

修士論文

液体シンチレーター中の極低レベル
ラドンの測定
後

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻
津田 祐輔

平成16年



概要

KamLANDでは ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測を計画しており、そのためにその観測において主要なバックグラウンドになる放射能 ${}^{210}\text{Pb}$ の低減を行う必要がある。この ${}^{210}\text{Pb}$ は初期純化の際に混入した ${}^{222}\text{Rn}$ が崩壊してできたものであると考えられており、そのため将来の再純化の際にはそのRn放射能をできる限り減らす必要がある。KamLAND検出器は地下1000mの鉱山内にありラドン濃度が外気よりも高くなっている。そこでまず外気を導入することにより、実験室Rn濃度の低減を行い、それをオンラインで計測し外気と同程度のラドン濃度までラドン濃度が低減され、またそれが維持されていることを確認した。また再純化の際に求められるLS中のRn濃度は $<1\text{mBq}/\text{m}^3$ であり、そのLS中の極低レベルのRn濃度の測定のために検出器を開発する必要がある。開発を行った。まず実験室Rn濃度の低減において、測定値は目標の外気と同程度($\sim 40\text{Bq}/\text{m}^3$)にまで低減できていることが確認できた。また極低レベルのRn濃度の測定のための検出器の開発を行った。結果検出器のラドン濃度絶対値較正において較正值は 17.8 ± 1.7 [(count/hour)/(Bq/m³)]になった。また検出器のバックグラウンドを調べ、また低減することにより $23\text{mBq}/\text{m}^3$ のラドン濃度環境を実現できた。さらに中空糸膜を使って液体シンチレーター中のラドンを抽出し、その濃度の測定を行った。その際のラドン濃度は $>26\text{Bq}/\text{m}^3$ の範囲において行い、その抽出効率は $\sim 34.6\%$ となった。これにより中空糸膜を使ってラドンを抽出することが可能であり、さらなる開発を行うことで、この抽出効率を上げ、さらなる低バックグラウンド環境を実現し(例えば電解研磨された検出器を使うなど)、またラドンの濃縮法を確立することで、LS中のRn濃度を $<1\text{mBq}/\text{m}^3$ の領域において観測可能になると考えられる。

目次

| | | |
|------------|--|-----------|
| 第1章 | 序論 | 8 |
| 1.1 | ニュートリノとは | 9 |
| 1.2 | 太陽ニュートリノ問題 | 10 |
| 1.2.1 | 太陽ニュートリノとは | 11 |
| 1.2.2 | 太陽標準理論 | 12 |
| 1.2.3 | 太陽ニュートリノに関する歴史 | 14 |
| 1.3 | ニュートリノ振動 | 17 |
| 第2章 | KamLAND 実験 | 23 |
| 2.1 | KamLAND 検出器 | 25 |
| 2.1.1 | KamLAND 検出器構造 | 25 |
| 2.1.2 | 光電子増倍管 | 27 |
| 2.1.3 | エレクトロニクス | 29 |
| 2.1.4 | トリガー回路 | 29 |
| 2.1.5 | 純化装置 | 31 |
| 2.2 | ニュートリノの検出方法 | 32 |
| 2.2.1 | 反ニュートリノの検出方法 | 32 |
| 2.2.2 | 太陽ニュートリノの検出方法 | 35 |
| 第3章 | KamLAND における種々の放射性バックグラウンドとその低減方法 | 37 |
| 3.1 | ラドンについて | 37 |
| 3.2 | 現在のバックグラウンド | 38 |
| 3.2.1 | ^{238}U | 38 |
| 3.2.2 | ^{232}Th | 41 |
| 3.2.3 | ^{40}K | 41 |
| 3.2.4 | ^{14}C | 41 |
| 3.2.5 | ^{85}Kr | 41 |
| 3.2.6 | ^{39}Ar | 42 |
| 3.3 | バックグラウンドの除去方法 | 42 |
| 3.3.1 | 蒸留法 | 43 |
| 3.3.2 | 液液抽出 | 43 |
| 3.3.3 | 窒素ガスパージ | 43 |
| 3.3.4 | 吸着 | 43 |
| 3.4 | 現在の進行状況 ~ ^7Be 検出に向けて ~ | 44 |

| | | |
|-------|---|-----|
| 第4章 | KamLANDにおける環境ラドン濃度の測定 | 45 |
| 4.1 | ラドンモニタリングシステム | 45 |
| 4.2 | KamLAND エリアへの外気の導入 | 47 |
| 4.3 | KamLAND 内の環境ラドン濃度の測定結果 | 47 |
| 第5章 | Rn 検出器の開発 | 53 |
| 5.1 | 液体シンチレータ (LS) 中の極低レベルラドン濃度計測のための検出器の開発 | 54 |
| 5.2 | 検出器および検出原理 | 57 |
| 5.2.1 | 検出器 | 57 |
| 5.2.2 | 検出原理 | 61 |
| 5.2.3 | 高電圧分割回路およびプリアンプモジュール | 61 |
| 5.2.4 | データ収集のシステム | 63 |
| 5.3 | ラドン検出器の動作 | 65 |
| 5.3.1 | ラドン検出器のエネルギー較正 | 65 |
| 5.4 | ラドン検出器の絶対値較正 | 78 |
| 5.5 | Background Study | 82 |
| 5.5.1 | 配管接続部および配管からの洩れの改善1 | 82 |
| 5.5.2 | 配管接続部および配管からの洩れの改善2 | 84 |
| 5.5.3 | 検出器内部および表面からのラドン放出の改善 | 84 |
| 5.6 | LS 中のラドン濃度の測定 | 88 |
| 5.6.1 | 中空糸膜を用いたラドンの気体中への抽出 | 88 |
| 5.6.2 | 中空糸膜について | 88 |
| 5.6.3 | 中空糸膜を用いたミネラルオイル (MO) からの Rn の抽出-高濃度 Rn 濃度の MO からの抽出 | 89 |
| 5.6.4 | 中空糸膜を用いた MO からの Rn の抽出-高濃度 Rn 濃度の MO からの抽出効率1 | 93 |
| 5.6.5 | 中空糸膜を用いた MO からの Rn の抽出-高濃度 Rn 濃度の MO からの抽出効率の測定2 | 98 |
| 5.6.6 | 測定値の誤差について | 102 |
| 5.7 | まとめ | 102 |
| 第6章 | 結果および将来計画 | 104 |
| 付録A | 放射壊変 | 106 |
| 付録B | 抽出されるラドンの濃度の変化について | 108 |

目次

| | | |
|------|--|----|
| 1.1 | 低エネルギー領域の実験データと KamLAND で予想されると太陽ニュートリノのスペクトル | 8 |
| 1.2 | 太陽標準理論の予測するものと実験の測定値の間の太陽ニュートリノイベント数の比較 | 11 |
| 1.3 | pp-chain of Solar Standard Model | 13 |
| 1.4 | 標準太陽理論によって予測される pp 連鎖によって生じるニュートリノのエネルギースペクトル | 15 |
| 1.5 | KamLAND 実験の反ニュートリノのデータと太陽ニュートリノ実験から許されるニュートリノ振動パラメータ | 21 |
| 1.6 | CPT 不変の仮定のもとで KamLAND 実験と観測された太陽ニュートリノのフラックスの、2 フレーバー間のニュートリノ振動パラメーター混合解析の結果 | 22 |
| 2.1 | 日本の原子炉と KamLAND 検出器の地図 | 23 |
| 2.2 | 原子炉ニュートリノ Flux | 24 |
| 2.3 | E/L のプロット | 25 |
| 2.4 | E/L のプロット | 26 |
| 2.5 | KamLAND 検出器の全体像 | 27 |
| 2.6 | KamLAND 検出器の構造 | 28 |
| 2.7 | KamLAND 検出器に用いられている光電子増倍管 | 29 |
| 2.8 | KamLAND 検出器のエレクトロニクス | 30 |
| 2.9 | 先発トリガーの検出効率 | 31 |
| 2.10 | 純化装置 | 32 |
| 2.11 | 電子型反ニュートリノの反応過程 | 33 |
| 2.12 | 反跳した中性子の Monte carlo simulation | 34 |
| 2.13 | 逆 β 崩壊の反応断面積 | 35 |
| 3.1 | ^{238}U の崩壊系列図 | 39 |
| 3.2 | KamLAND 検出器で見られる ^{210}Po 濃度の時間変動 | 40 |
| 3.3 | KamLAND でみられる background spectrum | 42 |
| 4.1 | MODEL1027 の配置図 | 46 |
| 4.2 | Model1027 の外観 | 46 |
| 4.3 | Model1027 の ^{222}Rn 濃度測定値の再現性 | 47 |
| 4.4 | 外気を送るためのシステムの全体像 | 48 |

| | | |
|------|---|----|
| 4.5 | 坑口入口付近でのポリエチレンのパイプの取り付け。 | 48 |
| 4.6 | 外気を送るためのシステム | 49 |
| 4.7 | 外気を導入した箇所と導入していないところでのラドン濃度の推移 | 50 |
| 4.8 | コントロールルームでのラドン濃度の推移 | 51 |
| 4.9 | 純化装置エリア窒素タンク上での測定値。外気導入後ラドン濃度が 40Bq/m^3 以下に抑えられていることがわかる。 | 51 |
| 4.10 | 環境ラドン濃度確認のためのモニター画面 | 52 |
| | | |
| 5.1 | 将来の KamLAND の全体像 (仮) | 53 |
| 5.2 | Rn 検出器の外観 | 54 |
| 5.3 | 純化の際の Rn の混入 | 55 |
| 5.4 | Flow Chart Of Future Purification | 56 |
| 5.5 | Rn 検出器の模式図 | 58 |
| 5.6 | HV Double decker circuit | 59 |
| 5.7 | PINPhoto | 60 |
| 5.8 | Rn 検出器で観測される α 線 | 62 |
| 5.9 | HV divider Circuit | 63 |
| 5.10 | Pre Amplifier Circuit. | 64 |
| 5.11 | エレクトロニクスハットから kinoko でデータ収集されるまでのシステム | 64 |
| 5.12 | 室内空気中の α 線の測定 | 65 |
| 5.13 | $^{241}_{95}\text{Am}$ の崩壊ダイアグラム | 66 |
| 5.14 | ALpha Energy Loss | 68 |
| 5.15 | $\alpha(5.44\text{MeV})$ 線の Au または Pt 薄膜中でのエネルギー損失。 | 69 |
| 5.16 | Am のスペクトル | 70 |
| 5.17 | Am の α 線のスペクトル | 71 |
| 5.18 | Am からの α 線のピークの移動 1. | 72 |
| 5.19 | Am からの α 線のピークの移動 2. | 72 |
| 5.20 | エネルギー較正の際のラドン供給システム | 74 |
| 5.21 | エネルギー較正の際に見られるスペクトル | 75 |
| 5.22 | ^{218}Po 崩壊曲線 | 76 |
| 5.23 | Am、 ^{218}Po 、 ^{214}Po の 3 つのピークの同時測定 | 76 |
| 5.24 | エネルギー絶対値較正 | 77 |
| 5.25 | Rn concentration measuring system | 78 |
| 5.26 | ラドン濃度の時間推移 | 80 |
| 5.27 | ラドン検出器の Model1027 を用いたラドン濃度の絶対値較正 | 81 |
| 5.28 | Rn BackGround | 83 |
| 5.29 | Rn concentration measuring system | 84 |
| 5.30 | 検出器内部の掃除後のラドン濃度のデータ | 85 |
| 5.31 | 検出器上部の洩れを改善し leak catcher で洩れが見られないことを確認し た後の絶対値較正 | 87 |
| 5.32 | | 88 |
| 5.33 | 実験に用いた中空糸膜の膜脱気の原理 | 89 |

| | | |
|------|---|-----|
| 5.34 | 実験に用いた中空糸膜の脱気性能 | 90 |
| 5.35 | 実験に用いた中空糸膜の圧力損失 | 90 |
| 5.36 | Membrane run Rn 検出器 | 92 |
| 5.37 | Membrane run MODEL1027 | 92 |
| 5.38 | Rn の Activity を測定するための実験装置の Set-Up | 94 |
| 5.39 | LS の Activity の時間変化 | 95 |
| 5.40 | MO 中のラドンの Activity の PMT での測定 | 96 |
| 5.41 | MO 中の Rn の Activity[Hz] | 97 |
| 5.42 | RnExtractRateCase1 | 98 |
| 5.43 | MO 中の Rn の Activity[HZ] | 100 |
| 5.44 | MO 中のラドンの Background | 101 |
| 5.45 | 中空糸膜の抽出効率 | 101 |
| A.1 | ^{222}Rn が崩壊するときに見える α と ^{214}Po の崩壊するときに見える α の rate の比の時間推移 | 107 |
| B.1 | 抽出されるラドンの濃度の変化 | 109 |

表目次

| | | |
|-----|--------------------------------|----|
| 1.1 | 素粒子の表 | 9 |
| 1.2 | 主な太陽ニュートリノとそのブランチおよびエネルギー分布 | 13 |
| 3.1 | ラドンの性質 | 38 |
| 3.2 | 様々な場所でのラドンの存在量 | 38 |
| 4.1 | model1027 の仕様 | 47 |
| 5.1 | PIN フォトダイオードの仕様 | 60 |
| 5.2 | 実験に使用した中空糸膜モジュールの仕様 | 89 |
| 5.3 | 様々なラドン濃度の MO からの R_n の抽出効率 1 | 95 |
| 5.4 | 様々なラドン濃度の MO からの R_n の抽出効率 2 | 99 |

第1章 序論

KamLAND(Kamioka Liquid Scintillator Anti-Neutrino Detector)は素粒子物理学における低エネルギー現象の解明を目的として作られた大型検出器であり、超低バックグラウンド環境において数100keVの領域においてまで感度があると考えられる。このエネルギー領域には太陽ニュートリノ、原子炉反ニュートリノ、地球反ニュートリノなどの対象となるニュートリノが多くあり、多くの新発見が期待される。現在までにKamLANDは原子炉反ニュートリノにおいて99.995% C.Lで $\bar{\nu}_e$ と $\bar{\nu}_\mu$ 間でのニュートリノ振動を示しており、さらなる低バックグラウンド環境を実現することにより、 ^7Be ニュートリノ検出を目標としている。

太陽標準理論の検証のためにはPP-Chainでそのフラックスの14%を占めると予想される ^7Be ニュートリノ検出することが必要になる。しかしながらKamLANDにおいて ^7Be ニュートリノを検出するためには、図1.1の様に多くのバックグラウンドが存在する。このバックグラウンドの中でも特に ^{210}Po と ^{210}Bi について、これらのバックグラウンドは現在LS中に残っている ^{210}Pb が原因である。この ^{210}Pb はもとをたどると ^{222}Rn であり、このラドンは純化の際に空気中のラドンがLSに溶け込んだものであると考えられる。そこでこのラドンの濃度を低減することが必要となり、そのレベルは 1mBq/m^3 以下が求められる。

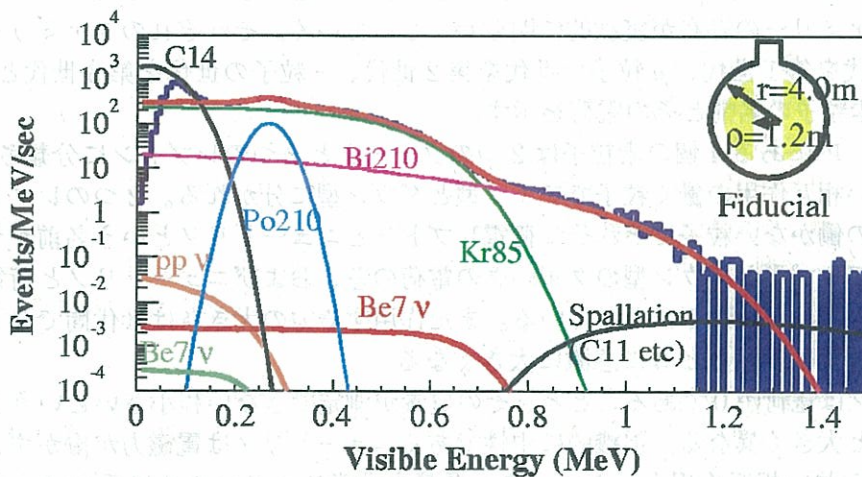


図 1.1: 低エネルギー領域の実験データと KamLAND で予想されると太陽ニュートリノのスペクトル

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

表 1.1: 素粒子の表

この極低バックグラウンドの実現のためにはバックグラウンドに寄与するラドン濃度を定量的に測定し、それが基準値 1mBq/m^3 以下であることをリアルタイムで知ることが必要になる。そのため我々は高感度なラドン検出器を開発する必要がある。また KamLAND 検出器は地下 1000m の鉱山内にあり、まわりを岩盤に覆われているため、そこから放出するラドンや、その鉱石が水に溶けてその水から発生するラドンのために外気よりもラドン濃度が高くなっている、そのため我々は外気を実験室内に導入し、実験室内の空気中のラドン低減を行い、それを常時測定可能なモニターを設置しそれが維持されていることを確認した。本論文では第 1 章本実験の物理的な意義とともにニュートリノについて。第 2 章では KamLAND 検出器について。第 3 章では種々のバックグラウンドについて、およびその削減方法について。第 4 章では KamLAND 実験質エリアでの環境ラドンの低減について。第 5 章では液体シンチレーター中のラドン濃度を 1mBq/m^3 まで測定可能な高感度の検出器の開発について述べ、第 6 章でその結果、将来計画を述べる。

1.1 ニュートリノとは

現代の素粒子には分類方法があり、それは 4 個の素粒子を一まとめにしてファミリーとし、3つのファミリーの存在が実験的に明らかになっている。それぞれのファミリーにおいて電子の世代を第 1 世代、 μ 粒子の世代を第 2 世代、 τ 粒子の世代を第 3 世代と呼ぶ。次の表 1.1 に素粒子の名前とその電荷を示す。

各ファミリー内にある 4 個の素粒子は 2 つのクォークと 2 つのレプトンに分類される。クォークは強い相互作用の働く粒子でアップ型とダウン型に分かれる。2 つのレプトンは強い相互作用の働かない粒子でそれぞれ荷電レプトンとニュートリノという名前がついている。ここでアップ型とダウン型のクォークの電荷の差、およびニュートリノと荷電レプトン間の電荷の差は正確に 1 になっている。また作用する力の大きさは世代間で全く差がなく、粒子の質量は世代とともに急激に大きくなる。

ニュートリノは電荷が 0 であることと、その質量が測定できない程小さいという 2 つの点で他の粒子と大きく異なる。電機的に中性であるニュートリノは電磁力が働かず、レプトンであるから強い相互作用もしない。また質量も非常に小さいために重力は完全に無視でき、唯一働く力は弱い力である。そのため物質とほとんど反応せず、巨大な貫通力を持つ。

ニュートリノの質量は現代の素粒子理論である標準模型においては恒等的に 0 と見なされている。しかしながらニュートリノの質量が 0 である必然性は全くない。

ニュートリノは歴史を遡ると β 崩壊において一見エネルギー保存則が破れているように見える現象を解決するために仮説として導入された。

この解決方法は 1930 年、W.Pauli によって提唱された。具体的には中性子が β 崩壊するとき陽子と電子の他にこのニュートリノの反粒子 $\bar{\nu}_e$ も同時に放出されるとするものである。

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.1)$$

この考えは 1934 年 E.Fermi によって弱い相互作用の理論として提唱された。Fermi は粒子の生成、消滅と言う場の理論の考えを電子とニュートリノに導入したのである。また陽子と中性子のスピンは $1/2$ 、電子のスピンも同じく $1/2$ であるから反ニュートリノのスピンも $1/2$ と予想されたのだが、この理論によりそれも定式化される。この理論から導き出されるニュートリノと電子の角度相関は崩壊率 $d\Gamma$ 、ニュートリノと電子の間の角度を θ 、ニュートリノのエネルギーを E_ν 、電子のエネルギーを E_e とすると

$$\frac{d\Gamma}{d\cos\theta dE_e} = \frac{G^2}{4\pi^3} (1 + \nu_e \cos\theta) E_\nu^2 p_e E_e \quad (1.2)$$

となりこれが $^{35}\text{Ar}(\frac{3}{2}^+) \rightarrow ^{35}\text{Cl}(\frac{3}{2}^+)$ の β 崩壊の観測から実験的に検証され、ニュートリノの存在は根拠あるものと考えられるようになった。

この後 β 崩壊でパリティの非保存が発見され、ニュートリノは左巻しか存在しないことが今までの実験で確かめられている。

Pauli の予言から 25 年後、ようやく実際にニュートリノを直接観測することに成功する。1956 年 F.Rines はアメリカのサバンナ湖畔の大型の商業用原子炉から来る $\bar{\nu}_e$ を、 CdCl_2 をターゲットとしそこから発生する γ 線を液体シンチレータで捕える装置を用いて遅延同時計測によりニュートリノの反応を観測した。この反応の信号数と原子炉からのフラックスから求められた反ニュートリノの断面積が理論と良く一致 ($\sim 10^{-43}$) していることからこれがニュートリノ検出の最初の証拠となった。

1962 年 Schwartz らはブルックヘブン研究所の加速器で作られたミューニュートリノビームを測定期中の陽子や中性子に当てて、電子や μ 粒子が出て来るかを調べる実験を行った。この結果 μ 粒子だけが確認されたので、 ν_μ と ν_e は異なった粒子という結論が得られ、 ν_μ が発見されたことになる。

1976 年、M.Parl 等により τ 粒子が発見され、その β 崩壊は弱い相互作用で正確に記述できることがわかった。すなわちタウオンは電子と電子ニュートリノ、それにタウオンと同じファミリーに属するタウニュートリノに崩壊する。そして 2001 年、ニュートリノビームによる実験により、 ν_τ の存在が直接観測され、ここに現在確認されている 3 種類全てのニュートリノが揃うに至る。

1.2 太陽ニュートリノ問題

太陽ニュートリノの観測は 1960 年アメリカの R.Davis によってはじめられ、現在でも活発に続けられている。40 年も観測を続けている理由は $0.2\text{MeV} \sim 15\text{MeV}$ のエネル

ギー範囲で観測された太陽ニュートリノのフラックスが、太陽標準模型を用いて太陽のルミノシティから予想される値よりもずっと少ないからである。これを太陽ニュートリノ問題と言う。

次の表 1.2 に種々の太陽ニュートリノの観測実験においてその実測値と、太陽標準模型から予想されるニュートリノのイベント数の比較を示す。

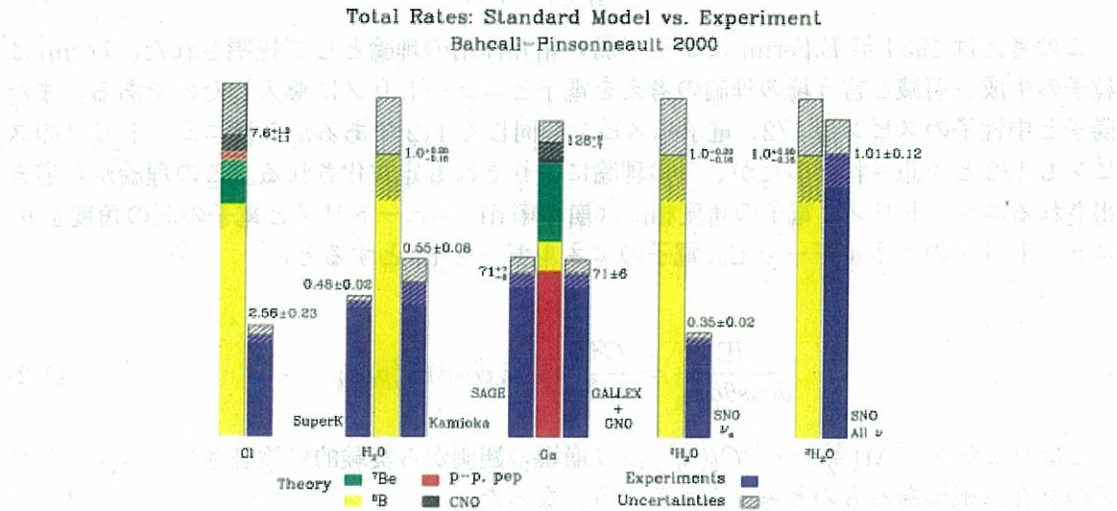


図 1.2: 太陽標準理論の予測するものと実験の測定値の間の太陽ニュートリノイベント数の比較

この問題の原因として考えられるのは太陽標準理論が間違っているか、あるいはニュートリノが発生点から地球に飛来してくる間に電子ニュートリノが他のニュートリノに変わり観測されなくなった(ニュートリノ振動)かのどちらかである。

この節では太陽ニュートリノについて、また太陽標準理論を説明し、その後種々の太陽ニュートリノ実験を歴史をおって紹介する。

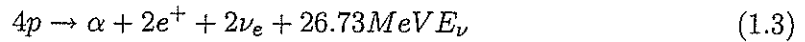
1.2.1 太陽ニュートリノとは

太陽のように自ら輝く構成はその質量に応じて数百万年から百億年以上にわたる長期間、巨大なエネルギーを発生している。これを賄うエネルギー源が核反応であることが 1920 年に Eddington や Rutherford によって示されていた。星の主成分は水素のような軽い元素でありこの場合に生み出されるエネルギーは核融合反応による。生まれたての構成は重力収縮によって温度が上昇する。

やがて中心部の温度が 1000 万度に達すると熱エネルギーによる核融合反応が始まる。1946 年 G.Gamow や T.Bethe により元素起源宇宙論から星の熱核融合反応が定式化されそれに基づき S.Chandrasekhar により恒星進化論が築かれた。

太陽を含めた恒星の一生のほとんどは安定に水素を燃やしてエネルギーを発生する水素

燃焼の段階にある。このとき恒星内で起っている次のような核融合反応である



この反応はすべての反応をまとめたものである。 E_ν は発生するすべてのニュートリノがもちさるエネルギーを表す。水素がヘリウムに変わるためには陽子が中性子にかわる必要があり、これは弱い相互作用によって引き起こされる。

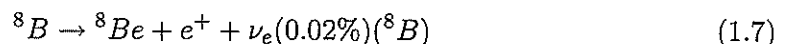
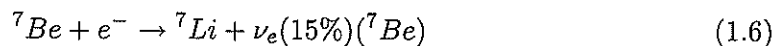
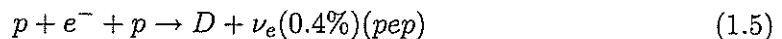
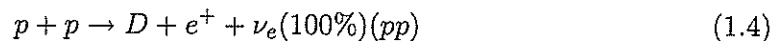
太陽の構造は太陽中心から 20 万 km までは核融合反応でエネルギーを発生している水素燃焼核で 20 万 km~50 万 km までは放射層となり、50 万 km~70 万 km までは対流層になっている。

そして最後に 500km の光球になる。放射層では核融合反応で発生したエネルギーが γ 線や X 線として太陽中の物質と散乱、放射、吸収、再放出を繰り返してランダムウォークで対流層まで進んでいく。それに要する時間は 1 0 0 万年程度でありそれに対してニュートリノは太陽表面の光と同様の約 500sec で地球に到達する。太陽エネルギーの生成機構の内エネルギーの 98.5%までが陽子-陽子鎖 (pp チェーン) と呼ばれる反応過程で発生する。この反応について図に示す。

pp 連鎖では 2 個の陽子が融合して、重陽子となり陽電子とニュートリノが放出される pp 反応から始められる。ただし 1%の確率で 2 個の陽子と 1 個の電子が反応する 3 対反応があり、pep 反応と呼ばれている。pp 反応は陽子どうしがクーロン力で反発しあうために非常にゆっくりと進行する。これが長期間にわたって、恒星が輝き続ける理由である。

pp 連鎖において pp、pep、 ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^8\text{B}$ 、hep ニュートリノが生みだされる。さらに熱核融合過程には CNO サイクルという過程もあるがこの反応は炭素、窒素、酸素が触媒となってニュートリノ反応が起こる。CNO サイクルは温度が高い程重要になるが太陽ではエネルギーの 1.5%しか担っていない。どの反応が起こるかは星の内部の温度、組成、密度などできまる。

次に主に種々の実験で主に観測される太陽ニュートリノの反応を示す。



これらの反応から放出されるニュートリノはそれぞれ、pp ニュートリノ、pep ニュートリノ、 ${}^7\text{B}$ ニュートリノ、 ${}^8\text{B}$ ニュートリノと呼ばれる。

次の図 1.3 に太陽標準理論の pp-chain の様子を図示する。

1.2.2 太陽標準理論

太陽ニュートリノのフラックスは簡単に計算できる。上の核融合反応の式の Q 値、すなわち反応当たりに放出される運動エネルギーは $Q=26.731\text{MeV}$ である。ただし生成された

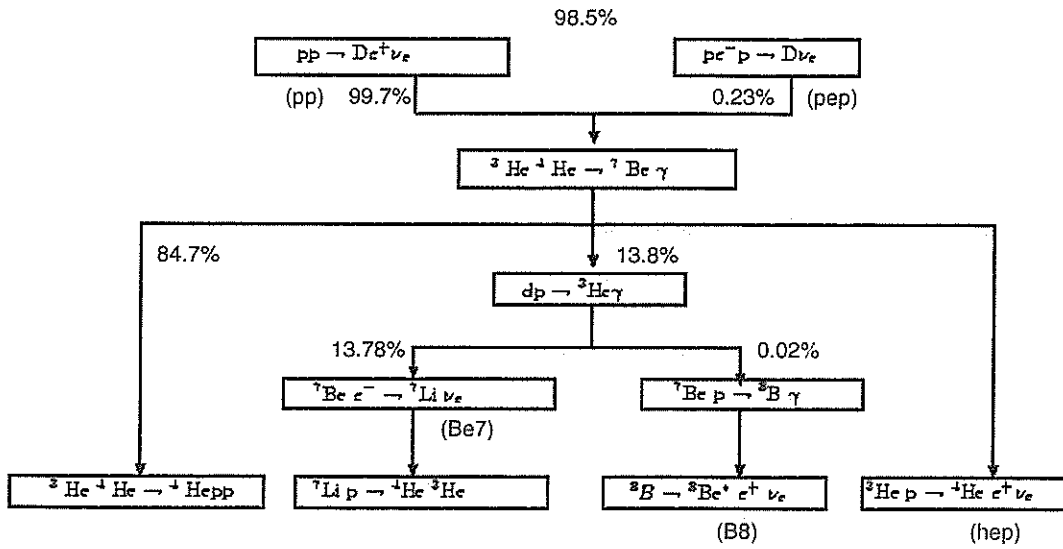


図 1.3: pp-chain of Solar Standard Model

| ニュートリノ | ブランチ | エネルギー (MeV) |
|-----------------|----------|--------------------------|
| pp | 100% | ≤ 0.420 |
| pep | 0.4% | 1.442 |
| ${}^7\text{Be}$ | 15% | 0.861 (90%), 0.383 (10%) |
| ${}^8\text{B}$ | 0.02% | |
| hep | 0.00002% | ≤ 18.77 |

表 1.2: 主な太陽ニュートリノとそのブランチおよびエネルギー分布

e^+ は周囲の e^- と対消滅して熱エネルギーになることを考慮しなければならない。太陽内で起こる核融合反応の毎秒あたりの回数を N_1 とすると、

$$(Q - \langle \nu \rangle) N_1 = L \quad (1.8)$$

であるただし $\langle \nu \rangle$ は太陽のルミノシティに寄与しないニュートリノの平均エネルギーで $\langle \nu \rangle = 0.6 \text{ MeV}$ 、 L は太陽のルミノシティである。ニュートリノは上の反応あたり 2 個つくられるから、地球における太陽ニュートリノのフラックス ϕ_ν は

$$\phi_\nu = \frac{2N_1}{4\pi d^2} \quad (1.9)$$

で与えられる。ただし d は太陽地球間の距離で $1.496 \times 10^8 \text{ km}$ である。以上から $\phi_\nu = 6.63 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ となる。このように太陽ニュートリノの全 flux は簡単に計算できる。しかしながら各々の branch の flux に関しては大変厄介で、そのためには精密な太陽のモデルの計算が必要である。

その基本となる式は太陽内部の半径 r における圧力と密度の関係式として

熱伝導の式として、最後の式は球殻 ($r, r+dr$) におけるエネルギー発生率で以上の一連の方程式を境界条件 luminosity (L) と太陽の半径 (R) のもとで解く。以上の計算により上で説明した反応の各々出現確率が求まる。

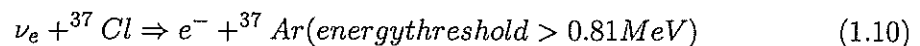
図 1.4 に太陽標準理論から予測される太陽ニュートリノのスペクトルの Bahcall による最新の計算結果を示す。

全てのニュートリノ flux を加えると確かに $6.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ にほぼ一致する。

1.2.3 太陽ニュートリノに関する歴史

Homestake 実験

Homestake 実験は R. Davis らによって 1960 年代から続けられていて、実験はサウスダコタにあるホームステーク金鉱地下 1500m で行われた。(地下深くに建設したのは宇宙線の影響を取り除くため) 実験装置は周りを水で囲まれていて、反跳中性子バックグラウンドを取り除くことができる。彼らは円柱の検出器に 615 トンの液体 C_2Cl_4 を入れ、太陽ニュートリノ (^8B と ^7Be ニュートリノ) は



反応で検出される。

実験は検出器中の ${}^{37}\text{Ar}$ を数ヶ月にとりだし、 ${}^{37}\text{Ar}$ は 34.8 日の半減期で電子を捕獲し ${}^{37}\text{Cl}$ に崩壊するので、その際に発生する X 線 (2.82 keV) を検出することでニュートリノ計数を行う。

この実験での観測値は $2.5 \pm 0.25 \text{ SNU}$ であり、太陽標準理論から予想される値 $9.3^{+1.2} - 1.4 \text{ SNU}$ と比較すると 30% しか存在しない。(SNU は solar neutrino unit の略で $10^{-36} \text{ neutrino-capture/atom/sec}$ に対応する。この値は太陽ニュートリノのフラックス [$\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$] と原子の断面積 [cm^2] から求められる。

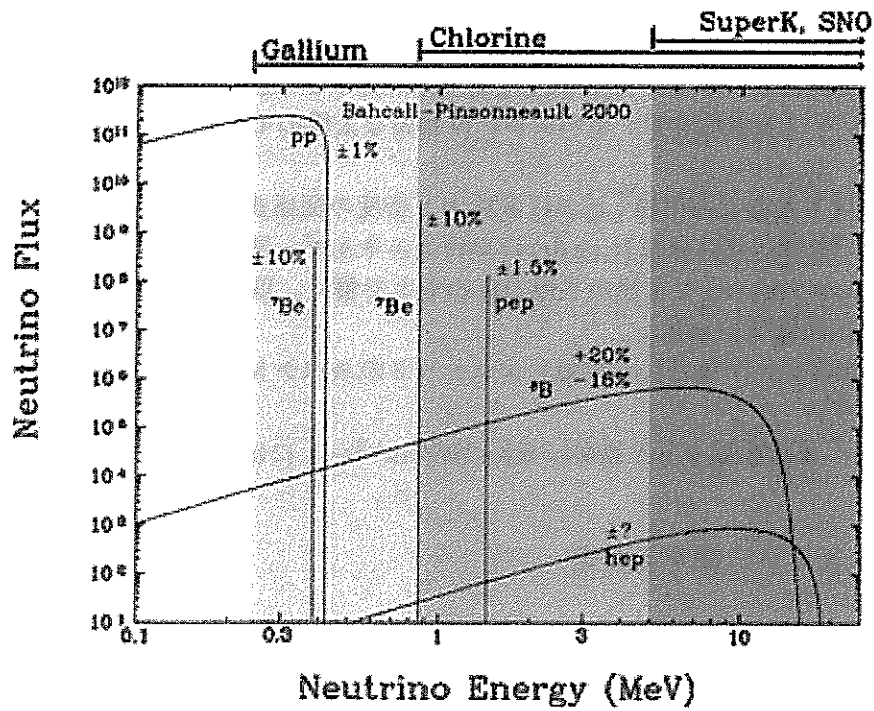
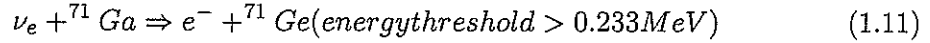


図 1.4: 標準太陽理論によって予測される pp 連鎖によって生じるニュートリノのエネルギースペクトル。縦軸のニュートリノフラックスの単位は [counts/cm²/sec] である。pp 連鎖は太陽標準理論において 98% 以上のエネルギーを担う。CNO サイクルによって生成されるニュートリノはエネルギー的に重要でなく、実験で検出するのが難しい。図の上に現在行われているニュートリノ実験のエネルギー領域を示している。

GALLEX と SAGE 実験

GALLEX はイタリアのアペニン山脈の地下 1500m にある。グランサッソ研究所でまた SAGE はロシアのコーカサス山脈地下 2000m にあるバクサン研究所で行われている。両実験とも ^{71}Ga を標的としていて太陽ニュートリノは



反応で検出される。この生成された ^{71}Ge ^{37}Ar と同じように電子捕獲して ^{71}Ga に戻るので ^{37}Ar と同じように信号が得られる。その半減期は 11.43 日である。

得られた結果は

$$GALLEX = 69.7 \pm 6.7_{-4.5}^{+4.9} SNU \quad (1.12)$$

$$SAGE = 69 \pm 10_{-5}^{+5} SNU \quad (1.13)$$

$$(1.14)$$

太陽標準模型による計算値は、

$$SSM = 137 \pm 7 \quad (1.15)$$

であるからここでも観測値は計算値より大幅に少なく約 60% になっている。ニュートリノのフラックスの寄与のほとんどは pp ニュートリノから来ていて、結果の ^{71}Ga 計算も非常に不定性が小さいため、非常に重要な結果である。

Kamiokande SuperKamiokande 実験

Kamiokande 実 1000m でおこなわれていた、水チェレンコフ装置を用いた実験である。検出期は 3000 トンの純水が入った円柱状のタンクから成り立っている。太陽ニュートリノは電子の弾性散乱



で捕まえられ反跳電子からのチェレンコフ光をリアルタイムに検出することで、太陽ニュートリノのリアルタイム観測が可能になった。

エネルギーの閾値は放射性不純物によって決まり 7MeV であり、主な太陽ニュートリノ源は ^8B ニュートリノである。

電子は質量が小さい (0.511MeV) であるためにニュートリノと同じ方向に反跳する。太陽とニュートリノの方向との相関ははっきりと太陽ニュートリノの存在を示した。この聰明なテクニックは次の 50000 トンもの体積と、より低いエネルギー閾値 (5MeV) の Super Kamiokande 実験へ引き継がれた。

