

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

東海大学大学院理学研究科物理学専攻博士課程前期二年
根本 真知子

1998年2月

概 要

我々が開発した、静電捕集型超高感度ラドン検出器の濃度校正実験を行った。このラドン検出器には空気用と水用の2種類があり、共にスーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測のバックグラウンドの一つである、水中ラドン濃度の精密測定を行う事を目的として開発されたものである。空気用ラドン検出器は、スーパーカミオカンデの水槽上部にある空気層中のラドン濃度を測定することにより、空気層中のラドンが水中に与える影響を監視する。スーパーカミオカンデでは水中ラドン濃度を数 mBq/m^3 以下に低減することを目標としているので、ラドン検出器もその領域に対して感度を持つ事が要求されている。現在のところラドンモニターとして、一般に市販されている検出器(電離箱やLSC等)は、およそ数十~数百 Bq/m^3 以上の領域に対してしか感度を持たない。したがって、ラドン濃度が数 mBq/m^3 以下という領域に感度を持つラドン検出器を実現させるためには、測定法や検出部について独自に開発を行うことが必要となるのである(付録A)。

我々の採用した静電捕集法は、検出効率の湿度依存性が指摘されており、濃度校正定数も、スーパーカミオカンデでの実測定環境と同じ条件下、

$$\begin{aligned} \text{絶対湿度} & : 0.08g/m^3 \sim 11g/m^3 \\ \text{ラドン濃度} & : < \text{数 } mBq/m^3 \end{aligned}$$

で求める事が必要とされる。

したがって、空気用については $10^{-2} \sim 10^4 Bq/m^3$ のラドン濃度まで対応可能な校正システムを完成させ、校正定数の湿度特性及び濃度特性について校正実験を行った。水用については、 $\sim 10^{-1} mBq/m^3$ 以下のラドン濃度まで対応可能な校正システムを完成させた。また、その過程で校正の標準値を与える定濃度ラドン水を安定に作る事の出来るシステムを完成させた。水用ラドン検出器は、本来ならば低水位状態で測定を行うように設計されたものだが、実測定において高水位になってしまうという問題が発生した。それは、スーパーカミオカンデの純水が脱気水であるために、密閉されたラドン検出器内の空気が純水に溶け込み、検出器内部を負圧にしてしまうからである。そのため、水用ラドン検出器については、高水位と低水位の2つの状態について校正実験を行った。その結果、以下に示すように、信頼性の高いラドン濃度校正定数を得ることができた。

ラドン検出器	校正定数 [$cpd/mBq/m^3$]
空気用@ $0.08g/m^3$	$2.2 \pm 0.2_{stat.syst.} \pm 0.4_{unknown syst.}$
@ $11g/m^3$	$0.86 \pm 0.06_{stat.syst.} \pm 0.2_{unknown syst.}$
水用@低水位	$3.6 \pm 0.5_{stat.syst.}$
@高水位	$0.41 \pm 0.05_{stat.syst.}$

また、水用ラドン検出器の検出限界値が数 mBq/m^3 の領域にあること、及び現在のスーパーカミオカンデの水中ラドン濃度も数 mBq/m^3 の領域にあることが判明した。したがって、今後、更に高感度なラドン検出器の開発が求められる。

目次

第1章	序論	1
第2章	太陽ニュートリノ観測	6
2.1	太陽ニュートリノ	6
2.1.1	生成機構	6
2.1.2	太陽ニュートリノ問題	8
2.1.2.1	歴史	8
2.1.2.2	ニュートリノ振動	9
2.2	スーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測	12
2.2.1	検出器	12
2.2.2	検出原理	13
2.2.3	純水装置	14
2.2.4	20 インチ光電子増倍管	17
2.2.5	データ収集システム	18
第3章	静電捕集型超高感度ラドン検出器の校正	19
3.1	検出器	19
3.2	検出部	19
3.2.1	PIN フォトダイオード	19
3.2.2	高電圧分割回路およびアンプモジュール	22
3.3	空気用ラドン検出器の校正実験	23
3.3.1	高電圧特性	23
3.3.2	湿度特性 1-岐阜大学-	24
3.3.2.1	method1	26
3.3.2.2	method2	27
3.3.3	湿度特性 2-研究棟-	27
3.3.3.1	method3	28
3.4	水用ラドン検出器の校正実験	29
3.4.1	標準ラドン水製造システム	31
3.4.2	校正システム	31
3.4.3	実験方法	32
第4章	結果	34
4.1	空気用ラドン検出器	34

4.1.1	湿度特性	34
4.1.2	濃度特性	36
4.2	水用ラドン検出器	37
4.2.1	低水位	37
4.2.2	高水位	37
第 5 章	議論	39
5.1	ラドン検出器校正実験の系統誤差	39
5.2	静電捕集型ラドン検出器の湿度特性	40
5.3	水用ラドン検出器の水位依存性	43
5.4	超高感度ラドン検出器の評価	44
5.5	現在使われている校正定数との比較	45
5.6	スーパーカミオカンデにおけるラドン濃度測定	46
5.7	スーパーカミオカンデへのラドン水注入実験	50
5.7.1	実験方法	50
5.7.2	解析及び結果	51
第 6 章	結論	54
付 録 A	ラドン濃度測定法	58
A.1	Active 法	58
A.2	Passive 法	59
A.3	主な検出器の特徴	60
A.4	参考文献	61

目 次

1.1	スーパーカミオカンデで観測された太陽ニュートリノの標準太陽模型に対する強度比 (DATA/SSM) のエネルギースペクトラム	3
1.2	スーパーカミオカンデで観測された全ニュートリノの各リダクション段階におけるエネルギースペクトラム	3
2.1	pp-chain	7
2.2	CNO cycle	7
2.3	太陽ニュートリノのスペクトラム	8
2.4	MSW 効果で許されるパラメーター領域	11
2.5	スーパーカミオカンデ	12
2.6	純水装置	16
2.7	ラドンフリーエア製造装置	16
2.8	光電子増倍管	17
3.1	静電捕集型超高感度空気用ラドン検出器の概略図	20
3.2	静電捕集型超高感度水用ラドン検出器の概略図	21
3.3	高電圧分割回路およびアンプ回路	22
3.4	高電圧依存性	24
3.5	空気用ラドン検出器校正システム概略図-岐阜大学-	25
3.6	シリンジによって湿度コントロールを行なった時の測定結果	26
3.7	冷却装置によって湿度コントロールを行なった時の測定結果	27
3.8	空気用ラドン検出器校正システム概略図-研究棟-	28
3.9	ラドン濃度数 Bq/m^3 における湿度依存性	29
3.10	オストワルト係数	30
3.11	水用ラドン検出器校正システム概略図-研究棟-	32
3.12	低水位における典型的な測定結果	33
3.13	高水位における典型的な測定結果	33
4.1	ラドン濃度 ~ 数千 Bq/m^3 における空気用ラドン検出器の湿度特性-岐阜大学-	35
4.2	ラドン濃度 ~ 数 Bq/m^3 における空気用ラドン検出器の湿度特性-研究棟-	35
4.3	ラドン検出器の濃度特性	36
5.1	校正定数の逆数と平方根をとった絶対湿度の関係-湿度特性 1-	42
5.2	校正定数の逆数と平方根をとった絶対湿度の関係-湿度特性 2-	42

5.3	水槽入口におけるラドンフリーエア中ラドン濃度	47
5.4	水槽出口における空気中ラドン濃度	47
5.5	水槽への送り水中のラドン濃度	48
5.6	水槽からの戻り水中のラドン濃度	48
5.7	外水槽中 $z=+17\text{m}$ 付近のラドン濃度	49
5.8	ラドン水注入実験の概略図	50
5.9	事象発生点の R^2 分布	52
5.10	事象発生点の Z 分布	52
5.11	ラドン Run - バックグラウンド Run	53
5.12	バックグラウンド Run	53

表 目 次

1.1	スーパーカミオカンデとカミオカンデの性能	5
2.1	太陽ニュートリノの観測結果と標準太陽模型 (BP95) ^[13] との比較	9
3.1	LSC による標準ラドン水濃度の測定	31
4.1	湿度特性 1 と 2 を合わせた空気用ラドン検出器の校正結果	36
4.2	低水位状態における水用ラドン検出器の校正結果	38
4.3	高水位状態における水用ラドン検出器の校正結果	38
5.1	ラドン検出器校正実験の系統誤差	39
5.2	ラドン検出器校正実験の合成された系統誤差	40
5.3	キュリーの方法による水用ラドン検出器の検出限界値	44
5.4	スーパーカミオカンデにおけるラドン測定 (1998 年 1 月)	49

第1章 序論

太陽のような恒星は、星の中心部で起きている核融合反応によって、巨大なエネルギーを生み出している。その大部分は水素燃焼段階によるものである。4個の陽子 p が融合して1個のヘリウム ${}^4\text{He}$ を作る時、2個の電子ニュートリノ ν_e が生成される。そして我々は、特に太陽についてこの ν_e を太陽ニュートリノと呼んでいる。

太陽ニュートリノは、物質との相互作用がほとんどないため、生成されてからわずか2秒で太陽表面に、およそ8分で地球に到達する。そのため、太陽ニュートリノを観測することによって、まさに今、太陽の中心部で起きている核融合反応について情報を得ることができるのである¹。そのため、太陽ニュートリノは天体物理学の世界にとって大変興味深い観測対象である。しかし、現在は天体物理学以上に素粒子物理学の世界から注目が集まっている。それは、太陽ニュートリノ問題という観測される太陽ニュートリノの強度が、標準太陽模型の予言より有意に少ないという問題が提起されたためである^[1]。1968年に塩素実験でデービス達が発見して以来、20年以上も未解決のままである。

現在の、太陽ニュートリノ問題に対するもっともエレガントな解釈としては、有限質量をもつニュートリノがニュートリノ振動を引き起こしているという考え方がある。特に、MSW効果と呼ばれる物質中におけるニュートリノ振動が、太陽ニュートリノでは重要である。詳しくは、第2章で紹介する。

太陽ニュートリノ問題が未だ解決しない理由の一つは、これまでのどの実験においても一日当たりの事象数が1事象以下という非常に少ない統計量であるという事、標準太陽模型の基本入力パラメータの不確定性が大きい事があげられる。そのため、標準太陽模型に依存しない、精度の高い実験が求められている。

そのような中、1996年4月、岐阜県吉城郡神岡町の地下1000mでスーパーカミオカンデが太陽ニュートリノ観測を開始した。スーパーカミオカンデは、1998年3月で活動を終了するカミオカンデを前身としている。カミオカンデは、1983年に大統一理論の帰結である核子崩壊の検出を目的として開始された実験で、核子の寿命に下限を与えSU(5)大統一理論を否定するに至った^[2]。そして、1987年2月に史上初めて超新星爆発(SN1987A)からのニュートリノバーストを観測^[3]し、その名を世界に知らしめる事となった。また、カミオカンデ実験が始まってまもないころ、 ${}^8\text{B}$ (最大エネルギー15MeV)による太陽ニュートリノを検出できる可能性が示唆された。核子崩壊の検出のバックグラウンドとなる宇宙線ミューオンを精密解析した結果、解析しきい値を15MeVまで下げる事ができたためである。その後、ニュートリノ検出器として数々の改良を重ね、塩素実験以来指摘されていた太陽ニュートリノ問題を追認し、かつニュートリノ天文学という分野を確立して来た。

このようにカミオカンデは素粒子物理学及び天体物理学の世界に大きな業績を上げる事が出来た。しかし残された課題も多く、更なる探求のためには検出器の大型化、高性能

¹光は物質によって散乱されるので、太陽中心から表面に到達するまで、およそ100万年かかる。

化が求められるようになった。そうしてスーパーカミオカンデが誕生したのである。スーパーカミオカンデとカミオカンデの性能を表 1.1 にまとめた。

太陽ニュートリノのエネルギーは、0MeV に近いところからおよそ 18MeV に渡って分布している。スーパーカミオカンデでは、バックグラウンド事象のために検出器のエネルギーしきい値が制限され、エネルギーの高い⁸Bのみが検出可能で、ニュートリノと電子の弾性散乱による反跳電子の観測を行っている。カミオカンデでは時間、エネルギー、方向についての情報を伴った観測を特徴としてきたが、スーパーカミオカンデではさらに、一日当たり 30 事象という高い統計量の太陽ニュートリノが観測可能になり、また光電面履率が 2 倍になったことからエネルギー分解能が向上した。そのため、反跳電子のエネルギースペクトラムを高精度で測定できるようになった。さらに、スーパーカミオカンデでは太陽ニュートリノの日夜変動、季節変動の解析も行っており、太陽内部におけるニュートリノ振動だけでなく、地球内部及び真空中におけるニュートリノ振動についても調べることが出来る。これらの測定は、標準太陽模型に依存しない。もし、スーパーカミオカンデで観測された太陽ニュートリノの標準太陽模型 (SSM) に対する強度比がエネルギーに対して一様ならば MSW の小角度解が否定され、日夜変動が無いならば大角度解が否定される事になる。つまり、スーパーカミオカンデの観測結果から、ニュートリノ振動の MSW 解について結論づけることが期待されるのである。

現在のスーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測の問題点の一つに、低エネルギーバックグラウンドの同定及び除去がある。現在の解析しきい値は 6.5MeV だが、さらに 5MeV まで下げることを目指している。その理由は、前述にあるように、太陽ニュートリノの強度比のエネルギーに対する歪みを調べるためである。図 1.1 に、スーパーカミオカンデで観測された太陽ニュートリノの標準太陽模型に対する強度比 (DATA/SSM) のエネルギースペクトラムを紹介する。これを見ると、エネルギーの高い方で強度比が大きくなっている様に見えるが誤差が大きく、強度比の歪みがあると有意にいう事は出来ない。このエネルギースペクトラムの歪みを詳細に確認するために、エネルギーの系統誤差を小さくする努力が図られているが、それに加えてさらにエネルギーの低いところにデータが得られれば、この議論に対して大きな判断材料となるのである。

図 1.2 に、これまでスーパーカミオカンデで観測された全ニュートリノの、各リダクション段階でのエネルギー分布を紹介する。「After gamma cut」が太陽ニュートリノ解析に使っている最終データセットであるが、これを見ると現在のしきい値 6.5MeV 以下のところで、事象数が跳ね上がっている。これは、各事象の到来方向の分布を調べて、バックグラウンドであることがわかっている。この領域のデータを太陽ニュートリノ解析に使うためには、SN 比をさらに 10 倍以上良くする事が求められる。

では、低エネルギー領域のバックグラウンドが何によるものかということ、現在有力視されているのが、ラドン ²²²Rn の娘核ビスマス ²¹⁴Bi の β 崩壊である [4][5]。これは、最大で 3.26MeV のエネルギーを持ち、スーパーカミオカンデ検出器のエネルギー分解能の影響により 7MeV 付近まで浸みだしがあると考えられる。そのため、純水中のラドン濃度を精密に測定して、バックグラウンドへの寄与を正確に知る事が、今後のバックグラウンド削減に役立てられる事になる。

本論文で報告する超高感度ラドン検出器は数 mBq/m^3 の検出限界を目標とし、スーパーカミオカンデ内の空気中、及び水中ラドン濃度を監視するために開発されたものであ

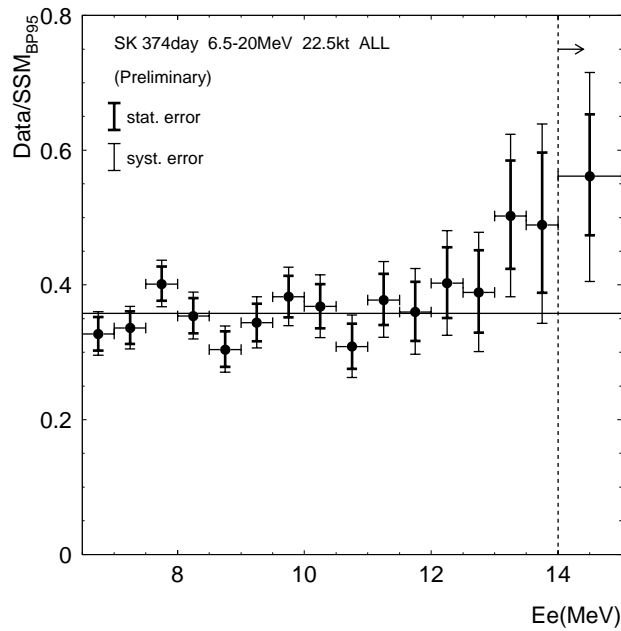


図 1.1: スーパーカミオカンデで観測された太陽ニュートリノの標準太陽模型に対する強度比 (DATA/SSM) のエネルギースペクトラム

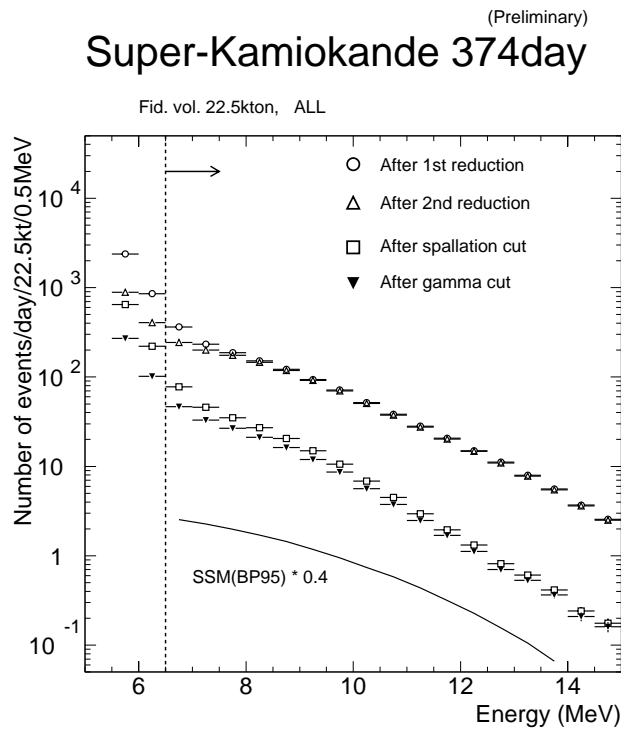


図 1.2: スーパーカミオカンデで観測された全ニュートリノの各リダクション段階におけるエネルギースペクトラム

る。カミオカンデでは、太陽ニュートリノの解析エネルギーしきい値は 7MeV であったが、先にも述べた様にスーパーカミオカンデでは 5MeV を目指している。そのためには、カミオカンデにおいて約 $0.5\text{Bq}/\text{m}^3$ であった純水中ラドン濃度を $1/100(5\text{mBq}/\text{m}^3)$ 以下に減らすことが求められ²、スーパーカミオカンデ検出器自身と周辺環境、及び純水装置においてラドン濃度低減のための工夫を凝らしている。そして、それだけの極低濃度ラドンを検出可能な検出限界を持ち合わせる、超高感度ラドン検出器が求められたのである。

スーパーカミオカンデは上層部分に空気の層があり、ラドン濃度の高い坑内の空気が純水に触れるのを防ぐためにラドンフリーエアと呼ばれるラドン除去空気を作って、そこに流し込んでいる。そのため、純水中のラドン濃度の監視と共にラドンフリーエア中のラドン濃度の監視も行う必要がある。

しかし、数 mBq/m^3 のラドン濃度を定量的に測定出来るラドン検出器は、これまで一般に実用化されていなかった。そこで我々は、静電捕集法と PIN フォトダイオードを用いた超高感度ラドン検出器を開発した [6][7]。

ラドン濃度の測定は、 ^{222}Rn の娘核種である ^{218}Po の 90% 以上が正に帯電しているという性質 [8] を利用して PIN フォトダイオードに静電捕集し、そこでの α 線のエネルギーを高精度で測定することによって行なう。ただし、静電捕集法は、空気中の水蒸気による $^{218}\text{Po}^+$ の電気的中和現象が指摘されており、ラドン検出器内部に存在する水蒸気量が検出効率を変化させるという難点を持つ。

我々は、このラドン検出器の開発の際に校正定数

$$\text{校正定数} [\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3] = \frac{\alpha\text{線の検出数} [\text{cpd}]}{\text{ラドン濃度} [\text{mBq}/\text{m}^3]} \quad (1.1)$$

を暫定的に求めた。しかし、その時は上述の事を考慮せず、湿度特性については詳しく測定しなかった。そのため、今回は、ラドン検出器内のガス中の絶対湿度をコントロールして検出器のラドン濃度校正を行った。また、本ラドン検出器の測定対象は $10^{-3} \sim 10^{-2}\text{Bq}/\text{m}^3$ の領域であるが、前回の校正は $10^3 \sim 10^4\text{Bq}/\text{m}^3$ の領域で行われた。今回は、広範囲なラドン濃度領域で校正可能なシステムを開発し、 $10^{-1} \sim 10^4\text{Bq}/\text{m}^3$ の領域で校正実験を行った。求める校正定数 $[\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3]$ ³は、 $^{218}\text{Po}^+$ のイオン化率、その中和率、電場の状態、捕集後に α 線が PIN フォトダイオード側を向く確率、などの過程によって決まる値である。これらの過程は理論的には完全に解明することは難しく、校正実験は、既知濃度のラドンをラドン検出器内に供給し、そのラドン検出器のカウント数を計数し、両者を比較することにより行う。

本論文は、超高感度ラドン検出器校正実験システムの設計とその校正結果について述べることを目的とする。また、スーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測のバックグラウンドとして存在するラドン量の見積もりについても議論する。第 2 章ではスーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測について、第 3 章では超高感度ラドン検出器校正実験システムについて、第 4 章では校正実験の結果について述べ、第 5 章では議論、第 6 章で本論文のまとめを行う。

²頭初、低エネルギーのバックグラウンドを全てラドンによるものとして、SN 比を 100 倍良くするためにはラドン濃度を $1/100$ に低減する事で十分であると思われていた。しかし、実際 $1/100$ ではしきい値 5MeV を達成することは出来ず、さらに低減することが求められた。

³cpd : count per day

	スーパーカミオカンデ	カミオカンデ
大きさ	41mh × 39mφ	16mh × 19mφ
全体積	50000 トン	4500 トン
太陽ニュートリノに対する有効体積	22500 トン	680 トン
超新星爆発に対する有効体積	32000 トン	2140 トン
外部タンクの厚さ	2.6~2.75 メートル	1.2~1.5 メートル
光電子増倍管の数 (内水槽)	11146	948
光電面の占める割合	40 %	25 %
光電子増倍管の時間分解能	~ 2.2ns	~ 4ns
電子のエネルギー分解能 (E[GeV])	2.6 % / \sqrt{E}	3.6 % / \sqrt{E}
電子のエネルギー分解能 ($E \leq 20MeV$)	15 % / $\sqrt{\frac{E}{10MeV}}$	19 % / $\sqrt{\frac{E}{10MeV}}$
電子の位置分解能 (10MeV)	50 cm	100 cm
電子の角度分解能 (10MeV)	25°	26°
トリガー閾値	5.6MeV	5.2MeV
解析エネルギー閾値 (太陽ニュートリノ)	6.5MeV	7.0MeV

