

修 士 学 位 論 文

銀ゼオライトを用いた空气中ラドン除去性能の研究

令和8年2月6日

専攻名 物理学専攻
学籍番号 241S111S
氏 名 曾根 貴将

神戸大学大学院理学研究科博士課程前期課程

要旨

スーパーカミオカンデ(以下、SK)をはじめとした地下実験では ^{222}Rn (以下、ラドン)が深刻なバックグラウンドとなるため、その低減は必須である。特に、ラドンの子孫核である ^{214}Bi の β 崩壊は Q 値が3.26 MeVであるため、SKでの太陽ニュートリノ解析において致命的なノイズになってしまう。そこで、多くの地下実験ではラドン削減手法として活性炭を用いたラドン除去システムを運用しており、SKにおいても常温活性炭と冷却活性炭を用いた空气中ラドン除去装置を採用している。

SKの後継機であるハイパーカミオカンデ(以下、HK)は2028年に稼働開始が予定されており、その有効体積は約8倍となる。また検出器の巨大化によりラドン除去装置の増強とそれに伴う掘削のコストなどが懸念されている。したがって、現在のラドン除去装置の性能を維持しつつ、装置の規模と関連するコストを削減することが今後の喫緊の課題とである。

そこで近年、銀を添加したゼオライトによるラドン吸着の可能性が報告された。その報告では、「銀ゼオライト」は常温でのラドン吸着性能が常温活性炭と冷却活性炭のそれぞれおよそ700倍と9倍という数値を示した。これを受けて、神戸大学で様々な銀ゼオライトサンプルを用いてラドン吸着試験を実施した。

第3章で述べる銀ゼオライトを用いた空气中ラドン吸着性能を評価するために実施した「循環試験」では、常温活性炭の約1000倍、そして冷却活性炭の約17倍という先行研究よりも優れた結果を示した。

さらに第4章では第3章の結果を受けて、HKにおける銀ゼオライトを用いた空气中ラドン除去装置を構想し、これを模した「1pass試験」を実施した。活性炭のままであればおよそ12t必要であるところが、銀ゼオライトを使用すれば約12kg程度、多くとも16kgでラドン除去装置を構築できることが分かった。

目次

第1章	太陽ニュートリノ	3
1.1	ニュートリノ緒言	3
1.1.1	ニュートリノ史	3
1.1.2	ニュートリノの性質	3
1.1.3	ニュートリノ振動	3
1.1.4	物質効果	6
1.2	太陽ニュートリノ	7
1.2.1	標準太陽模型	7
1.2.2	太陽の周期活動	9
1.2.3	スーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測	10
第2章	カミオカンデとラドン	12
2.1	カミオカンデ	12
2.1.1	カミオカンデ実験 [1]	12
2.1.2	スーパーカミオカンデ実験 [2]	12
2.1.3	ハイパーカミオカンデ実験 [3]	14
2.2	ラドン	16
2.2.1	日常生活とラドン	16
2.2.2	地下実験とラドン	17
2.3	ラドン検出器	17
2.3.1	検出原理	18
2.3.2	校正係数	19
2.4	ラドン吸着・除去	19
2.4.1	ラドン吸着係数	20
2.4.2	活性炭 (Activated Carbon)	21
2.4.3	シリカゲル	23
2.4.4	MOFs	23
2.4.5	ゼオライト	23
2.4.6	スーパーカミオカンデにおけるラドン除去	24
第3章	銀ゼオライトを用いた空气中ラドン吸着性能の評価	29
3.1	本研究の動機・概要	29
3.2	先行研究	29
3.3	循環試験	30
3.3.1	試験概要	30
3.3.2	解析手法	34
3.3.3	結果	36

3.3.4	議論	38
第4章	HKにおける空气中ラドン除去装置への応用	41
4.1	HKでのラドン除去装置の構想	41
4.1.1	ラドン吸着と除去	41
4.1.2	HKのラドン除去装置	41
4.2	1pass試験におけるラドン除去	43
4.2.1	概要	43
4.2.2	結果	46
4.2.3	議論	47
4.3	除湿用ゼオライトの選定	48
4.3.1	概要	48
4.3.2	除湿試験の結果	51
4.3.3	除湿用ゼオライトからのRn放出の評価	53
4.4	1-pass総合試験	57
4.4.1	概要	57
4.4.2	結果	61
4.4.3	議論・考察	62
4.4.4	1pass試験のまとめ	64
第5章	まとめ	65
5.1	空气中ラドン吸着性能の評価	65
5.2	HKにおける空气中ラドン除去装置への応用	65
5.3	課題	65
付録A	銀ゼオライト・補遺	66
A.1	空气中ラドン吸着性能の評価・各測定のプロット	66
	謝辞	72
	参考文献	73

第1章 太陽ニュートリノ

1.1 ニュートリノ緒言

1.1.1 ニュートリノ史

ニュートリノとは素粒子物理学の標準模型における弱い相互作用しかしないレプトンである。1930年、Pauli氏がベータ崩壊におけるエネルギー保存則を満たすためにニュートリノ¹を導入した。これはニュートリノ史の開闢に端を発するものであった。この提言の26年後の1956年、Reines氏とCowan氏による原子炉由来の反電子ニュートリノの発見により、その存在が初めて実験的に確認された。その後、1963年にLenderman氏、Schwartz氏とSteinberger氏らによるミューニュートリノの発見、2000年に名古屋大学の丹羽氏によってタウニュートリノにより発生したタウ粒子が発見されたことによりその存在が証明された。ニュートリノの存在を示唆する予言から凡そ70年の歳月をかけて、標準模型における3つのフレーバーのニュートリノの存在が実験的に示された [4]。

1.1.2 ニュートリノの性質

ニュートリノに関して実験的に分かっていることは

- 電荷 0(中性)
- スピン 1/2
- 弱い相互作用のみをする
- レプトンである
- 3種類(世代)存在する

である。ニュートリノは中性であるため、粒子と反粒子が同じかそうでないかといった基本的な性質(マヨラナ性)は明らかになっていない。また、後述するがニュートリノ振動の観測からニュートリノは質量をもつことはわかったが、その絶対値はまだ決まっていない。

1.1.3 ニュートリノ振動

ニュートリノ質量の存在はニュートリノ振動の観測から確認された。ニュートリノ振動とは、空間を移動する際にフレーバーが入れ替わる現象である。この現象は1957年のPontecorvo氏の「ニュートリノ-反ニュートリノ間の振動」[5]、そして1962年の牧氏、中川氏、坂田氏らによって現在の理論の枠組みが構築された [6]。ニュートリノの弱い相互作用の固有状態を $(\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau)$ 、質

¹当時はニュートリノとは呼ばれていなかった

量の固有状態を (ν_1, ν_2, ν_3) とする。ニュートリノの弱い相互作用の固有状態は質量の固有状態の線形結合として以下のようにあらわされる。

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \\ \nu_\tau \end{pmatrix} = (U_{li}) \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \\ \nu_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} U_{e1} & U_{e2} & U_{e3} \\ U_{\mu 1} & U_{\mu 2} & U_{\mu 3} \\ U_{\tau 1} & U_{\tau 2} & U_{\tau 3} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \\ \nu_3 \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

ここで (U_{li}) は 3×3 のユニタリ行列で要素 U_{li} はその要素である。各要素 U_{li} は、フレーバーが l のニュートリノが、質量固有状態 i で存在する確率の大きさと位相を表している。このニュートリノの混合を表す行列をポンテコルボ・牧・中川・坂田の頭文字をとって PMNS(あるいは MNPS) 行列と呼ぶ。

ここでは真空中のニュートリノ振動について説明する。

2世代の場合

簡単のために、ニュートリノが2世代の場合 (ν_e, ν_μ) と (ν_1, ν_2) の場合) を考える。この場合、 (U_{li}) は 2×2 の実行列になり以下のようにあらわされる。

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} = (U_{li}) \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.2)$$

ここで θ は混合角 (mixing angle) と呼ぶ。時間 t 秒後のニュートリノの状態 ($l = e$ or μ) を $|\nu_l(t)\rangle$ とすると、

$$|\nu_l(t)\rangle = \sum_{i=1}^2 U_{li} e^{-iE_i t} |\nu_i\rangle \quad (1.3)$$

となる。 ν_i のもつエネルギーを E_i とすると、 $|\nu_i\rangle$ 状態の時間発展は $e^{-iE_i t}$ とあらわされ、自由空間を伝わるニュートリノはエネルギー (質量) の固有状態で伝播する。

さらに、時刻 $t = 0$ で状態が l で、 t 秒後の状態が l' となる確率 P を考える。式 (1.3) を状態 l の固有状態に置き換えると、

$$|\nu_l(t)\rangle = \sum_{i=1}^2 \sum_{l'=e}^{\mu} U_{li} U_{l'i} e^{-iE_i t} |\nu_{l'}\rangle \quad (1.4)$$

となる。また、ニュートリノは相対論的な速度で運動していると考えると $E_i = p + \frac{m_i^2}{2p}$ と書ける。よって、確率 P は

$$P(\nu_l \rightarrow \nu_{l'}) = |\langle \nu_{l'}(t) | \nu_l(0) \rangle|^2 \quad (1.5)$$

$$= \sum_i \sum_j U_{li} U_{l'i} U_{lj} U_{l'j} \cos(E_i - E_j)t \quad (1.6)$$

となる。時間 t の間のニュートリノの飛行距離を $L (= ct)$ と書き換えると、ニュートリノの振動確率はそれぞれ

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) = P(\nu_\mu \rightarrow \nu_e) = \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 L}{4E}\right) \quad (1.7)$$

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_e) = P(\nu_\mu \rightarrow \nu_\mu) = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 L}{4E}\right) \quad (1.8)$$

となる。ただし、 $\Delta m^2 \equiv m_2^2 - m_1^2$ で、2つのニュートリノの質量の2乗の差である。

即ち、ニュートリノ振動が観測される条件は以下ようになる。

1. ニュートリノにおける弱い相互作用の固有状態 (フレーバー固有状態) と質量の固有状態は同一ではない $\rightarrow \theta \neq 0, \pi/2$
2. ニュートリノの質量固有状態は異なる質量を有する $\rightarrow \Delta m^2 \neq 0$

ニュートリノ振動は、まず 1968 年に開始した太陽ニュートリノ観測実験である「Homestake 実験」において示唆された [7]。その後、1998 年にスーパーカミオカンデ (SK) における大統計の大気ニュートリノ測定を通じて観測され [8]、ニュートリノは質量を有しており、弱い相互作用の固有状態と質量の固有状態が異なることが判明した。また、 Δm^2 を $[\text{eV}^2]$ 、 E を $[\text{GeV}]$ 、 L を $[\text{km}]$ で表すと、 \sin^2 の中身は

$$\frac{\Delta m^2 L}{4E} = 1.27 \frac{\Delta m^2 [\text{eV}^2] L [\text{km}]}{E [\text{GeV}]} \quad (1.9)$$

となる。梶田氏はこの業績が称えられ、2015 年にノーベル物理学賞を受賞された。

3 世代の場合

2 世代の場合は、 2×2 の実行列 (回転行列) であったが、3 世代の場合はニュートリノが e, μ, τ の 3 種類存在しているため、PMNS 行列 (U_{PMNS}) は一般に複素行列で、3 つの混合角 ($\theta_{12}, \theta_{23}, \theta_{13}$) と 1 つの複素位相 (δ) を用いて以下のように表現できる。

$$U_{PMNS} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & C_{23} & S_{23} \\ 0 & -S_{23} & C_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{13} & 0 & S_{13}e^{-i\delta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -S_{13}e^{-i\delta} & 0 & C_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{12} & S_{12} & 0 \\ -S_{12} & C_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.10)$$

$$= \begin{pmatrix} S_{12}C_{12} & S_{12}C_{13} & S_{13}e^{-i\delta} \\ -S_{12}C_{23} - C_{12}S_{13}S_{23}e^{i\delta} & C_{12}S_{23} - S_{12}S_{13}S_{23}e^{i\delta} & C_{13}S_{23} \\ S_{12}S_{23} - C_{12}S_{13}C_{23}e^{i\delta} & -C_{12}S_{23} - S_{12}S_{13}C_{23}e^{i\delta} & C_{13}C_{23} \end{pmatrix} \quad (1.11)$$

ここで、 $C_{ij} = \cos \theta_{ij}$, $S_{ij} = \sin \theta_{ij}$ とした。 δ は Charge-Parity (CP) 破れの位相を表しており、 $\delta \neq 0$ の場合、ニュートリノにおける CP 対称性は破れていることになる。質量二乗差も 3 つ ($\Delta m_{21}^2, \Delta m_{32}^2, \Delta m_{31}^2$) あり、どちらの質量が重いのか (例えば $m_1 < m_3$ なのか $m_1 > m_3$)、つまり「質量階層性」も明らかになっておらず、正負の値がとれる。

ニュートリノ振動実験

2、3 世代の場合について見てきたが、ニュートリノ実験の実験的な効果を理解するためにはしばしば 2 世代間での近似を扱う。ニュートリノ振動への感度はニュートリノのエネルギーとその飛距離に依存する。その感度を理解するために、2 世代間の振動の式を $L_0 = 4\pi E / \Delta m^2$ として書き直すと以下ようになる。

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) = P(\nu_\mu \rightarrow \nu_e) = \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\pi L}{L_0}\right) \quad (1.12)$$

L_0 は振動距離 (Oscillation Length) と呼ばれる。振動距離が移動距離よりも十分大きい場合 ($L_0 \gg L$) 観測は困難になる。一方で、振動距離が移動距離よりも十分小さい場合 ($L_0 \ll L$) 振動の頻度は大きくなり観測が可能になる。

1.1.4 物質効果

これまで述べてきたニュートリノ振動の理論は、ニュートリノが自由粒子で真空中を伝播するものであった。しかし、ニュートリノが地球や太陽などの物質中を伝播する場合はニュートリノと物質の相互作用を考慮する必要がある。

ニュートリノが物質を通過する際、物質内部の電子、陽子そして中性子と「コヒーレント前方散乱」をする。すべてのフレーバーはZボソンを介した中性カレント反応を起こせるが、電子ニュートリノだけは物質中の電子により W^\pm ボソンを介した荷電カレント反応の影響を受けるため余分なポテンシャルエネルギーを感じる [9]。

$$V_e = V_{CC} + V_{NC}, V_{\mu/\tau} = V_{NC} \quad (1.13)$$

ここで、NC=Neutral Current、CC=Charged Current である。また、ポテンシャルそれぞれ以下のように書ける。

$$V_{CC} = \sqrt{2}G_F N_e, V_{NC} = -\frac{\sqrt{2}}{2}G_F N_n \quad (1.14)$$

ここで、 G_F は弱い相互作用の結合定数 (フェルミ結合定数)、 $N_{e/n}$ は物質中の電子/中性子の数密度である。物質中の電子と陽子の密度は等しいため、電子と陽子による NC 反応は相殺される。これは弱い相互作用では内部構造に依らず、弱荷電によって決まるからである。2つのフレーバーの混合を、質量固有状態の時間発展で考える。

$$i \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.15)$$

また、フレーバー固有状態で書き換えると

$$i \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = U \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix} U^\dagger \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} \quad (1.16)$$

$$= \begin{pmatrix} -\frac{\Delta m^2}{4E} \cos 2\theta & \frac{\Delta m^2}{4E} \sin 2\theta \\ \frac{\Delta m^2}{4E} \sin 2\theta & \frac{\Delta m^2}{4E} \cos 2\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} \quad (1.17)$$

さらに、荷電カレント反応の効果を加えると、

$$i \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{\Delta m^2}{4E} \cos 2\theta + \sqrt{2}G_F N_e & \frac{\Delta m^2}{4E} \sin 2\theta \\ \frac{\Delta m^2}{4E} \sin 2\theta & \frac{\Delta m^2}{4E} \cos 2\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

のように書ける。行列を対角化するために物質効果における混合行列 U_M を、 θ_M を用いて新たに以下のように定義する。

$$U_M = \begin{pmatrix} \cos \theta_M & \sin \theta_M \\ -\sin \theta_M & \cos \theta_M \end{pmatrix} \quad (1.19)$$

物質効果における混合角は以下のように与えられる。

$$\tan 2\theta_M = \frac{\frac{\Delta m^2}{2E} \sin 2\theta}{\frac{\Delta m^2}{2E} \cos 2\theta - \sqrt{2}G_F N_e} \quad (1.20)$$

また、質量の二乗差については

$$\Delta m_M^2 = \Delta m^2 \sqrt{(\cos 2\theta - A)^2 + \sin^2 2\theta} \quad (1.21)$$

pp-chain

pp-chain は以下の 5 つの反応により、ニュートリノを生成する。

$$p + p \rightarrow {}^2\text{H} + e^+ + \nu_e (\leq 0.420 \text{ MeV}) \quad (1.26)$$

$$p + e^- + p \rightarrow {}^2\text{H} + \nu_e (1.442 \text{ MeV}) \quad (1.27)$$

$${}^7\text{Be} + e^- \rightarrow {}^7\text{Li} + \nu_e (0.861 \text{ MeV}(90\%), 0.383 \text{ MeV}(10\%)) \quad (1.28)$$

$${}^8\text{B} \rightarrow {}^8\text{B}^* + e^+ + \nu_e (\leq 14.06 \text{ MeV}) \quad (1.29)$$

$${}^3\text{He} + p \rightarrow {}^4\text{He} + e^+ + \nu_e (\leq 18.77 \text{ MeV}) \quad (1.30)$$

上から、pp, pep, ${}^7\text{Be}$, ${}^8\text{B}$, hep 太陽ニュートリノと呼称する。pep, ${}^7\text{Be}$ ニュートリノは単一のエネルギーを持ち、それ以外は上限値が与えられている。

CNO cycle

CNO cycle は以下の 3 つの反応により、ニュートリノを生成する。

$${}^{13}\text{N} \rightarrow {}^{13}\text{C} + e^+ + \nu_e (\leq 1.27 \text{ MeV}) \quad (1.31)$$

$${}^{15}\text{O} \rightarrow {}^{15}\text{N} + e^+ + \nu_e (\leq 1.73 \text{ MeV}) \quad (1.32)$$

$${}^{17}\text{F} \rightarrow {}^{17}\text{O} + e^+ + \nu_e (\leq 1.74 \text{ MeV}) \quad (1.33)$$

図 1.1 右に示す様に、3 つの反応が 2 つのループで循環している。

これらの反応によるニュートリノのフラックスは以下の表 1.1 にまとめた通りである。また、

Type of reaction	Flux[cm ² /sec]
pp	$5.94(1 \pm 0.01) \times 10^{10}$
pep	$1.4(1 \pm 0.02) \times 10^8$
${}^7\text{Be}$	$4.86(1 \pm 0.12) \times 10^9$
${}^8\text{B}$	$5.79(1 \pm 0.23) \times 10^6$
hep	$7.88(1 \pm 0.16) \times 10^3$
${}^{13}\text{N}$	$5.71(1_{-0.35}^{+0.37}) \times 10^8$
${}^{15}\text{O}$	$5.03(1_{-0.39}^{+0.43}) \times 10^8$
${}^{17}\text{F}$	$5.91(1 \pm 0.44) \times 10^6$

表 1.1: 各反応における太陽ニュートリノのフラックス [14]

SSM で予想された地球上で観測される太陽ニュートリノのエネルギースペクトルは以下の図 1.2 のようになっている。

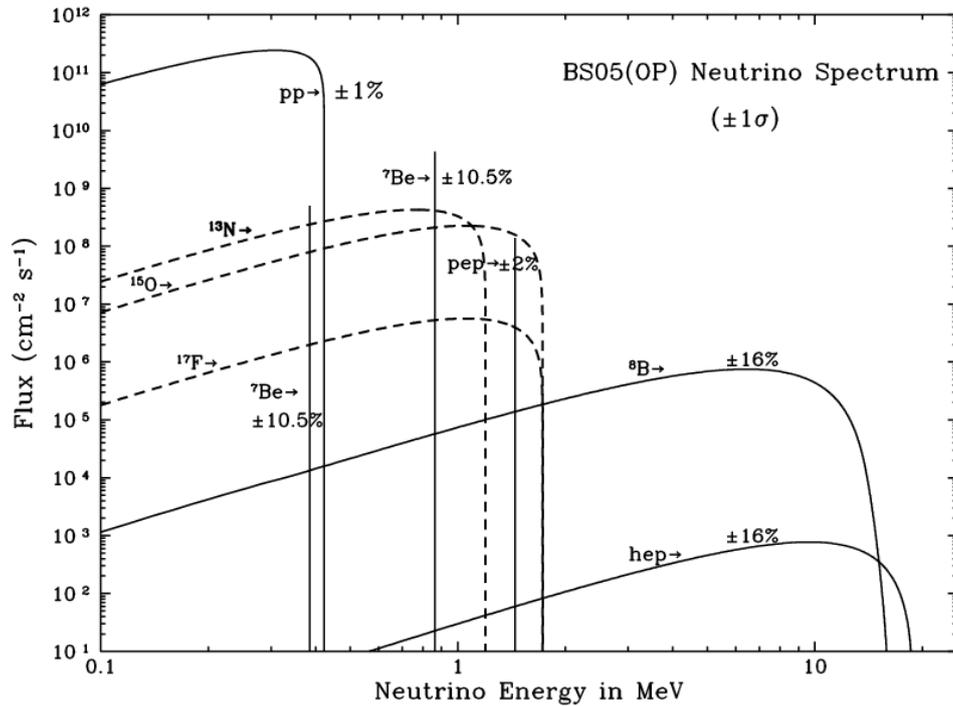


図 1.2: 太陽ニュートリノのフラックス [15]

1.2.2 太陽の周期活動

太陽は 11 年周期で活動していることが知られている。この 11 年周期の観測は太陽の黒点数の計測によって行われており、R.Wolf 氏によって提唱された [16]。黒点数の観測自体は 300 年以上の歴史がある。

磁束を放出する黒点は、太陽の表面に現れる。太陽の活動が活発なときに黒点数が増加するため黒点数と太陽の活動周期には強い相関がある。図 1.3 は 1750 年から現在までの、図 1.4 は近年の黒点数の周期変動を示す。データは NASA の公式サイトから賜った [17]。

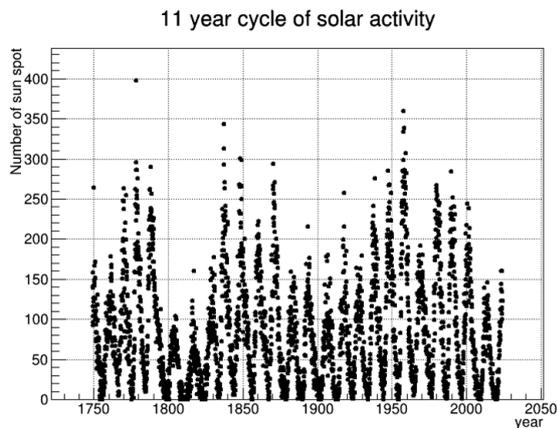


図 1.3: 太陽の黒点数の周期変動。1750 年から 2025 年

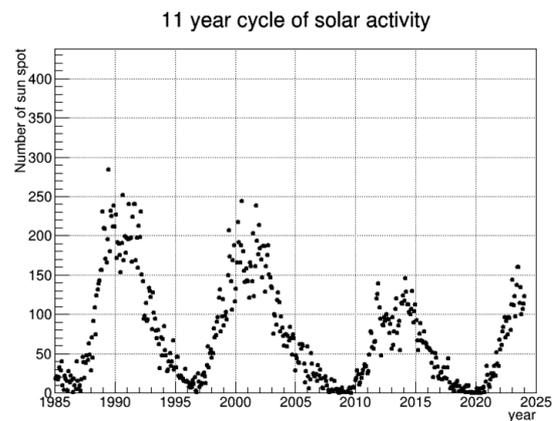


図 1.4: 太陽の黒点数の周期変動。1985 年から 2025 年

1.2.3 スーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測

SK では純水中の水分子中の電子が太陽ニュートリノと弾性散乱することによって生じるチェレンコフ光を検出することで太陽ニュートリノを観測している。

$$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^- \quad (1.34)$$

特に、反跳した電子は太陽ニュートリノが飛来した方向を保存するため、反跳電子と太陽の方向のなす角を θ_{sun} として $\cos \theta_{sun}$ 分布を見ると $\cos \theta_{sun} = 1$ に超過が見られるような分布が得られる。

図 1.5 に SK(phase-IV²) の 2970 日分のデータにおけるエネルギー範囲 3.49 – 19.49 MeV の反跳電子と太陽方向のなす角 $\cos \theta_{sun}$ 分布を示す。

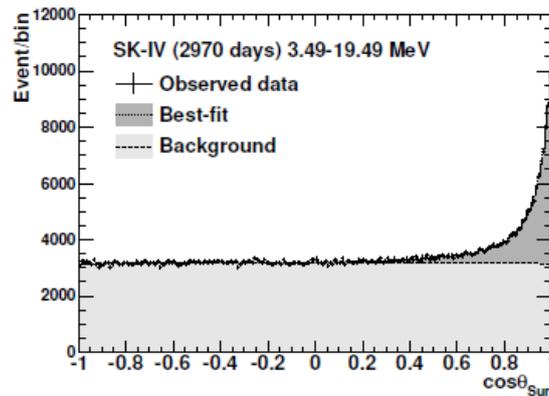


図 1.5: SK(phase-IV) の 3.49–19.49 MeV における反跳電子と太陽方向のなす角 $\cos \theta_{sun}$ 分布。[18]

一方で、3.49 – 3.99 MeV と低エネルギーにおける $\cos \theta_{sun}$ 分布は図 1.6 に示す。このような低エネルギー領域では信号と背景事象の比が小さい。これは第 2 章で詳しく述べる ^{222}Rn に由来するバックグラウンドが主な原因であると考えられている [19]。

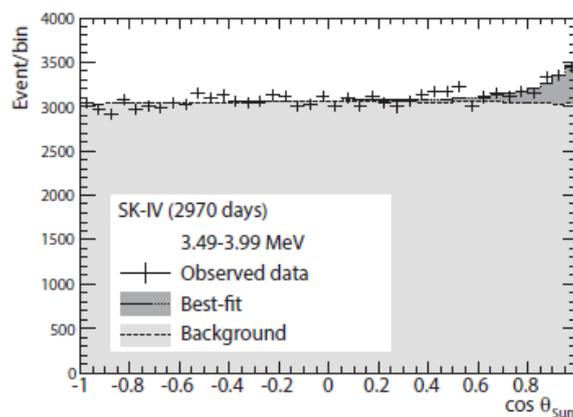


図 1.6: SK(phase-IV) の 3.49–4.99 MeV における反跳電子と太陽方向のなす角 $\cos \theta_{sun}$ 分布。[18]

次に、電子ニュートリノの生存確率のエネルギー分布を図 1.7 に示す。

²SK の観測 phase に関しては 2.1.2 で説明する。

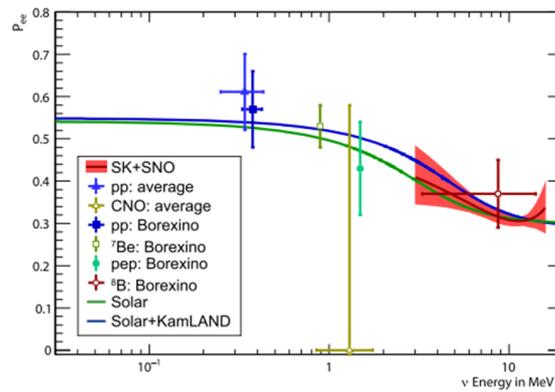


図 1.7: 電子ニュートリノの生存確率のエネルギー分布。濃い青と緑の線はニュートリノ振動から期待される生存確率のエネルギー分布を示す。[18]

