極低濃度ラドン測定システムの開発

平成25年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会

2013年12月20日

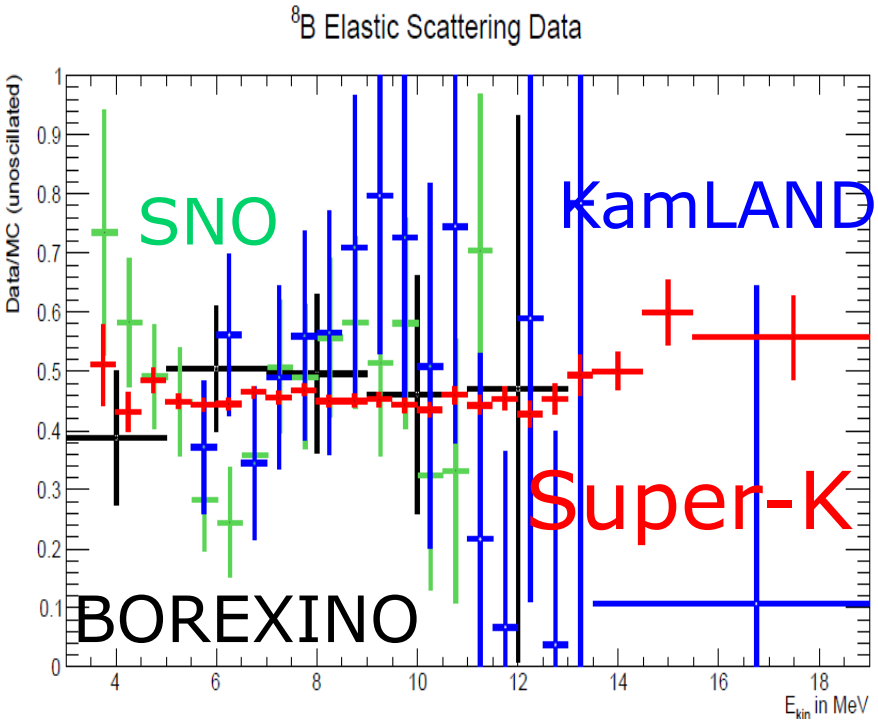
関谷洋之
東京大学宇宙線研究所

参加研究者:
田阪茂樹、松原正也、三輪美代子(岐阜大学)
関谷洋之、中野佑樹(東京大学宇宙線研究所)
竹内康雄(神戸大学)

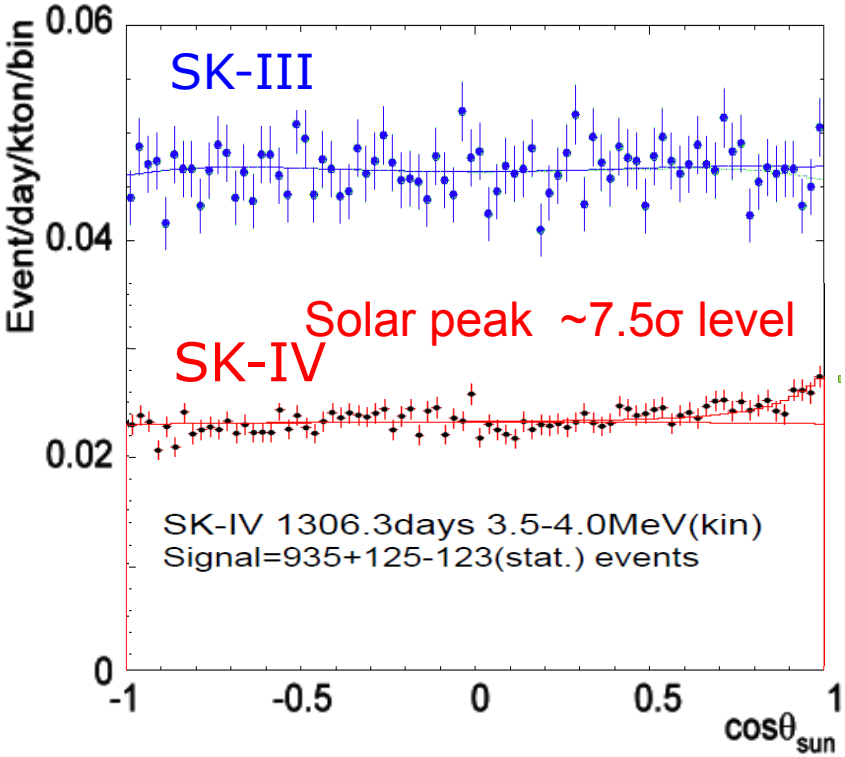
太陽ニュートリノ測定の意義があるならば

- **MSW効果の検証**

太陽の物質効果による
"Energy spectrum up-turn"



太陽方向分布 3.5~4.0MeV(kin.)



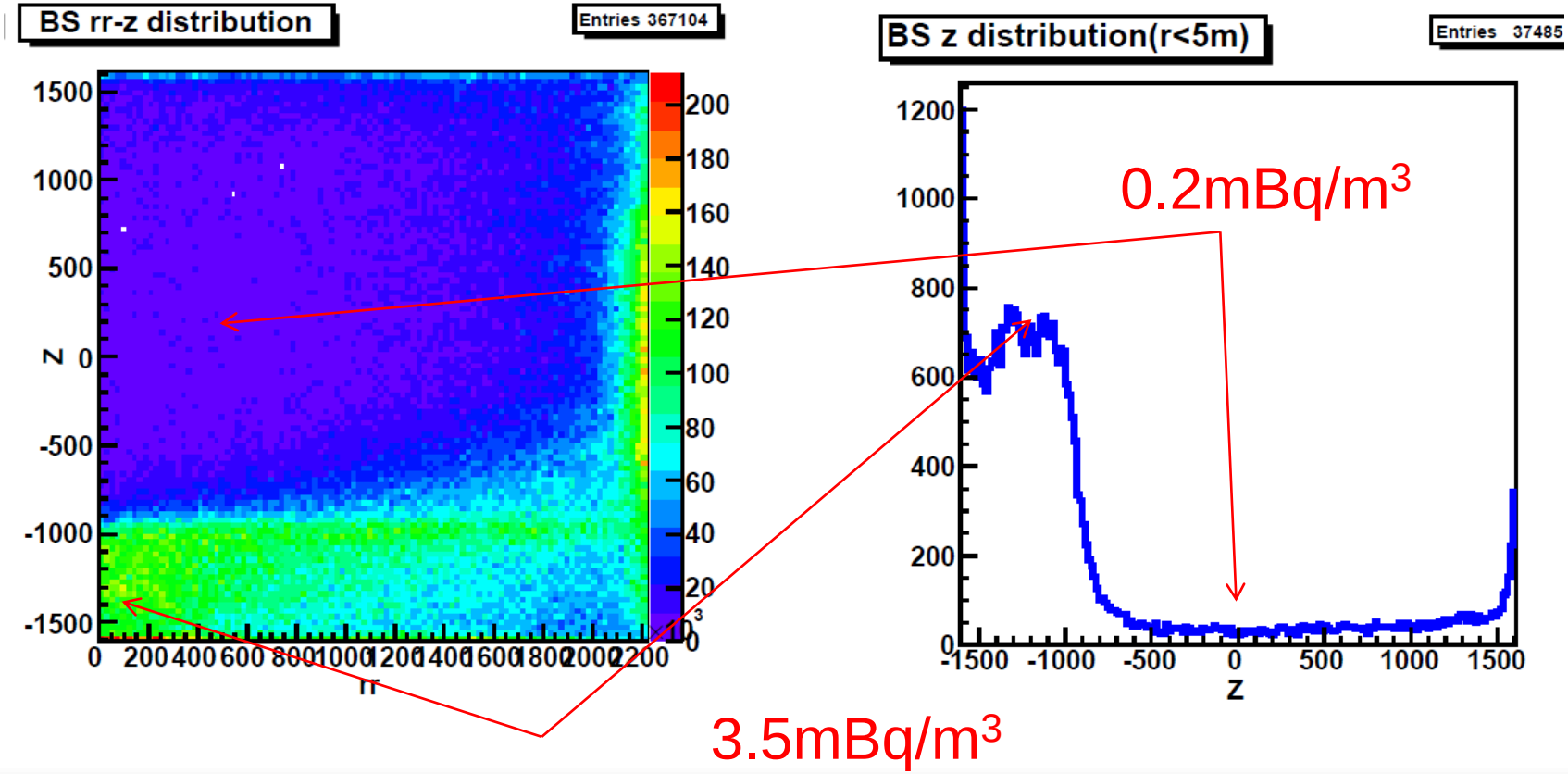
閾値3.5MeVを達成したが、より低バックグラウンド化が必要

BGレートから求まるラドン濃度

SKへ9.2Bq Rn 注入
- 140 counts/day/12.3kt/4.5-5.5MeV (tot.)

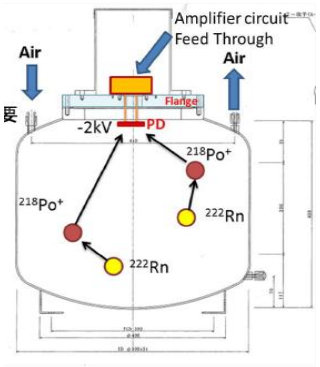
関谷　JPS第62回大会(2007年)

- SK-IV final sample (4.0-5.0MeV (kin.))