Kamiokande での観測値は $2.80 \pm 0.19(\text{stat}) \pm 0.33(\text{sys}) \times 10^6 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ であり、太陽標準理論による予測では $5.05_{-0.81}^{+1.01} \times 10^6 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ でありこの実験結果も観測値が予測値の 50% になっていて太陽ニュートリノの欠損を示している。

ここに太陽ニュートリノに関する実験を紹介する。

Borexino(<http://almine.mi.infn.it>)

SNO(<http://www.sno.phys.queensu.ca>)

HELLAZ(<http://sg1.hep.fsu.edu/hellaz>)

HERON(<http://www.physics.brown.edu/research/heron/index.html>)

ICARUS(<http://www.aquila.infn.it/icarus/ecp.html>)

Super Kamiokande(<http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp>)

などの実験がある。

以上全ての4つの実験において太陽ニュートリノの欠損が示された。ここで太陽標準理論の問題であるが計算に含まれているパラメーターを許容できる範囲でいじっても4つの実験結果が示す太陽ニュートリノ欠損を定量的に説明することはできない。

次の節でニュートリノ振動の効果について考える。

1.3 ニュートリノ振動

真空中のニュートリノ振動

もしニュートリノが質量を持つなら現在までの理論は改善されなければならない。質量を持つニュートリノにおいてはフレーバーの固有状態 ν_e, ν_μ, ν_τ と質量の固有状態 ν_1, ν_2, ν_3 が一致せず、ニュートリノの種類間に遷移が起こる現象である。

今、ニュートリノのフレーバーの固有状態を $|\nu_\alpha\rangle$ 、質量の固有状態を $|\nu_i\rangle$ と書くとフレーバーの固有状態は質量の固有状態により次のように展開される。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_{i=1}^3 U_{\alpha i} |\nu_i\rangle \quad (\alpha = e, \mu, \tau) \quad (1.17)$$

$$U_{\alpha i} = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}s_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

CKM(Cabibbo - Kobayashi - Masukawa) Matrix

ここで、 $s_{ij} = \sin\theta_{ij}$ 、 $c_{ij} = \cos\theta_{ij}$ 、 δ は CP 対称性の破れを表す。この関係はあるフレーバーのニュートリノが違うフレーバーのニュートリノに変わる可能性を許すものである。状態 $|\nu_i\rangle$ の時間発展はシュレディンガー方程式

$$i \frac{d}{dt} |\nu_i\rangle = E_i |\nu_i\rangle \quad (1.19)$$

に従う。ここで E_j はニュートリノのエネルギーでありこれを計算すると

$$|\nu_i(t)\rangle = |\nu_i(0)\rangle e^{-iE_i t} \quad (1.20)$$

となる。ここで t は実験室系での時間であり、 E_i は質量の固有状態 i でのニュートリノのエネルギーである。式 (1.20) を式 (1.17) に代入すると

$$\begin{aligned}
|\nu_\alpha(t)\rangle &= \sum_{i=1}^3 U_{\alpha i} e^{-iE_i t} |\nu_i(0)\rangle \\
&= \sum_i \sum_b U_{\alpha i} U_{ib}^{-1} e^{-iE_i t} |\nu_b(0)\rangle
\end{aligned} \tag{1.21}$$

したがって、時刻 $t=0$ において ν_α であったものが、時刻 t で同じフレーバー ν_α である確率 $P(\alpha, 0 \rightarrow \alpha, t)$ は

$$\begin{aligned}
P(a, 0 \rightarrow a, t) &= |\langle \nu_\alpha(0) | \nu_\alpha(t) \rangle|^2 \\
&= \left| \sum_i \sum_b U_{\alpha i} U_{ib}^{-1} e^{-iE_i t} \langle \nu_\alpha(0) | \nu_b(0) \rangle \right|^2 \\
&= \left| \sum_i U_{\alpha i} U_{i\alpha}^{-1} e^{-iE_i t} \right|^2
\end{aligned} \tag{1.22}$$

となる。ここで、簡単のためにフレーバーを ν_e と ν_μ の2世代のみとしてニュートリノ振動を考えると式 (1.18) は

$$U = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \tag{1.23}$$

と書くことができる。このとき、ニュートリノのエネルギーは質量の固有状態 i の質量を m_i 、運動量を p と置き、 $m_i \ll p$ のような場合、次のように近似できる。

$$\begin{aligned}
E_i &= \sqrt{p^2 + m_i^2} \\
&\simeq p + \frac{m_i^2}{2p} \\
&\simeq p + \frac{m_i^2}{2E} \quad (\because E = \sqrt{p^2 + m_i^2} \simeq |p|)
\end{aligned} \tag{1.24}$$

式 (1.23) を式 (1.22) に代入して、式 (1.24) を用いると、 ν_e を観測する確率は

$$\begin{aligned}
P(\nu_e \rightarrow \nu_e) &= |\langle \nu_e(t) | \nu_e(0) \rangle|^2 \\
&= 1 - \frac{1}{2} \sin^2 2\theta [1 - \cos(E_1 - E_2)t] \\
&= 1 - \frac{1}{2} \sin^2 2\theta \left[1 - \cos \frac{m_1^2 - m_2^2}{2E} L \right] \\
&= 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{m_1^2 - m_2^2}{4E} t \right)
\end{aligned} \tag{1.25}$$

となる。ここで、 $\Delta m^2 \equiv m_2^2 - m_1^2$ とし、距離 L を用いて表す。ニュートリノの速度 $\sim c$ と近似し、 $\hbar c = 197 \text{ Mev} \cdot \text{fm}$ を使って変形すると、

$$\begin{aligned}
P(\nu_e \rightarrow \nu_e) &= 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{\Delta m^2}{4E} t \right) \\
&= 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m^2 [\text{eV}^2]}{E [\text{MeV}]} L [\text{m}] \right)
\end{aligned} \tag{1.26}$$

となり、これが真空中でのニュートリノ振動を表す式となる。

物質中のニュートリノ振動

物質中のニュートリノ振動はL.Wolfensteinが主張した理論に基づいてS.P.Mikheyev,A.Yu.Smirnovが提案したものである。以下にその説明を簡単に示す。ニュートリノは物質中を走るとき、その速度が真空中に比べて少し遅くなる。これを別の視点で見ると物質がニュートリノに作用するポテンシャルエネルギー V として考えるのである。その寄与は

$$V = \sqrt{2} G_F N_e \tag{1.27}$$

で与えられる。これは電荷カレント反応から導き出される。ここでシュレーディンガー方程式は

$$i \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = H \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} \tag{1.28}$$

を解かなければならない。ただし ν_e, ν_μ は対応するニュートリノの波動関数である。ニュートリノ振動に関して重要な部分のみを残すと上式は簡略化して、

$$i \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = 2\pi \begin{pmatrix} \frac{1}{L_e} - \frac{\cos 2\theta}{L_\nu} & \frac{\sin 2\theta}{2L_\nu} \\ \frac{\sin 2\theta}{2L_\nu} & 0 \end{pmatrix} \tag{1.29}$$

$$L_\nu = \frac{4\pi p}{\Delta m^2}, L_e = \frac{4\pi p}{A} = \frac{\sqrt{2}\pi}{GN_e(t)} \tag{1.30}$$

実際の観測結果には標準太陽模型で計算した $N_e(t)$ を使い、かつニュートリノの発見場所の分布を正確に入れて数値計算を行う。ここで $(N_{e,res} - \Delta m^2 \cos 2\theta / (2\sqrt{2} Gp))$ として、ニュートリノの発生点での電子数密度 $N_{e,prod}$ が

$$N_{e,prod} \gg N_{e,res} \tag{1.31}$$

なら上の式は近似的に解けて、その解から

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) \sim \sin^2 \theta + P_{jump}(p) \cos 2\theta \tag{1.32}$$

$$P_{jump}(p) = \exp \left[\frac{-\pi \Delta m^e \sin^2 2\theta}{4p \cos 2\theta} \left(\frac{N_e(r)}{|dN_e(r)/dr|} \right)_{res} \right] \tag{1.33}$$

で与えられる。以上の考察から太陽ニュートリノの観測結果を解析すると、4つの解をすべて満足する解が得られる。

以上のように太陽ニュートリノ問題はニュートリノ振動によって見事に解決することができる。

KamLAND 実験では原子炉からの反電子ニュートリノを測定することにより、MSW 物質効果を通じてニュートリノのフレーバーが変化する現象は反ニュートリノの真空中での振動に直接的に対応することを示した。また CPT 保存を仮定すれば KamLAND と他の太陽ニュートリノ実験は、太陽ニュートリノ振動パラメータを LMA - MSW 解以外を排除し制限する。最新の結果によれば、KamLAND の 2 ニュートリノ間での振動解析は $\Delta m^2 = 7.9_{-0.5}^{0.6} \times eV^2$ を与える。また KamLAND と他の太陽ニュートリノ実験による Global Analysis は $\Delta m^2 = 7.9_{-0.5}^{0.6} \times eV^2$ と $\tan^2\theta = 0.40_{-0.07}^{+0.10}$ を与える。

図 1.5 と図??にニュートリノ振動パラメータの最新の結果を示す。

今後 KamLAND 実験は ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測することにより、太陽標準模型を確認し LMA-MSW 解の正当性を高めることを目標としている。

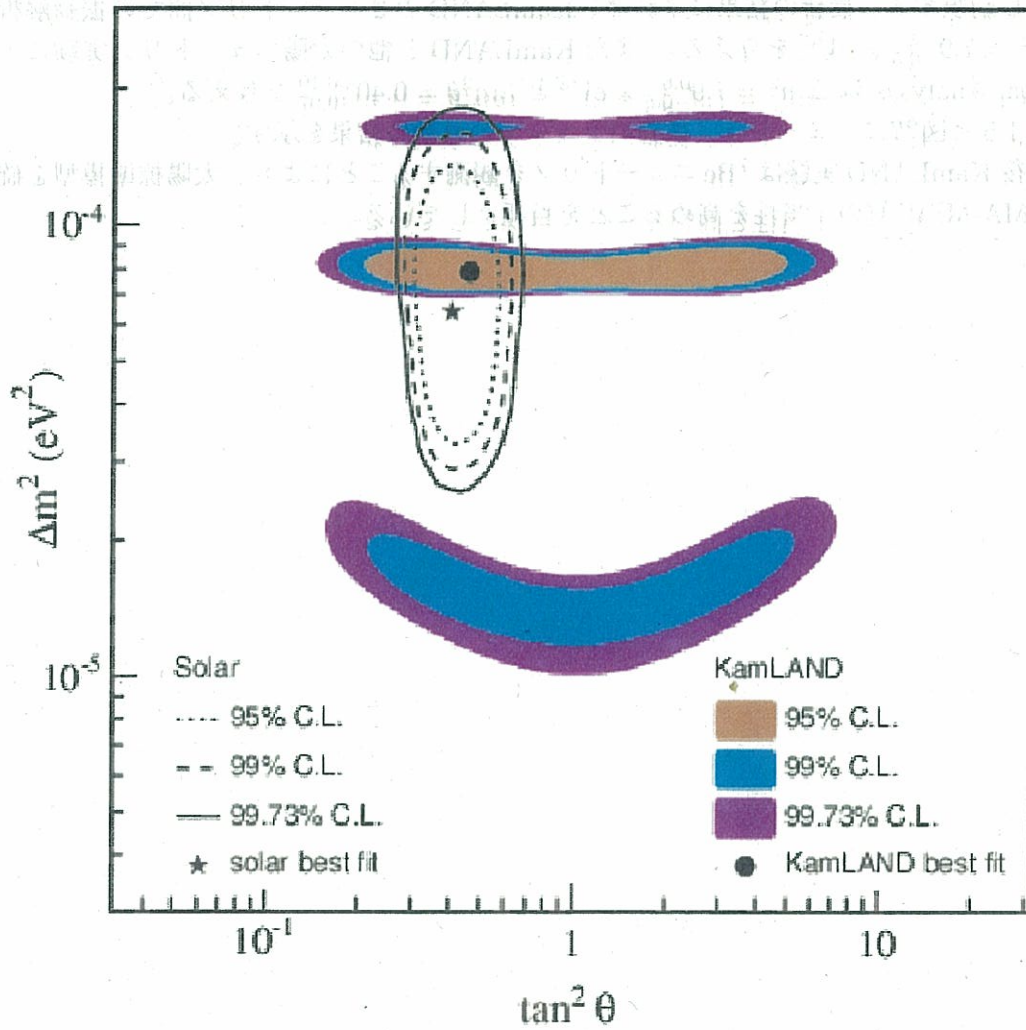


図 1.5: KamLAND 実験の反ニュートリノのデータと太陽ニュートリノ実験から許されるニュートリノ振動パラメータ

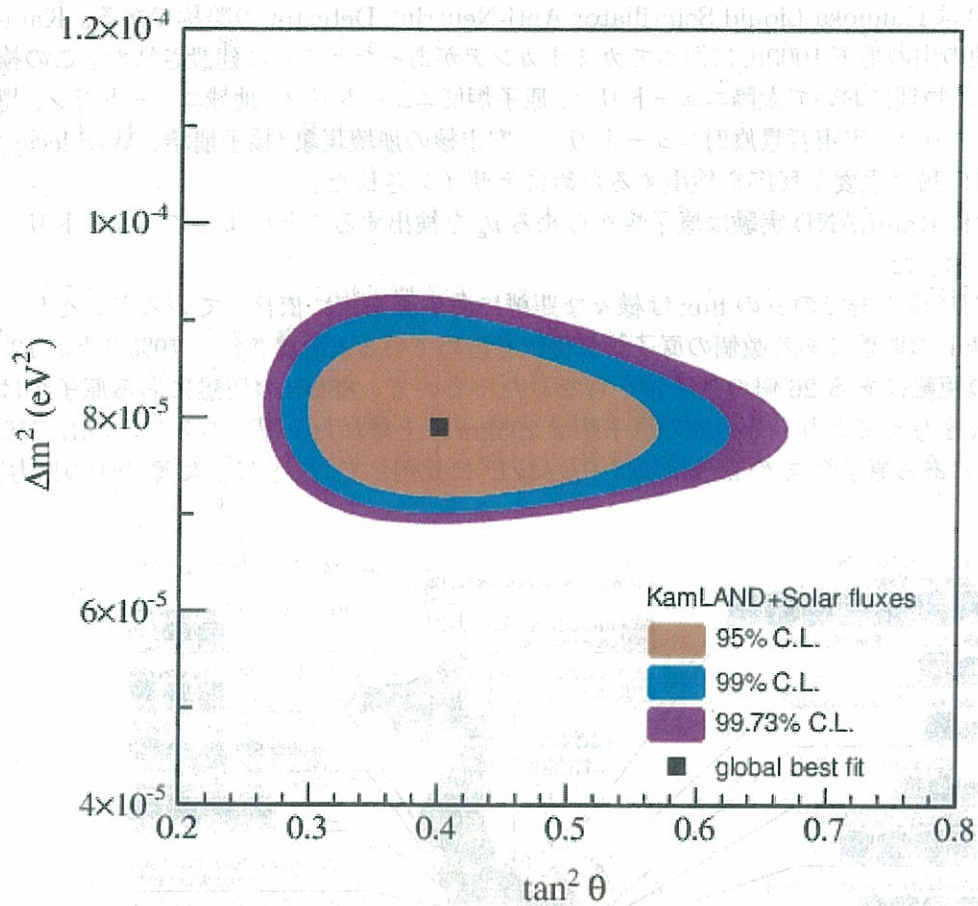


図 1.6: CPT 不変の仮定のもとで KamLAND 実験と観測された太陽ニュートリノのフラックスの、2 フレーバー間のニュートリノ振動パラメーター混合解析の結果

第2章 KamLAND 実験

KamLANDは Kamioka Liquid Scintillator Anti-Neutrino Detector の略称である。KamLANDは池の山の地下1000mにかつてカミオカンデがあったところに建設された。この検出器は素粒子物理において太陽ニュートリノ、原子炉反ニュートリノ、地球ニュートリノ、超新星ニュートリノ、宇宙背景放射ニュートリノ、安定核の崩壊現象(核子崩壊、 W - β decay)など、非常に稀で重要な反応を検出するためにデザインされた。

これまでに KamLAND 実験は原子炉から来る $\bar{\nu}_e$ を検出することによってニュートリノ振動現象を示した。

KamLAND 検出器での $\bar{\nu}$ の flux は様々な距離にある原子炉に依存しているが、それはおよそ180kmの距離にある数個の原子炉が優位を占めている。計算された79%以上が138~214kmの距離にある26個の原子炉からなりたっていて、88kmの距離にある原子炉は6.7%の flux を与えており、その他の原子炉は295km以上離れた位置にある。KamLAND から距離 L にある原子炉 $\bar{\nu}_e$ の flux はほぼ $P_{th}/4\pi L^2$ に比例している。(P_{th} は原子炉の出力)

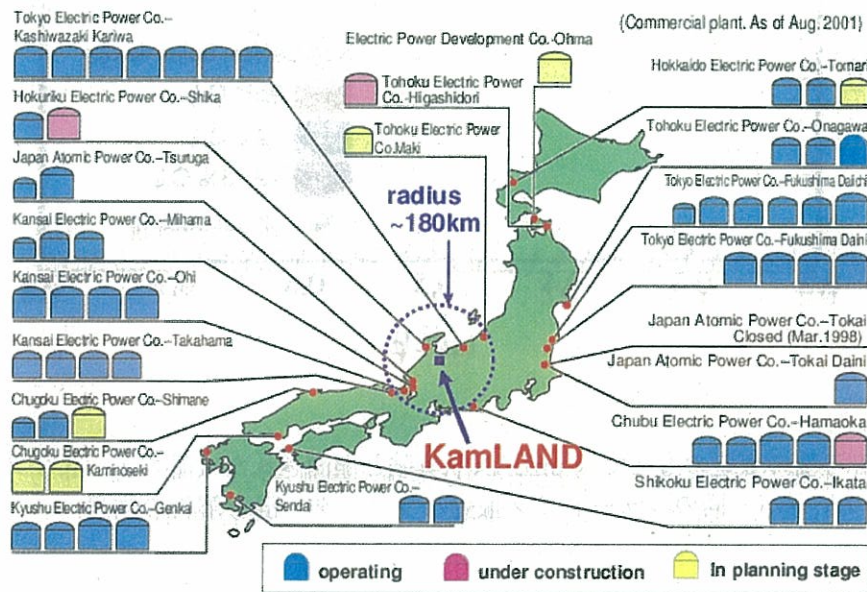


図 2.1: 日本の原子炉と KamLAND 検出器の地図。点線は KamLAND から 180km の距離を示している。

この比較的狭い距離のバンドは KamLAND が $\bar{\nu}_e$ のエネルギースペクトルのゆがみを観測可能であることを示しており、その最も感度の高い領域は

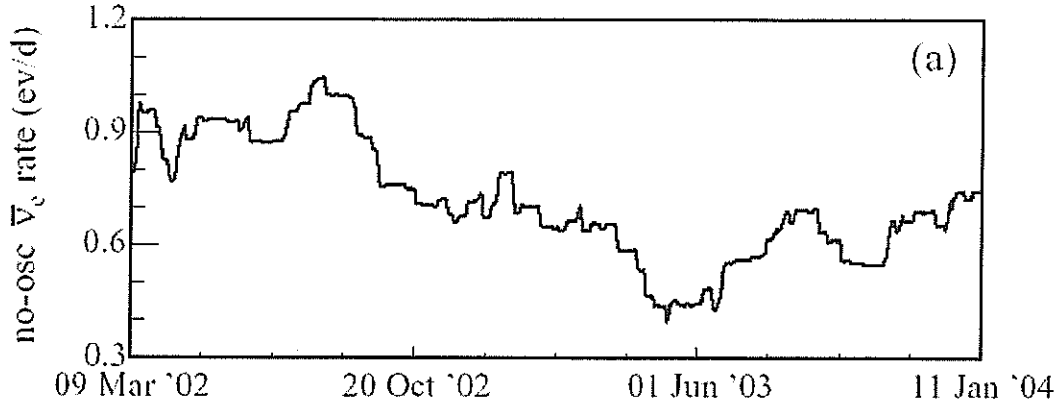


図 2.2: 見積もられた KamLAND での原子炉 $\bar{\nu}_e$ の flux の時間変化。反ニュートリノ振動がないものとしている

$$\Delta m^2 = \frac{1}{1.27} \cdot \frac{E[\text{MeV}]}{l[\text{m}]} \cdot 2\pi \quad (2.1)$$

$$\sim 3 \times 10^{-5} \text{eV}^2 \quad (2.2)$$

$$(2.3)$$

であり KamLAND は LMA 解を確かめるのに非常に良く調整されていることがわかる。実際にそれを検証した。

$\bar{\nu}_e$ は逆 β 崩壊



によって検出される。先発信号の陽電子 (対消滅するためにそのエネルギーは 1.022MeV 以上) と後発信号の 2.22MeV の中性子捕獲 γ 線を捕まえる遅延同時計測法は大きく background を減らした。

またこれ以上に検出器自体が非常に低い background 環境になるようデザインされている。

次に目標とするのは ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを検出することで、太陽標準モデルの検証、振動パラメーター (LMA - MSW 解) の精度をより高めることが目標となる。

この太陽ニュートリノ ν_e は太陽を出発して地球上の検出器に到達するまでに、太陽内の物質振動、太陽地球間での真空振動、地球内部での物質振動の組合せによってその一部が他のニュートリノに変身する。KamLAND では主に ν_e だけにのみ感度があるので、他のニュートリノは検出器を素通りしてしまう。これが太陽ニュートリノ問題を解決するシナリオになるのである。

この章では検出器についてと反ニュートリノの遅延同時計測による検出方法および太陽ニュートリノ検出方法について述べて行く。

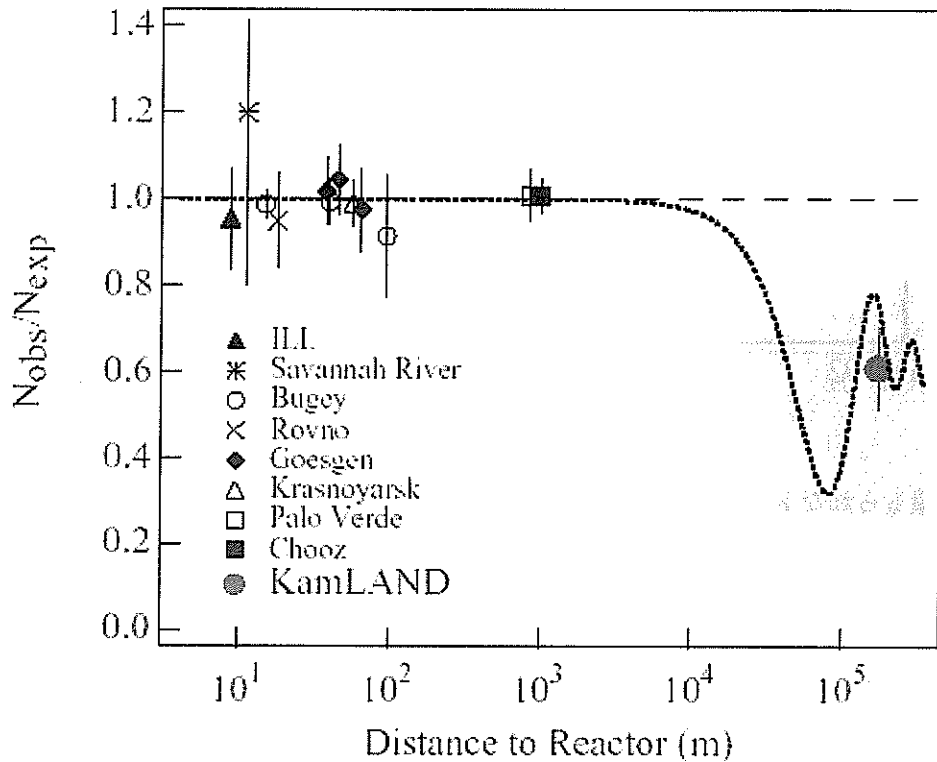


図 2.3: 観測された $\bar{\nu}_e$ の flux と振動がないときに期待される $\bar{\nu}_e$ の flux の比。横軸に原子炉からの距離をとっている。KamLAND の点は flux の重み付きの平均をプロットしてある。(ドットの大きさは原子炉との距離の広がりである。) 影のついた部分は太陽ニュートリノのデータとの global analysis の結果見られる 95%CL の LMA 解の領域で、ドットのカーブは $\sin^2 2\theta = 0.833, \Delta m^2 = 5.5 \times 10^{-5} \text{ eV}^2$ に対応している。一方破線は振動のない場合または小混合角の場合を示している。

2.1 KamLAND 検出器

KamLAND 検出器は 1000m の厚さの岩 (2700meter water equivalent) に周りを囲まれている。これは宇宙線ミュオンのフラックスを非常に大きく減らすシールドの役割を果たす (地上の約 10 万分の 1~0.34Hz) 宇宙線ミュオンは検出器内に不安定核を作り、それらが崩壊することによりできる信号がニュートリノの検出においてバックグラウンドになるため、より少ない宇宙線ミュオン環境が求められる。

図 2.5 に KamLAND 実験室の全体像を示す。

2.1.1 KamLAND 検出器構造

図 2.6 は KamLAND 検出器の構造である。

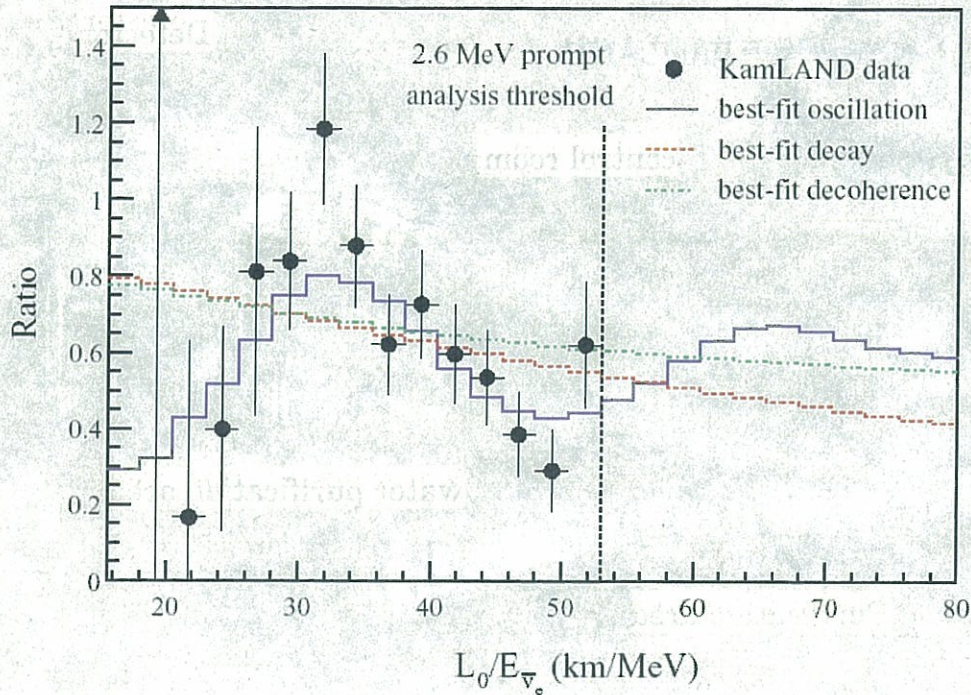


図 2.4: 観測された $\bar{\nu}_e$ のスペクトルと振動がないときに期待される $\bar{\nu}_e$ のスペクトルの比。横軸に L_0/E をとっている。各々のカーブは振動の場合の best-fit、ニュートリノ崩壊の場合の best-fit、decoherence の場合の best-fit である。各々のデータ点とモデルは $L_0 \sim 180\text{km}$ としていて、あたかも KamLAND で検出される電子型反ニュートリノがその距離にある一つの原子炉から来ているとしている

KamLAND 検出器は中心に液体シンチレーターが配置され、その周りを何層もの球状の物質で覆っていて、外部からの放射線をできるだけ減らす工夫がなされている。中心の液体シンチレーターは質量 1000t (1200m^3) で球形のプラスチックバルーン ($135\mu\text{m}$ の厚さの透明な nyulon/EVOH) に入っている ($\Phi 13\text{m}$)。バルーンはケプラーロープに吊さされていて、球形を保持するようになっている。液体シンチレーターとその容器はバッファードデカンとイソパラフィンオイルによって周りを覆われている。この周りをさらにその周りをステンレスタンク ($\Phi 18\text{m}$) が覆っている。バッファ領域は透明な 3mm の厚さのアクリルのバリア ($\Phi 16.6\text{m}$) によって2層に分けられている。ステンレスタンクはまた周りが鉍山の円柱状の洞窟になっていて、間が純水槽である。

KamLAND で使用されている液体シンチレーターは、ドデカンが 80% 、プソイドクメン (1,2,4 トリメチルベンゼン) が 20% 、そして $1.5(\text{g/l})$ の PPO (2,5 ジフェニルオキシゾール) によりなる。液体シンチレーターの内部で粒子が相互作用することにより放射線が発生し、そのエネルギーの損失が液体シンチレーター中の発光物質を励起し、それが光を放射する (シンチレーション光)。この光はステンレスタンクの表面に配置された PMT (光

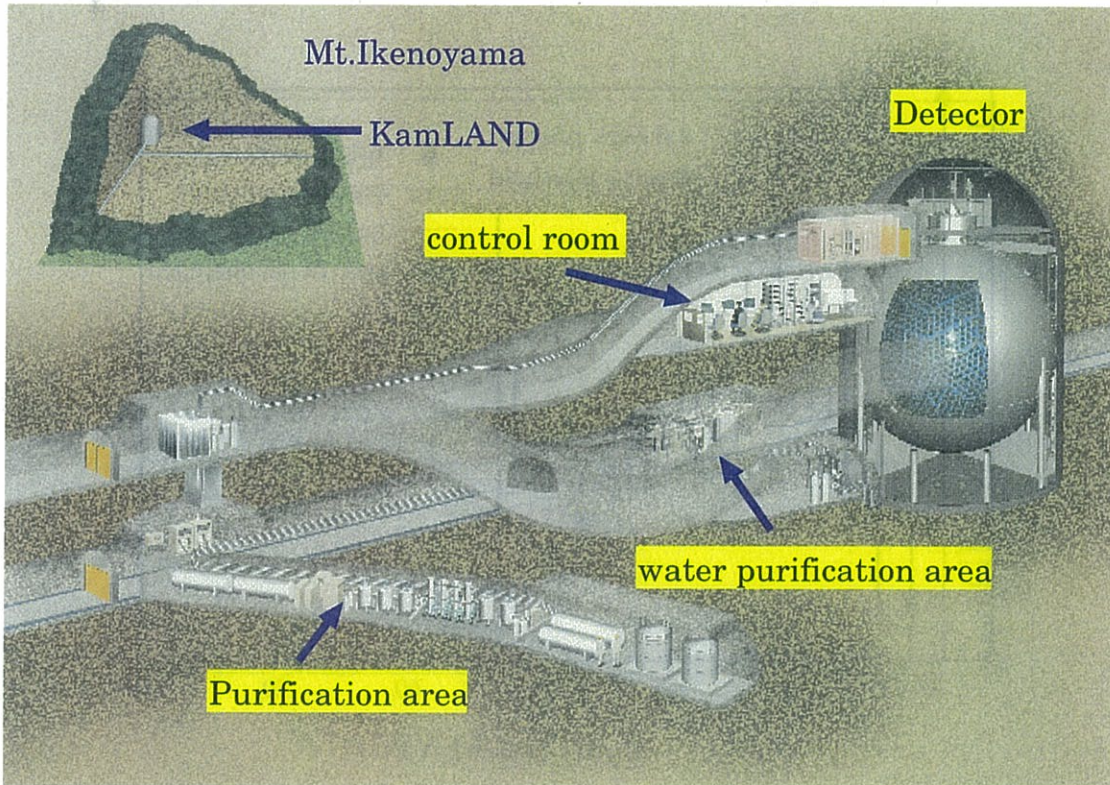


図 2.5: KamLAND 検出器の全体像

電子増倍管、17inch:1325本、20inch:554本)で検出される。全フォトカソード領域は表面積の34%を占めている。(17inchのみだと22%)外部検出器には(PMT:20inch 225本)が設置されていて、宇宙線ミューオンなどにより生じるチェレンコフ光をとらえる。

2.1.2 光電子増倍管

シンチレーターからの光の出力はイベントのエネルギーに比例する。またエネルギー分解能は検出された光子の数に依存し、良い時間分解能は反応点の再構成に必要不可欠である。

KamLAND実験ではKamiokandeで使用された20インチ光電子増倍管(Photo-Multiplier Tube:PMT)の他にこの実験のために新しく改良された17インチ光電子増倍管が使用されている。この17インチ光電子増倍管はSuper Kamiokandeで使用されている20インチ光電子増倍管を改良したもので、ダイノードの形状をベネチアン・ブライツ型からライン・ブライツ型に変更し、さらにブリーダー回路を等分割ブリーダー回路からテーパーブリーダー回路に変更している。これにより17インチ光電子増倍管は20インチのものから、時間分解能で1.5nsec→3nsec、波高分布のピーク/バレー比=1.5→3の向上が見られる。。

検出器の中心部で1MeVのニュートリノ反応が起きると、約260 p.e(photo electron)の

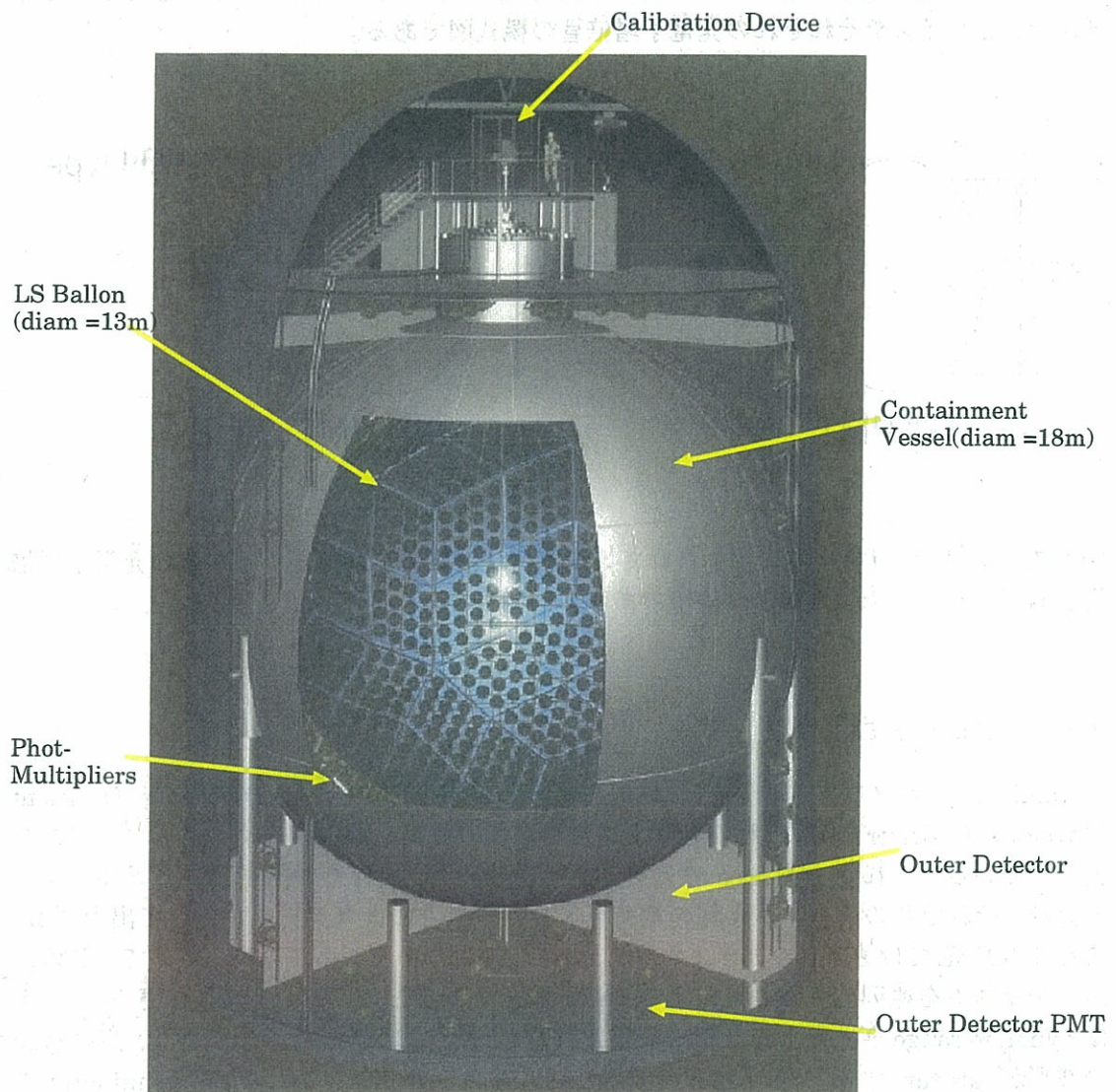


図 2.6: KamLAND 検出器の構造

光電子信号が期待される。シンチレーション光は等方的に発生するため、光電子増倍管 1 本につき、光は 1p.e. 程度でしかない。したがって、光電子増倍管には 1 光電子相当光を識別することが出来る。

このようにエネルギー分解能と時間分解能が改善された 17 インチ光電子増倍管が内部検出器に 1325 本、カミオカンデで活躍した 20 インチ光電子増倍管が内部検出器に 554 本、外部検出器に 225 本、KamLAND には取り付けられている。図 2.7 は 17 インチ、20 インチそれぞれの光電子増倍管の模式図である。

