スーパーカミオカンデにおける ラドン濃度測定技術の開発

2015年8月24日(月) KEK 測定器開発室セミナー



内容

- ・自己紹介
- ・SKにおけるラドン濃度測定
 - SKにおける太陽ニュートリノ観測とバックグラウンド - これまでの研究と問題点
- ・高感度ラドン検出器の開発
 - ラドン検出器の特徴(構造や検出手法など)
 - 検出器のキャリブレーション
- ・高感度ラドン検出器の応用
 - 空気層のラドン濃度モニタリングシステムの開発
 - 純水中のラドン濃度測定技術の開発
- ・今後の展望
- ・まとめ

自己紹介

- ・中野 佑樹(Nakano Yuuki)
- ・東京都出身 1988年(昭和63年)生まれ
- ・埼玉大学(4年時の指導教官 佐藤丈先生)
- ・東大大学院(指導教官 中畑雅行先生)
 - 修士時代
 - ・ラドン検出器の開発
 - ・超新星爆発由来のニュートリノ探索
 - 博士時代
 - ・ラドン関係を継続
 - ・太陽ニュートリノに関する研究
 - ・SNO Labに留学(DEAP実験)

SK太陽ニュートリノ観測の現状

最近の成果

Condition

(Color)

Solar + KamLAND

(Blue)

Path day/Night (Pink)

Day Night-1

Flux[×10⁶/cm²/sec

>

B Solar

2.55

2.5

2.45

2.4

2.35

2.3

2.25

ALL

SK I-IVの約4500日のデータ (1)Energy Spectrumの精密測定 (2)太陽ニュートリノFluxの昼夜変動 (3)ニュートリノと太陽活動の相関がない



p.4



v Enerav in MeV

Compare with other experiments results

⁸B Elastic Scattering Data



р.6

RnによるBG eventを減らす努力

p.7

検出器の底部、及び壁側では明らかにBG eventが多い。 →底部は水循環による対流、壁側はPMTやFRPによるRnのemanation。

SK-IVでは「キレイな領域(Tight Fiducial Volume)」を選んで解析に使用。 →さらなるBGの低減により、Tight FVを拡大して、イベント数を稼ぎたい。



バックグラウンドの低減の歴史

◆SKでの太陽v観測 電子との弾性散乱

 $v_x + e^- \rightarrow v_x + e^-$

太陽方向にピーク それ以外の方向 →バックグラウンド

Rnの娘核種²¹⁴Biのβ崩壊 (Q = 3.27 MeV)





解析閾値周辺



◆Rn injection によるラドン濃度の推定

Rnを溶かした水を作り、SKに流す。 ラドン濃度とイベント数の超過分を比較した。

Y.Takeuchi et al., PRL B452(1999) 418-422

p.10

場所[m]	ラドン濃度[mBq/m³]
0.0 < z < +10.0	< 1.4 (1σ)
z < - 6.0	3.0
z < - 11.0	5.0



Fig. 1. A schematic view of the super-high sensitivity full radon detector for water.

water outlet



40.8 cm

高感度ラドン検出器

-ラドン娘核種²¹⁸Poの90%が正に帯電 ²²²Rn→²¹⁸Po⁺→²¹⁴Pb⁺→²¹⁴Bi⁺→²¹⁴Po⁺

-検出器上部にPIN photo diode(PD) PDのp層に -2.0 kVを印加 →帯電した娘核種をPDに捕集。

-²¹⁴Po崩壊時に放出される α線(7.69MeV)をPDで検出し、数える。

◆較正係数

²¹⁴Poのα線の検出数とラドン濃度を関係づける因子、として定義 較正係数*CF*[CPD/(mBq/m³)] = 1日当たりの²¹⁴Poのα線の検出数[CPD] ラドン濃度[mBq/m³] →この検出器ではsub mBq/m³のオーダーまで測定できる。

PDと電圧分割回路/プリアンプモジュール

PIN Photo Diode(PD)

