

修士論文

Kam-LAND 実験における液体シンチレータの
発光特性と粒子識別能力の評価

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻

岩本 敏幸

平成9年

要旨

神岡 3,000 トン陽子崩壊実験装置を改良し、素粒子の根源の解明と宇宙起源の解明を目指したニュートリノ科学実験装置、Kam-LAND(Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector)の建設がスタートした。Kam-LAND 実験の目的は、原子力発電所から来る反ニュートリノ検出によるニュートリノ振動現象の探索や、宇宙初期起源反ニュートリノ検出による宇宙構造形成機構の解明、地球内部からの反ニュートリノ検出による地球内部エネルギー生成機構の解明、太陽ニュートリノの検出による太陽ニュートリノ欠損問題の究明、原子核二重ベータ崩壊検出によるニュートリノ質量の測定研究などがあげられる。これらのニュートリノはたかだか数 MeV と非常に低エネルギーであるため、同じエネルギー付与に対して、神岡実験に利用された水チェレンコフ光に比べて発光量が多い液体シンチレーターを検出器の中心に設置する。また、ニュートリノ事象を精度よく検出するためには、事象数ができるだけ多い必要があり、球形で 1,000 トンとなる一体型の大容量液体シンチレーターを用いる。その外側を、環境バックグラウンドの遮蔽のために、イソパラフィン槽、純水槽で覆う。この検出器は大容量の一体型の液体シンチレーターを用いているため、光検出器である光電子増倍管までの半径が 8m と、非常に光の伝搬距離が長くなっているため、光の透過率を向上させなければならない。Kam-LAND 実験では、液体シンチレーターをイソパラフィンで希釈して使用する。

この論文では、Kam-LAND 実験に要求される性能を満たすような液体シンチレーターを決定するため、種々の液体シンチレーターにおいて、特に発光量、シンチレーション光の時間特性と、重粒子 (α 粒子、中性子) と軽粒子 (β 線、 γ 線) の識別、とくに n/γ 識別能と、 α/γ 識別能を測定した。準備した液体シンチレーターは、バイクロン社製の液体シンチレーターが二種類 (BC519 と BC517H) と、自分達で調合した液体シンチレーター pseudocumene+PPO+Bis-MSB が一種類の、合計 3 種類である。我々は、発光量が 30% Anthracene、 γ 線検出効率 90% の場合の粒子識別能が、中性子の混入率が 10%、 α 粒子混入率が 5%、長期安定性がよい、安価に製造できることなどを要請する。予備実験となるテストベンチでは、さらに引火点が 70°C 以上である必要がある。

本研究により、Pseudocumene+PPO+Bis-MSB において、イソパラフィンを 80% まで混ぜた場合に、発光量が 53% Anthracene、中性子の混入率が 1.67%、 α 粒子混入率が 0.25% と、非常によい性能を発揮する液体シンチレーターが得られた。また、この液体シンチレーターは自分達で調合するため、安価に大量生産が可能である。このため、この液体シンチレーターは、Kam-LAND 実験に用いる候補として挙げる事ができた。ただし、この液体シンチレーターでは、引火点が 62.5°C と、テストベンチに使用できる条件は満たさなかった。

そこで、BC519 液体シンチレーターにイソパラフィンを 75% まで混ぜた液体シンチレーターでは、発光量が 30% Anthracene、粒子識別能が、 γ 線検出効率 90% の場合に、中性子の混入率が 4.84%、 α 粒子混入率が 0.37 % と、我々の発光量と粒子識別能の要求を満たすことがわかった。また、この液体シンチレーターは引火点が 71°C であり、メーカー製造のため長期安定性の信頼がおける。以上の理由により、今年度実施するテストベンチに使用される液体シンチレーターは BC519 が 25% に P250 が 75% と決まった。

目次

1	序章	8
1.1	概要	8
1.2	物理的背景	9
1.2.1	原子炉反ニュートリノ	9
1.2.2	地球反ニュートリノ	11
1.2.3	宇宙初期起源反ニュートリノ	12
1.2.4	太陽ニュートリノ	12
1.3	Kam-LAND 実験	13
1.3.1	検出器	13
1.3.2	反ニュートリノ検出原理	16
1.3.3	原子炉、地球反ニュートリノの検出事象数の見積り	17
1.3.4	バックグラウンド	25
1.4	テストベンチ	26
1.4.1	検出器	26
1.4.2	目的	27
2	液体シンチレーターの特性	28
2.1	液体シンチレーターの構成	28
2.1.1	溶媒	28
2.1.2	溶質 (蛍光体)	28
2.1.3	液体シンチレーター	32
2.2	発光原理	32
2.2.1	溶媒分子の励起	32
2.2.2	溶媒-溶媒間のエネルギー移行	33
2.2.3	溶媒-溶質間のエネルギー移行	33
2.2.4	溶質-溶質間のエネルギー移行	34
2.2.5	溶質の発光	34
2.3	クエンチング	36
2.3.1	化学クエンチング	36
2.3.2	色クエンチング	36
2.3.3	酸素クエンチング	37
2.3.4	濃度クエンチング	37
2.3.5	電離クエンチング	37

2.4	ミネラルオイル	37
2.5	液体シンチレーターへの要請	39
3	発光量測定	41
3.1	測定方法	41
3.2	標準試料による光量の較正	44
3.2.1	測定装置	44
3.2.2	測定結果	46
3.3	窒素バブリング効果	49
3.3.1	実験の準備	49
3.3.2	結果	49
3.4	種々の液体シンチレーターの発光量測定	51
3.4.1	測定装置	51
3.4.2	測定結果	51
3.5	まとめ	55
4	種々の液体シンチレーターの信号波形時間特性	56
4.1	測定装置	56
4.2	測定結果	57
4.3	考察	60
4.4	まとめ	61
5	粒子識別能測定	62
5.1	重粒子 / 軽粒子分離の必要性	62
5.2	重粒子、軽粒子による液体シンチレーターの出力波形の違い	63
5.3	波形弁別法 (Pulse Shape Discrimination Method)	64
5.4	n/γ 粒子識別	65
5.4.1	実験の前準備	65
5.4.2	測定回路	65
5.4.3	γ 線だけの信号と (γ 線 + 中性子) 信号の比較	67
5.4.4	市販の液体シンチレーターの n/γ 粒子識別能測定の結果	69
5.4.5	試作した液体シンチレーターの n/γ 粒子識別能測定の結果	75
5.4.6	γ 線検出効率 (γ efficiency)	80
5.4.7	中性子混入率 (neutron contamination)	80
5.4.8	考察	81
5.5	α/γ 粒子識別	82
5.5.1	実験方法	82
5.5.2	α 粒子だけの信号と (α 粒子 + β 粒子) 信号の比較	83
5.5.3	結果	85
5.5.4	考察	87
5.6	まとめ	88
6	結論	89

目次	3
7 今後の課題	91
A ニュートリノ振動	92
B 液体シンチレーター内に混入する放射性核種によるバックグラウンド	94
B.1 accidental background	94
B.1.1 U	94
B.1.2 Th	95
B.1.3 K	95
B.1.4 Rn	95
B.2 correlated background	96
B.2.1 U の自発核分裂	96
B.2.2 Th の自発核分裂	96
B.2.3 ^{238}U 崩壊系列の correlated background	96
B.2.4 ^{232}Th 崩壊系列の correlated background	97
C 宇宙線によるバックグラウンド	99
C.1 correlated cosmic ray background	99
C.2 dead time からくる検出効率の減少	99
謝辞	103

図一覽

1.1	種々の加速器や原子炉実験グループによる $\nu_e \leftrightarrow \nu_\mu$ ニュートリノ振動パラメーターの 90% C.L. 排除領域探索結果 (G.Gratta,stanford-HEP-97-03 による)	10
1.2	標準太陽模型の予想する太陽ニュートリノのエネルギースペクトル	12
1.3	Kam-LAND の検出器本体	14
1.4	Kam-LAND 観測施設の全体計画図	15
1.5	遅延同時計数法で取得される信号の概略図	16
1.6	日本国内の原子力発電所の分布図	18
1.7	原子炉反ニュートリノフラックス	20
1.8	地球反ニュートリノのエネルギースペクトル	21
1.9	1 年間で Kam-LAND 検出器内で起こる反ニュートリノ事象数	23
1.10	10 年間で Kam-LAND 検出器内で起こる反ニュートリノ事象数	24
1.11	テストベンチの検出器の図	26
2.1	溶媒の分子構造	29
2.2	第 1 溶質の分子構造	30
2.3	第 2 溶質の分子構造	31
2.4	分子のエネルギー準位と電子遷移	35
2.5	エネルギー移行過程におけるクエンチングの説明	36
2.6	イソパラフィンの分子構造	38
2.7	イソパラフィンの透過率の波長依存性	38
3.1	^{60}Co の崩壊図	42
3.2	γ 線と炭素との反応断面積	43
3.3	Compton 効果	43
3.4	バイクロン社製容器を用いた測定装置	44
3.5	ADC チャンネル数と入力電荷量との関係	45
3.6	種々の液体シンチレーターの Compton edge スペクトル	46
3.7	^{59}Fe の液体シンチレーションスペクトルの例	47
3.8	バイクロン容器による光量測定の結果	48
3.9	窒素ガスバブリングの方法	49
3.10	窒素バブリングの効果	50
3.11	光量測定に用いた実験装置	51
3.12	BC517H のコンプトンエッジスペクトル	52
3.13	BC519 のコンプトンエッジスペクトル	53

3.14	BC519、BC517H と、PC+PPO+Bis-MSB の光量変化	54
4.1	時間特性の測定回路	56
4.2	BC517H 100% の波形	57
4.3	BC517H 50% の波形	57
4.4	BC517H 33% の波形	57
4.5	BC519 100% の波形	57
4.6	BC519 50% の波形	58
4.7	BC519 25% の波形	58
4.8	Pseudocumene 50% の波形	58
4.9	Pseudocumene 20% の波形	58
4.10	Pseudocumene 15% の波形	59
4.11	Pseudocumene 10% の波形	59
4.12	Pseudocumene 0% の波形	59
4.13	種々の液体シンチレーターの時間特性	60
5.1	中性子の液体シンチレーター中での反応	62
5.2	中性子、ガンマ線の液体シンチレーター中での典型的な発光波形	63
5.3	α , β 線の液体シンチレーター中での典型的な発光波形	64
5.4	シンチレーションパルスと ADC のゲートの timing の関係	65
5.5	^{252}Cf の崩壊図	65
5.6	^{252}Cf から放出される中性子、 γ 線のエネルギースペクトル	66
5.7	測定回路図	66
5.8	^{60}Co 線源入射による γ 線の全光量と tail 部分の光量の 2 次元プロット	67
5.9	全光量に対する tail 部分の光量の比の分布	67
5.10	^{252}Cf 線源入射による中性子と γ 線同時の全光量と tail 部分の光量の 2 次元プロット	68
5.11	全光量に対する tail 部分の光量の比の分布	68
5.12	γ 線のみと、 γ + 中性子の tail/total 分布の比較	68
5.13	BC517H 100% の n/ γ 粒子識別能	69
5.14	BC517H 50% P250 50% の n/ γ 粒子識別能	70
5.15	BC517H 33% P250 67% の n/ γ 粒子識別能	71
5.16	BC519 100% の n/ γ 粒子識別能	72
5.17	BC519 50% P250 50% の n/ γ 粒子識別能	73
5.18	BC519 25% P250 75% の n/ γ 粒子識別能	74
5.19	P.C.50% P250 50% PPO Bis-MSB の n/ γ 粒子識別能	75
5.20	P.C.20% P250 80% PPO Bis-MSB の n/ γ 粒子識別能	76
5.21	P.C.15% P250 85% PPO Bis-MSB の n/ γ 粒子識別能	77
5.22	P.C.10% P250 90% PPO Bis-MSB の n/ γ 粒子識別能	78
5.23	P250 100% PPO Bis-MSB の n/ γ 粒子識別能	79
5.24	粒子識別の可能な液体シンチレーターの開発と可能なイソパラフィンの最大量の決定	81
5.25	^{241}Am の崩壊図	82
5.26	α/β 粒子識別能測定装置図	82

5.27	P.C.20ml+P250 80ml+PPO 0.5g+Bis-MSB 0.01g 液体シンチレーターにおける α 粒子 検出の tail/total ratio 結果	83
5.28	Pseudocumene 20%+P250 80%+PPO 0.5g+Bis-MSB 0.01g の液体シンチレーターに おける α 、 γ 粒子へのガウス分布フィッティング結果	84
5.29	Pseudocumene 20%+P250 80%+PPO 0.5g+Bis-MSB 0.01g の液体シンチレーターに おける α 、 γ 粒子入射の場合と、 α 粒子のみ入射の場合の比較	84
5.30	BC519 25% + P250 75% の液体シンチレーターにおける α/γ 粒子識別の結果	85
5.31	Pseudocumene 20%+P250 80%+PPO 0.5g+Bis-MSB 0.01g の液体シンチレーターに おける α/γ 粒子識別の結果	86
B.1	^{238}U の correlated decay chain	96
B.2	^{238}U のもうひとつの correlated decay chain	97
B.3	^{232}Th の correlated decay chain	98

表一覽

1.1	原子炉ニュートリノ振動実験の性能のまとめ。あとの2つは測定中または計画	11
1.2	核分裂あたり解放されるエネルギー	17
1.3	日本国内の原子力発電所の熱出力と神岡までの距離	18
1.4	地球表面から 100km 以内に存在する主な放射性同位体からのフラックス	21
2.1	液体シンチレーター用溶媒の特性	29
2.2	第 1 溶質の特性	30
2.3	第 2 溶質の特性	31
3.1	バイクロン社製の液体シンチレーターの諸特性	41
3.2	2 インチ光電子増倍管 H1161 の仕様	45
3.3	種々の液体シンチレーターでの、Compton edge ADC チャンネル数	47
6.1	BC519 液体シンチレーターにイソパラフィンを混ぜたシンチレーター溶液の、種々の特性	90
6.2	BC517H 液体シンチレーターにイソパラフィンを混ぜたシンチレーター溶液の、種々の 特性	90
6.3	Pseudocumene+PPO(5g/l)+Bis-MSB(0.1g/l) 液体シンチレーターにイソパラフィンを 混ぜたシンチレーター溶液の、種々の特性	90

第 1 章

序章

1.1 概要

素粒子物理学研究は、大型加速器を用いたより高エネルギーでの超高エネルギー現象の解明と、地下に設置した大型検出器を用いた、より低エネルギーでの超低エネルギー現象の解明を行なう、両極端のエネルギーフロンティア方向に進んでいる。近年の素粒子物理、宇宙物理の両分野の研究により、ニュートリノが質量を持つかどうか重要であることが明らかになってきた。このため、ニュートリノの質量検出研究は、現在各国の研究者が総力を上げて取り組んでいる重要な研究課題となっている。

神岡陽子崩壊実験における、超新星 1987A からのニュートリノバーストの検出成功や、太陽ニュートリノの検出成功は、素粒子物理学、宇宙物理学の研究発展に貢献してきた。しかし、現在稼働中の地下実験が検出できるエネルギー領域よりもっと低い、新しい低エネルギー領域の開拓が必要である。

1996 年からスーパー神岡実験が稼働しはじめた。これは神岡実験の技術を継承しつつ、性能を大幅に向上させた検出器である。1983 年より続けられてきた神岡実験は、1997 年度にデータ収集を終えることになった。そこで、極低エネルギーで起こる稀な現象を検出する世界で最も大容量な液体シンチレーター検出器を神岡実験の場所に建設することが決まった。この実験を Kam-LAND 実験と呼ぶ。

液体シンチレーター光はチェレンコフ光に比べて、同じエネルギー付与に対して放出される光電子数が多い。また、液体シンチレーターは水に比べて放射性不純物によるバックグラウンドが少ない。そのため、数 100keV 領域までの低エネルギー（反）ニュートリノを検出することが可能となる。このエネルギー領域には、原子炉反ニュートリノ、地球反ニュートリノ、 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノなど、多くの興味深いニュートリノが存在している。Kam-LAND 実験で用いる検出器は、世界で最も大容量な液体シンチレーターであり、非常に低バックグラウンド環境にあるため、最も感度よく数種の低エネルギーニュートリノ物理を展開することができるであろう。特に、原子炉や地球からくる反ニュートリノ事象の識別には、遅延同時回路を用いる。この手法により、さらにバックグラウンド事象を減少させることが可能となる。

