

修 士 学 位 論 文

XMASS 実験における 純水中及び空气中ラドンバックグラウンドの研究

平成 27 年 2 月 6 日

専攻名	物理学専攻
学籍番号	120S107S
氏名	大西洋輔

神戸大学大学院理学研究科博士課程前期課程

概要

宇宙にはまだまだ多くの謎が残されており、その中の一つが暗黒物質と呼ばれる未知の素粒子である。現在の素粒子物理学の標準理論が導く予想と様々な実験による観測事実との矛盾がその存在を強く主張している。この暗黒物質を捉えることを目的とした実験が世界各国で行われている。その中の一つが、岐阜県神岡町にある実験サイトで行われている XMASS 実験である。

XMASS 実験は液体キセノンシンチレータとして用いた暗黒物質探索実験である。暗黒物質は電磁相互作用や強い相互作用をすることなく、弱い相互作用しかしないと考えられている。そのため暗黒物質の事象を観測するには低バックグラウンド環境が必要となる。XMASS 実験で重要となるバックグラウンドの一つであるラドンは、検出器内部の部品に含有するウラン系列のラジウムから放射性壊変によって生じ、液体キセノンに溶解してしまう。

そこでキセノン等の希ガス中のラドン濃度をモニターするために開発されたのがガス用 80L ラドン検出器である。本研究では 80L ラドン検出器の性能評価を行った。実験の結果、PIN フォトダイオード部の電圧を-1.0kV に設定し、検出器内部を 1 気圧の Ar で満たした時の較正係数 $CF = 1.5 \pm 0.2 [(count/day)/(mBq/m^3)]$ (at $0.002g/m^3$) を得ることができた。

またラドンは検出器外部からの中性子やガンマ線を遮蔽するために XMASS 検出器の周囲を覆う純水タンク中にも含まれている。そのためタンク純水中のラドン濃度をモニターすることも非常に重要な研究となる。本研究ではラドン検出器と中空糸膜モジュールを組み合わせた純水測定用ラドン検出器を構築して XMASS タンク純水中のラドン濃度を測定し、そのラドン濃度レベルが XMASS 実験に影響を与えないか評価を行った。XMASS 実験においてタンク内純水中ラドン濃度の定常的なモニターは本研究が初めてである。実験の結果、純水測定用ラドン検出器の運転開始から現在に至るまでの間における水中ラドン濃度の最大値は $143 \pm 20 [mBq/m^3]$ であり、この値はシミュレーションが要求する水中ラドン濃度の上限 $2500 [mBq/m^3]$ を下回ることが分かった。これによってタンク内純水中のラドン濃度が XMASS 実験に影響を及ぼさないことが保証された。

目次

概要	1
第 1 章 序章	4
1.1 暗黒物質	4
1.1.1 暗黒物質の提唱	4
1.1.2 暗黒物質存在の証拠	4
1.2 暗黒物質の候補	7
1.2.1 冷たい暗黒物質	8
1.3 暗黒物質の直接検出	8
第 2 章 XMASS 実験	11
2.1 検出器の構成	11
2.2 液体キセノン	13
2.2.1 液体キセノンのシンチレーション機構と検出原理	13
2.2.2 液体キセノンを用いるメリット・デメリット	14
2.3 実験におけるバックグラウンド	15
2.3.1 バックグラウンドの種類	15
2.3.2 ^{222}Rn	16
第 3 章 空气中ラドン濃度の測定	18
3.1 ガス用ラドン検出器の検出原理	19
3.1.1 Si PIN フォトダイオードによるアルファ線検出	19
3.1.2 ラドン娘核種の陽イオン化と静電捕集法	20
3.2 湿度依存性とラドン濃度較正	21
3.2.1 較正システムのセットアップ	21
3.2.2 較正実験	22
3.3 検出器の BG 評価	23
3.3.1 エタノール清掃前後の比較	24
3.3.2 再電解研磨前後の比較	25
第 4 章 XMASS タンク純水中のラドン・バックグラウンド	27
4.1 シミュレーションによる XMASS タンク内純水中のラドンバックグラウンドの評価	27
4.1.1 純水中のガンマ線透過率	27

4.1.2	シミュレーション	29
4.2	XMASS タンク内純水中ラドンバックグラウンドの測定	31
4.2.1	純水用ラドン検出器とその検出原理	31
4.2.2	測定結果	35
第 5 章	純水用ラドン検出器の較正実験	38
5.1	検出器のセットアップ	38
5.2	ラドン水の生成とラドン水の希釈	39
5.3	液体シンチレーション法によるラドン濃度測定	40
5.4	気液平衡の関係から予想されるラドン濃度	42
5.5	SK インพุット水測定	44
5.6	較正実験	45
5.6.1	微小流量ポンプの正味の流量と希釈ラドン水のラドン濃度	45
5.6.2	希釈ラドン水の ^{214}Po 計数率	48
5.6.3	純水用ラドン検出器の較正係数の決定	49
5.7	総論：XMASS タンク純水中のラドン・バックグラウンド	50
第 6 章	結論	52
付録 A	第 3 章「空气中ラドン濃度の測定」に関する補足	53
A.1	ラドン娘核種の中性化	53
A.2	露点から容積絶対湿度への換算	54
A.3	^{218}Po と ^{214}Po の計数率から算出するラドン濃度	55
付録 B	第 5 章「純水中ラドン検出器の較正実験」に関する補足	57
B.1	液体シンチレーション測定におけるラドン濃度の算出方法	57
B.2	較正実験で用いた純水用ラドン検出器のバックグラウンド測定	59
B.3	SK リターン水のラドン濃度測定	60
B.4	インพุット水／リターン水測定における純空気の溶解度	61
参考文献		63

第 1 章

序章

暗黒物質 (dark matter) とは宇宙に存在する光学的に観測することができない未発見の素粒子のことである。本章では暗黒物質が提唱され、その存在が強く支持されるようになった理由を歴史的な経緯とともに述べ、現在その候補となっている素粒子とその発見を目指す最新の暗黒物質探索実験について紹介する。

1.1 暗黒物質

この説では現在においてその存在が強く支持されている暗黒物質が提唱されるようになった経緯と、それに関する様々な間接的な証拠について議論する。

1.1.1 暗黒物質の提唱

暗黒物質は 1934 年に Zwicky[1] によって提唱された。ビリアル定理からかみのけ座銀河団内の銀河の速度分散を観測し、そこから予測される銀河団の質量が銀河団の輝度から計算された銀河団の質量の約 500 倍とはるかに大きいことが分かった。このずれを解消するために十分な質量や重力を及ぼす不可視的な物質、暗黒物質が提唱されたのである。

1.1.2 暗黒物質存在の証拠

銀河の回転曲線問題

暗黒物質の間接的な証拠は 1970 年に Vera C. Rubin[2] によって初めて確認された。図 1.1 は渦巻銀河の構造の模式図である。銀河中心部の最も星が集中している部分をバルジと呼び、星や星間ガスが混在したバルジ周辺部をディスクと呼ぶ。ディスク周辺には光学的に観測されない球形のダーク・ハローが存在すると考えられている。

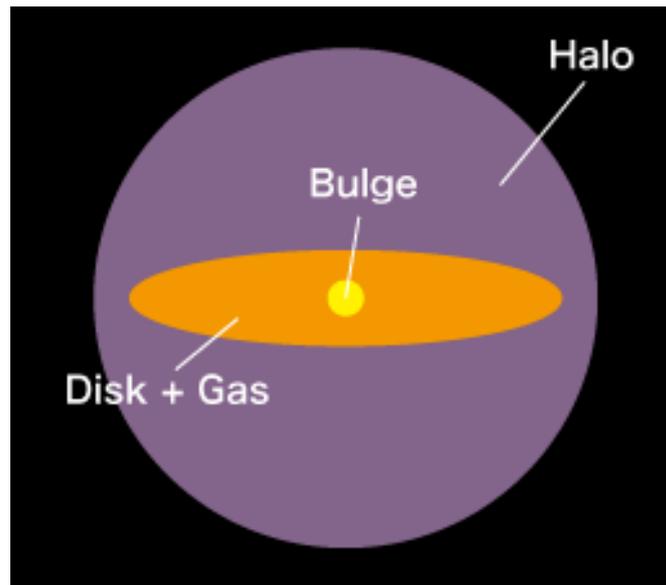


図 1.1 渦巻銀河の構造

ここで銀河中心からの距離を r 、半径 r 内の質量の総和を $M(r)$ 、万有引力定数を G とすると、 r の位置の銀河の回転速度 $v_c(r)$ はケプラーの法則より、

$$v_c(r)^2 = G \frac{M(r)}{r} \quad (1.1)$$

のように表される。ここで銀河の回転速度 v_c は星のスペクトルのドップラー効果（赤方偏移）によって測定することができる。銀河の全質量が銀河の中心に集中していると仮定すると、式 (1.2) より、

$$v_c(r)^2 \propto 1/r \quad (1.2)$$

となり、銀河の回転速度は銀河中心から遠ざかるにしたがって減衰するはずである。しかし Rubin によるアンドロメダ銀河 (M31) の観測では銀河中心から遠ざかっても回転速度は一定であった。この観測結果は

- 輝く物質よりも遥かに大きな質量の輝かない物質が存在する
- それらの物質は r が大きいところで $M(r) \propto r$ である

ということを示唆する。

同様の結果はその他の観測においても示されている。図 1.2 は渦巻銀河 NGC6503 の回転速度の理論値と観測値である。図から分かるように、銀河の構成要素としてディスク成分と星間ガス成分を考慮するだけでは観測値をうまく説明することができない。これは光学的に観測されない球状の物質（ダーク・ハロー）が存在していることを示唆している。

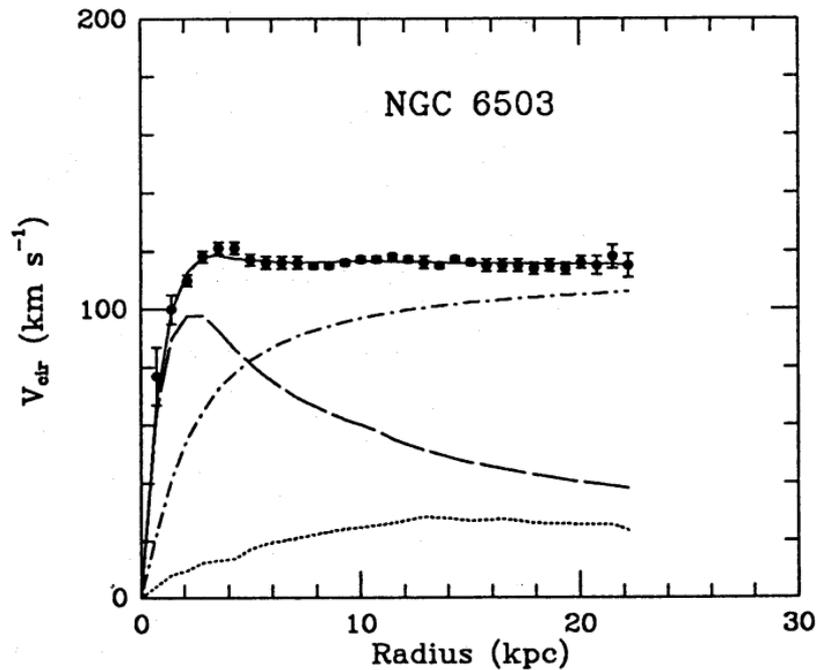


図 1.2 渦巻銀河 NGC6503 の回転速度 [3]。横軸は銀河中心からの距離、縦軸は銀河の回転速度を示し、図中の黒点は観測値、破線はディスク成分、点線は星間ガス成分、破線-点線は観測値のフィット(黒線)から計算されたダーク・ハロー成分を表す。

宇宙背景放射 (CMB)

暗黒物質の間接的証拠は他にもあり、宇宙背景放射 (cosmic microwave background, CMB) もその一つである。CMB とは全地球上で等方的に観測される電磁波 (マイクロ波) である。1992 年に NASA の COBE 衛星が CMB の小さなゆらぎを観測し [4]、同じ証拠を 2003 年に Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP) が観測 [5]、更に 2014 年には Planck によって最新の観測結果が報告された [6]。図 1.3 は Planck による CMB のエネルギー密度の観測データである。

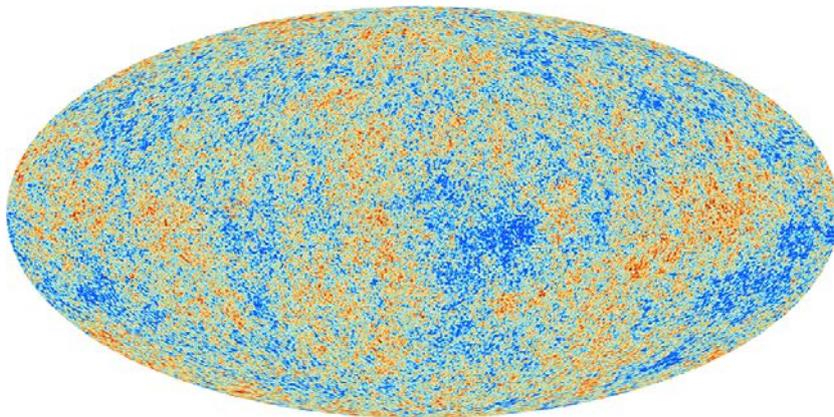


図 1.3 Planck にか報告した宇宙背景放射のエネルギー密度 [7]

宇宙物理学では、しばしば密度パラメータを用いた議論が行われる。ここで構成要素 i の密度パラメー

タ Ω_i は構成要素 i のエネルギー密度 ρ_i と臨界密度 ρ_c を用いて以下のように定義される。

$$\Omega_i = \frac{\rho_i}{\rho_c} \quad (1.3)$$

臨界密度とは Friedmann の膨張方程式

$$\frac{\dot{a}^2}{a^2} = \frac{8\pi G\rho}{3} + \frac{\Lambda c^2}{3} - \frac{k}{a^2}c^2 \quad (1.4)$$

において $k = 0$, $\Lambda = 0$ のときの物質密度

$$\rho_c = \frac{3H_0^2}{8\pi G} \quad (1.5)$$

のことである (a はスケール・ファクタ、 G は万有引力定数、 ρ はエネルギー密度、 Λ は宇宙定数、 c は光速、 k は空間の曲率を示すパラメータ)。

宇宙の全エネルギー密度 Ω_{tot} は宇宙の物質密度パラメータ Ω_M 、宇宙定数の密度パラメータ Ω_Λ 、空間の曲率の密度パラメータ Ω_k を用いて Friedmann の膨張方程式によって以下のように導かれる。

$$\Omega_{\text{tot}} = \sum_i \Omega_i = \Omega_M + \Omega_\Lambda + \Omega_k = 1 \quad (1.6)$$

ただし、 Ω_M はバリオンの密度パラメータ Ω_B と暗黒物質 (バリオン以外の物質) の密度パラメータ Ω_{DM} の和とした (式 1.7)。

$$\Omega_M = \Omega_B + \Omega_{\text{DM}} \quad (1.7)$$

以下は 2013 年に発表された Planck の最新の観測結果である (h はハッブル・パラメータでハッブル定数 $H_0 = 67.4 \pm 1.4$ [km/s/Mpc] を 100 [km/s/Mpc] で割って規格化したものである)。

$$\Omega_\Lambda = 0.686 \pm 0.020 \quad (1.8)$$

$$\Omega_M = 0.314 \pm 0.020 \quad (1.9)$$

$$\Omega_B h^2 = 0.02207 \pm 0.00033 \quad (1.10)$$

$$\Omega_{\text{DM}} h^2 = 0.1196 \pm 0.0031 \quad (1.11)$$

この観測結果から我々は宇宙の構成比について以下の観測的事実を知ることができる。

- 物質を構成するバリオンは宇宙の全エネルギーのうち約 4.9% を占める
- 未知の物質は宇宙の全エネルギーのうち約 26.5% を占める
- 宇宙項に基づくダークエネルギーは宇宙の全エネルギーのうち約 68.6% を占める

これらの観測結果により、宇宙背景放射も暗黒物質の存在を示唆する一つの証拠となっている。

1.2 暗黒物質の候補

前節では暗黒物質の代表的な間接的証拠について述べてきた。暗黒物質の正体については様々な候補があり、以下にそのいくつかを紹介する。

- バリオンからなる暗黒物質
 - MACHO(Massive Compact halo Object) 銀河ハロー内に存在する、小さくて光学的に観測の不可能な天体 (白色矮星、中性子星、ブラックホールなど)

- 非バリオンからなる暗黒物質
 - **熱い暗黒物質** 宇宙初期に相対論的 ($v \gg c$) な運動をしていた物質
 - * ニュートリノ
 - **冷たい暗黒物質** 宇宙初期に非相対論的 ($v \ll c$) な運動をしていた物質
 - * アクシオン
 - * WIMPs(Weakly Interacting Massive Particles)

これらの中で MACHO はハローを形成するだけの十分な質量を持たないため、現在では有力な候補ではないと考えられている。またスーパー・カミオカンデ実験で観測されたニュートリノ振動によってニュートリノの質量に制限がつけられた [8] が、その値は非常に小さいためニュートリノ単体では暗黒物質になりえないことが分かっている。これらの理由から現在では冷たい暗黒物質が有力な暗黒物質の候補と考えられている。以下に冷たい暗黒物質をいくつか紹介する。

1.2.1 冷たい暗黒物質

アクシオン

強い相互作用では C と P、また C と P の組み合わせである CP も対称になっているにも関わらず、弱い相互作用では荷電対称性 C とパリティ対称性 P が破られていることが実験的に示されている。このことは CP 対称性の破れとされ、それを説明するために提案された素粒子がアクシオンである。

WIMPs

WIMPs(Weakly Interacting Massive Particles) は現在最も有力視されている暗黒物質の候補である。標準模型の拡張である超対称性理論 (SUSY) から示唆されている超対称性粒子であり、その中でもニュートラリーノと呼ばれる未知の素粒子が最有力候補となっている。次節で述べる各種の暗黒物質の直接検出実験が発見を目標としている素粒子である。

1.3 暗黒物質の直接検出

WIMPs が弱い相互作用によって原子核と弾性散乱し、その原子核が放出したエネルギーを観測するのが直接検出である。実際に観測されるエネルギーは数十 keV と考えられており、この低エネルギー領域の信号を捕捉するためにはバックグラウンドをいかに低減できるかが重要となる。

WIMPs に対する感度曲線を図 1.4 に示す。各曲線は各実験によって与えられた上限値、色が付けられた各領域は各実験が暗黒物質の存在を主張している領域である。図中の L_{eff} は液体キセノンのシンチレーション効率を意味し、薄赤の領域は L_{eff} による不定性を示している。

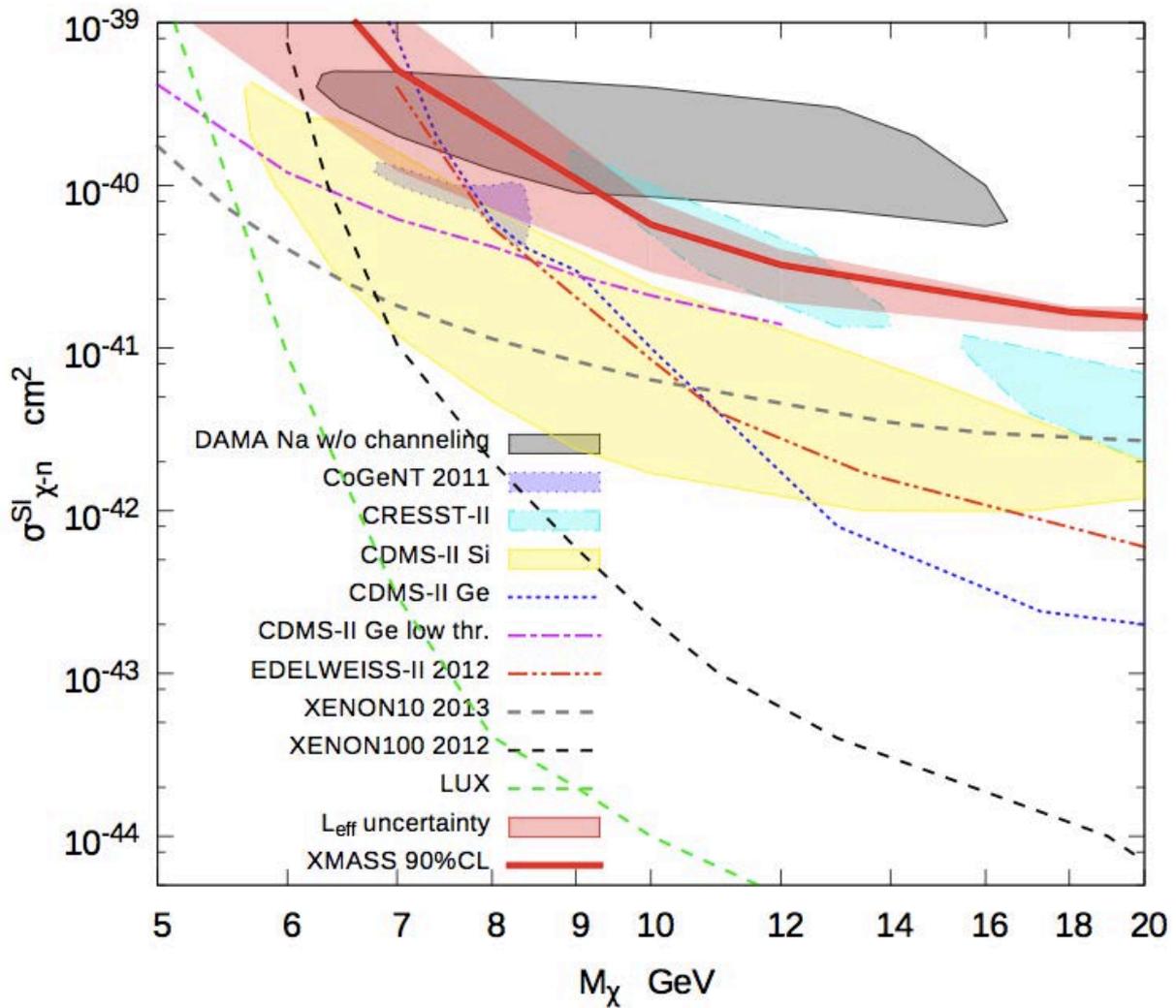


図 1.4 WIMPs に対する感度曲線 [9]。横軸は暗黒物質の質量、縦軸は反応断面積を示す。

以下に代表的な実験をいくつか紹介する。

■XENON XENON[10] はターゲットにキセノンを用いた二相式検出器である。WIMP とキセノン原子核との相互作用によってシンチレーション光 (S1) を観測し、同時に弾性散乱時に電離した電子を電場によって気相側へ誘導し、増幅されたシンチレーション光 (S2) を観測する (図 1.5)。図 1.5 において電場方向を z 軸、z 軸と垂直な平面を x-y 平面とすると、信号 S2 によって x-y 平面の位置を再較正することができ、また S1-S2 間の Drift Time によって z 軸方向の位置を再較正することができる。S1 は ER (electronic recoil) より NR(nuclear recoil) の方がエネルギー損失 (dE/dx) が大きく、S2 は NR の方が電子イオンを大幅に失うため、シグナルによる S2/S1 の比はバックグラウンドよりも小さくなり、シグナルとバックグラウンドを識別することが可能となっている。

