

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24340050

研究課題名(和文) 希ガス中の極微量ラドン濃度を測定する装置の開発と暗黒物質探索実験への応用

研究課題名(英文) Development of a high-sensitivity radon detector for purified gases and application to a dark matter experiment

研究代表者

竹内 康雄 (Takeuchi, Yasuo)

神戸大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60272522

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究においては、希ガス中の極微量のラドン分析を行うための高感度なラドン検出器(80L検出器)の開発を行った。検出器本体の低バックグラウンド化を行い、Po-214の内部バックグラウンドレベルは、 $0.81 \pm 0.08$  (count/day)まで低減された。これは、以前のラドン検出器の約1/3のレベルである。また、Arガス、Xeガス中での80L検出器の基礎特性を初めて評価し、希ガスをを用いた暗黒探索実験等へ80Lラドン検出器を応用する道が開けた。また、暗黒物質の直接探索を目指すエクスマス実験において、我々のラドン検出器を応用した水中ラドンのリアルタイム測定装置を新たに構築し、運用を開始した。

研究成果の概要(英文)：We have developed a high-sensitivity radon detector (80L detector) to assay remaining radon in purified rare gases. We have lowered background level of the 80L detector. The achieved background level of the 80L detector is  $0.81 \pm 0.08$  (count/day). This level is about 1/3 of that of the previous radon detector. The basic performances are obtained in Ar gas and in Xe gas. This will enable us to apply the 80L detector to a dark matter search experiment with rare gas and so on. In a dark matter search experiment, XMASS, a real-time measurement device to assay radon in purified water is newly developed in this research, then started its operation.

研究分野：素粒子物理学実験

キーワード：ラドン キセノン ダークマター 放射線 素粒子実験 吸着 ナノ素材 活性炭

## 1. 研究開始当初の背景

近年、地下空間を利用した低エネルギー (keV ~ MeV 領域) の精密素粒子物理学実験が活発に進められている。地下は宇宙線の影響を大幅に低減することが可能であるため、極低バックグラウンドを要求する物理実験に最適である。例えば、太陽及び超新星ニュートリノの観測実験、ニュートリノのダブルベータ崩壊の観測実験、宇宙暗黒物質 (ダークマター) の直接探索実験など、応用範囲は非常に広く、またいずれも現在の素粒子物理学上で重要な研究課題となっている。

低エネルギー地下実験における共通の主要なバックグラウンドの1つはラドン-222 (以下、ラドン) である。ラドンは土壤に含まれるラジウム-226 の崩壊によって生成されるため、一般的に地下では濃度が非常に高くなる傾向がある。希ガスであるので、あらゆる観測装置内に進入し易い。また、半減期が3.8日で最大エネルギー3.26MeVのベータ崩壊をするため多くの低エネルギー精密実験でバックグラウンド事象になり得る。そのため、地下実験における微量ラドンの測定に関して、世界各地の地下施設で研究が行われている。

東京大学宇宙線研究所附属神岡宇宙素粒子研究施設の地下実験サイトは、世界でも有数の地下物理実験施設であり、神岡鉱山の地下1000mに設置される。神岡坑内では宇宙線ミュー粒子の強度が約10万分の1に低減されるがラドン濃度が高く、地上では通常1~10Bq/m<sup>3</sup> (ベクレル/立方メートル) 程度であるところ、坑内空気中で100~1000Bq/m<sup>3</sup> となる。そのため神岡坑内で低エネルギー精密物理実験を行うためには、ラドンの削減及びモニターが不可欠である。

我々の研究グループはこれまで神岡坑内において、スーパーカミオカンデ実験での低エネルギー事象観測をサポートするために、純水中の極微量ラドン濃度を測定し削減する研究を行ってきており、純水中の0.7mBq/m<sup>3</sup> の濃度のラドンに感度のある検出器を開発した[NIM A 497(2003)414]。リアルタイムラドン濃度測定器としては世界最高感度を誇っていた。

一方、当時、神岡坑内では新たにエクスマス(XMASS)実験が進行中であった。エクスマス実験では、約1トンの極低バックグラウンドの液体キセノンと、約642本の低バックグラウンド光電子増倍管(PMT)で構成されるXMASS-I検出器を用いて、世界最高の感度での宇宙暗黒物質の直接探索を行うことを目標としていた。XMASS-I検出器の建設は2010年9月に完了し、当時、試験観測中であった。

