

修士論文

太陽ニュートリノ検出を目指す超高純度カムランド
液体シンチレーターの性能維持の研究

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻

海老原 高士

平成 18 年

概要

現在、KamLANDにおいて ^7Be 太陽ニュートリノをはじめとする低エネルギー太陽ニュートリノを観測するために液体シンチレーター中に存在するバックグラウンドである ^{210}Pb 、 ^{85}Kr 、 ^{40}K を沸点の差を利用する蒸留法と高純度窒素によるパージを用いて除去している。

特に蒸留の過程において、液体シンチレーターが加熱されるため、その性能に劣化が無いか確認しておく必要がある。また、蒸留装置内で使用される各マテリアルのうち、ガスケット（配管の結合部分に使用される、漏れを防ぐパーツ）が加熱状況下で液体シンチレーターのこれらの性能に影響を与えないかも未確認であるのでチェックする必要がある。

本研究において、液体シンチレーターを加熱すると光透過性能、発光性能が劣化することが分かり、何らかのかたちで温度が関わっていることから実際の蒸留では温度をできるだけ低くしたほうが良いという指針を与えた。さらに研究を進め、劣化の原因が微量の酸素との反応によって生成した酸化物であるという証拠を示し、液体シンチレーターと加熱される酸素量の許容範囲も示すことができた。そして、現在のKamLAND内の液体シンチレーターの溶存酸素濃度における蒸留での加熱は、これらの性能を維持できるという結果を得た。

また、Alガスケットの影響を考えるために、実際の蒸留に対して180倍の加速実験を行ったところ、加速実験においても光透過性能への影響はみられなかった。

一方、発光量に関しては加速実験において5%程度の劣化が見られたが、許容範囲内であり、実際の蒸留での影響を見積もるとその影響は十分に小さいことが分かった。よって、実際の蒸留において、液体シンチレーターの光透過性能と発光性能は十分に維持できると考えられる。

目次

第1章	各章の概要	1
第2章	KamLAND 検出器	2
2.1	KamLAND	2
2.2	KamLAND 検出器本体	3
2.3	KamLAND 液体シンチレーター	4
2.3.1	光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube:PMT)	7
第3章	これまでの KamLAND	9
3.1	太陽ニュートリノ	9
3.1.1	pp chain	9
3.1.2	CNO cycle	10
3.2	太陽ニュートリノ問題	14
3.2.1	太陽ニュートリノ実験	14
3.2.2	KamLAND での原子炉反電子型ニュートリノ観測の成果	16
3.2.3	電子型反ニュートリノの検出原理	18
3.3	ニュートリノ振動	20
3.3.1	真空中でのニュートリノ振動	20
3.3.2	物質中でのニュートリノ振動	21
3.4	地球ニュートリノ観測の成果	22
3.4.1	地球ニュートリノとは	23
3.4.2	地球ニュートリノの検出原理	23
3.4.3	地球ニュートリノ検出によって	23
第4章	これからのカムランド	24
4.1	低エネルギー太陽ニュートリノ	24
4.1.1	観測意義	24
4.2	検出原理	25
4.3	蒸留法	26
4.3.1	蒸留原理	26
4.3.2	KamLAND における蒸留装置	27
4.3.3	蒸留によって除去可能なバックグラウンド	28

第 5 章	液体シンチレーター加熱による光透過性能への影響	31
5.1	研究動機と目標	31
5.2	発光性能の維持	32
5.3	光透過性能の維持	33
5.3.1	分光光度計を用いた透過率測定	33
5.3.2	評価方法	33
5.3.3	透過性能の劣化の温度依存性	34
5.4	光透過性能劣化の原因	36
5.5	溶存酸素濃度依存性	39
5.5.1	実験方法	39
5.5.2	実験手順	39
5.5.3	結果	41
5.5.4	溶存酸素消費量依存性	44
5.6	KamLAND 検出器内の液体シンチレーターの溶存酸素濃度	45
5.7	まとめ	45
第 6 章	Al ガasket が液体シンチレーターの光透過性能、および発光量に与える影響	47
6.1	研究動機と目標	47
6.2	実験方法	47
6.3	透過性能への影響	49
6.3.1	評価方法	49
6.3.2	結果	50
6.4	発光性能への影響	52
6.4.1	発光原理	52
6.4.2	発光量測定の注意点	52
6.4.3	測定原理	52
6.4.4	結果	53
6.5	まとめ	55
第 7 章	まとめ	58
7.1	液体シンチレーター加熱による光透過性能への影響のまとめ	58
7.2	Al ガasket が液体シンチレーターの光透過性能、および発光量に与える影響	58
付 録 A	分光光度計の測定誤差	59
A.1	ベースライン	59
付 録 B	溶存酸素消費量の見積もり	63
付 録 C	ATLES	67

目 次

2.1	KamLAND 検出器と坑内装置	2
2.2	KamLAND 検出器本体	3
2.3	KamLAND 液体シンチレーター	5
2.4	液体シンチレーターの発光スペクトル	6
2.5	Photo Multiplier Tube : PMT	7
2.6	PMT の量子効率	8
3.1	pp chain	10
3.2	CNO cycle	11
3.3	pp chain と CNO cycle におけるエネルギー生成比と温度の関係	12
3.4	標準太陽モデルによる太陽ニュートリノフラックス	13
3.5	太陽ニュートリノ実験	14
3.6	KamLAND による 2 世代での ν 振動パラメーター	16
3.7	ニュートリノ振動パラメーター	17
3.8	電子型反ニュートリノの検出原理	18
3.9	MSW	22
4.1	KamLAND の目標閾値	25
4.2	太陽ニュートリノの反応	26
4.3	dodecane と pseudocumene の気液相関図	27
4.4	蒸留装置	28
4.5	^{210}Pb の崩壊系列	28
4.6	^{85}Kr の崩壊図	29
4.7	^{40}K の崩壊図	29
4.8	蒸留後に観測されるスペクトル	30
5.1	シンチレーション光検出	32
5.2	光透過性能評価方法	34
5.3	透過性能劣化の温度依存性	35
5.4	蒸留温度の仮決定	36
5.5	非加熱液体シンチレーターとの比較	37
5.6	酸化物の生成	38
5.7	溶存酸素濃度計	40

5.8	加熱実験準備	40
5.9	加熱用装置	41
5.10	光透過性能と液体シンチレーター中の溶存酸素量の関係	42
5.11	液体シンチレーター加熱後の光透過率	43
5.12	光透過性能と加熱中の酸素消費量依存性	44
5.13	KamLAND 検出器内の溶存酸素濃度	45
6.1	蒸留装置が持つ Al ガスケット	48
6.2	Al ガスケットと液体シンチレーターの加熱実験	48
6.3	Al ガスケットが透過度に与える影響：透過率@ 9cm	50
6.4	Al ガスケットが透過度に与える影響：検出光子数の減少	51
6.5	酸素クエンチング	53
6.6	γ 線と炭素の反応断面積	54
6.7	発光量測定装置	55
6.8	後方散乱により得られたスペクトル	56
6.9	Al ガスケットが発光量に与える影響	57
A.1	U-2800 形分光光度計	60
A.2	シクロヘキサンの吸光度	61
A.3	分光光度計の測定誤差	62
B.1	フラスコへの移送	63
B.2	グローブボックスへの移送	64
B.3	酸素消費量の見積もり 1	65
B.4	酸素消費量の見積もり 2	66
B.5	酸素消費量の見積もり 3	66
C.1	ATLES	67
C.2	ATLES を用いた測定	68
D.1	U	69
D.2	Th	70

表目次

- 3.1 pp chain ニュートリノのフラックス 11
- 3.2 CNO cycle ニュートリノのフラックス 12
- 4.1 蒸留温度と圧力 28
- 5.1 加熱劣化による温度依存性 35
- 6.1 Al ガスケットを用いた加速実験 49

第1章 各章の概要

●2章：KamLAND 検出器

ここでは、KamLAND 検出器本体の説明をする。本論文が液体シンチレーターの性能維持に関する論文であるので、液体シンチレーターの発光原理、その光であるシンチレーション光の検出器となる光電子増倍管について記述している。

●3章：これまでの KamLAND

ここでは、これまでの KamLAND の成果とその背景について述べる。主に、KamLAND における原子炉ニュートリノ観測の結果と、その背景である太陽ニュートリノ問題について記述している。

●4章：これからの KamLAND

ここでは、現在の KamLAND の目標である、低エネルギー太陽ニュートリノの観測についての物理的意義、検出原理など、また検出の邪魔となるバックグラウンドとその除去方法である蒸留法について簡単に述べる。

●5章：液体シンチレーター加熱による光透過性能への影響

ここでは、太陽ニュートリノ観測のための液体シンチレーター中のバックグラウンド除去の手段である蒸留の過程（液体シンチレーターの加熱）において、液体シンチレーターの光透過性能、発光性能を維持するために行われた研究について述べられている。

●6章：Al ガasket が液体シンチレーターの光透過性能、および発光量に与える影響

ここでは、蒸留装置に用いられている材質のうち、光透過性能、発光性能に対しての影響が未確認であるガasket（配管のつなぎ目に使用され、リークを防ぐパーツ）が、実際の蒸留においてそれらに与える影響について述べられている。

●7章：結果

ここでは、本研究である5章、6章の結果についてまとめている。

第2章 KamLAND 検出器

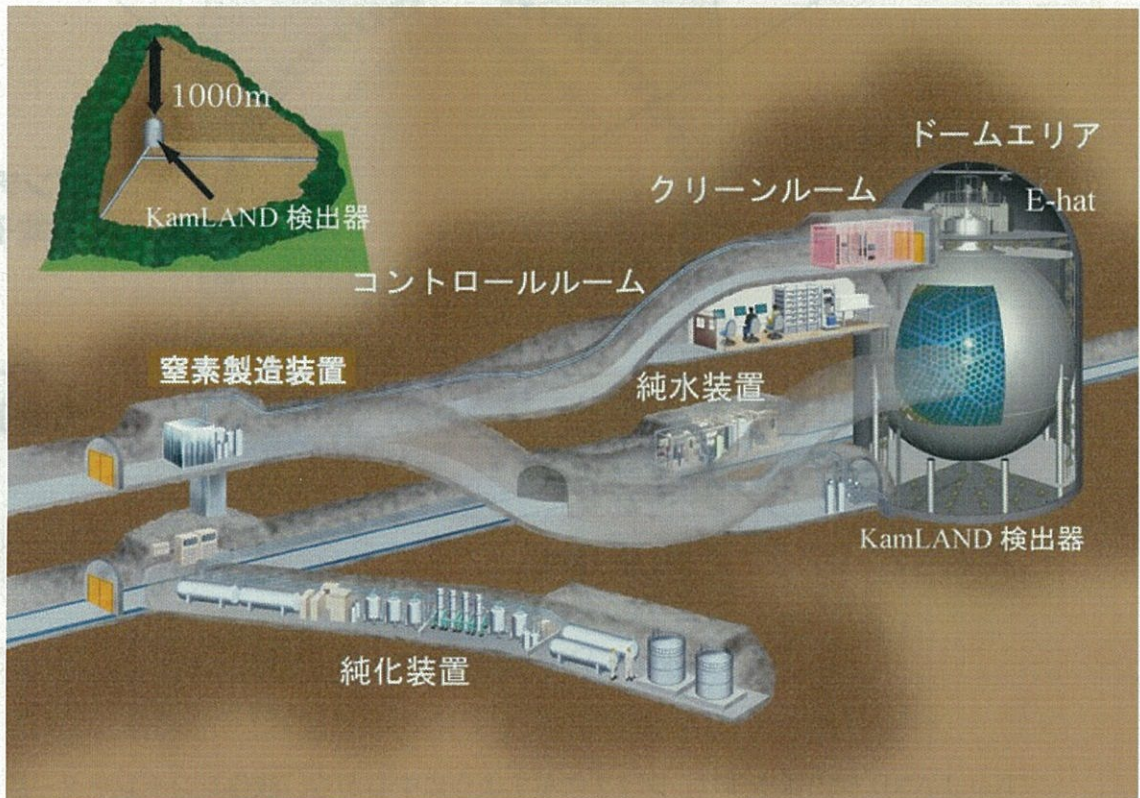


図 2.1: KamLAND 検出器と坑内装置

2.1 KamLAND

図 2.1 に KamLAND 全体の構造を示す。低エネルギー反ニュートリノ検出器 KamLAND (**K**amioka **L**iquid scintillator **A**nti **N**eutrino **D**etector) は、岐阜県飛騨市神岡町、池ノ山の山頂下 1000m にある。約 1000m という厚みの土や岩により、大きなバックグラウンドとなる宇宙線由来の μ 粒子の量を地上の約 10 万分の 1 である 0.34 count/sec 程度に減らすことができる。

2.2 KamLAND 検出器本体

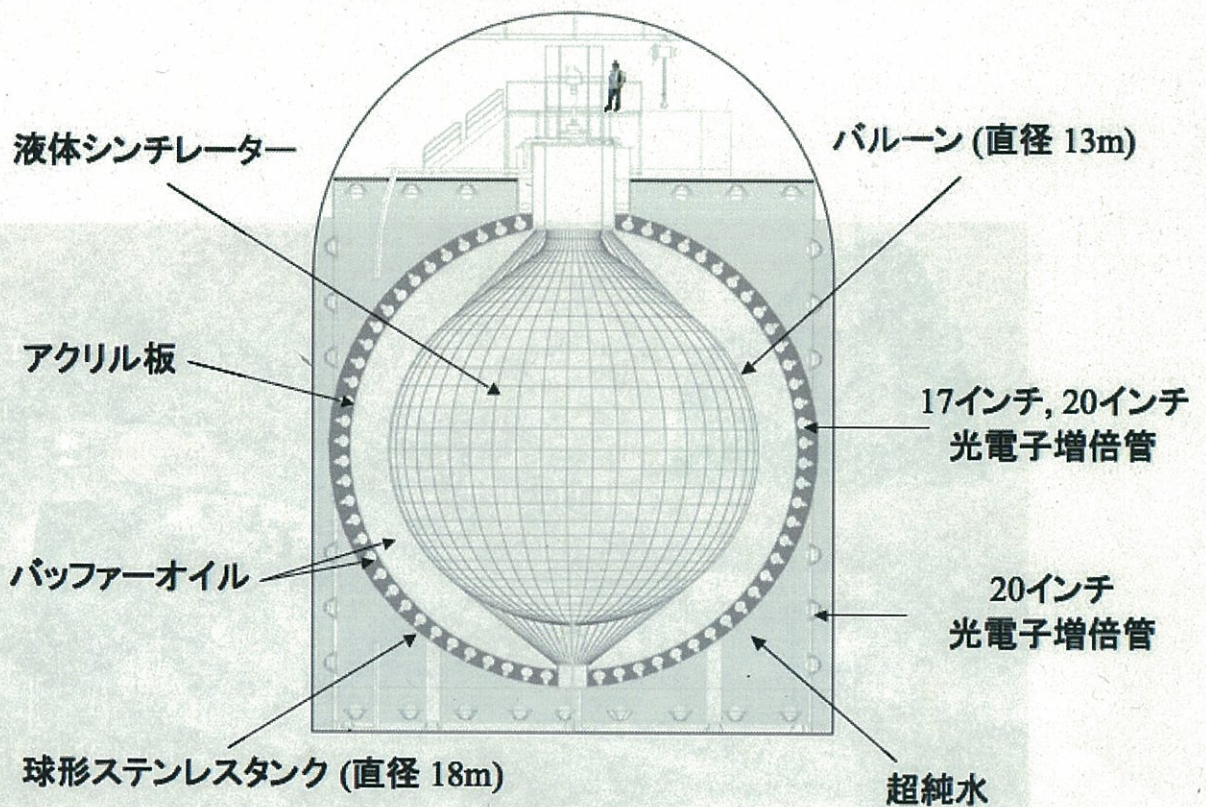


図 2.2: KamLAND 検出器本体と周辺装置

KamLAND 検出器本体は、図 2.2 に示すように中心から、液体シンチレーター層、バッファーオイル層、純水層から成っている。

- 液体シンチレーター層

直径 13m の透明で気体遮断性能に優れたプラスチックフィルム製の球形バルーン内部に 1000 トン、約 1300m^3 の液体シンチレーター (図 2.3 に詳細な構成を示す) が納められている。液体シンチレーターの詳細は 2.3 に示す。

- バッファーオイル層

直径 18m の球形ステンレスタンクとバルーンの間にある層で、インナーバッファーオイル層、アウターバッファーオイル層がある。インナーバッファーオイル層は図 2.3 において、バルーンとアクリル板の間の層を示し、アウターバッファーオイル層はアクリル板と球形ステンレスタンクの間の層を示す。バッファーオイルの成分はイソパラフィンとドデカンの混合液体 (混合比 1:1) である。バッファーオイルによって、光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube : PMT) からの放射線が遮蔽されバックグラウ

ンドを減らすとともに、液体シンチレーターとの密度差を0.01%とすることで液体シンチレーター層のバルーン全体にかかる質量が100kg程度に軽減されている。

●純水層

直径19m、高さ20mの円筒形の外壁と球形ステンレスタンクの間にある層で純水で満たされている。岩盤からの放射線の遮蔽の役割があるとともに、検出器外部からの μ 粒子が飛来して発生するチェレンコフ光を、超純水層内に取り付けられたPMTで検出することで、液体シンチレーター層におけるこれらの放射線による反応をバックグラウンドとして識別することができる。

2.3 KamLAND 液体シンチレーター

一般的に液体シンチレーターは、溶質、溶媒から成っていて、以下に示す過程を経て、放射線エネルギーを吸収して発光する。

- 1：放射線のエネルギーを吸収して、溶媒分子が励起される。
- 2：溶媒分子間におけるエネルギーの移行。
- 3：励起溶媒分子から溶質分子へのエネルギーの移行。
- 4：溶質分子からの発光。

溶媒、溶質に用いられる物質の特徴、役割を以下に示す。

●溶媒

溶媒は放射線エネルギーを吸収し、励起され、その励起エネルギーを発光剤となる溶質まで伝えなければならない。溶媒に求められることは、そのエネルギー伝達効率が良いこと、発光剤による発光波長に対して吸収が無いこと、などである。

●溶質

溶質は溶媒を通して受け取ったエネルギーを光（シンチレーション光）に変換する役割を持つ。溶質に求められることは、その変換効率が良いこと、溶媒に対して十分量の溶解が可能であること、などである。

KamLANDにおいて、その中心部でニュートリノイベントが起こったとすると、シンチレーション光は光電子増倍管に届くまでに液体シンチレーター中を6.5m透過しなくてはならないので、液体シンチレーター自身に高い光透過性能が求められる。このため、KamLAND液体シンチレーターは図2.3に示すような成分比で、溶媒と

としての Psudocumene:20%、溶質としての PPO:1.5g/l に加えて、光透過性能の良い Dodecane:80% からなっている。

この液体シンチレーターを用いることでチェレンコフ光に比べ、約 100 倍の光量を得ることができ、エネルギー分解能の向上、低エネルギー事象の観測が可能となる。

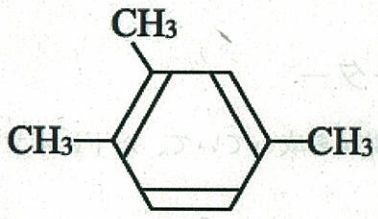
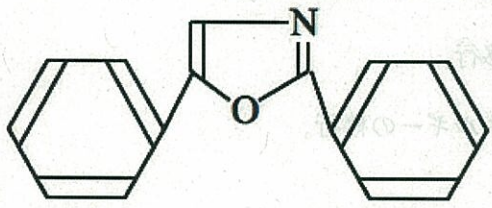
$\text{CH}_3 - \text{CH}_2 - \text{---} - \text{CH}_2 - \text{CH}_3$	<p>Dodecane (C₁₂H₂₆) 80%</p>
	<p>Psudocumene (1,2,4 Trimethyl Benzene) 20%</p>
	<p>PPO (2,5 Diphenyloxazole) 1.5g/l</p>

図 2.3: 液体シンチレーターの構成：溶媒としての Psudocumene:20%、溶質としての PPO:1.5g/l に加えて、光透過性能の良い Dodecane:80% からなっている。

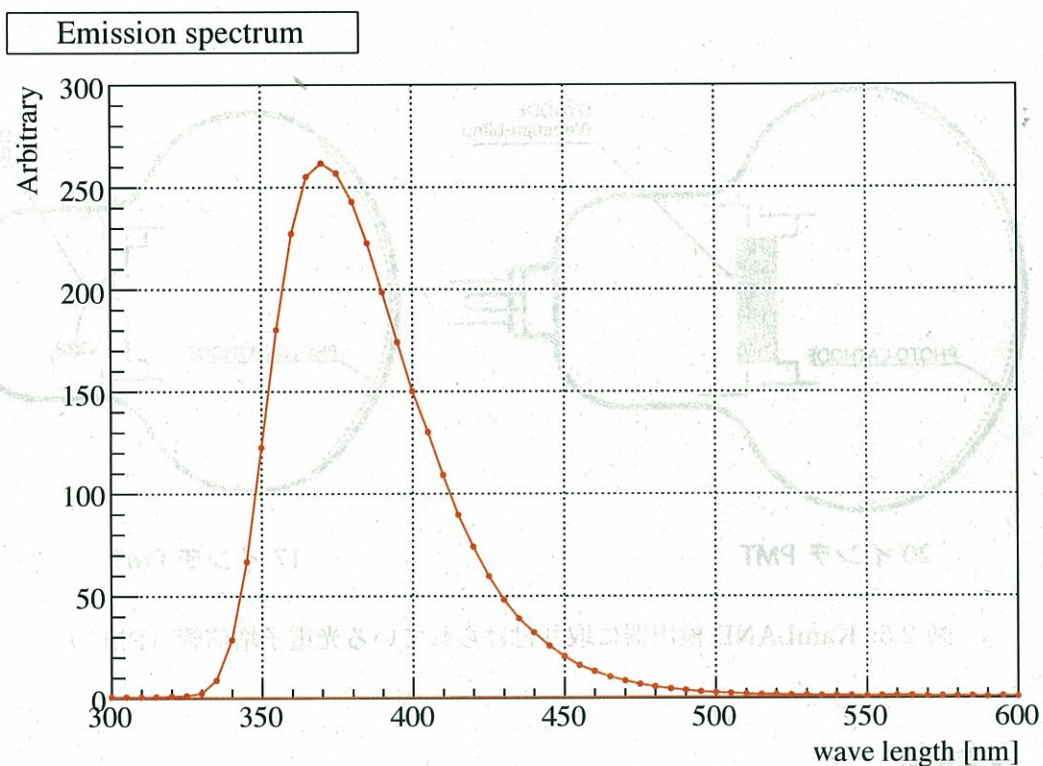


図 2.4: 液体シンチレーターの発光スペクトル

2.3.1 光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube:PMT)

KamLAND において、シンチレーション光を検出する役割を担うものが光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube : PMT) である。光を光電面にあて光電子に変換し、数段から成るダイノードに当て2次電子を増殖させ電流として取り出すことができる光検出器である。KamLAND で使用されている PMT は KamLAND 実験用に開発された 17 インチのものと Kamiokande¹ 実験から譲り受けた 20 インチのものがあり、ステンレスタンクの内側に 17 インチ 1325 本、20 インチ 554 本。純水層に 20 インチ 225 本が設置されている。図 2.5 にそれぞれの PMT の簡単な構造を示す。また、以下に、光電面 (photocathode) とダイノード (dynode) について簡単に説明する。

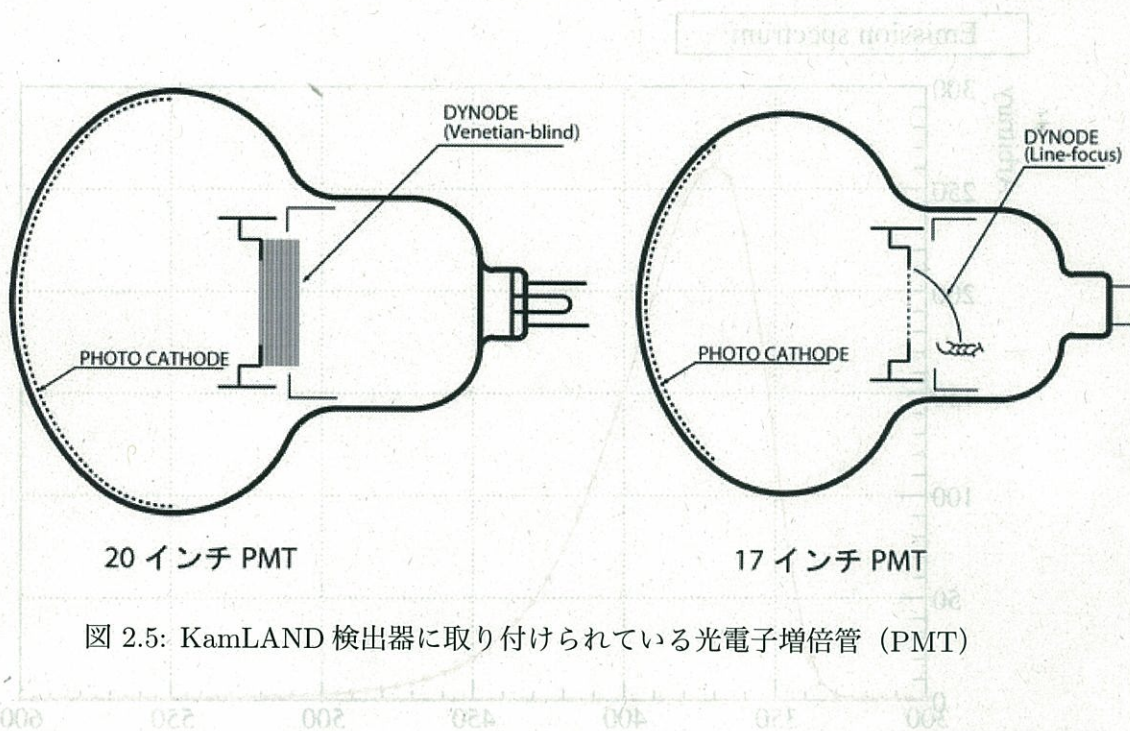


図 2.5: KamLAND 検出器に取り付けられている光電子増倍管 (PMT)

● 光電面

入射したシンチレーション光が光電効果を起こし、光電子に変換される部分。放出された光電子は、内部の電場により、ダイノードへと集まる。

光電面にはバイアルカリ (Sb-K-Cs) がコーティングされていて、これにより広い波長範囲での量子効率²が上がる。KamLAND で使用されている代表的な PMT の量子効率を、図 2.6 に示す。液体シンチレーターの発光波長 (図 2.4) と PMT の量子効率を比較すると、量子効率の高い波長領域と PPO の発光波長が一致していて効率良くシンチレーション光を検出できることが分かる。

● ダイノード

ダイノードとは高電圧がかかった板常のものが連なっており、加速された光電子が新

¹大マゼラン星雲で起きた超新星爆発に伴うニュートリノを検出することに成功した検出器。天体物理学、特に宇宙ニュートリノの検出を通してニュートリノ天文学という新しい分野を開拓したことが高く評価され、小柴昌俊東京大学名誉教授が 2002 年にノーベル賞を受賞している。

