

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年5月23日現在

機関番号：13701  
 研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2010～2012  
 課題番号：22540308  
 研究課題名（和文）スーパーカミオカンデ純水タンク中の極微量ラドン濃度分布測定システムの開発  
 研究課題名（英文）Development of the system for radon concentration distribution measurement in Super-Kamiokande pure water tank  
 研究代表者  
 田阪 茂樹（SHIGEKI TASAKA）  
 岐阜大学・総合情報メディアセンター・教授  
 研究者番号：60155059

研究成果の概要（和文）：新しく開発した純水中ラドン濃度測定システムを用いて、スーパーカミオカンデ実験の純水タンク中の4箇所ですべて純水中ラドン濃度を測定した。(1)純水装置からSK水槽への送水の純水中ラドン濃度 $2.5 \pm 0.4$  (mBq/m<sup>3</sup>)、(2)水槽中心部 $0.4 \pm 0.5$  (mBq/m<sup>3</sup>)、(3)水槽底部 $3.5 \pm 0.7$  (mBq/m<sup>3</sup>) (4)水槽上部水面 $4.6 \pm 0.8$  (mBq/m<sup>3</sup>)となった。これらの純水中ラドン濃度の測定結果は、ラドン源が送水中と、スーパーカミオカンデ検出器の水槽内部に存在することを示す。今後、この実験結果はスーパーカミオカンデ実験におけるラドン起源バックグラウンドの解明と低減に向けて役立つものであり、太陽ニュートリノ事象の解析閾値を3.5MeVまで下げて、太陽ニュートリノのフラックス精度の向上に貢献するものである。

研究成果の概要（英文）：We have developed the new system for the radon concentration distribution measurement in Super-Kamiokande pure water tank. Pure water radon concentration is very low as  $0.4 \pm 0.5$  (mBq/m<sup>3</sup>) in the center of the tank, the high as  $3.5 \pm 0.7$  (mBq/m<sup>3</sup>) and  $4.6 \pm 0.8$  (mBq/m<sup>3</sup>), in the bottom and top of the tank, it was  $2.5 \pm 0.4$  (mBq/m<sup>3</sup>) in the supplied pure water. Radon sources are shown the possibility that exists inside the tank and the supplied pure water. The results of radon concentration are intended to help towards the reduction and clarification of radon origin background in Super-Kamiokande experiment.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：スーパーカミオカンデ実験、太陽ニュートリノ、ラドン、水中ラドン濃度測定、高感度ラドン検出器、気液混合器、活性炭吸着

## 1. 研究開始当初の背景

スーパーカミオカンデ実験(SK)における

純水タンク内ラドンの主要な発生源は1万個の光電子増倍管とその周辺の支持材料な

どであり、ラドン濃度はタンク内の水の動きによって、約  $0.1\text{Bq}/\text{m}^3 \sim 5\text{Bq}/\text{m}^3$  程度の違いがあると予想されている。その原因は純水装置への循環用配管の給水口と排水口の取付け位置、及び僅かな水温差によってタンク内の水の動きが変化しているためである。

SK-IIIの純水タンク内の  $5\text{MeV}$  以上の Low Energy Events の Vertex 分布から、タンクの場合によりレートが数倍異なり、特に純水タンク中心部の有効体積内部のラドンの動きを捉えるには、 $0.1\text{Bq}/\text{m}^3$  程度のラドン検出方法を確立する必要がある。

そのために、次の5つのラドン処理プロセスの新たな実験手法を開発して確立する必要がある。

- 1) 脱気：純水中極低濃度ラドンを高性能静止型気液混合器で脱気
- 2) 除湿：脱気ガス中に含まれる水分を除湿
- 3) 濃縮：脱気ガス中のラドンを極低バックグラウンド活性炭に吸着して濃縮
- 4) 脱離：活性炭中のラドンを熱脱離
- 5) 測定：静電捕集型高感度ラドン検出器で測定