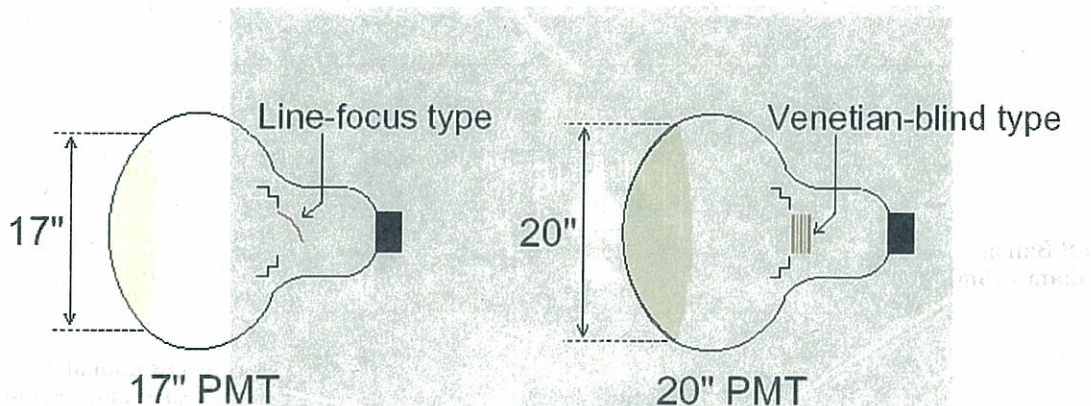


図 2.7: KamLAND 検出器に用いられている光電子増倍管。左が 17 インチの光電子増倍管、右が 20 インチの光電子増倍管である。

2.1.3 エレクトロニクス

KamLAND のフロントエンドエレクトロニクス (FEE) は ATWD (Analog Transient Waveform Digitizer) と呼ばれる光電子増倍管からの波形を記録するエレクトロニクスを使用している。これは 200 nsec のデータを 1.5nsec ずつずれた 128 のチャンネルによって分け、それぞれのチャンネル毎の電荷をトリガー信号によりデジタル化して出力する。またこの FEE では PMT のチャンネルが 2 つの ATWD チャンネルを持っていて、この 2 つのチャンネルを並列に使うことにより dead time を低減している ($\approx 0.4\mu\text{sec}$) さらに FEE は dynamic range を拡張するために多重 ATWD を使うように設計されていて、高い gain の波形が saturate すると低い gain の波形に切り替わる用になっている。discriminator の閾値は 1/3p.e. のパルス高であり、各々の PMT の hit 情報は 125nsec 保持される。図 2.8 はエレクトロニクスの模式図である。

2.1.4 トリガー回路

KamLAND の ID (Inner Detector) で起こるイベントには 2 種類のトリガーがある。まず全てのイベントに対して 200PMT ヒット ($\sim 0.7\text{MeV}$) を越えると最初のトリガーである先発 (prompt) トリガー (global trigger) がかかり、より低いエネルギーのイベントを検出するために 1msec の間、閾値が 120hit に下げられる。

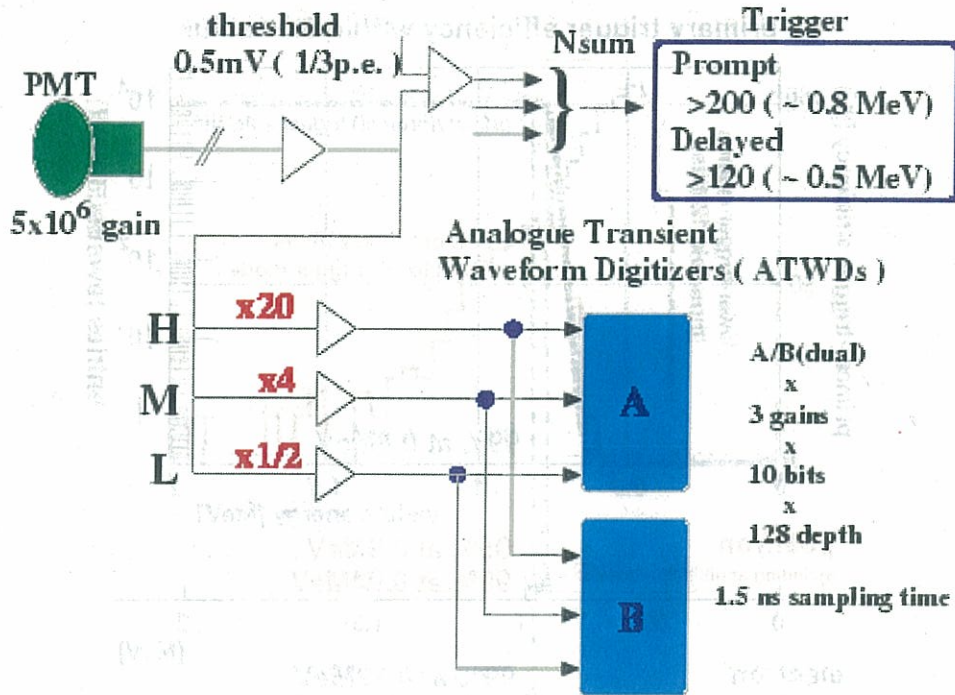


図 2.8: KamLAND 検出器の電子学

トリガーの検出効率を見積もるために N_{sumMax} を使ってエネルギーとの対応を見る。この後発 (delayed) トリガーを用いる。prompt トリガーの検出効率を式 (2.5) の様に PMT hits ≥ 200 hits の delayed イベントの数と delayed イベントの数の比で定義する。図 2.9 はエネルギーに関するトリガーの検出効率である。1 MeV 以上のイベントに対しては検出効率が 100 % になる。

$$\epsilon_{\text{trigger}} = \frac{\text{number of } N_{\text{sumMax}} \geq 200}{\text{number of delayed events}} \quad (2.5)$$

外部検出器におけるトリガーの閾値は各セクション毎に top 6 hits, upper 5 hits, lower 6 hits, bottom 7 hits となっている。そしてこれら OD (Outer Detector) のトリガーの検出効率は 99% である。

さらに “history” トリガーと呼ばれるトリガーが低閾値を越える PMT hits の間、最長 200 nsec まで 25n sec 毎に情報を取り続ける。この情報を “Nsum” と言い、この最長 200nsec の間で最大の Nsum を “NsumMax” と言う。

2.1.5 純化装置

低エネルギーイベントに対する検出器の感度は、外部からの環境放射能の侵入が阻止できれば、最終的に検出器自身のバックグラウンドによって決まる。液体シンチレーターは購

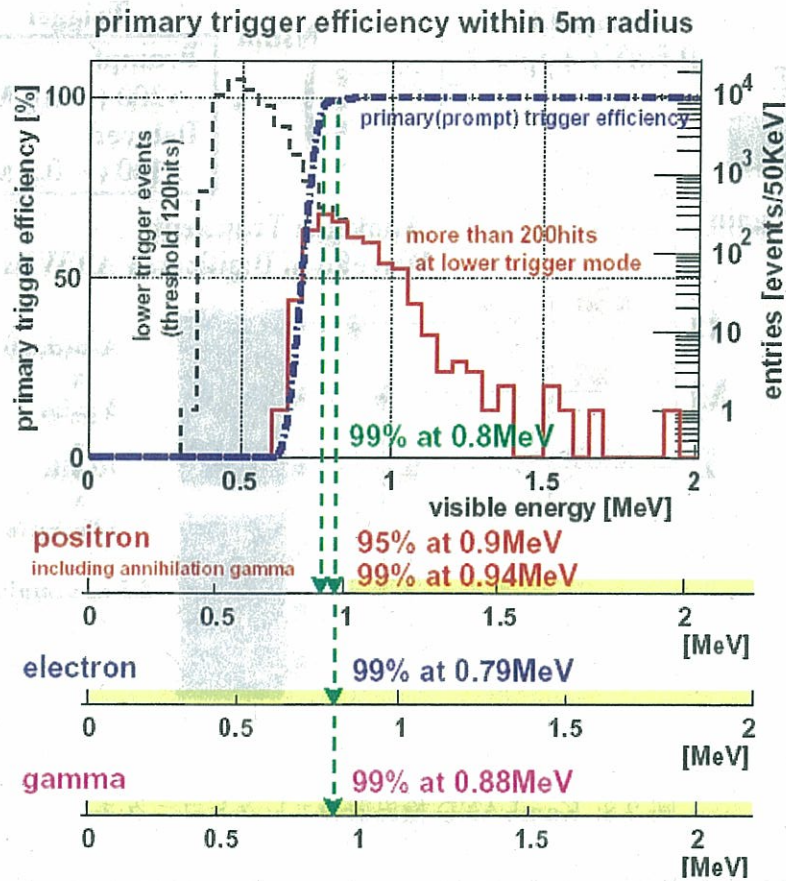


図 2.9: 先発トリガーの検出効率。

入段階ですでに純水並みの極めて低い放射能レベルにあるのだが、それでも微量な塵や化学化合物として放射性不純物が含まれると考えられ、それらをさらに除去する必要がある。そこで純化装置システムが導入される。液体シンチレーターおよびバッファオイルはこの純化装置システムにより純化される。純化装置は検出器に直接接続されていて、液体シンチレーターおよびバッファオイルが常に循環できるようになっている。この装置により放射性不純物 (^{238}U , ^{238}Th , ^{40}K , ^{222}Rn) が除去される。純化装置システムは二つのシステムに分割される。一方は液体シンチレーターのためのもの、もう一方はバッファオイルのためのものである。おのおののシステムは3つのフィルター、液々抽出塔、窒素パージ塔で構成される。フィルターはほこりの除去に用いられ、液々抽出により ^{238}U , ^{238}Th , ^{40}K は除去される。これらは固体の要素であり液体中でイオン化している。そのために水中に溶解し除去される。純水はこの目的のために使われ、純水システムにより常時供給される。さらに液体シンチレーターから窒素パージにより酸素(シンチレーターからの光量が酸素によりクエンチされる)、 ^{222}Rn ガス、水分が取り除かれる。

しかしながら初期の純化の際にはこの ^{222}Rn が十分に除去できなかった可能性が高く(配管の接続部からの ^{222}Rn の混入など)、現在 ^{222}Rn の娘核である ^{210}Pb が KamLAND

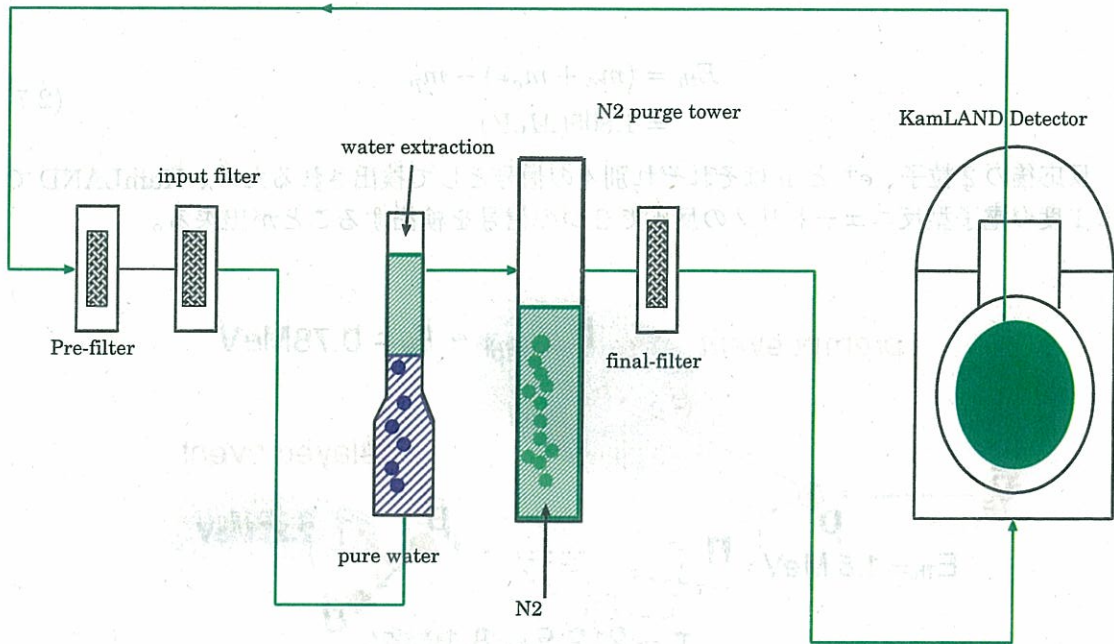


図 2.10: 純化装置

検出器内に蓄積されこれが大きなバックグラウンドになっている。

また ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ観測においては原子炉ニュートリノ観測よりも低いエネルギー領域を対象とするために、 ${}^{39}\text{Ar}$ や ${}^{85}\text{Kr}$ など原子炉 $\bar{\nu}_e$ の観測では問題にならなかった放射性元素があらたなバックグラウンドになる。(詳しくは3章に示す)

よってこれらを除去するための新たな純化装置が必要であり、現在開発段階にある。

本研究のメインピックは ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ観測のために ${}^{222}\text{Rn}$ が十分に除去されているかを確認する為のモニターの開発である。

2.2 ニュートリノの検出方法

この章では KamLAND 実験においてどのようにして反ニュートリノを検出するかを見ていく。

2.2.1 反ニュートリノの検出方法

KamLAND 実験において電子型反ニュートリノを検出するために用いられる反応は、式(2.6)のような逆 β 崩壊である。



この反応の閾値は式(2.7)の通り、1.805 MeV である。

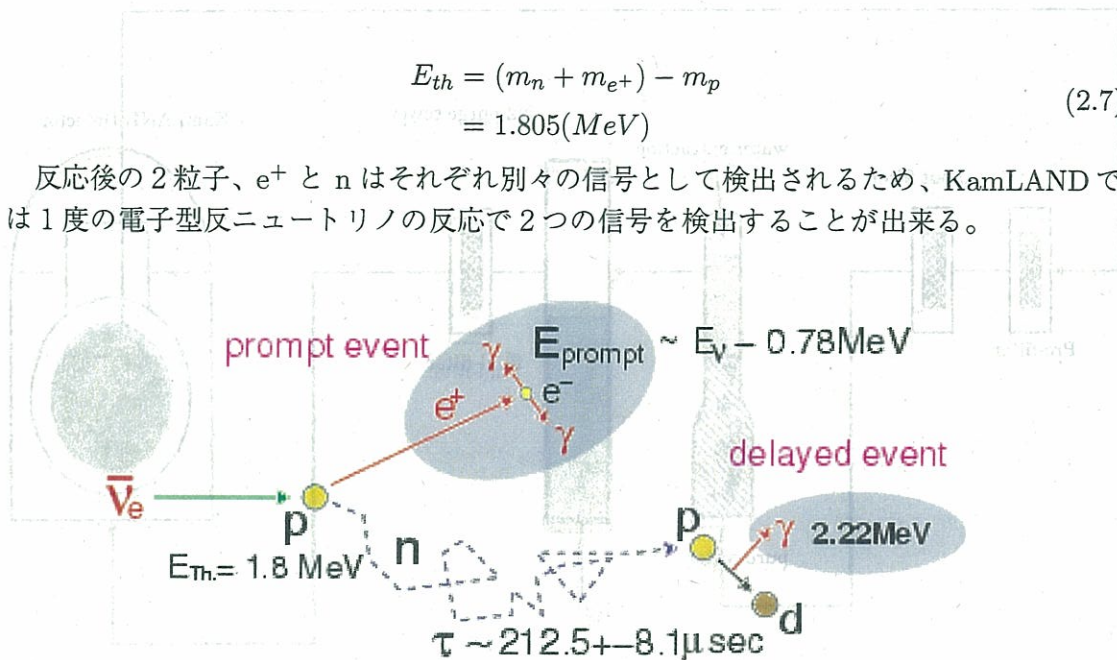


図 2.11: 電子型反ニュートリノの反応過程。

その過程を図 2.11 に示す。電子型反ニュートリノが反応した後生成される陽電子は、液体シンチレーター中の電子と対消滅を起こし、 0.511 MeV の γ 線が2本放出される。KamLAND で実際に観測される信号のエネルギー E_{vis} はこの γ 線が液体シンチレーターに与えるエネルギーの他に、陽電子が液体シンチレーター中を運動する際に放出するエネルギーも含まれる。中性子は陽電子に比べると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ことになる。よって E_{vis} は式 (2.8) となり、これが先発信号になる。

$$E_{vis} = E_{\bar{\nu}_e} + 2\gamma$$

$$\simeq E_{\bar{\nu}_e} - E_{th} + 1.022(\text{MeV}) \quad (2.8)$$

$$= E_{\bar{\nu}_e} - 0.783(\text{MeV})$$

次に後発信号になる中性子捕獲を見ていく。発生した中性子は $\sim 10 \text{ keV}$ の反跳エネルギーを持ち、液体シンチレーター中で陽子と弾性散乱を繰り返して約 $210 \mu \text{ sec}$ 後に熱化中性子となる (図 2.12 に中性子が発生してから熱化中性子化して陽子に捕獲されるまでの時間の Monte carlo simulation による結果を示す)。これが陽子に捕獲されて重水素になる際に放出する 2.2 MeV の γ 線がシンチレーション光を発生し、これが後発信号になる。

このように一つの電子型反ニュートリノに対して二つの信号が得られるので、この二つの信号の時間、空間の相関、また各々にエネルギーの条件を課すことにより反応を識別することができる。これを遅延同時計測法と呼ぶ。この遅延同時計測法を用いると非常に多くのバックグラウンドを除去できる。このようにして KamLAND ではバックグラウンドフリーで電子型反ニュートリノの検出を行う。

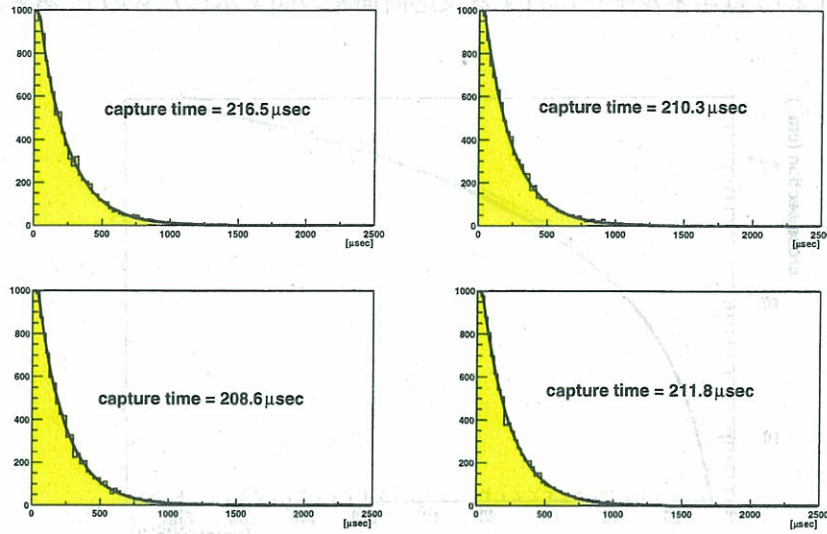


図 2.12: 反跳した中性子の Monte carlo simulation。1keV,10keV,100keV,1MeV の 4 種のエネルギーを仮定した (左上 1keV, 右上 10keV, 左下 100keV, 右下 1MeV) 中性子が発生してから熱化中性子化して陽子に捕獲されるまでの時間を示している。捕獲時間 τ は $N = N_0 \exp(-\frac{t}{\tau})$ に fit して計算した。

逆 β 崩壊の反応断面積

KamLAND での電子型反ニュートリノ反応の反応微分断面積は最低時の近似において式 (2.15) のように書くことができる。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\cos\theta} \right) = \frac{\sigma_0}{2} [(f^2 + 3g^2) + (f^2 - g^2)V_{e^+} \cos\theta] E_{e^+} p_{e^+} \quad (2.9)$$

ここで E_{e^+} 、 p_{e^+} 、 V_{e^+} はそれぞれポジトロンエネルギー、運動量、速度で

$$\begin{aligned} E_{e^+} &= E_{\bar{\nu}_e} - (m_n - m_p) \\ p_{e^+} &= \sqrt{E_{e^+}^2 - m_{e^+}^2} \\ V_{e^+} &= p_{e^+}/E_{e^+} \end{aligned} \quad (2.10)$$

である。f と g はそれぞれベクトル結合定数、軸性ベクトル結合定数で $f = 1$ 、 $g = 1.26$ である。 σ_0 は内部輻射補正を含む規格化定数で式 (2.11) の様になる。

$$\sigma_0 = \frac{G_F^2 \cos^2 \theta_c}{\pi} (1 + \Delta_{inner}^R) \quad (2.11)$$

ここで $\Delta_{inner}^R \simeq 0.024$ 、 $\theta_c = 0.974$ である。これらを用いて全反応断面積を計算すると

$$\begin{aligned} \sigma_{total} &= \sigma_0 (f^2 + 3g^2) E_{e^+} p_{e^+} \\ &= 9.52 \times 10^{-44} (E_{e^+}/\text{MeV}) (p_{e^+}/\text{MeV}) (\text{cm}^2) \end{aligned} \quad (2.12)$$

となる。図 2.13 はエネルギーに対する反応断面積の図を示したものである。

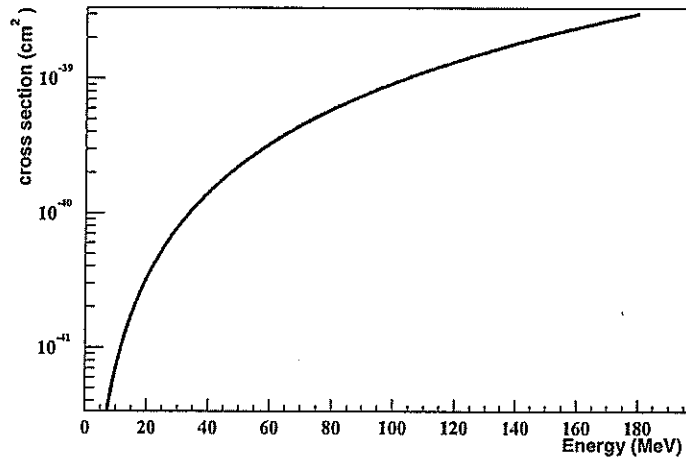


図 2.13: 逆 β 崩壊の反応断面積。

2.2.2 太陽ニュートリノの検出方法

KamLAND では太陽ニュートリノ欠損問題の上で鍵となる ${}^7\text{Be}$ ニュートリノの検出を行う。

カミオカンデ、スーパーカミオカンデやスーパーカミオカンデと同様にニュートリノと電子の弾性散乱



を用いて行い。リアルタイムによる観測を試みる。しかしながら弾性散乱で生じた反跳電子によるシンチレーション光のみを測定する単一事象計測は、原子炉ニュートリノ検出に用いた遅延同時計測法が使えずにバックグラウンド現象との識別に困難が伴う。また ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのエネルギーは 861keV と低く反跳電子の運動エネルギーは

$$T < \frac{2E_\nu^2}{2E_\nu + m_e} (T_{max} = 665\text{keV}) \quad (2.14)$$

となり 665keV を最大エネルギーとする連続スペクトルになり非常に低いエネルギー領域に分布するために環境放射能の混入が増大しさらに観測が難しくなる。そのために超低放射能環境を実現するような純化装置の開発と超低放射能測定技術の開発が求められる。

ニュートリノと電子の弾性散乱の反応断面積

ニュートリノと電子の弾性散乱は弱い相互作用によって反応が起こり、その反応断面積はファインマンダイアグラムによって計算される。電磁および弱い相互作用を統一的に記

述する、電弱統一理論は今までに研究された全ての反応を正しく定量的に説明できる。この理論を用いると反応断面積は、

$$\begin{aligned} \left(\frac{d\sigma}{dy}\right) &= \frac{G^2 m_e E}{2\pi} [A + B(1-y)^2 - Cy \frac{m_e}{E}] \\ A &= (g_v + g_A + 2)^2, B = (g_v - g_A)^2, C = (g_v + 1)^2 - (g_A + 1)^2 \\ g_v &= -\frac{1}{2} + 2\sin^2\theta_w, g_A = -\frac{1}{2} \\ y &= (E - E')/E, 0 < y < \frac{2E}{2E + m_e} \end{aligned} \quad (2.15)$$

ここで m_e は電子の質量、 E と E' は入射および散乱ニュートリノのエネルギー、 θ_w は弱混合角と呼ばれるもので、実験的に $\sin^2\theta_w=0.21$ である。また G_F は Fermi coupling constant でこれも実験的に $G_F=1.16637 \times 10^{-5} GeV^{-2}$ である。これらを用いて全反応断面積を計算すると

$$\sigma_{total} = 9.478 \times 10^{-44} \frac{E[MeV]}{10[MeV]} (cm^2) \quad (2.16)$$

となる。

第3章 KamLANDにおける種々の放射性バックグラウンドとその低減方法

KamLAND 実験は ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを検出することで、太陽標準モデルの検証、振動パラメーター (LMA - MSW 解) の精度をより高めることが目標としている。

しかしながら太陽ニュートリノ ν_e は電子の弾性散乱で検出するために、遅延同時計測法は使うことができない、そのためバックグラウンドは増加してしまう。さらに原子炉ニュートリノのエネルギー領域 (1.8MeV 以上) よりも低いエネルギー領域を対象とするため、さらなる放射性バックグラウンドが問題になる。

以下に放射性バックグラウンドについて述べる。KamLAND の周りには様々な放射性物質があり、それがバックグラウンドになる。それらのいくつかは外部からまたは宇宙線 μ 粒子によって生成されたものである。主要な放射性不純物は ${}^{238}\text{U}$ (${}^{222}\text{Rn}$ と ${}^{210}\text{Pb}$ を含む), ${}^{232}\text{Th}$, ${}^{40}\text{K}$ と ${}^{85}\text{Kr}$ である。外から入って来る放射性物質は ${}^{40}\text{K}$ や ${}^{208}\text{Tl}$, 宇宙線 μ 粒子 fast neutron である。 ${}^{40}\text{K}$ は主にシンシレーターバルーンを吊すロープから放出される。や ${}^{208}\text{Tl}$ は周りの岩や PMT の表面から発生する。宇宙線 μ 粒子は中性子、 ${}^{12}\text{B}$, ${}^{12}\text{N}$, ${}^9\text{B}$, ${}^8\text{B}$, ${}^8\text{Li}$ や中性子を放出する物質 (${}^8\text{He}$ や ${}^9\text{Li}$) など様々な粒子をつくり出す。また μ 粒子の散乱によって岩や外部検出器で生成された fast neutron が内部検出器に入って来る。

${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測するためにはこのような放射性バックグラウンドを極限まで低減することが必要不可欠である。

この章では主要な放射性バックグラウンドの中でも今回の研究の対象となるラドンについて述べ、その後各々の放射性バックグラウンドについて見て行く。

そしてその低減方法、その目標、現在の進行状況について述べて行く。

3.1 ラドンについて

ラドン (Rn) は、順次に連鎖的に崩壊するウランやトリウム放射性系列に属する希ガス元素である。(図 3.2 に ${}^{238}\text{U}$ の崩壊系列図を示す) 存在する元素の同位体は、すべて放射性で安定核種が存在しない。最も寿命の長いラドン ${}^{222}\text{Rn}$ はラジウム ${}^{226}\text{Ra}$ の崩壊で生成する。 ${}^{222}\text{Rn}$ やトロン ${}^{220}\text{Rn}$ は自然環境中の至るところに存在し、地表で生活する人の自然放射線被ばく量のおおよそ半分がラドンによるという (肺癌の原因にもなっている)。その一方で、ラドンにはトレーサ利用や地震予知の可能性を探る材料の一つになるのでは、との期待もあり、効用をうたう温泉への入浴という親近感もある。

特にラドンの存在量についてであるが、特に地下水、地下中のラドン濃度が高いことが知られている。KamLAND エリアは鉱山の地下 1000m にあるので、非常にラドンの多い環境になっている。気体であるラドンはあらゆるところから侵入することが可能であり、

単体性の強い物質であるため反応性に乏しく、環境から Rn をできるだけ取り除くことは非常に困難である。この高いラドン濃度の環境中で液体シンチレータ中のラドン濃度を目標の $<1\text{mBq/m}^3$ にすることが如何に大変なことがわかる。

またラドンは有機溶媒に非常にとけやすいため (水の ~ 46 倍 (トルエンの場合)、その困難さは非常に高くなることが予想される。

| | |
|-------------------------|--------|
| 原子番号 | 86 |
| 原子量 | 222 |
| 発見年 (年) | 1900 |
| 原子半径 (Å) | 2.4 |
| 融点 (度) | -71 |
| 沸点 (度) | -61.9 |
| 密度 (g/cm ³) | 9.96 |
| イオン化エネルギー (eV) | 10.748 |
| 電子親和力 (eV) | 0 |

表 3.1: ラドンの性質

| | |
|-----|---|
| 外 気 | 数 [Bq/m ³] |
| 室 内 | 30 ~ 80[Bq/m ³] |
| 土 中 | 1×10^3 [Bq/m ³] ~ 4×10^6 [Bq/m ³] (平均 7×10^3 [Bq/m ³]) |
| 地下水 | 3×10^3 ~ 4×10^7 [Bq/m ³] |

表 3.2: 様々な場所でのラドンの存在量

3.2 現在のバックグラウンド

ここからは各々の放射性物質に注目し、KamLAND でそれらがどのようにバックグラウンドになるかを見て行く。

3.2.1 ^{238}U

地球誕生以来広範囲に分布する、主に地殻中に広く分布している放射性核種である。そのため KamLAND を覆う岩盤に多く含まれ、 ^{238}U の崩壊系列はバックグラウンドの主な原因として考えられる。またこの崩壊系列は半減期の違いから

- $^{238}\text{U} \sim ^{234}\text{Pa}$
- ^{234}U
- ^{230}Th

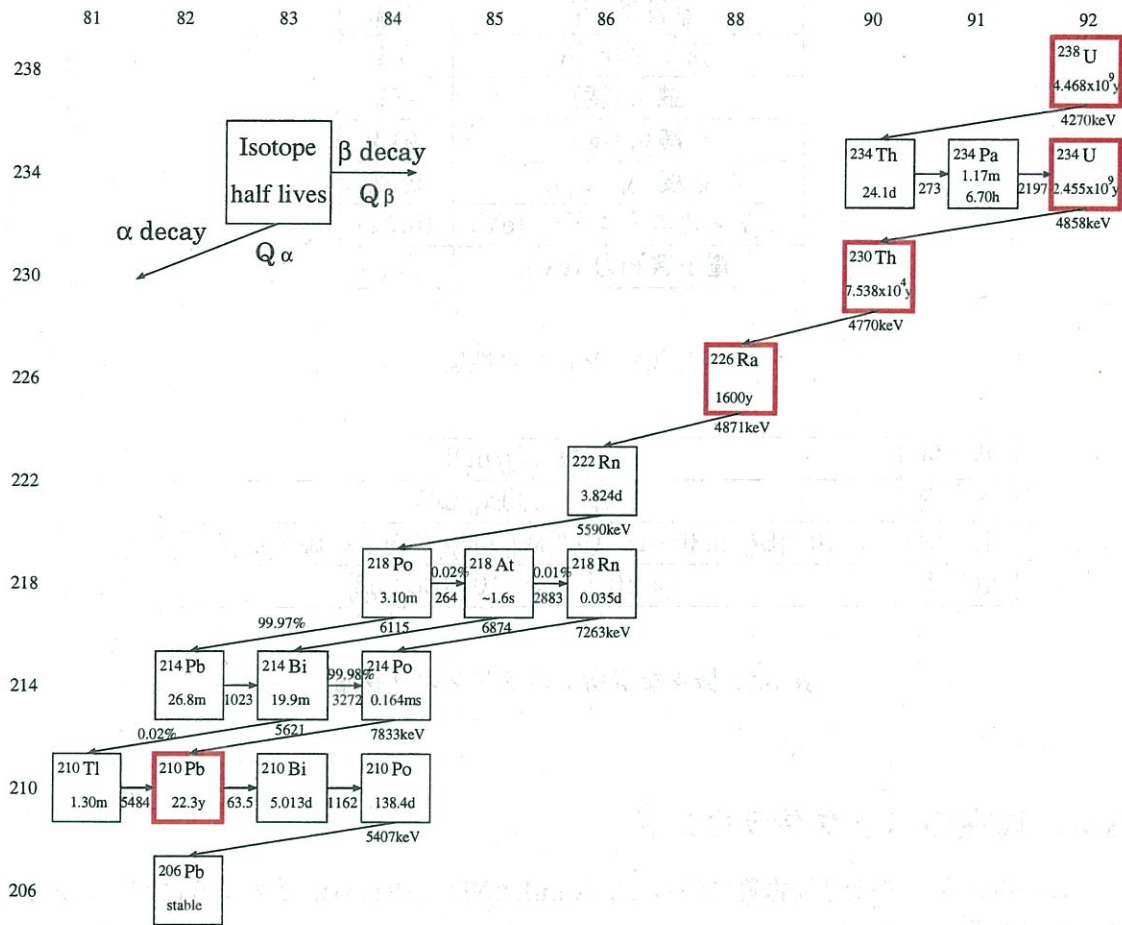


図 3.1: ^{238}U の崩壊系列図。KamLAND 中の存在量は半減期の違いから $^{238}\text{U} \sim ^{234}\text{Pa}$ 、 ^{234}U 、 ^{230}Th 、 $^{226}\text{Ra} \sim ^{210}\text{Tl}$ 、 ^{210}Pb 、 ^{210}Po に分別して調べられる。

- $^{226}\text{Ra} \sim ^{210}\text{Tl}$

- $^{210}\text{Pb} \sim ^{210}\text{Po}$

のそれぞれについて調べる必要がある。このうち $^{226}\text{Ra} \sim ^{210}\text{Tl}$ の反応数は ^{222}Rn の娘核である $^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$ の delayed-coincidence 反応から見積もることができて、その rate は $0.034 \pm 0.0054 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ($3.4 \pm 0.5 \text{ events}/\text{day}/\text{kton}$) である。

また $^{210}\text{Pb} \sim ^{210}\text{Po}$ の反応数も ^{210}Bi の β と ^{210}Po の α のスペクトルにおいて fiducial cut (R5.5m) とピークのフィットから求められ現在その rate は ^{210}Bi で 37 Hz ($53 \text{ mBq}/\text{m}^3$), ^{210}Po で 33.3 Hz ($48 \text{ mBq}/\text{m}^3$) である。(図に KamLAND 検出器内での ^{210}Po の rate の時間変動を示す。確かに液体シンチレータをいれてから rate が増え続けているのがわかる。fiducial cut はしていない。)

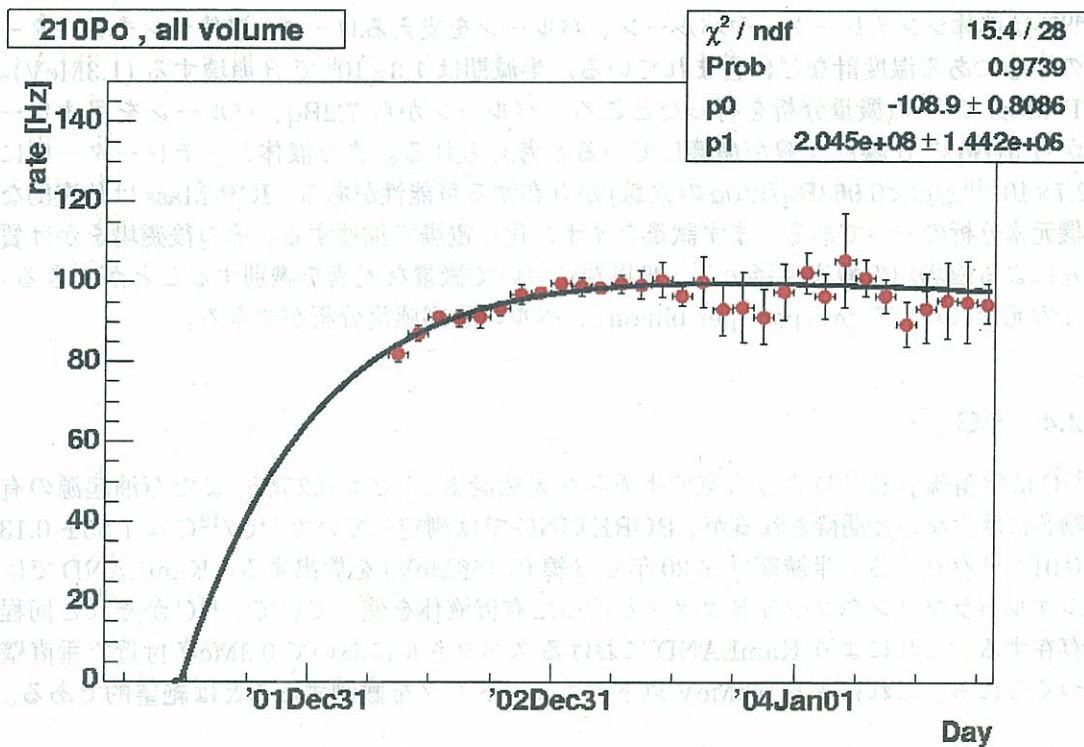


図 3.2: KamLAND 検出器で見られる ^{210}Po の濃度の時間変動。

この $^{210}\text{Pb} \sim ^{210}\text{Po}$ のバックグラウンドが、現在 ^7Be エネルギー領域において主要なバックグラウンドになっている。これを除去するために、その親核の ^{222}Rn を除去しなければならないのである。(KamLAND 液体シンチレータの純化の際にの ^{222}Rn が配管の接続部から混入した。それが現在崩壊して ^{210}Pb になっている。詳しくは第4章で述べる)

またこの ^{210}Po から生じるの α 線については特別なバックグラウンドが存在する。 ^{210}Po から生じる α 線が $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{C}$ という2次的な反応を起こすのである。この反応によって生じる中性子が ^{12}C と比弾性散乱をすることにより生じる信号および ^{12}C が励起状態から基底状態に落ちるときに発生する γ 線 (4.4MeV) からの信号がバックグラウンドになる。

3.2.2 ^{232}Th

Thは地質学的な挙動と分布がUに似た元素である。Thは非常に半減期が長いので、Thは非常に半減期が長いのでより豊富に存在しているが単位質量当たりの壊変率はUよりも低くその結果天然における2つの元素の放射能はほぼ等しい。

KamLANDにおける ^{232}Th の崩壊系列によるバックグラウンドは ^{238}U 系列と同様に半減期の違いから、 ^{232}Th $^{228}\text{Ra} \sim ^{228}\text{Ac}$, $^{228}\text{Th} \sim ^{208}\text{Tl}$ のそれぞれについて調べる必要がある。 $^{228}\text{Th} \sim ^{208}\text{Tl}$ における反応数は、 ^{220}Rn 娘核の $^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測によって求められて、 $0.016 \pm 0.03 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ である。

3.2.3 ^{40}K

^{40}K は液体シンチレーターやバルーン、バルーンを支えるロープ、液体シンチレーター層の中心にある温度計などに含まれている。半減期は 1.3×10^9 で β 崩壊する(1.3MeV)。ICP-Massで 40 の微量分析を行ったところ、バルーンから7.2Bq、バルーンを吊すロープから31Bqの β 線と γ 線が崩壊していると考えられる。また液体シンチレーター中に $< 2.7 \times 10^{-16} \text{g/g}$ ($< 0.063 \text{Bq}/\text{kton}$ の β 線)が存在する可能性がある。ICP-Massは代表的な無機元素分析の一つである。まず試量をイオン化し電場で加速する。その後磁場をかけ質量差による磁場内の軌道半径から。検出器において微量な元素を識別することができる。多くの元素に対してppt(part per billion)レベルの超高感度分析ができる。