²光電面に入射した光子数が光電子として放出される割合

たに数個の2次電子を放出する。という過程を繰り返すことで、光電子数が増加する。17インチのものは図2.5に示すように、ラインフォーカス型が採用されている。ラインフォーカス型は高速時間応答特性に優れているので、時間分解能が向上する。液体シンチレーターのシンチレーション光は等方的に放出される。このためPMTが信号を受け取ったタイミングでイベントが起きた位置を決めているので、PMTの時間分解能は特に重要である。

各ダイノードが2次電子を放出する割合 δ は、ダイノード間の電界 E の関数で、 $\delta = A \cdot E^a$ で表わされる。a はダイノードの材質、形状から決まる (0.7~0.8)。n 段のダイノード、各ダイノード間に電圧 V がかかっている場合の増倍率 G は

$$G = (A \cdot E^a)^n \approx \left(\left(\frac{V}{A+1} \right)^a \right)^N = K \cdot V^b \quad (2.1)$$

K 、 b は個々の光電子増倍管によって決まる値である。

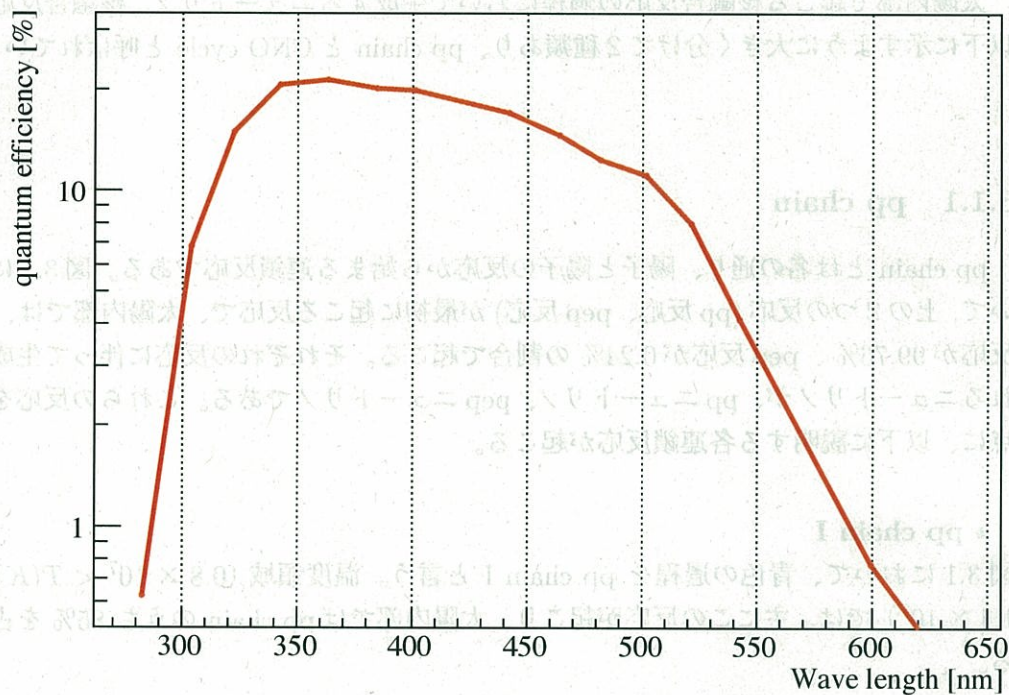


図 2.6: PMT の量子効率: PMT の量子効率は個々で微妙な差があるが、ここでは KamLAND で使われているものの代表的な PMT の量子効率を示す。

第3章 これまでのKamLAND

現在まで、KamLAND は原子炉から飛来する反電子ニュートリノを検出することで、太陽ニュートリノ問題の原因が大混合角 (LMA) 解によるニュートリノ振動であることを示し、さらに観測を続けることで、そのパラメーターに強い制限を与え、ニュートリノ振動を直接観測し、ニュートリノ振動の存在を実験的に証明した。また、地球内部から飛来するニュートリノ (地球ニュートリノ) を世界で初めて検出することに成功するなど、さまざまな成果をあげてきた。ここでは、太陽ニュートリノ、太陽ニュートリノ問題、ニュートリノ振動について説明し、これまでのKamLANDにおけるニュートリノ観測の成果を示していく。

3.1 太陽ニュートリノ

太陽内部で起こる核融合反応の過程において生成するニュートリノ。核融合反応は以下に示すように大きく分けて2種類あり、pp chain と CNO cycle と呼ばれている。

3.1.1 pp chain

pp chain とは名の通り、陽子と陽子の反応から始まる連鎖反応である。図3.1において、上の2つの反応 (pp 反応、pep 反応) が最初に起こる反応で、太陽内部では、pp 反応が99.76%、pep 反応が0.24%の割合で起こる。それぞれの反応に伴って生成されるニュートリノが、pp ニュートリノ、pep ニュートリノである。これらの反応を起点に、以下に説明する各連鎖反応が起こる。

- pp chain I

図3.1において、青色の過程を pp chain I と言う。温度領域 ($0.8 \times 10^7 < T(K) < 1.4 \times 10^7$) では、主にこの反応が起こり、太陽内部では pp chain のうち 85% を占める。

- pp chain II

図3.1において、緑色の過程を pp chain II と言う。温度領域 ($1.4 \times 10^7 < T(K) < 2.3 \times 10^7$) では、主にこの反応が起こり、太陽内部では pp chain のうち 15% を占める。この反応が起こるためには、 ${}^4\text{He}$ を触媒として、 ${}^7\text{Be}$ が生成される必要がある。この ${}^4\text{He}$ は pp chain I により生成される。pp chain II において、 ${}^7\text{Be}$ の電子捕獲の

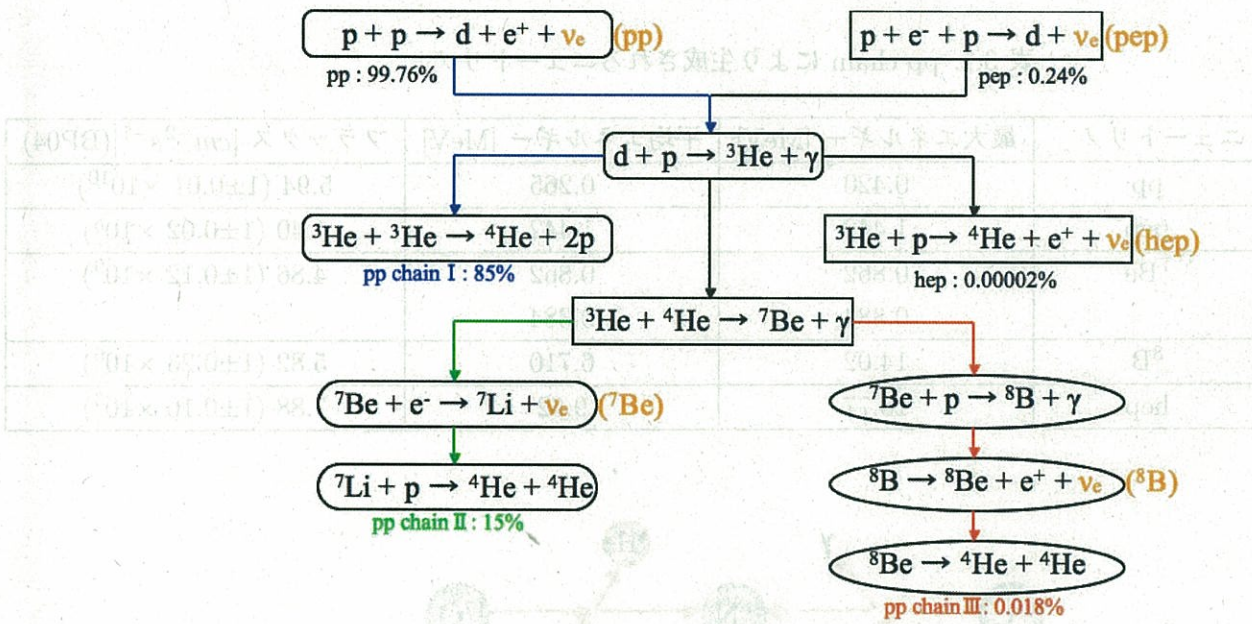


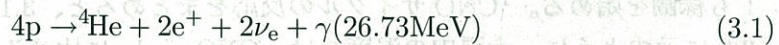
図 3.1: pp chain における反応

際に生成されるニュートリノを ${}^7\text{Be}$ ニュートリノと言う。ただし、この反応で生成された ${}^7\text{Li}$ の約 90% が基底状態で、このときのニュートリノのエネルギーは 862KeV となる。残りの 10% の ${}^7\text{Li}$ は励起状態であり、このときのニュートリノのエネルギーは 384KeV となっている。

• pp chain III

図 3.1 において、赤色の過程を pp chain III と言う。温度領域 ($2.7 \times 10^7 < T(K)$) になると、この反応が起こり始める。太陽内部では pp chain のうち 0.018% とわずかな頻度ではあるが、この連鎖の過程で生成される ${}^8\text{B}$ ニュートリノはエネルギーが高いため比較的検出しやすい。

これらの反応をまとめると、以下の式に還元される。



3.1.2 CNO cycle

あらかじめ、C(炭素)、N(窒素)、O(酸素)などの元素が恒星に含まれていた場合、図 3.3 に示すように、ある一定温度以上(図 3.3)でこれらの元素が触媒となって働き、陽子捕獲と β^+ 崩壊を起こし、 ${}^4\text{He}$ を形成する反応が起こる。これを CNO サイクルという。温度が 1.6×10^7 (K) 以上になると、CNO cycle I に加えて CNO cycle I

表 3.1: pp chain により生成されるニュートリノ

ニュートリノ	最大エネルギー [MeV]	平均エネルギー [MeV]	フラックス [$cm^{-2}s^{-1}$](BP04)
pp	0.420	0.265	$5.94 (1 \pm 0.01 \times 10^{10})$
pep	1.442	1.442	$1.40 (1 \pm 0.02 \times 10^8)$
^7Be	0.862	0.862	$4.86 (1 \pm 0.12 \times 10^9)$
	0.384	0.384	
^8B	14.02	6.710	$5.82 (1 \pm 0.23 \times 10^6)$
hep	18.77	9.62	$7.88 (1 \pm 0.16 \times 10^3)$

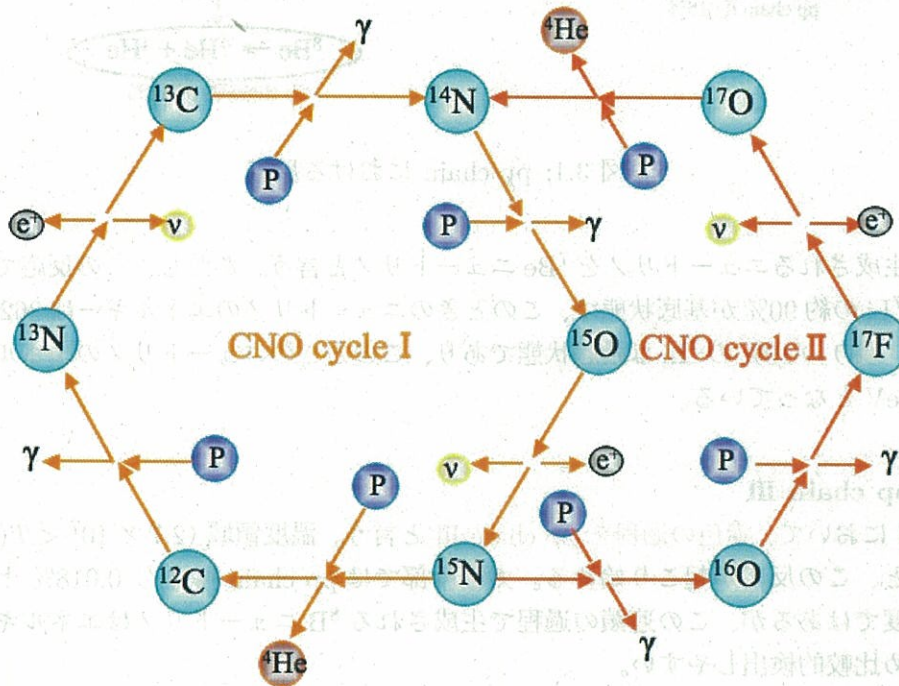


図 3.2: CNO cycle における反応。

I も稼働を始める。 ^1CNO サイクルの反応をまとめると、3.1 に還元される。
3.3 に示すように、太陽内の温度では、CNO cycle に比べると pp chain のほうが主反応となっている。

¹さらに高温になると cycle III、cycle IIII の経路も出現するが太陽内では起こらないとされている、ここでは省略する。

表 3.2: CNO cycle により生成されるニュートリノ

ニュートリノ	最大エネルギー [MeV]	平均エネルギー [MeV]	フラックス [$cm^{-2}s^{-1}$](BP04)
^{13}N	1.199	0.707	$5.71 (1^{+0.37}_{-0.35} \times 10^{10})$
^{15}O	1.732	0.997	$5.03 (1^{+0.43}_{-0.39} \times 10^{10})$
^{17}F	1.740	0.999	$5.91 (1^{+0.44}_{-0.44} \times 10^{10})$

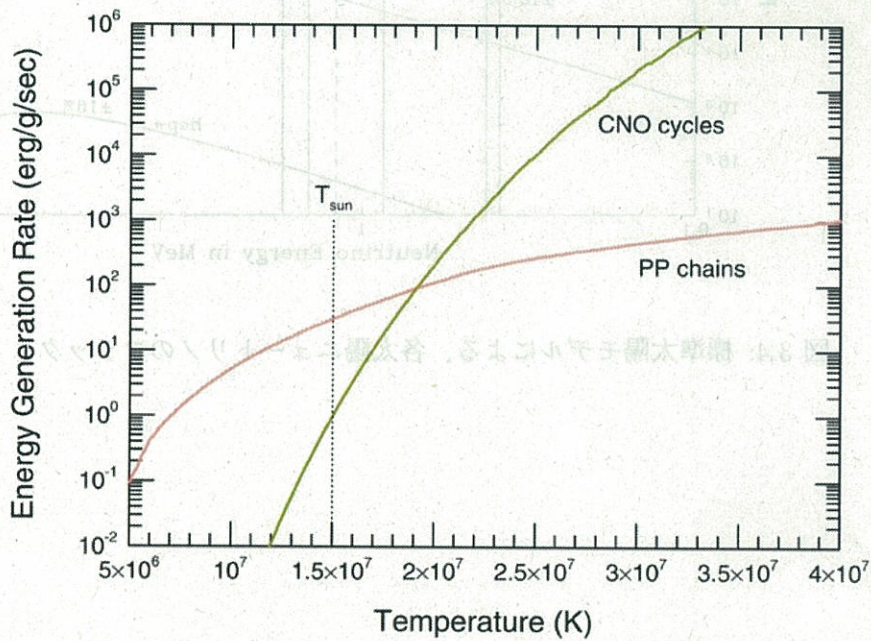


図 3.3: pp chain と CNO cycle におけるエネルギー生成比と温度の関係 [6]

ニュートリノの種類	最大エネルギー [MeV]	平均エネルギー [MeV]	フラックス [cm ⁻² s ⁻¹]
¹⁸ B	11.2	7.0	3.7 × 10 ⁶
⁸ B	15.0	6.7	5.0 × 10 ⁶
pep	1.02	1.02	6.9 × 10 ⁶
⁷ Be	0.86	0.86	4.8 × 10 ⁶
¹⁵ O	4.8	4.8	2.2 × 10 ⁶
¹³ N	4.9	4.9	1.1 × 10 ⁶
¹⁷ F	1.7	1.7	0.6 × 10 ⁶
⁷ Be	0.86	0.86	4.8 × 10 ⁶
pp	> 0	> 0	6.1 × 10 ¹⁰

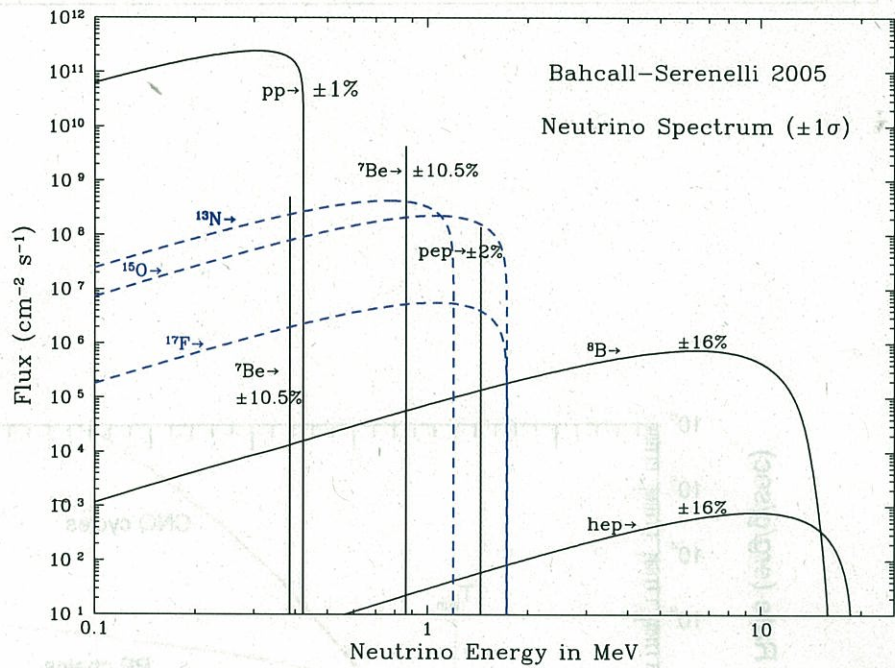


図 3.4: 標準太陽モデルによる、各太陽ニュートリノのフラックス

3.2 太陽ニュートリノ問題

3.2.1 太陽ニュートリノ実験

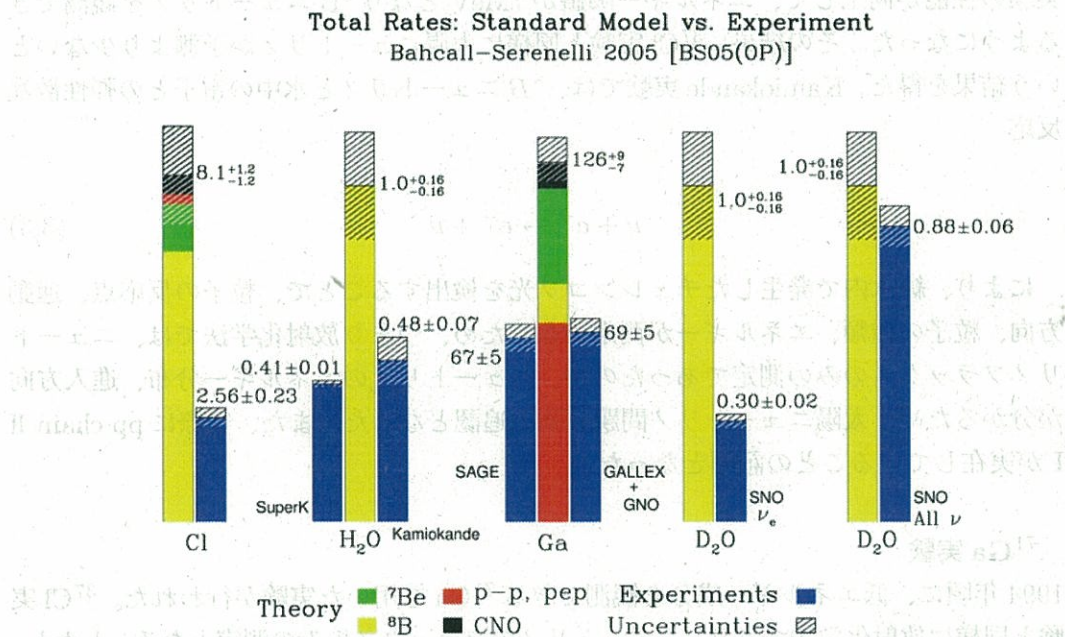


図 3.5: 標準太陽モデルからの理論値と各太陽ニュートリノ実験におけるニュートリノ検出量：このずれを太陽ニュートリノ問題と言う。

青：観測値

黄、赤、緑、黒：各ニュートリノの予測値

標準太陽モデルからの予測値と、太陽ニュートリノ実験における検出量のずれを太陽ニュートリノ問題と言う。以下に、年代順で各太陽ニュートリノ実験とその特徴を述べ、太陽ニュートリノ問題の流れを追う。

³⁷Cl 実験

1970年から、R.Davis はホームステーク金鉱の地下深くで615トンの四塩化エチレンを用いて、この溶液中の塩素とニュートリノの稀な反応である



により生成した半減期 34.8 日の放射性物質である ³⁷Ar の数を測定することで、814KeV 以上の太陽ニュートリノ (⁸B ニュートリノの寄与が最も大きく、⁷Be ニュートリノがそれに次ぐ) を検出した。その結果、期待されるニュートリノ検出量の3分の1から4分の1程度しかなかった。これが太陽ニュートリノ問題の始まりである。

この検出方法は放射化学法といい、エネルギー閾値は低いのが、得られる情報はニュートリノの反応数のみである。以下に示す ^{71}Ga 実験も同じ放射化学法である。

Kamiokande 実験

1987年に、神岡鉱山の地下1000mに建設された3000トンの純水を使う Kamiokande 実験の性能が向上して、エネルギー閾値が7MeVとなり ^8B ニュートリノを観測できるようになった。その結果、 ^{37}Cl 実験と同様に太陽ニュートリノが予測より少ないという結果を得た。Kamiokande 実験では、 ^8B ニュートリノと水中の電子との弾性散乱反応



により、純水内で発生したチェレンコフ光を検出することで、粒子の反応点、運動方向、粒子の種類、エネルギーが測定できたため、つまり放射化学法では、ニュートリノフラックスのみの測定であったのが、ニュートリノのエネルギー分布、進入方向が分かるため、太陽ニュートリノ問題の強い追認となった。また、実際に pp chain II が実在していることの証明となった。

^{71}Ga 実験

1994年頃に、低エネルギー成分を観測できる ^{71}Ga を用いた実験が行われた。 ^{37}Cl 実験と同様に放射化学法であり、ニュートリノのフラックスのみの測定となる。しかし、そのエネルギー閾値は233KeVであり、pp ニュートリノにも感度がある。



この結果、予測される検出量の半分程度となり、標準太陽模型 (SSM)²の変更でも観測結果を説明できないことから、太陽ニュートリノ問題の原因はニュートリノの伝播の理論に絞られた。

Super Kamiokande 実験

1996年頃に始まった実験で、神岡鉱山の地下1000mに建設された50000トンの純水を使う実験。検出原理は Kamiokande 実験と同じであるが、体積の増加とより低いエネルギー閾値 (5MeV) で ^8B ニュートリノのスペクトルを精密に観測することが可能となった。その結果、ニュートリノの伝播に対して強い制限をかけることができた。

SNO 実験

SNO (Sudbury Neutrino Observatory) はカナダに建設された、中央に重水1000トンを取めたアクリル容器があり、そのまわりを7000トンの純水で囲まれている。Super Kamiokande と同様にチェレンコフ検出器であるが、重水を使用しているため、電子

²Standard solar model の略。星の内部構造と進化の理論に基づき計算された理論的太陽内部構造モデル

との弾性散乱のほかに、 ν_e にのみ感度がある反応。

$$D + \nu_e \rightarrow e^- + 2p \quad (3.5)$$

と、ニュートリノのタイプを区別しない中性カレント反応

$$D + \nu_{e,\mu,\tau} \rightarrow p + n + \nu_{e,\mu,\tau} \quad (3.6)$$

がある。これを利用することで ν_e は標準太陽模型の予測より少ないが、全種類のニュートリノ数であれば予測と一致することを示した。このことより、太陽で生成されたニュートリノが地球で検出されるまでに、別のタイプのニュートリノに変化していることを突き止めた。

この時点では、ニュートリノの伝播に対して様々なモデルが許されている状態である。

3.2.2 KamLAND での原子炉反電子型ニュートリノ観測の成果

原子炉内部では、 ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu などの核分裂の際に生じた中性子過剰な原子核が β 崩壊することで、反電子ニュートリノが生成される。

KamLAND では、この反電子ニュートリノを検出することでニュートリノ伝播のモデルを LMA 解に絞り、さらにその振動パラメーターに強い制限を与えた (図 3.7)。さらに、ニュートリノ振動を直接観測することで、実験的にニュートリノ振動の存在を示した。

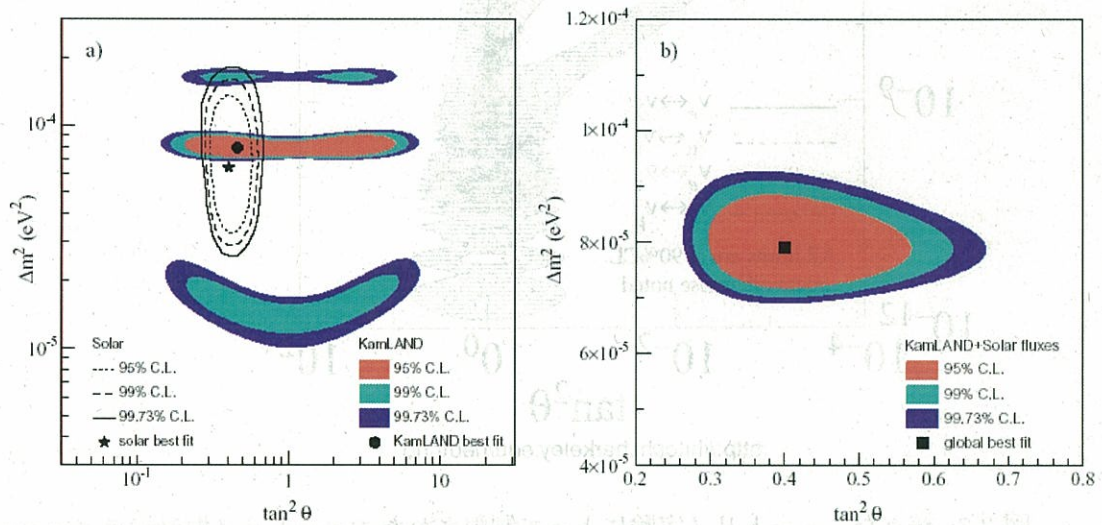


図 3.6: KamLAND による 2 世代でのニュートリノ振動パラメーター (左) と全ての実験によって決定された振動パラメーター。最適値は、 $\Delta m^2 = 7.9^{+0.6}_{-0.5} \text{eV}^2$ 、 $\tan^2 \theta = 0.40^{+0.10}_{-0.07}$