水中のラドン濃度の直接測定

- 気液混合させ、空気中へ放散させて、静電捕集型ラドン検出器で測定



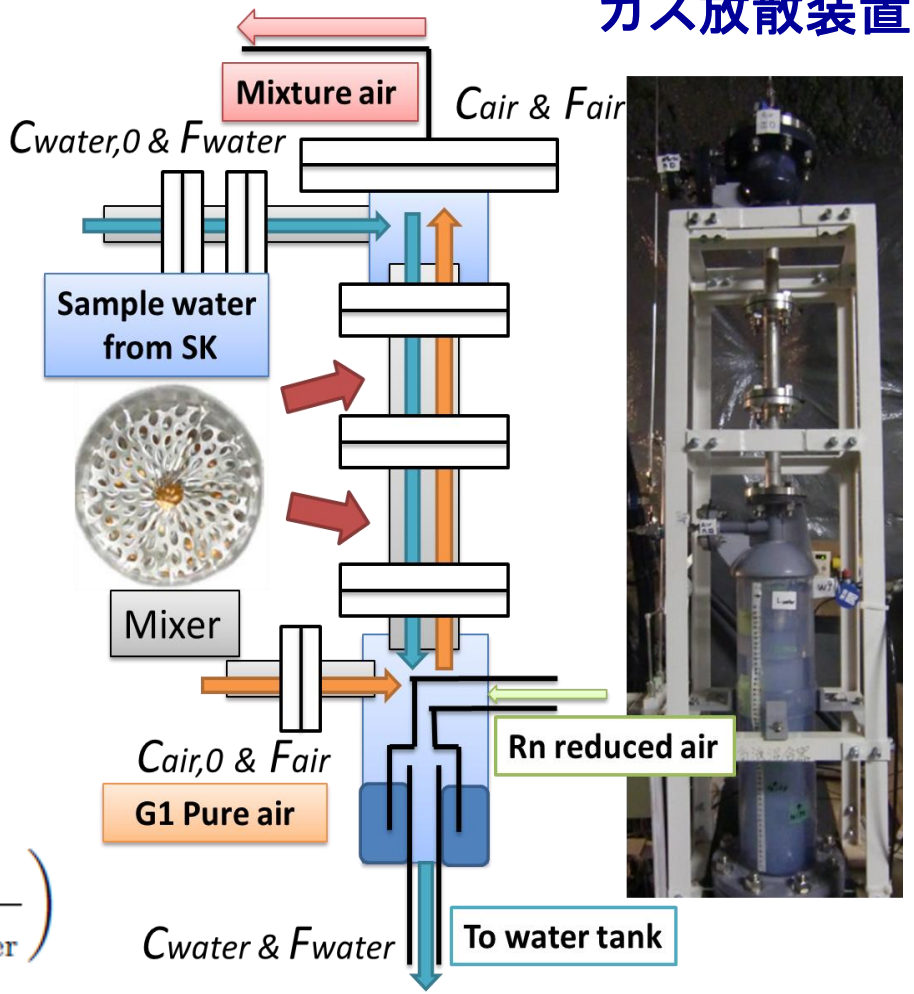
気液混合過程で、**気液平衡が成り立つとした場合**

水中ラドン濃度　出口空気ラドン濃度

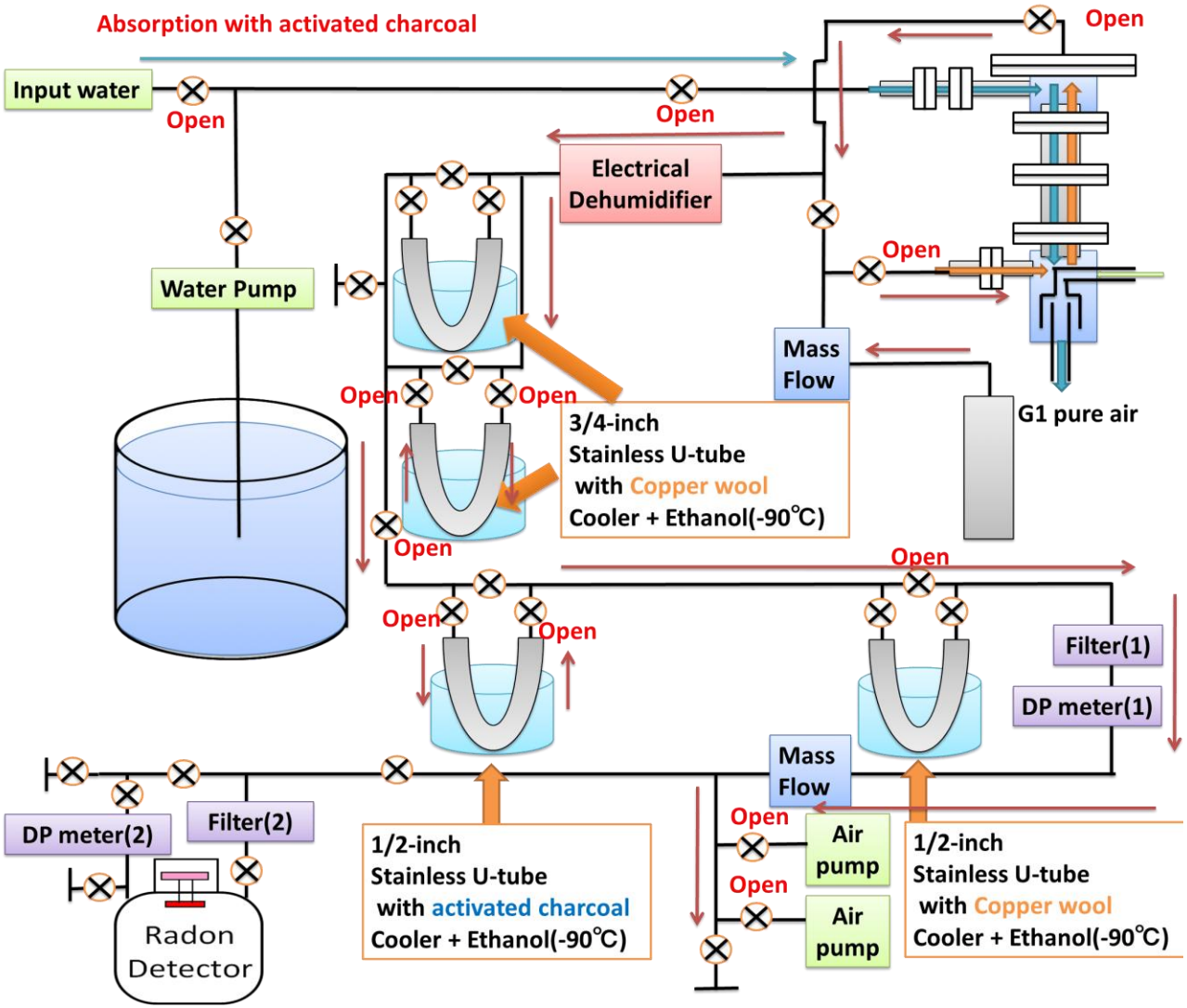
$$C_{\mathrm{water},0} = C_{\mathrm{air}}\left(\alpha_{\mathrm{Ostwald}} + \frac{F_{\mathrm{air}}}{F_{\mathrm{water}}}\right)$$