ラドンはXMASS実験においても主要なバックグラウンド源の1つであり、XMASS-I検出器内の液体キセノン中のラドン濃度の最終目標値は検出器全体で1.0mBq(ミリベ

クレル)であった。しかし、2011年夏にまとめられた最新の結果では、試験観測中にXMASS-I検出器全体で $8.2 \pm 0.5$ mBqのラドン-222が残留している事がわかり、ラドン対策が急務であることが判明した。

## 2. 研究の目的

本研究では、これまでに我々が開発してきた静電捕集型ラドン濃度測定器のバックグラウンドをさらに低減し、また新たなラドン濃度濃縮デバイスを開発して組み合わせることにより、検出限界を飛躍的に高めた希ガス中のラドン濃度測定システムを構築する事を目指した。当初の目標は、キセノン及びアルゴン中のラドン濃度測定を0.01mBq/m<sup>3</sup>の感度で行う事であった。また、本装置をエクスマス実験で使用している純キセノン中のラドン濃度分析に応用することにより、XMASS-I検出器におけるダークマター探索の信頼度を高めることを目指した。

研究の過程に於いて、当初目標としたキセノン中のラドン濃度測定に関してエクスマス実験に応用するためには、より開発に時間をかけることが必要である事が判明した。キセノン中のラドン濃度はXMASS検出器本体でも測定できるため、暗黒物質探索実験における静電捕集型ラドン濃度測定器の応用としては、エクスマス実験の純水放射線シールド中のラドン濃度の連続的な定量測定を初めて行う事を目指した。また連続的な長期測定を続けて、暗黒物質の季節変動解析への影響を評価することを目指した。

## 3. 研究の方法

本研究においては、まず、(1)高効率ラドントラップの開発、(2)低バックグラウンドラドン測定器の開発、の2つの要素技術の開発に取り組んだ。

(1)高効率ラドントラップの開発に関しては、竹内(代表)、田阪(分担)、鈴木(分担)、身内(連携)が期間を通して取り組んだ。数種類の活性炭、ガラスウール、シラス多孔質ガラス(SPG)、活性炭素繊維(ACF)、などの各種吸着剤を取り寄せ、吸着試験を行った。物理化学分野の専門家にも話を伺い、情報収集を行い、研究を進めた。

(2)低バックグラウンドラドン測定器の開発に関しては、竹内(代表)、関谷(連携)が主に取り組んだ。静電捕集効率の最適化、ラドン放出率の低い検出容器の研究、異なる検出容器形状での試験、基本特性の評価、に取り組んだ。

上記、2つの要素技術開発の他に、研究期間の後半には、安価なデータロガーの開発に田阪(分担)、関谷(連携)が主に取り組んだ。また、エクスマス純水装置中の残留ラドン分析装置の開発に、竹内(代表)、鈴木(連携)が主に取り組んだ。装置の構築を行い、システム

の較正を行い、エクスマス実験での運用をし、得られた観測データの解析と評価を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 高効率ラドントラップの開発

まず、細孔の大きさに着目して数種類の市販活性炭を入手し、アルゴン中及びキセノン中ラドンの吸着性能の確認試験を行った。各5gの活性炭を使用し、流量0.25~0.90L/minの範囲で測定したところ、ラドンの吸着効率が最大でも44%程度であることが判明した。より多くのラドン吸着が望ましいため、細孔の大きさを調整したカスタム品の製作に関して活性炭メーカーと打ち合わせを行ったが、製作は難しいことが判明した。

その後、新たな吸着剤の候補として、ガラス材料に着目した。3種類のラドン吸着材料、ガラス管、ガラスウール、シラス多孔質ガラス(SPG)を、液体窒素で-197℃まで冷却して、純空気とアルゴンガス雰囲気中でラドン吸着率の測定実験を行った。図1に実験結果を示す。

