行列 $U_{\rm MNS}$ はレプトン混合行列、または MNS 行列 (Maki-Nakagawa-Sakata) と呼ばれ、生成されるニュートリノ ($|\nu_\alpha\rangle$) とニュートリノ質量固有状態 ($|\nu_i\rangle$) には以下の関係が成り立つ。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U^*_{\alpha i}|\nu_i\rangle \tag{B.1}$$

混合行列 $U_{\rm MNS}$ は、混合角 θ と CP 位相角 δ を用いて

$$U_{\alpha i} = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}s_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \tag{B.2}$$

と表される。ここで $s_{ij} = sin\theta_{ij}, c_{ij} = cos\theta_{ij} (i,j = 1,2,3)$ である。シュレディンガー方程式より τ_i を ν_i の静止系での時間、m_i を ν_i の質量とすると、静止系での ν_i の状態 $|\nu_i\rangle$ の時間発展は、

$$|\nu_i(\tau_i)\rangle = |\nu_i(0)\rangle e^{-im_i\tau_i} \tag{B.3}$$

と書ける。実験室系での時間を t、距離を L として式 (B.3) の右辺の exponential を書き換えると、

$$e^{-im_i\tau_i} = e^{-i(E_it - p_iL)} = e^{-i(E_i - p_i)L} \tag{B.4}$$

となる。ここで、E_i、p_i はそれぞれ実験室系での ν_i のエネルギー、運動量を表し、最右辺ではニュートリノの速度を光速 c(=1) と近似し、$t = L/c$ を用いた。ニュートリノの運動量 p が十分に大きく $m_i \ll p$ であるとすれば、

$$E_i = \sqrt{p^2 + m_i^2} \simeq p + \frac{m_i^2}{2p} \simeq p + \frac{m_i^2}{2E} \tag{B.5}$$

と近似することが出来、式 (B.4) は、

$$e^{-i(E_i - p_i)L} = e^{-i(\frac{m_i^2}{2E})L} \tag{B.6}$$

となる。式 (B.4) を用いて、式 (B.3) を式 (B.1) に代入すると、距離 L での時間発展は、

$$\begin{aligned} |\nu_\alpha(L)\rangle &= \sum_i U^*_{\alpha i} e^{-i(\frac{m_i^2}{2E})L} |\nu_i(0)\rangle \\ &= \sum_\beta \left[\sum_i U^*_{\alpha i} e^{-i(\frac{m_i^2}{2E})L} U_{\beta i} \right] |\nu_\beta(0)\rangle \end{aligned} \tag{B.7}$$

となる。初め ν_α だったものが、距離 L を飛んだ後に ν_β になっている確率 $\mathrm{P}(\nu_\alpha \to \nu_\beta)$ は、$|\langle\nu_\beta(0)|\nu_\alpha(L)\rangle|^2$ と表される。ここでは簡単のため、フレーバーを ν_e と ν_τ の 2 世代のみとしてニュートリノ振動を考えると、式 (B.2) のようなレプトン混合行列は式 (B.8) となる。

$$U = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \tag{B.8}$$

$\Delta m^2 \equiv m_2^2 - m_1^2$ として、式 (B.8) を用いて電子ニュートリノの存在確率を求めると、

$$\begin{aligned} P(\nu_e \to \nu_e) &= |\langle\nu_e(0)|\nu_e(L)\rangle|^2 \\ &= 1 - sin^2 2\theta sin^2 (1.27 \frac{\Delta m^2[eV^2]}{E[MeV]} L[m]) \end{aligned} \tag{B.9}$$

となる。ここで $\hbar c \approx 197$ [MeV·fm] を用いた。ニュートリノ振動はエネルギー E と飛距離 L、そして振動後のニュートリノとの質量差 Δm と混合角 θ に依存することが分かる。

B.2 物質中でのニュートリノ振動

ここでは物質中をニュートリノが通過した場合のニュートリノ振動について考える。ニュートリノが物質中を通過すると、陽子、中性子、電子などの物質から弱い相互作用を受ける。このため物質中を通過するニュートリノには有効質量が加わることになる。3 世代のニュートリノ $(\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau)$ は物質中の陽子、中性子、電子と中性カレントで相互作用する。しかし電子型ニュートリノ (ν_e) だけは電子とのみ荷電カレントで相互作用する。従って、ν_e だけが ν_μ, ν_τ とは違ったポテンシャルを受けることになる。このため物質中でのニュートリノ振動は真空中でのニュートリノ振動と異なったものとなる。こうしたニュートリノの伝播への物質の影響を、MSW 効果 (Mikheyev-Smirnov-Wolfenstein effect) という。

ν_e が物質から受ける有効ポテンシャル V_{ν_e} は、ν_μ、ν_τ が物質から受ける有効ポテンシャル V_{ν_μ}、V_{ν_τ} を基準にすると

$$\begin{aligned} V_{\nu_e} &= \sqrt{2} G_F N_e \\ V_{\nu_\mu, \nu_\tau} &= 0 \end{aligned} \tag{B.10}$$

と表される。ここで G_F はフェルミ結合定数、N_e は電子数密度である。以下、電子数密度が一定で、ν_e と ν_μ の 2 フレーバーの場合について考える。

レプトン混合行列 U_{MNS} は式 (B.8) で与えられ、物質がある場合これにポテンシャル (V_{ν_e}, V_{ν_μ}) を加えてニュートリノの時間発展方程式を考える必要がある。ポテンシャ

ルを加えた場合、ニュートリノの時間発展方程式の質量行列を対角化する行列を U_m とすると、U_m は物質中での MNS 行列と解釈することができる。物質中での混合角 θ_m を用いて、

$$U_m = \begin{pmatrix} \cos\theta_{\rm m} & \sin\theta_{\rm m} \\ -\sin\theta_{\rm m} & \cos\theta_{\rm m} \end{pmatrix} \tag{B.11}$$

と表される。ここで θ_m は物質中での混合角で、

$$tan2\theta_m = \frac{sin2\theta}{cos2\theta - \frac{L_{osc}}{L_0}} \tag{B.12}$$

と表される。L_{osc} は真空中でのニュートリノ振動長、L_0 は荷電カレントのニュートリノ相互作用長であり、それぞれ

$$\begin{aligned} L_{osc} &= \frac{4\pi E}{\Delta m^2} \\ L_0 &= \frac{2\pi}{V_{\nu_e}} = \frac{\sqrt{2}\pi}{G_F N_e} \end{aligned} \tag{B.13}$$

と表される。

よって物質中での混合角は式 (B.14) の時、共鳴が最大になり遷移確率は $sin^2\theta_m = 1$ となる。

$$\begin{aligned} & cos2\theta = \frac{L_{osc}}{L_0} \\ \Leftrightarrow \quad & \sqrt{2}G_F N_e = \frac{\Delta m^2}{2E} cos2\theta_0 \end{aligned} \tag{B.14}$$

式 (B.14) は MSW 共鳴条件と呼ばれ、ニュートリノ振動が大きくなる。またこの時の電子数密度を臨界密度といい、電子数密度がこの条件を満たせば真空中の混合角 θ_0 とは関係無く $\theta_m = 45^\circ$ となる。これはニュートリノのフレーバー遷移確率が、真空中では小さくても物質中では十分に大きくなるということを示している。

式 (B.14) を書き換えると、

$$\begin{aligned} \Delta m^2 cos2\theta &= 2\sqrt{2}G_F E N_e \\ &\simeq 0.7 \cdot 10^{-7} \frac{E}{MeV} \cdot \frac{\rho_e}{g \cdot cm^{-3}} eV^2 \end{aligned} \tag{B.15}$$

となる。これに太陽密度 $\rho_e \simeq 10^2 g \cdot cm^{-3}$、太陽中心部で生成されるニュートリノのエネルギー $E \simeq 1\ MeV$ を代入すると、共鳴条件は $\Delta m^2 \simeq 10^{-5} eV^2$ となる。

また長さ L だけ物質を伝播した後、ν_e が ν_μ に変化する確率は、

$$P(\nu_e \to \nu_\mu) = sin^2\theta_m sin^2(\frac{\pi L}{L_m}) \tag{B.16}$$

と表される。L_m は物質中での振動長で $L_m = L_{osc}\frac{sin2\theta_m}{sin2\theta}$ であり、電子数密度 N_e が 0 である極限では真空中の値に近づくことが分かる。以上は電子数密度が一定の場合の計算であるが、物質中での振動長 L_m より十分長い距離で電子数密度が変化した時には有効である。

B.3 ニュートリノ振動パラメータ

図 B.1 に KamLAND による 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (左図) と、今までの全ての実験によって決定された 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (右図) を示す。また、図 B.2 に今までの様々なニュートリノ実験によって制限されたニュートリノ振動パラメータに関するグラフを示す。現在のパラメータについては Δm^2 に関しては KamLAND 実験が最もパラメータ範囲を制限し、また $\sin^2\theta$ に関しては SNO スーパーカミオカンデの結果が最も制限をしていることが分かる。