オストワルド係数（温度の関数）

ガス放散装置

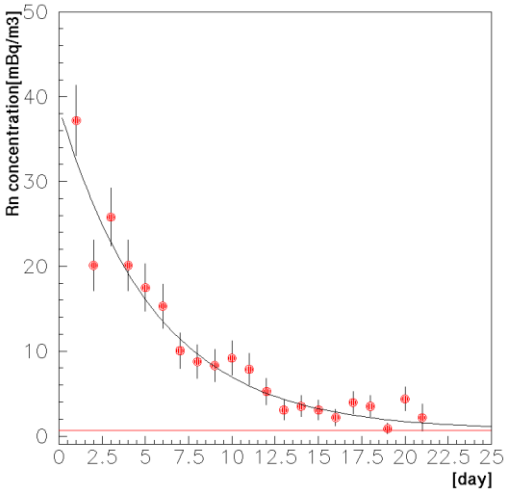


極微量ラドン測定　除湿・濃縮・離脱・崩壊



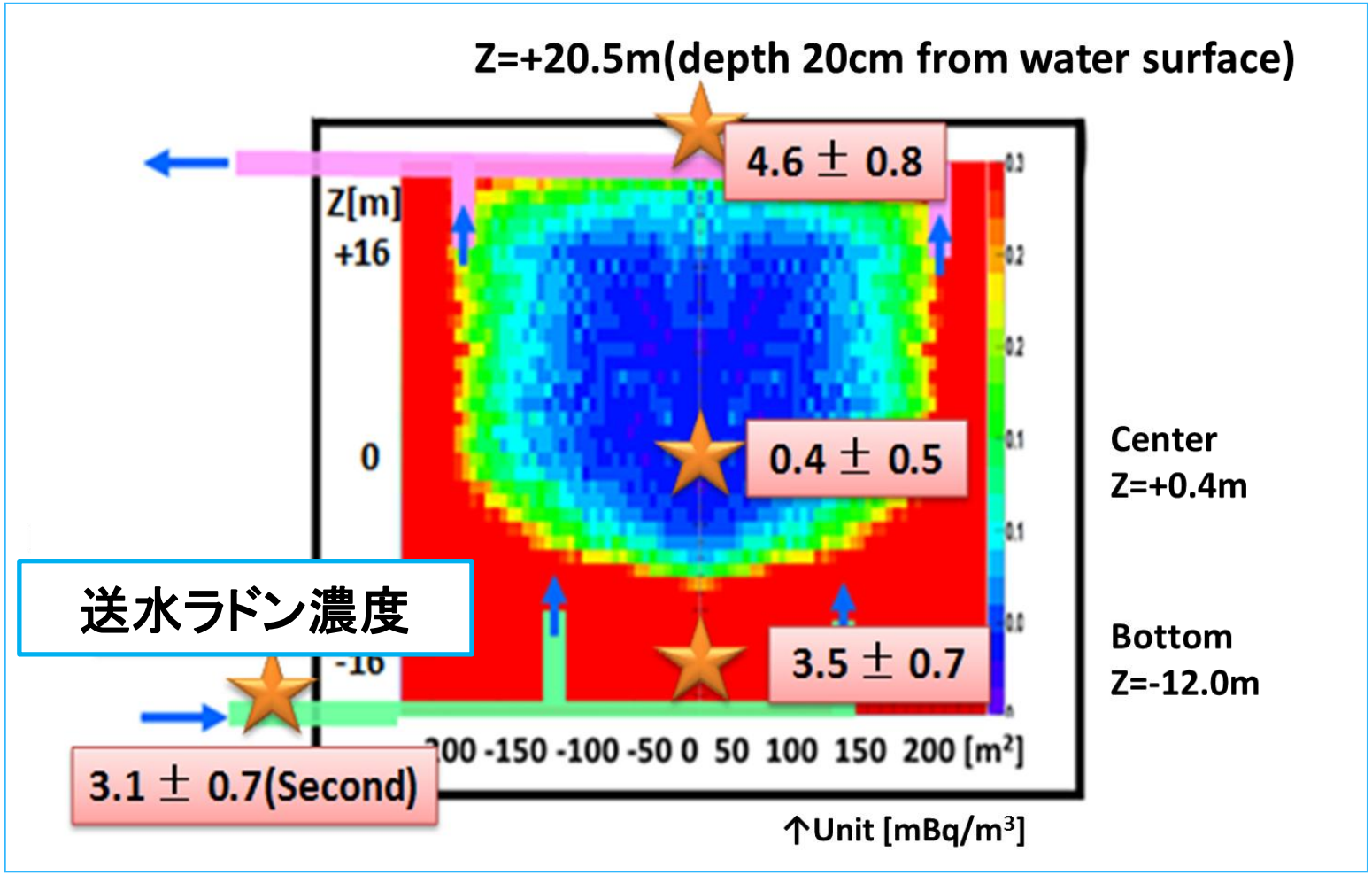
- 2L/minで6時間濃縮
- 20日の崩壊

→mBq/m^{3}の感度

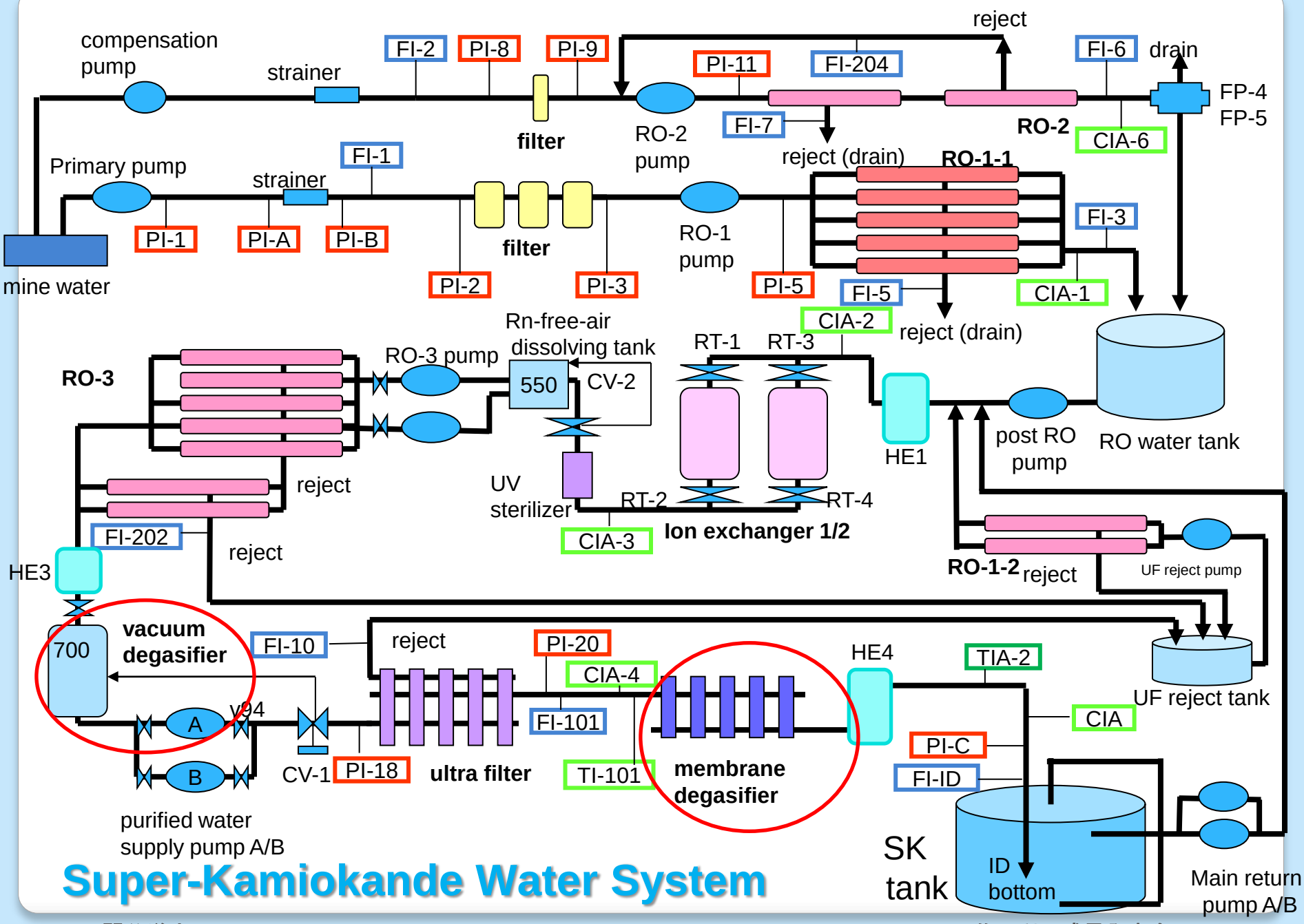


SKの水のRn濃度の直接測定

中野　JPS第68回年次大会



イベントレートと合っている、送水のラドン濃度が問題

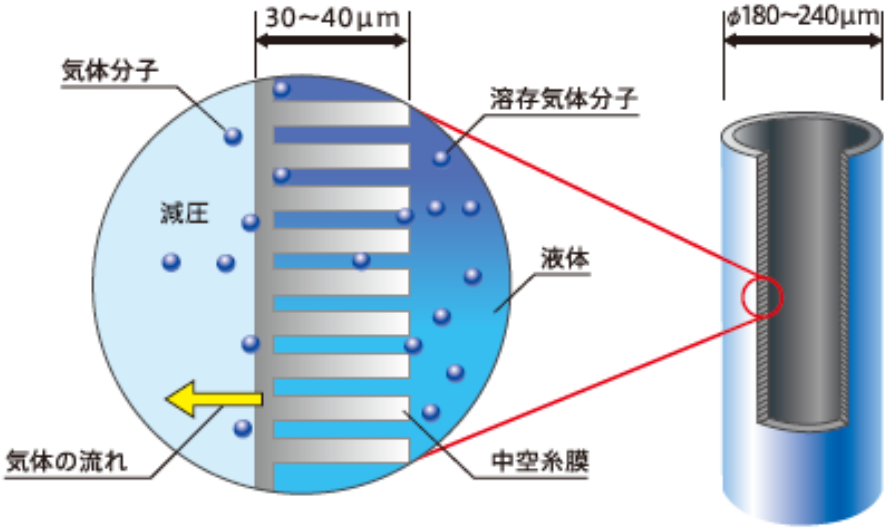


Super-Kamiokande Water System

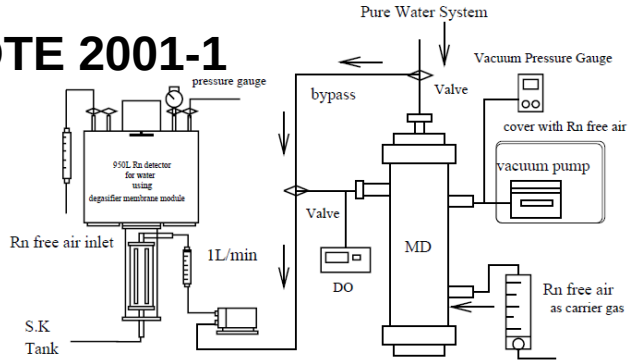
膜脱気システム

ラドン除去のため、SK-IIの時代に
最終段に追加された脱気膜ユニット
2011年に2倍に増強

膜モジュール
DIC(株)　EF-040P-JO



SK NOTE 2001-1



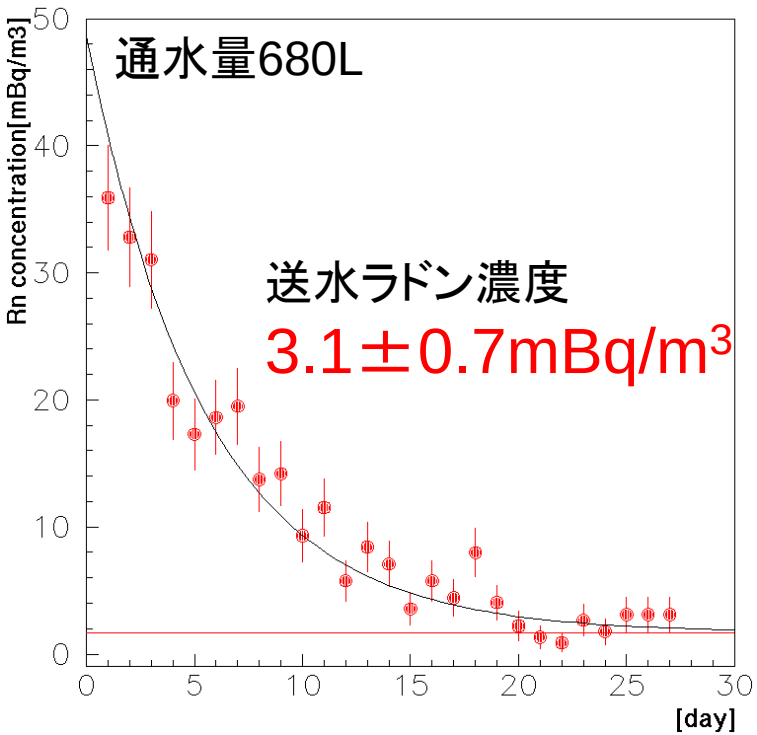
本モジュールのラドン除去効率は
～90%と報告されている。

その後のユニット導入後の評価
は今回までされていなかった。
(2001年だったから)

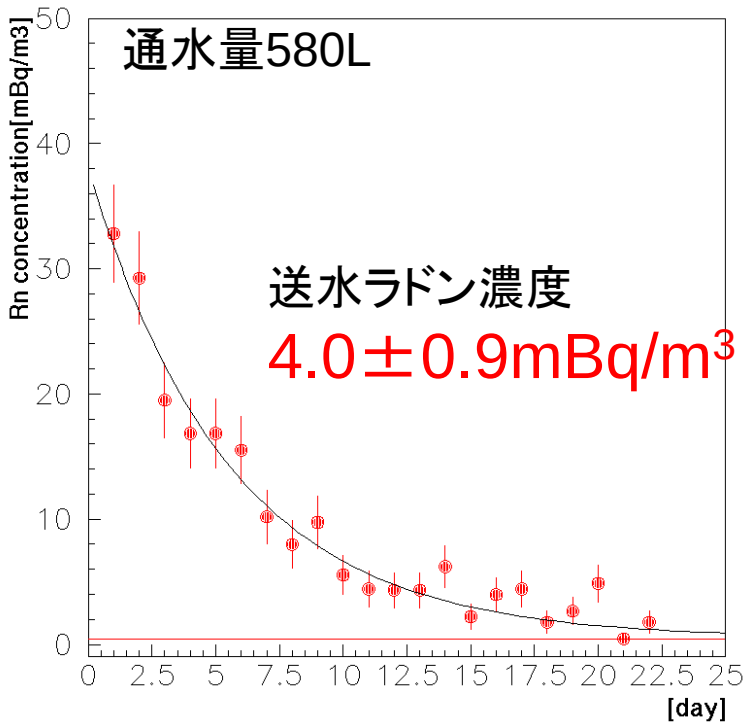
膜脱気ユニット有無でのRn濃度比較

今回膜脱気ユニットをバイパスして送水のRn濃度を測定した。

膜脱気有での濃縮ラドンの崩壊



膜脱気無での濃縮ラドンの崩壊



膜脱気ユニットの有無でラドン濃度変わっていないように見える！

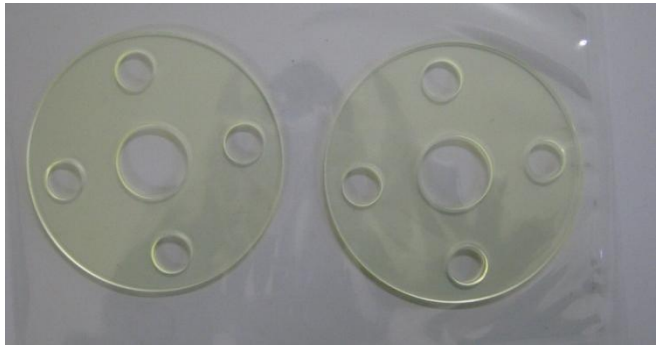
原因の追究

ユニット化に際し、使用したEPDMガスケット(180枚)が怪しい
→ラドンの放出を測定した。

超純水システムに一般的な
脱脂処理を施した
エチレンープロピレンージエンゴム

交換候補として
ブチルガスケット

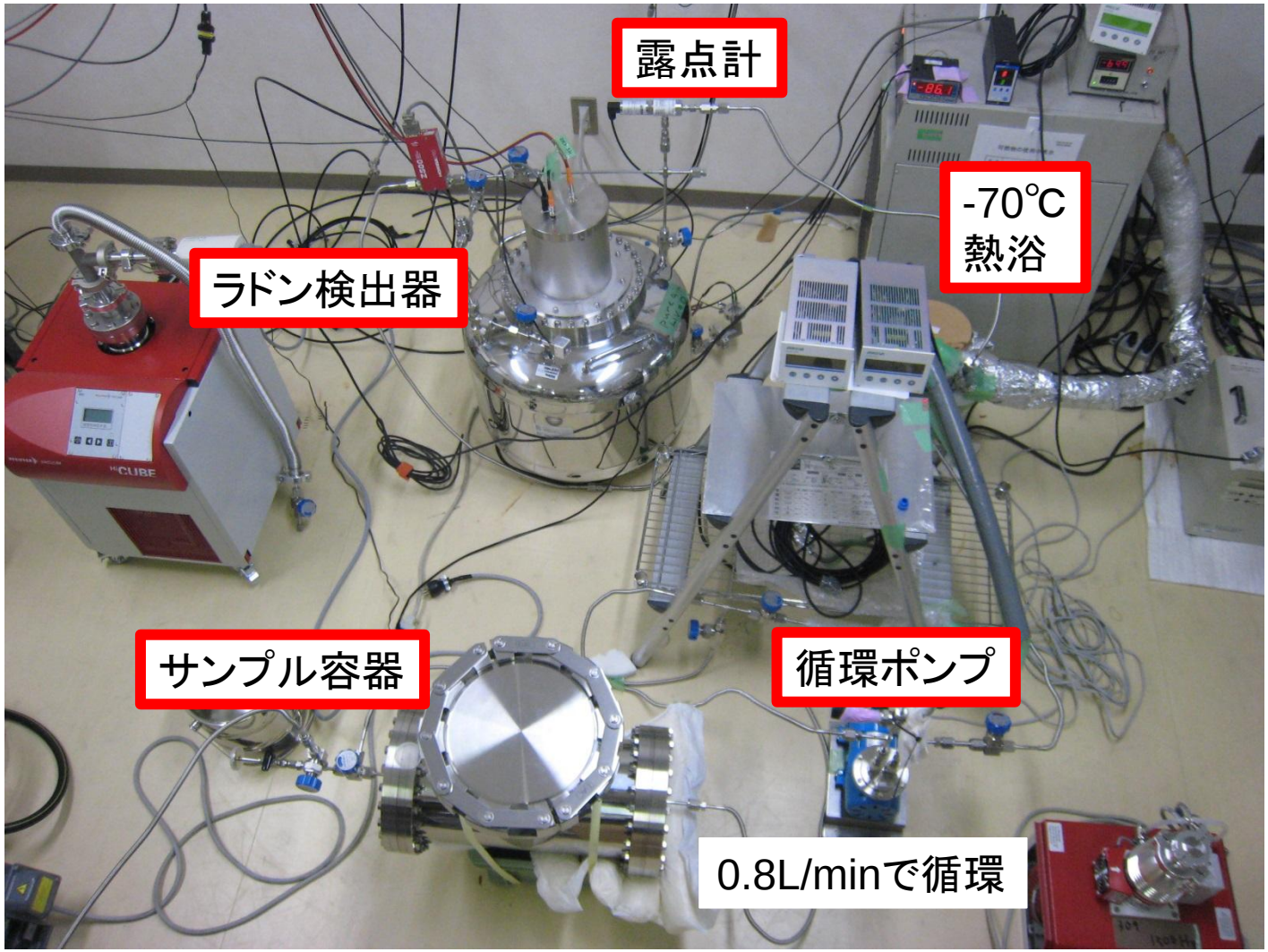
ウレタンガスケット



→本研究で別途開発した空気中への放出ラドン測定システムで測定

(ガス中への)放出ラドン測定システム

系の体積
100L



測定結果

BG　2013年2月10日 -2013年3月10日
5.153± 0.279 mBq/m^3

EPDM(10枚) 2013年5月14日 -2013年5月26日
187.59± 2.51　mBq/m^3

ウレタン(20枚) 2013年9月7日 -2013年9月16日
7.736± 0.649　mBq/m^3

ブチル(20枚) 2013年10月1日 -2013年10月7日
715.99± 8.85　mBq/m^3

ガスケットから空気中へのRn放出量

EPDM	1.82　±0.03　mBq/枚
ウレタン	0.013±0.004 mBq/枚
ブチル	3.58　±0.04　mBq/枚

EPDMガスケットが明らかにRn放出多い

水中放出レートは未測定だが、放出しつつ90%除去で膜脱気意味無状態の可能性

→ウレタンガスケットへ変更計画　(現在リスク評価中)