SK などの太陽ニュートリノ実験で振動パラメータが決定され、電子ニュートリノの生存確率が計算される。3 ~ 5 MeV 付近で物質効果により、太陽電子ニュートリノ生存確率が変化する「up-turn」が見られる [11] [10]。

SK はこのエネルギー領域に感度を持つため、振動パラメータを精密に測定するには ^{222}Rn に由来するバックグラウンドの低減が大切である。

最後に SK(phase-IV) における振動パラメータの結果を示す [18]。

- $\sin^2 \theta_{12} = 0.308_{-0.029}^{+0.030}$
- $\Delta m_{21}^2 = 6.9_{-1.2}^{+1.6} \times 10^{-5} \text{ eV}^2$

これは物質効果による upturn を約 1.2σ で支持する。

第2章 カミオカンデとラドン

^{222}Rn は地下実験における主要なバックグラウンドになる。この章では、スーパーカミオカンデ実験を中心にラドンバックグラウンドの概要とその関係について触れる。2.1節ではカミオカンデ実験の概要、2.2節ではラドンの諸性質、2.3節ではその計測装置としての高感度ラドン検出器、そして2.4節でラドン吸着・除去の手法について詳述する。

2.1 カミオカンデ

2.1.1 カミオカンデ実験 [1]

1986年、小柴昌俊氏が主導して観測が始まった。当初は陽子崩壊探索が主目的であったが、1987年の大マゼラン星雲で起きた超新星爆発 (SN 1987A) からのニュートリノ信号を世界で初観測したことにより、ニュートリノ天文学に先駆的な貢献をもたらした。小柴先生は、この実績が称えられ2002年にノーベル物理学賞を受賞された [20]。

1996年にその後継機であるスーパーカミオカンデが稼働し始めたためその役目を終えた。現在、跡地でカムランド実験が行われている。

2.1.2 スーパーカミオカンデ実験 [2]

スーパーカミオカンデ (SK) は岐阜県飛騨市神岡町旧神岡鉱山内の世界最大の地下 (1000 m) に設置された水チェレンコフ検出器である。SK は1991年に建設が開始され、1996年4月から観測が始まった。

観測開始から現在まで、以下の表 2.1 のように 8つの観測フェーズに区分される。SK-VI以降

表 2.1: SK の観測フェーズ

観測フェーズ	水	期間	Livetime[days]
SK-I	超純水	1996.4 ~ 2001.7	1496
SK-II	超純水	2002.10 ~ 2005.10	791
SK-III	超純水	2006.7 ~ 2008.8	548
SK-IV	超純水	2008.9 ~ 2018.5	2970
SK-V	超純水	2019.1 ~ 2020.7	379.2
SK-VI	Gd 溶解水	2020.7 ~ 2022.5	560.6
SK-VII	Gd 溶解水	2022.6 ~ 2024.8	404.0
SK-VIII	Gd 溶解水	2024.9 ~	稼働中

は、純水中に Gd(硫酸ガドリニウム 8 水和物, $\text{Gd}_2(\text{SO}_4) \cdot 8\text{H}_2\text{O}$) を溶解することで中性子捕獲効率を向上させた「SK-Gd」実験が開始された。

SK の主目的は陽子崩壊探索、ニュートリノ振動における振動パラメータの精密測定、超新星背景ニュートリノ探索、レプトンセクターにおける CP 対称性の破れなど多岐にわたる。

1998 年に梶田隆章氏が大気ニュートリノ振動の決定的証拠を示したことにより 2015 年にノーベル物理学賞を受賞された [8]。

T2K 実験

SK と茨城県東海村の J-PARC 加速器 [21] 間の長基線ニュートリノ実験である。その距離は 295 km で、前置検出器と後置検出器 (SK) の結果を比較して振動パラメータの精密観測を行っている。

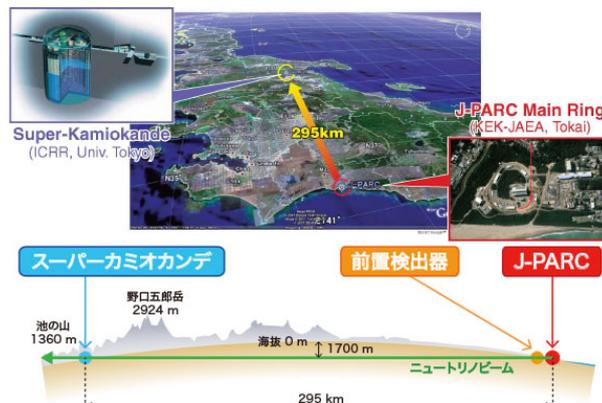


図 2.1: T2K 実験のイメージ画像。J-PARC 公式サイトから引用 [22]

off-axis 法

T2K 実験は世界で初めて off-axis 法を採用したニュートリノ実験である。この手法により検出器をビーム中心からずらすことでエネルギー分布の幅を調整している。T2K の場合、つまり飛距離 295 km に対して最も振動の効果 (振動確率) が顕著になるニュートリノエネルギーは 0.5 ~ 0.7 GeV である。ビームの中心を SK に対して 2.5° ずらすことで 0.7 GeV に鋭いエネルギーピークとニュートリノ振動確率が最も大きくなる分布を作ることができる。図 2.2 に SK で観測される off-axis 毎のエネルギー分布と振動確率を示す。

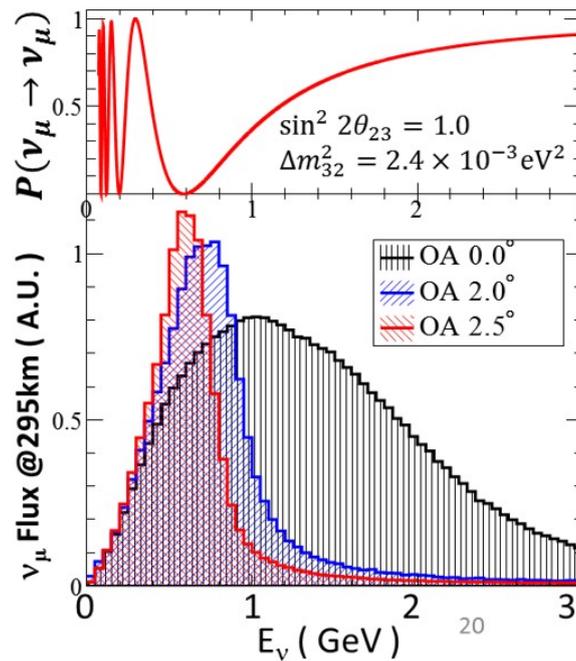


図 2.2: T2K ニュートリノビームのスーパーカミオカンデにおけるエネルギー分布と振動確率 [23]

2.1.3 ハイパーカミオカンデ実験 [3]

さらにその後継機であるハイパーカミオカンデ (HK) は旧神岡鉱山の南方、神岡町の北東に建設中で 2028 年に観測開始予定となっている。HK は SK と比較して、純水質量比が約 5 倍、有効質量比が約 8 倍となっており、その大統計によるレプトンセクターの CP 対称性の破れの早期解明などが期待されている。

また、大気や太陽ニュートリノなどの自然由来のニュートリノ以外に、J-PARC 加速器によるニュートリノビームを用いた CP 対称性の破れの発見にも注力している。ビームパワーの増強も予定されており、現行 T2K 実験の 20 倍の数のニュートリノ観測が見込まれている。

前置検出器

J-PARC には、神岡へ送るニュートリノビームの監視、ニュートリノ相互作用の精密測定、長基線実験における系統誤差の低減を目的として前置検出器群が構築されている。以下に代表的な前置検出器のそれぞれの特徴をまとめた。

INGRID [24]

on-axis 検出器でビーム軸上に位置され、ビームの方向やその強度のモニターに使用される。

ND280 [25]

off-axis 検出器で以下の 3 つを目的としている。

- off-axis 角におけるミューオンニュートリノビームのフラックスとエネルギー分布の測定
- ビーム中に 1% ほど含まれる電子ニュートリノの含有量とその分布の測定

- ニュートリノ反応の精密測定

IWCD [26]

J-PARC のビーム生成点から約 830m 離れた位置に設置予定の中間検出器。後置検出器である SK, HK と同様の水標的を使いつつ、ビーム生成点から近い距離で測定することで高頻度でニュートリノを測定することにより、系統誤差を抑えつつニュートリノ反応断面積を調べることが出来る。また、IWCD は約 50m の立坑に水を入れてその上に浮かせる予定であり、水量を調整することで検出器を上下させることが出来るとされている。これにより、ニュートリノビーム分布を off-axis 角 1° から 4 度まで連続的に測定が可能となり、ビームモデルの改善が期待されている。

これらの前置、後置検出器 (HK 検出器) を総合してハイパーカミオカンデ実験としている。

各検出器の特徴・比較

それぞれの検出器のスケール観や光電子増倍管 (PMT) の数などを図 2.3 に示す。

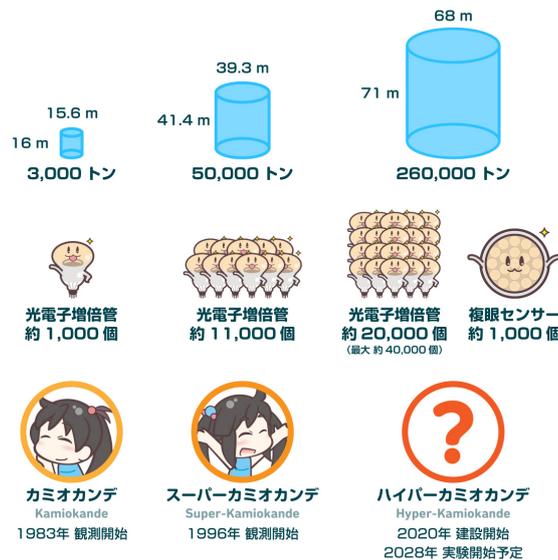


図 2.3: カミオカンデ、スーパーカミオカンデ、ハイパーカミオカンデ実験の概略図。ヒッグスタンより引用 [27]

またそれぞれの検出器の特徴を以下の表 2.2 にまとめた。

表 2.2: 検出器の特徴

	カミオカンデ	スーパーカミオカンデ	ハイパーカミオカンデ
大きさ	直径 19 m × 高さ 16 m	直径 39 m × 高さ 42 m	直径 68 m × 高さ 72 m
総質量 [t]	4500	50000	260000
有効体積 [t]	680 ~ 1040	22500	190000
光電子増倍管	948 個	11466 個	約 20000 個 (40000 個相当 ¹)

¹HK では通常の 20 インチ PMT に加え、3 インチ PMT を内蔵した multi-PMT(mPMT) を設置する予定である。

2.2 ラドン

ラドンは自然に存在する放射性の貴ガスである。無臭・無色で、特別な装置 (後述する静電捕集法を利用したラドン検出器など) がなければ検出ができない。現在、ラドンには合計 39 種類の同位体が知られており、何れも安定ではない。中でも、以下に挙げる 3 つの同位体は比較的長い半減期を持ち自然界で一般的によく見られる [28]。

- ^{222}Rn ($\tau_{1/2} = 3.82146 \pm 0.00016$ (stat.) ± 0.00004 (syst.) days) [29]
- ^{219}Rn ($\tau_{1/2} = 3.96 \text{ s} \pm 0.01 \text{ s}$) [30]
- ^{220}Rn ($\tau_{1/2} = 55.6 \text{ s} \pm 0.01 \text{ s}$) [31]

これらはそれぞれ ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th の壊変系列の中で生成される。 $\tau_{1/2}$ は半減期を表す。それぞれ崩壊鎖の様子は図 2.4 に示される。

地球の地殻には上記に述べた ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th に加えて ^{40}K などの半減期の長い自然の放射性同位体が含まれている。特に ^{238}U の崩壊鎖中腹にある ^{222}Rn は、この壊変系列内の子孫核種において半減期 ($\tau_{1/2} = 3.82 \text{ day}$) が比較的長い貴ガスであるため、生成された土壌や岩石から大気中に漏れ出した後に崩壊するまでに広く拡散されてしまう。検出器の場合は、観測範囲の体積内部まで侵入するのに十分な時間があるため、背景事象となる主要な同位体である。したがって、本論文では特に断りが無い限りラドンといえば ^{222}Rn のことを指す。

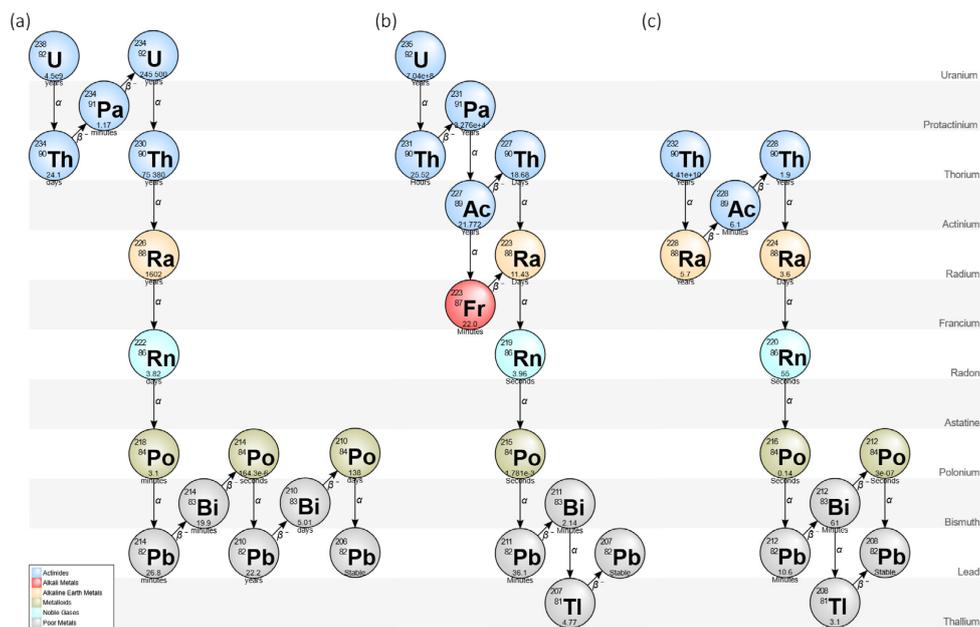


図 2.4: ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th 系列の崩壊鎖。本論文で述べるラドンといえば、 ^{238}U 系列における ^{222}Rn のことを指す。[28]

2.2.1 日常生活とラドン

地殻から放出されたラドンは、建物の基礎部分のひび割れや隙間を通して屋内に侵入し、室内に蓄積することがある。高濃度のラドンへの曝露は喫煙に次いで肺がんの原因とされており、効果的な低減策が求められている。慣例的には、換気の改善、侵入口の封止、ラドン排出システム

の導入などが挙げられる。しかし、これらは費用や改修の問題などから、一般的に家庭や施設で運用できるわけではない。このために、代替手段としてラドン吸着への関心が高まっている。資源エネルギー庁 2022 年の資料によると、地殻による地域差はあるが、日常生活を送るうえで人体のラドンによる被ばく量は世界平均で $1260 \mu\text{Sv}/\text{year}$ である [32]。

2.2.2 地下実験とラドン

前述のとおり、ラドンは土壌や岩石から放出される。坑内のような外気との空気交換の少なく、滞留しやすい地下環境でのラドンの量は外気よりも多い。

SK の坑外と坑内 (タンク上部の観測エリア) の空気中のラドン濃度を図 2.5 と図 2.6 に示す。坑外のラドン濃度は坑内のラドン濃度と比較して低いことが分かる。また、夏季と冬季では坑内の風向きの変化によりラドン濃度の変化が見られる。

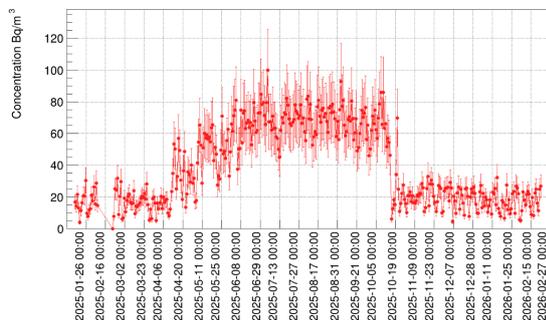


図 2.5: SK 坑外のラドン濃度の推移

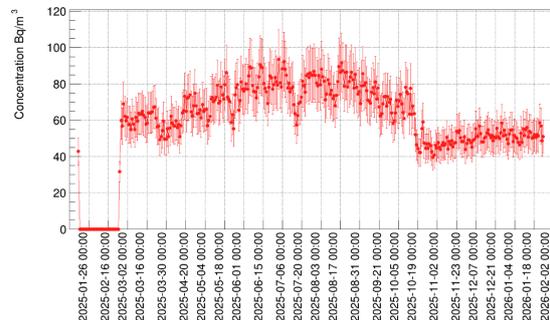


図 2.6: SK 観測エリアのラドン濃度の推移

例えば、第 1 章で述べた通りスーパーカミオカンデにおける太陽ニュートリノ観測では、pp-chain で生じる ${}^8\text{B}$ ニュートリノ (電子型) を測定しており、ニュートリノ振動の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。ここで、ラドンの子孫核種である ${}^{214}\text{Bi}$ が β 崩壊することで生じる電子は Q 値が 3.26 MeV であるため、 ${}^8\text{B}$ ニュートリノ観測などの低エネルギー領域で深刻なバックグラウンドになる。よって、ラドンの低減は極めて重要であり、後述するがスーパーカミオカンデでは水純化装置、空気純化装置によってラドンバックグラウンド低減している。

2.3 ラドン検出器

ラドン濃度を低い状態に維持しそれを確認するためには継続的な測定が肝要である。そこで SK では高感度ラドン検出器を独自に開発しており、タンク内に供給するバッファガスなどのラドン濃度を数 mBq/m^3 の精度で測定している。従来は、SK では 70 L [33] や水中のラドン濃度測定のための 700 L [34] のラドン検出器を使用していたが、測定の制限などの理由により、 80 L ラドン検出器が新たに開発された [35]。この検出器はラドン放出が少ない部材で構成されており検出器自体の固有バックグラウンドが抑制されている。本研究でもこのラドン検出器を用いてラドン濃度測定を行った。検出器の写真と構造は図 2.7 と図 2.8 のとおりである。



図 2.7: 80L Rn 検出器の写真

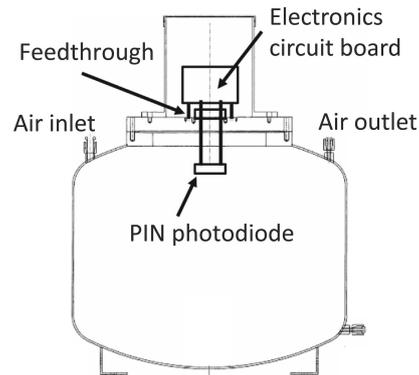


図 2.8: 80L Rn 検出器の概略図 [36]

2.3.1 検出原理

この検出器は高電圧をかけると、ステンレス鋼容器内壁と PIN フォトダイオード間で電位差が生じる。検出領域内に充満している空気中のラドンの子孫核である Po(ポロニウム) は正に帯電しやすいため [37]、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。これを「静電捕集」と呼ぶ [38]。補修された Po イオンは、崩壊して α 線を放出する。核種ごとに α 線のエネルギーが異なるため、エネルギースペクトルから Po 同位体を特定できる。 ^{222}Rn の子孫核である ^{210}Po (5.30 MeV), ^{214}Po (7.69 MeV), ^{218}Po (6.00 MeV) の 3 種類は U 系列であり、それぞれの観測されるスペクトルを図 2.9 に示す。 ^{212}Po (8.78 MeV), ^{216}Po (6.78 MeV) は Th 系列である。

本研究では、 ^{214}Po の計数率からラドン濃度を算出する。その理由としては ^{214}Po が崩壊系列の下流にあることやエネルギー選択領域 (図 2.9 の赤点線) には Th 系列が混入しづらいことが挙げられる [39]。

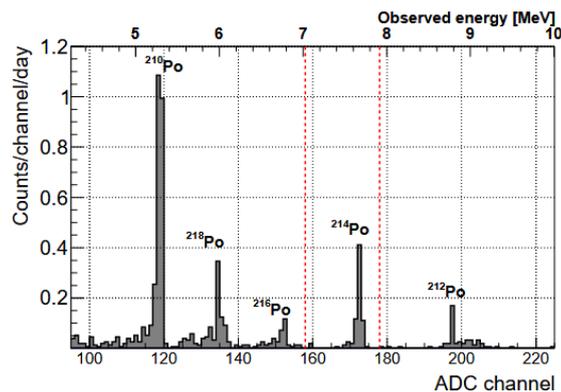


図 2.9: 80L ラドン検出器で測定したウラン、トリウム系列の子孫核によるエネルギースペクトル [36]

横軸は ADC チャンネルでエネルギーに対応しており、縦軸は各エネルギーごとの 1 日当たりの計測数となっている。赤線で囲んだ範囲が ^{214}Po のエネルギースペクトルであり、この範囲に入った信号をラドン濃度を計算するために使用する。

2.3.2 較正係数

^{214}Po の計数からラドン濃度への変換を行うために較正係数 $C_f[(\text{counts/day})/(\text{mBq/m}^3)]$ を使用する。この較正係数は検出器内の水分により正に帯電した Po が中性化されるため [40] [41]、湿度に依存する。較正係数は絶対湿度 $A_H[\text{g/m}^3]$ と以下の図 2.10 のような関係を持っていることが先行研究からわかっている [35]。そこで、 ^{214}Po の ADC channel の範囲を例えば図 2.9 のように選択し、積分することで観測頻度 (counts/day) を求め、ラドン濃度を導出することができる。較正係数を用いた観測頻度とラドン濃度の関係は以下の式に示すとおりである。

$$\text{ラドン濃度} [\text{mBq/m}^3] = \frac{\text{観測頻度} [\text{count/day}]}{\text{較正係数} [(\text{counts/day})/(\text{mBq/m}^3)]} \quad (2.1)$$

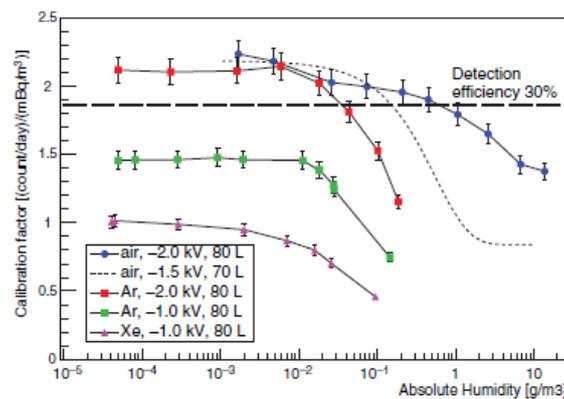


図 2.10: 80L ラドン検出器の較正係数と絶対湿度の関係 [35]

また、絶対湿度は露点温度と気温から以下の式で求めることができるため、ラドン濃度への変換をする際はこの二つのパラメータが重要になる。

$$\ln(e) = -6096.9385 \times T^{-1} + 21.2409642 + (-0.02711193) \times T + 1.67395 \times 10^{-5} \times T^2 + 2.433502 \times \ln(T) \quad (2.2)$$

$$A_H = e \times \frac{0.00794}{1 + 0.00366 \times t} \quad (2.3)$$

ここで、 A_H : 絶対湿度 (g/m^3), t : 気温 ($^{\circ}\text{C}$), T : ケルビン表記の露点温度 (K) である。

2.4 ラドン吸着・除去

ラドン吸着 (除去) の手法は素粒子実験分野はもちろん、医療分野など様々な分野で広く古くから研究されており、1906 年のラザフォード氏による活性炭を用いたラドン吸着実験がもっとも古い文献である [42]。活性炭に端を発して、シリカゲル、MOFs (Metal-Organic Frameworks)、そして本論文の主役であるゼオライトなど様々な物質や環境下においてラドン吸着が研究されてきた。図 2.11 にこれまでのラドン吸着研究の年表を示す。年表の一番右下が本論文で紹介する、銀ゼオライトを用いたラドン除去の結果である。

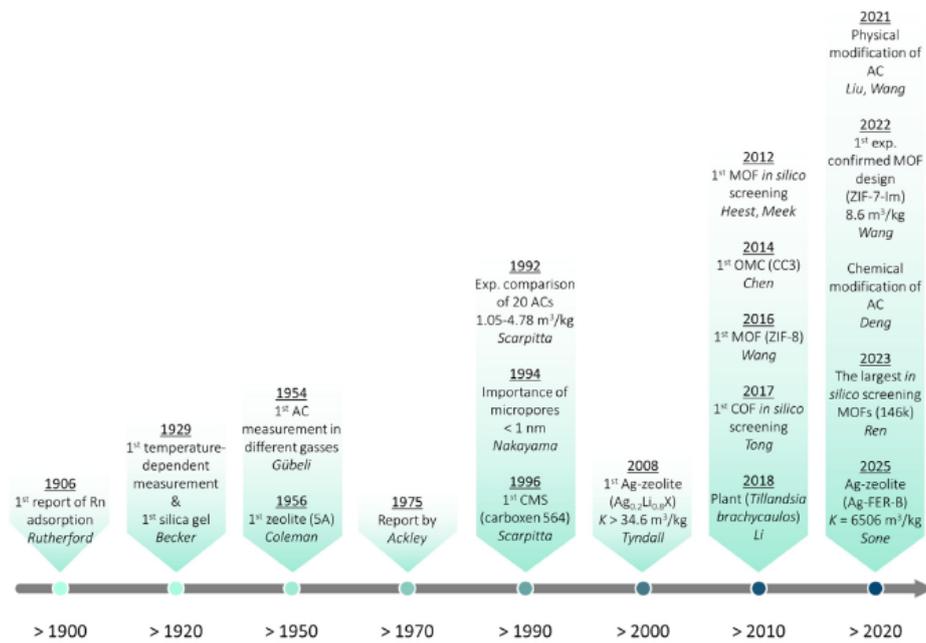


図 2.11: Rn 吸着研究の年表 [28]

以下に、ラドン吸着の指標であるラドン吸着係数 (K) と代表的なラドン吸着材について述べる。

2.4.1 ラドン吸着係数

ラドン吸着・除去性能の指標であるラドン吸着係数 (Radon adsorption coefficient. 以下、単に K と書くこともある) について述べる。ラドン吸着係数は、ラドン吸着実験の手法に応じてその定義が異なる。

直接測定 (平衡型)

この測定方法では、吸着材とキャリアガス間に熱力学的平衡状態になったあとに、それぞれのラドン放射能を直接測定することによりラドン吸着係数を評価する。ラドン吸着係数は、Henryの法則に似た形式で以下の様に定義される [43]。

$$A = KC \rightarrow K = \frac{A}{C} \text{ [m}^3\text{/kg]} \quad (2.4)$$

ここで、 A : 吸着材の単位質量当たりの放射能 [Bq/kg]、 C : 気相中のラドン濃度 [Bq/m³] である。

間接測定 (動的型)

一方で、第 3 章以降で扱うラドン吸着係数は以下の式で定義される [44], [45]。

$$K = \frac{F \times RT}{m} \text{ [m}^3\text{/kg]} \quad (2.5)$$

ここで、 F : 空気流量 [L/min]、 RT : 保持時間 [day]、 m : 吸着材の質量 kg である。空気流量と吸着材の質量は実験によって固定であるため、実質的にラドン吸着係数は保持時間で決定される。