3.2.4 ^{14}C

^{14}C は宇宙線 μ 粒子により大気で生成され天然炭素1gでは0.25Bq、また石油起源の有機物質には少ないと期待されるが、BOREXINOでは測定していて $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 1.85 \pm 0.13 \pm 0.01 \cdot 10^{-18}$ 存在する。半減期は5730年で β 線(0.156MeV)を放出する。KamLANDではノルマルパラフィンやブソイドクメンと言った有機液体を使っていて、 ^{14}C がそれと同程度存在する。これによりKamLANDにおけるスペクトルにおいて0.3MeV付近で垂直壁をつくられる。これにより0.3MeV以下のニュートリノを観測することは絶望的である。

3.2.5 ^{85}Kr

^{85}Kr は核燃料の再処理の際に放出される元素として知られる、放射性希ガス元素である。化学的に不活性で半減期が10.7年と長いことから大気のトレーサーとして有名である。崩壊は主に β 線(0.678MeV)であり、また特徴的な反応として分岐比0.434%の反応(β 線(0.173MeV)のあとに半減期 $1 \mu\text{sec}$ で γ 線(0.513MeV)がある。大気中に $1.1 \text{Bq}/\text{m}^3$ あり、建設時に液体シンチレーターに混入した可能性がある。ドデカンと ^{85}Kr とのOstwald係数が ~ 0.8 (15度、1atm)であることから、KamLANDにおけるrateは液体シンチレーターが100として、 $1056 \text{Bq}/\text{kton}$ になる。(1kton = 1200m^3 とした。)

3.2.6 ^{39}Ar

希ガス元素の一つ。常温、常圧で無色、無臭の気体。空気中（地表）に0.93%含まれている。希ガス元素のため不活性である。アルゴンは、電球等の封入ガス、アルゴンレーザー、溶接時の保護ガスなどに利用される。またアルゴンは空気を液化、分留して得ることができる。半減期は269年で β 線(0.565MeV)を放出する。大気中に16.8mBq/m³存在する。 ^{85}Kr と同様に ostwald 係数から5.3Bq/ktonになる。

以上のバックグラウンドをまとめると、次の図のようなスペクトルになる。

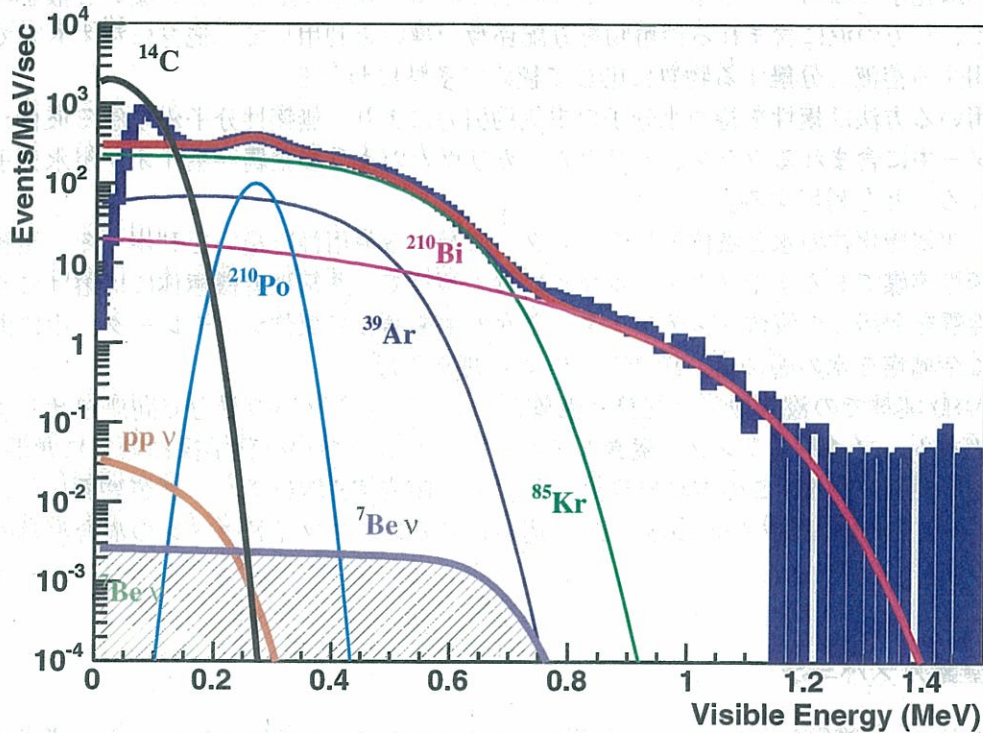


図 3.3: KamLAND でみられる background spectrum

3.3 バックグラウンドの除去方法

液液抽出、吸着材による ^{210}Pb の除去。蒸留による ^{210}Pb の除去。窒素バブリングによる ^{222}Rn , ^{85}Kr , ^{39}Ar の除去などが考えられていて、各々研究が進められている。ここからは各々の除去方法、現在の研究の進行状況を述べる。

3.3.1 蒸留法

成分の揮発度の差を利用する分離プロセスが蒸留である。蒸留により液体シンチレーター中の MO、PC を気化し集めることにより ^{210}Pb を取り除く。ただし蒸留においては蒸留後に液体シンチレーターの構成が変わってしまうことが懸念された。そのための研究が現在行われている。

3.3.2 液液抽出

液液抽出は化学では古くから用いられる分離法である。互いに混じり合わない 2 液を混合攪拌して、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、他方に移すものである。使用する溶液、分離する物質に応じて極めて多岐にわたる。

純水を用いる方法は極性を持つ水分子の電気的引力により、無極性分子からなる液体シンチレーター中に含まれるウラン、トリウム、カリウムのような金属元素イオンが水分子に吸着されることを利用する。

金属塩、金属酸化物の水と液体シンチレーターに対する可用性の違いを利用する。金属塩などは極性溶媒である水やメタノールなどに良く溶けて、非極性有機極体には溶けにくい。この性質を利用して液体シンチレーターを水の中を通して液体シンチレーター中に混在している金属塩を水の層に追い出すことにより純化を行う。

KamLAND 実験での液液抽出は純粋と液体シンチレータを互いの重力で向流させる単純なものであり、フィルタリング、窒素ガスパージとともに特別な化学操作無しに常温、常圧で行える長所がある。この方法自体はイタリアの BOREXINO グループが開発した純化法であるが、KamLAND では Borexino と違いドデカンとブソイドクメンの混合液体の純化を行う。

3.3.3 窒素ガスパージ

窒素ガスパージは液体シンチレーター業界では良く知られている操作であり、 ^{222}Rn , ^{39}Ar , ^{85}Kr を追い出すこと、抽出過程で混入する微量水分を除去すること、溶在する酸素ガスを追い出し発光量を保つことなど単純だが極めて重要なプロセスである。

3.3.4 吸着

吸着とは気相または液相中の物質が、その相と接触するほかの相（液相または固相）との界面において、相の内部と異なる濃度を保って平衡に達する現象である。シリカゲルの吸着の仕方には表面吸着と毛管凝縮の 2 通りがあり、いずれも可逆性がある。表面吸着は吸着される、たとえば水がシリカゲルの表面でファン・デル・ワールス力や水素結合により吸着される構造で化学的に結合する仕方である。シリカゲルの表面には多数の表面水酸基（ $-\text{OH}$ 基）があり、この水酸基が吸着において大きな役割を果たす。毛管凝縮は毛細管が水を吸い上げる現象（毛管現象）で水分を吸着する仕方です。シリカゲルの吸着は関係湿度の非常に低いときに（関係湿度 1.0 % 以下）は表面吸着が行われ、湿度が高く

なるにつれて毛管凝縮（毛細管）で吸着される。シリカゲルを用いてLS中の ^{210}Pb を吸着する方法が研究中である。

3.4 現在の進行状況～ ^7Be 検出に向けて～

現在の進行状況をまとめると次のようになる。

1. ^{210}Pb (目標 $< 1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)
 - (a) 液液抽出により20%まで落とせる。
 - (b) 蒸留により 2×10^{-5}
 - (c) 吸着により 5×10^{-2} もしくは 1.5×10^{-1}
2. ^{85}Kr (目標 $< 1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)
 - (a) ガスパージ 1/10 reduction ($3.2[\text{vol.}[\text{N}_2]]/\text{vol.}[\text{LS}]$)
 - (b) 蒸留 … 2×10^{-3}
3. ^{222}Rn (目標 $< 1\text{mBq}/\text{m}^3$)
 - (a) マインガードと外気の導入 … $\sim 40\text{Bq}/\text{m}^3$
 - (b) 蒸留 … 8×10^{-3}

第4章 KamLANDにおける環境ラドン濃度の測定

KamLANDでは初期の純化の際に液体シンチレーター中に紛れ込んだとされるラドンが、現在 ^{210}Pb となって残り、これが主要なバックグラウンドになっている。そのため将来の再純化の際にはより低いバックグラウンドの中で純化を行うため、KamLANDにおける環境ラドン濃度がなるべく低い状態であることが望まれる。

KamLANDエリアは地下1000mの鉱山内にあり周りを岩盤で囲まれているため、岩盤や岩盤の溶け込んだ水からのラドンの放出により、外気よりもラドンの濃度が高い、またラドンの濃度は空気の流れにより、夏には高く、冬には低いという季節変動を持っている。このためまずはKamLANDエリア内の ^{222}Rn 濃度を常時モニターすることが必要である。そしてその後KamLANDエリア内の ^{222}Rn 濃度を低減することが必要になる。濃度の低減方法として、外気を導入することによりKamLANDにおけるラドンの濃度(夏に平均で $\sim 1200\text{Bq/m}^3$)を外気と同程度($\sim 40\text{Bq/m}^3$)に減らすことを考えた。本論文では環境ラドン濃度測定のためにKamLANDに設置したモニターのデータから、KamLAND中のラドン濃度が外気導入により外気と同程度に下げられ、それが現在維持されていることをしめす。

4.1 ラドンモニタリングシステム

我々は ^{222}Rn モニタリングシステムをKamLANDエリア内に設置した。我々はSun Nuclear Corporation社のRn monitor(Model1027)をその測定に使用した(図4.2にModel1027の外観。表4.1にModel1027の仕様を示す)(Model1027の検出原理は自然散逸しModel1027のチェンバー内に入って来た ^{222}Rn の娘核 ^{218}Po と ^{214}Po が帯電しているために、それを静電場でSilicon-PIN-Diodeの表面に集め ^{218}Po と ^{214}Po からの α 線をカウントすることにより ^{222}Rn の濃度を測定するというものである。)1-Wireネットワークシステムによるデータ収集のために、TTL pulse output read-out interfaceをModel1027に取り付けた。このModel1027のTTLカウンターはカウンターと温度、湿度センサーとADCを含んでいる。またラドン濃度の測定の効率は湿度に影響を受けるために我々はHIM3610(HoneyWell)を使って湿度を測定している。KamLANDに設置された各所のノード(Model1027)はCategory6のLANケーブルで接続され、電力の供給も同じネットワークを使用している。

ラドンモニターの設置場所はDome area,Control Room, N_2 purge tower,KamLAND experimental hall entrance,purification area(3),4th Access tunnel,water purification area,Glove Box,Germanium Hutの全11箇所である。

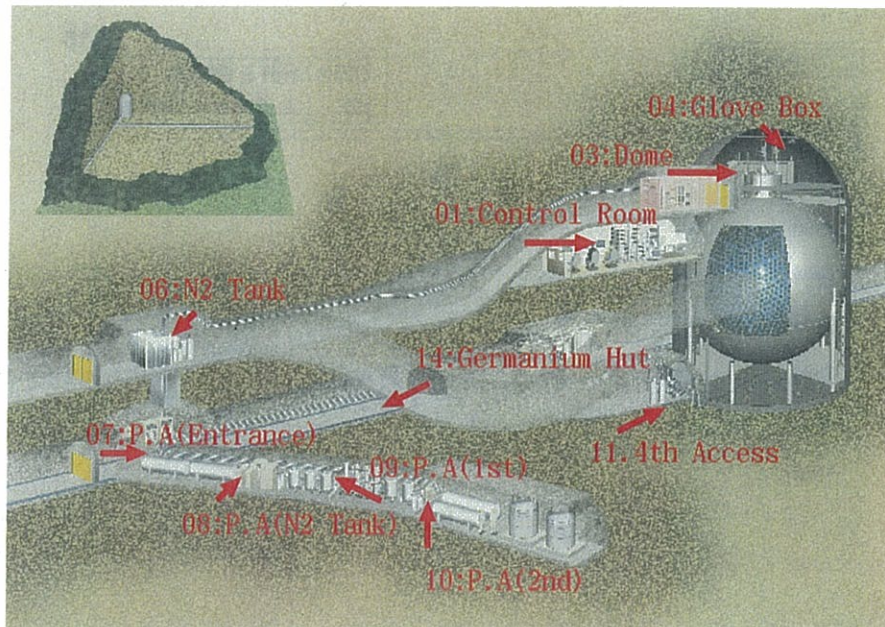


図 4.1: 現在 KamLAND では 11 箇所にモニターを配置し環境ラドン濃度を測定している。このモニターにより 24 時間常時ラドンの濃度、湿度、温度が測定可能である。

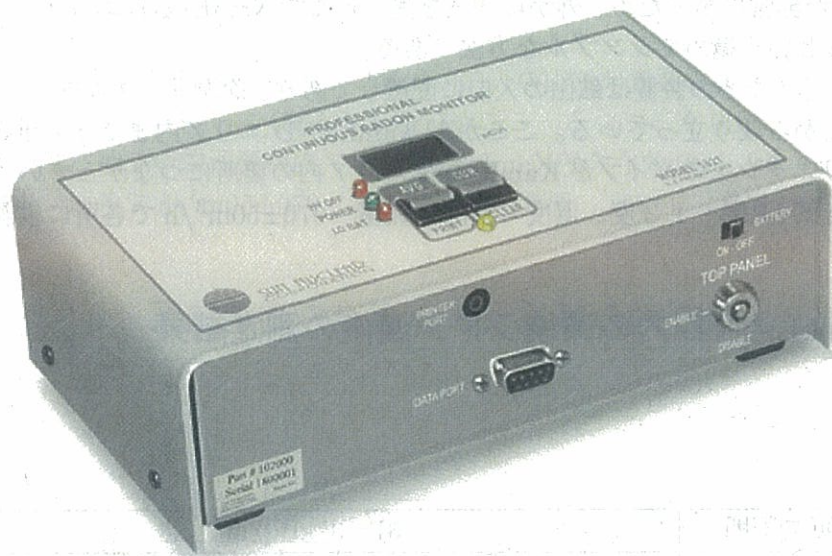


図 4.2: Model1027 の外観

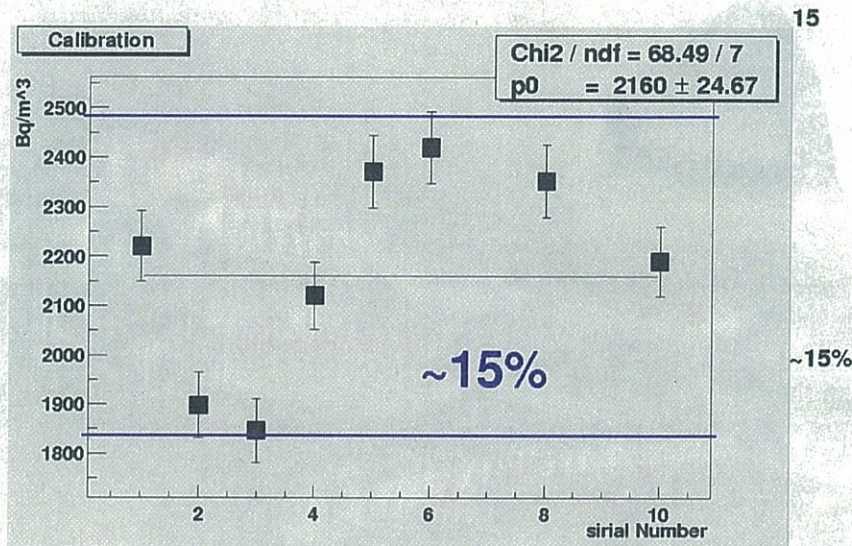


図 4.3: Model1027 の ^{222}Rn 濃度測定値の再現性を見た。実験は Model1027 を同じ場所に置き各々そのカウント数を見た。得られた誤差は $\sim 15\%$ である。

4.2 KamLAND エリアへの外気の導入

方法は KamLAND エリア内 (地下 1000 m の鉱山内) がカムランドエリア外よりもその Rn 濃度が非常に高いため、外から空気を送り込んで KamLAND エリア内の Rn 濃度を低減させるという極めてシンプルな方法である。

外気を送り込むための装置は鉱山の入口に配置しており、除湿器、ブロワー、クーラー、水冷装置などから成り立っている。ここから KamLAND エリア内まで $\phi \sim 20\text{cm}$ 、長さ 2200m のポリエチレンのパイプが KamLAND エリア内の要所につながっている。ここで製造された空気 (温度 ~ 12 度、湿度 $\sim 7\%$) は流量 $\sim 970 \pm 50\text{m}^3/\text{h}$ で各所に供給される。

4.3 KamLAND 内の環境ラドン濃度の測定結果

| | |
|----------|---|
| 測定可能範囲 | $37 \sim 37\text{kBq}/\text{m}^3$ |
| 精度 | $\pm 25\%$ or $37\text{Bq}/\text{m}^3$ どちらか 24 時間の測定で大きい方 |
| 感度 | $2.5[\text{count}/\text{hour}]/[37\text{Bq}/\text{m}^3]$ |
| 湿度に対する誤差 | $\pm 10\%$ 相対湿度 10 \sim 95% |

表 4.1: model1027 の仕様

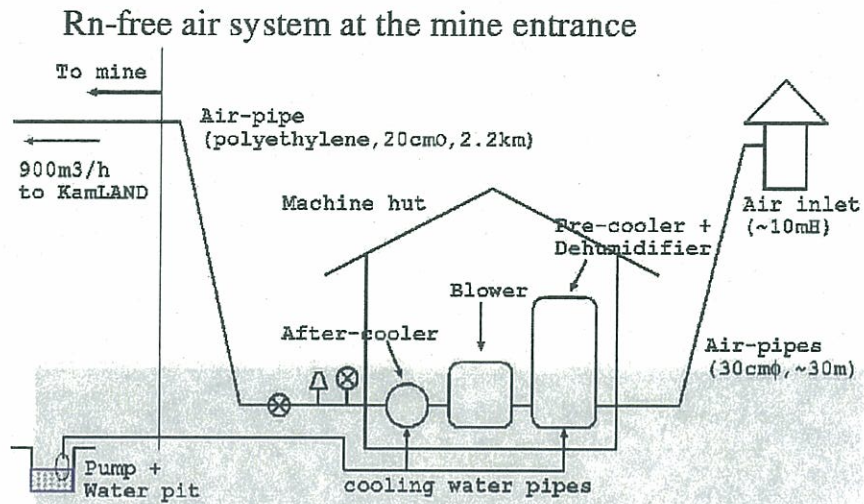


図 4.4: 外気を送るためのシステムの全体像

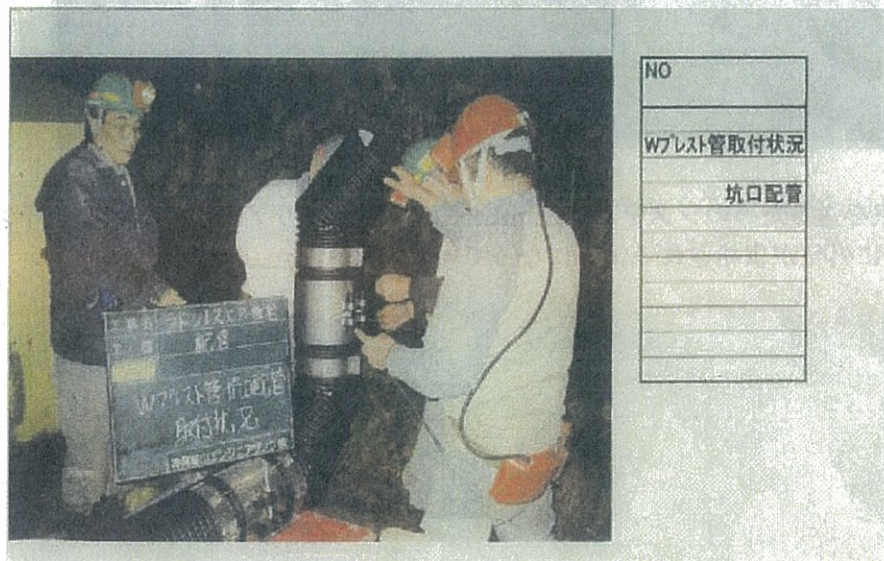


図 4.5: 坑口入口付近でのポリエチレンのパイプの取り付け。

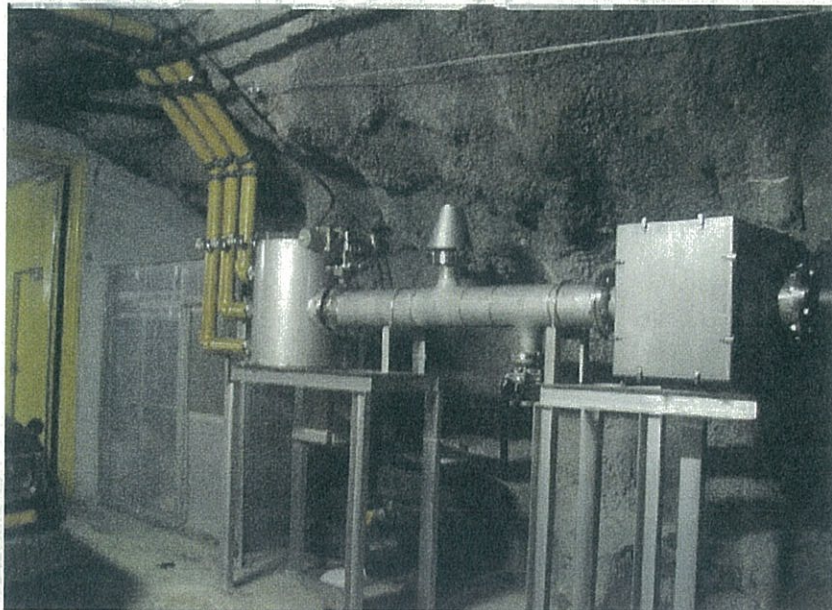


図 4.6: 外気を送るためのシステム。KamLAND 実験室エリア入口でパイプラインが分割されて各所に外気が供給されるようになっている。

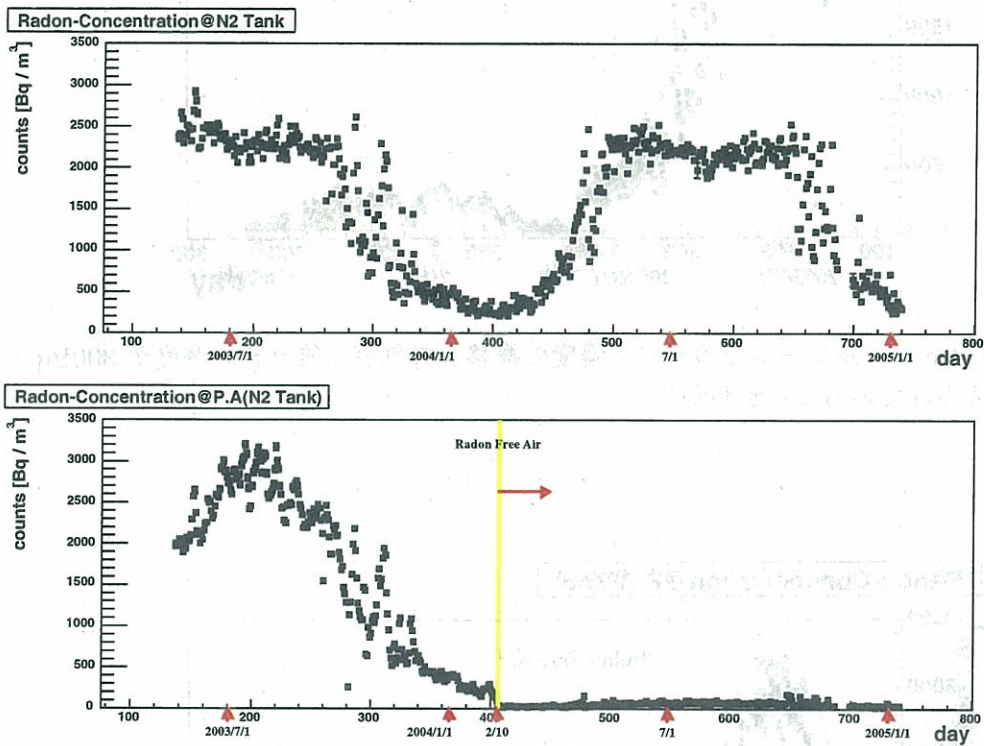


図 4.7: 外気を導入した箇所と導入していないところでのラドン濃度の推移。導入されていないところ (上図) では夏にラドン濃度が高く、冬に低いという季節変動が見られている。一方外気を導入したエリア (下図) では導入後のラドン濃度が目標の外気と同じレベルのラドン濃度 ($\sim 40\text{Bq}/\text{m}^3$) に抑えられていることがわかる

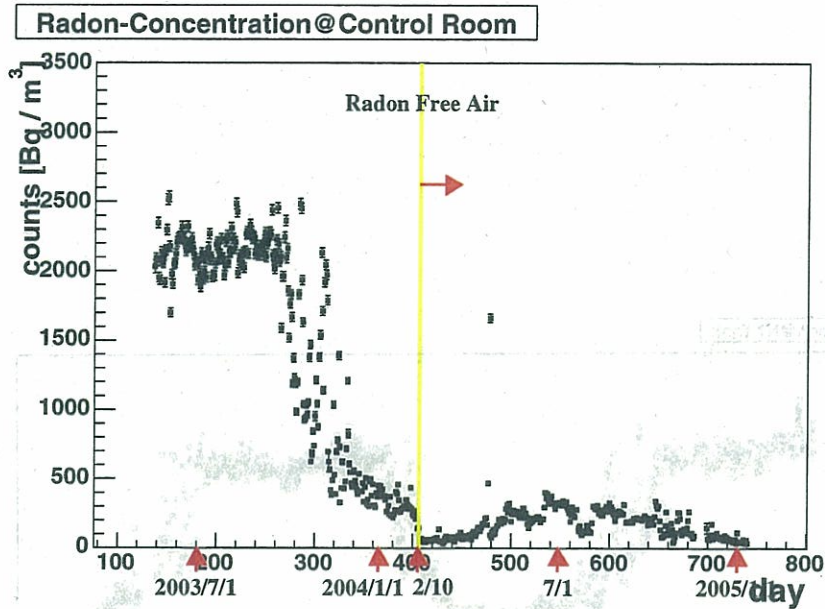


図 4.8: コントロールルームでのラドン濃度の推移。外気導入後ラドン濃度が $300\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下に抑えられていることがわかる。

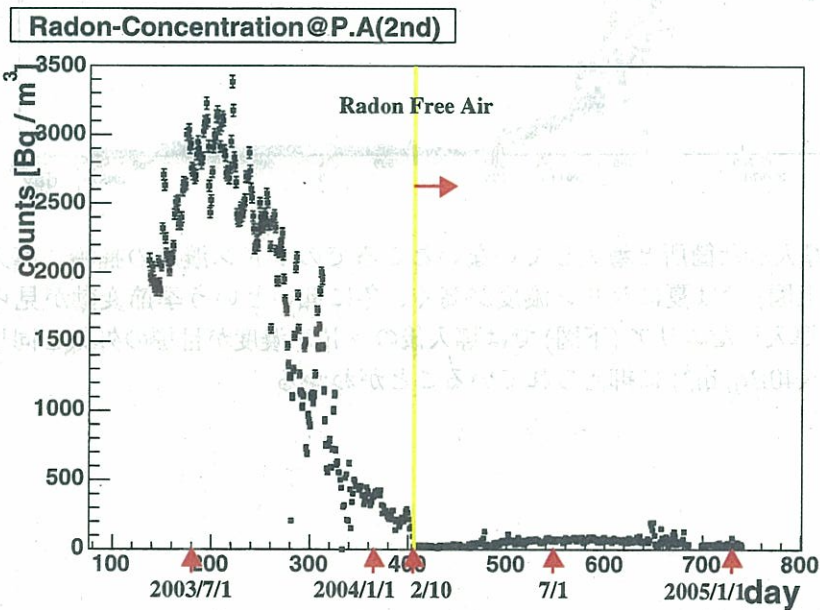


図 4.9: 純化装置エリア窒素タンク上での測定値。外気導入後ラドン濃度が $40\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下に抑えられていることがわかる。

以上図に示したように、KamLANDでは外気が導入されたエリアにおいて、目標であった外気と同程度のラドン濃度に環境ラドン濃度が低減され、またそれが維持されていることが確認できる。これにより液体シンチレーター中のラドン濃度低減という問題において第1のステップである、環境ラドン濃度の低減は達成された。これによりラドン濃度を50分の1に落とすことができた($\sim 2000\text{Bq/m}^3 \rightarrow \sim 40\text{Bq/m}^3$)。

Radon Monitor (year:2004 yday:228 time: 16:15:1)

| No | Place | Bq/m3 (last 20m) | Bq/m3 (last 10h) | Temp(now) | Humidity(now) |
|----|------------------|------------------|------------------|-----------|---------------|
| 01 | Control room | 205.58 | 214.36 | 21.81 | 41.71 |
| 02 | Clean room | - | - | - | - |
| 03 | Dome area | 40.97 | 38.37 | 20.53 | 38.89 |
| 04 | Globe box | 0.00 | 6.65 | 20.91 | 9.23 |
| 05 | E-Hut | - | - | - | - |
| 06 | N2 Tower | 2335.55 | 2030.04 | 22.06 | 63.83 |
| 07 | P.A. Entrance | 2335.55 | 2073.55 | 15.78 | 84.74 |
| 08 | P.A.(N2 Tank) | 81.95 | 50.58 | 17.66 | 45.74 |
| 09 | P.A.(1st Fence) | 163.90 | 47.85 | 17.81 | 43.59 |
| 10 | P.A.(2nd Fence) | 41.11 | 61.52 | 18.38 | 44.28 |
| 11 | 4th tunnel | 1802.88 | 1829.29 | 14.16 | 83.40 |
| 12 | Water P.A. | - | - | - | - |
| 13 | Calibration room | 0.00 | 5.46 | 20.75 | 8.26 |
| 14 | Germanium Hut | 81.95 | 42.38 | 22.97 | 27.93 |

UP DATE Clear Data Hide/Show titles

図 4.10: 環境ラドン濃度確認のためのモニター画面。KamLANDのシフトはこれによりKamLANDエリアのラドン濃度をリアルタイムで常時観測可能である。

第5章 Rn 検出器の開発

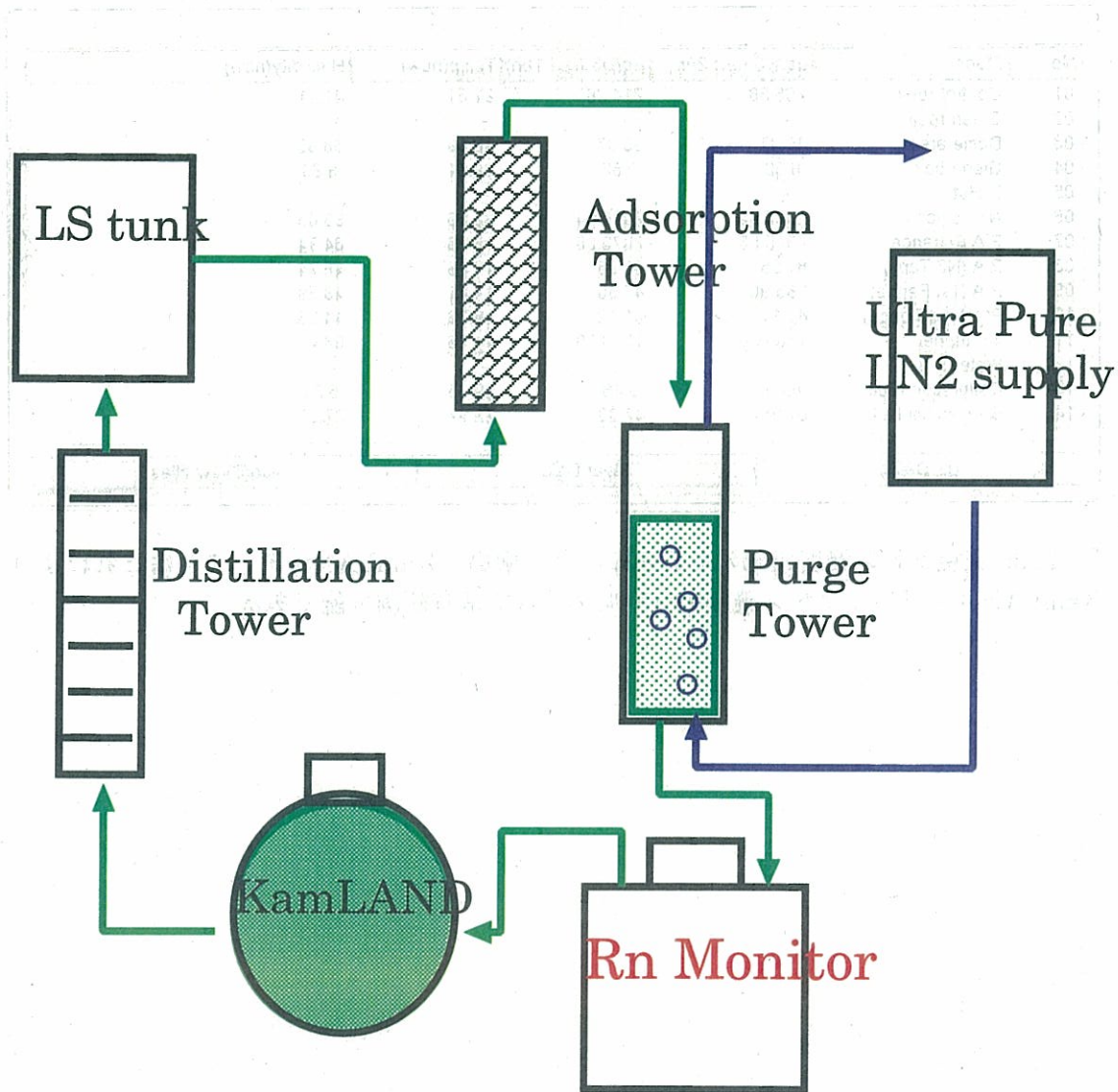


図 5.1: 将来の KamLAND の全体像 (仮)

この章では再純化の際に用いられる液体シンチレータ (LS) 中のラドン濃度を測定可能な検出器の開発について述べる。

5.1 液体シンチレータ (LS) 中の極低レベルラドン濃度計測のための検出器の開発

太陽ニュートリノ観測実験において高感度のラドン濃度の検出器が求められるのは下記の理由によるものである。

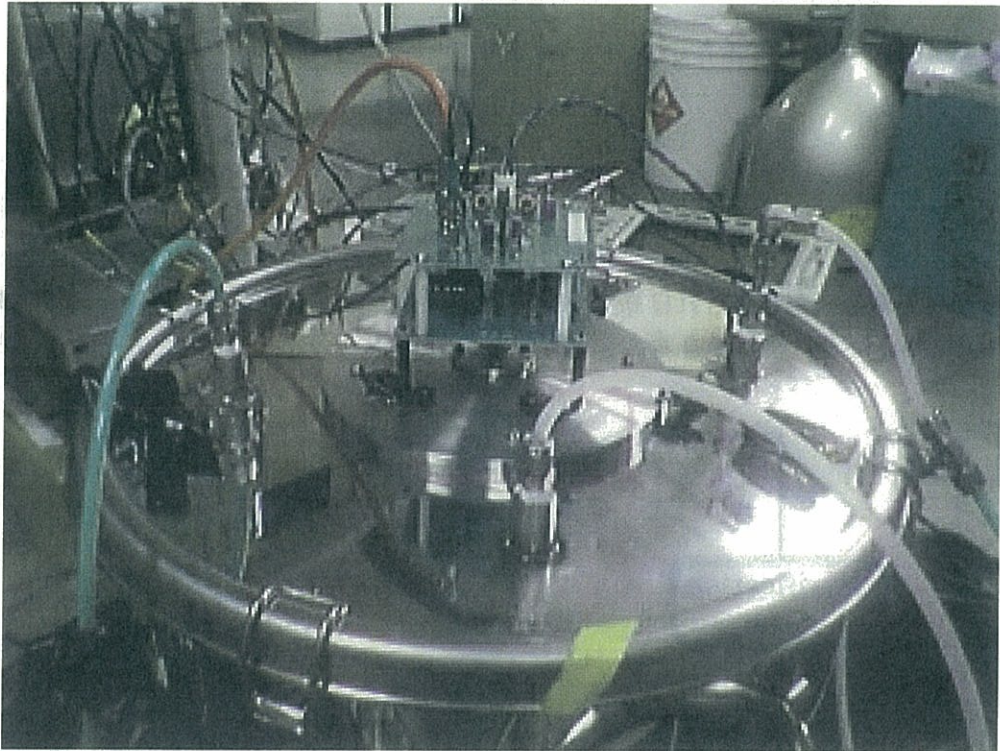


図 5.2: Rn 検出器の外観

KamLAND では Be7 太陽ニュートリノ観測を計画しており、バックグラウンドになる放射能 ^{222}Rn の低減を行っている。 ^7Be ニュートリノを検出するためには、多くのバックグラウンドが存在する。このバックグラウンドの中でも特に ^{210}Po と ^{210}Bi について、これらのバックグラウンドは現在 LS 中に残っている ^{210}Pb が原因である。この ^{210}Pb はもとをたどると ^{222}Rn であり、このラドンは純化の際に配管の接続部分からなどから空気中のラドンが LS に溶け込んだものであると考えられる。そこでこのラドンの濃度を低減することが必要となり、またそのレベルは 1mBq/m^3 以下が求められる。(図 5.3)

この 1mBq/m^3 という値についてより詳細に言うと、予想される ^7Be ニュートリノのエネルギー・スペクトラムと現在の ^{210}Po と ^{210}Bi のバックグラウンドから ^{210}Pb の濃度は現在の 10^{-5} まで低減する必要がある。これは ^{210}Pb の濃度が $\sim 1\mu\text{Bq/m}^3$ であることに対応する。ここで ^{210}Pb と ^{222}Rn の半減期の比から ^{222}Rn は 1mBq/m^3 まで低減すれば良いことが分かる。

なぜなら ^{222}Rn の濃度を $N_1(t)$ 、崩壊定数を λ_1 、の濃度を $N_2(t)$ 、 ^{210}Pb の崩壊定数を $-\lambda_2$ 、 ^{222}Rn からの α 線の rate を r_1 、 ^{210}Pb からの α 線の rate を r_2 とすると

$$r_1 = \frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 N_1$$

$$r_2 = \frac{dN_2(t)}{dt} = -\lambda_2 N_2$$

ここで $N_1(t=0)=N_0$ とすると、 $\lambda_1 \gg \lambda_2$ より

$$r_1 \leq \lambda_1 N_0 = 1 \text{ mBq/m}^3$$

$$r_2 \leq \lambda_2 N_0 = \lambda_2 \frac{1 \text{ mBq/m}^3}{\lambda_1} \sim 1 \mu\text{Bq/m}^3$$

