

修士学位論文

ハイパーカミオカンデ実験に向けた
常温活性炭の空气中ラドン除去能力の測定

令和6年2月2日

専攻名	物理学専攻
学籍番号	220s112s
氏名	高木 優祐

神戸大学大学院理学研究科博士課程前期課程

概要

2027年に観測開始予定の巨大な水チェレンコフ検出器であるハイパーカミオカンデ (Hyper-Kamiokande, HK) はスーパーカミオカンデ (Super-Kamiokande, SK) の後継機で、建設目的の一つに太陽ニュートリノの高精度観測がある。このような低エネルギーにおける高精度の観測において、環境中に広く存在するラドン-222(^{222}Rn) の娘核がベータ崩壊し、バックグラウンドの原因となることが知られている。よって、HK内の空気中のRnガスの濃度を低く保つ必要があり、 1 mBq/m^3 程度以下のRn除去空気の継続的な供給が求められる。

現在SKでは粒状活性炭を用いたRn除去空気供給装置を使用しているが、HKで同じ装置を使うと規模もコストも大きくなりすぎる。そこで私たちはHKでのRn除去空気供給装置に関して、大きな比表面積や表面の微細構造を持ち近年高いRn除去性能が確認された活性炭繊維 (Activated Carbon Fibers, ACF) や、他の種類の粒状活性炭 (粒状白鷺シリーズ ($G_{2X}7/12$)、太閤シリーズ (TC2B1、TC4B1)) を用いて、Rn除去空気をより小型な装置で供給できないか評価するため、空気中Rn除去能力の試験測定を行った。

その結果、活性炭繊維のRn除去能力は、圧力と正の相関を持っている点が特徴として分かった。しかし使用可能な範囲で圧力を上げても粒状活性炭の方が高いRn除去能力を示した。粒状活性炭のRn除去能力は、粒径が小さい方が高くなり、同じ粒径では太閤シリーズは白鷺シリーズよりも高かった。よって今回測定した中では、太閤シリーズのTC2B1が最も高いRn除去能力を示した。TC2B1を使用してRn除去空気供給装置を作れば、SKのRn除去空気供給装置の約半分の体積で同等の性能を出すことが期待できることが判明した。

目次

第 1 章	本研究の背景	1
1.1	Super-Kamiokande (SK) 実験と Hyper-Kamiokande (HK) 実験	1
1.2	水チェレンコフ実験とラドン (^{222}Rn)	2
1.3	80L Rn 検出器	3
1.4	活性炭 (activated carbon) について	4
1.5	本研究の目的	6
第 2 章	各種活性炭の空气中ラドン除去能力の測定	7
2.1	実験の動機と概要	7
2.2	実験に使用した器具	7
2.3	実験に使用した装置	9
第 3 章	活性炭繊維の解析手法と測定結果	14
3.1	測定の概要	14
3.2	測定結果の一例と解析手法	14
3.3	活性炭繊維の測定結果	16
第 4 章	粒状活性炭の解析手法と測定結果	17
4.1	測定の概要	17
4.2	測定結果の一例と解析手法	17
4.3	粒状活性炭の測定結果	21
第 5 章	結果の考察	23
5.1	活性炭繊維の測定結果の解釈	23
5.2	粒状活性炭の測定結果の解釈	24
第 6 章	まとめと今後の課題	28
6.1	まとめ	28
6.2	今後の課題	29
付録		30
A	活性炭繊維 (ACF) の実験結果のプロット	30
B	粒状活性炭の実験結果のプロット	36
参考文献		44

目次

1.1	Super-Kamiokande	1
1.2	Hyper-Kamiokande	1
1.3	ウラン系列の壊変図	2
1.4	SK で使用されている純空気供給装置	3
1.5	SK で使用されている純空気供給装置での除去能	4
1.6	使用した 80L ラドン検出器	5
1.7	80L ラドン検出器の断面の概略図	5
1.8	80L Rn 検出器での測定結果の一例	5
1.9	粒状活性炭 (太閤、TC2B1)	6
1.10	活性炭繊維 (ユニチカ株式会社,A-20R)	6
1.11	粒状活性炭の表面構造	6
1.12	活性炭繊維の表面構造	6
2.1	超純 PVC カラムの写真	8
2.2	活性炭を詰め込んだ超純 PVC カラムの模式図	8
2.3	ACF 詰め込みに使用した棒	9
2.4	フランジを閉める時に使用したスペーサー	10
2.5	スペーサーを使用しているところ	10
2.6	斜めで詰め込んだ時の PVC カラム 6 の入口の状態	10
2.7	実験装置	11
2.8	使用した給気セット 1	12
2.9	使用した給気セット 2	12
2.10	PVC カラムのバックグラウンドを評価するための装置	13
2.11	PVC カラムのバックグラウンドを評価するための装置図	13
2.12	PVC カラムを通して純空気を 250 mL/min で循環させたときの Rn 濃度	13
2.13	純空気を詰めた Rn 検出器単体のときの Rn 濃度	13
3.1	ACF の測定結果の一例のエネルギースペクトル	15
3.2	出入口での ^{222}Rn 濃度変化を補正した手順	15
4.1	Lab-G で使用した実験装置	18
4.2	CO ₂ モニター	19
4.3	Lab-G でのエネルギースペクトル	19
4.4	粒状活性炭の測定結果の一例 (赤:入口、黒:出口)	20

4.5	入口側測定結果を出口側の形に合うように fit した図	20
4.6	図 4.5 の赤と黒の比を取ったもの	21
5.1	保持時間と流量のプロット	23
5.2	保持時間と流量のプロット (図 5.1) に外挿したもの	24
A.1	活性炭繊維測定 No.1 左図は ^{214}Po の計数で、赤は入口 (実験室空気)、黒は出口、右図は左図の黒/赤、赤線は平均値 上段はずらしなし、下段は濃度の変動から求めた保持時間分時間軸方向にずらしたの後に露点温度から ^{222}Rn 濃度への補正と、bypass 測定結果からの補正をした	30
A.2	活性炭繊維測定 No.2 (図 A.1 と同じ定義)	31
A.3	活性炭繊維測定 No.3 (図 A.1 と同じ定義)	31
A.4	活性炭繊維測定 No.4 (測定 No.4 の開始時刻は上段左図の緑の縦線。それ以前は bypass をとっていた。それ以外については図 A.1 と同じ定義)	32
A.5	活性炭繊維測定 No.5 (図 A.1 と同じ定義)	32
A.6	活性炭繊維測定 No.6 (図 A.1 と同じ定義)	33
A.7	活性炭繊維測定 No.7 (図 A.1 と同じ定義)	33
A.8	活性炭繊維測定 No.8 (図 A.1 と同じ定義。途中エラーでデータのない区間あり。)	34
A.9	活性炭繊維測定 No.9 (図 A.1 と同じ定義)	34
A.10	活性炭繊維測定 No.10 (図 A.1 と同じ定義)	35
A.11	活性炭繊維測定 No.11 (図 A.1 と同じ定義。最初にエラーでデータのない区間あり。)	35
B.1	粒状活性炭測定 No.1 (赤：入口 (Lab-G 空気)、黒：出口) 右図 (左図の黒/赤、赤線は平均値)	36
B.2	粒状活性炭測定 No.2 (図 B.1 と同じ定義)	36
B.3	粒状活性炭測定 No.3 (図 B.1 と同じ定義)	36
B.4	粒状活性炭測定 No.4 (図 B.1 と同じ定義) 途中エラーでデータのない区間あり。	37
B.5	粒状活性炭測定 No.5 (図 B.1 と同じ定義)	37
B.6	粒状活性炭測定 No.6 (上段は図 B.1 と同じ定義。下段は図 4.5 と同じ定義。)	38
B.7	粒状活性炭測定 No.7 (図 B.6 と同じ定義)	39
B.8	粒状活性炭測定 No.8 (図 B.1 と同じ定義) 途中エラーでデータのない区間あり。	39
B.9	粒状活性炭測定 No.9 左図 (赤：入口が測定 No.8 の出口空気である以外は図 B.1 と同じ定義)	40
B.10	粒状活性炭測定 No.10 (図 B.6 と同じ定義で、緑点は省略した。)	40
B.11	粒状活性炭測定 No.11 (図 B.6 と同じ定義で、緑点は省略した。)	41
B.12	粒状活性炭測定 No.12 (図 B.1 と同じ定義)	41
B.13	粒状活性炭測定 No.13 (図 B.1 と同じ定義)	42
B.14	粒状活性炭測定 No.14 (図 B.1 と同じ定義)	42
B.15	粒状活性炭測定 No.15 (図 B.1 と同じ定義)	42
B.16	粒状活性炭 bypass 測定 (上段が測定 No.A、下段が測定 No.B。左右の別については図 B.1 と同じ定義)	43

表目次

2.1	活性炭繊維の各カラム内質量	7
2.2	粒状活性炭の各カラム内質量	8
3.1	活性炭繊維の測定結果	16
4.1	粒状活性炭の測定結果	22
5.1	活性炭繊維の測定結果（表 3.1 より一部抜粋）	25
5.2	粒状活性炭の測定結果（表 4.1 より一部抜粋）	25
5.3	粒状活性炭の測定結果 2（表 4.1 より一部抜粋）	25
5.4	太閤 TC2B1 の測定結果（表 4.1 より一部抜粋）	26
5.5	白鷺 G _{2X} 7/12 の測定結果（表 4.1 より一部抜粋）	27

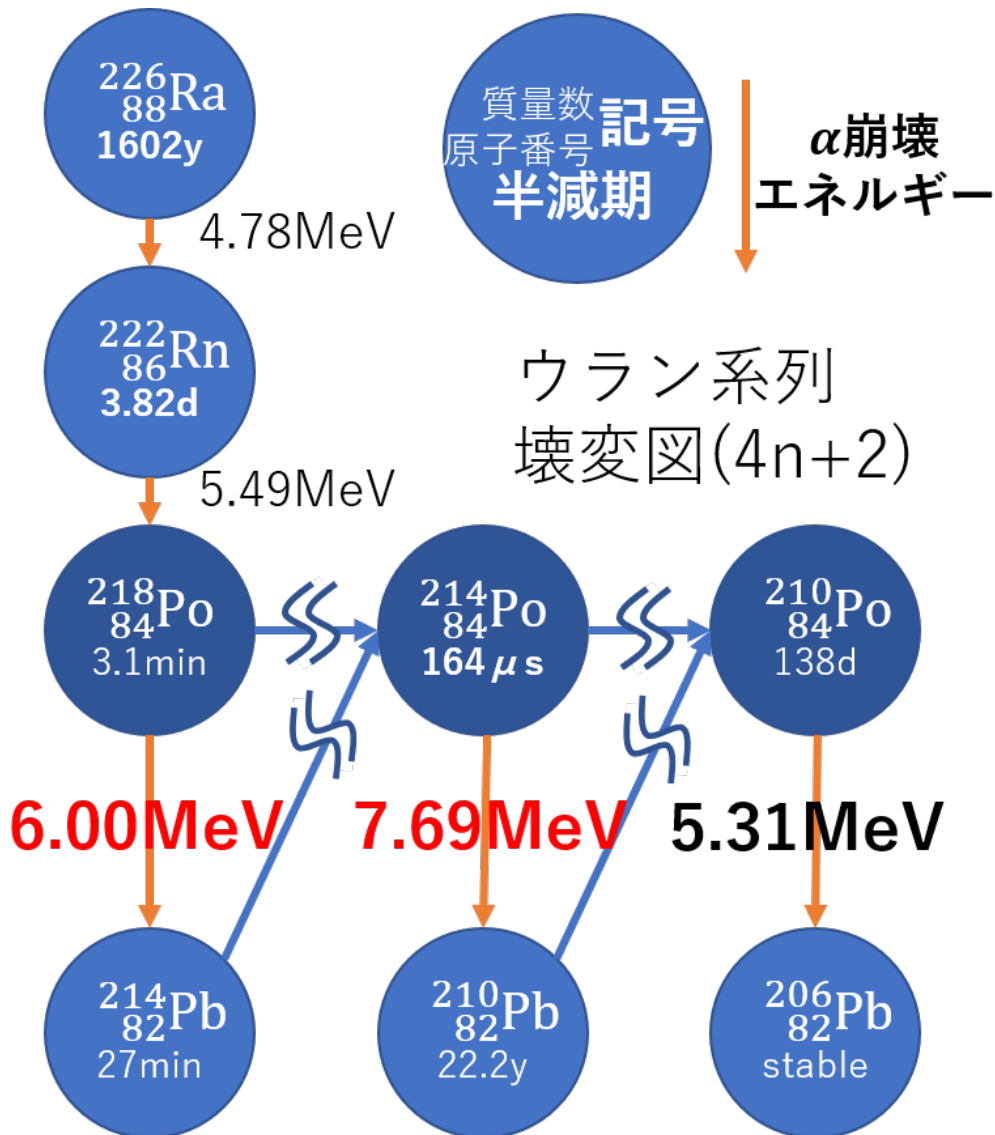


図 1.3: ウラン系列の壊変図

1.2 水チェレンコフ実験とラドン (^{222}Rn)

1.2.1 HK 実験とラドン (^{222}Rn) について

水チェレンコフ実験、特に感度の上がる HK 実験では太陽から飛来するニュートリノを観測することにより、ニュートリノ振動パラメータをより精度よく決定することを目的の一つとしている。ニュートリノを精度よく観測するためにはバックグラウンド源を削減する必要がある。この観測における主要なバックグラウンド源の一つに、ウラン系列のラドン (^{222}Rn) がある。 ^{222}Rn は、半減期 3.82 日の放射性貴ガス元素であり、自然界では固体表面に含まれる ^{226}Ra の崩壊によって空気中に供給される。 ^{222}Rn は図 1.3 のように α 崩壊し、その娘核は β 崩壊する。これが太陽ニュートリノ観測でのバックグラウンドとなってしまうため、元となる ^{222}Rn が検出器内で低い状態を保つ必要がある。よって、HK 内の空気中の Rn ガスの濃度を低く保つ必要があり、1 mBq/m³ 程度以下の Rn 除去空気の継続的な供給が求められる。

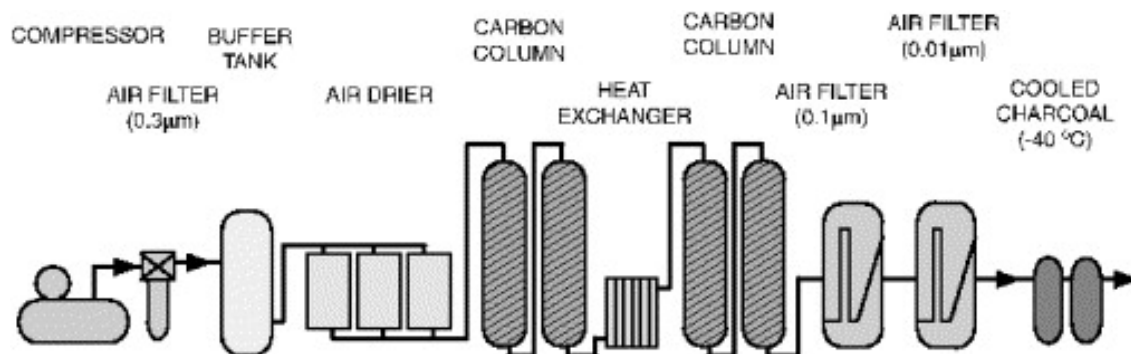


図 1.4: SK で使用されている純空気供給装置 ([5] より引用)

1.2.2 物体表面からの ^{222}Rn の放出と表面

1.2.1 で述べた通り、 ^{222}Rn は物体表面から継続的に放出される。高い感度で ^{222}Rn を測定する場合にも、 ^{222}Rn 濃度を低い値に保つ場合にもこの表面からの放出を防ぐことは重要である。この放出を防ぐための表面加工方法の一つに、ステンレスの電解研磨 (electropolished steel use stainless、SUS EP) がある。本論文で使用されるステンレスの部材の内部はこの電解研磨を施している。

1.2.3 SK 実験における空气中ラドン除去方法

SK 検出器運用において、常時供給される空气中から ^{222}Rn を取り除くために、図 1.4 の装置が使用されている。この装置はコンプレッサ、バッファータンク、ドライヤー、フィルター、活性炭で構成されており、コンプレッサによって取り込まれた $18 \text{ Nm}^3/\text{hour}$ の外気がフィルターによって不純物を取り除かれ、ドライヤーで乾燥後に活性炭容器内に送り込まれる。活性炭内では 1.4 節で述べる活性炭の吸着剤としての性質を用いて ^{222}Rn をカラム内に保持する。節 1.2.1 で述べた通り ^{222}Rn は半減期 3.82 日で崩壊するので、保持時間の長さが除去能につながる。また同図の CARBON COLUMN には計 8 m^3 の常温の活性炭が、COOLED CHARCOAL には吸着効率を向上させるために -60°C [3] に冷却された活性炭が入っている。図 1.5 に示されるように、SK ではこの装置を用いて、外気と同程度であるタンク上ドームの空气中ラドン濃度 \square と常温活性炭で処理を行った空气中ラドン濃度 \blacktriangle を比較し $40 \text{ Bq/m}^3 \rightarrow 20 \text{ mBq/m}^3$ と $1/2000$ 程度に減少させていることがわかる [4]。

1.3 80L Rn 検出器

^{222}Rn 濃度を低い状態で維持しそれを確認するためには、継続的に ^{222}Rn 濃度を測定する必要がある。

本論文の実験で使用した Rn 検出器 [6, 7, 3] は図 1.6 のような形状であり、図 1.7 のような構造になっている。この検出器は外部から高電圧をかけると検出器全体と PIN フォトダイオード間で電位差が生じるようになっている。 ^{222}Rn の娘核である Po は正に帯電しやすいため、検出部である PIN フォトダイオード表面に Po イオンが集まる静電捕集が起きるような構造となっている。これにより PIN フォトダイオード表面で Po が α 崩壊して出た荷電粒子を高確率で観測することができ、核種毎の α 粒子のエネルギーピークが現れる。

この検出器の実際の測定結果の一例として図 1.8 のようなスペクトルが挙げられる。横軸は ADC のチャンネルで信号のエネルギーに対応しており、縦軸は各エネルギーごとの一日当たりの計数となっている。各ピークがそれぞれ核種に対応しているが、黒字の核種は 1.2.1 節で述べたウラン系列の核種で、赤字の核種はウラン系列より質

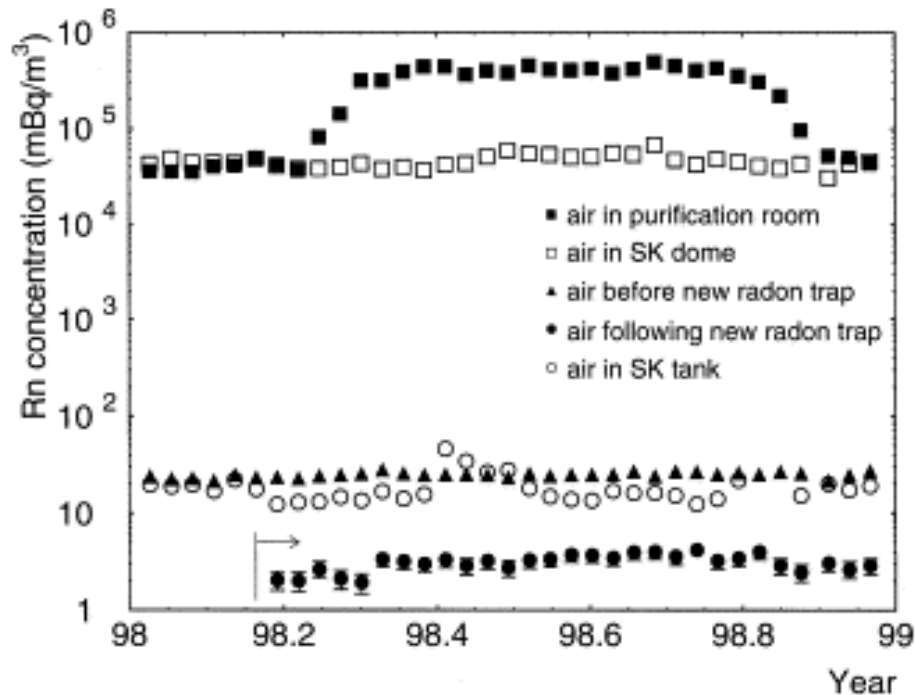


図 1.5: SK で使用されている純空気供給装置での除去能 ([4] より引用。それぞれ、□ が SK ドーム (外気と同程度) の空気、▲ は常温活性炭でラドンを除去した空気、● は更に冷却活性炭を使用してラドンを除去した空気のラドン濃度