浜松製:S 3204-09 受光面:18 mm ×18 mm バイアス電圧:100 Vまで

HVを2つに分割 (1)PD用の逆バイアス電圧 (2)ラドン検出器用の高電圧

Y.Takeuchi et al. NIM A 497 (2003) 414-428

検出器のキャリブレーション

キャリブレーション

- 電圧依存性
 - 印加電圧を上げると、収集効率が増加→回路の関係で-2.0 kV
- 絶対湿度依存性
 - ラドン検出器内部の水分が増えると、収集効率が減少

スペクトルとバックグラウンド

- ・ 典型的なスペクトル
 - ²¹⁴Poと²¹⁸Poのエネルギー領域にピークが見える。
 - ²¹⁸Poの近くに²¹⁶Poがいるので、他とかぶらない²¹⁴Poを使う。
- ・ バックグラウンド
 - 156日間、ラドン検出器を封じ切って測定した。
 - 0.74±0.07 count/day \rightarrow 0.34±0.05 mBq/m³

他のガスへの応用 HV & Humidity dependence

- ✓ With higher voltage supplied, higher CF is obtained.
- ✓ Could not supply higher voltage than -2.0kV, because of sparks.
- ✓ ~70% Po⁺ ion is collected in low humidity.
 - Half of α-ray emitted from Po⁺ at diode surface is directed to diode.
 - Signal region covers 90% of ²¹⁴Po signal.

ref: K.Hosokawa et. al., PTEP 2015 033H01

空気層のラドン濃度測定

Water temperature[Celsius]

空気層のラドン濃度測定

◆空気層のラドン濃度測定

-SK検出器は水面と検出器の蓋の間に60cmの空気層がある。 -空気層にはラドンを極力除去した空気を入れている(外圧に比べて+0.3kPa)。

(1)SK検出器に送り込む直前の空気(Input air) (2)空気層から出てくる空気(Output air)

空気層のラドン濃度測定結果

・ 2012年12月1日から2014年4月9日

- 最初の90日
- 後半の131日
- ・ SKに供給している空気
 - 冷却活性炭トラップに通すことでRnを吸着
 - 2013年3月に-40℃から-60℃に改良
 - 供給する空気中のラドン濃度が減少
 - 空気層中のラドン濃度は変化せず

	改良前 [mBq/m ³]	改良後 [mBq/m ³]
Output air	28.9±3.2	28.8±3.2
Input air	3.5±0.4	0.07±0.06

ここまでのまとめ

- ・SKでの太陽ニュートリノ観測
 - ²¹⁴Biが主要なBG、減らしたい。
- ・ラドン検出器開発
 - 新しく高感度なラドン検出器を開発、性能評価。
 - ・較正係数の電圧依存性、絶対湿度依存性
 - ・検出器のバックグラウンド
- ・空気層の測定
 - SKに供給している空気中のラドン濃度のモニタリング
 - Input : $3.5 \pm 0.4 \rightarrow 0.07 \pm 0.06 \text{ mBq/m}^3$
 - Output : $28.9 \pm 3.2 \rightarrow 28.8 \pm 3.2 \text{ mBq/m}^3$

純水中のラドン濃度測定

新しい測定手法

純水から空気へ

純水中のラドン濃度を液体の状態で測定できない。 従来通り、純水からラドンを脱気することにした。 新しい気液混合器(ミキサー)の開発を行った。

◆活性炭による濃縮

SKの純水中のラドン濃度は非常に低濃度 →濃縮する必要がある。 →濃縮後にラドンを回収する必要もある。

活性炭は -60℃以下で約99%の ラドンを吸着できる

+120℃以上で約99%の ラドンを脱離できる。 ^{M.Shimo et al.,}

Journal of the Atomic Energy Society of Japan. Vol 25 (1983) 562-570

カルゴンカーボンジャパン ダイソーブG4-8

ラドン脱気ミキサー

▶ミキサーの構造

(1)上部にサンプルした水の吸水口 (2)下部に脱気後の水の排水口と水タンク (3)混合に使用する純空気の入り口 (4) 脱気後の混合空気の排出口 (5)配管の内部に4枚の羽(ここで脱気)

♦ミキサーの機能

上部から純水を自由落下 羽と衝突させて、純水からラドンを脱気 下部から上昇する空気にラドンを移す

混合空気のラドン濃度を測定することで、 純水のラドン濃度を求めることができる

新しいミキサーの開発

◆改良点

(1)ミキサーの内部を電解研磨
(2)EDPMガスケット→ ICF 無酸素銅ガスケット
(3)直径を拡大20A→40A (流量2L/min→4L/min)
(4)ミキサーを長くした