水中ラドン測定のさらなる高感度化

ガス放散装置の改良

EPDM JIS-10Kフランジ
Mixer 3段　羽　3枚
表面酸洗処理

ICF/VCRフランジ
Mixer 4段　羽　4枚
表面電解研磨処理

内部

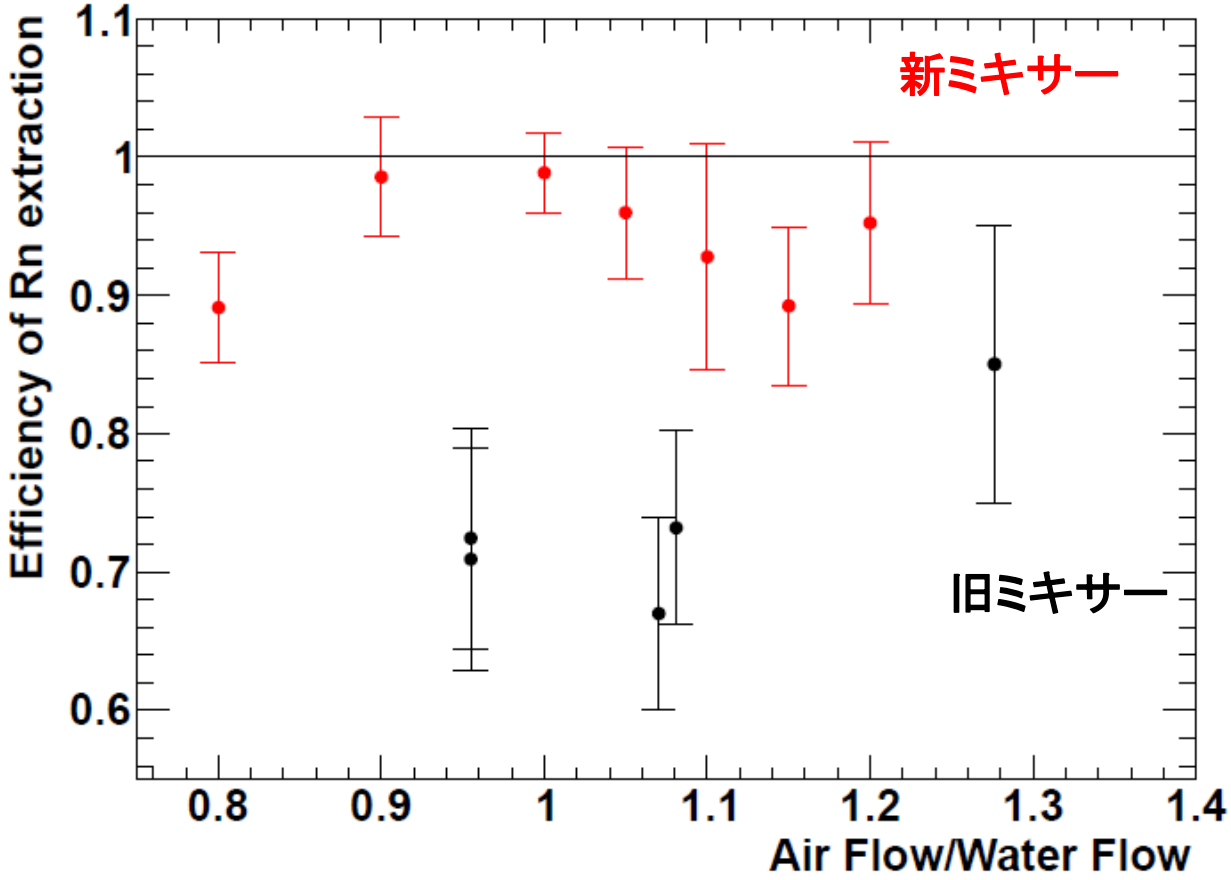
燕での真空試験

放散効率（水→空気）の較正

- 別途ラドン濃度を計測した水を通して、出てくる空気のラドン濃度と比較 (岐阜大水道水使用～5000Bq/m^3)
- 標準となる水中ラドン濃度測定は「鉱泉分析法指針(改訂)」(環境省自然環境局監修)に規定されている。
  - 水から液体シンチレータへ移行させα、βをカウント
- Packard社　2900TR　シンチレーションアナライザー使用
  - 岐阜大学生命科学総合研究支援センターRI管理室柳戸施設

較正結果

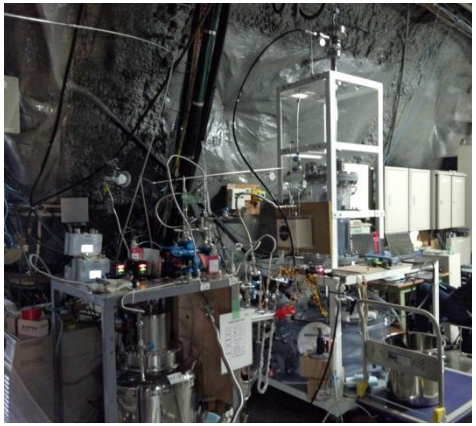
- 空気ラドン濃度と水ラドン濃度の比
- 空気流量と水流量の比の関数として測定



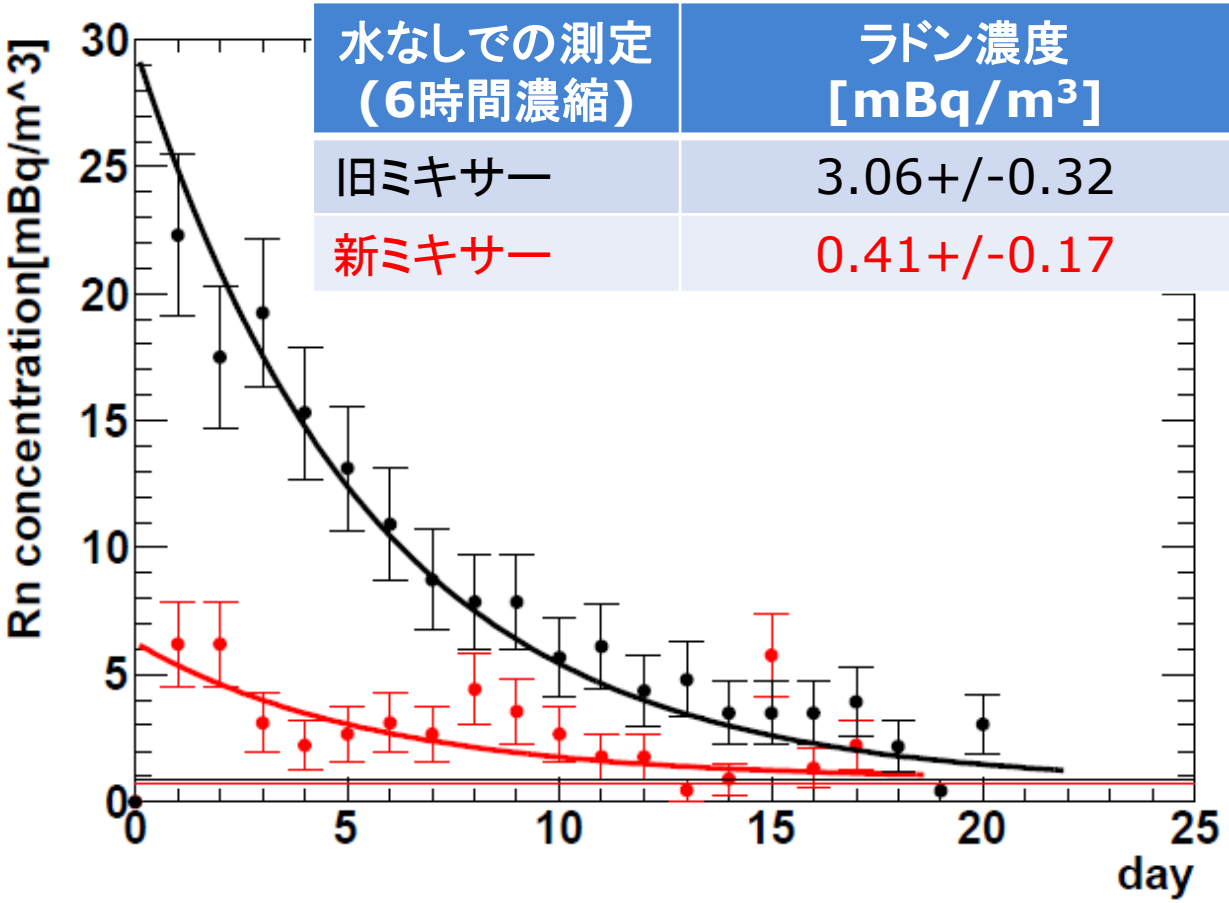
放散効率の向上！

水中ラドン計測のBG測定

- 純空気のみ通気、6時間濃縮　システムBG低減を確認

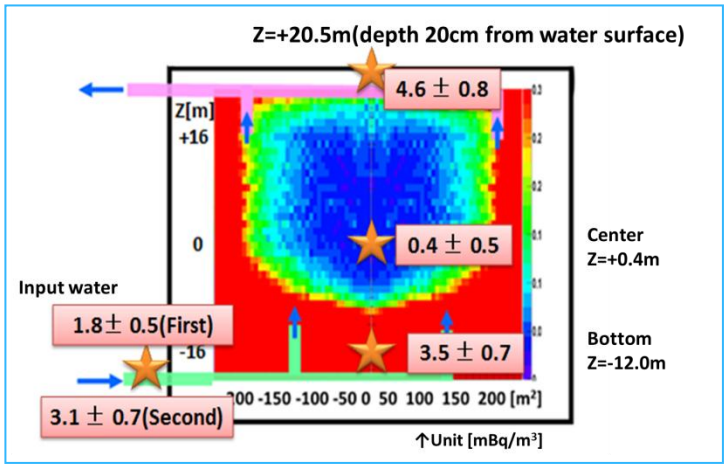


水なしでの測定（6時間濃縮）	ラドン濃度 [mBq/m³]
旧ミキサー	3.06+/-0.32
新ミキサー	0.41+/-0.17



結論

- SKに残るラドンを低減する研究をしている
- 送水起源のラドンは、EPDMガスケットが怪しい
  - ガスケット交換計画
- さらなる低レベル水中ラドン測定装置を開発した
  - 今後再測定する計画
  - FVのBG源の決定

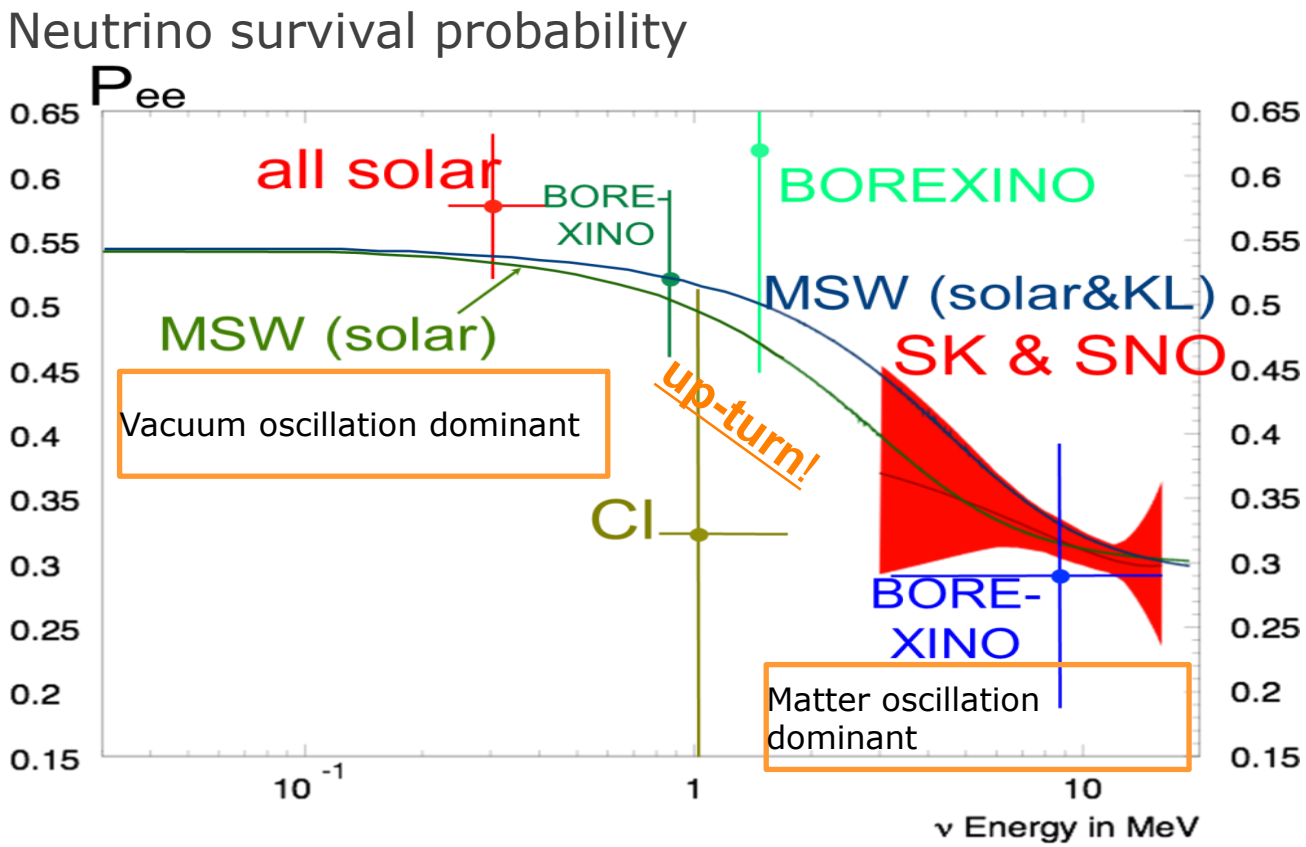


Extra slides

太陽ニュートリノ測定の意義

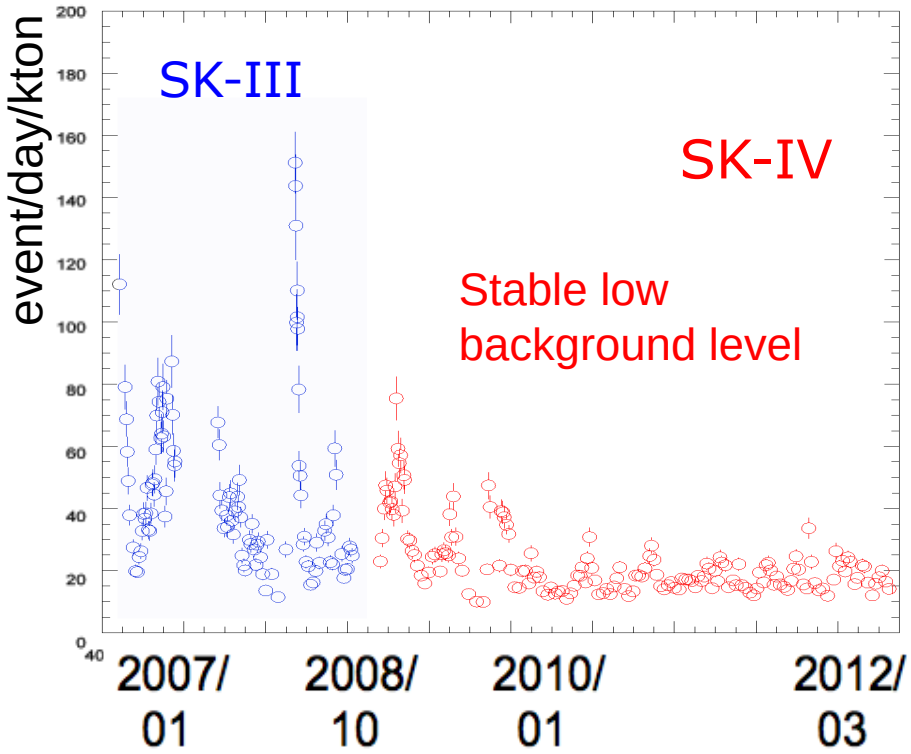
- MSW効果の検証

太陽の物質効果による"Energy spectrum up-turn"