本論文では、序章で物理的な意義と Kam-LAND 実験について述べる。第 2 章で本実験に用いる液体シンチレーターの発光原理と、それに対する要請をまとめ、第 3 章以降で今回行なった実験結果をまとめる。第 3 章では、液体シンチレーターの発光量測定の結果、第 4 章では波形の時間特性、第 5 章では粒子識別能力の結果を述べる。そして、第 6 章で、本論文のまとめをし、第 7 章で、今後の課題を述べる。

1.2 物理的背景

1.2.1 原子炉反ニュートリノ

現在素粒子物理学、宇宙論分野においては、太陽ニュートリノ欠損問題など、ニュートリノ振動を示唆する実験結果がいくつか存在しているため、話題を呼んでいる。

しかし、太陽ニュートリノの検出数が予想よりも少ない、という太陽ニュートリノ問題は、標準太陽模型に不定性があるため、太陽から出る太陽ニュートリノの量自身にも不定性がある。そのため、太陽ニュートリノ欠損の問題も、太陽ニュートリノ自身の性質から来るニュートリノ振動によるものか、太陽模型の不定性から、出てくるニュートリノの数が少ないのかが決定できずにいる。

原子炉内では、燃料となるウラン、プルトニウムなどの構成物質の割合が時間ごとに変わる。この燃料構成が日々ごとに計算可能であり、また総熱出力を原子炉から知ることが可能である。このため、数%の精度でニュートリノのフラックスが分かる [1]。そこで、ニュートリノのフラックスを数%の精度で知ることのできる原子炉はニュートリノ振動を議論するためのニュートリノ源として非常に適しているといえる。また、原子炉では中性子過剰核のベータ崩壊からニュートリノが生成するため、ほぼ100%の率で $\bar{\nu}_e$ が放出される。この結果、原子炉は他のフレーバーの混合のない純度のよい反ニュートリノ($\bar{\nu}_e$)源となる。この点を生かし、原子炉から来るニュートリノを検出し、予想値と比較することによって検出量が少なくないかを確かめ、ニュートリノ振動の可能性を議論する。

ニュートリノ振動は、以下のようにして起こりうる。弱い相互作用の固有状態である3つのフレーバーニュートリノ(ν_e, ν_μ, ν_τ)は、質量固有状態の重ね合わせと考えられ、それぞれの質量固有状態に質量差がある場合、時間に応じてニュートリノの振動がおこると考えられる。ここでは、簡略化のため、2種類間のニュートリノ振動について考える。このときニュートリノ振動は、2つのフレーバー間の混合の強度 $\sin^2 2\theta$ と、ニュートリノの質量の2乗差 $\Delta m^2 (= m_{\nu_e}^2 - m_{\nu_\mu}^2)$ で特徴づけられ、ニュートリノのフレーバーの変わる確率は、

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) = \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{1.27 \Delta m^2 (\text{eV}^2) L (\text{m})}{E (\text{MeV})} \right) \quad (1.1)$$

と表される (付録 A 参照)。ここで、 $L(\text{m})$ はニュートリノが生成されてから検出されるまでに走行した距離、 $E(\text{MeV})$ はニュートリノのエネルギーである。この確率に応じて、ニュートリノが飛行中に他のフレーバーに変わってしまった場合、事象数は理論予想よりも少なくなる。

図 1.1 に、種々の実験グループによる $\nu_e \leftrightarrow \nu_\mu$ ニュートリノ振動パラメーター探索範囲の図を示す。

横軸が混合角 θ を含む $\sin^2 2\theta$ 、縦軸はニュートリノの質量の自乗差 $\Delta m^2 (= m_{\nu_e}^2 - m_{\nu_\mu}^2)$ を表す。図中の LAMPF と LSND などは、800 MeV 陽子加速器から出た陽子を標的に衝突させ、生成した π 中間子が静止した後崩壊して生成する低エネルギー (数 10 MeV) の ν_e 、 ν_μ 、 $\bar{\nu}_\mu$ ニュートリノの振動現象の検出が目的である。LSND では、 $\bar{\nu}_\mu \rightarrow \bar{\nu}_e$ の振動現象を探索した結果、 $\bar{\nu}_e$ の量が予想よりも増えていたために、ニュートリノ振動の許容パラメーター範囲を示した [2]。最近、飛行中に π 中間子が崩壊して生成するニュートリノ (60 MeV 以上) の $\nu_\mu \rightarrow \nu_e$ の振動現象も探索した結果、許容パラメーター範囲に一致することを示した [3]。この領域にニュートリノ振動解が存在するかどうかを、KARMEN 実験グループが 2~3 年のうちに検証する予定である [4]。BNL E776、FNAL、Minos や k2k などは、加速器から生じた高エネルギー π^\pm 、 K^\pm 中間子の飛行中の崩壊から生じた高エネルギー (数 GeV) のニュートリノを用いる。特に、Minos [5] や k2k [6] は、ニュートリノの飛行距離が 700 km、250 km と長距離であるため、long baseline 実験と呼ばれる。Minos では、ニュートリノの平均エネルギーが 12 GeV と高エネルギーであり、 τ 粒子を生成することが可能となる。その結果、 ν_μ - ν_τ 振動チャンネルを、 τ 粒子の検出により検証することが出来るという特徴をもつ。

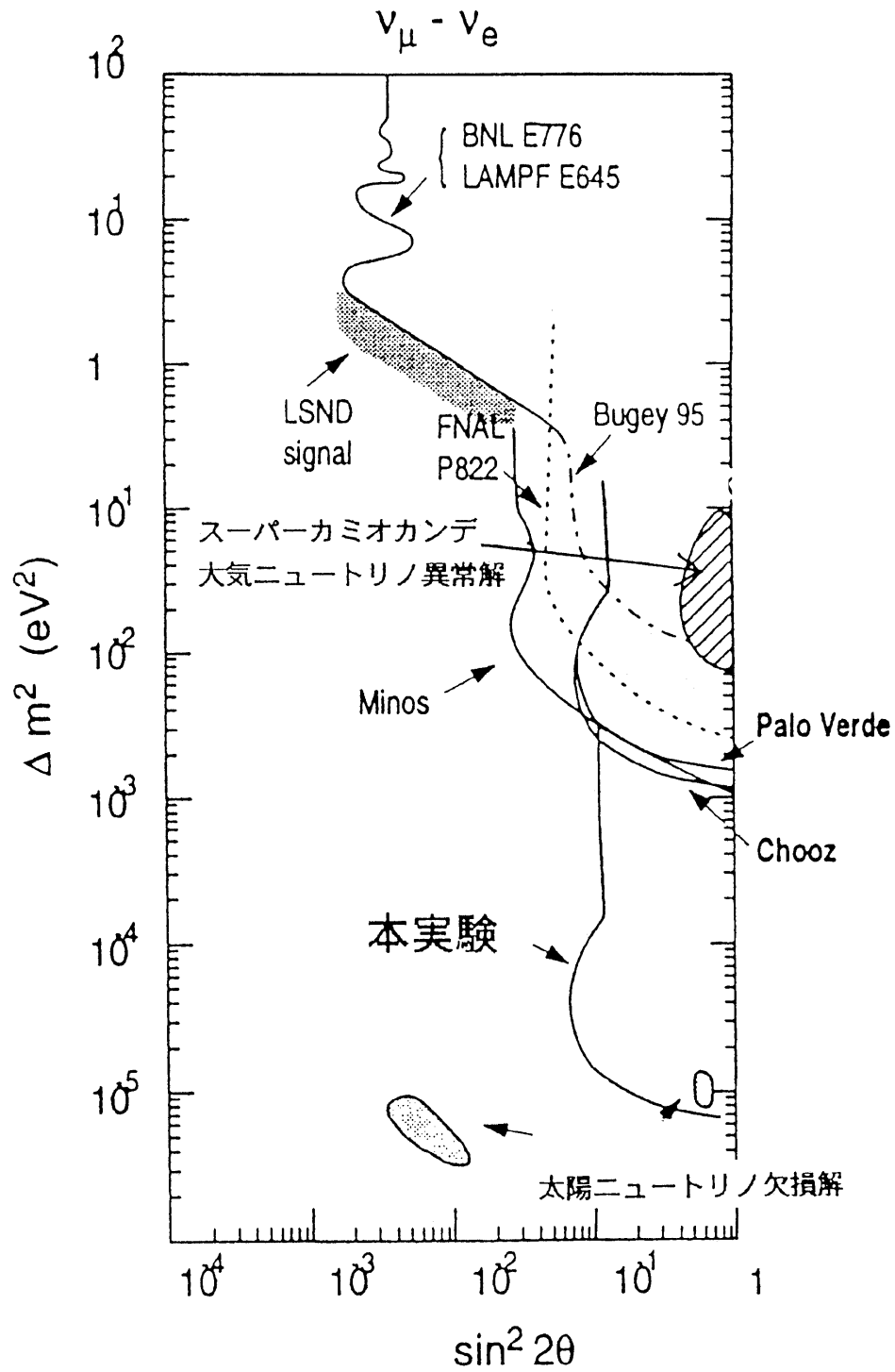


図 1.1: 種々の加速器や原子炉実験グループによる $\nu_e \leftrightarrow \nu_{\mu}$ ニュートリノ振動パラメーターの 90% C.L. 排除領域探索結果 (G.Gratta,stanford-HEP-97-03 による)

Bugey[7]、Palo verde[8]、Chooz[9]、Kam-LANDなどが、原子炉実験である。混合角 $\sin^2 2\theta$ が与えられると、ニュートリノ振動は以下のときに最大になる。

$$\Delta m^2 = \frac{1}{1.27} \times \frac{\pi}{2} \times \frac{E(\text{MeV})}{L(\text{m})} \quad (1.2)$$

そのため、 Δm^2 の検出能はニュートリノの飛行距離とニュートリノのエネルギーによって制限される。より小さい Δm^2 を探索するには E/L を小さく、つまりエネルギーの小さいニュートリノを検出するか、検出器までの距離を長く (long baseline に) する必要がある。

以下の表 1.1 に、原子炉反ニュートリノ検出器の性能を示す。

experiment	neutrino target mass	reactor distance	Δm^2 (eV ²)
Bugey	1200kg	15,40,95m	2×10^{-2}
Chooz	4800kg	1025m	1×10^{-3}
Palo Verde	12ton	740,850m	$\sim 10^{-3}$
Kam-LAND	1000ton	$\sim 150\text{km}$	$\sim 10^{-5}$

表 1.1: 原子炉ニュートリノ振動実験の性能のまとめ。あとの2つは測定中または計画

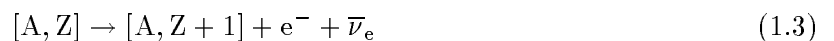
現行原子炉実験では最近結果を出した chooz 実験が最も質量の自乗差の検出能がよく、 $E = \text{数 MeV}$ 、 $L = 1,000\text{m}$ であるため、 Δm^2 で 10^{-3}eV^2 まできた。この結果を信用すると、カミオカンデの大気ニュートリノ異常を説明する $\nu_e \leftrightarrow \nu_\mu$ ニュートリノ振動パラメーターの許容範囲は否定された。

それに対し、我々 Kam-LAND では、原子炉から検出器までの距離が約 150km、原子炉ニュートリノの平均エネルギーが数 MeV であることから、 Δm^2 検出能は 10^{-5} までと、いままでにない未知の領域を探索できる可能性がある。また、太陽ニュートリノ欠損解のうち、大混合角解の検証が出来る範囲でもある。特にこの2点が、我々 Kam-LAND 実験の特徴であろう。詳しい Kam-LAND 検出器での事象数などは、第 1.3.3 章で述べる。

1.2.2 地球反ニュートリノ

地球は表面から 40TW の熱を放出している。そのエネルギーの大部分が地球内部の放射性核種 ^{40}K 、 ^{232}Th 、 ^{238}U などの崩壊エネルギーに由来していると考えられているが、未だ全ての熱の生成機構は解決されていない。地球反ニュートリノは地球の内部構造の情報を直接運んでくるため、地熱生成機構の解明などの重要な鍵を握っている。そこで我々は、地熱生成機構の解明を目的として、地球反ニュートリノの検出を試みる。地球内部に存在する U、Th のような放射性物質の測定から、地球内部エネルギー生成機構の解決に、新しい研究手段が提供されるであろう [10]。

反ニュートリノ $\bar{\nu}_e$ は、地球内部に存在する放射性核種のベータ崩壊から生じる。



ここで、 A 、 Z はそれぞれ原子番号と原子核の電荷をあらわす。

現在実際に地球反ニュートリノ検出を報告した実験は存在していない。ゆえに、この検出に成功すれば初めての試みとなり、地球内部の未知の点が解明される先駆けとなるだろう。原子炉ニュートリノと同様に、Kam-LAND 検出器での詳しい事象数は第 1.3.3 章で述べる。

1.2.3 宇宙初期起源反ニュートリノ

100 億年前から現在にいたる間におきた、超新星爆発残骸電子型反ニュートリノの観測を目指す。宇宙進化の各段階における超新星爆発の頻度と爆発した星の質量分布は、現在の宇宙大構造形成機構とその進化過程の解明に重大な影響をあたえる。宇宙初期の星の分布から現在の宇宙泡構造ができるまでの計算機シミュレーションは、多くの仮定を用いて求められており、本実験により観測に成功したならば、初めて実験に基づいた理論構築を可能にする。

1.2.4 太陽ニュートリノ

地球上では標準太陽模型から予想されるニュートリノを観測すべくいくつかの実験が行なわれている。Homestake(^{37}Cl) 実験、スーパー神岡実験(水チェレンコフ実験)、SAGE と GALLEX(^{71}Ga 実験) などであるが、いずれも標準太陽模型が予想する観測値よりも小さい観測結果を得ている。これを太陽ニュートリノ問題という。図 1.2 に、標準太陽模型から予想されるニュートリノのエネルギースペクトルを示す [11]。

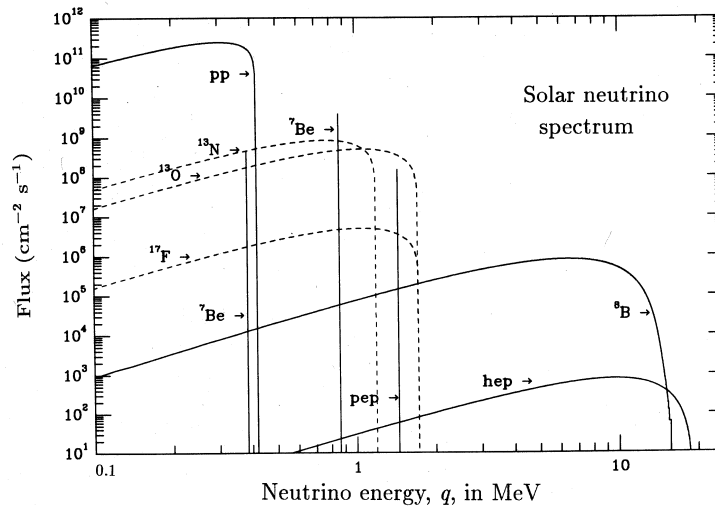


図 1.2: 標準太陽模型の予想する太陽ニュートリノのエネルギースペクトル [11]。

スーパー神岡実験では太陽ニュートリノが水中で電子と弾性散乱し、その跳ね飛ばされた電子の出すチェレンコフ光を検出することにより、太陽ニュートリノを検出する。解析に使われているデータは、現在 5~6MeV 以上であるため、純粋に ^8B ニュートリノだけを観測していて、標準太陽模型の予想に対して 35% という結果を出している。

Homestake 実験は、615 トンの C_2Cl_4 を用いて、



反応で生じた放射性的 ^{37}Ar ガスを回収して小さな比例計数管により、 ^{37}Ar の崩壊数をカウントしている。 ^{37}Cl によるニュートリノ捕獲反応のしきい値は、814keV である。このため、Homestake 実験では、 ^8B と ^7Be の事象が主となるが、その他のニュートリノも含まれる。それら全ての太陽ニュートリノ