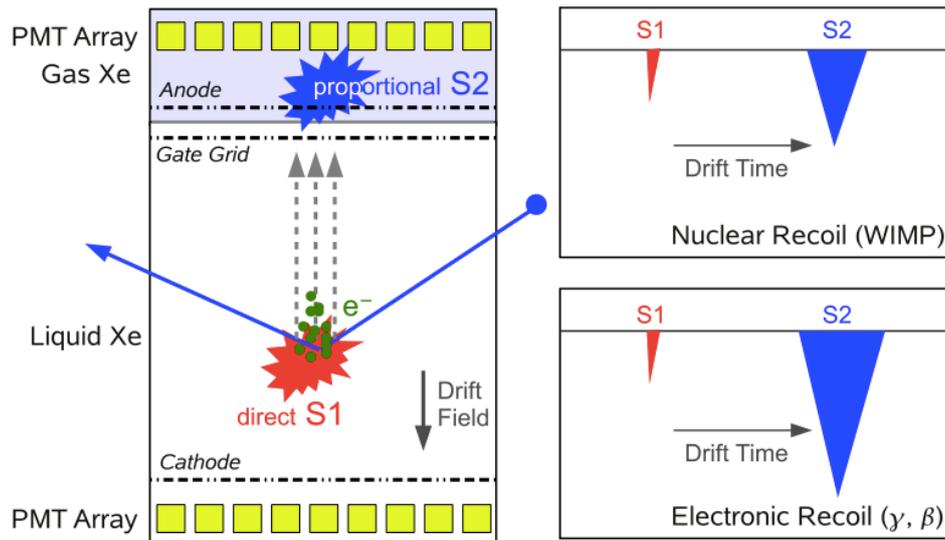


図 1.5 XENON100 の検出原理 [10]

■CDMS CDMS[11] ではターゲットとして極低温のゲルマニウムとシリコンの結晶を用いる。イオン化による電子の信号と散乱時に生じた熱によってもたらされる結晶の格子振動からの信号を同時に観測し、シグナルバックグラウンドを分別することができる。

■DAMA/LIBRA DAMA/LIBRA は NaI を用いたシンチレーション検出器である。DAMA/LIBRA では太陽の銀河中心に対する回転と地球の公転によって生じる暗黒物質の季節変動の観測を行っており、2013 年の観測結果では 14 年間で取得した 1.33[ton-yr] のデータから 9.3σ の信頼度で季節変動が観測されたと報告している [12]。

第 2 章

XMASS 実験

XMASS 実験は岐阜県にある東京大学宇宙線研究所の神岡宇宙素粒子研究施設・神岡鉱山の地下約 1000m に設置された液体キセノン検出器を利用した実験である。XMASS 実験の主な目的は、

- 暗黒物質探索 (Xenon Detector for Weakly Interacting Massive Particles)
- 低エネルギー太陽ニュートリノ (Xenon Neutrino Mass Detector)
- ニュートリノレスダブルベータ崩壊 (Xenon Massive Detector for Solar Neutrino)

である。本章では本論文において議論の中心となる暗黒物質探索について詳しく説明する。

2.1 検出器の構成

XMASS 実験における暗黒物質探索では WIMPs がキセノン原子核を反跳して出るシンチレーション光を PMT によって捉えようと試みている。WIMPs の信号は非常に稀であるため、バックグラウンドを低減することは非常に重要となる。岐阜県の神岡鉱山の地下 1000m に検出器を設置することにより、宇宙線ミュオンフラックスは地上と比べて 10^5 分の 1 まで低減することが可能となっている。以下に検出器の各部について述べる。

■ID(Inner Detector, XMASS-I 検出器) 図 2.1 は XMASS 検出器全体の模式図である。XMASS-I 検出器 (図 2.2) は XMASS 検出器の中心部分に設置されており、Inner Vacuum Chamber(IVC) と Outer Vacuum Chamber(OVC) から構成されている。IVC 内部には液体キセノンが満たされており、液体キセノンのシンチレーション光は IVC 内部にある 630 本の六角形 PMT (光電子増倍管) (HAMAMATSU R10789-11) と 12 本の円形 PMT(HAMAMATSU R10789-11MOD) によって捉えられる。この IVC を囲むようにして設置されている OVC は断熱真空を保つ役割を有する。



図 2.1 XMASS 検出器全体の模式図 [13]

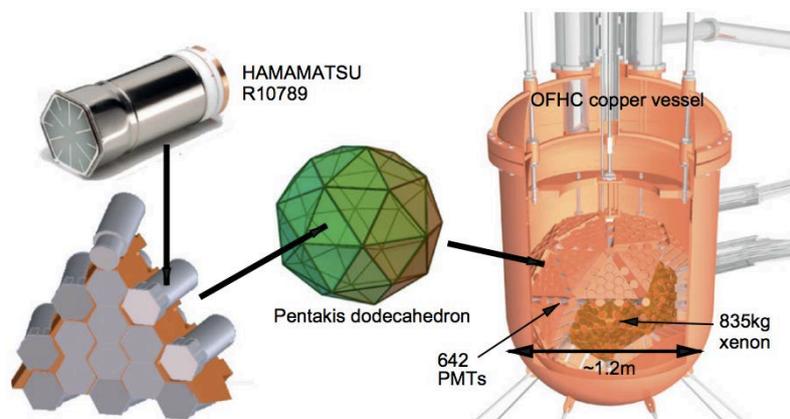


図 2.2 XMASS-I 検出器の模式図 [14]

■OD(水タンク、20 インチ PMT) XMASS-I 検出器を覆うようにして設置されているのが水タンクである。水タンクの高さは 10.5m、直径が 10m であり、タンク内は約 800 トンの純水で満たされている。この純水によって外部からの中性子やガンマ線を遮蔽することが可能となっている。またタンク周辺部には 72 本の 20 インチ PMT (浜松ホトニクス社製、HAMAMATSU R3600) が取り付けられており、宇宙線ミュオン粒子が水中を通過するときに発するチェレンコフ光を検出する veto 検出器 (Outer Detector) としてチェレンコフ事象の排除に利用されている。水チェレンコフ検出器を暗黒物質探索のシールドとして初めて利用したのは XMASS 実験である。

■データ取得回路 図 2.3 にデータ収集 (DAQ) システムの全体図を示す。ATM(analog timing module) は ADC(alalog to digital converter) と TDC(time to digital converter) の機能を有しており、ADC による電荷積分情報と TDC による時間情報が同時に取得できる仕組みとなっている。ID からの PMT 信号はプリアンプによって増幅され、ATM に送られる。各 PMT の閾値は-5mV に設定されており、これを超えると ATM でヒットとして記録される。ATM のゲート幅 200ns 中でヒット数が 4 以上あると、グローバルトリガーとして ATM と FADC(flash analogue to digital converter) に送られる [14]。

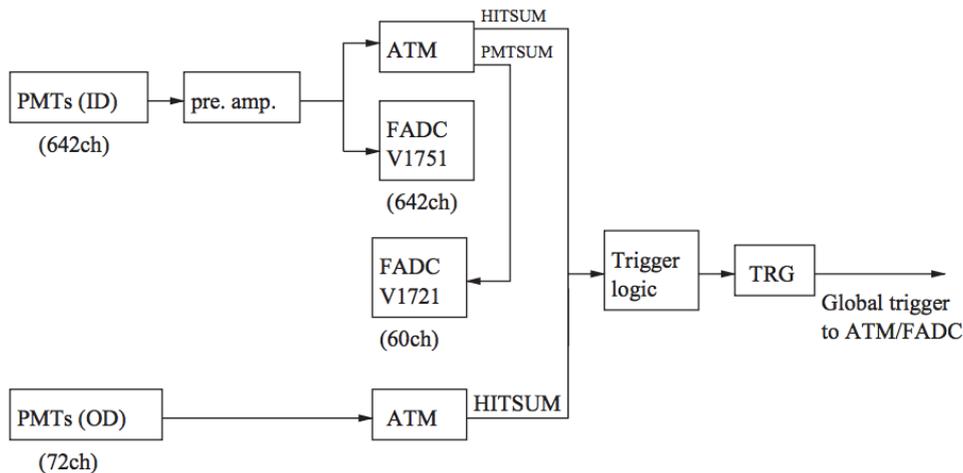


図 2.3 データ収集システムの全体図 [14]

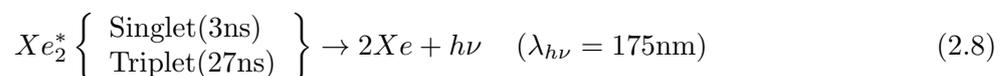
2.2 液体キセノン

2.2.1 液体キセノンのシンチレーション機構と検出原理

我々は検出媒体に液体キセノンを用いて、暗黒物質との衝突によって生じたシンチレーション光を光電子増倍管によって観測を行う。Xe は原子核反跳/電子反跳によって、以下のようにイオン化と励起に二通りのプロセスを辿る。



こうして生じたキセノン二量体 Xe_2^* は以下のプロセスを経て、シンチレーションを発光する。



このシンチレーション光を PMT によって検出する。

2.2.2 液体キセノンをを用いるメリット・デメリット

XMASS 実験ではターゲットとして液体キセノンを利用している。同様の実験では XENON100 などが挙げられる。一方、DEAP 実験 [15] では同じ希ガス元素であるアルゴンを利用している。液体キセノンには様々なメリットがある反面、デメリットも存在する。本節では液体アルゴンと比較することでそのデメリットについても言及したい。液体キセノンを使用するメリット・デメリットとしては以下が挙げられる。表 2.1 にキセノンとアルゴンを比較した表を示す。

- 液体キセノンを使用するメリット

- 原子番号が大きく密度が高い

キセノンは原子番号が 54 と大きいため、外部からのガンマ線を減衰する自己遮蔽能力を有する。また液体で約 $3[\text{g}/\text{cm}^3]$ の密度を持つため検出器の小型化が可能となる。

- 放射性同位体がすべて短寿命である

放射性同位体はバックグラウンドの原因となる。アルゴンの場合、自然に存在する Ar には同位体である ^{39}Ar が存在するが、キセノンの放射性同位体はどれも寿命が短い (^{136}Xe は安定同位体)。

- 波長が長く真空紫外領域にある

アルゴンの場合は波長が短いため波長変換材 (Wavelength Shifter) を用いる必要がある。波長変換材を利用した場合、変換材による光子の損失や変換材由来のバックグラウンドなどの問題が生じるが、キセノンは波長が長いため PMT での直接観測が可能である。

- 沸点が高い

キセノンの液体相は 1 気圧下で $165.0[\text{K}]$ とアルゴンに比べて高温である。XMASS 実験では沸点付近である 173K (-100 度) でキセノンを使用しているため、キセノンの気化・液化による純度の保持が容易である。

- 高発光量

キセノンのシンチレーション光は 1MeV のエネルギーに対して約 42,000 個の光子を放出する ($42,000\text{photon}/\text{MeV}$)。このことにより検出器の閾値を下げることができ、エネルギー分解能も高くすることが可能となっている。

- 液体キセノンを使用するデメリット

- 高価である

アルゴンは比較的価格が安価であるがキセノンは非常に高価であるため、大規模検出器の製作コストにおいてはアルゴンに軍配が上がる。

- Singlet state と Triplet state の寿命の差が短い

シグナルとなる nuclear recoil 事象の場合、Singlet State になりやすい。一方でバックグラウンド事象となる electron recoil 事象の場合は Triplet State になりやすい傾向がある。アルゴンの場合は Singlet state と Triplet state の寿命の差が大きくこれらの Scintillation Timing の違いを利用した波形分別 (pulse-shape discrimination, PSD) が可能であるが、キセノンはその差が短いため波形分別はアルゴンよりも難しい。

- 太陽ニュートリノ BG による制限

キセノンの場合、太陽ニュートリノ BG によって sensitivity は 10^{-47}cm^2 まで制限さ

れるが、アルゴンの場合は PSD によって大気ニュートリノによる制限 10^{-48}cm^2 まで sensitivity を実現することができる。

表 2.1 Xenon と Argon の比較 [16]

element	Xenon	Argon
原子番号 Z	54	18
質量数 A	131.3	40.0
1 気圧下における沸点 [K]	165.0	87.3
1 気圧下における融点 [K]	161.4	83.8
液体の密度 [g/cm ³]	2.94	1.40
存在比 [g/cm ³]	0.09	9340
価格	非常に高価	比較的安価
シンチレーション波長 [nm]	178	128
長寿命同位体	¹³⁶ Xe	³⁹ Ar
Singlet/Triplet state lifetime [ns]	3/27	7/1600
自己遮蔽能力	○	×
太陽ニュートリノ BG による sensitivity の制限	有	無

2.3 実験におけるバックグラウンド

2.3.1 バックグラウンドの種類

XMASS 実験におけるバックグラウンドは以下の 3 つに大別することができる。

液体キセノンが有する内部バックグラウンド ²²²Rn、²²⁰Rn、⁸⁵Kr など

検出器自身が有するバックグラウンド ²¹⁰Pb、²³⁸U、²³²Th、¹⁴C など

検出器外からの外部バックグラウンド μ 粒子、中性子、 γ 線、ラドンなど

■**液体キセノンが有する内部バックグラウンド** 液体キセノン中には同じ希ガス元素である Rn, Kr の放射性同位体が存在し、これらが実験におけるバックグラウンドとなる。これらは有効体積のみを用いた解析によっても除去できないため、これらのバックグラウンドを低減することが必要となる。中でも ⁸⁵Kr はキセノンの製造過程で混入し、比較的長い半減期 10.756 年でベータ崩壊する [17]。このベータ崩壊で得られる信号は連続スペクトルとなるため、低エネルギー領域で暗黒物質の信号と重なってしまうため、重要なバックグラウンドとなる。この ⁸⁵Kr を低減するために、XMASS 実験では Kr と Xe の沸点の違いを利用した蒸留によってキセノンの純度を高めている [18]。²³⁸U 系列、²³⁴Th 系列の崩壊過程にはそれぞれ ²²²Rn と ²²⁰Rn が存在する。検出器部材に含まれるウラン系列、トリウム系列の核種が崩壊して生成されたラドンが液体キセノン中に溶け出すために実験のバックグラウンドとなる。

■**検出器自身が有する外部バックグラウンド** 検出器を構成する部材に含まれている自然放射能もバックグラウンド源となる。特に PMT は液体キセノンと隣接しているため、ガンマ線だけでなくアルファ線や

ベータ線が液体キセノンに入射してバックグラウンドとなる。PMT 以外のバックグラウンドはほぼガンマ線のみが影響する。

■**検出器外からの外部バックグラウンド** 中性子はキセノン原子と原子核反跳を起こすため、WIMPs と区別できないバックグラウンドとなる。この検出器外からの中性子は水タンクによってほぼ全て遮蔽することができる。

2.3.2 ^{222}Rn

本節では本論の研究において主体となる ^{222}Rn について紹介する。 Rn の放射性同位体である ^{222}Rn はウラン系列に属する希ガス元素（化学的に不活性）であり、およそ 3.8 日の半減期で壊変する。 ^{222}Rn は XMASS で使用しているキセノンや純水に溶解し、その崩壊過程の中でアルファ、ベータ、ガンマといった放射線を生じる主要なバックグラウンドとなる（図 2.4）。大気中ラドン濃度は地上で $1\sim 10\text{Bq}/\text{m}^3$ 、地下 1000m では $1000\text{Bq}/\text{m}^3$ を超える [19]。

そこでキセノン等の希ガス中のラドン濃度をモニターするために開発されたのがガス用 80L ラドン検出器である。本研究では 80L ラドン検出器の性能評価を行った。またラドンは検出器外部からの中性子やガンマ線を遮蔽するために XMASS 検出器の周囲を覆う純水タンク中にも含まれている。そのためタンク純水中のラドン濃度をモニターすることも非常に重要な研究となる。本研究ではラドン検出器と中空糸膜モジュールを組み合わせた純水測定用ラドン検出器を構築して XMASS タンク純水中のラドン濃度を測定し、そのラドン濃度レベルが XMASS 実験に影響を与えないか評価を行った。これらの研究内容については次章以降で議論する。

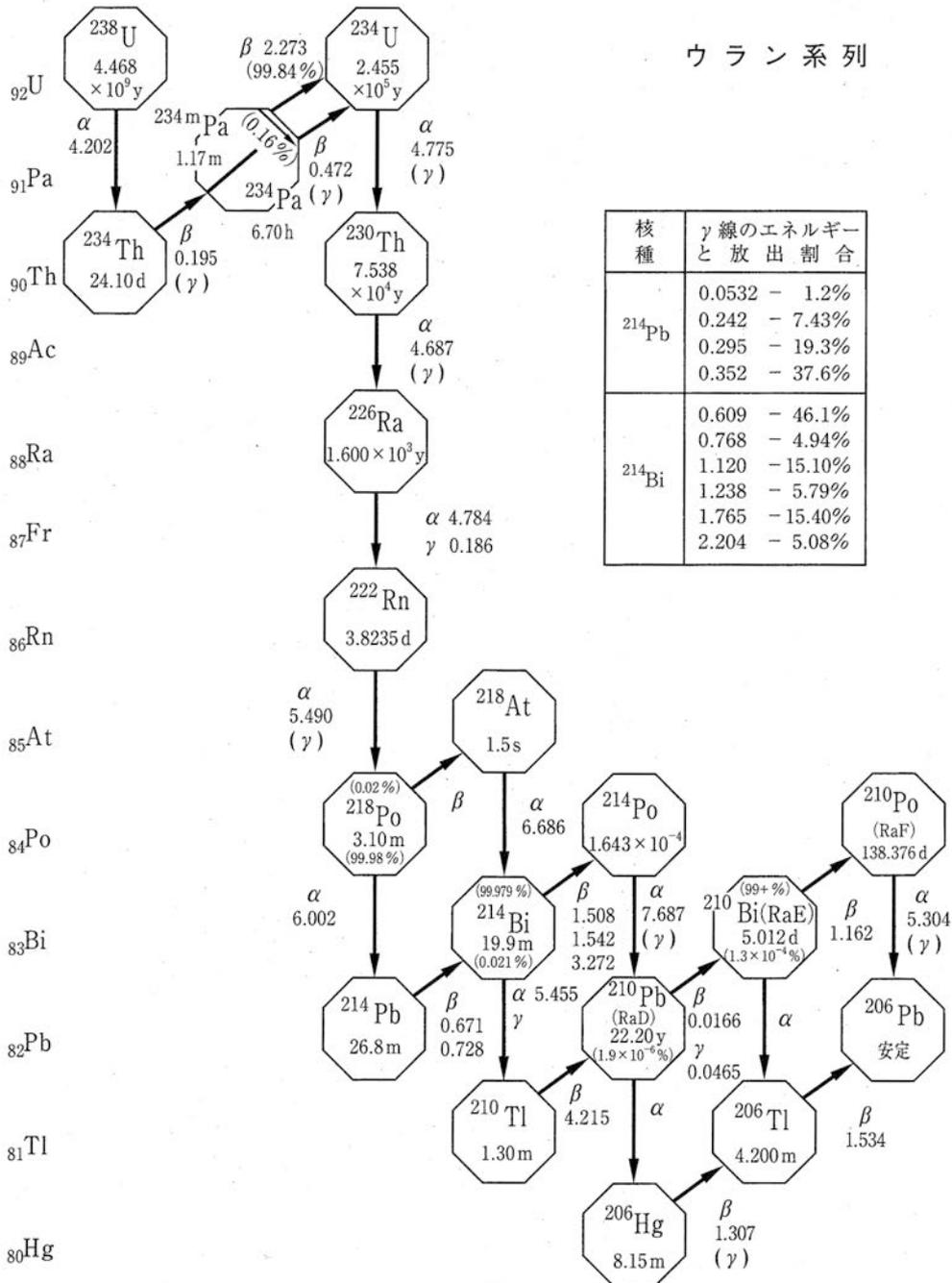


図 2.4 ウラン系列 [20]

第3章

空気中ラドン濃度の測定

XMASS 実験においてラドン（以下、特に断りの無い限り、「ラドン」の表記は ^{222}Rn を指すものとする。）が重要なバックグラウンドとなることは前章で議論した。今回、我々は空気中に含まれるラドンを測定する検出器「ガス用 70L ラドン検出器」の改良型（80L ラドン検出器（図 3.1））に関する研究を行った。改良型検出器の主な改良点は 70L ラドン検出器 [21] のアクリル板とバイトン O リングを真空対応 ICF フランジに変更したこと、そしてセラミックとバイトン・フィードスルーを高純度アルミナセラミック・フィードスルーに変更したことである。これらの改良によって検出器の気密性を高めることができた。検出器内を真空引きした際の到達圧力は 10kPa から 10^{-5} Pa まで低減することができ、検出感度を向上させることができた [26]。本章ではまずラドン検出器の検出原理について述べ、各種性能評価について議論する。