特に、脱気に関連して、高性能静止型気液混合器の開発が最も重要である。水に溶解しているラドンを測定するには、水とラドンを含まないラドンフリーエア（純空気）を気液混合器に注入して、効率的に気液平衡状態を実現する必要がある。従来の方式としてシャワー式（液分散型）とバブリング式（ガス分散型）があったが、本研究の新しい着想は、連続廃水処理技術の分野で用いられている、静止型気液混合器（液ガス分散型）を、極低濃度ラドン脱気に利用することである。また、濃縮に関連して、極低バックグラウンド活性炭を用いることである。

我々には、高性能静止型気液混合器を用いて海水中ラドン濃度の連続測定を行った研究成果、活性炭を用いたラドン濃縮についての成果、南極大気中ラドン濃度  $10\text{Bq}/\text{m}^3$  の連続測定結果、高感度ラドン検出器の特許がある。本研究は、我々の開発した高感度ラドン検出器と、上記の新規技術開発を融合して、スーパーカミオカンデ実験の5万トン純水タンク中ラドン濃度分布測定に取り組むものである。

## 2. 研究の目的

本研究は、スーパーカミオカンデ実験の5万トンの純水タンク中極低濃度ラドン測定システムを開発して、

- 1) SK タンク内の有効体積内部のラドン起源バックグラウンド解明と低減を目的とする。

2) その結果、太陽ニュートリノ事象の解析閾値を  $3.5\text{MeV}$  まで下げる。

3) 太陽ニュートリノのフラックス精度の向上に貢献することを目指している。

我々は、純水中の極低ラドン濃度を測定する上で障害となっている、純水中極低濃度ラドンの脱気、脱気ガス中のラドンの濃縮、の2つの問題を解決し、開発済みのラドン測定技術を利用して、極低ラドン濃度  $0.1\text{Bq}/\text{m}^3$  程度までの測定が可能な新規純水中ラドン検出技術を開発する。

## 3. 研究の方法

本研究では以下の方法で実験を実施した。純水タンク中極低濃度ラドン測定システムの開発：測定システムは、

- 1) 脱気、2) 除湿、3) 濃縮、4) 脱離、5) 測定
- の5段階のラドン処理プロセスより構成される。各処理プロセスの効率などの詳細を後述する。純水タンク中ラドン濃度マッピング測定：5万トン純水タンクの深度  $1 \sim 35\text{m}$  の純水を汲み上げて、タンク中のラドン濃度分布を測定する。SK 純水タンク有効体積内部のラドン起源バックグラウンドの解明：濃度分布測定結果より、SK 実験における太陽ニュートリノ事象のラドンによるバックグラウンドを評価する。

### (1) ラドン検出器の開発

本研究では静電捕集法を用いたラドン検出器を開発した。ラドン娘核種のうちポロニウム ( $^{218}\text{Po}$  と  $^{214}\text{Po}$ ) の90%は正に帯電する。この正に帯電したポロニウムを電場によってPINホトダイオード(PD)に捕集し、ポロニウムが崩壊した際に放出される $\alpha$ 線を捕えることにより、ポロニウムの崩壊数を測定して、親核種のラドンの濃度を求めることができる。

図1はラドン検出器の概略図である。サンプル空気は、検出器の入口に装着された焼結金属フィルターを通過して検出器に送られる。ラドンは検出器内で娘核種に崩壊して、イオンとなっている娘核種は静電捕集法でPDの表面に捕集される。この時、検出器内の水分子によってイオンの中性化現象が起きて、娘核種の検出効率が低下する。

較正係数という濃度変換因子を定義し、 $^{214}\text{Po}$  の崩壊数からラドン濃度を算出する。図2はラドン濃度較正係数(CF)と絶対湿度(AH)の関係を表している。今回開発したラドン検出器と従来型のラドン検出器の較正係数をそれぞれ赤色と黒色で表した。