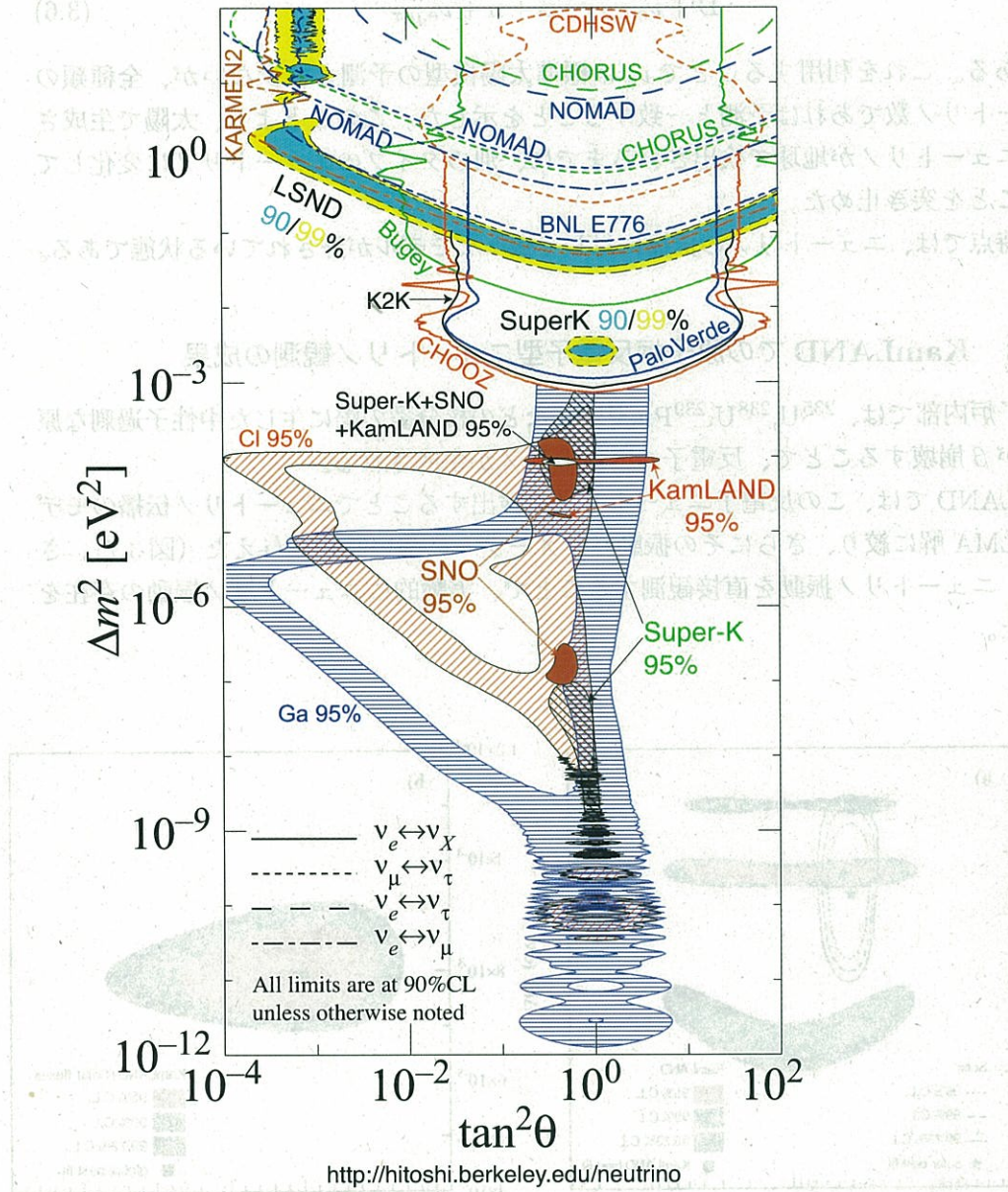
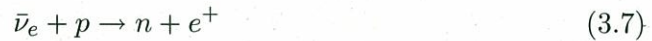


図 3.7: 様々なニュートリノ実験によって制限されたニュートリノ振動パラメーター。
[7]

3.2.3 電子型反ニュートリノの検出原理

KamLAND における反電子ニュートリノの検出原理について、簡単に説明する。

電子型反ニュートリノの検出には、液体シンチレーター中の陽子との逆 β 崩壊を用いる。



この反応の閾値 E_{thre} は、中性子質量： m_n 、陽電子質量： m_e 、陽子質量： m_p を用いて

$$E_{thre} = m_n + m_e - m_p = 1.8\text{MeV} \quad (3.8)$$

となる。

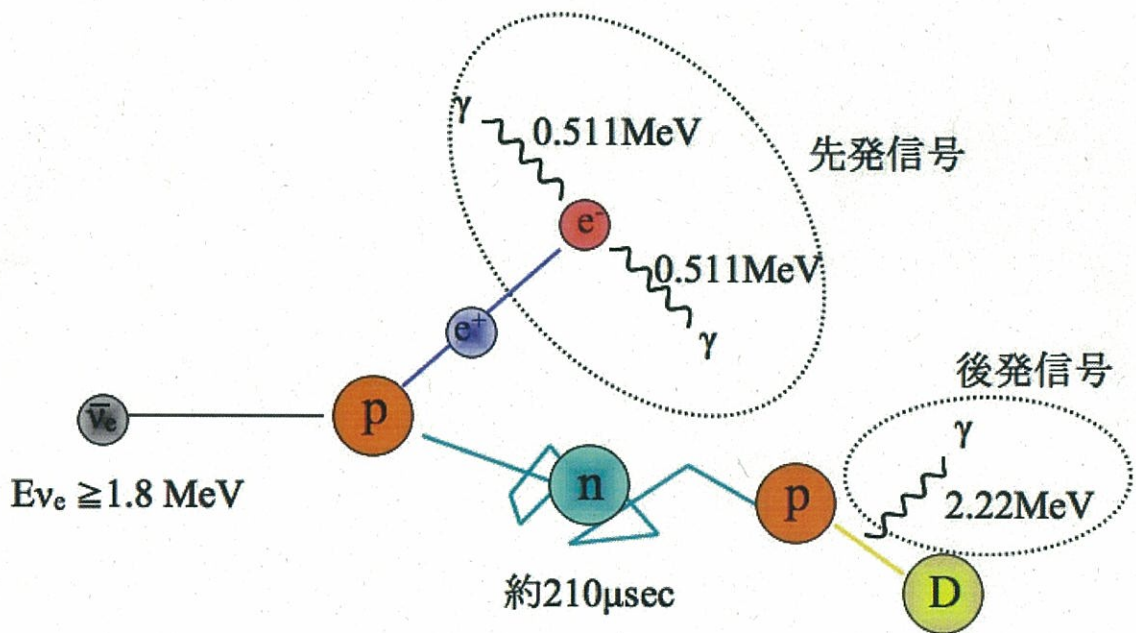


図 3.8: 電子型反ニュートリノの検出原理

図 3.8 に示すように、式 3.7 によって発生した陽電子は、液体シンチレーター中を数 cm 飛行した後に電子と対消滅して 2 本の γ 線を発生させる。これがシンチレーション光を発生させて、先発信号となる。一方で、中性子は液体シンチレーター中で陽子

との弾性散乱を繰り返した後、熱中性子となり陽子に吸収されて重陽子となる。このときに発生する γ 線によって、シンチレーション光が発生し、後発信号となる。

1回の電子型反ニュートリノの反応に対して、2回のシンチレーション光が発生することになる。この2つのシンチレーション光の時間差、エネルギー、位置の条件を考えることで、ニュートリノ反応と他の反応を識別することができる。これを遅延同時計測法と言う。

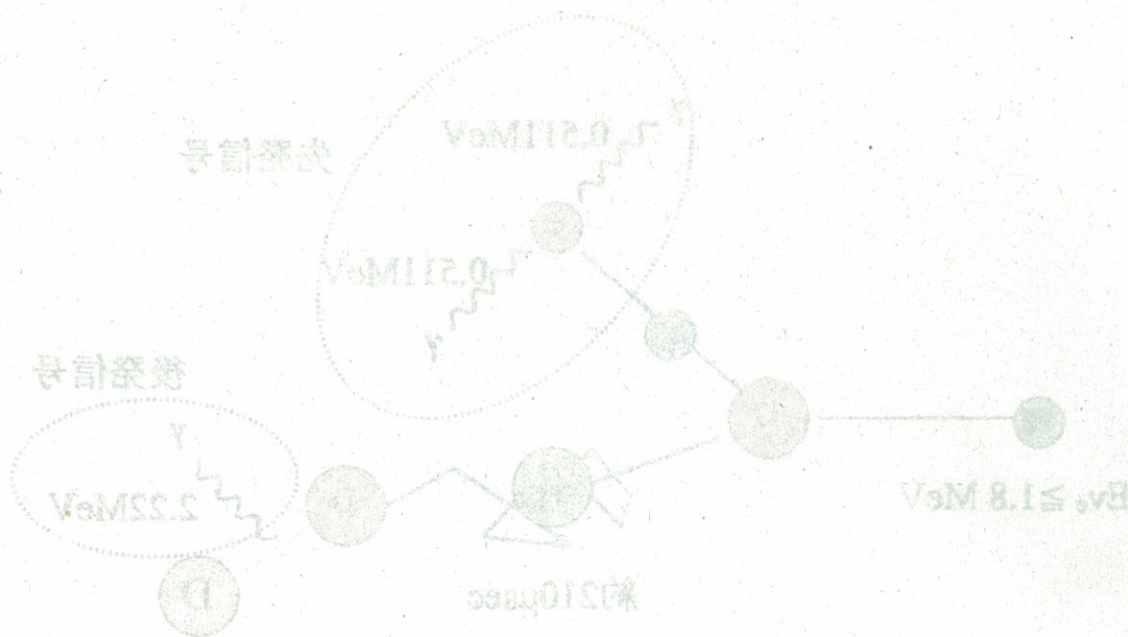


図3.8 遅延同時計測の原理

図3.8に示すように、中性子は液体中に進入すると、弾性散乱を繰り返して、最終的に陽子と結合して重陽子となる。このときに発生する γ 線によって、シンチレーション光が発生し、後発信号となる。この γ 線のエネルギーは、陽子の質量と中性子の質量の差に等しい。この γ 線のエネルギーは、約2.2 MeVである。

3.3 ニュートリノ振動

KamLAND の成果によって、太陽ニュートリノ問題の原因は、LMA (大混合角) 解でのニュートリノ振動であることが分かった。ここでは、ニュートリノ振動について説明する。

3.3.1 真空中でのニュートリノ振動

ニュートリノの質量固有状態とフレーバー固有状態とが等しくない場合、それぞれのフレーバーの固有状態 $\nu_{e,\mu,\tau}$ は質量の固有状態の重ね合わせとなる。ニュートリノの質量がゼロでない場合、時間経過とともにニュートリノが別のニュートリノに変化する。これがニュートリノ振動である。

フレーバーの固有状態 ν_l は、質量の固有状態と次の関係式を満たす。

$$\nu_l = \sum_{i=1}^N U_{li} \nu_i \quad (3.9)$$

ここで、 $\nu_l (l = e, \mu, \tau, \dots, N)$ は弱い相互作用に関わる N 個のフレーバー固有状態であり、 $\nu_i (i = 1, 2, 3, \dots, N)$ は質量固有状態、 U_{li} は混合行列である。

質量固有状態の時間発展は、

$$|\nu_i(t)\rangle = e^{-iE_i t} |\nu_i(0)\rangle \quad (3.10)$$

と表される。

時刻 $t = 0$ で弱い相互作用により生成された ν_l は、時刻 t で、

$$|\nu_l(t)\rangle = \sum_i U_{li} |\nu_i(t)\rangle = \sum_i U_{li} e^{-iE_i t} |\nu_i(0)\rangle = \sum_i U_{li} e^{-iE_i t} |\nu_i(0)\rangle \quad (3.11)$$

となり、フレーバー固有状態の時間発展を表す式は、

$$|\nu_l(t)\rangle = \sum_i U_{li} e^{-iE_i t} U_{li}^\dagger |\nu_l(0)\rangle \quad (3.12)$$

となる。

ここで、2種類のフレーバーニュートリノ間でのニュートリノ振動について述べる。すると、混合行列 U は

$$U = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

である。

時刻 t でのフレーバーが、最初の時刻 $t=0$ のフレーバーと等しい確率は、

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_e) = |\langle \nu_e(0) | \nu_e(t) \rangle|^2 \quad (3.14)$$

となる。

$$\begin{aligned}
 P(\nu_e \rightarrow \nu_e) &= \left| \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-iE_1 t} & 0 \\ 0 & e^{-iE_2 t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta \\ \sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \right|^2 \\
 &= |e^{-iE_1 t} \cos^2\theta + e^{-iE_2 t} \sin^2\theta|^2
 \end{aligned} \tag{3.15}$$

となる。ここで、ニュートリノの質量が非常に微小であるとする、

$$E_i = (p^2 + m_i^2)^{1/2} \tag{3.16}$$

$$\approx p + \frac{m_i^2}{2p} \tag{3.17}$$

が成立する。これを利用して、

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_e) = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \frac{m_1^2 - m_2^2}{4p} t \tag{3.18}$$

$$\approx 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 1.27 \frac{\Delta m^2 (eV^2) L(m)}{E(\text{MeV})} \tag{3.19}$$

3.3.2 物質中でのニュートリノ振動

ν_e は物質中を伝搬するとき、電子と散乱して電子密度に比例するポテンシャルを受け、見せかけの質量を得て、真空中のそれよりも重くなる。 ν_μ 、 ν_τ が受けるポテンシャルを基準とすると、

$$V_e = \sqrt{2} G_F N_e \tag{3.20}$$

$$V_{\nu_{\mu,\tau}} = 0 \tag{3.21}$$

ここで、 G_F ：フェルミ結合定数、 N_e ：電子数密度、である。

以下、電子数密度が一定で、 ν_e と $\nu_{\mu\tau}$ の2フレーバーの場合を考える。

物質中での混合角 θ_m を用いると、物質中での MNS 行列は、

$$U_m = \begin{pmatrix} \cos\theta_m & \sin\theta_m \\ -\sin\theta_m & \cos\theta_m \end{pmatrix} \tag{3.22}$$

となる。また、物質中での混合角 θ_m は、

$$\tan\theta_m = \frac{\sin 2\theta}{\cos 2\theta - L_{osc}/L_0} \tag{3.23}$$

$$\tag{3.24}$$

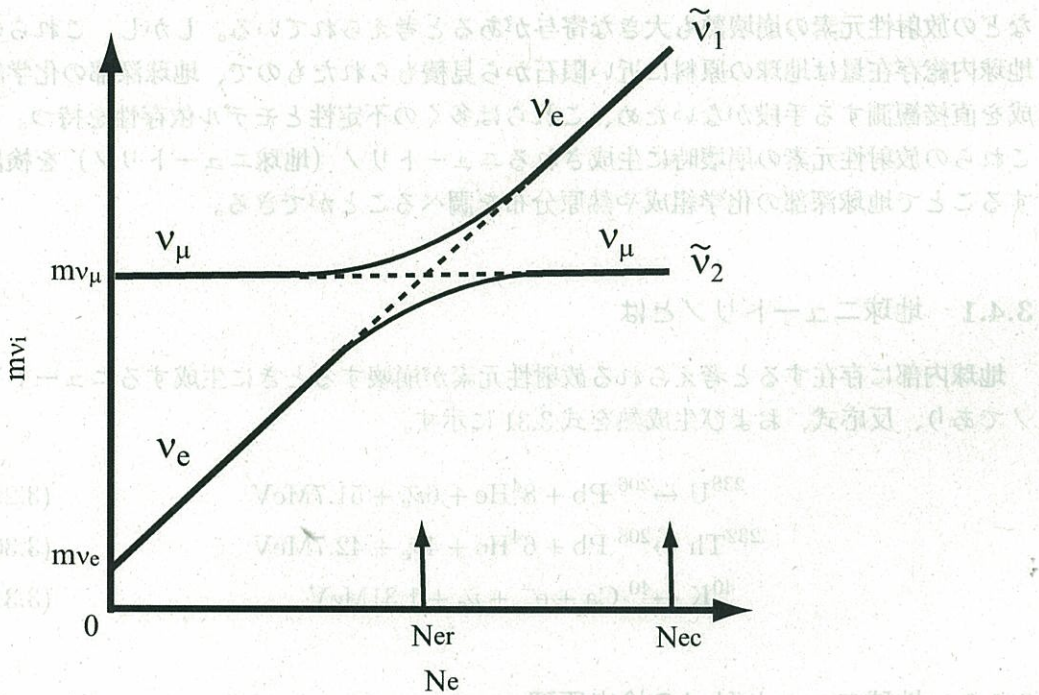


図 3.9: 太陽内で質量が電子の数密度の関数として変わる様子

である。ここで、 $L_{oscillation}$ は真空中での振動長、 L_0 は荷電カレントのニュートリノ相互作用長であり、それぞれ

$$L_{oscillation} = \frac{4\pi E}{\Delta m^2} \quad (3.25)$$

$$L_0 = \frac{2\pi}{V_{\nu e}} = \frac{\sqrt{2}\pi}{G_F N_e} \quad (3.26)$$

である。

これにより、物質中での混合角は次のとき最も共鳴が大きくなり、遷移確率は $\sin^2\theta_m = 1$ となる。

$$\cos 2\theta = \frac{L_{oscillation}}{L_0} \quad (3.27)$$

$$\leftrightarrow \sqrt{2}G_F N_e = \frac{\Delta m^2}{2E} \cos 2\theta_0 \quad (3.28)$$

これは、共鳴条件と呼ばれ、ニュートリノ振動が大きくなる。また、このときの電子数密度を臨界密度と言い、このとき $\theta_m = 45^\circ$ となる。これは、物質中ではフレーバー遷移確率が十分に大きくなることを示している。

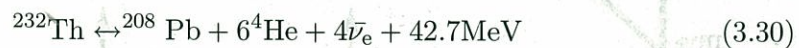
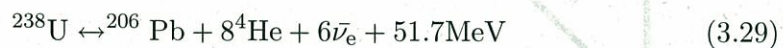
3.4 地球ニュートリノ観測の成果

現在、地球内部より 30TW から 40TW 程度の熱エネルギーが地表へと放出されている。この熱源として様々なものが考えられているが、ウラン、トリウム、カリウム

などの放射性元素の崩壊熱も大きな寄与があると考えられている。しかし、これらの地球内総存在量は地球の原料に近い隕石から見積もられたもので、地球深部の化学組成を直接観測する手段がないため、これらは多くの不定性とモデル依存性を持つ。これらの放射性元素の崩壊時に生成されるニュートリノ（地球ニュートリノ）を検出することで地球深部の化学組成や熱原分布を調べることができる。

3.4.1 地球ニュートリノとは

地球内部に存在すると考えられる放射性元素が崩壊するときに生成するニュートリノであり、反応式、および生成熱を式 3.31 に示す。



3.4.2 地球ニュートリノの検出原理

地球ニュートリノは反電子ニュートリノであるので、原子炉ニュートリノと同様に遅延同時計測（図 3.8）を用いて検出を行う。ただし、反電子ニュートリノ検出における閾値は 1.8MeV であるため、 ^{40}K からのニュートリノ（最大エネルギー：1.3MeV）は検出できない。

3.4.3 地球ニュートリノ検出によって

従来、地震波解析などでしか知ることができなかった地球内部の構造をニュートリノを用いて測定するという新たな方法を示すことができた。まだエラーは大きいですが、得られた地球ニュートリノフラックス量は、地球モデルと矛盾することは無かった。KamLAND では、低エネルギー太陽ニュートリノ検出に向けて蒸留法によりバックグラウンドの除去を行うが、その際、地球ニュートリノ検出のバックグラウンドも除去できるので、その精度が上がると思われる。

第4章 これからのカムランド

現在、KamLANDは低エネルギー太陽ニュートリノの観測にむけて液体シンチレーター中のバックグラウンドである ^{210}Pb 、 ^{85}Kr 、 ^{40}K を、蒸留法により除去している。

ここでは、KamLANDがターゲットにしている低エネルギー太陽ニュートリノそれぞれについての観測意義、検出原理を説明するとともに、バックグラウンドの除去方法である蒸留法について説明する。

4.1 低エネルギー太陽ニュートリノ

太陽ニュートリノに関しては3.1に示してある。今回KamLANDで、大きくバックグラウンドが除去された場合の太陽ニュートリノのエネルギー閾値を図4.1に示す。よって、新たに観測可能な太陽ニュートリノは ^7Be ニュートリノ(90%)、CNOニュートリノ、pepニュートリノとなる。以下に、各太陽ニュートリノの観測意義を示す。

4.1.1 観測意義

● ^7Be ニュートリノ(90%)

これまで、リアルタイム分離観測された太陽ニュートリノは ^8B ニュートリノのみであるが、これは太陽ニュートリノの全フラックスに対して約0.009%のフラックスの寄与しかない。一方で ^7Be ニュートリノは7%のフラックスがあり、標準太陽モデルの検証が可能。現在までの実験で得られたフラックス誤差は、40%(1 σ)であるので実験的な不定性の改善が見込まれる。

●pepニュートリノ

CNOニュートリノと同じエネルギー領域であるが、理論的な不定性が $\pm 2\%$ と少ないため、不定性の大きいCNOニュートリノの量を見積もるときに有効となる。

●CNOニュートリノ

CNOニュートリノは、今まで分離検出されることがない。標準太陽モデルによれば、CNOニュートリノが太陽ニュートリノ全体に占めるフラックスの割合は1.5%程度であるが、これを検出することで、実際に太陽内でCNO cycleが起こっていることを確認することができ、その寄与も確認できるかもしれない。

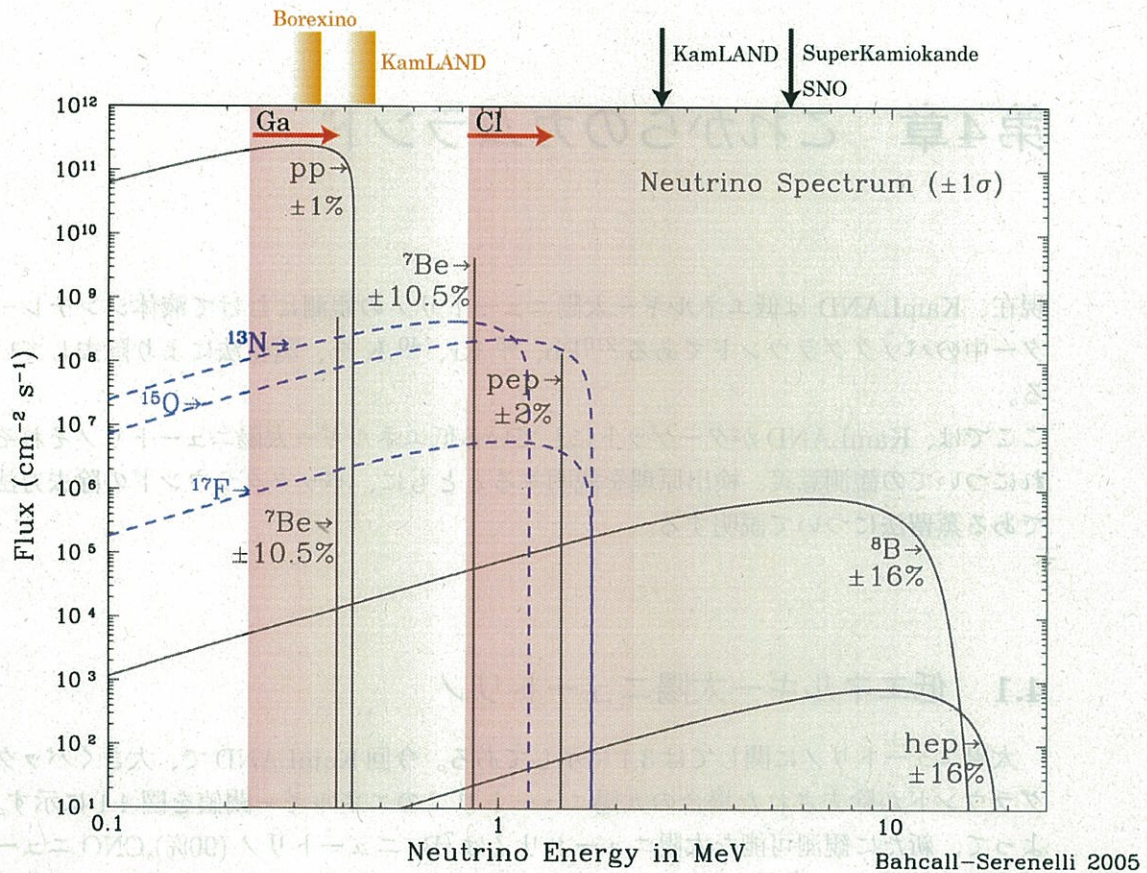


図 4.1: 各実験におけるエネルギー閾値と現在の KamLAND、および今回のバックグラウンド除去後に期待される KamLAND のエネルギー閾値。現在の KamLAND のエネルギーが黒矢印であり、今回のバックグラウンド除去後の閾値を橙色で示している。

4.2 検出原理

原子炉ニュートリノや地球ニュートリノが反電子ニュートリノであるのに対して、太陽ニュートリノは電子ニュートリノである。このため、反電子ニュートリノ検出の際に有用であった遅延同時計測ができない。太陽ニュートリノ検出には電子との弾性散乱を用いる。

$$\nu_l + e^- \leftrightarrow e^- + \nu_l (l = e, \mu, \tau) \quad (4.1)$$

これは、すべてのニュートリノに対応しているがミューニュートリノ、タウニュートリノは中性カレント反応のみであるのに対して、電子ニュートリノは荷電カレント反応、中性カレント反応、両方に対応している。

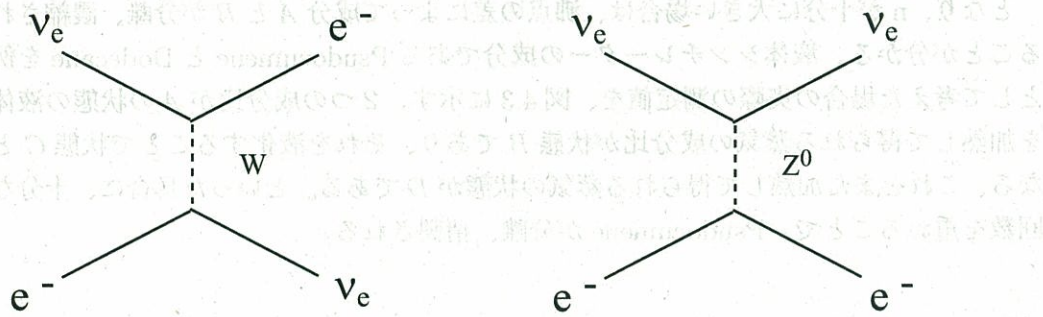


図 4.2: 太陽ニュートリノの反応

4.3 蒸留法

4.3.1 蒸留原理

蒸留とは物質を沸点まで熱して沸騰させ、出てきた蒸気を冷やして集める物質の分離、精製法である。今回の液体シンチレーターの純化に用いられる蒸留技術は、分別蒸留（分留）と真空蒸留である。それぞれについて以下に示す。