図 3.1 80L ラドン検出器

3.1 ガス用ラドン検出器の検出原理

3.1.1 Si PIN フォトダイオードによるアルファ線検出

ラドン検出器ではラドン濃度を測定するためにラドン娘核種 ^{214}Po の崩壊によって生じるアルファ線を利用している。このアルファ線を検出するために、我々は検出面積 $16\text{mm}\times 16\text{mm}$ 、有効厚さ $500\mu\text{m}$ 、逆バイアス電圧最高値 150V 、暗電流 15nA 、端子間容量 80pF の浜松ホトニクス（株）製 Si PIN フォトダイオード「S3204-06」を用いている。

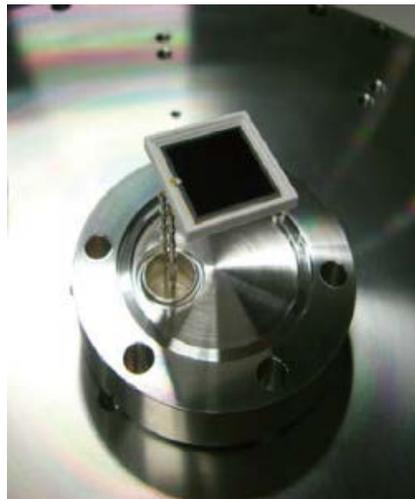


図 3.2 Si PIN フォトダイオード「S3204-06」

PIN フォトダイオード表面に付着した Po イオンは崩壊によってアルファ線を生じる。アルファ線は 2π -geometry の効果により $1/2$ の確率でフォトダイオードに入射する。このとき、入射アルファ線は Si のエネルギー・バンドギャップ約 1.11eV を超えるのに十分なエネルギーを空乏層内の Si 原子の価電子（最外殻電子）に与えて励起させる。価電子はバンドギャップを超えて伝導帯へ遷移して自由電子となり、価電子帯には正孔が生じる。逆バイアス電圧によって N 層側には正の電圧、P 層側には負の電圧がかかっているため、空乏層内の自由電子は N 層側へ、正孔は P 層側へ加速されて電極に向かって流れることで電気信号が発生する（図 3.3, 図 3.4）[22]。

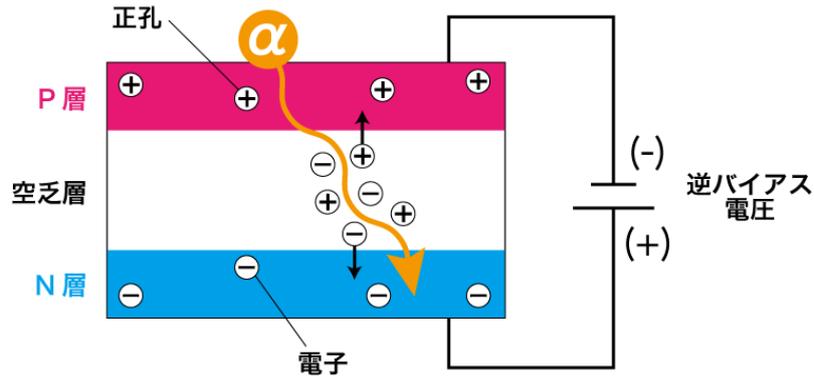


図 3.3 PIN フォトダイオードによるアルファ測定の実理.1

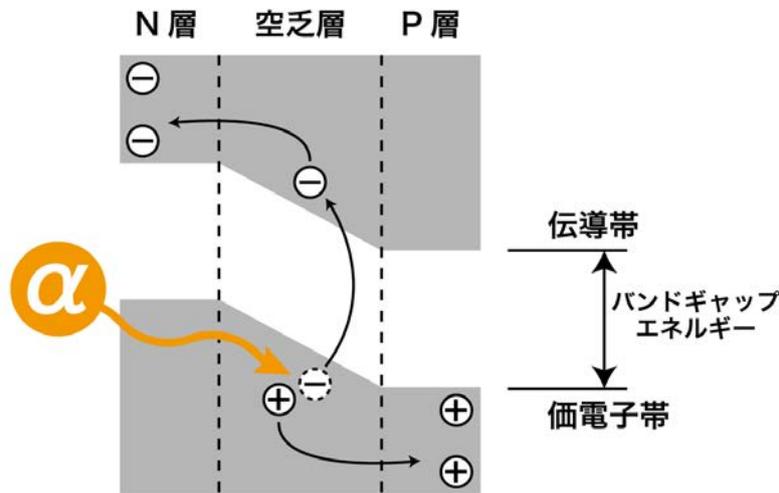


図 3.4 PIN フォトダイオードによるアルファ測定の実理.2

本来であれば PIN フォトダイオードのセラミックケースの窓にはガラスカバーが取り付けられているが、このままではアルファ線がガラスカバーで止まってしまうため測定できないので本検出器ではアルファ線を測定するためにガラスカバーを取り外した。信号はアンプモジュールによって増幅され、データロガーによって AD 変換される [23]。

3.1.2 ラドン娘核種の陽イオン化と静電捕集法

アルファ線の飛程はとて短いため、PIN フォトダイオード表面でアルファ崩壊事象を捉えなければならない。そこで用いるのがラドン娘核種の陽イオン化を利用した静電捕集法と呼ばれる方法である (図 3.5)。 ^{222}Rn の崩壊によって生じた ^{218}Po はその 88% が陽イオンとなり、残りの 12% は中性となることが分かっている [24] (付録 A.1)。PIN フォトダイオードの p 層に負の高電圧、ステンレス容器にグラウンドをとることによって電場が作られ、PIN フォトダイオード表面に陽イオン化しているラドン娘核種が集められる仕組みとなっている。

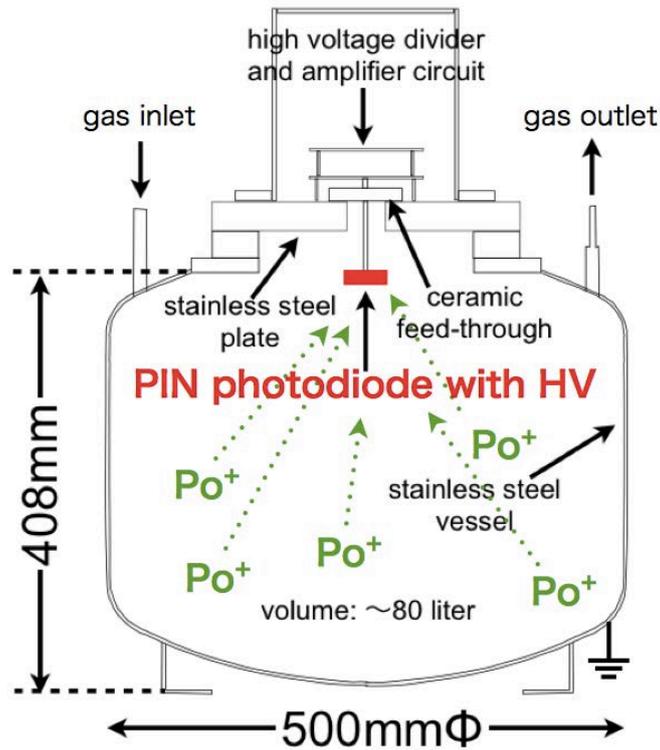


図 3.5 ラドン検出器と静電捕集法 [25]

3.2 湿度依存性とラドン濃度較正

ラドン自体は不活性な気体であるが、その娘核種は化学的に活性である。そのため検出器内空気中の水蒸気などの化学的要因によって ^{218}Po イオンが中性化されてしまい、 ^{218}Po の収集効率は 100% 以下となる。本研究では検出器内部を様々な湿度に保ち、較正実験を行うことにより、検出効率の湿度依存性について確かめた。

3.2.1 較正システムのセットアップ

ラドン検出器較正システムのセットアップを図 3.6 に示す。系内を真空引きした後、大気圧になるまでガスを封入する。ラドンソース (PYLON RNC, 78.3Bq) は装着したままで試験を行い、常に系内にラドンが供給されている状態となっている。その後、冷却トラップを様々な温度で制御することによって系内を流れる空気の湿度を調整し、ラドン検出器と露点計を経て循環する仕組みとなっている。

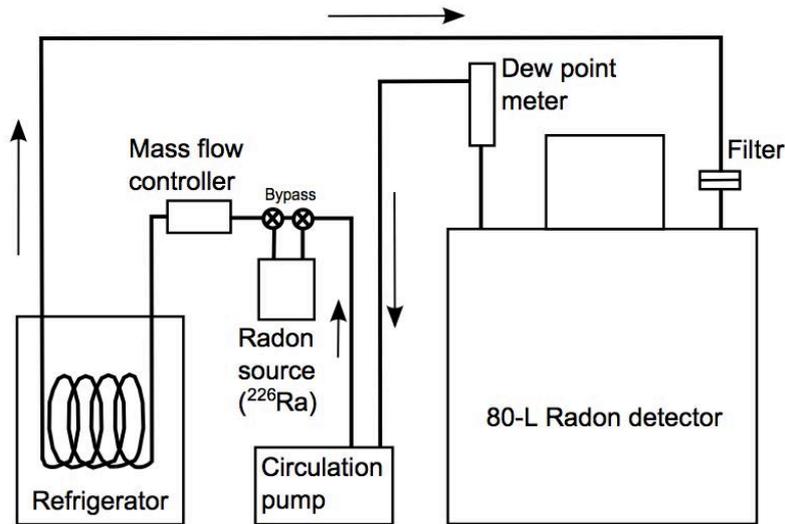


図 3.6 較正システムのセットアップ図 [26]

3.2.2 較正実験

前節のセットアップの下、本実験では系内にアルゴンを満たし、PIN フォトダイオード部の電圧が-1.0kV の条件における湿度依存性の確認とその較正を行った。代表的なスペクトルを図 3.7 に示す。 $^{218}\text{Po} \xrightarrow{\alpha} ^{214}\text{Pb} \xrightarrow{\beta} ^{214}\text{Bi} \xrightarrow{\beta} ^{214}\text{Po}$ という崩壊系列において、中性化された ^{218}Po から崩壊した ^{214}Pb はその多くが再び陽イオンとなって検出器に収集される。こうした理由によって ^{214}Po の計数率は ^{218}Po よりも高くなる [24]。また $^{218}\text{Po}(6.003 \text{ [MeV]})$ は $^{212}\text{Bi}(6.051 \text{ [MeV]})$ とスペクトルが重なる。そのため我々はラドン濃度の較正に ^{214}Po の信号を採用している。

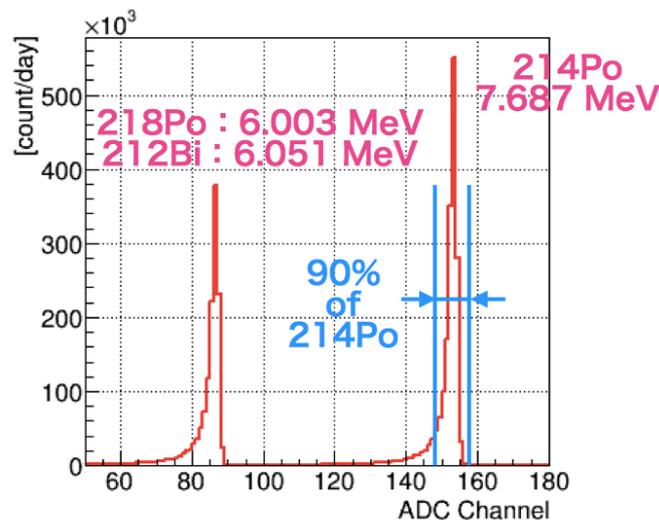


図 3.7 代表的なアルファ線スペクトル。横軸は ADC チャンネルで α 線のエネルギーに対応する。縦軸は計数率 [count/day]。

我々は ^{214}Po をラドン濃度に換算するために較正係数 CF を式 (3.1) のように定義している。定量のラ

ドン線源を用いて、 ^{214}Po のカウント数をラドン検出器を用いて測定し、その時の較正定数を求める*1。図 3.8 に本測定と過去の測定を合わせた実験結果を示す。図中横軸の絶対湿度は計測した露点から換算したものである (付録 A.2)。

$$CF [(count/day)/(mBq/m^3)] = \frac{{}^{214}\text{Po CountRate [count/day]}}{{}^{222}\text{Rn Concentration [mBq/m}^3]} \quad (3.1)$$

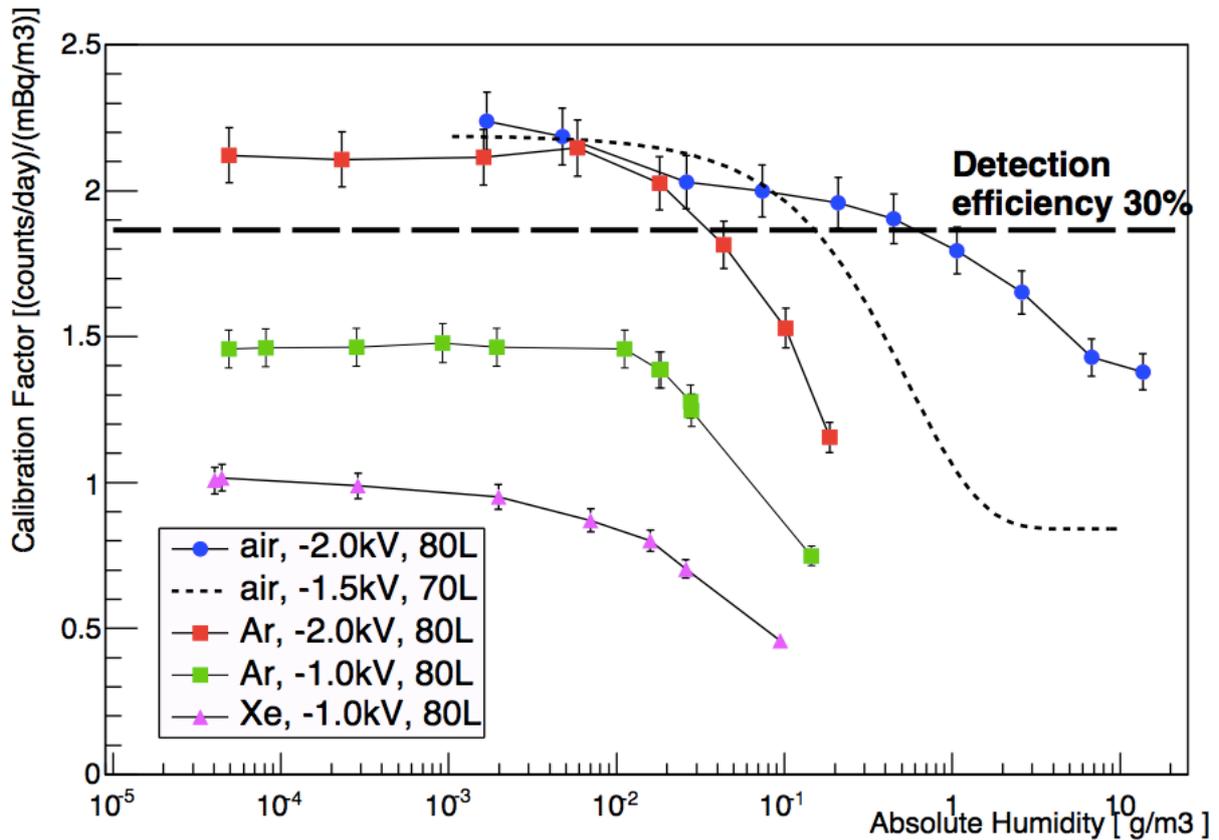


図 3.8 ラドン検出器の湿度依存性 [26]。横軸は絶対湿度 [g/m³]、縦軸は較正係数 CF [(count/day)/(mBq/m³)]。Ar, -1.0kV (図中の緑色の点) が本研究の測定結果である。

3.3 検出器の BG 評価

ラドン検出器の更なる感度の向上のためには、検出器由来のラドン・バックグラウンドを取り除くことが重要である。そこで本研究では、

- 検出器内部のステンレス表面のエタノール清掃
- 検出器内部のステンレス表面の電解研磨

による二種類の方法でどの程度検出器由来のバックグラウンドを低減できるかを各々評価した。

*1 我々はラドン濃度の較正に ^{214}Po シグナルのみを用いているが、Borexino 実験 [33] では ^{218}Po と ^{214}Po の両方のシグナルを用いて較正を行っている (付録 A.3)。

3.3.1 エタノール清掃前後の比較

検出器の検出感度を上げるための工夫として、検出器内部のステンレス表面の汚れをエタノールで拭き取る方法がある。このことによってどの程度バックグラウンドが低減したのかを比較した。今回の実験は検出器内部を純空気によって満たし、PIN フォトダイオード部に-1.0kV の電圧をかけて評価を行った。

エタノール清掃前後におけるアルファ線スペクトルの様子が図 3.9、図 3.10 である。また各測定の測定期間、 ^{214}Po 計数率、ラドン濃度を表 3.1 に示す（ラドン濃度は $\text{CF} = 1.5$ と仮定した）。図 3.9 からウラン系列である ^{222}Rn とトリウム系列の ^{224}Ra の娘核種のアルファ線スペクトルを見ることができる。図 3.10 は ^{214}Po のエネルギー・ウインドウの拡大図であるが、この結果からエタノール清掃によってウラン系列である ^{222}Rn がある程度低減したことが分かる。一方で、トリウム系列である ^{212}Po のアルファ線スペクトルには清掃前後での変化は見られなかった。このことから検出器内にはエタノールで除去することができない ^{224}Ra が残留している可能性があることが分かった。

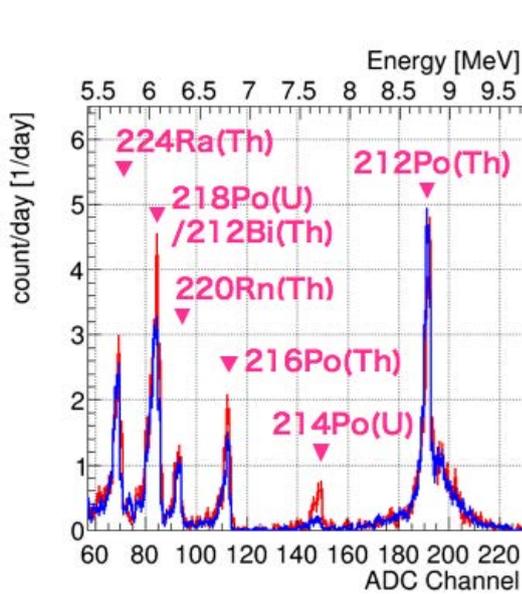


図 3.9 エタノール清掃前後のアルファ線スペクトル。図の赤線が清掃前、青線が清掃後を示す。

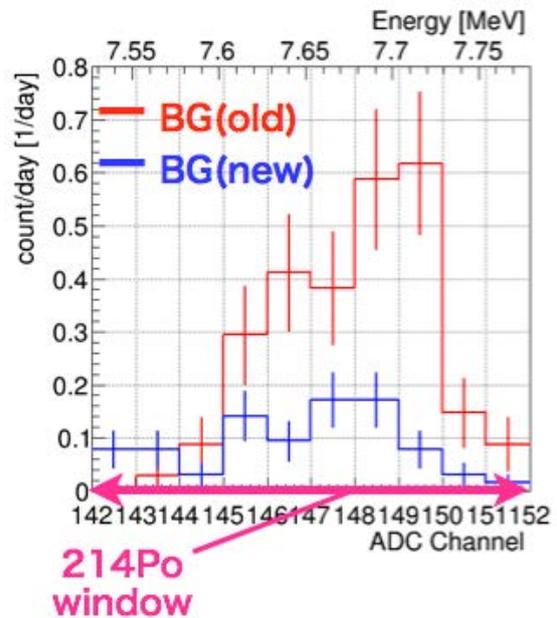


図 3.10 エタノール清掃前後のアルファ線スペクトル (^{214}Po の拡大図)

表 3.1 エタノール清掃前後における ^{214}Po 計数率とラドン濃度の比較。但し、 ^{214}Po のエネルギー・ウインドウを 142-152[ch]、ラドン濃度への換算には $\text{CF} = 1.5[(\text{count}/\text{day})/(\text{mBq}/\text{m}^3)]$ を用いた。

エタノール清掃前/後	測定期間 [days]	^{214}Po 計数率 [count/day]	ラドン濃度 [mBq/m^3]
清掃前	35	2.7 ± 0.3	1.8 ± 0.2
清掃後	64	0.9 ± 0.1	0.6 ± 0.1

3.3.2 再電解研磨前後の比較

検出器の内部のステンレス表面には微細な凹凸があるため、表面に付着した汚れをアルコールで拭き取るには限界がある。そこで検出器のバックグラウンドをさらに低減させる方法として、検出器のステンレス表面に電解研磨を施す方法が挙げられる（検出器製作時に電解研磨は既に施してあるが、一連の実験によって検出器表面に汚れが付着していると考えられる）。電解研磨とはステンレス表面を電気化学的に溶解させることで研磨する方法であり、このことによってステンレス表面を平滑に研磨することができる。本測定では前節のアルコール清掃によるバックグラウンド評価を行った検出器とは異なる検出器を用いて再電解研磨前後でのバックグラウンド評価を行った（但しセットアップは前節と同様、検出器を純空気で満たし、-1.0kVの電圧下で試験を行った）。

再電解研磨前後におけるアルファ線スペクトルが図 3.11 と図 3.12 である。これらの図から、電解研磨ではウラン系列である ^{222}Rn とトリウム系列である ^{224}Ra をともに低減できたことが分かる。図 3.12 において 50[ch] 付近のピークは ^{210}Po (5.305MeV) である。このピークが電解研磨後において残っている理由は、ラドンの崩壊過程において ^{210}Po の上流に半減期 22.4 年の ^{214}Pb があり、この ^{214}Pb が PIN フォトダイオード部に付着し滞留していくからである。また各測定の測定期間、 ^{214}Po 計数率、ラドン濃度を表 3.2 に記す。