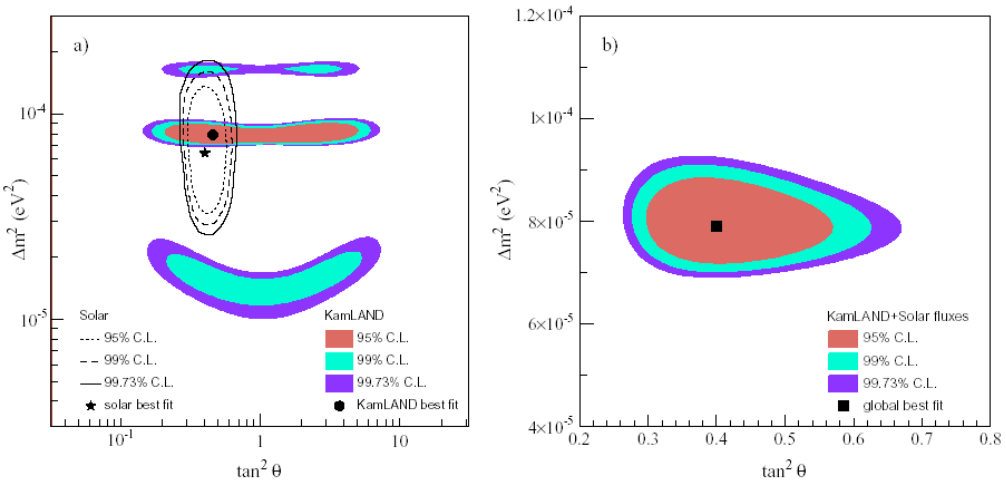

図 B.1: KamLAND による 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (左) と全ての実験によって決定された 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (右) [17]。最適値は $\Delta m^2 = 7.9^{+0.6}_{-0.5}\ eV^2$、$tan^2\theta = 0.40^{+0.10}_{-0.07}$。

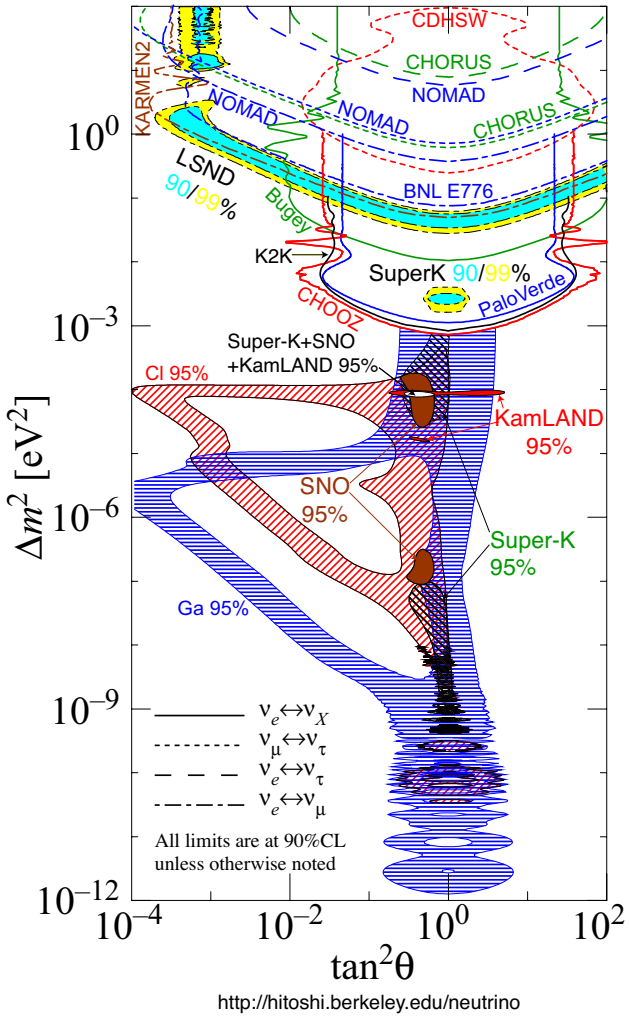

図 B.2: 様々なニュートリノ実験によって制限されたニュートリノ振動パラメータ [31]

付 録C　反応断面積

C.1　逆 β 崩壊の反応断面積

電子型反ニュートリノに関する $\bar{\nu}_e p \to n e^+$ の逆 β 崩壊反応における微分反応断面積は、最低次の近似において式 (C.1) のように書ける。

$$(\frac{d\sigma}{dcos\theta}) = \frac{\sigma_0}{2}[(f^2+3g^2)+(f^2-g^2)V_{e^+}cos\theta]E_{e^+}p_{e^+} \tag{C.1}$$

ここで V_{e^+}、E_{e^+}、p_{e^+} は陽電子の速度、エネルギー、運動量を示しており、

$$\begin{aligned} V_{e^+} &= \frac{p_{e^+}}{E_{e^+}} \\ E_{e^+} &= E_{\bar{\nu}_e} - (m_n - m_p) \\ p_{e^+} &= \sqrt{E_{e^+}^2 - m_{e^+}^2} \end{aligned} \tag{C.2}$$

である。また f = 1.0 (ベクトル結合定数)、g = 1.26g (軸性ベクトル結合定数) である。σ_0 は内部輻射補正 δ_{inner}^{rad} を含む規格化定数で、式 (C.3) の様に表される。

$$\begin{aligned} \sigma_0 &= \frac{G_F^2 \cos^2\theta_C}{\pi}(1+\delta_{inner}^{rad}) \\ \delta_{inner}^{rad} &\simeq 0.024 \\ \theta_C &= 0.974 \end{aligned} \tag{C.3}$$

ここで G_F はフォルミの結合定数で、$\frac{G_F}{(\hbar c)^3} = 1.16637 \times 10^{-5}\mathrm{GeV}^{-2}$ である。これらを用いて全反応断面積を計算すると、

$$\begin{aligned} \sigma_{total} &= \sigma_0(f^2+3g^2)E_{e^+}p_{e^+} \\ &= 9.52 \times 10^{-44}(\frac{E_{e^+}p_{e^+}}{1\mathrm{MeV}^2})\ [\mathrm{cm}^2] \end{aligned} \tag{C.4}$$

となる。図 C.1 にエネルギーに対する反応断面積を示す。断面積は Bugey 実験において測定され、測定された断面積 σ_f と理論計算による値 σ_{V-A} との比は、$\frac{\sigma_f}{\sigma_{V-A}} = 0.987 \pm 0.030$ と良く一致している。

原子炉ニュートリノのエネルギースペクトルと、逆 β 崩壊の反応断面積から観測される原子炉ニュートリノのエネルギースペクトルは図 C.2 のようになる。

ニュートリノと電子の弾性散乱の反応断面積

電子型ニュートリノと電子の弾性散乱の断面積は標準電弱理論を用いて計算出来、その微分反応断面積は式 (C.5) のように表される。

$$\frac{d\sigma}{dT_e} = \frac{G_F^2 m_e}{2\pi}[A + B(1-\frac{T_e}{E_\nu})^2 + C\frac{m_e T_e}{E_\nu^2}] \tag{C.5}$$

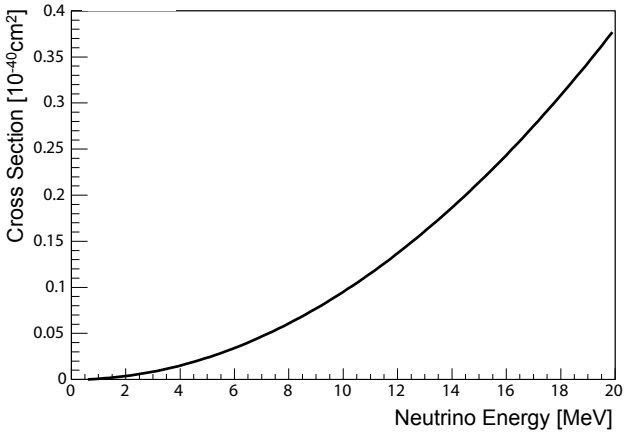

図 C.1: 逆 β 崩壊の反応断面積

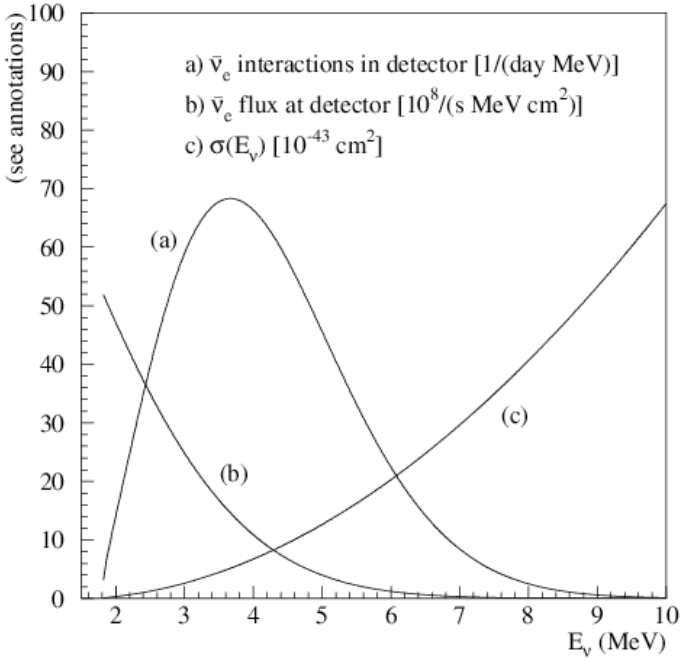

図 C.2: KamLAND で観測される原子炉ニュートリノのエネルギースペクトル [20]。(b) は原子炉ニュートリノのエネルギースペクトルで (c) が逆 β 崩壊の反応断面積。(b) と (c) を掛け合わせることにより、(a) のスペクトルが得られる。

ここで T_e、G_F、m_e、E_ν はそれぞれ反跳電子の運動エネルギー、フェルミ結合定数、電子の質量、入射ニュートリノのエネルギーであり、パラメータ A、B、C は、

$$\begin{aligned} A = (g_V+g_A)^2, B = (g_V - g_A)^2, C = (g_A^2 - g_V^2) \\ g_V = 2\sin^2\theta_W + \frac{1}{2},\ g_A = \frac{1}{2} \quad \text{for } (\nu_\mathrm{e}, \mathrm{e}) \\ g_V = 2\sin^2\theta_W - \frac{1}{2},\ g_A = -\frac{1}{2} \text{ for } (\nu_\mu, \mathrm{e})(\nu_\tau, \mathrm{e}) \end{aligned} \tag{C.6}$$