量数が 2 小さいトリウム系列の核種である。この Rn 検出器において ^{214}Po の計数から ^{222}Rn の濃度への変換を行うための較正係数 $C_f[(\text{counts}/\text{day})/(\text{mBq}/\text{m}^3)]$ は絶対湿度 $A_H(\text{g}/\text{m}^3)$ と $C_f = 2.25 - 0.29\sqrt{A_H}$ の関係を持っていることが先行研究 [3] で分かっている。そこで ^{214}Po の ADC channel の範囲をこのスペクトルであれば 120 から 155 のように選択し積分することで ^{214}Po の計数率を求め、そこから ^{222}Rn の濃度を導出することができる。また、絶対湿度は露点温度と気温から以下の式 [8] で求めることができるので、濃度への変換には露点温度と気温も必要となる。

$$\ln(e) = -6096.9385 \times T^{-1} + 21.2409642 + -0.02711193 \times T + 1.67395 \times 10^{-5} \times T^2 + 2.433502 * \ln(T) \quad (1.1)$$

$$D = e \times \frac{0.00794}{1 + 0.00366 \times t} \quad (1.2)$$

ただし、 D : 絶対湿度 (g/m^3)、 t : 気温 ($^{\circ}\text{C}$)、 e : 水蒸気圧 (Pa)、 T : ケルビン表記の露点温度 (K) である。

1.4 活性炭 (activated carbon) について

活性炭とは、表面が多孔質になっており孔より小さな粒子が孔の中に入ることによって分子間力による物理吸着を起こす炭素を主成分とした吸着剤である。比表面積 (活性炭 1g あたりの表面積) によって吸着可能な物質の量が、孔径の違いによって主な吸着対象が異なる [9]。

1.4.1 粒状活性炭 (granular activated carbon)

粒状活性炭とは活性炭の一種で、図 1.9 のように粒状のものを指す。表面構造は図 1.11 のように大きい方からマクロ・メソ・ミクロポアからなる孔がある形になっており、粒子はメソ・ミクロポアに辿りつき吸着される。本



図 1.6: 使用した 80L ラドン検出器

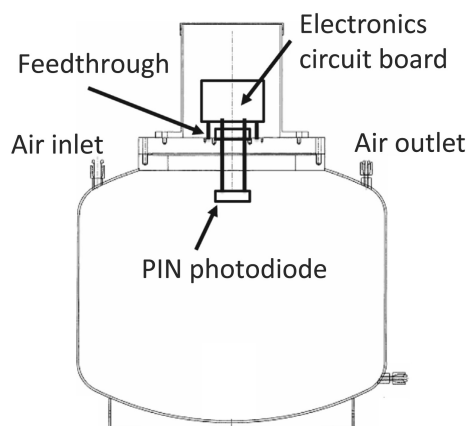
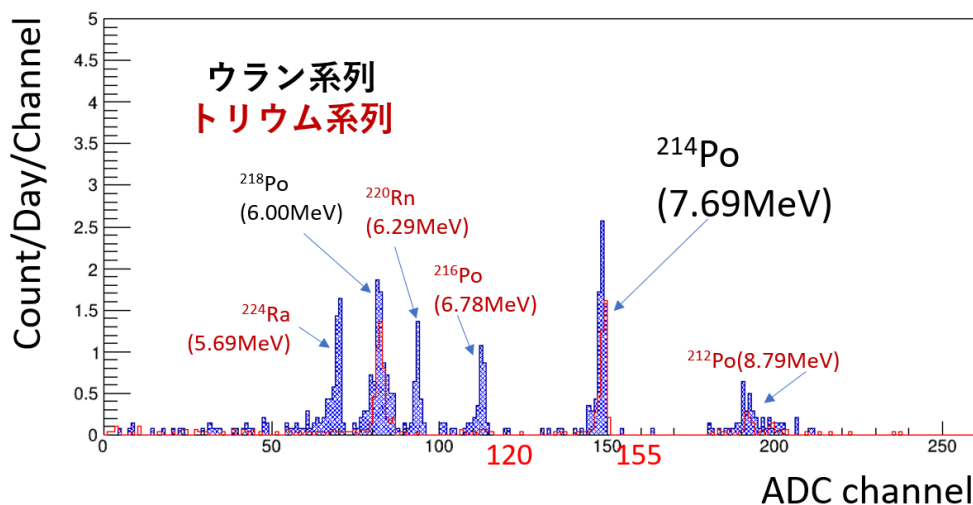
図 1.7: 80L ラドン検出器の断面の概略図
([3] より引用)

図 1.8: 80L Rn 検出器での測定結果の一例

研究で使用した粒状活性炭は、大阪ガスケミカル株式会社の粒状白鷺 $G_{2X}7/12$ [10]、フタムラ化学株式会社の太閤 TC2B1、TC4B1 (元々は株式会社ツルミコールの商品で、型番はそれぞれ 2GM、4GM であった。本文執筆時点で引用文献にはこちらの名前が使われている。) [11] の 3 種類である。

1.4.2 活性炭繊維 (Activated Carbon Fibers, ACF)

活性炭繊維とは、1.4.1 節で述べた粒状活性炭とは形状の異なる活性炭である。外見は図 1.10 のような綿のような形状をしており、比表面積が大きく図 1.12 のようにミクロポアと呼ばれる小さい孔が表面に直接開いていて粒状活性炭とは異なる表面構造をもった吸着剤である。また本研究で使用したユニチカ株式会社 [12] の A-20R は放射



図 1.9: 粒状活性炭 (太閤、TC2B1)



図 1.10: 活性炭繊維 (ユニチカ株式会社、A-20R)

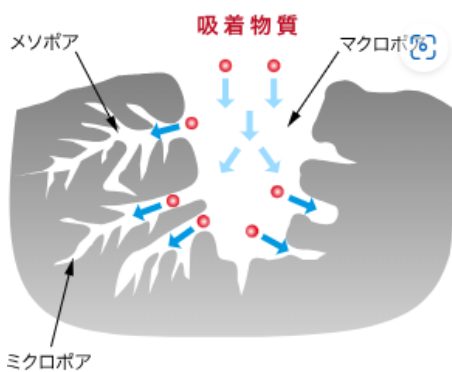


図 1.11: 粒状活性炭の表面構造 ([14] より引用)

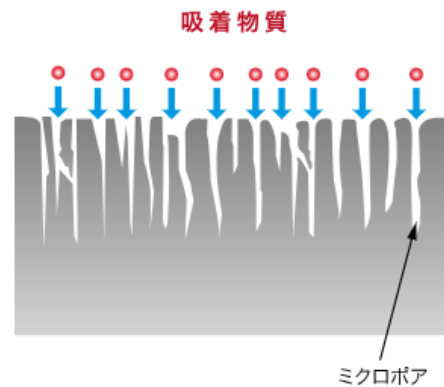


図 1.12: 活性炭繊維の表面構造 ([14] より引用)

性不純物濃度が低く、高い Rn 吸着能力を持つことが先行研究 [13] により示されている。

1.5 本研究の目的

1.1 節で述べた通り、HK は SK と比べて体積が約 5 倍の装置になるため、Rn 除去空気の流量もこの 5 倍を確保する必要があり、1.2.3 節で述べた装置を HK でも用いるのであれば 5 倍の空間を占めることになる。そのため常温活性炭の占める体積は 40 m^3 となる。

SK の装置ではツルミコール 4GM (太閤活性炭 TC4B1 相当) が使用されているが、可能であれば HK ではこの部分をより種類の活性炭に変更することで装置をなるべく小型にしたい。そこで各種活性炭の各環境におけるラドン除去能力を測定する。

第 2 章

各種活性炭の空气中ラドン除去能力の測定

2.1 実験の動機と概要

本章では、本実験における各種活性炭の Rn 除去能力の測定手法について述べる。

またその解析手法と結果を活性炭繊維（3 章）と粒状活性炭（4 章）について後の章でそれぞれ述べる。

2.2 実験に使用した器具

2.2.1 活性炭を封入する容器（PVC カラム）

本実験では図 2.1 の超純 PVC（ポリ塩化ビニル）カラム（200A AV 超純パイプ VP 旭有機材製 2000L[15]）にアサヒ 200A JIS 5K TS フランジ [16] を接合、ステンレス製のフランジ（200A JIS 5K FF フランジ [17]、内側は #400 パフ研磨、電解研磨（日章アステック株式会社）されたもの）で蓋をしたものを 6 本用意した。ステンレスフランジ部分には配管用に 1/2 インチの SUS EP 管が溶接されている。1.4 節で述べたように ^{222}Rn は活性炭表面に吸着するため、水分子が吸着していると ^{222}Rn の除去能が下がってしまう。そのためこれらのカラム中に活性炭を詰めた後に、真空引きまたは乾燥空気のパーズを行い除湿してから実験に使用した。

カラムの寸法は図 2.2 に示した通りで、径が 200A（内径 194mm）、長さが 2m で、容積は約 59L となっている。1.5 節で述べた通り、SK で使われている常温活性炭部分は計 8 m^3 、流量は $18\text{ Nm}^3/\text{hour}$ なので、1 本あたり $18\text{ Nm}^3/\text{hour} \div (8\text{ m}^3 \div 59\text{ L}) = 0.13\text{ m}^3/\text{hour} = 2.2125\text{ L}/\text{min}$ の空気の ^{222}Rn 濃度を 1/2000 にすれば SK で使用されている常温活性炭と同等の性能であるといえる。これは PVC カラム 8 本あたりで言うならば $17.7\text{ L}/\text{min}$ である。図 2.2 に示す通り、活性炭が配管に漏れないように両端に図 1.9 のステンレスボウル（パール金属株式会社、HB-1641[18]、1 つあたり約 120g）で蓋をした状態で活性炭を詰め込み使用した。本研究では PVC カラム 1~4 に表 2.1 に示した質量の活性炭繊維を封入して使用した（ただし測定時まで外気に触れていたため、空気中の湿気を吸った状態の活性炭繊維の質量である）。また粒状活性炭については PVC カラム 2',3',4',5,6 に表 2.2 に示した通りの組み合わせで封入し使用した（活性炭繊維と同様空気中の湿気を吸った状態、また 2',3',4' については前述の活性炭繊維を取り出した後表面を空拭きし PVC カラムを再利用した）。

表 2.1: 活性炭繊維の各カラム内質量

PVC カラム	1	2	3	4
活性炭種類	A-20R	A-20R	A-20R	A-20R
活性炭質量 (kg)	4.65	4.15	4.75	4.80

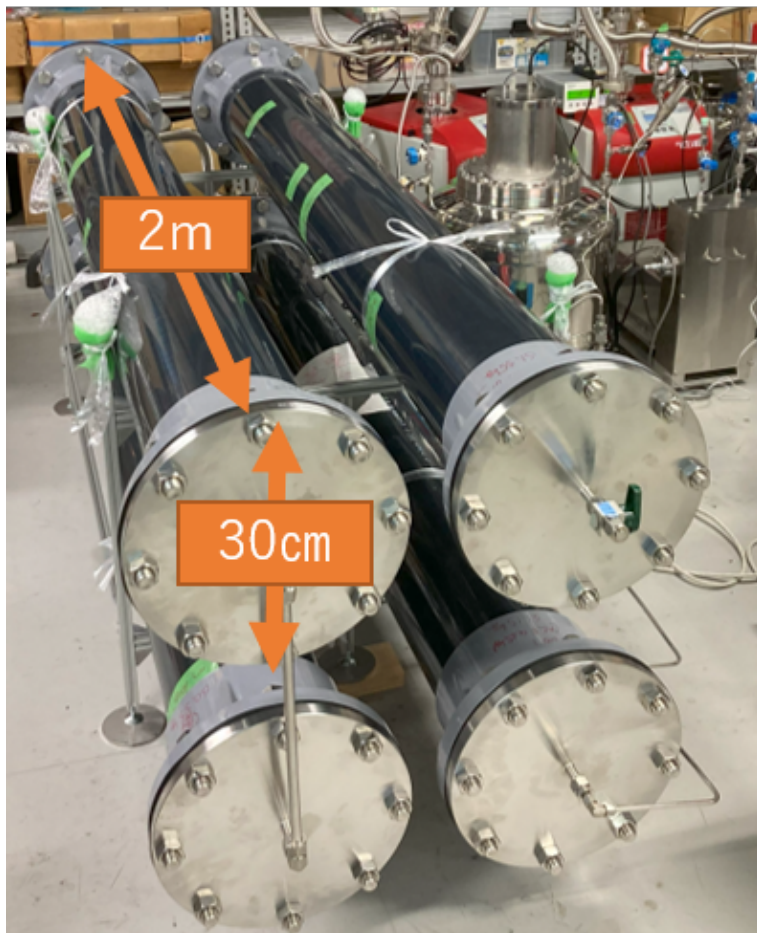


図 2.1: 超純 PVC カラムの写真

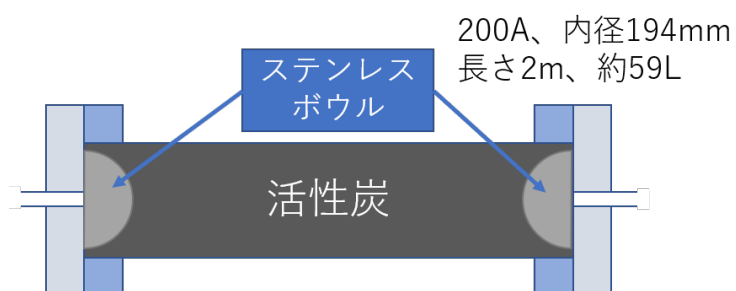


図 2.2: 活性炭を詰め込んだ超純 PVC カラムの模式図

表 2.2: 粒状活性炭の各カラム内質量

PVC カラム	2'	3'	4'	5	6
活性炭種類	G _{2X} 7/12	TC2B1	TC2B1	TC4B1	G _{2X} 7/12
活性炭質量 (kg)	26.45	26.95	26.85	23.35	23.55



図 2.3: ACF 詰め込みに使用した棒

2.2.2 活性炭の具体的な封入方法

活性炭の封入は、基本的に一方のフランジを閉めた状態でもう一方の口からステンレスボウル→活性炭→ステンレスボウルの順でカラム内に入れてフランジを締めるといった形で行った。フランジのボルトは 80 N·m で締め、特に PVC カラム 1 についてはヘリウムリークディテクターを使用しリーク量が $3.0 \sim 4.0 \times 10^{-11} \text{ m}^3 \cdot \text{Pa/s}$ 程度に抑えられていることを確認した。後述のバックグラウンド測定で PVC カラムを入れた影響が見られなかったため、以降の PVC カラムのフランジ締め付けについても 80 N·m で統一し実験に使用することにした。また活性炭繊維については、綿状であるため強く押し込むと反発して溢れだしてきた。しかし表面積を増やすためにはなるべく多くの活性炭繊維が中に入ることが望ましい。そこで活性炭繊維をカラム内に入れる時は活性炭繊維を適量（一つかみ程度）入れた後図 2.3 のような棒を使って強く押し込む、という作業を繰り返した。また図 2.4, 2.5 に示したスペーサーとステンレス板を使用してフランジを閉める時に ACF がこぼれないようにした。

粒状活性炭の封入は反発はないが、繊維のように絡み合っていないのでフランジを締める直前はバランスを崩すと容器内から粒が転がり出してしまう。PVC カラム 5, 6 については斜め、2', 3', 4' については鉛直に立てて入れたため、特に PVC カラム 5, 6 についてはわずかな空洞（特に PVC カラム 6 は図 2.6 の状態でフランジを締めた。最も深いところで入口から 10.2cm 程度の隙間がある）ができ、完全に詰め切ることはできなかった。

2.3 実験に使用した装置

測定段階に応じて細かな配管やモジュール配置の変更はあったが、概ね図 2.7 に示すような装置を使用した。緑色の ⊗ はバルブ、太い黒線は 1/2 インチのステンレス直管、細い鼠色の線は 1/4 インチのフレキシブルなステンレス管またはステンレスの直管である。

露点計（VAISALA DMT152[19]）は 1.3 節で述べたように較正係数の導出に必要な露点温度を測るために導入されている。

フィルターは配管や排気に活性炭の粉末が、Rn 検出器内に Po イオンが入らないように入れてある。排気には SMC 株式会社の SFB100-02[20]、No1 80L Rn 検出器には SMC 株式会社の SFB102-02、No2 80L Rn 検出器に

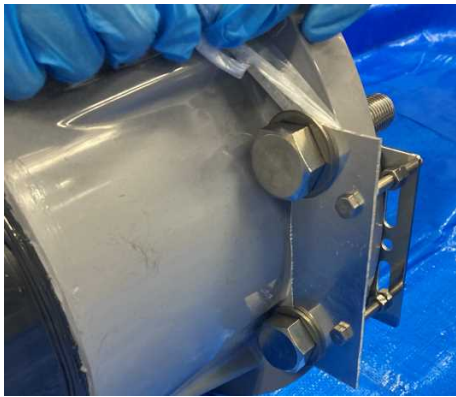


図 2.4: フランジを閉める時に使用したスペーサー



図 2.5: スペーサーを使用しているところ



図 2.6: 斜めで詰め込んだ時の PVC カラム 6 の入口の状態

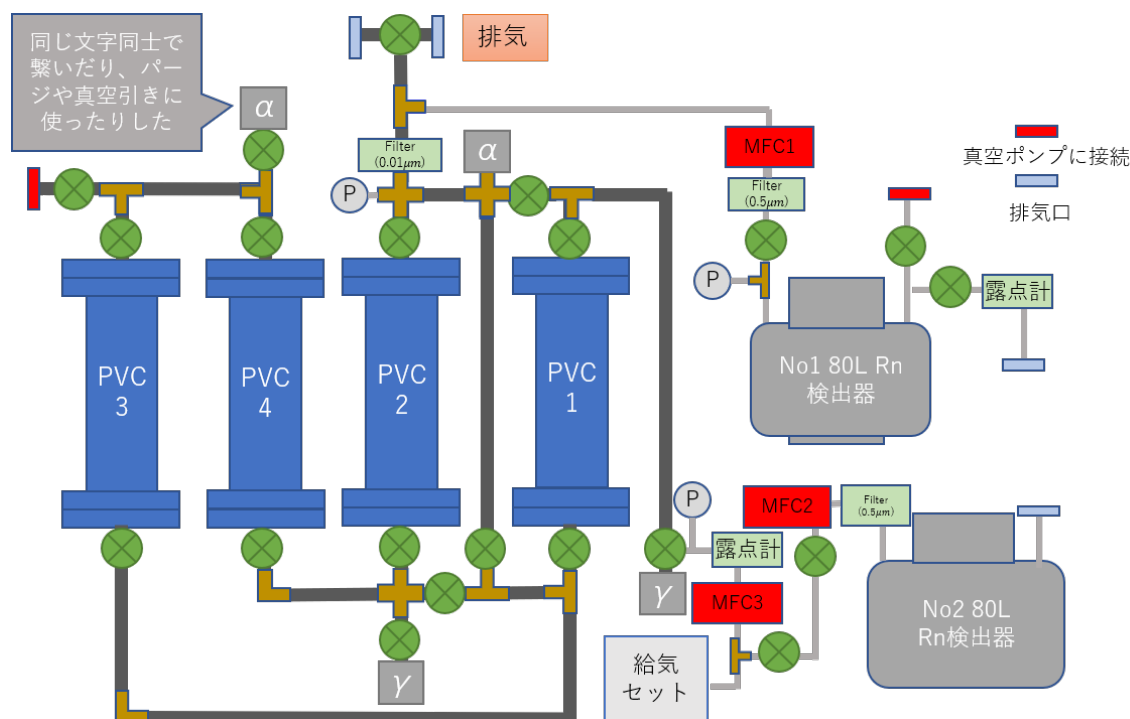


図 2.7: 実験装置

はスウェーデン社の SS-4FWS-VCR05[21] を使用した。

MFC とはマスフローコントローラーの略称で、PVC カラム、Rn 検出器に流れる空気の流れを一定にするために使用した。

実験前に活性炭についている水分やラドンを取り除くために真空ポンプ 2 種類を使用した。水分に耐性があり 2Pa 程度まで引けるドライスクロールポンプと 0.01Pa 程度まで引けるターボ分子ポンプ (Pfeiffer Vacuum Hicube 80 Classic, DN 40 ISO-KF, MVP 070[22]) である。

給気セットと書いてある部分は図 2.8 と図 2.9 に示すような 2 種類の装置を使用した。前者はコンプレッサと除湿モジュールが一体になっているもの (アイ・エイ・シー株式会社 クリーンエアコンプレッサ P6-QD20[23])、後者はコンプレッサ、除湿、除 CO₂ のモジュールが別になっているもの (0.2LE-8S 日立コンプレッサ [24]、HDN-15BE 日立 エアードライヤー [25]、Parker FT-IR パージガスジェネレータ (除湿・除 CO₂) [26]) になっており、後者は SK で純空気供給装置に使用されているものの小型装置である。給気セット部分から送られた乾燥空気が PVC カラム 1~6 の中を通り (通らずバイパスを抜けていく場合は 0 と表記)、PVC カラム通過前後で同量の空気を採取し 80L Rn 検出器でラドン濃度の比較をすることによって各活性炭の Rn 除去能力を測定することができる装置になっている。またバルブの調節や MFC によって PVC カラム内の圧力や流量を調節できるようになっており、各種条件下 (カラム 0~4 本、+20~+370 kPa、2.5~18 L/min 程度) での ²²²Rn 除去能力を測定した。