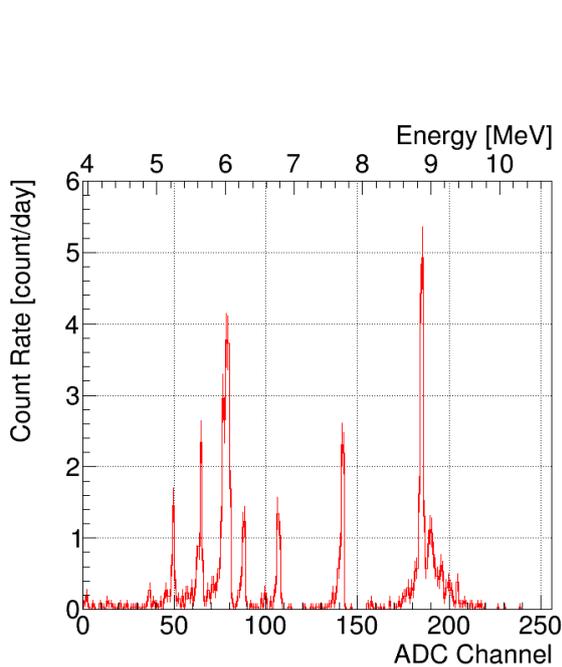


図 3.11 アルファ線スペクトル（電解研磨前）

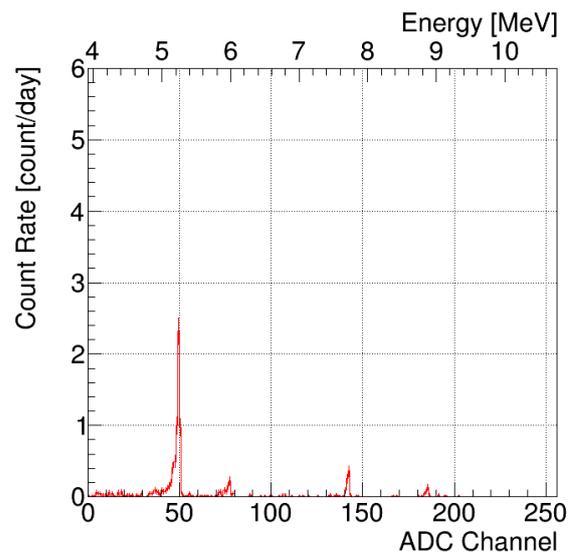


図 3.12 アルファ線スペクトル（電解研磨後）。50[ch] 付近のピークは ^{210}Po (5.305MeV) である。このピークが電解研磨後において残っている理由は、ラドンの崩壊過程において ^{210}Po の上流に半減期 22.4 年の ^{214}Pb があり、この ^{214}Pb が PIN フォトダイオード部に付着し滞留していくからである。

表 3.2 再電解研磨前後における ^{214}Po 計数率とラドン濃度の比較。但し、 ^{214}Po のエネルギー・ウィンドウを 136-144[ch]、ラドン濃度への換算には $\text{CF} = 1.5[(\text{count}/\text{day})/(\text{mBq}/\text{m}^3)]$ を用いた。

電解研磨前／後	測定期間 [days]	^{214}Po 計数率 [count/day]	ラドン濃度 [mBq/m^3]
電解研磨前	26	6.6 ± 0.5	4.4 ± 0.3
電解研磨後	67	0.8 ± 0.1	0.5 ± 0.1

第4章

XMASS タンク純水中のラドン・バックグラウンド

^{222}Rn は崩壊の過程でガンマ線を生じ、これが XMASS 検出器のすぐ外側にある純水タンク内で起こった場合、XMASS 実験にとって重要なバックグラウンドとなる恐れがある。本研究の目的は

- XMASS 純水タンク中のラドンによる γ 線バックグラウンドがどの程度測定に影響を及ぼすかを評価すること
- 定常的にラドン濃度をモニターすることによって XMASS タンク中純水のラドン濃度が測定に影響を与えないレベルにあること

である。本研究ではラドン濃度が XMASS 実験に影響がないかどうか評価するためにシミュレーションを行い、現状のタンク内純水のラドン濃度が暗黒物質の季節変動の観測に与える影響について初めて評価を行った。XMASS 実験においてタンク内純水中ラドン濃度の連続モニターも初の試みである。

4.1 シミュレーションによる XMASS タンク内純水中のラドンバックグラウンドの評価

4.1.1 純水中のガンマ線透過率

タンク内純水領域全てから ^{222}Rn を発生させると計算に膨大な時間を要してしまう。そのため今回はまず純水中のガンマ線透過率からタンク内純水領域の全事象に対して 99% 以上カバーできる領域を見積もった。

ガンマ線は光電効果やコンプトン散乱、電子対生成などによって物質中の透過率が減衰する。ここで線減衰係数を μ 、物質の密度を ρ とすると減衰の指標となる質量減衰係数は μ/ρ で表される。ガンマ線が質量密度 ρ の物質中を距離 x だけ進んだ時に生き残っている割合（減衰率）は

$$y = \exp(-(\mu/\rho)\rho x) = \exp(-\mu x) \quad (4.1)$$

で表される。表 4.1 にラドン系列のエネルギー放出割合を示す。表から分かるようにラドン系列で最もガンマ線のエネルギーが高いのは ^{214}Bi の 2.204MeV である。そこで今回は 2MeV のガンマ線（質量減衰係数 $4.94 \times 10^{-2}[\text{cm}^2/\text{g}]$ ）（表 4.2）が純水中（水の密度を $1.0[\text{g}/\text{cm}^3]$ とした）をどの程度透過するかを見積もった。その結果が図 4.1 である。この簡単な見積りから、例えば純水中を 300cm 進むガンマ線の

透過率は 10^{-6} 以下に低減されることが分かる。

表 4.1 ラドン系列のエネルギーと放出割合 [20]

核種	ガンマ線のエネルギー [MeV]	放出割合 [%]
^{214}Pb	0.0532	1.1
	0.242	7.5
	0.295	18.5
	0.352	35.8
^{214}Bi	0.609	44.8
	0.768	4.8
	1.120	14.8
	1.238	5.9
	1.764	15.4
	2.204	4.9

表 4.2 2MeV ガンマ線の透過率 [27]

エネルギー [MeV]	質量減衰係数 μ/ρ [cm^2/g]
5.00×10^{-2}	2.27×10^{-1}
6.00×10^{-2}	2.06×10^{-1}
8.00×10^{-2}	1.84×10^{-1}
1.00×10^{-1}	1.71×10^{-1}
1.50×10^{-1}	1.51×10^{-1}
2.00×10^{-1}	1.37×10^{-1}
3.00×10^{-1}	1.19×10^{-1}
4.00×10^{-1}	1.06×10^{-1}
5.00×10^{-1}	9.69×10^{-2}
6.00×10^{-1}	8.96×10^{-2}
8.00×10^{-1}	7.87×10^{-2}
1.00	7.07×10^{-2}
1.25	6.32×10^{-2}
1.50	5.75×10^{-2}
2.00	4.94×10^{-2}
3.00	3.97×10^{-2}

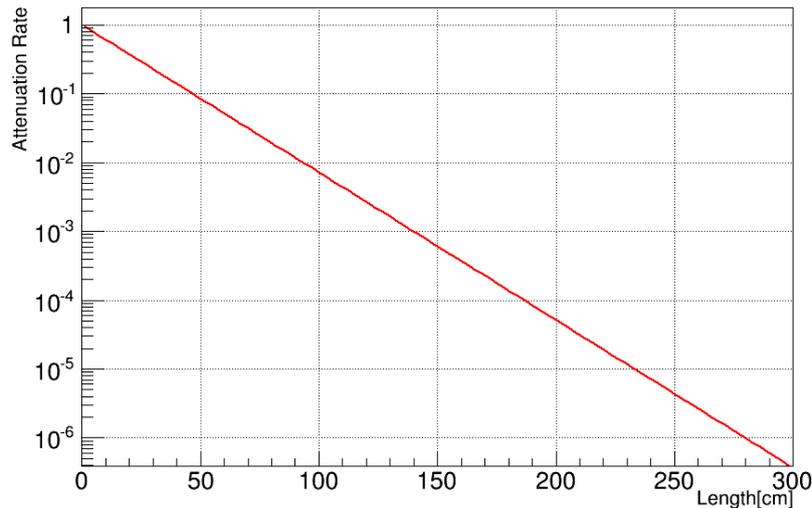


図 4.1 ガンマ線の透過率。横軸は飛程、縦軸は減衰率を示す。

4.1.2 シミュレーション

前節でガンマ線の減衰率について議論したが、タンク内純水中で散乱したガンマ線の中には散乱角が浅かったり、再び散乱することによって XMASS 検出器まで到達するものも存在するため、純水タンク内で発生したラドン事象がどの程度 XMASS 検出器に到達するかはシミュレーションによって確認しなければならない。表 4.3 にシミュレーションのセットアップと得られた事象数を示す。

表 4.3 シミュレーションのセットアップと得られた事象数

シミュレーション・ツール	Geant4
球の半径 [cm]	316
仮定した純水中ラドン濃度 [Bq/m ³]	1
発生させたラドン事象数	583.85 × 10 ⁶
得られたヒット事象数	3344

前節の見積もりからラドンを発生させる領域には XMASS 検出器を中心とした半径 316cm の球の内部全体を採用した。図 4.2 に本シミュレーションのカバー率を示す。ここで図の赤線は XMASS 検出器中心から任意の半径の球内部の領域にあるラドンから生じたガンマ線が PMT に到達した事象数、青線は式 4.2 のフィット曲線である。

$$y = p_0(1 - \exp(-p_1(x - r_{OVC}))) \tag{4.2}$$

ここで p_0 , p_1 はフィット・パラメータ、 $r_{OVC}(= 64.8[\text{cm}])$ は XMASS 検出器の Outer Vacuum Chamber を球と仮定した場合の半径とする。式 4.2 から得られたフィット・パラメータ p_0 の 99% をカバーする領域を図の左側の青色の点線、 p_0 の 99.9% をカバーする領域を図の右側の青色の点線に示した。このシミュレーション結果から半径 316cm の球領域で純水タンク全体から発生するラドン事象を十分にカバーできていることが分かる。

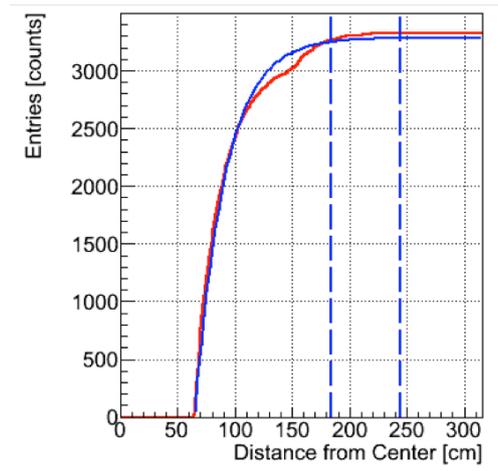


図 4.2 シミュレーションのカバー率。横軸は検出器中心からの距離、縦軸は PMT に到達した事象数。また左側の青点線は 99% カバー領域、右側の青点線は 99.9% カバー領域を表す。150cm 付近の領域でフィットが合わないのは検出器の構造による。

シミュレーションと XMASS バックグラウンドとの比較を図 4.3 に示す。シミュレーションでは $1[\text{Bq}/\text{m}^3]$ あたりの XMASS 検出器計数率は $10^{-4} [\text{counts}/\text{day}/\text{keV}/\text{kg}] (= [\text{dru}])$ であったので、 $1[\text{dru}]$ あたりのラドン濃度は

$$1[\text{Bq}/\text{m}^3]/10^{-4}[\text{dru}] = 10^4[(\text{Bq}/\text{m}^3)/\text{dru}] \tag{4.3}$$

となる。

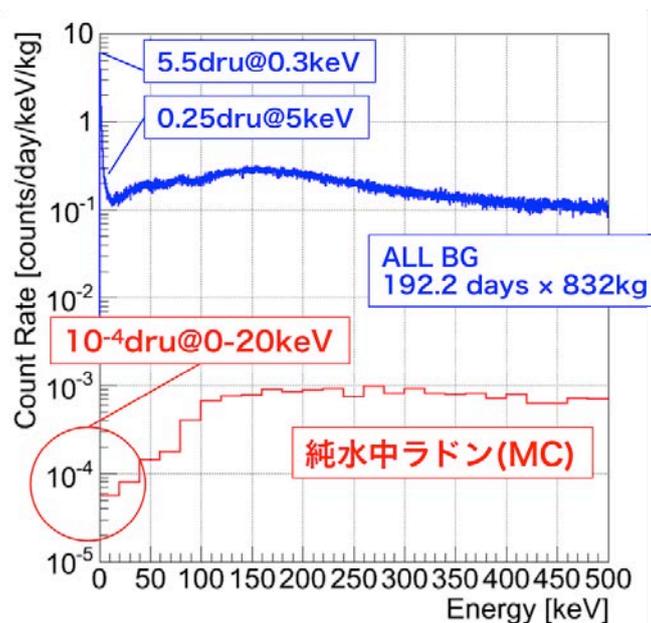


図 4.3 シミュレーション (赤線) と XMASS 観測データ (青線) との比較。横軸はエネルギー、縦軸は XMASS 検出器における事象の計数率を示す。

式 4.3 と XMASS バックグラウンドの計数率からラドン濃度の上限値を見積もることができる。DAMA では約 10% のエラーで振幅が約 1% の暗黒物質の季節変動を報告している [12]。そのため

XMASS の全バックグラウンドが暗黒物質の事象であると仮定した場合、季節変動を観測するためにはラドンバックグラウンドは全バックグラウンドの 0.1 % 程度に抑えなければならない。そこで XMASS バックグラウンドの計数率に 10^{-3} を掛けたものからラドン濃度上限値の算出を行った。その結果が表 4.4 である。この結果から、5keV 以上の観測データを用いて暗黒物質の季節変動を観測するためには純水タンク中のラドン濃度を $2500[\text{mBq}/\text{m}^3]$ 以下に抑える必要があることがわかった。

表 4.4 各エネルギーにおける XMASS バックグラウンドの計数率とラドン濃度の上限値

エネルギー [keV]	計数率 [dru]	ラドン濃度の上限値 [mBq/m^3]
0.3	5.5	55000
5	0.25	2500

4.2 XMASS タンク内純水中ラドンバックグラウンドの測定

4.2.1 純水用ラドン検出器とその検出原理

前章では空気中ラドン検出器について議論した。今回の純水中ラドン濃度測定実験では、神岡で開発されたガス用 70L 高感度ラドン検出器 [21] (図 4.4) と、中空糸膜によって液相のラドンを気相側に移して測定する 700L 検出器 [28] で用いている中空糸膜 (DIC 株式会社製 SEPAREL PFX-009 (特注品)) (図 4.5) を組み合わせた検出器を製作し、XMASS 純水タンク上に設置・測定を行った。実際に設置した純水用ラドン検出器の外観図が図 4.6 である。

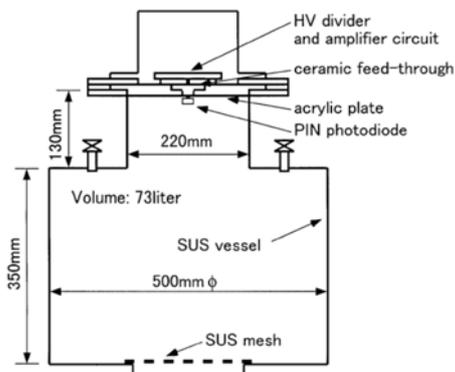


図 4.4 ガス用 70L 高感度ラドン検出器 [21]

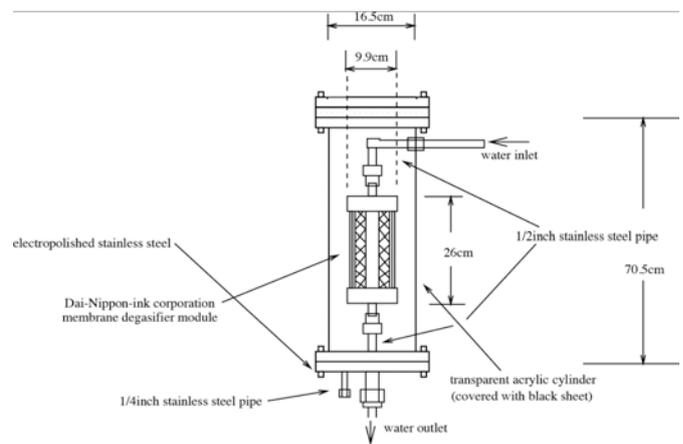


図 4.5 中空糸膜モジュール [28]

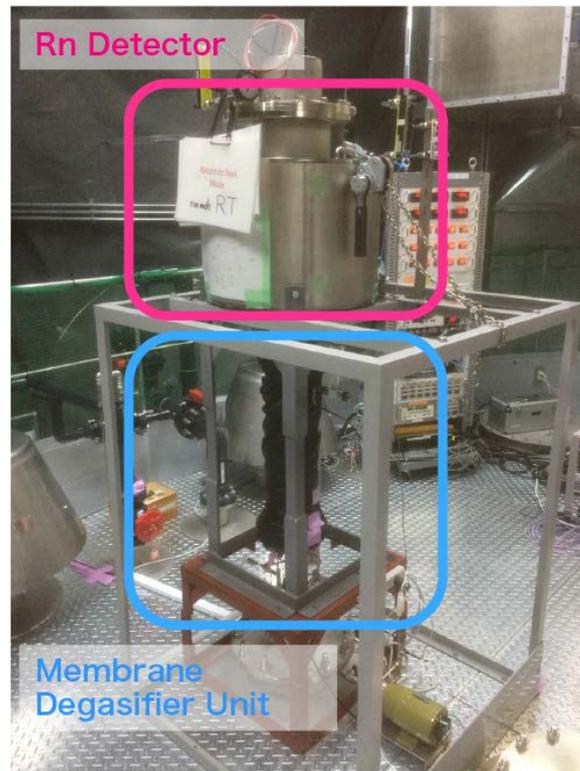


図 4.6 タンク純水中ラドン濃度測定用ラドン検出器の外観。上部がガス用 70L 高感度ラドン検出器、下部が中空糸膜モジュールから構成されている。

図 4.7 は中空糸膜を利用した純水中ラドン濃度測定の原理について図示したものである。中空糸膜とは気体のみを透過させて液体を透過させない特徴を持つ細い糸状の分離膜である [29] (図 4.8)。タンク内の純水はポンプによって中空糸膜モジュールに送り込まれ、中空糸膜表面で気相側のラドン濃度と液相側のラドン濃度のバランスが保たれる仕組みになっている。気相側へ移ってきたラドンをラドン検出器で検出する原理は第 3 章で議論したガス用ラドン検出器と同様であるため、ここでは説明を割愛する。

また図 4.9 に XMASS タンク内純水中ラドン検出器のフローチャートを示す。純水が流れる系では、タンク内の純水をポンプで循環させて中空糸膜を経由して再びタンク内に戻される仕組みとなっている。また検出器内には窒素が常に一定量供給される仕組みとなっている。これは検出器内の気体が脱気された純水に溶け込み、検出器内部の圧力が低下することを防ぐためである。

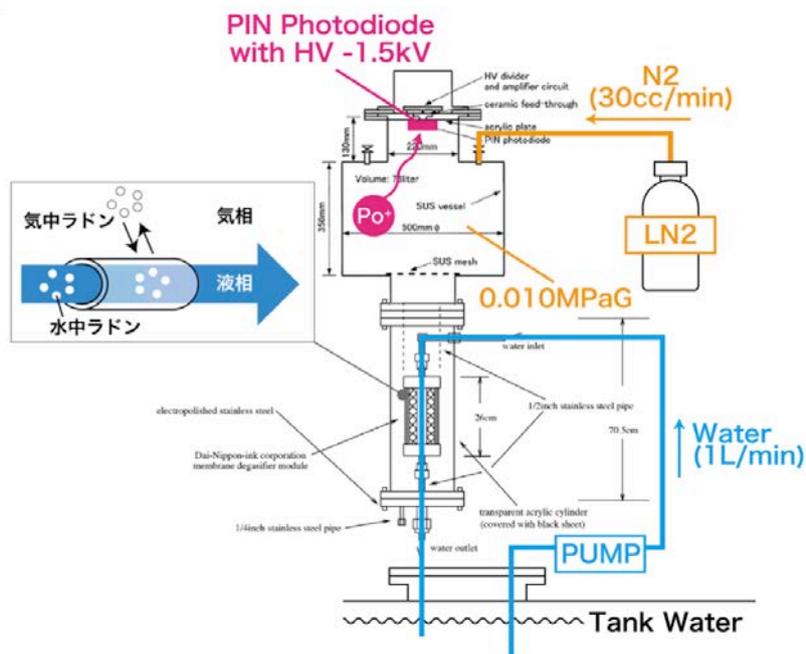


図 4.7 純水中ラドン濃度測定の実験装置

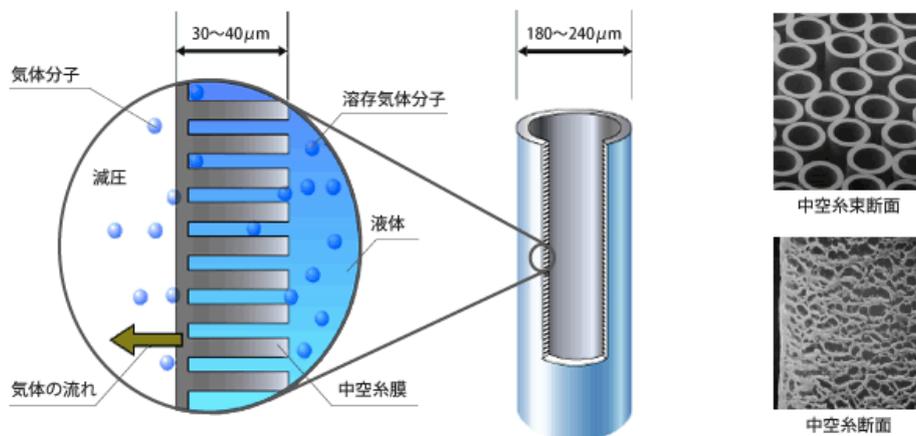


図 4.8 中空糸膜 [29]