保持時間とはラドンが吸着材で滞在する時間であり、ラドンは半減期 ($\tau_{1/2} = 3.82 \text{ day}$) に従って崩壊するため、この保持時間の長さがラドン除去に繋がる。図 2.12 にラドン吸着によるラドン除去の模式図を示す。

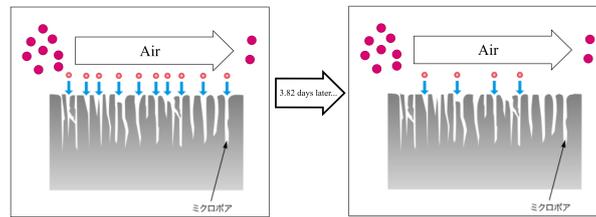


図 2.12: 吸着材におけるラドン吸着の模式図。

この定義は、動的な条件下 (ガスを流し続けている) での評価方法である。吸着後のガスにおけるラドン濃度を測定するため、吸着材は直接測定しない。3.3.2 節で本実験での評価方法のように、ラドンの時間変化などを推定することで評価するためクロマトグラフィー的手法などと呼ばれる。尚、この式を用いた具体的な評価方法は第 3 章で再度詳しく述べる。

2.4.2 活性炭 (Activated Carbon)

活性炭とは、表面が多孔質になっており孔の径より小さな粒子が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 当たりの表面積) が大きく ($500 \sim 2500 \text{ m}^2/\text{g}$)、孔径によって吸着可能な物質の種類、量が異なる。また形状によって、粒状活性炭、活性炭繊維 (ACF) などに分類される。

粒状活性炭

粒状活性炭は活性炭の一種で、図 2.13 右の様な粒形のを指す。表面構造は図のようになっていて、大きい方からマクロ、メソ、マイクロポアと呼ばれる。吸着対象はメソ、マイクロポアに辿り着いたときに吸着される。

活性炭繊維 (Activated Carbon Fiber)

活性炭繊維は図 2.13 左の様である。綿の様な形状をしており、粒状活性炭と比較して比表面積が大きくマイクロポアが表面に直接開かれているところが特徴的である。

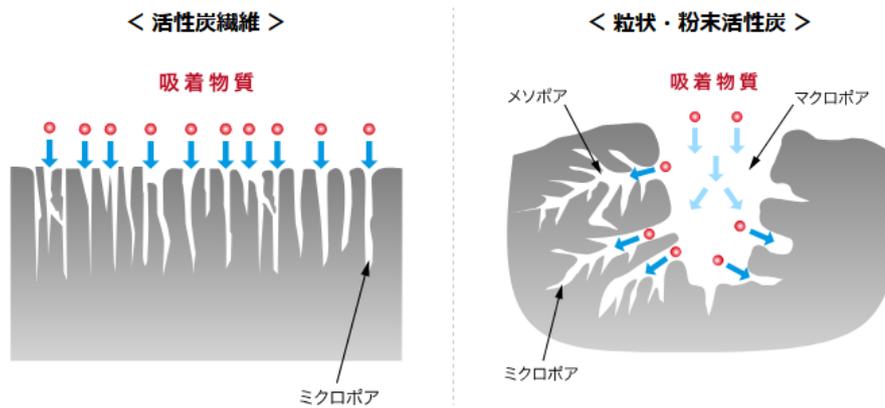


図 2.13: 粒状活性炭と活性炭繊維の概略図 [46]

冷却活性炭

活性炭におけるラドン吸着は、温度に指数関数的に依存することが知られている [47]。Rn 吸着の指標は、第 3 章で詳細に述べるが「ラドン吸着係数」を用いて表される。この値が大きければラドンをより吸着・除去する。温度に依存するラドン吸着係数の式は、Van't Hoff-like 方程式と呼ばれ以下のように表される [48]。

$$K = K_0 \exp\left(\frac{Q}{R \cdot T}\right) \text{ [m}^3\text{/kg]} \quad (2.6)$$

表 2.3: 活性炭におけるラドン吸着係数の温度依存性 [48]

Temp[°C]	Temp[K]	Mass of AC[g]	Flow rate[L/min]	Breakthrough time[min]	K[L/g]
23	296.15	181.0	8.3	150	6.9 ± 1.7
-2	271.15	90.4	18.0	95	18.9 ± 3.4
-18	255.15	14.6	28.0	27	51.8 ± 9.8
-33	240.15	15.0	32.5	47	102 ± 12
-44	229.15	5.1	46.0	17	153 ± 25
-48	225.15	4.2	45.0	16	171 ± 33

表 2.3 は室温から $-48\text{ }^{\circ}\text{C}$ の低温における、活性炭のラドン吸着係数の温度変化の表である。この先行研究は、 $-48\text{ }^{\circ}\text{C}$ まで冷却した活性炭は室温 ($23\text{ }^{\circ}\text{C}$) のものよりラドン吸着係数が 25 倍もあることを示しており、指数関数的に温度に依存したラドン吸着係数の (2.4) 式を支持する。また、図 2.14 はラドン吸着係数が低温になるにつれて指数的上昇する様子を示す。

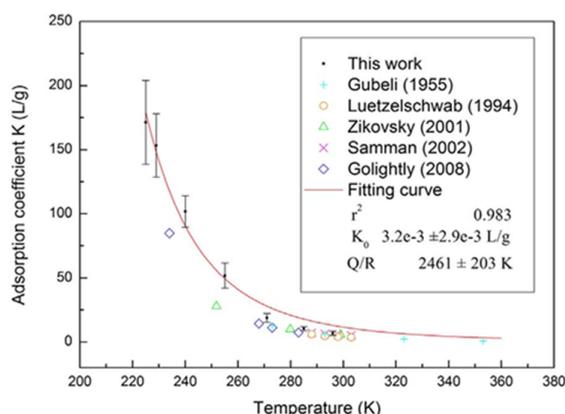


図 2.14: 活性炭におけるラドン吸着係数の温度依存性 [48]

2.4.3 シリカゲル

シリカゲルは、二酸化ケイ素 (SiO_2) からなる非晶質で多孔質な物質であり、ケイ素原子と酸素原子が三次元的に結合して多数の空隙 (void) や細孔から構成される。化学的に安定で、無毒、さらに大きな表面積を有しており乾燥材や湿度調整剤として広く活用されている。

活性炭に次いでラドン吸着が期待され、1929 年から研究が開始された [49] [44]。様々なガス中や圧力下、そして改良が重ねられてきたが、活性炭ほどのラドン吸着能力は認められなかった²。

2.4.4 MOFs

Metal-Organic Frameworks(MOFs) は、金属イオンが有機配位子と配位結合をし、空隙を有する吸着剤である。MOFs は非常に大きな比表面積とその拡張性の高さが特筆すべき性質である。吸着したい物質に応じて、金属イオンや配位子を変えることで細孔の径や相互作用を調節できる。そのため、ガス分別や触媒反応など様々な用途に有望な材料とされている。

2.4.5 ゼオライト

ゼオライトは、一般的に Si, Al をはじめとする元素を中心原子 (一般に T 原子と呼ばれる) とする TO_4 四面体が頂点を共有する三次元的で高度に規則的な骨格構造を持ったアルミケイ酸塩として定義される。また、その構造は全体として負電荷を有しており、その電荷は交換可能な陽イオンによって補償されている。一般的な用途は除湿で、MOFs と同様にガス分別や触媒反応など様々な用途で使用される。

ちなみに、ゼオライトはその骨格構造によって国際ゼオライト協会により 3 文字のコードが与えられる。例えば、5A は LTA 型、後で出てくる ZSM は MFI 型に分類される。また、そのほか ETS、MOR、FER 型など様々な骨格構造の種類がある。

図 2.15 は本研究で使用した FER 型の骨格構造である。z 方向に $5.4 \times 4.2 \text{ \AA}$ の 10 員環、y 方向に $4.8 \times 3.5 \text{ \AA}$ の 8 員環の細孔を持つ。ラドン原子の径は 4.17 \AA [51] であるため十分に収容できる。

²ラドン吸着係数にして $1 \text{ m}^3/\text{kg}$ 以下程度 [50]

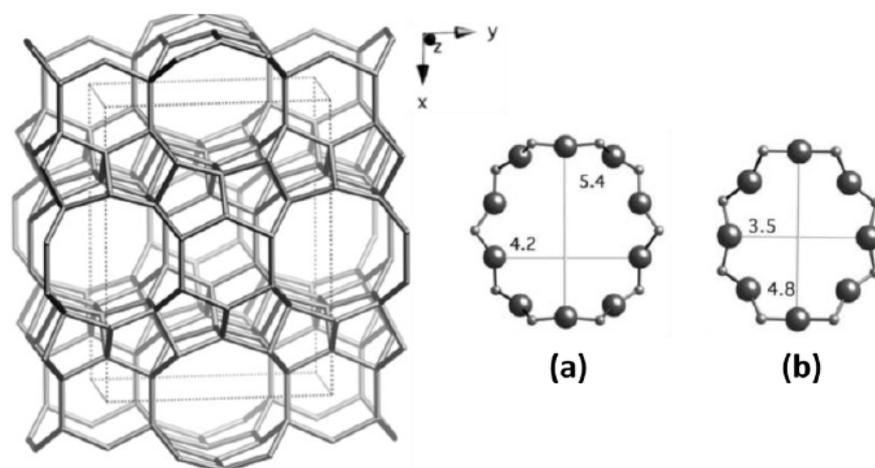


図 2.15: FER 型の骨格構造。z 方向に 10 員環、y 方向に 8 員環の細孔を持つ。[52]

ラドン吸着に初めて使用されたのは 1956 年 [53] で、「5A」と呼ばれるものであった。しかし、そのラドン吸着性能は活性炭と比較して有意に低いものであった。その後、様々なゼオライトサンプルでのラドン吸着が試みられてきたが依然としてその吸着性能は活性炭を上回ることはなかった³。

銀ゼオライト

従来のゼオライトは有意なラドン吸着特性は確認されなかった。しかし、2008 年に銀 (Ag) によるカチオン交換によってラドン吸着性能が大幅に向上することが発見された [55]。ラドンは高い分極率を持つ貴ガスであり、銀イオンによる強い局所電場を形成することで相互作用が増幅することや、銀を添加することでラドン吸着における吸着熱の増加がラドン吸着性能向上の理由とみられている。さらに、銀の含有量を増すほど吸着性能が向上するわけではなく、ゼオライトの骨格構造や銀イオンとゼオライトの相互作用に影響されるというのが現在の見解である [56]。

2.4.6 スーパーカミオカンデにおけるラドン除去

スーパーカミオカンデでは超純水中装置と空気純化システムによってラドンバックグラウンドを低減している。

水純化装置

SK タンク内に給水する超純水は神岡鉱山の地下水から製造されている。水中のラドンを除去することももちろん、チェレンコフ光の検出のために高い水透過率を維持するという目的もある。超純水製造装置の概略図は図 2.16 のとおりである。

³2008 年にラドン吸着係数が $> 34.6 \text{ m}^3/\text{kg}$ という報告がある [54]。本研究を含め、3 章で紹介する先行研究の様に銀ゼオライトのラドン吸着効率が大幅に向上したのはここ数年の話である。

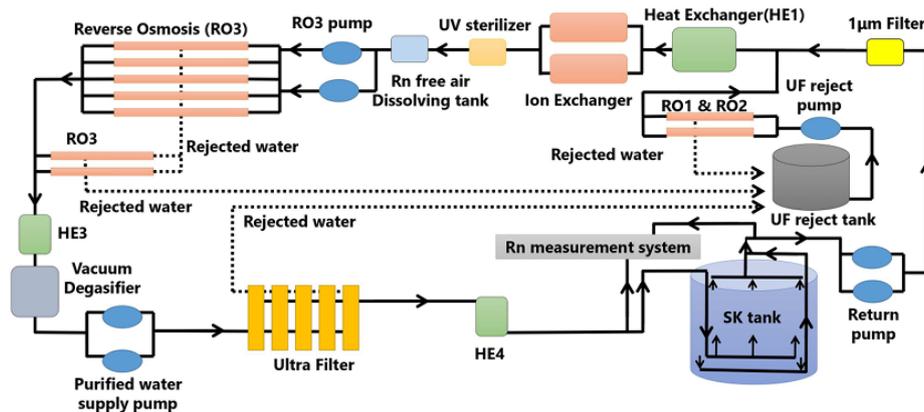


図 2.16: スーパーカミオカンデにおける SK-IV 時点での超純水製造装置の概略図 [57]

また、以下のモジュールで構成されている。

1 μm Filter

水の透過率を減少させたりラドンを含む様な $1 \mu\text{m}$ 以上の塵を除去する。

Heat Exchanger

水の温度を低下させ、PMT におけるダークノイズを抑える。また、水中のバクテリアの繁殖を抑える。

水の温度は、4 つ目の熱交換装置通過後 (図中 HE4) $13.06 \text{ }^\circ\text{C}$ である。

Ion Exchanger

水の透過率を減少させ、放射性同位体を含む重イオンを除去する。

UV sterilizer

熱交換装置を通過して尚生存しているバクテリアを殺す。

Rn free air Dissolving tank

ラドンフリーエアを溶解させることで、真空脱気装置におけるラドン除去効率が増加する。

Reverse Osmosis

浸透圧とろ過によって、分子量が 100 程度の有機物を除去する。

Vacuum Degasifier

溶解しているガスを除去する。溶解した酸素はバクテリアの増殖に寄与する。

Ultra Filter

10 nm 程度の分子を除去する。

超純水製造装置によって、水中のラドン濃度は 2025 年 5 月時点で 3 mBq/m^3 以下まで低減されている⁴。

⁴超純水とは、水の抵抗率が $15 \text{ M}\Omega \cdot \text{cm}$ 以上の水のことであり、SK の水の電気抵抗率は限界値に近い $18.2 \text{ M}\Omega \cdot \text{cm}$ 以上で管理されている。

空気純化装置

ラドンフリーエアは、タンク内の水表面とタンク上部の隙間へ供給される。この隙間は大気圧よりわずかに高い圧力で保たれており、外部からのラドンを含んだガスの侵入を防いでいる。ラドンフリーエアは図 2.17 に示すような空气中ラドン除去システムから供給される。

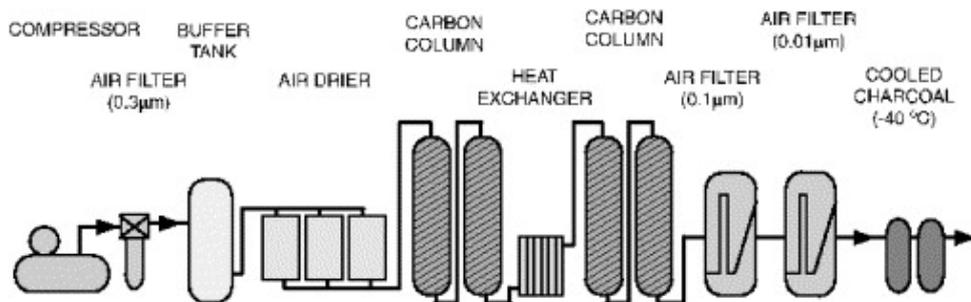


図 2.17: SK における空气中の Rn 除去システムの概略図 [2]

空気は鉱山外でポンプによって取り込まれ、坑内の観測エリアに供給される。この空気のラドン濃度は $\sim 50 \text{ Bq/m}^3$ である。

タンク内へ供給する空気(バッファガス)はコンプレッサーで取り込まれ $18 \text{ Nm}^3/\text{h}$ の流量で空気純化システムに送られる。 $0.3 \mu\text{m}$ フィルターを介して不純物を取り除かれた後にドライヤーで乾燥され、常温活性炭のカラムまで運ばれる。活性炭容器内では、活性炭の吸着材としての性質を用いてラドンを保持する。前述の通り、ラドンは半減期 3.82 日で崩壊するため、活性炭内でのラドンの保持時間の長さが除去能につながる。常温活性炭でのラドン除去の結果は図 2.18 に示す。黒四角が除去前のラドン濃度、黒丸が除去後のラドン濃度である。 $\sim 50 \text{ Bq/m}^3 \rightarrow 20 \text{ mBq/m}^3$ と 1/2000 程度低減させている。

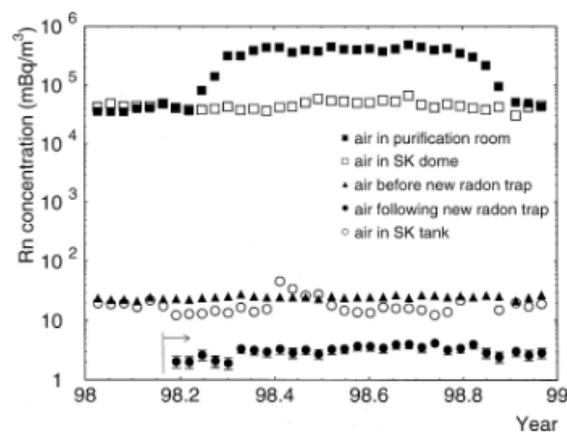


図 2.18: 1999 年当時の純空気供給装置でのラドン除去能 [58]

図 2.17 の右端、ラドン除去システムの最後方のカラム内に冷却活性炭が収められている。観測開始当時は -40°C まで冷却されていたが、現在は空気純化システムのアップデートにより -60°C まで冷却されており吸着効率が大幅に向上している [36]。アップデート後のバッファガス中のラドン濃度は図 2.19 の様になっている。図 2.19 上部はタンク内を經由した後に計測された output

ガス、下部はタンク内へ送り込むラドン除去直後の input ガス中のラドン濃度である。input ガス中のラドン濃度 $0.08 \pm 0.07 \text{ mBq/m}^3$ と計測されている。

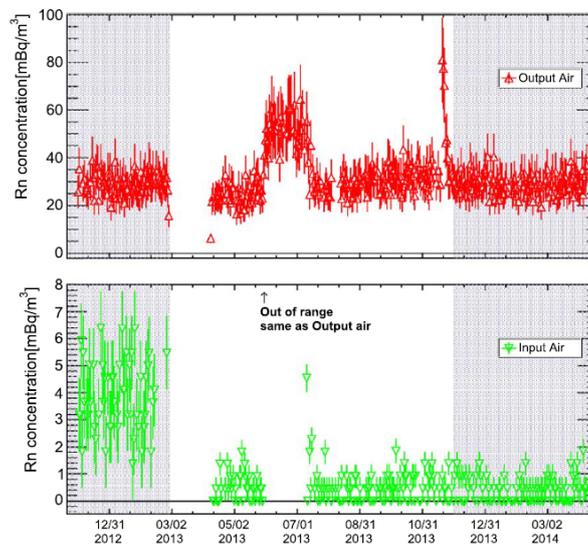


図 2.19: SK のタンク内のバッファーガスの input(下部),output(上部) ガスのラドン濃度。左側の灰色の領域は空気中ラドン除去システムを更新する前。右側の灰色の領域は停電に伴うトラブルがあったためラドン濃度の評価には使用していない。[36]

現在もバッファーガス中のラドン濃度は常時観測されており、 $\sim 1 \text{ mBq/m}^3$ 程度に保たれている。

ラドンバックグラウンドとエネルギー閾値

以上のラドン除去システムにより水中、空気中のラドン濃度を低減させてきた。SK では、水中のラドン濃度が解析時のエネルギー閾値を決定している。SK-IV 以降の観測 phase 毎のエネルギー閾値は表 2.4 に示す⁵。しかしながら、これらの値は MSW 効果によるエネルギースペクトル

表 2.4: SK-IV 以降の太陽ニュートリノ解析時のエネルギー閾値

Phase	Livetime[day]	Energy threshold[MeV]
SK-IV	2970.1	3.49
SK-V	379.2	3.99
SK-VI	560.6	3.99
SK-VII	404.0	4.49

の歪みの観測には不十分である。現状の水中のラドン濃度 (数 mBq/m^3) の改善、あるいはラドンによるバックグラウンド事象を正確に見積もりその統計的な揺らぎを抑えることがさらなるエネルギー閾値の低下の鍵となる。

HK においても太陽ニュートリノの精密観測のために、SK と同様に低いエネルギー閾値が要求される。

⁵SK-VI 以降は Gd を溶解しているため、水中の Rn 濃度が増加した。これにより、閾値を上げざるを得なかった。

したがって、HK においても検出器内のラドン濃度を低く保つことが極めて重要であり、SK と同等かあるいはそれ以下のラドン濃度、つまり 1 mBq/m^3 以下のラドンフリーエアの継続的な供給が求められる。

第3章 銀ゼオライトを用いた空气中ラドン吸着性能の評価

この章では、実際に行った銀ゼオライトを用いた空气中のラドン吸着実験について述べる。3.1節に本研究の動機、3.2節に銀ゼオライトを用いたラドン吸着の可能性を示唆した先行研究についてまとめた後、3.3節で神戸大学で実施した循環試験について詳述する。

3.1 本研究の動機・概要

SKの後継機で2028年に観測開始予定であるHK実験では、実験装置の巨大化(総体積がSKの約5倍、有効体積は約8倍)に伴い、ラドン除去システムの増強が望まれる。ラドン除去システムへ送り込まれる空気の流れ量はSKでは $18 \text{ Nm}^3/\text{h}$ であったものが、HKでは $54 \text{ Nm}^3/\text{h}$ になる予定である。2章で述べたようにSKのラドン除去装置では 8 m^3 の常温活性炭を用いている。このラドン除去装置を空気流量に応じて3倍にスケールしてしまうと装置巨大化とそれら設置するための掘削コストもかかりすぎてしまうことが見込まれるため、ラドン除去システムのコンパクト化が求められている。さらに、ラドン除去性能に関しては、太陽ニュートリノの精密観測のために検出器内のラドン濃度は $1 \text{ mBq}/\text{m}^3$ 以下が望ましい。

そこで、本研究では活性炭に代わる新たなラドン吸着剤として期待される「銀ゼオライト」を用いた空气中のラドン除去性能を評価し、HKに必要なラドン除去システムの概要を検討した。

3.2 先行研究

2023年、銀ゼオライトを用いたラドン吸着の可能性を示唆する先行研究が発表された [56]。キャリアガスに N_2 を用いた室温環境下での循環試験において、Ag-ETS-10とAg-ZSM-5でのラドン吸着係数はそれぞれ活性炭のそれを大きく上回る $K = 3400 \text{ m}^3/\text{kg}$ と $K = 3500 \text{ m}^3/\text{kg}$ を示した。先行研究における、各ラドン吸着剤でのラドン濃度の時間変化は以下の図3.1の様である。緑と紫が銀ゼオライトの結果で、吸着を開始して1週間程度経過後までラドンを保持していることが分かる。

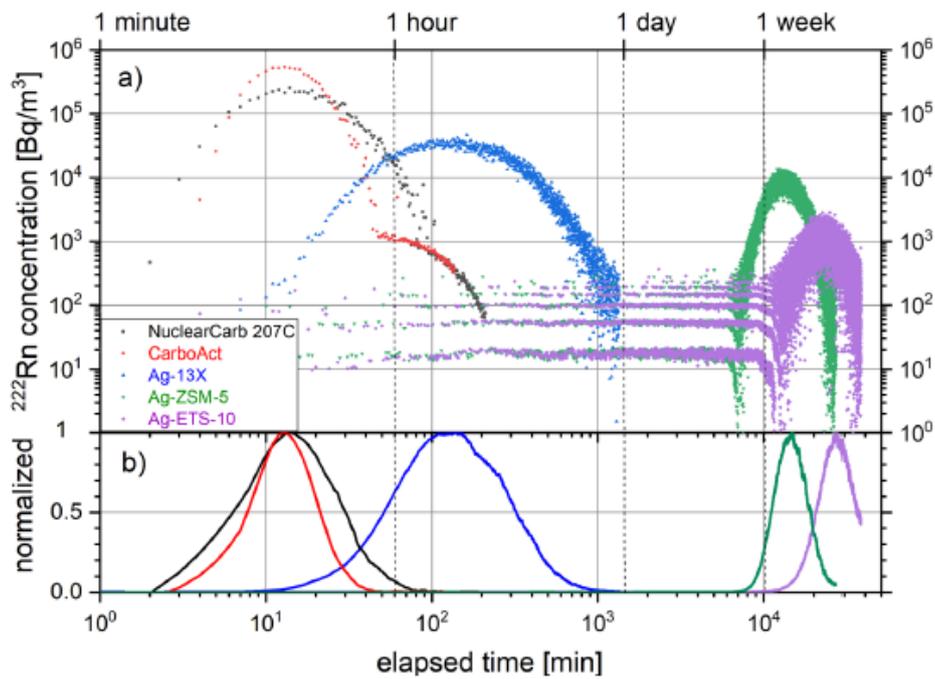


図 3.1: 先行研究のラドン濃度の時間変化 [56]

また、その他のSKの活性炭などを用いた先行研究におけるラドン吸着係数について以下の表 3.1 にまとめた。銀ゼオライトを用いた先行研究は室温環境下で実施されている。これらのラドン

表 3.1: 先行研究における活性炭や銀ゼオライトなどのラドン吸着係数

Sample	Mass of Adsorbent[kg]	Retention time[day]	$K[m^3kg^{-1}]$
Ag-ZSM-5 [56]	8.85×10^{-3}	10.69	3500
Ag-ETS-10 [56]	1.63×10^{-2}	19.16	3400
活性炭繊維 [59]	4.65	1.9	6.47
粒状活性炭 [59]	26.9	10.16	4.96
冷却活性炭 [36], [60]	18.8	16.5	379

吸着係数は常温の粒状活性炭 [59] の約 700 倍、SK における冷却活性炭 (粒状) の約 9 倍という結果である。

以上より、銀ゼオライトを用いることで、室温環境下において空气中ラドン濃度を 1 mBq/m^3 以下に低減でき、併せてラドン除去システムの小型化にも寄与すると考えられる。

3.3 循環試験

3.3.1 試験概要

先行研究の結果を受けて、複数の試作した銀ゼオライトサンプルを用いて循環試験を実施した。この循環試験では、ラドン吸着係数を評価して最もラドン吸着性能の優れた銀ゼオライトサンプルを決定することを目的とした。

銀ゼオライトサンプル

本研究で使用した銀ゼオライトサンプルは、ゼオライトの専門家・業者様の協力を得て空气中ラドン吸着性能に優れたものを新規作成していただいた。以下の表 3.2 に使用した種々の銀ゼオライトとその特徴についてまとめた。それぞれ頭の数字が添加している銀の量 [%] である。FER、ZSM、

表 3.2: 使用した銀ゼオライトの特徴

Sample name	Target silver amount [%]	Silver introduction process	Measured silver amount [%]
3AgFER	3	Normal ion exchange	3.2
8AgFER-B	8	Special ion exchange	8.4
8AgFER-D	8	Impregnation and drying	8.1
AgFER-2	??	Normal ion exchange	5.1
AgZSM-2	??	Normal ion exchange	7.0
AgMOR-2	??	Normal ion exchange	4.9

MOR と言うのはゼオライトの種類、-B や-D、-2 と言うのは銀の添加方法である。詳しい添加方法については企業秘密のため非公開である。実際に使用した銀ゼオライトは以下の図 3.2 のように 1 粒数 mm 程度のペレット状である。