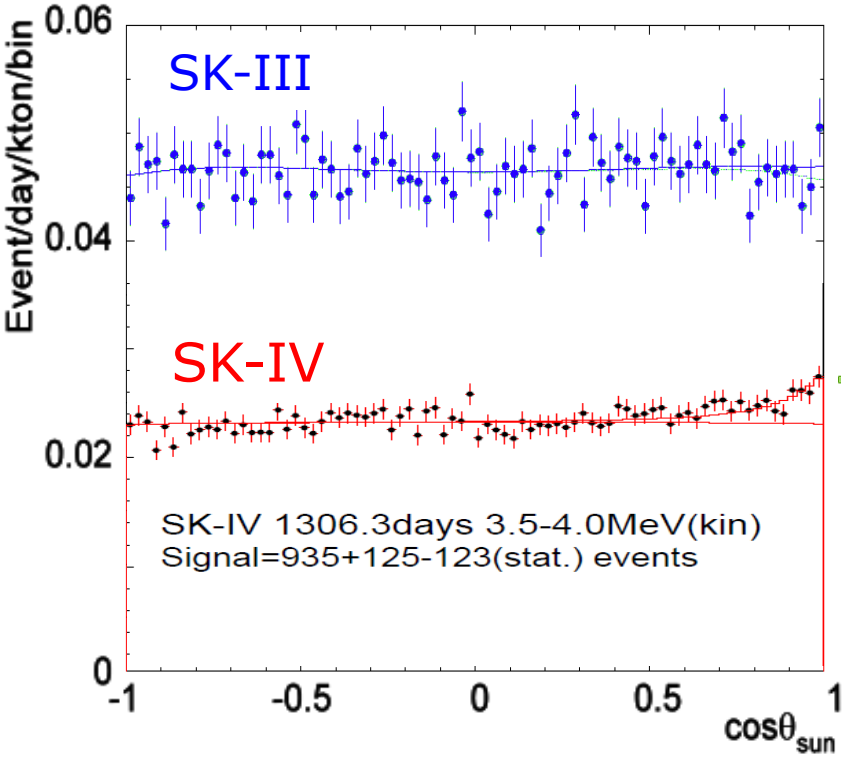


これまでの努力

イベントレート
4.0-4.5MeV(kin.)



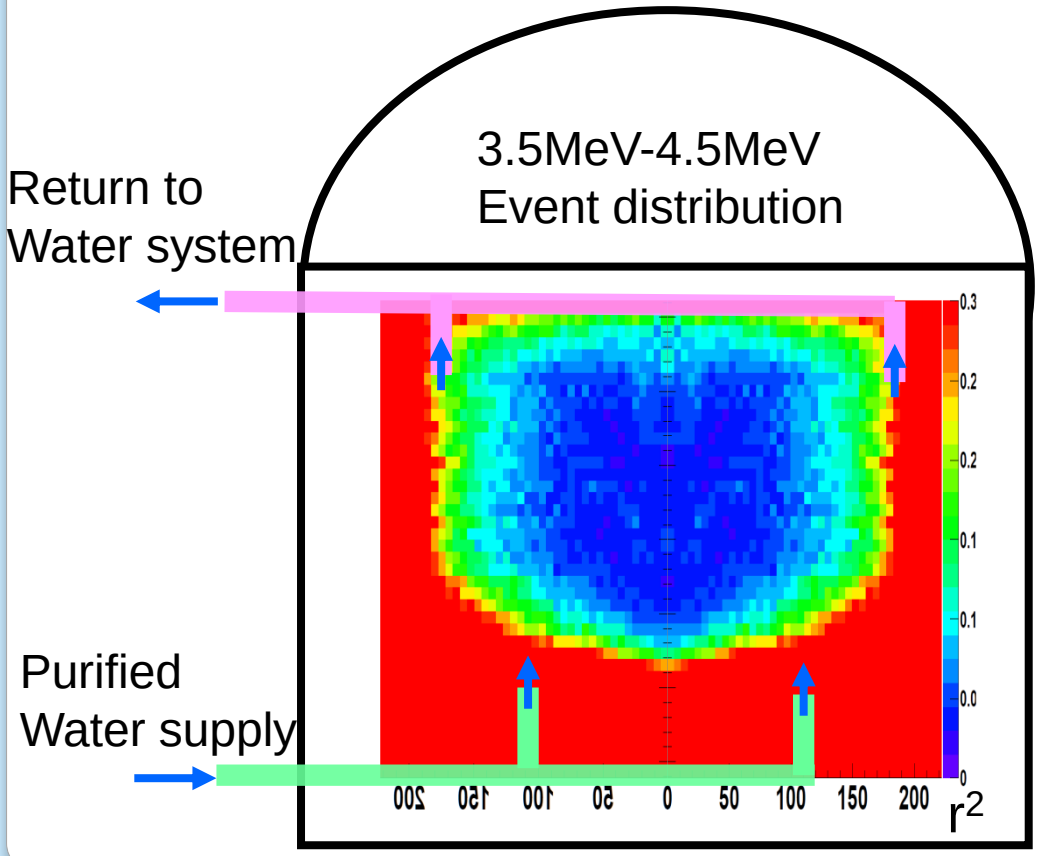
太陽方向分布
3.5~4.0MeV(kin.)



3.5MeV閾値の達成！
Solar peak ~7.5σ level

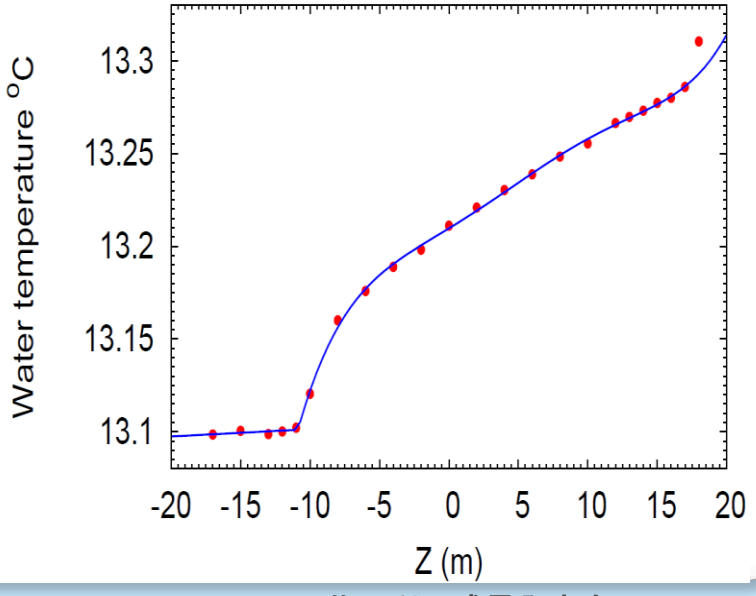
受け身な努力：対流の抑制

- 送水温度を0.01℃の精度でコントロールすることで底部のラドンのFVへの侵入を阻止



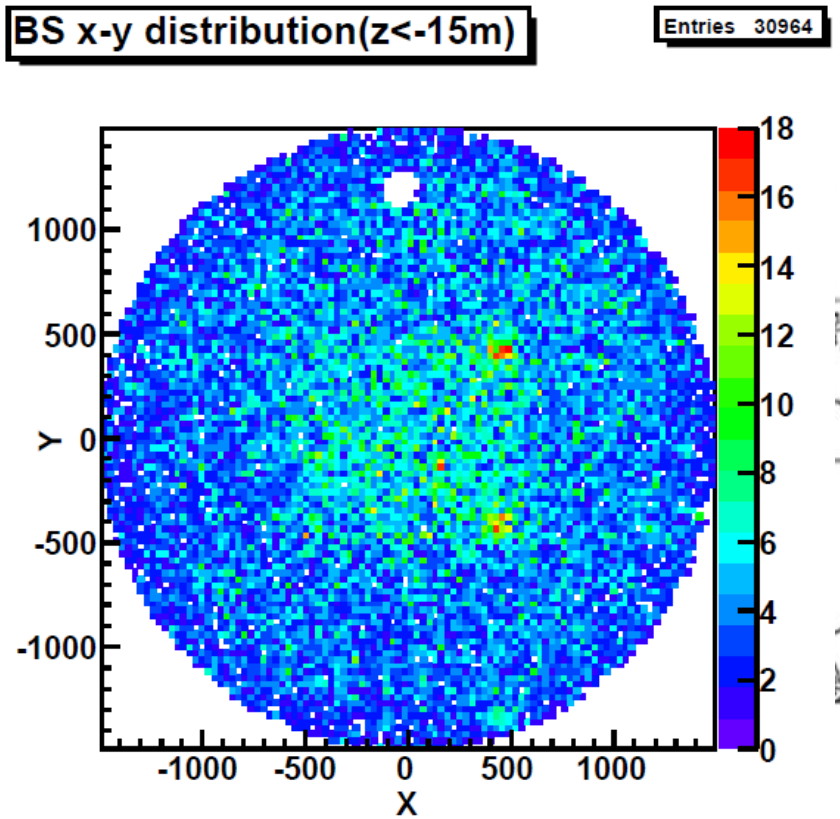
Temperature gradation in Z

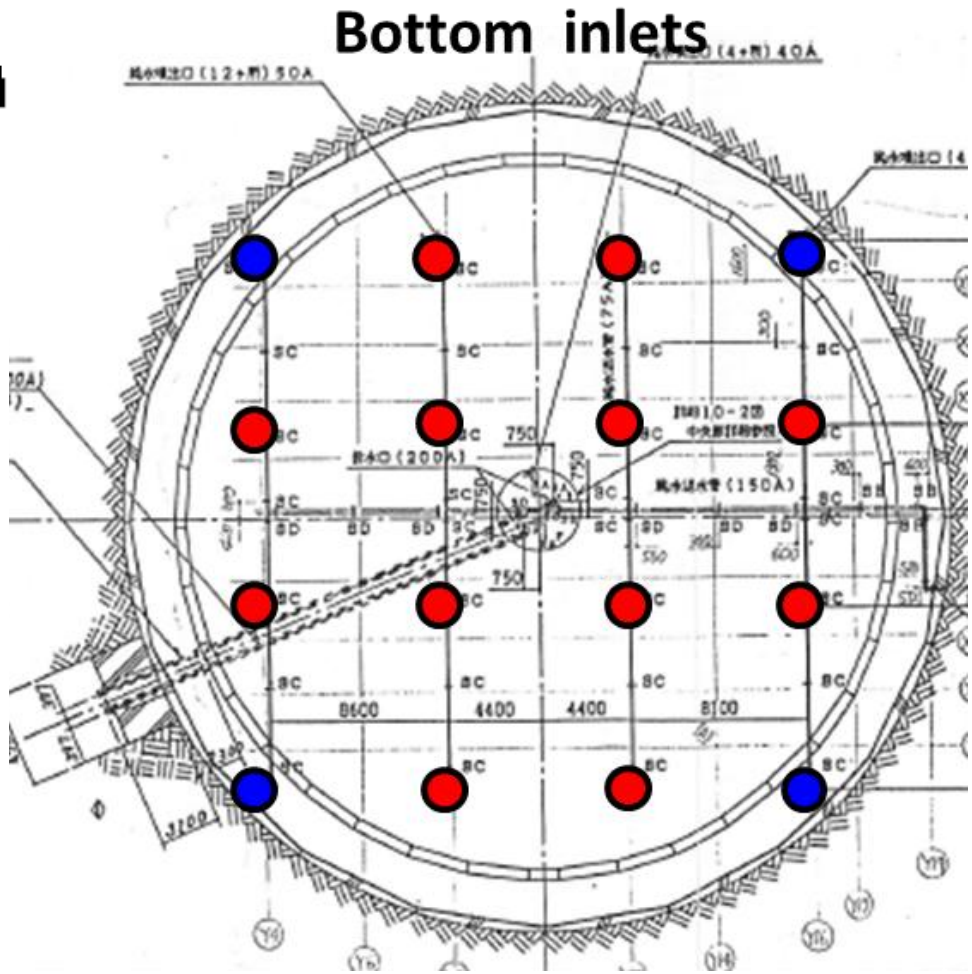
The difference is only 0.2 ºC



送水口

- SK-IV final sample z<-15m





ガラスが詰まっている？

Rn源は何なのか

- 給水に3mBq/m^3 あるとすると

底部内水槽の対流層6mのラドン濃度は

循環レート: 60m^3/hour
給水パイプは16本だが、そのうち12本が内水槽

$$\frac{3\text{mBq/m}^3 \times 60 \times 12/16\ \text{m}^3/\text{hour} \times 24\ \text{hour/day}}{(1-\exp(-1.0/5.48))\ /\text{day} \times 16.9\text{m} \times 16.9\text{m} \times 3.14 \times 6\text{m}}$$