分別蒸留

分離したい混合物を過熱した場合、各成分の蒸気圧の和と蒸留装置内の圧力が一致すると沸騰が始まる。そのとき発生する蒸気の組成は Raoult の法則により、液面の成分組成と、その温度での各成分の蒸気圧から決まる。

A、B の 2 成分から成る液体の平衡状態を考える。A、B のその温度における蒸気圧を P_A 、 P_B 、液相におけるモル分率を x_A 、 x_B 、気相におけるモル分率を y_A, y_B とすると、Raoult の法則と Dalton の分圧の法則より、

$$(P_A + P_B)y_A = P_A x_A \quad (P_A + P_B)y_B = P_B x_B \quad (4.2)$$

となる。 $x_A + x_B = 1$ 、 $y_A + y_B = 1$ であるから、これを 4.2 に用いると、

$$\frac{y_A}{1 - y_A} = \frac{P_A}{P_B} \cdot \frac{x_A}{1 - x_A} \quad (4.3)$$

となる。ここで、 $\alpha \equiv P_A/P_B$ は比揮発度といい、成分 A が B より低沸点成分であるならば、 $\alpha > 1$ で、 $y_A > x_A$ となり、液層と平衡状態にある蒸気成分を液化すれば、元の液相のモル分率より大きくなる。この、気化、液化が n 回繰り返されたとき、液相と平衡状態にある蒸気層 A のモル分率を y_{An} とすれば、

$$\frac{y_{An}}{1 - y_{An}} = \alpha^n \cdot \frac{x_A}{1 - x_A} \quad (4.4)$$

となり、 n が十分に大きい場合は、沸点の差によって成分 A と B が分離、濃縮されることが分かる。液体シンチレーターの成分である Pseudocumene と Dodecane を例として考えた場合の実際の測定値を、図 4.3 に示す。2つの成分比が A の状態の液体を加熱して得られる蒸気の成分比が状態 B であり、それを液化することで状態 C となる、これをまた加熱して得られる蒸気の状態が D である。といった具合に、十分な回数を重ねることで、Pseudocumene が分離、精製される。

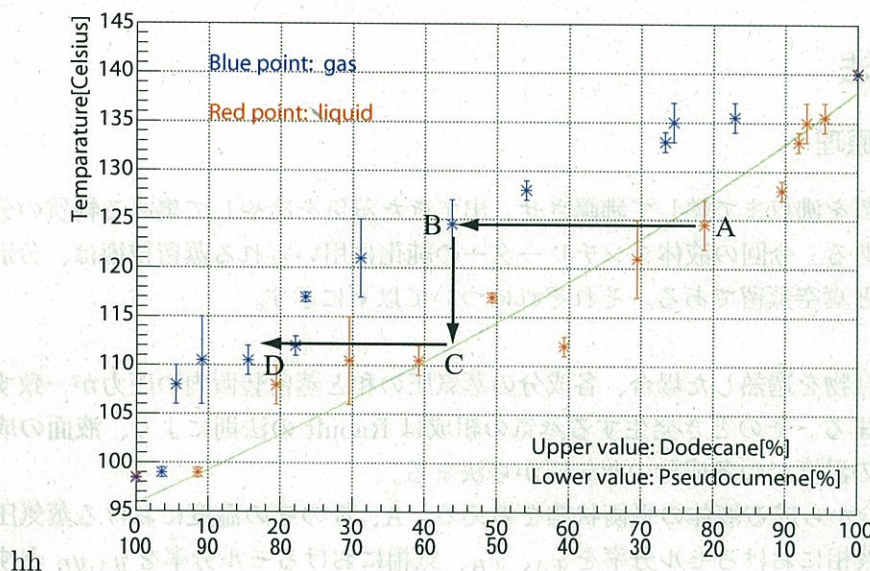


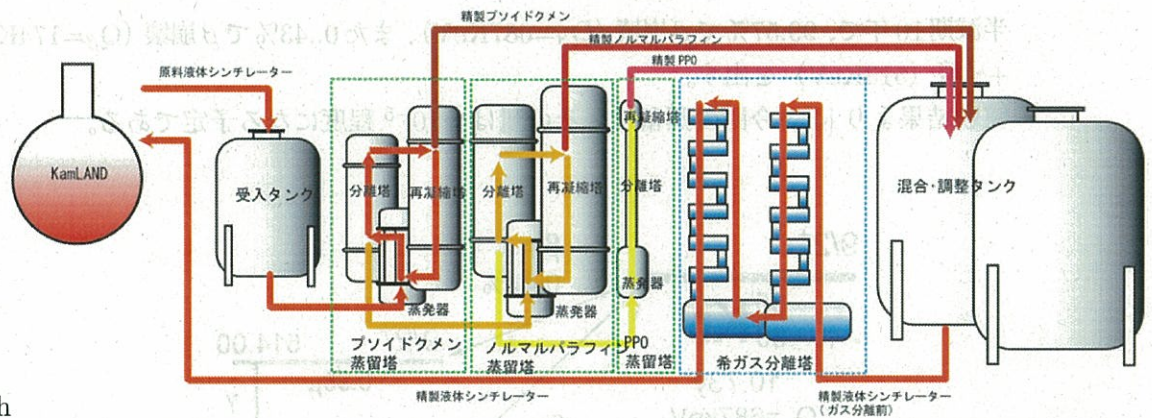
図 4.3: dodecane と pseudocumene の気液相関図 [4]

真空蒸留

実際の蒸留においては、沸点の高い物質を蒸留する場合、その熱、もしくは不純物が触媒となり分解、変質を促してしまう可能性がある。このような場合に、蒸留装置内を減圧し沸点を下げて蒸留する手法がとられる。これが、真空蒸留である。液体シンチレーター内に高沸点成分 (常圧で 360°C) である PPO が含まれていることや、本研究のメインテーマでもある液体シンチレーターが高温下で変質を起こす可能性もあることから、真空蒸留が採用されている。

4.3.2 KamLAND における蒸留装置

液体シンチレーターの各成分を分離精製するために蒸留装置は 3 塔から成っている。沸点に低い順に分離精製され、各塔での蒸留温度と圧力を 4.1 に示す。



hh

図 4.4: 蒸留装置：3成分から成る液体シンチレーターを成分ごとに分離精製する仕組みとなっている。精製された各成分は、混合調整タンク内で液体シンチレーターの成分比に調整され、KamLAND 内に送られる。

表 4.1: 液体シンチレーターの蒸留温度と圧力：各成分ごとに分離精製されていく。

	Temperature [°C]	Pressure [hPa]
Pseudocumene	60	20
Dodecane	105	25
PPO	190	6

4.3.3 蒸留によって除去可能なバックグラウンド

●²¹⁰Pb

KamLAND 建設時、液体シンチレーターの液入れの際に混入したラドンの娘核である ²¹⁰Pb。半減期が 22.3 年で ²¹⁰B²¹⁰Po、安定核 ²⁰⁶Pb へと崩壊していく過程でバックグラウンドとなる β線、α線を出す。

実験結果より [3]、今回の蒸留で、その量は ~10⁻⁵ 程度になる予定である。

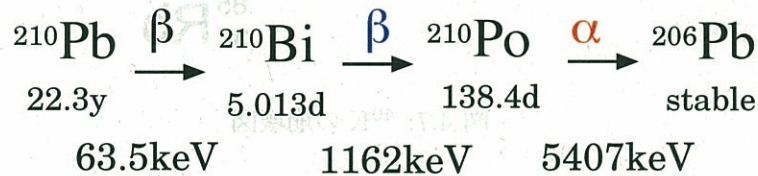


図 4.5: ²¹⁰Pb の崩壊系列

●⁸⁵Kr

半減期10年で、99.57%で β 崩壊 ($Q_{\beta}=687\text{KeV}$)、また0.43%で β 崩壊 ($Q_{\beta}=174\text{KeV}$) + γ 線 (513KeV) を出す。

実験結果より [4]、今回の蒸留で、その量は $\sim 10^{-5}$ 程度になる予定である。

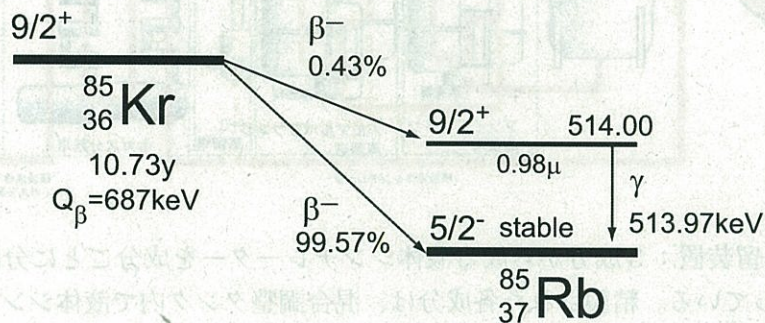


図 4.6: ^{85}Kr の崩壊図

● ^{40}K

β 崩壊、電子捕獲反応をする。 ^{40}K は主にバルーンや、バルーンの周りをネット状に覆っているケブラー紐、液体シンチレーター中に存在する。バルーン周辺のバックグラウンドは有効体積を5mにすることで¹バルーン周辺からのバックグラウンドを減らすことができる。

実験結果より [4]、今回の蒸留で、その量は $\sim 10^{-2}$ 程度になる予定である。

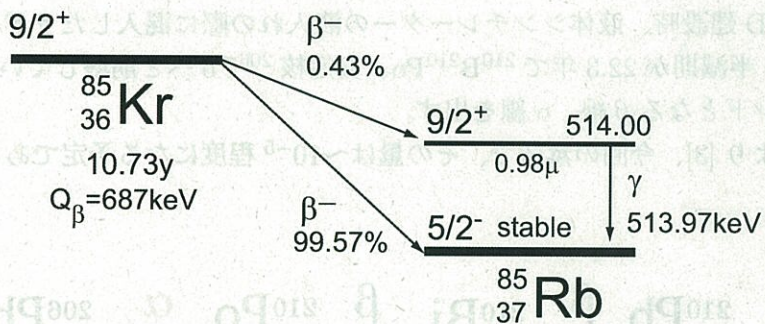


図 4.7: ^{40}K の崩壊図

蒸留によって ^{210}Pb 、 ^{85}Kr 、 ^{40}K が予定される除去効率を達成した場合、4.8に示すように、 ^7Be ニュートリノの観測が可能である。

¹液体シンチレーター層であるバルーンの半径は6.5mである。液体シンチレーター層の外側1.5mをカットして考えると有効体積5mとなり、バルーン周辺からのバックグラウンドを減らすことができる。

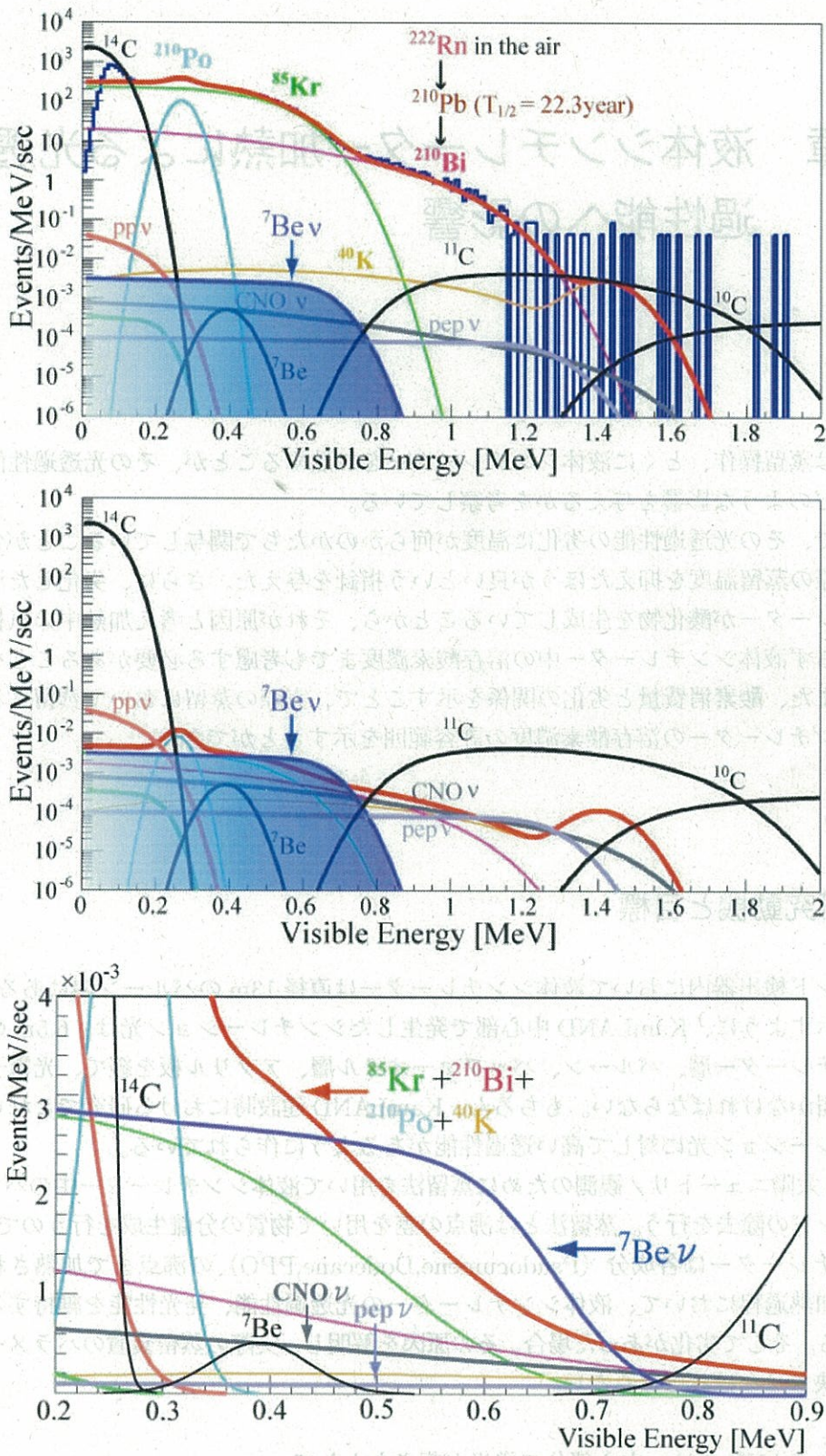


図 4.8: 上: 蒸留前のスペクトル。

中: 蒸留後のスペクトル。

下: 蒸留後のスペクトル (拡大図)。

第5章 液体シンチレーター加熱による光透過性能への影響

概要

この章では蒸留操作、とくに液体シンチレーターを加熱することが、その光透過性能に対してどのような影響を与えるかを考察している。

研究初期で、その光透過性能の劣化に温度が何らかのかたちで関与していることが分かり、実際の蒸留温度を抑えたほうが良いという指針を与えた。さらに、劣化した液体シンチレーターが酸化物を生成していることから、それが原因と考え加熱中の気相部のみならず液体シンチレーター中の溶存酸素濃度までも考慮する必要があることを示した。また、酸素消費量と劣化の関係を示すことで、実際の蒸留において蒸留される液体シンチレーターの溶存酸素濃度の許容範囲を示すことができた。

5.1 研究動機と目標

カムランド検出器内において液体シンチレーターは直径13mのバルーン内にある。図5.1に示すように、KamLAND中心部で発生したシンチレーション光は、6.5mの液体シンチレーター層、バルーン、バッファオイル層、アクリル板を経て、光電子増倍管に届かなければならない。もちろん、KamLAND建設時における研究でこれらはシンチレーション光に対して高い透過性能があるように作られている。

今回、 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測のために蒸留法を用いて液体シンチレーター中のバックグラウンドの除去を行う。蒸留法とは沸点の差を用いて物質の分離生成を行うので、液体シンチレーターは各成分(Pseudocumene, Dodecane, PPO)の沸点まで加熱される。この加熱過程において、液体シンチレーターの光透過性能、発光性能を維持する必要がある。そして劣化があった場合、その原因を解明し、実際の蒸留装置のパラメーターに反映させなければならない。

現在のKamLANDでは、中心部分で発光が起きたとして、17インチ光電子増倍管のみ使用したとして、 $300\text{p.e. (photo electron)}/\text{MeV}$ の光量が検出できる(17インチ光電子増倍管のみ使用)。このときのエネルギー分解能は、一定のエネルギーによって生じる光電子数がポアソン分布に従うとして、標準偏差 σ_E

に対して、 $\sigma_E/E = 5.7\%/\sqrt{E_{\text{visible}}(\text{MeV})}$ となる。¹
 このエネルギー分解能を維持することができる（液体シンチレーターの光透過性能を維持することができる）蒸留条件を示すことが、本実験の目的である。

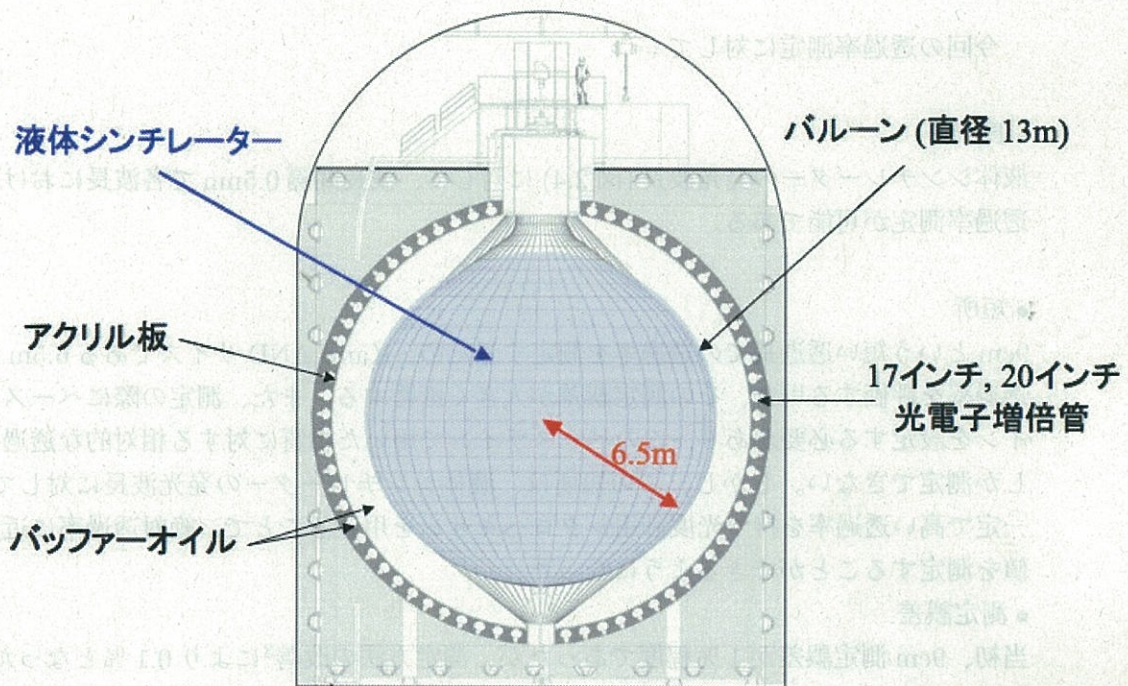


図 5.1: KamLAND 中心部で反応が起きた場合、シンチレーション光が検出されるまでの過程：液体シンチレーターを 6.5m 透過した後、バルーン、バッファーオイル、アクリル板を経て光電子増倍管で検出される。

5.2 発光性能の維持

本研究と並行に行われていた PPO 単体の蒸留において、光透過性能、発光性能が維持できるという結果を得た。[3] PPO は発光剤であるので、発光性能に関しては維持できると考える。よって、以降は光透過性能の維持の研究となる。

¹実際の KamLAND におけるエネルギー分解能は、その他の要素も関わってくるので $\sigma_E/E = 7.4\%/\sqrt{E_{\text{visible}}(\text{MeV})}$ となっている。

5.3 光透過性能の維持

5.3.1 分光光度計を用いた透過率測定

液体シンチレーターの光透過性能の測定には、U-2800 形分光光度計 (HITACHI) を用いた。9cm の透過率を 0.1% の精度で測定することができる装置である。²

今回の透過率測定に対して

●長所

液体シンチレーターの発光波長 (図 2.4) に対して、波長間隔 0.5nm で各波長における透過率測定が可能である。

●短所

9cm という短い透過長での透過率を測定するため、KamLAND サイズである 6.5m の透過率を評価する場合、その測定誤差が大きく影響する。また、測定の際にベースラインを設定する必要があり、このベースラインで用いた物質に対する相対的な透過率しか測定できない。しかし、この短所は、液体シンチレーターの発光波長に対して、一定で高い透過率を持つ光度計用シクロヘキサンを用いることで、絶対透過率に近い値を測定することができるようになった。

●測定誤差

当初、9cm 測定誤差が 1% 程度であったが、測定方法の改善³により 0.1% となった。この改善によって KamLAND サイズである 6.5m での誤差が 50% から 7% 程度へと改善された。(300p.e/MeV の光量における 1MeV のイベントでのエネルギー分解能の誤差が、 $5.7^{+2.4}_{-1.0}\%$ から $5.7^{+0.3}_{-0.1}\%$ へと改善された)

5.3.2 評価方法

測定した 9cm の透過率をもとに、KamLAND 中心部で反応が起こった場合の透過長である 6.5m での透過率を考え、PMT で検出される光子数の減少率を考える。以下に手順を示す。手順番号は、図 5.2 にある番号を示す。

- 1 : 9cm の透過率を測定を行い、6.5m の透過率に換算する。
- 2 : 液体シンチレーターの発光スペクトルの重みを考慮する。
- 3 : PMT の量子効率の重みを考慮する。

²付録 A に測定装置、測定手順、測定誤差、などを示す。

³付録 A に改善過程を示す。

4: 得られた積算値の変化率が、検出される光子数の変化率を示している。

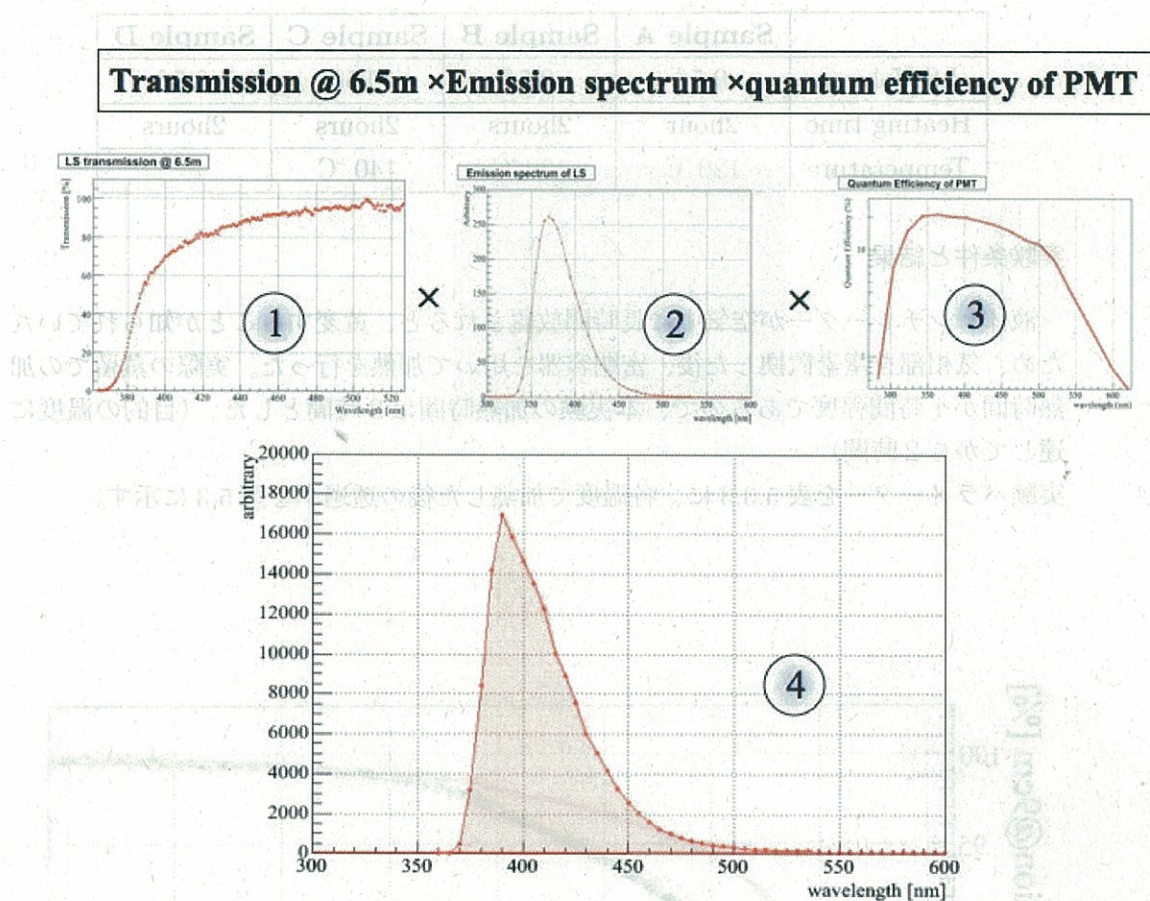


図 5.2: 光透過性能の評価方法。

- 1: 液体シンチレーターの 6.5m での透過率。
- 2: 液体シンチレーターの発光スペクトル。
- 3: PMT の量子効率。
- 4: 1、2、3 を掛け合わせたもの。

5.3.3 透過性能の劣化の温度依存性

蒸留法とは、沸点の差を利用して物質を分離精製する手法である。⁴蒸留装置内の圧力をどの程度に減圧するかで、蒸留温度を決めることができるので、液体シンチレーターの光透過性能の劣化が温度依存性を持つか調べる必要がある。結果によっては蒸留温度を決定する際、指針を与えることができる。

ここでは、加熱温度と光透過性能の劣化との関係を示す。

⁴蒸留法の詳細は 4.3 章に示す。

表 5.1: 実験パラメーターの比較

	Sample A	Sample B	Sample C	Sample D
LS Volume	0.5ℓ	0.5ℓ	0.5ℓ	0.5ℓ
Heating time	2hour	2hours	2hours	2hours
Temperature	120 °C	130 °C	140 °C	160 °C

実験条件と結果

液体シンチレーターが空気中に長時間放置されると、黄変することが知られていたため、気相部を窒素置換した後、密閉容器を用いて加熱を行った。実際の蒸留での加熱時間が1時間程度であるので、本実験の加熱時間は2時間とした。(目的の温度に達してから2時間)