図 3.2: 使用した銀ゼオライトの写真

セットアップ

図 3.3 は循環試験のセットアップの概略である。

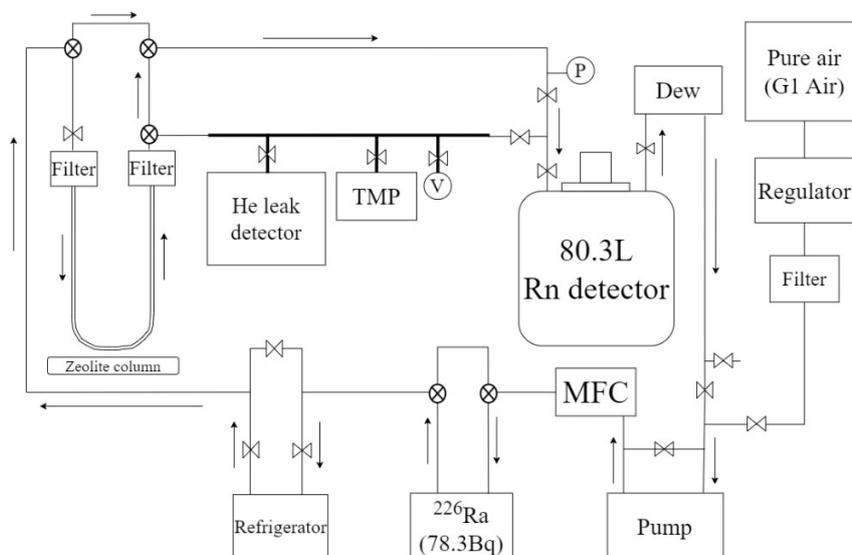


図 3.3: 循環試験のセットアップ図 [61]

線源強度 78.3 Bq のラドン線源を系に接続し、ポンプ (Enomoto Micro Pump MX-808ST-S) と質量流量制御計 (MFC, Horiba SEC-Z500X) で流量を調整しながら、大気圧下 (差圧は +0.003 ~ +0.004 MPaG) で純空気 (TAIYO NIPPON SANGO G1 Air) を循環させた (図 3.3 で見ると時計回り)。線源の後ろは冷凍機 (Taisho TC0147) で、循環する空気の露点温度を調整する。露点温度はラドン検出器後方の露点計 (Vaisala DMT152) で計測した。Zeolite column と書いてあるのが銀ゼオライトを入れた U 字カラム (図 3.5) である。U 字カラムは径が 1/2 インチのものを使用した。また U 字カラムの前後には 0.01 μm のガスフィルターを取り付けて不純物を取り除いている。最後に、ラドン濃度は 80.3 LRn 検出器を用いて計測した。

冷凍機を使用した理由は、銀ゼオライトは空気中の水分も吸着するからである。水分を吸着してしまうとラドン吸着の効率が下がってしまうため、冷凍機を $-90\text{ }^{\circ}\text{C}$ などの低温で設定し吸着試験を実施した。

実際の実験の様子は図 3.4 の写真の様である。

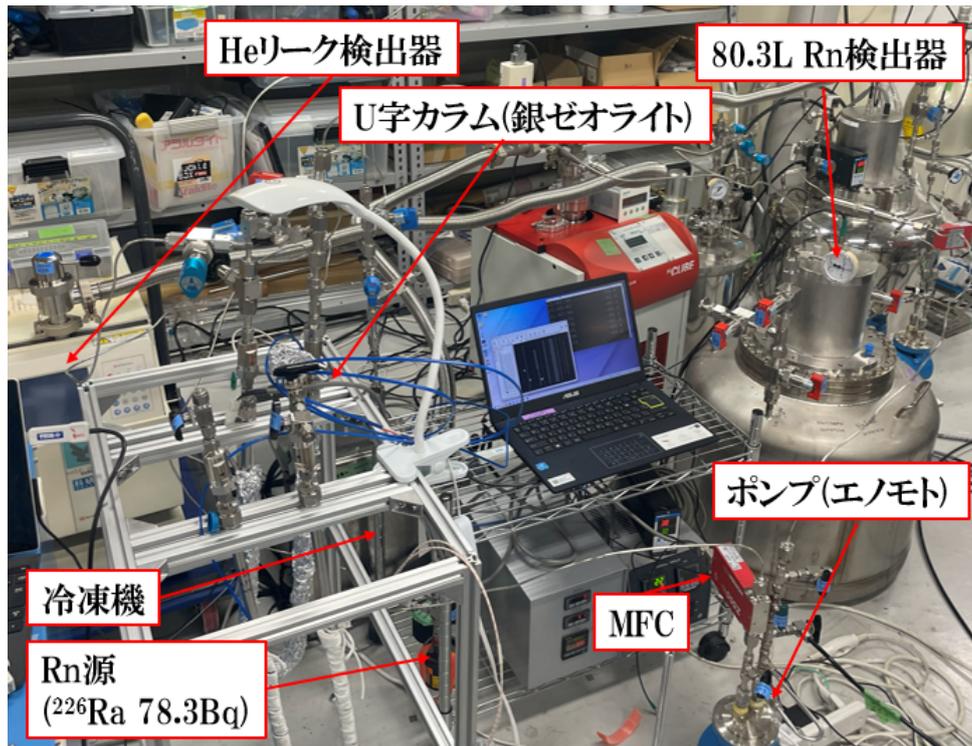


図 3.4: 循環試験のセットアップの写真

実験操作・手順

循環試験は以下の様な手順に従って行った。

1. U字カラムをバイパスして循環し放射平衡を確認する。
2. U字カラムを交換(次のサンプルへの交換)して、ヒーターの設定は 200 °C で真空引きをしながら圧力が $\sim 10^{-4}$ Pa になるまでベーキングを行う。
3. U字カラム経由に切り替え循環試験を開始する。(ラドン吸着測定)
4. ラドン濃度比が確認出来次第、ベーキング (200 °C) を開始して吸着したラドンを追い出す。
5. 1に戻る。

ラドン濃度比(後述の Rn concentration ratio)は、放射平衡時のラドン濃度と吸着試験中のラドン濃度の比を取ったものである。

ゼオライトはラドン以外にも空気中の水分を吸着するため、除湿剤としても効果がある。この水を吸着した状態では効率よくラドンを吸着できないため、前処理としてベーキングと真空引きを行い、ラドン吸着に対して理想的な状況を整える必要がある。

真空引きは Turbo-Molecular Pump(TMP)を使用した。ベーキングに使用したヒーターはリボンヒーターと呼ばれるもので、図 3.6 のようである。銀ゼオライトはカラムの図 3.6 に示す赤点線付近まで入っており、ベーキングが確実に行えるようにこの部分を覆うように巻いた。ベーキングに要する時間は何れの試験も真空度が $\sim 10^{-4}$ Pa(TMP の限界)に達するまでと統一した。また、

同様の理由で循環試験中のキャリアガス中の露点温度を低くするため、冷凍機の設定は $-90\text{ }^{\circ}\text{C}$ とした。



図 3.5: 使用した U 字カラム



図 3.6: 使用したリボンヒーター

3.3.2 解析手法

ラドン吸着の指標であるラドン吸着係数 (K) は、2.4.6 節で述べた通り以下の式で表すことができる。

$$K = \frac{F \times RT}{m} \quad (3.1)$$

ここで、 $F[\text{m}^3\text{d}^{-1}]$ は循環している空気の流量、 $RT[\text{d}]$ は吸着剤でのラドンの保持時間、 $m[\text{kg}]$ は吸着剤の質量である。この節では、循環試験でのセットアップにおける保持時間 (RT) およびラドン吸着係数 (K) の評価方法について述べる。

このセットアップでは、常にラドン線源 (^{226}Ra 線源) に接続しているため系内は放射平衡時において 78.3 Bq のラドンが一様に分布している。次に、U 字カラム内とラドン検出器内のラドンの量の比がラドンの滞在時間の割合と一致していると仮定する¹。尚、ここでは簡単のため配管の

¹先行研究 [59] にて、この循環試験のセットアップにおけるこの仮定が妥当であることは確認済みである。

体積は無視している。図 3.7 のように U 字カラム内でのラドン滞在時間 (保持時間) を RT [day]、ラドン検出器内での滞在時間を T [day] とするとラドン濃度比は以下の式で計算できる。

$$Rn \text{ 濃度比} = \frac{T}{RT + T} = \frac{0.0803}{F \times RT + 0.0803} \quad (3.2)$$

ラドン検出器内での滞在時間 T [day] はラドン検出器の容積 $80.3 \text{ L} = 0.0803 \text{ m}^3$ を空気流量 F [m^3d^{-1}] で除して求めた。

また、ラドン濃度比はバイパス時 (銀ゼオライトを経由しない) の放射平衡の値とカラム経由 (銀ゼオライトで吸着後) のラドン濃度から測定することができる。

$$Rn \text{ 濃度比} = \frac{\text{カラム経由の } Rn \text{ 濃度}}{Rn \text{ 線源平衡時の } Rn \text{ 濃度}} \quad (3.3)$$

これらの式を連立することで、ラドン濃度比から保持時間 (RT) を、保持時間からラドン吸着係数 (K) を求める。ラドン濃度比を用いて表すと以下のようなになる。

$$\begin{aligned} K &= \frac{1 - Rn \text{ 濃度比}}{Rn \text{ 濃度比}} \cdot \frac{F \cdot T}{m} \\ &= \left(\frac{1}{Rn \text{ 濃度比}} - 1 \right) \cdot \frac{F \cdot T}{m} \end{aligned} \quad (3.4)$$

つまり、 Rn 濃度比 が小さいと Rn 吸着係数は大きくなる。

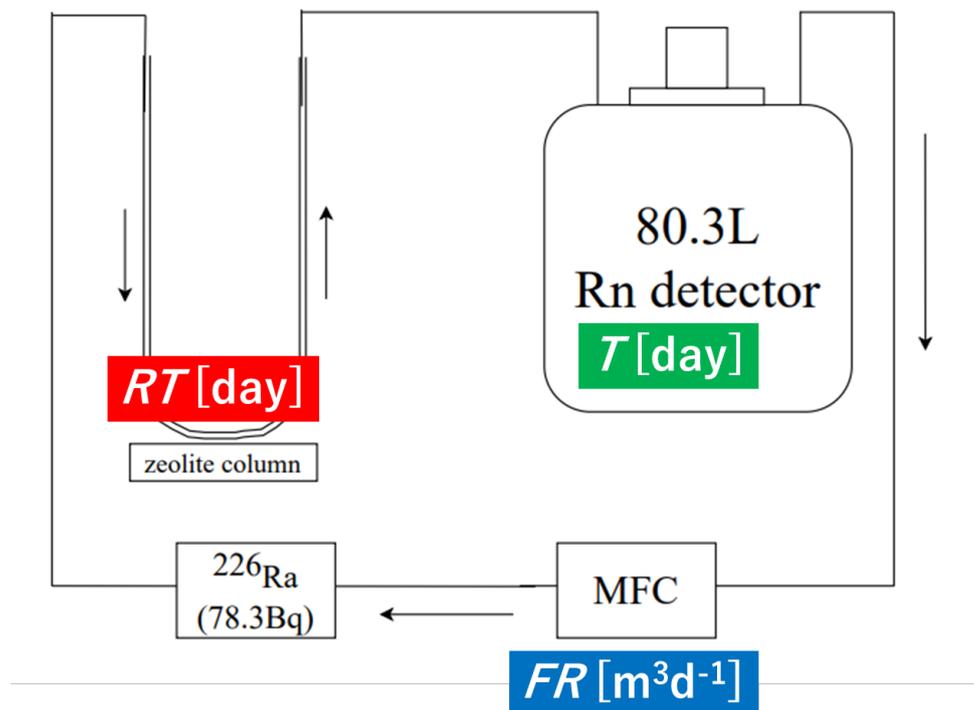


図 3.7: 循環試験における保持時間の評価方法を説明するための簡単な図

実際の評価手順を以下の図 3.8 を用いて説明する。

図 3.8 は、3AgFER(冷凍機の設定 -90°C 、空気流量 3.0 L/min) を 20 g 用いて行った循環試験の結果である。横軸は吸着開始時を 0 とした経過日数 (Elapsed day) である。左のプロットの縦軸

はラドン濃度 [mBq/m^3]、右はラドン濃度比になっている。黒点が測定点、青色の線がラドン線源の放射平衡、桃色が前述した滞在時間の比から予想される経過日数=保持時間 (RT) としたときのラドン濃度 (比) を示す。

ここで放射平衡におけるラドン濃度は以下の式でフィットすることにより求めた。

$$\text{放射平衡におけるラドン濃度} = A \cdot (1 - 2^{-(x-T_0)/\tau_{1/2}}) + B \quad (3.5)$$

フィットするパラメータは A : 平衡時のラドン濃度、 T_0 : 放射平衡が始まったと考えられる時刻、 B : バックグラウンドである。また、 $x = \text{Elapsed day}$ 、 $\tau_{1/2}$: ラドンの半減期 (3.825 day) のことである。

右図の黒点はラドン濃度比で式 (3.3) から求めており、左図の青線と黒点の実測値の比をとったものである。さらに右図の桃色の予想されるラドン濃度比は式 (3.2) から計算しており、ここでは保持時間 (RT)=経過日数としている。最後に、吸着後のラドン濃度比 (Rn_{ratio}) の安定しているところを直線でフィットして、予想されるラドン濃度比と交わったところを実際の保持時間と評価した。これが式 (3.2) と式 (3.3) を連立させることに対応している。さらにその保持時間で横軸に対する垂線を引き、式 (3.4) を表す緑の曲線と交わったところをラドン吸着係数とした。

尚、この循環テストにおける Po の計数率からラドン濃度への変換における較正係数は仮の値として $CF = 2.0$ を使用した。理由としては、PIN フォトダイオードへの印加電圧 -1.0 kV 、キャリアガスが純空気 (N_2) の場合の較正係数は決まっておらず、また較正試験も行っていないためである。しかし先行研究 [35] からおよそこの値であることは分かっていることと、ラドン吸着係数の算出に使うのはラドン濃度比 (放射平衡時のラドン濃度と吸着開始後のラドン濃度) であるため解析に問題はない。

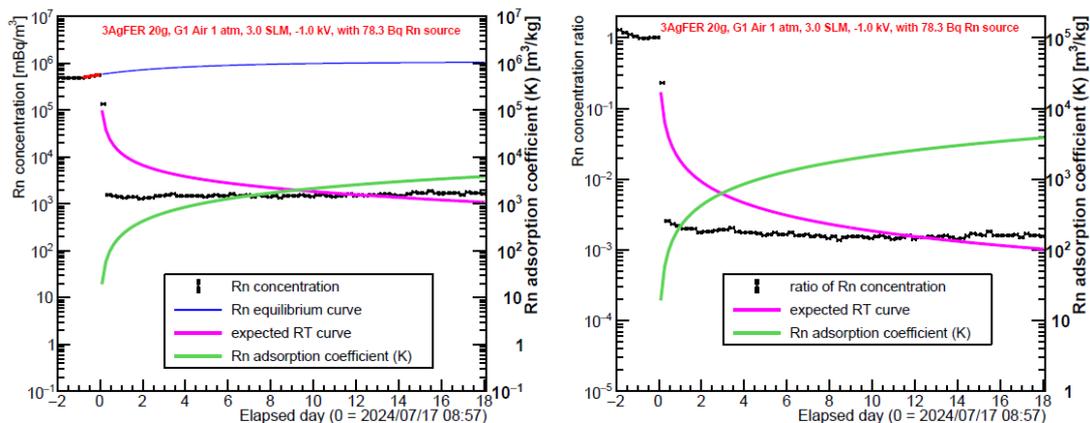


図 3.8: 3AgFER を用いた循環試験の結果の例。桃色の線は経過日数=保持時間としたときの予想される Rn 濃度 (比) であり、データ点 (黒) とずれているのはこのためである。

この測定での結果は、 $Rn_{ratio} = 0.0016$ 、 $RT = 12 \text{ day}$ 、そして $K = 2.6 \times 10^3 \text{ m}^3\text{kg}^{-1}$ となった。

3.3.3 結果

8AgFER-B を 44 g 使用した循環試験

図 3.9 は、測定条件を統一する前に行った最初の吸着試験の結果である。この試験では 8AgER-B を全長 1 m の U 字カラムに詰められるだけ詰めた。そのため使用した 8AgFER-B の量は 44 g で

あった。また、空気流量は 1.57 L/min、冷凍機の設定露点温度は -90°C の条件のもとで試験を行った。

吸着開始後、2 週間程度はシステムのバックグラウンドレベル ($12.6 \pm 3.2 \text{ mBq/m}^3$)²であったため、銀ゼオライトからの有意なラドン放出は確認されなかった。

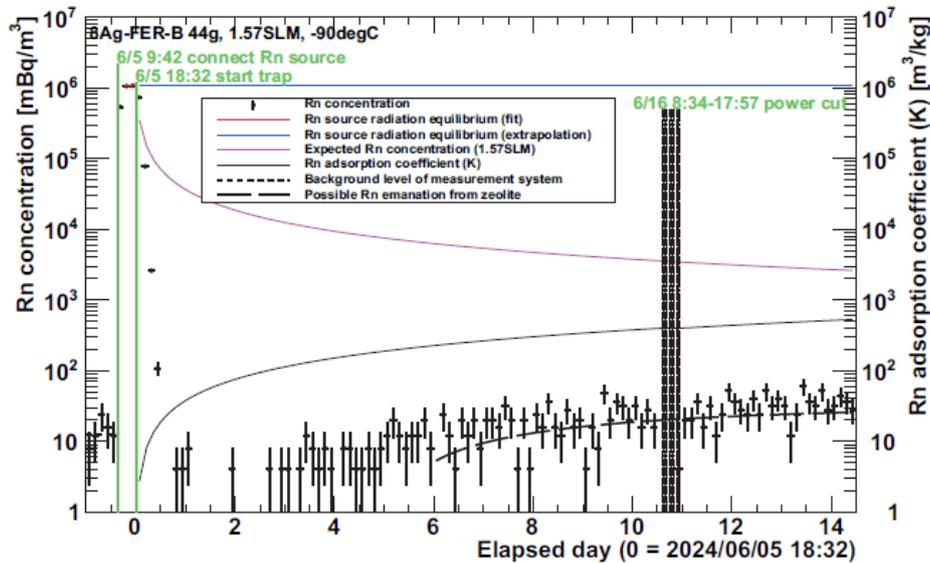


図 3.9: 8AgFER-B 44 g, 1.57 L/min, -90°C で行った最初の循環試験 [61]

尚、試料の多さと流量の小ささから保持時間が長くなりすぎてしまう (図 3.9 の状態が暫く続く) ことが予想されたため途中で中断した。

条件を統一した後の循環試験

上記の 8AgFER-B で行った最初の試験の結果を受けて試料は 20 g、空気流量は 3.0 L/min と条件を厳しく、統一して循環試験を実施した。また、3AgFER-B に関しては露点温度による吸着性能の比較をするため -70°C と -90°C の 2 種類で試験を行った。

それぞれの保持時間とラドン吸着係数は以下の表 3.3 のに示す通りである³。図 3.10 は各試料で

表 3.3: 各試料でのラドン吸着係数の結果

Sample	Refrigerator[$^{\circ}\text{C}$]	Mass of Adsorbent[kg]	Retention time[day]	K[m ³ kg ⁻¹]
3Ag-FER	-70	0.020	2.65 ± 0.04	573 ± 4
3Ag-FER	-90	0.020	11.97 ± 0.14	2563 ± 14
8Ag-FER-B	-90	0.020	30.12 ± 0.048	6506 ± 81
8Ag-FER-D	-90	0.020	21.38 ± 0.27	4618 ± 35
AgFER-2	-90	0.020	9.35 ± 0.06	2020 ± 13
AgZSM-2	-90	0.020	16.49 ± 0.30	3561 ± 58
AgMOR-2	-90	0.020	0.587 ± 0.001	127 ± 0.3

²図 3.9 の Elapsed day=0 の直前の測定値から得られる。

³各測定結果のプロットは付録 A に掲載した。

行った循環試験のまとめである。図の黒曲線は予想されるラドン濃度比、黒点線はラドン吸着係数を示す。

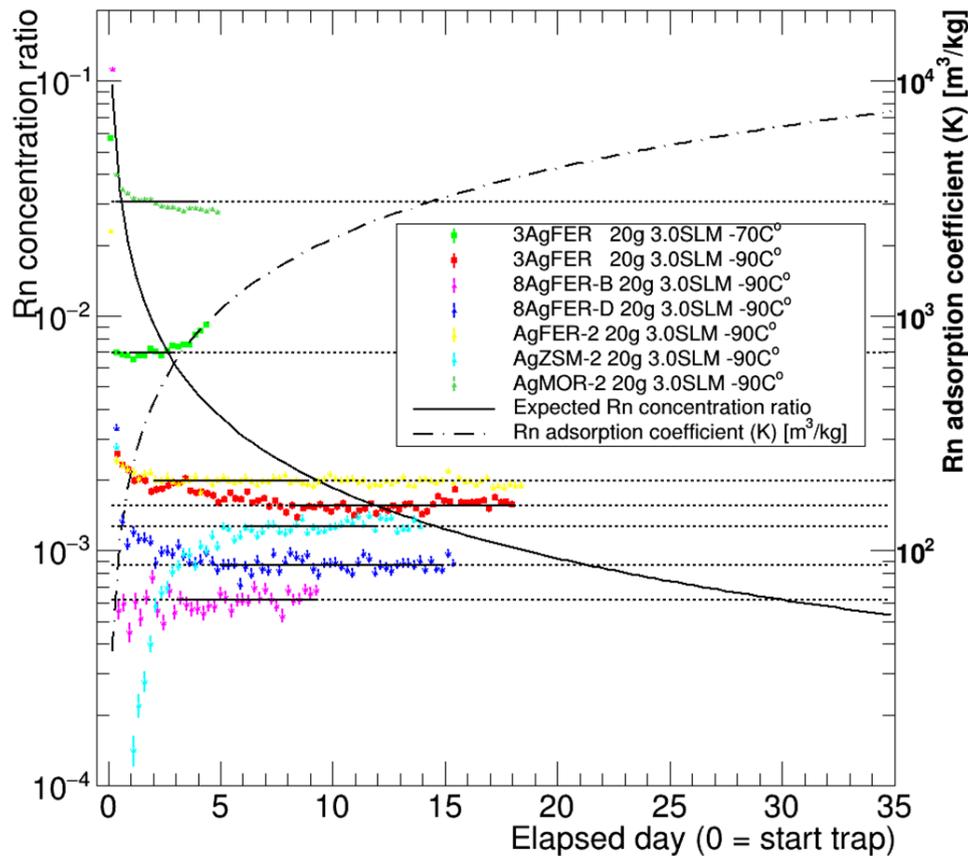


図 3.10: 銀ゼオライトを用いた循環試験のまとめ

3.3.4 議論

8AgFER-B を 44 g 使用した循環試験とラドン放出量

この試験では、活性炭と比較して室温環境下での極めて優れた吸着性能を確認した。ラドンを常温で 1 mBq/m^3 程度 (ラドン濃度比で 10^{-6}) まで除去できたため、目標領域は達成することができた。

また、図 3.9 において吸着開始から 6 日後以降をラドンの放射平衡の式でフィットすることにより、8AgFER-B を含めた測定システムからのラドン放出を評価した。放射平衡の式は以下のものを使用した。

$$\text{放射平衡時のラドン濃度} = A \cdot (1 - 2^{-(x-T_0)/\tau}) + B \quad (3.6)$$

フィットするパラメータは A : 平衡時のラドン濃度、 T_0 : 放射平衡が始まったと考えられる時刻、 B : バックグラウンドレベルである。

フィットの結果より放射平衡時のラドン濃度は $31.9 \pm 2.9 \text{ mBq/m}^3$ 、測定システムからのバックグラウンドレベルは $12.6 \pm 3.2 \text{ mBq/m}^3$ である⁴から、ラドン放出はこれらの差を取って $18.8 \pm$

⁴図 3.9 の Elapsed day=0 の直前の測定値から得られる。

4.3 mBq/m³ と計算できる。さらに、ラドン検出器の容積 80.3 L = 0.0803 m³ と使用した 8AgFER-B の量 (0.044 kg を考慮すると 1 kg 当たりのラドン放出は 90 % の上限値で 45 mBq/kg である。

表 3.4 にまとめた種々の吸着材を用いた先行研究と比較すると、先行研究 [62] の銀ゼオライトよりは少なく、先行研究 [63] の低放射能ゼオライトと同程度であった。さらに、現在は稼働していないが神岡抗内でのダークマター探索実験である XMASS 実験 [64] における粒状活性炭 [65] や SK で使用されている活性炭繊維と比較すると、種類によってはそれより低いラドン放出の結果を示している。

表 3.4: 吸着材からのラドン放出の先行研究

Sample	ラドン放出 [mBq/kg]
(This work)	
8AgFER-B	< 45(90 %C.L.)
(先行研究-活性炭)	
Shirasagi G ₂ X 4/6 [65]	67 ± 15
A-10 [19]	< 352(90 %C.L.)
A-15 [19]	< 11.9(90 %C.L.)
A-20 [19]	< 5.5(90 %C.L.)
A-25 [19]	< 269(90 %C.L.)
(先行研究-銀ゼオライト)	
Ag-ETS-10 [62]	40 ± 1
A5 Zeolite [63]	14.2 ± 7.0

ベーキングなどの前処理やカラムの並列化などの運用設計を考えればハイパーカミオカンデにおいて十分適用できると考えられる [61]。

条件を統一した後の循環試験

表 3.3 より、3AgFER を使用して冷凍機の設定温度 (露点温度) を -70 °C と -90 °C で比較した試験では、ラドンを効率よく吸着するためには露点温度は -90 °C 程度は必要であることが分かった。

また、条件を統一した後の最も良い結果を示したサンプルと先行研究の結果を表 3.5 にまとめた。8AgFER-B が最も良い結果であったため、銀の添加率と吸着性能が比例しているような傾向が見えた。さらに、8AgFER-B と 8AgFER-D の試験から D 型添加よりも B 型添加の方がラドン吸着性能が比較的良いとすることがいえる。さらに今回は室温での試験であったが、8AgFER-B のラドン吸着係数は SK の冷却活性炭 (-60 °C) の 12 倍以上であった。

課題

3AgFER-B の試験によって、露点温度は -90 °C 必要であることが分かった。今回の循環試験ではセットアップがコンパクトで空気の流量も 3.0 L/min であったため冷凍機を用いて調整できたが、実際の環境ではとても予算的に厳しいため別の手法で -90 °C を達成する必要がある。この点については、次節の 1pass 試験で除湿用のゼオライトを用いて検討した。また、ラドン除去装置内は 0.3 ~ 0.7 MPa の高圧環境下であるため、この状況下での吸着性能も確認する必要があるが、これは本論文では取り扱っていない。

表 3.5: 各試料でのラドン吸着係数の結果と先行研究との比較

Sample	Refrigerator[°C]	Mass of Adsorbent[kg]	Retention time[day]	K[m ³ kg ⁻¹]
(This work)				
8Ag-FER-B	-90	0.020	30.12 ± 0.048	6506 ± 81
8Ag-FER-D	-90	0.020	21.38 ± 0.27	4618 ± 35
AgZSM-2	-90	0.020	16.49 ± 0.30	3561 ± 58
(先行研究)				
Ag-ZSM5 [56]		8.85 × 10 ⁻³	10.69	3500
Ag-ETS-10 [56]		16.3 × 10 ⁻³	19.16	3400
活性炭繊維 [59]		4.65	1.9	6.47
粒状活性炭 [59]		26.9	10.16	4.96
冷却活性炭 [36], [60]		18.8	16.5	379

第4章 HKにおける空气中ラドン除去装置への応用

この章では、HKで実装する銀ゼオライトを用いた空气中ラドン除去装置の構想を立て、それを模した1pass試験におけるラドン除去性能について述べる。構成は4.1節にHKのラドン除去装置の構想、4.2節に3章の循環試験と同じ条件で行った1pass試験、4.3節に除湿用ゼオライトの決定、4.4節に除湿用ゼオライトと8AgFER-Bを使用した1pass試験となっている。