～3.5 mBq/m^3

しかし、別の解釈も可能

SK NOTE 97-05

- Rnの放出レート2mBq/1PMT/day

底部内水槽の対流層6mのラドン濃度は

1cmφ HOLEs

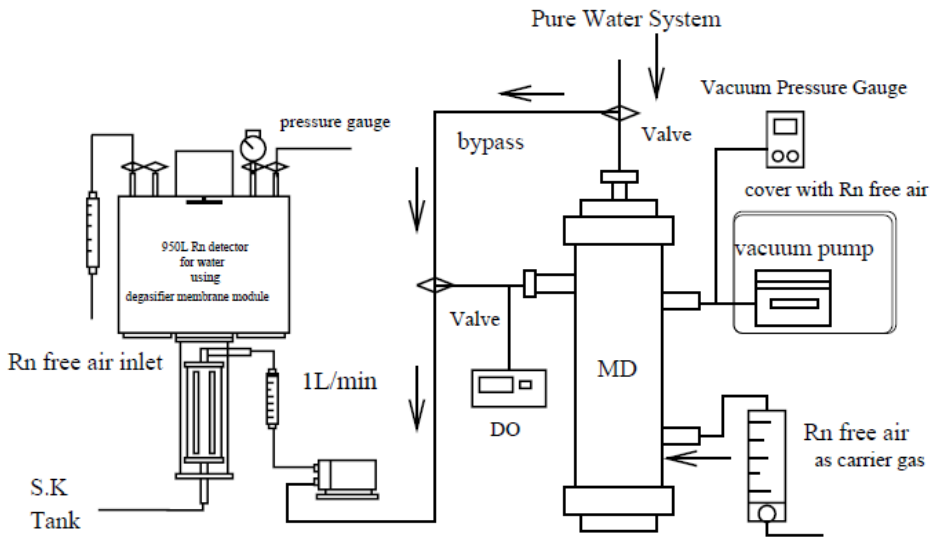
底部の1740 PMT+FRPsが寄与するとすると

$$\frac{2\ \mathrm{mBq/PMT/day} \times 1740 \times 5.48\ \mathrm{day}}{16.9\mathrm{m} \times 16.9\mathrm{m} \times 3.14 \times 6\mathrm{m}}$$

$$\sim 3.5\ \mathrm{mBq/m^3}$$

送水のラドン濃度を系統誤差を含めきちんと測定することが重要
→現在低バックグラウンド化をすすめた新しいセットアップ開発中

ラドン除去の効率



SK NOTE 2001-1

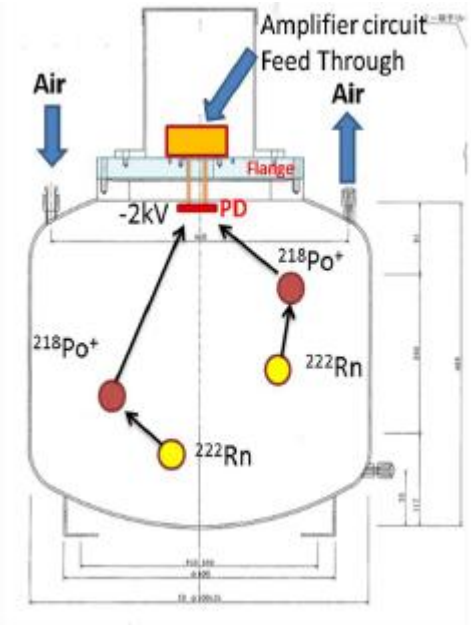
本モジュールのラドン除去効率は～90%と報告されている。

その後のユニット導入後の評価は今回までされていなかった。(2001年だったから)

vacuum (kPa)	water flow (ton/hour)	carrier gas (liter/min)	radon reduction	dissolved oxygen (μg/L)
6.13	0.2	0.4	-93 ± 4 %	525
8.5	0.2	1.0	-90 ± 3 %	867
0.38	0.4	0.0	-83 ± 3 %	5.6
0.35	1.0	0.0	-64 ± 12 %	3.7
0.65	1.0	1.0	-83 ± 5 %	235
0.93	1.0	2.0	-90 ± 7 %	367

Table 4: Radon reduction efficiency of the MD module as a function of water and carrier gas rates

高感度ラドン検出器



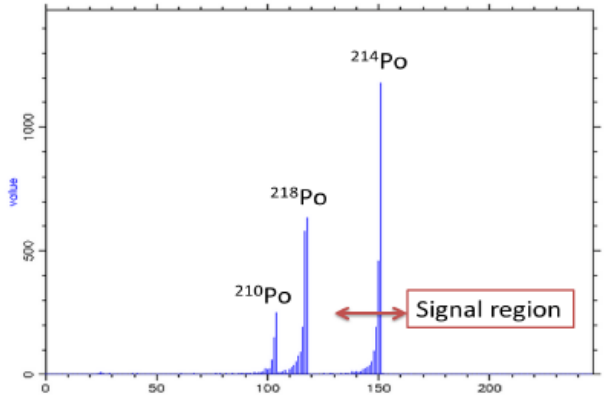
◆検出原理ー静電捕集法ー

-ラドン娘核種^{218}Poの90%が正に帯電

$^{222}Rn \rightarrow {}^{218}Po^{+} \rightarrow {}^{214}Pb^{+} \rightarrow {}^{214}Bi^{+} \rightarrow {}^{214}Po^{+}$

-検出器の上部に-2.0kVを印加
→帯電した娘核種を半導体(PD)に捕集。

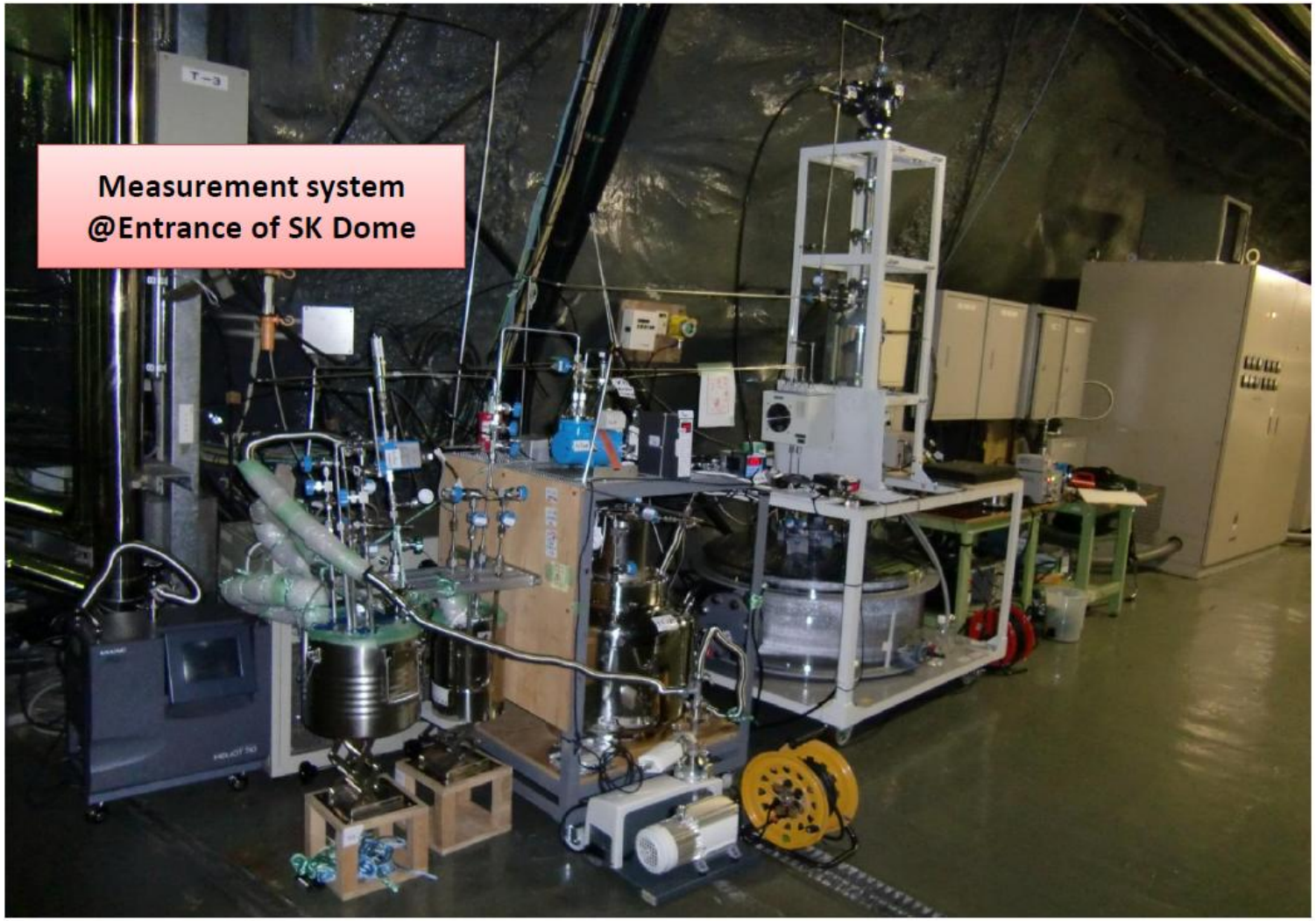
-^{214}Po崩壊時に放出される
α線(7.68MeV)をPDで検出する。
崩壊した個数を数える



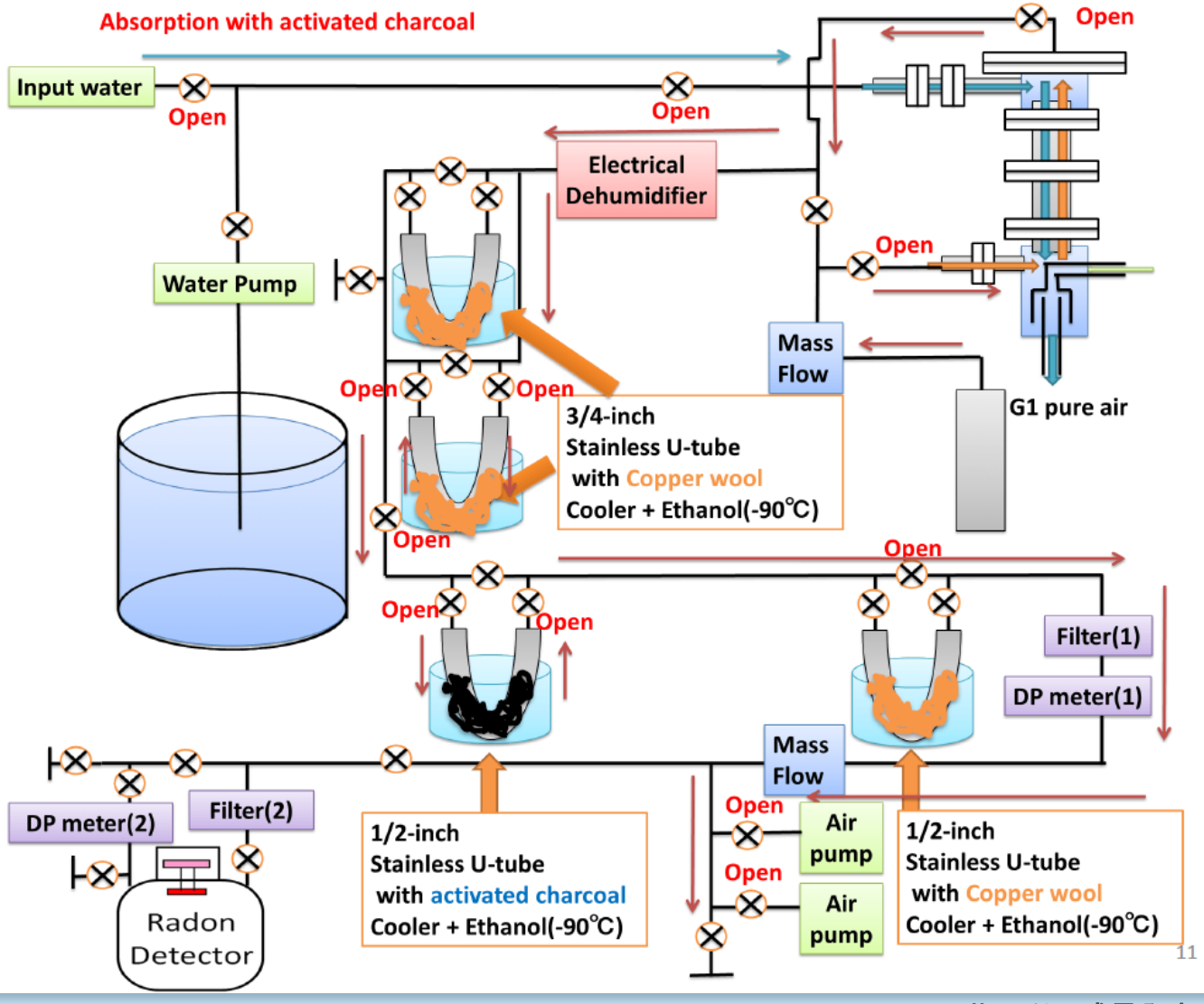
○較正係数
検出された崩壊数とラドン濃度を関係づける因子ー検出効率ー
^{214}Poが崩壊時に放出するα線(7.68MeV)を用いる。
(1)^{218}Po(6.00MeV)と^{210}Po(5.30MeV)に比べてノイズが少なく、区別しやすい。
(2)^{214}Poは崩壊するまでの娘核種が正に帯電しやすい($^{218}Po^{+}$-$^{214}Pb^{+}$-$^{214}Bi^{+}$)ので、
よりPDに集められている確率が高い。