Radon Detector Flowchart

Y. Onishi, 2014.5.21

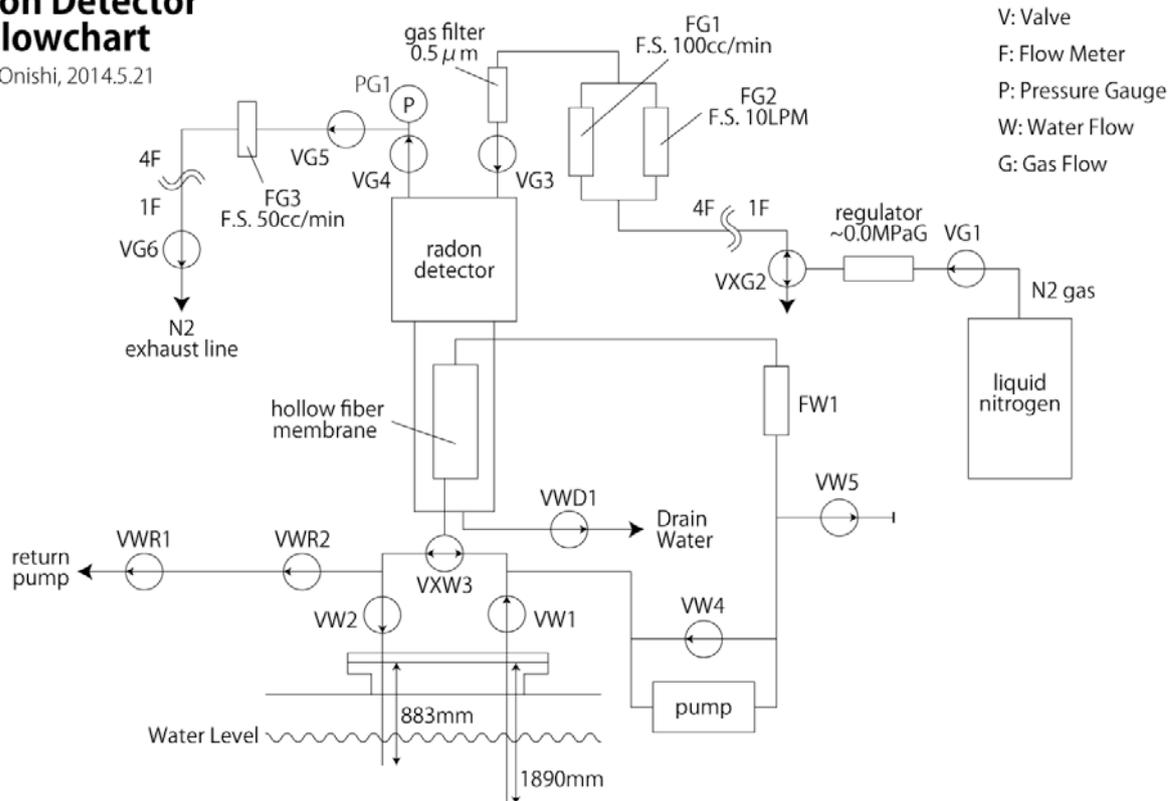


図 4.9 XMASS タンク内純水用ラドン検出器のフローチャート。純水が流れる系では、タンク内の純水をポンプで循環させて中空糸膜を経由して再びタンク内に戻される仕組みとなっている。また検出器内には窒素が常に一定量供給される仕組みとなっている。これは検出器内の気体が純水に引き込まれ、検出器の圧力が低下することを防ぐためである。

4.2.2 測定結果

図 4.10 は測定開始 (2014 年 3 月 16 日) から 2015 年 1 月 22 日現在までの ^{214}Po 計数率の変化の様子である。本測定では ^{214}Po のエネルギーウインドウ (図 3.7) は ADC チャンネルの 155-170[ch] とした。測定開始から 1 週間ほど後に ^{214}Po 計数率が上昇した (図 4.11)。このことは純水装置の膜脱気装置から坑内の空気が混入していたことが原因であった。2014 年 5 月 28 日に膜脱気をバイパスさせた結果、 ^{214}Po 計数率はラドンの崩壊定数に沿って減衰していった。図 4.10 中の緑の線は実験サイトで停電が起きた時刻を示す。停電時に外気の混じった純水が 0.4t 混入したため、一時的にラドン濃度が上昇したと考えられる。2015 年 1 月 22 日現在、 ^{214}Po 計数率は安定している (図 4.12)。

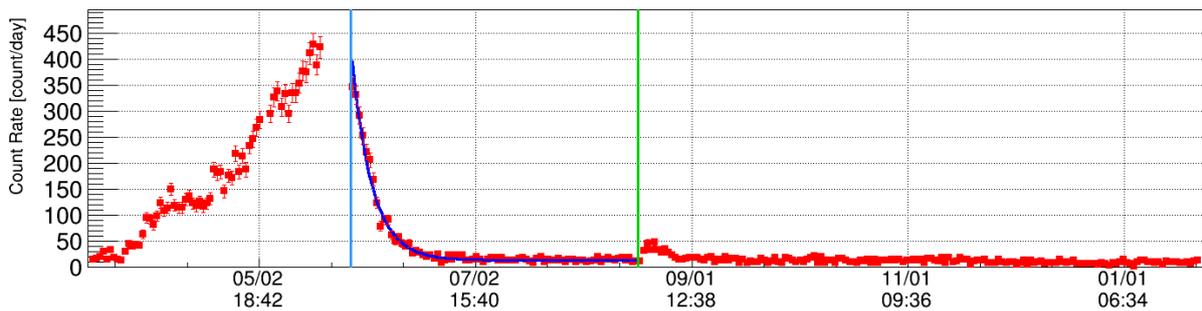


図 4.10 測定開始 (2014 年 3 月 16 日) から 2015 年 1 月 22 日現在までの ^{214}Po 計数率。横軸は時刻、縦軸は ^{214}Po 計数率を示す。また水色の線は膜脱気装置をバイパスさせた時刻、緑色の線は XMASS サイトで停電が起きた時刻、青線はラドンの崩壊式によるフィットカーブを示す。

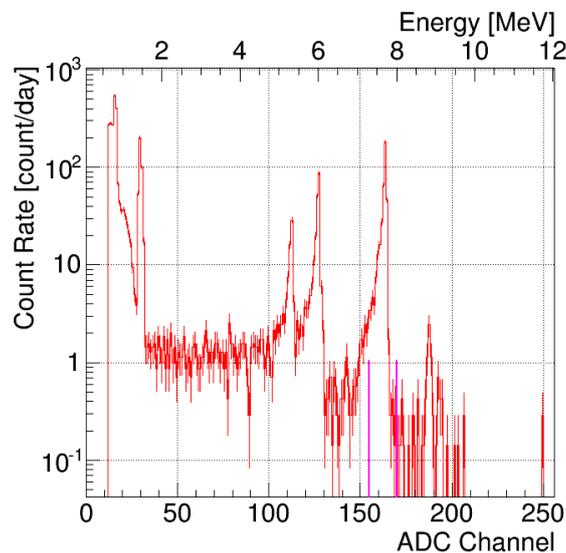


図 4.11 ラドン濃度上昇時 (2014 年 5 月 11 日から 2014 年 5 月 18 日まで) のアルファ線スペクトル。横軸 (下) は ADC チャンネル、横軸 (上) は ADC チャンネルに対応したエネルギー、縦軸は計数率を示す。ピンクの線は ^{214}Po のエネルギーウインドウ (155-170[ch]) を示す。

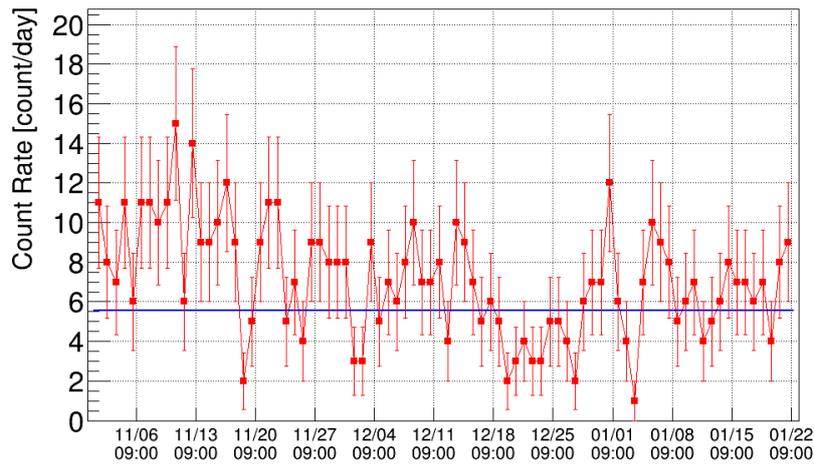


図 4.12 現状 (2014 年 11 月 1 日から 2015 年 1 月 22 日現在まで) の ^{214}Po 計数率

また検出器自身のバックグラウンドを評価するため、バックグラウンド測定 (2014 年 2 月 6 日から 2014 年 3 月 15 日まで) を行った。図 4.13 にバックグラウンド測定の様式図を示す。バックグラウンド測定では窒素の供給を停止し (供給バルブを閉じた状態にしている)、また純水タンクからの採水・排水バルブも閉じて実験を行った。

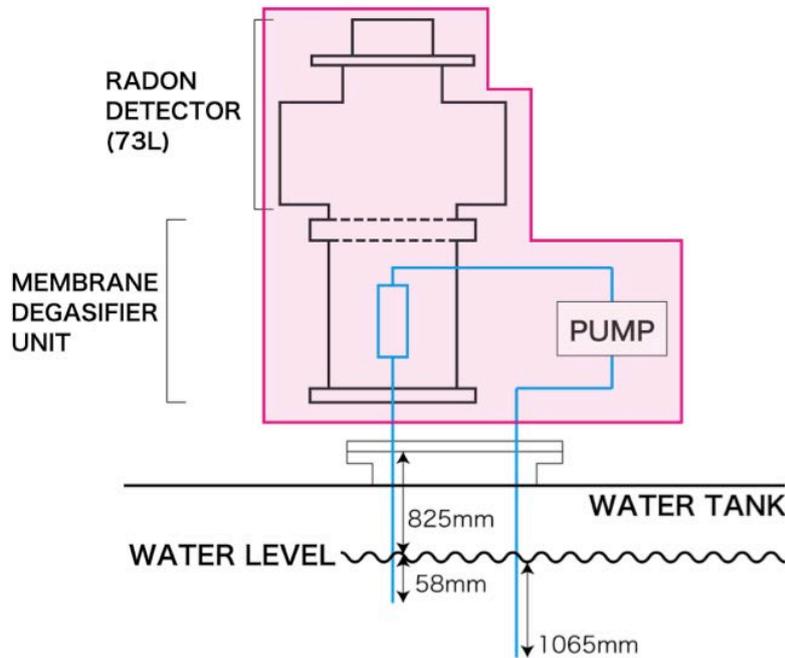


図 4.13 バックグラウンド測定の様式図。図のピンク部を封じきって実験を行った。

表 4.5 に各測定期間における ^{214}Po 計数率を示す。バックグラウンド測定における ^{214}Po 計数率が現状の測定より高いことから、ラドン検出器内部にラドン源があり、そこから放出されたラドンが水中に溶け込んでいると考えられる。これらのラドン・バックグラウンドが XMASS 実験にどの程度影響を及ぼすかは後程議論する。

表 4.5 各測定期間における ^{214}Po 計数率

	^{214}Po 計数率 [count/day]
現状の測定 (2014 年 11 月 1 日から 2015 年 1 月 22 日現在まで)	5.6 ± 0.3
測定期間中の最大値 (2014 年 5 月 19 日)	429 ± 21
バックグラウンド測定 (2014 年 2 月 6 日から 2014 年 3 月 15 日まで)	23 ± 1

第 5 章

純水用ラドン検出器の較正実験

純水中のラドン濃度を測定するためには純水中ラドン濃度とラドン検出器で測定する ^{214}Po の計数率との対応を知る必要がある。そこで今回、我々は XMASS タンク上で用いているラドン検出器と同じモジュールを用いて同じ坑内にあるスーパー・カミオカンデ実験の実験サイトで較正実験を行った。

5.1 検出器のセットアップ

図 5.1 はラドン検出器較正用システムの外観図である。また較正実験のフローチャートを図 5.2 に示す。使用したラドンソースは PYLON RNC(^{226}Ra , 0.417kBq) であり、純空気を満たした系内をポンプによって循環させる。ラドン水（ラドンが溶解した純水）サーバーには純水が満たされており、ラドンガスをバブリングさせることによってラドン水を生成している。こうして生成したラドン水を微量ポンプ（株式会社フロム製 PCS ポンプ）で SK の純水装置から取り込んできた純水と合流させることによって希薄なラドン濃度のラドン水測定を実現している。ラドン水を希釈する前にラドン水のラドン濃度を液体シンチレーション法と呼ばれる方法で測定することで純水中のラドン濃度と ^{214}Po 計数率の較正を行うことが可能となっている。



図 5.1 較正用ラドン検出器とラドン水生成装置の外観図

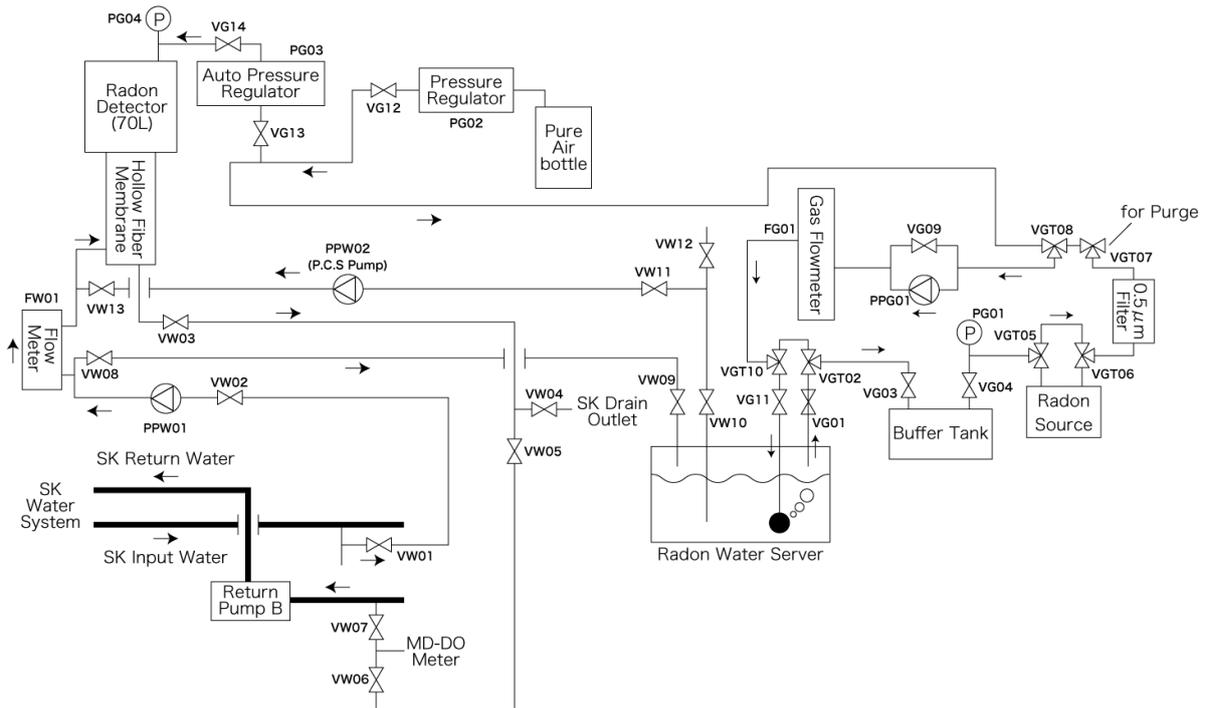


図 5.2 較正実験フローチャート。三角形二つからなる記号はバルブ、三角形と丸を組み合わせた記号はポンプ、「P」の表記は圧力計を示す。

5.2 ラドン水の生成とラドン水の希釈

較正実験を行うにあたって、ラドン水を生成する必要がある。本節ではラドン水の生成方法とその希釈手順について順を追って説明する。操作にあたっては図 5.2 を参照されたい。

■ラドンガスの生成 ラドン水を生成するにあたって、まずはラドンガス（ラドンが溶け込んだ純空気）を準備する必要がある。ここではその生成手順を説明する。

1. 系内を純空気満たす。(圧力 0.007MPaG)
2. ラドンソースを接続する。
3. VGT10 を図上向き（バイパス側）にする。
4. VGT02 を図上向き（バイパス側）にする。
5. VG03 を開く。
6. VG04 を開く。
7. VGT05 を図下向き（ラドンソース側）にする。
8. VGT06 を図下向き（ラドンソース側）にする。
9. VGT07 を図左向きにする。
10. VGT08 を図右向きにする。
11. PPG01 の電源をオンにする（流量 3L/min）。

12. 約 10 分間経過後、PPG01 の電源をオフにする。
13. ラドンソースを切り離す。

■**バブリングによるラドン水の生成** 次に生成したラドンガスを純水中でバブリングさせることによってラドンを純水に溶けこませる作業を行う。

1. VGT10 を図下向き（ウォーターサーバー側）にする。
2. VG11 を開く。
3. VG01 を開く。
4. VGT02 を図下向き（ウォーターサーバー側）にする。
5. VG03 を開く。
6. VG04 を開く。
7. VGT05 を図上向き（バイパス側）にする。
8. VGT06 を図上向き（バイパス側）にする。
9. VGT07 を図左向きにする。
10. VGT08 を図右向きにする。
11. PPG01 の電源をオンにする（流量は 2L/min に設定）。
12. 約 12 時間経過後、PPG01 の電源をオフにする。

■**ラドン水の希釈** こうして生成されたラドン水を SK の純水と合流させることによって希釈する。以下、ラドン水の希釈手順である。

1. VW10 を開く。
2. VW11 を開く。
3. VW13 を開く。
4. VW03 を半開（約 45 度）にする。
5. PPW02 の電源をオンにする。

5.3 液体シンチレーション法によるラドン濃度測定

この節では生成したラドン水のラドン濃度を知るために用いた液体シンチレーション法（付録 B.1）による測定結果を示す。液体シンチレーション法では、ラドン水にシンチゾルと呼ばれるトルエン溶媒のシンチレータを加えてよく混ぜ合わせる。ここでトルエンを用いているのは、ラドンが水よりもトルエンに対しての方が融和性が高いからである。トルエン中のラドンが崩壊することによって ^{222}Rn から半減期の長い ^{214}Pb までの間にアルファ線やベータ線を放出する。これらの放射線がトルエンと反応することによって生じるシンチレーション光をアナライザー（PACKARD 社 液体シンチレーション・アナライザー 2500TR）が検出し、その計数率からラドン濃度を算出する。ここで留意したいのは、あまりに低いラドン濃度（1 [Bq/L] 程度）では液体シンチレーション測定の測定限界を下回ってしまい、測定することができない点である。

以下に液体シンチレーション法による測定手順を示す。この分析手法は環境省の「鉱泉分析法指針」[34] で標準化されている手順にほぼ沿っている。

1. 約 600ccc の水をフラスコに採取する。
2. 600cc の水を 450cc まで減らす。
3. シンチゾルを 30ml 加える。(バックグラウンド用に 20ml のシンチゾルをバイアル瓶に入れる。)
4. 10 分攪拌し、20 以上静置する。
5. シンチゾルとサンプルを分離する。
6. シンチゾルの上澄み液 20ml をバイアル瓶に移す。
7. 4 時間静置した後、アナライザーにバイアル瓶をセットして測定を行う。

ラドン水の生成は時期を分けて 2 回行い、各々液体シンチレーション法によるラドン濃度測定を行った。ラドン水測定の結果を表 5.1 に記す。両者のラドン水はどちらも前節の手順に従って生成した。ラドンソースを切り離した時点で、ラドンは放射性壊変によって減少する。このことを考慮したのが表中の「 t_0 でのラドン濃度」である。

また図 5.3 にラドンソースの切り離し時刻 t_0 を基準とした時のラドン水のラドン濃度を示す。図中の青線は式 5.1 はラドン崩壊のフィット曲線である (p_0 はフィット・パラメータ、 λ はラドンの半減期 $T_{1/2} = 3.824$ [day] の崩壊定数、 t は時刻 t_0 からの経過時間)。またラドンの崩壊定数 λ を式 5.2 に示す。

$$y = p_0 \exp(-\lambda t) \quad (5.1)$$

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} = 0.181 \text{ [1/day]} \quad (5.2)$$

表 5.1 の平均値はこの式のフィット・パラメータ p_0 を示す。これらの測定結果から、同じ手順に従えば同程度のラドン濃度を有するラドン水を生成することができていることが分かった。

表 5.1 各測定における操作時刻とラドン濃度。「 t_1 でのラドン濃度」が液体シンチレーション法による測定結果である。ここからラドンの崩壊を考慮して「 t_0 でのラドン濃度」を算出している。ただし一回目のラドン水生成時は液体シンチレーション測定を時期を変えて 2 回行ったため、#1a, #1b と表記した。

#	ラドンソース切り離し時刻 (= t_0)	ラドン水採水時刻 (= t_1)	t_1 でのラドン濃度 [Bq/L]	t_0 でのラドン濃度 [Bq/L]
1a	2014/10/18 23:38	2014/10/19 10:01	7.85±0.14	8.49±0.15
1b	上に同じ	2014/10/30 14:30	1.01±0.05	8.30±0.41
2	2014/11/7 21:01	2014/11/23 16:12	0.56±0.08	9.82±1.40
平均値				8.48±1.41