4.1 HKでのラドン除去装置の構想

4.1.1 ラドン吸着と除去

2.4で述べたが、吸着材でトラップされたラドンは半減期 $\tau_{1/2} = 3.8235$ day に従って崩壊する。つまり、吸着材で保持される時間 RT の長さがラドン除去能力に直結する。この関係は、一般に以下の式で表される。

$$R = 2^{-\frac{RT}{\tau_{1/2}}} \quad (4.1)$$

R は、ラドン残留率やラドン除去率などと呼ばれるが、本論文では後者を採用しラドン除去率(式中では Rn removal efficiency = R_{eff}) と呼称する。

4.1.2 HKのラドン除去装置

現在のHKでのラドン除去装置は以下のような環境で運用される設計になっている。

- 空気流量: 900 L/min
- 露点温度: -70 °C
- 坑外から供給される除去前の空气中のラドン濃度: 50 Bq/m³

まずは必要な保持時間を計算する。要求されるラドン濃度 1 mBq/m³ をであるから、必要なラドン除去率は $R_{eff} = 1 \div 50000 = 1/50000$ 、ラドンの半減期 $\tau_{1/2} = 3.8235$ day を考慮すると

$$R_{eff} = 2^{-\frac{RT}{3.8235}} = \frac{1}{50000} \rightarrow RT = 59.68 \text{ day} \quad (4.2)$$

より、59.68日の保持時間が必要である。8AgFER-Bを使用すると式2.4のラドン吸着係数の公式より必要な銀ゼオライトの量は $K = 6500$ m³/kg のもとで以下のように計算できる。

$$m = RT \cdot \frac{F}{K} = 59.68 \cdot \frac{1296}{6500} = 11.90 \text{ kg} \quad (4.3)$$

したがって、HKのラドン除去装置は約12kgの8AgFER-Bで満足できると言える。

SK のラドン除去装置は、空気流量が $18 \text{ Nm}^3/\text{h}$ に対して使用している常温活性炭の量は 8 m^3 (重さにして約 4 t^1) である。そのまま HK の仕様 (流量が 3 倍) にスケールすると 24 m^3 のスペース、重さにして約 12 t を要する。したがって、8AgFER-B を使用することでラドン除去装置の大幅な小型化が期待できると言える。

SK の装置を模倣して活性炭を銀ゼオライトに置き換えた現段階でのラドン除去装置の構想は以下の図 4.1 に示す通りである。

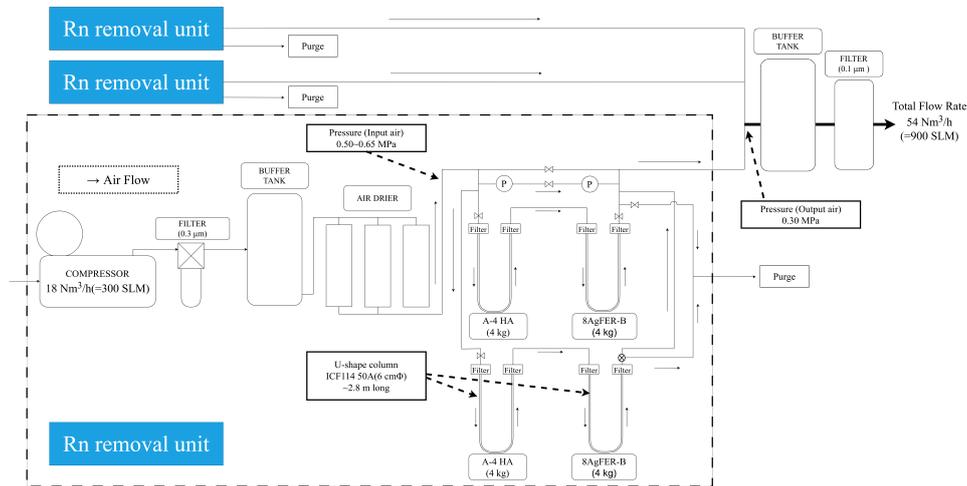


図 4.1: 現段階 (2026 年時点) での HK における空气中ラドン除去装置の構想

図 4.1 における「Rn removal unit」を 3 つ同時に運用する構想で、各構成要素については以下にまとめた通りである。

COMPRESSOR

坑外の空気を取り込み、ラドン除去装置へ $18 \text{ Nm}^3/\text{h}$ (= 300 L/min) の流量で送り込む。最終的にタンク内へ供給する空気流量は合計して $54 \text{ Nm}^3/\text{h}$ (= 900 L/min)。

FILTER(3 μm)

不純物を取り除く。

BUFFER TANK

空気を一時的に貯め、このバッファータンク前後における流量、圧力差を緩和する。

AIR DRIER

コンプレッサーで圧縮したドレン (水分) や不純物を除去する。この時点で空气中的露点温度は $-70 \text{ }^\circ\text{C}$ になる仕様である。

A-4 HA

4.3 節で詳述する除湿用のゼオライト。8AgFER-B に送り込む空气中的露点温度を $-90 \text{ }^\circ\text{C}$ 以下にする。

8AgFER-B

ラドンを吸着・除去する。

¹ [66] より粒状活性炭は充填密度 $\sim 0.5 \text{ kg}/\text{m}^3$

FILTER(1 μm)

より細かい不純物を取り除く。

図 4.1 の空気を供給する装置群は SK と同様で、後半の水分とラドンを除去する領域が新たに活性炭から除湿用ゼオライトと銀ゼオライトに置き換わる。除湿 (A-4 HA)、ラドン除去用 (8AgFER-B) の U 字カラムのセットは 2 系統に分岐している。吸着限界に達したらこれらを切り替え、ベーキングなどの前処理を施すというような運用を想定している²。

本論文の範囲を超えるが、この切り替えや前処理は全て自動制御装置で制御する。以降の章では、このセットアップを踏まえて以下のような順序で試験を行った。

4.2 節

3.3 節の循環試験のような、ラドンが銀ゼオライト何度も通過する吸着試験ではなく、1 度だけ通過する 1pass 試験におけるラドン除去試験。

4.3 節

3.3 節の循環試験の結果を受けて、銀ゼオライトに入力する露点温度 $-90\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以下に除湿する必要があることが分かった。したがって、2 種類の除湿用ゼオライトを用いて (冷凍機なしで) 露点温度 $-90\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以下が達成可能か調べた。

4.4 節

図 4.15 のような 2 系統の切り替えでラドン除去が可能か調べるため、近しい条件で 1pass 試験を行った。

尚、以降のラドン除去試験では、すべてこの 8AgFER-B を使用した。

4.2 1pass 試験におけるラドン除去

4.2.1 概要

1pass 試験

実際のラドン除去装置は外気を取り入れてラドンを除去した後、タンク内部の水表面とタンク上部の間の空間に送り込む。つまり、循環試験のようにラドンソースが何度も吸着材を経由するのではなく、1 度の経由の間にラドンを吸着する必要がある。

1-pass 試験はその状況を模したもので、実験室中の空気を取り込み、吸着材でラドンを吸着した後実験室へ放出する。

期待されるラドン除去率

3 章でも触れたように、ラドンは $\tau_{1/2} = 3.82\text{ days}$ の半減期に従って崩壊するため、吸着材における保持時間がラドン除去率 (Rn removal efficiency, R_{eff}) と関連している。その式は、

$$R_{eff} = 2^{-T/\tau_{1/2}} \quad (4.4)$$

と表せる。

²3.3 節の循環試験ではベーキングと同時に真空引きをしていたが、HK での運用時はベーキングのみになる可能性がある。

循環試験の結果より、8AgFER-B によるラドンの保持時間は $T = 30.12$ day であった。したがって期待されるラドン除去率 (R_{eff}) は以下の式 4.5 のとおりである。

$$R_{eff} = 2^{-30.12/3.82} \sim 4.0 \times 10^{-3} \quad (4.5)$$

最初の 1pass 試験では循環試験と同じ条件で行い、この「ラドン除去率 $R_{eff} \sim 4.0 \times 10^{-3}$ の達成」と「銀ゼオライトの前処理の条件 (ベーキングなど) の最適化」を目的としている。

セットアップ

セットアップと実際の写真は以下の図 4.2 と図 4.3 に示す。

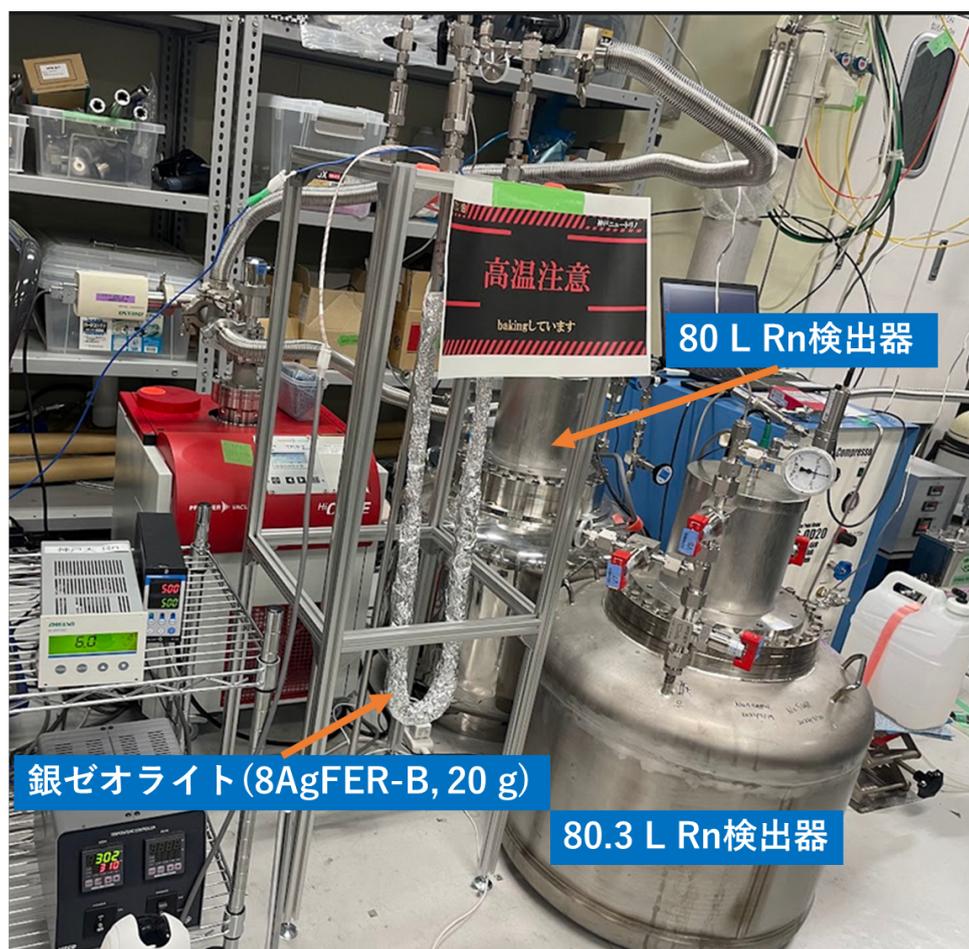


図 4.2: 8AgFER-B を 20 g 使用した 1-pass 試験の写真

中央のアルミホイルで包んだ 1/2 インチのステンレスカラム内に 8AgFER-B が入っている。アルミホイルはベーキングの効率を上げるために保温効果を期待して巻いている。奥の金属光沢が目立つ方が 80 L ラドン検出器で、右手前が 80.3 L ラドン検出器である。

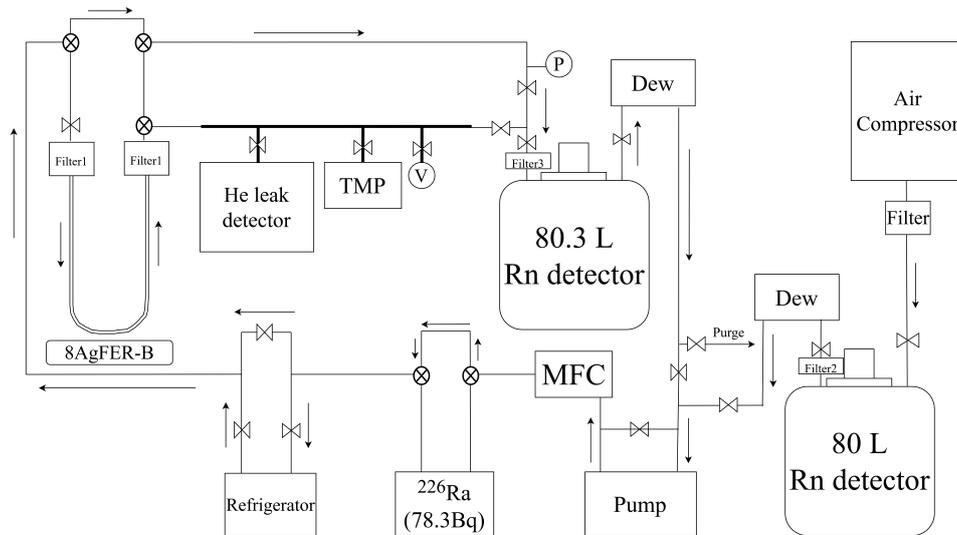


図 4.3: 8AgFER-B を 20 g 使用した 1-pass 試験のセットアップ図

それぞれの装置について説明する。

Air Compressor アイ・エー・シー株式会社の超低露点エアー供給ユニット (P6-QD20) で実験室内の空気を取り入れ、計測装置に供給する。除湿機能付きで送り込む空気の露点温度は -70°C 程度になっている。最大流量は 20 L/min 。詳しい流量は MFC で調整するため、ここでは計測していない。

TMP ターボ分子ポンプ (HiCube 80 Classic) で、カラムの真空引きを行う。尚、この 1pass 試験から 2 台体制に増強した。

Refrigerator 冷凍機 (Taisho TC0147) で、空気の露点温度を調整する。

MFC 質量流量制御計 (MFC, Horiba SEC-Z500X) で流量を調整する。Zolite column へ送り込む空気流量は 3 L/min に設定した。

Dew 吸着前後の露点温度は露点計 (Vaisala DMT152) で計測した。

Filter1 メッシュサイズが $0.01\ \mu\text{m}$ のガスフィルター (SMC 社の「SFB102-2」) で不純物を取り除く。

Filter2 メッシュサイズが $0.3\ \mu\text{m}$ のガスケットフィルター (NASclean GF-D03N) で不純物を取り除く。

Filter2 メッシュサイズが $0.3\ \mu\text{m}$ のメタルガスフィルター (NASclean M-3) で不純物を取り除く。

80,80.3L Rn detector 吸着前後のラドン濃度を測定する。これらは検出器容器の製造メーカーが異なるが、形状はほぼ同じ。体積はやや異なる。

8AgFER-B 1/2 インチのステンレス管。U 字に加工しており 8AgFER-B が入っている。循環試験と同様で、ベーキング用のヒーターを巻き付けている。

試験の準備

ラドンや水分などをカラムから追い出すためにベーキングと真空引きによる前処理を施した。適切な前処理の条件を決定するためベーキングは、200 °C と 300 °C、真空引きは TMP2 台体制でカラム内の圧力が $\sim 8 \times 10^{-5}$ Pa に到達するまで行った。

試験の流れ

1pass 試験とラドン除去率の評価は以下のような流れで行う。

1. 実験室中の空気をコンプレッサーで取り込み、ある程度除湿した空気を 3 L/min で測定装置へ供給し、前段の 80 LRn 検出器でラドン濃度³を計測する。
2. ラドン除去前に、まずは U 字管をバイパスして前段と後段のラドン検出器で同じ空気を測定し、 ^{214}Po , ^{218}Po の計数率を補正する (同じであるかを確認する)。
3. U 字カラムを経由させラドンを吸着した後の空気のラドン濃度を 80.3 L で計測する。
4. 前段と後段のラドン検出器における ^{214}Po , ^{218}Po の 1 日当たりの計数率 (以下、cpd=count per day) の比を取る。

4.2.2 結果

図 4.4 は、測定結果の例である。バイパスからカラム経由に切り替えた時 (吸着開始) を Elapsed day = 0 とした。上段左が ^{214}Po の cpd、上段右が ^{218}Po の cpd で、下段はその比を取ったものでラドン除去率を表す。

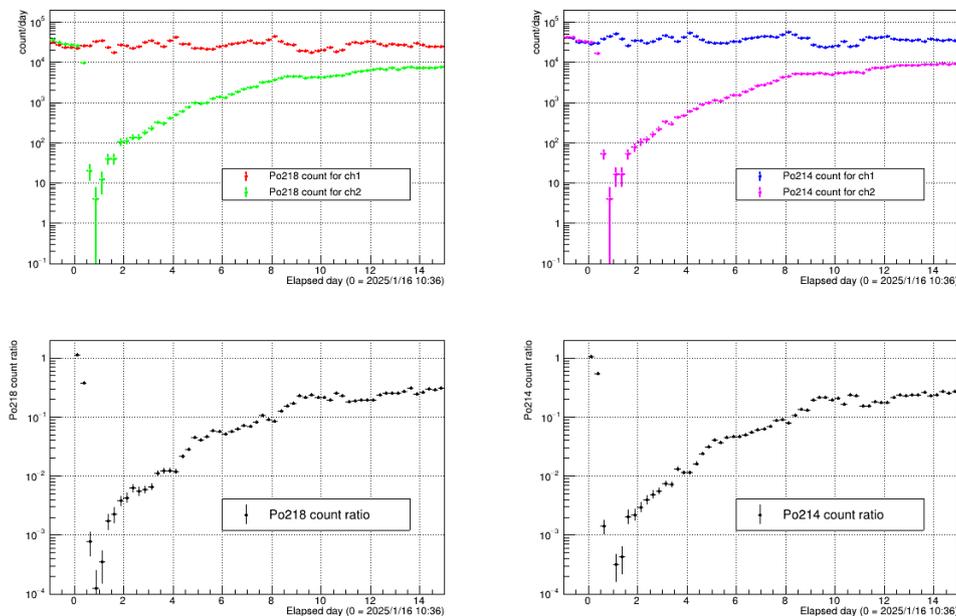


図 4.4: 2 回目の 1pass 試験の結果。入力露点温度は -92°C 、ベーキング温度は 300°C である。上段左右それぞれが ^{214}Po , ^{218}Po の cpd。下段が cpd の比を取ったものである。

³この 4.2 節ではラドン除去率を前段と後段の ^{214}Po , ^{218}Po の計数率の比から評価したため、係数率からラドン濃度への変換に使用する校正係数 (CF) は 1 とした。したがって 4.2 節ではラドン濃度=計数率を指す。

ベーキングや露点温度の条件別の結果は以下の表 4.1 のようである。

表 4.1: 1pass 試験の結果のまとめ

入力露点温度 [°C]	ベーキング温度 [°C]	ベーキング時間 [h]	到達真空度 [Pa]	ラドン除去率
-78	200	21	1.2×10^{-4}	3.14×10^{-2}
-92	300	114	4.3×10^{-5}	9.52×10^{-5}

また、それぞれのラドン除去率のプロットは図 4.5 に示す通りである。2 回目の試験が図 4.5 中の target value ($R_{eff} \sim 4.0 \times 10^{-3}$) を達成した期間はおよそ 2 日程度であった。

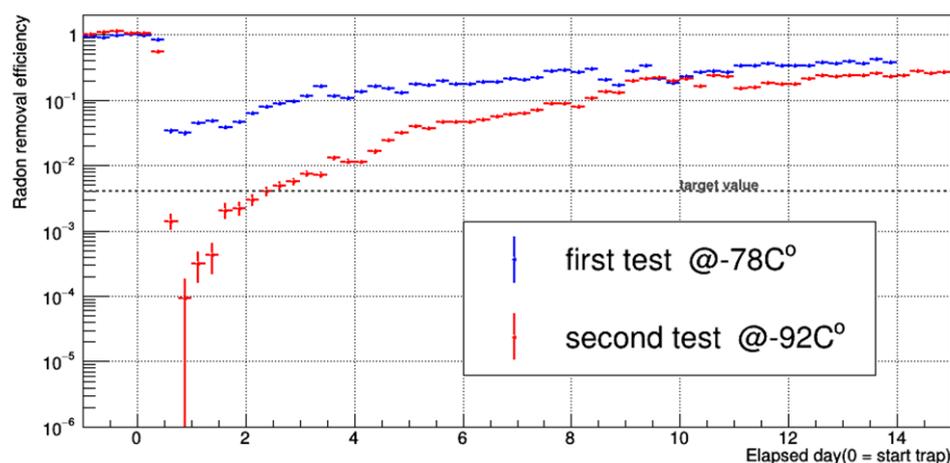


図 4.5: 1pass 試験の結果のまとめ。ラドン除去率 (縦軸) の評価には ^{214}Po の計数率の比を使用した。

4.2.3 議論

2 回目の 1pass 試験は目標値である $R_{eff} \sim 4.0 \times 10^{-3}$ を 2 日間程度達成した。試験中の吸着前後における露点温度を比較してみる。以下の図 4.6 に露点温度の時間変化を示す。赤色が前段、青色が後段の露点温度であり、吸着後の露点温度が吸着前よりも下がっている。つまり、8AgFER-B がラドン吸着と同時に水も吸着してしまっているため、入力露点温度をさらに下げることが大切であることがわかる。

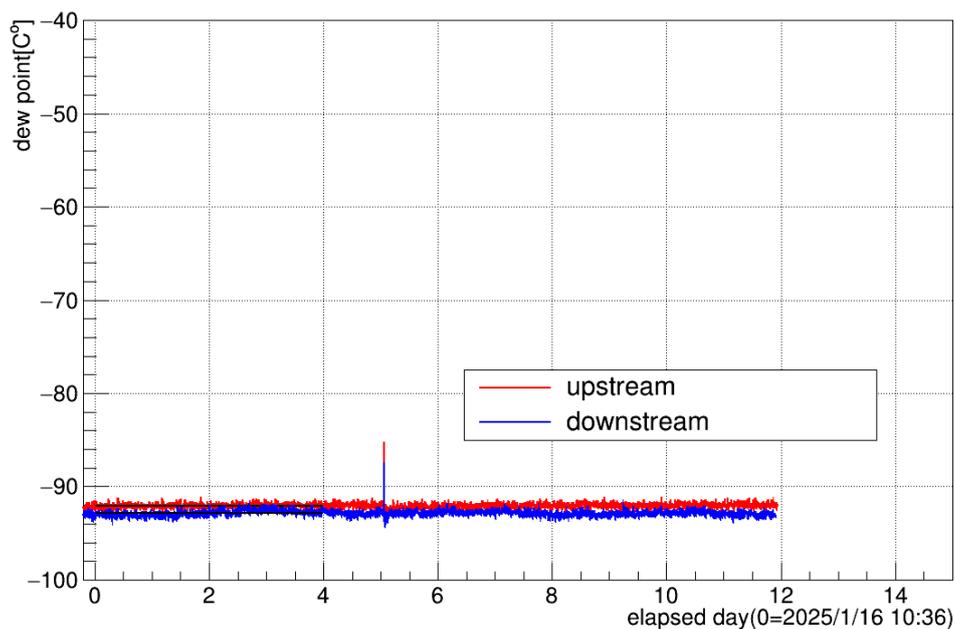


図 4.6: 2 回目の 1pass 試験における露点温度の時間変化

一方で、この露点温度帯でも 4.1 節で示したように 2 日間おきの切り替えで交互運転すれば十分運用が可能であることが判明した。

4.3 除湿用ゼオライトの選定

4.3.1 概要

4.2 節の 1pass 試験の結果から、ラドン濃度の低い状態を保つためには 8AgFER-B に入力する露点温度は少なくとも -90°C 、あるいはさらに低い露点温度が必要であると考察した。 -90°C 以下の露点温度を達成するために、東ソー製の「A-4 HA」と「F-9 HA」と呼ばれる一般的に除湿用として使われるゼオライトサンプルの除湿能力を評価した。

また、除湿用ゼオライト自体からのラドン放出量についても評価した。

除湿用ゼオライト

この除湿試験で使用したゼオライトは、図 4.7 の東ソー株式会社が作成したものを使用した。

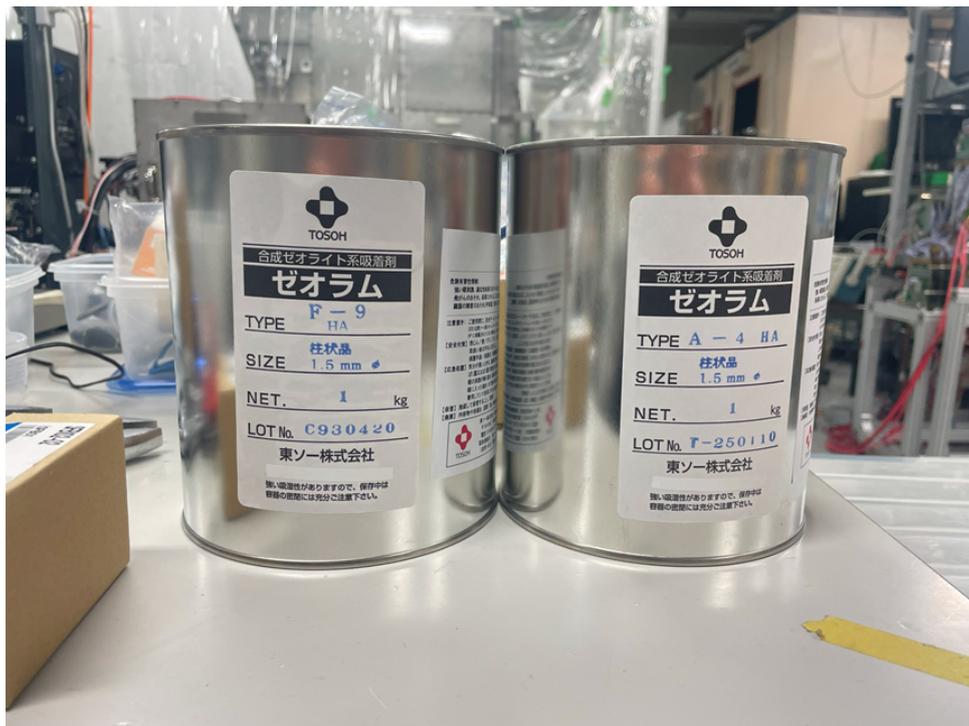


図 4.7: 除湿用ゼオライト

また、それぞれの主な特徴を表 4.2 にまとめた。

表 4.2: 除湿用ゼオライトの特徴 [67]

サンプル名	結晶型	形状	細孔径	主な用途
A-4 HA	A 型	ペレット	4 Å	脱水
F-9 HA	X 型	ペレット	9 Å	脱水

一般に、水分子の大きさは $\sim 2.7 \text{ \AA}$ 、ラドン分子の大きさは $\sim 4.8 \text{ \AA}$ 程度である。したがって、いずれも除湿が可能であることと A-4 HA の方は細孔径がラドン分子より小さいため、水分子だけ吸着することが期待される。