であるからである。ただしこれは新たなるラドンの混入がない、そうでなくても ^{210}Pb を常に $1 \mu\text{Bq/m}^3$ に常に維持できることを仮定している。

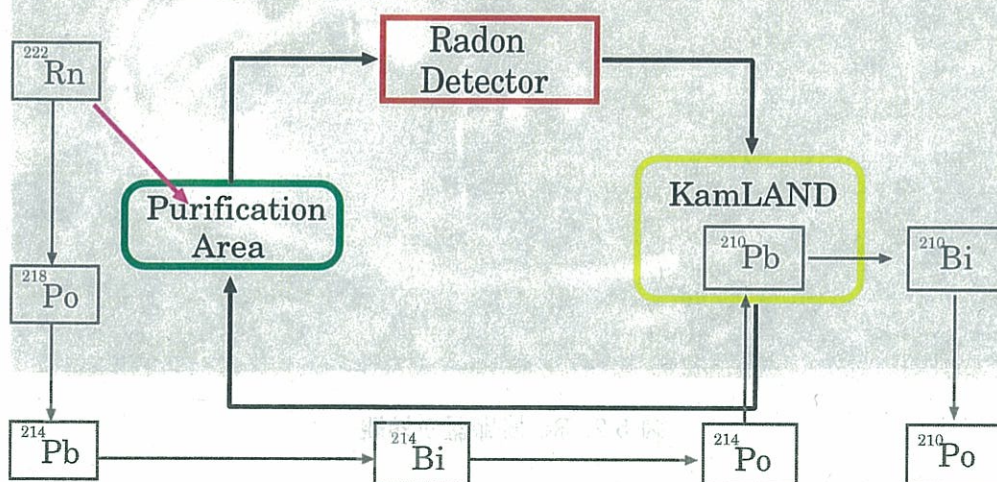


図 5.3: ^{222}Rn が純化の際に配管から混入し、それが KamLAND 検出器に入り、現在までにそれは崩壊してほとんどが ^{210}Pb となり、その崩壊によって発生する放射線がバックグラウンドとなっている。

この極低バックグラウンドの実現のためにはバックグラウンドに寄与するラドン濃度を定量的に測定し、それが基準値 1 mBq/m^3 以下であることをリアルタイムで知ることが必要になる。一般に市販されているラドン検出器も存在するが、みな 1 mBq/m^3 まで感度を有していない (例えば環境ラドン濃度測定に用いた Model1027 は検出限界が 37 Bq/m^3 である)。

また液体シンチレータからラドンを抽出して測定するという目的に適うものは存在しない。そのため我々は液体シンチレータ中の極低レベルのラドンを検出するための高感度なラドン検出器を開発する必要がある (図 5.4)

また開発に当たって我々は静電捕集法による検出器を選択した。これはこの方法が非常に低いレベルのラドン濃度に対して感度があり、SK グループではこの方法を用いて水用

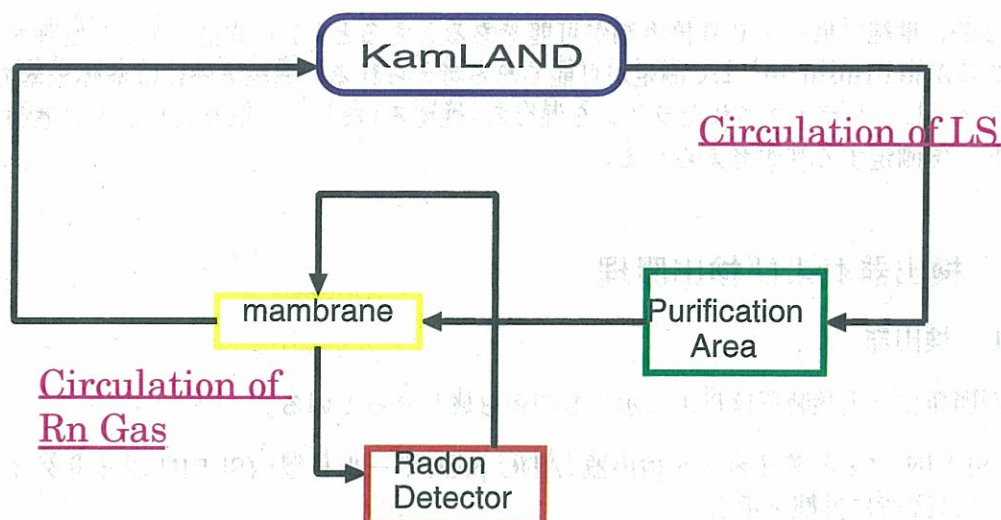


図 5.4: KamLAND における液体シンチレータの再純化の流れを図にしたものである。KamLAND 中の液体シンチレータが純化装置に送られ、そこで純化され、その純化された液体シンチレータから中空糸膜などを用いて気体の Rn を取り出し検出する。そこでその濃度が $1\text{mBq}/\text{m}^3$ であることを確認する。それ以下であることが確認されたらそれを KamLAND に戻す。

の検出器において $1\text{mBq}/\text{m}^3$ の感度を達成した。そこでわれわれの液体シンチレータ用のラドン検出器においてもこの方法が有効であると考えこの方法を選択した。

開発はラドンが LS に非常にとけやすいため (水の 46 倍) LS からラドンを抽出することが難しいことや、高感度検出器を直接 LS に触れさせない工夫が必要であり (高感度検出器が LS によりダメージを受ける)、非常に困難であることが予想される。

開発にあたりポイントになるのは、測定器自体のバックグラウンドを正確に知ること。液体シンチレータから ^{222}Rn の抽出方法の確立。濃縮方法の 3 つである。

測定器自体のバックグラウンドに関しては、それ自体が検出器の検出限界を決定するので、それを見積もらなければならない。なぜなら、静電捕集法では、あとで説明するが静電場によって帯電した ^{218}Po , ^{214}Po を選択的に捕まえて測定するために、他の粒子を測定する可能性は非常に低い。よってバックグラウンドは測定すべきラドン以外のラドンによる。

その意味でのバックグラウンドとして考えられるのは、配管、検出器からのラドンの放出、Leak による空気中からのラドンの混入。系内パージのための N_2 からのラドンなどがある。

液体シンチレータからのラドン抽出に関して我々は中空糸膜を使う方法、また N_2 をバブリングする方法を考えた。

また濃縮に関しては (今回実験を行うことができなかったが)、欠くことのできない手段である。なぜならある測定器系で液体シンチレータ中のラドン濃度 $<1\text{mBq}/\text{m}^3$ を観測するためには、仮に測定器での検出限界を $1\text{mBq}/\text{m}^3$ とし液体シンチレータ中のラドン濃度を $<1\text{mBq}/\text{m}^3$ とすると、濃縮無しでは当然ながら検出限界はそのままの $1\text{mBq}/\text{m}^3$

であるが、単純に仮に100倍濃縮が可能であるとする(100倍のLSを処理する必要があるが)0.01mBq/m³まで測定が可能である考えられる。濃縮方法には液体窒素でRnをトラップし、トラップされたラドンを温める(焼切る)などして取りだし、その濃縮されたラドンを測定する等が考えられる。

5.2 検出器および検出原理

5.2.1 検出器

今回開発した実験装置は以下に示すものから成り立っている。

1. Si PIN フォトダイオード検出器 (ADC peak ホールド型) (Si PIN フォトダイオードは図??に外観を示す。)
2. Continuous Radon Monitor Model1027((sun nuclear 社製)
3. 配管およびその接続部 (テフロンチューブ & swagelok)
4. ダイアフラム式ポンプ (NEUBERGER type N86KN.18 もしくは 高真空ダイアフラム型ドライテフロン真空ポンプ DTC-41 (アルバック機工 (株) 社製))
5. 流量計
6. ラドンソース (2.5g の鉱石で粉末状になっていてガラスの容器にいらてある。この粉末状の鉱石はシャーレにいらてあり、そのシャーレは粉末が散逸しないように CEL-GARD4410 で覆ってある。)
7. 露点計 (MICHELL Instruments 社製)
8. 計算機システム (オンライン解析モジュール kinoko を使いリアルタイムでモニター)

Si PIN フォトダイオード検出器

Si-PIN フォトダイオード検出器は円筒形のステンレス製の容器(6.5 L)の上部にエレクトロニクスハット(エレクトロニクスハットはプリアンプモジュールと高電圧分割回路)からなりたっている。図5.6にその外観を示す)が取り付けられていて、エレクトロニクスハットと検出器内部のSi-PIN フォトダイオードがフィードスルーで接続されている構造になっている。(今回使用した容器は電解研磨をしていない)。(図5.5にラドン検出器の模式図を図示する。)

高電圧電源からエレクトロニクスハットに電圧がかけられると、その電圧は高電圧分割回路によって抵抗分割されPIN フォトダイオードに逆バイアス電圧(n層にp層よりも高い電圧をかける)をかけ、検出器に静電場形成のための高電圧をp層と検出器壁面との間にかけられるようになっている。

この静電場により検出器内部に存在する²²²Rnの娘核(²¹⁴Po、²¹⁸Po)はPIN フォトダイオード表面に収集されそれらが崩壊するときに発生するα線をPIN フォトダイオードで計測する。

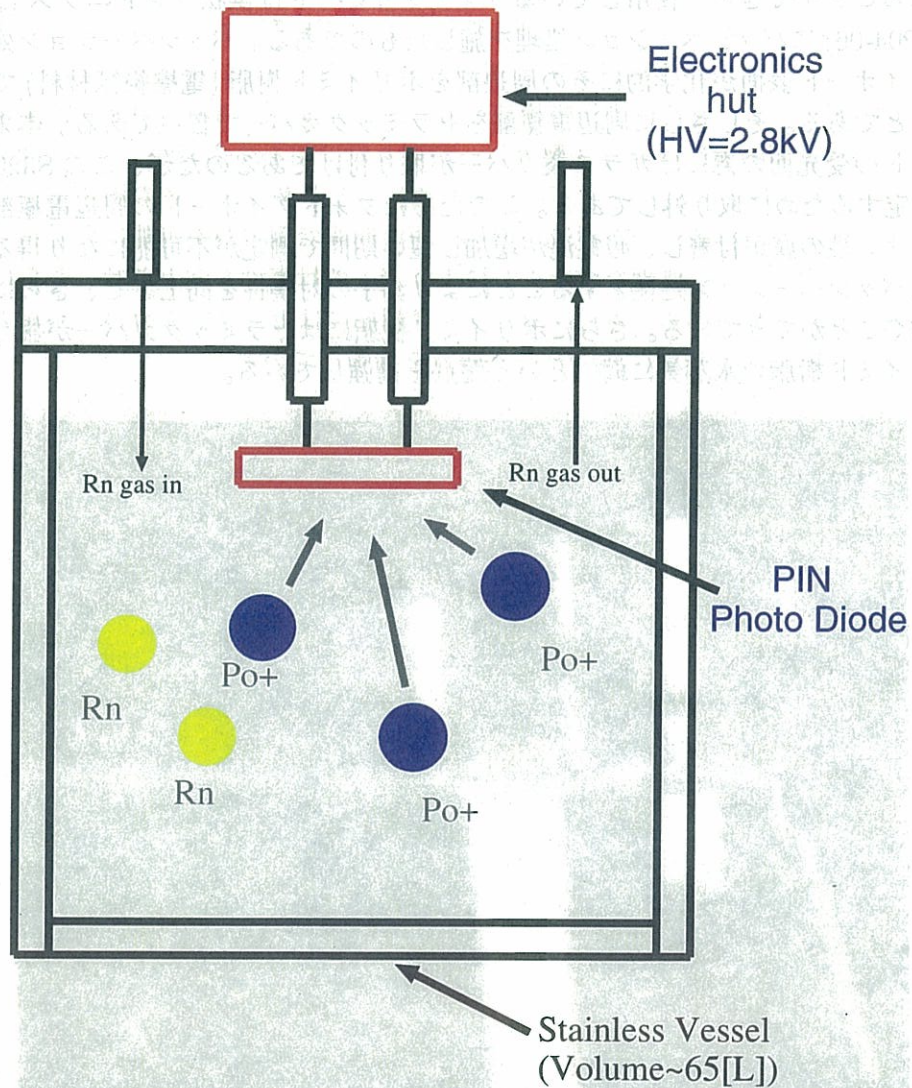


図 5.5: ラドン検出器。静電補集法により Rn を検出する。この方法は Rn が崩壊してできる Po がイオン化しているために、この陽イオンを検出器内に静電場を作ることにより PIN フォトダイオード表面に集める。その後娘核から発生する α 線を測定することによりラドン濃度を測定する。

Si-PIN フォトダイオードは p 相と n 相との間に i 相を設けて応答速度を高めていて、逆電圧を印加して高速動作させる。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を越えるエネルギーであると電子正孔対が生成され電荷が極に玉溜り、それを電子回路で導いてやることによりエネルギーに見合うスペクトルを手に入れることができる。使用しているフォトダイオードは浜松フォトニクス(株)製で(型番 S3204-06)にパッシベーション処理を施したものである。パッシベーション処理とはフォトダイオード表面が化学的にその周辺部をポリイミド樹脂(電機絶縁材料)で覆ってしまうことである。そしてさらに周辺電極部をセラミックカバーで覆ってある。本来フォトダイオードの受光面の窓にはガラス製カバーが取り付けられているのだが、この S3204-06 は α 線を測定するために取り外してある。このためにフォトダイオードの周辺電極部には空気中のイオン性の塵が付着し、暗電流が増加し短い期間で測定が不可能になり得るが、この問題はパッシベーション処理をすることにより素子の対塵性を向上させ、さらに暗電流増加を防ぐことができている。さらにポリイミド樹脂にはセラミックカバーが施されていて、ポリイミド樹脂の水蒸気に弱いという弱点を補強している。

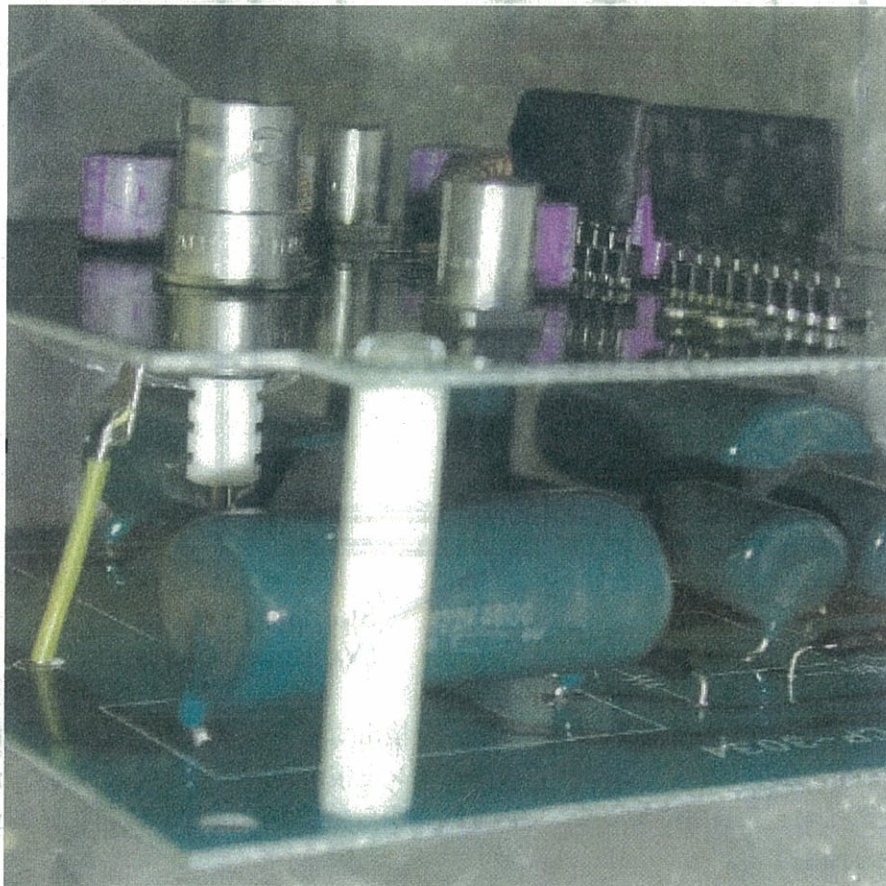


図 5.6: 検出器上部に設置されているエレクトロニクスハット。2 段の基板で作られていて、下段に高電圧分割回路、上段にプリアンプモジュールとなっている

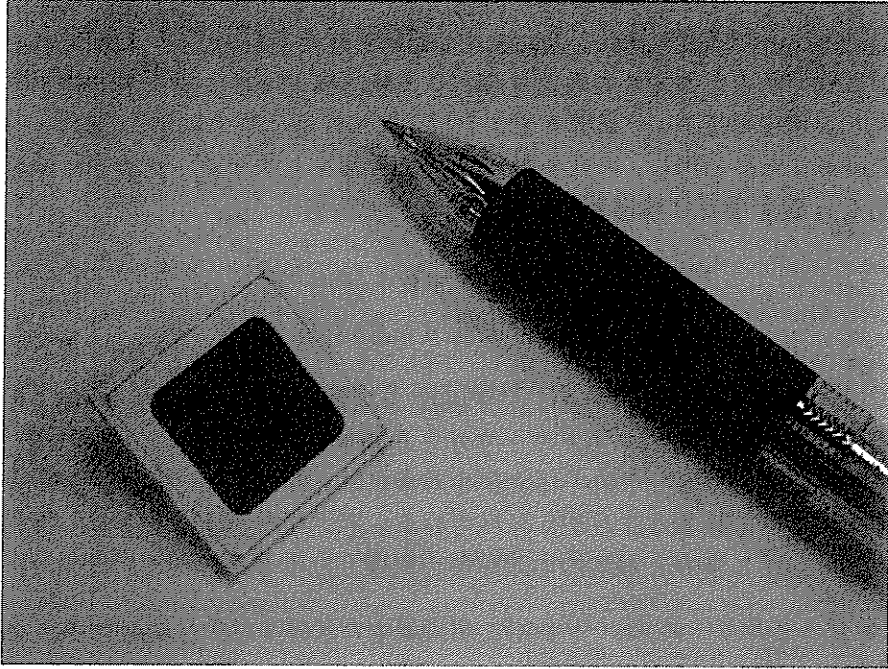


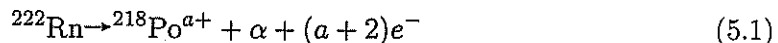
図 5.7: PIN フォトダイオードの外観である。PIN フォトダイオードには浜松ホトニクス製の S3204-06 を用いた。

| | |
|------------------------------|-------------------------|
| window material | window-less |
| Active area(mm) | 18 × 18 |
| Reverse voltage(V_R) Max | 150 |
| Power dissipation(mW) | 100 |
| operating temperature | -20 to +60 |
| Storage temperature | -20 to +80 |
| Dark Current | 15nA(typical)/50nA(max) |

表 5.1: PIN フォトダイオードの仕様

5.2.2 検出原理

検出器として我々は静電捕集法による検出器を選択した。これはこの方法が非常に低いレベルのラドン濃度に対して感度があり、SKグループではこの方法を用いて水用の検出器において 1mBq/m^3 の感度を達成した。そこでわれわれのLS用のラドン検出器においてもこの方法が有効であると考えこの方法を選択した検出原理は次に述べる方法である。静電捕集型のラドン検出器は Rn が崩壊することによって生成される娘核の ^{218}Po の80%が+に帯電していることを利用し、それを静電場でPINフォトダイオード表面に捕集し、そこから発生する α 線を半導体検出器で検出するものである



$$a \geq 1 : 90\%, a = 0 : 10\% \quad (5.2)$$

静電捕集では $^{218}\text{Po}^+$, $^{214}\text{Po}^+$, $^{218}\text{PoO}_2^+$, $^{214}\text{PoO}_2^+$ を捕集し測定をおこなう(図5.8ラドン検出器で観測される α 線とそのエネルギーを示した崩壊系列図を示す)

しかしながらこの $^{218}\text{Po}^+$, $^{214}\text{Po}^+$ は大気中の水蒸気、塵など様々な物質と結合して電気的中和現象をおこしてしまうことが知られている。そのため湿度によって、その収集効率がおおきく変化してしまう。電気的中和現象の原因として考えられるのは

- イオン化エネルギーの高い $^{218}\text{PoO}_2^+$ が大気中の水分子などと結合しクラスターを形成する。



- さらにこのクラスターは粒子半径がおおきくなり移動度が低下すると空気中のエアロゾルと結合し放射性エアロゾルを形成する。このときの半径は $0.1\mu\text{m} \sim 1.0\mu\text{m}$ である。
- 粒子が大型化すると移動度がさらに低下し電気的中和相互作用の確率が高くなり、イオン化エネルギーの高い $\text{NO}_2, \text{H}_2\text{O}$ などと中和現象をおこす。

このため湿度をモニターすることが必要になる。

5.2.3 高電圧分割回路およびプリアンプモジュール

検出器上部に設置されているエレクトロニクスハットは2段の基板で作られていて、下段にHV分割回路、上段にプリアンプモジュールとなっている。HV分割回路は高電圧電源から供給される電圧を抵抗分割しPDに逆バイアス電圧(n層にp層よりも高い電圧をかける)をかけ、検出器に静電場形成のための高電圧をp層と検出器壁面とにかけられるようになっている。高電圧電源がPDにも使われているためにベースラインのゆらぎは電圧パルスの波高のゆらぎにつながる。それはAD変換して得られるエネルギースペクトルのゆらぎに直接反映されてしまう。よって高電圧電源にはベースラインのゆらぎのすくないものを選ばれる。

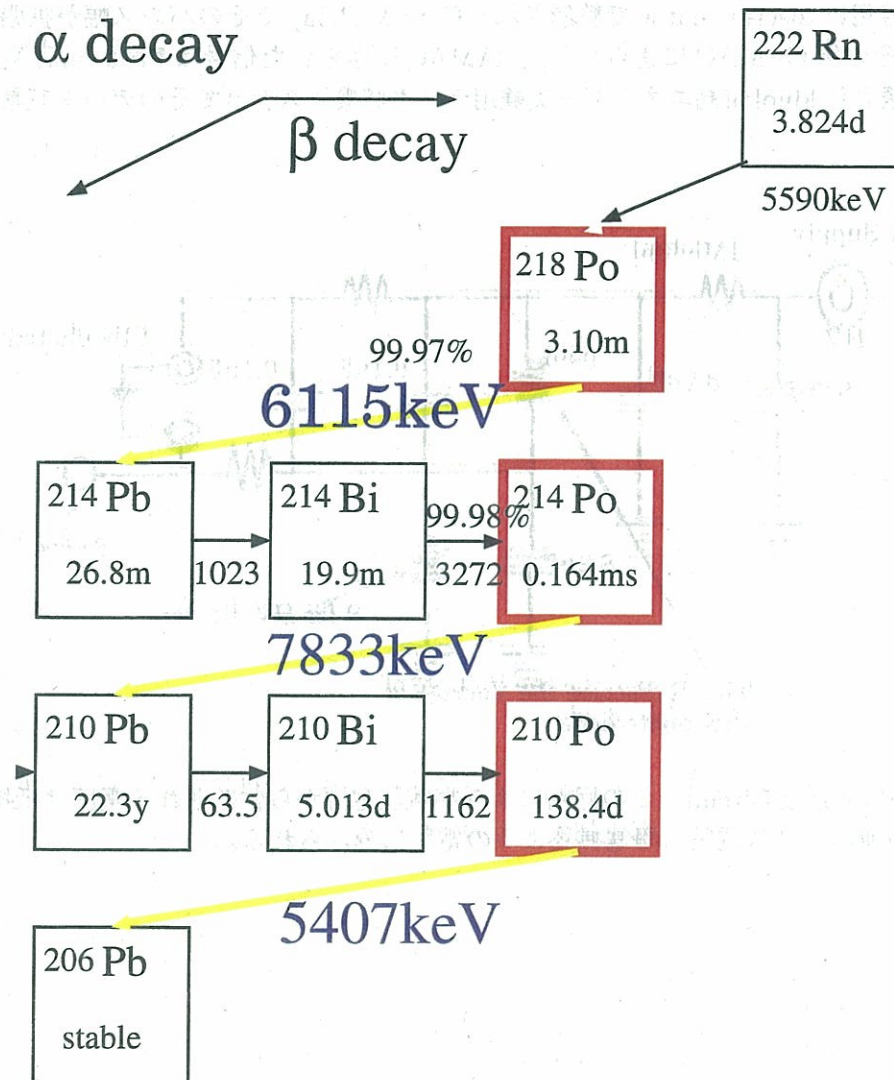


図 5.8: ラドン検出器で観測される α 線とそのエネルギーを示した崩壊系列図。
 $^{218}\text{Po}^+$, $^{214}\text{Po}^+$ が PIN-PHOTO 表面に静電捕集され、それが崩壊して出来る α 線が検出される。
 $^{218}\text{Po}^+$, $^{214}\text{Po}^+$ は崩壊した後も PIN-PHOTO 表面に存在するため、その娘核の $^{210}\text{Po}^+$ が崩壊してできる α 線もまた検出される。

5.2.4 データ収集のシステム

エレクトロニクスハットからの信号は 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。その後このパルスは 2 つに分けられ、一つはそのまま CAMAC に送られ、もう一方は Gate のための信号用に discriminator で整形され、Gate & Delay でそのパルス幅が拡張され ($\sim 200\mu\text{sec}$) その後 CAMAC に送られる。CAMAC に送られた信号は Peak hold 型の ADC で AD 変換され kinoko (高エネルギー実験用データ収集システムでそのデータ収集を行う)。

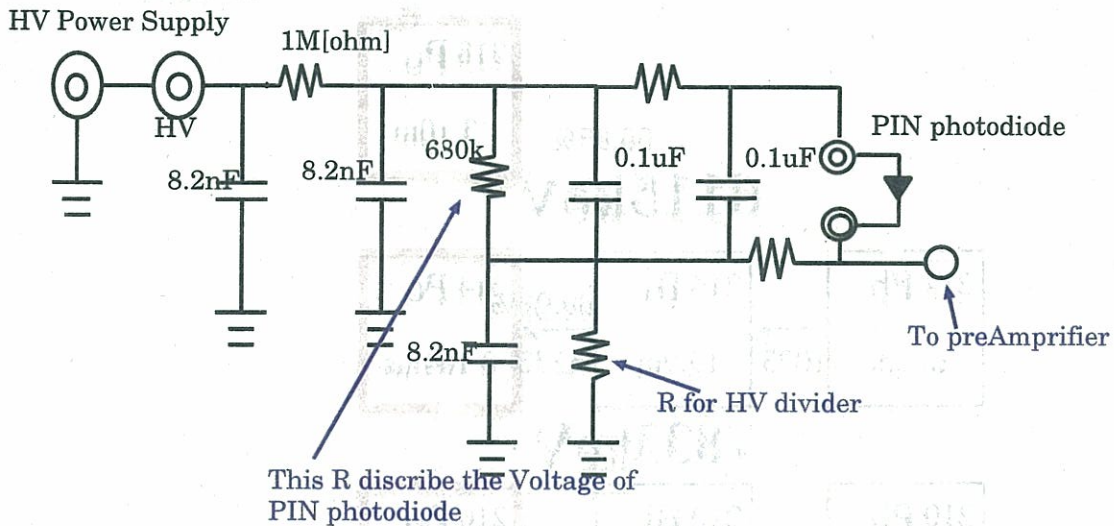


図 5.9: HV divider Circuit。この回路により高電圧電源から供給される電圧は抵抗分割され、PD の逆バイアス電圧と静電捕集のような電圧に分けられる。

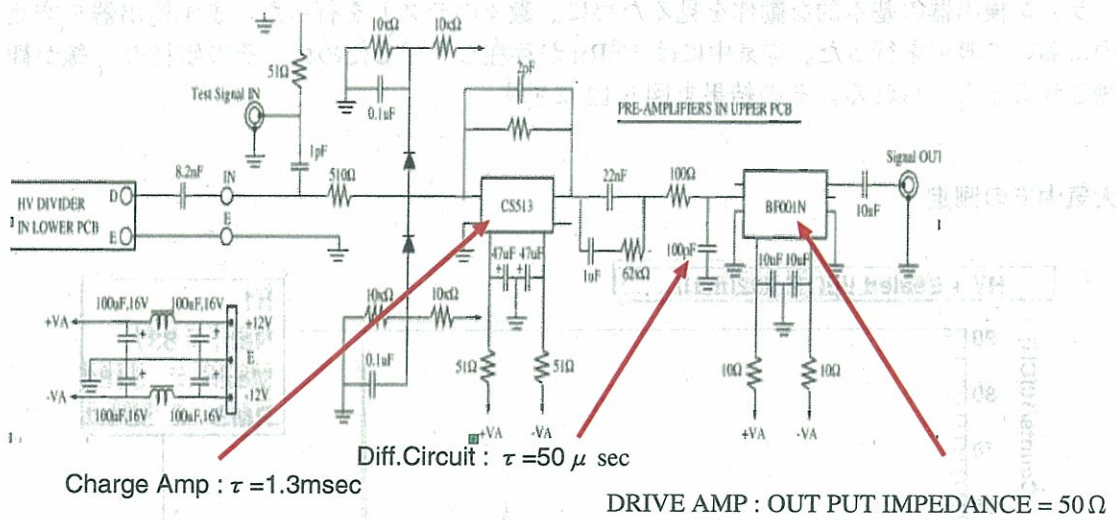


図 5.10: Pre Amplifier Circuit。

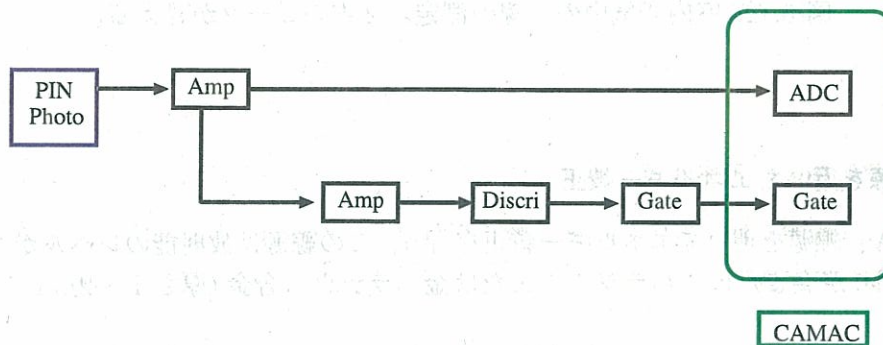


図 5.11: エレクトロニクスハットから kinoko でデータ収集されるまでのシステム

5.3 ラドン検出器の動作

5.3.1 ラドン検出器のエネルギー較正

ラドン検出器の基本的な動作を見るために、数々のテストを行った。まず検出器を空気中において測定を行った。空気中には ^{222}Rn が存在しているために、その娘核の α 線が観測されると考えられる。その結果を図 5.12 に示す。

大気中での測定

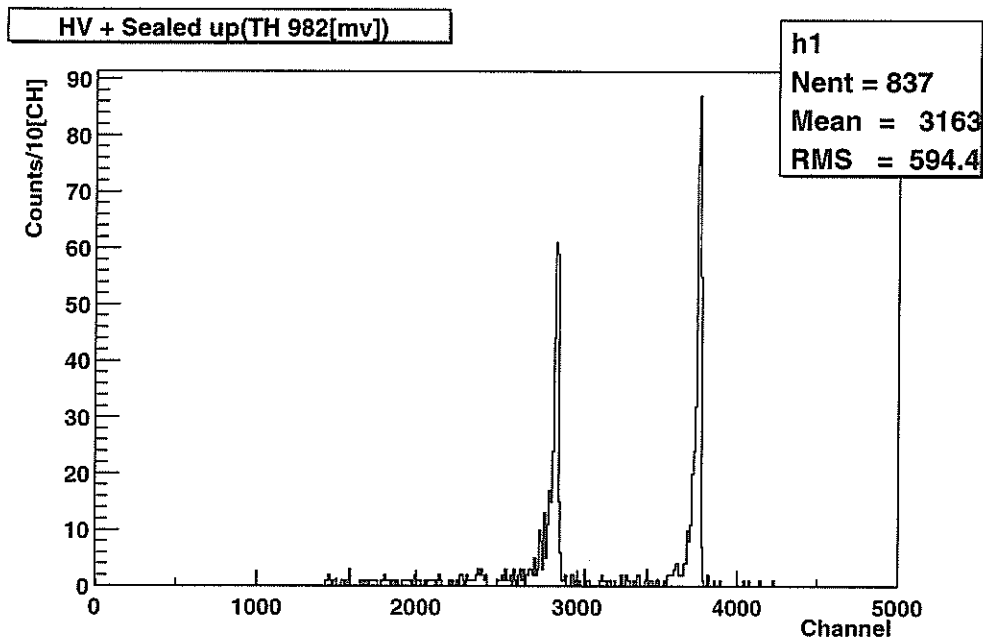


図 5.12: 室内空気中の α 線の測定。2本のピークが見える。

^{241}Am 線源を用いたエネルギー較正

次に ^{241}Am 線源を使ってエネルギー較正を行う。この線源は放射能のレベルが 3.7MBq で Am の周りが金または、パラジウムまたは金パラジウム合金 (厚さ $1 \sim 2\mu\text{m}$) の膜で覆われている。

そのためこの線源を用いてエネルギー較正をおこなうにあたり、その膜におけるエネルギー損失を考慮しなければならない。また α 線は $-\frac{dE}{dx}$ の値が一般的に大きく (空気中で 1MeV の α 線の飛程はおよそ 0.3cm 程度である) するために空気中でのエネルギー損失もエネルギー較正にかかわってくる。

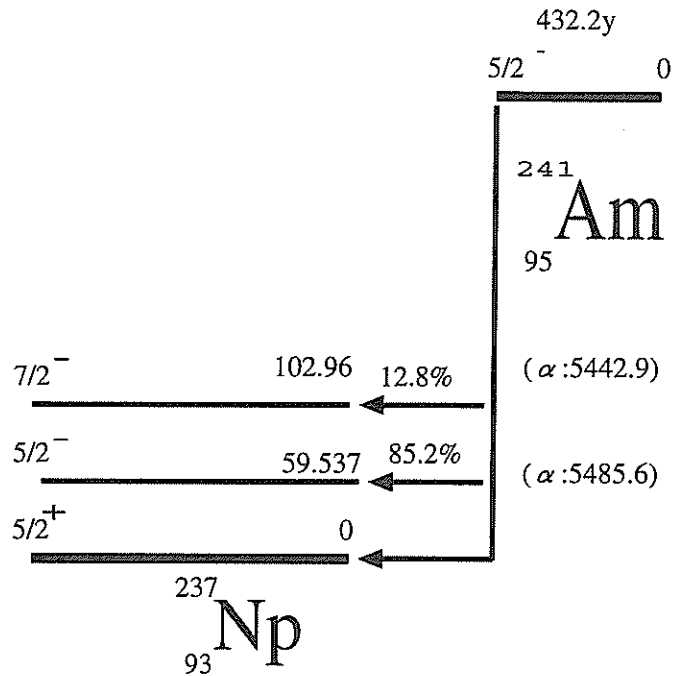


図 5.13: ${}_{95}^{241}\text{Am}$ の崩壊ダイアグラム

空気中でのエネルギー損失

α 線の相互作用には、物質中の原子を励起したり電離したりする反応や、核変換、原子核によるクーロン散乱、電磁放射などがあるが、ほとんどの反応が物質中の原子を励起したり電離したりする反応である。

この反応による α 線のエネルギー損失は Bethe-Bloch の式で記述される。Bethe-Bloch の式は以下のようなになる。走行距離 dx の間に媒質に移行されるエネルギー $-dx$ は

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2 NB}{mv^2}$$

ただしここで B は原子阻止数といわれるもので、次の関係がある。

$$B = Z \left[\ln \frac{2mv^2}{I} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right]$$

記号 e と m はそれぞれ電子の電荷と質量を表す。さらに

E, z, v は入射粒子の運動エネルギー、電荷と質量

N は 1cm^3 あたりの吸収物質の原子数。

Z は吸収物質の原子番号

$\beta = v/c$ ただし c は真空中の光速度。

である。また I は吸収物質の平均励起ポテンシャルでこの値は定数と見なされ各元素ごとに実験的に求められる。

今はじめのエネルギーを 5.44MeV として考える。このとき $\beta \ll 1$ であるから上の式は近似できて、

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2 N Z}{mv^2} \ln\left(\frac{2mv^2}{I}\right)$$

ここで $E = \frac{1}{2} mv^2$, $\alpha = \frac{e^2}{\hbar c}$ であるから

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2 N Z}{2E \frac{m}{M}} \ln\left(4 \frac{m}{I}\right)$$

空気中なので (標準状態 (760mmHg, 15 度) の空気の密度) $= 1.226 \times 10^{-3} \text{g/cm}^3$, 空気の原子量として $(3.82)^2$ を用いて有効数字 3 桁で求めると

$$-\frac{dE}{dx} = 0.465 \frac{\ln(6.40E)}{E}$$

] この式を図示したのが次の図 5.14 である。

Au または **Pt** 中でのエネルギー損失

使う理論式は空気中の場合と同じで、

$$\begin{aligned} \frac{dE}{dx} &= \frac{4\pi e^4 z^2 N B}{mv^2} \\ B &= Z \left[\ln \frac{2mv^2}{I} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right] \end{aligned}$$