2.3.1 PVC カラムのバックグラウンド測定

1.2.2 節で述べた通り、装置部材表面からの ²²²Rn 放出が多いと測定に影響が出てしまう。なので、2.2.1 節のカラムの内側表面から ²²²Rn の放出量を確認しておく必要がある。そこで、図 2.10 のような装置を用意した。この装置は図 2.11 のような接続になっており、真空引き後に純空気 (太陽日酸 G1 CO、CO₂、THC が体積比 1000 万分の 1 以下、NO_x、SO₂ が体積比 1 億分の 1 以下、露点温度 -80°C 以下である空気 [27]) で装置内を満たしてあ

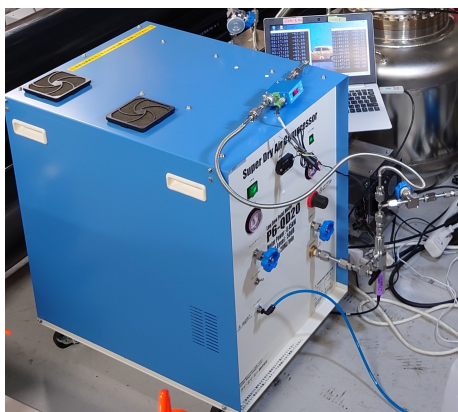


図 2.8: 使用した給気セット 1
アイ・エイ・シー株式会社
クリーンエアーコンプレッサー P6-QD20



図 2.9: 使用した給気セット 2

る。そしてバルブを操作し、装置図青矢印の経路で PVC カラムを通して 250 mL/min で純空気を循環させ、 ^{222}Rn 濃度の測定を行った。これにより PVC カラムを通したことによる濃度の変化を確かめた。

PVC カラムを通した場合の測定を行った結果の図 2.12 と、純空気で密封した Rn 検出器単体の測定結果の図 2.13 を比較したところ、それぞれ $(0.69 \pm 0.25) \text{ mBq/m}^3$ 、 $(0.73 \pm 0.45) \text{ mBq/m}^3$ と、 ^{222}Rn 濃度は大きく変わっていないことがわかる。このことと本実験での典型的な ^{222}Rn 濃度が $1000 \sim 20000 \text{ mBq/m}^3$ であることから、PVC カラム由来のバックグラウンドは無視できるものとして以降の解析を行う。

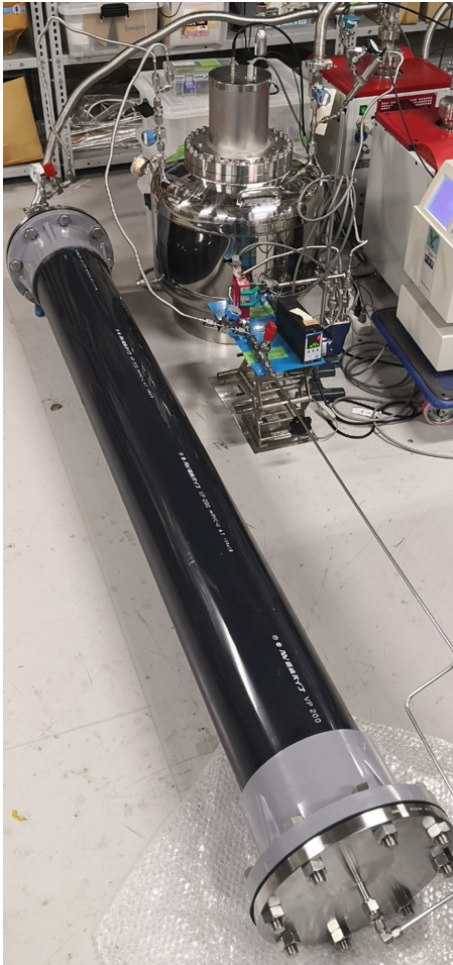


図 2.10: PVC カラムのバックグラウンドを評価するための装置

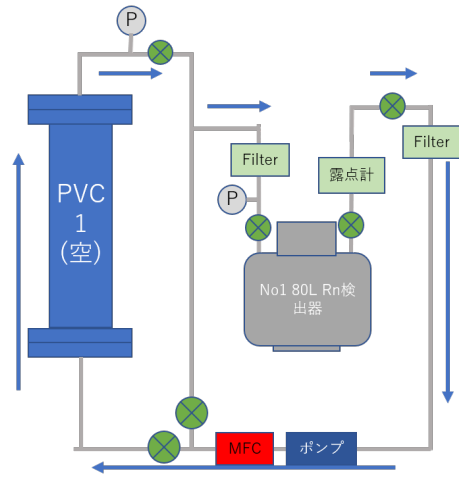


図 2.11: PVC カラムのバックグラウンドを評価するための装置図

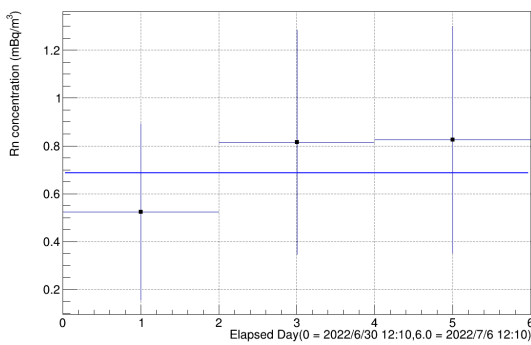


図 2.12: PVC カラムを通して純空気を 250 mL/min で循環させたときの Rn 濃度

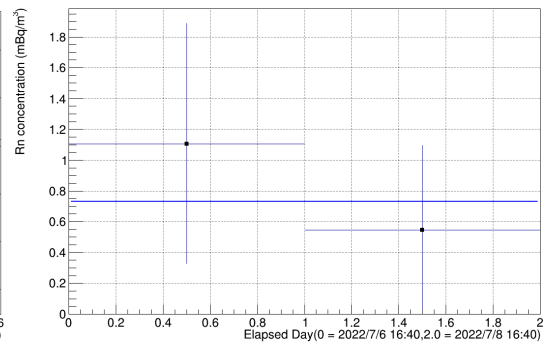


図 2.13: 純空気を詰めた Rn 検出器単体のときの Rn 濃度

第 3 章

活性炭繊維の解析手法と測定結果

3.1 測定の概要

ACF の ^{222}Rn 除去能力の測定は、2.3 節で説明した図 2.7 の装置を用いて、2.2.1 節で述べたように PVC カラム 1~4 に表 2.1 の通りの ACF (1.4.2 節、ユニチカ株式会社 [12] の A-20R) を封入して行った。出口側の Rn 検出器には-2.0kV、入口側の Rn 検出器には-1.0kV を印加した。場所は神戸大学の自然科学研究棟 3 号館の実験室、期間は 2022 年の 8 月 30 日~12 月 19 日にかけて行った。

3.2 測定結果の一例と解析手法

活性炭繊維での測定の一例として、図 3.1 のように入口 (赤) と出口 (青) の各娘核の崩壊信号が得られている。1.3 節で述べたように、トリウム系列の ^{212}Po が ADC channel 230~250 付近に見られるが、本測定においてはラドン系列に比べて 1/10000 ほど計数が少ない。よって ^{218}Po と ^{214}Po のピークの間にあるはずの ^{220}Rn や ^{216}Po のピークを回避するよりも ^{214}Po の計数を確保した方が精度が上がると判断し、 ^{214}Po の範囲の決定にはそれぞれ ^{214}Po 、 ^{218}Po のピーク位置の +5 の値を使用した。(青、出口が 110~183、赤、入口が 122~200) 本実験でのピーク位置は検出部や電気回路、静電捕集のためにかけた高電圧等が変わらない限り基本的に変わらないため、活性炭繊維での測定では共通してこの範囲を使用している。

図 3.2 の左上図は、入口 (赤) と出口 (黒) の Rn 濃度の時間変化のプロットになっている。横軸 0 で PVC カラム 1 の流量を 5 L/min、出口圧力 +25 kPa に変更し測定を開始しているが、この図の赤色の入口側プロットから、外部環境によって入口濃度が上下するのがわかる。出口側も濃度が上下しているが、入口側とピーク位置がずれている。そこで図 3.2 の左下に示すように入口側のプロットを時間軸方向にずらすことによってピーク位置が揃うことがわかる。これは PVC カラム内に流入した ^{222}Rn が活性炭繊維への吸着と脱着を繰り返し、出ていくまでにずらした分の時間がかかっていることを示していると考えられる。流入 ^{222}Rn と流出 ^{222}Rn について、 ^{222}Rn 残留率を評価するために同じ時期に系に入ったものを比較するべきである。よって図 3.2 の左下のように補正を行い、同図右下のように出口濃度を入口濃度で割った後平均値を取り、1 本もカラムを通さなかった (バイパス) 測定との比を取ることで ^{222}Rn の残留率を評価した。測定 No.1~9 ではバイパス値 0.928 ± 0.006 を、測定 No.10 と 11 ではバイパス値 1.174 ± 0.007 を使用した。このバイパス値の差は出口側の 80L Rn 検出器を別のものに変更したことが主な原因である。また測定 No.1~9 では給気セット 1 を使用し、測定 No.10 と 11 では給気セット 2 を使用した。このずらした時間はカラム内に入ったラドンを保持している時間に対応するので、以降、このずらし時間を「保持時間」と呼ぶ。各測定において適切な保持時間は、図 3.2 の右下図の縦軸を y とし $y=C$ (定数) で fit した時に χ^2/NDF が最も小さくなるような値を取った。この保持時間分 ^{222}Rn (半減期 3.82 日) が PVC カラム内に留まる。1.2.3 節で述べた通り、その時間分 ^{222}Rn はカラム内で崩壊するので、この保持時間と除去能には相関があ

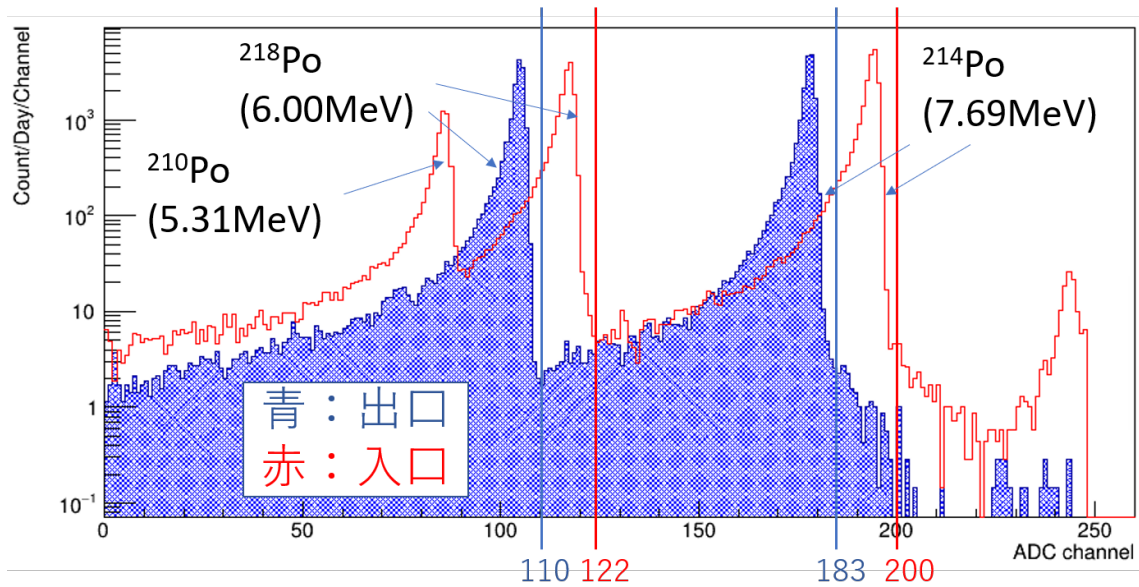


図 3.1: ACF の測定結果の一例のエネルギースペクトル
(2022/09/13 16:10 ~ 2022/09/21 16:10 のデータ)

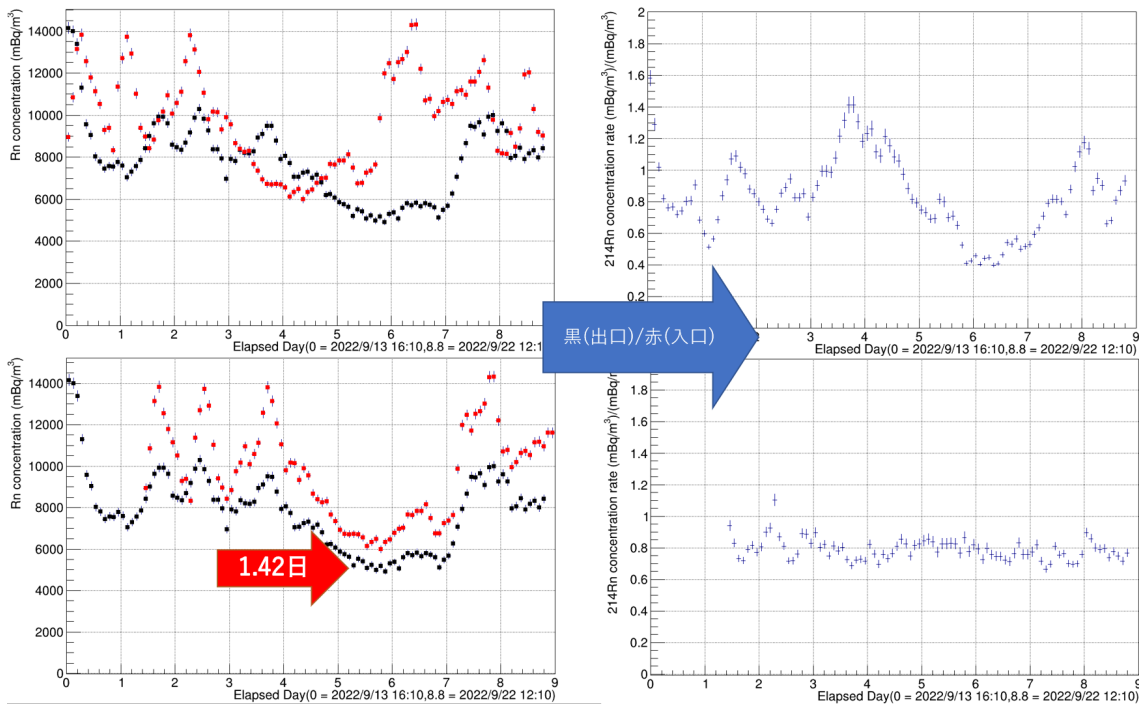


図 3.2: 出入口での ^{222}Rn 濃度変化を補正した手順
 入口 (赤) と出口 (黒) の ^{222}Rn 計数 (左上図)
 左上図で入口計数で出口計数を割ったもの (右上図)
 左上図の入口計数を時間軸方向に 1.42 日ずらしたもの (左下図)
 左下図の入口計数で出口計数を割ったもの (右下図)
 (2022/09/13 16:10 ~ 2022/09/21 16:10 のデータ)

ると予想される。その式は

$$R = 2^{-T/\tau} \quad (3.1)$$

と表される。ここで、

R : ^{222}Rn 残留率

T : 保持時間 (日)

τ : ^{222}Rn の半減期 3.82 日

である。

ここで 2.2.1 節で述べた SK に使用している常温活性炭部分では空気中 ^{222}Rn 濃度を 1/2000 に減らしていた。これを保持時間に直すと、 ^{222}Rn 濃度約 1/2000 を (3.1) 式に代入し、保持時間は $T/\tau = \log_2 2000 \rightarrow T \simeq \tau \times 11 = 3.82 \times \log_2 2000 \simeq 42$ (日) に相当する。よって 8 本あたり 17.7L/min で 42 日の保持時間を達成できることを示せばよい。

3.3 活性炭繊維の測定結果

3.2 節で述べた解析によって、各環境での測定について表 3.1 のような結果が得られた。ただし PVC カラ

表 3.1: 活性炭繊維の測定結果

測定 No.	PVC カラム	出口差圧 (kPa)	流量 (L/min)	^{222}Rn 濃度の 変動から求めた 保持時間 (日)	^{222}Rn 残留率 (%)	残留率から 求めた 保持時間 (日)
1	1	25	2.5	2.99	63.36±0.51	2.52
2	1	25	5	1.38	80.78±0.71	1.18
3	1	25	9	0.76	92.04±0.67	0.46
4	1	25	18	0.42	90.37±0.8	0.56
5	1	240	7.7	1.89	77.39±0.57	1.41
6	1	240	14.8	0.97	97.6±0.91	0.13
7	1+2	240	15	1.85	83.35±0.66	1
8	1+2+3+4	180	16.6	3.02	64.79±0.56	2.39
9	1+2+3+4	240	15	3.86	60.27±0.47	2.79
10	1	240	9.8	1.53	79.13±0.67	1.29
11	1	375	11	1.71	70.83±0.61	1.9

△ 1+2+3+4 とは、空気が PVC カラム 1 から 4 の中を順に通るようにして測定したことを示している。また表の一番右列、残留率から求めた保持時間とは、(3.1) 式を用いて ^{222}Rn 残留率から求めたものである。(3.1) 式をそのまま使うと ^{222}Rn 濃度の変動から求めた保持時間と ^{222}Rn 残留率から求めた保持時間は食い違ってしまう。このずれについては保持時間・残留率の誤差を評価した上で評価する必要がある。また、 ^{222}Rn 濃度の変動から求めた保持時間には影響が小さく ^{222}Rn 残留率から求めた保持時間に影響を大きく与えられ要素として、測定開始時に既に活性炭繊維内に含まれていた ^{222}Rn の影響が挙げられる。よって以下では ^{222}Rn 濃度の変動から求めた保持時間を使用して評価を行う。表 3.1 から流量と圧力、PVC カラムの本数によって異なる保持時間が得られているのがわかる。

各測定データは付録 A に示した。

第 4 章

粒状活性炭の解析手法と測定結果

4.1 測定の概要

粒状活性炭の ^{222}Rn 除去能力の測定は、基本的に 3 節と同様の手法で、2.2.1 節で述べたように PVC カラムに表 2.2 の通りの粒状活性炭を封入して行った。場所ははじめ神戸大学の自然科学研究棟 3 号館の実験室で行っていたが、給気セット 2 の使用可能温度が 25°C 以下である点と、HK でのラドン除去空気供給装置使用場所が坑内である点から、SK 実験の行われている坑道内にある坑内実験室 G (Lab-G) に移動して行った。Lab-G では図 2.7 のような構造の図 4.1 の装置を使用して測定を行い、移動によって気温 17°C 前後で安定、空気中 ^{222}Rn 濃度は $5\sim 15\text{ Bq/m}^3$ 程度から $20\sim 40\text{ Bq/m}^3$ 程度に増加した。また給気セット直後の露点温度は $-66^{\circ}\text{C}\rightarrow -69^{\circ}\text{C}$ に改善した。その後、徐々に露点温度が下がり 2024 年 1 月には -73°C 程度まで下がった。

神戸大での測定は 2022 年 12 月 23 日から 2023 年 7 月 10 日まで、Lab-G の測定は 2023 年の 7 月 14 日から 2024 年の 1 月 23 日 (本文中のデータ反映分、測定はこれ以降も継続中) にかけて行った。

本章ではより実際の環境に近い Lab-G での結果について述べる。

4.1.1 CO₂ 濃度測定

活性炭における吸着において Rn と CO₂ は競合することが分かっているため、CO₂ 濃度が高いと Rn 除去能力が正確に測定できない可能性がある。そこで図 2.9 の給気セット 2 では CO₂ を除去する装置を入れて装置への給気を行った。

この効果を確認するために、2023 年 12 月 1 日から太閤活性炭 TC2B1 の測定中に簡易的な CO₂ 測定を行った。オートキャリブレーションがかかった状態で計測してしまっていたため正確な値ではないが、給気セット付近の坑内空気では 469ppm、入口側 Rn 検出器の排気部では 100ppm、出口側の排気部では 24ppm と測定された。また後日改めてオートキャリブレーションを切った状態で坑外空気を 400ppm と仮定し較正した CO₂ モニターで出口側の排気部を測定したところ、検出限界以下の -100ppm と表示された。(図 4.2)