表 1.1: スーパーカミオカンデとカミオカンデの性能

第2章 太陽ニュートリノ観測

2.1 太陽ニュートリノ

2.1.1 生成機構

星が、数百万年から数十億年といった長い時間輝き続けているのは、星の主成分である水素が核融合反応をおこして、巨大なエネルギーを生み出しているからである。星の一生の大部分は、この水素燃焼段階にあり、式 2.1 の反応を起こす。生まれたての星は、重力収縮を起こすことによって温度が上昇する。やがて、星の中心部の温度が一千万度に達すると、熱核融合反応が始まるのである。

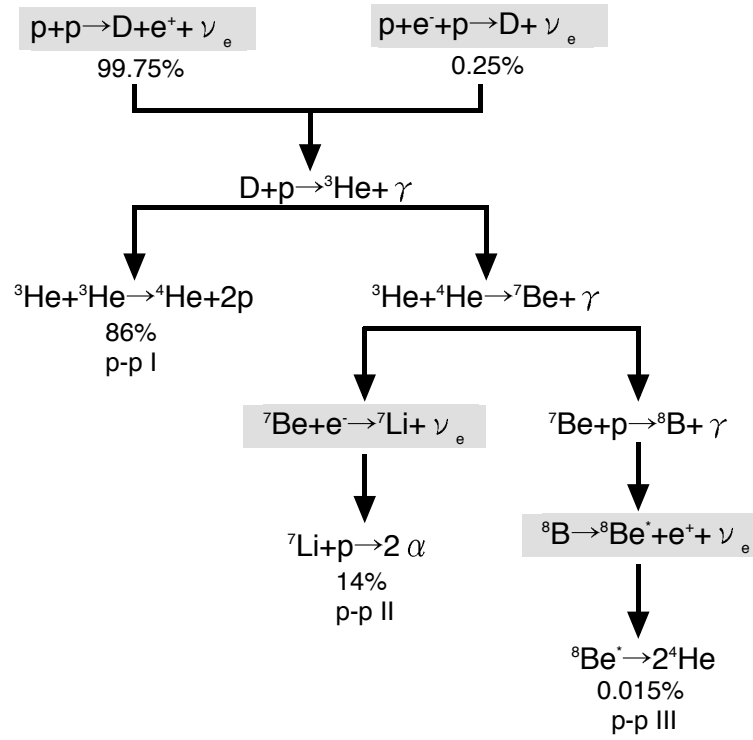


この反応で、26.7MeV のエネルギーと 2 個の ν_e が生成される。 E_ν は、ニュートリノが持ち去るエネルギーである。太陽の場合、光度が $3.85 \times 10^{33} \text{erg/s}$ なので、式 2.1 より、 3.6×10^{38} 個/秒 の水素原子が消費され、 1.8×10^{38} 個/秒の ν_e が生成されているはずである。

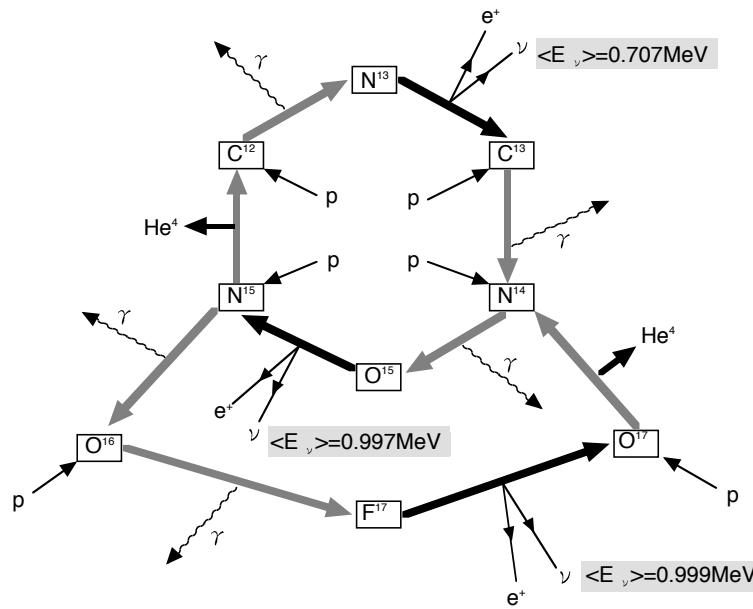
式 2.1 には、いくつかの反応過程がある。太陽の場合、およそ 98.5% が pp 連鎖 (図 2.1)、残りの 1.5% が CNO サイクル (図 2.2) という反応過程によっている。太陽中心部の温度が、CNO サイクルの活発になる温度より低いため、pp 連鎖が主な反応となっている。pp 連鎖は、2 個の陽子が融合して重陽子となり、陽電子とニュートリノが放出される pp 反応から始まる。その後、pp-I、pp-II、pp-III という 3 つの主要なブランチに分かれる。どのブランチを通っても最終的に式 2.1 が起きた事になる。この反応は、陽子同士がクーロン力で反発し合うため、非常にゆっくりと進行する。そのため、星は長い時間安定して輝いていられるのである。

CNO サイクルは、炭素、窒素、酸素が触媒となって、式 2.1 の反応を起こす過程である。これらの反応過程の中でニュートリノは、弱い相互作用によって生成される。そして、そのニュートリノのエネルギーは生成の素過程によって、異なるスペクトルを持つ。図 2.3 に、それぞれの反応からのエネルギースペクトルを紹介する。太陽ニュートリノ生成の素過程は、温度 (太陽中心からの距離) に依存する。 ${}^8\text{B}$ ニュートリノが一番温度の高いところで作られ、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノがこれに次ぐ。標準太陽模型によれば、 ${}^8\text{B}$ ニュートリノの強度と ${}^7\text{Be}$ ニュートリノの強度は、太陽の中心温度に非常に強く依存する。特に ${}^8\text{B}$ ニュートリノは、中心温度が 1%¹ 変化すると強度が 18% も変化する。

¹現在の標準太陽模型の範囲では、理論の不定性を考慮しても 1.5% 以上は変わらない。



☒ 2.1: pp-chain



☒ 2.2: CNO cycle

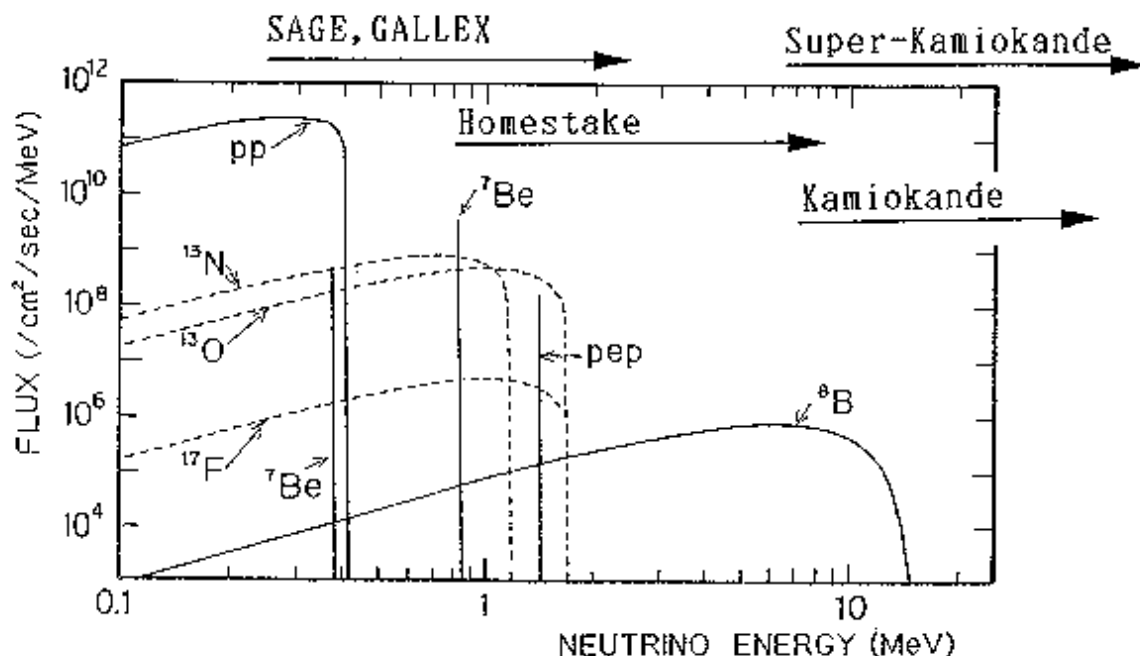


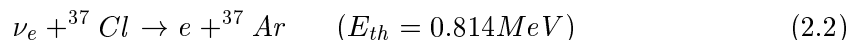
図 2.3: 太陽ニュートリノのスペクトラム

2.1.2 太陽ニュートリノ問題

2.1.2.1 歴史

太陽ニュートリノ問題は、1968年から行われている最初の太陽ニュートリノ実験である、デービス達の塩素実験が発端になった。これは、米国南ダコタ州にあるホームステイク金鉱の地下約 1500m で、615 トンの C_2Cl_4 を用いて行われている^[9]。この実験は、 7Be と 8B に感度があり、特に観測される太陽ニュートリノのおよそ 80% が 8B ニュートリノである。

塩素実験は、615 トンの C_2Cl_4 を 1 ~ 2 か月に一度ヘリウムでバブリングすることにより、 C_2Cl_4 溶液から取り出された ${}^{37}Ar$ を比例計数管の中に閉じ込め、



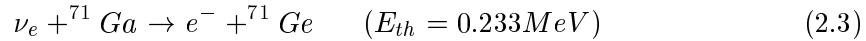
の反応で、 ${}^{37}Ar$ が半減期 35 日で ${}^{37}Cl$ に戻る時に放出する 2.82keV のオージェ電子を比例計数管で計測することにより、捕獲されたニュートリノの数がわかるという実験である^[9]。この実験では、太陽ニュートリノの捕獲率が標準太陽模型の予言値の 1/3 から 1/4 という結果になり、他の太陽ニュートリノ実験によって確認されることが求められていた。

その後、カミオカンデが世界で 2 番目に太陽ニュートリノの観測に成功したのは、17 年後の 1987 年だった^[10]。また、1990 年にはロシアの北コーカサスにあるバクサン・ニュートリノ観測所で SAGE が金属ガリウムを用いて^[11]、1991 年にはイタリアのグランサッソ国立研究所で GALLEX が塩化ガリウムを用いて^[12]、実験を開始した。ガリウム実験は、これらの太陽ニュートリノ実験の中で最もエネルギーしきい値が低く pp ニュートリノ

	結果	標準太陽模型	比
塩素実験	$2.54 \pm 0.14 \pm 0.14 \text{SNU}^{[9]}$	9.3SNU	0.28
GALLEX	$69.7 \pm 6.7^{+3.9}_{-4.5} \text{SNU}^{[12]}$	137SNU	0.51
SAGE	$72^{+12+5}_{-10-7} \text{SNU}^{[11]}$	137SNU	0.53
カミオカンデ	$(2.80 \pm 0.19 \pm 0.33) \times 10^6 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}^{[10]}$	$6.62 \times 10^6 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	0.42

表 2.1: 太陽ニュートリノの観測結果と標準太陽模型 (BP95)^[13] との比較

ノに感度を持っている。ガリウム実験は、



の反応で、 ${}^{71}\text{Ge}$ が半減期 11.4 日で ${}^{71}\text{Ga}$ に戻る時に放出されるオージェ電子をキセノン比例計数管で計測するというものである。

そして、これら 4 つの実験全てが標準太陽模型の予言よりも少ない太陽ニュートリノ強度 (表 2.1) を観測し、太陽ニュートリノ問題は追認された。これら 4 つの実験結果から太陽ニュートリノ問題をまとめると、現在の認識は次のように結論することが出来る。

- カミオカンデと塩素実験の絶対値から ${}^8\text{B}$ ニュートリノの欠損
- カミオカンデと塩素実験の相対値の比較から ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ欠損
- ガリウムの実験とカミオカンデ実験から、太陽のエネルギーの収支に対する最低限の仮定を用いると、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ欠損

そしてこれらの太陽ニュートリノ問題の解釈のために、現在のもっともエレガントな解釈は、有限質量をもつニュートリノが引き起こすニュートリノ振動である。

2.1.2.2 ニュートリノ振動

簡単のために、2 種類のニュートリノ ν_e と ν_μ について考える事とする。ニュートリノ振動とは、ニュートリノに質量があった場合に、フレーバーの固有状態である ν_e 、 ν_μ の間に混合があると、フレーバーの固有状態と質量の固有状態が一致せず、時間の経過とともにある確率で ν_e と ν_μ が入れ替わるという現象である。

フレーバーの固有状態 ν_e 、 ν_μ は、質量の固有状態を ν_1 と ν_2 、混合角を θ とすると

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix}$$

と表現される。ニュートリノが真空中を伝播する時、質量の固有状態は

$$i \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \nu_{1t} \\ \nu_{2t} \end{pmatrix} = H \begin{pmatrix} \nu_{1t} \\ \nu_{2t} \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

と時間発展する。 H はハミルトニアンで、 ν_1 、 ν_2 について対角化され、その固有値は、

$$H_i = E_i = \sqrt{p^2 + m_i^2} \simeq p + \frac{m_i^2}{2p} \quad (i = 1, 2) \quad (2.5)$$

となる。 E_i はエネルギー、 p は運動量、 ν_1 、 ν_2 の質量はそれぞれ m_1 、 m_2 である。ただし、 $m_i^2 \ll p$ とした。

そして、式 2.4 の解は

$$\begin{pmatrix} \nu_{1t} \\ \nu_{2t} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{-iE_1 t} & 0 \\ 0 & e^{-iE_2 t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_{10} \\ \nu_{20} \end{pmatrix}$$

となり、フレーバーの固有状態で書き換えると、

$$\begin{pmatrix} \nu_{et} \\ \nu_{\mu t} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-iE_1 t} & 0 \\ 0 & e^{-iE_2 t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_{e0} \\ \nu_{\mu 0} \end{pmatrix}$$

である。

したがって、時刻 $t=0$ に発生した ν_e が、時刻 t に ν_e と観測される確率は、 $P(\nu_{e0} \rightarrow \nu_{et}) = |\langle \nu_{e0} | \nu_{et} \rangle|^2$ で与えられ、計算すると、

$$P(\nu_{e0} \rightarrow \nu_{et}) = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \frac{E_2 - E_1}{2} t \quad (2.6)$$

となる。

ここで、時刻 t の間に走る距離を L とすると、式 2.6 は、

$$P(\nu_{e0} \rightarrow \nu_{et}) = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \frac{\pi L}{L_v} \quad (2.7)$$

と整理できる。 L_v は、振動長で、

$$L_v \equiv \frac{4\pi E}{\Delta m^2} \quad (2.8)$$

である。 Δm^2 は、 ν_1 と ν_2 の質量差の二乗をとったものである。このように、確率 P は距離 L と共に振動するので、ニュートリノ振動と呼ばれる。

そして、太陽ニュートリノで重要なのが、MSW 効果と呼ばれる物質中におけるニュートリノ振動である [15][16]。ニュートリノは物質中を通過する時、連続的に受ける弱い相互作用によってポテンシャルエネルギーを得て実効質量が変わる。弱い相互作用には、中性カレント反応と荷電カレント反応があり、中性カレント反応は、 ν_e 、 ν_μ の両方に共通に働くが、荷電カレント反応は、 ν_e にだけ働く。そのため、 ν_e だけ、物質中の電子密度 N_e に比例するポテンシャル $V_e = \sqrt{2}G_F N_e$ を受けて質量が増加し、太陽中心のように電子密度が高い領域では、 ν_e の方が ν_μ より重い質量を持つ²様になる。つまり、 ν_e と ν_μ の質量が太陽中心から外へ向かう途中で逆転し、その時に混合が共鳴的に起こると考えられている。これが、MSW 効果である。

物質中での混合角を θ_m とすると、真空中での混合角 θ との関係は、

$$\tan 2\theta_m = \frac{\tan 2\theta}{1 - \frac{A}{\Delta m^2 \cos 2\theta}} \quad (2.9)$$

²質量の固有状態ではなく、実効質量が重くなる。

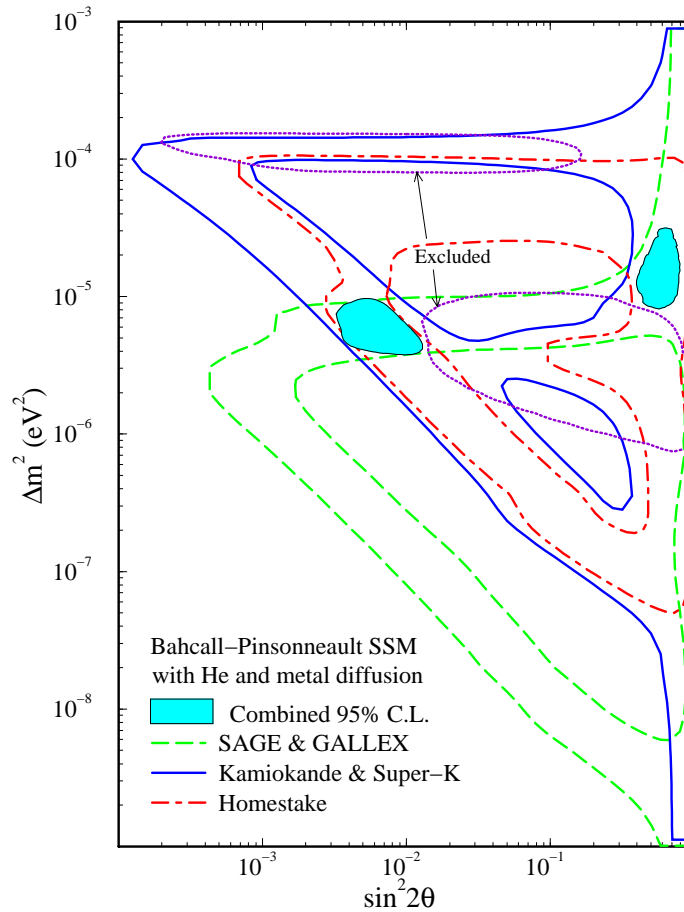


図 2.4: MSW 効果で許されるパラメーター領域。黒く塗りつぶされているところが、現在の太陽ニュートリノ実験と Bahcall 達の標準太陽モデルを用いた時に許される領域^[14]。

のように表せる。ここで、 $A = 2\sqrt{2}G_F N_e p$ である。 $A = \Delta m^2 \cos 2\theta$ のところで共鳴し、最大の振動が起こる。

MSW 効果のパラメーターである混合角 θ と質量差 Δm^2 の関係は、これまでの 4 つの実験によってかなり制限されており、Hata & Langacker の計算によると、現在許されている領域は図 2.4 の中でハッチのかかっている 2ヶ所である^[14]。これらは、小角度解 (非断熱解)、大角度解と呼ばれている。MSW 解は、振動長に対して物質の密度変化がゆっくりな時に断熱解となり、振動長に対して物質の密度変化が急な時に非断熱解となる。

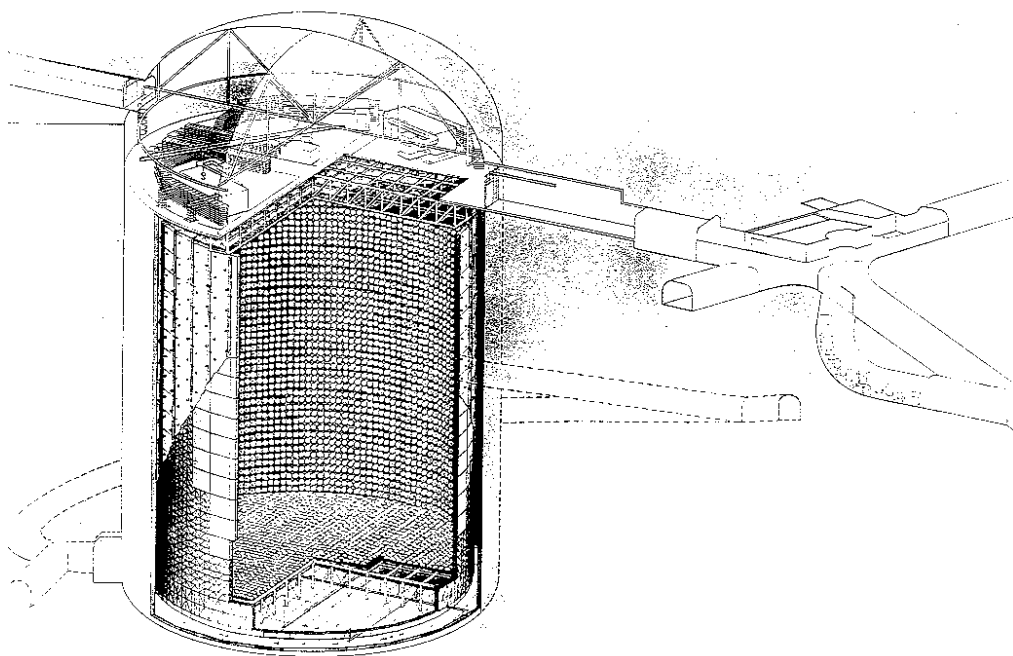


図 2.5: スーパーカミオカンデ

2.2 スーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測

2.2.1 検出器

スーパーカミオカンデは、総重量約 50000t の純水、11146 本の 20inch 光電子増倍管を備えた、大型水チェレンコフ検出器である。(図 2.5) 核子崩壊の探索、大気ニュートリノ、太陽ニュートリノの観測などを主な目的としている。スーパーカミオカンデの建設場所としては、岩盤が堅く丈夫であることや地下水が豊富であることなどの理由から、岐阜県吉城郡神岡町の「池の山」地下約 1000m (2700m.w.e、北緯 36.4 度、東経 137.3 度) が選ばれた。これは神岡鉱山の中に位置する。これだけ地下深いところを選んだのは、バックグラウンドとなる宇宙線ミュオンの強度を地上と比べて約 10 万分の 1 に落とすことができるからである。スーパーカミオカンデは、ステンレススチール製の円筒型タンクで、スーパーモジュールにより内水槽と外水槽に分けられている。内水槽は直径 33.8m、高さ 36.2m で、32500t の純水を蓄え、スーパーモジュールには、上面、下面にそれぞれ 1748 個、側面に 7650 個の 20inch 光電子増倍管が内向きに取り付けられていて、光電面履率 40% である。残りの 60% の部分は、外水槽からの光りの侵入を遮蔽するためにポリエチレン製のブラックシートによって覆われている。外水槽は、上面、底面がそれぞれ 2.6m、側面が 2.75m の厚さを持ち、内水槽と同様の純水で満たされている。そして、スーパーモジュールには、上面、底面、側面にそれぞれ 302、308、1275 個の 8inch 光電子増倍管が外向きに、ウエープレングスシフターと共に取り付けられている。また、ステンレススチールの壁面には反射率のいいタイベックシートが張られている。ウエープレングスシフター

とタイベックシートは、集光効率を上げる目的で備えられている。外水槽は、地下まで貫通してくる宇宙線ミューオンや、岩盤からのガンマ線を除去する等の役割をし、アンタイカウンターとして機能する。