と定義される。θ_W はワインバーグ角である。$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$ 反応における単ループの電弱と QCD と QED の輻射補正を考慮すると、式 (C.5) の微分反応断面積にかかっている係数は、

$$\frac{G_F^2 m_e}{2\pi} = 4.31 \times 10^{-45} [\frac{\mathrm{cm}^2}{\mathrm{MeV}}] \tag{C.7}$$

となる。反応断面積は、電子の運動エネルギー T_e に関して 0 から T_{max}(式 (2.7) 参照) まで式 (C.5) を積分することによって式 (C.8) のように算出される。

$$\begin{aligned} \sigma_{total} &= 8.96 \times 10^{-44} \frac{E_\nu \ [\mathrm{MeV}]}{10 \ [\mathrm{MeV}]} [\mathrm{cm}^2] \quad \text{for } (\nu_\mathrm{e}, \mathrm{e}) \\ \sigma_{total} &= 1.58 \times 10^{-44} \frac{E_\nu \ [\mathrm{MeV}]}{10 \ [\mathrm{MeV}]} [\mathrm{cm}^2] \quad \text{for } (\nu_\mu, \mathrm{e})(\nu_\tau, \mathrm{e}) \end{aligned} \tag{C.8}$$

図 C.3 に電子とニュートリノ $(\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau)$ の反応断面積とエネルギーの関係図を示す。ν_e と $\nu_{\mu,\tau}$ の断面積の違いは、$\nu_{\mu,\tau}$ の散乱は中性カレントを通してのみ行われるのに対し、ν_e は中性、荷電カレントの両方が寄与するためである。(ν_e, e) の断面積は $(\nu_{\mu,\tau}, e)$ のおよそ 6 倍である。

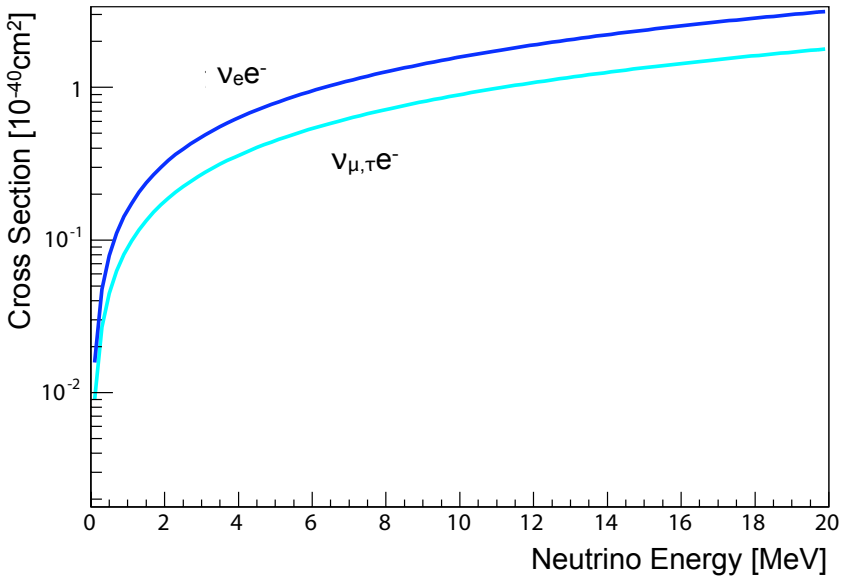

図 C.3: ニュートリノと電子散乱の反応断面積 [32]

付 録D　ラドン濃度測定法

ラドンに対する関心は地震予知から保健物理まで幅広く、測定意義によって利用する測定法が異なる。ラドンの測定法はその捕集方法によって Active 法と Passive 法に分けられる。

Active 法：捕集容器や検出器にエアーポンプ等で試料空気を送り込む方法。連続測定や実時間測定が可能であるが、装置は高価。

Passive 法：分子拡散を利用して動力無しに試料空気を測定する方法で、安価で取り扱いが簡単。ラドンの広域調査に適しており、積分測定によりある期間の平均濃度を得る。このため短時間の濃度変化は測定出来ない。

D.1　Active 法

電離箱法 ($20Bq/m^3$)：古くから基本的な測定法の一つとして広く用いられている。比較的濃度の高い試料ガスを 1~2ℓ 程度の試料ガス封入型電離箱に封入し、高感度の振動容量電位計で電離電流の測定を行う。この方法は理論と実験の対応が良く、取り扱いも簡単で安定かつ精度の良い測定を行う事が出来る。

通気式電離箱法 ($0.2Bq/m^3$(パルス測定法)、$5Bq/m^3$(電流測定法))：1~10ℓ 程度の電離箱にフィルタを通して試料空気を導入し、通気状態でラドンとその娘核種の α 線をパルスまたは電離電流として測定する。ラドン濃度が通常の室外の数十倍であれば、1l/min 以下の流量で実時間測定出来る。この方法は地震予知に関連した研究で、複数の装置が 10 年以上に亘って正常に動作している。

シンチレーションセル法 (ルーカス法) ($20Bq/m^3$)：内面に ZnS(Ag) を塗布した容器と、透明な窓を通して連結された光電子増倍管により構成される測定器をシンチレーションセルと言う。容器内にフィルタを通して試料空気を導入し、封入状態あるいは通気状態でラドンとその娘核種の α 線を ZnS(Ag) で計測する。感度は容器の容積に比例するが、集光効率や壁材からの α 線の影響のため容器の大きさに制約があり、感度はあまり良くない。日本での使用は少ないが海外では良く用いられており、Model1027 はこの方法との比較で絶対値較正されている。

2 段フィルタ法 (フィルタ法) ($0.1Bq/m^3$)：10~100ℓ 程度の円筒形容器の入り口に設けた前置フィルタを通して試料空気を容器内に導入しながら、ラドンとその娘核種を出口に設けた後置フィルタに捕集し、α 線を ZnS(Ag) または半導体検出器で計測する。感度は良いが、前置フィルタの除去効率と圧損、内壁への娘核種種の沈着損失割合と滞留時間等の問題がある。

通気式静電捕集法 ($0.5\mathrm{Bq/m^3}$)：2 段フィルタ法がフィルタでラドンとその娘核種を捕集するのに対し、これは静電場により帯電成分を捕集する。30ℓ 程度の半球形容器の入り口に設けた前置フィルタを通して試料空気を容器内に導入し通気させながら、容器内で生成した娘核種を高電界により中心の集電極に捕集し、ZnS(Ag) や半導体検出器により α 線を計測する。感度は良いが、娘核種の集電極への捕集効率が湿度や不純物の影響を受けるので除湿装置が必要であり、また高電圧を必要とする事が難点である。

液体シンチレーション法 ($3\mathrm{Bq/m^3}$)：ラドンがトルエン等の有機溶媒に良く溶ける事から、トルエンをベースにした液体シンチレータにフィルタを通してラドンを溶かし込み、光電子増倍管で計測する。感度が良く取り扱いも楽であるが、装置や γ 線のバックグラウンドが測定値に与える影響が大きい。本研究では 4.8.1 節でこの方法によりラドン濃度測定を行っている (但し液体シンチレータの成分はドデカンとプソイドクメン)。液体シンチレータの体積が 150ml と少なかったため、その測定限界は $80\mathrm{Bq/m^3}$ 程度となっている。

活性炭法 (電離箱) ($0.05\mathrm{Bq/m^3}$): 活性炭がラドンを吸着する性質を利用したもの。ラザフォードがラドンの捕集に活性炭を使用して以来、多くの研究者が利用している。低温または常温で試料空気を活性炭に通してラドンを捕集し、電離箱に移して電離電流を測定する。感度は良いが操作が複雑で絶対値を求めるのが難しい。

本研究でも初め吸着剤として活性炭の導入を試みている。図 D.1 に活性炭がラドンを吸着、脱着している様子を示す。室温で活性炭にガスを流しラドンを吸着させた後、ヒートガンでラドントラップ容器を暖め、活性炭からラドンを脱着させている。吸着と脱着間の時間によるラドンの崩壊率を考慮すると、活性炭で吸着したラドンがほぼ全て脱着していることが分かる。しかし本研究では低レベルのラドン濃度測定を目的としているため、活性炭からのラドンの染み出しを考慮して吸着材として使用しなかった。

D.2 Passive 法

Bare 法) ($5\mathrm{Bq/m^3}$)：Passive 法の中で最も簡単な方法で、CR-39(Allyl Diglycal Carbonate)、CN(Cellulose Nitrate)、PC(Polycarbonate) 等の固体飛跡検出器を裸のまま設置し、回収後エッチングを行い飛跡の数からラドン濃度を求める。感度は比較的良いが娘核種やトロンの影響が大きく、また固体飛跡検出器が直接空気中に晒されるため紫外線による変質の問題など、精度の良い測定は難しい。

Cup 法 ($10\mathrm{Bq/m^3}$)：直径 10cm 程度の半球形容器の中にフィルタを通して分子拡散により試料空気を導入し、内部に設置した固体飛跡検出器でラドンと娘核種の α 線を検出する。Bare 法に比べて感度は低いが、ガスのみを導入するため精度は良い。また試料空気の交換率を調整する事により、ラドンとトロンの弁別測定が可能である。