ここから給気セット 2 (と太閤活性炭 TC2B1) によって CO₂ が除去されていることが分かる。しかしオートキャリブレーションを付けたままで計測してしまった時の結果が正しいと仮定すると、給気セット 2 では 1/4 程度までしか減らなかった可能性があり、これが Rn 除去能力の測定に影響を与えている可能性は排除できない。

4.2 測定結果の一例と解析手法

粒状活性炭での測定の一例として、図 4.3 (Lab-G での 2023/09/30 ~ 2023/10/16 の測定) のように入口 (赤) と出口 (青) の各娘核の崩壊信号が得られた。3.2 節と同様に ^{214}Po の範囲をそれぞれ $100\sim 170$ と $120\sim 200$ に決定して使用した。また、ここから図 4.4 のように Rn 濃度を時間ごとにプロットした。3.2 節で述べたとおり、入口と

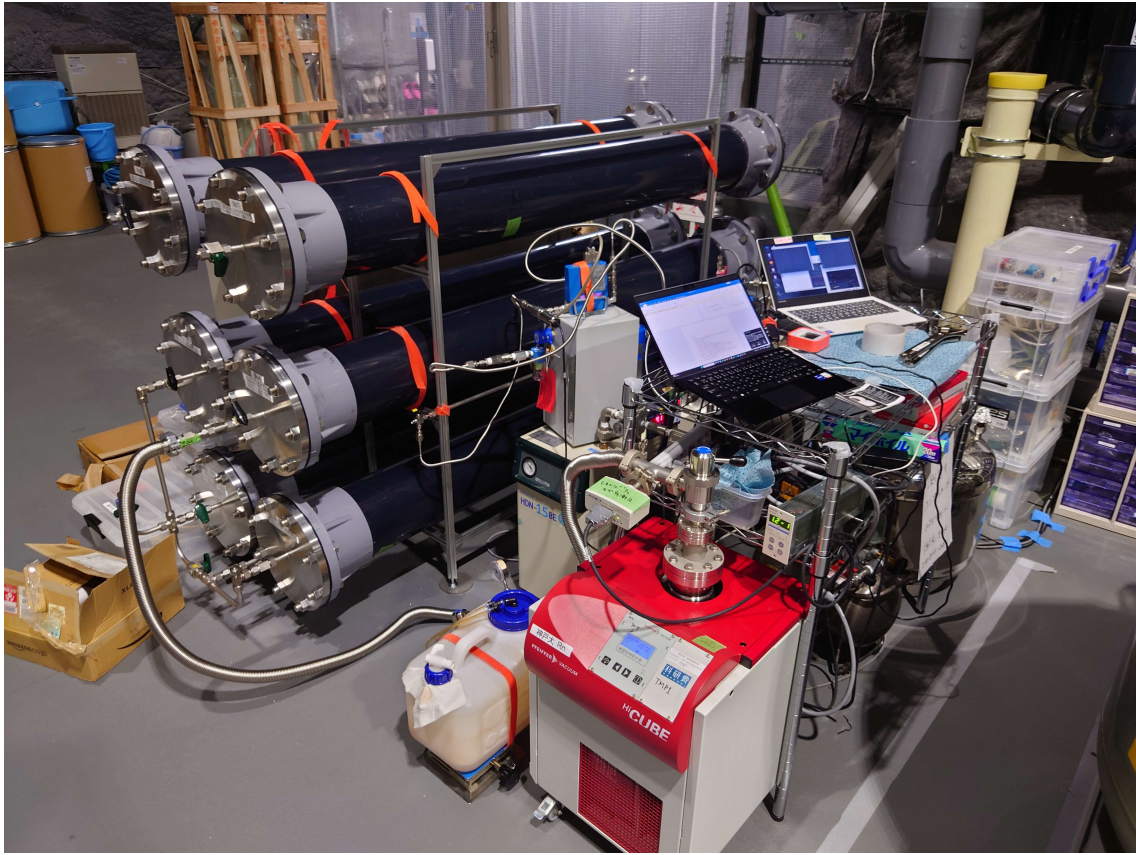


図 4.1: Lab-G で使用した実験装置

出口で同じタイミングで流入した Rn を比べるべきだが、活性炭繊維と異なり、粒状活性炭では計数の波のずれがはっきりと見えない。そのため単位時間当たりの Rn 吸着量の変化をモデル化 [28] した関数 (4.1 式) で fit した。

$$\frac{dq}{dt} = C_e \epsilon - (q - \gamma) \beta - \frac{q}{\tau_{10m}} \quad (4.1)$$

ただしここで、 q は活性炭への吸着量 (mBq/m^3)、 t は経過時間 (単位時間 10 分)、 C_e は流入 Rn 濃度 (mBq/m^3)、 ϵ は流入 Rn に対する活性炭に吸着する確率である吸着率 (/10 分)、 β は単位時間あたりに Rn が活性炭から離れる確率である脱着率 (/10 分)、 γ は脱着の定数項 (mBq/m^3)、 τ_{10m} は ^{222}Rn の半減期 ($3.8215(\text{日}) \times 24(\text{時間}/\text{日}) \times 6(10 \text{分}/\text{時間})$) である。fit に用いたパラメータは初期吸着量 $q(t=0)$ 、 ϵ 、 β 、 γ である。図 4.4 を fit した結果が図 4.5 であり、そのパラメータは $q(t=0) = 800$ 、 $\epsilon = 0.99$ 、 $\beta = 7.82 \times 10^{-4}$ 、 $\gamma = 19$ となった。ただし、 γ は継続的に 50000 程度ある q との差として出てくる数値である。よって γ は十分小さいものと見做して、4.2 式を用いて ϵ と β から一定の入力に対する出力として ^{222}Rn 残留率を求めた。

$$R = \left((1 - \epsilon) - \frac{\epsilon \beta}{\tau_{10m} \log_2 e + \beta} \right) \times 100 \quad (4.2)$$

ただし、 R は残留率 (%) を示す。図 4.6 はこの fit をした結果の図 4.5 の赤点、黒点の比を取ったものであり、1 付近で安定していることから、このモデルで入口側の計数から出口側の計数を再現できていることを示している。ただしこの fit は、計測の途中に抜けがある場合と出口側の計数の波が小さすぎる場合には上手く働かないため、一部の測定ではこの fit を行わずにそのまま赤と黒の計数の比の平均値で評価を行っている。

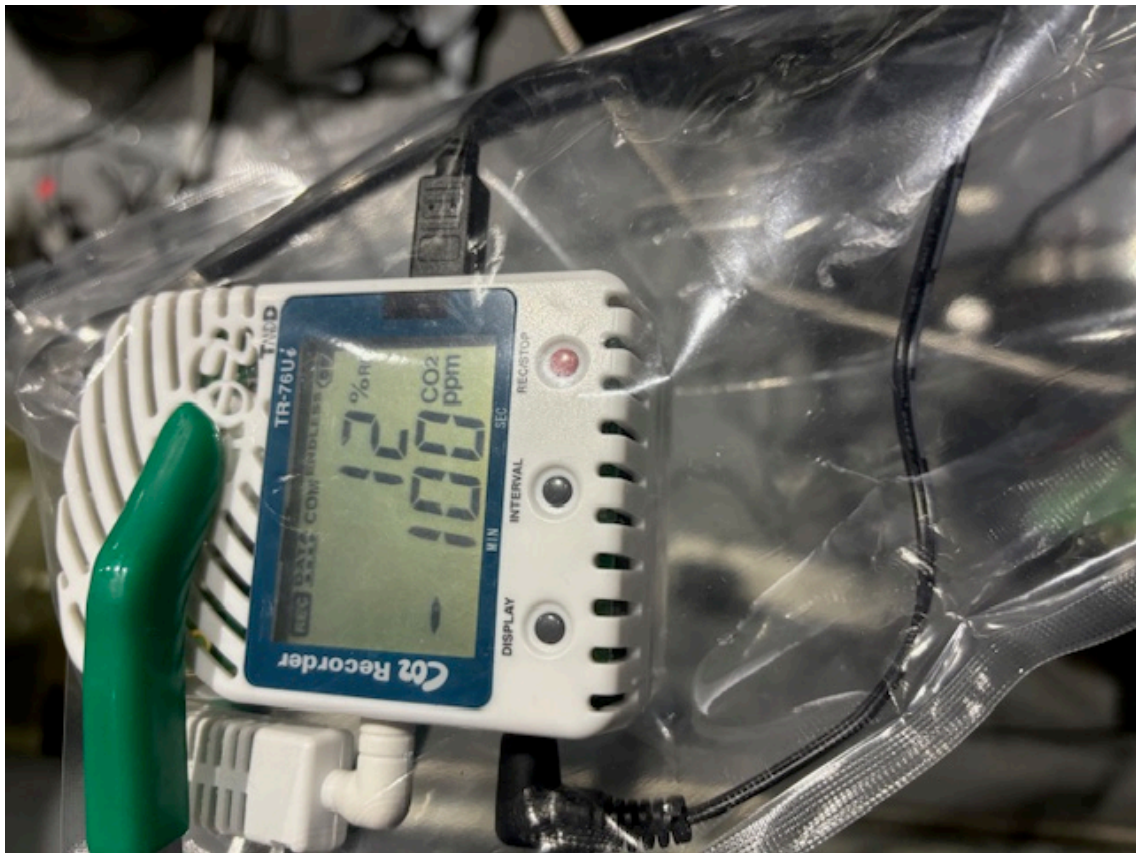
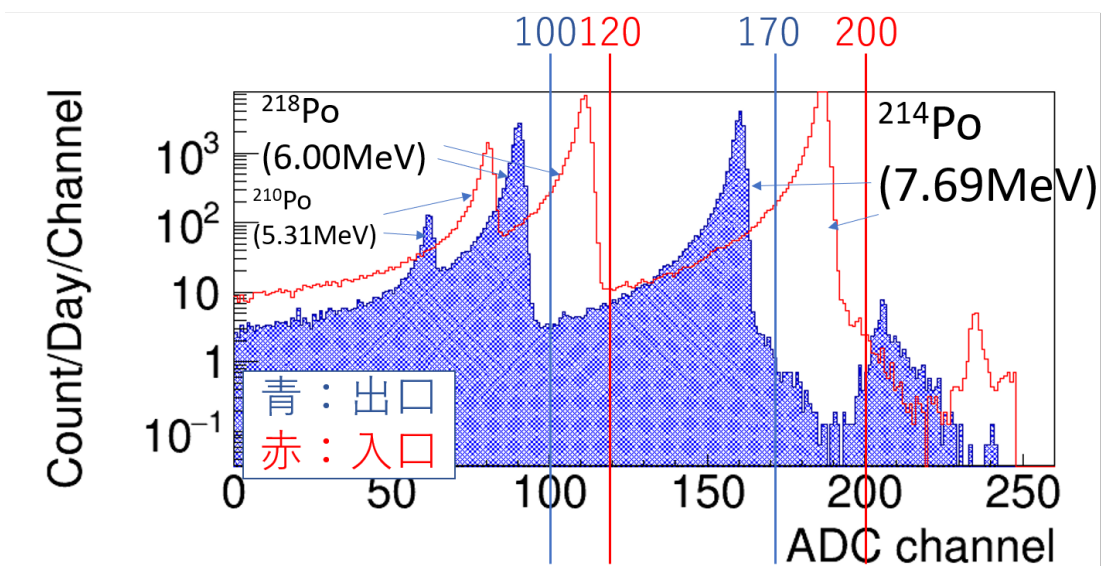


図 4.2: CO2 モニター

図 4.3: Lab-G でのエネルギースペクトル
(2023/09/30 ~ 2023/10/16 のデータ)

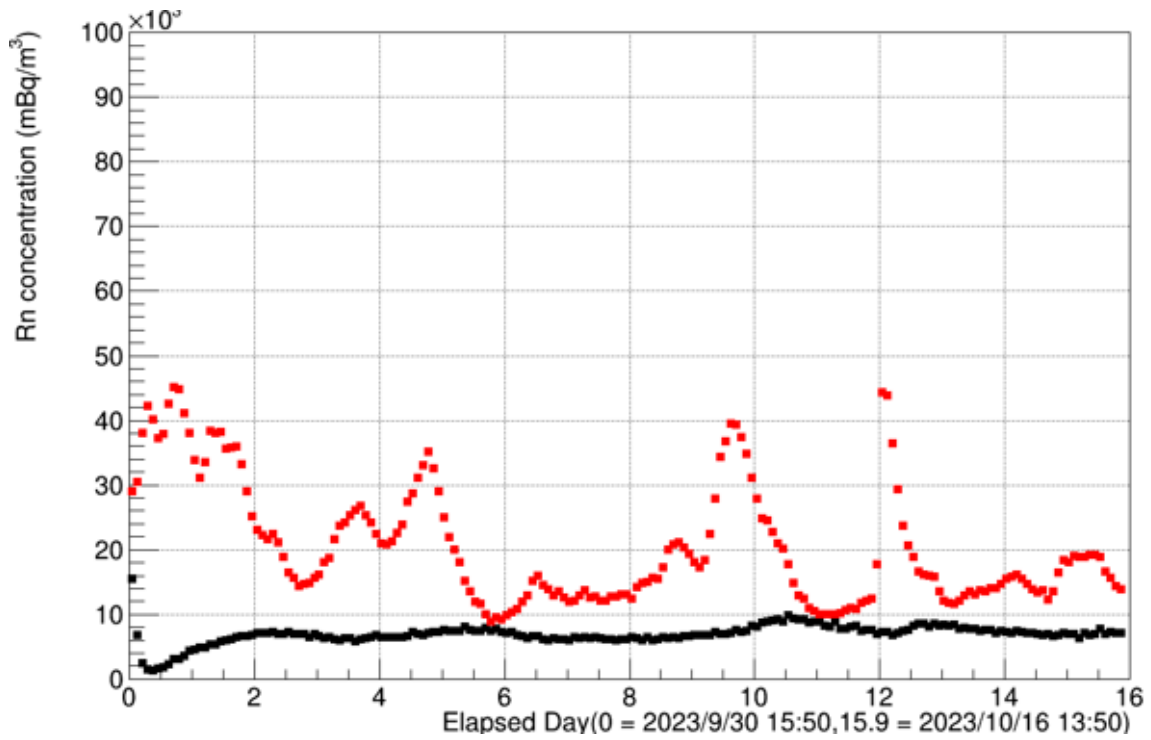


図 4.4: 粒状活性炭の測定結果の一例 (赤: 入口、黒: 出口)
(2023/09/30 ~ 2023/10/16 のデータ)

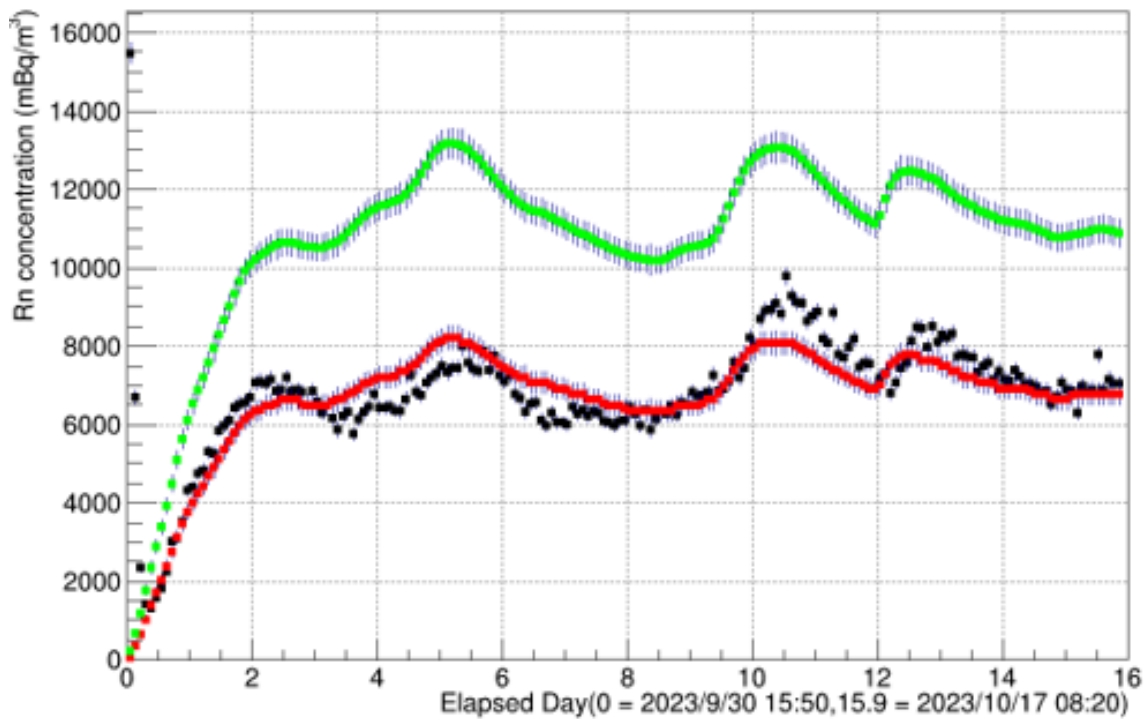


図 4.5: 赤点は図 4.4 の入口側測定結果を出口側 (黒点) の形に合うように fit したもの
(緑点はこのモデルで活性炭に吸着した状態で崩壊したと考えられる Rn 濃度)

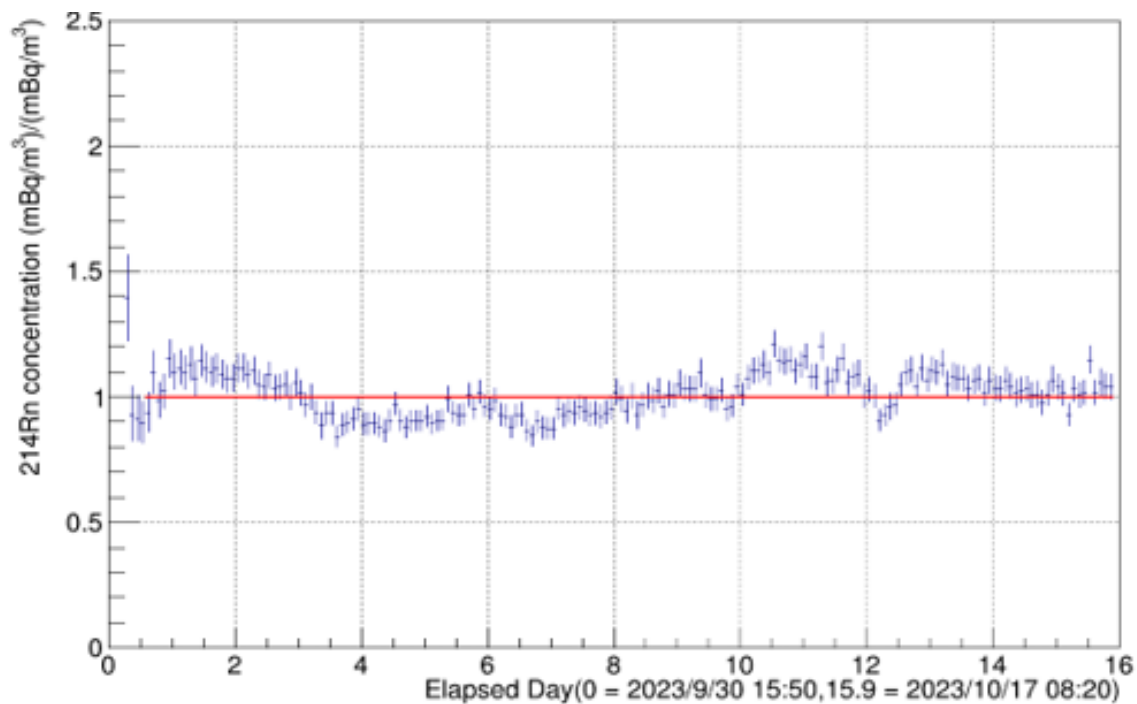


図 4.6: 図 4.5 の赤と黒の比を取ったもの

4.3 粒状活性炭の測定結果

4.2 節で述べた解析によって、各環境での測定について表 4.1 のような結果が得られた。

ただし表の右から 2 列目、残留率から求めた保持時間とは、3.3 節と同様、3.1 式を用いて ^{222}Rn 残留率から求めたものである。活性炭繊維と異なり、粒状活性炭では計数の波のずれがはっきりと見えないため、こちらの保持時間を使用する。