2.2.2 検出原理

スーパーカミオカンデでの太陽ニュートリノ観測は、

$$\nu + e^- \rightarrow \nu + e^- \quad (2.10)$$

の反応における反跳電子が、水中で出す円錐状のチェレンコフ光を光電子増倍管で捕らえる事で行っている。

屈折率 n の媒質中で、光の速度 v は c/n (c : 真空中の光の速度) となる。荷電粒子が

$$v \geq \frac{c}{n} \quad (2.11)$$

の速度で媒質中を進む時、衝撃波と同様に

$$\cos\theta = \frac{1}{n \cdot \beta} \quad (2.12)$$

(θ : 荷電粒子と放出される光のなす角である。) を満たす方向に光子が放出される。これがチェレンコフ光で、1930年にČerenkovらによって発見された。スーパーカミオカンデの太陽ニュートリノ観測においては、荷電粒子が電子で媒質が水である。

チェレンコフ光には臨界エネルギーがあり、荷電粒子が臨界エネルギー以上のエネルギーを持った時でなければ輻射されない。この臨界エネルギーは、式 2.11 より荷電粒子の速度の下限値 $v = c/n$ 、つまり $\beta = 1/n$ の時に対応するエネルギーで

$$E \geq m_0 \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{1}{n}\right)^2}} \quad (2.13)$$

となる。ここで E が臨界エネルギー、 m_0 は粒子の静止エネルギーである。水の屈折率 1.33 を用いると、水中に於ける臨界エネルギーは静止エネルギーの約 1.5 倍である。また、式 2.12 から、水中で荷電粒子が、真空中での光速に非常に近い速さ ($\beta \sim 1$) で走る時、 $\theta \simeq 42^\circ$ となる。

チェレンコフ光の強度は周波数に関して一様で荷電粒子が媒質中を距離 x 飛んだ時、周波数 ν_1 、 ν_2 の間で輻射する光子の数 N は

$$N = \frac{2\pi\alpha x}{c} (\nu_1 - \nu_2) \left(1 - \frac{1}{n^2\beta^2}\right) \quad (2.14)$$

で表される。ここで $\alpha \simeq 1/137$ で微細構造定数である。スーパーカミオカンデで用いる光電子増倍管の有感波長領域 300 ~ 700nm で、荷電粒子が 1cm 走る間に輻射する光子数は、式 2.14 から、約 390 個/cm となる。そして、荷電粒子は式 2.13 で決められる臨界エネルギーに減衰するまで光を輻射し続けるので、観測した光量からニュートリノのエネルギーを求めることが出来る。また、輻射された光が発生してから消えるまで時間を追って

観測できるので、得られたリング状の像から荷電粒子の発生点や進行方向を知る事ができる。そしてリングの形状を詳しく調べる事で粒子の種類を判別する事も可能である。

このように、個々のニュートリノに関して詳細な情報(種類、エネルギー、発生点、方向)を伴った実時間測定を出来る事が、チェレンコフ検出器であるスーパーカミオカンデの特徴である。

2.2.3 純水装置

発生したチェレンコフ光の、水中の混入物による散乱・吸収を出来るだけ低く押えて効率よく集めるためには、媒質である水の透過率を出来るだけ高くする必要がある。また、 ^{222}Rn などの放射性物質が水中に存在するとそれらが低エネルギー事象の深刻なバックグラウンドとなるので、取り除かなければならない。 ^{222}Rn の娘各種の ^{214}Bi が β 崩壊するときに最大で3.26MeVのエネルギーを持つ β 線を放出し、これがバックグラウンドとして影響してくるである。本論文のテーマの超高感度ラドン検出器は、この水中ラドン濃度を監視する目的で開発されたものである。

スーパーカミオカンデでは、神岡鉱山の豊富に湧きでている地下水を汲み上げて、それを特別に開発した純水装置を通して水槽に送りこみ、水槽が50000トンの水で満たされた後は、純水装置と水槽の間を約65t/hで循環させている。純水装置の概略図を図2.6に示す。純水装置は、フィルター、熱交換器、イオン交換樹脂、紫外線殺菌、真空脱気装置、カートリッジ・ポリッシャー、中空糸フィルターから構成されている。以下に、それぞれの役割を紹介する。

- フィルター

水中に混入している細かいゴミ($\sim 1\mu\text{m}$)を取り除く。ゴミに付着している ^{222}Rn も共に取り除かれる。

- 熱交換器

ポンプや光電子増倍管によって水温が上昇するのを防ぐために、水を冷却する。

- イオン交換樹脂

イオンを除去する。イオン化しやすい性質を持つ ^{222}Rn の娘各種の ^{218}Po なども除去される。

- 紫外線殺菌

バクテリアや細菌を死滅させる。

- 真空脱気装置

水中に溶けている気体を取り除かれる。これによって、酸素の90%以上、ラドンの96%以上が取り除かれる。また、好気性のバクテリアの発生を押えることが出来る。

- カートリッジ・ポリッシャー

より高品質のイオン交換樹脂を用いて除去しきれしていないイオンの再除去を行う。

- 中空糸フィルタ

数 nm レベルのゴミを除去し、その水だけが水槽へと送り込まれる。ここで除去されたゴミを含む水は、一旦貯蔵タンクに送られたあと、逆浸透膜を通してゴミが除去され再び純水装置にかけられる。

また、水槽の上層部分に水位の微小変動を考慮して約 60cm の空気の層を設けてあるが、そこにラドンフリーエアと呼ばれる空気を送りこみ、坑内のラドン濃度の高い空気が純水に触れてラドンが純水中に溶け込むのを防いでいる。ラドンフリーエアは、坑内の空気を図 2.7 に示すラドンフリーエア製造装置に通すことによって作られている。まず、コンプレッサーによって 7 ~ 8.5 気圧に加圧する。その後、 $0.3\mu m$ のエアフィルタでゴミを除去し、活性炭による ^{222}Rn の除去効率をあげるために除湿器で水分を取り除く。その後、活性炭に ^{222}Rn を吸着させる行程を 2 度行い、最後に $0.1\mu m$ 、 $0.01\mu m$ のエアフィルタを通してゴミが除去されて、ラドンフリーエアとなる。この結果、ラドンは坑内の空気に対して約 99.98% 除去され数 $10\text{mBq}/\text{m}^3$ のオーダーになる。

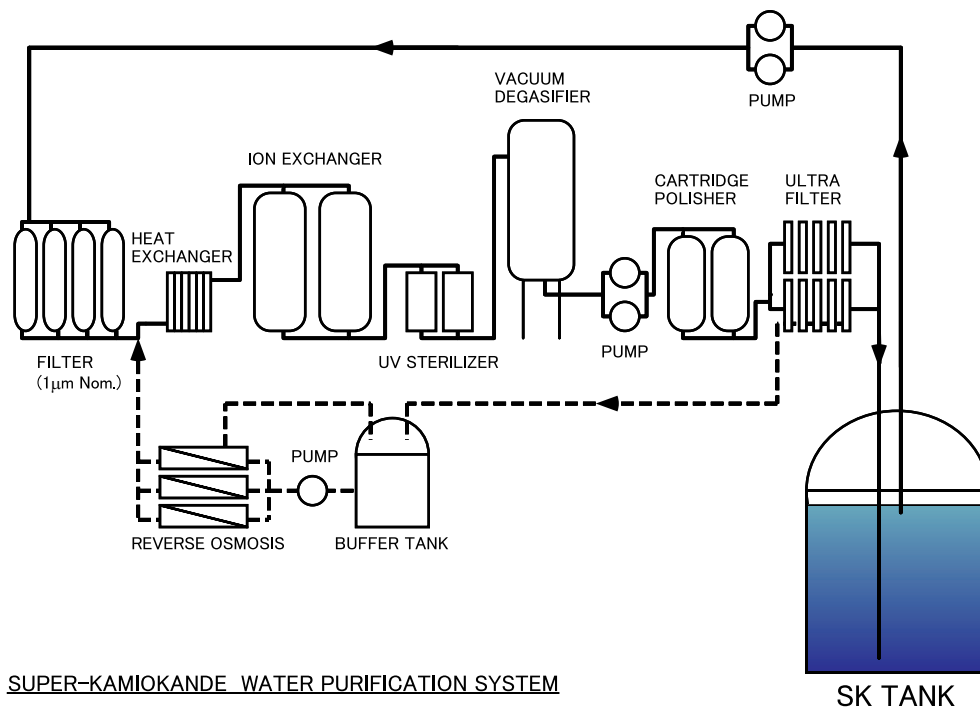
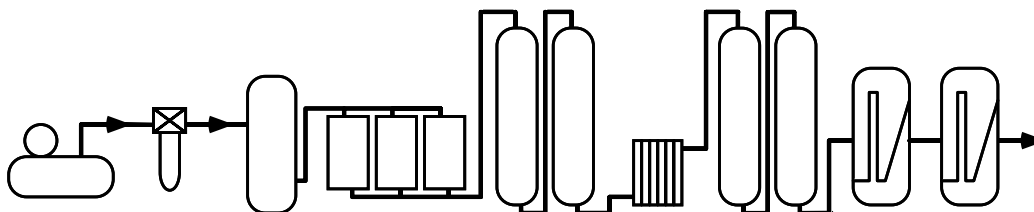


図 2.6: 純水装置

COMPRESSOR AIR FILTER (0.3µm) BUFFER TANK AIR DRIER CARBON COLUMN HEAT EXCHANGER CARBON COLUMN AIR FILTER (0.1µm) AIR FILTER (0.01µm)



SUPER-KAMIOKANDE RADON-FREE-AIR SYSTEM

図 2.7: ラドンフリーエア製造装置

2.2.4 20 インチ光電子増倍管

スーパーカミオカンデで使用している光電子増倍管 (PMT) の構造を図 2.8 に示す。この PMT は、カミオカンデのために浜松ホトニクス株式会社とカミオカンデ実験者が共同開発したもので、スーパーカミオカンデでは、さらに改良を施した新型^[17]を使用している。新型 PMT は、エネルギー分解能、時間分解能、低雑音・耐磁場、耐水圧特性に優れたものを目指して改良されたものである。

この PMT の最大の特徴は、光電面の直径が 20 インチ³と世界最大の大きさを持つことである。これだけの大口径にすると受光面積が広くなり、さらに光電面を球形にすることにより広角度で光を捕らえる事が出来るという利点を持つ。そのため、少ない光電子増倍管で広い面積を覆う事ができる。

光電面の材質は、バイアルカリ (sb-K-Cs)⁴で、量子効率⁴は波長 390nm あたりで最大となり、およそ 22% である。

ガラス容器の材質は、硼硅酸ガラスで約 300nm から 520nm までの波長領域で透明度が高く、耐水性、耐食性に優れていて、温度変化による膨張はほとんど無視できる。また、この波長領域はチェレンコフ光の波長領域をカバーしている。

ダイノード構造は、段数が 11 段のベネチアン・ブラインド型である。収極電極、ブラインド羽の構造、電圧配分などの改良を行って、ボックス型やラインフォーカス型に匹敵する二次電子捕獲効率 (約 78%) を持つ。電子走行広がり (TTS) は 2.2ns(1 σ) となり、時間応答性も良好である。また、一光電子ピークが確認でき、低エネルギーニュートリノ事象の観測が可能になった。

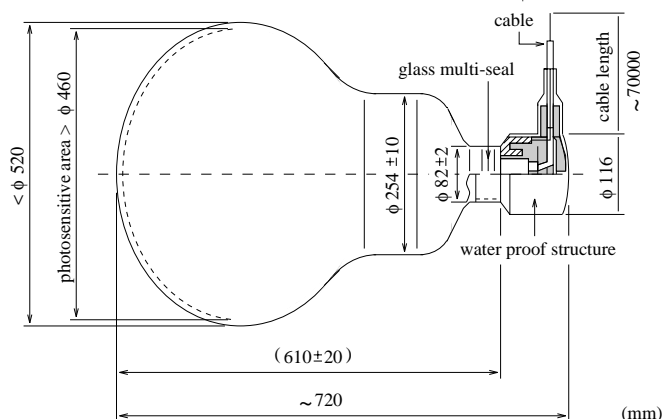


図 2.8: 光電子増倍管

³20 インチもの大口径になると、光電面と 1st ダイノードとの距離が長くなり、PMT の性能が地磁気の影響を受けることになる。そのため、ヘルムホルツコイルを水槽の壁面に沿って水平および垂直の 2 方向に巻き、地磁気を打ち消している。

⁴仕事関数の低いアルカリ金属を主成分とする化合物半導体。熱電子放出が少ない。

2.2.5 データ収集システム

20 インチ PMT から得られたアナログ信号は、70m のケーブルを伝わって、タンク上部に設置してあるエレクトロニクスハットに送られる。このエレクトロニクスハットには、計測エレクトロニクス用の周辺ハット 4 つと、トリガー制御用の中央ハットがある。PMT からの信号は、まず周辺ハットに送られる。11146 本の PMT からの信号は、各周辺ハットに 2 台ずつ用意してある計 8 台の計測用ワークステーション (WS) で分散して処理される。それぞれの WS は、約 1400 チャンネルの信号を、事象ごとに整理し、ネットワークを介して坑内にあるコントロールルームに置かれたホスト WS に送られ、事象の再構成が行われる。そして、そのデータはこのホスト WS からネットワークを介して、坑外の計算機棟に送られ、そこで解析される。

第3章 静電捕集型超高感度ラドン検出器の校正

3.1 検出器

我々が開発した、空気用ラドン検出器を図 3.1 に、水用ラドン検出器を図 3.2 に示す。それぞれ、ステンレス製で検出有効体積 68.7l、74.1l の円筒型の容器である。容器の底面と上面は通常の電気溶接で接合されている。また、バックグラウンドを出来るだけ低く抑えるために、容器の内壁には電解研磨が施されている。検出部は PIN フォトダイオード (PD)、セラミック製フィールドスルー、アンプモジュール、高電圧分割回路からなっていて、中央上面部分に取り付けられている。PD と容器は、フィールドスルーとアクリル版で電氣的に絶縁されている。負の高電圧が PD の p 層にかけられ容器の周辺部分で接地することにより容器内に電場が作られる構造になっている。そして、PD 表面に陽イオン化しているラドンの娘核種 (^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi) を収集し、 ^{214}Po からの α 線による信号を計測する。この手法を、静電捕集法と呼び、広く利用されている¹。水用ラドン検出器は、下の細くなっている筒の上部に送りこまれた水が、筒の内部にあるプラスチックボールをつたって下部に到達して外へ流れ出るまでの間に空気中へ散逸してきたラドンに対して、測定が行われる仕組みである。信号は、アンプモジュールによって増幅された後、ラドンデータロガー内で AD 変換されて UNIX ワークステーションへと送り込まれ、ラドン測定用に開発された解析プログラムによって解析が行われる。検出部に PD を用いたのは、 α 線のエネルギー分解能が高いので α 線源を弁別でき、オンラインでデータを回収でき、また安価で扱いやすいためである。本論文で紹介するラドン検出器のエネルギー分解能は、エネルギー 7.69MeV の時に半値幅で約 0.5% である。

3.2 検出部

3.2.1 PIN フォトダイオード

使用した PD は浜松ホトニクス (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化学的に反応しにくいように PD の表面の pn 接合部およびその周辺部をポリイミド樹脂 (電気絶縁材料) 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、PD のセラミックケースの窓にはガラス製カバーが取り付けられているのだが α 線を測定するために取りはずした。そのため、PD の構造上周辺電極部に空気中のイオン性の塵が付着し、暗電流が増

¹代表的な検出部には、ZnS(Ag) シンチレーター、半導体検出器、熱蛍光線量計、固体飛跡検出器などがある。

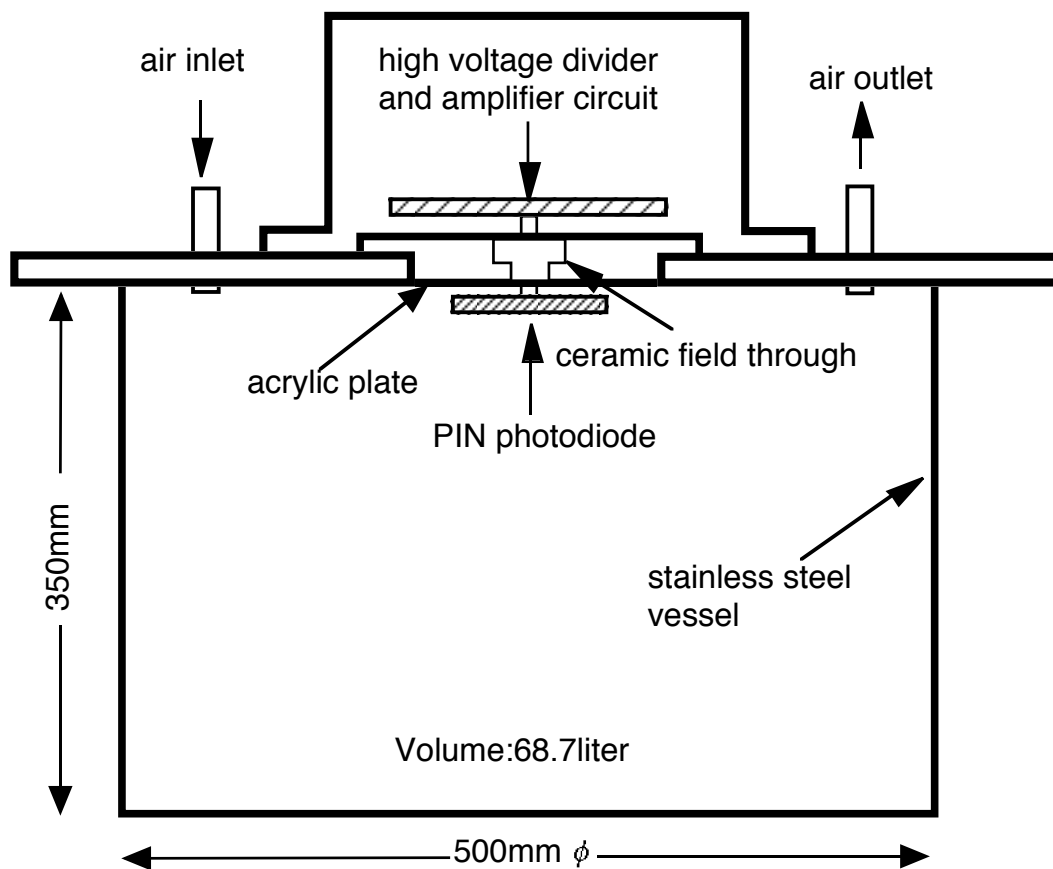


図 3.1: 静電捕集型超高感度空気用ラドン検出器の概略図

加して短い期間で測定不能になるという問題が発生した。パッシベーション処理を施すことにより、素子の耐塵性を向上させることができ暗電流増加のバイパス経路を遮断することが出来た。しかし、ポリイミド樹脂は水蒸気に弱く表面に水蒸気が付着すると腐食してしまうという弱点が明らかになった。今回の改良では、この弱点を無くすためにポリイミド樹脂の上からセラミックでカバーをすることによってポリイミド樹脂を水蒸気から守っている。このPDの特性は検出面積 16mm×16mm、有効厚さ 500 μm であり、逆バイアス電圧最高値 150V で暗電流が 15nA、端子間容量 80pF である。

3.2.2 高電圧分割回路およびアンプモジュール

回路図を図 3.3 に示す。前段が高電圧分割回路、PD、後段がアンプ回路でそれぞれモジュール化されており、取り外して簡単に交換することが出来る。この図の高電圧分割回路で*印をつけた抵抗、コンデンサーは耐高電圧のものである。高電圧分割回路はPDに逆バイアス電圧 (< 150V) をかけるためのもので、高電圧電源装置から供給される電圧を抵抗分割して n 層に p 層よりも高い電圧がかけられるようになっている。そうすることにより、静電捕集用の高電圧とPDの逆バイアス電圧が同時に同じ電源から供給される仕組みである。アンプモジュールはプリアンプ、リニアアンプ、ケーブルドライバーから構成されている。ここで、プリアンプの入力FET(2SK508)の相互コンダクタンスは定格で 26mS でゲートソース間容量は 4.8pF である。また回路の浮遊容量を小さくするためにFETはチップ型で、PDはモジュールに直接取り付けられる様に工夫されている。プリアンプの出力パルスの立ち上がり時間は 30ns である。またリニアアンプの時定数は 1 μs である。図 3.3 の RR1 には抵抗とコンデンサーを外づけして倍率を調節することができる。

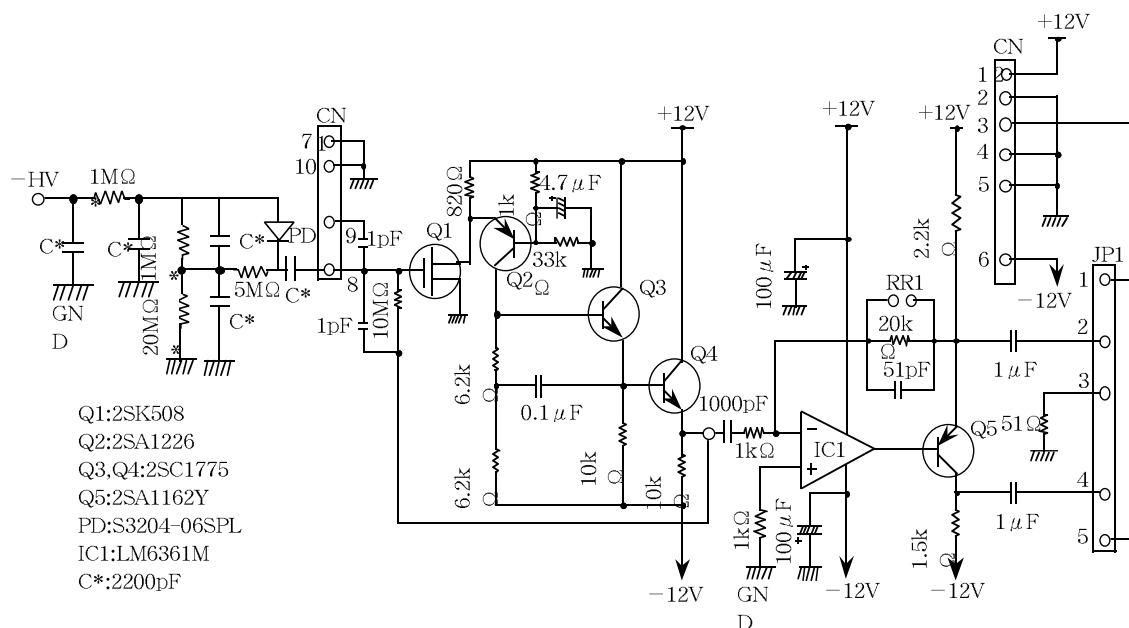


図 3.3: 高電圧分割回路およびアンプ回路

3.3 空気用ラドン検出器の校正実験

既に述べているように、スーパーカミオカンデで開発されたラドン検出器は、静電捕集型である。静電捕集を特徴づける重要な性質は、検出効率の印加電圧特性と湿度特性である。静電捕集は、検出器内部に電場を作ることによって陽イオン化したラドンの娘核を捕集するのだから、印加電圧の決定が捕集効率に影響を与えるということは、容易に想像できる。したがって、まず最初にラドン検出器の印加電圧特性について調べた。