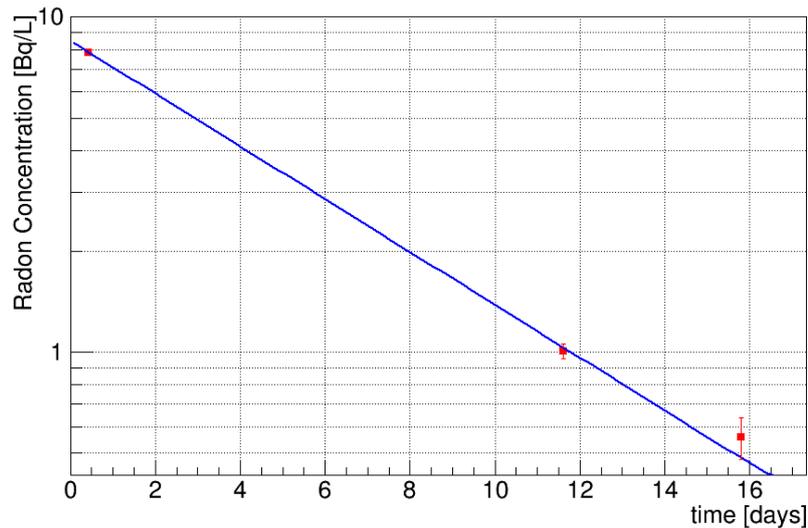


図 5.3 ラドンソースの切り離し時刻 t_0 を基準とした時の採水時点におけるラドン水のラドン濃度。赤色の点は図の左から順に測定#1a、#1b、#2 に対応しており、青線はラドン崩壊のフィット曲線を示す。

5.4 気液平衡の関係から予想されるラドン濃度

ラドン濃度は気相と液相との間で理想的には気液平衡の関係が実現していると考えられる。気液平衡状態のときの気相・液相間のラドン濃度比を表したものが Ostwald 係数 L であり、

$$L = \frac{\text{Rn Concentration in Water}}{\text{Rn Concentration in Gas}} \quad (5.3)$$

$$= C_w / C_g \quad (5.4)$$

で表される。ここで、 C_g を気相中のラドン濃度、 C_w を液相中のラドン濃度とした。温度 T [K] における Ostwald 係数 $L(T)$ は

$$\ln L(T) = -82.0146 + 126.823/(T/100) + 34.7934 \ln(T/100) \quad (5.5)$$

で表される [30]。この式を L について解くと、

$$L(T) = \exp(-82.0146 + 126.823/(T/100) + 34.7934 \ln(T/100)) \quad (5.6)$$

となる。SK の室温 $T = 20$ [°C] とすると、

$$L = 0.264041 \quad (5.7)$$

となる。温度 T とオストワルド係数の関係についてのグラフを図 5.4 に示す。

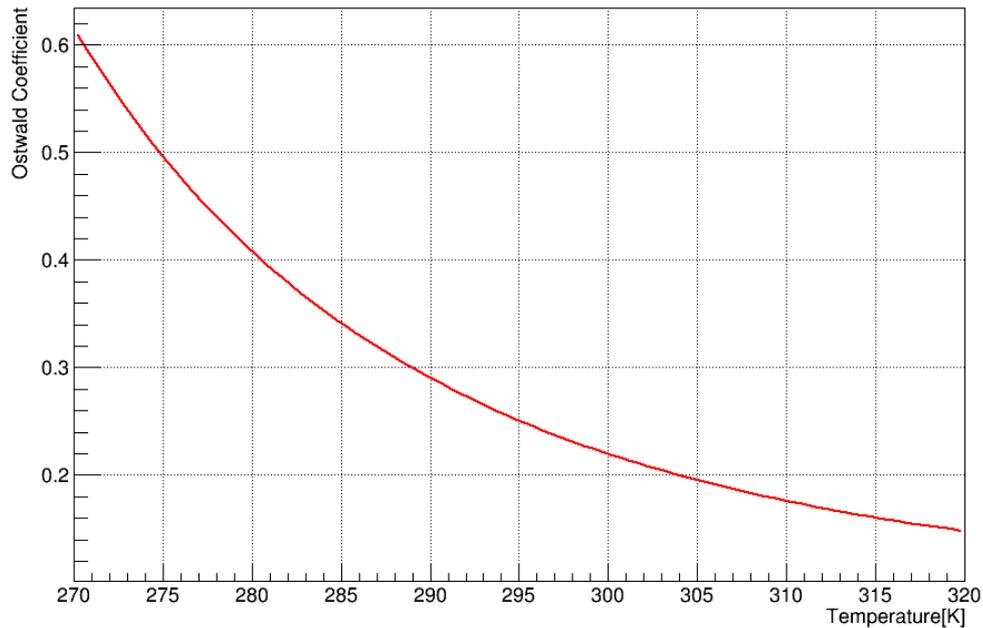


図 5.4 オストワルド係数と温度との相関図

次に気相・液相間で気液平衡が実現していると仮定したとき、生成したラドン水はどの程度になるかを見積もることとする。ここで考慮しなければならないのは、ラドン水生成時におけるラドンソース装着・切り離しによる系内のラドンの損失である。

まずラドンソースが接続されている時はバッファタンクとラドンソースの系内にラドンが充填されている。バッファタンクからラドンソースを切り離すと系内のラドン量はラドンソースの体積分だけ減少するため、バッファタンクの容量を V_b 、ラドンソースの容量を V_r 、ラドンソースのラドン量を A 、ソース切り離し後のラドン量を A' とおくと、

$$A' = A(V_b / (V_b + V_r)) \quad (5.8)$$

となる。この状態からバッファタンクにラドン水サーバー（空間体積 V_{sg} 、ラドン水体積 V_{sw} ）を接続すると、

$$(V_b + V_{sg})C_g + V_{sw}C_w = A' \quad (5.9)$$

と表すことができる。よって式 5.4、式 5.7、式 5.8、式 5.9 より、水中ラドン濃度 C_w は

$$C_w = \left(\frac{AV_b}{V_b + V_r} \right) \left(\frac{V_b + V_{sg}}{L} + V_{sw} \right)^{-1} \quad (5.10)$$

となる。表 5.2 に気液平衡の関係から予想される水中ラドン濃度 C_w を示す。ただし較正システムの各構成部の体積は大まかにしか計測できなかったため、下限値と上限値を付けてラドン濃度を算出した。

表 5.2 気液平衡から予想されるラドン濃度。ただし各容器の厚みを 2～8 [mm] と仮定した。ラドン水サーバー中の水の体積はほぼ 13L であったため、下限値と上限値は付けないこととした。

	下限値	上限値
バッファタンク容量 [L]	1.8	2.2
ラドンソース容量 [L]	0.07	0.15
ラドン水サーバー中の気体の体積 [L]	2.2	2.5
ラドン水サーバー中の水の体積 [L]	13	
気液平衡から予想されるラドン濃度 [Bq/L]	12.6	14.2

表 5.3 に液体シンチレーション法によるラドン水測定の結果（表 5.1）と合わせて示す。気液平衡の関係から予想されるラドン濃度よりも実際の測定値が下回っている原因として、測定で用いているラドンソースの強度が公称値より低いか、もしくはラドンソースから十分にラドンが拡散されなかった可能性が考えられる。

表 5.3 ラドンソース切り離し時のラドン濃度の比較

	ラドンソース切り離し時のラドン濃度 [Bq/L]
液体シンチレーション測定#1	8.49±0.15
液体シンチレーション測定#2	9.82±1.40
気液平衡から予想されるラドン濃度	12.6 ~ 14.2

5.5 SK インプット水測定

検出器較正をするにあたって、純水由来のバックグラウンドについても調べておく必要がある（検出器自身のバックグラウンドについては付録 B.2 を参照されたい）。本測定ではラドン水との希釈に用いる SK インプット水（スーパー・カミオカンデの純水装置から純水タンクに注入される純水）の ^{214}Po 係数率を較正用ラドン検出器を用いて測定した。本測定におけるラドン検出器内の圧力は 0.015 [MPaG]、インプット水流量は 1.05 [L/min] に設定した。図 5.5 のグラフはインプット水測定における ^{214}Po 計数率の時間推移の様子である。このグラフに直線フィット（図中の青線）をかけることにより、インプット水の ^{214}Po 計数率 R_i は

$$R_i = 5.9 \pm 0.7 \text{ [count/day]} \quad (5.11)$$

という結果を得ることができた。

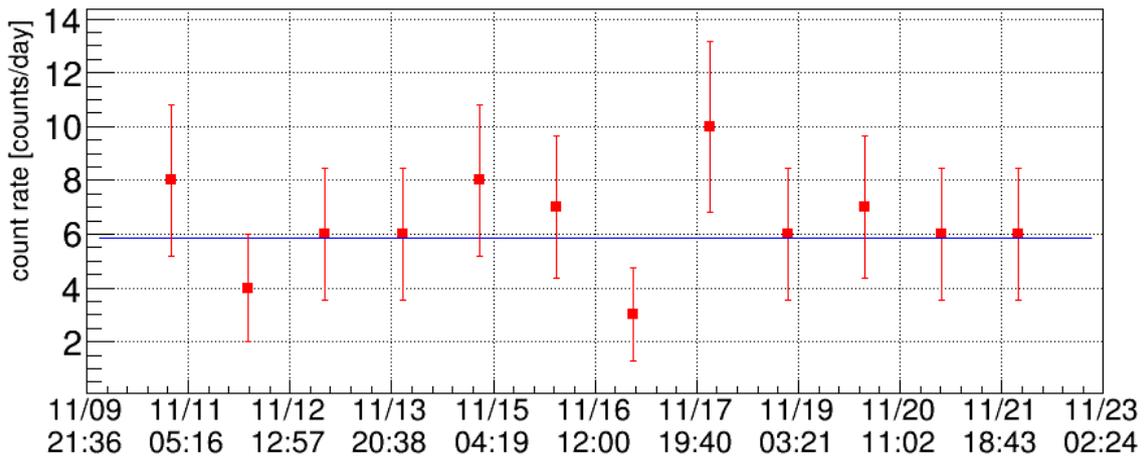


図 5.5 インพุット水の ^{214}Po 計数率の時間推移。測定期間は 2014 年 11 月 1 日から 2014 年 11 月 23 日まで。

5.6 較正実験

較正実験は 2014 年 11 月 23 日から 11 月 28 日まで行い、ラドン水のラドン濃度を変えながら 4 種類のデータを取得した。ここではその結果について述べる。

5.6.1 微小流量ポンプの正味の流量と希釈ラドン水のラドン濃度

今回の実験で生成したラドン水は SK のインพุット水に合流させてラドン検出器に送水している。そのため、我々は希釈されたラドン水のラドン濃度を知っておく必要がある。SK インพุット水にラドン水を合流させるために使用している微小流量ポンプは 0.1 [cc/min] から 2.0 [cc/min] までの流量を設定することが可能であり、本来の用途では一定の流量で送水できる特徴を持つ。

図 5.6 に較正実験期間中のラドン水サーバーの水位の減少度を示す。図中の赤線は微小流量ポンプの設定流量を切り替えた時刻を示し、#0, #1, #2, #3 はそれぞれポンプ設定流量 0.2, 0.6, 0.8, 1.0 [cc/min] の実験期間を表す。図 5.6 から分かるように、今回の較正実験では微小流量ポンプが一定の水量を送水できていなかった。原因としてポンプ内にバブリングによる気泡が混入してしまったことが考えられる。図中のグレーの領域は水位に変化が見られないことからポンプの送水が停止していると考えられるため、この期間のデータは解析において採用しないこととした。

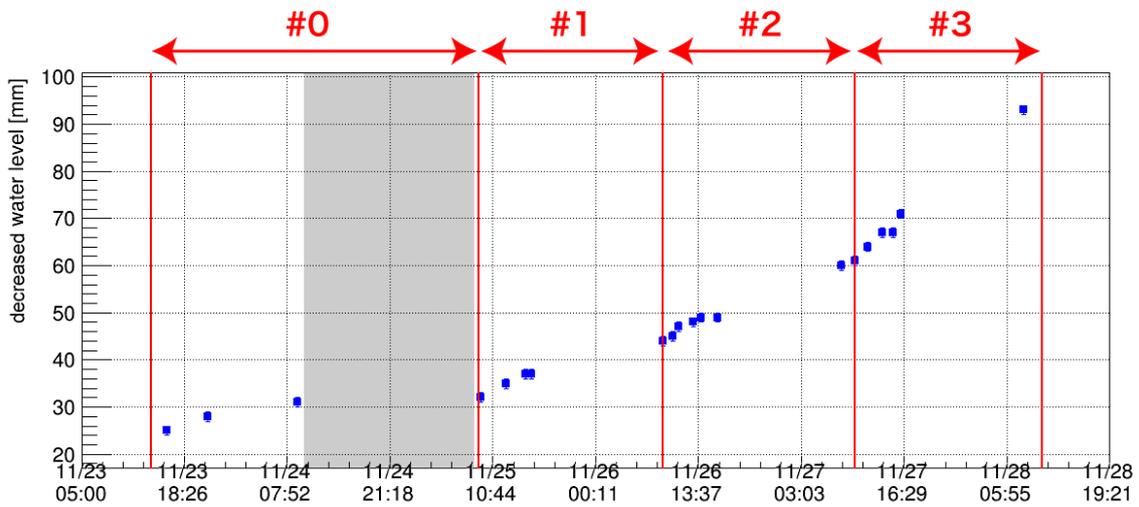


図 5.6 較正実験期間中のラドン水サーバーの水位の減少度

図 5.7 は、各ランにおけるラドン水サーバーの水位から見積もったラドン水の減少量（=実際にイン
 プット水に送水されたラドン水の体積）と時間の関係のグラフである。ここでラドン水サーバーの水位と
 体積の変化量を 28.7 [cc/min] とし、また水位の読み取り誤差を ±1[mm] とした。図 5.6 と図 5.7 から分
 かるように微小流量ポンプは流量が不安定であり、また設定値を正確に実現できていない。そこで、我々
 は図 5.7 から $V = f_{RW}t$ (V は体積、 f_{RW} はラドン水流量、 t は経過時間を示す。) の直線フィットで得
 られた傾き f_{RW} を用いて正味のラドン水流量を見積もることとした。

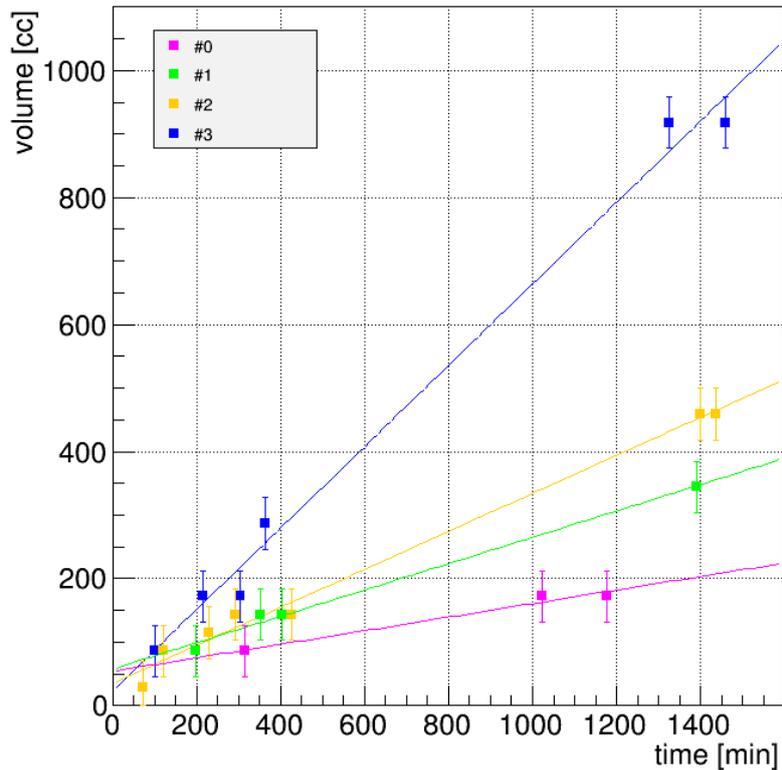


図 5.7 各ランにおける減少したラドン水の体積。図中のピンクの線はラン#0（設定流量 0.2 [cc/min]）、緑の線はラン#1（設定流量 0.6 [cc/min]）、黄色の線はラン#2（設定流量 0.8 [cc/min]）、青の線はラン#3（設定流量 1.0 [cc/min]）を各々示す。

この正味の流量を用いて、希釈されたラドン水のラドン濃度を求める。ラドン水のラドン濃度を C_{RW} 、希釈されたラドン水のラドン濃度を C_d 、希釈度を R_d 、ラドン水流量を f_{RW} 、純水流量を f_{PW} （流量計の読み取り誤差を 0.1 [L/min] とした）とすると、

$$C_{RW} = 0.56 \pm 0.08 \text{ [Bq/L]} \tag{5.12}$$

$$R_d = \frac{f_{RW}}{f_{RW} + f_{PW}} \tag{5.13}$$

$$C_d = C_{RW} R_d \tag{5.14}$$

と表すことができる。ここで式 5.12 は二回目に生成したラドン水の採水時（2014 年 11 月 23 日 16:12）におけるラドン濃度（液体シンチレーション・アナライザで測定）を採用した（表 5.1）。これらの計算結果が表 5.4 である。本研究での測定対象となる mBq/m^3 の濃度領域で較正実験を行うことができた。

表5.4 各ランにおけるラドン水流量と希釈されたラドン濃度。 f_{RW} はラドン水流量、 f_{PW} は純水流量、 R_d は希釈度、 C_d は希釈されたラドン水の採水時点（2014年11月23日16:12）でのラドン濃度を表す。

#	f_{RW} [cc/min]	f_{PW} [L/min]	R_d	C_d [mBq/m ³]
0	0.11±0.06	1.0±0.1	$(1.1 \pm 0.6) \times 10^{-4}$	59.7±36.5
1	0.21±0.04	1.0±0.1	$(2.1 \pm 0.5) \times 10^{-4}$	116.1±31.5
2	0.30±0.03	1.0±0.1	$(3.0 \pm 0.4) \times 10^{-4}$	167.5±33.1
3	0.64±0.03	1.2±0.1	$(5.3 \pm 0.5) \times 10^{-4}$	298.9±51.4

5.6.2 希釈ラドン水の ²¹⁴Po 計数率

次に較正実験期間中の ²¹⁴Po 計数率を図5.8に示す。横軸は時刻、縦軸は ²¹⁴Po 計数率を示す。ここで ²¹⁴Po 計数率は採水時（2014年11月23日16:12）からのラドンの崩壊を補正してある。図5.8から微小流量ポンプの流量の切り替えに応じて ²¹⁴Po 計数率の上昇がみられる一方で、微小流量ポンプで送水が停止していたと思われる期間では計数率の減少がみられる（図中のグレーの期間）。そのためポンプによるラドン水流量の切り替え時点から、²¹⁴Po 計数率が十分に安定したとみられる時間領域を各ランの採用期間とした。

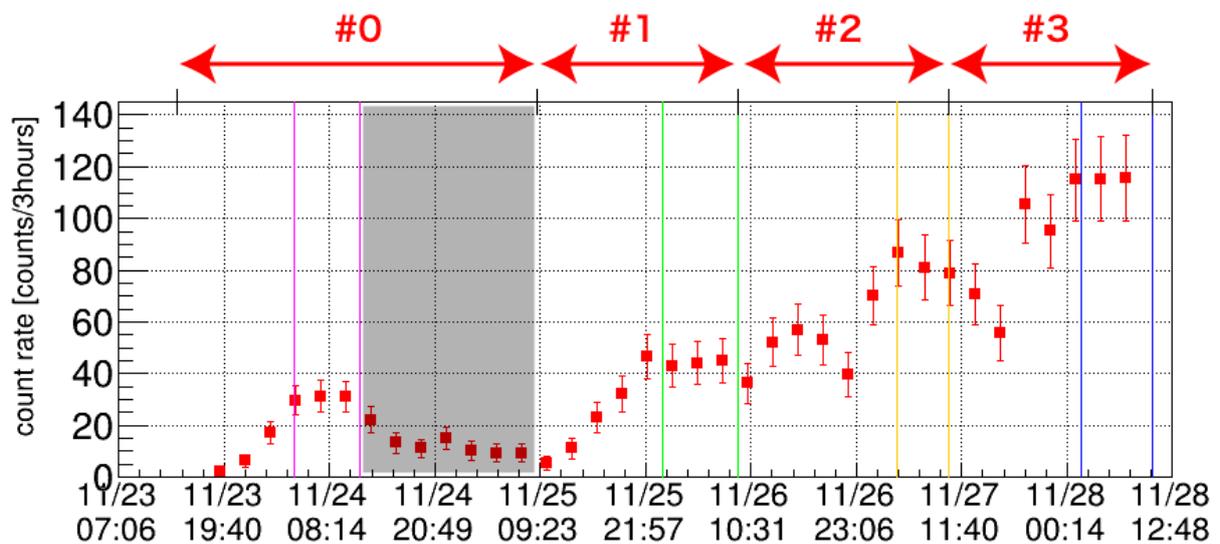


図5.8 ²¹⁴Po 計数率と各ランの採用期間。横軸は時刻、縦軸は ²¹⁴Po 計数率を示す。ここで ²¹⁴Po 計数率は採水時（2014年11月23日16:12）からのラドンの崩壊を補正してある。図中のピンクの線はラン#0、緑の線はラン#1、黄色の線はラン#2、青の線はラン#3におけるデータ採用期間を各々示す。グレーの期間は微小流量ポンプで送水が停止していたと思われる。

次に、希釈ラドン水測定における ²¹⁴Po 計数率の測定結果を表5.5に記す。ここで t_1 、 t_2 は各ランで定常状態になったと考えられる期間（図5.8中のピンク、緑、黄、青の線）であり、液体シンチレーション測定のためにラドン水を採水した時刻 $t = 0$ からの経過時間である。 t_0 は表5.1にある二回目の液体シン

チレーション測定における採水時刻（2014年11月23日16:12）を用いている。²¹⁴Po 計数率は

$$f(t) = R_0 \exp(-\lambda t) \tag{5.15}$$

に従って減少する。ただし式 5.15 の λ はラドンの半減期 3.824 日の崩壊定数を表す。ここで区間 $[t_1, t_2]$ における積分値は

$$y = \int_{t_1}^{t_2} f(t) dt = -\frac{R_0}{\lambda} [\exp(-\lambda t)]_{t_1}^{t_2} \tag{5.16}$$

となる。²¹⁴Po の総カウントを C_T とすると、 y は区間 $[t_1, t_2]$ における ²¹⁴Po の総カウントに他ならないので、

$$y = C_T \tag{5.17}$$

となり、液体シンチレーション測定を行った時点の ²¹⁴Po 計数率 R_0 を計算することができる。ただし統計による誤差を考慮した。

表 5.5 各ランにおける ²¹⁴Po 計数率

#	t1[day]	t2[day]	較正実験での ²¹⁴ Po カウント数	t_0 における ²¹⁴ Po 計数率 R_0 [count/day]
0	0.26	0.59	68	225.1±27.3
1	2.09	2.47	82	330.3±36.5
2	3.26	3.51	80	588.6±65.8
3	4.18	4.53	125	782.4±70.0