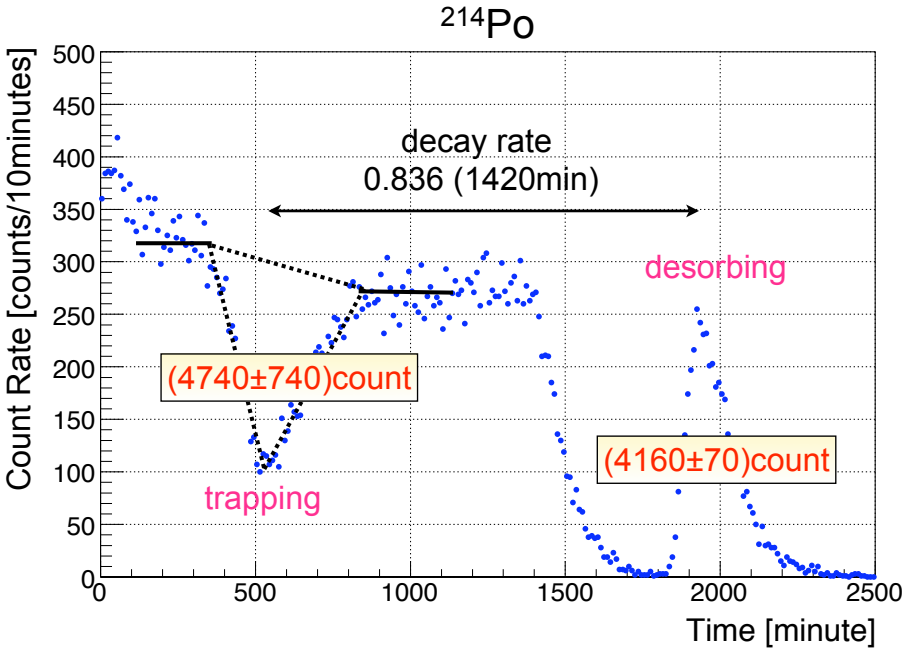

図 D.1: 活性炭の吸着と脱着

静電捕集法 ($1\mathrm{Bq/m^3}$)：Cup 法の感度不足を補うため、容器内で生成したラドン娘核種のうち正の電荷を持った非吸着成分を高電界により強制的に集電極に捕集し、CN フィルム等で α 線を検出する。感度は良いが除湿剤や高電圧装置が必要であり、Passive 法の小型で安価といった特徴が損なわれている。

TLD 法 ($10\mathrm{Bq/m^3}$)：静電捕集法で用いた固体飛跡検出器の代わりに TLD(熱蛍光線量計) を用いて検出する。LiF の結晶が α 線によって電離された電子を一時的に捉えており、150~300°C 程度に加熱すると吸収線量に比例した蛍光を発するので、この蛍光を光電子増倍管を用いて測定する。感度は Cup 法より良いが、γ 線や宇宙線によるバックグラウンドの影響で、あまり検出限界を下げる事は出来ない。

活性炭法 (半導体検出器) ($10\mathrm{Bq/m^3}$)：活性炭を入れた容器を一定時間放置してラドンを吸着させた後、NaI(Tl) や Ge 等の半導体検出器を用いて γ 線を計測する方法。安価で簡単な方法だが、温度や湿度による吸着と脱着への影響のため、精度の良い測定は難しい。

D.3 検出限界のまとめ

以上の方法による検出限界をまとめる。気体中のラドン濃度に対しては電離箱を用いた活性炭法の感度が最も良い。液体シンチレータのラドン濃度の検出限界は液体シンチレーション法の $3\mathrm{Bq/m^3}$ であり、我々はこれより 3 桁低いラドン濃度測定を目標としている。

測定法	検出限界 [Bq/m^3]
電離箱法	20
通気式電離箱法	0.2
シンチレーションセル法	20
2 段フィルタ法	0.1
通気式静電捕集法	0.5
液体シンチレーション法	3
活性炭法 (電離箱)	0.05
Bare 法	5
Cup	10
静電捕集法	1
TLD 法	10
活性炭法 (半導体検出)	10

表 D.1: 様々なラドン測定法の検出限界 [26]

付 録E　放射平衡

^{214}Po の α 線を測定する際は、親核 ^{222}Rn から ^{214}Po までが放射平衡の状態になっている必要がある。ここでは実際に ^{222}Rn から ^{210}Pb までがどれくらいの時間で放射平衡に達するのかを確認する。

核種が N 個存在するとき、放射性核種の単位時間当たりの放射能 (壊変率) は、

$$-\frac{dN(t)}{dt} = \lambda N(t) \tag{E.1}$$

となる。ここで λ は壊変定数 (decay constant) である。式 E.1 を積分すると、式 E.2 が得られる。

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \tag{E.2}$$

ここで N_0 は t = 0 における N の値である。さらに式 (E.2) を変形し、半減期 $T_{1/2}$(放射能が半分になる時間) と壊変定数 λ との関係を求める。

$$T_{1/2} = \frac{1}{\lambda} ln \frac{1}{2} = \frac{0.693}{\lambda} \tag{E.3}$$

表 E.1 に ^{222}Rn $\sim^{210}$ Pb の半減期と壊変定数を示す。ここで分岐比の小さい ^{218}At と ^{210}Tl は除いてある。

元素	半減期 $T_{1/2}$	壊変定数 λ ($\frac{\ln 2}{T_{1/2}[\mathrm{min}]}$)
^{222}Rn	3.8235 day	1.259×10^{-4}
^{218}Po	3.10 min	0.2236
^{214}Pb	26.8 min	0.02586
^{214}Bi	19.9 min	0.03483
^{214}Po	164.3 μsec	2.531×10^{5}

表 E.1: ^{222}Rn $\sim^{210}$ Pb 間の半減期と壊変定数

一連の核種が崩壊系列をつくる場合、時刻 t における i 番目の放射性核種数は Bateman の式で与えられ、$N_i(0) = 0$ (i > 1) とすると、

$$N_i(t) = \lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_{i-1} N_1(0) \sum_{j=1}^{i} \frac{e^{-\lambda_i t}}{\prod_{k \neq j} (\lambda_k - \lambda_j)} \tag{E.4}$$

と表される。

式 E.4 に、表 E.1 の λ を代入すると、それぞれの核種の原子数である N_1, N_2, N_3, N_4 が求められる。ここで ^{214}Po の半減期は他に比べて非常に短いため、^{214}Bi と ^{214}Po の原子数はほぼ同じである。

式 E.1 より、時刻 t における N_1, N_2, N_3, N_4 の崩壊数はそれぞれ $\lambda_1 N_1$, $\lambda_2 N_2$, $\lambda_3 N_3$, $\lambda_4 N_4$, と与えられる。t = 0 における ^{222}Rn の原子数を $N_1(0)$ とすると、^{218}Po の崩壊数の時間変化は

$$\lambda_2 N_2(t) = \frac{N_1(0)\lambda_1\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \tag{E.5}$$

となる。同様に ^{214}Po は

$$\begin{aligned} \lambda_4 N_4(t) &= N_1(0)\lambda_1\lambda_2\lambda_3\lambda_4\left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{C_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{C_2} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{C_3} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{C_4}\right) \\ C_1 &= (\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1) \\ C_2 &= (\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2) \\ C_3 &= (\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3) \\ C_4 &= (\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4) \end{aligned} \tag{E.6}$$

となる。$N_1(0)$=10000 とした時の、娘核の崩壊率の時間変化を図 E.1 に示す。放射平衡まで ^{218}Po は約 20 分、^{214}Po は約 200 分を要する。

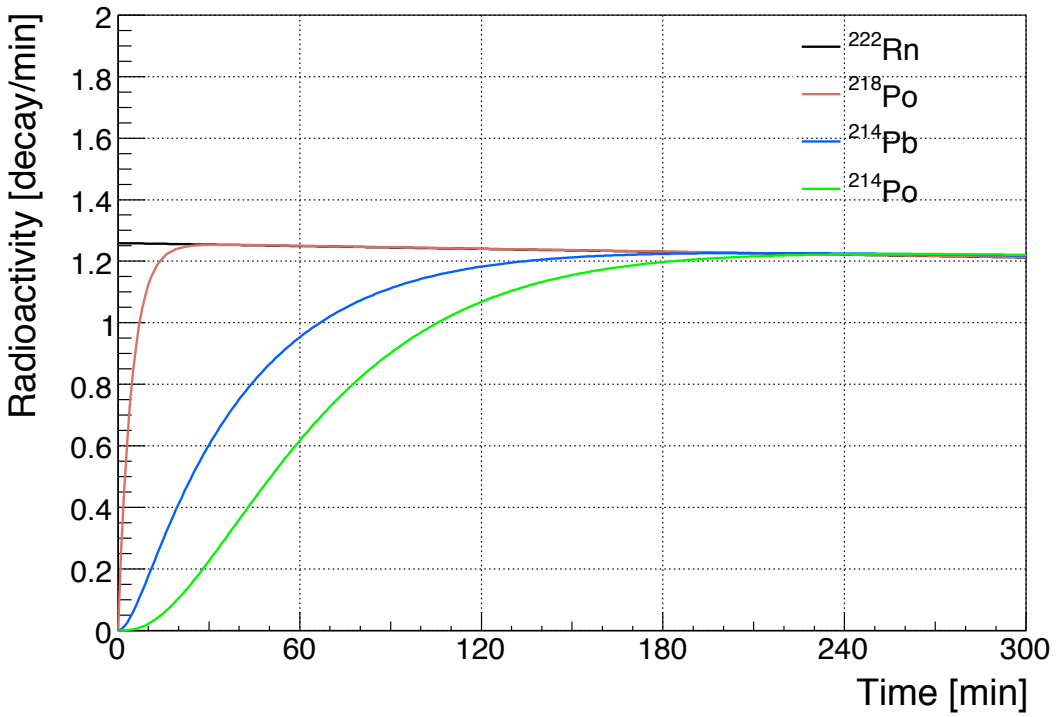

図 E.1: t = 0 で ^{222}Rn が 10000 個存在するとした時の娘核の崩壊率の時間推移。但し ^{222}Rn ～^{210} Pb までの間の核で、分岐比の小さい ^{218}At と ^{210}Tl は除いている。