次に、湿度特性を調べる理由について説明する。 ^{222}Rn の娘核 ^{218}Po は、90%以上が陽イオン化して $^{218}\text{Po}^+$ の状態が存在しており、通常の空気中ではさらに酸素と即座に反応して $^{218}\text{PoO}_2^+$ の状態が存在している。そして、静電捕集法では、この $^{218}\text{Po}^+$ や $^{218}\text{PoO}_2^+$ を捕集することにより測定を行っている。静電捕集法の利点は、ラドン濃度を濃縮して測定でき、統計精度が高くなることである。しかし、この $^{218}\text{Po}^+$ や $^{218}\text{PoO}_2^+$ が、空気中に存在する水蒸気によって電氣的に中和されてしまうという欠点を持っている^[20]。この水蒸気による電氣的中和現象については、未だはっきり説明されていない。 $^{218}\text{Po}^+$ 、 $^{218}\text{PoO}_2^+$ の電氣的中和現象は、水蒸気だけでなく、空気中に存在する様々な物質との間に生じることが知られている。これまでに考えられている一般的な解釈は、

- イオン化エネルギーの高い $^{218}\text{PoO}_2^+$ ($\sim 10\text{eV}$)が、低い物質と衝突して電子を奪い取る。
- 電子親和力の大きい物質が電子を受取って負イオンとなり、それと再結合する。

などである。水蒸気の場合、イオン化エネルギーは高い(12.56eV)が、放射性分解によって生成される水酸基OH $^-$ が、電子をスカベンジして負イオンとなり、それが $^{218}\text{Po}^+$ 、 $^{218}\text{PoO}_2^+$ と再結合すると考えられる^[20]。詳しくは、節5.2で言及する。そして、そのような中和現象が、捕集効率の湿度依存を生み出す要因になっているのである。したがって、実際のラドン濃度測定環境に合わせて校正定数を調べることが求められる。

スーパーカミオカンデでは、ラドンフリーエアについて、水槽への入口と出口の2ヶ所について測定しており、それぞれ湿度が異なっている。入口では乾燥状態であるが、水槽の中で純水に触れて出て来た出口の空気は湿っている。

また、測定したいラドンフリーエアのラドン濃度は数 mBq/m^3 ～数十 mBq/m^3 程度だが、現在の標準的な方法は電離箱なので、それと比較するために、まずは数千 Bq/m^3 という高濃度のラドンガスを標準ラドン源に用いて校正実験を行った²。その後、目的の数 mBq/m^3 の低濃度測定にまで対応できる校正システムを完成させ、ラドン検出器のラドン濃度依存について調べ、最終的な校正定数を決定した。

3.3.1 高電圧特性

まず、系全体を真空(約2Torr)に引いて系内の不純物を取り除き、その後、1気圧になるように純空気を充てんした。ラドン源を循環系に導入し、測定期間中系内のラドン濃度が一定の濃度を保つようにした。また、系内の平均絶対湿度は $1.2 \pm 0.2\text{g}/\text{m}^3$ であった。次に、実際にどのように測定を行ったかについて述べる。印加電圧は、高圧電源装置の設

²この実験の校正システムは、岐阜大学にて田阪氏のご教示の元に行った試作タイプである。

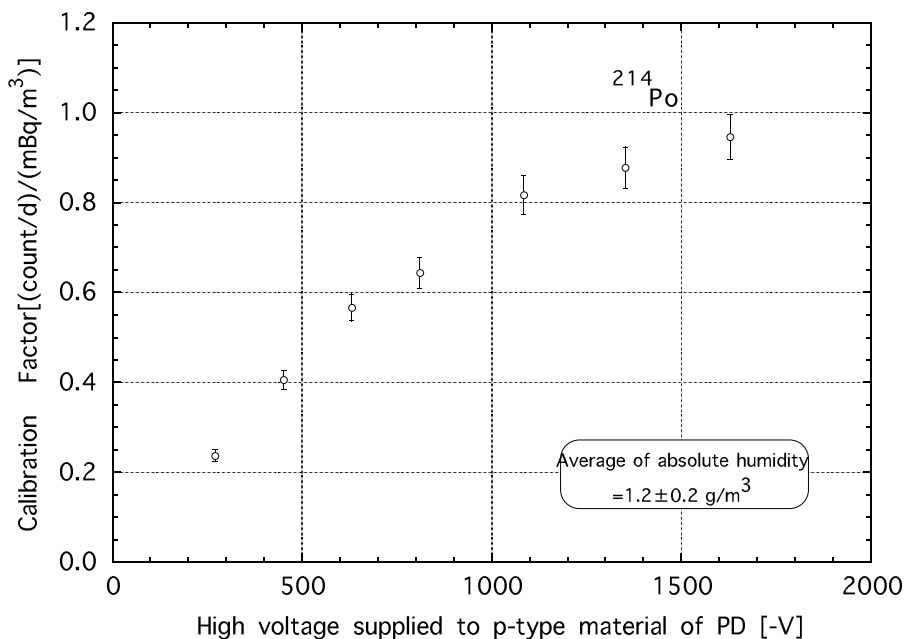


図 3.4: 高電圧依存性

定を - 300V から - 1800V まで、200 から 300V おきくらいずつ変化させて、計 7 点について測定を行った。実際に p 層にかかっている電圧はこれらの電圧よりも数十～百数十 V 高く、それは図 3.3 に示すように p 層の手前の抵抗で電圧が降下しているためである。各印加電圧について単位時間あたりのカウント数が一定の値を示していることを確認し、それらの値の平均値をとることによって各印加電圧でのカウント数を決定した。その結果を図 3.4 に示す。この実験結果より、HV デバイダの安定性を考慮した上で、検出効率の印加電圧依存性が小さくなり始めている -1500V を印加電圧として選んだ。

3.3.2 湿度特性 1-岐阜大学-

岐阜大学で試作した校正システムの概略図を図 3.5 に示す。ラドン源は、細かく砕けた状態の鉱石 2.5g である。それを小型のガラス容器に入れ、空気の循環によって飛び散らないようにメンブレンフィルター「セルガード 4410」でふたをし、さらに 3l のガラス容器に入れ、ステンレス製のフランジで密閉してある。(以降は、この状態のものをラドン源と呼ぶ。) フランジにはガスの出入口として 1/4 インチのステンレスチューブの口が用意されている。いわば、この 3l ガラス容器はラドンガスタンクの役割をする。そして、そのステンレスチューブの出口の部分にはフィルターホルダーを取り付け、その中にはメンブレンフィルター「セルロース・アセテート CO80AO47A」が装着されている。系をラドンの娘核や塵などによる汚染から防ぐためである。標準ラドン濃度の測定には、大倉電機(株)製の容量 1.5l の円筒型電離箱を用いた。振動容量形電位計ヘッド部からおよそ 240V の電圧が印加され、指示部において出力電圧を読みとり電離箱の校正定数によってラドン濃度に直される。この校正定数 [Bq/m^3] には、国際共同比較によって標準化された値である

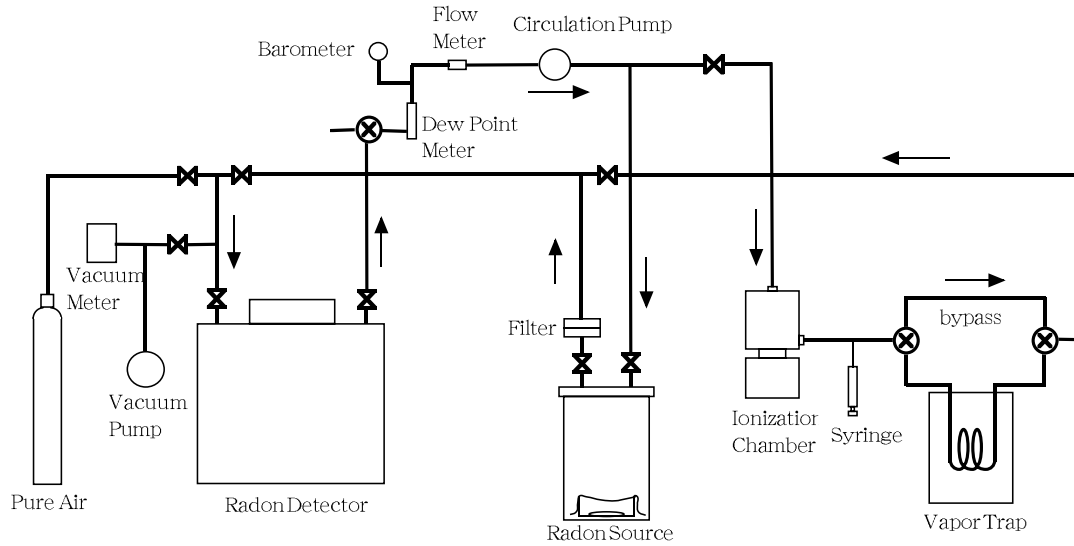


図 3.5: 空気用ラドン検出器校正システム概略図-岐阜大学-

$17.84(1 \pm 0.05) \times I[fA]$ 使用した。この校正では、系全体における初期ラドン濃度はおよそ $10000 Bq/m^3$ という高濃度であった。絶対湿度のコントロールには、湿度を下げるための冷却装置と、湿度を上げるためのマイクロシリンジの2種類を用意した。冷却装置は最低で -41 まで冷やすことが可能で、冷媒としてはエタノールを使用し、その中にステンレス製のらせん管をくぐらせてある。らせん管内をガスが通過する時に冷やされて、水蒸気がトラップされる仕組みである。マイクロシリンジは最小メモリが $5\mu l$ のものでビニールチューブに差し込み、必要量を注入する。この時注入する水はスーパーカミオカンデから採水した純水である。注入痕については、ビニールテープを巻けばリークがないことを事前に確認してある。その他、系内の環境をモニターするための気圧計、露点計、流量計、気温計が導入されている。それぞれのパーツは $1/4$ インチのシンフレックスチューブもしくはステンレスチューブによって接続されている。そして、本システムが閉鎖系であることを確認するため実験開始前にリークテストを行った。このテストには扶桑理化製品製フロンリークディテクター「FER-90」を使用し、この装置で $1 \times 10^{-5} cc/s$ でリークがないことを確認した。系内の空気は日本酸素(株)製「純空気A」を使用し、ポンプによっておよそ $3l/min$ で循環した。また、実際に絶対湿度特性を調べる測定を行う時は、ラドン源は循環系には入らないようにした。それは、鉱石からのラドンガスの放出率が湿度によって影響される恐れを排除するためである。冷却装置部についても、3方バルブで冷却装置を通る系と通らない系に分けて、臨機応変に湿度コントロールが行えるようにした。

絶対湿度のコントロールは、マイクロシリンジで純水を注入する「method1」と、冷却装置の設定温度を変化させる「method2」の2通りの方法によって行った。

スーパーカミオカンデにおけるラドン濃度測定で求められている校正定数に対応する絶対湿度は、空気用ラドン検出器ではラドンフリーエアの水槽への入口、出口でそれぞれ、約 $0.08g/m^3$ 、 $11g/m^3$ である。また、後述する水用ラドン検出器では相対湿度にしてほぼ

100%であると推測される。気温が 16℃（スーパーカミオカンデのある鉱山の内部は年間を通じて 16℃ くらいである。）だとすると絶対湿度にして約 $15g/m^3$ に相当する。したがって、これらの絶対湿度の範囲（ $0.08g/m^3 \sim 約 15g/m^3$ ）をカバーできるように調べることにした。今回の測定で系内の湿度のモニターに露点計を使用したのは、上記の湿度領域に対して十分な感度をもつためである。

3.3.2.1 method1

まず、冷却装置により露点温度を約-20℃ まで下げその後、冷却装置を切り離れた。次に、マイクロシリンジでスーパーカミオカンデから採取した純水を 0.02ml から 0.2ml の範囲で徐々に注入し露点温度を上げていった。各々の露点温度におけるデータの決定は、以下の条件を満たした時に行った。

1. 露点温度が安定して、一定の値を示す。
2. カウント数が、水蒸気注入直後のような急激な変化を終え、なだらかに落ちついた変化に移行する。

これらの条件を満たしたと判断するまでにかかった時間は 5 ~ 6 時間である。典型的な測定結果を図 3.6 に紹介する。

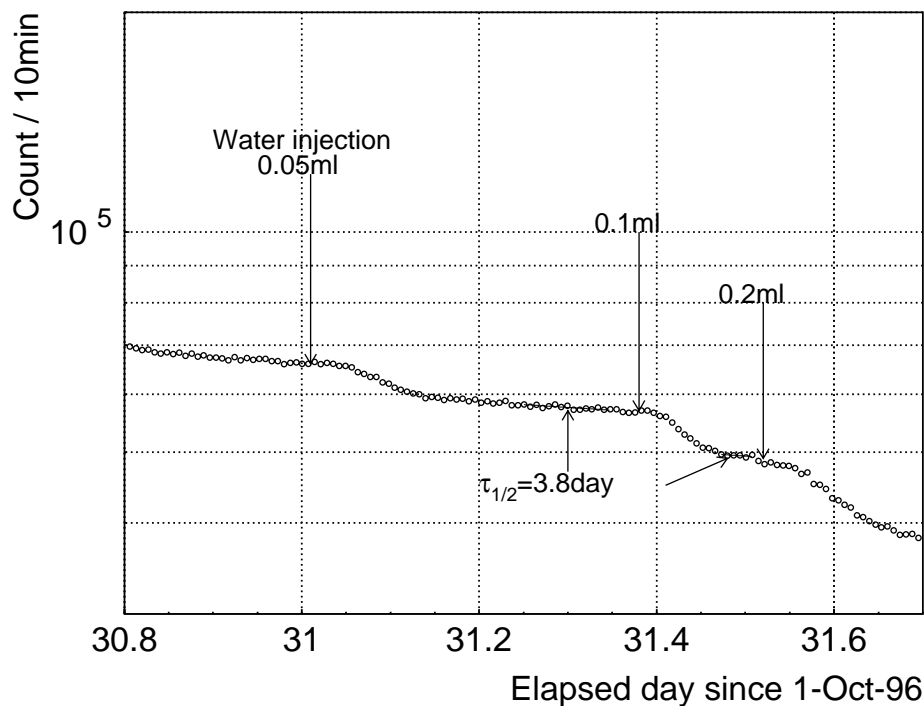


図 3.6: シリンジによって湿度コントロールを行なった時の測定結果

3.3.2.2 method2

まず、冷却装置を最低温度である -41 に設定して、系内に残留している水蒸気をトラップすることにより露点温度をできるだけ低いところまで下げた。次に、冷却装置の設定温度を徐々に上げる事によって露点温度を上げていった。各々の露点温度におけるデータの決定は、以下の条件を満たした時に行った。

1. 露点温度が安定して、一定の値を示す。
2. カウント数及び、電離箱の値が共に ^{222}Rn の半減期 3.8 日の崩壊曲線に乗っている。

これらの条件を全て満たしたと判断するまでにかかった時間は、およそ 2 ~ 3 日間である。典型的な測定結果を図 3.7 に紹介する。

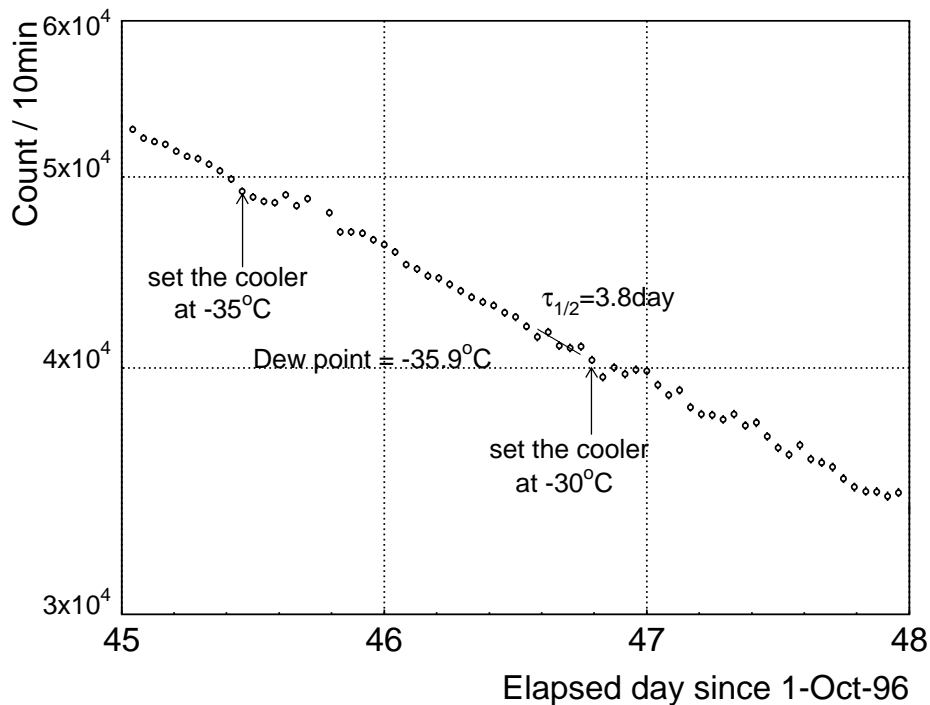


図 3.7: 冷却装置によって湿度コントロールを行なった時の測定結果

3.3.3 湿度特性 2-研究棟-

岐阜大学で試作した校正システムを元に、数 $m\text{Bq}/m^3$ の領域まで測定可能な校正システムを神岡の研究棟内に作成した。スーパーカミオカンデにおけるラドン濃度がおおよそ $m\text{Bq}/m^3$ ~ 数十 $m\text{Bq}/m^3$ と見積もられているので、その領域での校正を行うためである。校正システムの概略図を図 3.8 に示す。湿度コントロールには、閉鎖系を保つことができ、かつ、湿度を高低両方向にコントロール可能な冷却装置による方法を採用した。本システムは、株式会社東芝製ハロゲンリーク検出器「HAL-8F」によって $1 \times 10^{-6} \text{cc/s}$ で

リークが無い事を確認してある。試作タイプと特に異なる点は、次の通りである。

- ラドンガスバッファタンクを設けて、それとラドン検出器の体積比を用いる事によって、低ラドン濃度の標準ラドン濃度を決定する。そうすることによって、将来的に数 mBq/m^3 の領域まで対応することが可能である。
- 配管系起源のバックグラウンドを低減するために、配管系には出来るだけステンレス製の電界研磨管を用いた。
- 電離箱の振動容量電位計がデジタル化したので、ラドン濃度の時間平均を自動的に記録できる。
- -80 まで冷却可能な冷却装置を用いた。

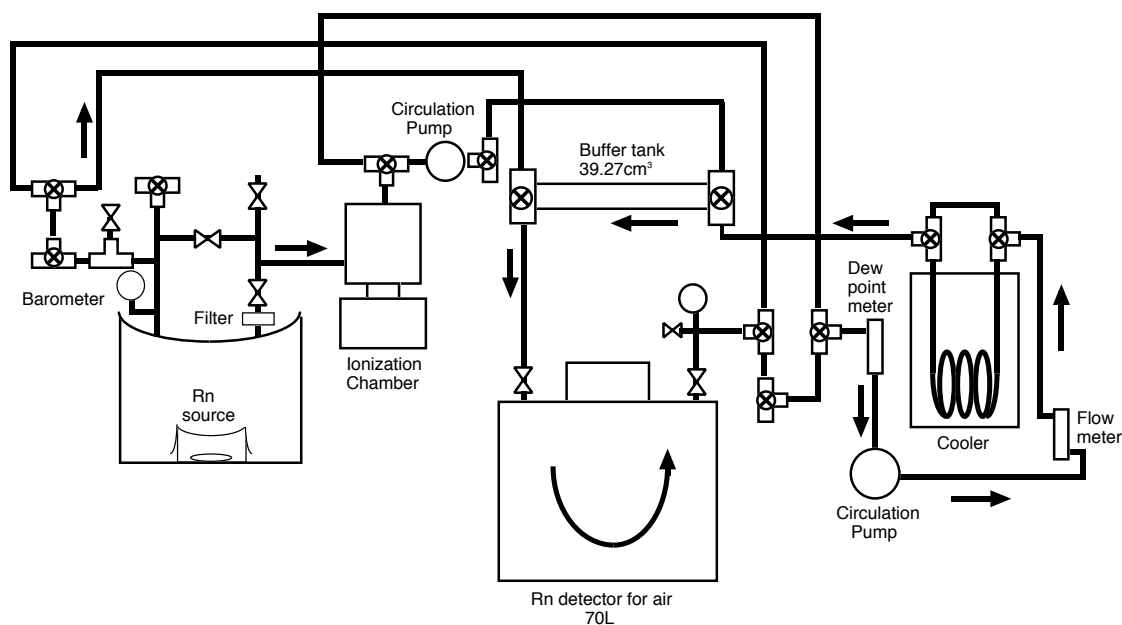


図 3.8: 空気用ラドン検出器校正システム概略図-研究棟-

3.3.3.1 method3

印加電圧は、試作タイプの時に得られた-1500V を用いた。

まず、露点温度-60 の状態でバックグラウンドを確認してから検出器内のラドン濃度が約 $9Bq/m^3$ になるだけのラドンガスを注入した。そして、カウント数の増加がピークに達し 3.8 日の崩壊曲線に乗っている事を確認して、その得られたカウント数と標準ラドン濃度とから校正定数を算出した。その後、引続き露点温度-35 、-26 について測定を行った。これらの測定結果を図 3.9 に紹介する。また、試作タイプとの比較を行なうために、ラドン濃度が $10^3 \sim 10^4 Bq/m^3$ での測定も数点行なった。

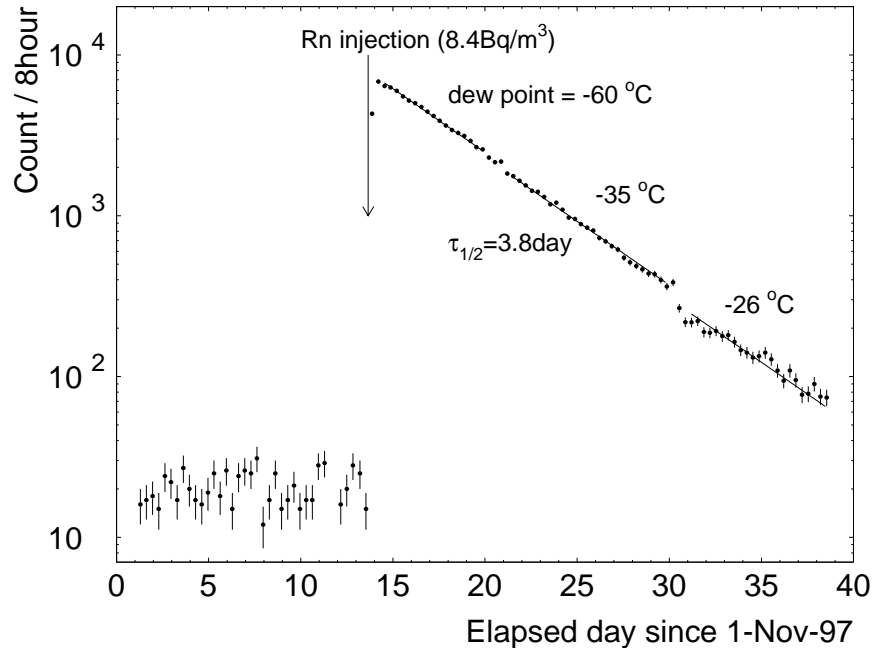


図 3.9: ラドン濃度数 Bq/m^3 における湿度依存性

3.4 水用ラドン検出器の校正実験

水中ラドン濃度の精密測定が本論文の最大の目的であり、この水用ラドン検出器の校正が、スーパーカミオカンデのバックグラウンドとしてのラドン濃度を見積もるのに重要な情報を与えることになる。