(5)ミキサーの内部の羽を増やした(4羽×12段)

岐阜大キャリブレーション用 (電解研磨していない)

#800の粗さで 電解研磨

表面粗度 0.1μm以下

実際のセットアップ

- ・ 液体シンチレーターでの測定
 - 岐阜大学の柳戸施設を利用
 - 岐阜大学教育学部の協力の下、ミキサーのキャリブレーション実験を行った。

新しいミキサーのラドンの脱気効率

実験結果

脱気効率を求める実験を5回行った。 (空気の流量、水の流量はそれぞれ、2L/minと4L/minに固定)

ラドン濃度測定(脱離過程)

ラドン検出器によるラドン濃度測定

◆ラドン濃度測定の手法

◎ラドン検出器を封じ切り、 ラドンの崩壊をみる(20日以上)。

©χ²-fitを用いることで、 ラドン濃度測定データから ラドンの崩壊曲線を求める。

 $C(t) = C(0)e^{-(\ln 2.0/3.82)t} + C_{\rm BG}$

◎活性炭から脱離した後の空気の ラドン濃度を求めることができる。

◎サンプルした純水の量、 混合に使用した純空気の量、 ミキサーの混合効率から 純水のラドン濃度が算出できる。

膜脱気装置の問題

- ・ 膜脱気装置は純水中から、
 約86%程度のラドンを取り除く
 - 1 moduleでは確認済み
 - しかし、システム全体では未確認
- ・ 膜脱気装置に使用されている EPDMガスケット由来のラドンが 純水に溶けているのでは?
 - 膜脱気システムだけで約120枚使用
 - 接続場所でのリーク??
- ・ 実際に調査(空気への放出)
 - 1.82 ± 0.03 mBq/枚
 - ラドンを放出していることを確認。

膜脱気装置をバイパスすると、純水中のラドン濃度が低下した。 膜脱気装置にラドンの由来がある。

候補 (1)疑っていたEPDMガスケット (2)配管周りのリーク

送水起源のラドン

送水のラドン濃度が高いので、内水槽の底部z<-15 mのイベント数を見てみた。 「送水の排出口」にlow energy eventが多い。

底部のイベントレイトの変化

2014年5月22日に 膜脱気装置をバイパス (現在も継続中)

その後、 底部のイベントレイトが 減少し、現在安定。

膜脱気装置由来の ラドンが純水に 溶け込んでいる。

純水中のラドン濃度の時期変動と安定性

◆タンク内部の純水の測定結果

測定手法を確立したので、1年かけて継続的に純水中のラドン濃度を測定した。 膜脱気装置をバイパスした前後で、明らかにラドン濃度の変化が見える。 純水循環システムによってラドン濃度は安定している。

中心部分は0.1 mBq/m³のオーダー。 純水中のラドン濃度を0.1 mBq/m³のレベルで測定できる手法を初めて確立した。

測定結果の比較

タンク内部のラドンソースがある。 純水中のラドンは底部から上部へ移動する間に崩壊している。 イベントレイトの高い領域にラドンが多くある。

測定できないタンク底部のラドン濃度

◆ラドン濃度の見積もり

サンプリング用のチューブが届かないので、外水槽の底部は見積もりのみ可能。 返水は以下の純水を混ぜたもの。

 $C_{\text{Return}}F_{\text{Return}} = C_{\text{Supply}}F_{\text{Supply}} + C_{\text{OD,Barrel}}F_{\text{OD,Barrel}} + C_{\text{Center}}F_{\text{Center}} + C_{\text{OD,Bottom}}F_{\text{OD,Bottom}}$

場所	循環の流量[ton/h]	ラドン濃度[mBq/m³]			
水面	12	2.46 ± 0.54			12t/h
外水槽 側面 (水面から4 m)	18	3.56 ± 0.64	٦ſ		
中心	18	0.35 ± 0.06		' 36t/n	
外水槽 底部	12	??	ard t	† 60t	/h † †
返水	60	8.90 ± 1.49	Ψ		
		pre			12t/h

最終的に見積もられた外水槽 底部のラドン濃度は、 36.22±6.18 mBq/m³になった。 やはり、タンク内部にラドンのソースがあることは明らか。 SKで最もラドン濃度が濃いと予想される領域でも、数十mBq/m³程度。

07/02

2014

2/31

2013

04/01

2014

10/01

2014

12/31

2014

04/02

2015

07/02

2015

測定システムの妥当性を評価(次ページ)。

p.40

今後の研究(私の次の世代?)