ノの検出数を足し合わせた結果、標準模型の 29% という結果を出している。但し、 ^8B と ^7Be などの事象を独立に解析することはできない。

我々 Kam-LAND では、バックグラウンドが十分小さく、threshold が 0.25 MeV 程度のエネルギーに設定できたならば、 ^8B だけでなく ^7Be などのニュートリノも検出できる。その結果、 ^8B と ^7Be のエネルギースペクトルを独立に解析することにより、標準太陽模型の信頼性を確かめ、この太陽ニュートリノ問題の解決を目指す。

1.3 Kam-LAND 実験

1.3.1 検出器

スーパー神岡実験は水チェレンコフ検出器を利用し、検出できる最低エネルギーが 5~6 MeV になっている。水中にはバックグラウンドとなる放射性物質がたくさん存在しているため、このしきい値が現在の限界となっている。一方、我々 Kam-LAND 実験の標的とするニュートリノは数 100 keV 程度までと、非常に低エネルギー事象になっている。そこで、我々は放射性不純物の混入量の少ない液体シンチレーターを用いる。液体シンチレーターを用いると、検出する最低エネルギーをさげることが可能となる。また、シンチレーション光はチェレンコフ光に比べて同じエネルギー付与に対して放出される光子数が多いために、エネルギー分解能がよくなるという特徴もある。我々は、事象数をできるだけ多くするために、この液体シンチレーター検出器の target mass を 1,000 トンにする。

以下の図 1.3 に、Kam-LAND の測定装置の図を、図 1.4 にその検出器全体の計画図を示す。

直径 13m の球形の液体シンチレーターの周囲には 1,300 本の光電子増倍管が取り付けられる。この光電子増倍管には、神岡実験で用いられた 20 インチ光電子増倍管の光電面の範囲を限定して受光面を 17 インチに改良したものが使用される予定である。この理由は、光電子が入射する光電面の位置による光電子がダイノードに到達するまでの走行時間のふらつきを少なくして、時間分解能の向上を狙うためである。また、ダイノードにベネチアン・ブラインド型を用いていたものを、時間性能の良いライン・フォーカス型に変更する。

液体シンチレーター槽はバルーン容器に囲まれ、その外側には直径 17m のステンレス槽があり、これはイソパラフィンで満たされている。この槽は事象の検出のためではなく、主に光電子増倍管中の放射性核種からの γ 線や、検出器外部の岩盤からの放射線の遮蔽などに利用される。

さらにその外側には直径 19m、高さ 19.05m の円筒形の超純水槽がある。超純水槽も、バックグラウンド除去の役割を果たしている。ステンレス槽の内側には 1,300 本の光電子増倍管が球状に設置されていて、ここから液体シンチレーター内で発せられた光信号を読みとる。円筒形のタンクの側面に光電子増倍管を設置せず球状にした理由は、検出器の対称性を保ち、非対称性による補正を少なくすることと共に、光電子増倍管の立体角を増加させるためである。1,300 本の 17 インチ光電子増倍管の見込む、全体の表面積に対する割合 (photon coverage と呼ばれる) は、約 25% となる。

外水槽の内側にも光電子増倍管が設置されていて、これは検出器外部から来る荷電粒子による事象の識別などを目的にしている。大部分は、宇宙線 μ 粒子事象である。ここでは、荷電粒子が媒質中の光速以上で飛行した場合に放出されるチェレンコフ光の検出により、宇宙線の到来を検出する。

液体シンチレーター槽と純水槽からは管が出ていて、それぞれの純化装置までつながっている。この純化装置により、液体シンチレーターや純水内に混入した放射性不純物を極力取り除く。また、同時に液体シンチレーター中に溶解している酸素も取り除く。

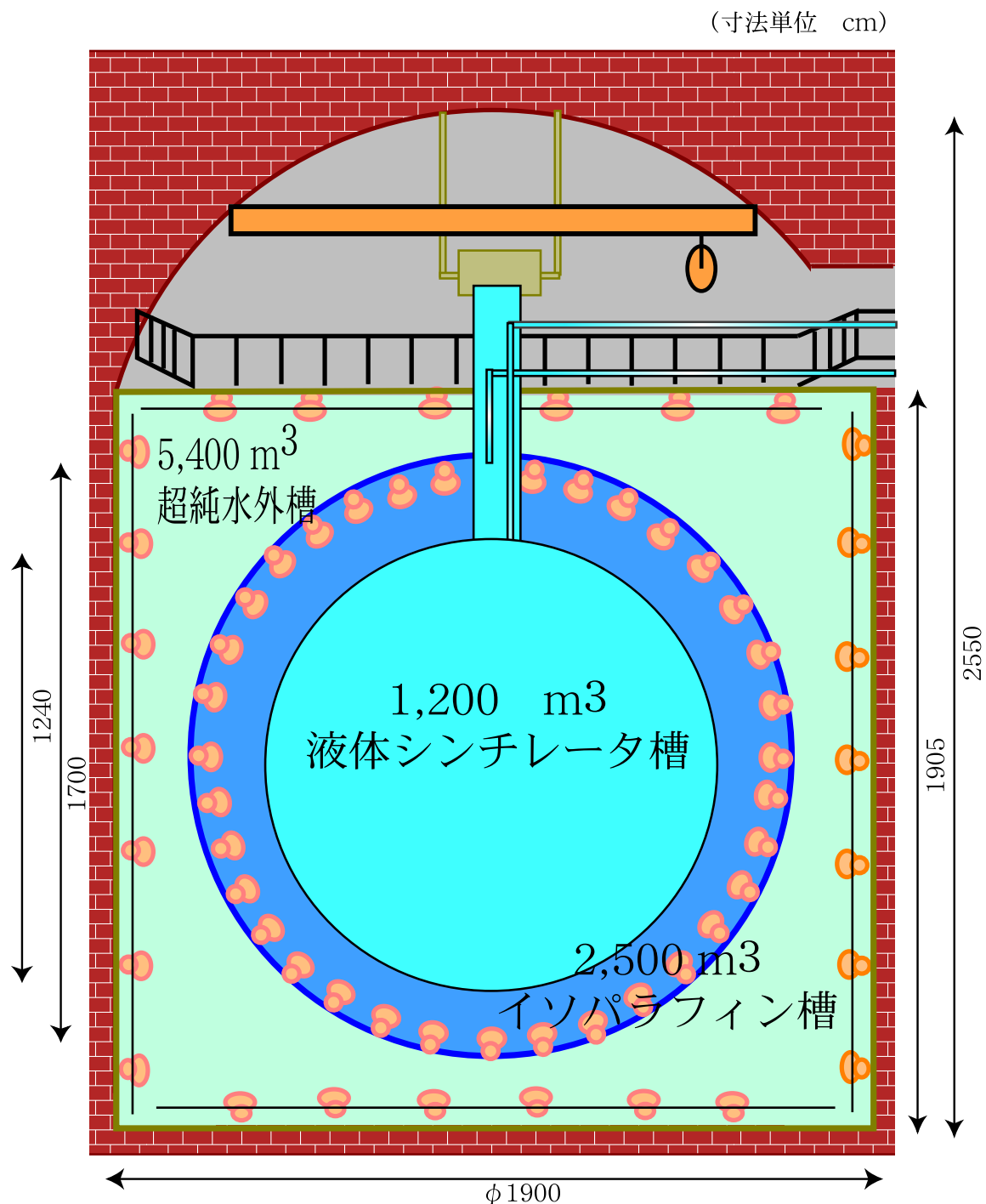


図 1.3: Kam-LAND の検出器本体

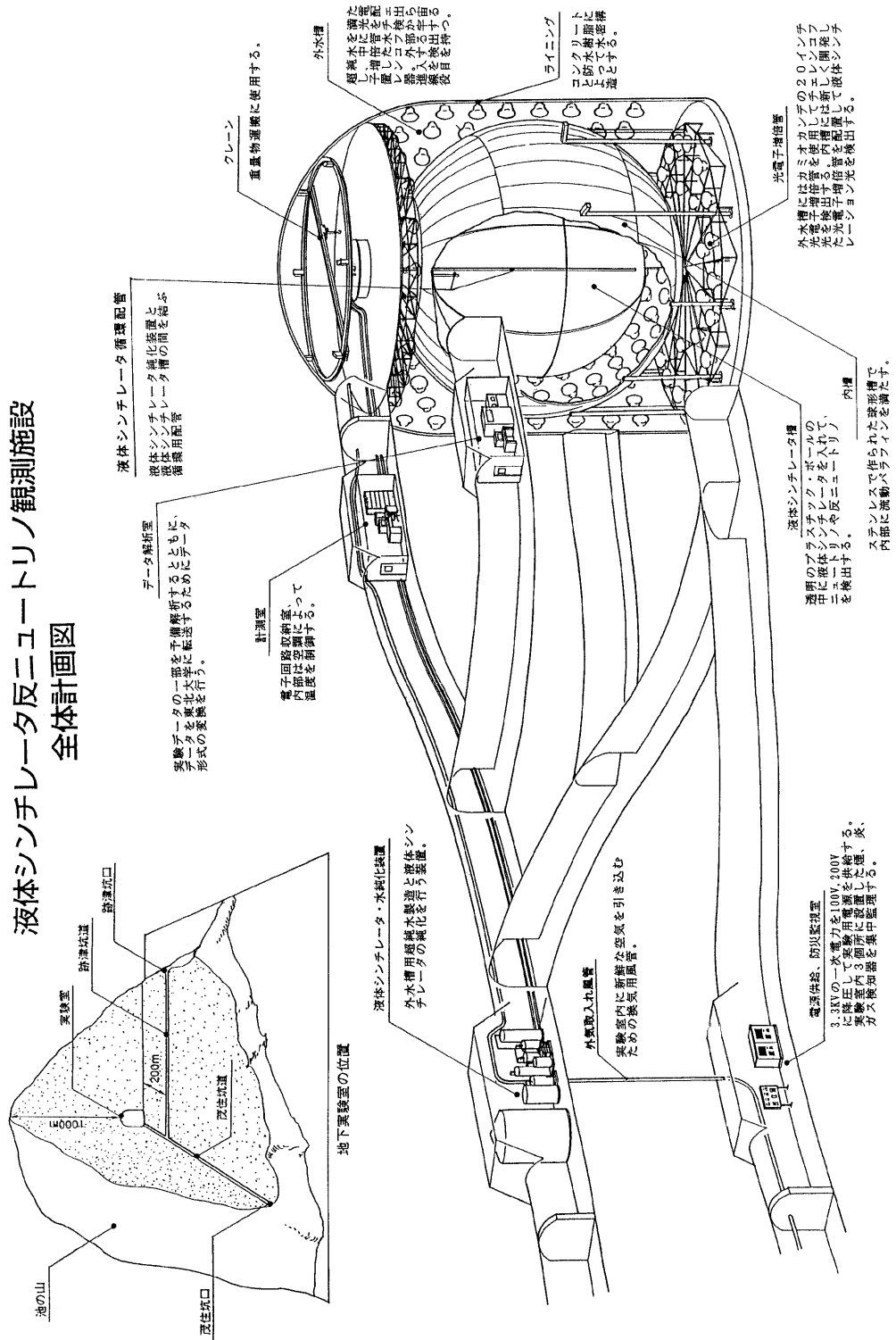


図 1.4: Kam-LAND 観測施設の全体計画図

1.3.2 反ニュートリノ検出原理

本実験の主目的である電子型反ニュートリノ反応は、液体シンチレーター内で以下のような過程により遅延同時信号を発生する。

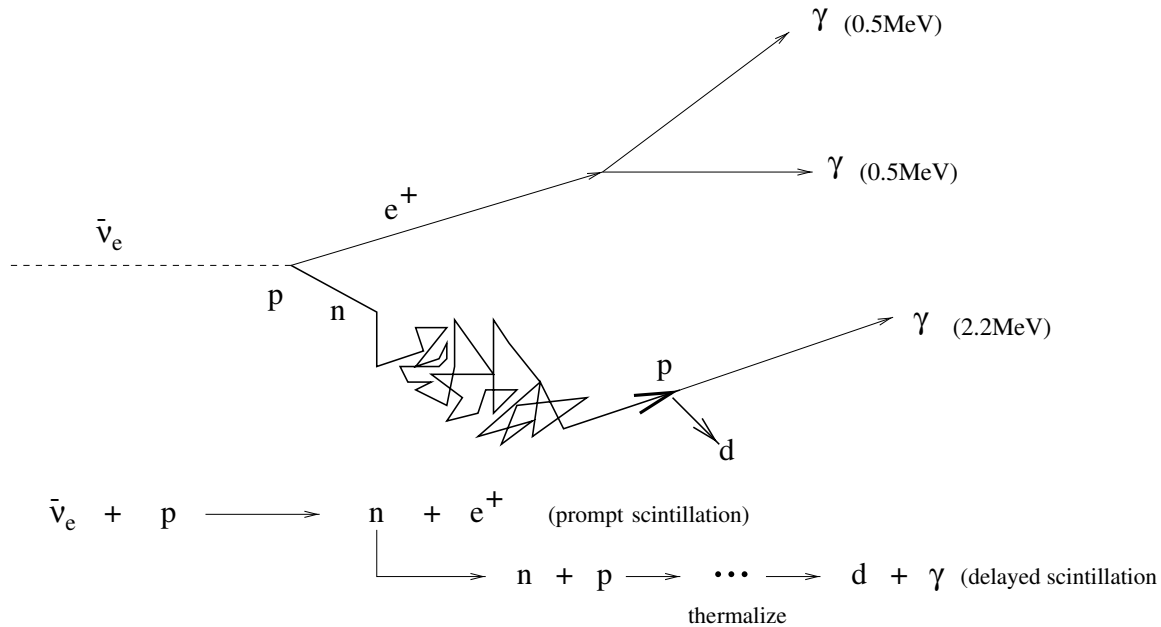


図 1.5: 遅延同時計数法で取得される信号の概略図

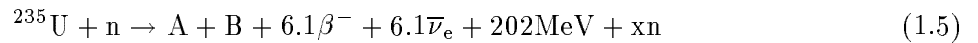
まず、電子型反ニュートリノ ($\bar{\nu}_e$) と液体シンチレーター中の水素原子核 (p) が衝突し、陽電子 (e^+) と中性子 (n) を生じる。陽電子の運動エネルギーは電子型反ニュートリノのエネルギーからしきい値の 1.8 MeV を引いたものになる。陽電子はその運動エネルギーから、蛍光を発生しながら数 cm 飛行し、最後に液体シンチレーター中の電子と対消滅を起こしエネルギー 0.5 MeV の 2 本のガンマ線を発生する。これらのガンマ線は反対方向にそれぞれ平均 10 cm 程度飛行したあと、コンプトン散乱と光電効果により 0.5 MeV のエネルギーを放出する。これらの現象はニュートリノ反応から数 ns 以内に生じ、合計で $E_\nu - 0.8$ MeV のエネルギーが放出される。このようにして発生した信号を prompt signal と呼ぶ。一方中性子は数 10 keV 程度の反跳エネルギーを持ち、液体シンチレーター中の原子核と衝突を繰り返し熱中性子化し、平均 $170 \mu\text{s}$ 後約 30 cm 離れた所で陽子に吸収され、2.2 MeV のガンマ線を出す。これを delayed signal と呼ぶ。つまり、ひとつの反応に対して平均 $170 \mu\text{s}$ 離れた 2 つの信号が出ることになる。この遅延同時信号が生じたかどうかは prompt signal だけで判断することは出来ず、delayed signal が生ずるまで待たなければならない。500 μsec の間開かれたゲートのなかで、delayed signal が生じて遅延同時信号であったとの判断が下された場合に両方の信号を読みだし、電子型反ニュートリノ信号の候補として採用する。さらに、それぞれエネルギーのカットを入れ、prompt signal と delayed signal の反応位置が 1 m 以上離れていない、という条件も課して、最終的な信号を同定する。

1.3.3 原子炉、地球反ニュートリノの検出事象数の見積り

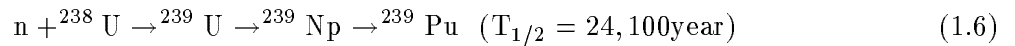
この章では、Kam-LAND 検出器の反ニュートリノ源となる、原子炉反ニュートリノと地球反ニュートリノのフラックスと検出事象数の見積りを行なう。