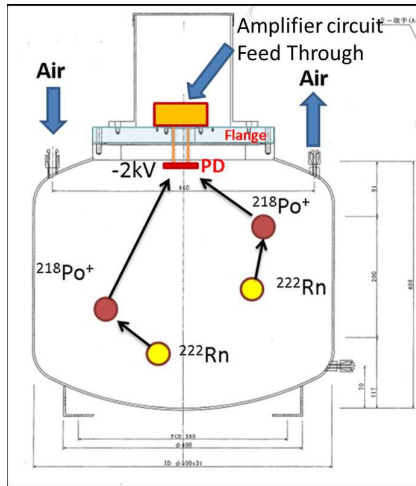


図1 ラドン検出器概略図

今回の開発と性能評価では、校正係数の絶対湿度依存性を次式①のように決定することができた。

$$CF = 2.29 - 0.29(AH)^{1/2} \quad \text{-----①}$$

従来型のラドン検出器では②式、

$$CF = 2.03 - 1.08(AH)^{1/2} \quad \text{-----②}$$

と表されていた。

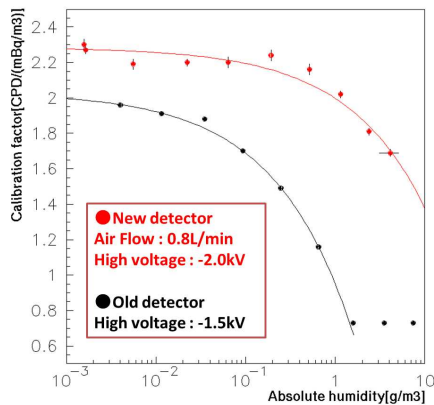


図2 校正係数の湿度依存性。横軸は絶対湿度 [g/m³]、縦軸は校正係数 [CPD/(mBq/m³)] である。赤点が今回の測定結果である。黒点が従来型ラドン検出器

図2の赤点と黒点を比較すると、絶対湿度 0.002 (g/m³) で、新しく開発したラドン検出器は、従来型のラドン検出器よりも約30%校正係数が高く、高感度のラドン検出器となった。この開発により空気中のラドン濃度を 2mBq/m³まで測定できるようになった。

## (2) 空気層のラドン濃度測定

SKは5万トンの純水を用いてニュートリノ観測を行っている。ラドンのバックグラウンドを低減するためには、どの段階で純水にラドンが溶けこんでいるのかを調べる必要がある。SKではラドンを極力除いた空気を製造し、それをSKに流し込んでいる(図3)。

前述のラドン検出器を用いて、SKに関係する次の3種類の空気、1) 製造直後の空気 (Rn reduced air)、2) SKに流し込む直前の空気 (Input air)、3) SKから排出される空気 (Output air)に含まれるラドン濃度を測定した。測定は2012年11月17日から2013年2月5日までの81日間にわたって行われた。

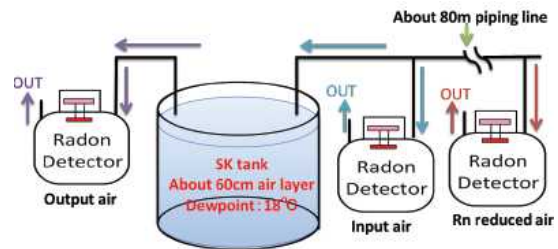


図3 SK水槽上部の空気層のラドン濃度測定実験概略図

図4にラドン濃度の測定結果を示す。それぞれのラドン濃度は、1) Rn reduced air :  $3.7 \pm 0.2$  (mBq/m³)、2) Input air :  $3.7 \pm 0.2$  (mBq/m³)、3) Output air :  $26.7 \pm 0.5$  (mBq/m³) となった。