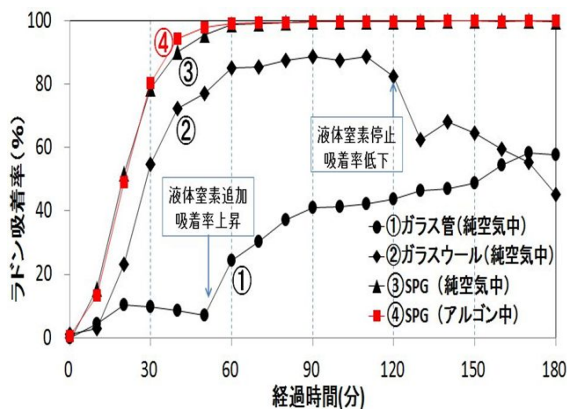


図 1: ガラス材料を用いたラドン吸着率の測定結果。

実験結果は、SPGがアルゴンガス雰囲気中でも、十分なラドン吸着性能を示した。多孔質ガラスは、高い機械的強度、耐熱性、化学的耐久性、良好な成形性、細孔径数nm~数 $\mu$ mのシャープな細孔分布、などの特徴を有し、活性炭に代わる新しいラドン吸着材料であることが確認された。しかし、SPG自体から、ラドンの放出が顕著であることがこの試験の後に判明した。希ガス中ラドンの濃度が高い場合には適用できるが、0.01mBq/m<sup>3</sup>の感度を実現するためには、市販のSPGは使用できないことがわかった。高純度な素材を用いたSPGなどが製作可能であれば適用可能になる可能性はある。

さらに、物理化学の専門家を訪問し、ナノ細孔素材による希ガスの分離に関して情報を収集した。各種のナノ細孔素材の特徴と我々の要求を総合的に勘案した結果、活性炭素繊維(ACF)なら可能性がありそうだとこの結

論に至った。ACFメーカーと秘密保持契約を結び、ACF試料の提供を受けて研究を進めた。しかし、本研究期間終了までに有意な吸着性能を示す素材は見つかっていない。

##### (2) 低バックグラウンドラドン測定器の開発

我々が開発したラドン濃度測定器(80L検出器と呼ぶ)の、検出効率の最適化、内部起源バックグラウンドの評価、さらなる低バックグラウンド化、較正試験システムの構築、及び特性試験に取り組んだ。

検出効率の最適化に関して、PINフォトダイオードの位置を電場シミュレーションの結果も考慮して調整した。その結果、検出器表面から5cm程度離れた場合に適切な電場が形成されることが確認できた。この後の試験は、全てこのPINフォトダイオードの位置を採用して行われた。

ラドン放出量の測定に関して、検出器構成部材の1つである高純度セラミック試料数種類のサンプルをメーカーから取り寄せ、80L検出器に投入して、ラドン放出量の測定試験を行った。その結果、試験に用いた80L検出器のバックグラウンドレベルから有意に高い放射性核種は見つかっていない。よって、セラミック素材は主要なラドンバックグラウンド源ではないことが判明した。80L検出器内面への再電解研磨(日造精密研磨株式会社の電解複合研磨(ECB))を行ったところ、バックグラウンドレベルが有意に低減した。表1に、80L検出器(後述の図2のNo.1検出器)にECB再処理を施す前後での80L検出器内部の各放射性核種の放出量の比較を示す。

	ECB 再処理前 (count/day)	ECB 再処理後 (count/day)
<sup>224</sup> Ra	6.0 +/- 0.5	<0.15
<sup>218</sup> Po	18.8 +/- 0.8	0.8 +/- 0.1
<sup>220</sup> Rn	3.3 +/- 0.3	<0.1
<sup>216</sup> Po	3.1 +/- 0.3	<0.1
<sup>214</sup> Po	6.6 +/- 0.5	0.8 +/- 0.1
<sup>212</sup> Po	24.7 +/- 1.0	0.4 +/- 0.1

表 1: ECB再処理前後の各放射能核種の放出量。

この結果、エタノール洗浄などでは除去できない表面汚染がECB処理によって除去されることが確認された。ECB再処理後の80L検出器を用いて、80L検出器のバックグラウンド評価を行った。80L検出器に大気圧の純空気を充填し封じ込めた後、-2.0kVの電圧をかけて、132日間この状態を維持して測定を行った。その結果、Po-214の内部バックグラウンドレベルは、0.81±0.08(count/day)であることがわかった。以前の70Lラドン検出器では、2.4±1.3(count/day)であったため、バックグラウンドレベルを約1/3に低減することができた。