原子炉反ニュートリノフラックス

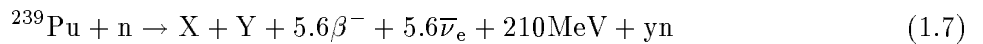
原子炉内の主な核分裂を起こす物質は ^{235}U であり、この同位体の約 3% を占める。原子炉内では主に、以下の式 (1.5) のように ^{235}U が熱中性子を吸収して核分裂を起こし、生じた娘核がベータ崩壊する際に反ニュートリノが生成される。



最も支配的な自然ウラン同位体である ^{238}U は、0.8MeV 以上の高速中性子に対して核分裂を起こすことが可能である。また ^{238}U は、式 (1.6) のように熱中性子の捕獲反応の後ベータ崩壊を 2 回繰り返し、核分裂性核種 ^{239}Pu を生み出す。

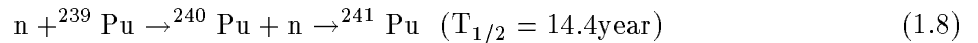


こうして生成した ^{239}Pu は、式 (1.7) のように熱中性子により核分裂を起こし、原子炉の燃料となり得る。



このようにして核分裂一個あたり平均約 6 個の反ニュートリノが生じる。核分裂一個あたりに解放されるエネルギーは平均約 204MeV である。

また ^{239}Pu は、以下の式 (1.8) のように熱中性子を連続して吸収し、 ^{241}Pu を生み出すことも可能である。



^{241}Pu もまた、熱中性子により核分裂を起こすことが出来る。このようにして、原子炉内の燃料混合比は時間経過によって変動する。この効果を、burn-up 効果と呼ぶ。

表 1.2 に、4 種の同位体について、核分裂あたりに解放されるエネルギーを示す [12]。神岡の検出器に

Isotope	Energy release [MeV/fission]
^{235}U	201.8
^{239}Pu	210.3
^{238}U	205.0
^{241}Pu	212.6

表 1.2: 核分裂あたり解放されるエネルギー, in MeV[12]

到達する反ニュートリノを生み出す原子炉は、柏崎、大飯、高浜、浜岡、敦賀など多数ある。図 1.6 に、その日本国内に存在する原子力発電所の分布図を示す。

また、それらの原子炉の熱出力と神岡までの距離をまとめると、表 1.3 のようになる。

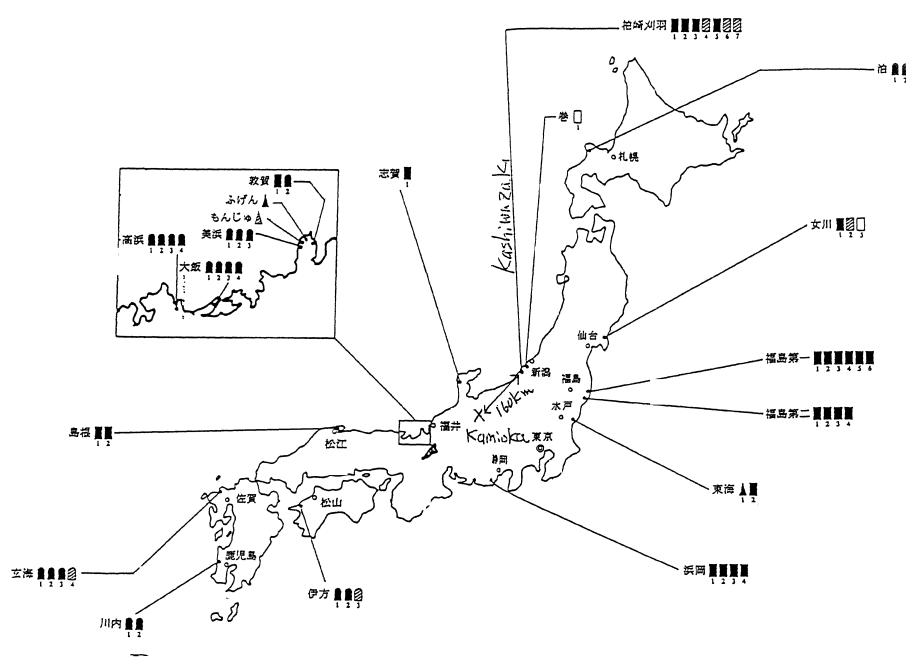


図 1.6: 日本国内の原子力発電所の分布図

reactor	power (GWth)	distance (km)	power flux (GW/cm ²)
柏崎	24.5	160	7.7×10^{-15}
大飯	13.7	190	2.9×10^{-15}
高浜	10.2	210	1.8×10^{-15}
浜岡	10.6	210	1.9×10^{-15}
敦賀	4.5	150	1.5×10^{-15}
志賀	1.9	97	1.3×10^{-15}
美浜	4.9	165	1.4×10^{-15}
福島第一	14.2	357	8.9×10^{-16}
福島第二	13.2	351	8.5×10^{-16}
東海	3.3	306	2.8×10^{-16}
島根	3.8	414	1.8×10^{-16}
伊方	6.0	560	1.5×10^{-16}
玄海	6.7	770	9.0×10^{-17}
女川	4.1	442	1.7×10^{-16}
泊	3.3	804	4.1×10^{-17}
川内	5.3	844	5.9×10^{-17}

表 1.3: 日本国内の原子力発電所の熱出力と神岡までの距離

表 1.3中の最後の欄は、原子炉からみた神岡検出器の立体角に熱出力をかけたもので、距離を L とすると、 $\text{GW}/(4\pi L^2)$ で表される量である。1995 年度の全国の原子炉運転効率の 77.21% を考慮して、神岡での全国の原子炉からくる全熱出力フラックスは $1.5 \times 10^{-14} [\text{GW}/\text{cm}^2]$ となる。

従って、神岡での全ニュートリノフラックスは、

$$\begin{aligned} \text{neutrino flux} &= \frac{(\text{n/fission}) \times (\text{GW}/\text{cm}^2)}{\text{releaseE}(\text{MeV})/\text{fission}} \\ &= \frac{6 \times 10^9 \times 1.5 \times 10^{-14}}{1.6 \times 10^{-19} \times 200 \times 10^6} [\text{n}/\text{cm}^2/\text{s}] \\ &= 2.9 \times 10^6 [\text{n}/\text{cm}^2/\text{s}] \end{aligned} \quad (1.9)$$

となる。ここで、 $W=\text{J}/\text{s}$ 、 $J=1/1.6 \times 10^{-19} [\text{eV}]$ である。この結果を、エネルギースペクトルに直したグラフが図 1.7である。核分裂当たり、単位エネルギー当たりのニュートリノのスペクトルは、 ^{235}U については、文献 [13] を、 ^{239}Pu については文献 [14] を参照した。

このとき、原子炉中の燃料は、 ^{235}U が 70%、 ^{239}Pu が 30% であると仮定した。計算されたニュートリノスペクトルに対しフィッティングすると [8]、

$$\frac{dN_\nu}{dE_\nu} = \exp(14.529 - 0.53124 \times E_\nu - 0.045672 \times E_\nu^2) \quad (1.10)$$

となった。エネルギーの大きいところで多少ずれているが、 $1\sim 3.5\text{MeV}$ までは 3% 以内、 $4\sim 4.5, 6.5\text{MeV}$ では 6% 程度、 $5, 5.5\text{MeV}$ で 10%、 6.5MeV で 17%、 8MeV では 97% となった。 8MeV 程度のエネルギーでは 1 年間に数事象しか検出しない。そのため、今回はこのエラーを考慮しない。

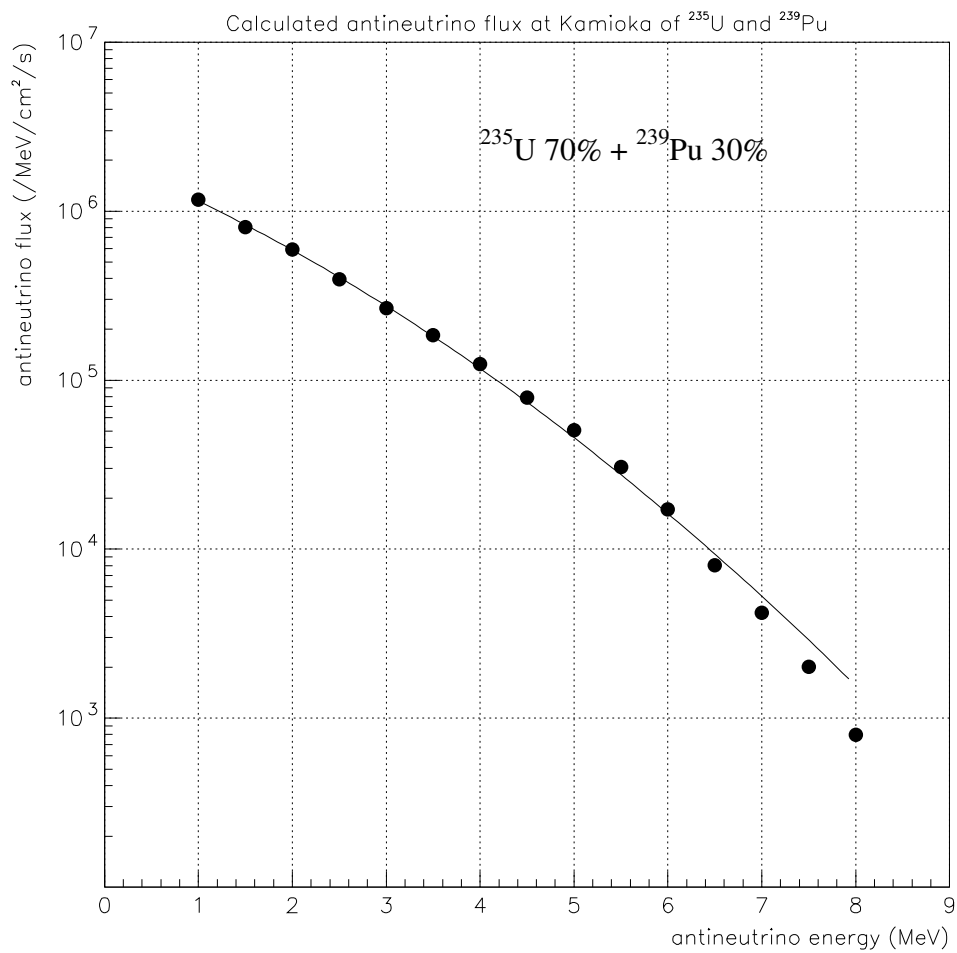


図 1.7: 原子炉中の燃料が、 ^{235}U 70% と ^{239}Pu が 30% であると仮定した場合の、全国の原子炉から神岡検出器に到達する反ニュートリノのフラックスの総和

地球反ニュートリノスペクトル

地球反ニュートリノ $\bar{\nu}_e$ は、地球内部に存在する放射性核種のベータ崩壊から生じる。



ここで、 A 、 Z はそれぞれ原子番号と原子核の電荷をあらわす。主に寄与する放射性核種は以下の表 1.4 に示すように 4 つあり、 ^{238}U と ^{232}Th の中には崩壊鎖も含める [15]。表 1.4 は、地球表面に近いところに存在する放射性核種ごとの、地上に到達する反ニュートリノのフラックス量を示したものである。

Isotope	Integrated flux [$/\text{cm}^2/\text{s}$]
^{40}K	1.1×10^7
^{87}Rb	4.6×10^6
^{232}Th	3.5×10^6
^{238}U	3.5×10^6

表 1.4: 地球表面から 100km 以内に存在する主な放射性同位体からのフラックス [15]

これをもとに、我々 Kam-LAND 検出器で検出できる地球反ニュートリノのイベント数を計算する。以下の図 1.8 に、 ^{40}K 、 ^{232}Th 、 ^{238}U から来る反ニュートリノのエネルギースペクトルを示す。

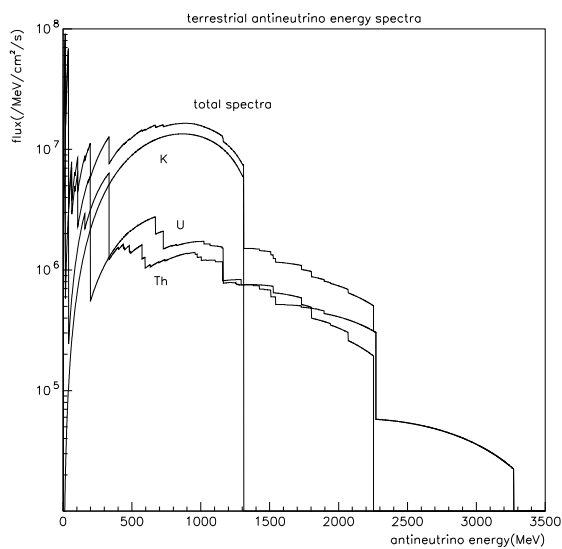


図 1.8: 地球反ニュートリノのエネルギースペクトル

反ニュートリノの Kam-LAND 検出器での事象数

電子型反ニュートリノは、液体シンチレーター中の陽子と逆ベータ崩壊反応を起こし、陽電子と中性子を生じる。



この反応の断面積は

$$\sigma = 9.548 \times 10^{-44} \times (E_\nu - 1.3) \sqrt{(E_\nu - 1.3)^2 - m_e^2} \text{ [cm}^2\text{]} \quad (1.13)$$

(エネルギーの単位は MeV)

となる。反応の頻度は反ニュートリノフラックス F_ν 、検出器内での陽子の数 N_p に比例する。

$$N = \sigma \times F_\nu \times N_p \quad (1.14)$$

また、 N_p は、液体シンチレーターの水素 / 炭素比、 $r_{H/C}$ と次の関係がある。

$$N_p/w = 6.02 \times 10^{23} / (1.00794 + 12.011/r_{H/C}) \quad (1.15)$$

w は液体シンチレーターの重さであり、 $r_{H/C}=1.9$ の時、 $N_p/w=4.1 \times 10^{31}/500t$ になる。液体シンチレーターの総重量は 1,000 トンだが、有効体積を 500 トンとする予定であるため、500 トン当たりの陽子数に規格化する。これから、実際に検出される原子炉反ニュートリノと地球反ニュートリノを合わせたスペクトルは図 1.9 のようになる。また、丸印が原子炉と地球反ニュートリノを合わせた 500keV 幅に区切ったイベント数を表し、四角印が原子炉のみのイベント数を表す。誤差は、統計誤差のみ記す。さらに、原子炉のみのスペクトルについてニュートリノ振動が、パラメーター $\sin^2 2\theta=0.7$ 、 $\Delta m^2=10^{-5}$ として起こった場合のスペクトルを一点鎖線で示す。

これを積分すると、1 年間に有効体積 500 トン中の検出器で、約 390 イベント / 年となり、原子炉反ニュートリノは一日約 1 イベント検出される。さらに、10 年間検出器を稼働すると、エラーは以下の図 1.10 のようになり、それぞれの事象を解析することが可能である。

但し、この計算には、宇宙線 μ 粒子事象による 3s の dead time 効果を入れていない。もし、 μ 事象の位置を同定できなければ、付録 C に示すように、検出器の有効体積は 50% になる。また、検出器の効率は 100% と仮定している。