水用ラドン計の校正を行うために、まず用意しなければならないのは、校正の標準値を与えるラドン水(既知の濃度のラドンを含む純水)である。 ^{222}Rn は常温では気体として存在しているので、既知の濃度のラドンガスを水中でバブリングして溶かし込むという手法を用いて、ラドン濃度が $10^4 Bq/m^3$ 程度の標準ラドン水を作るシステムを開発した。水中ラドン濃度測定のための標準原器には、液体シンチレーションカウンター(LSC)を用いた。LSCは、 $10 Bq/m^3$ 程度以上の濃度について測定感度をもつ。実際に校正を行う時には、この標準ラドン水を適当量希釈してラドン濃度を調整する事が出来る。

この章の最初に述べたように、水用ラドン検出器は本来、筒の中を流れ落ちる水から散逸してくるラドンガスについて測定を行うように設計されている。しかし、実際のところスーパーカミオカンデの純水が脱気水であるために、スーパーカミオカンデ実験初期に水用ラドン検出器の高水位問題が発生した。それは、検出器内の空気が検出器に送りこまれて来た水に溶けこんでしまうために内部が負圧となって水位が上昇し、筒の部分が水で満たされ検出器本体にまで達してしまうという問題である。そのため、現在はスーパーラドンフリーエアを定期的にラドン検出器内に押し込む事によって低水位状態を保持し、測定を行なっている。スーパーラドンフリーエアとは、ラドンフリーエアを一時的にバッファ

タンクの中に蓄えて、残留しているラドンを崩壊させることによって作られる極低濃度のラドン除去空気である。高水位状態で測定を行っていたのは、スーパーカミオカンデ実験開始後のおよそ1年間である。

水用ラドン検出器校正において、気液間における ^{222}Rn 存在量の平衡状態(気液平衡)^[18]が重要である。これは、気液の温度と体積に影響される繊細な状態である。そのために、ラドン検出器内の気液比率が変化したりラドン散逸の条件が変わると、検出効率に影響が及ぼされることが考えられる。したがって、この水用ラドン検出器の校正は、通常状態の低水位の時と高水位の時の2つの定常状態について行った。

実際に校正を行う時は、その希釈された標準ラドン水(希釈ラドン水)の濃度は、気液の体積比と平衡を計算によって考慮する。その時、気液平衡の見積もりには、オストワルト係数 L を用いた。オストワルト係数 L は、ある温度について

$$L = \frac{\text{液相の単位体積当たりのラドン濃度}}{\text{気相の単位体積当たりのラドン濃度}}$$

で与えられる。オストワルト係数と温度の関係を図3.10に示す^[18]。閉じた系の中において、単位体積当たりの水中と空気中における ^{222}Rn の存在比が、気温20℃の時におよそ1対4になる。

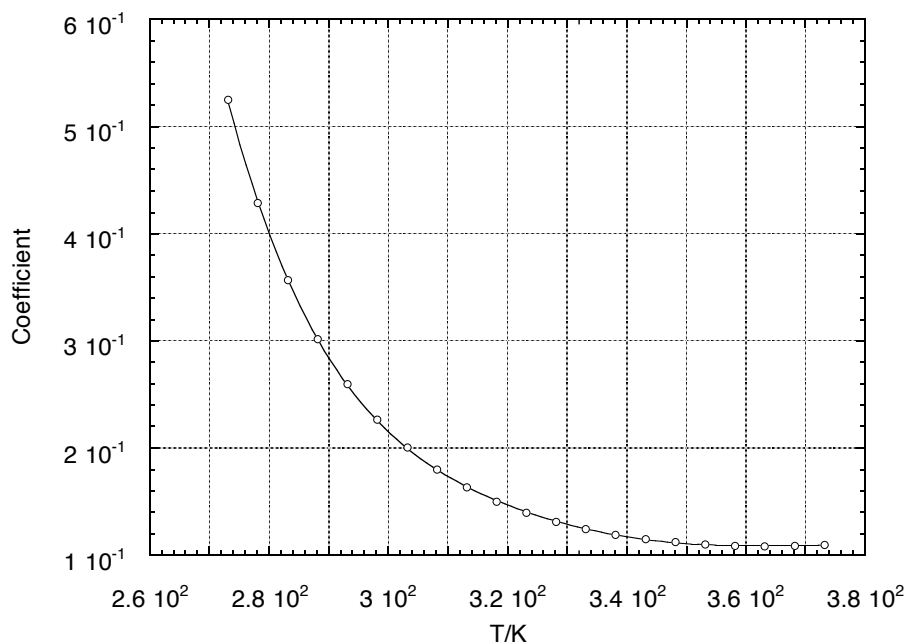


図 3.10: オストワルト係数

3.4.1 標準ラドン水製造システム

図 3.11 の右半分に示したのが、標準ラドン水製造システムである。このシステムは、ラドン源、4.7l のラドンガスバッファタンク、電離箱、バブリング用のガラス製 2l フラスコ、循環ポンプ、流量計、気圧計からなっている。それぞれは、1/4 インチシンフレックスチューブもしくはステンレスチューブによって接続してある。ラドン源の構成は、鉱石が 10g、容器が 20l のステンレスタンクになった点以外 3.3.2 の説明に従う。また、本システムは、株式会社東芝製ハロゲンリークデテクタ「HAL-8F」によって $1 \times 10^{-6} \text{cc/s}$ でリークが無い事を確認してある。

標準ラドン水は、バッファタンク中のラドンガスを純水中にバブリングすることにより作られる。バブリングを始める前に、ラドン源、電離箱、バッファタンクの間で十分にラドンガスを循環させることによってバッファタンク中に蓄えられる高濃度のラドンガスは、電離箱によってモニターされ、その濃度は本実験において およそ $8 \times 10^4 \text{Bq/m}^3$ であった。このラドンガスを 2l の純水に 12 時間、 1l/min で循環させるとおよそ $1.1 \times 10^3 \text{Bq/m}^3$ のラドン水を安定して作ることが出来るということ、LSC 測定によって確かめている。LSC は神岡には無かったので、動力炉核燃料開発事業団人形峠事業所で測定を行った。その結果を表 3.1 に示す。LSC 測定を行なわなかった場合は、バブリング前ラドンガス濃度の 13.8% が標準ラドン水濃度であるとした。

	バブリング前	バブリング後	
	ラドンガス濃度 [Bq/m^3]	ラドン水濃度 [Bq/m^3]	[%]
	電離箱	LSC	
1	76390	10000	13.1
2	76390	11000	14.4
3	82300	12000	14.6
4	82300	11000	13.4
5	82300	11000	13.4
平均			13.8

表 3.1: LSC による標準ラドン水濃度の測定

3.4.2 校正システム

校正システムを図 3.11 に示す。システムは標準ラドン水製造システムと校正システム本体とから成っていてこの二つは定量送液ポンプによって接続されている。低水位、高水位の両方について、このシステムで校正を行なった。

校正システム本体は、74.1l の水用ラドン検出器、希釈ラドン水のためのガラス製 20l フラスコ、純空気、水位計、内径 20mm ステンレス製ドレインホース、気圧計、流量計、水用循環ポンプから成る。それぞれは、1/4 インチのシンフレックスチューブもしくはステンレスチューブによって接続してあり、株式会社東芝製ハロゲンリークデテクタ「HAL-8F」

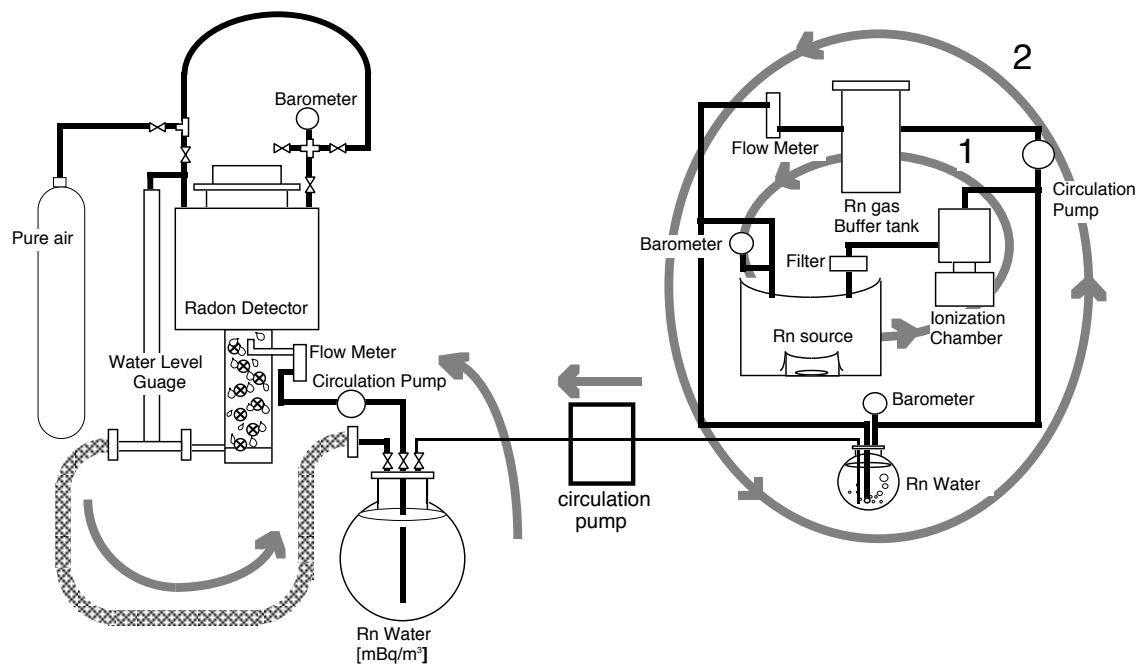


図 3.11: 水用ラドン検出器校正システム概略図-研究棟-

によって $1 \times 10^{-6} \text{ cc/s}$ でリークが無い事を確認してある。測定は、希釈ラドン水をラドン検出器下部の筒の中とフラスコの間で循環させ、その間にラドン検出器内に散逸してきたラドンガスについて行なう。

3.4.3 実験方法

まず、純水だけを循環させてバックグラウンド測定を行った。その後、定量送液ポンプによって標準ラドン水を 20l フラスコ中の純水に注入した。注入した標準ラドン水の量は、目安としてバックグラウンドの値に対して、5 倍や 100 倍などのラドン濃度になるように現在使用している校正定数 $2.148 [\text{cpd}/(\text{mBq}/\text{m}^3)]$ を用いて見積もった。そして、その結果のカウント数と計算から求められる希釈ラドン水の濃度とから校正定数を求めた。低水位、高水位のそれぞれについて典型的な測定結果を、図 3.12、3.13 に紹介する。

低水位、高水位における水量はそれぞれ、約 21l、約 45l である。高水位にするには、ラドン検出器内の空気をポンプで 20l フラスコ内に移動させ、20l フラスコ内の純水をラドン検出器内へ押し上げることによって行なった。そしてさらに 20l フラスコ内に純水を追加して、高水位面以下を純水で満たした。ただし、標準ラドン水を注入する際には、20l フラスコ内に若干の空気層を作った。

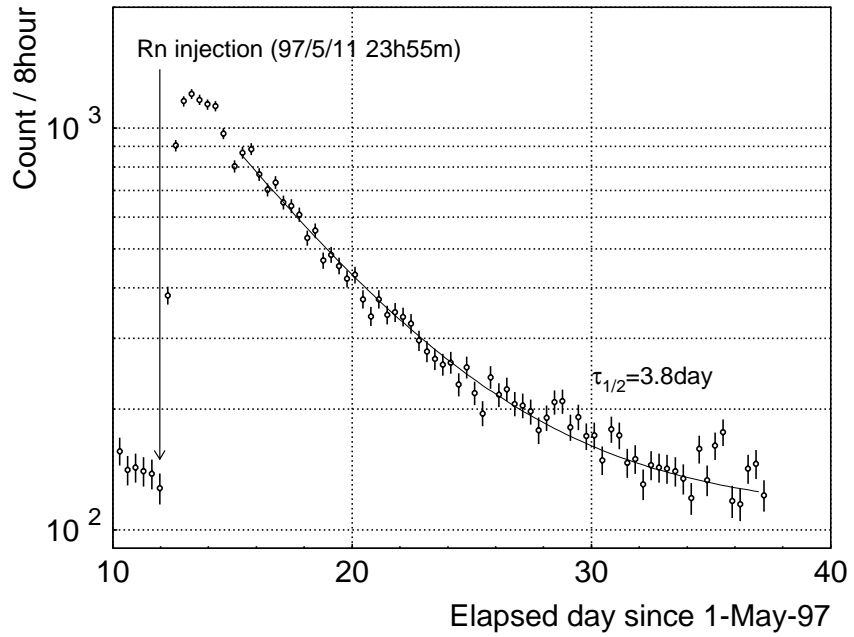


図 3.12: 低水位における典型的な測定結果

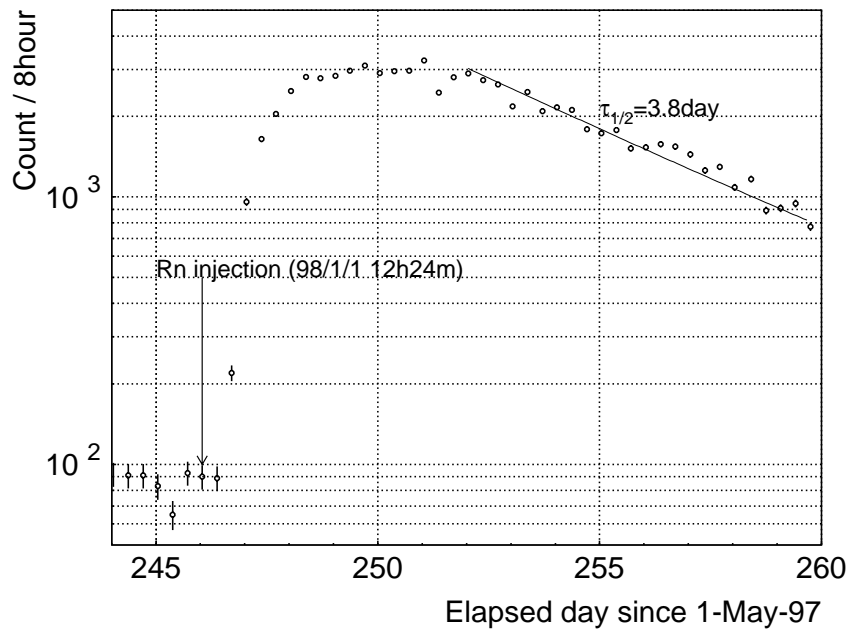


図 3.13: 高水位における典型的な測定結果

第4章 結果

4.1 空気用ラドン検出器

4.1.1 湿度特性

湿度特性 1 測定は、岐阜大学において 1996 年 10 月 30 日から 1997 年 1 月 20 日に渡って行った。その間、湿度コントロールはシリンジによるものと冷却装置によるものの 2 通りの方法によって行い、それぞれ「method1」(1996 年 10 月 30 日から 1996 年 11 月 1 日)、「method2」(1996 年 11 月 14 日から 1997 年 1 月 20 日)である。また、「method2」については絶対湿度が $0.1g/m^3$ 付近について 2 回測定を行ったので、1 回目と区別するために 2 回目を「method2'」とした。「method2'」では、「method2」の測定の後に再び冷却装置で水蒸気をトラップして絶対湿度を $0.1g/m^3$ 付近まで下げて測定を行った。図 4.1 にこれらの実験結果を示す。図 4.1 からわかることは、「method1」と「method2」の結果が良く一致しており、絶対湿度が $1.9g/m^3$ 以下では校正定数の絶対湿度依存性が顕著に現れており、 $1.9g/m^3$ 以上では絶対湿度依存性はなく一定となっていることである。また、絶対湿度 $0.1g/m^3$ において「method2'」の結果が「method2」に良く一致したことから「method2」の再現性が確認できた。

これらの結果から、絶対湿度 $0.08g/m^3$ 、 $11g/m^3$ に対応する校正定数はそれぞれ、 $1.8 \pm 0.1(cpd)/(mBq/m^3)$ 、 $0.71 \pm 0.04(cpd)/(mBq/m^3)$ となった。このとき ^{222}Rn の崩壊数に対する ^{214}Po のカウント数の比、すなわちこの検出器の検出効率は 30% となった。

湿度特性 2 測定は、研究棟において 1997 年 11 月から 1998 年 2 月に渡って行なった。これらから得られた校正定数を図 4.2 に method3 として示す。これらの結果から、絶対湿度 $0.08g/m^3$ に対応する校正定数は、 $2.5 \pm 0.2cpd/mBq/m^3$ となった。この結果は湿度特性 1 の結果に対して約 40% 大きい。それは、後章で議論するようにラドン検出器の器差、及び校正システムのシステム差による系統誤差であると考えられる。それにしたがって、まだデータを得ていない絶対湿度 $11g/m^3$ に対応する校正定数の期待値を計算すると、約 $1.0 \pm 0.06cpd/mBq/m^3$ となる。

以上 2 つの実験結果を合わせると空気用ラドン検出器の校正定数は、表 4.1 となる。誤差には、統計誤差と第 5 章で議論する系統誤差を見積もった。

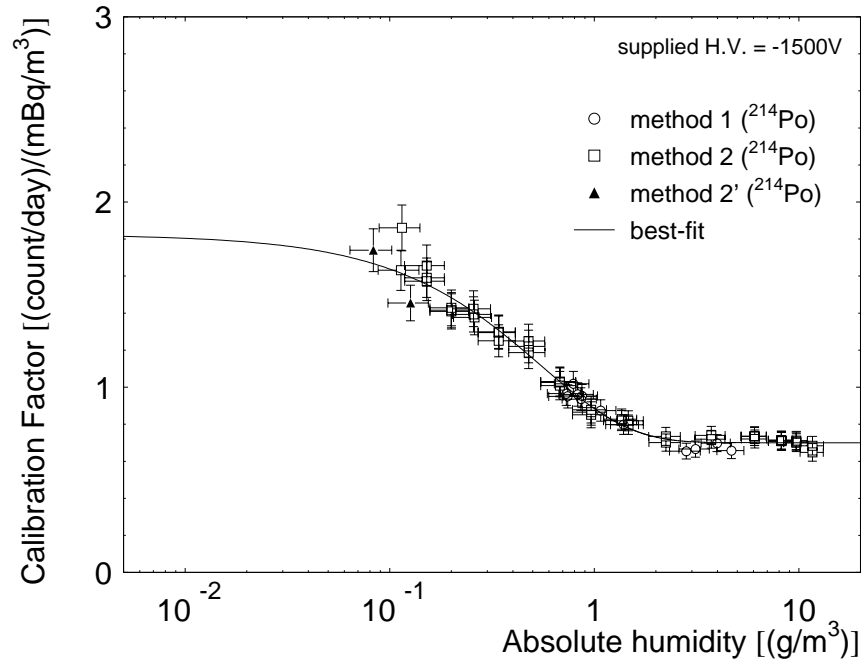


図 4.1: ラドン濃度 ~ 数千 Bq/m^3 における空気用ラドン検出器の湿度特性-岐阜大学-

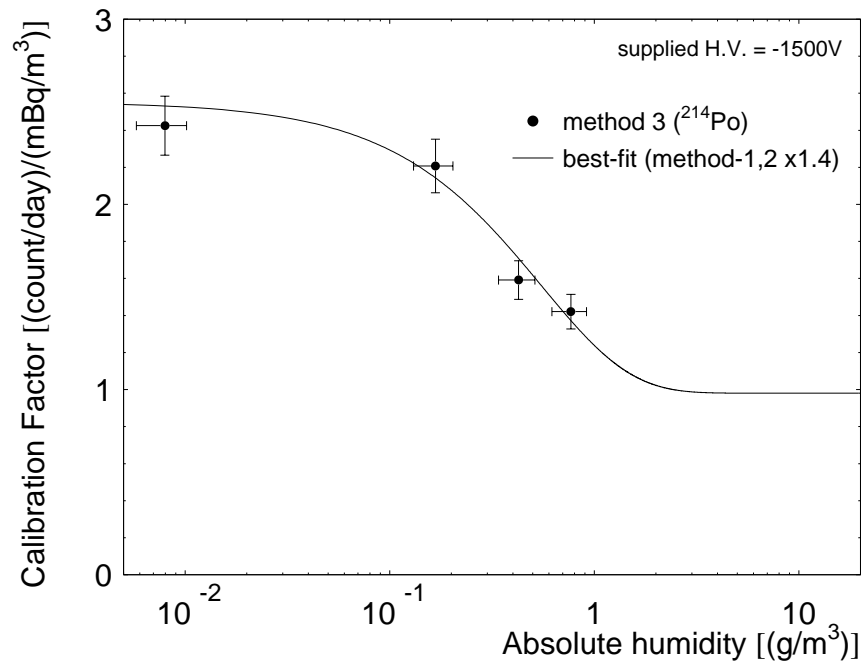


図 4.2: ラドン濃度 ~ 数 Bq/m^3 における空気用ラドン検出器の湿度特性-研究棟-

	絶対湿度 [g/m^3]	校正定数 [$cpd/mBq/m^3$]
水槽入口	0.08	$2.2 \pm 0.2_{\text{sys.stat.}} \pm 0.4_{\text{unknown syst.}}$
水槽出口	11	$0.86 \pm 0.06_{\text{sys.stat.}} \pm 0.2_{\text{unknown syst.}}$

表 4.1: 湿度特性 1 と 2 を合わせた空気用ラドン検出器の校正結果

4.1.2 濃度特性

ラドン検出器の濃度特性を調べるために、図 4.1 に示した湿度特性を以下に示す関数を用いてパラメータ化した。

$$y = 1.1 \cdot e^{-1.8x} + 0.7 \quad (4.1)$$

y : 校正定数 [$cpd/mBq/m^3$]

x : 絶対湿度 [g/m^3]

式 4.1 の関数は、図 4.1 中に best-fit として示した。式 4.1 がラドン濃度によらないと仮定し、5.2 で紹介した各々の測定点について得られる、校正定数の式 4.1 に対する比を調べた。その結果を、測定時のラドン濃度の関数として示したのが図 4.3 である。method1 ~ 3 は、図 4.1、図 4.2 に示した method1 ~ 3 に対応する。図 4.3 から、ラドン検出器のラドン濃度依存は特に確認されない。特に method3 の結果は、数十 mBq/m^3 から数千 Bq/m^3 の領域をカバーしており、その間で有意な濃度依存はないことがよくわかる。