80L 検出器の較正システムを、神戸大学内及び東京大学宇宙線研究所附属神岡宇宙素粒子研究施設内に構築した。図 2 に本学内でのシステムの概要を示す。



図 2: 神戸大学内での較正試験システム。

80L 検出器は内部に各種ガスを充てんし、そのガス中のラドン濃度を評価するための装置である。ガスの種類によって、検出器は異なる振る舞いをする。今回、80L 検出器の較正作業に関して、純アルゴン、純キセノン、純空気を用いて、高電圧特性と湿度特性を測定した。結果の一例として、湿度特性の較正結果を図 3 に示す。

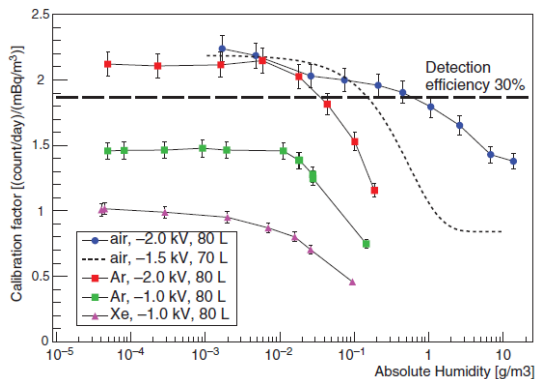


図 3: 較正試験の結果[雑誌論文 の Fig.5]

得られた 80L 検出器の感度は、例えば、 $2.1 \pm 0.2(\text{stat.} + \text{syst.}) (\text{count/day})/(\text{mBq/m}^3)$  (at  $0.002 \text{ g/m}^3, -2.0 \text{ kV, Ar}$ )であった。本セットアップにより、80L 検出器の希ガスに対する基本特性が初めて得られ、希ガスを用いた暗黒探索実験への 80L 検出器の応用への道が開けた。一連の開発成果は、雑誌論文のにまとめて、公表を行った。

### (3) 安価なラドンデータロガーの開発

神岡の地下研究施設では、環境中のラドン濃度モニター用に、複数台の各種のラドン検出器が設置されている。本研究においては、それらのラドン検出器に関して、小型ボードコンピュータ Raspberry Pi を用いた安価なラドンデータロガーシステムを開発した。新規に Raspberry Pi 用のラドン信号 AD 変換

回路を製作し、またシステムプログラムとして、計測プログラムとラドン濃度表示のための Web 用 CGI プログラムを作成した。本システムを、2014 年 12 月に SK 実験室内に設置して、空気中のラドン濃度測定の試験を行った。その結果、本システムはラドン子孫核種  $^{218}\text{Po}$  と  $^{214}\text{Po}$  からの 2 個の線信号を確実に捉えていることが確認された。神岡坑内の、スーパーカミオカンデ(SK)実験区域の 3 箇所、SK 第 2 純水装置室、LAB-B 実験室、LAB-E 実験室に設置されているラドン検出器に対して本データロガーを用いた所、空気中ラドン濃度測定結果は従来の測定値と同様の値となり、問題なく利用できることが確認された。図 4 に本研究で開発したラドンデータロガーを示す。