である。

金の場合、 $I = 790 \text{[eV]}$, $N = \frac{19.32 \text{[g/cm}^3\text{]}(20 \text{度}) \times 6.022 \times 10^{23}}{196}$, $Z = 79, z = 2$, として有効数字 3 桁で解くと、

$$-\frac{dE}{dx} = 1.77 \times 10^4 \frac{\ln(0.694E)}{E}$$

白金の場合、 $I = 10 \times Z \text{[eV]}$, $N = \frac{12.16 \text{[g/cm}^3\text{]}(20 \text{度}) \times 6.022 \times 10^{23}}{106.42}$, $Z = 46, z = 2$, として有効数字 3 桁で解くと、

$$-\frac{dE}{dx} = 1.20 \times 10^4 \frac{\ln(1.19E)}{E}$$

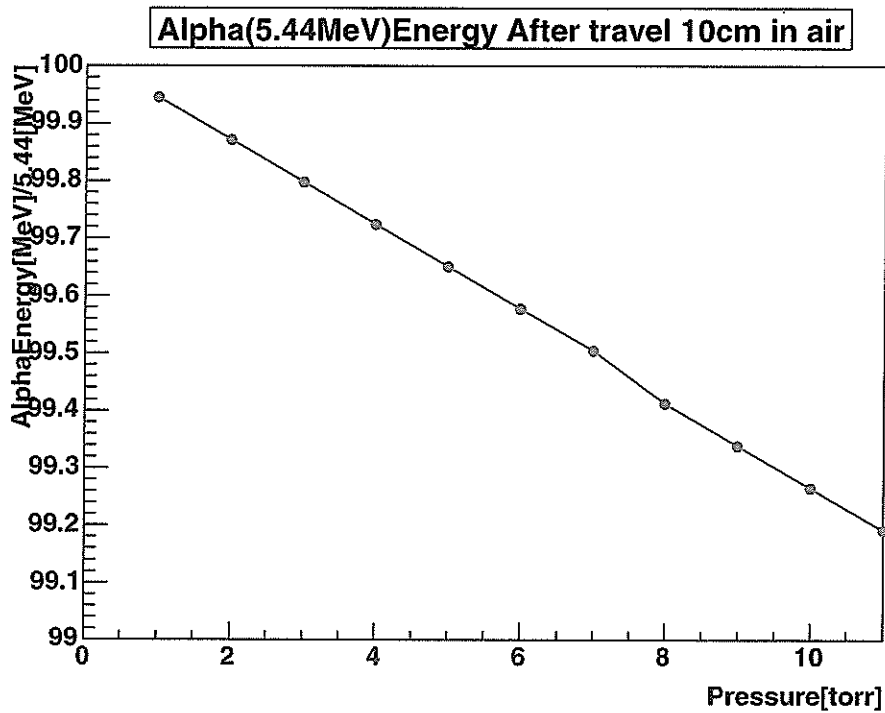


図 5.14: α 線 (5.44MeV) が 10 cm 空気中 (圧力を変化させた) で 10cm 飛んだときのエネルギー損失。10cm 飛んだ後のエネルギーを縦軸にとり、横軸に空気の圧力を取った。計算には Bethe-Bloch の式を用いた。エネルギー較正は数 torr の圧力の領域で行うのでその際には α 線のエネルギーは 1% も LOSS しないことが分かる。

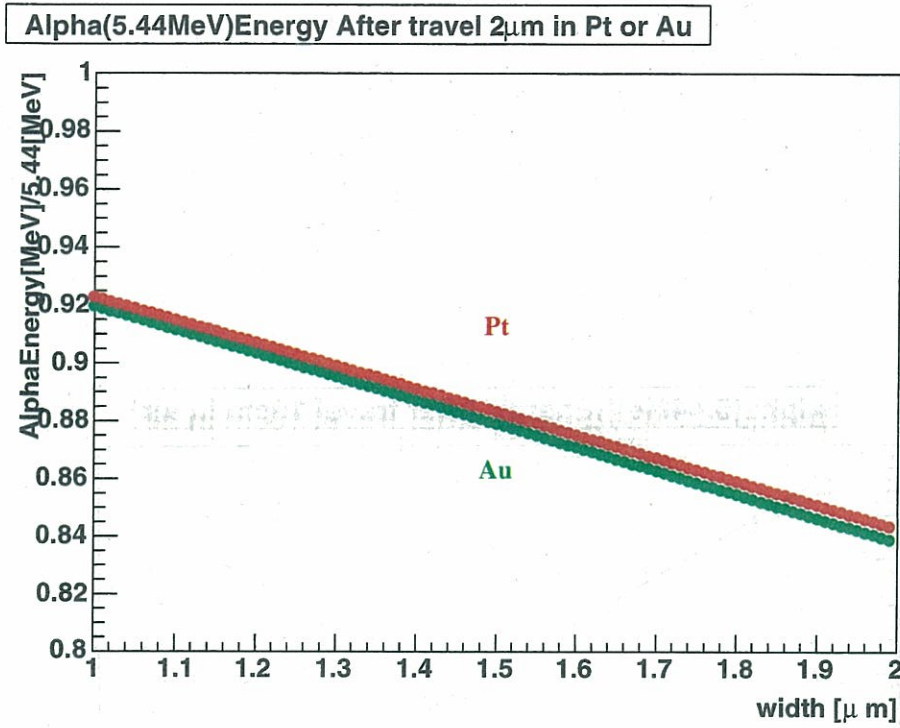


図 5.15: $\alpha(5.44\text{MeV})$ 線の Au または Pt 薄膜中でのエネルギー損失。

これらを使って膜中でのエネルギー損失を考える。膜が全て金でできていると仮定した場合と、全て白金でできていると仮定した場合を図 5.15 に示す。

膜の厚さを $1.5\mu\text{m}$ と仮定してエネルギー損失また systematic error を見積もると、エネルギー損失は $12\pm 4.4\%$ となる。

Am の測定および、その PIN フォトバイアス電圧依存

まず Am のスペクトルを図 5.16 に示す。Am から PIN フォトまでの距離は 5 cm である。

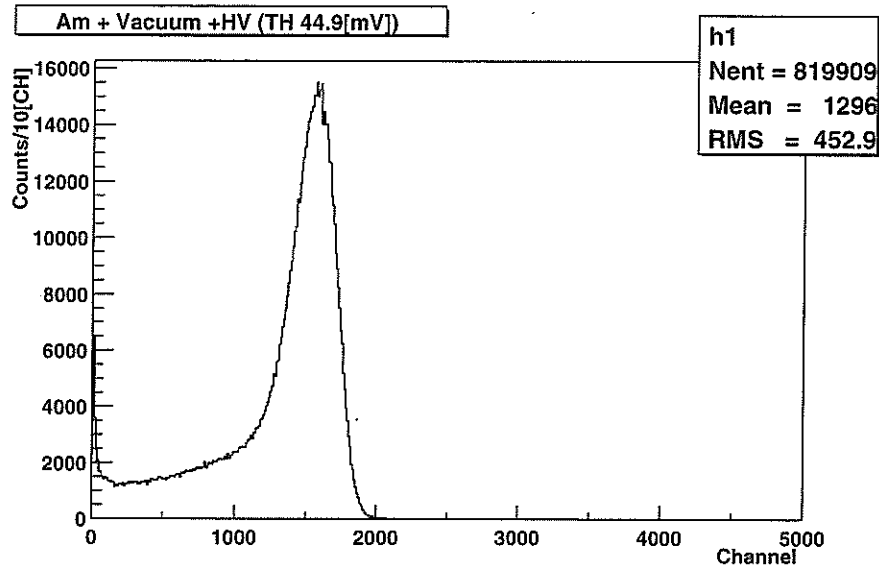


図 5.16: 閾値を下げて Am のスペクトルの全体を見た。

次に Am の上に紙をおいて測定した。 α 線は紙 1 枚で遮蔽できるので、観測されないはずである。結果を図 5.17 に示す。

その後 HV の電圧を変えて (PIN フォトのバイアス電圧を変えて)、そのピークの位置がどのように変化するかを見る。HV の値が 2.8kV 以下の場合の結果を図 5.18 に、HV の値が 2.8kV 以上の場合の結果を図 5.19 に示す。HV の値が 200V 以上ではピークがほとんど動いてない、

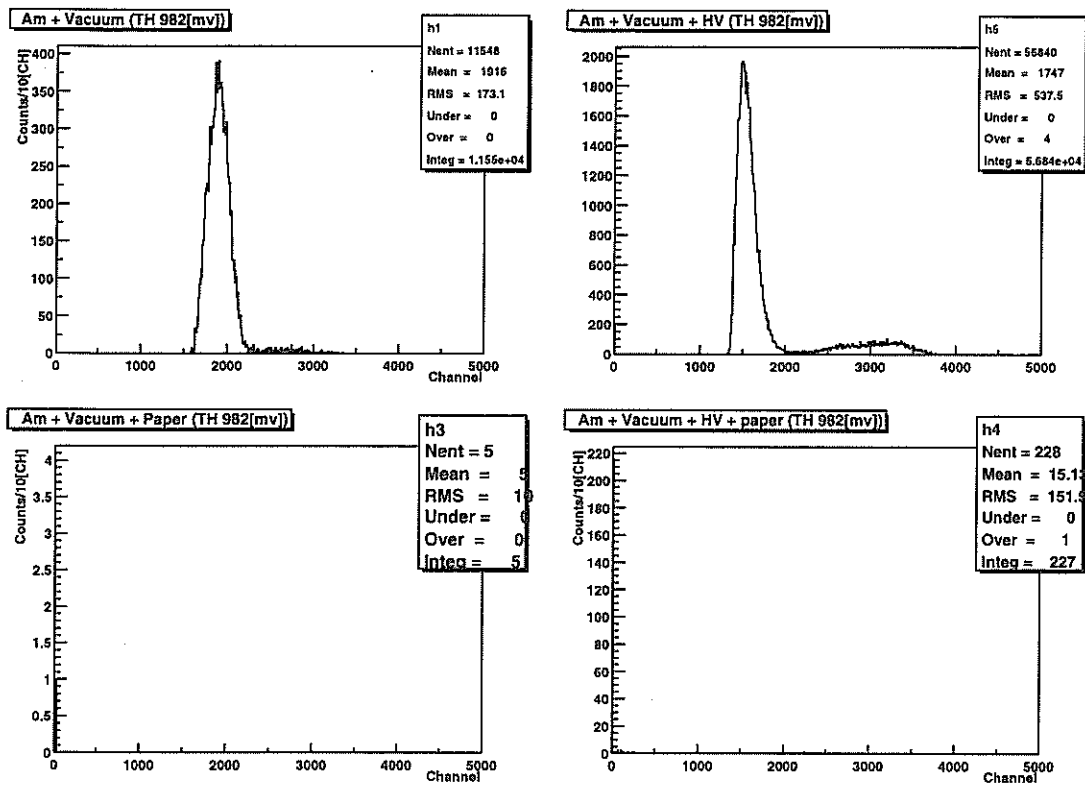


図 5.17: Am 線源の上に紙を置いたときに PIN フォトダイオードで検出される Am の α 線のスペクトル。上が線源の上に何も置かない場合、下が紙を置いた場合である

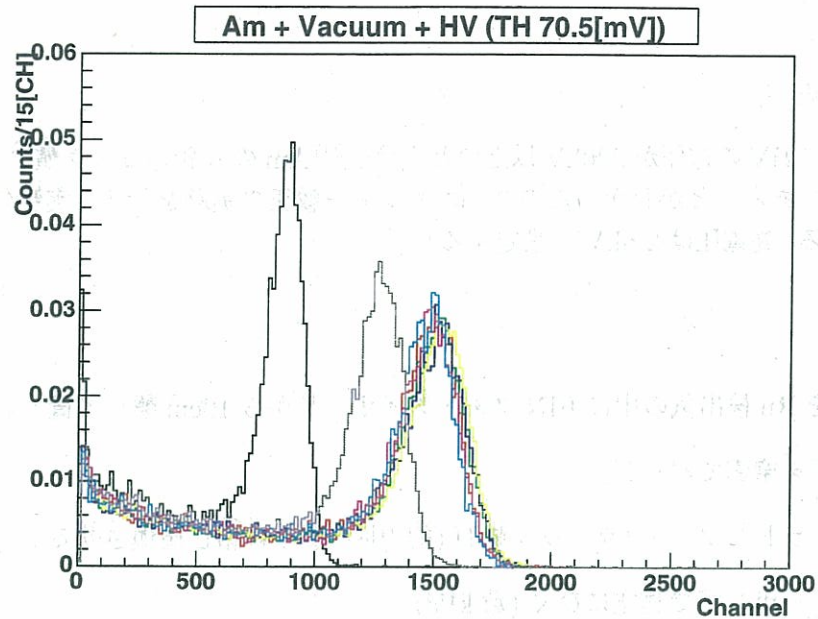


図 5.18: 高電圧電源の電圧を変えた (100, 200, 300, 400, 500, 1000, 1500, 2000, 2800) ときの Am からの α 線のピークの移動. スペクトルはその積分値を 1 に規格化してある. HV の電圧が 200V を越えるとピーク値はほとんど動かない。

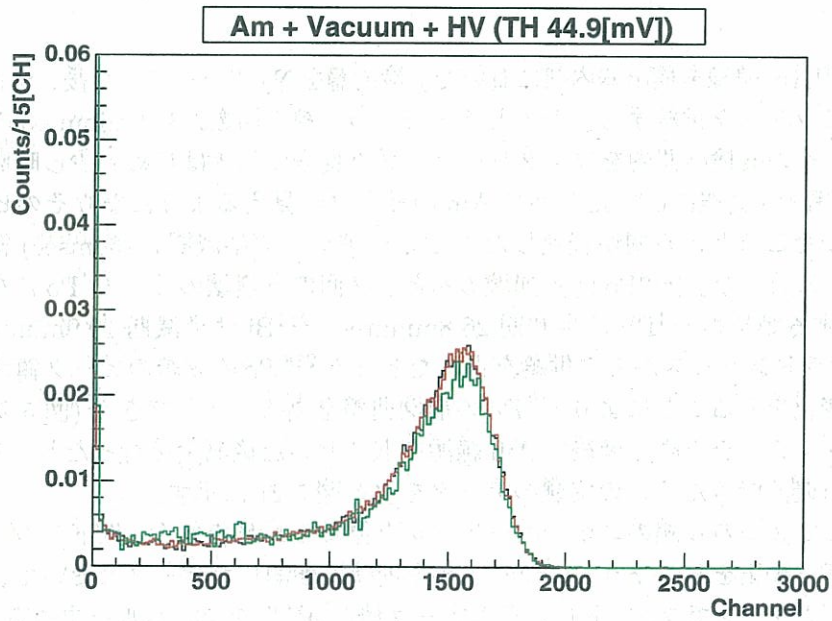


図 5.19: 高電圧電源の電圧を変えたとき (2.8, 3.5, 4.0 [kV]) のスペクトルの移動. こちらもピークチャンネルはほとんど動いていない。

エネルギー較正

以上のようにHVの電圧が200kV以上のときは、 ^{241}Am の α 線のピーク値のADCチャンネルが一定であることがわかったので、エネルギー較正の実験を行う。実験の手順は以下のようなになる(高電圧は2.8kVに設定する)

実験方法

1. ^{241}Am をRn検出気の中にPINフォトダイオードから10cm離して置く。
2. 空気の系を窒素でパージ。
3. ラドンをラドンソース(ラジウム鉱石(約10g))から供給し循環させる。
4. ロータリーポンプで真空にひく(数kPa)
5. 一時間後、Rnの供給を止める。真空はひき続ける。
6. 真空にひくのを止める。
7. ^{241}Am を検出器から取り除く。

結果

まず我々は ^{241}Am 線源を検出器内部に置いた。検出器を N_2 でパージした後、ラドンソースから検出器にラドンを供給する。そのとき ^{218}Po の α 線(半減期3.10minutes)のピークを確認できる。その後検出器内をロータリーポンプで真空に引きはじめ、少し時間が経過した後(1時間程度)真空にひいたことでAmのピークが見えるようになりそのピークを確認できる。またこのとき時間が経過したことで ^{214}Po の α (半減期0.164msec)線のピークが見えるようになった。 $(^{218}\text{Po}$ は α 崩壊のあと、2回の β 崩壊の後に ^{214}Po になる。またその β 崩壊する娘核の ^{214}Pb は半減期26.8minutes、 ^{214}Bi は半減期19.9minutesである。)その後はラドンソースからの供給を止めたところ ^{218}Po の α 線のピーク領域のカウント数の時間変化をみることにより ^{218}Po の崩壊曲線を見ることができた(図5.22)

次に真空にひくことを止め、最後にAm線源を取り除いた後測定を行ったところ ^{214}Pb のピークだけが確認できた。この実験のデータを次の図5.21に示す。

このようにして3つの α 線のエネルギーピークを見ることができる。以下このデータを用いてエネルギー較正をおこなう。3つの α 線を同時に観測したデータにおいて、各々のスペクトルをガウシアンでフィットし、そのピーク値のADCチャンネルを求める。フィットの様子を次の図5.23に示す。ADCチャンネルとエネルギーは比例関係にあることがわかる。これによりPIN- PHOTO ダイオードのエネルギーの較正を行うことができた。

^{222}Rn の検出を行うに当たり、我々は ^{214}Po のカウント数を ^{222}Rn のカウント数として用いる。崩壊系列で ^{222}Rn と ^{214}Po は1対1で対応するので、 ^{214}Po の検出効率を ^{222}Rn

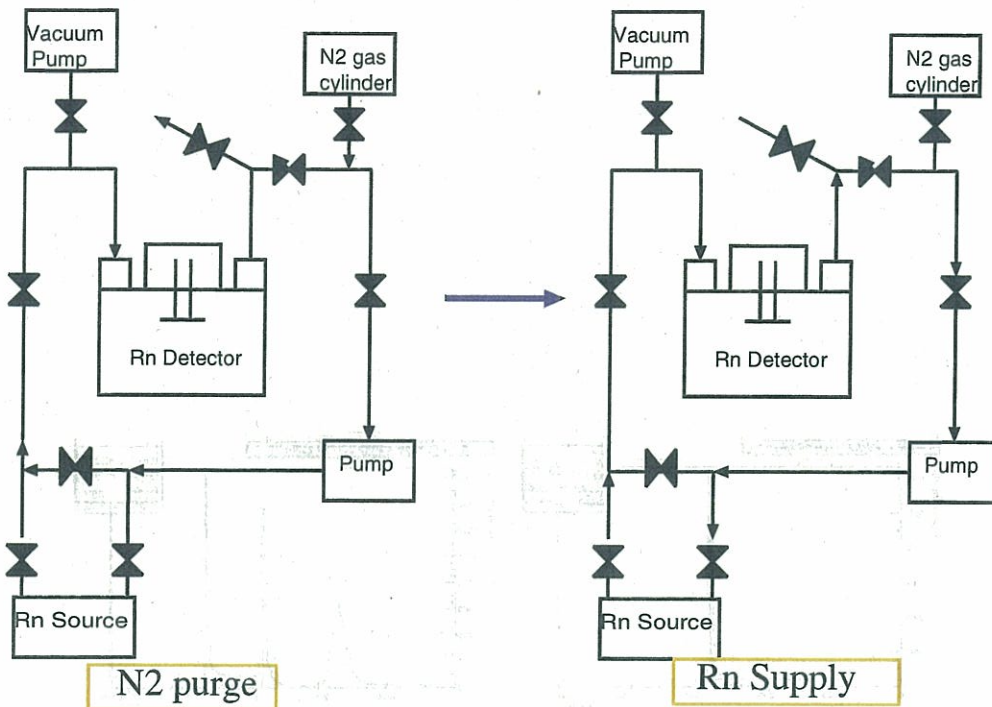


図 5.20: エネルギー較正の際のラドン供給システム。左が窒素パージの時の系内の空気の流れ。右がラドンをソースから供給するときの空気の流れである。

の検出効率と考えても良い。また ^{218}Po でなく ^{214}Po を選んだのは、 ^{218}Po では PIN フォトダイオードの表面に補集される前に崩壊する可能性があるが、 ^{214}Po ではその心配はほとんどないことと、1対1の対応を見るときに ^{218}Po はその崩壊系列の末で見られる ^{210}Po とエネルギーが比較的近くスペクトルが重なる恐れがあるためである (^{214}Po は精度良く分離できる)。

この実験以降、ラドンの濃度には ^{214}Po のエネルギー領域のカウント数を用いることとする。

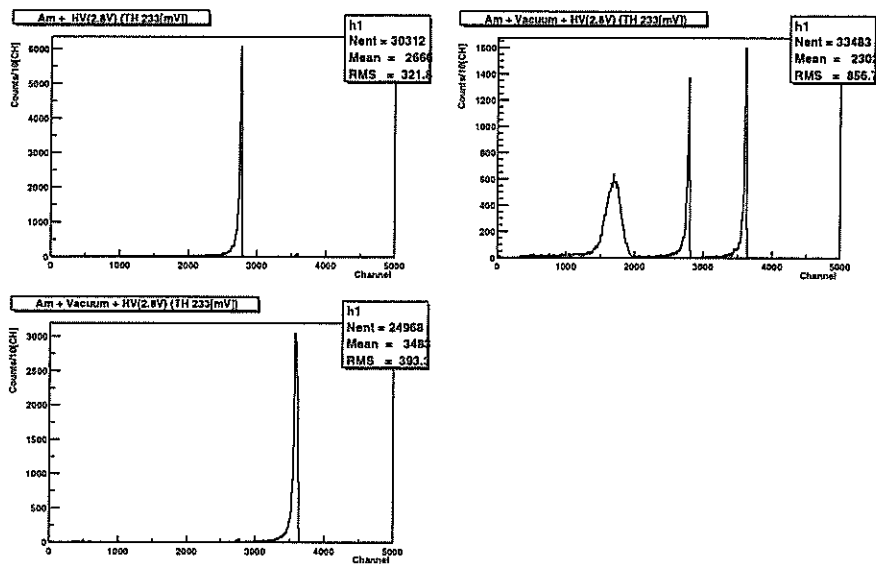


図 5.21: まず我々は Am 線源を検出器内部に置いた。左上の図は検出器を N_2 でパージした後の測定値で、 ^{218}Po の α 線のピークを見ている。右上の図は検出機内をロータリーポンプで真空に引きはじめ少し時間が経過した後 (1 時間程度) のデータ。真空にひいたことで Am のピークが見えるようになり、時間が経過したことで ^{214}Po のピークが見えるようになった。左下の図はラドンソースからの供給を止めたあと、真空にひくことを止め、Am 線源を取り除いた後の測定値である。

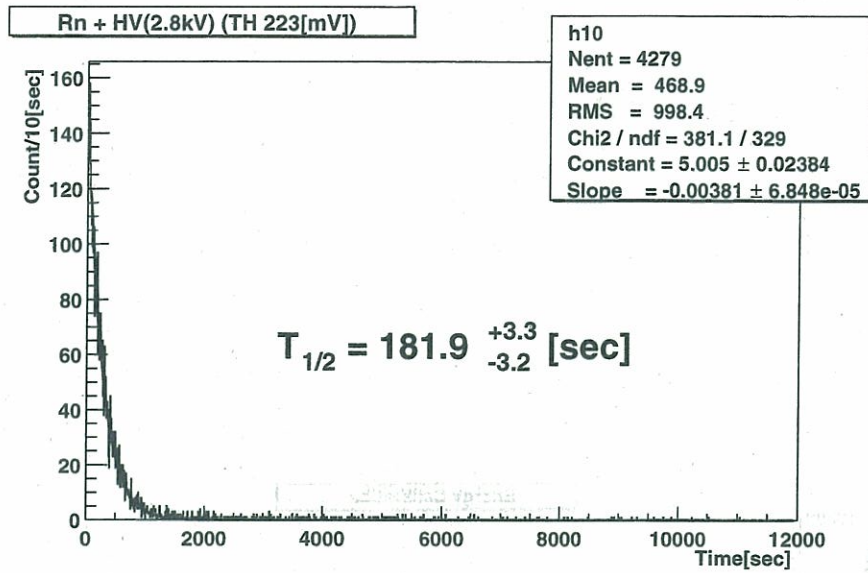


図 5.22: ^{218}Po 崩壊曲線。Rnの供給を止めた後、低いエネルギーのピークを選びそのエネルギー領域でのイベント数の時間変化を見た。フィットをした結果その半減期は $181.9^{+3.3}_{-3.2}[\text{sec}]$ となり、 ^{218}Po の半減期 $186[\text{sec}]$ とほぼ一致している。

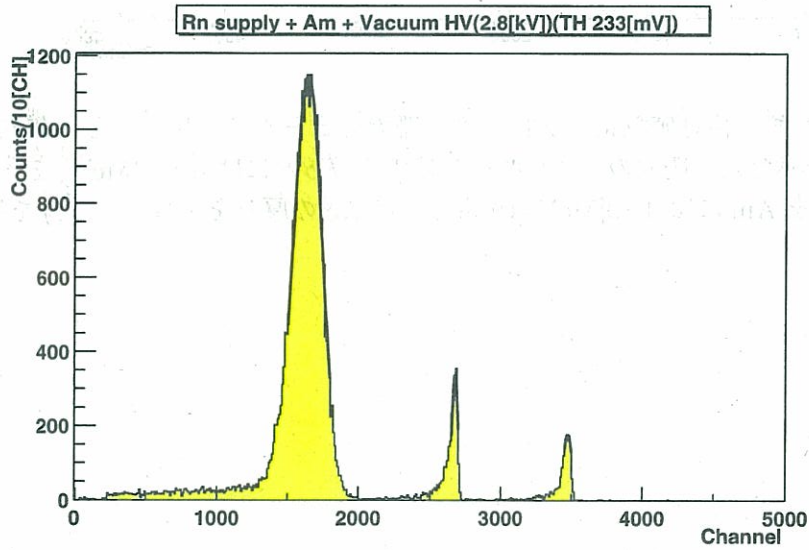


図 5.23: Am、 ^{218}Po 、 ^{214}Po の3つのピークを同時に測定した。おのおのガウシアンでフィットしてある

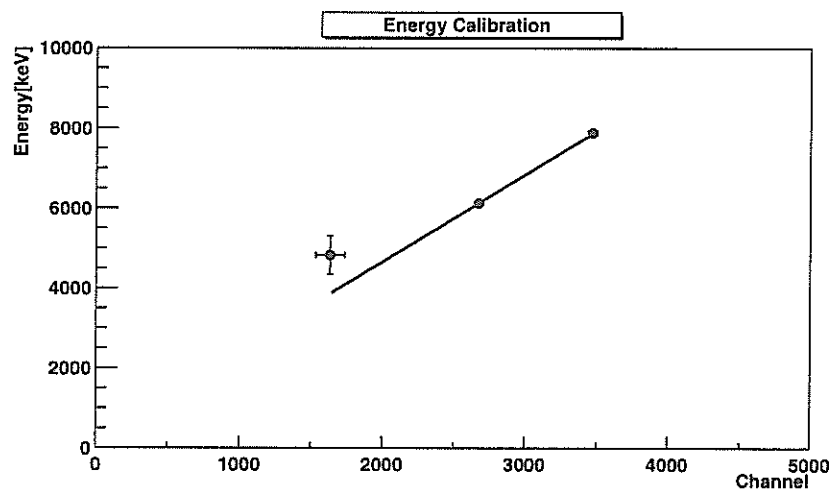


図 5.24: エネルギー絶対値較正。ラドン検出器でのピークチャンネルと、既知のエネルギーとの関係を示した。既知のエネルギーとして ^{218}Po α には 6.115[MeV] を ^{214}Po α には 7.833[MeV] を Am には 4.80[MeV](Pt もしくは Au の厚みを 1.5μ とした) を採用した。

5.4 ラドン検出器の絶対値較正

ラドン検出器は空气中ラドンの濃度を評価するための較正定数が必要になる。この較正定数は既知のラドン濃度に対して、ラドン検出器の検出効率を表すものである。この定数をもとに検出器内のラドン濃度を評価することができる。較正定数 C.F.(Calibration Factor) を次のように表す。

$$\text{C.F. (Calibration Factor)} [\text{cpd}/(\text{Bq}/\text{m}^3)] = \frac{\text{Rn rate} [\text{count}/\text{hour}]}{\text{Rn Concentration} [\text{Bq}/\text{m}^3]}$$

Bq : 1 decay/sec

実験装置の配置は図に示すものである。

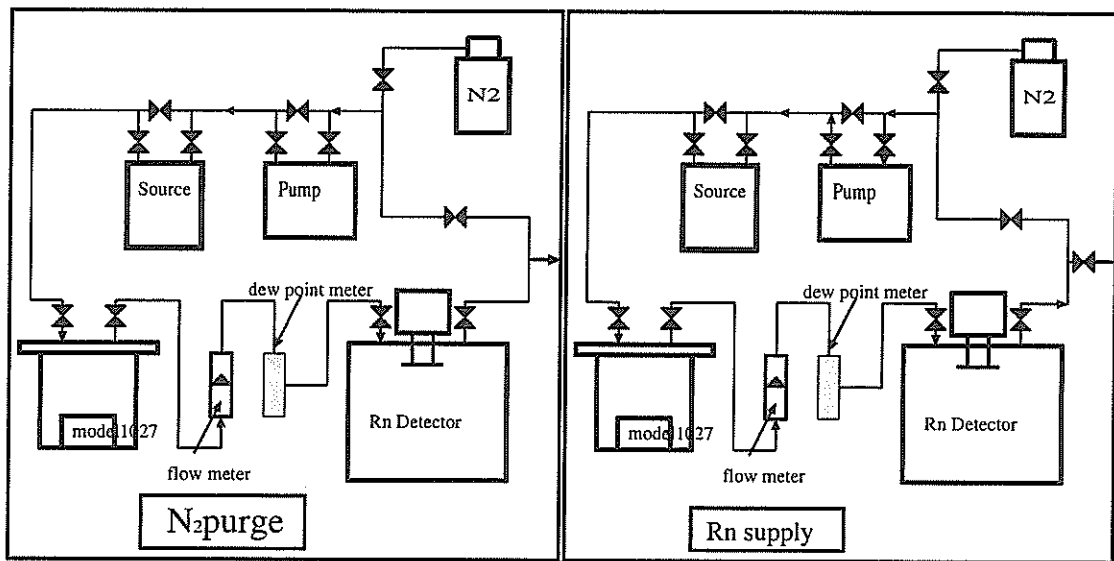


図 5.25: Rn 濃度絶対値較正のためのシステム。Model1027 と Rn 検出器によりリアルタイムで検出器の絶対値の較正が可能。また静電捕集法の検出効率は湿度に大きく依存することが知られているために露点計 (Cermet Hygrometer(MICHELL Instruments 社製) を配置した。

較正にはすでにラドン濃度の絶対値が較正されている市販のラドンモニター Model1027(Sun nuclear 社製) を使う。Model1027 は $37\text{Bq}/\text{m}^3 \sim 37\text{kBq}/\text{m}^3$ まで感度を持っていて、その範囲で我々の検出器を較正可能である。

実験手順

実験の手順は、

1. 窒素で系内をにパージする。

2. ポンプ (NEUBERGER type N86KN.18) でソースから検出器に 1l/min の流量でラドンを供給する
3. 較正の際には途中でラドンソースからの供給を止め、系内に残っているラドンの崩壊を見続ける
4. 湿度は露点計でモニターされる。

結果と考察

ラドンの供給を止めた後のラドン濃度 (この実験を含めこれより後の実験には ^{214}Po のエネルギー領域の α 線のカウント数を用いる) の時間推移を図 5.26 に示す。データ点を exponential で fit することにより求められた係数から半減期は 3.37 日で確かに Rn の崩壊 (半減期 3.82 日) を見ていることがわかる。高濃度のラドン濃度から低濃度のラドン濃度に移るときにその減り方が早いのは洩れなどの原因が考えられる。

この原因としては検出器内のラドンが Leak によって外に逃げ出したことなどが考えられる。

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t) - LN(t)$$

L は Leak rate, $N(t)$ は t 日後に検出器で観測されるラドンの濃度である。

$$N(t) = \exp((-0.182 + L)t)$$

このように洩れを考慮すると、実験スタート時のラドン検出器でのカウント数を 240000count/day とすると、1 日後のラドン濃度は半減期を 3.37 日とすると、190650count/day、3.82 日とすると 196494count/day これにより、5844count/day 分 (2.4%) が Leak によって減っていると考えられる。

また Model1027 は仕様の通り $37\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下のラドン濃度に対して感度がない (値が $37\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下になっていると考えられる時刻ではデータ点がラドンの崩壊曲線から大きくずれている) のに対して、我々の開発したラドン検出器は $37\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下のラドン濃度に対して感度があるが、あると考えられる。($37\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下のラドン濃度に対してもデータ点が引続きラドンの崩壊曲線に乗っている)

以上のデータを用いることによりよりわれわれの開発したラドン検出器を較正する。較正定数の決定には同じ時刻においてのラドン検出器でのカウント数 (10 時間の積分値) と Model1027 で測定されたラドン濃度を用いる。ここでは Model1027 のラドン濃度の測定値が $37\text{Bq}/\text{m}^3$ 以上を示す時刻の値を用いる。それらを横軸ラドン検出器でのカウント数、縦軸 Model1027 で測定されたラドン濃度としてプロットし一関数でフィットする。フィットにより求められた傾きから、較正定数を決定する。結果を図 5.27 に示す。これにより較正定数: $\text{C.F} = 123 \pm 2[\text{count}/10\text{hours}/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ で較正される。ラドン検出器での検出数と Model1027 で測定された Rn 濃度の相関は線形的になっていて、

精度良く較正実験を行うことができたと考えられる。この後の実験には較正定数： $C.F = 123 \pm 2 [\text{count}/10\text{hours}/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ を用いてラドン濃度を評価することにする。

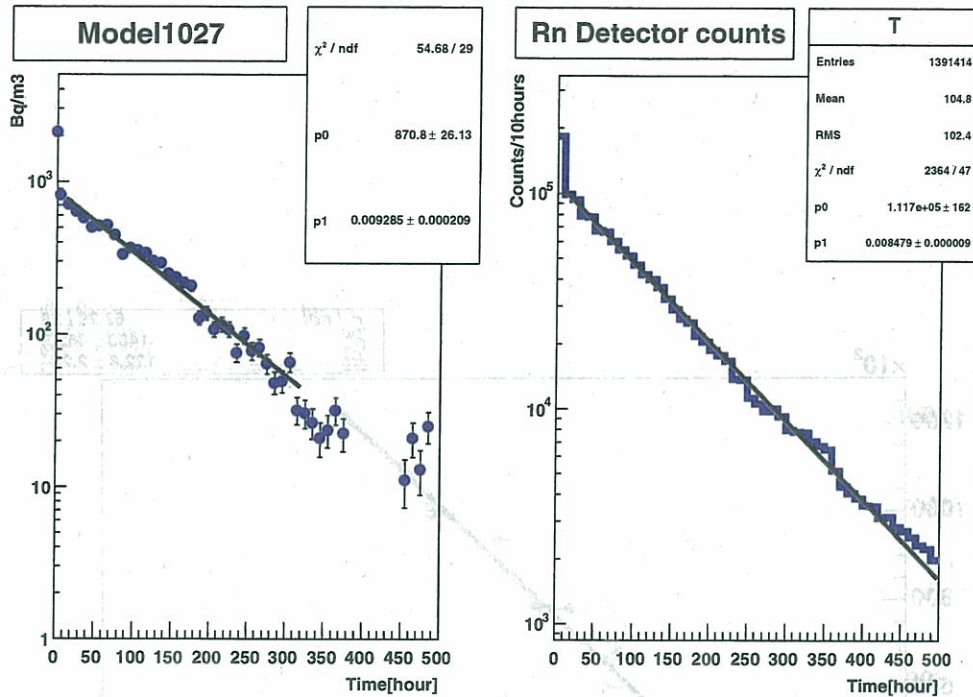


図 5.26: ラドン濃度の時間推移。ラドンの崩壊を見続けた。半減期は 3.37 日で確かに Rn の崩壊を見ていることが分かる。減りが早いのは洩れなどの原因が考えられる。Model1027 は $37\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下において崩壊曲線からデータ点がずれているが、われわれの検出器ではそれ以下のラドンの濃度に感度を持っていることがわかる。また測定の際に湿度は露点で ~ -40 度で一定していた。

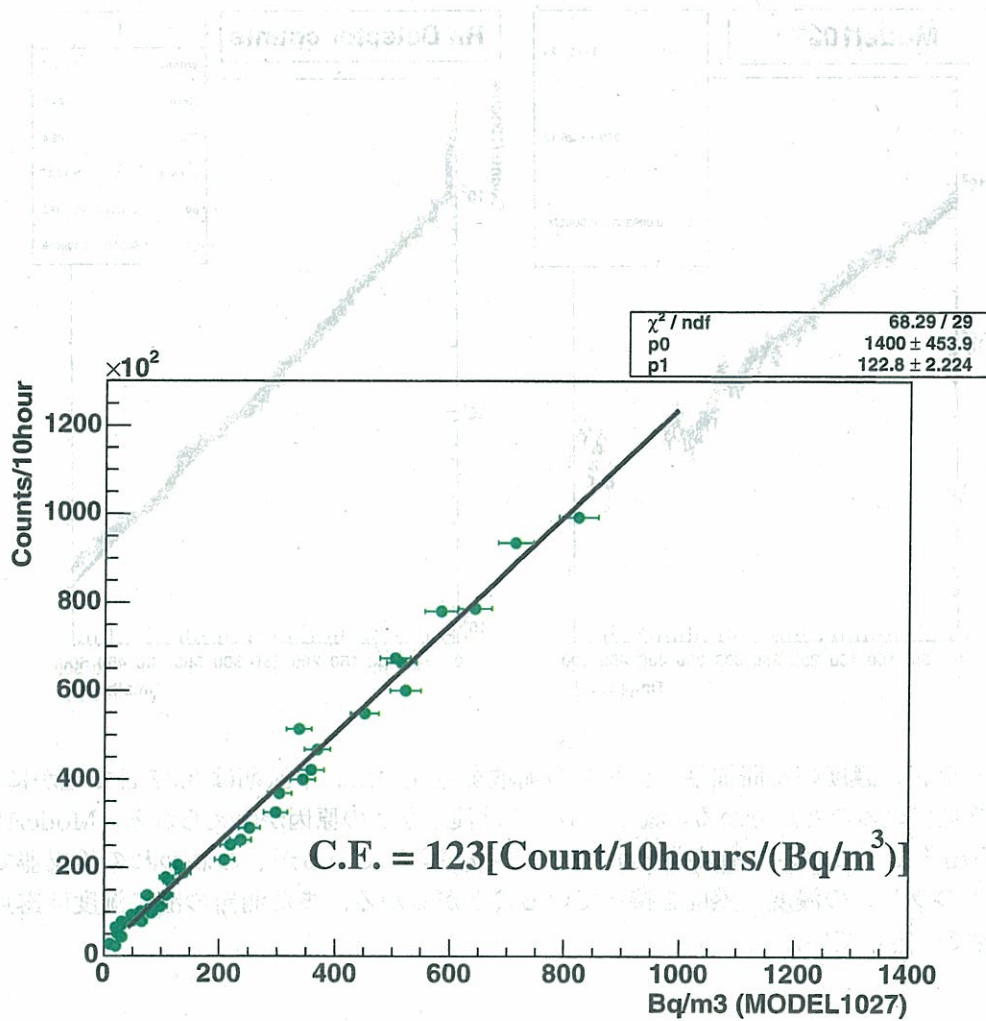


図 5.27: ラドン検出器の Model1027 を用いたラドン濃度の絶対値較正。その較正曲線を示す、お互いのカウント数が比例関係にあることがわかる、この値をを使って Model1027 とラドン検出器のカウント数を比較することにより、ラドン検出器の絶対値較正をした。