各測定データは付録 B に示した。

表 4.1: 粒状活性炭の測定結果

測定 no.	PVC カラム	入口 差圧 (+kPa)	出口 差圧 (+kPa)	流量 (L/min)	²²² Rn 残留 率 (%) or bypass 値	残留率から 求めた 保持時間 (日)	備考
A	bypass		25	9.1	1.05±0.01		
1	6,2'		20	9.1	34.4±0.4	5.89	
2	6		20	9.1	85.7±0.9	0.85	
3	6		360	9.1	81.5±0.8	1.13	
4	5		24	9.1	46.0±0.5	4.29	露点温度高
5	6	342	341	5.1	30.3±0.1	6.58	
6	2'		22	9.1	69	2.05	Fit
7	5		22	9.1	38.6	5.25	Fit
8	5,4'	30	26	9.1	5.44±0.09	16.05	
9	3'	48	44	8.1	24.95±0.52	7.65	5,4' 後に 流した 露点温度高
10	4'	30	26	9.1	15.8	10.17	Fit
B	bypass	30	26	9.1	1.05±0.01		
11	4'	351	348	9.1	20.1	8.85	Fit
12	4'	160	137	9.1	19.77±0.09	8.94	差圧差大
13	4'	72	21	9.1	19.06±0.01	9.14	差圧差大
14	4'	159	155	9.1	18.74±0.01	9.23	
15	4'	25	20	9.1	49.13±0.16	3.92	

第 5 章

結果の考察

5.1 活性炭繊維の測定結果の解釈

3.3 節で得られた値の関係を見るために作った保持時間と流量のプロットが図 5.1 である。

図 5.1 から分かることとしては、

- ①PVC1 の中を +25 kPa で流した時、保持時間と流量はほぼ反比例 ($y = 7.143x^{-0.998}$) の関係を持つ
- ②15 L/min 前後,+240 kPa で流したとき、保持時間と PVC カラムの本数はほぼ比例の関係を持つ
- ③圧力が上がれば密度が比例して上がるので、流量が一定であればカラム内の流速と圧力が反比例するため、保持時間と圧力は比例関係になると予測した。しかし実際には比例関係ではない、ただし正の相関はあることが見て取れる

が挙げられる。

①と② の関係がどの条件下でも成り立つと仮定した場合、1 本当当たりの最も良い結果を出した +375 kPa の測定結果から $y = 18.702 \times x^{-0.998}$ で外挿し、PVC カラム 8 本分の結果を推測すると、図 5.2 となる。2.2.1 節で述べた通り、PVC カラム 8 本、17.7 L/min において 42 日の保持時間を達成していることが目標である。しかしこの外

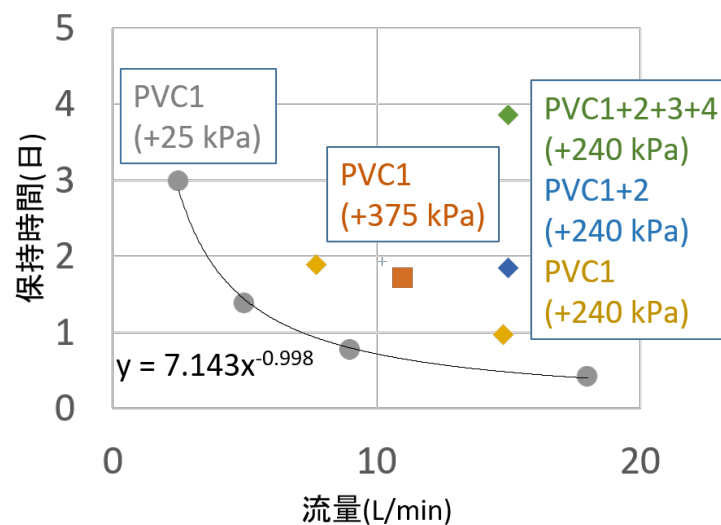


図 5.1: 保持時間と流量のプロット (ただし ^{222}Rn 濃度の変動から求めた保持時間)

(ただし曲線と左の式は PVC1 の中を +25kPa で流した時の値を保持時間 y (日) 流量 x (L/min) として excel で累乗近似したものである)

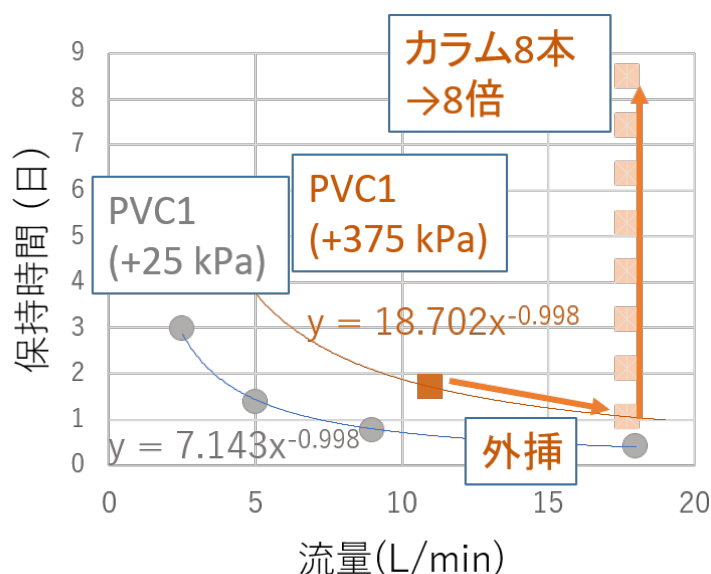


図 5.2: 保持時間と流量のプロットに外挿したもの
 (ただし曲線と左の式は PVC1 の中を +25kPa で流した時の値を
 保持時間 y (日) 流量 x (L/min) として excel で累乗近似したものである)

挿から得られた同条件での保持時間は 8 日程度と見積もられる*1。今回の結果から得られた情報から同じ吸着剤で一本ごとの保持時間を上げる方法を考えると、圧力を上げることが考えられる。しかし今回使用した PVC カラムは +200kPa を超えると第二種圧力容器に該当してしまう。第二種圧力容器は年一回の自主検定が必要となる [29] ため、HK では継続して運用することを想定している以上これを超えた圧力をかけることは難しいので、以上の結果から活性炭繊維を使用した本装置では、目標値を達成するのは困難であると判断した。

5.2 粒状活性炭の測定結果の解釈

5.2.1 太閤活性炭 TC4B1 の性能評価

2.2.1 節で述べた通り、SK で使用されている常温活性炭部分の ^{222}Rn 除去性能は、計 8 m^3 の活性炭で、 $18\text{ Nm}^3/\text{hour}$ の流量の空気中の ^{222}Rn 濃度を $1/2000$ にする程度である。これを言い換えると、本研究で用いた PVC カラム 1 本に、粒状活性炭の測定で主に用いている流量の 9.1 L/min を流した場合に、保持時間 10.2 日が満たされることに相当する。SK の純空気装置で使われている活性炭相当である太閤活性炭 TC4B1 の測定は、表 4.1 の測定 No.4 と 7 である。測定 No.4 の ^{222}Rn 残留率は測定 No.7 より高めであるが、これは測定 No.4 の時の除湿が不十分で露点温度が高めであったためであると考えられる。測定 No.7 の ^{222}Rn 残留率 38.6 % を TC4B1 の性能と考えた場合、 ^{222}Rn 残留率は保持時間 5.25 日に相当する。つまり、本試験装置で SK の純空気装置の性能を再現するには約 2 倍の PVC カラム数が必要となる。ただし、この測定は大気圧程度で、SK の純空気装置運転時より低いということに留意していただきたい。以後は、相対的な ^{222}Rn 除去性能の評価を行っていく。

表 5.1: 活性炭繊維の測定結果 (表 3.1 より一部抜粋)

PVC カラム	出口差圧 (+kPa)	流量 (L/min)	^{222}Rn 残留率 (%)
1	25	9	92.04±0.67
1	240	14.8	97.6±0.91
1	375	11	70.83±0.61

表 5.2: 粒状活性炭の測定結果 (表 4.1 より一部抜粋)

PVC カラム	出口差圧 (+kPa)	流量 (L/min)	^{222}Rn 残留率 (%)
6	20	9.1	85.7±0.9
5	24	9.1	46.0±0.5
4'	26	9.1	15.8

5.2.2 活性炭繊維と粒状活性炭の性能差

表 5.1、表 5.2 はそれぞれ表 3.1、表 4.1 から典型的な性能を抜き出したものである。これらを比較すると、活性炭繊維より粒状活性炭の方がカラム 1 本あたりの ^{222}Rn 除去能力が高いことが分かる。活性炭繊維の Rn 除去能力が低くなった理由は、表 2.1、表 2.2 に示したように、カラムへの充填密度が小さいために表面積が小さくなり、吸着能力が落ちるためだと考えられる。そのため、本研究では粒状活性炭についてより詳細に考察を進める。

5.2.3 粒状活性炭の種類毎の性能差

表 5.3 は表 4.1 から典型的な性能を抜き出したものである。表 2.2 に示した通り、PVC カラム 2' には $\text{G}_{2\text{X}7/12}$ 、PVC カラム 3' と 4' には TC2B1、PVC カラム 5 には TC4B1 が封入されている。

表 5.3: 粒状活性炭の測定結果 2 (表 4.1 より一部抜粋)

測定 No.	PVC カラム	出口差圧 (+kPa)	流量 (L/min)	^{222}Rn 残留率 (%)
6	2'	22	9.1	69
7	5	22	9.1	38.6
8	5,4'	26	9.1	5.44±0.09
9	3'	44	8.1	24.95±0.52
10	4'	26	9.1	15.8

まず、TC2B1 の複数測定について考察する。測定 No.7 との測定 No.8 の比較から、PVC カラム 4' による ^{222}Rn 残留率は、 $5.44/38.6 = 0.141$ なので、14.1 % と見積もられる。一方測定 No.10 の結果から、15.8 % となっており、矛盾しない。一方、粒径の大きい TC4B1 については、測定 No.7 より、 ^{222}Rn 残留率は、38.6 % と得られた。これらから、粒状活性炭の粒径は小さい方が ^{222}Rn 除去能力が高いといえる。

次に、粒径が同程度の白鷺活性炭 $\text{G}_{2\text{X}7/12}$ と太閤活性炭 TC2B1 を比較する。白鷺活性炭は測定 No.6 より ^{222}Rn 残留率が 69 % である。対して太閤活性炭は前述の通り 14.1 % ~ 15.8 % 程度である。これらの比較から、白

*1 これは 9.1 L/min で PVC カラム 1 本あたりに換算すると、保持時間 2.1 日に相当する

鷲活性炭 G_{2X}7/12 より太閤活性炭 TC2B1 の方が ²²²Rn 除去能力が高いといえる。

なお、TC2B1 に関する同程度条件での測定は、測定 No.9、13、15 がある。測定 No.9 については、PVC カラム 3' を用いたが、除湿が不十分であり、湿度が高めであった。このため、²²²Rn 残留率が高めの値が出ていたと考えられる。そのためこの比較からは除いた。測定 No.13 については、入口と出口の差圧が +50kPa 程度と大きかったため、装置に何らかの不具合が起きていた可能性があり、この比較からは除いた。測定 No.15 については、出口の Rn 濃度に入口と同期した濃度変動の波が見られ、²²²Rn 残留率が高めである。これについては測定 No.9 と No.15 の間に、何らかの原因で PVC カラム内で空気が透過する割合が増えてしまった可能性がある。そのためこの比較からは除いた。

5.2.4 太閤活性炭のカラム本数の違いによる性能の評価

5.2.3 節で述べたように、測定 No.7、8 から、直列につないだ各 PVC カラムの保持時間が積算されると仮定して見積もった PVC カラム 4' の除去能力と、測定 No.10 で得られた除去能力は同等であった。このことから活性炭繊維と同様に、太閤活性炭でも PVC カラムを直列に繋ぐと、保持時間が積算されることが確認できた。

太閤活性炭の測定では、PVC カラムを最大 3 本接続した。表 5.3 では測定 No.9 は PVC カラム 3' の測定結果となっているが、実際には前段に PVC カラム 5、4' が繋がっている。測定 No.9 中に、Lab-G 内の空気中 Rn 濃度は測定できていないが、測定 No.9 は図 B.8 と図 B.10 の間で行っていて、2 つの図の赤点が 10000 ~ 15000 mBq/m³ 程度であるため、測定 No.9 の期間も Lab-G 中 Rn 濃度が一定だったと仮定すると、PVC カラム 3 本を通した後の Rn 残留率は、測定 No.8、9 の積で見積もることができる。この仮定のもとで、²²²Rn 残留率は 1.4 % 程度となる。すなわち、98.6 % の Rn が除去できたことになる。

5.2.5 太閤 TC2B1 の圧力の違いによる性能の評価

表 5.4: 太閤 TC2B1 の測定結果 (表 4.1 より一部抜粋)

測定 no.	PVC カラム	入口 差圧 (+kPa)	出口 差圧 (+kPa)	流量 (L/min)	²²² Rn 残留率 (%)
10	4'	30	26	9.1	15.8
11	4'	351	348	9.1	20.1
12	4'	160	137	9.1	19.77±0.09
13	4'	72	21	9.1	19.06±0.01
14	4'	159	155	9.1	18.74±0.01
15	4'	25	20	9.1	49.13±0.16

この節では、PVC カラム 4' (太閤 TC2B1) について圧力を変化させた時の振る舞いを考察する。大気圧での測定は、測定 No.10、13、15 がある。Rn 残留率を比較すると、測定 No.10 と No.13 は 16 ~ 19 % 程度であるのに対して、測定 No.15 は 50 % 程度となっている。次に圧力の高い状態で行った測定を見ると、+350 kPa 付近の測定 No.11 では、Rn 残留率が約 20 % となっている。また +137 ~ +160 kPa での測定は No.12、No.14 であり、いずれも Rn 残留率は 20 % 弱となっている。

つまり今回の測定では、No.15 を除いて 16 ~ 20 % 程度の Rn 残留率であると解釈することができる。この場合、測定 No.15 の測定の前に何らかの原因で Rn 残留率が高くなってしまった可能性がある。測定 No.15 の直前に行っ

ていた測定 No.14 の結果の図 B.14 と測定 No.15 の結果の図 B.16 の出口濃度（黒点）を比較すると、測定 No.15 には出口の Rn 濃度に入口（赤点）と同期した濃度変動の波が見られるが、No.14 では No.15 ほど顕著ではない。よって、測定 No.15 のみ装置の状態が他の測定と違っていた可能性があるため、測定 No.15 は評価から除くべきである。この場合、5.1 節で述べた活性炭繊維の③の性質とは異なり、太閤 TC2B1 を用いた PVC カラムの Rn 除去能力は圧力に寄らず一定で、80～84 %程度であると言える。ただし、測定 No.12 と 13 は差圧が大きいため、入口と出口の差圧が +50kPa 程度と大きかったため、装置に何らかの不具合が起きていた可能性があることに留意していただきたい。

5.2.6 白鷺 G_{2X}7/12 についての性能の評価

表 5.5: 白鷺 G_{2X}7/12 の測定結果（表 4.1 より一部抜粋）

測定 No.	PVC カラム	出口差圧 (+kPa)	流量 (L/min)	²²² Rn 残留率 (%)
1	6,2'	20	9.1	34.4±0.4
2	6	20	9.1	85.7±0.9
3	6	360	9.1	81.5±0.8
5	6	341	5.1	30.3±0.1
6	2'	22	9.1	69

この節では、PVC カラム 2' と 6 (白鷺 G_{2X}7/12) についての特性を考察する。大気圧付近での測定は測定 No.1、2、6 である。測定 No.1 の PVC カラムの配置は、測定 No.2 と 6 で用いた PVC カラムを直列に繋いだものに相当する。しかし、Rn 残留率に関して、測定 No.1 は 34 %であるのに対して、測定 No.2 と 6 の積は 59 %程度であった。この差がある理由として、PVC カラム 6 は、充填時斜めであったため隙間が大きく、カラム内を透過する空気も多くなってしまった可能性が考えられる。PVC カラム 6 と 2' を直列に接続した測定 No.1 では、カラム間をカラムより細い 1/2 インチステンレス配管で接続していたため、Rn 濃度が高い空気と低い空気が混合され、2 つのカラム内を最後まで透過する空気が少なくなったと考えられる。

測定 No.3 は同じ流量、高圧で測定したものである。測定 No.2 と比較して高圧の方が Rn 除去能力が高く出ているが、差は小さい。この原因として、PVC カラム 6 のカラム内を透過する空気が多かったことが考えられる。

測定 No.3 は高圧で、流量を 5.1 L/min まで落として測定したものである。5.1 節で述べた活性炭繊維の①の性質と同様に、白鷺 G_{2X}7/12 も流量と保持時間が反比例の関係を持つと仮定（※）した場合、3.1 式より、測定 No.5 の結果は 9.1 L/min での Rn 残留率 51 %程度と対応する。つまり、流量を下げると予想以上に Rn 除去能力が高くなった形になるが、これは流量を下げたときに PVC カラム 6 内を透過する空気の割合が減ったためであるという可能性が考えられる。このため、低流量の測定 No.5 の結果がカラム 6 の本来の Rn 除去能力に近いと考えられるが、それでも TC2B1 の 16～20 %よりは Rn 除去能力が劣るといえる。

また測定 No.5 では ※ の場合、鉛直で詰め込んで透過の割合が低いことが期待される PVC カラム 2' を用いた測定 No.6 と比較しても、高い Rn 除去能力を示している。これは 5.1 節で述べた活性炭繊維の③の性質と同様に、透過が減った状態の白鷺 G_{2X}7/12 では、圧力が上がると Rn 除去能力が上がるためだと考えられる。

第 6 章

まとめと今後の課題

6.1 まとめ

本実験では各種活性炭の Rn 除去能力を各種条件下で調べた。これは SK の純空気装置で使われている粒状活性炭（太閤 TC4B1 相当）をより除去能力の高いものと入れ替えることで、2027 年の HK 実験の観測開始に向けてより小型の純空気装置を作るための基礎データを収集することを目的として行った。神戸大学粒子物理学研究室及び神岡坑内実験室 G (Lab-G) で超純 PVC カラムに活性炭を詰め込んだ実験装置を構築した。我々の開発した 80L Rn 検出器を 2 台用いて、PVC カラム前後の空气中 Rn 濃度を測定し、活性炭による Rn 除去能力を評価した。

活性炭繊維について、ユニチカ株式会社の A-20R を用いて、Rn 除去能力の流量依存性、PVC カラム本数依存性、圧力依存性測定を行った。いずれの測定においても、出入口での Rn 濃度の変動周期に時間的なズレ（保持時間）が観測できた。Rn は保持時間中に PVC カラム内で崩壊するため、保持時間の長さが Rn 除去能力につながる。保持時間と流量がほぼ反比例すること、保持時間と PVC カラムの本数はほぼ比例することが確認できた。保持時間と圧力は比例ではなかったが、圧力を上げると保持時間は伸びた。SK の純空気装置相当の性能は、PVC カラム 1 本あたり、9.1 L/min の空気で保持時間 10.2 日に対応するが、活性炭繊維を使用した本装置では、最大 2.1 日の保持時間しか確認できず、本目標を達成できなかった。

次に粒状活性炭として、大阪ガスケミカル株式会社の粒状白鷺 G_{2X}7/12、フタムラ化学株式会社の太閤 TC2B1、TC4B1 の 3 種類を用いて、各種特性試験を行った。SK の純空気装置で使われている活性炭相当である太閤 TC4B1 を用いた測定では、本装置で得られた最も良い保持時間は 9.1 L/min で PVC カラム 1 本あたり 5.25 日であった。ただし、この測定は大気圧程度で、SK の純空気装置運転時の圧力より低かった。

粒状活性炭の Rn 除去能力の PVC カラム本数依存性については、粒状白鷺 G_{2X}7/12 では、活性炭繊維で見られたような保持時間と PVC カラム本数の線形的な関係は確認できなかった。その理由として、カラム内を透過する空気の影響があった可能性がある。一方、太閤活性炭では、活性炭繊維と同様に、PVC カラムを直列に繋ぐと保持時間が積算されることが確認できた。粒状活性炭の Rn 除去能力の圧力依存性については、粒状白鷺 G_{2X}7/12 では、圧力が上がると Rn 除去能力が上がるが、太閤 TC2B1 では、Rn 除去能力の圧力依存性は確認できなかった。

本測定で用いた 3 種類の粒状活性炭の中では、TC2B1 が最も高い Rn 除去能力を示した。出口差圧が大気圧から +350 kPa の範囲で、流量 9.1 L/min の時、PVC カラム 1 本あたり 80~84 %程度の Rn 除去能力を示し、これは 8.9~10.2 日程度の保持時間に相当する。これは TC4B1 の本実験での測定結果と比較すると約 2 倍の Rn 除去能力であったため、TC2B1 を使用して純空気装置を作れば、SK の純空気装置の約半分の体積で同等の Rn 除去能力を出すことが期待できることが判明した。

6.2 今後の課題

本装置では SK の純空気装置で使われている粒状活性炭に相当する TC4B1 を用いた場合でも SK 純空気装置で示された Rn 除去能力を確認することができなかったが、主な原因として時間的制約による活性炭の除湿不足が挙げられる。本実験では-40~-55°C 程度の出口露点温度で試験を行ったが、SK の純空気装置は-60°C 以下で運用されている。残留水蒸気は Rn 吸着を阻害することが分かっているため、十分時間をかけて活性炭を除湿し、露点温度を改善すれば Rn 除去能力が改善することが期待できる。