セットアップ

セットアップは以下の図 4.8 に示すとおりである。

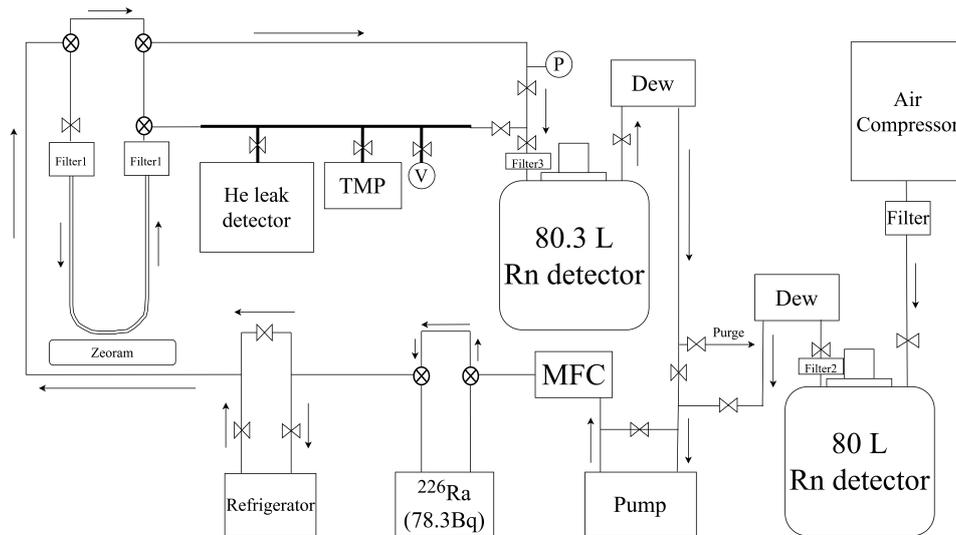


図 4.8: 除湿試験のセットアップ

また各構成要素は、

Air Compressor アイ・エー・シー株式会社の超低露点エア供給ユニット (P6-QD20) で実験室内の空気を取り入れ、計測装置に供給する。除湿機能付きで送り込む空気の露点温度は -70°C 程度になっている。最大流量は 20 L/min 。詳しい流量は MFC で調整するため、ここでは計測していない。

TMP ターボ分子ポンプ (HiCube 80 Classic) で、カラムの真空引きを行う。尚、この 1pass 試験から 2 台体制に増強した。

Refrigerator 冷凍機 (Taisho TC0147) で、空気の露点温度を調整する。

MFC 質量流量制御計 (MFC, Horiba SEC-Z500X) で流量を調整する。Zolite column へ送り込む空気流量は 3 L/min に設定した。

Dew 吸着前後の露点温度は露点計 (Vaisala DMT152) で計測した。

Filter1 メッシュサイズが $0.01\ \mu\text{m}$ のガスフィルター (SMC 社の「SFB102-2」) で不純物を取り除く。

Filter2 メッシュサイズが $0.3\ \mu\text{m}$ のガasketフィルター (NASclean GF-D03N) で不純物を取り除く。

Filter2 メッシュサイズが $0.3\ \mu\text{m}$ のメタルガスフィルター (NASclean M-3) で不純物を取り除く。

80,80.3L Rn detector 吸着前後のラドン濃度を測定する。これらは検出器容器のの製造メーカーが異なるが、形状はほぼ同じ。体積はやや異なる。

Zeoram 1/2 インチのステンレス管。U 字に加工しており除湿用ゼオライト (A-4 HA or F-9 HA) が入っている。ベーキング用のヒーターを巻き付けている。

使用した除湿用ゼオライトの量に関しては、今回が最初の試験であったため、当座は 50 g 使用した。また、コンプレッサーから送られる空気の露点温度は多少のふらつきはあるが $\sim -75^{\circ}\text{C}$ 程度であるため、HK の仕様 (-70°C) と比較的近い環境での評価が可能である。冷凍機はバイパスにしてある。

試験の準備

前節同様、除湿用ゼオライトもベーキングと真空引きによる前処理を施した。ベーキングは 300°C 、真空引きは TMP2 台体制でカラム内の圧力が $\sim 8 \times 10^{-5}$ Pa に到達するまで行った。

試験の流れ

除湿試験は以下のような流れで行う。

1. 実験室中の空気をコンプレッサー (アイ・エー・シー株式会社の超低露点エア供給ユニット P6-QD20) で取り込み、ある程度除湿した空気を 3 L/min (MFC (Horiba SEC-Z500X) で流量を調整) で測定装置へ供給するし前段の露点計で除湿前の露点温度を計測する。同時に前段のラドン検出器でラドン濃度も計測する。
2. U 字カラム (除湿用ゼオライト) を経由させる前に、バイパスして前段と後段の露点計で同じ空気を測定する。
3. U 字カラムを経由させ除湿後 (水分を吸着した後) の空気の露点温度を後段の露点計で計測する。
4. 前段と後段の露点温度を確認する。併せて、後段のラドン検出器でラドン濃度の変化の有無を調べる。

4.3.2 除湿試験の結果

A-4 HA を用いた除湿試験の結果

A-4 HA を用いた除湿試験での結果は図 4.9 の様である。バイパスからカラム経由に切り替えた時 (除湿開始) を Elapsed day = 0 とした。

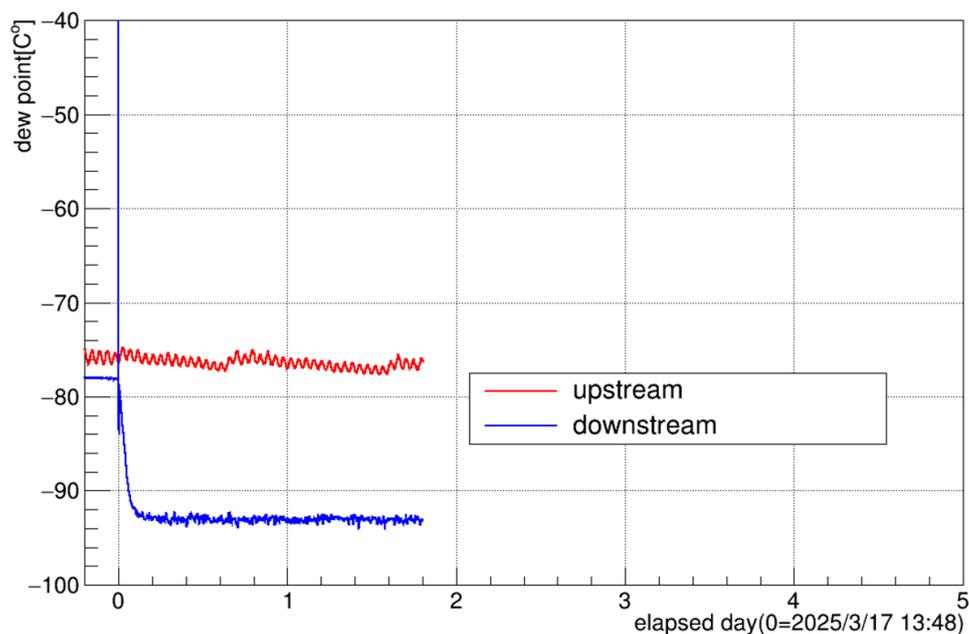


図 4.9: A-4 HA の除湿試験の結果。横軸は時間で 0 が除湿開始時刻。縦軸は露点温度。

コンプレッサーからの入力露点温度 $\sim -75^{\circ}\text{C}$ に対して、 $\sim -93^{\circ}\text{C}$ まで除湿したことを確認した。

F-9 HA の除湿試験の結果。

F-9 HA を用いた除湿試験での結果は右 4.9 の様である。

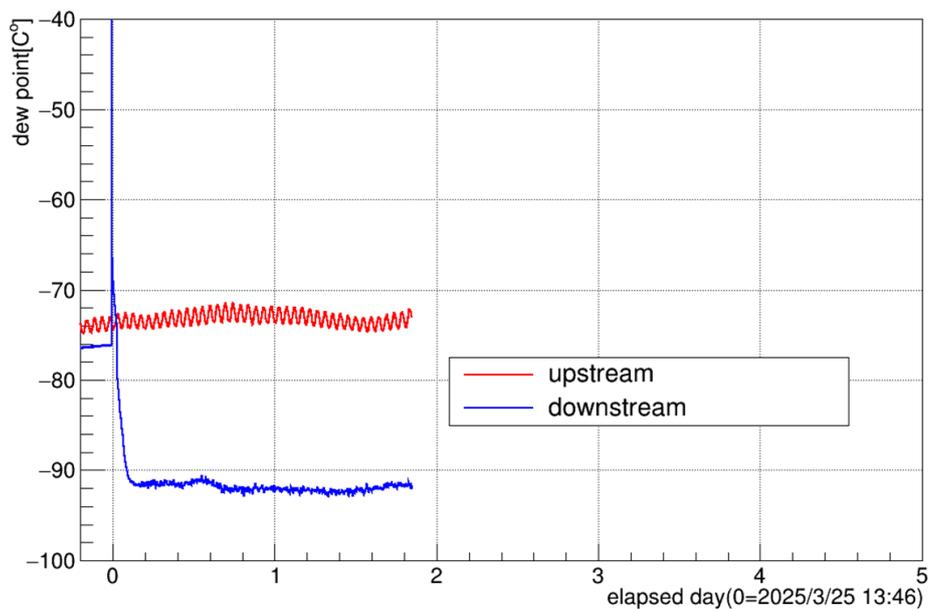


図 4.10: F-9 HA の露点温度。横軸は時間で 0 が除湿開始時刻。縦軸は露点温度。

コンプレッサーからの入力露点温度 $\sim -73^\circ\text{C}$ に対して、 $\sim -92^\circ\text{C}$ まで除湿したことを確認した。

4.3.3 除湿用ゼオライトからの Rn 放出の評価

除湿用のゼオライトは銀ゼオライトの上流に設置する。仮に除湿用ゼオライトからラドン放出があった場合、銀ゼオライトによるラドン吸着に影響するため除湿用ゼオライトからのラドン放出量を評価した。

ラドン濃度の評価

2章のラドン検出器で述べたようにラドン濃度を決定する際に用いる較正係数 (CF) は、露点温度と気温によって決まる絶対湿度 (A_H) から求められる。この除湿試験では前段と後段のラドン検出器で計測している空气中の露点温度が異なるため、この差異によるラドン濃度への影響を考慮する必要がある。絶対湿度から較正係数への変換は先行研究 [36] から引用した以下の式を用いた。

$$CF = 2.25 - 0.29\sqrt{A_H} \quad (4.6)$$

A-4 HA、F-9 HA 各測定における較正係数の絶対湿度の関係は、それぞれ以下の表 4.3 と表 4.4 の通りである。

表 4.3: A-4 HA の測定における CF と絶対湿度の関係

Sample	A-4 HA(input)	A-4 HA(output)
露点温度 [$^\circ\text{C}$]	-76.33 ± 0.01	-93.06 ± 0.01
気温 [$^\circ\text{C}$]	23 ± 1	23 ± 1
絶対湿度 [$^\circ\text{C}$]	$1.52 \pm 0.46 \times 10^{-3}$	$9.78 \pm 3.53 \times 10^{-5}$
較正係数 $CF[(\text{CPD})/(\text{mBq}/\text{m}^3)]$	2.24 ± 0.01	2.25 ± 0.01

表 4.4: F-9 HA の測定における CF と絶対湿度の関係

Sample	F-9 HA(input)	F-9 HA(output)
露点温度 [$^\circ\text{C}$]	-73.10 ± 0.01	-91.93 ± 0.01
気温 [$^\circ\text{C}$]	23 ± 1	23 ± 1
絶対湿度 [$^\circ\text{C}$]	$2.45 \pm 0.71 \times 10^{-3}$	$1.20 \pm 0.43 \times 10^{-4}$
較正係数 $CF[(\text{CPD})/(\text{mBq}/\text{m}^3)]$	2.24 ± 0.01	2.25 ± 0.01

ここで気温は実験室の室温としており、この室温はエアコン (設定 23°C) で管理していた。また、そのふらつきも考慮して $\pm 1^\circ\text{C}$ と見積もった。さらに、露点計 (vaisala DMT152) は仕様で $\pm 1^\circ\text{C}$ の不定性があるため、これも考慮して計算している。

横軸に絶対湿度、縦軸に較正係数をプロットしたものを図 4.11, 4.12 に示す。絶対湿度の低い領域では較正係数はほとんど同じであることがわかる。

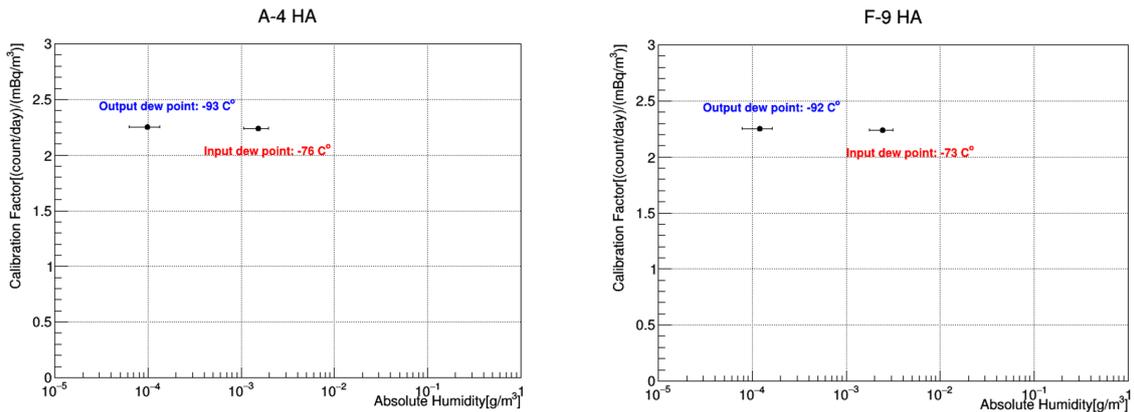


図 4.11: A-4 HA の測定における CF と絶対湿度の関係
 図 4.12: F-9 HA の測定における CF と絶対湿度の関係

上限値の決定

以上の校正係数を使って、それぞれの測定におけるラドン濃度の時間変化を求めた。図 4.13 は A-4 HA を用いた除湿試験中のラドン濃度のプロットである。図 4.13 左は赤点 (除湿用ゼオライトの前) が上流、青点 (除湿用ゼオライトの後) のラドン濃度を示している。図 4.13 右が下流と上流のラドン濃度の差をとったものである。ラドン放出の上限値決定について具体的な評価の手順は以下のとおりである。

1. 図 4.13 左の除湿前後 (赤色が除湿前、青色が除湿後) のラドン濃度を P0(直線) フィットをして差をとる。
2. 統計誤差が小さいため、ラドン検出器等の系統誤差を考慮する。(ラドン検出器の違い:10%、露点計の精度:2%、測定システム:2% より合計 11%)
3. 片側 90 % の信頼上限値を決定するため、測定値が標準正規分布に従うことを仮定して累積確率 0.90 に対応する分位点を $z=1.28$ とした [68]。この値を誤差に掛ける。
4. この誤差とラドン濃度差の最確値を足す。
5. 80.3 L (= 0.00803 m³) Rn 検出器を使用しているため、4. で求めた値に体積を掛けて放射能を求める。
6. 最後に使用した除湿用ゼオライトは 0.0050 kg であるから、上式をこれで除して質量当たりのラドン放出の上限値を決定する。

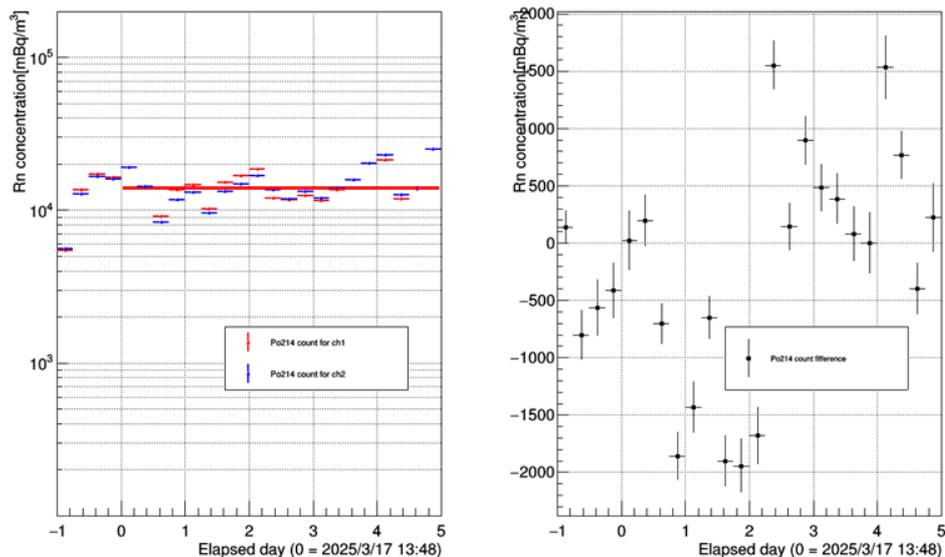


図 4.13: A-4 HA 除湿試験中のラドン濃度。左が除湿前後のラドン濃度、右がその差をとったもの(除湿後-除湿前)。赤の直線は p_0 フィットの結果を示す。

A-4 HA を例に今回の測定におけるラドン放出量の上限値の計算をする。まずは、除湿前後(前段と後段)のラドン濃度を直線フィットすると、

- 前段の Rn 濃度 = $14.1 \pm 0.0035 \pm 1.6(\text{syst.}) \text{ Bq/m}^3$
- 後段の Rn 濃度 = $13.8 \pm 0.0035 \pm 1.5(\text{syst.}) \text{ Bq/m}^3$

その差をとると、ラドン濃度差 = $-0.3 \pm 2.2(\text{syst.}) \text{ Bq/m}^3$

$$\begin{aligned}
 2.2 \times 1.28 &= 2.8 \text{ Bq/m}^3 \\
 \longrightarrow 2.8 - 0.3 &= 2.5 \text{ Bq/m}^3 \\
 \longrightarrow 2.5 \times 0.00803 &= 0.02 \text{ Bq} \\
 \longrightarrow 0.002 \div 0.050 &= 0.40 \text{ Bq/kg}
 \end{aligned}$$

以上より、A-4 HA からのラドン放出の上限値は $0.40 \text{ Bq/kg}(90 \% \text{C.L.})$ である。

また、F-9 HA は同様の方法でラドン放出の上限値は $0.29 \text{ Bq/kg}(90 \% \text{C.L.})$ であった。ラドン濃度のプロットは以下の図 4.14 に示す。

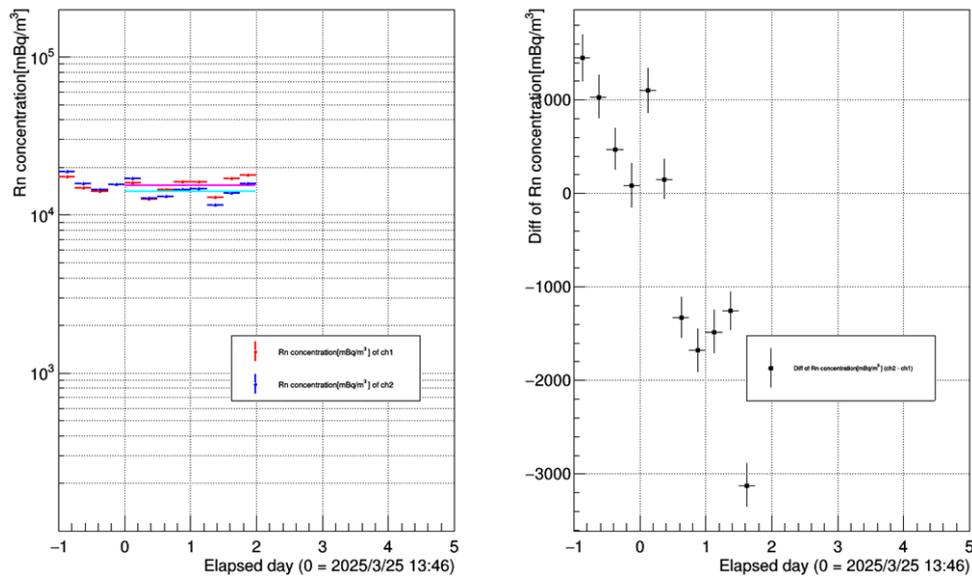


図 4.14: A-4 HA 除湿試験中のラドン濃度。左が除湿前後のラドン濃度、右がその差をとったもの(除湿後-除湿前)。赤の直線は p_0 フィットの結果を示す。

議論・考察

測定準備におけるベーキングと真空度、露点温度の結果は以下の表 4.5 のとおりである。

表 4.5: 除湿試験の結果のまとめ

Sample	A-4 HA	F-9 HA
ベーキング温度 [°C]	300	300
ベーキング時間 [h]	72	120
到達真空度 [Pa]	8.5×10^{-5}	8.2×10^{-5}
入力露点温度 [°C]	~ -75	$-72 \sim -73$
出力露点温度 [°C]	$-92 \sim -93$	$-91 \sim -92$
ラドン放出 [Bq/kg](90 %C.L.)	< 0.40	< 0.29

A-4 HA と F-9 HA はどちらも目標の -90°C 以下を達成したが、A-4 HA が僅かに除湿能力で優秀であった。そのため、どちらを使ってもよさそうであるが、今後の試験では除湿用ゼオライトとして A-4 HA を採用することに決定した。

また、使用している露点計 (Vaisala DMT152) は露点温度 -80°C までは正確に測れる仕様で、10 % 程度の超過であれば計測できる [69]。A-4 HA を使用した試験結果は -93°C 程度の値を示したが、実際は露点計の検出限界に達していた可能性がある。

また、それぞれのラドン放出量を評価したが有意な放出は確認されず、ラドン除去システムに組み込んで問題ないと判断した。

4.4 1-pass 総合試験

4.4.1 概要

4 kg 試験

これまでの結果を受けて HK のラドン除去システムには、ラドン除去に「8AgFER-B」、除湿用に「A-4 HA」を採用することにした。4.1 節に述べた通り本番の試験では流量が 900 L/min の下で、12 kg の銀ゼオライトが必要であるという見積もりを立てた。運用方法としては、実際に SK で使用されている流量が 300 L/min のコンプレッサーと 4 kg の銀ゼオライトで構成される「Rn removal unit」を 3 機並列に分けてラドン除去する。

この前段階として、SK 坑内にて 1 ユニットで所望のラドン濃度 (あるいはラドン除去率) を達成できるか確認するために通称「4 kg 試験」を計画している。図 4.1 における「Rn removal unit」を以下に再掲する。

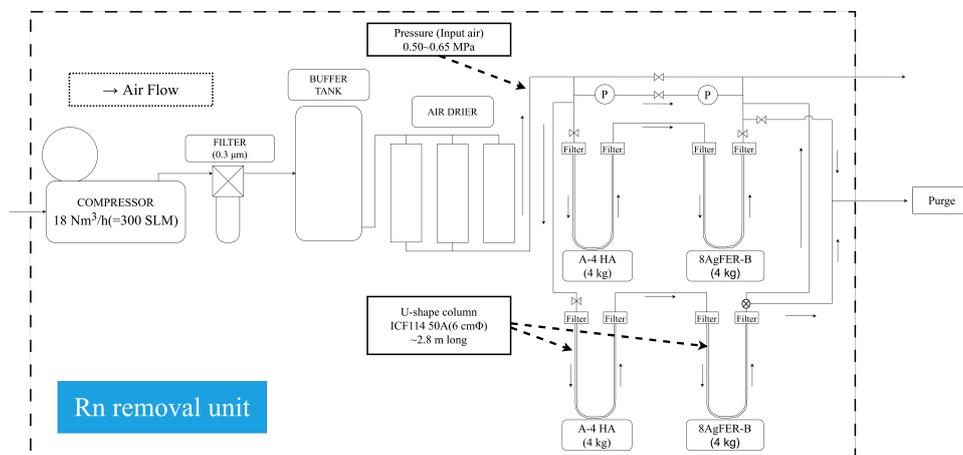


図 4.15: 「Rn removal unit」。HK で運用するラドン除去装置の一部でこれを 3 機並列で運用する。

また、HK のラドン除去装置で銀ゼオライト (除湿用ゼオライトも同様) を入れるカラムの設計図と実際の写真を以下の図 4.16 と図 4.17 に示す。



図 4.16: 4 kg 試験で使用するカラムの設計図

図 4.17: 4 kg 試験で使用するカラムの写真

1pass 総合試験の条件の決定

本研究における最後の 1pass 試験はこの「4 kg 試験」の縮小版として、1/2 インチの SUS 管を用いて空気の流速の条件をそろえた時に十分なラドン除去性能 ($R_{eff} = 2.0 \times 10^{-5}$) を発揮できるか試すことを目的としている。4 kg 試験で使用するカラムの内径は 52.5 mm、流量は 300 L/min であるため、流速は 2.31 m/s と計算できる。1/2 インチ管 (内径: ~9 mm) の場合、この流速のときの空気流量は 8.8 L/min = 12.67 Nm³/day である。これをもとに必要な銀ゼオライトの量を計算すると、8AgFER-B のラドン吸着係数が $K = 6506 \text{ m}^3/\text{kg}$ 、要求される保持時間 59.68 day であるから

$$m = \frac{59.68 \times 8.8 \times 1.44}{6506} \simeq 116 \text{ g} \quad (4.7)$$

と見積もられる。

しかしながら、使用する 1/2 インチ SUS 管の長さは最大 2 m であることと、銀ゼオライトが入っている領域をヒーターで覆う必要があることから 116 g 使用することが難しい。

そこでこの 1pass 総合試験ではこれに近い条件下、空気流量を 6.7 L/min に統一して徐々に銀ゼオライトの量を徐々に増やしながら試験をした。⁴

また、この試験で目標とするラドン除去率は予想される坑内空気のラドン濃度 50 Bq/m³ と達成すべきラドン濃度 1 mBq/m³ より $R_{eff} = \frac{1}{50000} = 2.0 \times 10^{-5}$ である。

セットアップ

セットアップは以下の図 4.18 である。冷凍機に代わって、8AgFER-B の前段に除湿用の A-4 HA を入れたカラムを設置した。A-4 HA を経路することで 8AgFER-B に入力する露点温度を冷凍機

⁴実は内径を設計図の外径 60.5 mm として銀ゼオライトの量を試算してしまっていた。この場合、試験の条件は流量が 6.7 L/min のもとで銀ゼオライトの量が 88 g となる。しかし、8.8 L/min : 116 g = 6.7 L/min : 88 g の関係が成立するため、本文では「近い条件」と表現した。