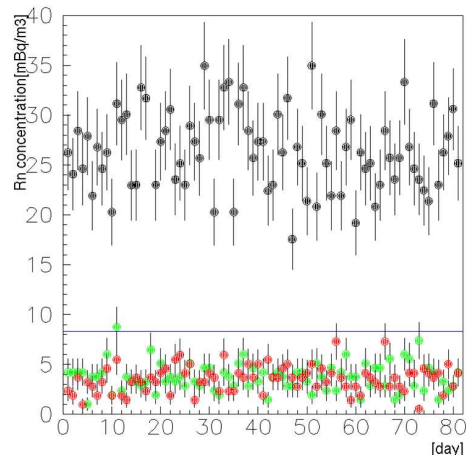


図4 SK水槽上部空気層のラドン濃度測定結果。グラフは横軸が測定日、縦軸はラドン濃度 mBq/m³ である。赤点が Rn reduced air、緑点が Input air、黒点が Output air

測定結果より、SK 検出器の内部にラドン源が存在し、空気を汚染していることがわかった。仮にラドン源を純水(水面)だと仮定すると、水面のラドン濃度は  $8.3 \pm 0.1$  mBq/m³

と見積もることができた。この測定により、純水(水面に限る)のラドン濃度が 10mBq/m<sup>3</sup> 以下であることが分かった。

### (3)脱気、除湿、吸着、脱離プロセスの試験

#### ①脱気プロセス

液体シンチレーション法で測定した試料水の水中ラドン濃度を  $C_s$  とする。この試験では約 7000Bq/m<sup>3</sup> の試料水を用いた。流量  $F_w$  を毎分 1.8 リットルで静止型気液混合器に注入して、ラドンフリーエアの流量  $F_a$  を毎分 1.6 ~ 2.8 リットルまで変化させて、静止型気液混合器による、純水中ラドンの脱気効率  $C_w/C_s$  を測定した。脱気ガス中のラドン濃度  $C_g$  を高感度ラドン検出器で測定し、水中ラドン濃度  $C_w$  を、水中ラドンの気液平衡式③より求めた。

$$C_w = C_g(k + F_a/F_w) \quad \text{-----③}$$

式③中の  $k$  は、ラドンの水に対する溶解度である。溶解度  $k$  は水温  $T(^{\circ}\text{C})$  に依存して、④式を用いた。

$$k = 9.12 \cdot (273 + T) / ((17 + T) \cdot 273) \quad \text{----④}$$

SK 実験の純水の水温  $T=16^{\circ}\text{C}$  で  $k=0.29$  である。図 5 は水中ラドン脱気効率  $C_w/C_s$  の実験結果を示す。この試験結果より、 $F_a/F_w=1.2$  の条件のとき  $C_w/C_s=1$  となり、最も効率的な脱気が行われていることが判明した。

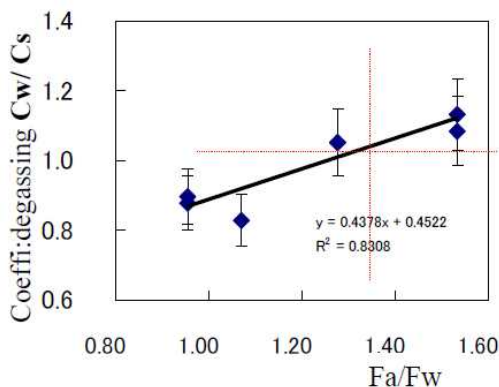


図 5 静止型気液混合器による水中ラドン脱気効率の測定結果

#### ②除湿プロセス

4 種類の除湿方法、電子除湿器(露点温度  $0.4^{\circ}\text{C}$ )、パーマピュアー・ドライヤー(露点温度  $-5.2^{\circ}\text{C}$ )、過塩素酸マグネシウム ( $-37.2^{\circ}\text{C}$ )、ステンレス U 字管 ( $-70^{\circ}\text{C}$  銅ウール入り)を試験した。その結果、バックグラウンドの混入を避けるため、電子除湿器とステ