太閤 TC2B1 の Rn 除去能力の圧力依存性については、本実験でははっきりとは確認できなかったため、今後詳細な測定が必要であろう。太閤 TC2B1 については、大気圧付近の 9.1 L/min の測定の一部で再現性が良くなかったため、原因を追究する必要がある。

解析に関して、以下が不十分であり、今後改善が必要だと思われる。

- 入口と出口の計数比を直線 fit するときに、大きい値の点の誤差が大きくなってしまいうため、結果が小さい値に寄ってしまう
- 粒状活性炭を 4.1 式で fit した時の誤差の評価
- 活性炭繊維の 2 種類の保持時間の違いの評価

装置の改善案としては以下が挙げられる。

- 現在は外気を直接導入しているが、前段としてもう 1 本 PVC カラムを入れて Rn 濃度を平滑処理した空気を使用すれば、濃度変動が抑えられ測定の信頼度が高まることが期待できる。
- 入口側の露点温度は PVC カラム内の圧力に依存して圧力が変動する箇所で計測してしまっていたが、高圧下で計測した露点温度は大気圧での露点温度と直接には比較できない。よって入口側 Rn 検出器の排気部などに設置することで、露点温度の比較が容易になり、 ^{214}Po 計数から ^{222}Rn 濃度へ換算がより正確になることが期待される。

付録

A 活性炭繊維（ACF）の実験結果のプロット

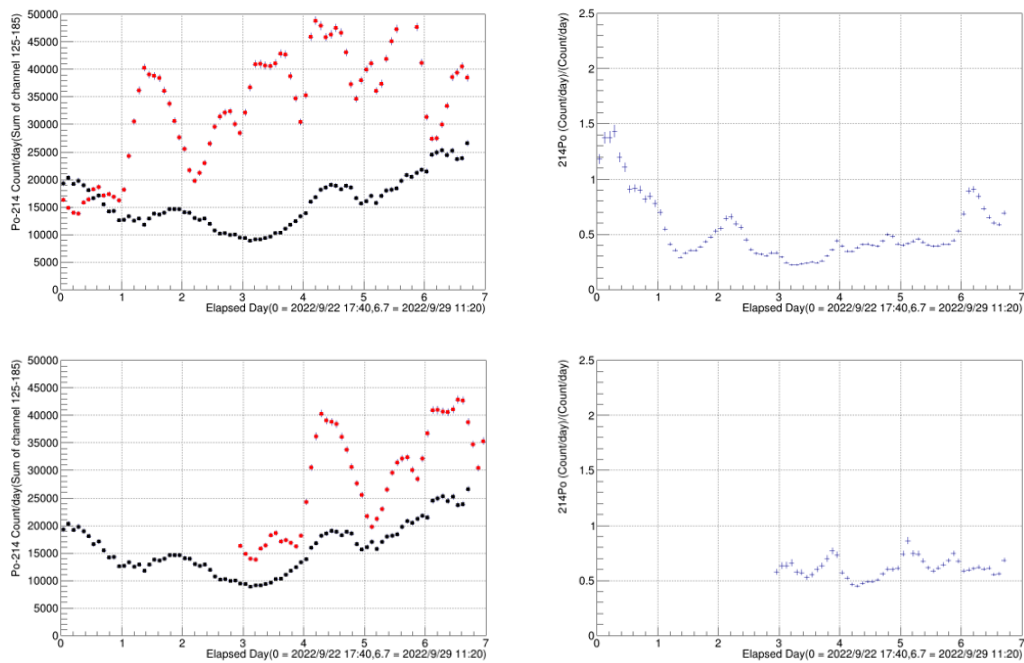


図 A.1: 活性炭繊維測定 No.1 左図は ^{214}Po の計数で、赤は入口（実験室空気）、黒は出口、右図は左図の黒/赤、赤線は平均値

上段はずらしなし、下段は濃度の変動から求めた保持時間分時間軸方向にずらしたこの後に露点温度から ^{222}Rn 濃度への補正と、bypass 測定結果からの補正をした

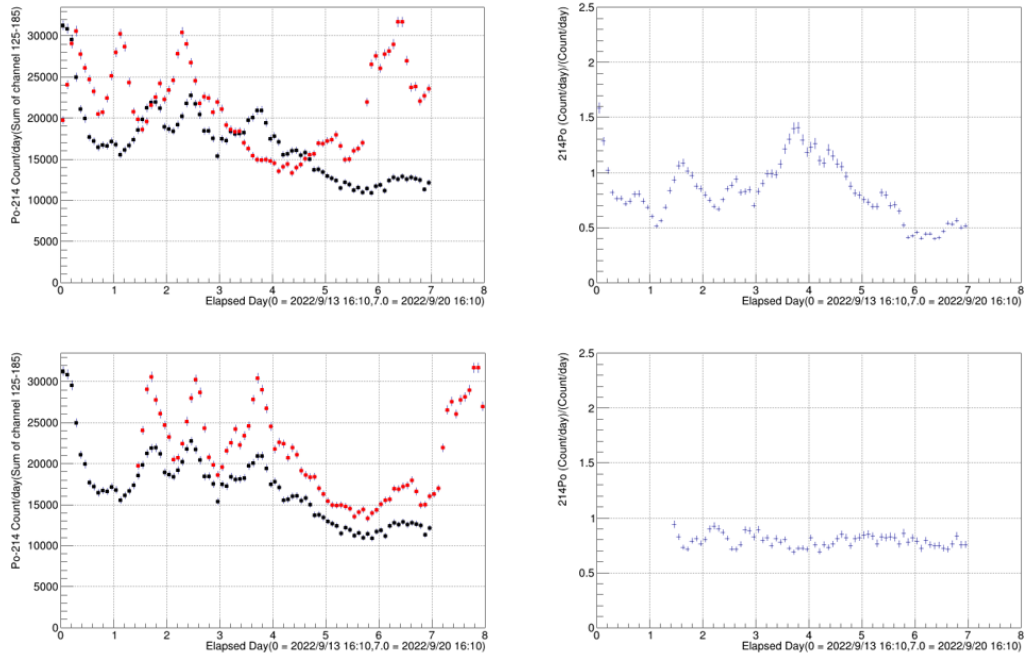


図 A.2: 活性炭繊維測定 No.2 (図 A.1 と同じ定義)

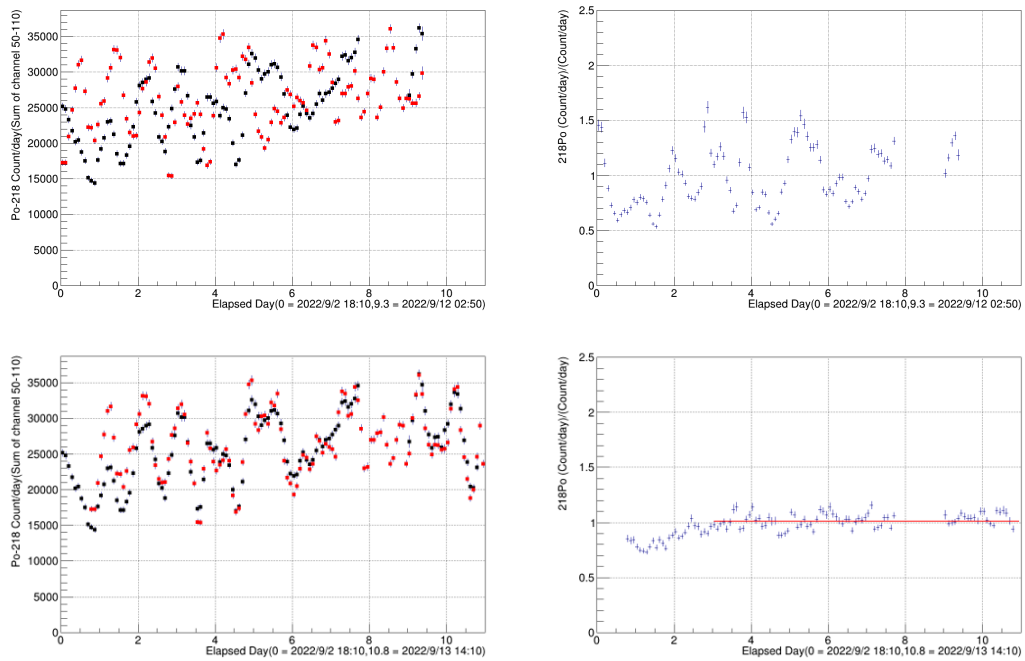


図 A.3: 活性炭繊維測定 No.3 (図 A.1 と同じ定義)

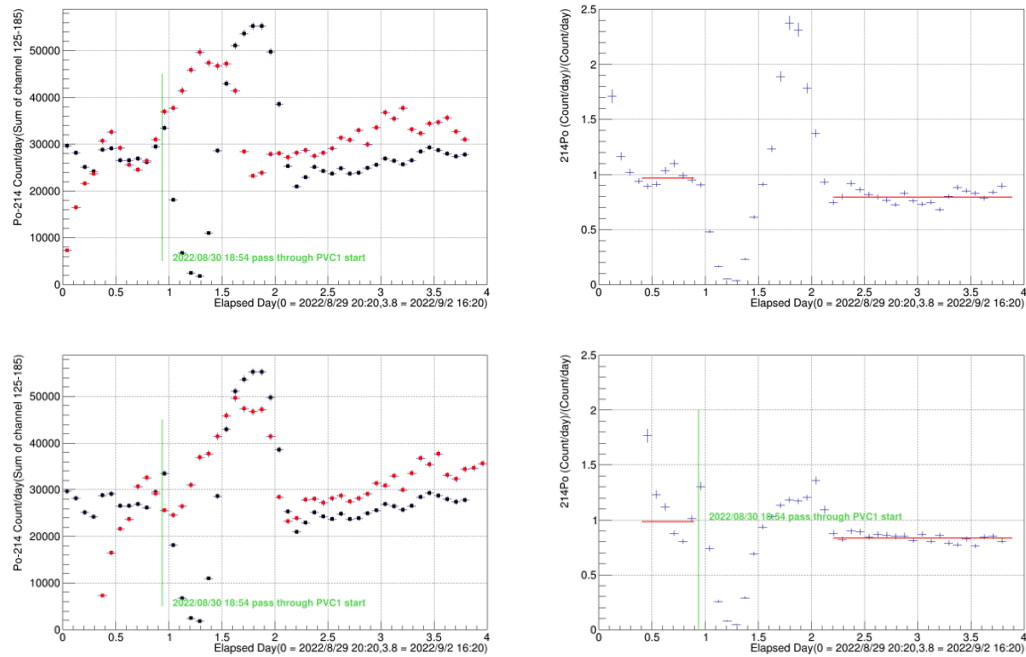


図 A.4: 活性炭繊維測定 No.4 (測定 No.4 の開始時刻は上段左図の緑の縦線。それ以前は bypass をとっていた。それ以外については図 A.1 と同じ定義)

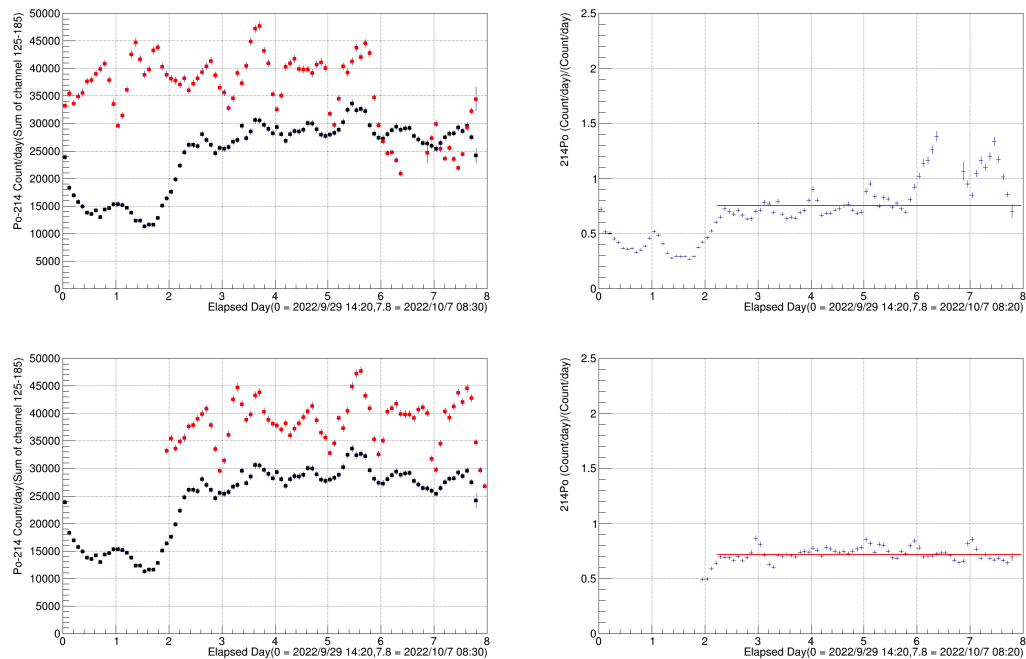


図 A.5: 活性炭繊維測定 No.5 (図 A.1 と同じ定義)

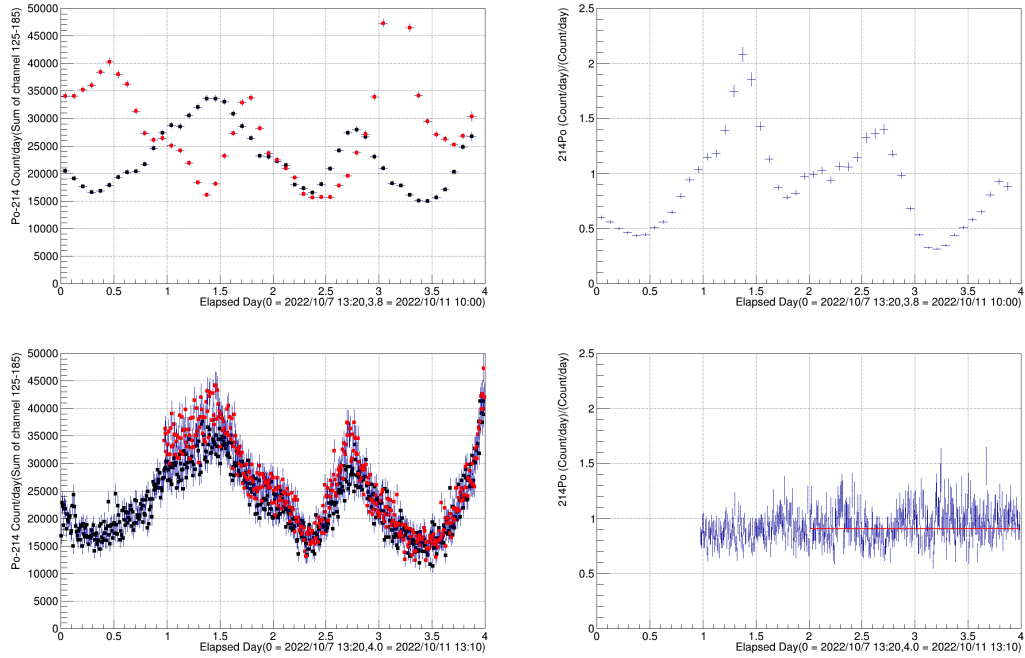


図 A.6: 活性炭繊維測定 No.6 (図 A.1 と同じ定義)

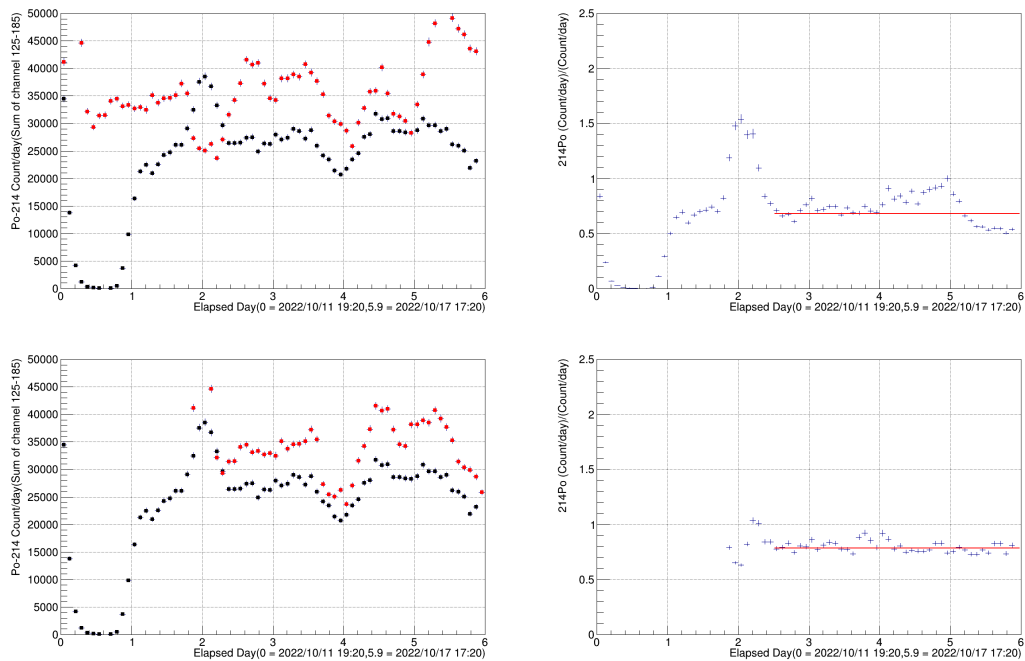


図 A.7: 活性炭繊維測定 No.7 (図 A.1 と同じ定義)

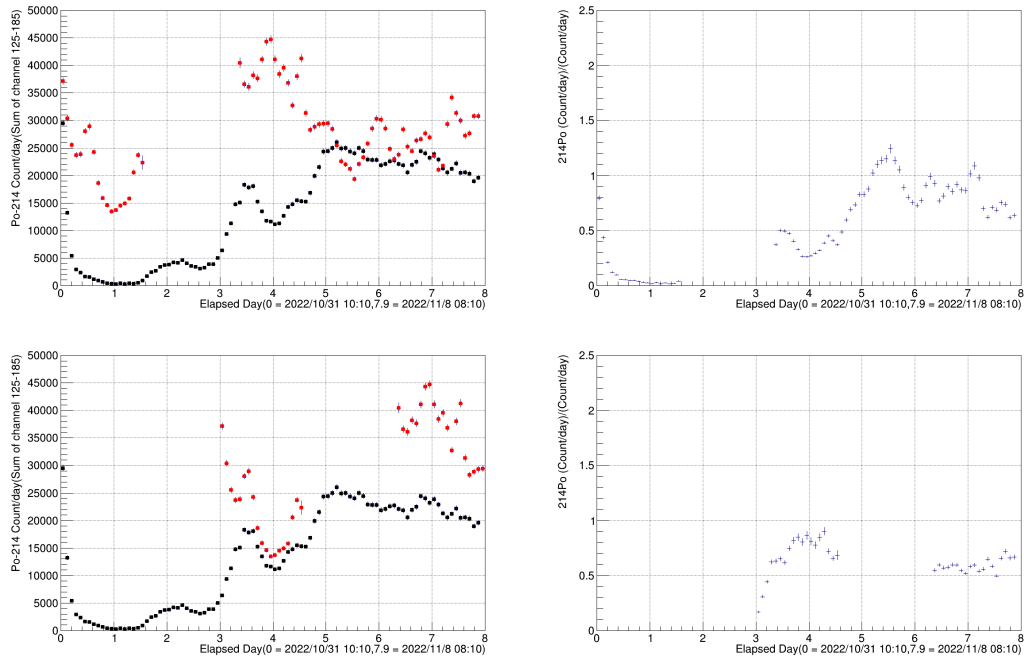


図 A.8: 活性炭繊維測定 No.8 (図 A.1 と同じ定義。途中エラーでデータのない区間あり。)