なしで -90°C 以下にすることができる。

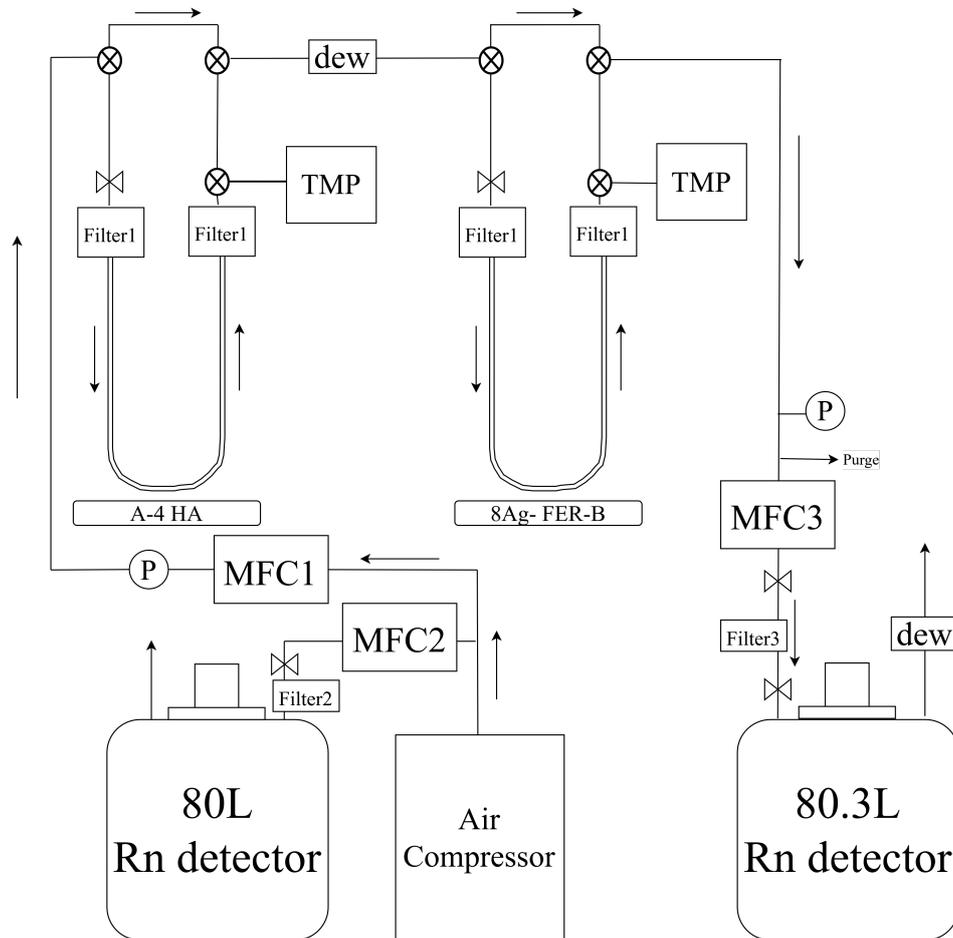


図 4.18: 8AgFER-B と A-4 HA を g 使用した 1-pass 試験のセットアップ図

それぞれの装置について説明する。

Air Compressor アイ・イー・シー株式会社の超低露点エア供給ユニット (P6-QD20) を使用した。実験室内の空気取り入れ、系内に送り込む。除湿機が搭載されており、送り込む空気の露点温度は -70°C 程度、流量は MFC1 に表示される値を見ながら流量調整バルブを操作して 6.7 L/min に調整した。

TMP ターボ分子ポンプ (HiCube 80 Classic) で、カラムの真空引きを行う。カラムに対して 1 台ずつ配置した。

MFC1 質量流量制御計 (MFC, KOFLOC3660 series)。この測定では OPEN の設定、つまりこの MFC 自体では制御しておらず、流量のモニター用に使用した。コンプレッサー側の流量調整バルブを調整して、流量を 6.7 L/min にした。

MFC2,3 質量流量制御計 (MFC, Horiba SEC-Z500X) で流量を調整する。これらは Rn 検出器に送り込む空気の流量を調節するために使用した。流量は $\sim 1\text{ L/min}$ 程度に設定した。

Dew Vaisala DMT1528 を使用した。8AgFER-B に入力する空気の露点温度をモニターするために、A-4 HA の下流に設置した。

Filter1 メッシュサイズが $0.01 \mu\text{m}$ のガスフィルター (SMC 社の「SFB102-2」) で不純物を取り除く。

Filter2 メッシュサイズが $0.3 \mu\text{m}$ のガスケットフィルター (NASclean GF-D03N) で不純物を取り除く。

Filter2 メッシュサイズが $0.3 \mu\text{m}$ のメタルガスフィルター (NASclean M-3) で不純物を取り除く。

80,80.3L Rn detector 吸着前後のラドン濃度を測定する。

A-4 HA A-4 HA を 50 g 入れた U 字カラム。径が 1/2 インチで全長が 2 m の SUS 管 (配管用ステンレス鋼管) に封入している。ベーキング用のヒーターを巻き付けている。

8AgFER-B 径が 1/2 インチで全長が 2 m SUS 管 (配管用ステンレス鋼管) に封入している。ベーキング用のヒーターを巻き付けている。量による吸着の傾向を見るために 20, 50, 88 g の順に試験を実施した。

試験の準備

前節同様、A-4 HA と 8AgFER-B にベーキングと真空引きによる前処理を施す。ベーキングは 300°C 、真空引きは真空度が $\sim 10^{-5} \text{ Pa}$ 程度になるまで行う。

試験の流れ

真空度が所定の値まで下がったら、まずは A-4 HA を経由して除湿を開始する。試験中の露点温度の時間変化は図 4.19 に示す通りである。図 4.19 の赤点は上段の露点温度、青点は後段の露点温度に対応している。図 4.19 の Elapsed day ~ -0.03 付近において、上流 (赤線) の露点温度が $\sim -75^\circ\text{C}$ から -90°C 以下に急激に低下している箇所が除湿開始の時刻である。除湿開始後、露点温度が -90°C 以下になったことを確認したら 8AgFER-B でのラドン吸着を開始する。横軸の Elapsed day = 0 が吸着開始である。吸着開始直後の露点温度の一時的な上昇はバルブの操作に起因する圧力の変化による逆流が生じ、外気が後段のラドン検出器に侵入することが原因であることが分かっている。

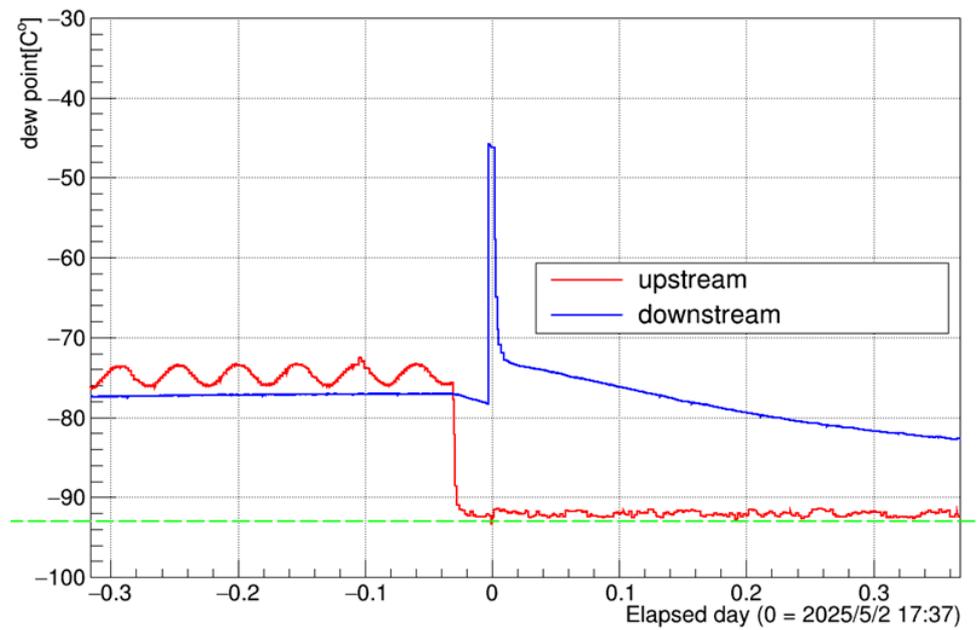


図 4.19: 88 g 使用した試験の時の露点温度の変化。横軸は時間、縦軸は露点温度を示す。Elapsed day=0 のときにラドン吸着を開始した。

4.4.2 結果

8AgFER-B を 88 g 使用した 1pass 試験の結果は以下の図 4.20 のに示す通りである。図 4.20 左は ^{214}Po の *cpd* である。赤点は上流 (80 L)、青点は下流 (80.3 L) のラドン検出器で測定したものである。また、図 4.20 右は吸着後の *cpd* を吸着前の *cpd* で除したラドン除去率を示す。

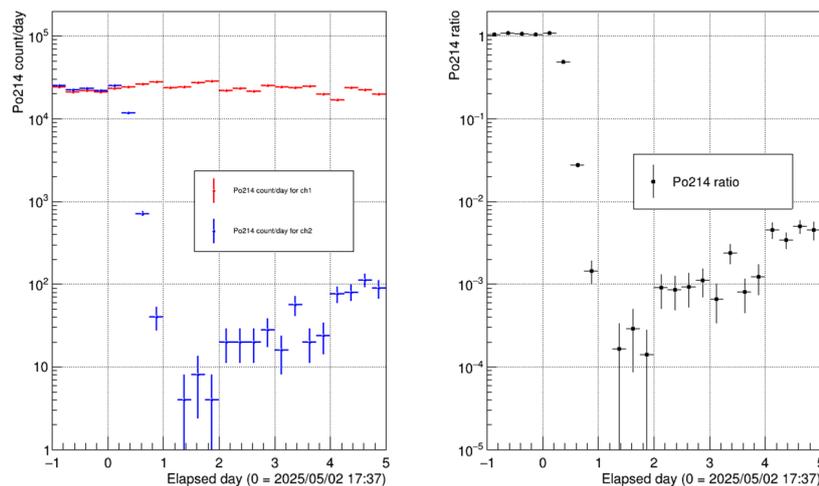


図 4.20: 8AgFER-B を 88 g 使用した 1pass 試験の結果。横軸は時間を示す。左図の縦軸は ^{214}Po の *cpd* である。右はラドン除去率を示す。

また、88 g の試験の前に 20 g、50 g と段階的に 8AgFER-B の量を増やして試験をした。以下の図 4.21 がそれぞれの結果を示している。紫色の横点線が目標とするラドン除去率である。

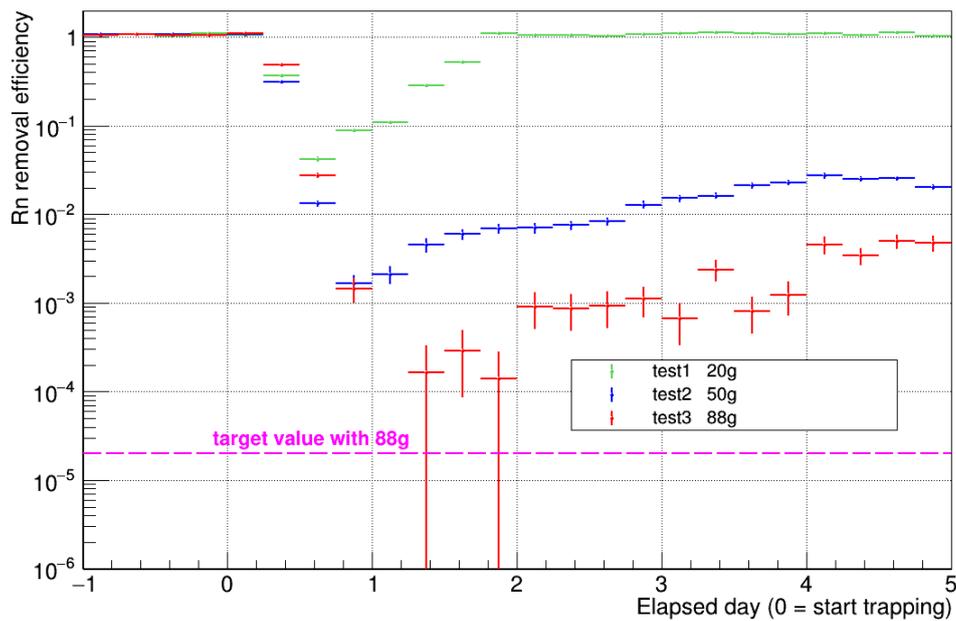


図 4.21: 8AgFER-B を 20, 50, 88 g 使用した 1pass 試験の結果。桃色の横点線が目標値 ($R_{eff} = 2.0 \times 10^{-5}$) である。

4.4.3 議論・考察

A-4 HA と 8AgFER-B を使用した 1pass 総合試験の結果を以下の表 4.6 にまとめた。

表 4.6: A-4 HA と 8AgFER-B 使用した 1pass 試験の結果のまとめ

Mass of Adsorbent[kg]	ベーキング温度 [°C]	ベーキング時間 [h]	到達真空度	最大ラドン除去率
0.020	300	22	4.8×10^{-5}	$4.18 \pm 0.30 \times 10^{-2}$
0.050	300	72	5.6×10^{-5}	$1.68 \pm 0.37 \times 10^{-3}$
0.088	300	94	7.1×10^{-5}	$1.41 \pm 1.41 \times 10^{-4}$

Rn 検出器の検出限界

88 g を使用した試験において、 ^{214}Po の吸着直後の *cpd* に注目すると、図 4.22 の桃色で示した部分は *cpd* = 0 になっていることがわかる。分かりやすいように binning を /3 h にしている。これは実験室内のラドン濃度が低いことからラドン検出器の検出限界に達したと解釈できる。つまり、このシステムで測定できるラドン除去率の下限値は $1.41 \pm 1.41 \times 10^{-4}$ となり、目標としていたラドン除去率に到達していた可能性はあるが、明確に示すことはできなかった。

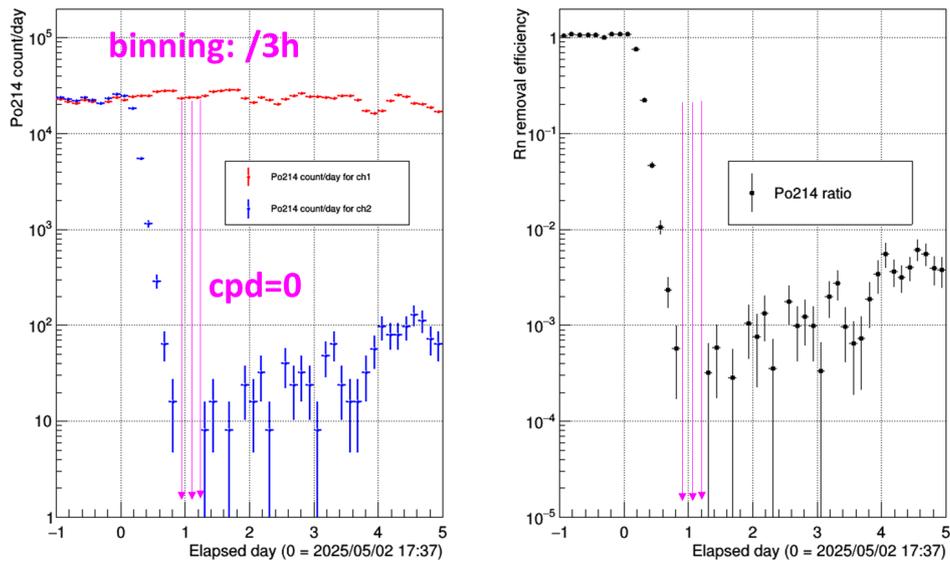


図 4.22: binning を /3h に変更したときの 88 g 試験の結果。

必要な 8AgFER-B の量の見積もり

さらに 8AgFER-B の量を増やすにつれてラドン除去率も指数的に向上するような傾向が確認できた。この傾向が正しいと仮定して、目標とするラドン除去率達成に必要な 8AgFER-B の量とその 90 % 上限値を見積もった。横軸を 8AgFER-B の質量 m 、縦軸をその質量におけるラドン除去率 R_{eff} として、この関係を以下の指数関数で記述する。

$$R_{eff} = A \exp(-km) \quad (4.8)$$

最小二乗法で A, k を推定すると、結果は図 4.23 のようになった。したがって、ラドン除去率 $R_{eff} = 2.0 \times 10^{-5}$ 達成には、 ~ 0.092 kg 程度の 8AgFER-B が必要であるといえる。

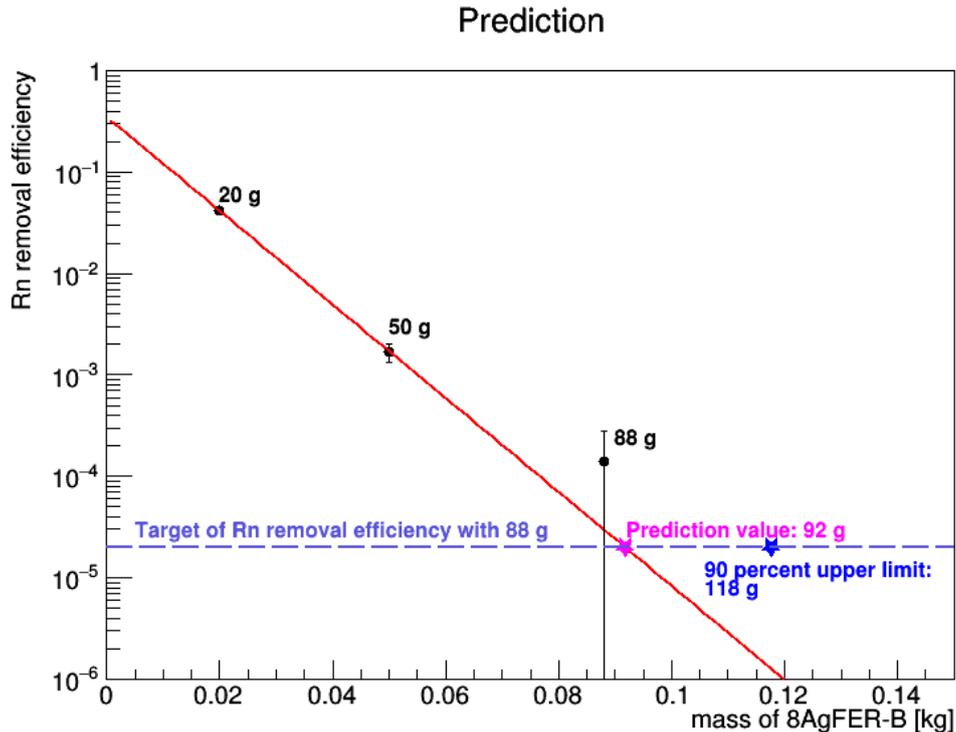


図 4.23: 8AgFER-B の量とラドン除去率の関係から必要な 8AgFER-B の量を推定する図

さらに、フィットの結果から $A = 0.35 \pm 0.0066$ 、 $k = 107.5 \pm 7.6$ で m の誤差は $\sigma_m = \pm 0.0068$ kg。したがって、ラドン除去率 $R_{eff} = 2.0 \times 10^{-5}$ 達成に必要な 8AgFER-B の量の片側 90 % の信頼上限値は

$$m_{90\%} = 0.092 + 1.28 \times 0.0068 \simeq 0.10 \text{ kg} \quad (4.9)$$

である。

現在、HK のラドン除去装置で必要な 8AgFER-B の量は 12 kg と見積もっている。上記の考察から 90 % 上限値 0.10 kg は試算していた 0.088 kg の約 1.14 倍であるため、多くとも 12 kg \rightarrow 14 kg の設計変更で対応可能であると考えられる。

4.4.4 1pass 試験のまとめ

循環試験で最もラドン吸着性能の優れた 8AgFER-B を用いて 1pass 試験を行った。ラドン除去試験の前処理として銀ゼオライトへの入力する空気中の露点温度は -90 °C 以下、またカラムのベーキング温度は 300 °C 程度が必要であることが分かった。さらに、除湿用のゼオライトを導入することで冷凍機なしで -90 °C 以下の露点温度を維持できることもわかったが、目標値のラドン除去率を維持するには露点温度の引き下げが必要だという課題も残る。

最終的に除湿用ゼオライト「A-4 HA」と「8AgFER-B」を用いてラドン除去率 $R = 2.0 \times 10^{-5}$ を目標とした 1pass 総合試験を実施した。目標値に達することはできなかったが、8AgFER-B の量を増やすにつれて、ラドン除去率が指数的に向上する傾向が確認できたため、本研究では行わなかったが試料を増やすことで到達できる見込みがある。

第5章 まとめ

2028年に観測開始予定であるハイパーカミオカンデにおけるラドン除去装置の小型化に向けて、活性炭に代わり新たなラドン吸着材として期待される「銀ゼオライト」を用いてその吸着性能を評価した。

本研究では、銀ゼオライトの専門家、東ソーとシナネンゼオミックにラドン吸着可能性のある様々な銀ゼオライトを作製していただいた。

5.1 空气中ラドン吸着性能の評価

作製していただいた銀ゼオライトサンプルを循環試験によりそれぞれラドン吸着係数を評価し、最も空气中のラドン吸着能力に優れたサンプルを決定した。主に以下の3点が明らかになった。

- 8AgFER-Bが最も高い吸着性能を示した。ラドン吸着係数は $K = 6500 \text{ m}^3/\text{kg}$ 。
- ラドン濃度の到達目標である $1 \text{ mBq}/\text{m}^3$ 以下は達成可能。
- 湿度(露点温度)に敏感なため、銀ゼオライトに入力する空气の露点温度を $-90 \text{ }^\circ\text{C}$ 以下にする必要がある。

また、この結果からハイパーカミオカンデに必要な銀ゼオライトの量を試算すると、12 kgであった。活性炭のままだと 40 m^3 であったため、かなりの小型化が期待できる。

5.2 HKにおける空气中ラドン除去装置への応用

この試験では8AgFER-Bを用いて、本番の状況を模した1pass試験を実施した。1pass試験での主な成果は以下の様である。

- 除湿用ゼオライトを用いて、銀ゼオライトに入力する空气の露点温度を $-90 \text{ }^\circ\text{C}$ 以下にすることが可能。
- 銀ゼオライトの量に比例してラドン除去率が大きくなるため、HKと同様の条件下でも12 kg(多くとも16 kg)の比較的小型の銀ゼオライトを用いたラドン除去装置で運用できる可能性が示唆された。

5.3 課題

銀ゼオライトは活性炭と比較して常温で極めて優れたラドン吸着性能を示した。同時に、外的な条件にかなり影響を受けやすいことが分かったため、事前の処理(ベーキング、真空引き等)や試験時の操作に細心の注意を払うことが肝心である。また、HKでは高圧下での運用が想定されるため、その条件下でのラドン吸着性能について調べておく必要がある。

付録A 銀ゼオライト・補遺

A.1 空气中ラドン吸着性能の評価・各測定のプロット

本編3章の空气中ラドン吸着性能の評価(循環試験)の各測定の結果を載せる。

8AgFER-B, 44 g, 1.57 SLM

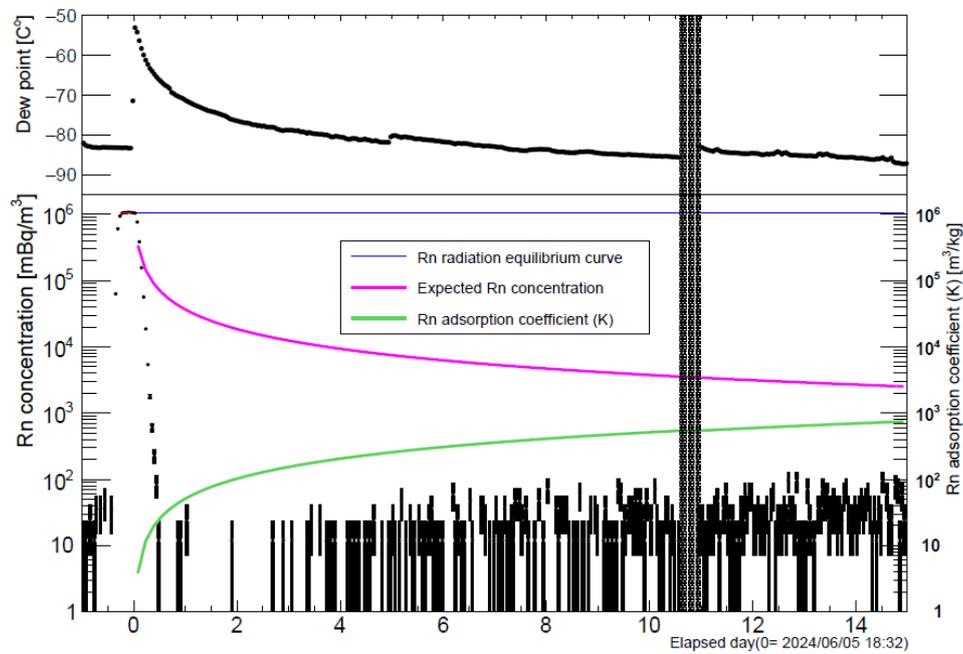


図 A.1: 8AgFER-B を 44 g 使用した試験の結果。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

3AgFER, 20 g, 3.00 SLM, -70 °C

銀ゼオライトに入力する露点温度によるラドン吸着への影響を調べるために、露点温度を -70 °C と少し高めに設定した。次の同じ試料、露点温度 -90 °C のもとで行った試験と比較してラドン吸着性能は劣る。

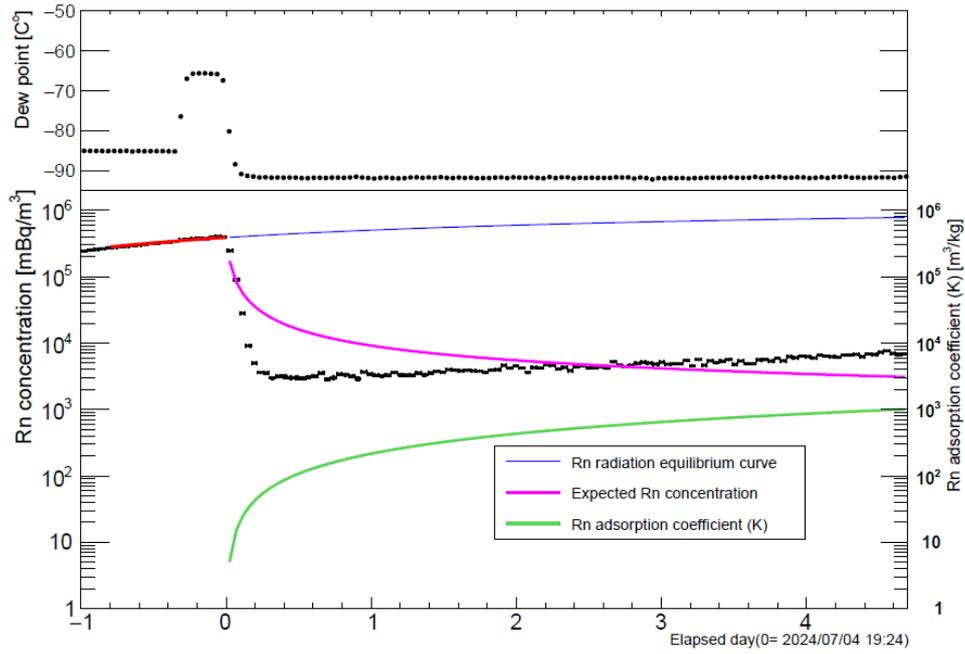


図 A.2: 3AgFER-B の試験。入力露点温度は $-70\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