$$\text{較正係数}CF[\mathrm{CPD}/(\mathrm{mBq/m^3})] = \frac{\text{1日当たりの}\alpha\text{線の検出数}[\mathrm{CPD}]}{\text{ラドン濃度}[\mathrm{mBq/m^3}]}$$

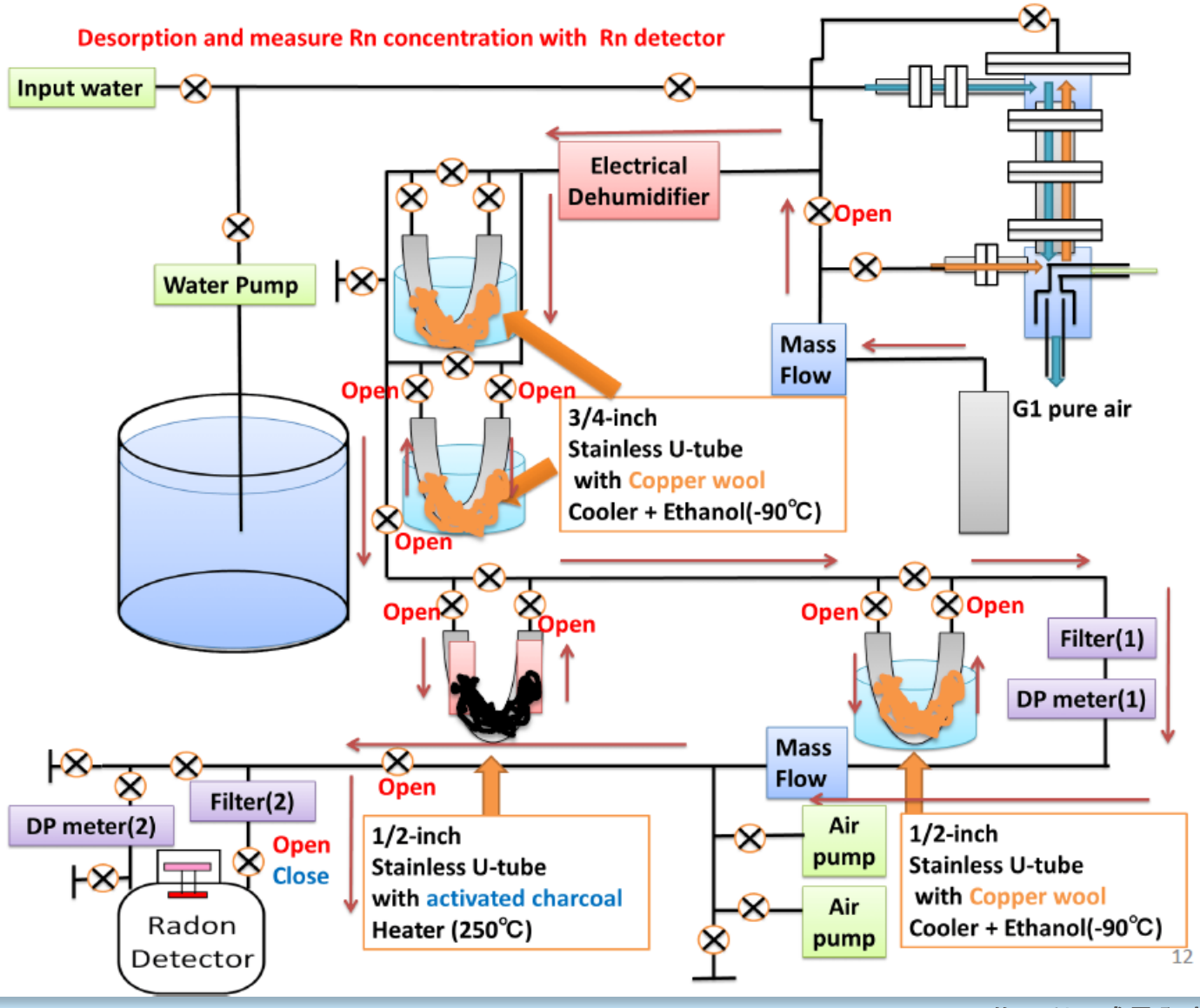
水中ラドン測定システム



水中ラドン測定方法1


Absorption with activated charcoal
Input water
Open
Open
Open
Electrical Dehumidifier
Water Pump
Open
Mass Flow
Open
Open
3/4-inch
Stainless U-tube
with Copper wool
Cooler + Ethanol(-90℃)
G1 pure air
Open
Open
Open
Open
Open
Filter(1)
DP meter(1)
Mass Flow
DP meter(2)
Filter(2)
Radon Detector
1/2-inch
Stainless U-tube
with activated charcoal
Cooler + Ethanol(-90℃)
Open
Air pump
Open
Air pump
1/2-inch
Stainless U-tube
with Copper wool
Cooler + Ethanol(-90℃)
11

水中ラドン測定方法2


Desorption and measure Rn concentration with Rn detector
Input water
Electrical Dehumidifier
Open
Water Pump
Mass Flow
G1 pure air
Open
Open
3/4-inch
Stainless U-tube
with Copper wool
Cooler + Ethanol(-90℃)
Open
Open
Open
Open
Open
Filter(1)
DP meter(1)
Mass Flow
Open
Filter(2)
DP meter(2)
Open
Close
Radon Detector
1/2-inch
Stainless U-tube
with activated charcoal
Heater (250℃)
Air pump
Air pump
1/2-inch
Stainless U-tube
with Copper wool
Cooler + Ethanol(-90℃)
12

水中濃度の導出1

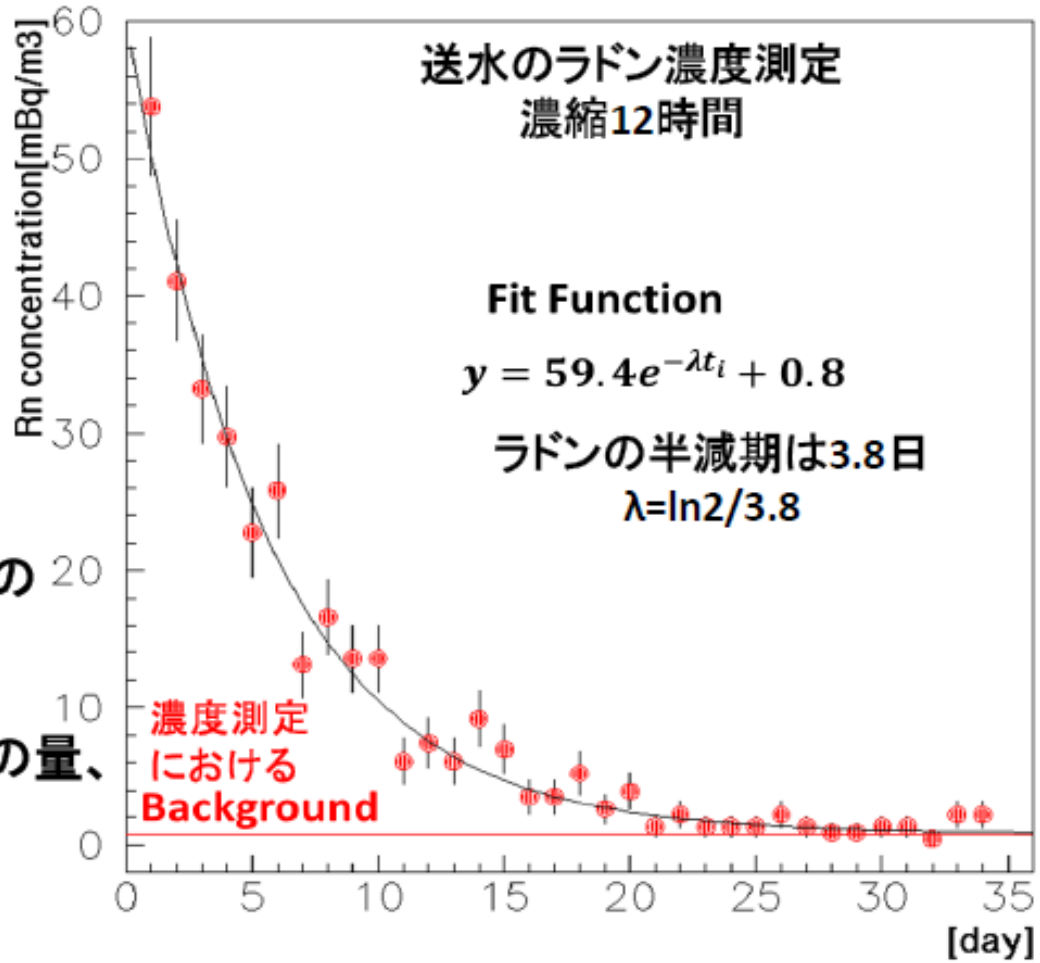
◆ラドン濃度測定の手法

◎ラドン検出器を封じ切り、
ラドン崩壊をみる(20日以上)。

◎χ^2-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。

◎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。

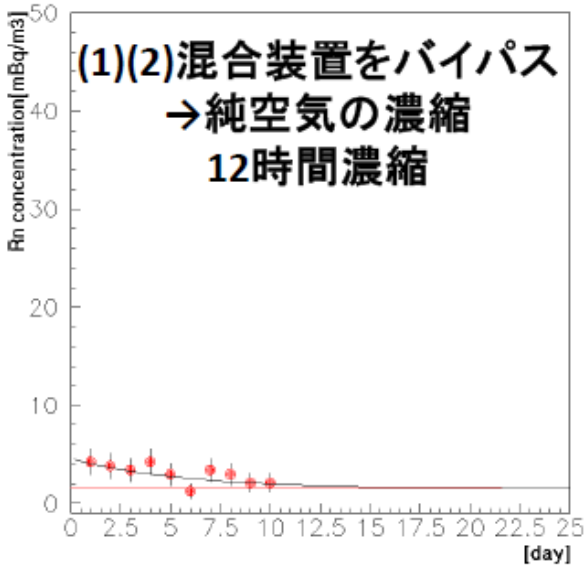
◎混合に使用した純水と純空気の量、
混合時の水温、濃縮時間等から
純水のラドン濃度が算出できる。