実験パラメーターを表 5.3.3 に、各温度で加熱した後の透過率を図 5.3 に示す。

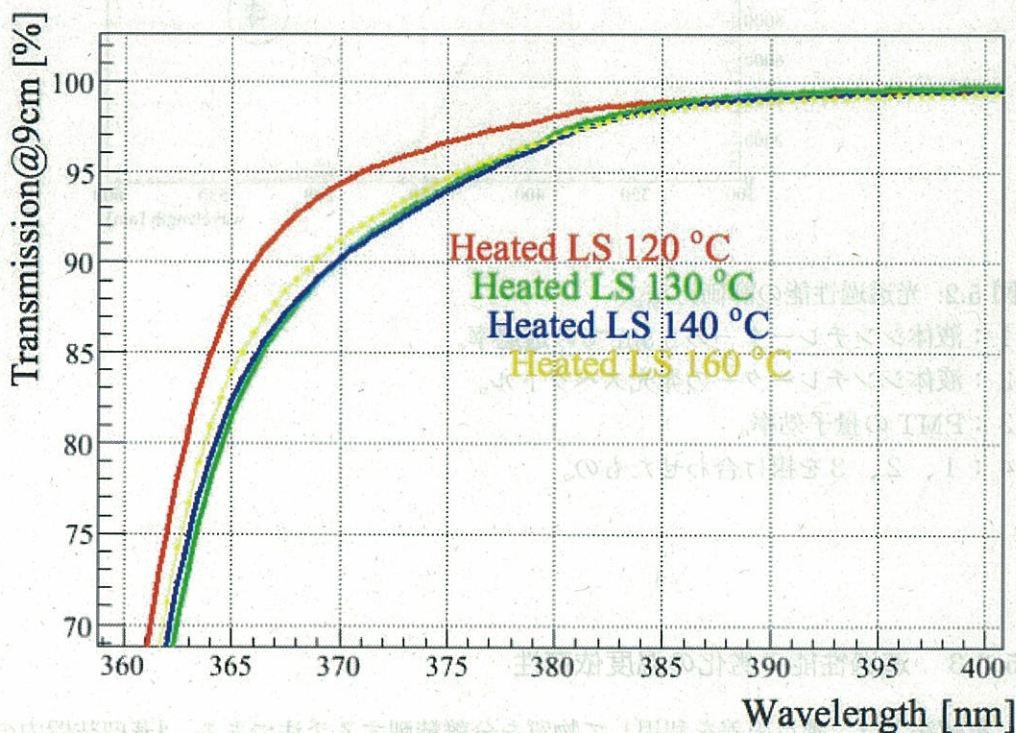


図 5.3: 気相部を窒素置換された密閉容器内で、それぞれの温度で2時間加熱した後の液体シンチレーターの9 cmの透過率。温度が130 °C以上で同程度の劣化が見られる。

この結果、温度が何らかのかたちで液体シンチレーターの光透過性能の劣化に影響

を与えることが分かったので、実際の蒸留温度はできるだけ低い温度で行うこととなった。その温度は Psudocumene:60 °C、Dodecane:105 °C、PPO:190 °Cとなった。⁵

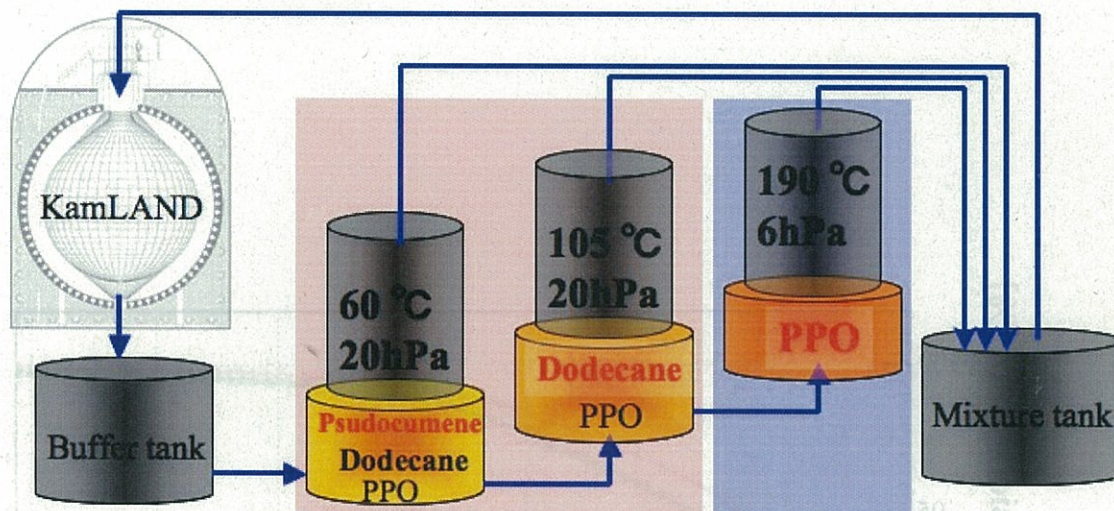


図 5.4: 仮に決定した蒸留温度とこれからの方針。

温度依存性の結果等より、蒸留温度を仮決定した。液体シンチレーターの各成分を分離精製するために（赤字の成分）、3塔から成っている。

青の領域：PPO 単体での維持が確認されているので、性能維持が確認されている。

赤の領域：本研究で性能の維持を確認する領域。

しかし、図 5.5 に示すように、120 °C で 2 時間加熱した後の透過率でも、波長によって 1% 程度の劣化が見られる。(KamLAND 中心部で反応が起こった場合の透過長である 6.5m に換算すると 50% の劣化となる。)

よって、目標の達成のために更なる考察を続けた。

5.4 光透過性能劣化の原因

光透過性能の劣化の原因を探るために、加熱して劣化の起こった液体シンチレーターをガスクロマトグラフィーを用いて測定した。その結果、通常为非加熱の液体シンチレーターにおいては見られないピークが検出された。分析の結果、酸化物であることが判明した (図 5.6)。

加熱中に微量の酸素と反応し酸化物が生成して、光透過性能の劣化の原因になっていると考えられる。

⁵光透過性能の劣化だけでなく、その他の条件も温度決定に効いてくる [5]

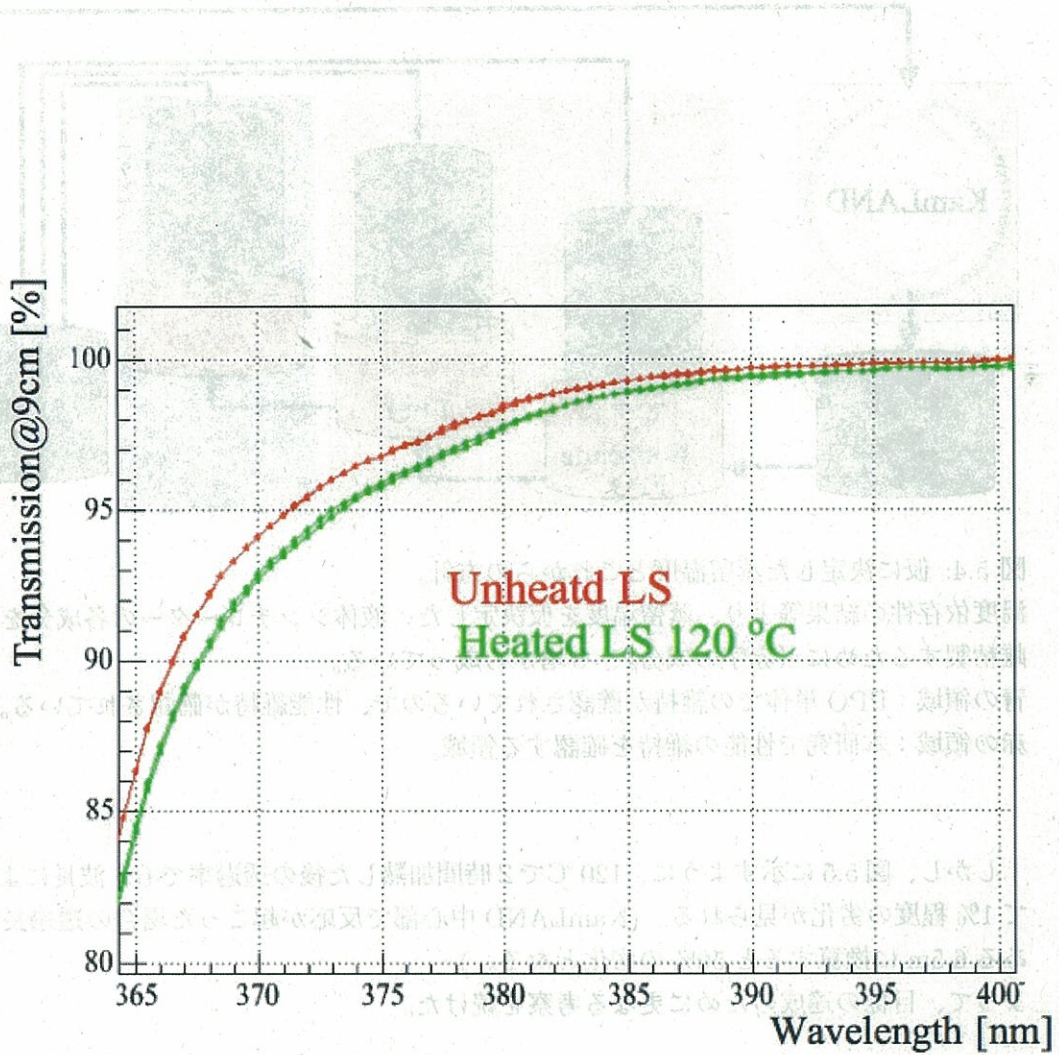


図 5.5: 波長によっては1%程度の劣化が見られる。KamLANDサイズである6.5mに換算すると、50%もの劣化となる。

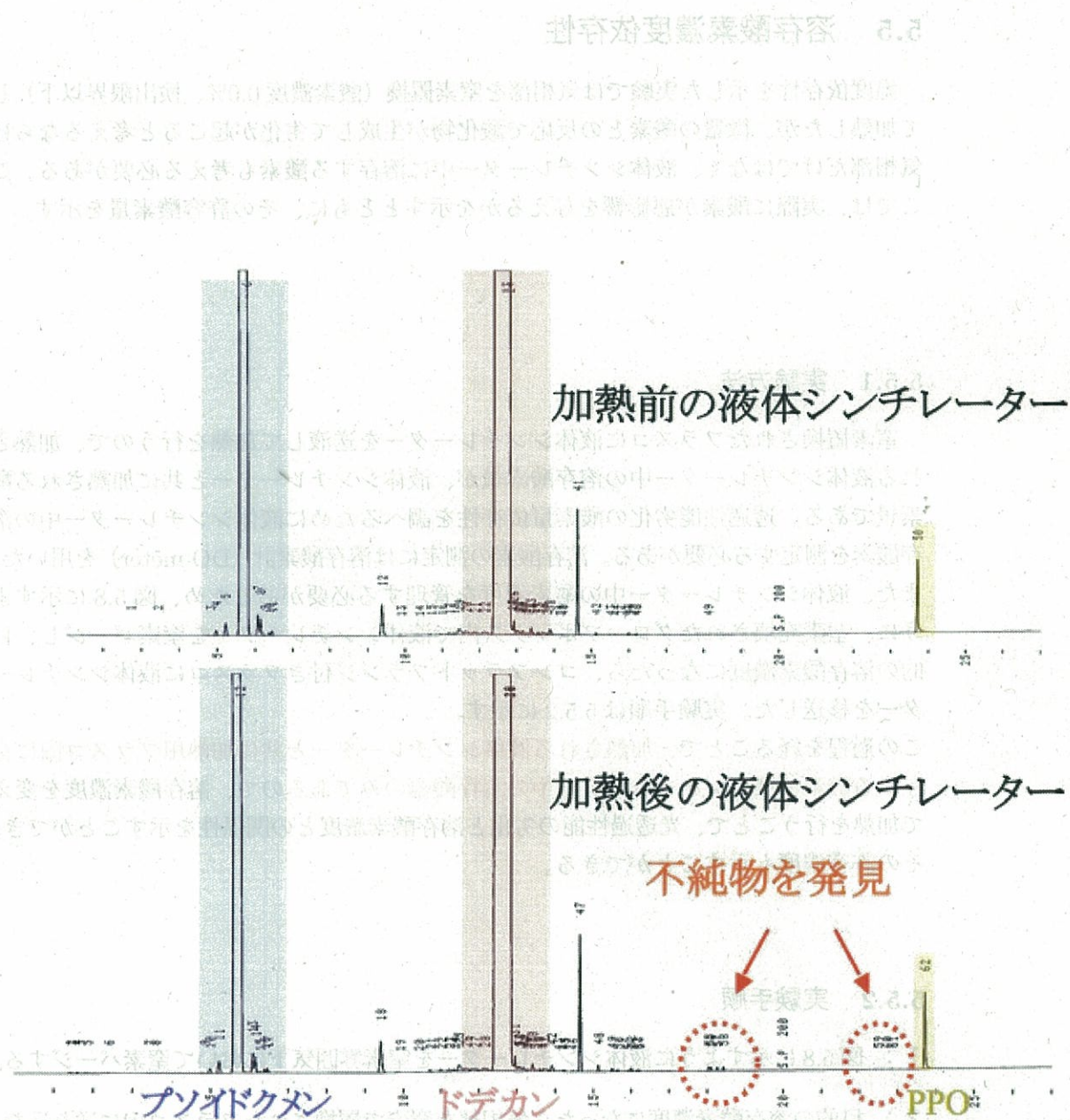


図 5.6: 加熱前後の液体シンチレーターのガスクロマトグラフィーの結果。
 加熱後の液体シンチレーター中の不純物は分析の結果、酸化物（ドデカノール、ドデカノン）であることが分かった。

5.5 溶存酸素濃度依存性

温度依存性を示した実験では気相部を窒素置換（酸素濃度 0.0%、検出限界以下）して加熱したが、微量の酸素との反応で酸化物が生成して劣化が起これると考えるならば気相部だけではなく、液体シンチレーター中に溶存する酸素も考える必要がある。ここでは、実際に酸素が悪影響を与えるかを示すとともに、その許容酸素量を示す。

5.5.1 実験方法

窒素置換されたフラスコに液体シンチレーターを送液して加熱を行うので、加熱される液体シンチレーター中の溶存酸素量が、液体シンチレーターと共に加熱される酸素量である。透過性能劣化の酸素量依存性を調べるために液体シンチレーター中の溶存酸素を測定する必要がある。溶存酸素の測定には溶存酸素計（DO meter）を用いた。また、液体シンチレーター中の酸素濃度を管理する必要があるため、図 5.8 に示すように、窒素充填されたグローブボックス内で液体シンチレーターを窒素パージし、目的の溶存酸素濃度になったら、コンフラットフランジ付きフラスコに液体シンチレーターを移送した。実験手順は 5.5.2 に示す。

この過程を経ることで、**加熱される液体シンチレーターと共に加熱用フラスコ内に存在する酸素は液体シンチレーター中の溶存酸素のみである**ので、溶存酸素濃度を変えて加熱を行うことで、光透過性能の劣化と溶存酸素濃度との関係性を示すことができ、その許容濃度も示すことができる。

5.5.2 実験手順

- 1： 図 5.8 に示すように液体シンチレーターを窒素雰囲気下において窒素パージする。
- 2： 目的の溶存酸素濃度になったら気相部を窒素で置換されたフラスコ内に送り込む。
- 3： オイルバスを用いて加熱。加熱時間は 2 時間。加熱温度は、110 °C、120 °C とした。
- 4： 加熱後、液体シンチレーターの温度が室温になったらフラスコからグローブボックス内に送り込み、溶存酸素濃度を計る。（後述する、酸素消費量を見積もるため）

加熱温度を 2 時間としたのは、実際の蒸留において液体シンチレーターが加熱される時間が 1 時間程度だからである。また、加熱温度を 110 °C、120 °C としたのは、液体シンチレーターの最高沸点成分である PPO 単体では光透過性能、発光性能が維持できることが示されていて、かつ 2 番目の高沸点成分である Dodecane の蒸留温度が



図 5.7: 溶存酸素濃度計：センサー部分がテフロン製で液体シンチレーターに対して耐性がある。

測定誤差： $\pm 0.5 \text{ ppm}$

105 °Cであるからである。

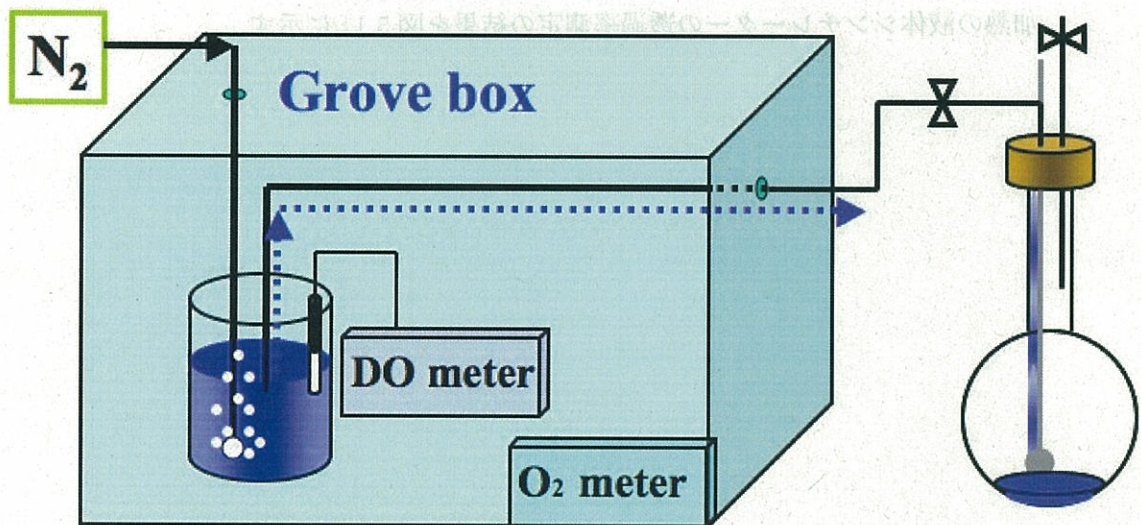


図 5.8: 窒素充填されたグローブボックス内で溶存酸素が分かっている液体シンチレーターを加熱用フラスコに送り込む。

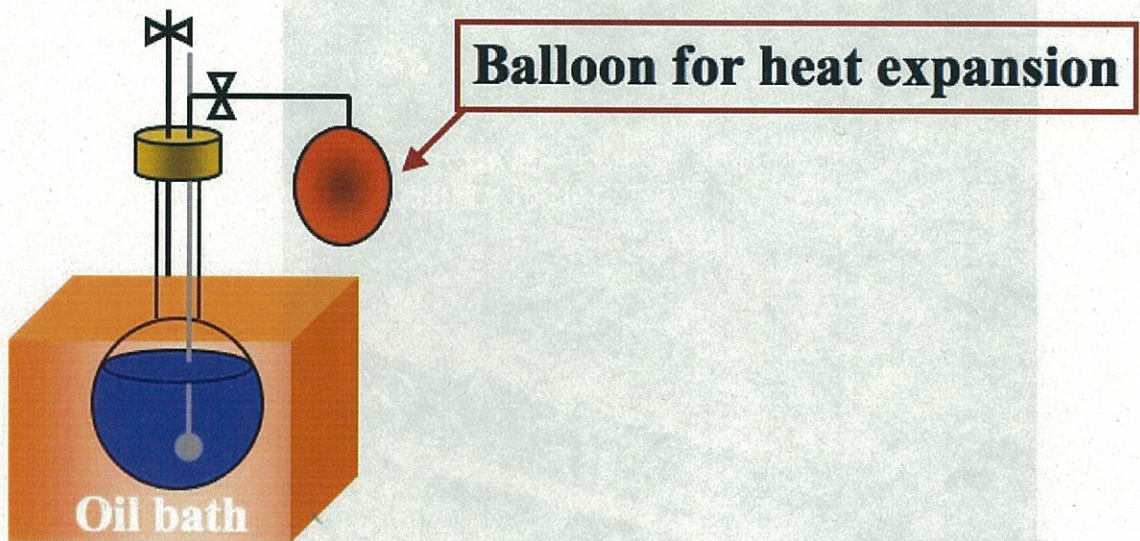


図 5.9: 加熱用装置: 局部過加熱を防ぐため、温度管理されたオイルバスに浸して加熱を行う。安全のため、熱膨張による気相部の逃げ場として、ゴム風船が取り付けられている。

5.5.3 結果

図 5.10 より、光透過性能の劣化が蒸留される液体シンチレーターに含まれる溶存酸素濃度、つまり酸素量に依存していることがわかり、その濃度が 15ppm 以下であれば、光透過性能が維持できることが分かった。

実際に、120℃ 2時間、溶存酸素濃度 15ppm で加熱された液体シンチレーターと非加熱の液体シンチレーターの透過率測定の結果を図 5.11 に示す。

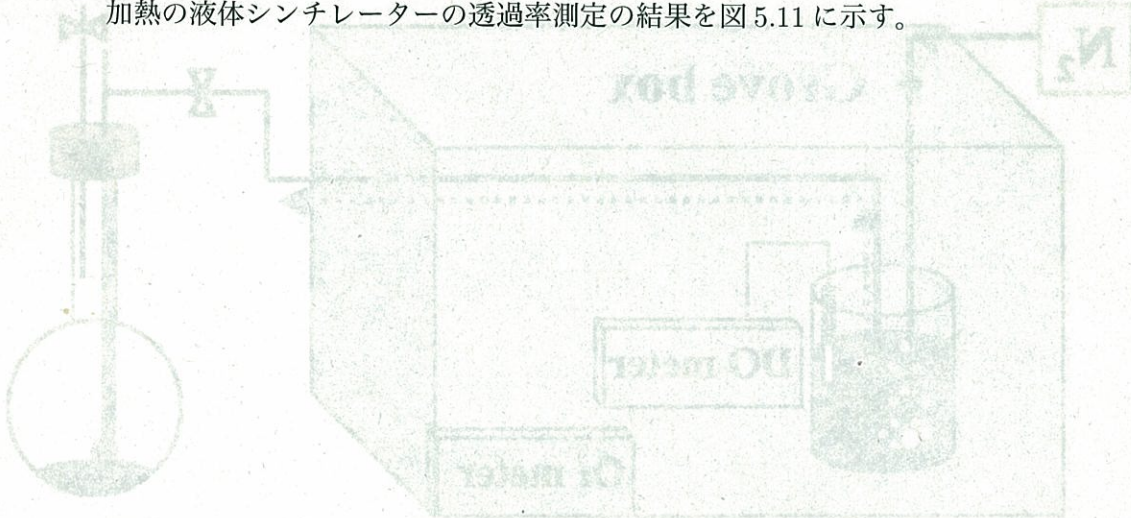


図 5.10: 液体シンチレーターに含まれる溶存酸素濃度による光透過性能の劣化を抑制するための装置。液体シンチレーターは、120℃ 2時間、溶存酸素濃度 15ppm で加熱された液体シンチレーターと非加熱の液体シンチレーターの透過率測定の結果を図 5.11 に示す。

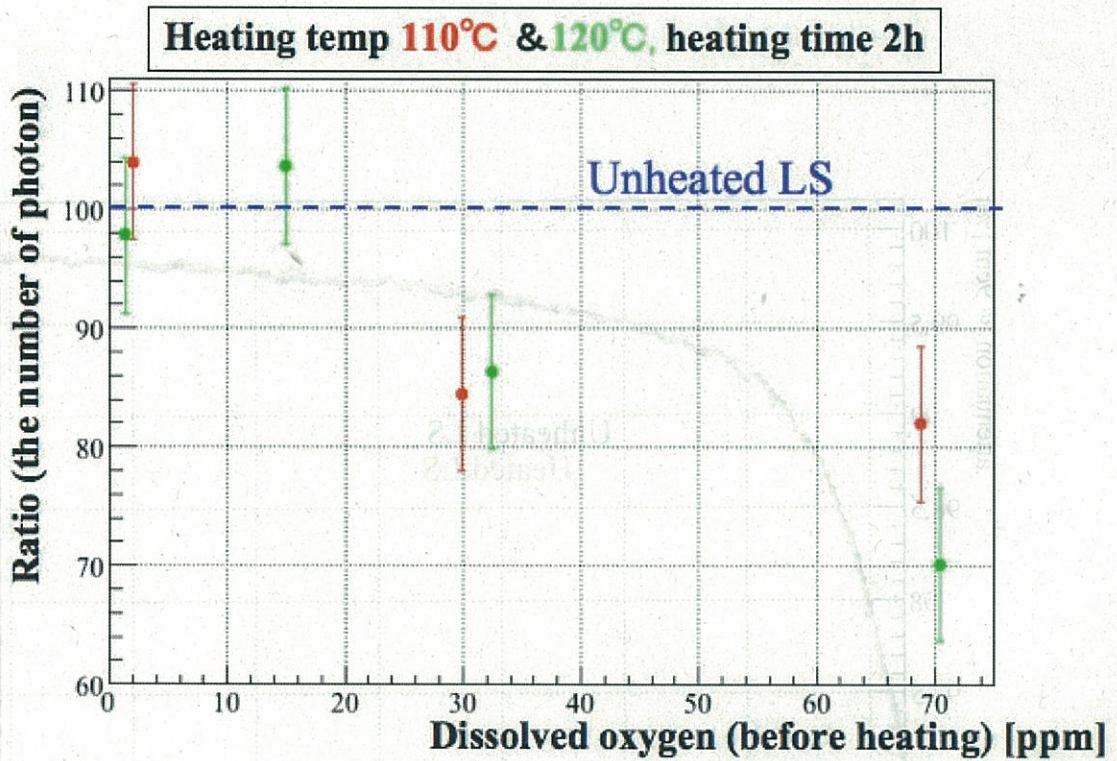


図 5.10: 光透過性能と加熱前に測定した液体シンチレーターの溶存酸素濃度の関係。縦軸は、5.3.2で示した、検出される光子数の減少率を示している。横軸は、加熱前に測定した溶存酸素濃度である。

赤：液体シンチレーターを 110°C、2 時間加熱

緑：液体シンチレーターを 120°C、2 時間加熱

液体シンチレーターと共に加熱された酸素は、液体シンチレーター中の溶存酸素のみであるので、加熱される液体シンチレーターに含まれる溶存酸素濃度の許容範囲を知ることができる。この結果から、実際に蒸留される液体シンチレーターに含まれる溶存酸素濃度の許容範囲は 15ppm 以下でなければならないことが示された。