同様に、^{222}Rn の崩壊以下、半減期の長い ^{210}Pb,^{210} Bi,^{210} Po の崩壊率の時間変化を図 E.2 に示す。約 800 日経つと ^{210}Po が放射平衡に達するのが分かる。長時間経った場合、ラドン検出器や Model1027 で使用している PIN フォトダイオードでこの ^{210}Po の α 線が検出されることになる。また始状態の ^{222}Rn の崩壊率は 1.8×10^3[Bq/day]

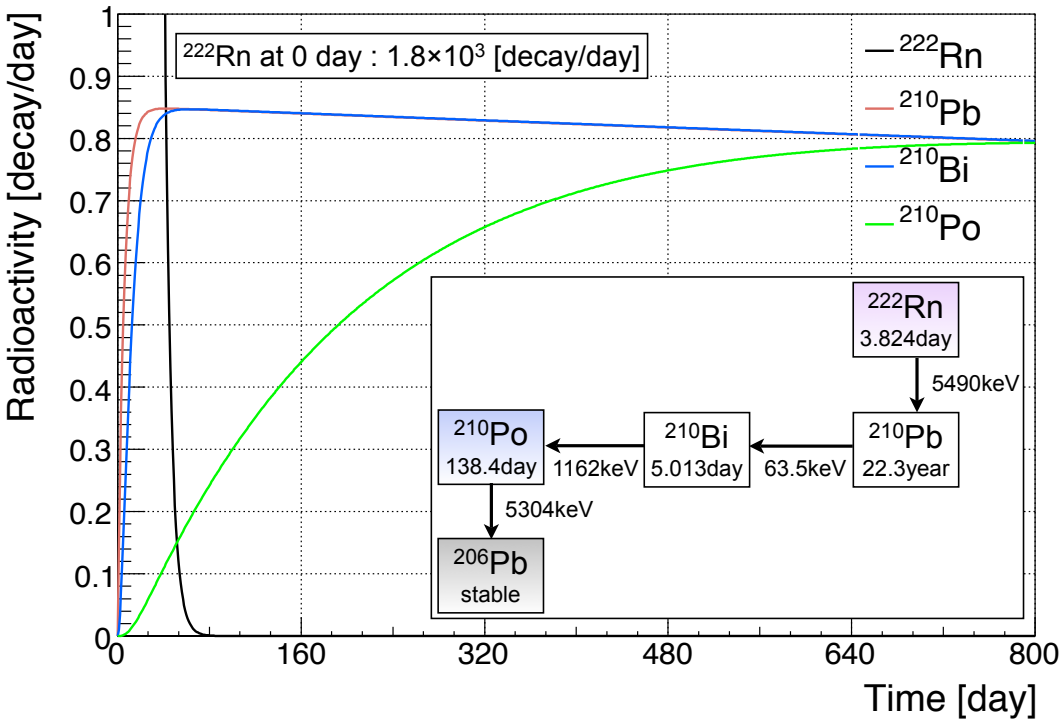

図 E.2: t = 0 で ^{222}Rn が 10000 個存在するとした時の、長い半減期を持つ娘核の崩壊率の時間推移。半減期の短い他の核種の影響は無視している。

であり、放射平衡後の ^{210}Po の崩壊率は 0.8[Bq/day] であることから、^{210}Po の崩壊率は ^{222}Rn の 2×10^{-3} となっていることが分かる。

付 録F　飽和水蒸気量

露点と飽和水蒸気量の関係を図 F.1 に示す。

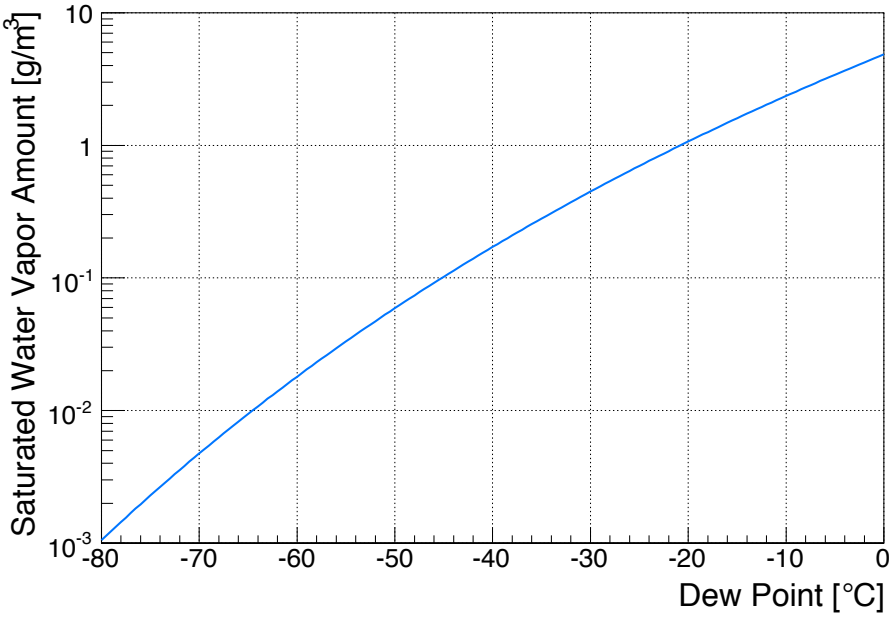

図 F.1: 露点と飽和水蒸気量の関係

テスト装置 (第 4 章参照) では 0.5ℓ の検出器に対して、多くの測定を露点 -50°C 以下の環境で行っている。この時検出容器全体で 3.0×10^{-5}g の水分が存在することになる。また実機装置では 2.3ℓ の検出器に対して露点 -60°C 以下で実験を行っている。この時検出容器全体で 4.1×10^{-5}g の水分が存在することになる。

付 録G　オイルトラップ実験による液体シンチレータの蒸発量

液体シンチレータの蒸発量

液体シンチレータの蒸発量の温度依存性と窒素ガスの流速依存性を調べた。液体シンチレータの温度を変えて蒸発量を増やすことで、より正確にオイルトラップの効率を求める事が出来る。図 G.1 に流速と温度を変えた時の蒸発量の変化の様子を示す。

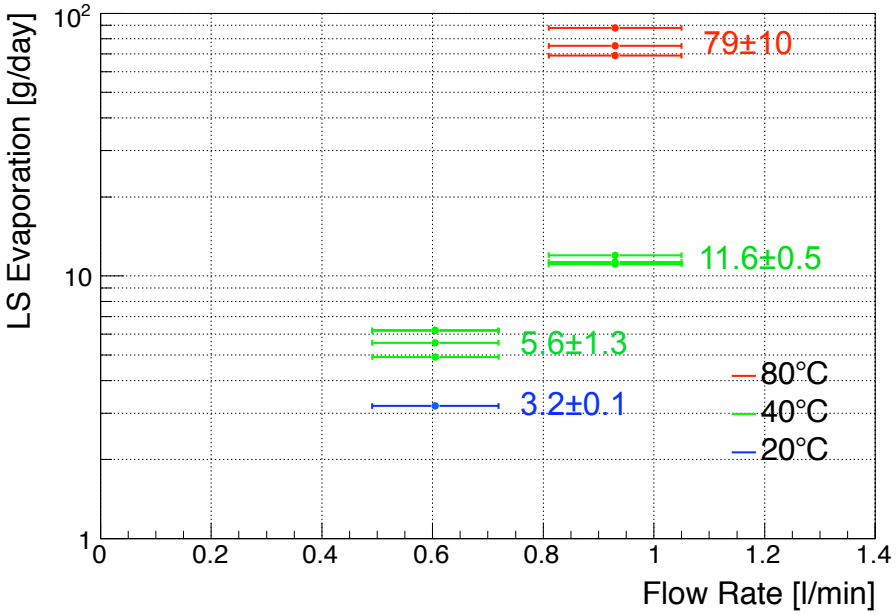

図 G.1: 液体シンチレータの蒸発量の温度依存性。図中の数字は複数回に渡って行われた蒸発量の中心値とその幅を表す。

この実験では 150ml のガラスバイヤルにバブラーを取り付け、液体シンチレータを窒素バブリングした。液体シンチレータの温度は、ホットプレートに水の入った容器を乗せその中に浸ける様にして調節する。図 G.1 より、より高い温度·流速で蒸発量が増しているのが分かる。同じ条件でもデータがばらついているのは、液体シンチレータの温度のばらつきに原因があると考えられる。これはホットプレートの温度調節がアナログ式であることに起因する。20°C の時のみ実験は室温で行われているため温度は安定している。

表 G.1 に蒸発量比の実験結果と、アントワン式による液体シンチレータの各成分の蒸気圧比を示す。蒸気圧曲線よりドデカンよりプソイドクメンの方が蒸発しやすいこ

とが分かるので、蒸発量比はプソイドクメンの蒸気圧比と近い値が得られると予想をしていた。しかし 2 点の蒸発量比と蒸気圧比を比べる限りでは一致は見受けられなかった。よって実際に 20°C のガスを -40°C まで冷やし、オイルトラップ効率を確認する必要がある。

温度比	蒸発量比	ドデカン　プソイドクメン	
40°C / 20°C	1.8 ± 0.4	4.9	4.5
80°C / 40°C	6.8 ± 0.9	16.6	6.9

表 G.1: 液体シンチレータの蒸発量比とドデカン · プソイドクメンの蒸気圧比

より速い流速における蒸発量を調べるため、1000ml の液体シンチレータをバブリング出来る別のバブラーを用意しその流速依存性を調べた。結果を図 G.2 に示す。蒸発量と流速は非常に良い比例関係にあり、

$$\text{蒸発量 [g/day]} = 6.5 \times \text{流速 [l/min]} - 0.4 \tag{G.1}$$

と得られた。図 G.1 で 20°C、0.6l/min の時の蒸発量 3.2 ± 0.1g/day と今回の結果 20°C、0.5l/min の時の蒸発量 3.0 ± 0.1g/day は流速の多少の違いを考慮に入れて一致しており、バブラーと液体シンチレータの量を変えても蒸発量には変化が無い事が分かる。よって 1mBq/m^3 のラドンを測定の際の流速を決定すれば、液体シンチレータの蒸発量を予想する事が可能である。