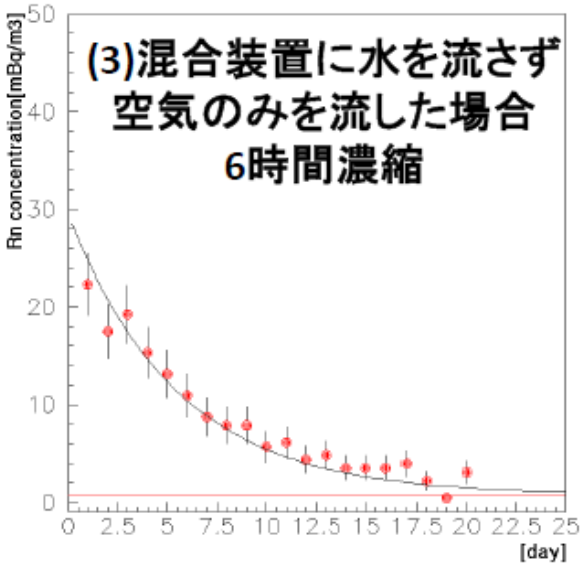


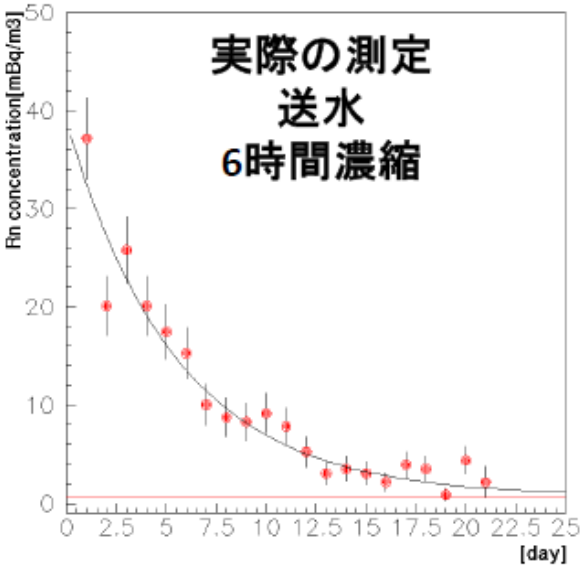
水中濃度導出2　測定系のBG

◆バックグラウンドの候補

(1)活性炭そのものからのラドンのEmanation
(2)使用した純空気に含まれるラドン
(3)配管系からのラドンのEmanation



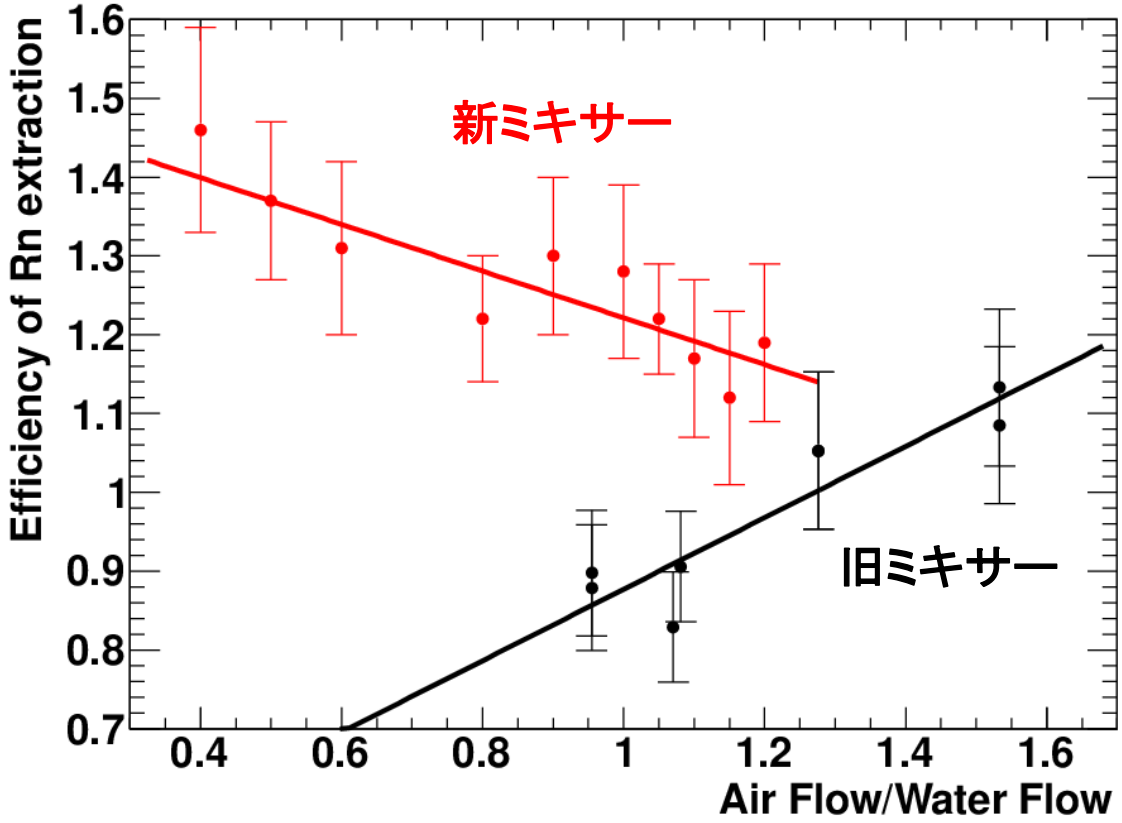




気液混合装置にラドンの放出(バックグラウンド源)があることがわかった。
これらのバックグラウンドを考慮して、純水中のラドン濃度を算出する。

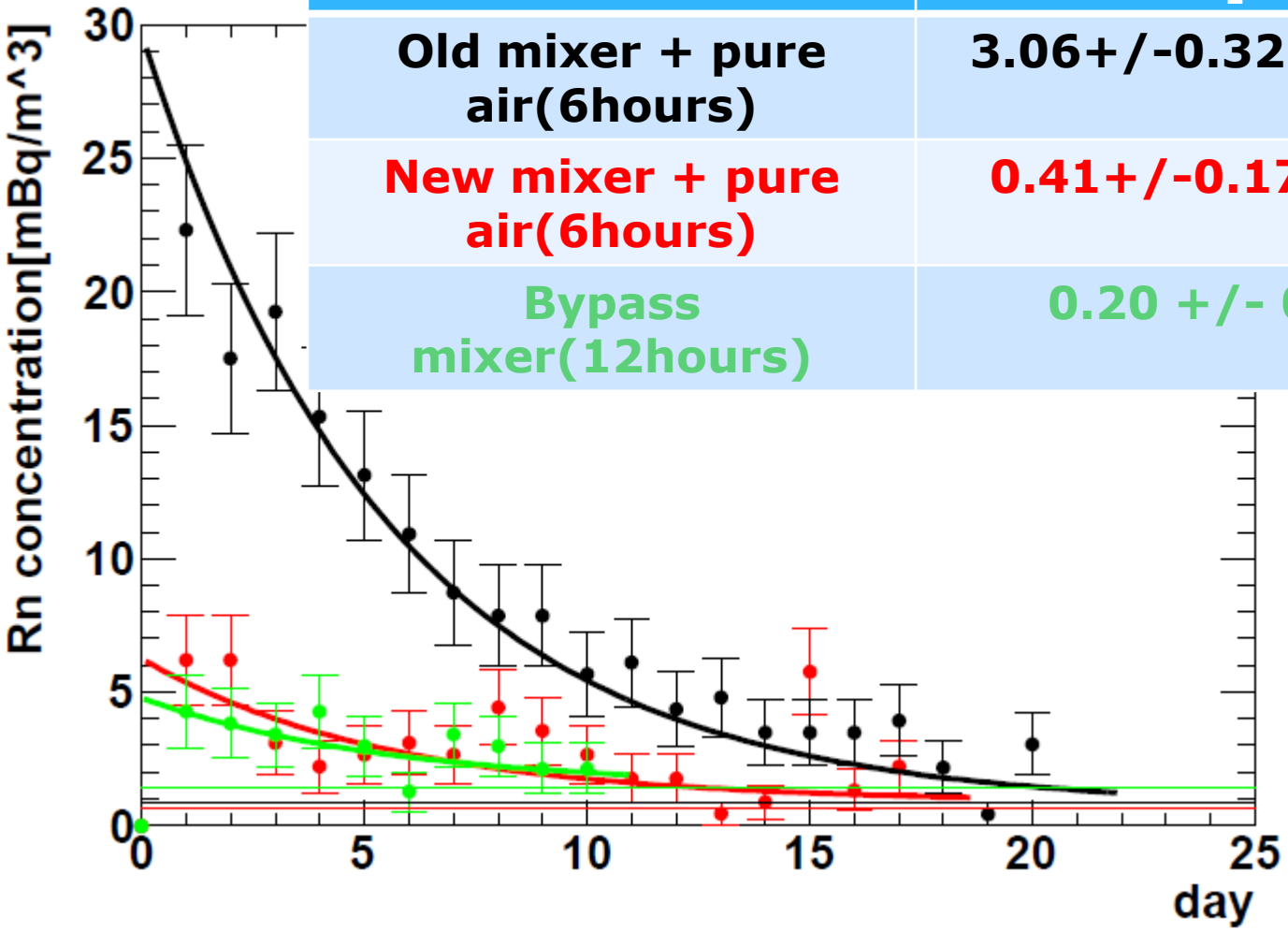
較正結果

- 気液平衡状態(オストワルト係数)との比較効率
- 空気流量と水流量の比の関数
- 気液平衡状態を超えて、より水から空気にラドンが放散



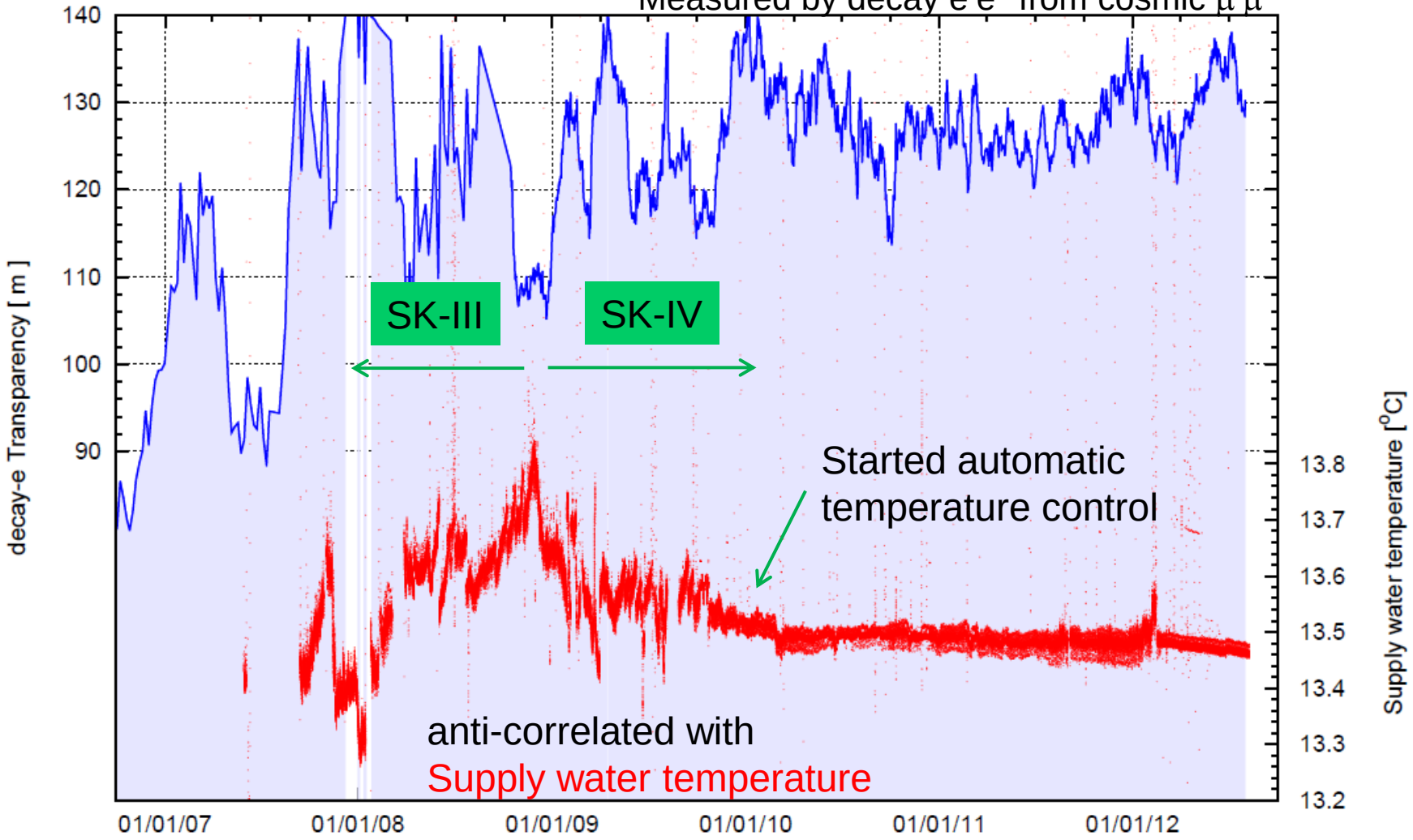
BG測定

Condition(w/o water)	Rn concentration[mBq/m3]
Old mixer + pure air(6hours)	3.06+/-0.32(Black)
New mixer + pure air(6hours)	0.41+/-0.17(Red)
Bypass mixer(12hours)	0.20 +/- 0.14



Super-K water transparency

@ Cherenkov light wavelength
Measured by decay e^-e^+ from cosmic $\mu^-\mu^+$



冷却水による2重PID温度コントロール

- Pure water flow 60t/h →55t/h