5.5 Background Study

検出器の測定限界は、測定対象のラドン以外のバックグラウンドによって決まる。そのためバックグラウンドを削減することが必要になる。我々の実験においてバックグラウンドになるものとして次のようなものが考えられる。

1. 配管接続部および配管からの洩れ (空気中のラドンの混入)
2. 検出器内部および表面からのラドン放出 (emanation)
3. 窒素中 (or 窒素ポンベの壁から) のラドン

実験の手順

1については leak catcher を使って洩れを調べる。また2については検出器内を清掃することによりバックグラウンドの削減を行った。3については洩れのレベルと、emanation のレベルがともに非常に低いときに、バックグラウンドになると考えられる。窒素中のラドン濃度は現在のバックグラウンドレベルよりも十分に低い。

測定は系内に N_2 を 2L/min で送りながら行った。窒素は系の外に排出される。(ラドン検出器のラドン濃度絶対値較正の際の窒素で系内をパージするときと、全く同じ状態) 仮に洩れがないとすると、検出器内のラドン濃度は系の検出器の入口と出口についているバルブを締めれば、もともと検出器内に存在していたラドンと検出器内部および表面からのラドン放出によってのみ決まるはずであるが、実際は洩れがあったためにラドン濃度が徐々に増加してしまった。

そのために窒素でできるだけ、混入してきたラドンと検出器内部および表面から発生したラドンを取り除きながら、バックグラウンドの低減のための改善の効果をみた。

5.5.1 配管接続部および配管からの洩れの改善 1

まずはじめに leak catcher を用いて配管接続部を調べたところ、検出器上部の配管接続のために取り付け、めねじとステンレスタンクのはんだづけ部分から洩れが確認された。そこでその部分を塞ぐことにより改善を行った。その後測定を行った。測定は N_2 を 2l/min で供給しながら行った。また途中で窒素の供給をやめ、外に通じるバルブを締め、測定をした。そのときにカウント数の上昇が見られる。この測定の結果ラドンの濃度は 130mBq/m^3 となった。(ラドンの濃度には N_2 を流しレベルの安定した状態での値の平均値を使用した。またラドン濃度への変換には較正定数 $12.3[(\text{count}/\text{hour})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ を用いた。)

結果が次の図 5.5.1 に示す。

途中で窒素の供給を止めたところラドン濃度が大きく上昇した。これにより N_2 中のバックグラウンドに比べて、Leak によるもの emanation によるもののバックグラウンドのほうが大きいことがわかる。

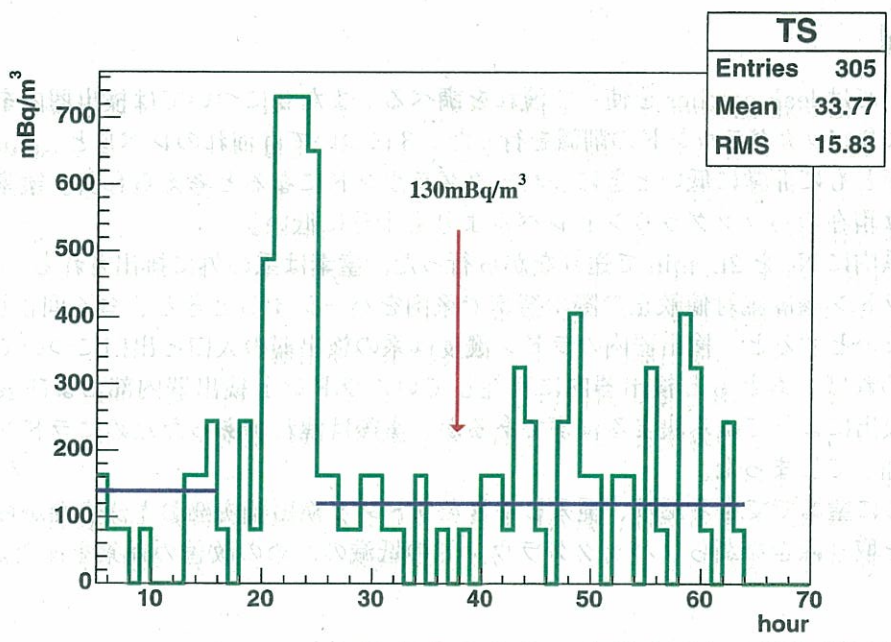


図 5.28: 検出器上部洩れ修復後のラドン濃度のデータ。N₂ を 2l/min で供給しながら測定を続けた。途中窒素の供給をやめ、外に通じるバルブを締め、測定をした。そのときにカウント数の上昇が見られる。またラドンの濃度には N₂ を流しレベルの安定した状態での値の平均値を使用した。

5.5.2 配管接続部および配管からの洩れの改善2

次にもう一度 Leak catcher を用いて念入りに洩れの箇所を調べたところ、わずかであるがポンプの接続部から洩れが確認された。そのためその部分を修復し、再度 Leak catcher で洩れがないことを確認し、測定を行った。その結果を次の図 5.5.2 に示す。測定は N_2 を $2l/min$ で供給しながら行った。ラドン濃度は $87mBq/m^3$ に達した。ここでも較正定数は $12.3[(count/hour)/(Bq/m^3)]$ を用いた。

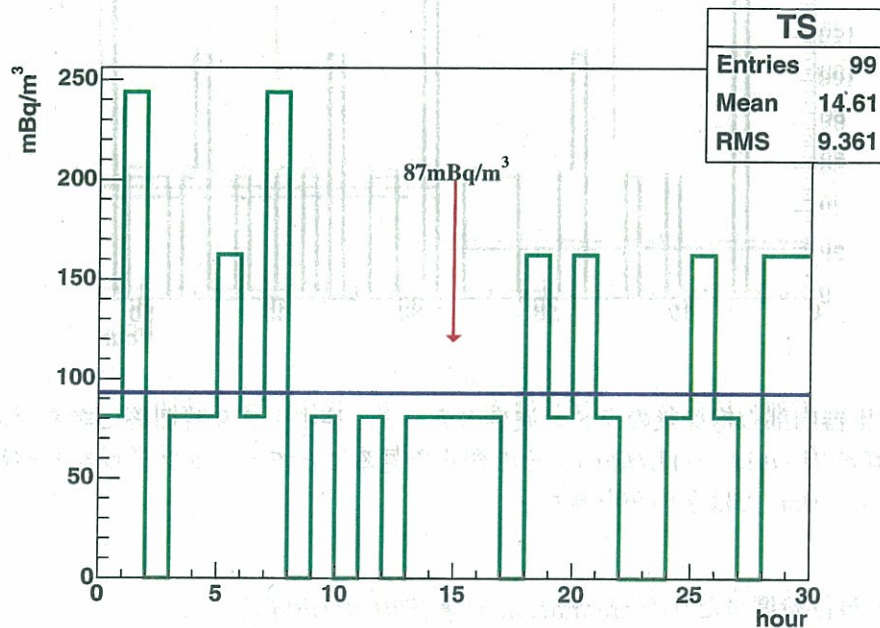


図 5.29: ポンプ上部の洩れ修復後のラドン濃度。測定は N_2 を $2l/min$ で供給しながら行った

5.5.3 検出器内部および表面からのラドン放出の改善

さらに2つ目の問題として考えられる検出器内部からのラドン放出による影響を減らすために、検出器内部を清掃し、その後測定を行った。測定は実験スタート時から29時間までは N_2 を流量 $2L/min$ で供給し、29時間後からは N_2 を流量 $1L/min$ で供給した。その結果を次の図 5.30 に示す。ラドン濃度は $23mBq/m^3$ まで低減することができた。

また途中で N_2 の流量を $2l/min$ から $1l/min$ に変えることにより、emanation によるバックグラウンドについて調べた。

それについて次に説明する。流量を変化させることにより emanation によるバックグラウンドを調べると言った意味は、仮に主要なバックグラウンドが検出器内部からの emanation だとすると、(洩れによるラドンの濃度の増加は、emanation によるラドンの増加に比べ少ないとする) N_{em} を検出器内のラドン濃度 $[Bq/m^3]$ 、 Q を流量 $[l/min]$ 、 V を系全体の体

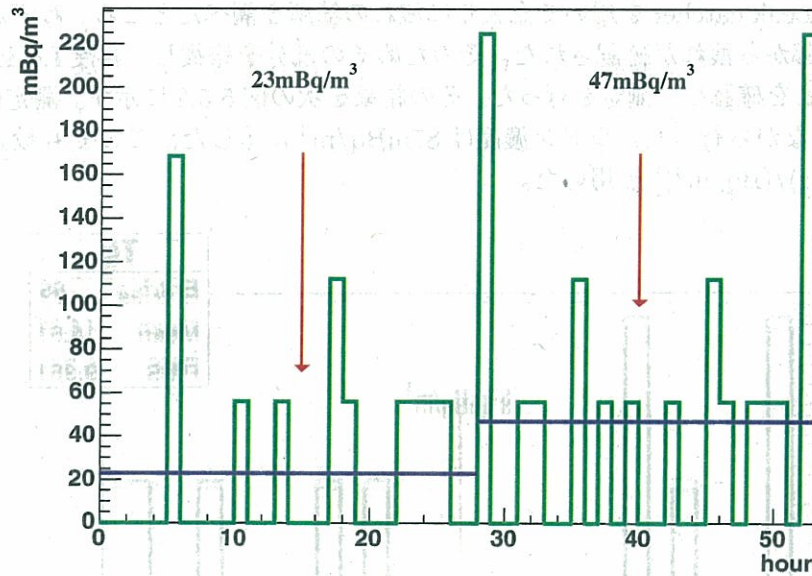


図 5.30: 検出器内部の掃除後のラドン濃度のデータ。途中～29時間後に窒素の流量を変え (N_2 の流量 $2L/min \rightarrow 1L/min$)、その変化を見ることでバックグラウンドが検出器からの Rn emanation ではないかを見た。

積 $[\Gamma_{em}]$ を単位時間当たりの emanation の量 $[Bq/m^3/min]$ として、

$$\frac{dN_{em}}{dt} = -\frac{N_{em}}{V}Q + \Gamma_{em}$$

今これが平衡状態にあるとすると。

$$\frac{dN_{em}}{dt} = 0$$

$$-\frac{N_{em}}{V}Q + \Gamma_{em} = 0$$

$$N_{em} = \frac{\Gamma_{em}}{Q}$$

従って emanation によるラドン濃度の増加は流量に反比例するのである。

結果は流量を $2l/min$ から $1l/min$ に変えることによりラドン濃度は $23mBq/m^3$ から $47mBq/m^3$ に上昇していた。このことから主要なバックグラウンドは emanation であると推察できる。

(これらのラドン濃度の算出には次に示すラドン検出器のラドン濃度較正実験で求められる較正定数 $17.9[(count/hour)/(Bq/m^3)]$ を用いた。これは洩れの修復により較正定数がより大きくなっていると考えられ、実際にそれを測定したところ較正定数の改善が見られたのでこの値を用いた)

結果をまとめると次の図のようになる。

| 改善方法 | N ₂ の流量 [l/min] | 到達ラドンレベル (mBq/m ³) |
|-------------|----------------------------|--------------------------------|
| 検出器上部の洩れ修復後 | 2 | 130 |
| ポンプの洩れ修復後 | 2 | 87 |
| 検出器の掃除後 | 2 | 23 |
| 検出器の掃除後 | 1 | 47 |

検出器の測定限界は、測定対象のラドン以外のバックグラウンドによって決まるのでそのバックグラウンドになるラドンを可能な限り低減することが、必要になる。次のステップとしては配管からの洩れについて現在はテフロンチューブを配管に用いていたが、テフロンチューブからは微量のラドンがどうしても洩れるということが後に調べた結果わかった。そのためテフロンチューブを SUS に変えて、Leak をさらに減らすことは必要不可欠である。また主要なバックグラウンドと推察される emanation については、電解研磨を施した検出器、および配管またはその接続部をラドンの emanation の少ない素材に変えるなどさらに emanation を抑える工夫が必要になる。

また洩れを直したことにより較正定数を再測定する必要がある。較正の手順および較正の方法は先のラドン検出器のラドン濃度の絶対値較正の際と同じである。ただし今回較正定数を求める際にラドン検出器のカウント数には1時間あたりの積分値を用いた。その結果を次の図 5.31 に示す。

fit の係数から較正定数

$$12.3[(\text{count}/\text{hour})/(\text{Bq}/\text{m}^3)] \rightarrow 17.9[(\text{count}/\text{hour})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$$

となりラドン検出の感度が増加に成功した。

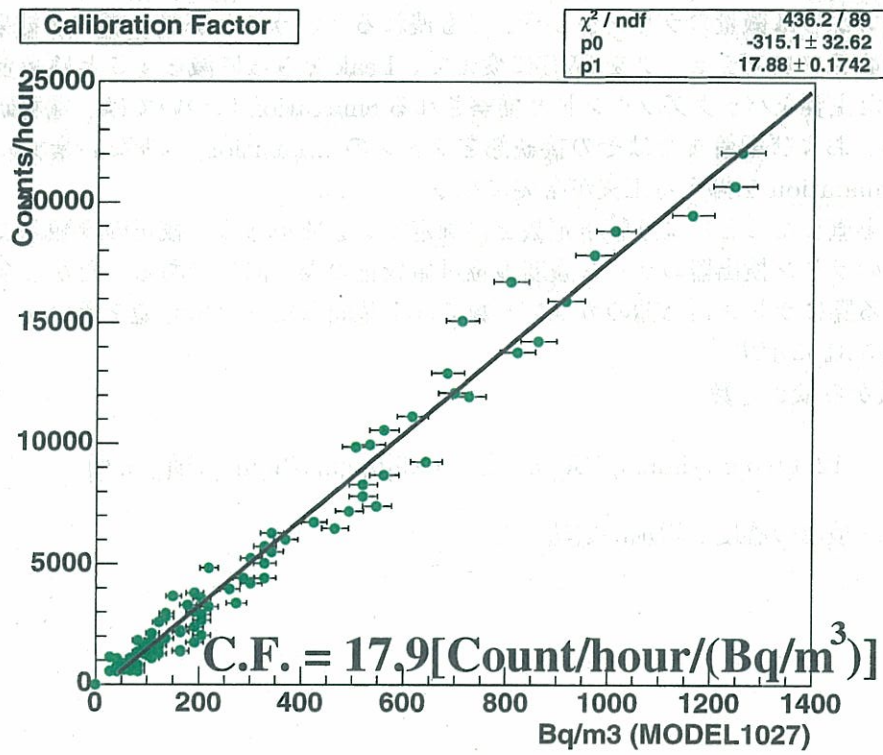


図 5.31: 検出器上部の洩れを改善し leak catcher で洩れが見られないことを確認した後の絶対値較正。前に比べ Model1027 に対して対応するラドン検出器の値が高くなっていることが分かる。

5.6 LS 中のラドン濃度の測定

先に述べたように KamLAND で ${}^7\text{Be}$ を観測するためには ${}^{210}\text{Pb}$ の濃度が $1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ であることが必要である。そのためには少なくともその親核である ${}^{222}\text{Rn}$ が $1\text{mBq}/\text{m}^3$ であることが要求される。そのため LS 中のラドン濃度に対して $1\text{mBq}/\text{m}^3$ の感度を持つ検出器の開発が必要になる。

LS から Rn を取り出す方法として、我々は中空糸膜を用いる方法と、バブリングによる方法を考えた。そこで今回は中空糸膜を用いる方法について実験をおこなった。

5.6.1 中空糸膜を用いたラドンの気体中への抽出。

この方法の利点は中空糸膜により LS の系と空気の系を分離することができるので、LS による検出器内部の腐食を防ぐことができることである。また抽出されたラドンを濃縮することにより、さらに低いラドン濃度を測定可能である。

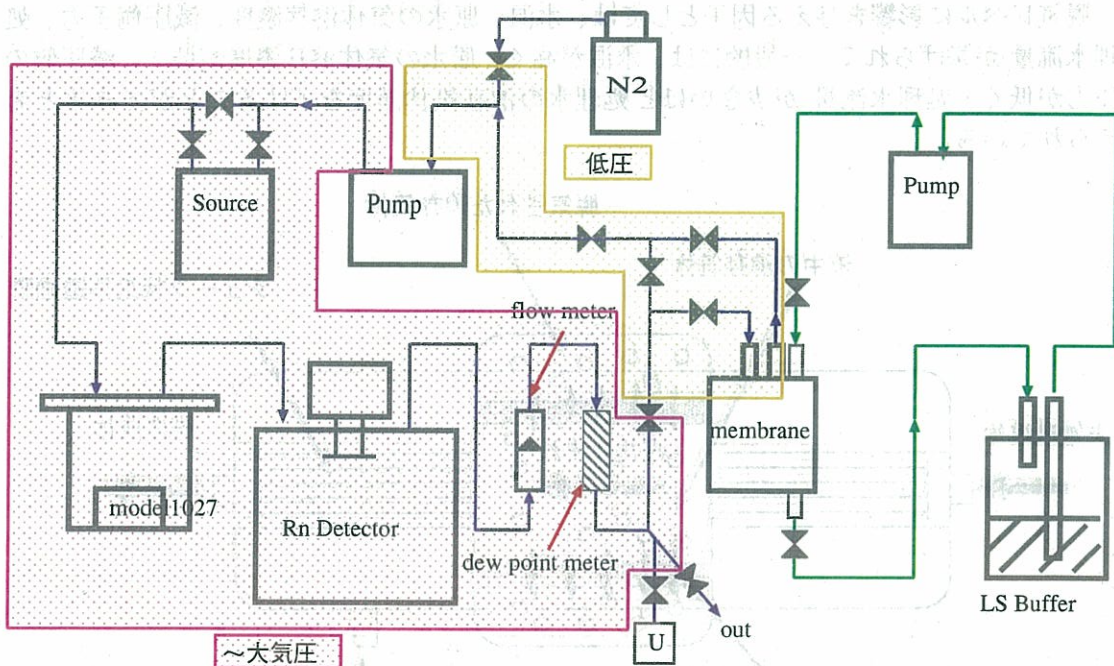


図 5.32: LS から抽出した Rn をラドン検出器で測定するための系。中空糸膜と LS の経路の配置を追加した。青のラインは空気の流れ、緑のラインは LS の流れを示している。また系内の空気の相での圧力は途中にあるニードルバルブによって変化させてある。これは中空糸膜の液体相から気体の相に移るラドンの量をできるだけ高くするための操作である。

5.6.2 中空糸膜について

中空糸膜はマカロニのように中が空洞になった糸である。今回使用した中空糸膜は大日本インキ (株) 製で材質は気体透過性の良い PTFE 製である。

| | Membrane area (m ²) | Module size (mm) | Internal volume (ml) | Weight (kg) |
|--------|---------------------------------|------------------|----------------------|-------------|
| PF-03F | 0.3 | φ 102 × 180mm | 70 | 1.1 |

表 5.2: 実験に使用した中空糸膜モジュールの仕様

形状は膜自体は外径 215 μm で、膜断面は内側には 0.03 μm 程度の細孔が多数存在するが、外表面には存在しないという構造的な特徴を持っている。そのため液は長期間使用しても真空側に浸透しない。実験にはこの中空糸膜を用いたモジュールを使用する。中空糸膜は多数本結束して膜面積が大きくなっていて脱気効率がよくなる工夫がしてある。

中空糸膜を使った脱気方法を次の図 5.33 に示す。実際は液側と気体側の Input-Output には通り道が用意してあり、液側に液体シンチレーターを通し、膜脱気によって気体側に抽出された Rn を Rn 検出器で検出する。膜脱気はチューブ状の中空糸膜の外側を真空にひくことにより、チューブ内外の分圧差によりチューブ内を流れる液体から溶解している気体を取り出す方法である。

脱気レベルに影響を与える因子としては、水温、原水の気体溶存濃度、減圧側圧力、処理水流量が挙げられる。一般的には、水温が高く、原水の気体溶存濃度が低く、減圧側の圧力が低く、処理水流量が少ないほど処理水の溶存気体濃度を下げることができると考えられている。

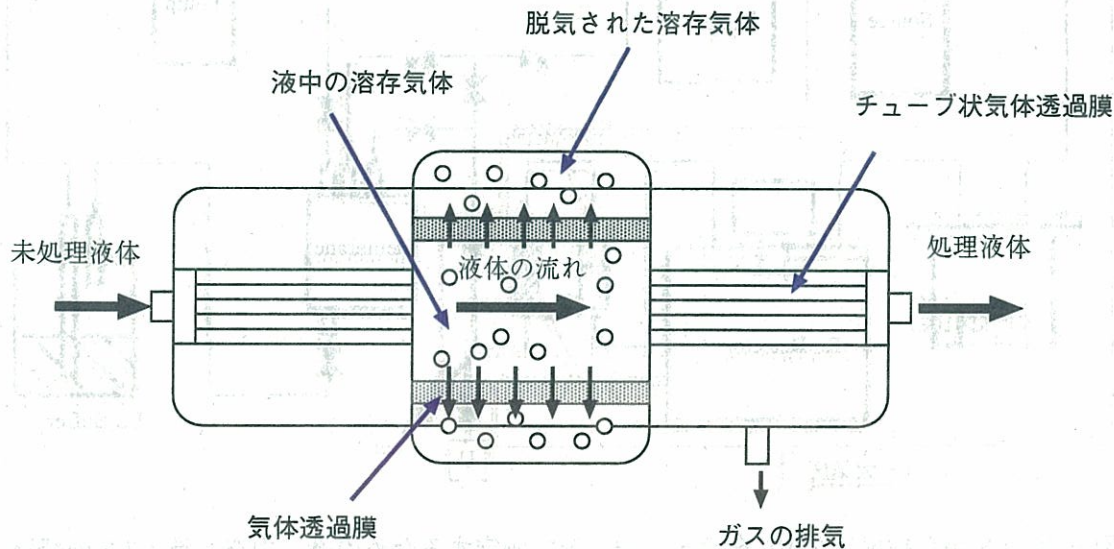


図 5.33: 実験に用いた中空糸膜の膜脱気の原理

5.6.3 中空糸膜を用いたミネラルオイル (MO) からの Rn の抽出-高濃度 Rn 濃度の MO からの抽出

われわれのラドン検出器で LS 中のラドン濃度を測定するためには、まず液体シンチレーター中からラドンを空気中に取り出す必要がある。そしてその抽出できるラドンの濃度

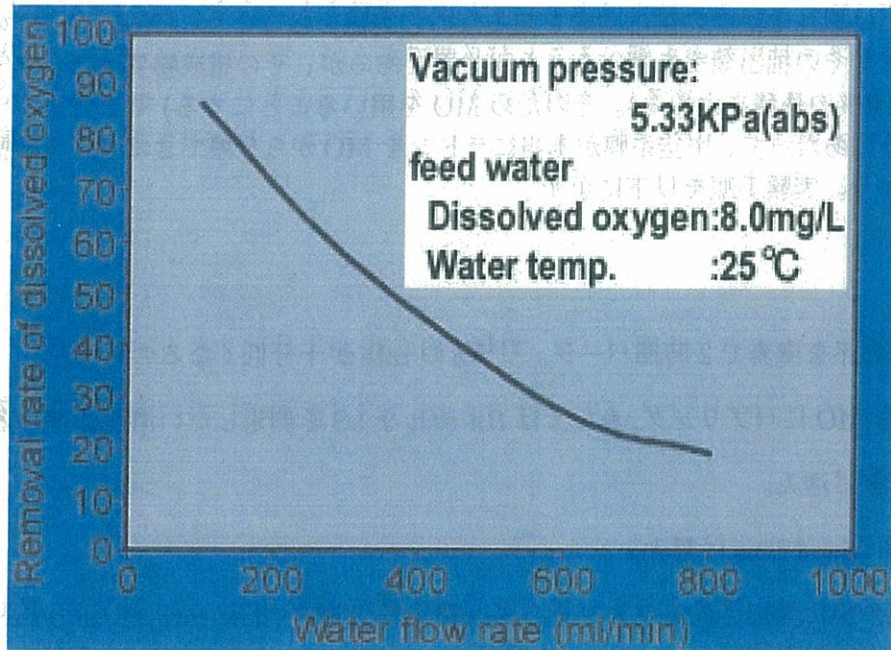


図 5.34: 実験に用いた中空糸膜の脱気性能

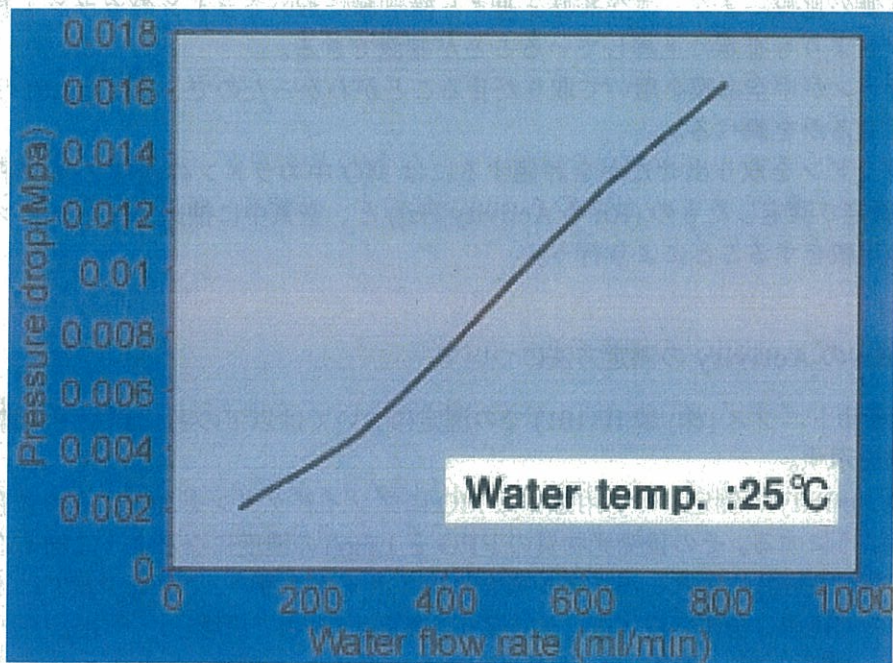


図 5.35: 実験に用いた中空糸膜の圧力損失

(抽出効率)を把握しなければならない。そこで Rn を含むミネラルオイル (MO) からラドンがどれだけ取れるかその抽出効率を知るための実験をおこなう。(KamLAND の液体シンチレータでその抽出効率を調べることが必要であるが、その構成物質はほとんどが MO である (80%の体積を占める)。そのため MO を用いることにする) そこでまずこの実験をおこなうにあたって、中空糸膜が本当にラドンを MO から分離できるのかを確認する実験をおこなう。実験手順を以下に示す

実験手順

1. 空気の系を窒素で 2 時間パージ。 ^{214}Po の rate が十分低くなるのを確認)
2. Rn を MO にバブリング, もしくは Rn rich な LS を測定したい濃度に薄める。
3. MO をに注入。
4. LS を Membrane に封入。
5. 空気の相に抽出されるラドンをラドン検出器で測定 (flow rate 1L/min, Pressure ~ -60[torr] (relative))

結果

結果を以下に示す。ラドン検出器での結果を図 5.6.3、MODEL1027 での結果を 5.6.3 に示す。測定値の比較により、中空糸膜を通すと検出器においてラドンのカウント数がバックグラウンドよりも有意に上昇していることが確認できる。

実際にラドンが中空糸膜を用いて取りだせることがわかったので、次にどれだけのラドンが取りだせるかを調べる。

どれだけラドンを取り出せたかを評価するには MO 中のラドンの濃度を光電子増倍管 (PMT) で測定で測定したもの (Rn の Activity[Hz]) と、空気中に抽出されたラドンの濃度 [Bq/m³] の比較をすることにより行う。

MO 中の Rn の Activity の測定方法について

PMT(浜松ホトニクス (株) 製, H1161) での測定については以下の図 5.38 にその際の実験装置の概略を示す。

MO 中の Activity の測定には、用意した MO にプソイドクメンを加え、その体積比が 4 対 1 になるようにする。その後発光物質の PPO を 1.5g/l の濃度になるように加える。これをバイアル瓶 (150ml) に入れ、バイアル瓶をアルミホイルで覆い、これを PMT にオプティカルグリースで接着し全体を鉛ブロックで覆う。測定は LS 中で崩壊した ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po から生じた α 線および、崩壊した ^{214}Pb , ^{214}Bi から生じた β 線が LS 中でエネルギーを失いそのエネルギーが LS 中で光に変換されるのでそれを PMT で測定することで行う。また PMT からの信号は Discrimeneter に送られ、そこで Threshold (~150mV) を越えた信号を scalar でカウントされる。またこの信号の波形を見るときはこの信号を CAMAC に

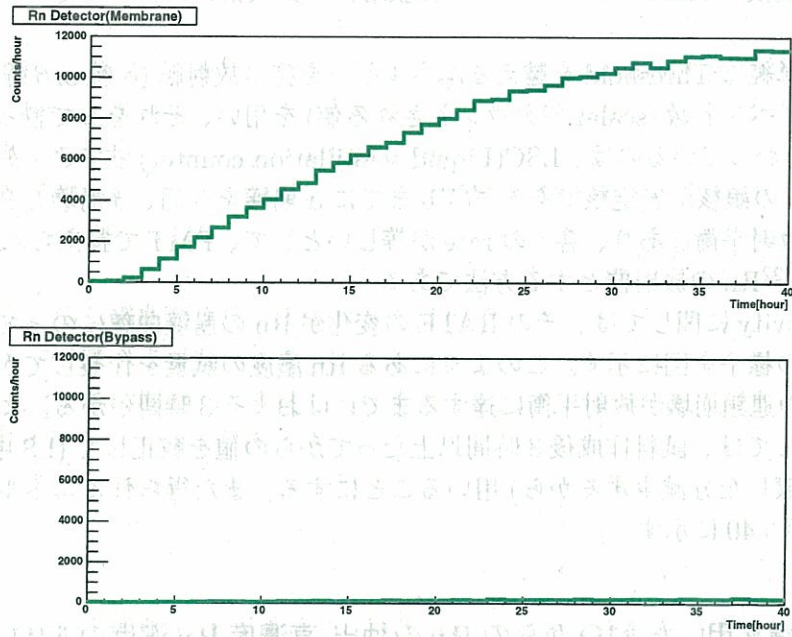


図 5.36: Rn 検出器での Membrane を通した結果と中空糸膜をバイパスした場合のラドン濃度上昇の比較。上が中空糸膜を通過した結果で、下がバイパスした場合の結果である。

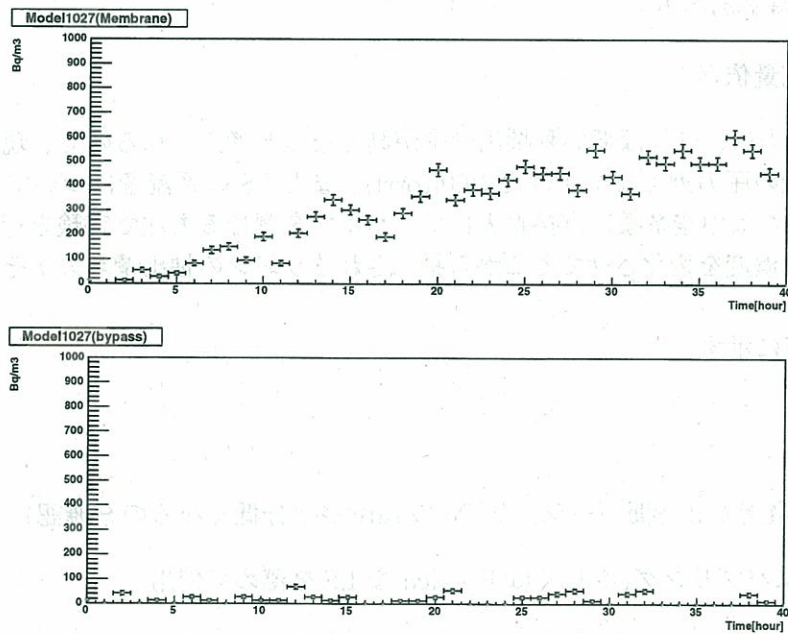


図 5.37: MODEL1027での中空糸膜を通した結果と中空糸膜をバイパスした場合のラドン濃度上昇の比較。上が中空糸膜を通過した結果で、下がバイパスした場合の結果である。

送りそこで AD 変換し kinoko(高エネルギー実験用データ収集システムでそのデータ収集を行った)。

測定結果には単純に Threshold を越えるエネルギーを持つ放射線 (α 線 or β 線) が PMT で捕えられる全イベント数 (scalar でカウントされる値) を使い、それを 5 で割ったものを使う。ここで 5 でわっているのは、LSC(Liquid scintillation counter) 法でよく知られている方法で、 ^{222}Rn の娘核が安定核である ^{210}Pb までに α 崩壊を 3 回、 β 崩壊を 2 回するのだが、それらが放射平衡にあり、各々の rate が等しいとして、PMT で捕えられる rate を 5 でわることで ^{222}Rn の放射能とする方法である。

また LS の Activity に関しては、その RATE の変化が Rn の崩壊曲線にのっていることを確かめた。その様子を図に示す。このようにある Rn 濃度の試量を作製してから、その試料中のラドンの連鎖崩壊が放射平衡に達するまでにはおよそ 3 時間かかる。よって、LS の Activity に関しては、試料作成後 3 時間以上たつてからの値を較正して (LS 中の Rn 濃度は ^{222}Rn の崩壊した分減少するから) 用いることにする。また得られるエネルギースペクトルの例を (図 5.40 に示す。)

5.6.4 中空糸膜を用いた MO からの Rn の抽出-高濃度 Rn 濃度の MO からの抽出効率 1

実験を行うにあたって主に関係すると思われるパラメーターは

1. MO 中の Rn 濃度依存
2. 中空糸膜の気相の圧力
3. LS の系の流量依存

である。気相の圧力は低ければ低い程抽出効率が高くなると考えられるので、現在の装置で実現できる最低の圧力近くまで下げた (~ 60 torr)。また LS の系流量についてもできるだけ低い流量、または中空糸膜に直接封入して、バルブを閉じる方法で実験を行う。実験は MO 中のラドン濃度を変化させてそこから抽出されるラドンの抽出量およびその濃度依存を調べる。

実験手順を以下に示す

実験手法

1. 空気の系を窒素で 2 時間パージ。 ^{214}Po の rate が十分低くなるのを確認)
2. Rn を MO にバブリング、もしくは Rn rich な LS を薄めて使用
3. MO 中の Rn の activity を (PPO(1.5g/l) と PC(20%) を MO(%) に加えて)PMT で測定。(MO 中の Rn の Activity)
4. PMT での測定後、MO を LS 循環系に注入。
5. LS を循環 (100ml/min)

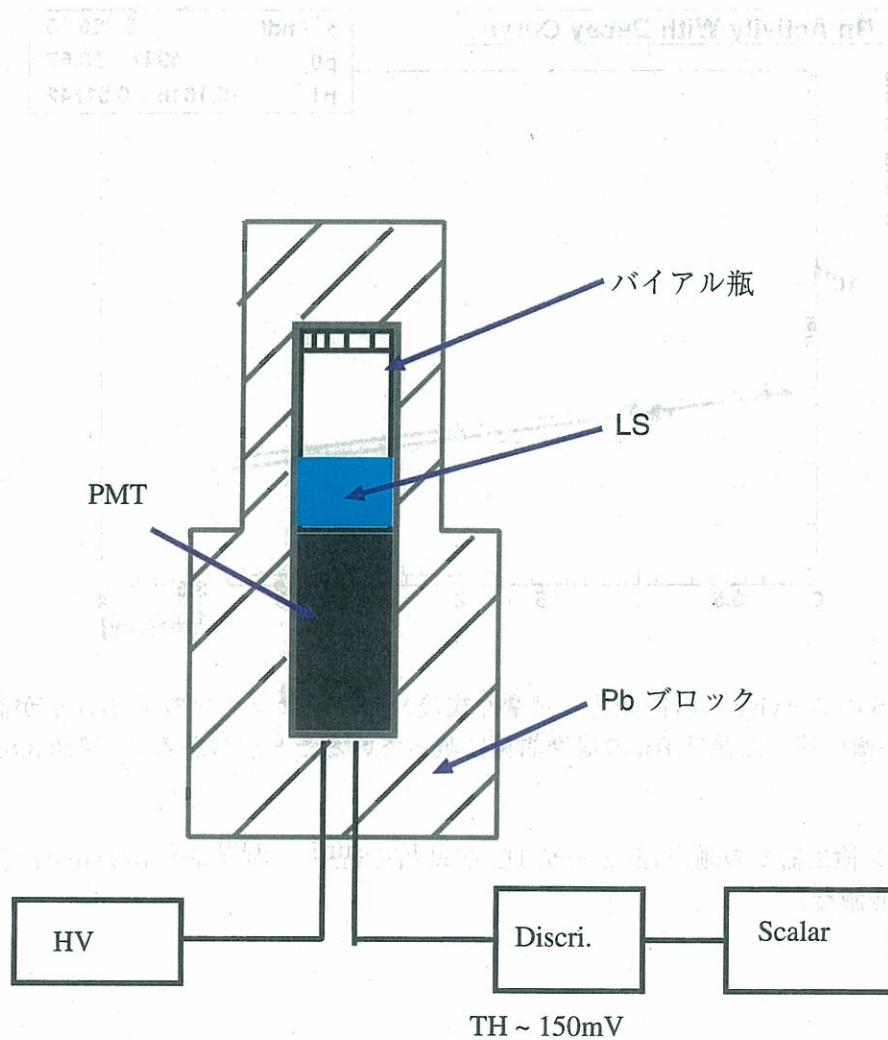


図 5.38: Rn の Activity を測定するための実験装置の Set-Up。作成されたラドン入りの LS を 150ml の容量のバイアル瓶に入れ、バイアル瓶をアルミホイルで覆う。それを PMT の上にオプティカルグリースで接着する。光のノイズが入らないように PMT とバイアル瓶は鉛ブロックで覆われている。LS 中で崩壊した ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po から生じた α 線および、崩壊した ^{214}Pb , ^{214}Bi から生じた β 線は LS 中でエネルギーを失いそのエネルギーが LS 中でシンチレーション光に変換され、それを PMT で測定する。PMT からの信号は Discriminator に送られ、そこで Threshold ($\sim 150\text{mV}$) を越えた信号を scalar でカウントする。またこの信号の波形を見るときはこの信号を CAMAC に送りそこで AD 変換し kinoko (高エネルギー実験用データ収集システムでそのデータ収集を行った)。