5.6.3 純水用ラドン検出器の較正係数の決定

こうして各ランにおける希釈されたラドン水のラドン濃度と ²¹⁴Po 計数率を知ることができた。ここで留意せねばならない点は、ラドン水の ²¹⁴Po 計数率には元々の純水（インプット水）が有するラドンのバックグラウンドが含まれている点である。そこで各ランの ²¹⁴Po 計数率からインプット水の ²¹⁴Po 計数率 R_i （式 5.11）を引いて較正係数を算出した。これらの関係を図 5.9 に示す。また各ランにおける較正係数の結果を表 5.6 を示す。以上の結果から我々は較正係数 $CF[(\text{count/day})/(\text{mBq/m}^3)]$ は式 (5.18) から求めることができるので、図 5.9 のグラフから直線フィットをかけ、その傾きを知ることで我々は CF を知ることができる。

$$CF = \frac{^{214}\text{Po Count Rate} [\text{count/day}]}{\text{Radon Concentration} [\text{mBq/m}^3]} \tag{5.18}$$

こうして我々は

$$CF = 3.0 \pm 0.4 \tag{5.19}$$

という結果を得ることができた。

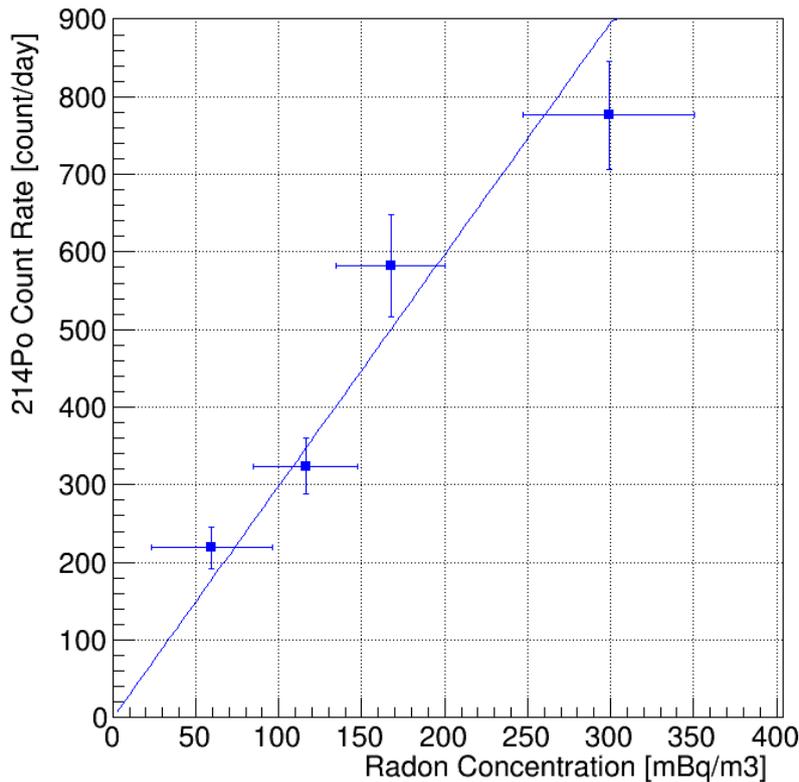


図 5.9 純水中ラドン濃度とインプット水バックグラウンドを考慮した ^{214}Po 計数率 ($R_0 - R_i$) の関係

表 5.6 各ランにおける較正係数。 R_0 はラドン水採水時点における ^{214}Po 計数率、 R_i はインプット水バックグラウンド、CF は較正係数を示す。

#	R_0 [count/day]	$R_0 - R_i$ [count/day]	CF [(count/day)/(mBq/m ³)]
0	225.1±27.3	219.2±27.3	3.7±2.3
1	330.3±36.5	324.4±36.5	2.8±0.8
2	588.6±65.8	582.7±65.8	3.5±0.8
3	782.4±70.0	776.5±70.0	2.6±0.5
各測定における平均			3.0±0.4

5.7 総論：XMASS タンク純水中のラドン・バックグラウンド

これまでの議論により、我々は XMASS タンク内純水中のラドン濃度を知ることができ、そのラドン濃度がシミュレーションによる上限値を超えないかを評価することができる。表 5.7 に XMASS タンク内純水中の ^{214}Po 計数率の測定結果を再掲する。ここで ^{214}Po 計数率から水中ラドン濃度への換算は式 5.19 の結果を用いた。また 4.1 節の議論において、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、XMASS タンク内純水中のラドン濃度は 2500[mBq/m³] 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。XMASS タンク内純水中ラドン濃度の測定開始から現在に至るまで純水のラドン濃度は全て 2500[mBq/m³] 以下であり、暗黒物質の季節変動の事象観測には影響を及ぼさ

ないことが分かった。

表 5.7 各測定期間における ^{214}Po 計数率と較正係数により算出した水中ラドン濃度。ラドン検出器のバックグラウンド・レベルの方が ^{214}Po 計数率が高いため、現状の測定から換算した水中ラドン濃度は上限値と考えられる。

	^{214}Po 計数率 [count/day]	水中ラドン濃度 [mBq/m ³]
測定期間中の最大値	429±21	143.0±20.3
バックグラウンド測定	23±1	——
現状の測定 (2014年11月1日から2015年1月22日現在まで)	5.6±0.3	< 1.9±0.3

第6章

結論

本研究の成果を以下に示す。

改良型ガス用 80L ラドン検出器の各種性能評価

改良型ガス用 80L ラドン検出器の性能評価では PIN フォトダイオード部の電圧を-1.0kV、検出器内を大気圧の Ar で満たした条件で実験を行い、校正係数 $CF = 1.5 \pm 0.2$ [(count/day)/(mBq/m³)] (at 0.002g/m³) を得ることができた。このことにより他の研究を含めて検出器の湿度依存特性を得ることができた。またエタノール清掃と再電解研磨の二種類の方法で、どの程度検出器由来のバックグラウンドを低減できるかを実験によって確かめた。

純水測定用ラドン検出器の開発と XMASS タンク内純水中のラドン濃度測定

70L ラドン検出器と中空糸膜モジュールを組み合わせ、新たな純水測定用ラドン検出器を開発した。このラドン検出器を用いて、XMASS 実験において初めてタンク内純水中のラドン濃度測定を行った。測定期間中の ²¹⁴Po 計数率の最大値は 429 ± 21 [count/day] であった。これに併せて XMASS で使用しているものと同型の純水測定用ラドン検出器を用いて校正実験を行い、校正係数 $CF = 3.0 \pm 0.4$ [(count/day)/(mBq/m³)] を得ることができた。この結果により、期間中のラドン濃度の最大値は 143 ± 20 [mBq/m³] であることが分かり、この値はシミュレーションが要求する水中ラドン濃度の制限 2500 [mBq/m³] を下回ることが分かった。このことにより純水中のラドン濃度が XMASS 検出器の測定に影響を及ぼさないことが保証された。

ラドン水製造装置の開発と測定

純水測定用ラドン検出器の校正実験のために必要となるラドン水の製造装置を開発した。液体シンチレーション法によるラドン濃度測定の結果、本装置で生成されたラドン水の水中ラドン濃度は 8.5 ± 1.4 [Bq/L] であることが分かった。

本研究には課題も残っている。本研究ではラドン水を生成したが、液体シンチレーション法によって測定されたラドン水のラドン濃度は気液平衡の関係から予想されるラドン濃度よりも低い。今後の研究においてこれらの値になぜ相違があるのかを究明する必要がある。またラドン水を希釈するために用いた微小流量ポンプは校正システムのセットアップにおいて設定流量を再現せず、また流量にばらつきがあることが分かった。一定流量で生成したラドン水を送水することができれば希釈ラドン水のラドン濃度をより正確に見積もることができ、より信頼性の高い校正係数を導くことが期待できる。

付録 A

第 3 章 「空气中ラドン濃度の測定」に関する補足

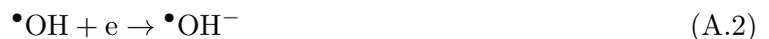
A.1 ラドン娘核種の中性化

陽イオンとなった ^{218}Po イオンは以下に挙げる中性化メカニズムによって中性化することが分かっている [24]。

- 小イオン再結合
- 電子捕捉メカニズム
- 電子伝達メカニズム

ここでは、空气中の水蒸気によって Po の陽イオンが中性化する電子捕捉メカニズムについて詳しく説明する。

■**電子捕捉メカニズム** 電子捕捉メカニズムは NO_2 や H_2O 中で Po の陽イオンが中性化する要因である。空气中の水蒸気は放射性分解によって OH ラジカルとなる (式 A.1)。そしてこの OH ラジカルが電子を捕捉して陰イオンとなる (式 A.2)。この陰イオンによって Po イオンは中性化される (式 A.3)。これが Po の陽イオンを中性化させる仕組みである。



また OH ラジカルの濃度は式 A.5 で表される (ここで Q を水分子の分解定数、 k を再結合定数とする)。定常状態のときは $[\text{H}] \approx [\text{OH}]$ となるため、 OH ラジカルの濃度は式 A.6 で表すことができる。

$$d[\text{OH}]/dt = Q[\text{H}_2\text{O}] - k[\text{H}][\text{OH}] \quad (\text{A.5})$$

$$[\text{OH}] = \sqrt{Q/k[\text{H}_2\text{O}]} \quad (\text{A.6})$$

A.2 露点から容積絶対湿度への換算

ガス用ラドン検出器の湿度依存性とその較正実験では露点 T [°C] (相対湿度が 100% となる気温) を計測しているため、ラドン濃度と空気中の水蒸気量の相関を示すためには露点 T を容積絶対湿度 $a(T)$ [g/m³] に換算する必要がある。温度 T [°C] における飽和水蒸気圧 $e(T)$ [hPa] は Walter J. Saucier による Tetens の式 [31] の簡易式 [32] に従って以下のように表すことができる。

$$e(T) = 6.1078 \times 10^{(7.5T/T+237.3)} \quad (\text{A.7})$$

また気体の体積 V [m³], 気体の物質量 n [mol], 気体定数 $R = 8.31$ [P_a · m³ · mol⁻¹ · K⁻¹] のもとで気体の状態方程式は以下のように表される。

$$(e(T) \times 10^2)V = nR(T + 273.15) \quad (\text{A.8})$$

ここで水の分子量を $M = 18$ [g/mol]、水の質量を m [g] とすると

$$n = \frac{m}{M} \quad (\text{A.9})$$

$$a(T) = \frac{m}{V} \quad (\text{A.10})$$

であるので式 (A.9), 式 (A.10) を式 (A.8) に代入すると、

$$\begin{aligned} a(T) &= \frac{Me(T) \times 10^2}{R(T + 273.15)} \\ &= \frac{18 \times 10^2 \times e(T)}{8.31 \times (T + 273.15)} \\ &= \frac{217 \times e(T)}{e(T) + 273.15} \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

となる。露点と絶対湿度の関係を図 A.1 に示す。

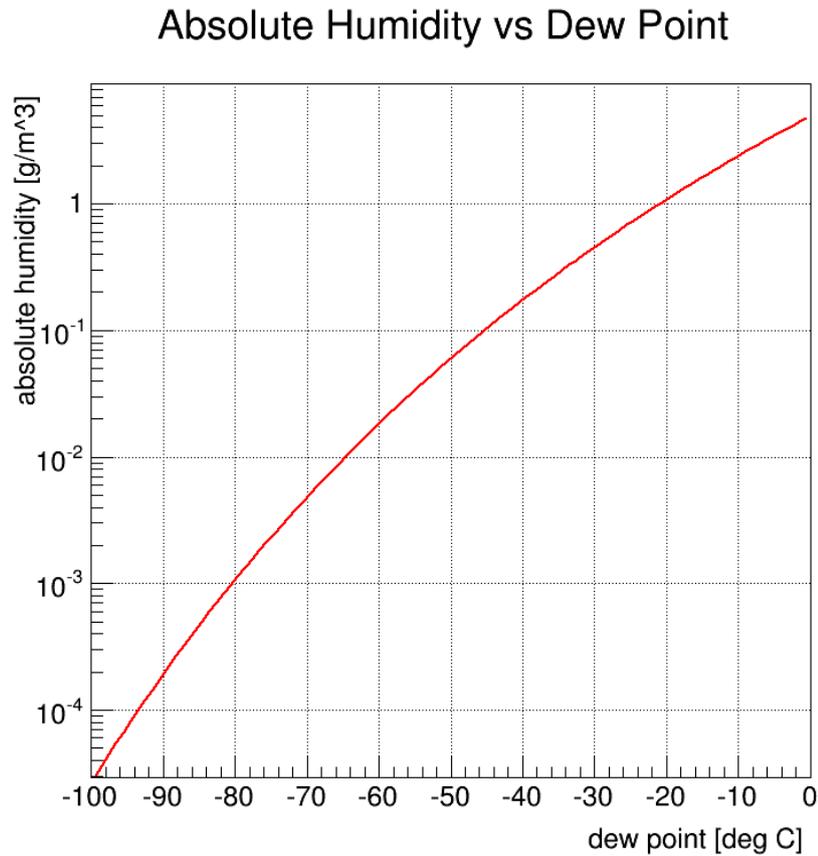


図 A.1 絶対湿度と露点との関係

A.3 ^{218}Po と ^{214}Po の計数率から算出するラドン濃度

Borexino 実験では ^{218}Po と ^{214}Po の両方の計数率からラドン濃度の較正 [33] を行っている。 ^{214}Po の計数率を Z_{214} 、 ^{218}Po の計数率を Z_{218} とすると、その比 R は

$$R = Z_{214}/Z_{218} \quad (\text{A.12})$$

とおける。 ^{218}Po イオンの収集効率が 100% のとき、その娘核種である ^{214}Po の計数率は等しくなるので

$$Z_{214} = Z_{218} \quad (\text{A.13})$$

よって

$$R = 1 \quad (\text{A.14})$$

となる。つまり、収集効率が R で表せることを意味する。 2π -geometry により、 Po が崩壊する方向は上向き 50%、下向き 50% であると考えられるので、

$$\varepsilon_N = 0.5 \quad (\text{A.15})$$

である。ここで、 ^{222}Rn の放射性濃度を A 、検出器内の有効体積を V 、検出器内のアルファ崩壊の検出確率を ε_N 、 ^{218}Po イオンの収集効率が ε_{218} 、 ^{214}Po イオンの収集効率が ε_{214} とすると、 Z_{218} と Z_{214} は以

下のように表すことができる。

$$Z_{218} = \varepsilon_N \varepsilon_{C218} AV \quad (\text{A.16})$$

$$Z_{214} = Z_{218} + \varepsilon_N \varepsilon_{C214} A(1 - \varepsilon_{C218})V \quad (\text{A.17})$$

$$(\text{A.18})$$

これらより R は次のように表すことができる。

$$R = Z_{214}/Z_{218} \quad (\text{A.19})$$

$$= AV \varepsilon_N (\varepsilon_{C218} + \varepsilon_{C214} (1 - \varepsilon_{C218})) / \varepsilon_N \varepsilon_{C218} AV \quad (\text{A.20})$$

ここで、 ^{214}Po の正味の収集効率を ε_{T214} とすると式 A.16, A.17 より、

$$\varepsilon_{T214} = \varepsilon_{C218} + \varepsilon_{C214} (1 - \varepsilon_{C218}) \quad (\text{A.21})$$

$$= a - bR \quad (\text{A.22})$$

のように R の 1 次関数として近似することができる。また式 A.20, A.21 より、

$$\varepsilon_{C218} = a/R - b \quad (\text{A.23})$$

となり、ラドン濃度 A は次のように表すことができる。

$$A = \frac{Z_{218}}{a} \varepsilon_N V \left(\frac{Z_{218}}{Z_{214}} a - b \right) \quad (\text{A.24})$$

このことにより、空気的环境因子を考慮することなく、 ^{218}Po と ^{214}Po の計数率を用いるだけでラドン濃度を算出することができる。

付録 B

第 5 章 「純水中ラドン検出器の較正実験」 に関する補足

B.1 液体シンチレーション測定におけるラドン濃度の算出方法

液体シンチレーション・アナライザーで測定されるのは ^{222}Rn から半減期 22.3 年の ^{210}Pb までの崩壊過程で生じるアルファ線とベータ線の計数率 [count/min] であるため、水中ラドン濃度を知るためにはこの計数率からラドン濃度を計算しなければならない。ここではその算出方法について詳しく説明する。

■**ゼロ点補正** ラドン水をアナライザーで測定したときの代表的なスペクトルを図 B.1 と図 B.2 に示す。

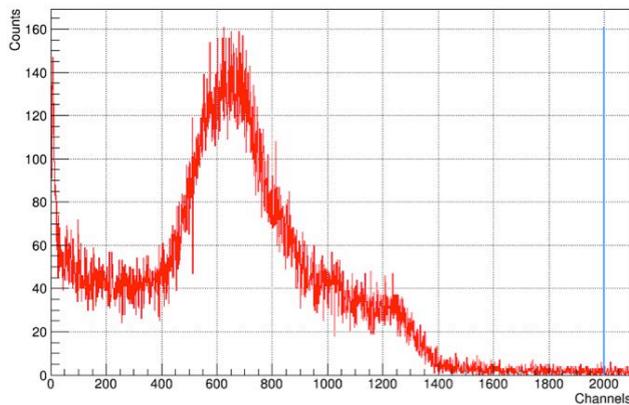


図 B.1 液体シンチレーション測定における代表的なスペクトル (0-2000ch)

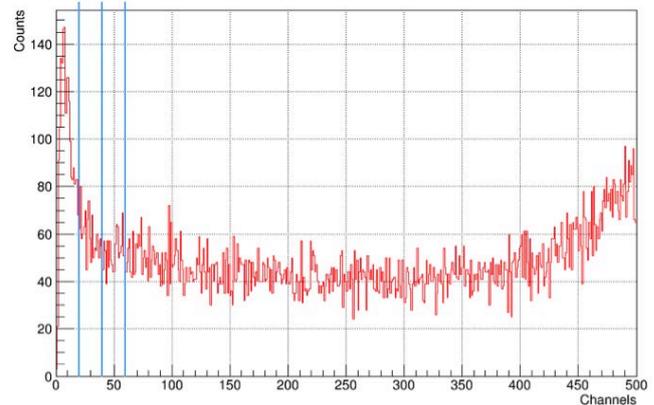


図 B.2 液体シンチレーション測定における代表的なスペクトル (0-500ch)

図 B.2 を見ると、0-20ch の間でノイズが大きくなっていることが分かる。そこで本測定では、20-2000, 40-2000, 60-2000[ch] の異なるエネルギー・ウインドウの計数率 CPM_A , CPM_B , CPM_C [count/min] を測定している。最小二乗法を用いることで、これらから 0-2000ch のゼロ補外計数率 CPM [count/min] を得ることができる。ここでエネルギー・ウインドウの下限値を x [ch]、得られる計数率を y [count/min] とすると、

$$y = ax + b \quad (\text{B.1})$$

と表すことができる。ここで a と b は最小二乗法を用いて次のように表される。

$$a = \frac{n \sum_{k=1}^n x_k y_k - \sum_{k=1}^n x_k \sum_{k=1}^n y_k}{n \sum_{k=1}^n x_k^2 - \left(\sum_{k=1}^n x_k \right)^2} \quad (\text{B.2})$$

$$b = \frac{\sum_{k=1}^n x_k^2 \sum_{k=1}^n y_k - \sum_{k=1}^n x_k y_k \sum_{k=1}^n x_k}{n \sum_{k=1}^n x_k^2 - \left(\sum_{k=1}^n x_k \right)^2} \quad (\text{B.3})$$

ゼロ点補正に使うパラメータは CPM_A , CPM_B , CPM_C の 3 つであるので $n = 3$ である。またそれぞれのエネルギー・ウィンドウの下限値は $x_1 = 20$, $x_2 = 40$, $x_3 = 60$ であるので、これらを式に代入すると

$$b = (4y_1 + y_2 - 2y_3)/3 \quad (\text{B.4})$$

となる。得られる計数率は $y_1 = \text{CPM}_A$, $y_2 = \text{CPM}_B$, $y_3 = \text{CPM}_C$ であるのでエネルギー・ウィンドウ 0-2000ch のゼロ補外計数率 N は

$$N = (4\text{CPM}_A + \text{CPM}_B - 2\text{CPM}_C)/3 \quad (\text{B.5})$$

となる。

■バックグラウンド補正 アナライザーで測定した計数率にはシンチゾル（本測定に用いるトルエン溶媒のシンチレータ）自体に含まれるラドンもカウントされている。そのため測定する試料とは別にシンチゾルのみの測定も行い、正味のゼロ補外計数率 $N_{\text{NET}}[\text{cpm}]$ に補正しなければならない。試料の計数率を N_M 、バックグラウンドの計数率を N_{BG} とすると、

$$N_{\text{NET}} = N_M - N_{\text{BG}} \quad (\text{B.6})$$

と表せる。

■減衰補正 試料をサンプリングしてからアナライザーで測定するまでにラドンは半減期 3.82 日に従って崩壊する。そこでラドン濃度を算出するためにはラドンの崩壊事象も考慮する必要がある。放射性崩壊の方程式は