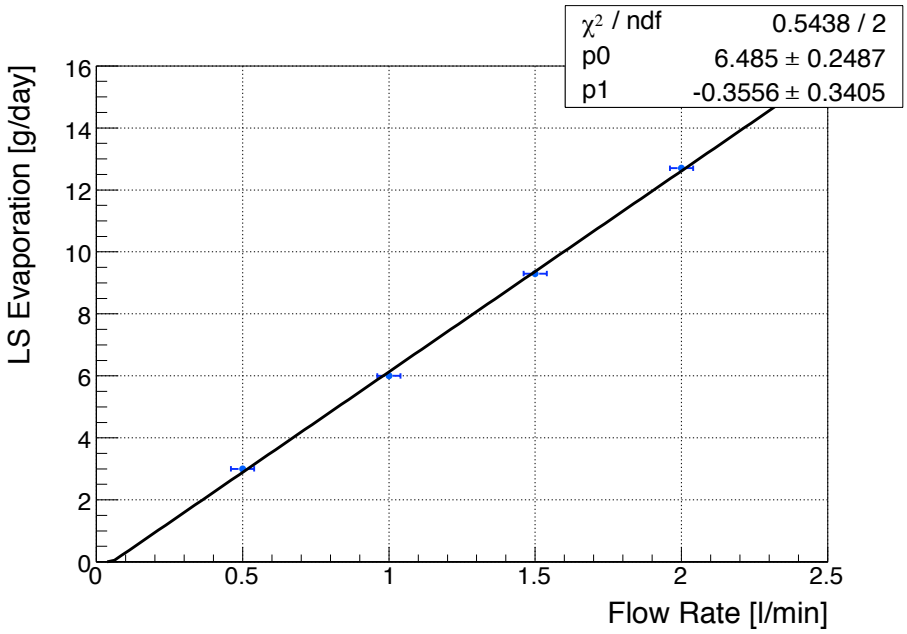

図 G.2: 室温 20°C における液体シンチレータの流速依存性

蒸発した液体シンチレータの成分比

オイルトラップ実験後ドレンに溜まった液体シンチレータの混合比を求め、蒸発した液体シンチレータの成分比がどの様になっているか調べた。液体シンチレータを構成するドデカンとプソイドクメンの密度は 1 気圧、15°C においてそれぞれ 0.78g/cm^3、0.88 g/cm^3 と異なる密度を持つため、密度を求めればその混合比を決定する事が出来る。密度は図 G.3 に示す密度計を用いて測定した。

測定方法はサンプルを 5ml の注射器で取り、それを密度計に注入する。密度計内部は U 字管になっており、サンプルをセットした後その温度は基準値である 15°C に整えられる。その後 U 字管を振動させてサンプルの振動周期を測定する事で密度を測定する仕組みとなっている。密度計の精度は 10^{-5}g/cm^3 程度と非常に高い精度を持つがプソイドクメンの揮発性が高いため空気中で蒸発し、その誤差は約 1%程度となる。ドデカンとプソイドクメンの混合比による液体シンチレータの密度は、プソイドクメンの混合比を x とすると

$$\text{密度}\ [\mathrm{g/cm^3}] = (0.1297 \pm 0.0010)\ \mathrm{x} + (0.7501 \pm 0.0007) \qquad \text{(G.2)}$$

と求められる [25]。

図 G.3: 密度計

液体シンチレータの温度を 20°C 及び 80°C にしてバブリングした後、ドレンに溜まった液体シンチレータの密度を調べた。結果は共に 0.842g/cm^3 であった。式 (G.2) より、ドデカンとプソイドクメンの混合比はそれぞれ 0.291 ± 0.065、0.709 ± 0.065 となった。始状態の混合比がそれぞれ 0.8、0.2 であるので、ほとんどプソイドクメンが蒸発していることが分かる。

付 録H　放射性核種の壊変率とステンレスのラドン染み出し率

放射性核種	半減期 [year]	質量数
^{238}U	4.468×10^{9}	238.1
^{232}Th	1.405×10^{10}	232.0
^{40}K	1.277×10^{9}	39.97

表 H.1: ^{238}U、^{232}Th、^{40}K の半減期と質量数

^{238}U、^{232}Th、^{40}K の壊変率を求める。表 H.1 にそれぞれの半減期と質量数を示す。これとアボガドロ数 6.022×10^{23}、1 年当たりの日数 365.2 日から壊変率を見積もることが出来る。

放射平行を仮定すると、^{238}U の場合ウラン 1g 当たりの崩壊数は

$$\frac{1}{238.1}\times 6.022\times10^{23}\times\frac{ln2}{4.468\times10^{9}\times365.2\times24\times3600}=1.24\times10^{4}\ [\mathrm{Bq/g}] \tag{H.1}$$

と求められる。同様に ^{232}Th、^{40}K の単位 g 当たりの崩壊数が求められ、それぞれ 4.06×10^{3} [Bq/g]、2.59×10^{5} [Bq/g] となる。

^{238}U の壊変率を利用し、放射平行を仮定してステンレスのラドンの染み出し率を求める。ステンレスに含まれるウランの濃度を x[ppb [1]]、ラドンの拡散長を $\ell[\mu m]$ とすると、1m^2 当たりのステンレス表面からの染み出し率は、

$$\begin{aligned}&10^{4}[\mathrm{cm^2/m^2}]\times(\ell\times10^{-4}[\mathrm{cm}])\times7.86[\mathrm{g/cm^3}]\times(\mathrm{x}\times10^{-9}[\mathrm{g/g}])\times1.24\times10^{4}\ [\mathrm{Bq/g}]\ /\ 2\\&=4.9\times10^{-5}\ell x\ [\mathrm{Bq/m^3}]\end{aligned} \tag{H.2}$$

ここでステンレスの密度を 7.86g/cm^3 とし、染み出し面の裏表を考慮して 2 で割ってある。実際のステンレスのウラン濃度は数 ppb、拡散長は 7~22μm 程度であるので、仮に x = 2.5ppb、ℓ = 15μm とするとステンレス表面からのラドンの染み出し率は 1.8 $\times10^{-3}$[Bq/m^2] となる。その結果 1 日当たりの染み出し率は 1.6×10^{2}[decay/day/m^2] となり、BOREXINO で測定された電解研磨ステンレス表面からのラドンの染み出し率の上限値 15.6[decay/day/m^2][30] と比べると、標準ステンレスのラドンの染み出し率は一桁高く見積もられているのが分かる。

[1] 10^{-9}g/g

付 録I　KamLAND Collaboration

図 I.1: KamLAND Collaboration

T.Ebihara[1], S,Enomoto[1], K.Furuno[1], K.Ichimura[1], H.Ikeda[1], K.Inoue[1], Y.Kibe[1], Y.Kishimoto[1], M.Koga[1], Y.Konno[1], Y.Minekawa[1], T.Mitsui[1], K.Nakajima[1], K.H.Nakajima[1], K.Nakamura[1], K.Owada[1], I.Shimizu[1], J.Shirai[1], F.Suekane[1], K.Tamae[1], S.Yoshida[1], J.Busentiz[2], T.Classen[2], Z.Djurcic[2], C.Grant[2], G.Keefer[2], D.Leonard[2], D.McKee[2], A.Piepke[2], B.E.Berger[3], Y.D.Chan[3], M.P.Decowski[3], D.A.Dwyer[3], S.J.Freedman[3], Y.Fu[3], B.K.Fujikawa[3], J.Goldman[3], F.Gray[3], K.M.Heeger[3], K.T.Lesko[3], C.Lendvai[3], K.-B.Luk[3], H.Murayama[3], A.W.P.Poon[3], H.M.Steiner[3], L.A.Winslow[3], C.Mauger[4], R.D.McKeown[4], P.Vogel[4], Chao Zhang[4], C.E.Lane[5], T.Miletic[5], G.A.HortonSmith[6], P.W.Gorham[7], G.Guillian[7], J.G.Learned[7], J.Maricic[7], S.Matsuno[7], S.Pakvasa[7], S.Dazeley[8], S.Hatekeyame[8], B.D.Dieterle[9], M.DiMauro[9], C.Gregory[9], G.Gratta[9], K.Tolich[10], N.Tolich[10], M.Batygov[11], W.Bugg[11], Y.Efremenko[11], Y.Kamyshkov[11], A.Kozlov[11], C.R.Gould[12], H.J.Karwowski[12], D.M.Markoff[12], R.M.Rohm[12], W.Tornow[12], R.Wendell[12], A.R.Young[12], M.-J.Chen[13], Y.-W.Wang[13], F.Pequemal[14] and A.Suzuki[15]

[1] *Resarch Center for Neutrino Science, Tohoku University, Sendai 980-8578, Japan*
[2] *Department of Physics and Astornomy, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama 35487, USA*
[3] *Physics Department, University of California at Berkeley and Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720, USA*
[4] *W.K.Kellogg Radiation Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, California 91125, USA*
[5] *Physics Department, Drexel University, Philadelphia, Pennsylvania 19104, USA*
[6] *Kansas State University, 116 Cardwell, Manhattan KS66506, USA*
[7] *Department of Physics and Astronomy, University of Hawaii at Manoa, Honolulu, Hawaii 96822, USA*
[8] *Department of Physics and Astronomy, Louisianan State University, Baton Rouge, Louisiana 70803, USA*
[9] *Physics Department, University of New Mexico, Albuquerque, New Mexico 94305, USA*
[10] *Physics Department, Stanford University, Stanford, California 94305, USA*
[11] *Department of Physics and Astronomy, University of Tennessee, Knoxville, Tennessee 37996, USA*
[12] *Triangle Universities Nuclear Laboratory, Durham, North Carolina 27708, USA and Physics Departments at Duke University, North Carolina State University, and the University of North Carolina at Capital Hill*
[13] *Institute of High Energy Physics, Beijing 100039, People's Republic of Chaina*
[14] *RCEN Bordeaux-Gradignan, IN2P3-CNRS and University Bordeaux I,F-33175 Gradignan Cedex, France*
[15] *High Energy Accelerator Research Organization, KEK, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan*