ンレス U 字管を組み合わせて使用した。

#### ③吸着プロセス

U字管に活性炭(ダイヤソープG4-5)24gを入れて、 $-90^{\circ}\text{C}$ に冷却し、ラドン濃度約100Bq/m<sup>3</sup>、露点温度 $-55^{\circ}\text{C}$ の空気を、流量毎分2リットルで流して、ラドン吸着率を試験した。その結果、ラドン吸着率0.99以上を36時間維持した。図6は活性炭のラドン吸着率の測定結果を示す。

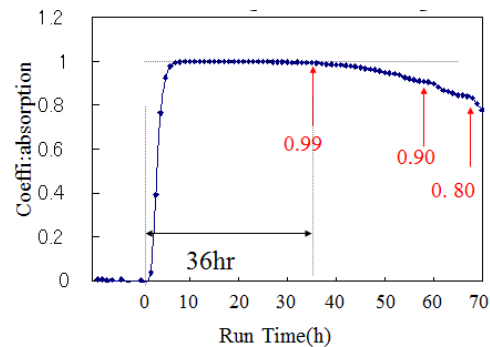


図 6 活性炭のラドン吸着率の測定結果

#### ④脱離プロセス

活性炭に吸着・濃縮されたラドンを、マントル・ヒーターを用いて  $250^{\circ}\text{C}$  で、約 1.5 時間加熱して、ラドンは脱離率 0.99 で脱離した。

これらの 4 つの各プロセスの効率を明らかにして、純水中ラドン濃度測定を実施した。

#### (4)純水中のラドン濃度測定

ラドン検出器を用いて、純水中のラドン濃度測定を行うためには、次の2点が問題となった。1)ラドン検出器は空気中のラドン濃度を測定するため、純水に溶け込んだラドンを空気に移動させなければ測定をすることができない。また、2)空気に移動した後も  $0.1 \sim 1\text{mBq/m}^3$  程度のラドン濃度であると推測されるので、前述のラドン検出器では直接測定できない。以上の2点を考慮して、1)気液混合器で純水を霧状にして空気と混合させる、2)活性炭にラドンを吸着させて濃縮する、という手法を用いることにした。具体的な測定系を図7と図8に示す。本研究では、まず純水をサンプリングして気液混合器(図7右上)に送る。その後、気液混合器で純水を霧状にし、純空気(規格G1)と混合する。この段階で純水中のラドンが空気に移り、その後、電子除湿器と冷却銅ウールを用いて空気の除湿を行い、 $-90^{\circ}\text{C}$ の冷却活性炭でラドンを吸着させる。冷却活性炭により混合空気中のラドンを99%以上の効率で吸着し、この過程を6時間以上継続して行う。図7はラドン吸着・濃縮過程にお

けるシステムの概略図である。

次に、冷却活性炭はマントル・ヒーターを用いて、約1.5時間で250℃まで加熱される。加熱により活性炭に吸着されたラドンは脱離され、ラドンは容積80リットルのラドン検出器に注入され、前述の高感度ラドン検出器を用いて測定される。図8はラドン脱離過程におけるシステムの概略図である。