◆位置依存性

今回の測定は、タンク内部から純水をサンプリングする場所を固定した。

- ・ 数 m間隔でz方向に変えていく測定
- x-y平面でサンプリングする場所を変えていく測定

◆ラドンをどう減らしていくか

メインのラドンソースはSKの構造体起源(主にPMT)。 しかし、タンク内部の構造体由来のラドンは取り除くのが難しい。

送水起源のラドンを減らすとタンク内部のラドンを減らすことは確認済み。 →膜脱気装置の復活で約1mBq/m³のレベルから、0.1mBq/m³以下を目指す。

◆太陽ニュートリノのバックグラウンドイベント

検出器の純水のラドン濃度はわかった。 太陽ニュートリノ解析にどれくらい寄与があるのか。 ラドンのバックグラウンドがメインだと想定しているが、 他のバックグラウンド源の存在が明らかになるかもしれない。

まとめ

- ・純水中のラドン濃度を0.1 mBq/m³のレベル で測定できる技術を確立した。
- ・タンク内部のラドン濃度を知ることができた。
 - 送水 1.84 ± 0.31 mBq/m³
 - 中心 0.35 ± 0.06 mBq/m³
- ・ラドン源がタンク内部にあることを示した。
- 今後、純水中のラドン濃度を低減する手法の
 開発研究に取り組んでいきたい。

Back

活性炭の吸着効率、脱離効率

純水中のラドン濃度は数mBq/m³のオーダーなので非常に薄く、高感度ラドン計の検出 限界に近い。そのため、活性炭にラドンを吸着することで濃縮する。

→ヒーターを用いて、250℃で4時間加熱

この脱離後の空気中のラドン濃度を 高感度ラドン計で測定する。

加熱温度[℃]	脱離効率
20	0.58
100	0.92
250	0.99

PDの位置と形成される電場

測定期間中の絶対湿度

p.49

最適な純水装置の運転(RO3の有無)

◆RO3の役割

Reverse Osmosis(逆浸透膜) 純水中の1000分子程度の重さの 不純物を取り除く。

純水装置の最初のステップ

◆RO3による影響

通常の状態と、RO3をバイパスした状態の 2パターンで測定をおこなった。

結果、バイパス時、ラドン濃度が上昇した。 純水中のラドン濃度を減らすという意味で は、RO3を通す運転が最適。

実際の測定系

Rn emanation measurement setup

• Water system plumbing materials are tested in air.

Rn emanation from rubber gaskets

• EPDM rubber gaskets are used in SK.

EPDM		rubbers	Rn emanation /1 gasket	Rn emanation / m ²
		EPDM	1.82 ±0.03 mBq	0.809 ± 0.013 Bq
	Butyl	3.58 ±0.04 mBq	1.59 ±0.02 Bq	
	Urethane	$0.013 \pm 0.004 \text{ mBq}$	5.8±1.8 mBq	
Contraction of the second seco				

- N.B. This is NOT the emanation to water.
- EPDM is Rn rich! Urethane is good.
- The gaskets must be replaced.

2つの解析手法の比較

場所	バイパス後 解析手法1 [mBq/m³]	バイパス後 解析手法2 [mBq/m³]
送水	1.84 ± 0.31	1.89±0.34
中心	0.35 ± 0.06	0.33±0.06
底部	2.38 ± 0.43	2.49±0.49
水面	2.46 ± 0.54	-
返水	8.90 ± 1.49	9.08 ± 1.64

手法1: サンプリングした純水の総量、混合に使用した純空気の総量を考慮

手法2: 傾きから算出

純空気内の不純物

(株)北酸から購入 G1 純空気

CO<0.1ppm THC<0.1ppm SO2<0.01ppm CO2<0.1ppm NOx<0.01ppm ラドンによるバックグラウンド

p.56

仮に、上記の関係が成り立つとすれば、 有効体積内部のラドン濃度は~0.1mBq/m³

How about Rn?

- Direct Rn measurement was necessitated!
 - Water Rn detector with sub-mBa/m³ sensitivity must have been developed!