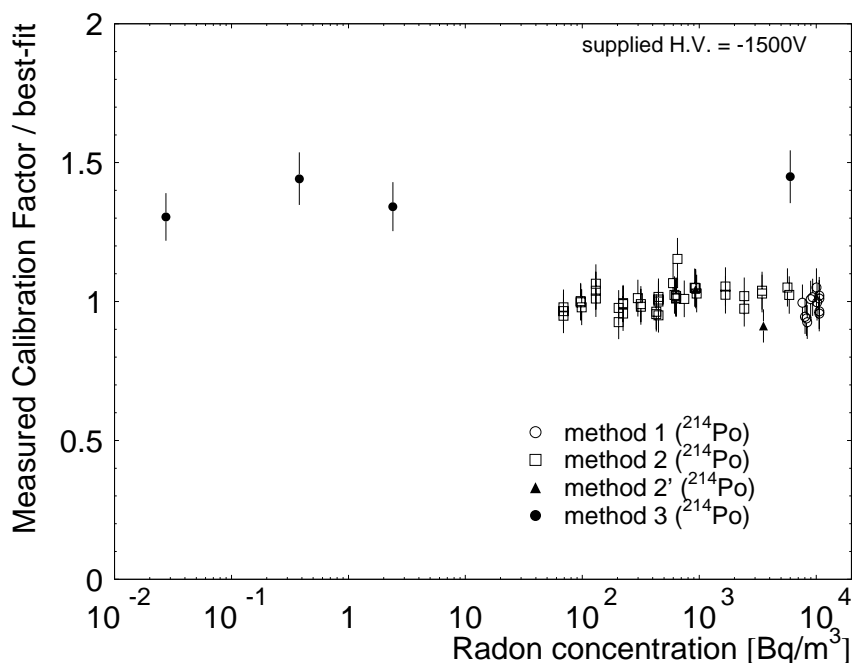


図 4.3: ラドン検出器の濃度特性

4.2 水用ラドン検出器

4.2.1 低水位

測定は、1997年5月から1997年9月に渡って4回行なった。注入したラドンの量は、濃度にした場合にバックグラウンドレベルに対しておよそ5倍になるように見積もった。

この4回の測定において、気液の体積比は4/1、オストワルト係数(図3.10)は1～3回目の時に0.24、4回目の時に0.26であった。したがって、本校正における気液中のラドンの存在比(希釈ラドン水中に存在するラドンの数/注入したラドンの数)はそれぞれ、1～3回目の時に1/17.7、4回目の時に1/16.4である。これらの計算から求められる、ラドン注入時刻における希釈ラドン水の濃度 [mBq/m^3] が、本校正の標準値になる。測定値(バックグラウンドは除いてある。)は半減期3.8日の崩壊曲線でフィットし、ラドン注入時刻に外挿した値を用いた。

その結果得られた校正定数を表4.2にまとめた。誤差には、統計誤差と第5章で議論する系統誤差を見積もった。

4.2.2 高水位

測定は、1998年1月に2回行なった。注入したラドンの数は、濃度にした場合にバックグラウンドレベルに対して、1回目は100倍、2回目は5倍になるように見積もった。

この2回の測定において、気液の体積比は1/1.3、オストワルト係数(図3.10)は0.26であった。したがって、本校正における気液中のラドンの存在比(希釈ラドン水中に存在するラドンの数/注入したラドンの数)は1/4である。低水位の時と同様にして標準値と測定値を決めると、校正定数は表4.3のように求められた。誤差には、統計誤差と第5章で議論する系統誤差を見積もった。

	ラドン注入時刻 t_0	希釈ラドン水濃度 @ t_0 [mBq/m^3]	t_0 へ外挿した 測定値 [cpd]	校正定数 [$cpd/mBq/m^3$]
1	1997/5/11 23:55	1120.4±114.3	3964.5±43.3	3.5±0.4
2	1997/6/23 10:47	588.2±60.0	2325.9±37.5	4.0±0.5
3	1997/8/ 6 11:56	644.3±65.7	2116.6±34.0	3.3±0.4
4	1997/9/17 14:15	459.8±46.9	1565.4±42.1	3.4±0.4
平均				3.6±0.5

表 4.2: 低水位状態における水用ラドン検出器の校正結果

	ラドン注入時刻 t_0	希釈ラドン水濃度 @ t_0 [mBq/m^3]	t_0 へ外挿した 測定値 [cpd]	校正定数 [$cpd/mBq/m^3$]
1	1998/1/ 1 12:24	70640.2±7205.3	25427.8±133.4	0.36±0.05
2	1998/1/15 10:00	3248.9±331.4	1477.4±7.8	0.45±0.06
平均				0.41±0.05

表 4.3: 高水位状態における水用ラドン検出器の校正結果

第5章 議論

5.1 ラドン検出器校正実験の系統誤差

本校正実験における系統誤差は、表 5.1 のようにまとめられる。

	系統誤差の原因	校正定数の誤差
空気用、水用共通	露点計の精度	$+1\% @ 0.08g/m^3$ $-2\% @ 11g/m^3$ ~ $0\% @ 11g/m^3$
	電離箱の電流値測定精度	$\pm 4.2\%$
	電離箱の電流値 → ラドン濃度変換定数	$\pm 5\%$
	空気用	
空気用	ラドンガスバッファタンクの体積 器差、及び校正システム差	$\pm 4\% @$ 研究棟 $\pm 20\%$
	水用	
水用	LSC 測定誤差	$\pm 10\%$
	気液平衡時のラドン溶解度	$+3.7\% @ 20 \pm 1$ -4.6%

表 5.1: ラドン検出器校正実験の系統誤差

絶対湿度 $0.08g/m^3$ (気温 20 において、露点温度が約 -40) において、露点計の指示精度 ± 2 は、絶対湿度に $+25\%$ の影響を与える。それが校正定数に及ぼす影響は、図 4.1 から約 $+1\%$ と見積もることが出来る。絶対湿度 $11g/m^3$ においては、校正定数が湿度依存しないので、露点計の精度による誤差は無視できる。

電離箱の精度による誤差は、電離箱本体による電離箱内部容量誤差 3% と、振動容量電位計の高抵抗器による誤差 $\pm 2\%$ 、指示精度 $\pm 1\%$ 、再現性 $\pm 2\%$ とを合わせたものである。電流値からラドン濃度に変換する定数の誤差は、節 3.3.2 に示したものである。

ラドンガスバッファタンクは、内径 $1cm$ 、長さ $50cm$ のステンレス管の両サイドにバルブを取り付けたもので、その体積は $39.27cm^3$ と小さく、両サイドのバルブの内部容量を無視する事ができない。そこで、このバッファの長さが $2cm$ 違ったと仮定した場合に、校正定数の変化する割合は約 4% となった。

LSC 測定誤差は、水中ラドンのサンプリング、試料作り等を含む、LSC 法の解釈自体の誤差が $\pm 10\%$ 程あるというものである。[19] を参考にした。

気液平衡時のラドン溶解度の誤差には、温度変化した場合のオストワルト係数 [18] の

		絶対湿度 [g/m^3]	系統誤差 [%]
空気用	湿度特性 1	0.08	+6.6 -6.8
		11	±6.5
	湿度特性 2	0.08	+7.7 -7.9
		11	±7.7
	平均	0.08	+7.2 -7.4
		11	±7.1
水用		-	+12.5 -12.6

表 5.2: ラドン検出器校正実験の合成された系統誤差

誤差によるものと、気液体積比によるものの2つの要素について見積もった。オストワルト係数は、気液体積比が1/1の時の水中へのラドン溶解度を表しているものなので、この係数に実際の校正時の気液体積比を合わせたものが、気液平衡時のラドン溶解度ということになる。本校正を行った部屋は約20℃の恒温状態になるようにしたので、校正システム内の温度は空気中、水中共に20℃になっているとみなした。その時、オストワルト係数は、室温20℃に対して±1%変化した場合に $\pm 2.2/3.5\%$ 変化する。気液体積比には、配管系の体積の見積もり誤差と、純水入れ換え時に系内に残留していた水量による誤差などが含まれ、それらが $\pm < 500ml$ であったとすると、 $\pm < 3\%$ である。

以上の系統誤差(器差、システム差を除く)を2乗平均すると、表5.2となる。

器差、システム差の±20%は、第4章で紹介した湿度依存性の結果、湿度特性1(図4.1)と湿度特性2(図4.2)とから評価した。この2つの結果は系統的におよそ40%の差が生じており、表5.2の値だけではその差を説明しきれない。そして、その原因として考えられるのが、ラドン検出器の器差によるもの、校正システムのシステム差によるものの2通りである。器差については、同じ条件のもとで何台かのラドン検出器について測定を行う必要がある。システム差について考えられる事は、系内に存在しているエアロゾルによる検出効率への影響等である。静電捕集される $^{218}Po^+$ は、空気中でエアロゾルに付着した状態でも存在していると考えられる。このような $^{218}Po^+$ が静電捕集されるかされないかは、系の配管の形状や環境条件に影響を受けると考えられる。したがって測定は、そのように不確かな $^{218}Po^+$ を取り除いて行う必要がある。これらは、フィルターを用いれば取り除ける事がわかっており、本校正においても系内に導入したが、完全にその影響を排除出来なかった可能性がある。ラドン検出器の入口と電離箱の入口にフィルターを取り付けることによって、システム差をより抑える事が出来ると考えられる。このシステム差をどれだけ小さく抑えられるかが、今後の最重要課題である。

5.2 静電捕集型ラドン検出器の湿度特性

校正定数が図4.1、4.2のような絶対湿度特性をみせる理由について考える。

1988年にP.K.Hopkeらが、 $^{218}Po^+$ 、 $^{218}PoO_2^+$ の水蒸気 H_2O [ppm]による中和率 R [/s]を実験的に次のように報告している。[20][21]

$$R=1.14 \times (H_2O)^{1/2} \quad (H_2O \leq 1800 \text{ppm})$$

$$R=47.9 \pm 1 \quad (H_2O > 1800 \text{ppm})$$

ここで、中和率は彼らの測定システム中で単位時間あたりに中和されたイオン数である。すなわち、このP.K.Hopkeらの実験結果は、中和率がH₂Oの濃度が0からおよそ1800ppm¹の間で水蒸気濃度の平方根に比例し、それ以上になると一定となることを示している。

次に中和率から、水蒸気濃度 [ppm] と、²¹⁸PoO₂⁺ が中和するまでに移動できる距離 (中和距離) との関係を考えてみる。中和距離 [cm] は、中和率に逆比例する中和までの平均時間 [s] (中和時間) と、移動度 [$cm^2 / (s \cdot V)$]、電場の強さ [V/cm] の積で表される。つまり中和距離は、中和率と逆比例の関係にある。

したがって、上記の関係式で中和率を中和距離に置き換えた場合、水蒸気濃度がおおよそ1800ppm以下の領域では、中和距離が水蒸気濃度の平方根に逆比例し、1800ppm以上では一定になっていく様子が想像できる。そして、この中和距離と水蒸気濃度の関係が、静電捕集型ラドン検出器の絶対湿度特性を特徴づけていると考えられる。中和距離を決定付けているのは、電場の強さである。電場の強さは、検出器の形状、材質等によって特有であり、検出器内にどれだけの湿度を有する時に校正定数が一定へと転じるかは、検出器ごとの特性となると考えられる。

また、中和距離は捕集効率すなわち校正定数と比例関係にある²と考えられるので、結局、中和率と校正定数の逆数は比例することになる。本校正実験における校正定数の逆数と水蒸気濃度との関係は、P.K.Hopkeらと同様にして横軸に絶対湿度 H₂O [g/m^3] の平方根をとると、岐阜大学で行った湿度特性1の結果については、図5.1のように表せ、その関係式は次のように書ける。

$$1/C = 0.33 + 0.78 \times (H_2O)^{1/2} \quad (H_2O \leq 1.9 g/m^3)$$

$$1/C = 1/0.71 \quad (H_2O > 1.9 g/m^3)$$

ただし、我々はラドン検出器の濃度校正には²¹⁴Poを用いる³ので、上記の関係は²¹⁴Poについての結果である。

研究棟で行った湿度特性2の結果については、湿度特性1の時よりもさらに低い湿度における実データを得ることができ、そのデータは、数 mg/m^3 という湿度領域では湿度依存性を持たない可能性を示唆している。おそらく、この湿度領域では中和による検出効率低下の効果は無視出来る。また、データ量が不十分なので、今後さらに詳しく測定を行うことが課題である。数 g/m^3 以上の湿度領域については、湿度特性1と同様の関係を説明することができる (図5.2)。これらの関係から、本校正実験から得られた静電捕集型ラドン検出器の湿度特性は、P.K.Hopkeらにより報告されている結果と定性的に一致するといえる。すなわち、²¹⁸Poの水蒸気による電気的中和が、我々の開発した静電捕集型ラドン検出器が示す湿度特性の主要な原因であると言えるだろう。

ところで、なぜ捕集効率は、湿度の低い領域で湿度の平方根に逆比例し、ある湿度以上の領域で一定の値を示すのだろうか。その理由については、今のところ以下のように解釈することができる^[20]。

¹水蒸気 H₂O の濃度を [ppm] で表しているが絶対湿度 [g/m^3] に換算すると、1800ppm は気温が 19 の時およそ $1.4g/m^3$ に相当する。

²さらに、中和距離が検出器の大きさよりも十分長くなると、捕集効率との関係は一定になると考えられる。

³²¹⁴Poによるα線は、他の娘各種からのα線からきれいに分離できるため。

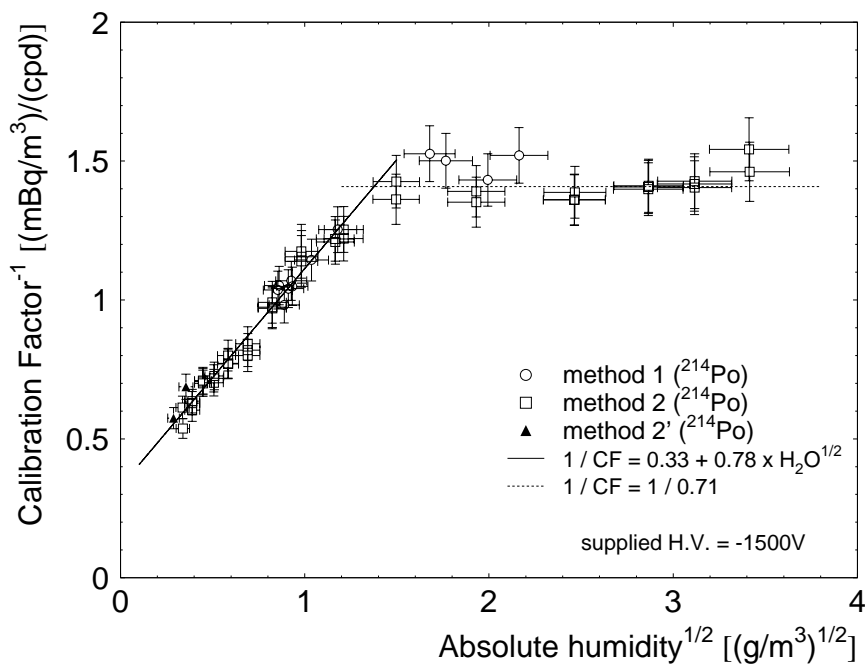


図 5.1: 校正定数の逆数と平方根をとった絶対湿度の関係—湿度特性 1—

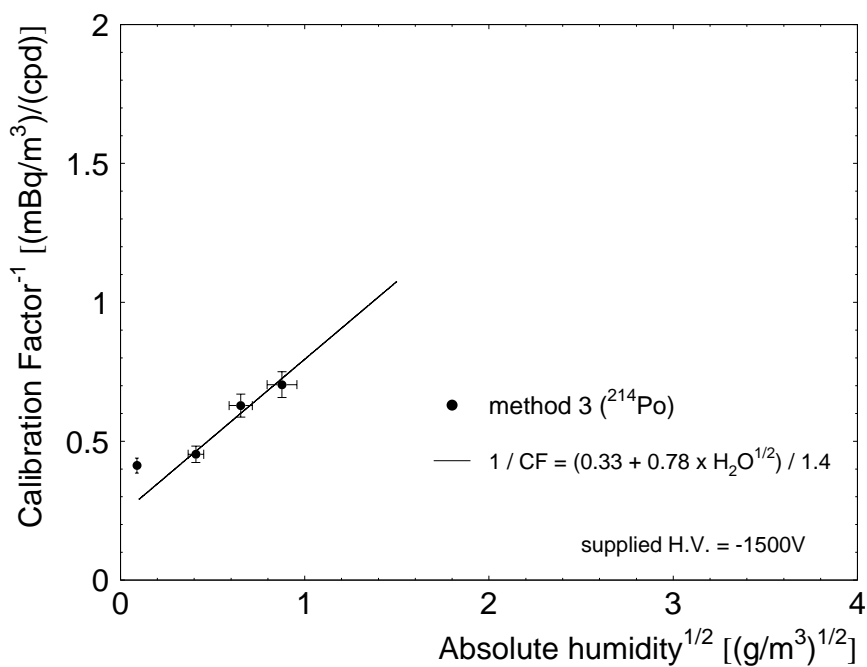
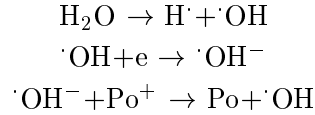


図 5.2: 校正定数の逆数と平方根をとった絶対湿度の関係—湿度特性 2—

湿度の平方根に逆比例する理由 放射性分解によって生成された水酸基 OH^\cdot が、電子スカベンジャーとして



このような中和現象を引き起こしていることが考えられる。

ここで、水酸基が水蒸気に対してどのくらいの割合で存在しているかを考える。水酸基の濃度 $[\text{OH}]$ は、 Q を水分子の分解定数、 k を結合定数とすると

$$d[\text{OH}]/dt = Q[\text{H}_2\text{O}] - k[\text{H}][\text{OH}]$$

と書くことが出来る。定常状態では、 $[\text{H}] \approx [\text{OH}]$ 、 $d[\text{OH}]/dt \approx 0$ であるので、その時

$$[\text{OH}] = \sqrt{\frac{Q}{k}[\text{H}_2\text{O}]}$$

となる。これから、中和を引き起こす電子スカベンジャーである水酸基の濃度 $[\text{OH}]$ が、水蒸気の平方根と比例関係にあることがわかる。そして、これが $^{218}\text{Po}^+$ 、 $^{218}\text{PoO}_2^+$ の捕集効率の逆数が湿度の平方根に比例すること（中和率が湿度の平方根に比例すること）の理由になると考えられる。

一定になる理由 上記のメカニズムでは、ある湿度を境に捕集効率が一定へと転じることは説明できない。したがって、別のメカニズムが存在し、それが優勢になって現われていると考えるべきである。

中和現象のメカニズムの一つに、 $^{218}\text{PoO}_2^+$ の周りに水分子がクラスタリングするために移動度が低下し、その結果、捕集効率が低下するという考え方がある。これは、イオン化エネルギーの高い $^{218}\text{PoO}_2^+$ の移動度が低下するために、空気中のイオン化エネルギーの低い物質との間で電荷移動による中和が起こりやすくなるというものである。このクラスタリングできる水分子の数には限界があるという指摘があり、それが移動度を一定にさせ、捕集効率が一定（中和率が一定）になる原因になっているのではないかと考える事ができる。

しかしながら、これらの現象について未だ確証はなく、推測の域を脱していない。

5.3 水用ラドン検出器の水位依存性

節 4.2 に示したように、水用ラドン検出器の校正定数は低水位と高水位の時で約 9 倍の違いがある。つまり、我々の開発した水用ラドン検出器には、検出効率の水位依存性があるということが、今回明らかになった。

この水位依存性が現われる原因は、ラドン検出器内部におけるラドン溶解度の気液平衡にあると考えられる。図 3.2 に紹介したように、この水用ラドン検出器は、検出器下部の筒上方に送り込まれた水が、筒中のプラスチックボールをつたわって流れ落ちて行く過

程で拡散されることにより、水と空気の接触面積が大きくなり、水中に含まれているラドンが空気中に浸みだし易くなる構造になっている。低水位の時は、まさにこの状態が実現されるわけだが、高水位の時は筒の内部で対流が起こる程度で、このような効果は全く期待できない。その点において水と空気の接触面積が大きく異なるので、ラドン溶解度の気液平衡の状態、もしくは気液平衡に至る過程で、何らかの違いが生じていることが想像される。また、高水位において、水面近傍ではオストワルトによって説明されるラドン溶解度の気液平衡状態が適用できても、水深の深いところでは適用できないのかもしれない。そのために、約9倍という校正定数の差を生じさせていると考えられる。

つまり、この水用ラドン検出器は水位一定の状態測定すべきであり、原理的にも実験結果からも低水位で測定を行うのが望ましいと言える。

今回は、スーパーカミオカンデでの実測定と同じ状態である、筒の底から排水口までの約5cmに水が溜っている低水位状態と、検出器本体の底から約10cmまで水で満たされた高水位状態の2つの状態についてだけ調べたが、この水用ラドン検出器の性質を把握するという意味で、水位依存性について更に詳細に調べる価値があると思われる。

5.4 超高感度ラドン検出器の評価

検出器の内壁は羽綿研磨、及び電解研磨処理によって、できるだけバックグラウンドを低減するための配慮がなされているが、それでもラドンは検出器内部から発生する。そのため検出器に純空気を注入して長期間密閉すると、内部は発生したラドンで平衡状態となる。そして、そのバックグラウンド測定で得た値を用いて、ラドン検出器のラドン濃度検出限界値を求めることができ、それがラドン検出器の性能を与える。

一般に検出限界値は、キュリーの方法^[22]によって求められ、検出限界値LDは、校正定数CF、バックグラウンド測定の標準偏差 σ_s 、測定時間Tによって、

$$LD = \frac{2.71 + 4.65\sigma_s}{CF \cdot T} \quad (5.1)$$

で与えられる。ここで、実際にスーパーカミオカンデで測定を行っている、水用ラドン検出器について求めた検出限界値を、表5.4に示す。校正定数には低水位用の $3.6 \text{cpd}/m\text{Bq}/m^3$ を用いた。この結果から、現在実用化されている他のラドン検出器より 10^{-3} は検出限界

	バックグラウンド測定値 [cpd]	標準偏差	検出限界値 [$m\text{Bq}/m^3/\text{day}$]
送り水	6.5	2.6	4.1
帰り水	15.7	5.0	7.2
	19.6	6.1	8.5
外水槽約 Z=+17m 水	6.6	3.0	4.6

表 5.3: キュリーの方法による水用ラドン検出器の検出限界値

が良い事がわかった。検出器ごとのばらつきが見られるが、それは主としてステンレスの電解研磨、溶接法、取り扱いによる汚染などのばらつきに起因すると考えられる。

また、これらの値と、節 5.6 で見積もった実際のスーパーカミオカンデのラドン測定結果を比較してみると、現在のスーパーカミオカンデのラドン濃度は、本ラドン検出器の検出限界の領域に達しているように見える。したがって、スーパーカミオカンデが、今後さらなるラドン濃度低減化を図っていく上で、更に感度の高いラドン検出器の開発が求められる。