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{B.7})$$

で表される。ここで λ は崩壊定数であり、 ^{222}Rn の場合、

$$\lambda[1/\text{min}] = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad (\text{B.8})$$

$$= \frac{\ln 2}{3.82 \times 24 \times 60} \quad (\text{B.9})$$

となる。

■**濃度補正** ラドンは水よりもトルエンの方が融解しやすい。ここで正確なラドン濃度を知るためには、水とトルエンの中に含まれるラドンの濃度比、つまり分配係数についても考慮しなければならない。ここでラドンのトルエンに対する分配係数を D_t 、水に対する分配係数を D_w 、分離時の水温を t_w [°C] とおくと、

$$D_t = (18.2 \times \exp(-t_w/46.5)) \quad (\text{B.10})$$

$$D_w = (9.12/(17 + t_w)) \times (273 + t_w) \quad (\text{B.11})$$

と表すことができる。ここで、 V_a を空気層の容量 (ml)、 V_w を試料量 (ml)、 V_t を試料に加えたシンチレータの量 (ml) とおくと、濃度補正係数 E は

$$E = (1/D_t)(V_a/V_w) + (V_t/V_w) + (D_w/D_t) \quad (\text{B.12})$$

と表すことができる。

■**水中ラドン濃度への換算** ラドンは ^{222}Rn から半減期の長い ^{210}Pb (半減期：22.3 年) に改編するまでに計 5 つのアルファ線とベータ線を放出する ($^{222}\text{Rn} \xrightarrow{\alpha} ^{218}\text{Po} \xrightarrow{\alpha} ^{214}\text{Pb} \xrightarrow{\beta} ^{214}\text{Bi} \xrightarrow{\beta} ^{214}\text{Po} \xrightarrow{\alpha} ^{210}\text{Pb}$)。アナライザーで測定される計数率はこれら全てをカウントしている (検出効率は 100% とする) ため、得られる計数率を 1/5 倍にしなければならない。また Bq は 1 秒間あたりの崩壊数であるので

$$1[\text{Bq}] = 1[\text{count/s}] = 1/60[\text{count/min}] \quad (\text{B.13})$$

であり、測定した試料の体積は $20 [\text{mL}] = 20/1000 [\text{L}]$ であるので水中ラドン濃度 $C [\text{Bq/L}]$ は

$$C = \frac{N_{\text{NET}}/5 \times e^{-\lambda t} \times E \times (1/60)}{20/1000} \quad (\text{B.14})$$

で水中ラドン濃度を求めることができる。

B.2 較正実験で用いた純水用ラドン検出器のバックグラウンド測定

較正実験で用いた純水用ラドン検出器のバックグラウンド測定の結果を式 B.15 に示す。図 B.3 はバックグラウンド測定期間中の ^{214}Po 計数率である。

$$R_{\text{BG}} = 2.3 \pm 0.5 [\text{count/day}] \quad (\text{B.15})$$

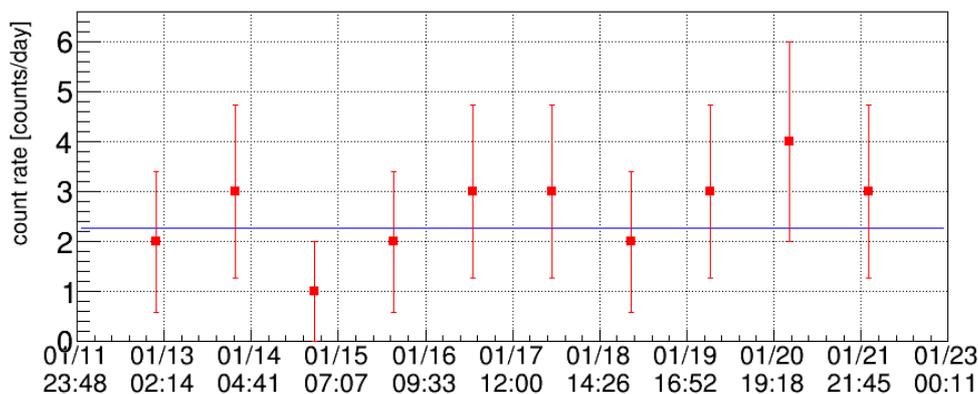


図 B.3 較正実験で使用した純水用ラドン検出器のバックグラウンド測定 (2015 年 1 月 12 日 - 2015 年 1 月 22 日)

B.3 SK リターン水のラドン濃度測定

本研究とは直接関係がないが SK リターン水の測定も行った。SK リターン水とはスーパー・カミオカンデの純水タンクから純水装置に戻ってくるまでの純水のことである。セットアップを図 B.4 に示す。本測定におけるラドン検出器内の圧力は 0.015 [MPaG]、リターン水流量は 1.05 [L/min] に設定した。図 B.5 のグラフはリターン水測定における ^{214}Po 計数率の時間推移の様子である。また式 B.16 にリターン水の ^{214}Po 計数率 R_r を示す。

$$R_r = 25.4 \pm 1.8 \text{ [count/day]} \quad (\text{B.16})$$

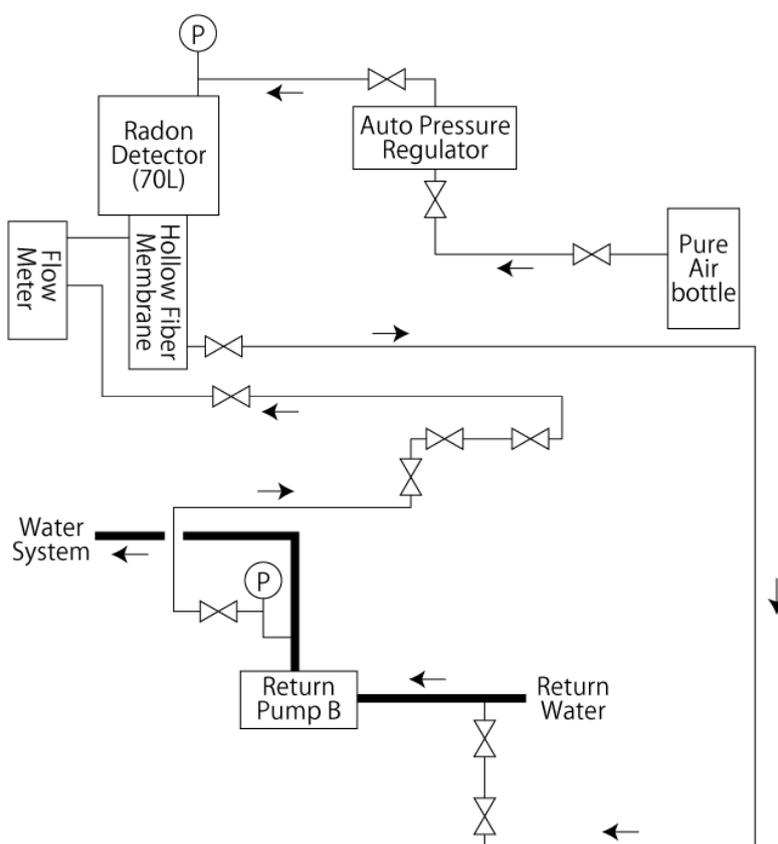


図 B.4 リターン水測定時のセットアップ図。太線がスーパー・カミオカンデ実験で使用されている純水系であり、そこからリターン水を採水して較正用ラドン検出器に送水している。

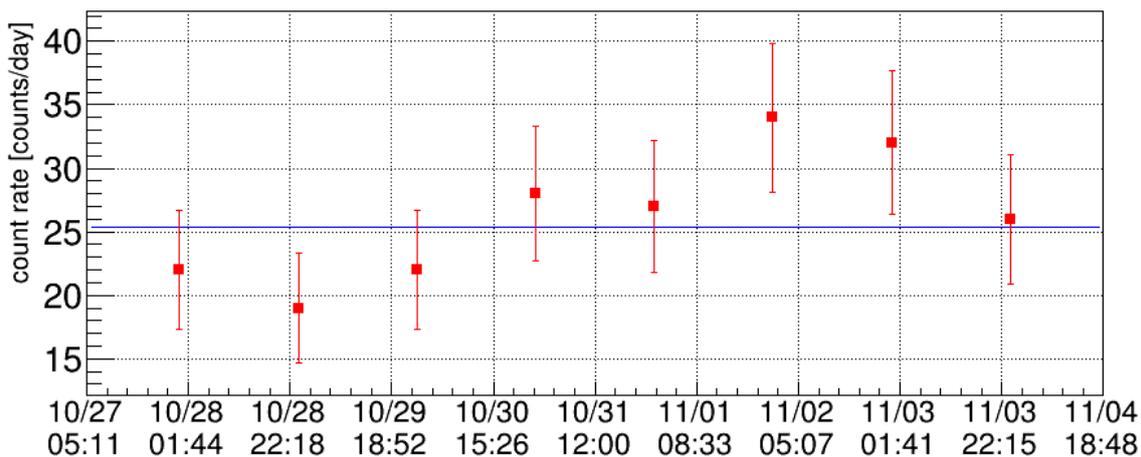


図 B.5 リターン水の ²¹⁴Po 計数率 (2014 年 10 月 27 日から 2014 年 11 月 5 日まで)

検出器バックグラウンドを考慮した SK リターン水と SK インพุット水の ²¹⁴Po 計数率と水中ラドン濃度

SK インพุット水／リターン水測定で得られた ²¹⁴Po 計数率 R はバックグラウンド由来の ²¹⁴Po 計数率 $R_{BG} = 2.3 \pm 0.5$ [count/day] (式 B.15) を含んでいる。そのため ²¹⁴Po 計数率を正しく評価するためには、式 B.17 のようにバックグラウンド R_{BG} を差し引いた正味の ²¹⁴Po 計数率 R' を知る必要がある。その計算結果を表 B.2 に示す。ここでラドン濃度の換算には R' と較正実験で得られた較正係数 $CF = 3.0 \pm 0.4$ [(count/day)/(mBq/m³)] (式 5.19) を用いた (ただしこの場合、全て水中ラドンからの寄与と仮定したことになる)。

$$R' = R - R_{BG} \tag{B.17}$$

表 B.1 インพุット水とリターン水の正味の ²¹⁴Po 計数率と水中ラドン濃度。 R は SK インพุット水／リターン水測定で得られた ²¹⁴Po 計数率、 R' は正味の ²¹⁴Po 計数率を示す。ラドン濃度の換算には R' と較正実験で得られた較正係数 $CF = 3.0 \pm 0.4$ [(count/day)/(mBq/m³)] を用いた。

試料	R [count/day]	$R' (= R - R_{BG})$ [count/day]	水中ラドン濃度 [mBq/m ³]
インพุット水	5.9 ± 0.7	3.6 ± 0.9	1.2 ± 0.3
リターン水	25.4 ± 1.8	23.1 ± 1.9	7.7 ± 1.2

B.4 インพุット水／リターン水測定における純空気の溶解度

リターン水／インพุット水の両測定において純空気の供給を止めて水だけを循環させたまま測定を行い、どれだけ純空気が水に溶け込むかを確認した。気体の状態方程式

$$PV = nRT \tag{B.18}$$

において n は気体の物質質量 [mol] であり、ガスの量を表す指標となる。ここで時刻 $t = 0$ における検出器内の圧力を P_0 、時刻 $t = t_1$ のときの圧力を P_1 、検出器の体積 $V_d (= 70[L])$ 、中空糸膜があるアクリル筒の

体積 $V_h (= 15[\text{L}])$ とすると、大気圧換算 ($P_A = 0.1[\text{MPaG}]$) での溶け込んだ体積 V_x とすると、

$$V = Vd + Vh \quad (\text{B.19})$$

$$n0 = n1 + n2 \quad (\text{B.20})$$

$$\rightarrow P_0V = P_1V + P_A V_x \quad (\text{B.21})$$

$$\rightarrow V_x = \frac{(P_0 - P_1)V}{P_A} \quad (\text{B.22})$$

となり、検出器内の圧力から純水に溶け込んだ気体の体積を計算することができる。表 B.2 に両測定における大気圧換算での溶け込んだ純空気の減少率を示す。

表 B.2 大気圧換算での溶け込んだ純空気の減少率

試料	時間 t_1 [min]	溶け込んだ体積 V_x [L]	大気圧換算での溶け込んだ純空気の減少率 [cc/min]
インプット水	125	5.1	41
リターン水	40	0.85	20

参考文献

- [1] Zwicky, F. (1933), "Die Rotverschiebung von extragalaktischen Nebeln", *Helvetica Physica Acta* 6
DOI:10.5169/seals-110267
- [2] Rubin, Vera C., Ford, W. Kent, Jr. (1970), "Rotation of the Andromeda Nebula from a Spectroscopic Survey of Emission Regions", *Astrophys J* 159, 379
DOI:10.1086/150317
- [3] K. G. Begeman, A. H. Broeils and R. H. Sanders (1991), "Extended rotation curves of spiral galaxies: dark haloes and modified dynamics", *Mon. Not. R. astr. Soc.* 249, 523-537
DOI:10.1093/mnras/249.3.523
- [4] Smoot, G. F. et al. (1992), "Structure in the COBE differential microwave radiometer first-year maps", *Astrophys J*, Part 2 - Letters (ISSN 0004-637X), vol. 396, no. 1, Sept. 1, p. L1-L5.
DOI:10.1086/186504
- [5] C. L. Bennett et al. (2003), "First Year Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP) Observations: Foreground Emission", *Astrophys.J.Suppl.*148:97
DOI:10.1086/377252
- [6] Planck Collaboration, "Planck 2013 results. XVI. Cosmological parameters", *A&A Volume* 571, November 2014, DOI:10.1051/0004-6361/201321591
- [7] "Cosmic microwave background seen by Planck.",
<http://www.cosmos.esa.int/web/planck/picture-gallery>
- [8] Fukuda, Y. et al., "Evidence for Oscillation of Atmospheric Neutrinos", *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998) 1562-1567.
DOI:10.1103/PhysRevLett.81.1562
- [9] Abe, K. et al. (XMASS Collaboration), "Light WIMP search in XMASS", *Phys. Lett. B* 719 (2013), pp.78-82.
DOI:10.1016/j.physletb.2013.01.001
- [10] E. Aprile et al. (XENON100 Collaboration), "The XENON100 Dark Matter Experiment", *Astroparticle Physics*, Volume 35, Issue 9, April 2012, Pages 573-590
DOI:10.1016/j.astropartphys.2012.01.003
- [11] Agnese, R. et al. (CDMS Collaboration), "Silicon Detector Dark Matter Results from the Final Exposure of CDMS II", arXiv:1304.4279 [hep-ex] (2013).
- [12] Bernabei, R. et al. (DAMA Collaboration, LIBRA Collaboration), "Final model independent result of DAMA/LIBRA-phase1", *Eur. Phys. J. C* 73 (2013) 2648.

- DOI:10.1140/epjc/s10052-013-2648-7
- [13] XMASS ウェブサイト
<http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/xmass/gallery/index.html>
- [14] K. Abe et al. , "XMASS detector", Nucl Instrum Methods Phys Res A Volume 716, 11 July 2013, Pages 78-85
DOI:10.1016/j.nima.2013.03.059
- [15] M G Boulay et al. (Deap Collaboration), "DEAP-3600 Dark Matter Search at SNOLAB" 2012 J. Phys.: Conf. Ser. 375 012027
DOI:10.1088/1742-6596/375/1/012027
- [16] Laura Baudis, "WIMP dark matter direct-detection searches in noble gases" Physics of the Dark Universe, Volume 4, September 2014, Pages 50-59
DOI:10.1016/j.dark.2014.07.001
- [17] Firestone, R. B. et al., Table of Isotopes, 8th edition.(1996).
- [18] Abe, K. et al. (XMASS Collaboration), Atropart. Phys. 31 (2009) pp.290-296.
[href http://dx.doi.org/10.1016/j.astropartphys.2009.02.006](http://dx.doi.org/10.1016/j.astropartphys.2009.02.006) DOI:10.1016/j.astropartphys.2009.02.006
- [19] The Super-Kamiokande Collaboration, "Measurement of radon concentrations at Super-Kamiokande" Phys. Lett. 452(1999) 418-422
DOI:10.1016/S0370-2693(99)00311-1
- [20] 公益社団法人 日本アイソトープ協会, "アイソトープ手帳 11 版", Jun. 2012.
- [21] Y. Takeuchi, K. Okumura, T. Kajita, S. Tasaka, H. Hori, M. Nemoto, H. Okazawa, "Development of high sensitivity radon detectors", Nucl Instrum Methods Phys Res A, Volume 421, Issues 1-2, 21 January 1999, Pages 334-341
DOI:10.1016/S0168-9002(98)01204-2
- [22] 浜松フォトニクス, "Si フォトダイオード"
https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/ssd/02_handbook.pdf
- [23] 根本真知子, 田阪茂樹, 堀秀充, 奥村公宏, 梶田隆章, 竹内康雄 "静電捕集型超高感度空气中ラドン検出器の開発",
RADIOISOTOPES, 46, 710-719 1997.
- [24] Kai Dee. Chu , Philip K. Hopke, "Neutralization kinetics for polonium-218", Environ. Sci. Technol., 1988, 22 (6), pp 711-717
DOI:10.1021/es00171a016
- [25] Keishi Hosokawa, "Development of a high sensitivity radon detector for purified gases" CYGNUS2013@Toyama 10th, Jun. 2013
- [26] 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", Prog. Theor. Exp. Phys., DOI:10.1093/ptep/ptv018
- [27] J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, "Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV for Elements $Z = 1$ to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest", Radiation and Biomolecular Physics Division, PML, NIST, <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ComTab/water.html>
- [28] C Mitsuda, T Kajita, K Miyano, S Moriyama, M Nakahata, Y Takeuchi, S Tasaka, "Devel-

- opment of super-high sensitivity radon detector for the Super-Kamiokande detector”, Nucl Instrum Methods Phys Res A Volume 497, Issues 2-3, 1 February 2003, Pages 414-428
DOI:10.1016/S0168-9002(02)01923-X
- [29] ”DIC の中空糸膜”, DIC 株式会社ウェブサイト
http://www.dic-global.com/jp/ja/products/membrane/hollow_fiber.html
- [30] H.L. Clever, Solubility Data Series, Vol.2, Krypton, Xenon and Radon (1979)
- [31] Tetens, O. ”Uber einige meteorologische begriffe”, Z. Geophys. 6, 297-309, 1930
- [32] Walter J. Saucier, 1883. ”Principles of Meteorological Analysis” , page9
- [33] J. Kiko, ”Detector for ^{222}Rn measurements in air at the $1\text{mBq}/\text{m}^3$ level”, Jul. 2000.
DOI:10.1016/S0168-9002(00)01082-2
- [34] 環境省, ”鉱泉分析法指針 (平成 26 年改訂) ”,
http://www.env.go.jp/nature/onsen/docs/shishin_bunseki.pdf

謝辞

本研究を進めていく中で多くの方々にご指導を頂きました。皆様には大変感謝しております。特に本研究の指導教官である竹内康雄先生には感謝の言葉が尽きません。浅学な自分に対してとても親切にご指導して頂きました。また竹内先生には私生活面においても親身になって自身の悩みを聞いて下さり、大変お世話になりました。研究面と私生活面の両面でご心配やご迷惑をお掛けすることが多々ありましたが、どんな時でも常に支えて下さったお心遣いに心から感謝申し上げます。またプログラミングの知識が今まで皆無であった自身が今では様々な言語を使いこなせるまでになったのは藏重久弥先生のおかげです。ご指導の程、どうもありがとうございます。身内賢太郎先生には4年生の卒業研究において多くのご指導を頂きました。事情によって休学した時、とても親身に相談に乗って下さった優しさには大変感謝しております。鈴木州先生には本研究の実験をサポートして頂きました。それから原俊雄先生、越智敦彦先生、山崎祐司先生にはコロキウム等でご指導頂きました。神戸大学粒子物理学研究室の先生方はとても個性的で、その愛くるしいキャラクターが私はとても好きでした。粒子物理学研究室を選んで本当に良かったと思います。皆様、本当にありがとうございました。

また XMASS 実験のコラボレータの皆様にも大変お世話になりました。鈴木洋一郎先生、それから森山茂栄先生はミーティングにおいて自身の研究の問題点を的確に指摘して下さったり、また貴重なアドバイスを頂きました。XMASS での自身の研究でを最も熱心にご指導して頂いたのは小林兼好先生です。失礼ながら第一印象は強面で近寄り難い人ではないかと思っておりましたが、研究を進めていくうちに先生の気さくなお人柄や優しさに触れることができました。本当にありがとうございました。また山下雅樹先生、竹田敦先生にはシミュレーション解析に関して、それから田阪茂樹先生、関谷洋之先生、中野佑樹さんにはラドンに関する多くのご指導を頂きました。その他のコラボレータの皆様にも数多くのご指導を頂きました。皆様の優しさに支えられながら研究を進めることができましたことを心から感謝しております。

それから先輩である細川佳志さん、村田亜紀さん。研究の相談に乗って下さり、どうもありがとうございました。お二人には神戸だけでなく神岡の生活においても大変お世話になりました。岡直哉くん、小林雅俊くん。自分の研究で忙しいにも関わらず、とても親切に研究の相談に乗ってくれてありがとう。それから、仲良くしてくれて本当にありがとう。陳叶くん、あなたに教えた「なんでやねん」。研究室に来た時よりも日本語は遙かに上手になっているように思います。日本での生活は苦勞も多いと思いますが、応援しています。いつも優しく接してくれてありがとう。これからずっと「朋友」でいましょう。山口祐史郎くん。あなたとは不思議と先輩・後輩という立場を感じません。研究室では隣の席で私があなたにべちゃくちゃ喋りかけるせいで研究に集中できなかつたと思いますが、許してください。藤田黎くん。研究室では後輩であるにも関わらず、藤田くんには何度も相談に乗ってもらいました。どうもありがとう。ツッコミの引き出しが多いあなたを陰ながら尊敬しています。竹本強志くん、長谷川誠さん、矢ヶ部遼太くん、山根史弥くん、橋本隆くん、山内悟くん。みんなの個性的な性格のおかげで研究室がさらに明るく

なったように思います。みんなは私達のバルックです。鈴木淳くん。あなたとは高校生の時から大学院までずっと一緒でした。青春をありがとう。稲丸由夫輝くん。大学に入った時からずっと仲良く接してくれてありがとう。あなたは僕にとって大学時代における一番の親友です。来見田吏恵さん。大学では同期として、それから今後は同じ会社の先輩として今後もよろしくお願いします。

こうして振り返ると本当に多くの方々に自身の研究生活を支えられていたことを改めて感じます。皆様、本当にありがとうございました。最後に、自身の進路を応援してくれた父親、それから父親が亡くなって経済的に苦しくなったにも関わらず学生を続けさせてくれた母親に感謝します。

平成 27 年 2 月 大西洋輔