参考文献

[1] B.T. Cleveland et al., Ap. J. 496, 505 (1998)

[2] John N. Bahcall : Neutrino Astrophysics, Cambridge University Press,1988

[3] K.R.Lang 太陽 シュプリンガー・フェアラーク東京

[4] 理科年表 国立天文台編

[5] john bahcall home page : http://www.sns.ias.edu/jnb

[6] 12. W. Hampel et al., Phys. Lett. B 447, 127 (1999);
M. Altmann et al., Phys. Lett. B , 16 (2000)

[7] J.N. Abdurashitov et al., astro-ph/0204245

[8] T. Kirsten, XXth Int. Conf. on Neutrino Physics and Astrophysics, Munich, May 25-30, 2002; Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.) 118 (2003)

[9] Y. Fukuda et. al, Phys. Rev. Lett. 77(1996) 1683-1686

[10] S. Fukuda et al., Phys. Lett. B 539, 179 (2002)

[11] S.N. Ahmed et al., Phys. Rev. Lett. volume 92, 181301 (2004)

[12] BOREXINO home page : http://pupgg.princeton.edu/ borexino/welcome.html

[13] John N.Bahcall and M. H. Pinsonneault
J. Phys. Rev. Lett., 92, Number 12, 121301 (2004), astro-ph/0402114.

[14] John N. Bahcall and Carlos Pena-Garay
New Journal of Physics, 6, 63 (2004), hep-ph/0404061.

[15] John N. Bahcall, Aldo Serenelli, and Sarbani Basu
Journal ApJ, 621, L85 (2005), astro-ph/0412440.

[16] K.Eguchi *et al*. (KamLAND Collaboration) : *Phys.Rev.Lett.***90** 021802 (2003)

[17] T.Araki *et al*. (KamLAND Collaboration) : *Phys.Rev.Lett.***94** 081801 (2005)

[18] T.Araki *et al*. (KamLAND Collaboration) : Nature, 436, (2005), 499-503

[19] W.-M. Yao et al., J. Phys. G 33, 1 (2006)

[20] 荒木 孝之, 修士論文, 東北大学 (平成 16 年度)

[21] Made by I.Shimizu, 2006

[22] 市村 晃一, 修士論文, 東北大学 (平成 16 年度)

[23] 鈴木 厚人 極低放射能環境下におけるニュートリノ科学の研究 2004

[24] 前田 達郎, 修士論文, 東北大学 (平成 15 年度)

[25] 竹内 慎, 修士論文, 東北大学 (平成 17 年度)

[26] 根元 真知子, 修士論文, 東海大学 (平成 8 年度)

[27] 満田 史織, 修士論文, 新潟大学 (平成 13 年度)

[28] 津田 裕輔, 修士論文, 東北大学 (平成 16 年度)

[29] 日本化学会 化学便覧 丸善 1993

[30] W.Rau, G.Heusser / Applied Radiation and Isotopes 53 (2000) 371-375

[31] Neutrino Physics http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino

[32] Super Kamiokande home page http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/sk/index.html

謝辞

本研究は多くの方々の支えによって行われました。この場をお借りして感謝の意を述べたいと思います。

前ニュートリノセンター長である鈴木先生には大変恵まれた環境で研究出来る機会を与えて頂きました。4 年生の時にニュートリノ研究のことを熱く語って頂き、研究意欲を駆り立てて下さいました。また同じ高校出身という事で同郷の親しみもあり、ワインや日本酒を頂いたりもしました。ワインは大切に飾っておいたのですが、地震の際に割ってしまったことをお詫びします。更に出世されて東北大学に戻ってくる事を願っております。井上先生にはニュートリノセンターに所属して以来多くの適切な御指導を頂きました。現在のニュートリノセンターの雰囲気も先生のおかげで非常に暖かく、おかげで自由な雰囲気で研究に打ち込めることが出来ております。12 月下旬まだ修論を書き始めておらずご心配をお掛けして申し訳ありませんでした。ドクターでは今まで以上にお世話になると思いますがどうぞ宜しくお願いします。山本先生には特に 4 年生の時に量子力学について、またエスプレッソコーヒーの魅力を教えて頂きました。来年度は加速器グループのドクターも居なくなり学生が少なくなってしまいますが是非盛り上げて行って頂きたいと思っております。山口先生には学部 1 年生の時より大変お世話になりました。心から楽しんで研究をされている先生の姿勢にいつも励まされています。今後も素粒子実験のみならず、お茶やこけしの事等色々教えて頂きたいと思っております。北垣先生には現在に至る素粒子物理実験の歴史を教えて頂いたりしました。現在の日本の素粒子物理実験の発展と今日ニュートリノセンターがあるのは先生のお蔭です。中性子検出器が完成されることを願っております。白井先生には熱心に実験を見て頂き、また勉強意欲を駆り立てて下さいました。お酒が入るといつも以上に暖かく振る舞われる先生の姿に憧れております。今後も多くの御指導を頂けます様宜しくお願いします。末包先生には Kaska 実験グループをニュートリノセンターに立ち上げて頂き、より一層活気ある研究室にして下さいました。Kaska グループの更なる発展を願っております。林野先生には 4 年生の時に天文実験の魅力を、そしてニュートリノセンターで数少ないクラシック愛好家として熱く語って頂きました。天文グループが益々発展する事を願っております。古賀さんには特に修士 1 年生の時にシミュレーションの研究を熱心に見て頂きました。同 3 月に今までの研究が 1 ページも修論にならないと告げられたお蔭できっぱりとテーマを変更する事が出来ました。本当に 1 ページにもならなかったことに今では驚いております。また神岡ではいつも目をかけて頂き大変感謝しております。今後もどうぞ宜しくお願いします。三井さんには 4 年生の時にラドン検出器の触りを見て頂き、またミーティングの時に適切なアドバイスを頂きました。暖かくも厳しい視線で研究されている姿勢に多くのことを学ばさせて頂いております。今後も御指導宜しくお願いします。中村健悟さんには研究への助言や暖かい言葉を掛けて頂いたりといつも神岡でお世話になっております。きっぱりした判断と行動と発言に見習うべきものを感じております。今後もどうぞ御指導宜しくお願いします。古野さんにはバブリングに関する事や窒素製造設備のことについて教えて頂きました。本研究に使用しているバブリングタンクは古野さんのアドバイスを参考にさせて頂いております。今後も宜しくお願いします。

吉田さんにはハードウェアに携わった事の無い私に大変熱心に指導して頂きました。本研究は吉田さんの存在無くして成し得ませんでした。本論文に載せるデータを取るために、年末より正月三ヶ日にかけても毎日鉱山に入って頂き、年中休み無く睡眠時間まで削って、可能な限り背中を押して頂きました。最近ではすっかり吉田さんの口癖も移ってしまい、大変色濃く影響を受けております。仙台にいる時はいつも電話に出れなくてすいませんでした (確信犯ではありません)。まだまだ未熟者ですが今度もどうぞ宜しくお願い致します。丸藤さんには特に修士の 1 年生の時に、丸藤研にて miniLAND のシミュレーション等数多くの御指導を頂き、また温かい言葉を掛けて頂いたりといつも感謝しております。miniLAND 実験の経過と共に疲労も溜まり続けている様に見受けられますので、早く miniLAND が完成される事を願っております。岸本さんには誤った方向に研究が進まない様にミーティングの時に数多くの助言を頂きました。テストのラドントラップ容器も岸本さん製作によるものをお借りしました。蒸留装置の作業で忙しい時に手伝えなくてすいませんでした。早く神岡から解放されることを願っております。三四郎さんには特に C++のいろはと美しいプログラムの書き方を教えて頂きました。修士 1 年生の時に川上さんの背中を追っていく上で、三四郎さんに色々お力をお借りしました。またスターバックスコーヒーと野菜ジュースの魅力も学ばせて頂きました。今後も色々お世話になると思いますが、どうぞ宜しくお願いします。清水さんは同県出身ということもあり、雪の降る量に格段の違いはありますが同郷の親しみを感じております。C++の概念は清水さんからお借りした本で学ばせて頂きました。今後は解析の面で色々お世話になると思いますが、頑張りますのでどうぞ宜しくお願いします。玉江さんにはいつも温

かい言葉を掛けて頂いて感謝しております。パソコンの環境を整える上で、いつも手を煩わせてしまってすいませんでした。本論文は玉江さんからお借りした学校の PC によってほとんど書き上げられました。この PC のお陰で茂住オフィスや鉱山でも集中して修論に取り組む事が出来ました。また玉江さんのお陰でニュートリノセンターの雰囲気も随分柔和になっていると思います。いつかチェロとフルートの 2 重奏を実現出来ればと思っております。長嶺さんには特に 4 年生の時に席が近かった事もあり、加速器実験のことについて色々教えて頂きました。ドクターに行っても辞めてしまう人が多いので、学生獲得のためにも頑張って頂きたいものと思います。池田さんには特に geant や root で分からない事があった時に色々と教えて頂いたり、楽しい発言をして笑わせて下さいました。豊富なパソコンの知識にいつも感心しております。今後解析の面で色々お聞きすることになると思いますので、どうぞ宜しくお願いします。享さんには席が後ろ合わせという事もあり、また名前が似ているという点でも大変親しみを感じております。バブリング用タンクの時は本当にお世話になりました。享さんが居なかったら現在のニュートリノセンターはどうなってしまうんだろうと常々思っております。またそのハード・オーバーワークにいつも感心しております。修論クラスのハードウェアをやりたいという願いがようやく叶ったカメラ実験が上手く行く事を願っております。Sasha gave me many helpful comments at meeting and I'm very enjoying your funny comment about Japan. I hope that you will attend various party at RCNS for next. I will start the analysis work in my doctor, so hope your experientially enhanced advise about it.