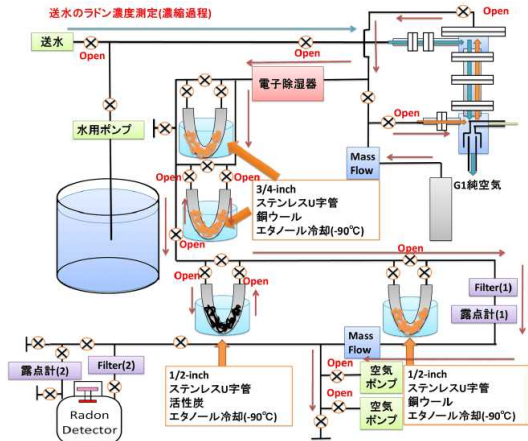


図7 ラドン濃縮過程のシステム配管図

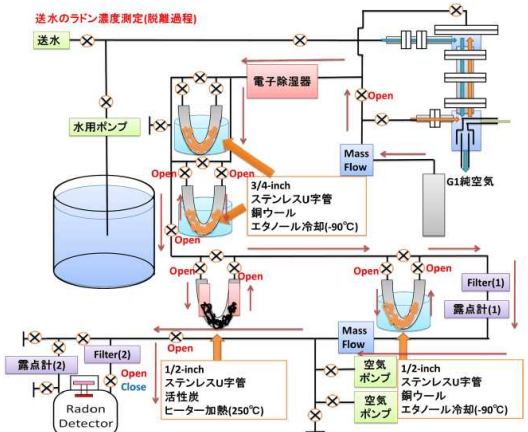


図8 ラドン脱離過程のシステム配管図

実際の測定結果の例を図9に示す。ラドン検出器で20日間以上の測定を行い、その崩壊曲線(ラドン半減期3.8日)を求めることで、濃縮されたラドンの総量がわかる。以上の方法を用いて、純水中のラドン濃度を0.1mBq/m<sup>3</sup>程度まで測定することが可能となった。

SK実験タンク中の4箇所での測定箇所と、純水中ラドン濃度の測定結果を次に示す。

- 1) 純水装置から水槽への送水: 計2回の測定を実施、1.8 ± 0.5 (mBq/m<sup>3</sup>) と 3.1 ± 0.7 (mBq/m<sup>3</sup>)、2回の平均値 2.5 ± 0.4 (mBq/m<sup>3</sup>)
- 2) 水槽中心部 (Z=+0.4m) : 0.4 ± 0.5 (mBq/m<sup>3</sup>)
- 3) 水槽底部 (Z=-12.0m) : 3.5 ± 0.7 (mBq/m<sup>3</sup>)

- 4) 水槽水面 (Z=+20.5m) : 4.6 ± 0.8 (mBq/m<sup>3</sup>)
- SK水槽の純水中ラドン濃度測定結果をまとめて図10に示す。

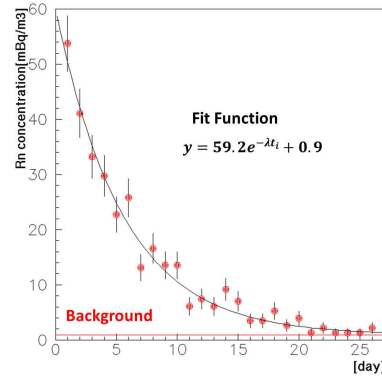


図9 ラドン測定結果例。横軸は測定日数で、縦軸はラドン濃度である。赤点が測定点を表し、黒線はラドン崩壊曲線を、赤線はバックグラウンドを表す

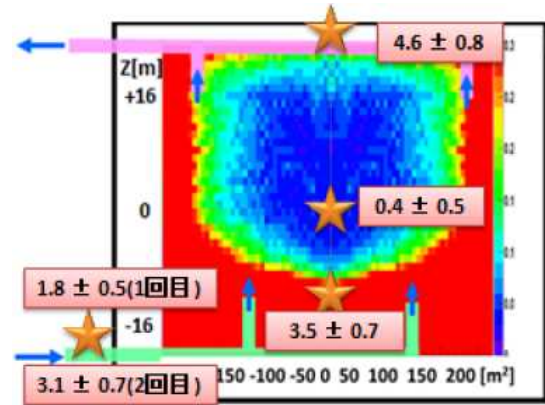


図10 SK水槽の純水中ラドン濃度測定結果。星印は送水、底部、中心部、水面の測定箇所を表す。数値はラドン濃度 (mBq/m<sup>3</sup>) を示す

#### 4. 研究成果

スーパーカミオカンデ実験の5万トンの純水タンク中の極低ラドン濃度の測定システムを開発した。純水中の極低ラドン濃度を測定する上で障害となっていた、純水中の極低濃度ラドンの脱気と濃縮の2つの問題を解決し、開発した高感度ラドン検出器を使用して、極低ラドン濃度0.1 mBq/m<sup>3</sup>程度の純水中ラドン測定技術を開発した。