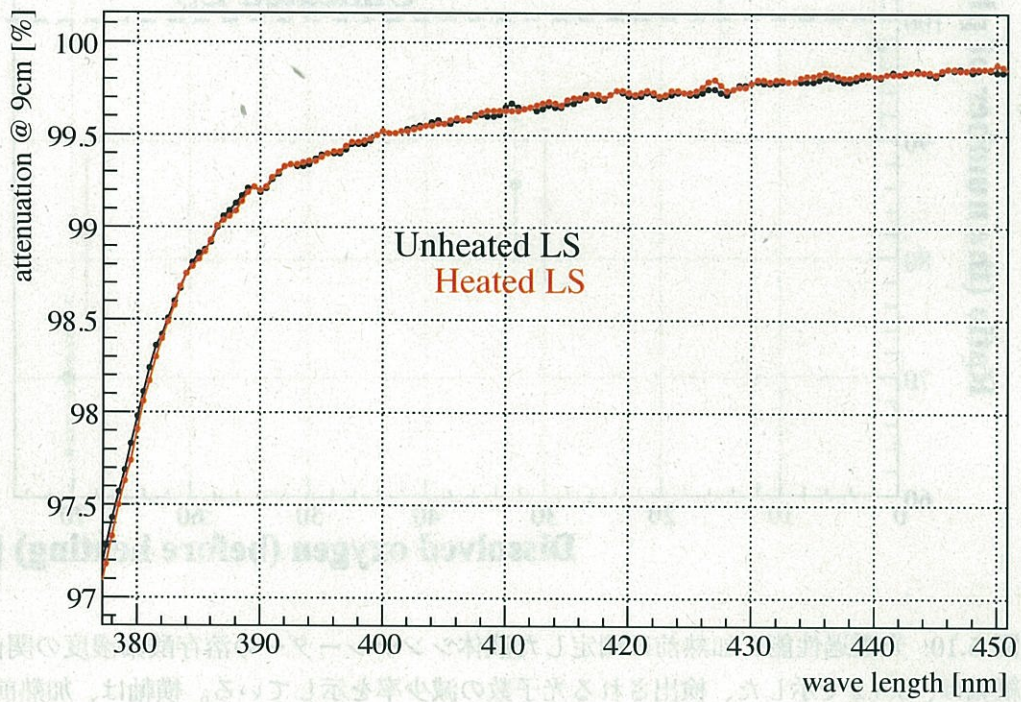


図 5.11: 溶存酸素濃度 15ppm の液体シンチレーターを 120℃で 2 時間加熱した場合の光透過率の変化。全波長において劣化は見られない。

黒：加熱前。

赤：加熱後。

5.5.4 溶存酸素消費量依存性

すでに溶存酸素濃度と光透過性能の劣化の関係については述べた。ここでは、液体シンチレーターの加熱下における光透過性能の劣化と酸素の関係をより強く示すために5.5.2で示した実験手順2、4で測定した溶存酸素濃度をもとに、加熱中に失われた酸素量を見積もる。微量の酸素が液体シンチレーターと反応し、光透過性能の劣化につながる物質を作り出していると考えたからである。酸素消費量の見積もりは、Bに示す。

結果を、図5.12に示す。エラーは大きいですが酸素と反応を起こすことで光透過性能の劣化が起きていることが示された。

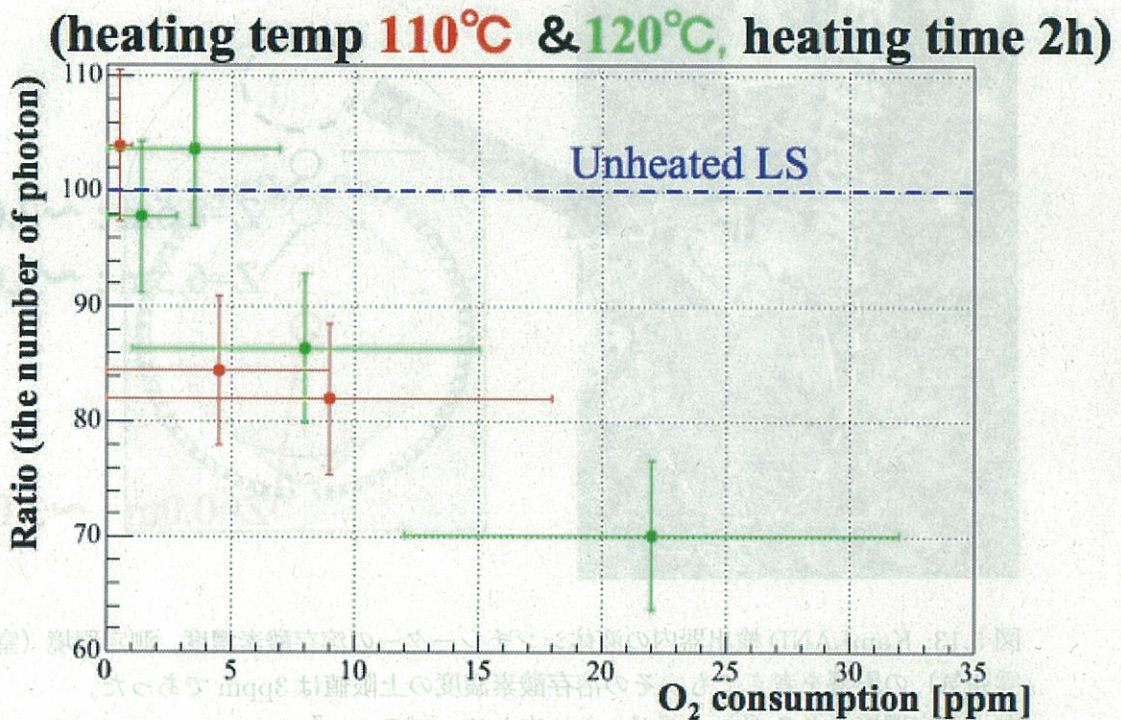


図 5.12: 液体シンチレーターの加熱中の酸素消費量と光透過性能の劣化の関係を示す。
 赤: 液体シンチレーターを 110°C、2 時間加熱
 緑: 液体シンチレーターを 120°C、2 時間加熱
 エラーは大きいものの、酸素消費とともに、光透過性能が劣化していることが分かる。

5.6 KamLAND 検出器内の液体シンチレーターの溶存酸素濃度

本実験で、酸素によって液体シンチレーターの透過性能に劣化が起こることが分かった。このため、実際の蒸留装置はもちろん窒素置換されている必要があるが、KamLAND 本体の（これから蒸留される液体シンチレーターの）溶存酸素を測定する必要がある。もし高ければ、蒸留装置に液体シンチレーターを送り込む前に窒素パージをして酸素を除去する必要がある。

そこで、実際に KamLAND 内の液体シンチレーターをサンプリングして、その溶存酸素濃度を測定をした。その結果、KamLAND 内に液体シンチレーターに含まれる溶存酸素濃度は 3ppm 以下であることがわかったので（図 5.13）、液体シンチレーターを蒸留する際に光透過性能は維持できると考える。

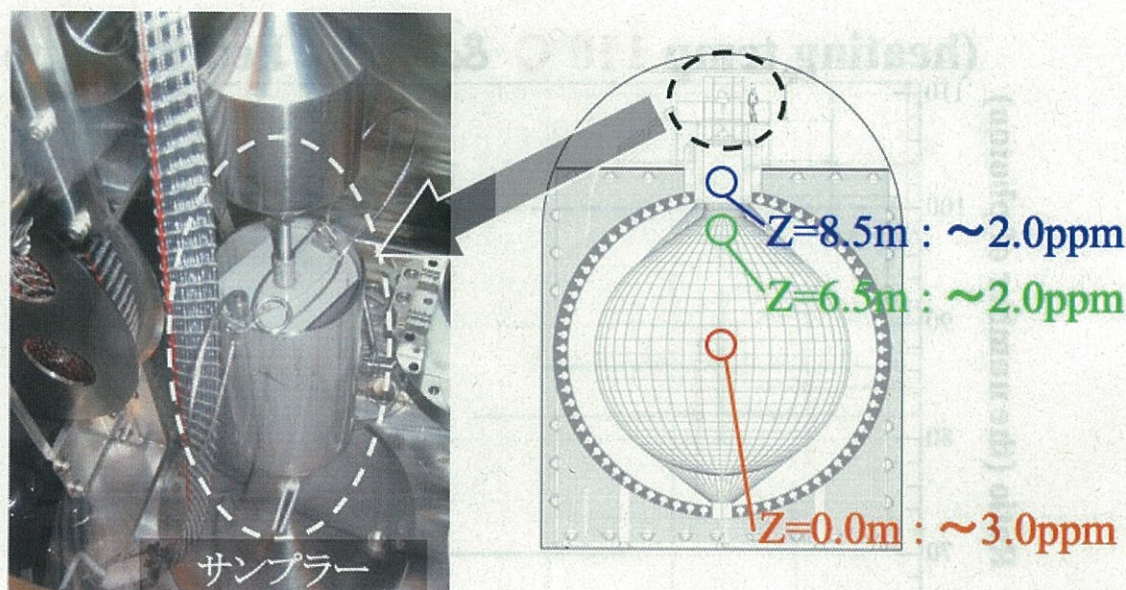


図 5.13: KamLAND 検出器内の液体シンチレーターの溶存酸素濃度。測定環境（窒素雰囲気）の影響を考慮しても、その溶存酸素濃度の上限値は 3ppm であった。

左：測定環境であるグローブボックス内とサンプラー。⁷

右：KamLAND 内のそれぞれの高さにおける溶存酸素濃度。

5.7 まとめ

本研究において分かったことを以下にまとめる。

1：液体シンチレーターの光透過性能の劣化と、その加熱温度には相関がある。

- 2：劣化した液体シンチレーター内に酸化物が生成していたことから、原因は酸素との加熱によって生成した酸化物であると考えられる。
- 3：加熱中に消費した酸素量と劣化の関係により、光透過性能維持のための酸素許容量は15ppm以下である。
- 4：実際に蒸留される液体シンチレーターの溶存酸素濃度は3ppm以下である。

これらより、実際の蒸留の加熱過程において蒸留装置が十分に窒素パージされていてリークがない場合、加熱による光透過性能の劣化は起こらないと言える。また、原因が酸素との反応によって生成した酸化物であるから、蒸留温度は高くでも問題ない可能性があるが、温度依存性の結果より、低温での加熱のほうが劣化が少ない。可能性としては、劣化速度が遅くなることが考えられるため、微量のリークがあった場合を考慮して蒸留温度を低くしておいても良いと考えられる。

題目ごとの要約 1.0

この要約は、液体シンチレーターの劣化原因を調査し、その結果をまとめたものである。劣化の原因は、加熱による酸素の消費と、容器からの酸素のリークによるものである。劣化を防ぐためには、加熱中に酸素の消費量を抑制し、容器からの酸素のリークを防止することが必要である。また、劣化を防ぐためには、加熱温度を低く設定することが効果的である。

表紙裏 2.0

この表紙裏は、液体シンチレーターの劣化原因を調査し、その結果をまとめたものである。劣化の原因は、加熱による酸素の消費と、容器からの酸素のリークによるものである。劣化を防ぐためには、加熱中に酸素の消費量を抑制し、容器からの酸素のリークを防止することが必要である。また、劣化を防ぐためには、加熱温度を低く設定することが効果的である。

この表紙裏は、液体シンチレーターの劣化原因を調査し、その結果をまとめたものである。劣化の原因は、加熱による酸素の消費と、容器からの酸素のリークによるものである。劣化を防ぐためには、加熱中に酸素の消費量を抑制し、容器からの酸素のリークを防止することが必要である。また、劣化を防ぐためには、加熱温度を低く設定することが効果的である。

第6章 Alガスケットが液体シンチレーターの光透過性能、および発光量に与える影響

概要

この章では、蒸留装置に使用される Al ガスケット¹が液体シンチレーターに対して耐性を持つかどうか、具体的には、液体シンチレーターの光透過性能、発光量に与える影響を考察している。

本研究では、実際の蒸留装置での影響に対する 180 倍の加速実験を行った。その結果、実際の蒸留装置での影響は、ほぼ無視できるという結果を得た。

6.1 研究動機と目標

実際の蒸留装置本体はステンレス製²であるが、図 6.1 に示すように蒸留装置には、多数のガスケットが使われる。液体シンチレーターとの接触面積はステンレスの次に大きくなる。そのため液体シンチレーターの光透過性能、および発光性能に対してガスケットが与える影響を調べる必要がある。当初、候補となっていたガスケットは Cu ガスケットであったが、共同研究者の実験により液体シンチレーター中に Cu ガスケットを入れ加熱すると光透過性能に劣化が見られたため、他の材質を採ることとなった。そこで次候補である Al ガスケットでの影響を調べることとなった。³

6.2 実験方法

実際の蒸留装置において、液体シンチレーターが Al ガスケットと接触するときの温度は蒸留装置の各部分で異なるが、液体シンチレーターの大部分を占める Psudocumene と Dodecane の蒸留温度はそれぞれ 60 °C、105 °C である。したがって、110 °C の液体シンチレーターに Al ガスケットを浸し、一定時間経過したあとの光透過性能と発光性能を調べれば、その影響を調べることができると考えた。加熱下における液体シン

¹配管のつなぎめに使用して、リークを無くすパーツ。一般的に Cu や Al などの軟らかい金属が用いられる。

²ステンレスに関しては光透過性能、発光性能にたいして影響がないことが確認されている。

³Au ガスケットを用いた実験では光透過性能、発光性能に影響が無いことが確認されたが、財政的な理由により別の材質を採ることとなった。

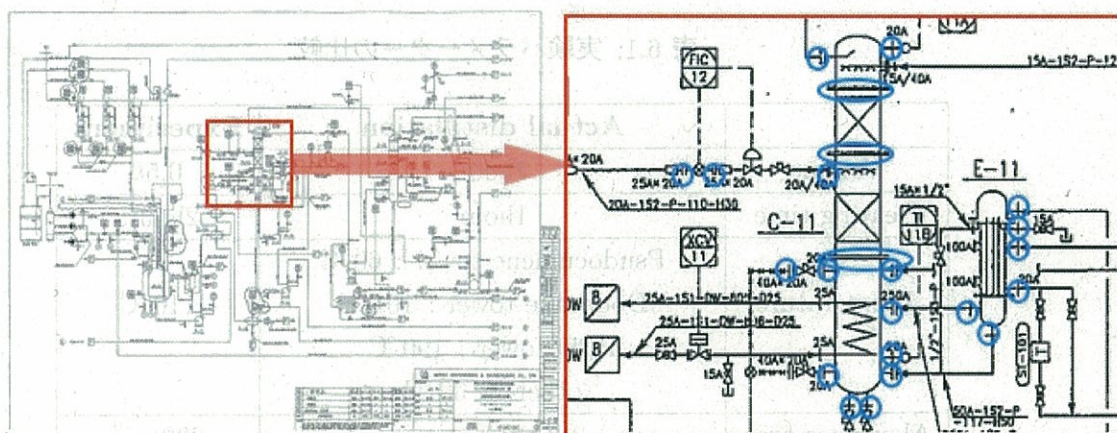


図 6.1: 左図は蒸留装置の Psudocumene 蒸留塔のみの図面であり、右図は赤で囲まれた部分を拡大している。青丸で囲まれた部分に Al ガスケットが存在する。

チレーターの透過性能、発光性能は酸素との依存性が示されているので⁴Al ガスケットのみの影響を調べるために、本実験は気相部の酸素濃度を 0.0% (検出限界以下)、液体シンチレーターの溶存酸素濃度を 1ppm 以下にして行った。実験装置、およびパラメーターを図 6.2 に示す。

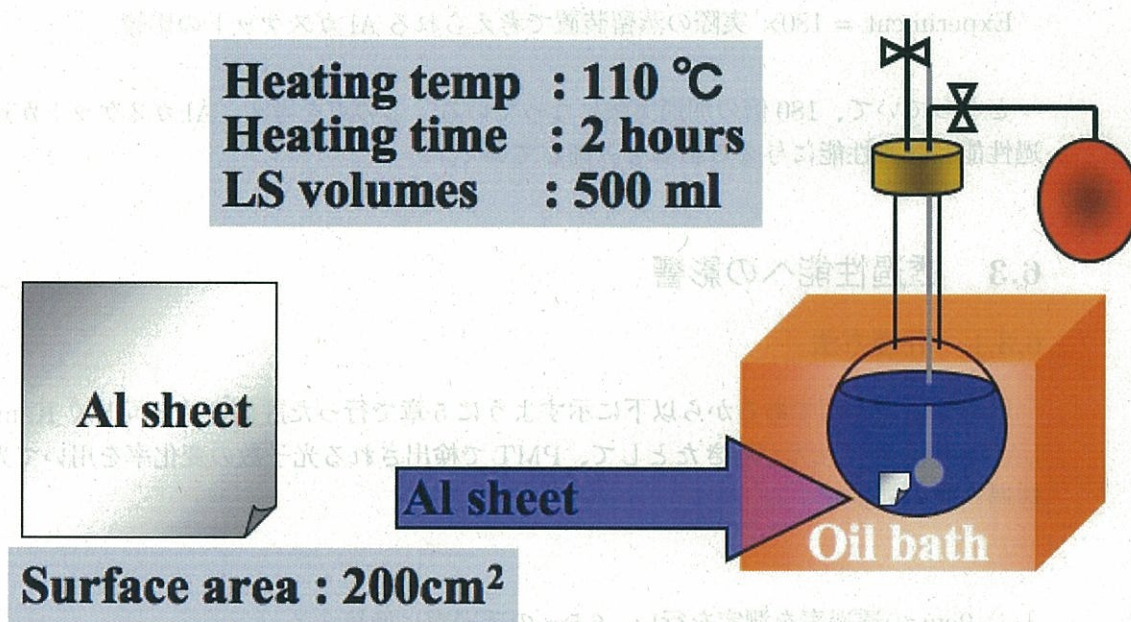


図 6.2: アルミ板 (実際の Al ガスケットに加工される) を液体シンチレーターとともに加熱用フラスコに入れ加熱する。

⁴透過性能に関しては、本論文の 5 章で示されている。また、発光性能に関しては [3] で示されている。

表 6.1: 実験パラメーターの比較

	Actual distillation	Experiment
Volume	1500ℓ	0.5ℓ
Heating time	1hour	2hours
Temperature	Psudocumene tower : 60 °C Dodecane tower : 105 °C PPO tower : 190 °C other : ; 30 °C	110 °C
Al surface area	Total 6700cm² (Psudocumene tower : 1480cm ²) (Dodecane tower : 1540cm ²) (PPO tower : 390cm ²) (Other : 3290cm ²)	200cm ²

また、実際の蒸留装置との比較のために、6.1 に実際の蒸留パラメーターと、今回の実験 (experiment) のパラメーターを示す。実際の蒸留と今回の実験での、液体シンチレーターが接触する Al ガスケットの表面積と液体シンチレーターの比、および接触時間を比較すると、

Experiment = 180× 実際の蒸留装置で考えられる Al ガスケットの影響

となっていて、180 倍の加速実験になっている。この点を考え、Al ガスケットが透過性能、発光性能に与える影響を評価していく。

6.3 透過性能への影響

6.3.1 評価方法

透過性能の評価であるから以下に示すように 5 章で行った評価方法と同じく KamLAND 中心部で発光が起きたとして、PMT で検出される光子数の変化率を用いて光透過性能の評価をする。

- 1 : 9cm の透過率を測定を行い、6.5m の透過率に換算する。
- 2 : 液体シンチレーターの発光スペクトルの重みを考慮する。
- 3 : PMT の量子効率の重みを考慮する。
- 4 : 得られた積算値の変化率が、検出される光子数の変化率を示している。

6.3.2 結果

図 6.3 に示すように、110 °C、2 時間の加熱において Al ガスケットとともに加熱した液体シンチレーターに透過性能の劣化はほとんど見られなかった。実際は 180 倍の加速実験となっているので、実際の蒸留を 180 回行った場合の影響となっている。同様に、6.4 に示すように検出光子数への影響も誤差の範囲内で、劣化は見られない。

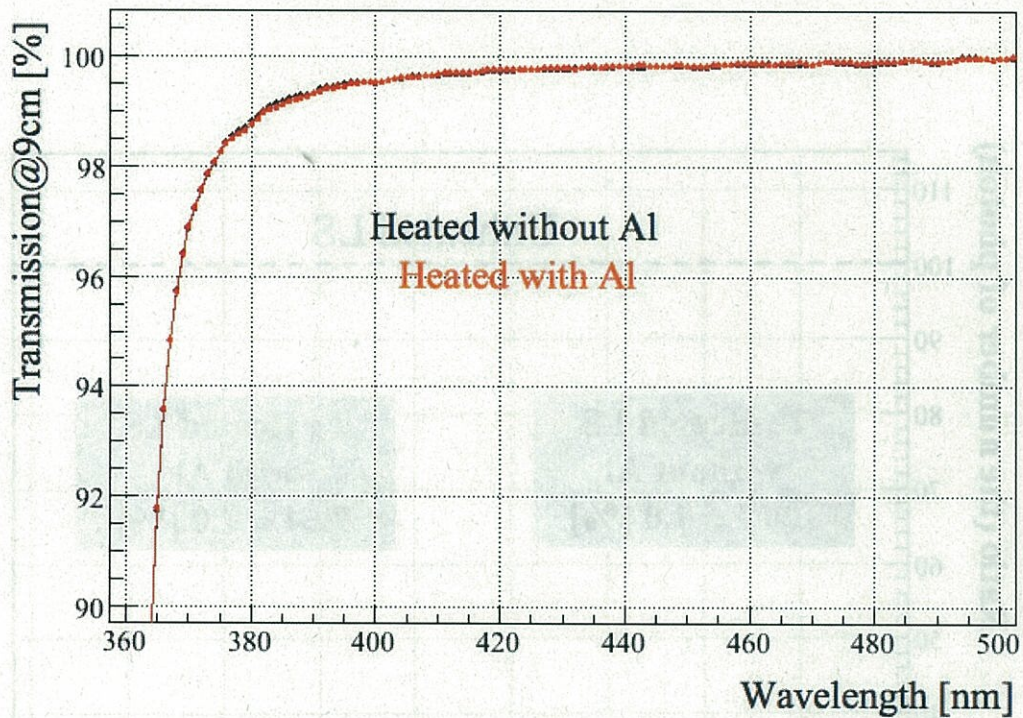


図 6.3: 180 倍加速実験における Al ガスケットが透過率に与える影響。ほとんど劣化は見られない。

果 語 2.3.3

図 6.3 に示すように、119°C の 2 時間の加熱において、LS の光子検出率に顕著な変化は見られなかった。これは、加熱による LS の光子検出率の低下は、180 倍加速実験の結果と一致している。また、加熱による光子検出率の低下は、180 倍加速実験の結果と一致している。これは、加熱による光子検出率の低下は、180 倍加速実験の結果と一致している。

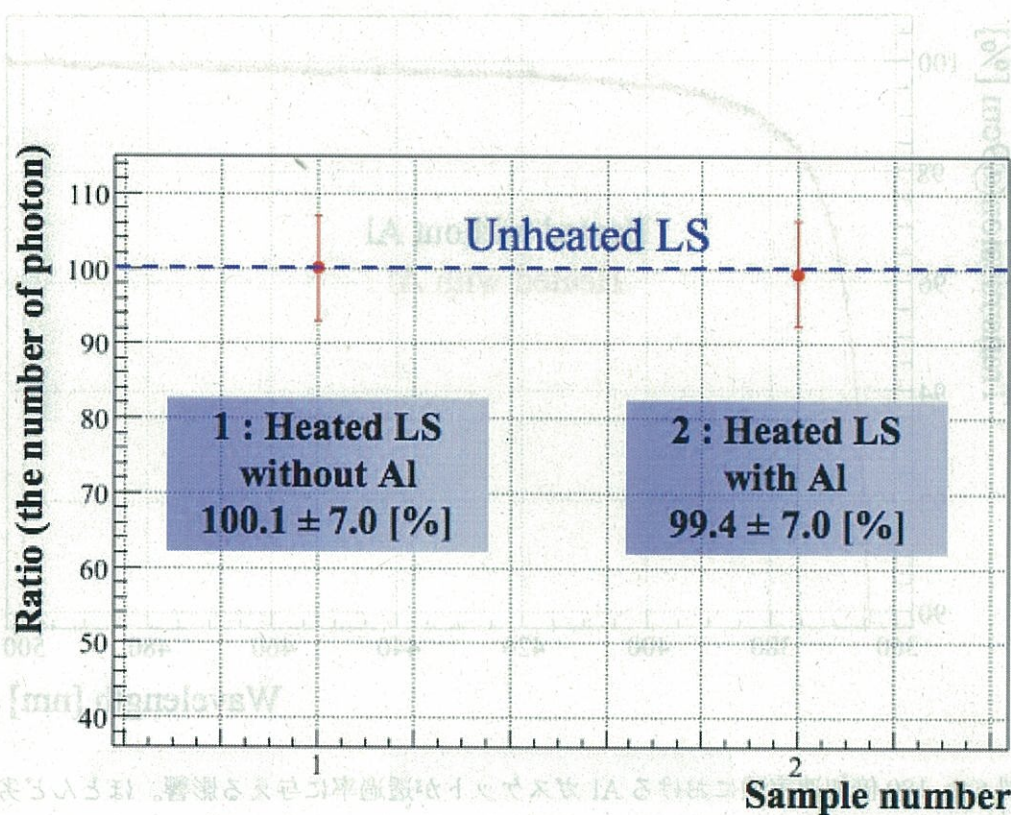


図 6.4: 180 倍加速実験において、KamLAND 中心で発光が起こった場合に PMT で検出される光子数の減少率。影響は誤差の範囲内で劣化は見られない。

6.4 発光性能への影響

6.4.1 発光原理

KamLAND 液体シンチレーターは、すでに述べたように溶媒としての Pseudocumene:20%、溶質としての PPO:1.5g/l に加えて、光透過性能の良い Dodecane:80% からなっている。

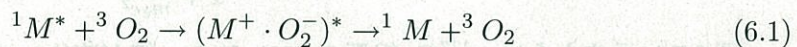
発光原理については第 2.3 に示している。

6.4.2 発光量測定の注意点

シンチレーション光の測定のさいに、もっとも注意すべきものは、クエンチング（消光作用、quenching）現象である。クエンチングには様々な種類があるが、発光量測定において考慮すべきクエンチングは、酸素クエンチングである。[8]

● 酸素クエンチング

酸素クエンチングは、溶液中（液体シンチレーター中）に存在する溶存酸素に起因する。酸素分子は、強い電子受容性を持つため、放射線エネルギーで励起された励起第一重項状態の溶媒分子とエキシプレックスを形成しやすい。エキシプレックスとは、基底状態の分子と励起状態の分子が異なる 2 分子により会合してできた 2 量体のことをいう。エキシプレックスが生じると下記のようにクエンチングが起きる。 1M は一重項状態の溶媒分子、 3O_2 は三重項状態の酸素分子である。



酸素クエンチングが起これると、発光量が実際よりも減少してしまうため、その測定前に窒素パージにより溶存酸素濃度を 0.1ppm 以下（測定限界以下）にして、発光量の測定を行った。

6.4.3 測定原理

^{137}Cs 線源の 662keV の γ 線を用いて測定をする。 γ 線は物質と主に以下の 3 つの相互作用をする。

1. 光電効果
2. コンプトン散乱
3. 電子対生成

液体シンチレーターの主な構成元素は炭素である。図 6.6 に示すように炭素と γ 線の

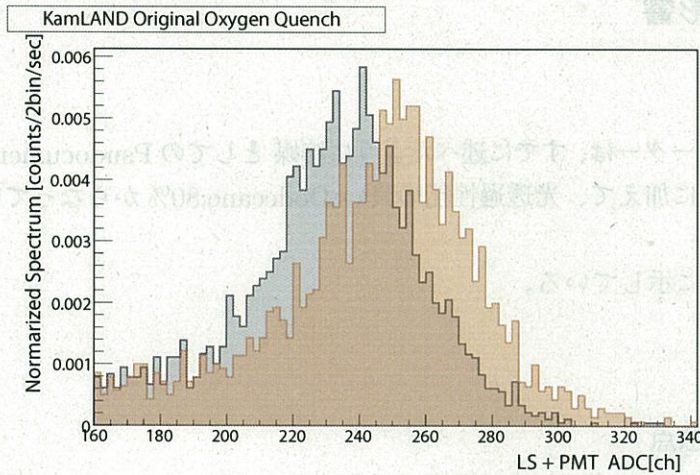


図 6.5: 酸素クエンチング：水色のグラフは酸素クエンチングが起こった液体シンチレーター、赤色は窒素パージをして酸素を除去した液体シンチレーター。

相互作用の反応断面積から、662KeV 付近ではコンプトン散乱が支配的である。

コンプトン散乱による反跳電子のエネルギーは以下のように計算でき

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos\theta)} \quad (6.2)$$

E_e は $\theta = 180^\circ$ のとき最大となるので、

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2E_\gamma}{m_e c^2}} \quad (6.3)$$