### RaspberryPi B+ ラドン測定AD変換ボード

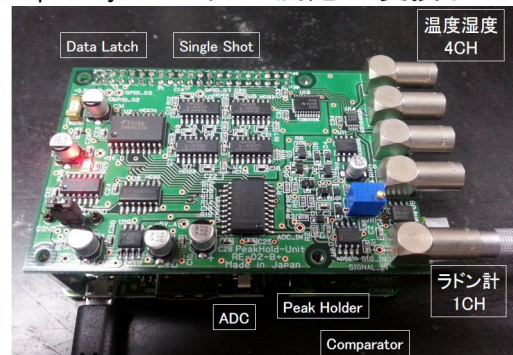


図 4: 本研究で開発したラドンデータロガー

### (4) エックスマス実験へのラドン測定技術の応用

神岡地下で行われている暗黒物質の直接探索を目指しているエックスマス実験において、我々のラドン検出器を応用した水中ラドンのリアルタイム測定装置を新たに構築し、運用を開始した。当初の計画では本研究で開発した希ガス中ラドン測定の装置を用いて、XMASS のキセノン中ラドンの分析に応用する計画ではあったが、XMASS 実験の要求を満たすラドン吸着技術の開発には時間がかかりそうであること、キセノン中のラドン濃度は XMASS-I 検出器本体でも測定できること、XMASS-I 検出器の周りに放射線シールドとして設置している純水中のラドン濃度のモニターはこれまで行われておらず、そちらの測定を行う必要性が高かったこと等の理由のため、純水中用のラドン測定装置を新たに開発して適用する方針に切り替えた。本装置では、要求される検出限界が  $10 \text{ mBq/m}^3$  程度と比較的高めであること、メンテナンスフリーで連続運転を行うこと、などの条件から、これまで我々が開発を行ってきた中空系膜モジュールと 70L ラドン検出器を組み合わせることで構築した。この組み合わせによるラドン測定は初めてであったため、ラドン検出器の感度を較正する装置も新たに構築した。装置は 2013 年 12 月に構築、

2014年3月まで調整の後、2014年3月下旬から現在まで連続的に、XMASS実験サイトで運用を行っている。図5に本研究で構築したXMASS純水シールド用の水中ラドン測定器を示す。2014年5月には予期していなかった純水装置の不具合を本装置により発見することができた。XMASS検出器で暗黒物質の季節変動の事象を観測するためには、純水中のラドン濃度は $2500(\text{mBq}/\text{m}^3)$ 以下に抑える必要があることがシミュレーションの結果から分かったが、本検出器で測定された最大のラドン濃度は $143 \pm 20(\text{mBq}/\text{m}^3)$ であった。本ラドン検出器は、暗黒物質探索の物理解析への影響が発生する前に未然に問題修正することに貢献できた。その後は、有意なラドンカウントレートの増加は観測されておらず、日本物理学会などで経過報告を行ってきている。

XMASSでは季節変動による暗黒物質探索の探索を行う計画であるが、そのためにはXMASS検出器を1年程度以上の期間に渡って長期安定に動作させる事が必要である。本純水用ラドンモニターで得られたデータは、純水シールド中のラドン濃度が、観測期間中に要求されるレベル以下であったことを示すための証拠として用いられる予定である。当初目標の、キセノン及びアルゴン中のラドン濃度測定を $0.01 \text{ mBq}/\text{m}^3$ の感度で行う装置の開発は、まだ継続中という状況ではあるが、最終的な、ラドン測定装置の暗黒物質探索実験への応用は達成することができた。



図5: XMASS用の水中ラドン濃度測定器

#### (5) 今後の展望

キセノン中のラドン吸着については引き続き、新学術領域「地下素核研究」の中の計画研究「極低放射能技術による宇宙素粒子研究の高感度化」において、研究開発を継続する予定である。

80Lラドン検出器に関しては、国内外の研究機関からの問い合わせがあり、技術提供を行ってきており、国際的にも認められたラドン検出器となった。例えば、South Dakota School of Mines & Techからの研究者が2014年1月に神戸大学に2週間滞在し、80Lラドン検出器に関してノウハウを学んだ。彼

らの大学でも我々のレプリカシステムを導入し、ラドン分析の研究開発に着手した。現在も頻繁ではないが、電子メールで情報のやりとりを行っている。

ラドンデータロガーに関して、新しく開発されたシステムは従来型のラドンデータロガーと比較して同程度の性能を示し、非常に小型で消費電力が少なく、また価格も約十分の一以下である。本研究で製作したラドンデータロガーシステムを用いることにより、非常に安価に、多地点ラドン濃度測定システムを構築することが可能となる。今後の発展が期待される地下実験施設の極低放射能技術の一つとして、その利用が期待されるものである。

エックスマスでの純水シールド中ラドン測定システムは、運用を開始してから1年が経過し、安定して動作している。今後もエックスマス実験での環境モニターとして利用される見込みである。

#### 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2件)

K. Hosokawa, A. Murata, Y. Nakano, Y. Onishi, H. Sekiya, Y. Takeuchi, S. Tasaka, “Development of a high-sensitivity 80 L radon detector for purified gases”, PTEP 2015, 033H01, 査読有り、DOI: 10.1093/ptep/ptv018

K. Hosokawa, A. Murata, Y. Nakano, Y. Onishi, H. Sekiya, Y. Takeuchi, and S. Tasaka, “Development of a high sensitivity radon detector for purified gases”, Journal of Physics: Conference Series 469, (2013) 012007, 査読無し、DOI:10.1088/1742-6596/469/1/012007