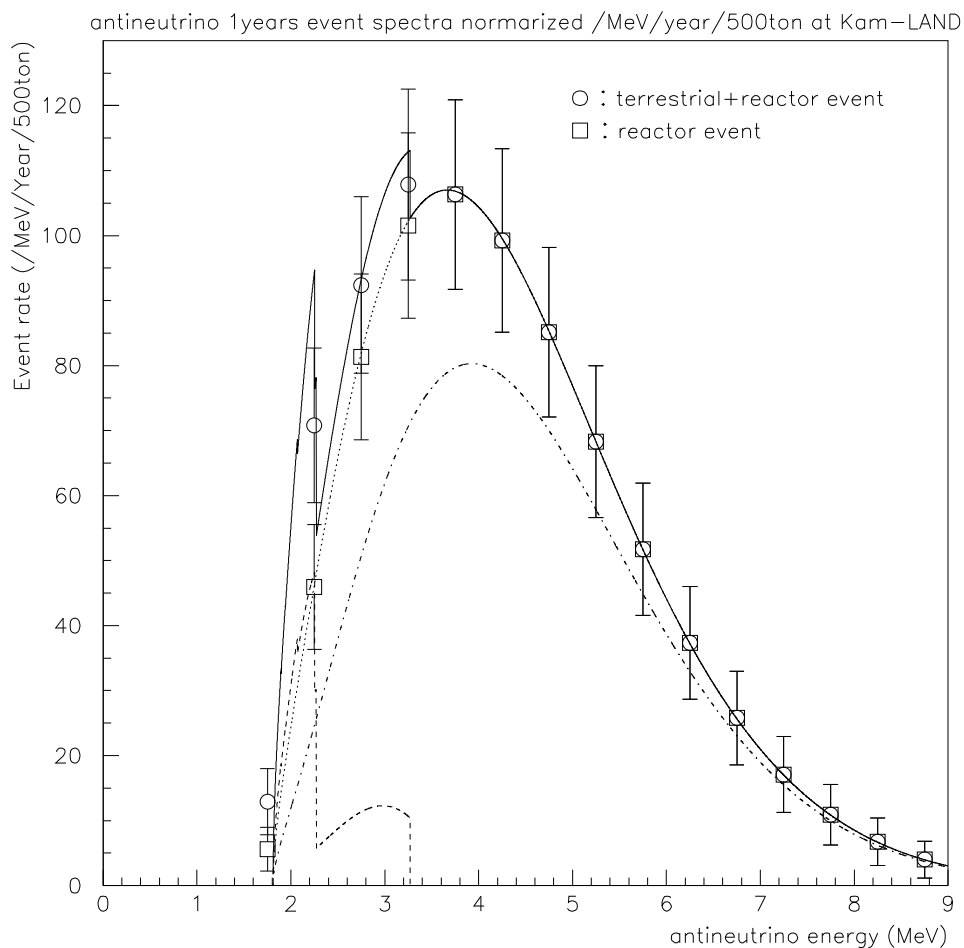


図 1.9: 原子炉反ニュートリノと地球反ニュートリノを合わせた神岡検出器内で起こる 1 年間の事象のエネルギー分布。太い実線が地球反ニュートリノと原子炉反ニュートリノの事象を合わせた分布で、破線が地球反ニュートリノを、点線が原子炉反ニュートリノの事象を表す。一点鎖線は、ニュートリノ振動が $(\sin^2 2\theta, \Delta m^2) = (0.7, 10^{-5})$ のパラメーターに従って起こる場合のスペクトルを示す。また、丸印は原子炉と地球反ニュートリノ事象を、500keV ごとに足し合わせて、単位 MeV 当たりの事象数に規格化した数を表し、四角は原子炉のみの事象である。また、誤差は、統計誤差のみ記す。

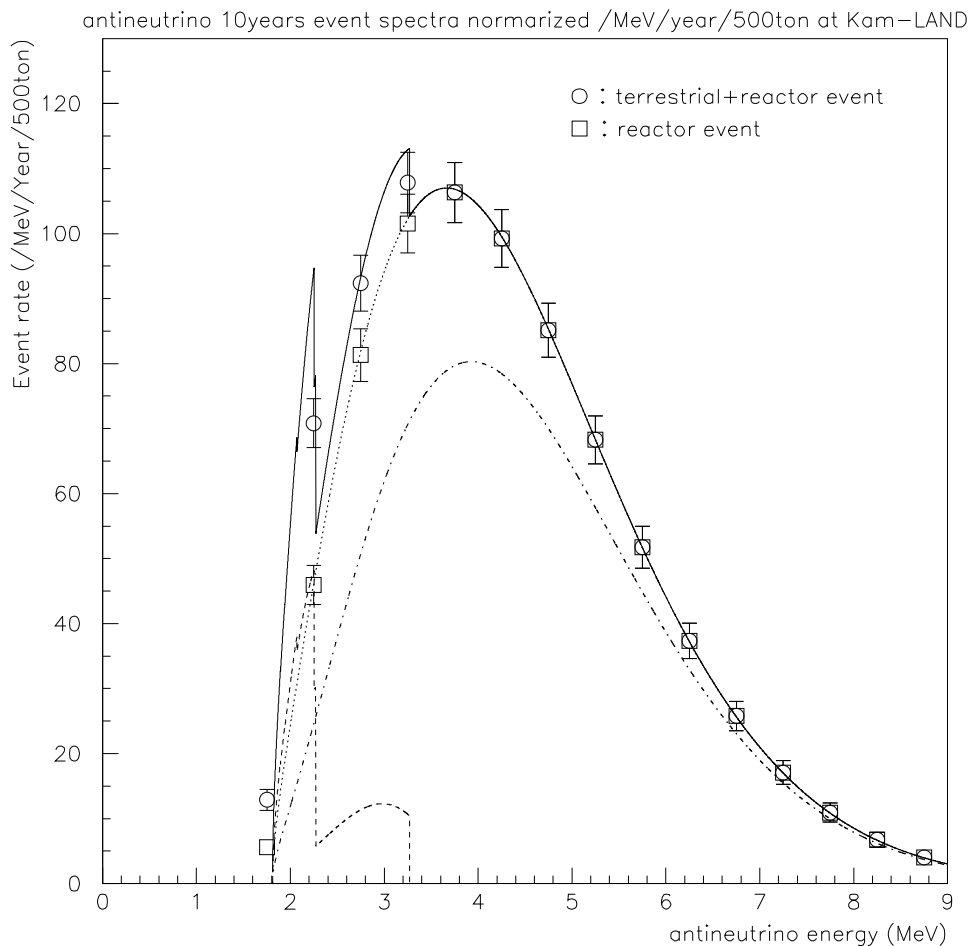


図 1.10: 原子炉反ニュートリノと地球反ニュートリノを合わせた神岡検出器内で起こる 10 年間の事象のエネルギー分布。太い実線が地球反ニュートリノと原子炉反ニュートリノの事象を合わせた分布で、破線が地球反ニュートリノを、点線が原子炉反ニュートリノの事象を表す。一点鎖線は、ニュートリノ振動が $(\sin^2 2\theta, \Delta m^2) = (0.7, 10^{-5})$ のパラメーターに従って起こる場合のスペクトルを示す。また、丸印は原子炉と地球反ニュートリノ事象を、500keV ごとに足し合わせて、単位 MeV 当たりの事象数に規格化した数を表し、四角は原子炉のみの事象である。また、誤差は、統計誤差のみ記す。

1.3.4 バックグラウンド

Kam-LAND 実験での反ニュートリノ事象の頻度は、1日約1事象である。反ニュートリノ源を止めることはできないので、バックグラウンド事象のみを測定することは非常に難しい。従って、バックグラウンド事象は、本物の信号に比べて十分少ないことが必要である。

電子型反ニュートリノ信号と混同してしまうバックグラウンドの源は数種類ある。液体シンチレーター内に U、Th、K などが混入していると、それらの崩壊鎖や核分裂から α 線、 β 線、 γ 線、中性子などが単発的に、もしくは連続して放出されるため、バックグラウンドとなる。このとき、液体シンチレーター内の U、Th 量が 10^{-14} 以下、K 量が 10^{-11} 以下であれば、これらのバックグラウンドは1日0.1事象以下まで小さくなる（詳しくは、付録Bに記す）。

また、崩壊鎖からのラドン以外に、空気中にもラドンは存在する。そのラドンが混入しないためにも、検出器は、完全に密閉される。また、ラドンは比較的短い寿命（半減期 $T_{1/2}=3.824\text{day}$ ）を持つため、建設時に混入してしまったラドンは検出器を密封してから数カ月で、その粒子のほとんどが崩壊するであろう（付録B参照）。

検出器内のバックグラウンドとなる宇宙線 μ 粒子は Kam-LAND 検出器が地下約 1,000m(=2,700m.w.e : meter water equivalence: 水換算深度) の位置に存在するため、強度は地表の約 10^{-5} 倍となり、 $1/600[\text{s}/\text{m}^2]$ となる。このため、Kam-LAND 検出器による宇宙線 μ 粒子の検出頻度は約 0.47Hz となる。宇宙線 μ による ^{12}C の原子核粉砕反応により、 $Z=6$ 、 $N=6$ までの原子核が生成される可能性がある。核粉砕の断面積は正確に知られていなく、1桁程度の不確かさがある。また、 μ が検出器内で原子核に捕らえられ、核反応により新しい核種を作り出すこともある。以上のようにして生成された核種の中で、ベータ崩壊とともに、中性子を放出する場合がある。これは、遅延同時計数法にかかるバックグラウンドになる。こうした事象は、 μ 粒子の飛跡に沿って半径 1m 以内の空間を 3 秒間解析データから省くことにより取り除く（付録C参照）。岩盤からの γ 線や中性子は、1m の厚さの純水層、2m のイソパラフィン槽に遮蔽される。さらに必要とあらば、有効体積 (fiducial volume) を定義し、液体シンチレーター槽の表面から 1m を遮蔽用として解析から省くことにより、取り除く。

1.4 テストベンチ

1.4.1 検出器

現在、Kam-LAND 実験の予備実験として、東北大学内で小型の液体シンチレーター検出器を作成し、種々の検出器の性能を調べる計画がある。以下に、そのテストベンチの横側から見た予定図を示す。

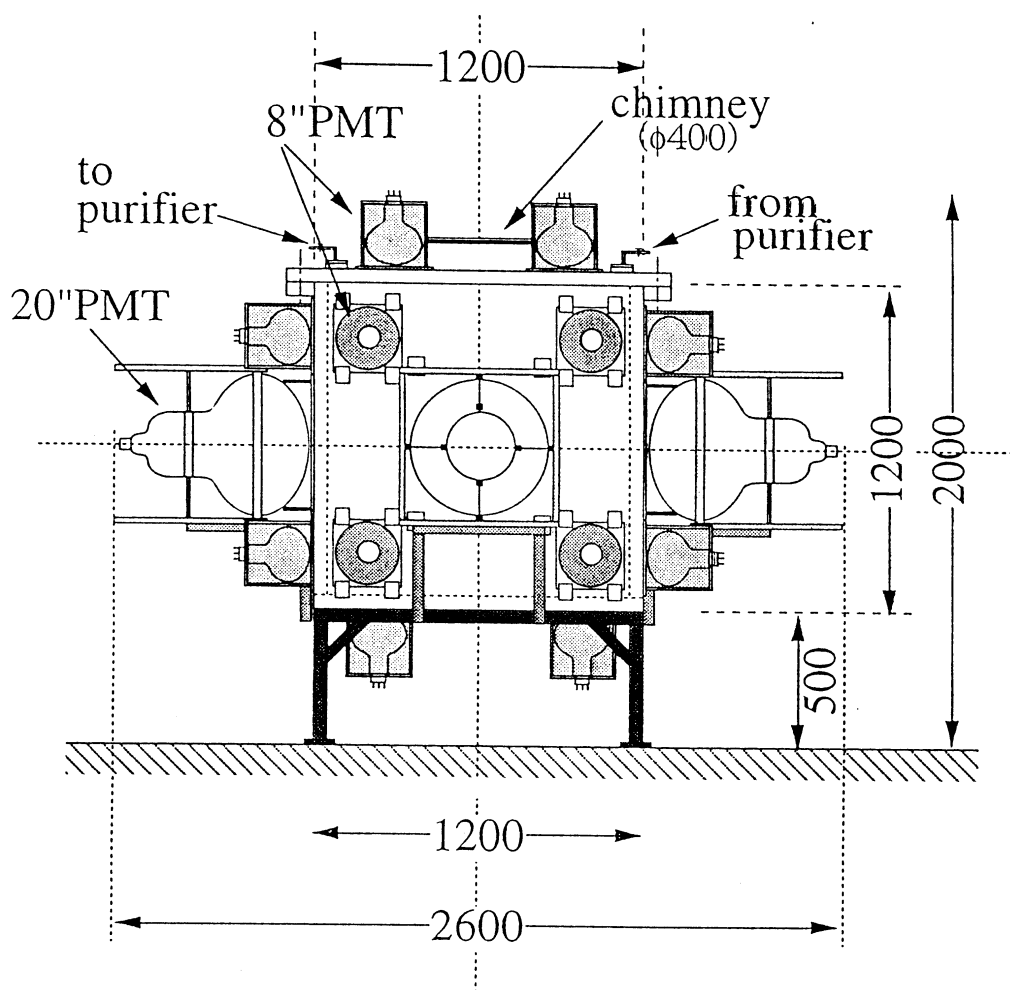


図 1.11: テストベンチの検出器の図

液体シンチレーターで満たすアクリル槽は 1.5m^3 の立方体¹であり、側面には主に光量測定のための 20 インチの光電子増倍管を 4 本取り付け、時間情報を得るためにさらに 24 本の 8 インチ光電子増倍管をすべての面に取り付ける。

¹液体シンチレーターは引火性液体（消防法で定める危険物第 4 類）であり、引火点によりその使用量（指定数量）が制限されている。すなわち 1 気圧での引火点が 21°C 以上 70°C 未満なら第 2 石油類で 1,000 リットル、 70°C 以上 200°C 未満なら第 3 石油類で 2,000 リットルである。指定数量以上の取り扱いが貯蔵所、製造所以外では禁止されている。今回は、 n/γ 分離と発光量の許す範囲内までイソパラフィン混ぜた、引火点 70°C を越える液体シンチレーターを用いるために、2,000 リットルまでは使用することが出来る。

1.4.2 目的

テストベンチには、以下のような目的がある。

1. Kam-LAND 実験で使用する予定の遅延同時計数法での信号取得が可能かを測定する。Kam-LAND 実験では信号としては電子型反ニュートリノイベント検出を目的とするが、今回のテストベンチは線源として $^{241}\text{Am}/\text{Be}$ を用いる。この線源からは中性子とガンマ線が放出され、中性子が液体シンチレーター中の水素原子核 (P) を弾きだし、まずは陽子がシンチレーション光を発する。そのあと、熱中性子化した中性子が陽子に吸収されたときに、ガンマ線が放出される。その2つの信号を遅延同時計数法で検出できるかどうかを確かめる。
2. 液体シンチレーターの特性を調べる。今回テストベンチに使用する液体シンチレーターは、バイクロン社製の BC519 を 25%、イソパラフィンとして昭和シェル石油社製のパラオール 250 (P 250) を 75% 混入したものである。この液体シンチレーターが、発光量、粒子識別など期待する性能を発揮しているかどうかを実験する。また、粒子識別能は大型の容器を用いた場合には分離が悪くなるという結果が存在しているので、そのときの分離法も確立する。
3. 純化装置の開発、極微量不純物の測定をする。我々の実験では、液体シンチレーター内の放射性不純物はできるだけ除かなければならない。特に、U、Th は 10^{-14}g/g 以下、K は 10^{-11}g/g 以下、という目標がある（付録 B 参照）。今回は純化装置が実際にこの要求を満たすだけの性能があるかどうかをチェックし、またこの実験装置でこれらの放射性不純物の混入量を測定する手法を確立する。純化装置の具体的な働きを述べると、U、Th、K の除去には液々抽出法をもちいる。金属塩、金属酸化物の、水と液体シンチレーターに対する可溶性の違いを利用する。金属塩などは極性溶媒である水やメタノールに良く溶けて、非極性有機液体には溶けにくい。この性質を利用し、液体シンチレーターを純水の中に通し、液体シンチレーター内に混入している金属塩を水に溶解させることにより純化する。また、液体シンチレーター中の酸素やラドンガスを取り除くため、窒素でバブリングする。このようにして、液体シンチレーター内に混入している物質を我々の要求を満たすまで純化できるかどうかを調べる。

第 2 章

液体シンチレーターの特性

我々は Kam-LAND 実験の検出器として液体シンチレーターを用いる。液体シンチレーターは大容量にすることが容易であり、また形が自在に変えられるので非常に便利である。本論文の目的は、液体シンチレーターの総合的な特性を調べることにある。そのため、この章では液体シンチレーターを構成する物質や、発光原理、クエンチング機構の原理などについて述べ、最終的に Kam-LAND 実験で使用される液体シンチレーターに対する要請をまとめた。

2.1 液体シンチレーターの構成

液体シンチレーター溶液の主成分は溶媒および溶質である。以下に、それぞれの役割について述べる [16][17]。

2.1.1 溶媒

溶媒の主な役割は、放射線エネルギーを吸収して励起し、発光剤となる溶質までその励起エネルギーを伝達することである。そのため、溶質への励起エネルギー伝達効率がよいこと、蛍光体の発光スペクトルの波長領域に溶媒の吸収スペクトルが存在しないこと、不純物混入による消光作用を避けるため高純度溶媒であること、などが要求される。多くの溶媒は、放射線エネルギーを吸収し溶媒自身からも発光するが、溶媒の発光量は溶質の発光量よりもかなり小さい。大部分の芳香族が最も溶媒として有効である。