三浦さんには実験の進み具合についていつも温かい言葉を掛けて頂きました。高額な研究用品を購入しても問い質すようなことは一度も無く、お陰で効率良く研究を行う事が出来ました。今後も色々お世話になると思いますが、どうぞ宜しくお願いします。遠藤さんはあまり話す機会はありませんでしたが、淡々と業務をこなされる姿にいつも感心しております。事務関係のメールでよく返事が滞ってしまったことをここにお詫びしたいと思います。大塚さんにはよく話相手になって頂いたりと研究生活に癒しを与えて頂きました。お陰で事務室に顔を出す機会が多くなった様に思います。今後も是非色々話を聞かせ頂きたいと思っております。浦部さんにはいつもお会いする度素敵な笑顔を振りまいて頂きました。また写真を web にアップデートして貰ったりもしました。浦辺さんの席から漂う上品なオーラを私も見習いたいと思っております。聖子さんには神岡で出会う度に良く話し相手になって頂き、またコラボレーションミーティングでは二日酔いで大変ご迷惑をおかけしました。神岡生活に不足がちな潤いを与えて頂いている様に思っております。玉江さんと食事後 3 時間連続でおしゃべりするパワーにはただただ脱帽するばかりでした。今後も犬の事など楽しい話を是非お聞きしたいと思っております。高山さんには物探しや物作りをする上でいつも頼らせて頂きました。経験豊富な知識と技術に感心するばかりです。オイルトラップ用のドレインも高山さんに製作して頂きました。今後もお世話になると思いますが、どうぞ宜しくお願いします。花田さんには昨年年末忙しい時期に色々手伝って頂きました。見て頂いた中型ポンプは結局壊れてしまい、ここにお詫びしたいと思います。中嶋隆さんには実験に必要な装置を製作する上で、いつも懇切丁寧に指導して下さいました。バブリング用タンクとオイルトラップ製作については大変お世話になりました。隆さんがいなかったら本研究もまだ道半ばであったように思っております。今後もどうぞ宜しくお願い致します。柿沼さんにはいつも快適な環境で研究が行えるように研究室を美しく整えてもらっています。おかげでデスクやお茶飲み場を始め、いつも大変快適に使用する事が出来ております。まだまだこの研究室に残るつもりですのでどうぞ宜しくお願いします。

大和田さんには大切なテキストであるシグルイ、覚悟のすすめを勝手に持ち出した事をここにお詫びしたいと思います。特に前者のテキストは私に大変大きな影響を与えて下さいました。就職先でも是非頑張って頂きたいと思っております。市村さんにはその背中からドクターはどうあるべきかということを常に学ばせて頂いております。花の慶次や仙台っ子ラーメン等私に与えて頂いた影響は人並みならず、また研究面においても懇切丁寧に様々な事を教えて頂いたりしました。来年は D 論を書かなければなりませんが、持ち前の明るさと努力と不屈の精神で乗り切って頂きたいと思います。山内さんには Mac の環境設定の際お世話になりました。細かいパソコンの拘りように少なからず影響を受けたと思います。大変かと思いますが頑張って D 論を仕上げ、理論を覆す実験結果を発表して頂きたいと思います。菊池さんには修士 1 年の 3 月、初めての学会で色々な所に一緒に連れて行って頂きました。その後しばらく学校を休まれて人知れず就職活動に入られ、研究室を辞めると聞いた時には大変ショックでした。同じドクターとして切磋琢磨したかったので非常に残念に思っております。センターを離れる前に、菊池さんの穴を埋められる様に、後輩の育成、指導、勧誘を頑張って頂きたいと思います。同級生の海老原君には研究室に入るまでインスタントコーヒーしか飲まなかった私に、コーヒーを手で入れる心の余裕と香り溢れる喜びを教えてもらいました。また漢の約束によって、それまで髪を染めた事の無かった私に新天地を切り開かせてもらいました。海老原君が居なかったら現在研究室がどうなっていたかとよく考えさせられます。今後海老原君にはもっと羽目を外すことの出来る暖かみのある存在になって頂き、旨いコーヒーの高みを目指し続けてもらいたいと思います。岐部君には 4 年生の時より色々とお世話になり、実験テーマは分かれましたが共に切磋琢磨してきました。アパートで海老原君と共に料理して飲み合った時の事や、印象的な写真の数々が忘れられません。共にドクターに進む身として、KamLAND 実験を盛り上げより良い研究室作りに頑張って行きましょう。今野さんには修士 1 年の時より同じ丸藤研として頑張って来ました。最近はよく丸藤さん経由でシミュレーションの依頼が来るのですが、具体的

に何のために ×× して欲しいと言ってくれれば (時間のかかるバックグラウンドシミュレーションは厳しいけど)、快く引き受けたいと思っております。丸藤さんが神岡で大変そうですので、上手くサポートして miniLAND を成功させてもらいたいと思います。谷君はその独特な人柄に親しみを感じております。ドクターに進学すると約束して山口先生にノートパソコンを買って貰ったのに、就職されることが決定し共にドクターに進めないのが残念です。またハワイ学会に参加するための努力は感心しました。グーグル先生等与えてくれた語録はしかと根付いております。修論は一人英語でご苦労様でした。土屋君は隣の席で毎日規則正しく淡々と仕事に打ち込む姿に感心しておりました。私も土屋君の様に朝型の研究生活を行える様にしたいと思います。就職しても頑張って下さい。中村さんにはへこたれている時に暖かい励ましの言葉を掛けてもらったりと、その独特な個性で研究生活を柔和なものにして下さいました。がね言葉はすっかり私の口癖です。ドクターに進んでも修論締め切り時のような熱心さで研究に打ち込む事を願っております。橋本君にはよく車を出してもらって、食事や買い物や温泉など快く連れて行ってもらいました。橋本君が居てくれたおかげで随分楽しい日々を送る事が出来ました。人に甘え上手な性格は少し羨ましく思っております。今後は Belle Boy を卒業して、同級生の中村さんにも後ろ指差されない立派な紳士になって欲しいと思います。横山君も同じ Belle Boy として多いに刺激を受けました。横山君の台詞がドラマの中で使われているのを見た時は大変驚きました。就職したら橋本君同様、Bello Boy を卒業してもらいたいと思います。嶺川さんには随分遊んで頂き、吉田さんと共に研究生活に潤いを与えて下さいました。雑用も嫌がらずに進んで仕事をこなし、仕事をしていないと落ち着かないという姿勢に感服致しました。また嶺川さんの口癖もすっかり定着して吉田さんと一緒に使用しております。神岡ではスパイ活動とご飯をどうもありがとうございました。おかげで修論を書く励みになりました。本論文の最終提出も神岡で実験に明け暮れていたために嶺川さんに依頼し、本当にお世話になりました。香西君にはその独特な個性に刺激を受けました。席に座っている後ろ姿を初めて見た時のことが忘れられません。今後は天文グループを多いに盛り上げて欲しいと思います。田畑君には隣の席という事もあって、良く机の上に勝手に物を置いたりとご迷惑をお掛けしました。さんさん録は私のバイブルとなっております。今後は Kaska グループの学生最年長として多いに頑張って頂きたいと思います。堀井君にはニュートリノセンターのパーティーの仕事を引き継いでもらいました。良き伝統を作り、更に後輩に受け継いで行ってもらいたいと思います。太田君には院試勉強をしている時に良く目立っているのが印象的でした。院試後長い旅から帰って来て随分大人しくなってしまったのが少し心配です。また昔の様に大らかな太田君に戻ってもらいたいと思います。竹本君は夜遅くまで残っている事が多く、液体窒素入れをよく手伝ってもらいました。また同い年という事で親しみを感じております。個人的には海老原君の研究室における役割を引き継いでもらいたいと思っております。あまり無理せず研究を頑張って下さい。阿部君にはコーヒー組合に入って頂きました。享さんの下でカメラ実験を仲村さんと共に是非頑張って頂きたいと思います。享さんの負担を少しでも少なくしてあげられる人に成長して下さい。米澤君は 1 月から竹本君と一緒に鉱山の中にずっと入って頑張っている姿が印象的でした。規則正しい生活の方が研究は長続きすると思いますので、あまり無理せず頑張って頂きたいと思います。仲村さんには忘年会の時にしつこく白井先生の杯を入れて頂きました。白井先生がその方が嬉しいようなので苦肉の策だったのですが、嫌がらずにきちんと引き受けてくれてどうも有り難うございます。お陰で白井先生はご機嫌になり、私も嬉しかったです。今後は教えなくても自ら気づいて白井先生に注いであげて下さい。亜寿紗さんは今まで研究室にいなかったタイプで、M.K さんに似ている言動に激しく癒されました。修論締め切り前日には差し入れを持って来て頂き、大変感動致しました。またその優しい雰囲気は多いに私の励みとなり、今後もニュートリノセンターを良い方向に導いてくれるものと期待しております。天文の実験が終わったら、是非 KamLAND の研究を頑張って貰いたいと思います。

最後に、いつも私を支えてくれた父、母、弟妹に感謝の意を述べたいと思います。家族の支えなくして、私は研究を行う事が出来ませんでした。並びに友人達を初め、私を励ましてくれた多くの方々に感謝します。皆さん本当にどうも有り難うございました。