5.5 現在使われている校正定数との比較

これまでのスーパーカミオカンデにおけるラドン濃度測定では、空気用、水用共に、本校正以前に一度行われた、暫定的な校正で得られた値を用いて来た。その値はそれぞれ

$$\begin{array}{ll} \text{空気用} & 1.094\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3 \\ \text{水用} & 2.148\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3 \end{array}$$

で、その校正は次のような条件の元で行われた。

空気用 ラドン源には、濃度がおよそ $5.5 \times 10^3 \text{Bq}/\text{m}^3$ (電離箱により測定された。) の鉍石の粉を容器に入れたものを用いて、ラドン検出器との間を流量 $2.7\text{l}/\text{min}$ で循環させて、測定が行われた。系は、本校正と同様にシンフレックスチューブで接続された閉鎖系であった。湿度コントロールには、除湿剤 P_2O_5 を用いていたが、正確な湿度はわかっていない。また、系にフィルターは使用されていなかった。

水用 ラドン源には、濃度 $9420\text{Bq}/\text{m}^3$ (LSC 法により測定された。) の坑内の側溝水を用いた。側溝水は、天然の湧き水なのでイオンや塵などの不純物が多く、また、校正実験中のラドン濃度が一定であったかどうかは確認されていない。測定は、スーパーカミオカンデの水槽を側溝水に置き換えた状態、すなわち側溝水を直接汲み上げ流量 $1\text{l}/\text{min}$ で検出器内へ送り込み排水することによって行った。

また、この校正において注意すべき事は、ラドン検出器の検出部に用いられた PIN フォトダイオードの面積が 1cm^2 のものであったという点である。(現在使用しているのは 1.8cm^2 のものである。) したがって、この校正によって得られた値は、 1cm^2 の PIN フォトダイオードを用いた時のラドン検出器の校正定数であり、その値は $0.934\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3$ である。校正定数 $2.148\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3$ という値は、以前に空気用ラドン検出器で、この 2 種類の PIN フォトダイオードについて比較して求めた比率 2.3 倍を $0.934\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3$ に適用させて得た値である。

このように、先に行われた暫定的な校正においては不確定要素が大きく、系統誤差も見積もれていない。

本校正においては、校正システムの環境をコントロール及び監視できるようにしたので、不確定要素を最低限に抑えることができ、節 5.1 で議論したように系統誤差を詳細に調べることができた。またその中で、ラドン検出器の湿度特性について連続したデータを得られたことが大きな成果である。その点で、得られた校正定数への信頼度を向上させることができたと言える。

次に、この暫定的に行われた校正と本校正で得られた校正定数について具体的に比較を行ってみる。

空気用については、測定時の湿度が不明ではあったが、除湿剤を用いていたということから乾燥状態であったことが想像される。したがって、湿度依存領域であったと仮定すると、本校正で得られた値とのあいだに大きな矛盾はない。

水用については、本校正における結果の方が約 1.7 倍大きく、本校正で評価した系統誤差約 13% では説明しきれない有意な差がある。この原因としては、 $2.148\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3$ という値が、間接的な方法によって求められた値であるということ、空気用と水用とでは検出器の形状や体積がやや異なるため、空気用で得られた比率が必ずしも水用と一致するとは限らないということ等が考えられる。また、空気用同様にシステム差による影響が疑われる。

5.6 スーパーカミオカンデにおけるラドン濃度測定

本校正で得られたラドン濃度校正定数 [$\text{cpd}/\text{Bq}/\text{m}^3$] (節 4.1、4.2) を、現在のスーパーカミオカンデにおけるラドン濃度測定に適用させると、図 5.3 ~ 5.7 となる (バックグラウンドを含む)。図中に示してあるバックグラウンドの値は、以下の条件の元に見積もった値である。

空気用 スーパーカミオカンデでの測定が開始する以前の 1994 年に 14 日間で測定された値である。測定に用いた空気は普通の空気であったので、測定時の湿度は不明だが、普通の空気ならば校正定数の湿度依存性が無い領域であったとして、校正定数には $0.86 \pm 0.06 \pm 0.2\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3$ を用いた。

水用 いずれも、スーパーラドンフリーエアシステムが導入される以前の測定である。図 5.5 ~ 5.7 のところで述べているように、現在のところスーパーラドンフリーエアシステムは不完全で、外部のラドンが侵入している可能性が高く、このシステムが導入される以前よりもバックグラウンド値が高くなっていることが予想される。したがって、実際の水中ラドン濃度は本結果よりも低いと考えられる。測定期間は、送り水が 1996 年 10 月 28 日から 12 月 2 日の 36 日間、返り水が 1996 年 8 月 18 日から 10 月 4 日の 48 日間及び 1996 年 12 月 21 日から 1997 年 1 月 5 日の 16 日間、外水槽中 $z=+17\text{m}$ 付近の水が 1996 年 9 月 26 日から 10 月 28 日の 33 日間である。校正定数には低水位時の $3.6 \pm 0.5\text{cpd}/\text{mBq}/\text{m}^3$ を用いた。

これらのバックグラウンド測定は、おそらく高水位の状態での測定であったと思われるが、バックグラウンド測定においては、その起源が水以外の部分に起因するところが大きいと考えるので、高水位による検出効率の低下は無いものとみなした。

図の中で、ラドン濃度の変動の大きいところは、純水装置やラドン検出器の作業が行われた時である。1998 年 1 月の平均をとったラドン濃度を表 5.4 にまとめた。

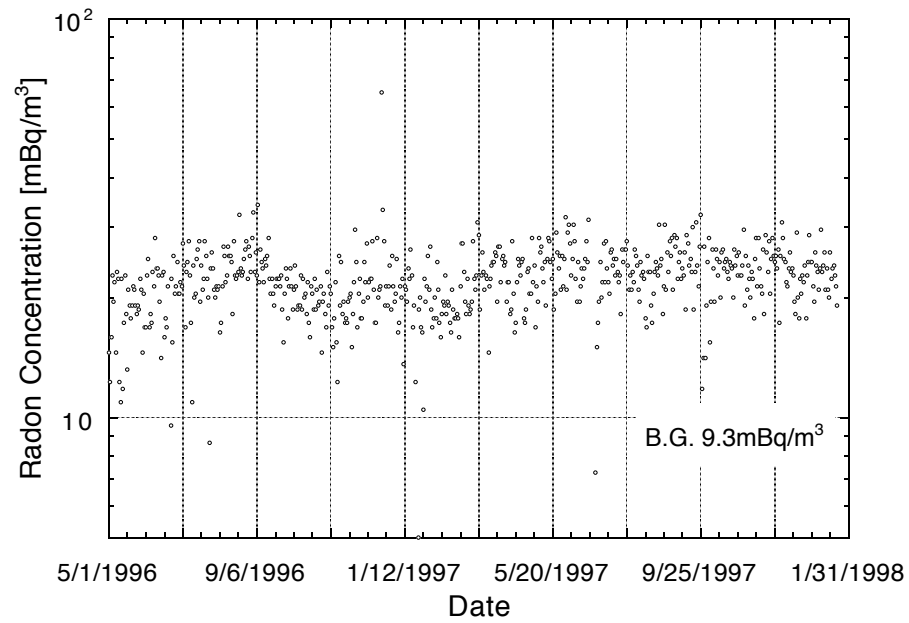


図 5.3: 水槽入口におけるラドンフリーエア中ラドン濃度安定している。

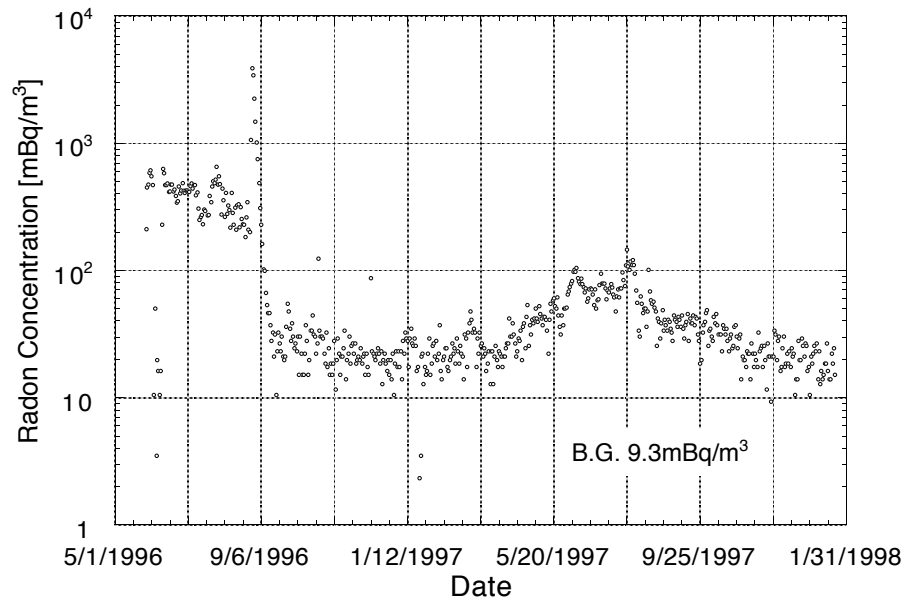


図 5.4: 水槽出口における空气中ラドン濃度

1996年7月にリークの疑いがあった水槽天井部分の点検口を気密にし、その結果ラドン濃度が下がった。しかし、まだリークがあり、夏はラドン濃度が高い。(坑内の空气中ラドン濃度の季節変動に相関する変動が見られる。)今のところ、太陽ニュートリノ事象の解析に影響は認められていない。

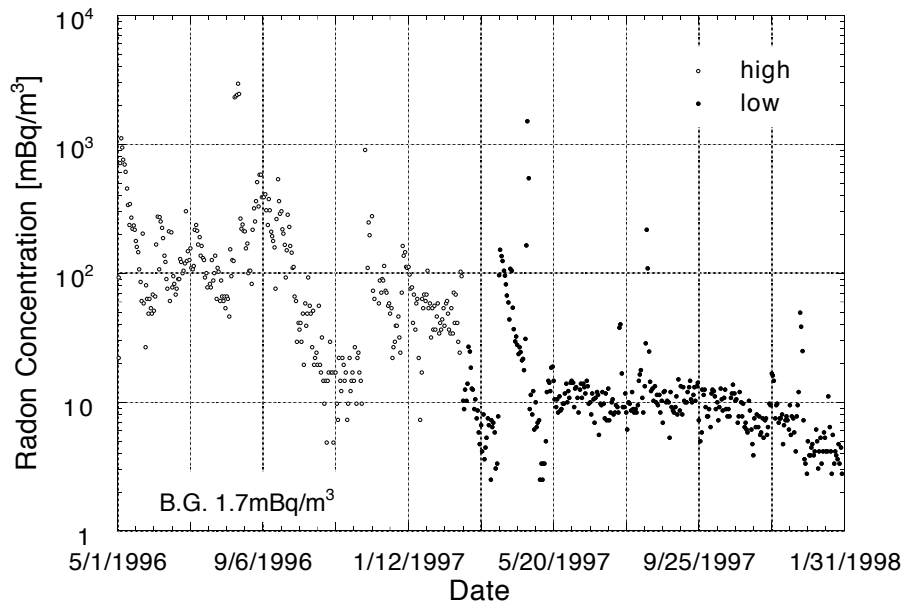


図 5.5: 水槽への送り水中のラドン濃度

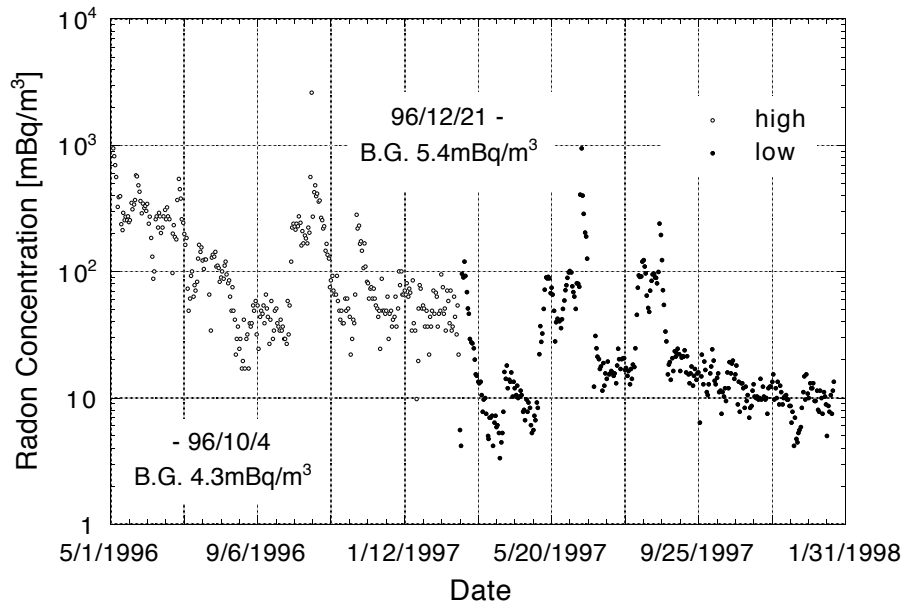


図 5.6: 水槽からの戻り水中のラドン濃度

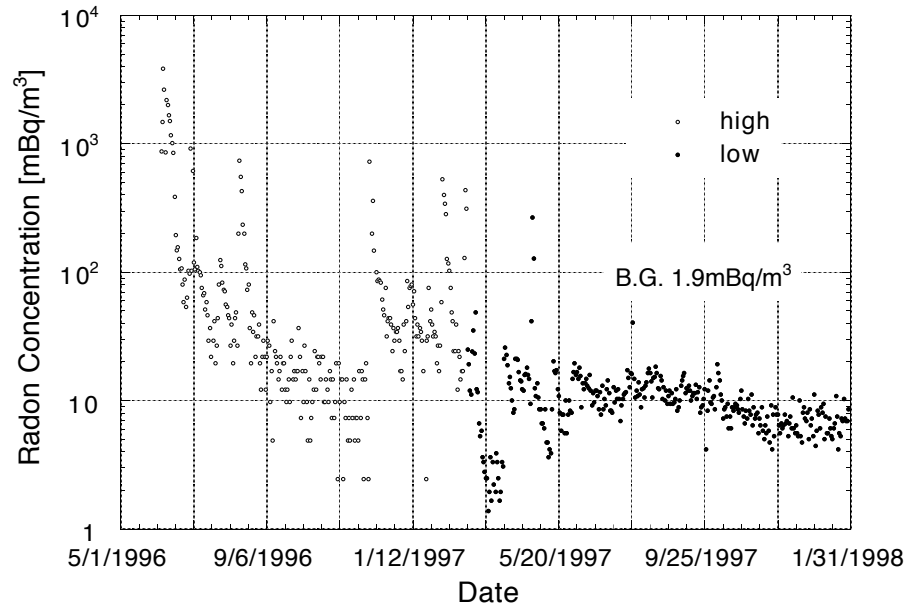
図 5.7: 外水槽中 $z=+17\text{m}$ 付近のラドン濃度

図 5.5-図 5.7:

1996年3月から、スーパーラドンフリーエアによる低水位測定を開始した。図 5.4 と同様季節変動が見られるので、スーパーラドンフリーエアシステムのどこかにリークしているところがあると疑われる。さらに、その影響で水中ラドン濃度が高くなっている。リークの場所については現在調査中である。1998年3月に新しいラドントラップシステムを導入して改善する予定である。

	校正定数 [cpd/mBq/m ³]	平均ラドン濃度 [mBq/m ³]
空気		
ラドンフリーエア	$2.2 \pm 0.2_{stat.syst.} \pm 0.4_{unknown syst.}$	$9.7 \pm 0.7_{stat.syst.} \pm 1.9_{unknown syst.}$
水槽出口	$0.86 \pm 0.06_{stat.syst.} \pm 0.2_{unknown syst.}$	$13.8 \pm 1.0_{stat.syst.} \pm 2.8_{unknown syst.}$
純水	低水位	
送り水	$3.6 \pm 0.5_{stat.syst.}$	<3.2
戻り水	$3.6 \pm 0.5_{stat.syst.}$	<5.0
水槽中	$3.6 \pm 0.5_{stat.syst.}$	<5.7

表 5.4: スーパーカミオカンデにおけるラドン測定 (1998年1月)

5.7 スーパーカミオカンデへのラドン水注入実験

本論文で既に述べたように、ラドン検出器の校正を行う過程で、標準ラドン水(節 3.4.1)を安定にする技術を初めて得る事ができた。この技術を応用して、既知濃度のラドン水をスーパーカミオカンデに直接注入することにより、これまで不明であったラドン事象に対するスーパーカミオカンデの検出効率を調べる事ができた。この実験で得られたデータからは、スーパーカミオカンデの純水中ラドン濃度の上限値を求める事が出来る。他にも、モンテカルロシミュレーションのチューニング、エネルギー及び事象発生点再構成プログラムの試験など、初めての水中ラドン点源データとしての用途は広い。

5.7.1 実験方法

以下に説明する手順でラドン水注入実験を行った。

1. 図 5.8 のように、1/4 インチのシンフレックスチューブ 22.1m をポンプにつないで、水槽上部中央に設置されているキャリブレーションホールから水槽に挿入した。
2. 純水をポンプで吸い上げて、チューブとポンプの間の配管系をパージした。
3. あらかじめ作っておいた標準ラドン水が入った容器とポンプの間の配管系を、このラドン水約 100ml でパージした。
4. 約 $13Bq$ のラドン (濃度 $10972.5Bq/m^3$ のラドン水 1189ml) を、水槽の中心 $Z=0m$ の地点に約 20 分かけてゆっくり注入した。(スーパーカミオカンデの純水製造装置の循環は止まっている。)

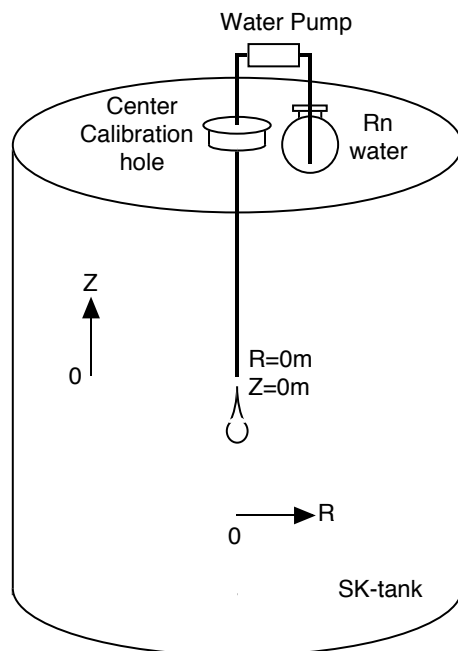


図 5.8: ラドン水注入実験の概略図

5.7.2 解析及び結果

ラドン Run(ラドン水注入以降の数 Run)の測定結果を図 5.9、図 5.10、図 5.11 に示す。

解析したラドン Run には Run5377-5380(1997/12/18 9:17-1997/12/19 16:00) を用いた。この間、Run が止まっていた時もあるので、スーパーカミオカンデの実稼働時間は 1.00 日だった。バックグラウンド Run(通常の Run) には Run5360-5376(1997/12/15 16:29-1997/12/18 8:20) を用いた。どちらも、データセットには通常の太陽ニュートリノ解析で用いられるカット (γ カットを除く。) が施されていて、エネルギーが $4.5\text{MeV} < E < 6.5\text{MeV}$ 、事象発生点再構成の goodness が 0.6 以上の事象を選んだ。

図 5.9、図 5.10 から、 $R^2 = 0\text{cm}^2$ 、 $Z = -100\text{cm}$ のところに、注入したラドン水によるイベント数の超過が確認出来る。黒丸で示したのがラドン Run、斜線で示したのがバックグラウンド Run である。壁際でイベント数が跳ね上がっているのは、岩盤からの γ 線によるものであるが、ここでは関係ない。

図 5.9、図 5.10 から、注入したラドンだけによるイベントを抽出した結果を図 5.11 に示す。この分布の広がり、事象発生点再構成プログラムの分解能とよく一致する。ガウス分布でフィットしてその面積を求めると、抽出されたイベント数は 163.63event/day となる。よって、スーパーカミオカンデのラドンに対する検出効率を求めると、

$$\text{検出効率} = \frac{\text{検出された事象数}}{\text{崩壊ラドン数}} = \frac{163.63\text{event/day}}{1.03 \times 10^6\text{cpd}} \times 100 = 0.016\% \quad (5.2)$$

となった。ここでの検出効率は、前述のカット後のデータに対しての値である。したがって、バックグラウンドが全てラドンによるもので、水槽中に一様に分布していると仮定すると、図 5.12 のバックグラウンド Run の平な部分から、純水水中ラドン濃度の上限値はおおよそ 1.7mBq/m^3 となった。この値は、本研究で校正を行ったラドン検出器による水中ラドン濃度の測定値が、 5.7mBq/m^3 以下 (表 5.4) と求められていることと一致する。

また、今回のラドン水注入実験では、実際の太陽ニュートリノ観測を中断させないために、エネルギー 6.5MeV 以上の領域に注入したラドンによる超過事象が確認されないような量しか、ラドンを注入しなかった。ここで、エネルギー 6.5MeV 以上に有意な超過事象が確認できるだけのラドンを注入すれば、実際の太陽ニュートリノ解析におけるスーパーカミオカンデのラドンに対する検出効率を求めることができ、太陽ニュートリノ観測におけるラドンによるバックグラウンド事象の割合を求める事ができる。