図 6.7 に示すように、 ^{137}Cs 線源の 662keV の γ 線が液体シンチレーター内の電子と後方散乱した場合、電子が得たエネルギー 447KeV で液体シンチレーターが発光し、後方散乱 γ 線 185KeV が NaI 側で検出される。これらを同時計測することで、バックグラウンドに邪魔されず後方散乱したイベントのみを取り出し、液体シンチレーターの発光量の測定を行うことができる。測定したスペクトルを 6.8 に示す。NaI 側の 185KeV に相当する領域を選択すると、それに相当する液体シンチレーター側でのスペクトルが得られる。これを Gaussian + linear でフィッティングして得られた中心値を発光量としている。

6.4.4 結果

上記の手順により得られた発光量は

加熱された液体シンチレーター (Al ガスケットなし) : 1346 ± 1.3 [ADC ch]

加熱された液体シンチレーター (Al ガスケットあり) : 1290 ± 1.2 [ADC ch]

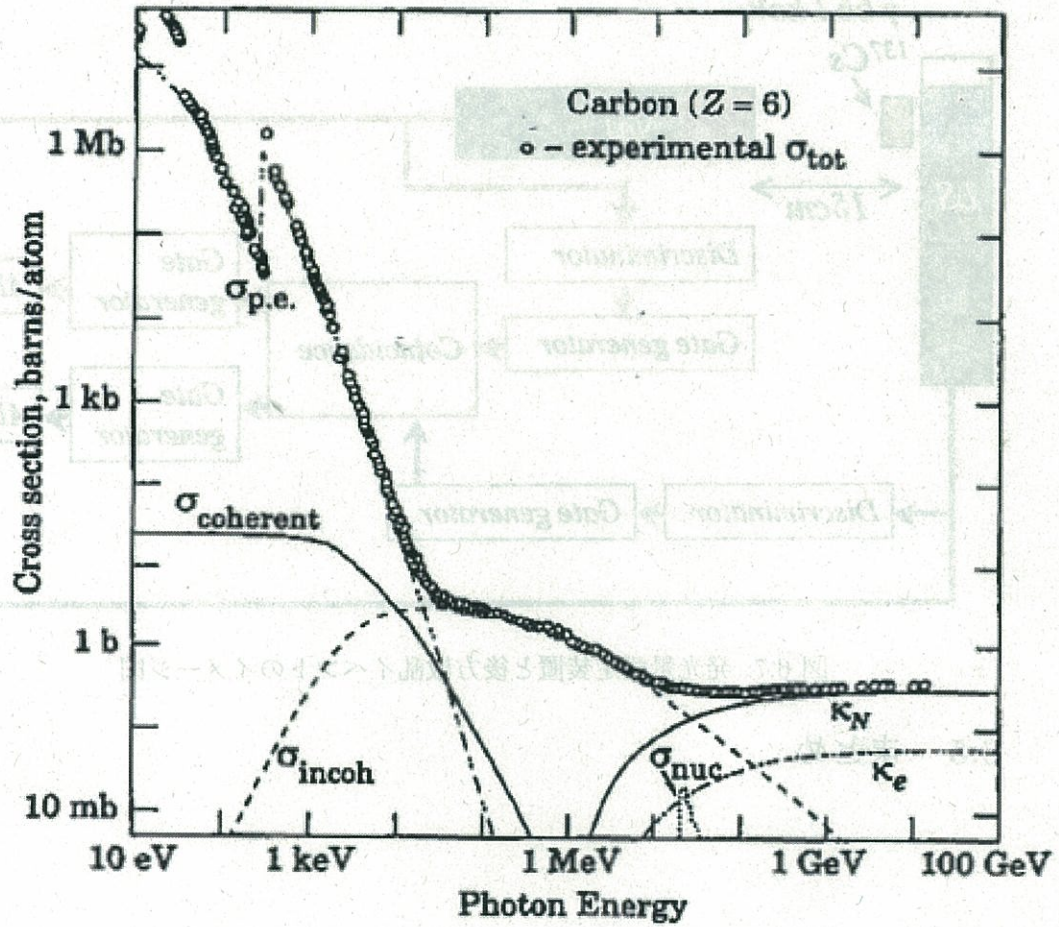


図 6.6: 横軸： γ 線のエネルギー。
 縦軸：反応断面積
 $\sigma_{p.e.}$ ：光電効果
 σ_{incoh} ：コンプトン散乱
 $\sigma_{coherent}$ ：レイリー散乱
 σ_{nuc} ：原子核による光子の吸収
 κ_N ：原子核の場による、電子対生成
 κ_e ：電子の場による、対生成

となり、180 倍の加速実験において 5% 弱の発光量の劣化が見られた。実際の蒸留における影響を見積もると、図 6.9 となり、その影響は十分に小さいと言える。

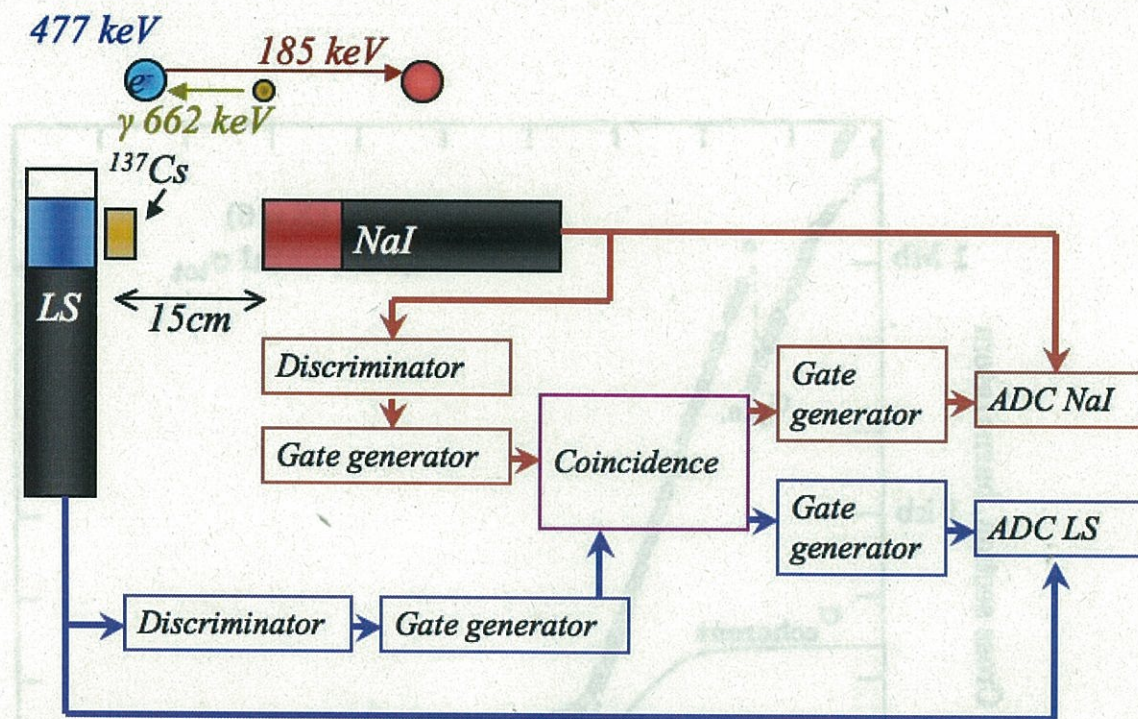


図 6.7: 発光量測定装置と後方散乱イベントのイメージ図

6.5 まとめ

とになり、180度の加算実験において、散乱角の増大に伴って、散乱光子のエネルギーが減少し、その影響は十分に小さいと見做すことができる。散乱角の増大に伴って、散乱光子のエネルギーが減少し、その影響は十分に小さいと見做すことができる。

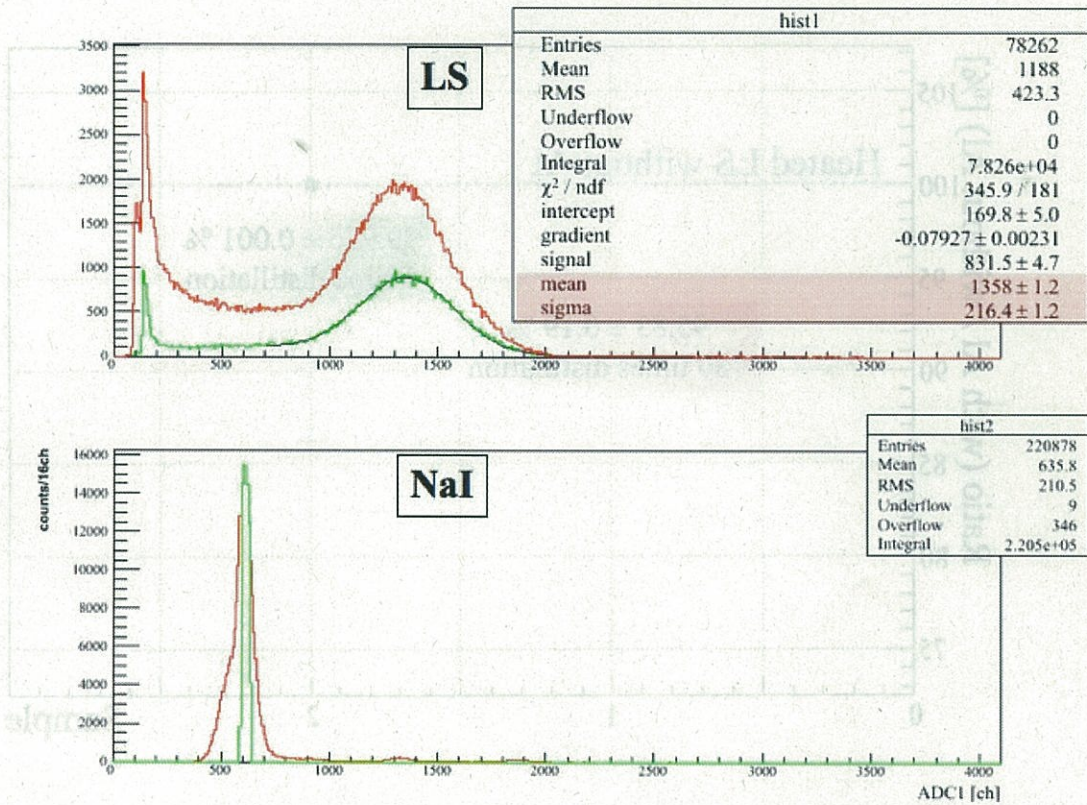


図 6.8: 後方散乱のスペクトル。下図の NaI 側のスペクトルにおいて、緑の部分を取り出したものが、上図の LS 側のスペクトルにおける緑の部分、すなわち後方散乱を起こしたイベントである。

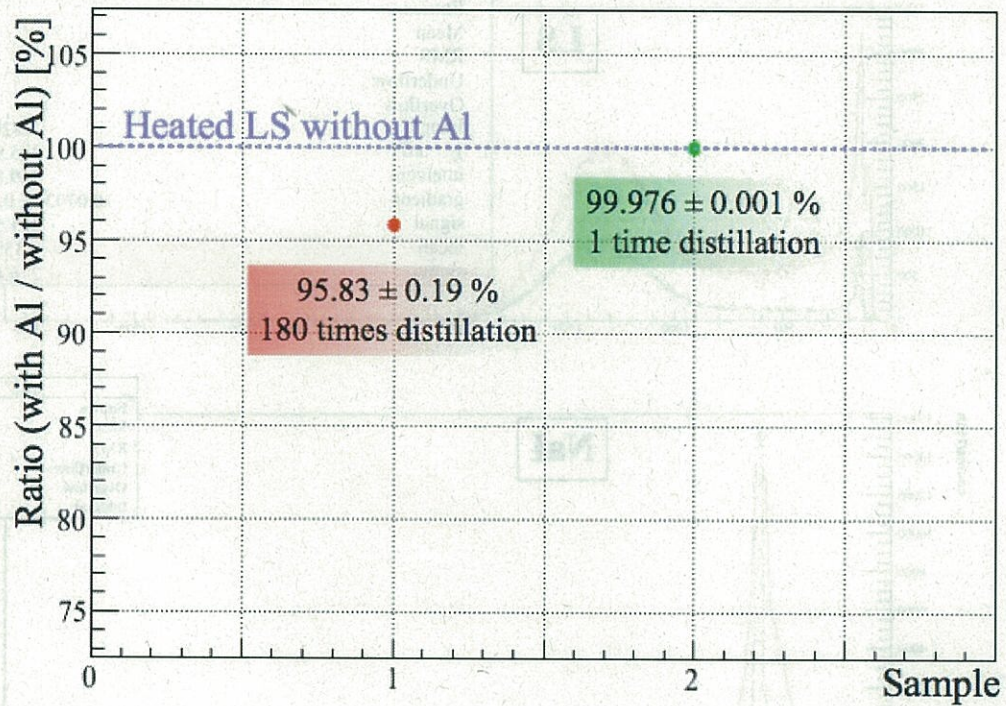


図 6.9: Al ガasket が発光量に与える影響。Al ガasket は、液体シンチレーターの発光量に影響を与えることが示されたが、加速実験であることを考えると実際の蒸留の際に与える影響はほとんど無視できる。

赤：180 倍の加速実験での影響。

緑：実際の蒸留の際に与える影響。

第7章 まとめ

7.1 液体シンチレーター加熱による光透過性能への影響のまとめ

本研究により、液体シンチレーターの蒸留温度、および蒸留される液体シンチレーターの溶存酸素濃度に対して指針を与えることができた。その溶存酸素濃度の許容範囲は 15ppm 以下である。そして、現在の KamLAND で使用されている液体シンチレーターの溶存酸素濃度は測定により 3ppm 以下であることが分かったにので、実際の蒸留の加熱過程において液体シンチレーターの光透過性能は維持できると考えられる。

7.2 Al ガasket が液体シンチレーターの光透過性能、および発光量に与える影響

本研究により、実際の蒸留に対しての 180 倍の加速実験において、Al ガasket が光透過性能に与える影響は見受けられないことが分かった。また、発光量に対しては、180 倍の加速実験において 5% 程度の発光量の減少がみられたが実際の蒸留での影響を考えると十分に小さいことが分かった。

仮に 5% の減少があった場合、現在の 300p.e./MeV の光子検出量が 285p.e./MeV となる。これによって、光子検出量に因るエネルギー分解能は $\sigma_E/E = 5.7\%/\sqrt{E(\text{MeV})}$ から $\sigma_E/E = 5.9\%/\sqrt{E(\text{MeV})}$ となるが、KamLAND 建設時の要請である $\sigma_E/E = 10.0\%/\sqrt{E(\text{MeV})}$ を考えると影響はないと考えられる。

付録 A 分光光度計の測定誤差

液体シンチレーターの光透過性能の測定には、U-2800 形分光光度計 (HITACHI) を用いている。図 A.1 に示すように、1cm のセルと 10cm のセルの透過率を測定することで、セルの影響がキャンセルされサンプルの 9cm の透過率を測定できる仕組みとなっている。ただし、測定時にベースラインとなるものを設定する必要があり、設定したベースラインに対しての相対的な透過率の測定となってしまう。このため、ベースラインに液体シンチレーターと同程度の屈折率を持ち、かつ透過率が限りなく 100% に近いものを使うことで、絶対透過率に近い測定値を出せるようにした。

具体的な測定手順を以下に示す。

- 1 : セルの洗浄を行う。普段はアセトンを用いて洗浄、汚れがひどい場合はセル専用洗浄液を用いる。
- 2 : 洗浄後のセル (1cm, 10cm) を用意する。
- 3 : 1cm, 10cm のセルにベースラインとなる液体 (本研究では光度計用シクロヘキサンを使用) を入れ、ベースラインとして設定する。
- 4 : セルをアセトンを用いて洗浄する。
- 5 : サンプルとなる液体を 1cm, 10cm のセルに入れて測定を行う。

9cm の透過率の測定値はベースライン、およびサンプルの測定値をもとに式 A.1 の結果として得られる。

$$T = \frac{10\text{cm}(\text{sample})/10\text{cm}(\text{baseline})}{1\text{cm}(\text{sample})/1\text{cm}(\text{baseline})} \quad (\text{A.1})$$

A.1 ベースライン

ベースラインとしてシクロヘキサンを使用した。理由は前述のとおり、液体シンチレーターと屈折率が同程度であり、その透過率が 100% に近いものであったためである。図 A.2 にシクロヘキサンの吸光度 (Absorbance) を示す。また、吸光度と透過率の

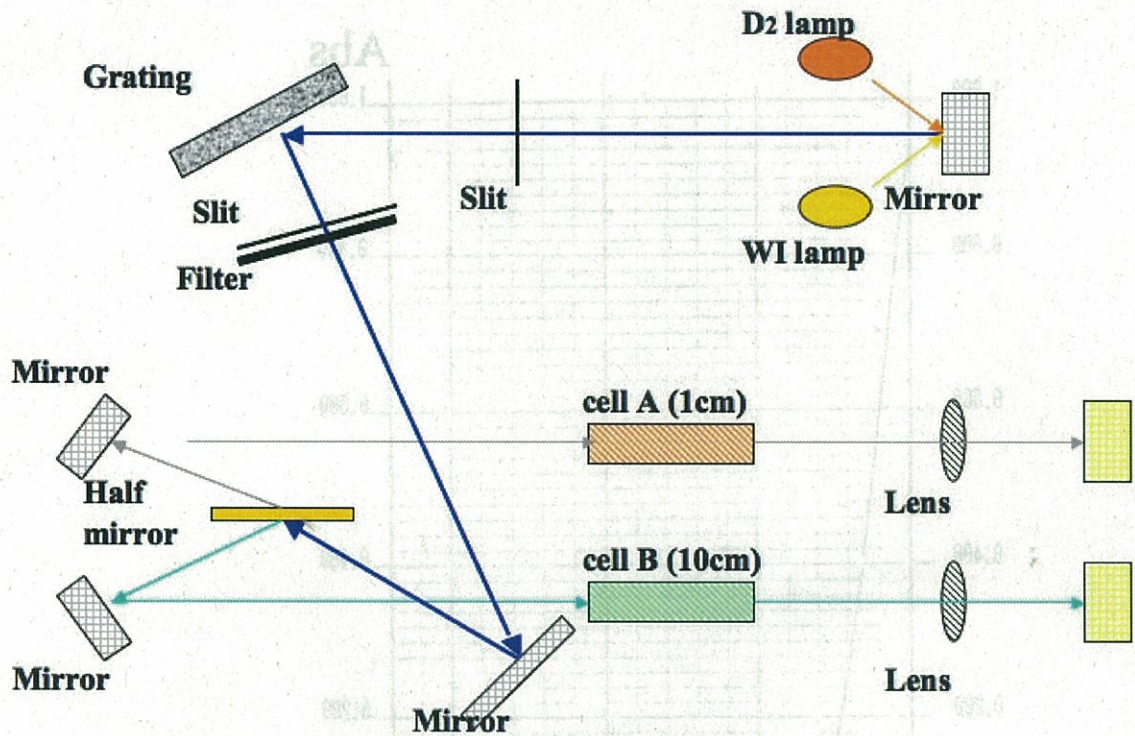


図 A.1: 分光光度計の簡単なモデルを示す

関係を式 A.2 に示す。A: 吸光度、 I_0 : 透過前の強度、I: 透過後の強度 (つまり、 I/I_0 は透過率を意味している。)

$$A = -\log_{10}(I_0/I) \tag{A.2}$$

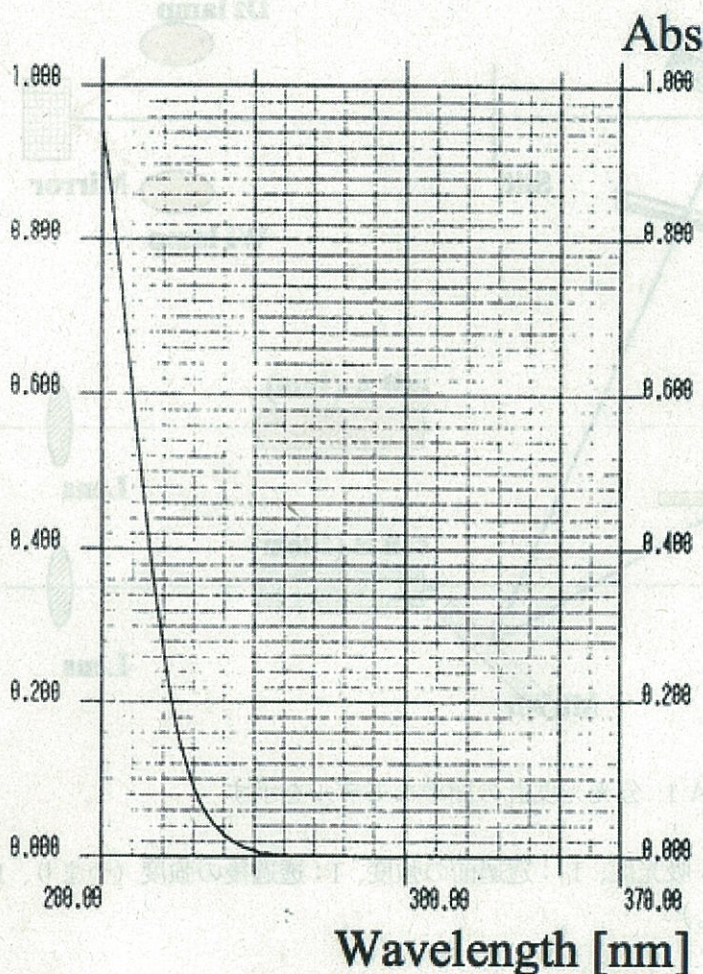


図 A.2: シクロヘキサンの吸光度。270nm 以上の波長領域で、0.01 以下の吸光度 \leftrightarrow 97%以上の透過率

当初、セルの洗浄はアセトンを用いてセルの濯ぎ洗いを行っていたが、測定誤差がおおよそ1%であった。9cmの透過率の測定において1%の測定誤差があると、KamLANDサイズである6.5mで評価する場合に、約50%の誤差となってしまう十分な評価が不可能である。本研究において、セルの洗浄方法の改善、具体的にはアセトンを用いてセルの拭き洗いを行い、目視での汚れ、シミなどのチェックを行い、サンプル量が十分な場合には共洗いを行う、という過程をマニュアル化し、測定誤差を0.1%にまで良くすることができた。これにより、KamLANDサイズである6.5mでの評価が7%程度で行えるようになった。

図 A.3 に改善後の測定精度を示す。

370nm以上の波長において測定誤差が0.1%程度となっている。370nm以下の波長で測定値が大きくふらついているのは、液体シンチレーターの透過率が370nm付近で大きく変化するためである。

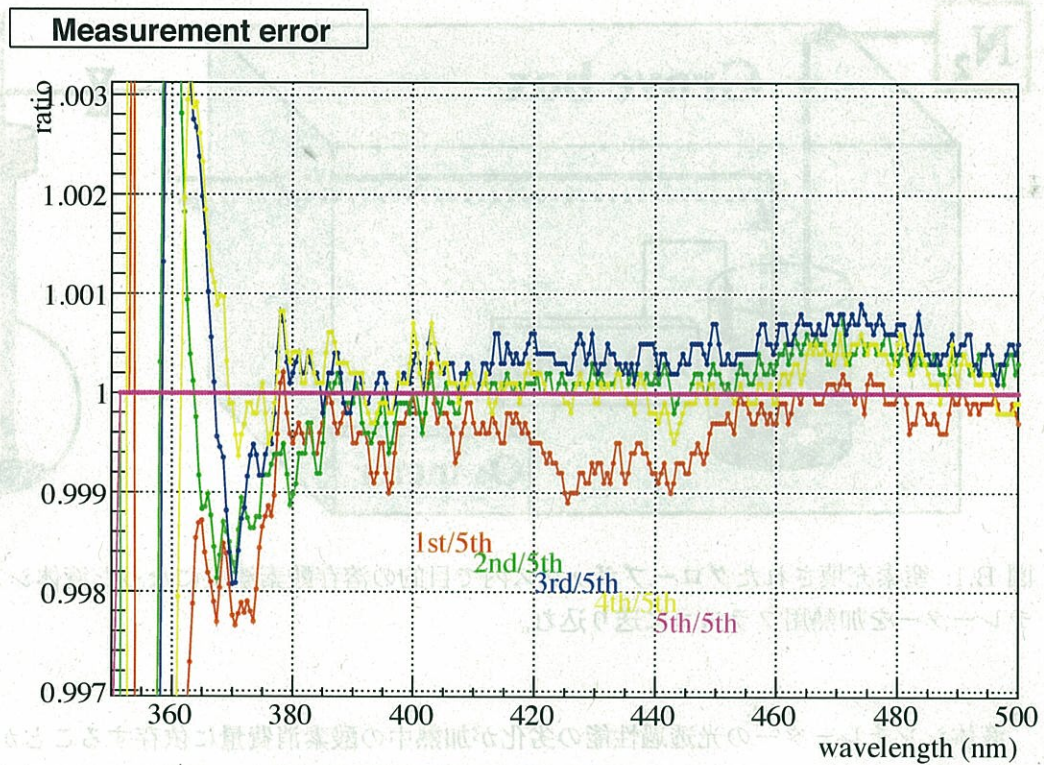


図 A.3: 分光光度計の測定誤差を示す。液体シンチレーターを5回測定し、5番目の測定を基準として比較している。測定誤差が0.1% (380nm～)程度であることが確認できるだろう。～370nmの波長領域では、液体シンチレーターの透過率が低いのでエラーは大きくなる。