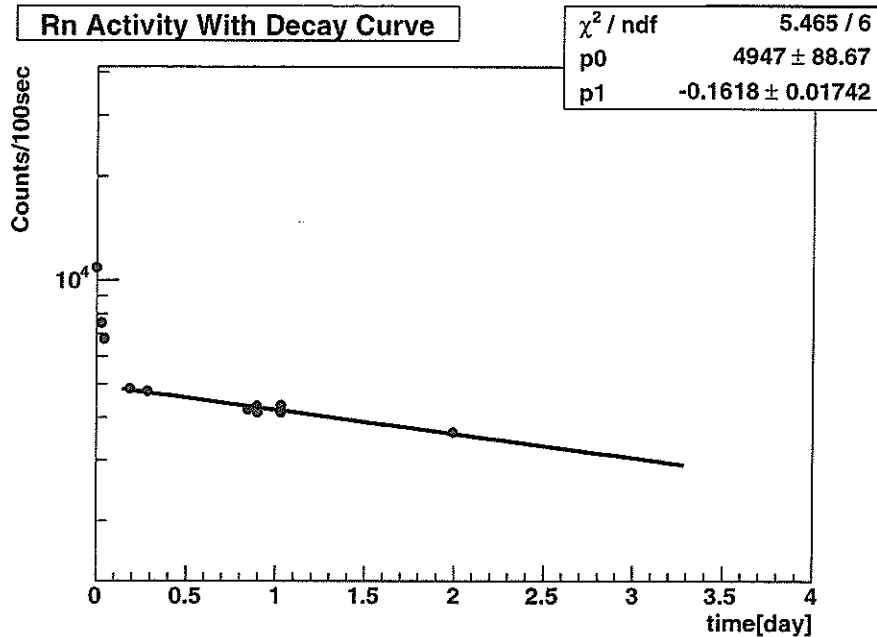


図 5.39: LS の Activity の時間変化。試量作成後、はじめはラドンの Activity が高く、その後放射平衡に達した後は Rn の崩壊曲線に載っていることがわかる (半減期 3.82 日)

- 6. ラドン検出器での測定 (flow rate 1L/min, Pressure ~ -60[torr] (relative)) (抽出された Rn 濃度)

結果

実験をおこなった際の条件、および得られた Rn の Activity[Hz]、ラドン検出器でのラドン濃度 (最大値になった時刻)[Bq/m³] をまとめたのが次の表 5.3 になる。またラドンの気体の相でのラドン濃度の上昇カーブを次の図 5.41 に示す。

| Rn の Activity[Hz] | ラドン検出器でのラドン濃度 [Bq/m ³] | Pressure[torr] | flow rate LS |
|-------------------|------------------------------------|----------------|--------------|
| 162 | 152(@28hour) | < 60 | 100 |
| 61 | 46(@17hour) | < 60 | 100 |
| 34 | 38(@22hour) | < 60 | 100 |

表 5.3: 様々なラドン濃度の MO からの Rn の抽出効率 1

Rn の Activity[Hz]、ラドン検出器でのラドン濃度 (最大値)[Bq/m³] を次のように求める。

$$\begin{aligned}
 \text{Rn の Activity[Hz]} &= \frac{\text{scalar での count rate}}{5} \times \exp(-\lambda t) \\
 \text{ラドン検出器でのラドン濃度 [Bq/m}^3\text{]} &= \frac{\text{ラドン検出器でのカウント数 [counts/hour]}}{\text{構成定数 C.F. [(count/hour)/(Bq/m}^3\text{)]}}
 \end{aligned}$$

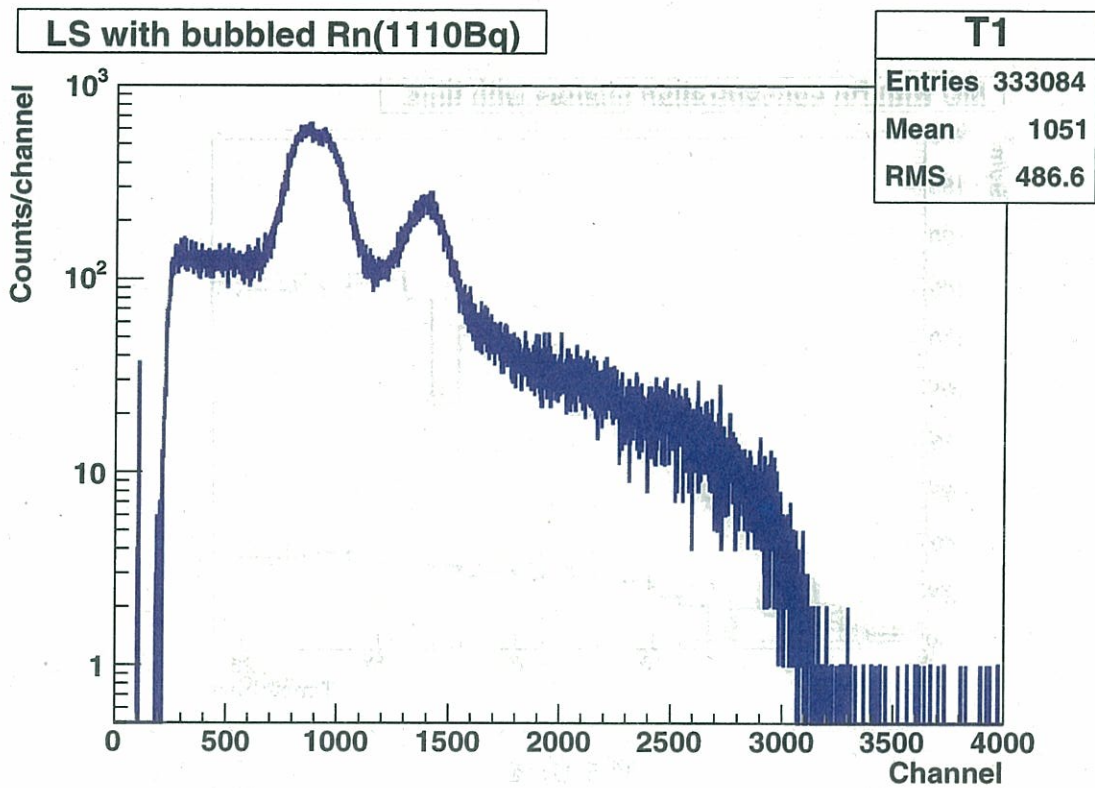


図 5.40: MO 中のラドンの Activity の PMT での測定の際のラドンのエネルギースペクトル。測定時間は 300 秒である。scalar の測定値は 592059 である。左側のピークは ^{222}Rn , ^{218}Rn の α 線のエネルギーピークの重ね合わせであり、右側のピークは ^{214}Rn の α 線のエネルギーピークである。

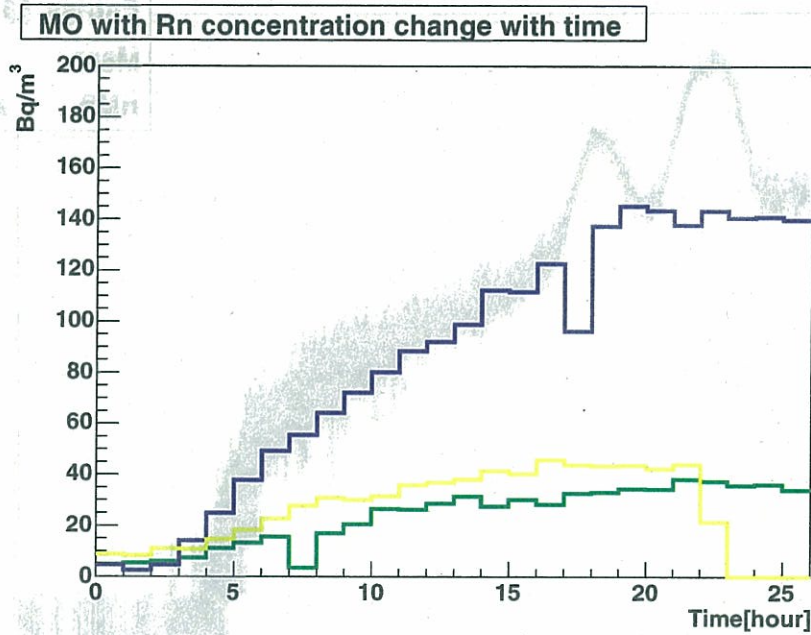


図 5.41: を

変えたときの中空糸膜により気体中に抽出された Rn の濃度 [Bq/m³] の変化]MO 中の Rn の Activity[Hz] を変えたときの中空糸膜により気体中に抽出された Rn の濃度 [Bq/m³] の変化。較正から求められたの抽出された Rn の濃度 [Bq/m³] が最大値での時刻の Rn の Activity は 168[Hz],304[Hz] と 808[Hz] である。

ここで時刻 t は PMT での MO 中の Rn の Activity [Hz] を測定した時刻から、抽出されたラドンの濃度が最大値を取った時刻までの時間である。またラドン検出器の較正定数 C.F. には $17.8[(\text{count}/\text{hour})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ を用いる。測定結果を横軸を較正された Rn の Activity [Hz]、縦軸をラドン検出器でのラドン濃度 (最大値) $[\text{Bq}/\text{m}^3]$ としてプロットした結果を次の図 5.42 に示す。

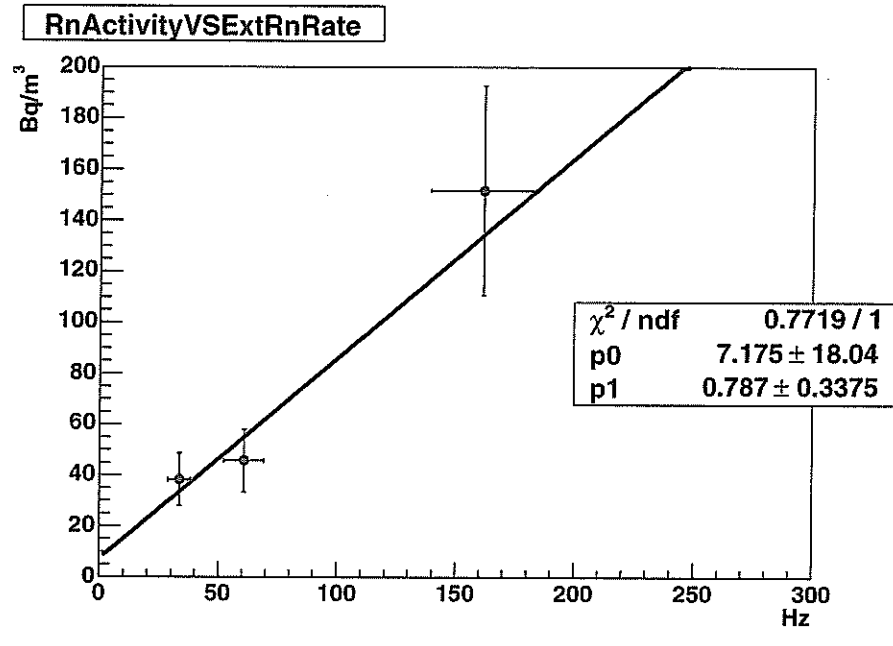


図 5.42: 横軸に PMT で測定した MO 中の Rn の Activity。縦軸に抽出された Rn の濃度の最大値をプロットした。MO 中の Rn の Activity は縦軸の抽出された Rn の濃度が最大を取ったときの時刻で較正されている。

ここで Fit から求められた傾きから、ラドンの抽出率を計算する。傾き $G[(\text{Bq}/\text{m}^3)/\text{Hz}]$ を抽出率に変換するには LS 中のラドンが気体の系に抽出されたときには、体積 95L においてその Rn の Activity があるはずであるから、抽出率を $E[\%]$ とすると、

$$E = G \times \frac{1}{\frac{1000}{95}} \times 100$$

である。よってこれにより抽出効率は 7.5% になる。

5.6.5 中空糸膜を用いた MO からの Rn の抽出-高濃度 Rn 濃度の MO からの抽出効率の測定 2

先に示したように、MO を循環させた場合は抽出効率が非常に悪い (<10%) と思われる。その原因は MO を循環している間に MO 中のラドン濃度が非常に高いためにテフロンチューブからラドンが逃げてしまうことを懸念した。

そこでMOを循環させない方法として、MOをMembraneに封入し、そこからラドンを取り出す実験を濃度を変えて行うことにした。

実験手法

MOを中空糸膜に封入する以外は前に実験と同じである。

結果

実験をおこなった際の条件、および得られたRnのActivity[Hz]、ラドン検出器でのラドン濃度(最大値になった時刻)[Bq/m³]をまとめたのが次の表5.4に示す。測定結果を横軸を校正されたRnのActivity[Hz]、縦軸をラドン検出器でのラドン濃度(最大値)[Bq/m³]としてプロットした結果を次の図に示す。

| RnのActivity[Hz] | ラドン検出器でのラドン濃度 [Bq/m ³] | Pressure[torr] |
|-----------------|------------------------------------|----------------|
| 145 | 108(@34hour) | < 10 |
| 72 | 81.41(@40hour) | < 10 |
| 439 | 143(@48hour) | < 10 |
| 27 | 38(@69hour) | < 10 |

表 5.4: 様々なラドン濃度のMOからのRnの抽出効率 2

次の図5.43に示す。

以上のように中空糸膜からRnは確かに抽出されているが、そのレベルはMO中のラドンのActivityが631Hzのデータを除いたfitから~34.6%程度になる(図5.45)。エラーには次の節で説明するエラーをつけた。またバックグラウンド測定をおこなった結果(ここでバックグラウンドとは精製されたMOを試料にしたことを意味する)気体の系でのラドン濃度は70時間程度経過した後に~26Bq/m³で一定値になった。バックグラウンドの原因を特定できていないために、これが常にこのような時間変化を示すなどの予測できない。そのためこのバックグラウンドを各々の測定値の誤差として考える。

また抽出効率が~34.6%になる理由は現在まだわからない。そのためこの問題のさらなる原因追求が課題になる。

またこの問題の原因については

1. 溶解平衡 (ostwald 係数) 温度、圧力に依存。
2. 中空糸膜中のドデカンの状態。
3. ラドンの配管、配管接続部等からの洩れ。

などが考えられる。

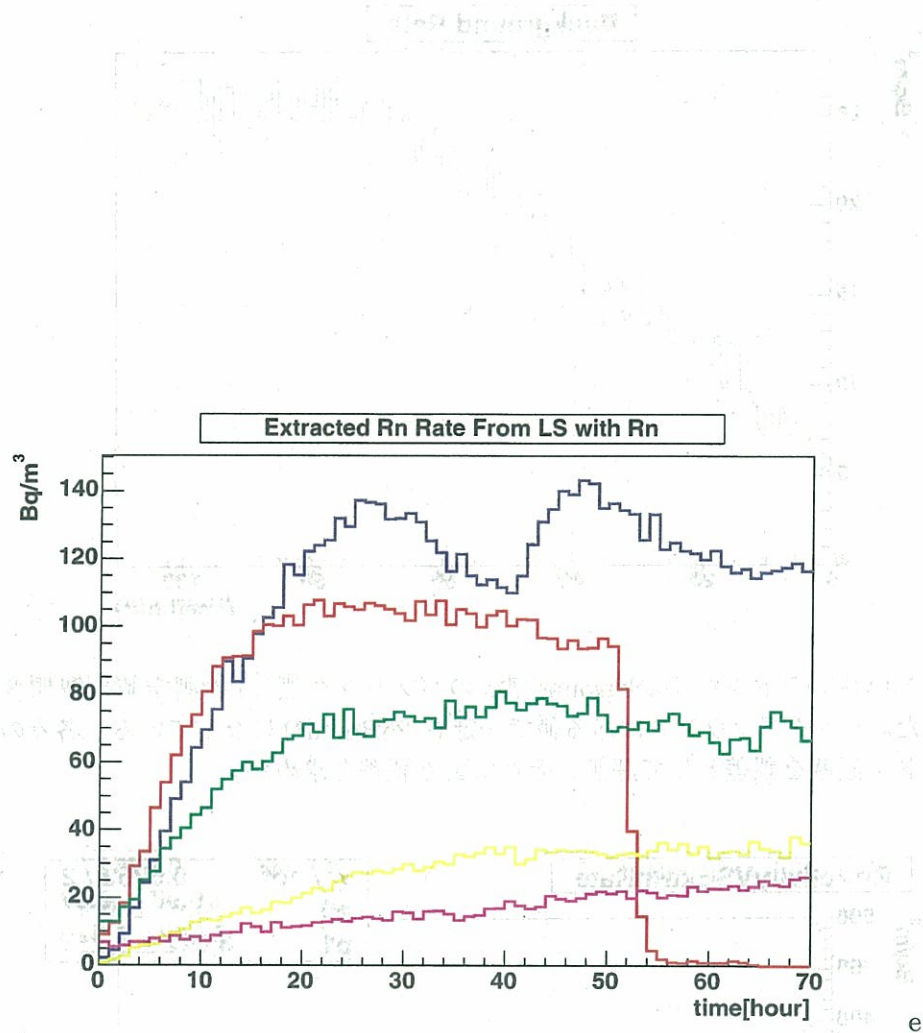


図 5.43: を
 変えたときの Membrane の抽出率の変化]MO 中の Activity[HZ] を変えたときの
 Membrane の抽出率の変化。MO 中の Rn の Activity は
 439HZ,145HZ,72HZ,27HZ,Background(Rn のバブリング無し)である。

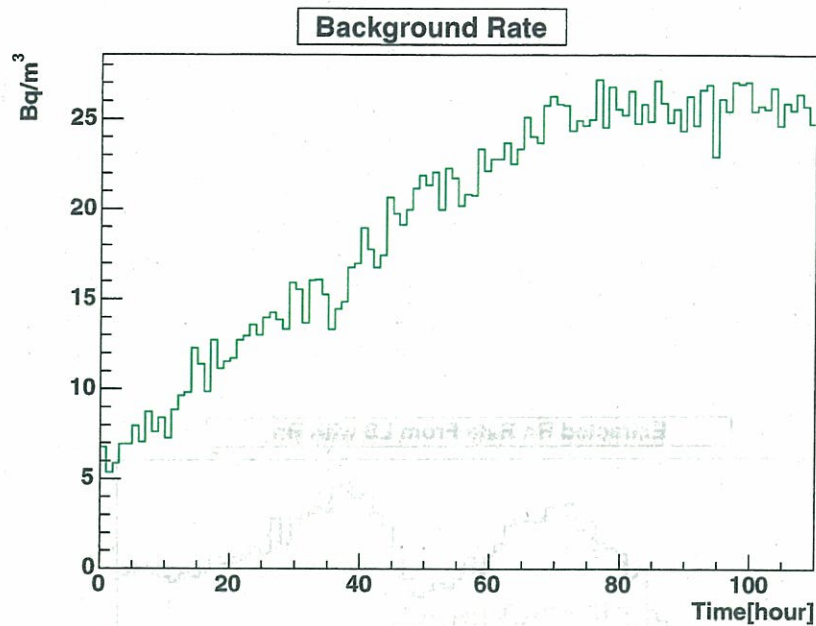


図 5.44: MO 中のラドンの Background(Rn のバブリング無し) の測定値の時間変動をプロットした。バックグラウンドはある値で一定 ($\sim 26\text{Bq/m}^3$) になっている。各々の測定値はこのラドン濃度を誤差として評価、それにより誤差を求めた。

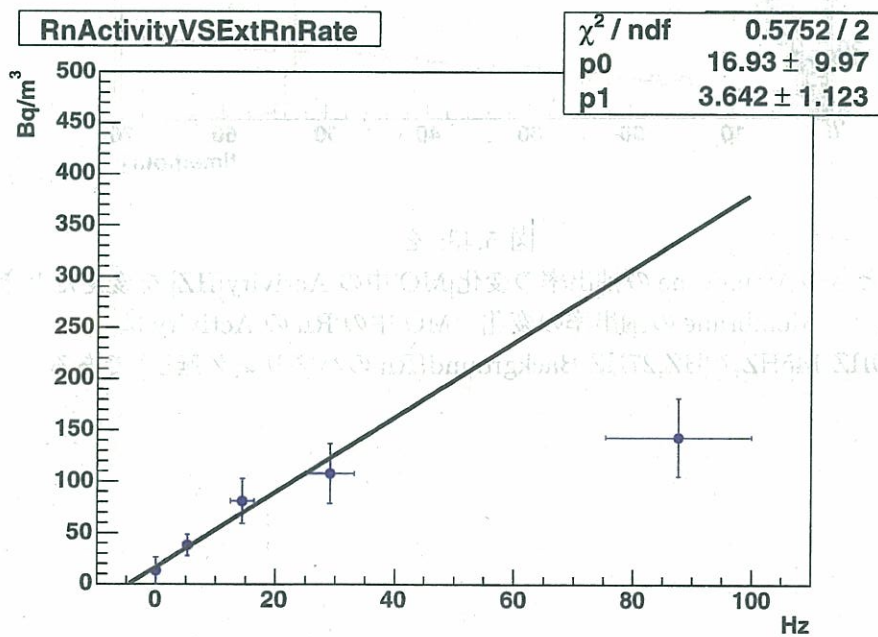


図 5.45: 横軸に PMT で測定した MO 中の Rn の Activity, 縦軸に抽出された Rn の濃度の最大値をプロットした。MO 中の Rn の Activity は縦軸の抽出された Rn の濃度が最大を取ったときの時刻で較正されている。

5.6.6 測定値の誤差について

系統誤差の表価

系統誤差については次のようなものが考えられる。

1. PMTでの測定の際の誤差

- (a) 資料作りの際の誤差 (環境温度、計量) $\sim 1\%$
- (b) threshold 以下のイベントについての解釈 $\sim 9\%$
- (c) 測定値から Activity を求める際の誤差 (Rn の崩壊曲線を仮定) $\sim 10\%$

2. Rn 検出器での測定値の誤差

- (a) 気液平衡の誤差 (中空糸膜の分離効率の誤差) $\sim 20\%$
- (b) 湿度によるもの $\sim 1\%$
- (c) 較正定数の誤差 $\sim 1\%$
- (d) Model1027 の誤差 $\sim 25\%$

以上を見積もると、PMTでの測定の際の誤差は $\sim 13\%$, Rn 検出器での測定値の誤差は $\sim 27\%$ になる。また Rn 検出器での測定値の誤差にはバックグラウンド測定で得られた不定性 $\sim 26\text{Bq/m}^3$ が付随する。

5.7 まとめ

極低レベルの Rn 濃度の測定のための検出器の開発を行った結果、まず我々はラドン検出器のエネルギー較正を行い、そのラドン検出器の動作を確認した結果、ラドン検出器のラドンの濃度には他のピークと分離が容易な ^{214}Po の α 線のエネルギー領域のカウント数を用いることにした。またラドン検出器は空气中ラドンの濃度を評価するための較正定数が必要になる。我々は既にラドン濃度絶対値較正のされている Model1027 を用いラドン検出器のラドン濃度絶対値較正を行い、較正定数は: $\text{C.F} = 123 \pm 2[\text{count}/10\text{hours}/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ になった。

その後検出器の測定限界を知りまた改善を行うためにバックグラウンド測定を行った。我々の実験においてバックグラウンドになるものとして配管接続部および配管からの洩れ (空気中のラドンの混入), 検出器内部および表面からのラドン放出, 窒素中 (or 窒素ボンベの壁から) のラドンがある。これらの問題の改善の結果、ラドン濃度は $23\text{mBq}/\text{m}^3$ まで低減することができた。また配管およびその接続部の洩れの改善により較正定数は $12.3[(\text{count}/\text{hour})/(\text{Bq}/\text{m}^3)] \rightarrow 17.8[(\text{count}/\text{hour})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ となりラドン検出器の感度の増加に成功した。

さらに液体シンチレーター中のラドン濃度を測定するために我々は中空糸膜を使ったラドンの抽出方法を用い、その抽出効率の測定を行った。その際のラドン濃度は $>26\text{Bq}/\text{m}^3$ の範囲において行い、その抽出効率は $\sim 34.6\%$ となった。

以上この章の結果をまとめると次のようになる。

1. PIN フォトダイオードのエネルギー較正を行った。
2. 検出器のラドン濃度絶対値較正 (12.3 ± 0.2 [(count/hour)/(Bq/m³)] を行った。
3. 検出器のバックグラウンドを調べ、また低減した。 (~23mBq/m³)、またこれにより較正定数は 12.3 [(count/hour)/(Bq/m³)] \rightarrow 17.8 [(count/hour)/(Bq/m³)] となり、ラドン検出器の感度の増加に成功した。
4. 液体シンチレーター中のラドン濃度の測定を行った (中空糸膜を使って MO 中のラドンを抽出した。 >26 Bq/m³, 抽出効率 ~ 34.6%)

第6章 結果および将来計画

まず KamLAND 環境 Rn 濃度の低減において、測定値は目標の外気と同程度 ($\sim 40\text{Bq/m}^3$) にまで低減できていることが確認できた。

今後ラドン検出器の開発において課題となるものを以下にまとめる。現在空気中では $\sim 23\text{mBq/m}^3$ MO 中では $>26\text{Bq/m}^3$ まで測定可能であることが確認できている。これとともに $<1\text{mBq/m}^3$ まで低減させることがこれからの目標となる。MO 中での 26Bq/m^3 のバックグラウンドは検出器内部から生じている ^{222}Rn や、配管もしくはその接続部から混入する ^{222}Rn が主な原因になっていると考えられる。そのためこれらのラドンを削減することがこの測定には必要になる。

そのため内面が電解研磨してある検出器を用いるなどの emanation の低減、配管、及びその接続部においてさらにラドンのリークに少ない構造に変えるなどさらなる研究開発が求められる。またこれらの改善がされても目標の $<1\text{mBq/m}^3$ の ^{222}Rn が測定可能でないのなら、LS 中のラドンを濃縮することが必要不可欠になってくる。

また今回 LS 中からのラドンの抽出には、中空糸膜を用いたが、真空脱気 (バブリング) によるラドンの抽出なども考えられる。

以下に改善方法をリストアップする。

1. LS 中からの Rn の抽出法の確立
 - (a) 中空糸膜を用いる方法
 - (b) 真空脱気もしくはバブリングによるラドンの抽出
2. LS 中のラドン濃度の絶対値較正の確立
 - (a) 高濃度ラドンを含む LS 中のラドン濃度を PMT で測定する。
 - (b) データ値と実際の濃度との関係について対応付けを詳細に行う。
3. バックグラウンドの低減
 - (a) 電解研磨した検出器の使用
 - (b) 検出器の大型化
 - (c) 配管、およびその接続部のリークレベルの低減および、表面からラドンの放出を防ぐ工夫
4. 濃縮法の確立。
 - (a) 冷却装置
 - (b) 液体窒素

(c) 活性炭

などがある。以上の様にしてLS中の $<1\text{mBq/m}^3$ という極低レベルのラドン濃度の測定が可能になると考えられる。

付録A 放射壊変

$$\begin{aligned} -\frac{dN(t)}{dt} &= \lambda N(t) \\ N(t) &= N_0 \cdot e^{-\lambda t} \end{aligned}$$

またここで、半減期と崩壊定数 λ の関係は

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

簡単な例として、系列壊変で娘核が2つのときを考えてみる。

おのおの崩壊定数を $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$, 任意の時刻における、核種 X_1, X_2, X_3 の個数を $N_1(t), N_2(t), N_3(t)$ とすると、

$$\begin{aligned} -\frac{dN_1(t)}{dt} &= \lambda_1 N_1(t) \\ -\frac{dN_2(t)}{dt} &= \lambda_2 N_2(t) - \lambda_1 N_1(t) \\ -\frac{dN_3(t)}{dt} &= \lambda_3 N_3(t) - \lambda_2 N_2(t) \end{aligned}$$

これを解いて、

$$N_1(t) = N_0 \cdot \exp(-\lambda_1 t)$$

$$N_2(t) = \lambda_1 N_0 \left\{ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{\exp(-\lambda_2 t)}{\lambda_2 - \lambda_1} \right\} = \frac{\lambda_1 N_0 \exp(-\lambda_1 t) [1 - \exp\{-(\lambda_2 - \lambda_1)t\}]}{\lambda_2 - \lambda_1}$$

$$N_3(t) = -\lambda_1 \lambda_2 N_0 \left\{ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{\exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_2)} + \frac{\exp(-\lambda_3 t)}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right\}$$

よって $\lambda_2 \gg \lambda_1$ のとき、 $\lambda_2 - \lambda_1 \approx \lambda_2$ とできて、このとき

$$\lambda_1 N_1(t) = \lambda_2 N_2(t)$$

同様にして $\lambda_1 \ll \lambda_2, \lambda_3$ のとき

$$\lambda_1 N_1(t) = \lambda_2 N_2(t) = \lambda_3 N_3(t)$$

ここで ^{218}Po と ^{214}Po から放出される α 粒子の数について考える。おのおの $\alpha_{218\text{Po}}(t)$, $\alpha_{214\text{Po}}(t)$ とすると、

$$\alpha_{218\text{Po}}(t) = -\lambda_{218\text{Po}} N_{218\text{Po}}(t)$$

$$\alpha_{214\text{Po}}(t) = -\lambda_{214\text{Po}} N_{214\text{Po}}(t)$$

今放射平衡に達しているとする、

$$\lambda_{218\text{Po}} N_{218\text{Po}}(t) = \lambda_{214\text{Po}} N_{214\text{Po}}(t)$$

であるから、

$$\alpha_{218\text{Po}}(t) = \alpha_{214\text{Po}}(t)$$

よっておのおのの検出効率が同じであれば、観測される ^{218}Po と ^{214}Po から放出される α 粒子の数は等しくなるはずである。

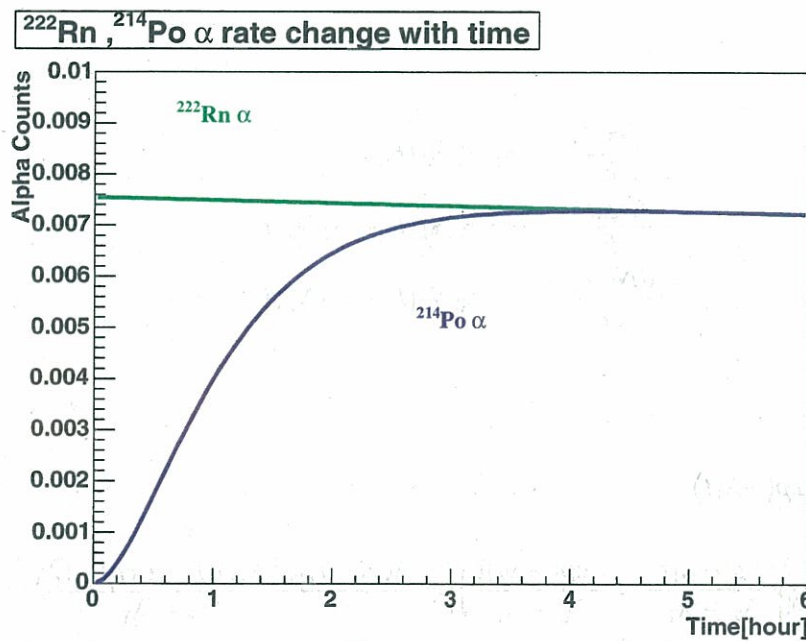


図 A.1: Rnの崩壊において、初期条件として ^{222}Rn だけが存在するとしたときの、 ^{222}Rn が崩壊するときの α と ^{214}Po の崩壊するときの α の rate の比の時間推移。

付録B 抽出されるラドンの濃度の変化について

今コンスタントなラドンの供給を Q , 時刻 t でのラドン原子の数を $N(t)$, はじめのラドンの数を N_0 とすると、

$$\begin{aligned}\frac{dN(t)}{dt} &= -\lambda N + Q \\ N(t=0) &= N_0\end{aligned}$$

よりこれを解くと、

$$\begin{aligned}\frac{dN(t)}{dt} &= -\lambda N + Q \\ N(t) &= \frac{Q}{\lambda} + \left(N_0 - \frac{Q}{\lambda}\right)e^{-\lambda t}\end{aligned}$$

となる。実際は途中で Q が 0 に近付くと考えられるので、ある時刻 $t > t'$ で $Q = 0$ が成り立つとすると、

$$\begin{aligned}\frac{dN(t)}{dt} &= -\lambda N \\ N(t=t') &= \frac{Q}{\lambda} + \left(N_0 - \frac{Q}{\lambda}\right)e^{-\lambda t'}\end{aligned}$$

よりこれを解くと、

$$N(t) = Ce^{-\lambda t}$$

ただしここで

$$C = \frac{Q}{\lambda}e^{\lambda t'} + N_0 - \frac{Q}{\lambda}$$

である。

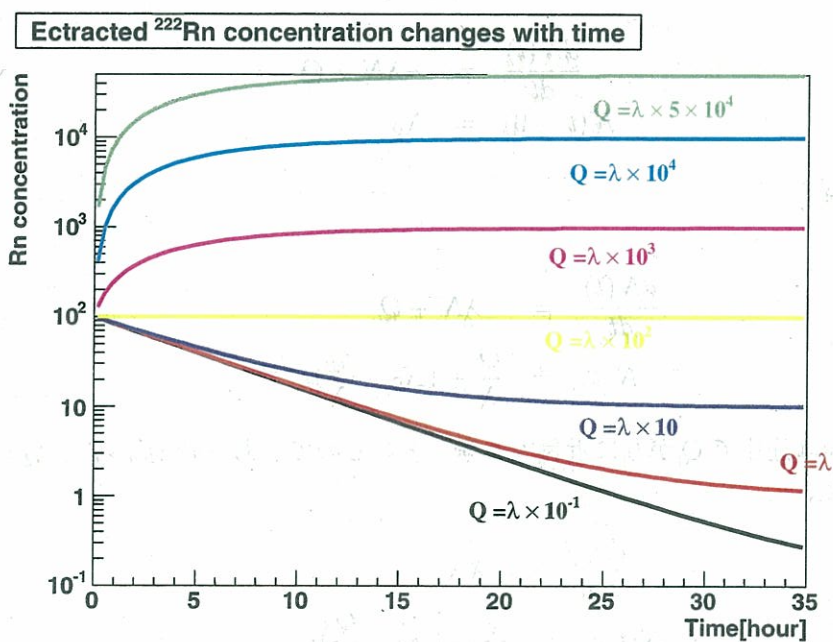


図 B.1: 上の式で N_0 については $N_0 = 100$ と固定し, Q については $Q = 0.1\lambda, \lambda, \lambda \times 10, \lambda \times 10^2, \lambda \times 10^3, \lambda \times 10^4, \lambda \times 5 \times 10^4$ と変えてその時間推移をプロットした。

関連図書

- [1] K.Eguchi et al.(KamLAND Collaboration),Phys.Rev.Lett.90 (2002)011301
- [2] T.Araki et al.(KamLAND Collaoration),PRL hep-ex/0406035
- [3] Osamu Tajima “Measurement of Electron Anti-Neutrino Oscillation Parameters with a Large Liquid Detector,KamLAND” Ph.D thesis
- [4] M.Motoki et al.,Nuclear Instruments and Nethods in Physics Research A 534(2004) 59-65
- [5] C.Mitsuda et al. Nuclear Instruments and Nethods in Physics Research A 497(2003) 414-428
- [6] John N.Bahcall,Nuclear Physics B 118(2003)77-86
- [7] 崎田文二 他 著 大学院素粒子物理2 新領域の開拓
- [8] 坂井典佑 著 素粒子物理学
- [9] プライス 放射線計測
- [10] Chikaori Mitsuda,Super-Kamiokande における太陽ニュートリノ観測のための放射線バックグラウンドの研究 ,Master Thesis, Niigata Univ., Jan 2001
- [11] Machiko Nemoto スーパーカミオカンデにおける静電捕集型超高感度ラドン検出器の校正, Master Thesis, Tokai Univ., Feb. 1998
- [12] 本間義夫 森田裕子 放射化学のテーマの発展 YAKUGAKU ZASSHI 121(5) 327-344(2001)
- [13] <http://www.sns.ias.edu/jnb/>
- [14] <http://www/dic.co.jp/>
- [15] <http://www.sunnuclear.com/>

謝辞

この研究をまとめるに当たって、また、修士課程2年間にわたり多くの方々の御協力、御指導頂きました。この場を借りて感謝の意を表したいと思います。

鈴木厚人先生には、KamLAND 実験に参加する機会を頂きました。これを何よりも感謝したいと思います。また指導教官の井上邦雄先生には、本論文をまとめるに当たり、多くの助言を頂き、また大変な忙しい中時間を割いて頂きありがとうございました。白井先生にはいつも励まして頂きありがとうございました。末包文彦先生にはハワイのコラボレーションミーティングの際などでお世話になりました。三井唯夫さんには本研究に当たって何度も助言をして頂きました。元木正和さんには本研究において大変お世話になり、研究の厳しさ、楽しさについて教えていただきました。古賀真之さんには神岡での生活で大変お世話になり、またの本研究および、研究の進めかたにおいて、厳しさ中にも温かい助言をして頂き、多くのことを学ばせて頂きました。岸本泰宏さんには実験等でお世話になりその熱意溢れる姿勢にとっても刺激を受けました。田島治さんには解析などでお世話になりました。中村健吾さんにはシフト業務等でお世話になりました。皆様から受けた御指導は忘れません。

技術スタッフの高山知明さん、花田博光さん、中嶋隆さんには実験の際等にアドバイスを頂き大変お世話になりました。玉江京子さんには計算機等でお世話になりました。

小川洋さんには博士課程の厳しさについて学びました。榎本三四郎さんには物理や解析についてアドバイスを頂きました。渡辺秀樹さんにはいろいろと研究生活について教えてもらいました。池田晴雄さんにはシミュレーションやパソコンの使い方など助けて頂きました。丸藤裕仁さんには研究のやりかたなど参考にさせて頂きました。中嶋享さんには、いろいろとお世話になりました。神岡で終電に乗れずに迎えに来てもらった時は本当に助かりました。清水格さんには解析等でいつも相談に乗って頂きました。西郷学さんにはいろいろな意味でお世話になりました。前田達朗さんからはいい意味での適当さを学びました。多田健一さんには人生を如何に楽しむかについて教えて頂きました。大和田憲太郎さん、小関陽太郎さんからは先輩として様々なアドバイスを頂きました。

KamLAND 実験同期の荒木孝之くん、市村晃一くんとはともに苦しみ、ともに喜び、数々の経験をともに積んできました。ありがとうございました。同学年の畦田正嗣くん、野崎聡くん、宇佐見淳一くん、倉田宗人くんにはいろいろと話あいてになってもらいお世話になりました。卒業した後もみなで集まって飲み会などできたら楽しそうですね。

後輩のM1の竹内真くん、小川桃世さんには実験に望む真剣な態度に感銘を受けました。その他M1の安東慎一郎くん、藤川智暁くんはいつもおもしろい話をしてもらいました。4年生の蝦原くん、峽部くん、中嶋くん、今野さん、坂口さんには、これからのKamLAND実験を盛り上げて入ってもらいたいと思います。期待しています。事務の三浦富士雄さん、遠藤由利さんには様々な事務手続きの際にお世話になりました。そのほか、センターの皆

様いろいろとお世話になりました。

皆さん、本当に有難うございました。