次の5つのラドン処理プロセスの新たな実験手法を確立した。

- 1) 純水中極低濃度ラドンを高性能静止型気液混合器で脱気
- 2) 脱気ガス中に含まれる水分を除湿
- 3) 脱気ガス中のラドンを極低バックグラウンド活性炭に吸着して濃縮
- 4) 活性炭中のラドンを過熱して脱離

5) 静電捕集型高感度ラドン検出器で測定  
新しく開発した純水中ラドン濃度測定システムを用いて、スーパーカミオカンデ実験の純水タンク中の4箇所で純水中ラドン濃度を測定した。1) 送水の純水中ラドン濃度 $2.5 \pm 0.4$  (mBq/m<sup>3</sup>)、2) 水槽中心部 $0.4 \pm 0.5$  (mBq/m<sup>3</sup>)、3) 水槽底部 $3.5 \pm 0.7$  (mBq/m<sup>3</sup>)、4) 水槽上部水面 $4.6 \pm 0.8$  (mBq/m<sup>3</sup>)となった。

これらの純水中ラドン濃度の測定システムと測定結果は、ラドン源が送水中と、スーパーカミオカンデ検出器の水槽内部に存在することを示す。今後、これらの実験結果はスーパーカミオカンデ実験におけるラドン濃度の低減と、バックグラウンド起源の解明に役立つものである。その結果、太陽ニュートリノ事象の解析閾値を3.5MeVまで下げて、太陽ニュートリノのフラックス精度の向上に貢献するものと期待される。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

中野佑樹, スーパーカミオカンデ検出器におけるラドン濃度測定と超新星爆発ニュートリノバースト探索, 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻修士論文, Jan-2013, pp. 1-129, 査読有,  
URL([http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/sk/pub/master/Nakano\\_master\\_thesis.pdf](http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/sk/pub/master/Nakano_master_thesis.pdf))

[学会発表] (計6件)

- (1) 中野佑樹、関谷洋之、田阪茂樹、松原正也、竹内康雄、スーパーカミオカンデ検出器中のラドン濃度測定、日本物理学会第68回年次大会、2013年3月27日、広島大学
- (2) 中野佑樹、関谷洋之、竹内康雄、田阪茂樹、松原正也、平成24年度東京大学宇宙線研究所共同利用発表会、2012年12月7日、極低濃度ラドン測定システムの開発、東京大学宇宙線研究所
- (3) 中野佑樹、関谷洋之、田阪茂樹、松原正也、竹内康雄、スーパーカミオカンデ検出器中のラドン濃度測定システムの現状、日本物理学会 2012年秋季大会、2012年09月11日、京都産業大学
- (4) 中野佑樹、関谷洋之、田阪茂樹、松原正也、竹内康雄、スーパーカミオカンデ検出器中のラドン濃度測定システムの開発-SK検出器中の空気層のラドン濃度測定実験-、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月24日、関西学院大学

(5) 田阪茂樹、松原正也、関谷洋之、中野佑樹、竹内康雄、平成23年度東京大学宇宙線研究所共同利用発表会、2011年12月16日、極低濃度ラドン測定システムの開発、東京大学宇宙線研究所

(6) 田阪茂樹、松原正也、竹内康雄、山澤弘実、森泉純、平成22年度東京大学宇宙線研究所共同利用発表会、2010年12月17日、極低濃度ラドン測定システムの開発、東京大学宇宙線研究所

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

[その他]

ホームページ等 なし

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

田阪 茂樹 (SHIGEKI TASAKA)  
岐阜大学・総合情報メディアセンター・教授  
研究者番号：60155059

(2) 研究分担者

松原 正也 (MASAYA MATSUBARA)  
岐阜大学・総合情報メディアセンター・准教授  
研究者番号：80281046  
竹内 康雄 (YASUO TAKEUCHI)  
神戸大学・理学研究科・教授  
研究者番号：60272522

(3) 連携研究者 なし

( )

研究者番号：