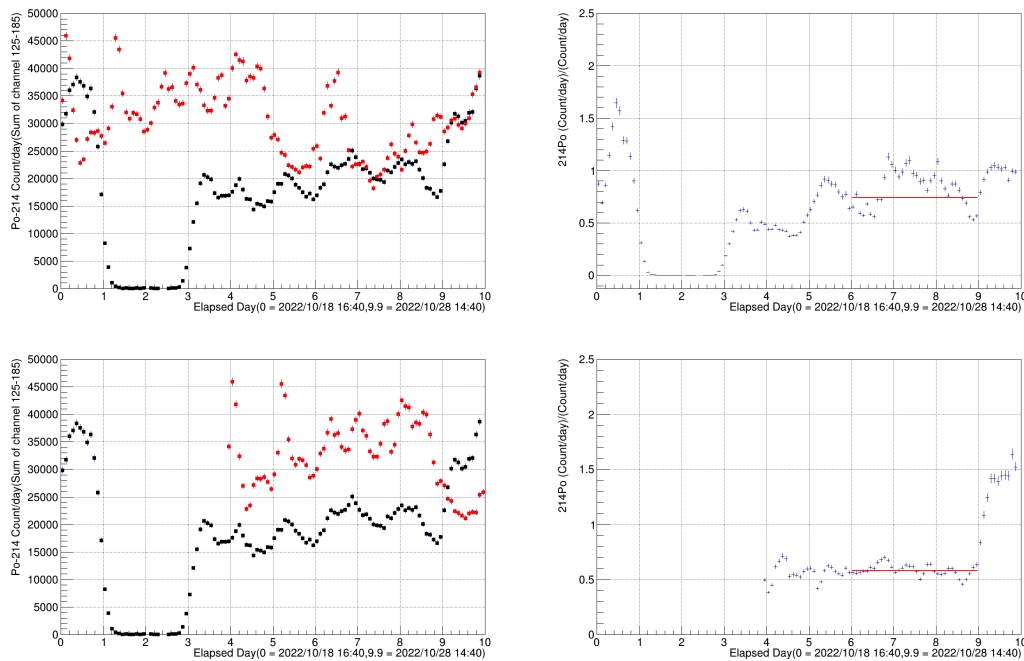


図 A.9: 活性炭繊維測定 No.9 (図 A.1 と同じ定義)

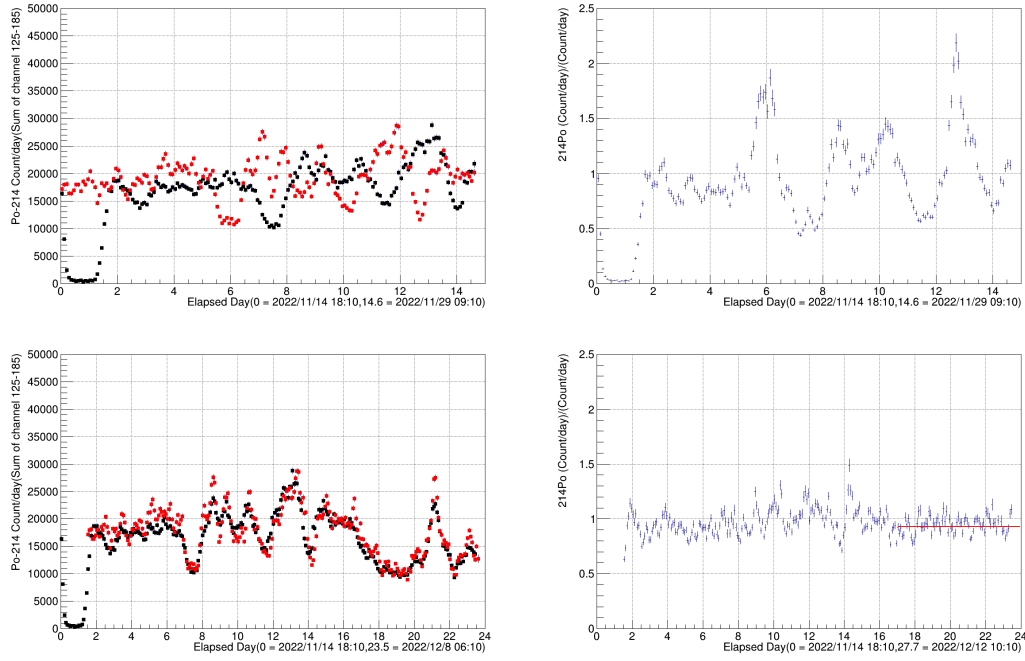


図 A.10: 活性炭繊維測定 No.10 (図 A.1 と同じ定義)

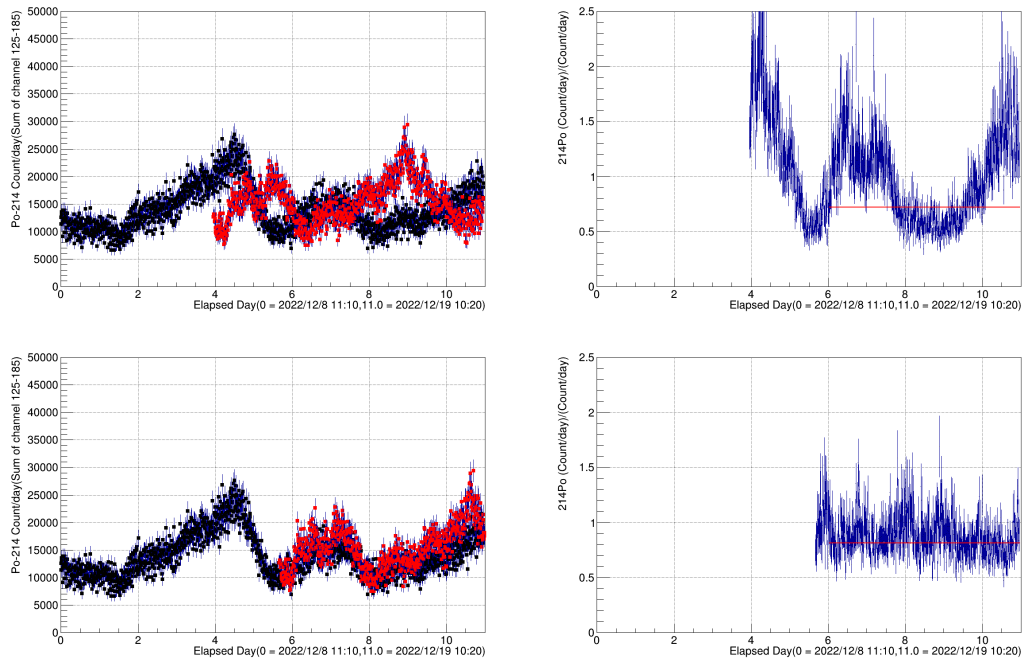


図 A.11: 活性炭繊維測定 No.11 (図 A.1 と同じ定義。最初にエラーでデータのない区間あり。)

B 粒状活性炭の実験結果のプロット

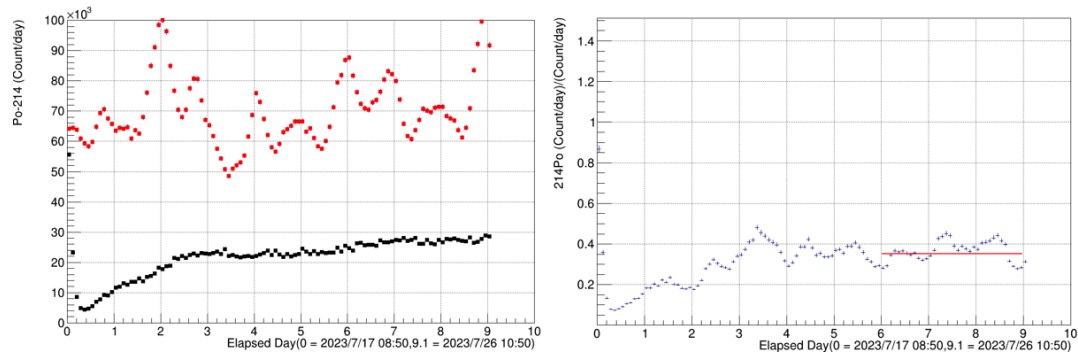


図 B.1: 粒状活性炭測定 No.1 (赤: 入口 (Lab-G 空気), 黒: 出口) 右図 (左図の黒/赤、赤線は平均値)

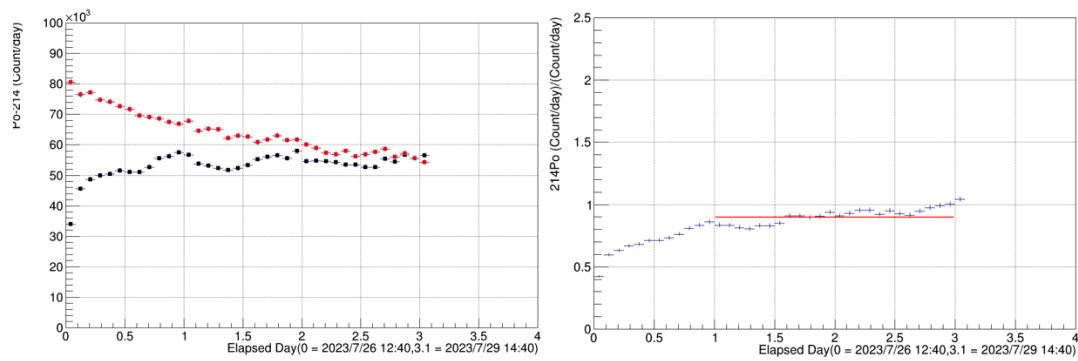


図 B.2: 粒状活性炭測定 No.2 (図 B.1 と同じ定義)

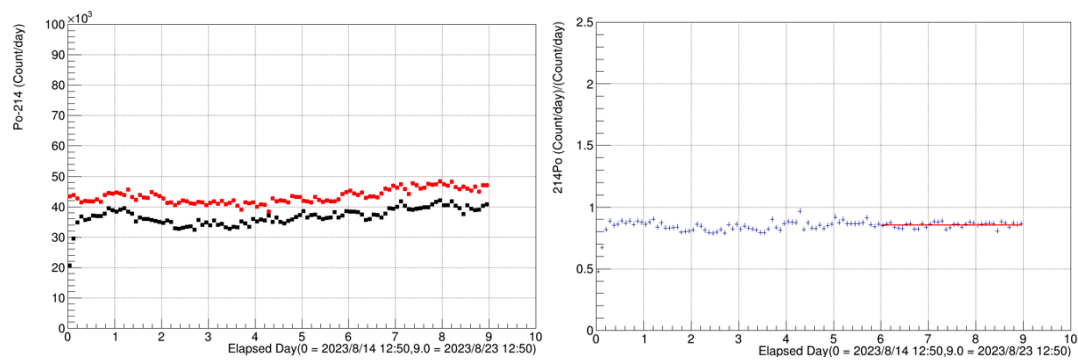


図 B.3: 粒状活性炭測定 No.3 (図 B.1 と同じ定義)

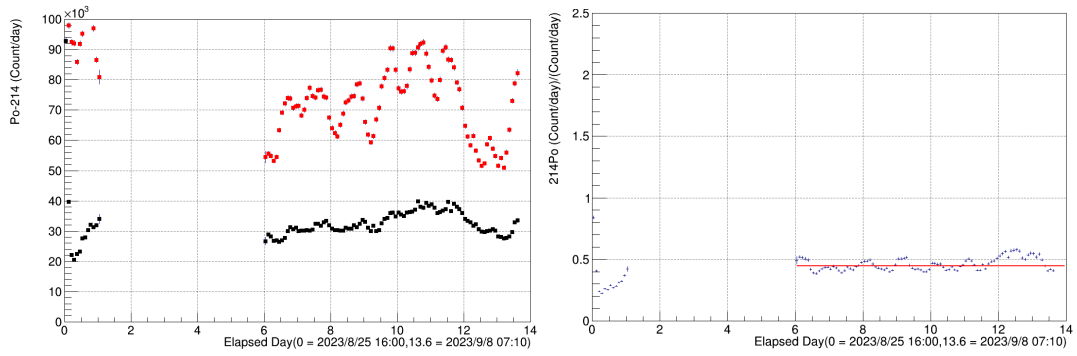


図 B.4: 粒状活性炭測定 No.4 (図 B.1 と同じ定義) 途中エラーでデータのない区間あり。

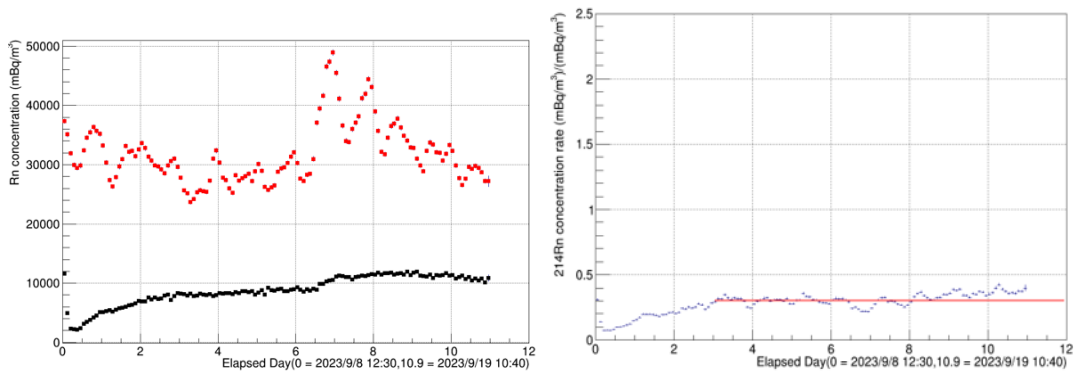


図 B.5: 粒状活性炭測定 No.5 (図 B.1 と同じ定義)

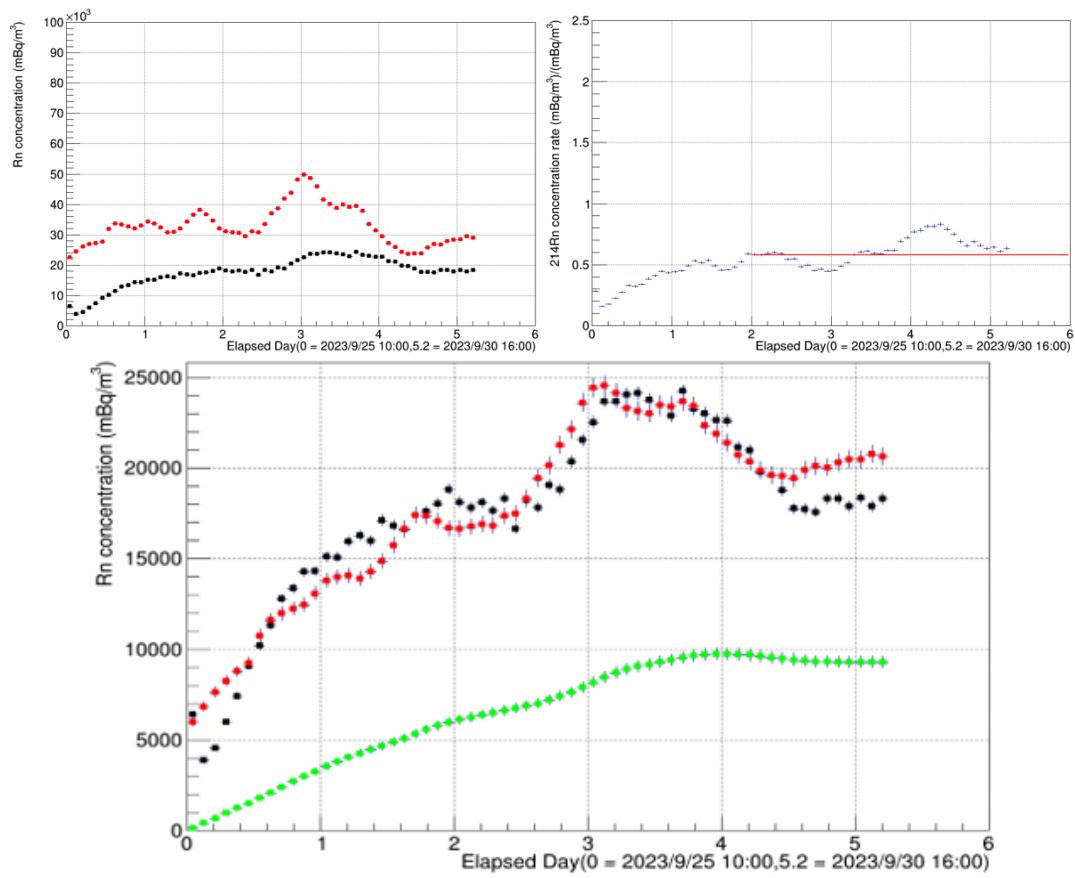


図 B.6: 粒状活性炭測定 No.6 (上段は図 B.1 と同じ定義。

下段は図 4.5 と同じ定義。)

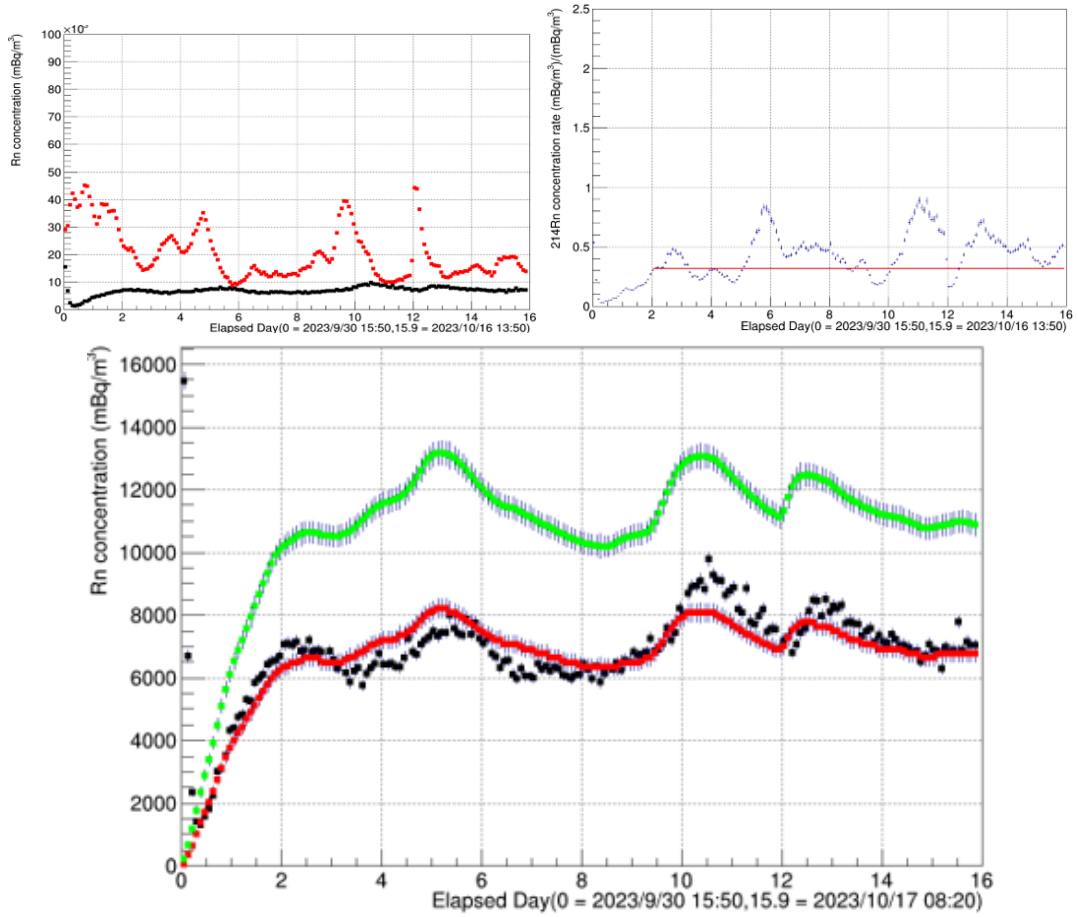


図 B.7: 粒状活性炭測定 No.7 (図 B.6 と同じ定義)