表 2.1 に、溶媒として使われる物質の特性を、図 2.1 にその分子構造を示す。

2.1.2 溶質（蛍光体）

放射線エネルギーを光エネルギーに変換する役割を持つ。溶質はその作用からして第一溶質、第二溶質に分けられる。第一溶質は主成分としての蛍光体を意味し、第二溶質は波長変換体として働く。

溶質には、

$$\text{蛍光量子収率} = \frac{\text{蛍光放出の分子数}}{\text{励起状態になった分子数}} \quad (2.1)$$

で定義される蛍光量子収率の大きいものを使用する。表 2.2 に、第一溶質に使われる物質の特性を、図 2.2 に、その分子構造を示す。また、表 2.3 に、第二溶質に使われる物質の特性を、図 2.3 に、その分子構造を示す。

一般名	分子量	凝固点 (°C)	吸収スペクトル (Å)	発光スペクトル		相対 パルス波高
				λ_{max} (Å)	λ_{mean} (Å)	
ベンゼン	78.11	5.5	2550	2840	2780	0.85
トルエン	92.13	-95	2620	2870	2840	1.00
o-キシレン	106.16	-25	2640	2890	2840	0.98
m-キシレン	106.16	-47.4	2660	2890	2880	1.09
p-キシレン	106.16	13	2750	2910	2840	1.12
プソイドクメン	120	-60.5	2690	2930	2900	—
フェニルシクロヘキサン	7	5.5	2600	2850	2820	1.02
エチルベンゼン	106.15	-94	2610	2860	2830	0.96
アニソール	108.13	-37	2710	2960	2880	0.83
メシチレン	120.19	-52.7	2650	2930	2900	0.80
クメン	120	-96	2600	2840	2820	0.80

表 2.1: 液体シンチレーター用溶媒の特性

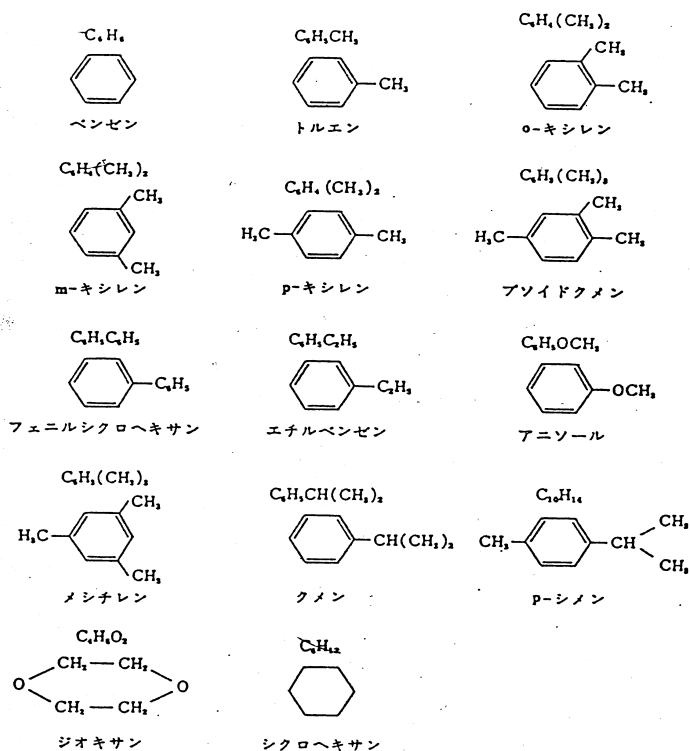


図 2.1: 溶媒の分子構造

第 1 溶質 (略号)	分子量	溶融点 (°C)	吸収スペクトル $\lambda_{max}(\text{Å})$	発光スペクトル		減衰時間 (n sec)	蛍光 量子収率
				$\lambda_{max}(\text{Å})$	$\lambda_{mean}(\text{Å})$		
TP	230.31	213~215	2760	3440	3418	1.2	0.77
PPO	221.26	70~73	3030	3640	3703	1.6	0.83
PBD	298.34	166~169	3000	3630	3699	1.2	0.69
butyl-PBD	354.45	137~139	—	3670	—	1.2	0.69
BIBUQ	675.05	160~162	—	3850	—	0.9	—
BBOT	430.57	201~203	3730	4380	4395	1.2	0.61
ナフタレン	128.17	79~81	—	3250	—	110	0.19

表 2.2: 第 1 溶質の特性

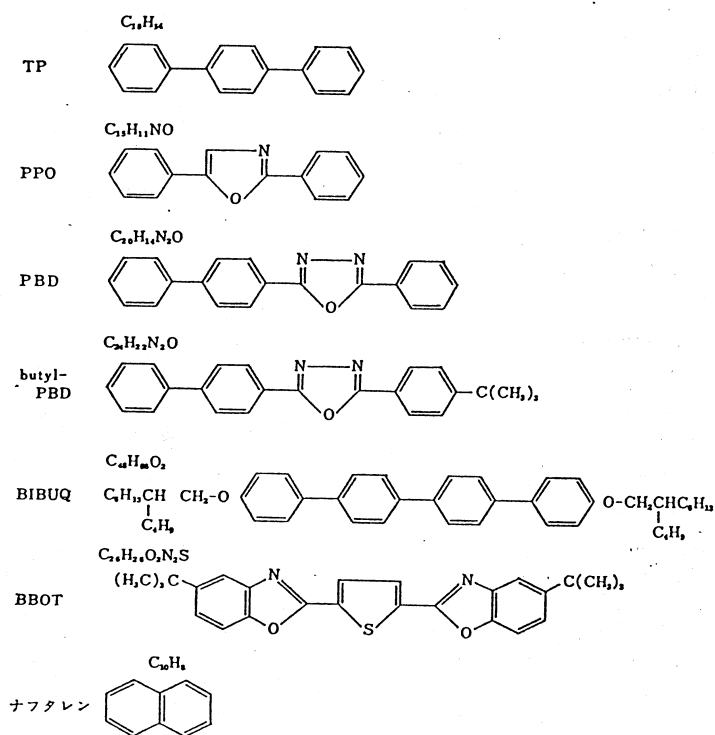


図 2.2: 第 1 溶質の分子構造

第2 溶質 (略号)	分子量	溶融点 (°C)	吸収スペクトル λ_{max} (Å)	発光スペクトル		減衰時間 (n sec)	蛍光 量子収率
				λ_{max} (Å)	λ_{mean} (Å)		
POPOP	364.40	244~246	3850	4180	4149	1.5	0.93
DMPOPOP	392.46	232~238	3630	4290	4273	1.5	0.93
α -NPO	271.32	104~106	3300	4010	4040	2.0	0.94
bis-MSB	310.44	180~181	3470	4120	4219	1.3	0.94
PBBO	347.41	198~201	—	4010	—	—	—

表 2.3: 第2 溶質の特性

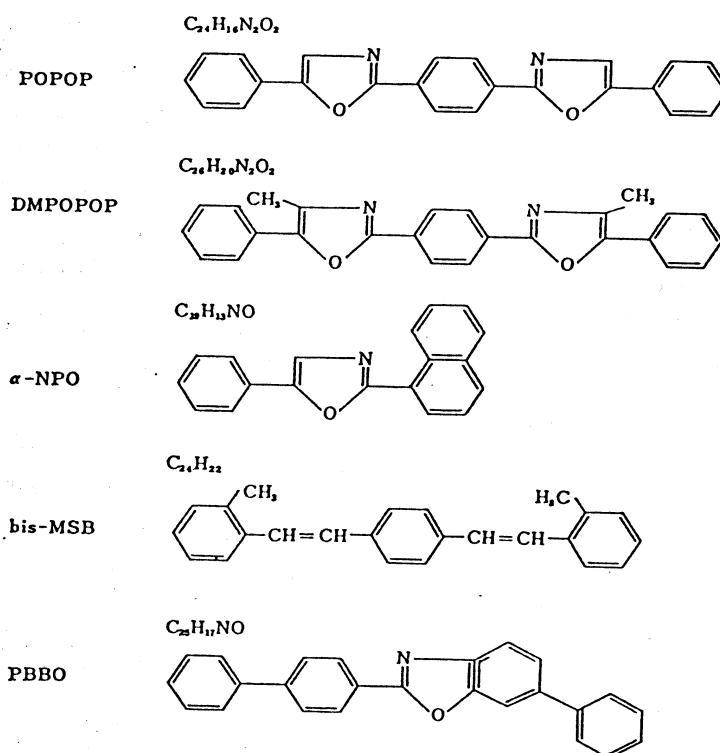


図 2.3: 第2 溶質の分子構造

2.1.3 液体シンチレーター

溶媒に溶質を溶解した溶液、あるいはこの溶液に何らかの添加物を加えたものを液体シンチレーター、またはシンチレーター溶液と呼んでいる。溶媒に第一溶質を加えて液体シンチレーターを作成するさいに、第一溶質量によって発光量が増加する。濃度を高くすればするほど発光量は増加するのであるが、高濃度になり過ぎると 2.3.4 章に述べるように、濃度クエンチングのため発光量は減少する。

2.2 発光原理

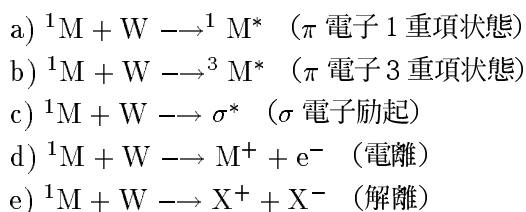
現在、液体シンチレーション測定に関する測定装置、応用測定などに関しては実用的価値のある目覚ましい発展が見られている。しかし、液体シンチレーターの発光機構やクエンチングなどの基礎分野においては、これまで数多くの研究が積み重ねられてきたが、未解決の問題が多く残されている。結晶シンチレーターの発光の場合とは異なり、液体シンチレーターでは励起エネルギー源（放射性物質）と蛍光体のあいだに溶媒が介在しているために発光機構が複雑化している。放射線励起による液体シンチレーターの発光現象は次の過程で生ずる。

1. 放射線エネルギー吸収による溶媒分子の励起
2. 溶媒分子間のエネルギー移行
3. 励起溶媒分子から溶質分子へのエネルギー移行
4. 溶質分子からの発光

以下に順を追ってそれぞれの過程について述べる。

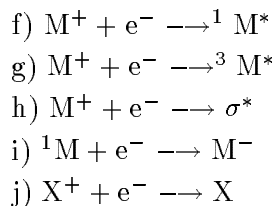
2.2.1 溶媒分子の励起

液体シンチレーター中で放射線エネルギーが直接溶質分子に吸収される確率は極めて低い。液体シンチレーター中の溶媒分子数は使用濃度における溶質分子数の約 1,000 倍程度であるために、放射線エネルギーによってまず溶媒分子が励起される。放射線エネルギーは通常溶媒の励起エネルギー（数 eV）よりもはるかに大きいので、放射線励起によって溶媒分子の σ 電子励起、 π 電子励起、電離または解離が起こる。一般に不飽和結合をなしている分子は σ 電子と π 電子をもっている。 π 電子は非常に可動的で結合が弱く、 π 電子を持つ分子はもたない分子に比べてイオン化ポテンシャルが小さい。放射線エネルギーを W、溶媒分子を M、1 および 3 の添字で 1 重項状態および 3 重項状態、* で励起状態、さらに X^{\pm} で解離を表すと、放射線エネルギー吸収による溶媒の種々の反応は次式で示される。



反応 d) で生じた電子 (e^-) はさらに a)~d) の反応を起こすことが可能であり、このほか、さらに次

の反応も考えられる。

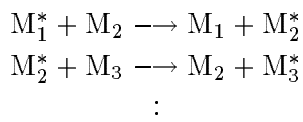


反応 c)、e)、h)、j) はシンチレーション生成過程には無益なものであって、これらの反応エネルギーは熱として失われたり、あるいは放射線損傷をもたらす。

2.2.2 溶媒-溶媒間のエネルギー移行

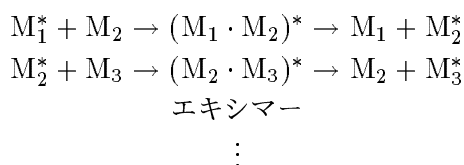
このエネルギー移行については衝突過程の説とエキシマー形成の説がある。

衝突過程とは励起溶媒分子とそれに隣接する未励起溶媒分子とが接触（衝突）してエネルギー授受を行なう過程で、短距離過程とも呼ばれる。すなわちこの現象は次式で表される。



分子の衝突においては、衝突に関係する両分子の電子軌道がわずかに重なり合い、この電子の交換相互作用によりエネルギー移行が起こる。この機構によるエネルギー移行は分子の拡散支配なので溶媒の粘性や温度と相関性があり、粘性の低下や温度の上昇とともにエネルギー移行は起こりやすくなる。

一方、エキシマー理論は溶媒分子の拡散で生じるエキシマー（励起会合体）の形成、解離に関する説である。エキシマーとは同種の分子間において基底状態の分子1個と励起状態の分子1個とが会合してできたもので、励起状態においてのみ安定に存在する2量体をいい、励起2量体（excited dimer）ともいわれる。相互作用を行なう2個の分子は会合によって一体となって励起され、励起が非局所化される。溶媒のエキシマーの形成と解離は頻繁に生じ、蛍光放出の時間に比べて短時間内にエネルギーが長距離に移行する。すなわち、このエネルギー移行は

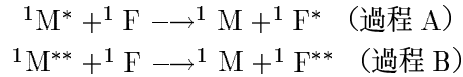


によって表される。

以上の2説はいずれも溶媒分子間のエネルギー移行について観測された結果に基づくものである。溶媒-溶媒間のエネルギー移行は 10^{-9} sec 以下の時間内に進行し、多数の溶媒分子がこれに関与する。

2.2.3 溶媒-溶質間のエネルギー移行

溶媒の励起エネルギーは最終的には溶質に移行するが、このさい溶媒の最低励起準位からのエネルギー移行の過程（過程A）、ならびに高い励起準位からの過程（過程B）が考えられる。



ここで M は溶媒分子、F は溶質分子、** は * より高い励起状態を意味する。過程 B における ${}^1M^{**}$ の寿命 ($\sim 10^{-15}\text{sec}$) は ${}^1M^*$ の寿命 ($\sim 10^{-9}\text{sec}$) に比べてかなり短いので、溶質が低濃度のときには励起溶媒分子 ${}^1M^{**}$ が溶質分子と相互作用をする以前に ${}^1M^*$ に移るか、あるいは基底状態に無輻射的に遷移する。このように過程 A と過程 B が起こる割合は溶質濃度に依存する。すなわち、

$$F < \sim 10^{-3}M : \text{過程 A が優位}$$

$$F \sim 10^{-2}M : \text{過程 A、B が等しい}$$

$$F > \sim 10^{-1}M : \text{過程 B が優位}$$

溶媒-溶質間のエネルギー移行を説明するために、溶媒-溶媒間のエネルギー移行のさいに述べたような衝突過程の説がある。さらに輻射的エネルギー移行の現象についても考えることができる。

1. 衝突過程によるエネルギー移行

溶媒-溶媒間のエネルギー移行を説明するために衝突過程が考えられていることは既述のごとくであるが、溶媒-溶質間においても衝突過程によるエネルギー移行が存在するという説がある。

2. 輻射的エネルギー移行

輻射的エネルギー移行は励起溶媒分子が蛍光としてエネルギーを放出したときに、溶質分子がこのエネルギーを吸収して蛍光を放出する現象である。液体シンチレーター用の溶媒も一般に蛍光を放出するが、この蛍光量子収率は当然溶質のそれよりもかなり小さい。溶媒-溶質間の輻射的エネルギー移行と非輻射的エネルギー移行の割合は主に溶質濃度によって左右されるが、このほか溶媒の発光スペクトルと溶質の吸収スペクトルの関係にも依存する。溶質が極めて低濃度の場合は輻射的エネルギー移行が優勢であるが、高濃度になるにしたがって非輻射的エネルギー移行が支配的になる。溶質の使用濃度付近 ($\sim 10^{-2}M$) ではほとんど非輻射的エネルギー移行をなす。