3AgFER,20 g,3.00 SLM

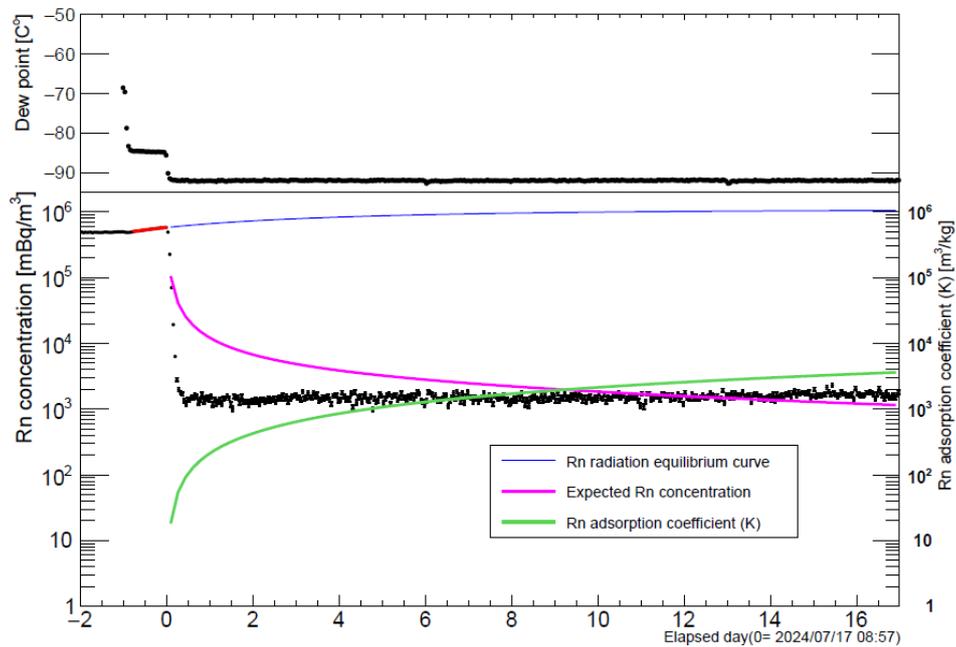
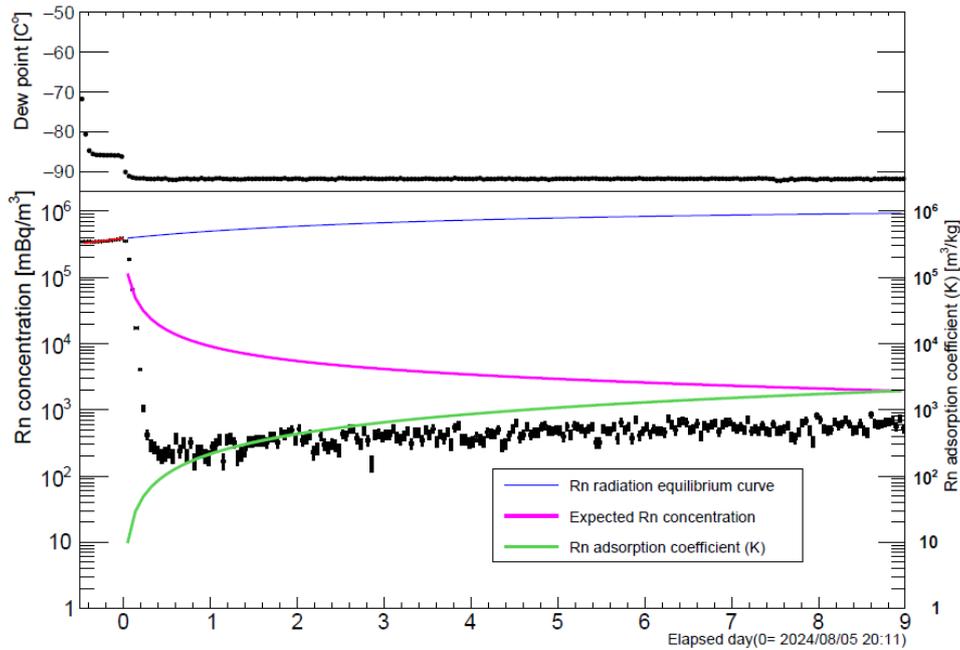


図 A.3: 3AgFER-B の試験。入力露点温度は $-90\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

8AgFER-B,20 g,3.00 SLM

表 A.1: 8AgFER-B 試験

銀添加率	保持時間 [days]	ラドン吸着係数 [m^3/kg]
30.12	6506 ± 81	6506 ± 81

図 A.4: 8AgFER-B の試験。入力露点温度は $-90\text{ }^\circ\text{C}$ 。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

8AgFER-D,20 g,3.00 SLM

表 A.2: 8AgFER-D 試験

銀添加率	保持時間 [days]	ラドン吸着係数 [m^3/kg]
21.38	4618 ± 35	4618 ± 35

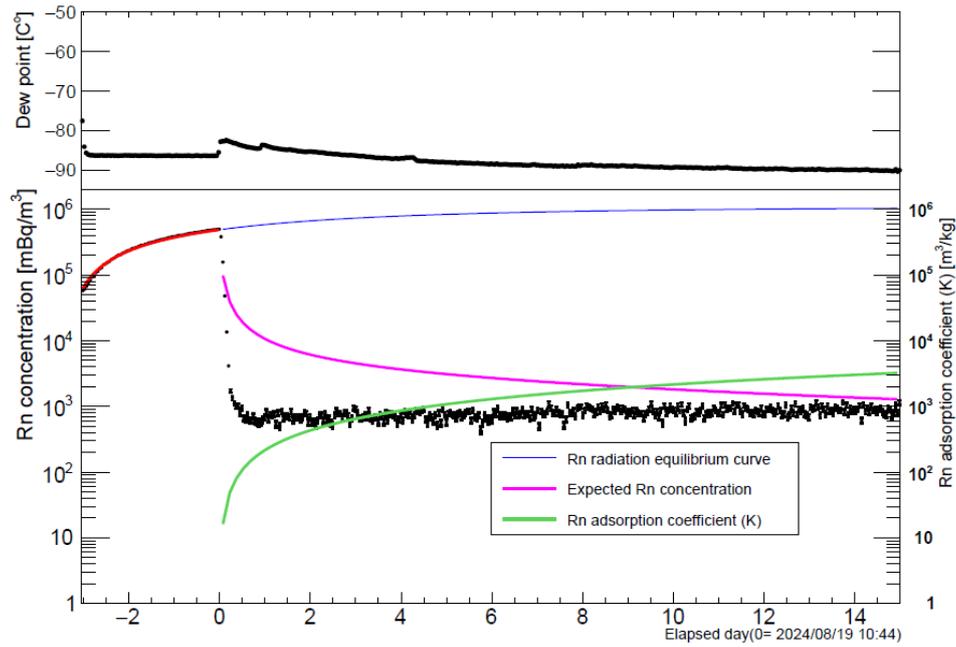


図 A.5: 8AgFER-D の試験。入力露点温度は -90°C 。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

AgFER-2, 20 g, 3.00 SLM

表 A.3: AgFER-2 試験

銀添加率	保持時間 [days]	ラドン吸着係数 [m^3/kg]
5.1	9.35 ± 0.06	2020 ± 13

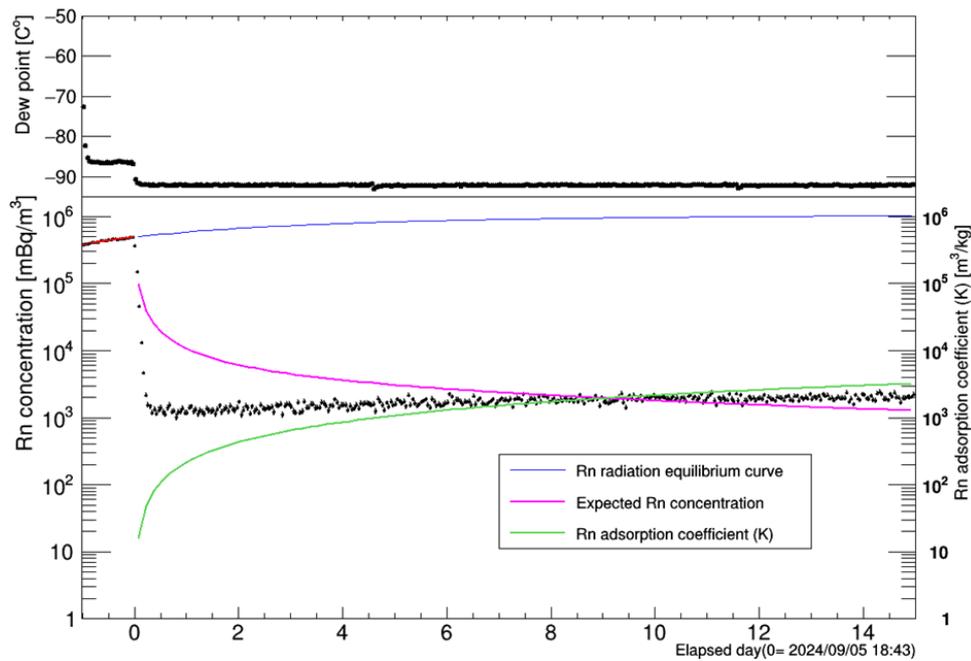
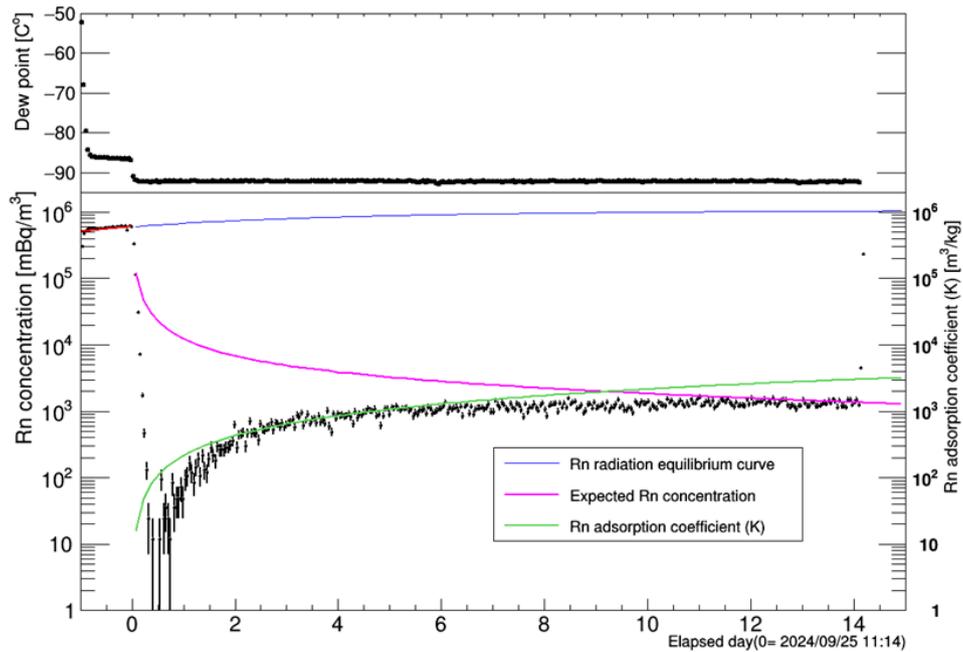


図 A.6: AgFER-2 の試験。入力露点温度は -90°C 。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

AgZSM-2, 20 g, 3.00 SLM

表 A.4: AgZSM-2 試験

銀添加率	保持時間 [days]	ラドン吸着係数 [m^3/kg]
7.0	16.49 ± 0.30	3561 ± 58

図 A.7: AgZSM-2 の試験。入力露点温度は $-90\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

AgMOR-2, 20 g, 3.00 SLM

表 A.5: AgMOR-2 試験

銀添加率	保持時間 [days]	ラドン吸着係数 [m^3/kg]
4.9	0.587 ± 0.0001	127 ± 0.3

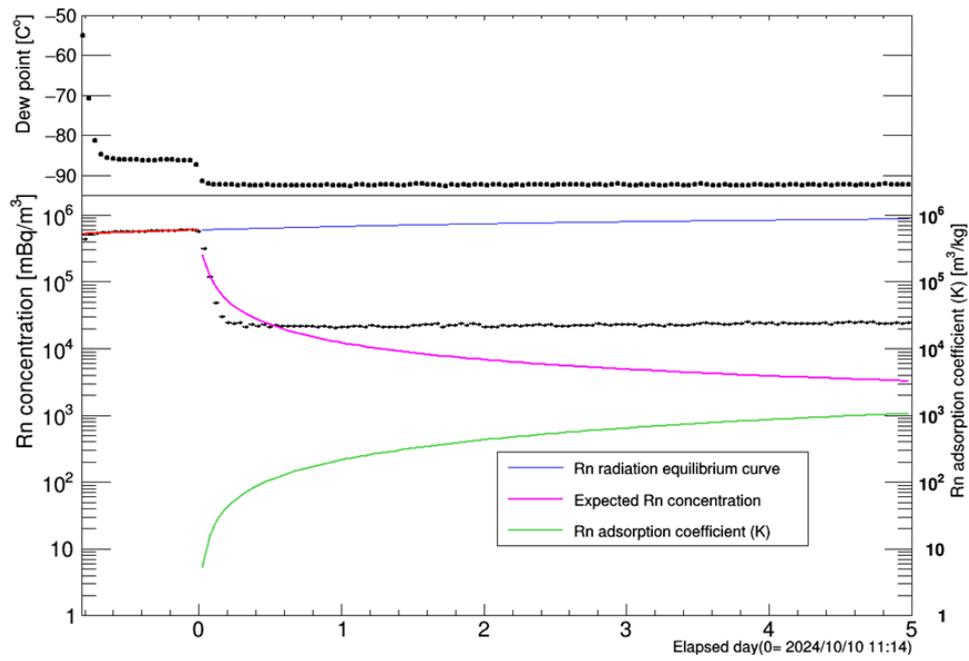


図 A.8: AgMOR-2 の試験。入力露点温度は -90°C 。(上) 露点温度、(下) ラドン濃度

謝辞

本論文の執筆、並びに研究室生活においてお世話になった方々へ謝意を述べる。

竹内康雄教授には修士の2年間、指導教員を担当していただきました。実験の作業や解析、スライド作成に至るまで、右も左もわからない状態から隅々まで付きっきりでご丁寧なご指導をいただきました。本当に魅力的な実験テーマを提示していただき、修士1年の冬には学術論文 [61] を出版することもできました。身に余る光栄であります。この修士論文の作成に際しても、直前まで度重なる推敲を支えてくださり感謝いたします。

中野佑樹助教 (富山大学) には、修士2年の春にSKのキャリブレーション解析のお誘いでお声がけをいただき、それから宇宙線ミュオン解析など貴重な経験をさせていただきました。アイデアや方針の提示など格別のご指導をいただきました。また、富山の美味しいお酒もたらしく御馳走いただき、すっかり舌が肥えてしまいました。

多田智昭さんには、宇宙線研究所にて初歩的な計算機の使い方から宇宙線ミュオン解析まで広範に及び多大なるご助言をいただきました。気軽に相談できる雰囲気を作っていただき大変やりやすかったです。休日には、スイフトの助手席に乗せていただき色んな所へ連れ出していただきました。あのニンニクチャーハン (ニンチャー) の味は忘れません。

神岡・東京大学宇宙線研究所は、解析や修論執筆に際してこの上ない、正に象牙の塔でした。このような素晴らしい環境を提供して頂いた職員・スタッフの方々などに感謝したい。

神戸大学粒子物理学研究室のスタッフの方々

藏重久弥教授とは同郷というご縁もあり、地元一くで盛り上がりました。非常に博学で、いつもお話を聞くのが楽しみでした。少し早いですが、ご退官おめでとうございます。山祐司教授とはコーヒブレイクでよくお話をさせていただきました。身内賢太郎教授には実験を楽しむ姿勢を学びました。いつの日かダークマターを発見されることを願っています。前田順平准教授、これからもSNS更新を楽しみにしています。伊藤博士講師には様々な問いを投げかけていただき、その都度知識を深めていくことができました。東野聡特命助教には学部4年の卒業研究のころから非常にお世話になっており、日ごろから気さくに声をかけてくれました。東野さんのいる飲み会は楽しいです。故・越智敦彦准教授とは学部4年生の時のガス検出器実験が思い出深いです。これを契機に検出器への興味が芽生え、曳いては素粒子実験そのものへの関心が深まりました。そして、鈴木州講師、いろいろありがとうございました。スタッフの皆様に感謝申し上げます。

神戸大学粒子物理学研究室のOB、先輩、後輩諸君

細川佳志助教 (東北大学) とは、主に飲み会の場で大変お世話になりました。細川さんのいる飲み会は楽しいです。高橋真斗さんは髭がチャーミングで日ごろから気さくに声をかけてくださりました。学生の長として、その威厳はさることながら後輩を常に気に掛けているさまは頼れる良い兄貴の様な存在でした。鐘海文さんは神戸ニュートリノグループ唯一の先輩でした。SKのキャリブレーション解析でご助言をいただきました。生井凌太さん、水引龍吾さん、鈴木大夢さん、張くんにもお世話になりました。また、後輩一同にも感謝したい。特に番原君と稲葉君には銀ゼオライトの試験において大変お世話になった。

同期諸君

浅見君とは莫逆の友です。学部時代は朝から一緒に勉強会をするなど良い思い出です。佐野君は大学で最初に声をかけてくれた数少ない物好きの一人で、最初は粗暴な印象でしたが利発で単位取得の際は大変ありがたい助けになってくれた。笹田君はコンピュータの知識に長けた技術者でいつも参考にさせていただいた。佐倉君とは超次元サッカーの話題で持ちきりでした。何かしらの大事な締め切りなどの情報は佐倉君が教えてくれたので大変助かりました。山口君と田中君は博士後期課程でも頑張っただね。谷口君、修論提出までの1週間、宿を共にしたことは思い出深いですね。和田君の明朗快活な性格は、鬱屈した時分には大変ありがたいものであった。神戸ニュートリノグループで唯一の同期で、いつも励ましの声をかけてくれて感謝している。鈴木啓司君、大学生活で最も時間を共に過ごした畏友です。ユーモアに富んだジョークはいつも面白いというより感心が勝ちました。同期について満足に語りつくすには原稿が足りません。まとめて感謝申し上げます。

家族一同にも改めて感謝を示したい。長い長い学生生活であったが、何一つ不自由なく過ごせたことは紛れもなく父母の援助のおかげです。姉、妹そして祖母と叔母にも激烈に感謝をしています。

尚、銀ゼオライトを使用した本研究は「JSPS KAKENHI Grant Number 24H02243」の支援の下実施した。感謝申し上げます。

最後に、私事にわたり恐縮であるが我が竹馬の友である佐伯直哉君へ、学生生活の集大成ともいえるこの修士論文をささげたい。

金科玉条たる物理学との別れは少しもの寂しいが、これにて修士論文とさせていただきます。

2026年2月6日 神戸 曾根貴将

参考文献

- [1] K.A. Hirata et al. Observation of solar neutrinos in kamiokande-ii. Phys. Rev. Lett., Vol. 63, p. 16, 1989.
- [2] S. Fukuda et al. The super-kamiokande detector. Nucl. Inst. Meth., Vol. A 501, pp. 418 – 462, 2003.
- [3] K. Abe et al. Hyper-kamiokande design report. 2018.
- [4] 中家剛. ニュートリノ物理 ニュートリノで探る素粒子と宇宙. 共立出版, 2016.
- [5] B. Pontecorvo. Inverse beta processes and nonconservation of lepton charge. Soviet Physics JETP, 1957.
- [6] Z. Maki, M. Nakagawa, and Sakata. S. Remarks on the unified model of elementary particles. Prog. Theor. Phys., Vol. 28, No. 5, pp. 870 – 880, 1962.
- [7] R. Davis. Search for neutrinos from the sun. Phys. Rev. Lett., Vol. 20, p. 1205, 1968.
- [8] T. Kajita. Nobel lecture: Discovery of atmospheric neutrino oscillation. Rev. Mod. Phys., Vol. 88, , 2016.
- [9] A. Yu. Smirnov. The msw effect and solar neutrinos. arXiv:hep-ph/0305106, 2003.
- [10] L. Wolfenstein. Neutrino oscillation in matter. Phys. Rev. D, Vol. 17, p. 9, 1978.
- [11] S Mikheyev and A. Yu. Smirnov. Resonance enhancement of oscillation in matter and solar neutrino spectroscopy. Soviet Journal of Nuclear Physics, Vol. 42, p. 6, 1985.
- [12] J.N. Bahcall. Neutrino astrophysics. Cambridge University, 1989.
- [13] Y. nakano. ^8b solar neutrino spectrum measurement using super-kamiokande iv(スーパーカミオカンデ iv を用いた ^8b 太陽ニュートリノスペクトラム測定).
- [14] J.N. Bahcall et al. What do we (not) know theoretically about solar neutrino fluxes? Phys. Rev. Lett., Vol. 92, p. 121301, 2004.
- [15] J.N. Bahcall et al. New solar opacities, abundances, helioseismology, and neutrino fluxes. Astrophys., Vol. 621, p. 85, 2005.
- [16] R. Wolf. Zurich, Vol. 2, p. 3, 1859.
- [17] https://solarscience.msfc.nasa.gov/greenwch/SN_m_tot_V2.0.txt.

- [18] K. Abe et al. Solar neutrino measurements using full data period of super-kamiokande-iv. Phys. Rev. D, Vol. 109, , 2024.
- [19] Y. Nakano et al. Evaluation of radon adsorption efficiency values in xenon with activated carbon fibers. Prog. Theor. Exp. Phys, Vol. 113H01, , 2020.
- [20] K.A. Hirata et al. Observation in the kamiokande-ii detector of the neutrino burst from supernova sn1987a. Phys. Rev. D, Vol. 38, p. 448, 1988.
- [21] Accelerator technical design report for j-parc. KEK report, 2002.
- [22] https://j-parc.jp/c/OPEN_HOUSE/2020/neutrino.html.
- [23] https://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/hayato_s/t2k.html.
- [24] K. Abe and et al. Measurements of the t2k neutrino beam properties using the ingrid on-axis near detector. NIM A, Vol. 694, pp. 211–223, 2012.
- [25] K. Abe and et al. T2k nd280 upgrade – technical design report. Technical report, T2K Collaboration, 2019.
- [26] <https://www-neutrino.kek.jp/project/iwcd/>.
- [27] <https://higgstan.com/>.
- [28] O. Veselska et al. Exploring the science of radon adsorption: materials, methodologies, and emerging directions. ScienceDirect ELSEVIER, 2026.
- [29] E. Bellotti et al. Precise measurement of the ^{222}Rn half-life: A probe to monitor the stability of radioactivity. Phys. Let. B, Vol. 743, pp. 526–530, 2015.
- [30] C. Maples et al. Nuclear data sheets for a=219. Nucl. Data Sheets 22, Vol. 11, , 1977.
- [31] E. Browne et al. Nuclear data sheets for a=220. Nucl. Data Sheets 112, Vol. 11, , 2011.
- [32] https://www.mext.go.jp/component/a_menu/other/detail/_ics-Files/afieldfile/2011/06/24/1305089_0624_1.pdf.
- [33] Y. Takeuchi et al. Development of high sensitivity radon detectors. Nucl. Inst. Meth. Phys. Res., Vol. A 421, pp. 334 – 341, 1999.
- [34] C. Mitsuda et al. Development of high sensitivity radon detectors. Nucl. Inst. Meth. Phys. Res., Vol. A 497, , 2003.
- [35] K. Hosokawa et al. Development of high-sensitivity 80l radon detector for purified gases. Prog. Theor. Exp. Phys., 2015.
- [36] Y. Nakano et al. Measurement of radon concentration in super-kamikande’s buffer gas. Nuclear Inst. and Method in Physics Research, Vol. A 867, pp. 108–114, 2017.
- [37] P. Kotrappa. Electret—a new tool for measuring concentrations of radon and thoron in air. Health. Physiscs., Vol. 41, pp. 35 – 46, 1981.

- [38] K Okamoto et al. Improvement of radon detector performance by using a large-sized pin-photodiode. arxiv, 2021.
- [39] K Okamoto. スーパーカミオカンデにおける太陽フレア由来のニュートリノ探索. 2019.
- [40] K. D. Chu and P. K. Hopke. Neutralization kinetics for polonium-218. Environmental Science Technology, Vol. 22, , 1988.
- [41] P. Pagelkopf and J. Porstendorfer. Neutraliation rate and the fraction of the positive ^{218}Po -clusters in air. Atmospheric Enviroment, Vol. 37, pp. 1057 – 1064, 2003.
- [42] E. Rutherford. The radioactive gas radon and its adsorption. Philosophical Magazine, Vol. 11, pp. 1–20, 1906.
- [43] F. O. Lopez and A. C. Canoba. ^{222}Rn gas diffusion and determination of its adsorption coefficient on activated charcoal. J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 252(3), pp. 515 – 521, 2002.
- [44] R.D. Ackley. Removal of radon-220 from htgr fuel reprocessing and refrabrication off-gas streams by adsorption. Report ORNL-TM-4883, Oak Ridge National Laboratory, 1975.
- [45] K. Pushkin et al. Study of radon reduction in gases for rare event search experiments. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Vol. A 903, pp. 267–276, 2018.
- [46] <https://www.unitika.co.jp/acf/about/>. ユニチカ株式会社 活性炭繊維.
- [47] I.S. Shefsky et al. A study of radon adsorption on activated carbon as a function of temperature. International Radon Conference, 1993.
- [48] L. Guo et al. The temperature dependence of adsorption coefficients of ^{222}Rn on activated charcoal: an experimental study. Applied Radiation an Isotopes, Vol. 125, pp. 185–187, 2017.
- [49] A. Becker and K.H. Stehberger. Über die adsorption der radiumemanation. Ann. Phys., Vol. 394, pp. 529–555, 1929.
- [50] W. Sibert. and et al. Adsorptionsuntersuchungen mit ra-emanation. Z. Phys. Chem., Vol. 180A, pp. 169 – 184, 1937.
- [51] T.N. van Loef. On the thermophysical properties of liquid radon-222. Physica B+C, Vol. 103, pp. 362 – 364, 1981.
- [52] 柴田真太郎. Y型ゼオライトのナノ細孔に局在した金属イオン・プロトンに対する炭素-酸素及び炭素-窒素二重結合化合物が示す吸着形態の解析と合成反応への応用研究. 博士論文.
- [53] R.D. Coleman and et al. Radon and radon daughter hazards in mine atmospheres. Am. Ind. Hyg. Assoc. Quart., Vol. 17, pp. 405 – 410, 1956.
- [54] D.W. Tyndall. and et al. Air products and chemicals. Inc. US Patent, Vol. 7, , 2008.
- [55] D.W. Tyndall et al. Air products and chemicals. Inc. US Patent, 2008.

- [56] S. Heinitz et al. Adsorption of radon on silver exchanged zeolites at ambient temperatures. Sci Rep, Vol. 13, p. 6811, 2023.
- [57] Y. Nakano et al. Measurement of the radon concentration in purified water in the super-kamiokande iv detector. Nucl. Instrum. Meth., Vol. A977, pp. 167 – 297, 2020.
- [58] Y. Takeuchi et al. Measurement of radon concentrations at super-kamiokande. Physics Letters B, Vol. 452, pp. 418–424, 1999.
- [59] Y Takagi. 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.
- [60] Y. Takeuchi et al. Measurement of radon concentrations at super-kamiokande. Phys. Lett., Vol. B 452, pp. 418–424, 1999.
- [61] T. Sone, Y. Takeuchi, and et al. Study of radon removal performance of silver-ion exchanged zeolite from air for underground experiments. Prog. Theor. Exp. Phys., 2025.
- [62] O. Veselska et al. Exploring the potential use of silver-exchanged zeolites for adsorption of radon traces in low background experiments. Prog. Theor. Exp. Phys., Vol. 023C01, , 2024.
- [63] H. Ogawa et al. Measurement of radon emanation and impurity adsorption from argon gas using ultralow radioactive zeolite. J. Inst., Vol. P02004, , 2024.
- [64] K. Abe et al. Xmass detector. Nucl. Instrum. Meth., Vol. A 716, pp. 78 – 85, 2013.
- [65] K. Abe et al. Radon removal from gaseous xenon with activated charcoal. Nucl. Instrum. Meth., Vol. A 661, p. 50, 2012.
- [66] JIS K1474(2014) 活性炭試験方法.
- [67] [/https://www.tosoh.co.jp/product/assets/synthetic_zeolite_zeolite_grade.pdf](https://www.tosoh.co.jp/product/assets/synthetic_zeolite_zeolite_grade.pdf).
- [68] <https://www.itl.nist.gov/div898/handbook/prc/section2/prc263.htm>.
- [69] Vaisala DMT152 のマニュアル.