[学会発表](計17件)

田阪茂樹、「ラズベリーパイを用いたSK実験室内ラドン濃度測定システムの開発」、日本物理学会第70回年次大会、2015年3月21日、早稲田大学(東京都)

田阪茂樹、「高感度ラドン検出器開発とその応用研究」、「極低放射能技術」研究会、2015年3月9日、淡路夢舞台国際会議場(兵庫県)

中村卓、「水中ラドン濃度測定システムの性能評価」、「極低放射能技術」研究会、2015年3月9日、淡路夢舞台国際会議場(兵庫県)

細川佳志、「希ガス中でのラドン測定」、「極低放射能技術」研究会、2015年3月9日、淡路夢舞台国際会議場(兵庫県)  
竹内康雄、「高純度ガス用のラドン濃度測定器の開発」、平成26年度東京大学宇宙

線研究所共同利用研究成果発表会、2014年12月12日 東京大学柏キャンパス(千葉県)

Y. Takeuchi, “Low-radioactivity techniques for underground experiments”, International Workshop on “Double Beta Decay and Underground Science (DBD2014)”, 2014年10月6日、ハワイ(米国)

田阪茂樹、「スーパーカミオカンデにおける純水中ラドン濃度測定」、日本物理学会秋季大会、2014年9月18日、佐賀大学本庄キャンパス(佐賀県)

大西洋輔、「XMASS 実験におけるラドンバックグラウンドの研究」、日本物理学会、2014年9月18日、佐賀大学本庄キャンパス(佐賀県)

Y. Takeuchi, “Neutrino and non-accelerator group at Kobe”, KUBEC International Workshop on Dark Matter Searches, 2014年8月29日 ブリュッセル(ベルギー)

Y. Takeuchi, “Development of a high sensitive radon detector in Kamioka”, XXVI Conference on Neutrino Physics and Astrophysics (Neutrino 2014), 2014年6月2日、ボストン(米国)

竹内康雄、「高純度ガス用のラドン濃度測定器の開発」、平成25年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会、2013年12月21日 東京大学柏キャンパス(千葉県)

大西洋輔、「高感度ラドン検出器の開発」、日本物理学会秋季大会、2013年9月20日、高知大学朝倉キャンパス(高知県)

K. Hosokawa, “Development of a high sensitivity radon detector for purified gases”, 4th Workshop on Directional Detection of Dark Matter (CYGNUS2013), 2013年6月10日、オークスカナノレパークホテル富山(富山県)

村田亜紀、「XMASS 実験：キセノン中ラドンの吸着トラップの改良」、日本物理学会第68回年次大会、2013年3月28日、広島大学(東広島市)

竹内康雄、「高純度ガス用のラドン濃度測定器の開発」、平成24年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会、2012年12月7日 東京大学柏キャンパス(千葉県)

細川佳志、「新型超高感度ラドン検出器の性能評価」、原子核三者若手夏の学校、2012年8月5日、エバーグリーン富士(山梨県)

K. Hosokawa, “Development of a radon detector for purified gases”, XXV Conference on Neutrino Physics and Astrophysics (Neutrino 2012), 2012年7月3日、京都テルサ(京都府)

〔その他〕  
ホームページ等

<http://ppwww.phys.sci.kobe-u.ac.jp/2013/laboratory/radon/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

竹内 康雄 (TAKEUCHI, Yasuo)  
神戸大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：60272522

### (2) 研究分担者

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

鈴木 州 (SUZUKI, Atsumu)  
神戸大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号：20243298

(H25 から研究分担者として参画)

### (3) 連携研究者

身内 賢太郎 (MIUCHI, Kentarou)  
神戸大学・大学院理学研究科・准教授  
研究者番号：80362440

関谷 洋之 (SEKIYA, Hiroyuki)  
東京大学・宇宙線研究所・助教  
研究者番号：90402768

### (4) 研究協力者

村田 亜紀 (MURATA, Aki)  
神戸大学・大学院理学研究科・大学院生

細川 佳志 (HOSOKAWA, Keishi)  
神戸大学・大学院理学研究科・大学院生

大西 洋輔 (ONISHI, Yosuke)  
神戸大学・大学院理学研究科・大学院生