2.2.4 溶質-溶質間のエネルギー移行

以上述べてきた溶質 (第一溶質、 F_p) にさらに波長変換体の作用を持つ溶質 (第二溶質、 F_s) を加えた 3 成分系の液体シンチレーターでは、溶質-溶質間のエネルギー移行が生ずる。溶媒-第二溶質間の直接的エネルギー移行も考えられるが、これは溶媒-第一溶質間の過程と類似している。また、第一溶質濃度 $[F_p]$ と第二溶質濃度 $[F_s]$ の割合は大体 10:1 程度であるので、溶媒-第二溶質間のエネルギー移行の確率は溶媒-第一溶質間の確率の 10% 程度である。溶質-溶質間のエネルギー移行では輻射的な場合が考えられている。輻射的エネルギー移行は第一溶質の蛍光エネルギーが第二溶質に吸収され、これによって第二溶質が発光する re-emission の現象である。

2.2.5 溶質の発光

溶質が溶媒の励起エネルギーを吸収すると、基底状態の溶質分子は電子励起準位あるいはその振動準位に励起される。その後の溶質分子内での挙動はつぎに示す 1)~4) の競合過程となり、それぞれの寿命が各競合過程の割合を支配する。図 2.4 に分子のエネルギー準位と電子遷移の様子をあわらした図を示す。

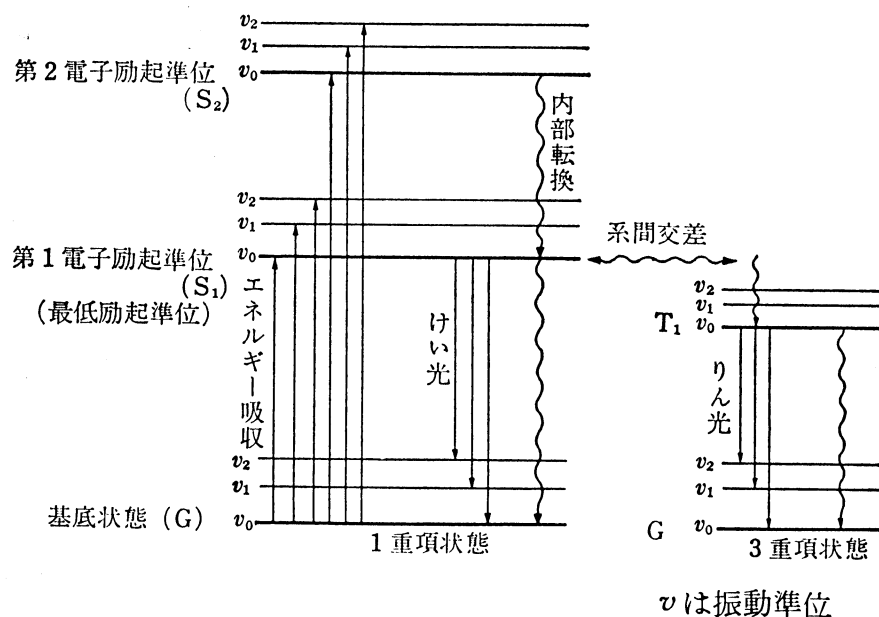


図 2.4: 分子のエネルギー準位と電子遷移 [16]

1. 内部転換

分子が励起状態になると、光の放出を伴わずに最低励起準位あるいは基底状態に電子遷移が生ずる。たとえば、 $S_2 \rightarrow S_1$ 、 $S_1 \rightarrow G$ あるいは $T_1 \rightarrow G$ などの遷移が起こる。このような無輻射的遷移を分子の内部転換といい、 $10^{-11} \sim 10^{-12}$ sec 程度の寿命を有する。

2. 蛍光放出

1重項-1重項間の光の放出を伴う輻射的遷移によって蛍光を生じ、 $10^{-8} \sim 10^{-9}$ sec の励起寿命を持つ。現在までのところ、観測されている蛍光はすべて第一電子励起準位から基底状態への電子遷移 ($S_1 \rightarrow G$) の際に放出される。溶質として使用される物質は蛍光量子収率の大きいもので、無輻射的な $S_1 \rightarrow G$ 遷移の確率が低くならなければならない。一般に、 π 電子をもつ不飽和化合物は蛍光を出すものが多く、また鎖状化合物よりも環状化合物がよく蛍光を放出する。

3. 系間交差

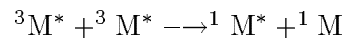
スピンの反転を伴う1重項-3重項間または3重項-1重項間の無輻射的遷移を系間交差という。スピンの反転を起こすこれらの遷移は量子力学的には禁制のため確率は低い。しかし、第一電子励起準位と3重項状態間のエネルギー差が小さい場合には系間交差は比較的起こりやすくなる。この現象は $10^{-7} \sim 10^{-8}$ sec 程度で生ずる。

4. りん光放出

3重項-1重項間の輻射的遷移 ($T_1 \rightarrow G$) のさいにりん光が放出される。 $T_1 \rightarrow G$ の遷移もスピンの反転を伴う禁制遷移なので確率は低い。長い間 T_1 の状態にとどまっているために、りん光

の寿命は 10^{-4} sec 以上で非常に長い。なお、 T_1 準位は S_1 準位よりも低いので、りん光波長は蛍光波長よりも長い。

以上の諸過程のうち液体シンチレーション測定では、2) の過程が最も重要であって、このさい発生する蛍光を信号として取り出す。高い励起状態の溶媒分子 $^1M^{**}$ などに起因するシンチレーションは数 nsec 以内で生じ、これはシンチレーションの速い成分をなす。一方、3 重項は 1 重項よりも長寿命なので、3 重項-3 重項の溶媒分子によるつぎの過程が生ずると数 μ sec 長寿命のシンチレーションが発生する。



この場合には、シンチレーションの遅い成分を形成する。速い成分と遅い成分の相対的強度は放射線の電離能によって支配される。この特性は放射線の種類を区別するパルス波形弁別法の基礎をなしている。

2.3 クエンチング

放射線エネルギーが液体シンチレーター内で、光エネルギーに変わらずに消えてしまうエネルギーがある。その作用をクエンチングという。エネルギー移行過程において、各種のクエンチングが生ずる状態を図 2.5 に示す。

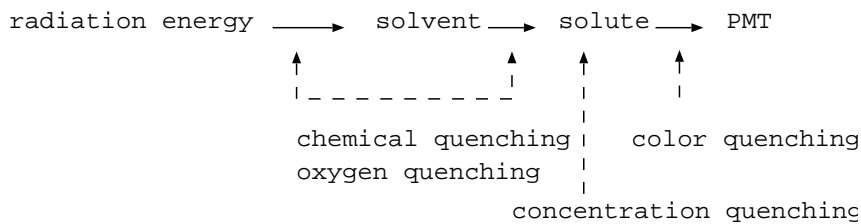


図 2.5: エネルギー移行過程におけるクエンチングの説明

以下に、それぞれのクエンチングが起こる原理をまとめる。

2.3.1 化学クエンチング

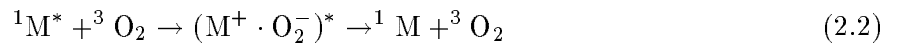
放射線エネルギーによって溶媒が励起し、さらに溶媒の励起エネルギーが溶質に移行するまでの過程において生ずるクエンチングを化学クエンチングという。この際、溶媒-溶質間のクエンチングのほうが、放射線-溶媒間のクエンチングよりもはるかに確率が高い。化学クエンチングは溶質の発光以前に起こる現象で、主に物質の化学性によって定まる。

2.3.2 色クエンチング

溶質の発光スペクトルに重複するような吸収スペクトルをもつ物質が液体シンチレーター中に存在すると、生じた蛍光の一部が吸収されて色クエンチングが起こる。すなわち、色クエンチングは化学クエンチングとは異なり、溶質の発光以後に起こる現象である。

2.3.3 酸素クエンチング

シンチレーター溶液中に存在する溶存酸素に起因するクエンチングが酸素クエンチングである。溶存酸素とは液相中に溶解している分子状酸素をいう。酸素クエンチングはエネルギー移行の観点からすると化学クエンチングと同一であるが、化学クエンチングとは別個に議論する。酸素分子は強い電子受容性を持つために、放射線エネルギーで励起された励起1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。ここで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出来た2量体のことをいう。ひとたびエキシプレックスが生じると、次のようにクエンチングが起こる。



エキシプレックス

ここで、 1M と 3O_2 はそれぞれ1重項状態の溶媒分子と3重項状態の酸素分子である。

このため、シンチレーター中の酸素を取り除くために窒素ガスやアルゴンガスを液体シンチレーターのなかでバブリングしたりすることがある。我々の測定においても、窒素ガスバブリングを測定前に実施し、酸素をできるだけ除いた状態で測定を行なう。

2.3.4 濃度クエンチング

シンチレーター溶液の発光量は溶質濃度に依存する。低濃度では溶質濃度が高くなるほど溶質へのエネルギー移行確率が増すため、発光量が増大する。さらに濃度をあげると、発光量は最大値に達し、それ以上の濃度では逆に減少する。この原因は自己吸収の現象が考えられる。

溶質の自己吸収は溶質の発光スペクトルと吸収スペクトルとが重なる部分において生ずる光エネルギーの損失である。

2.3.5 電離クエンチング

電離能 dE/dx の大きな粒子がシンチレーターを通過するとき、その道すじには電離、励起分子の密度の非常に濃いところができ、そのために蛍光効率が低下することを電離クエンチング [18] という。この現象の起こる理由は、

1. 荷電粒子が通過したとき一時的に (10^{-9} s 程度の時間だけ) 電離、励起分子がクエンチング領域になる
2. 近くにある、電離あるいは励起分子との相互作用によるクエンチング
3. 一時的 (10^{-10} s より短い) に荷電粒子の通過した場所の温度が上昇することによる

などが考えられている (第 5.2章参照)。

2.4 ミネラルオイル

Kam-LAND 実験では、大型の液体シンチレーターが用いられるため、実際に光電子増倍管などの検出器に到達するまでの間の光の減衰の影響が大きい。また、液体シンチレーターは高価である。そのた

め、液体シンチレーターを大量に使用する場合には、安価で光の透過率の良いミネラルオイルを混ぜるという手段が用いられる。ミネラルオイルはさらに、光電子増倍管からの放射線バックグラウンドを遮蔽するための Buffer Liquid 槽にも使用される。現在、液体シンチレーターに混合したり Buffer Liquid に使用したりする液体の候補は、イソパラフィン ($C_nH_{2n+2}, n \sim 10$) であり、以下のような構造を持つ。

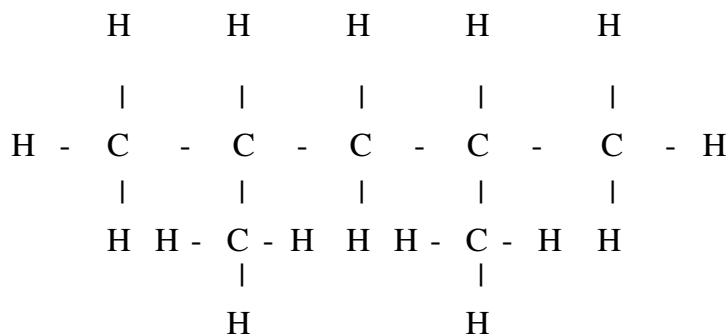


図 2.6: イソパラフィンの分子構造

特徴としては、300nm の短波長側まで透明である、化学的に安定、無毒性、無害、蒸留を繰り返し製造するため非常に純度が高い、粘性率が低く扱いやすい、 $\lambda=300\text{nm}$ まで透過度がよい、高い引火点 (92°C)、 $n=1.44$ 、 $\rho=0.787\text{g/cm}^3$ 、そして比較的安い、2,000 トンもの量を一年以内に供給することができる、などがある。また、一般的に使われるミネラルオイルの代わりに主溶媒として用いた場合でも、発光量に違いがなく、多くの溶媒にもよく溶解する。現在イソパラフィンの候補に昭和シェル石油のパラオール 250 (P250) を考えている。このイソパラフィンの透過率は、以下の図 2.7 のようになっている。横軸が入射光の波長で単位は nm、縦軸は、光が 1cm 透過したときの、空の容器からの出力に対す

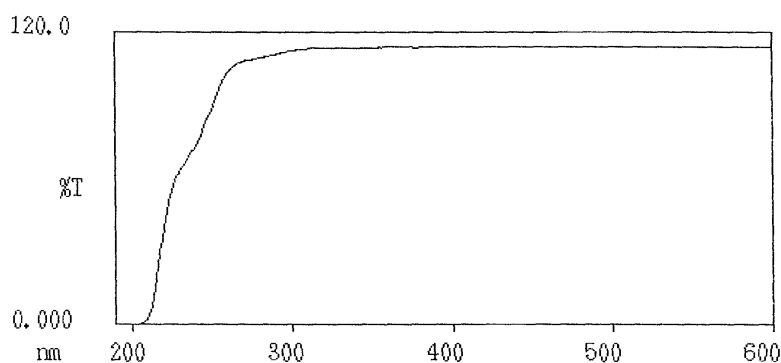


図 2.7: イソパラフィンの透過率の波長依存性。横軸は、入射光子の波長、縦軸は、比較に用いた空気に対して透過した光子の割合。

る試料の出力の割合を表す。この図から、確かに 300nm の短波長側までほぼ透明であることが分かる。

2.5 液体シンチレーターへの要請

Kam-LAND 実験では以下のような液体シンチレーターに対する要請がある。

1. 発光量 >30% アントラセン¹
2. 光減衰長 >>12m at $\lambda \sim 400\text{nm}$

図 1.9から分かるように、地球反ニュートリノからのウラン、トリウム²の2つのピークは3.2MeV、2.2MeVである。検出される陽電子のエネルギーは、第 1.3.2章に示したように反ニュートリノのエネルギーから0.8MeVを引いた値である。その結果、陽電子のピークエネルギーはそれぞれ2.4MeV、1.4MeVになる。そこで、誤差範囲においておおよそ 3σ 離れているときに、この2つのピークが区別できると考えると、地球反ニュートリノ検出のためエネルギー分解能には、 $\sigma_E/E < 10\%/\sqrt{E(\text{MeV})}$ 程度が必要となる。

さらに、光電子増倍管の表面積 = 25%、量子効率 = 20% とし、光減衰長が十分長く (最低で 12m と考える)、さらにバルーン膜で 20% の光を失うとすると、必要な発光量 x は、

$$x \times 0.25 \times 0.2 \times \exp\left(-\frac{8}{12}\right) \times 0.8 = 100 \quad (2.3)$$

となる。これを解くと、 $x=4886$ 光子 /MeV (=29% アントラセン) 以上となる。

シンチレーターバルーンの半径が 6.5m あるため、光の減衰ができるだけ少ない液体シンチレーターが必要である。ただし、透過率を良くするためにイソパラフィン量を増やすと、逆に発光量が減少してしまう。イソパラフィン量は、透過率と発光量のそれぞれの要求を満たす最適なところを探さなければならない。

この2つの要求を両方とも満たすと、最終的に得る光電子数は >100 個 /MeV となり、必要なエネルギー分解能が得られる。

3. 波形による粒子識別 (重粒子、軽粒子の区別) が可能であること

$E > 1$ MeV において γ の efficiency が 90% のとき、 n の漏れ込みが 10% 以下である。また、 $E > 1$ MeV において γ の efficiency が 90% のとき、 α の漏れ込みが 5% 以下である。この値は、現段階では目安であり物理的な要請ではないが、あとで述べるように、バックグラウンドではないニュートリノ事象の正当性を保証するためには欠かせない要請である。

4. 時間分解能がよい

10cm 程度の位置分解能が欲しいため、光電子増倍管までの到達時間の分解能は 1ns 以下である必要がある。そのためには、シンチレーターの減衰定数は数 ns 以下が望ましい。

5. 光の再発光が少ない
6. 不純物が少ない

U、Th の量は 10^{-14}g/g 以下で、K は 10^{-11}g/g 以下であること。この濃度以下であると、U、Th からの崩壊鎖や核分裂などからの遅延同時計数にかかってしまう偶然同時計数や、必ず連続し