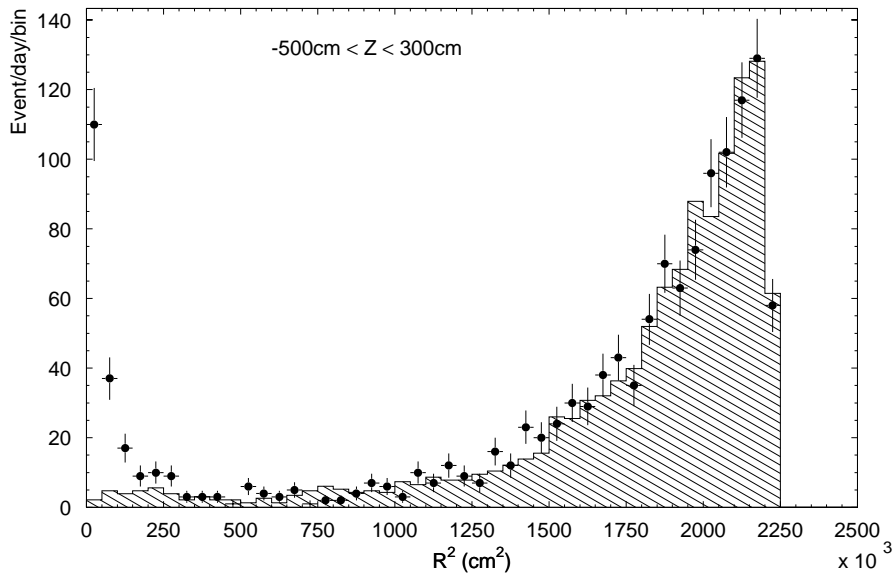


図 5.9: 事象発生点の R^2 分布

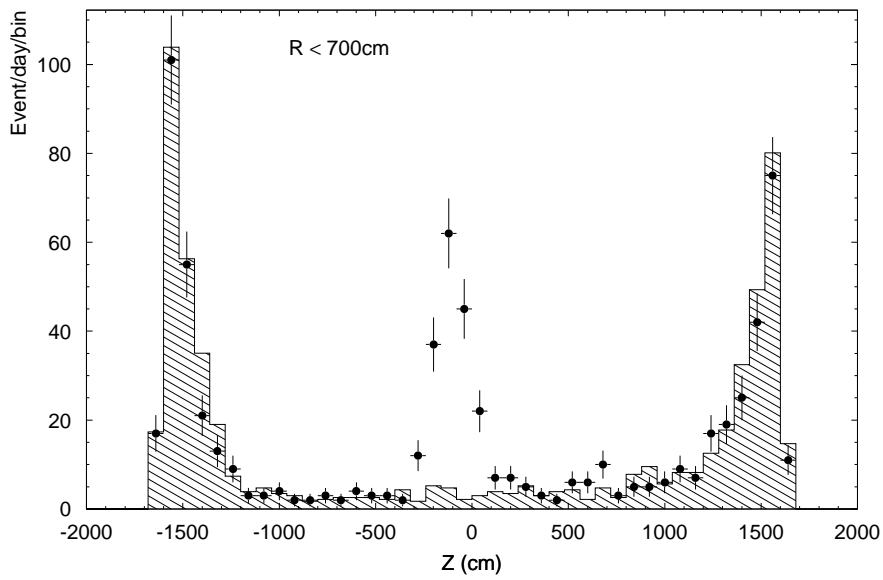


図 5.10: 事象発生点の Z 分布

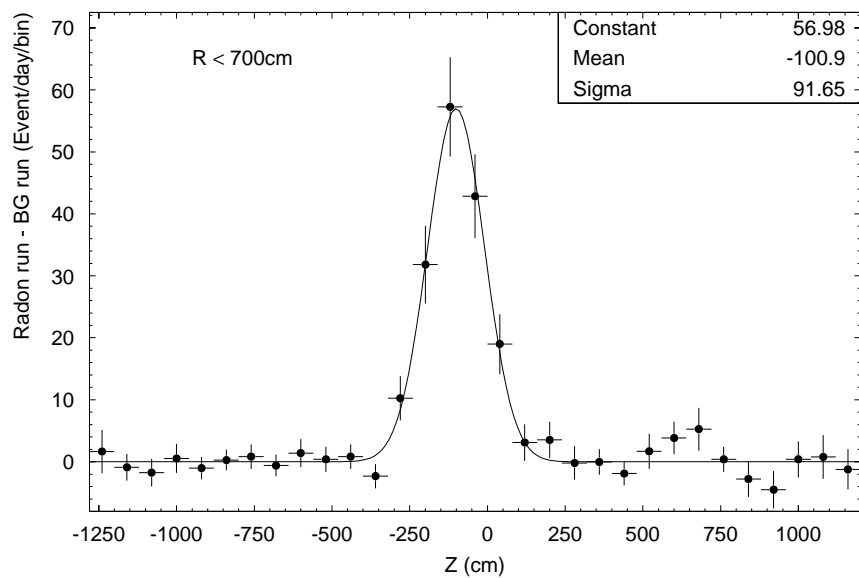


図 5.11: ラドン Run - バックグラウンド Run

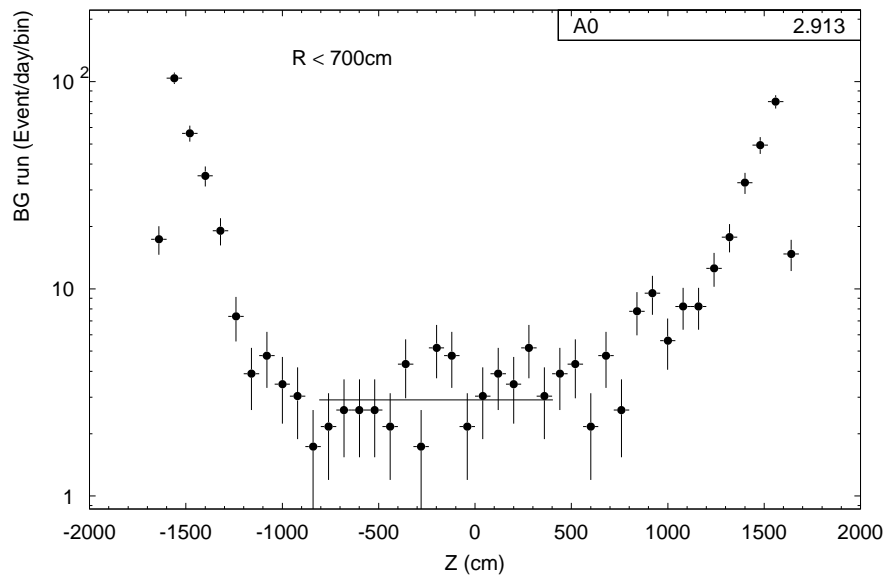


図 5.12: バックグラウンド Run

第6章 結論

スーパーカミオカンデのために開発された、静電捕集型超高感度ラドン検出器の校正を行った。空気用ラドン検出器については、ラドン濃度 $10^{-2} \sim 10^4 \text{mBq/m}^3$ の範囲で、校正定数の湿度特性及び濃度特性を調べた。水用ラドン検出器については、ラドン濃度 $\sim 10^{-1} \text{mBq/m}^3$ の範囲で、高水位及び低水位の2つの状態について校正定数を調べた。また、水用ラドン検出器の校正を行う過程で、定濃度ラドン水を安定に作るシステムを開発した。校正実験の系統誤差には、原因の明らかなもので、空気用 ${}^{+7.2}_{-7.4}\%$ @ 0.08g/m^3 、 $\pm 7.1\%$ @ 11g/m^3 、水用 ${}^{+12.5}_{-12.6}\%$ を見積もった。さらに、空気用については、検出器の器差、校正システムのシステム差が原因と考えられるものが $\pm 20\%$ 程度存在する。この器差、システム差については改善の余地があり、今後の課題である。

これらの結果から、校正定数は以下ようになった。したがって、本校正において信

ラドン検出器	校正定数 [cpd/mBq/m^3]
空気用@ 0.08g/m^3	$2.2 \pm 0.2_{\text{stat.syst.}} \pm 0.4_{\text{unknown syst.}}$
@ 11g/m^3	$0.86 \pm 0.06_{\text{stat.syst.}} \pm 0.2_{\text{unknown syst.}}$
水用@低水位	$3.6 \pm 0.5_{\text{stat.syst.}}$
@高水位	$0.41 \pm 0.05_{\text{stat.syst.}}$

頼性の高い濃度校正定数を得ることができた。

その結果、現在のスーパーカミオカンデの水中ラドン濃度は、 $< 5.7 \text{mBq/m}^3$ の領域にあることが確認でき、また、スーパーカミオカンデへのラドン水注入実験からも確認できた。また、水用ラドン検出器の検出限界値も同レベルの $4 \sim 9 \text{mBq/m}^3$ の領域にあることが判明した。したがって、今後、より高感度なラドン検出器の開発が求められる。

謝辞

本論文をまとめるにあたり、大変多くの方々からご協力いただきましたことに感謝の意を表します。

私の指導教官である東海大学の西嶋先生には、本研究に関する機会を与えて下さった事に何よりの感謝をいたします。学部の際より、ご指導いただいて来た研究の基礎的なことが、本研究を遂行する上で大変役に立ちました。修士課程進学に際しているいろいろと相談に乗っていただいたり、時には檄を飛ばしていただいたおかげで今に至ることができました。

スーパーカミオカンデラドングループの皆様は、ラドンについて全くの初心者だった私に、いつも親切なご指導ご助言を下さりました。東京大学宇宙線研究所の竹内先生には、ラドングループのリーダーとして、本研究の全てについてお導きいただきました。本論文についても大変丁寧なご指導ご助言をいただきました。言うに尽くせない感謝の気持ちでいっぱいです。岐阜大学の田阪先生には、ラドン検出器の蘊蓄について懇切丁寧なご指導を賜りました。おかげでラドンの魅力を知る事ができました。また、岐阜大学で実験を行った際には、公私に渡りお世話をしていただき大変助かりました。奥村さんには、ラドンのデータ取得のことでいつもお世話になりました。新潟大学の岡澤さんには、ラドンのことだけでなくあらゆる面においてお世話になりました。梶田先生には、水中ラドン濃度の実測定のことでも未熟な知識を補っていただきました。福田先生には、ラドン Run 解析のことでもお世話になりました。ラドングループではありませんでしたが、東北大学の鈴木(厚)先生には貴重な論文を提供していただきました。白井先生には、ラドン測定に関するご意見を賜りました。

他スーパーカミオカンデ共同実験者の皆様にも大変お世話になりました。宇宙線研究所の戸塚先生、鈴木(洋)先生、中畑先生には、研究の進行状況や神岡での生活について、折に触れお気遣いいただきました。Low-Energyグループの皆様には、まず、グループに所属していながら解析に貢献できなかったことにお詫び申し上げます。そして、お世話になりました井上先生、小汐先生、Kaiさん、山口さん、石野さん、桶田さんに感謝いたします。また、いつも親身になってご助言ご指導を下さいました宇宙線研究所の岡田先生、伊藤先生、三浦先生、塩沢先生をはじめスタッフの皆様、及びシフト見習いの時に面倒を見て下さった早戸さん、同室の衛藤さん、櫻井君、亀田君、ラドンの作業を手伝ってくれた金谷君、ラドンシンポジウムポスターのチェックをしてくれた長谷川(敦)君、英語の指導してくれた C.Mauger さんをはじめ、学生の皆様に感謝いたします。

また、本研究においては、岐阜大学の堀君をはじめとする 1996 年度田阪研究室の皆様、大阪大学の小森さん、名古屋大学の飯田先生、動力炉核燃料開発事業団の石森さん、古田さんをはじめとする土岐事業所、及び人形峠事業所の皆様には多大なるご助力をいただきました。東京大学原子力研究センターの飯本さん、神戸薬科大学の安岡さん、文部省核融合科学研究所安全管理センターの山西さん、他ラドンシンポジウムで出会った皆様か

らは、貴重なご意見をいただきました。ここに記して感謝いたします。

また、東京大学宇宙線研究所の福田(蓉)さん、大坪さん、清水(要)さんをはじめ、神岡での研究生生活を支えて下さった全ての方々、共に修士課程へ進んだ東海大学の浅野さん、福田(真)さん、小野寺くんをはじめとする友人の皆様、東海大学卒業後も常に研究生生活を気にかけてくれた長島(淳)さん、町田さん、福永さんをはじめとする友人の皆様、1996～1997年度西嶋研究室の皆様にご感謝いたします。

最後に、私を陰で支えて来て下さった両親にご感謝いたします。皆様、本当にありがとうございました。

参考文献

- [1] R.Davis et al. : *Phys.Rev.Lett.***20** 1205 (1968)
- [2] K.S.Hirata et al.: *Physical Review Letters* B220 **308** (1989)
- [3] K.S.Hirata et al.: *Physical Review Letters* **58** 1490 (1987)
- [4] A.Suzuki : *放射線* **15** 58-72 (1988)
- [5] 田阪茂樹 佐々木嘉三 岡澤裕子 中川雅人 : *RADIOISOTOPES* **43** 125-133 (1994)
- [6] S.Tasaka : *ICRR Annual Report* 36-39 (1996)
- [7] M.Nemoto :*RADIOISOTOPES* **46** 710-719 (1997)
- [8] P.Kotrappa S.K.Dua P.C.Gupta and Y.S.Mayya : *Health Phys.* **41** 35-46 (1981)
- [9] K.lande : *Proceedings of the 17th Inter National Conference on Neutrino Physics and Astrophysics NEUTRINO '96 World Scientific* **25** (1996)
- [10] Y.Fukuda et al.: *Physical Review Letters* **77** 1683 (1996)
- [11] V.N.Gavrin : *Proceedings of the 17th Inter National Conference on Neutrino Physics and Astrophysics NEUTRINO '96 World Scientific* **14** (1996)
- [12] W.Hampel et al.: *Physics Letters* B388 **384** (1996)
- [13] J.N.Bahcall and M.H.Pinsonneault : *Rev.Mod.Phys.* 67 **4** (1995)
- [14] N.Hata and P.Langacker : *hep-ph/9705339*
- [15] L.Wolfenstein : *Physical Review D.* **17** 2369 (1978)
- [16] S.P.Mikheyev A.Y.Smirnov :*Physical Review Letters.* B200 **560** 4448 (1988)
- [17] 古賀真之 : 新潟大学大学院理学研究科物理学専攻修士論文 (1993)
- [18] H.Lawrence Clever : *SOLUBILITY DATA SERIES*
- [19] 齊藤正明 : *KUR Report KURRI-KR-6* 5-14 (1996)
- [20] Chu K.D. and Hopke P.K.: *Environ.Sci.Technol.* **22** 711-717 (1988)
- [21] 鈴木康史 : 名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文 (1995)
- [22] L.A.Currie : *Anal.Chem.* **40** 586-593 (1968)

付録A ラドン濃度測定法

ラドンに関する関心は地震予知から保健物理までカバーする領域はかなり広く、興味ある課題が一致しない事が多い。その中で測定法は共通の課題である。

一般に測定では何を、どこで、どの程度の精度で、どの程度の期間、何のために測定するのかによって利用できる測定法が決まって来る。ラドンには対象となる核種が多く、また気体と金属原子の違いのほかに粒形による違いもあって、対象は複雑である。したがって、測定法は捕集法、検出器の種類、時間配分、解析法などによる違いを考えると種々の方法にわかれる。

ラドン濃度の測定方法は、捕集方法によって Active 法と Passive 法に分けられる。

Active 法 捕集容器または検出器にエアープンプ等を用いて試料空気を強制的に導入する方法で、連続測定や実時間測定が可能。ただし、装置は高価。

Passive 法 分子拡散等を利用して動力なしで試料空気を導入する方法で、安価で取扱が簡単。ラドン濃度の広域調査等には適しているが積分測定となるため、ある期間の平均濃度を得るのみで短時間の濃度変動に関する情報は得られない。

A.1 Active 法

電離箱法: $20Bq/m^3$ 古くから基本的な測定法の一つとして広く用いられている。比較的濃度の高い試料ガスを 1 ~ 2 リットル程度の試料ガス封入型電離箱に封入し、高感度の振動容量電位形で電離電流の測定を行なう方法である。この方法はよく検討されていて理論と実験の対応が良く取扱も簡単で安定かつ精度のよい測定が出来る。

通気式電離箱法: $0.2Bq/m^3$ (パルス測定法), $5Bq/m^3$ (電流測定法) 1 ~ 10 リットル程度の電離箱にフィルタを通して試料空気を導入し、通気状態でラドンとその娘核種からの α 線を電離電流またはパルスとして測定する方法。ラドン濃度レベルが通常の外気の数十倍以上の場所であれば $1l/min$ 程度以下の流量で実時間測定が出来る。この方法は地震予知に関連した研究で、複数の装置が 10 年以上にわたって正常に動作している。

シンチレーションセル法 (ルーカス法): $20Bq/m^3$ 内面に $ZnS(Ag)$ を塗布した 0.1 ~ 0.3 程度の容器と、透明な窓を通して連結された光電子増倍管により構成される測定器をシンチレーションセルという。電離箱と同様に、容器内にフィルタを通した試料空気を導入し、封入状態あるいは通気状態でラドンとその娘核種からの α 線を $ZnS(Ag)$ で計数する。感度は容器の容積に比例するが、集光効率や壁材からの α 線の影響の

ため容器の大きさに制約があり感度はあまりよくない。日本での使用は少ないが、海外ではよく用いられている。

2 段フィルタ法 (フィルタ法): $0.1Bq/m^3$ Thomas et al.(1970) によって、最初に紹介された方法。10 ~ 100 リットル程度の円筒型容器の入り口に設けた前置フィルタを通して試料空気を容器内に通気させながらラドンとその娘核種を出口に設けた後置フィルタに捕集し、 α 線を ZnS(Ag) または半導体検出器で計測する。感度はいいが、前置フィルタの除去効率と圧損、内壁への娘核種の沈着損失割合と滞留時間等の問題がある。

通気式静電捕集法: $0.5Bq/m^3$ Dalu(1971) によって開発された測定器。2 段フィルタ法がフィルタで娘核種を捕集するのに対し、これは静電場を用いて帯電成分を捕集する手法である。30 リットル程度の半球形容器の入口に設けた前置フィルタを通して資料空気を容器内に導入し通気させながら、容器内で生成した娘核種を高電界により中心の集電極に捕集し、ZnS(Ag) や半導体検出器等により α 線を計測する。感度はいいが、娘核種の集電極への捕集効率が湿度や不純物の影響を受けるので除湿装置が必要な事、また娘核種を捕集するために高電圧が必要とすることが難点である。

液体シンチレーション法: $3Bq/m^3$ ラドンがトルエン等の有機溶媒に良く溶けることから、トルエンをベースにした液体シンチレーターにフィルタを通した空気をバブリングさせて捕集し、液体シンチレーション装置で計数する方法である。感度が良く取扱も簡単であるが、液体シンチレーション装置のバックグラウンドが測定値に与える影響が大きい。

活性炭法: $0.05Bq/m^3$ 活性炭がラドンを吸着する性質を利用したもの。ラザフォードがラドンの捕集に活性炭を使用して以来、多くの研究者が利用している。低温または常温で資料空気を活性炭に導入しラドンを捕集する方法である。捕集後、電離箱に移して電離電流を測定する場合と直接 NaI(Tl) または Ge により α 線を測定する場合がある。前者は、感度はいいが操作が複雑で絶対値を求めるのが難しい。後者は、簡単な方法だがバックグラウンドを低くする工夫が必要である。

A.2 Passive 法

Bare 法: $5Bq/m^3$ (固体飛跡検出器, PC, CN, TLD) この方法は Passive 法の中でもっとも簡単な方法である。CR-39¹, CN² 及び PC³ 等の固体飛跡検出器をはだかのまま静置しておき、回収後エッチングを行ない飛跡の数からラドン濃度を求める方法である。感度は比較的良いが娘核種やトロンの影響が大きく、また個体飛跡検出器が直接空気中に晒されるため紫外線による変質の問題など、精度の良い測定は難しい。

Cup 法: $10Bq/m^3$ (同上) 直径 10cm 程度の半球形容器の中にフィルタを通して分子拡散により試料空気を導入し、内部に設置した固体飛跡検出器でラドンと娘核種からの

¹CR-39:Allyl Diglycol Carbonate

²CN:Cellulose Nitrate

³PC:Polycarbonate

α 線を検出する方法である。Bare 法に比べて感度は低いですがガスのみを導入するため精度は良い。また、資料空気の交換率を調整する事により、ラドンとトロンの弁別測定が可能である。

静電捕集法: $1Bq/m^3$ (同上) Cup 法の感度不足を補うため容器内で生成したラドン娘核種のうち正の電荷を持った非着成分を高電界により強制的に集電極に捕集し、CN フィルム等で α 線を検出する方法である。感度は良いが湿度や不純物の影響による捕集効率の低下を防ぐための除湿剤、電界をかけるための電源装置等が必要であり、Passive 法の小型で安価といった特徴が損なわれている。

TLD 法: $10Bq/m^3$ 静電捕集法で用いた固体飛跡検出器の代わりに TLD(熱蛍光線量計) を用いて検出する方法である。これは、LiF の結晶が α 線によって電離された電子を一時的に捕らえていて、後に 150 から 300 程度に加熱すると、吸収線量に比例した蛍光を発する。この蛍光を光電子増倍管を用いて測定するものである。感度は Cup 法よりは良いが β 線や宇宙線によるバックグラウンドのためにあまり検出下限を下げることはできない。

活性炭法: $10Bq/m^3$ 活性炭を入れた容器を一定時間放置してラドンを吸着させた後、NaI(Tl) 等を用いて γ 線を計測する方法。安価で簡単な方法だが温湿度の影響や脱着などのため精度の良い測定は難しい。

A.3 主な検出器の特徴

シンチレーション検出器 銀で活性化した硫化亜鉛 $ZnS(Ag)$ (zinc sulphide) は、もっとも古い無機シンチレーターの一つで主に α 粒子を検出する。これはヨウ化ナトリウムとほぼ同じくらいの非常に高いシンチレーション効率を有している。しかし、多結晶の粉末としてしか入手出来ないのもルミネセンスに対する不透明さがあり、約 $25mg/cm^2$ 以上の厚さは使用出来ない。

個体飛跡検出器 検出器本体は単なるプラスチック板で、使用法や特徴はフィルム線量計に似ている。電離性荷電粒子が誘電体中を通過するとエネルギーが電子に移行して粒子の飛跡に沿って損傷分子の痕跡が残る。ある種の物質では強酸か塩基溶液でエッチングすると飛跡が見えるようになる。個体飛跡検出器の特徴は簡便さと低価格であるが、個々の飛跡を計数するという欠点がある。エッチピットの外観によって粒子の種類とエネルギーについてある程度の弁別は可能であるが、最初の飛跡の詳細はエッチングの過程で失われてしまう事が多い。よって、個々の飛跡の特性の測定に適しているとはいえない。

半導体検出器 α 粒子を測定する場合、室温で動作させるシリコンダイオード検出器が理想に近い検出器である。単一エネルギーの α 粒子を放出する便利な線源が多数入手できるので、そのような線源の一つを用いてパルス波高スペクトルを測定して半導体検出器の性能を簡単に試験する事ができる。もっともよく用いられるのは ^{214}Am であり、その α スペクトルが半導体検出器のエネルギー分解能の相互比較に広く用いられる。半導体検出器の利点を以下に述べる。

- エネルギー分解能が優れている。
- 広い範囲のエネルギーに対して、パルス波高対放射線エネルギーの応答特性の比例性がよい。
- ガスに比べて密度の高い物質を利用しているため、一定の寸法の検出器を比較した場合、検出効率が高くなる。
- 特殊な形状の検出器を作る事が出来る。
- ガス検出器に比べてパルスの立ち上がり時間が速い。
- 真空中で動作させる事が出来る。
- 磁場の影響を受けにくい。

A.4 参考文献

- 山崎敬三 :「ラドンとその娘核種について (その2)-ラドン濃度の測定器-」原安協だより第 134 号 (1993)
- 下道國 :「ラドンの測定法について」isotope news(1992)
- 下道國, 飯田孝夫 :「ラドンとその娘核種測定方法の相互比較」ラドン族と環境放射能 (1990)
- 片瀬彬, 下道國, 西川嗣雄 :「測定法の概説」続 大気中のラドン族と環境放射能 (1990)
- 石川友清 :「放射線概論」p.368-369 通商産業研究社
- ニコラス・ツルファニディス, 阪井英次 :「放射線計測の理論と演習 (上巻)」p.230 現代工学社
- Glenn. F. Knoll, 木村逸郎, 阪井英次 :「放射線計測ハンドブック」日刊工業新聞社