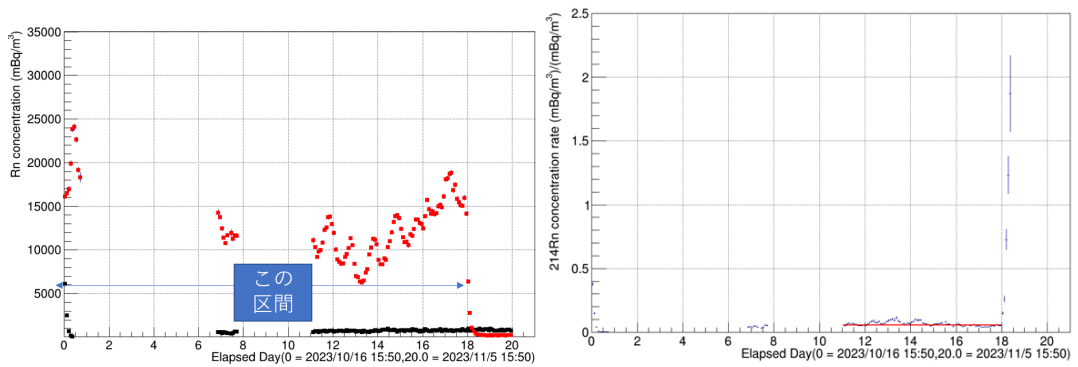


図 B.8: 粒状活性炭測定 No.8 (図 B.1 と同じ定義) 途中エラーでデータのない区間あり。

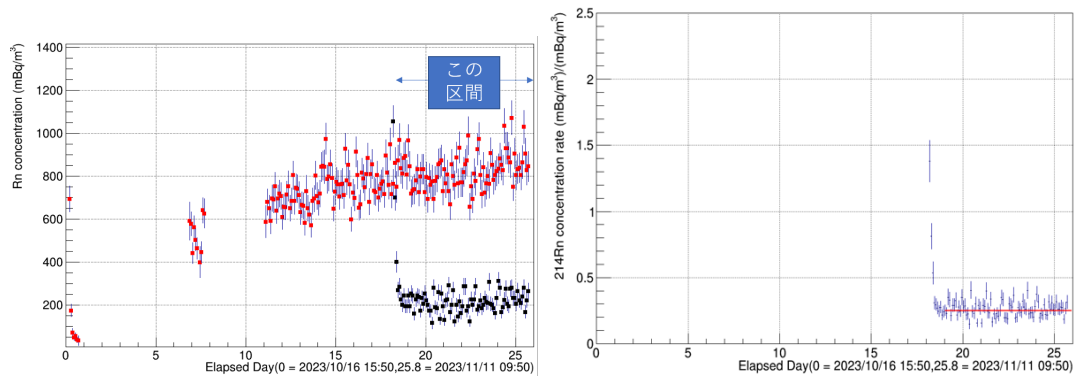
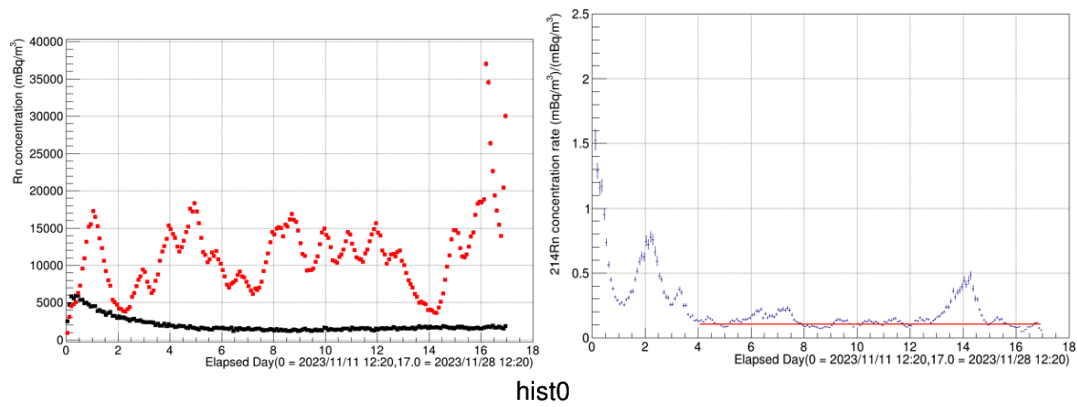


図 B.9: 粒状活性炭測定 No.9 左図 (赤 : 入口が測定 No.8 の出口空気である以外は図 B.1 と同じ定義)



hist0

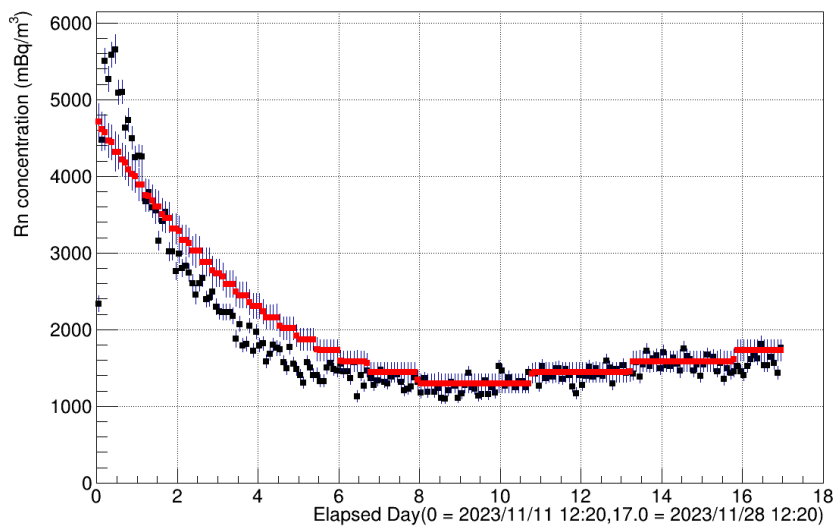
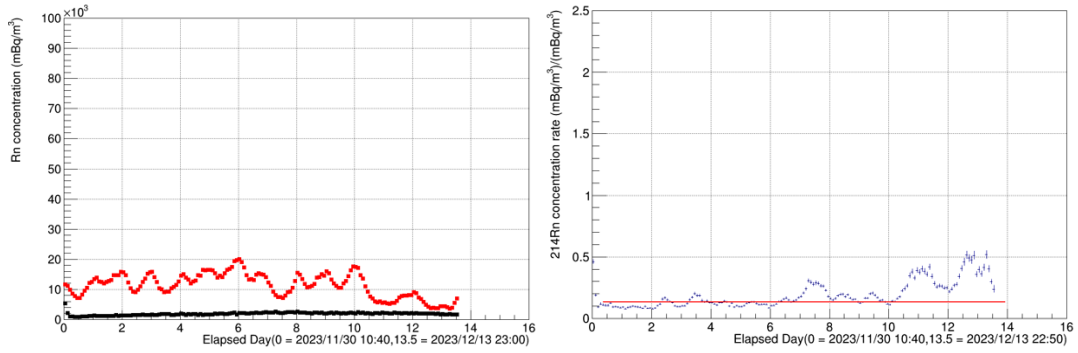


図 B.10: 粒状活性炭測定 No.10 (図 B.6 と同じ定義で、緑点は省略した。)



hist0

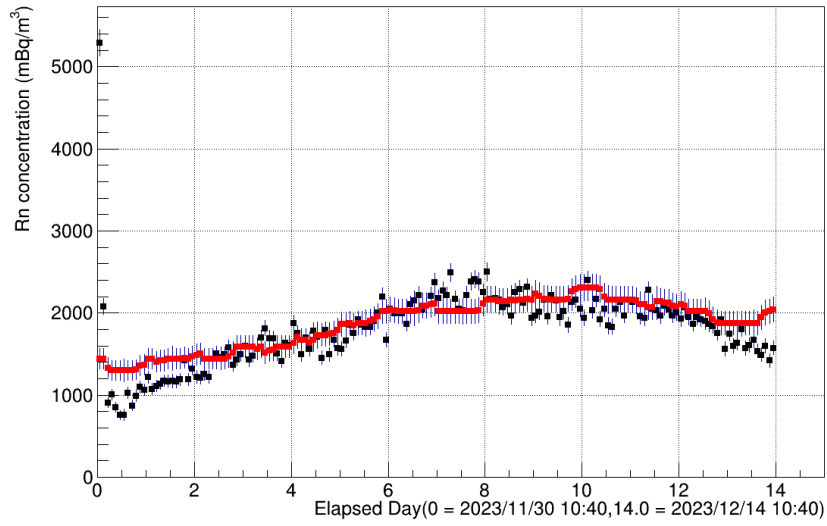


図 B.11: 粒状活性炭測定 No.11 (図 B.6 と同じ定義で、緑点は省略した。)

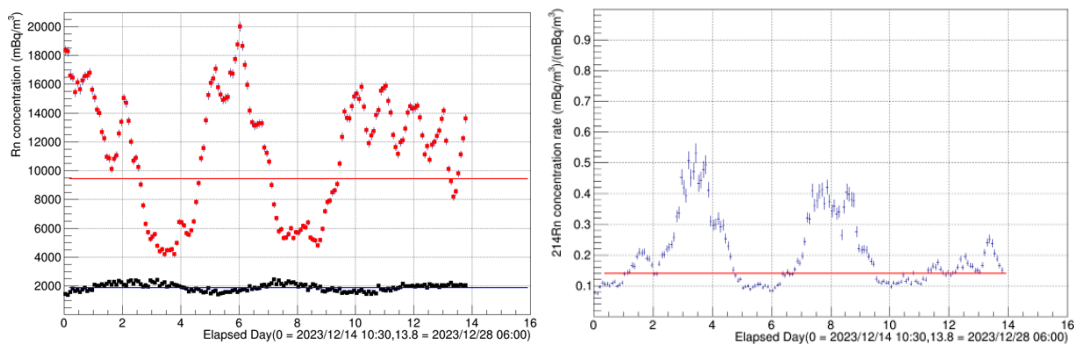


図 B.12: 粒状活性炭測定 No.12 (図 B.1 と同じ定義)

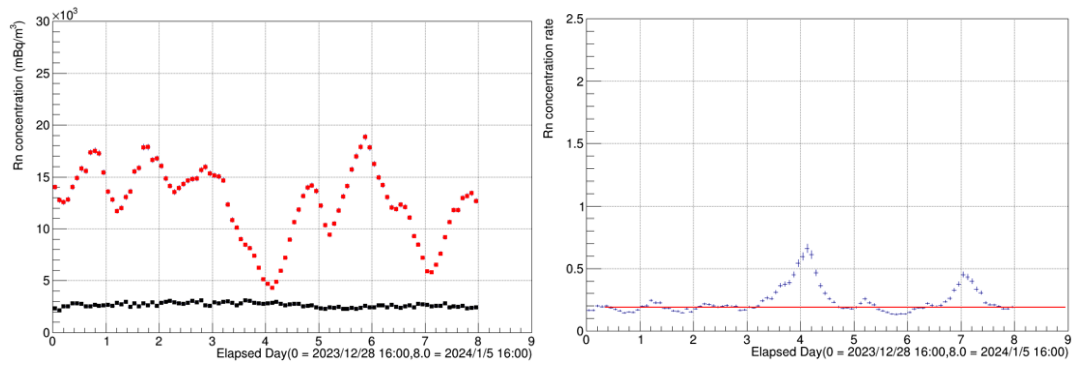


図 B.13: 粒状活性炭測定 No.13 (図 B.1 と同じ定義)

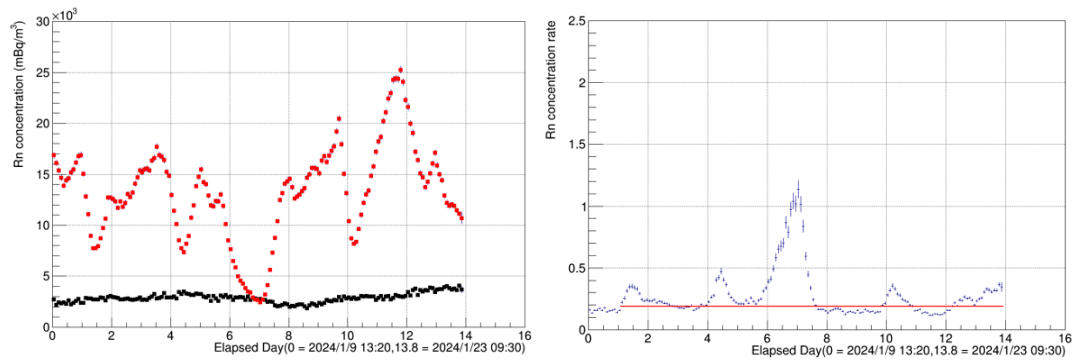


図 B.14: 粒状活性炭測定 No.14 (図 B.1 と同じ定義)

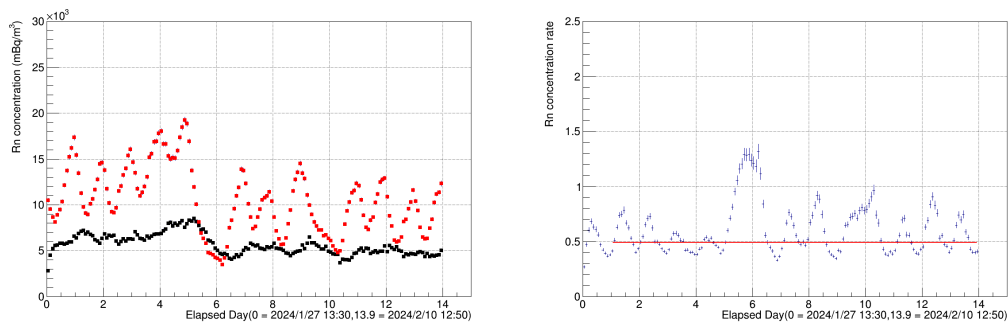


図 B.15: 粒状活性炭測定 No.15 (図 B.1 と同じ定義)

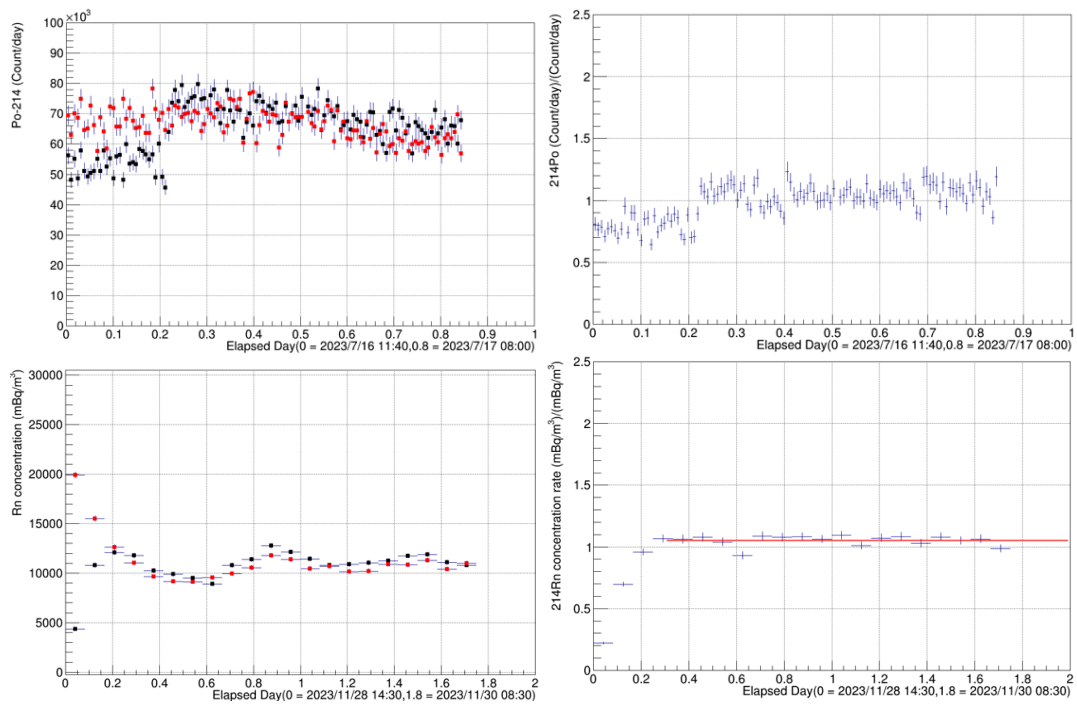


図 B.16: 粒状活性炭 bypass 測定 (上段が測定 No.A、下段が測定 No.B。左右の別については図 B.1 と同じ定義)

参考文献

- [1] K. Abe, et al. [Hyper-kamiokande design report](#), 2018.
- [2] Kamioka Observatory, ICRR, The Univ. of Tokyo. ハイパーカミオカンデ概要. <https://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/hk/about/outline/>.
- [3] Y. Nakano, H. Sekiya, S. Tasaka, Y. Takeuchi, R.A. Wendell, M. Matsubara, and M. Nakahata. [Measurement of radon concentration in super-kamiokande's buffer gas](#). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 867, pp. 108–114, 2017.
- [4] Y. Takeuchi, et al. [Measurement of radon concentrations at super-kamiokande](#). *Physics Letters B*, Vol. 452, No. 3, pp. 418–424, 1999.
- [5] S. Fukuda, et al. [The super-kamiokande detector](#). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 501, No. 2, pp. 418–462, 2003.
- [6] K Hosokawa, A Murata, Y Nakano, Y Onishi, H Sekiya, Y Takeuchi, and S Tasaka. [Development of a high sensitivity radon detector for purified gases](#). *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 469, No. 1, p. 012007, dec 2013.
- [7] K. Hosokawa, A. Murata, Y. Nakano, Y. Onishi, H. Sekiya, Y. Takeuchi, and S. Tasaka. [Development of a high-sensitivity 80 L radon detector for purified gases](#). *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, Vol. 2015, No. 3, p. 033H01, 03 2015.
- [8] 株式会社第一科学. 湿度の計算 1. <https://www.daiichi-kagaku.co.jp/situdo/note/arekore08/>.
- [9] ユニチカ株式会社. 吸着について. <https://www.unitika.co.jp/acf/about/adsorption/>.
- [10] 大阪ガスケミカル株式会社. 活性炭の用途. <https://www.ogc.co.jp/shirasagi/usage/atomosphere.html#f5-6>.
- [11] フタムラ化学株式会社. 旧 株式会社ツルミコール活性炭品種と用途. https://www.futamura.co.jp/products/activated_carbon/tsurumi.
- [12] ユニチカ株式会社. UNITIKA ユニチカ株式会社. <https://www.unitika.co.jp/>.
- [13] Y Nakano, K Ichimura, H Ito, T Okada, H Sekiya, Y Takeuchi, S Tasaka, and M Yamashita. [Evaluation of radon adsorption efficiency values in xenon with activated carbon fibers](#). *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, Vol. 2020, No. 11, p. 113H01, 11 2020.
- [14] ユニチカ株式会社. 活性炭繊維 (ACF) とは. <https://www.unitika.co.jp/acf/about/>.
- [15] 旭有機材株式会社. 超純パイプ・接手. https://www.asahi-yukizai.co.jp/product_detail/p4D0Ey80PM/.
- [16] 旭有機材株式会社. TS フランジ. https://www.asahi-yukizai.co.jp/product_detail/VAr0N5g0XP/.
- [17] 日章アステック株式会社. フランジ 5 K. https://www.nissho-astec.co.jp/product/sop_f_

- flanges_5k/.
- [18] パール金属株式会社. HB-1641 日本製のパンチングボール 15cm. https://www.p-life-house.jp/goods_HB-1641.html.
- [19] VAISALA. DMT152 露点変換器. <https://www.vaisala.com/ja/products/instruments-sensors-and-other-measurement-devices/instruments-industrial-measurements/dmt152>.
- [20] SMC 株式会社. クリーンガスフィルタ - SF Series. <https://ca01.smcworld.com/catalog/ja/airpreparation/SF/6-6-p0295-0316-sf/data/6-6-p0295-0316-sf.pdf>.
- [21] スウェージロック社. ステンレス鋼製 溶接式インライン・フィルター、1/4 インチ・サイズおす VCRt 継手、ポア・サイズ: 0.5 μm . <https://products.swagelok.com/ja/c/%E6%BA%B6%E6%8E%A5%E5%BC%8F%E3%82%A4%E3%83%B3%E3%83%A9%E3%82%A4%E3%83%B3%E3%83%BB%E3%83%95%E3%82%A3%E3%83%AB%E3%82%BF%E3%83%BC/p/SS-4FWS-VCR-05>.
- [22] Pfeiffer Vacuum. Hicube 80 Classic, DN 40 ISO-KF, MVP 070. <https://www.pfeiffer-vacuum.com/en/products/vacuum-generation/pumping-stations/turbo-pumping-stations/hicube-classic/5171/hicube-80-classic-dn-40-iso-kf-mvp-070>.
- [23] アイ・エイ・シー株式会社. 乾燥エア 0.4kW. https://www.iac-ne.co.jp/product_46.html.
- [24] 日立株式会社. LE シリーズ: 標準仕様表. https://www.hitachi-ies.co.jp/products/cmp/bebicon/oilfree/spofbc_spec01.html.
- [25] 日立株式会社. 冷凍式エアードライヤー: HDN シリーズ. <https://www.hitachi-ies.co.jp/products/cmp/shuuhen/hdn.html>.
- [26] PARKER HANNIFIN CORP. FT-IR パージガス発生装置. <https://ph.parker.com/jp/ja/product-list/ft-ir-purge-gas-generators>.
- [27] 大陽日酸株式会社. 高純度ガスカタログ. <http://www.tn-specialtygases.jp/catalog/pure/>.
- [28] Hajime HORI, Isamu TANAKA, and Takashi AKIYAMA. Estimation of thermal desorption curve and desorption efficiency of organic solvent from activated carbon. *NIPPON KAGAKU KAISHI*, Vol. 1987, No. 5, pp. 922–927, 1987.
- [29] 一般社団法人日本ボイラ協会. 第二種圧力容器の適用区分. <https://www.jbanet.or.jp/examination/classification/vessel-2/>.