付録B 溶存酸素消費量の見積もり

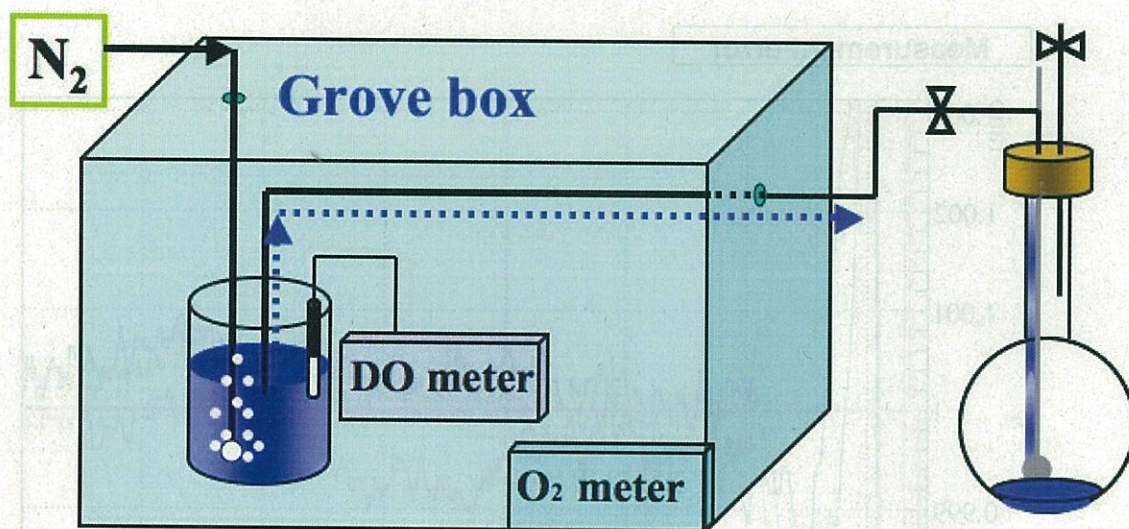


図 B.1: 窒素充填されたグローブボックス内で目的の溶存酸素濃度になった液体シンチレーターを加熱用フラスコに送り込む。

液体シンチレーターの光透過性能の劣化が加熱中の酸素消費量に依存することが、5章で示されたが、ここでは、その際に行った酸素消費量の詳しい見積もり法を示す。5章で示した加熱の実験手順

- 1: 図 B.1 に示すように、液体シンチレーターを窒素充填されたグローブボックス内で窒素パージする。
- 2: 目的の溶存酸素濃度になったら、**窒素置換されたフラスコ内に送り込む。**
- 3: オイルバスを用いて一定温度、一定時間加熱する。
- 4: 図 B.2 に示すように、**フラスコに窒素を送り込むこと**で、液体シンチレーターをグローブボックス内に送り込み、溶存酸素濃度を計る。

加熱中の酸素消費量を見積もるためには、記述した実験手順の**赤文字**の部分で溶存酸素濃度が窒素により下がることを考慮しなければならない。そこで、実際に実験手

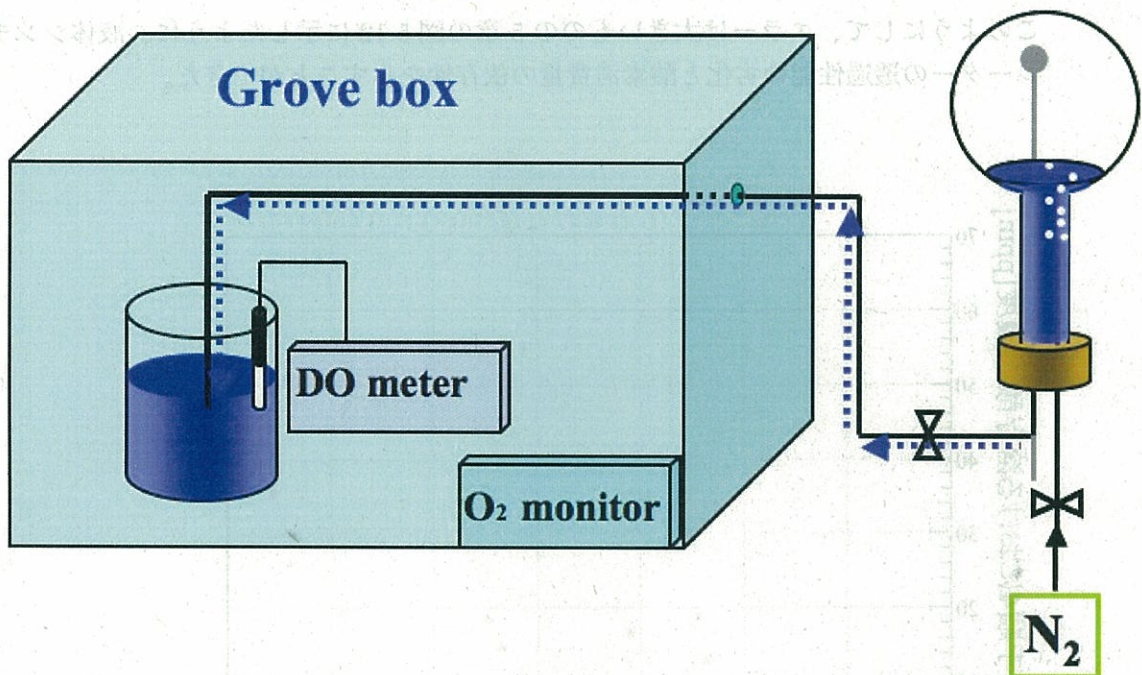


図 B.2: 窒素をフラスコに送り込むことで、液体シンチレーターをグローブボックス内に戻し、溶存酸素濃度を測定する。

順の 2、4 を行い、溶存酸素濃度がどの程度減少するかを測定した。測定結果を B.3 に示す。

この結果、溶存酸素濃度は

$$\text{移送後の溶存酸素濃度} = 0.8 \sim 0.33 \times \text{移送前の溶存酸素濃度}$$

となることが分かった。

これをもとに見積もり手順を示す。

- 1 : グローブボックス内で溶存酸素濃度の測定値が 30ppm の液体シンチレーターをフラスコ内に送り込む
- 2 : 図 B.4 に示すように、30ppm の溶存酸素濃度は、移送中に 10ppm~24ppm に減少する。これが、実際の加熱を行う前の溶存酸素濃度である。
- 3 : 図 B.5 に示すように、加熱後にフラスコから窒素によって押し出された後の溶存酸素濃度が 6ppm だったとすると、窒素による押し出し前の溶存酸素濃度は 7.5ppm~18ppm となる。
- 4 : これらにより、実際の加熱前後の溶存酸素を見積もることができるので、加熱中の酸素消費量は 0ppm~16.5ppm となる。

このようにして、エラーは大きいものの5章の図5.12に示したように、液体シンチレーターの透過性能の劣化と酸素消費量の依存性を示すことができた。

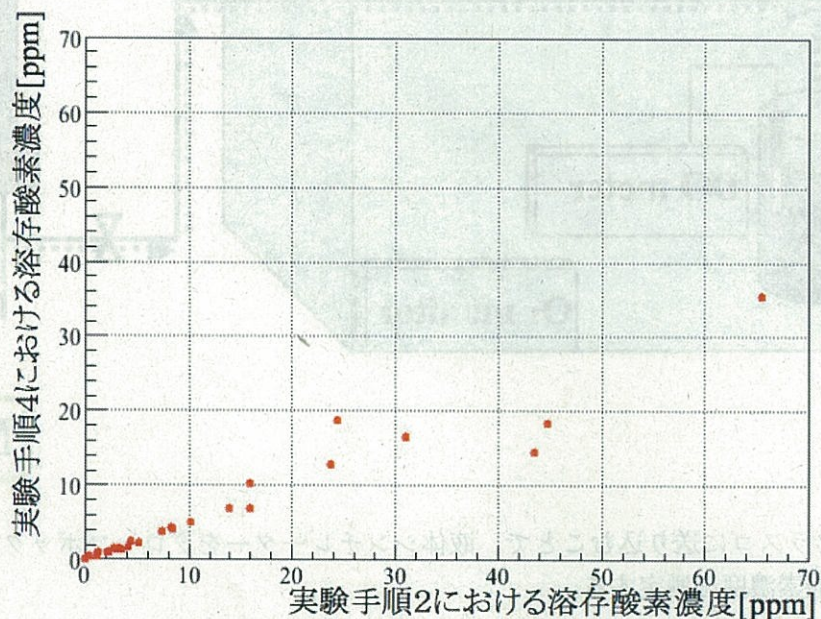


図 B.3: 実験手順2から4における、液体シンチレーター移送中の溶存酸素濃度の減少の測定値。

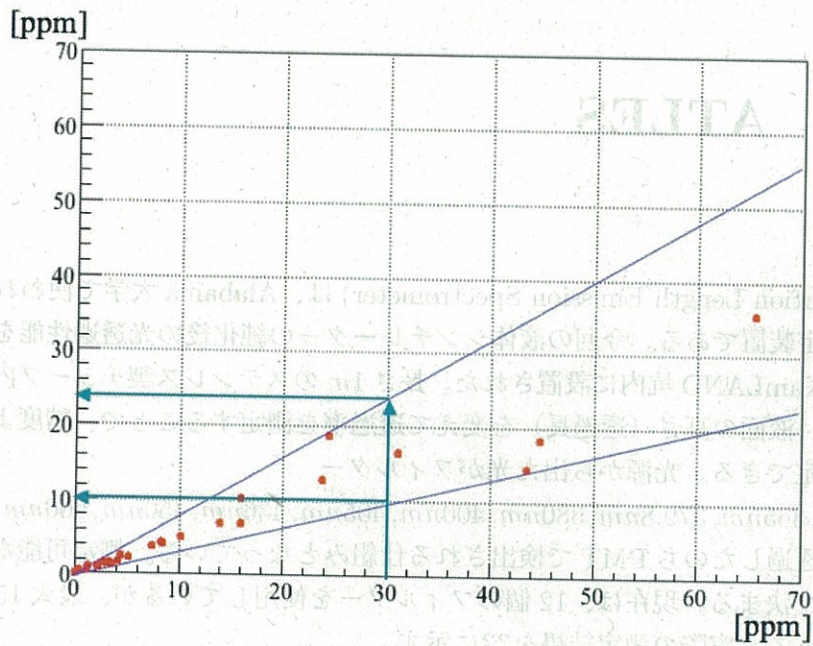


図 B.4: 溶存酸素濃度の測定値が30ppmの液体シンチレーターを窒素置換されたフラスコ内に送った場合、送られた後、すなはち加熱前の実際の溶存酸素濃度は10ppm～24ppmと見積もることができる。

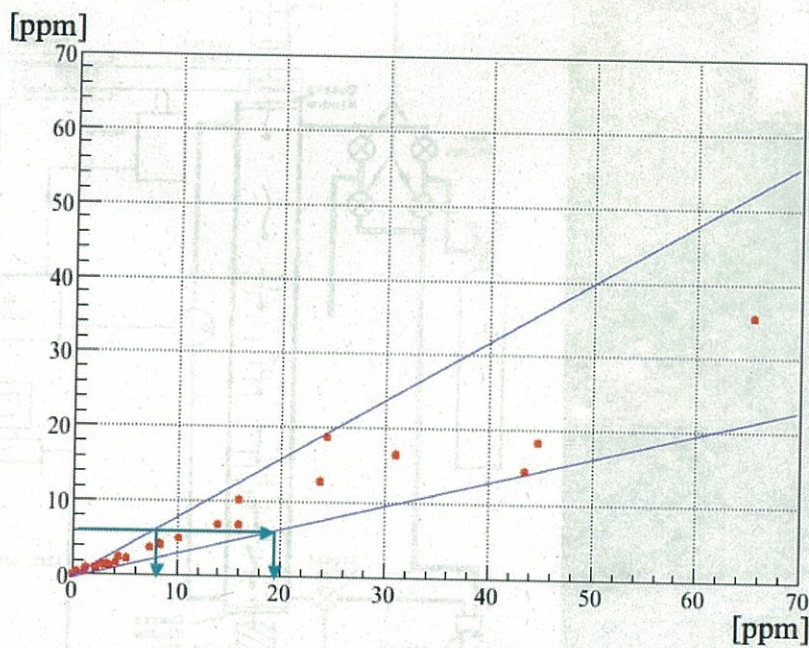


図 B.5: 加熱後に、フラスコから窒素で押し出された液体シンチレーターの溶存酸素濃度の測定値が6ppmだった場合、押し出される前、すなはち加熱後の実際の溶存酸素濃度は、7.5ppm～18ppmと見積もることができる。

付録C ATLES

ATLES(ATtenuation Length Emission Spectrometer) は、Alabama 大学で使われていた光透過長測定装置である。今回の液体シンチレーターの純化後の光透過性能を測定するために、KamLAND 坑内に設置された。長さ 1m のステンレス製チューブ内に液体を送り込み、液面の高さ（透過長）を変えて透過率を測定することで、精度よく光の減衰長を測定できる。光源から出た光がフィルター (313nm, 340nm, 365nm, 379.8nm, 380nm, 400nm, 405nm, 436nm, 450nm, 500nm, 550nm) を通り、液体を透過したのち PMT で検出される仕組みとなっている。測定可能な波長はフィルターで決まる。現在は、12 個のフィルターを使用しているが、最大 15 個まで設置可能である。実際の測定結果を??に示す。

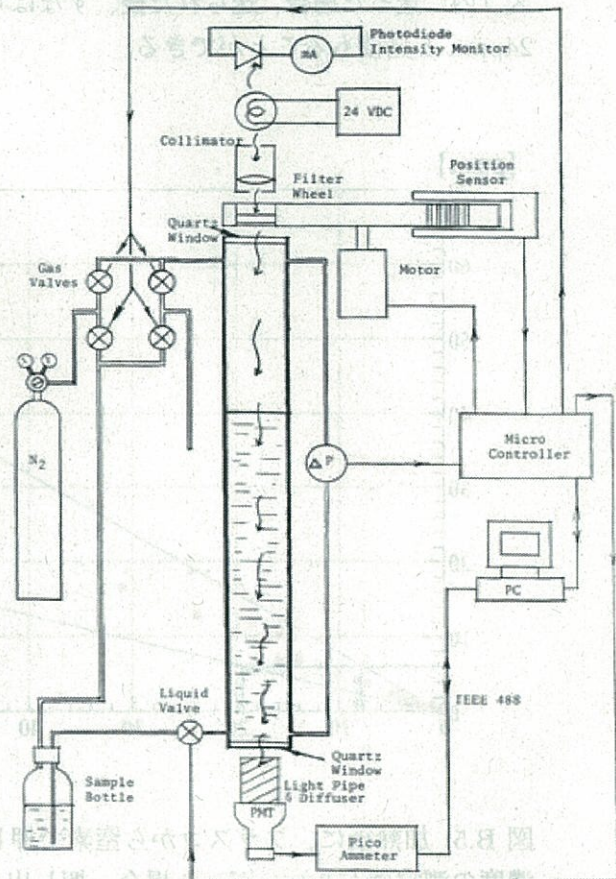
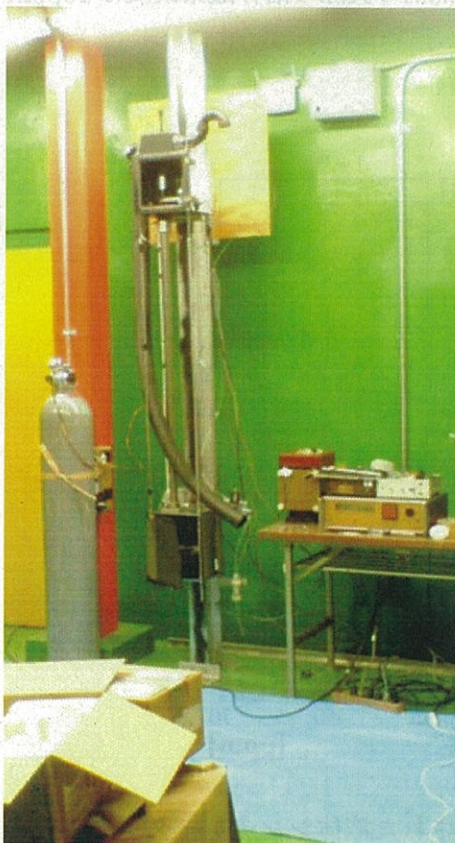


図 C.1: ATLES の写真と図面。

減衰長と透過率の以下に關係を示す。入射光の強度が $1/e$ となる透過長が光減衰長 (attenuation length) となる。

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{\text{height}}{\text{attenuation length}}\right) \quad (\text{C.1})$$

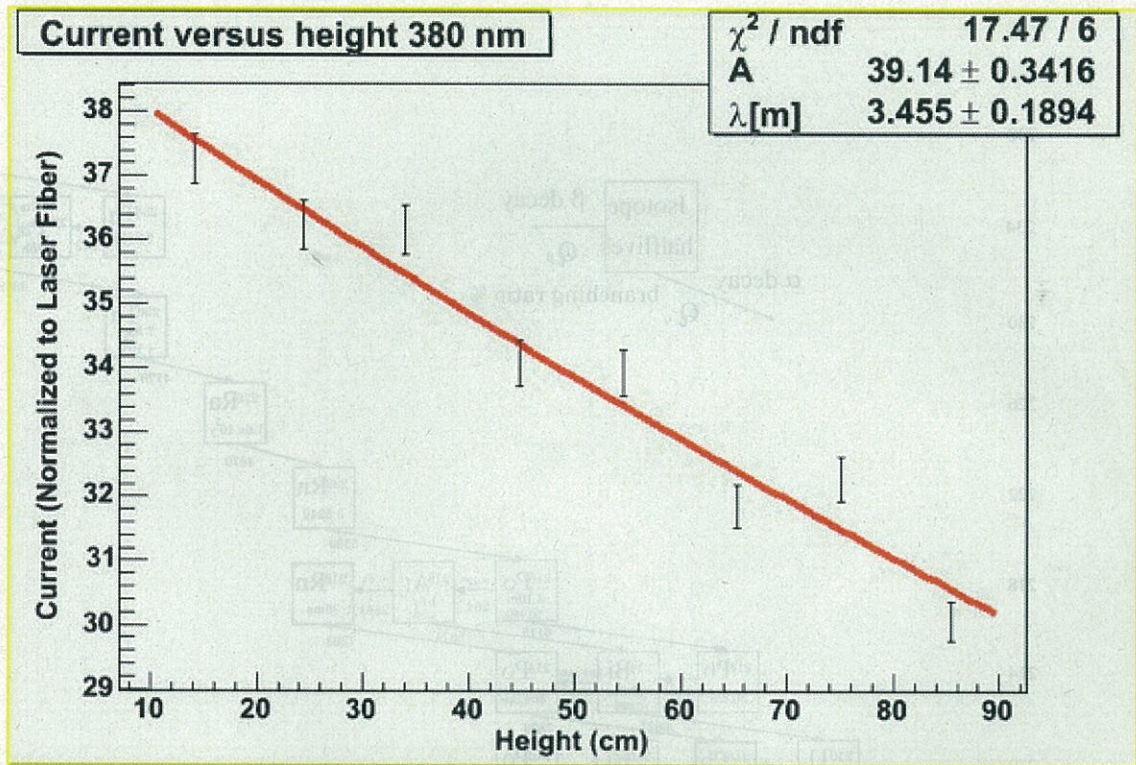


図 C.2: ATLES を用いた光減衰長測定。それぞれの液面の高さにおける測定値から、光減衰長をフィッティングにより求めている。グラフは、Psudocumene の 380nm の光に対する測定。光減衰長は $3.4551 \pm 0.1891 [\text{m}]$ である。

付録D U,Th 崩壊系列

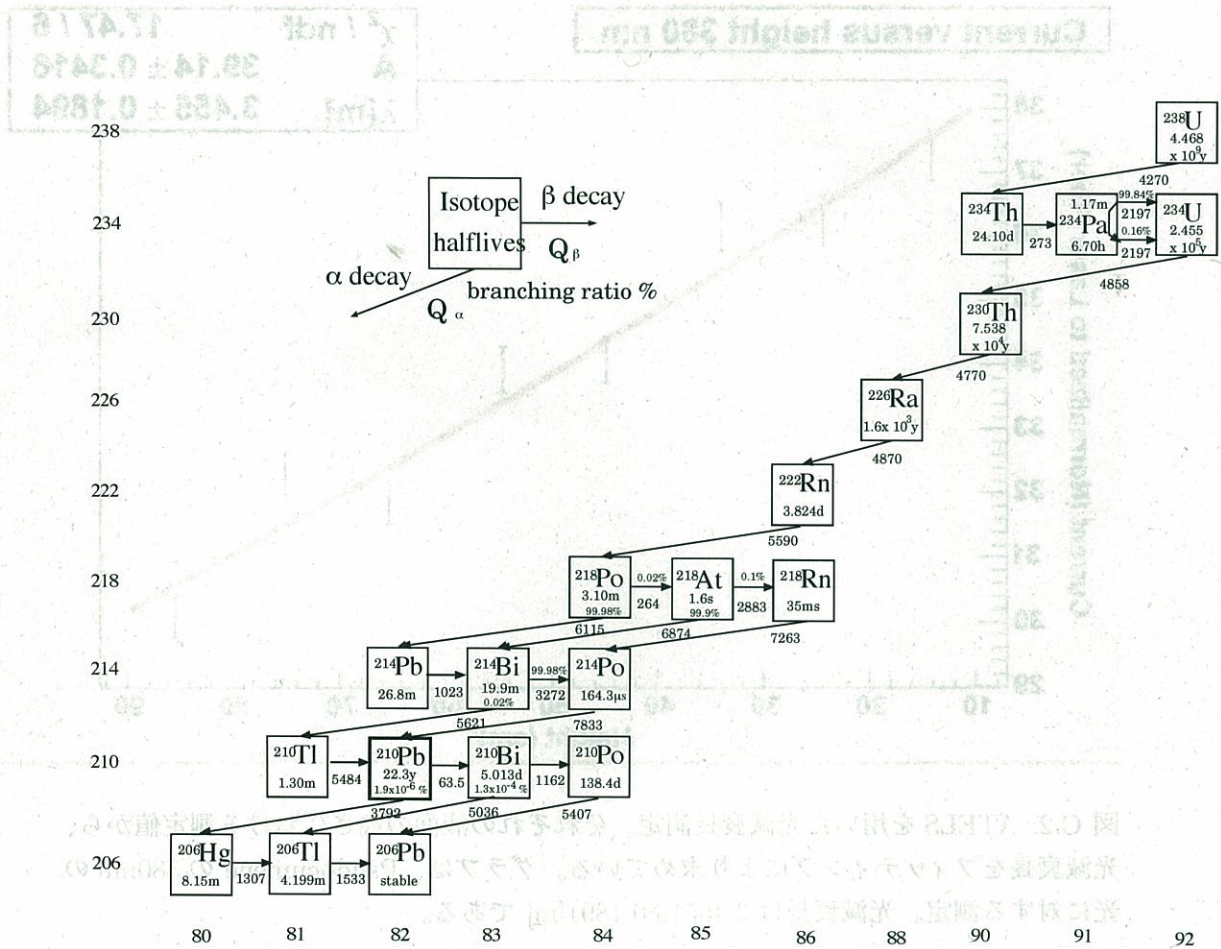
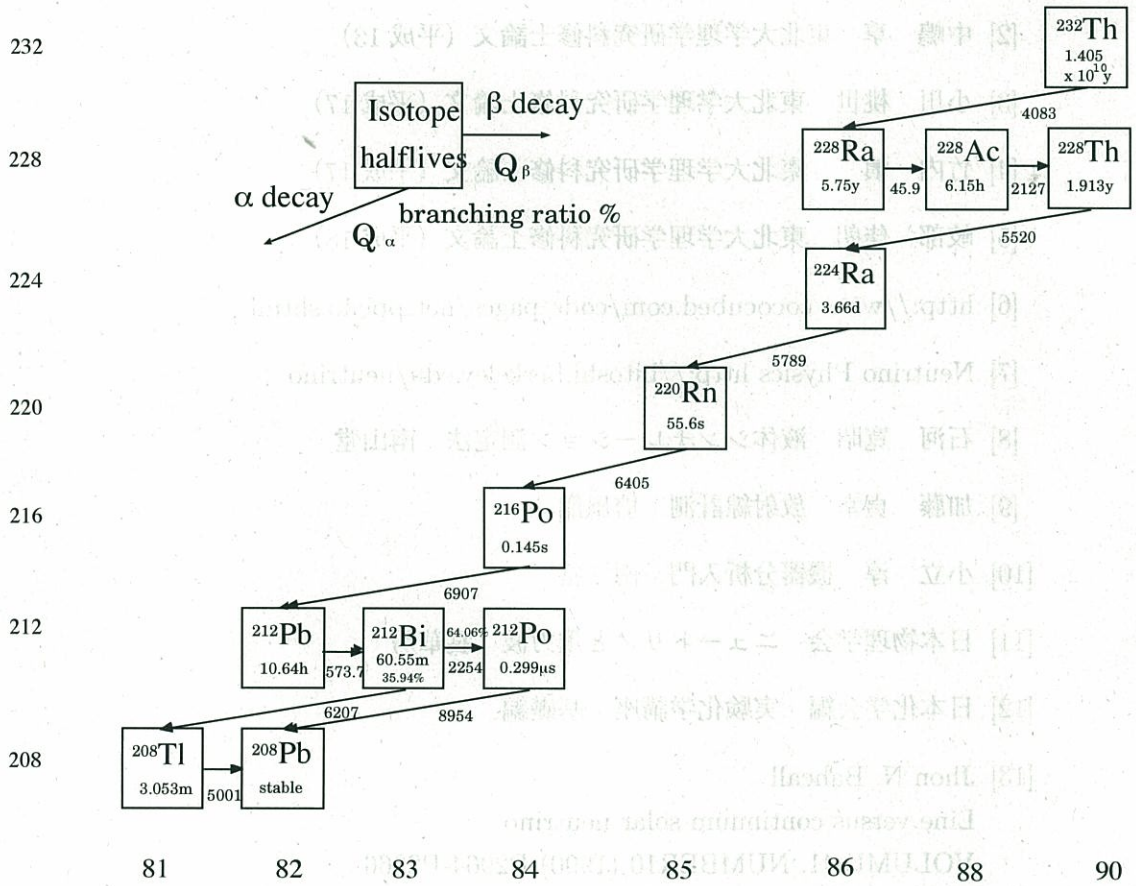


図 D.1: U



☒ D.2: Th

参考文献

- [1] 岩本 敏幸 東北大学理学研究科修士論文 (平成 9)
- [2] 中嶋 享 東北大学理学研究科修士論文 (平成 13)
- [3] 小川 桃世 東北大学理学研究科修士論文 (平成 17)
- [4] 竹内 慎 東北大学理学研究科修士論文 (平成 17)
- [5] 岐部 佳朗 東北大学理学研究科修士論文 (平成 18)
- [6] http://www.cococubed.com/code_pages/net_ppcno.shtml
- [7] Neutrino Physics <http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino>
- [8] 石河 寛昭 液体シンチレーション測定法 南山堂
- [9] 加藤 貞幸 放射線計測 培風館
- [10] 小立 淳 機器分析入門 南江堂
- [11] 日本物理学会 ニュートリノと重力波 裳華房
- [12] 日本化学会編 実験化学講座 基礎編
- [13] Jhon N. Bahcall
Line versus continuum solar neutrino
VOLUME 41, NUMBER10 (1990) P2964-P2966
- [14] Jhon N. Bahcall
Central Temperature of the sun Can be Measured via the ${}^7\text{Be}$ Solar Neutrino
Line
VOLUME 71, NUMBER15 (1993) P2369-P2371