¹伝統的にシンチレーターの発光量は、アントラセンを基準にし、アントラセンの発光量に対する割合 (%) で表す。アントラセンの発光量の絶対値は 1.7×10^4 光子数 /MeV である。ちなみに、30% アントラセンといえば、 $0.3 \times 1.7 \times 10^4$ 光子数 /MeV = 5,100 光子数 /MeV となる。

て事象が発生し、同時計数信号を作ってしまうようなバックグラウンドは一日に 0.1 事象以下になる（付録 B 参照）。

7. 長期安定性

時間が経っても（～10 年）種々の性能が変化しないこと。

8. 安価

9. 毒性が少ない

10. 不活性であること

測定器に使われている種々の物質を犯さない。特に、液体シンチレーターはバルーン容器に入れられる予定なので、バルーンの材質を侵さないこと。現在バルーンの材質の候補には、ナイロン、ポリエチレンと EVOH²の多重層のフィルムが挙げられている。

11. 引火点が高いこと

液体シンチレーターは引火性液体であるため、できるだけ引火点の高い液体シンチレーターを用いることが安全のためにも重要となる。そのため、液体シンチレーターにはイソパラフィンを混ぜるなどしてできるだけ引火点を高くすることが必要である。但し、現在は検出器の周辺的安全装置を充実されることにより、危険物第 4 類第 2 石油類に属する液体シンチレーターでも使用できる可能性がある。但し、テストベンチにおいては引火点が 70°C 以上が必要である。

12. 密度と屈折率がイソパラフィン槽に使用されるイソパラフィンのそれ ($\rho = 0.787\text{g/cm}^3$, $n=1.4441$) に近いこと

液体シンチレーター槽とイソパラフィン槽で、屈折率が著しく異なると、その境界面で光が反射してしまい、光電子増倍管での集光率が悪くなってしまう。また、密度が異なるとバルーンに大きな力がかかり、危険である。

13. α 粒子が入射したときのエネルギー付与に対する発光量と、 β 粒子が入射したときのエネルギー付与に対する発光量の比が大きいこと (quenching 量が大きいこと)

特に、U、Th の崩壊鎖中の correlated background を除くためにはこれが必須である (付録 B.2.3 参照)。

これらすべての条件を満たすような液体シンチレーターを作成することが最終目標である。その方針としては、商用の液体シンチレーターをそのまま使用するのではあまりにも高価である。また、発光量はそれほど多い必要はない。イソパラフィンを主溶媒にした液体シンチレーターが作れば、発光量、粒子識別能、時間特性、光の再発光や長期安定性以外の要求は満たされると考えてよく、LSND の結果から、イソパラフィンベースの液体シンチレーターは時間特性が良い、ということも期待できる [25]。そのため、本研究では商用の液体シンチレーターと、一般に液体シンチレーター用の溶媒として使用される Pseudocumene に発光剤を混ぜた液体シンチレーターを準備し、イソパラフィン濃度を変えた場合の発光量と時間特性、粒子識別能に絞って実験を行なった。これらの測定により、Kam-LAND 実験に使用可能な液体シンチレーターの探索と、テストベンチに用いる液体シンチレーターの決定を試みる。以下の章から、本研究の実験結果を報告する。

²-(CH₂CH₂)_n-(CH₂CHOH)_m-

第 3 章

発光量測定

この章では、種々の液体シンチレーターの発光量測定について述べる。測定した液体シンチレーターはバイクロン社製の BC519、BC517H と、自分達で準備した Pseudocumene という溶媒に第一溶質として PPO、第二溶質として Bis-MSB を混ぜたものである。3 種類の液体シンチレーター全てについて、イソパラフィンを入れていったときの発光量変化を調べ、Kam-LAND 実験の要求を満たすような液体シンチレーターを決定する材料にする。イソパラフィン量を多くすることは、光の透過率を良くするためだけでなく、安価に液体シンチレーターを製作することができるためにも重要となってくる。

3.1 測定方法

表 3.1 に、今回用いるバイクロン社製の液体シンチレーター数種についてのカタログ値を示す。

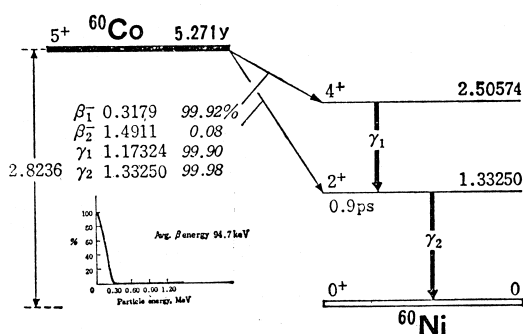
Scintillator	Light output % Anthracene	Wavelength of maximum emission,nm	Decay constant,ns	H/C ratio	Density	Flash point °C
BC505	80	425	2.5	1.331	0.877	47
BC517H	52	425	2	1.89	0.86	81
BC519	60	425	4	1.73	0.875	74
BC525	56	424	3.8	1.57	0.88	64

表 3.1: バイクロン社製の液体シンチレーターの諸特性

このうち BC505 と BC525 は、バイクロン社が製作して密封容器に詰めたものであるため、予め発光量が分かっているものとして発光量の基準に用いる。発光量の比較のために、今回は ^{60}Co から出る γ 線のコンプトンエッジを採用する。図 3.1 に示すように、 ^{60}Co からは 1.17MeV と 1.33MeV の γ 線が放出される。

γ 線は、物質と次の 3 つの相互作用をすることが知られている。

1. 光電効果
2. コンプトン効果
3. 電子陽電子対生成

図 3.1: ^{60}Co の崩壊図 [26]

今回は、液体シンチレーターと光子の相互作用が問題であるため、光子と、液体シンチレーターの主成分である炭素の相互作用の反応断面積のグラフを図 3.2 に示す。

図 3.2 から、その 1.17 MeV と 1.33 MeV の 2 本の γ 線のエネルギー領域では、炭素との相互作用はコンプトン効果が支配的であることがわかる。

ここでコンプトン効果とは、図 3.3 のような、光子と電子が衝突し光子が散乱される現象のことを示している。反跳電子のエネルギー E_c は、

$$E_c = E_\gamma \frac{\alpha(1 - \cos\theta)}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} [\text{MeV}] \quad , \quad \alpha \equiv \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} \quad (3.1)$$

で表わされる。ここで、 $m_0 c^2$ は電子の静止質量で 0.511 MeV である。 E_c は $\theta = 180^\circ$ のとき最大となる。

$$E_c (\text{max}) = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{m_0 c^2}{2 E_\gamma}} [\text{MeV}] \quad (3.2)$$

このエネルギー $E_c (\text{max})$ の値を、コンプトンエッジという。液体シンチレーターの分解能はこの 2 本の γ 線を分離するほどよくないので、2 本の平均のエネルギー 1.25 MeV についてコンプトンエッジを計算すると、1.038 MeV となる。このピークを発光量の比較に用いる。

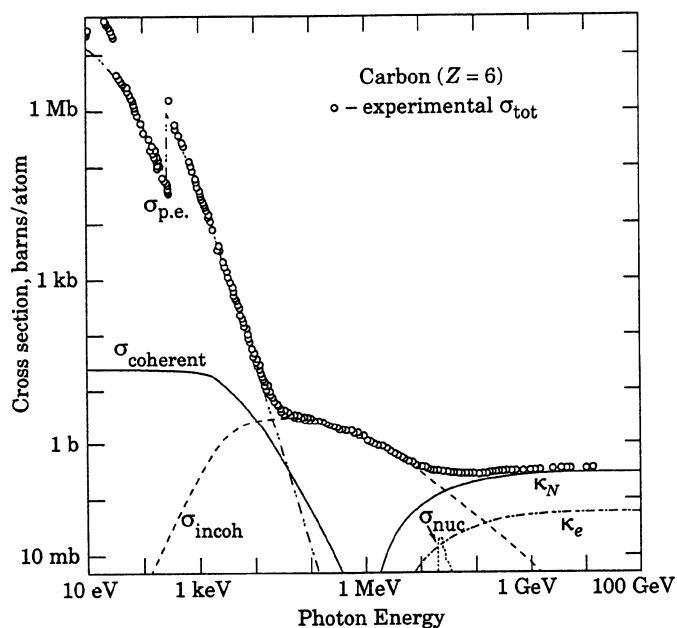


図 3.2: γ 線と炭素との反応断面積。横軸が γ 線のエネルギー、縦軸が反応断面積を示す。また、 $\sigma_{p.e.}$ は原子の光電効果（電子の放出、吸収を含む）、 $\sigma_{coherent}$ はレイリー散乱（原子は励起もイオン化もされない）、 $\sigma_{incoherent}$ はコンプトン散乱、 κ_N は原子核の場での対生成、 κ_e は電子の場での対生成、 σ_{nuc} は原子核による光子の吸収を示している [27]。

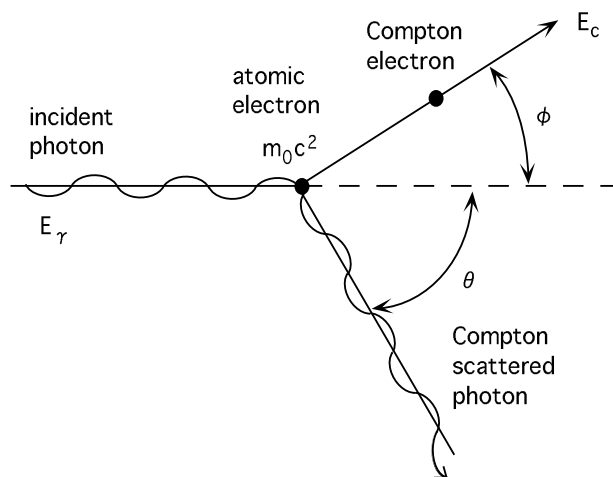


図 3.3: Compton 効果

3.2 標準試料による光量の較正

3.2.1 測定装置

図 3.4 に、バイクロン社製の容器を用いた光量測定用の実験装置を示す。液体シンチレーターは直径

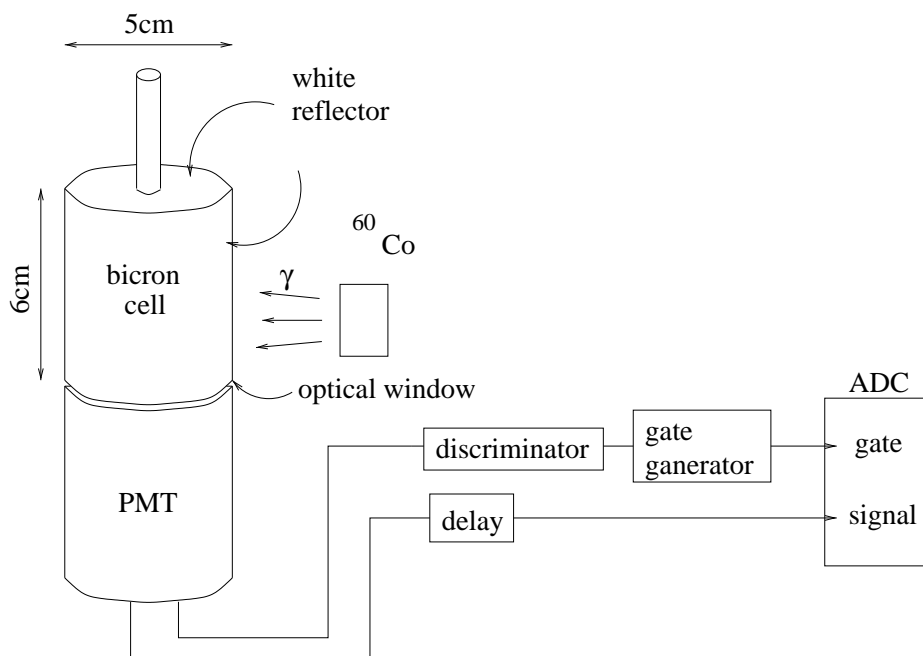


図 3.4: バイクロン社製容器を用いた測定装置

5cm、高さ 6cm のバイクロン社製の円柱形容器に入れられる。容量は、約 100ml である。容器は底面以外は白い反射剤でコーティングされていて、底面の光学窓から光電子増倍管でシンチレーション光が集められる。今回用いた光電子増倍管は浜松フォトニクス社製の 2 インチヘッドオン型光電子増倍管 H1161 である。表 3.2 に、H1161 光電子増倍管の仕様を示す。光学窓と光電子増倍管は、オプティカルグリースで接合させる。光電子増倍管の陽極から 2 つの信号を取り出し、一方をディスクリミネーター、ゲートジェネレーターを通して、ADC¹ のゲートに入力する。もう一方にディレイをかけて、ADC の信号へ入力する。

⁶⁰Co 線源は容器の横から照射した。測定を始める前に、N₂Bubbling を 20 分施した。BC505 と BC525 は購入した時点で密封されているため、光量の基準に用いる。空のバイクロン社製容器に BC517H と BC519 液体シンチレーターを詰めて、カタログ通りの発光量が得られるかどうか調べる。

今回使用した 12 ビット ADC の、入力電荷量とチャンネル数との関係を図 3.5 に示す。カタログ値は 0.24pC / (チャンネル数) であったのに対し、実測値は 0.28pC / (チャンネル数) となり、入力電荷量とチャンネル数の関係は非常によい比例関係にあることが分かった。

¹analogue to digital converter

光電面の種類	バイアルカリ
窓材質	硼硅酸ガラス
ダイノードの種類	ラインフォーカス型
ダイノードの数	12 段
最大印加電圧	-2700 V
電流増倍率	3.0×10^6
立ち上がり時間	2.7ns
電子走行時間	40ns
T.T.S ²	1.1ns
波長範囲	300 ~ 650nm
最高感度波長	420nm
量子効率 (@420nm)	26%

表 3.2: 2 インチ光電子増倍管 H1161 の仕様

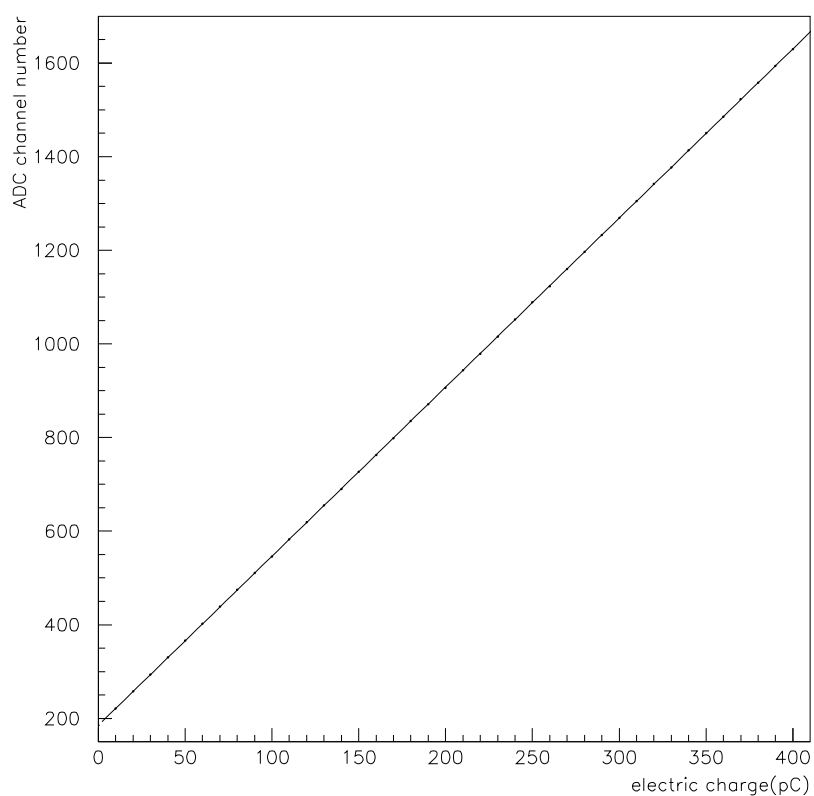


図 3.5: ADC チャンネル数と入力電荷量との関係

²transit time spread の略で、電子走行時間のふらつき

3.2.2 測定結果

図 3.6に、バイクロン社製容器に詰められた4種の液体シンチレーターの、 ^{60}Co 線源によるコンプトンエッジスペクトルを示す。HVの印化電圧は、-1,500V。

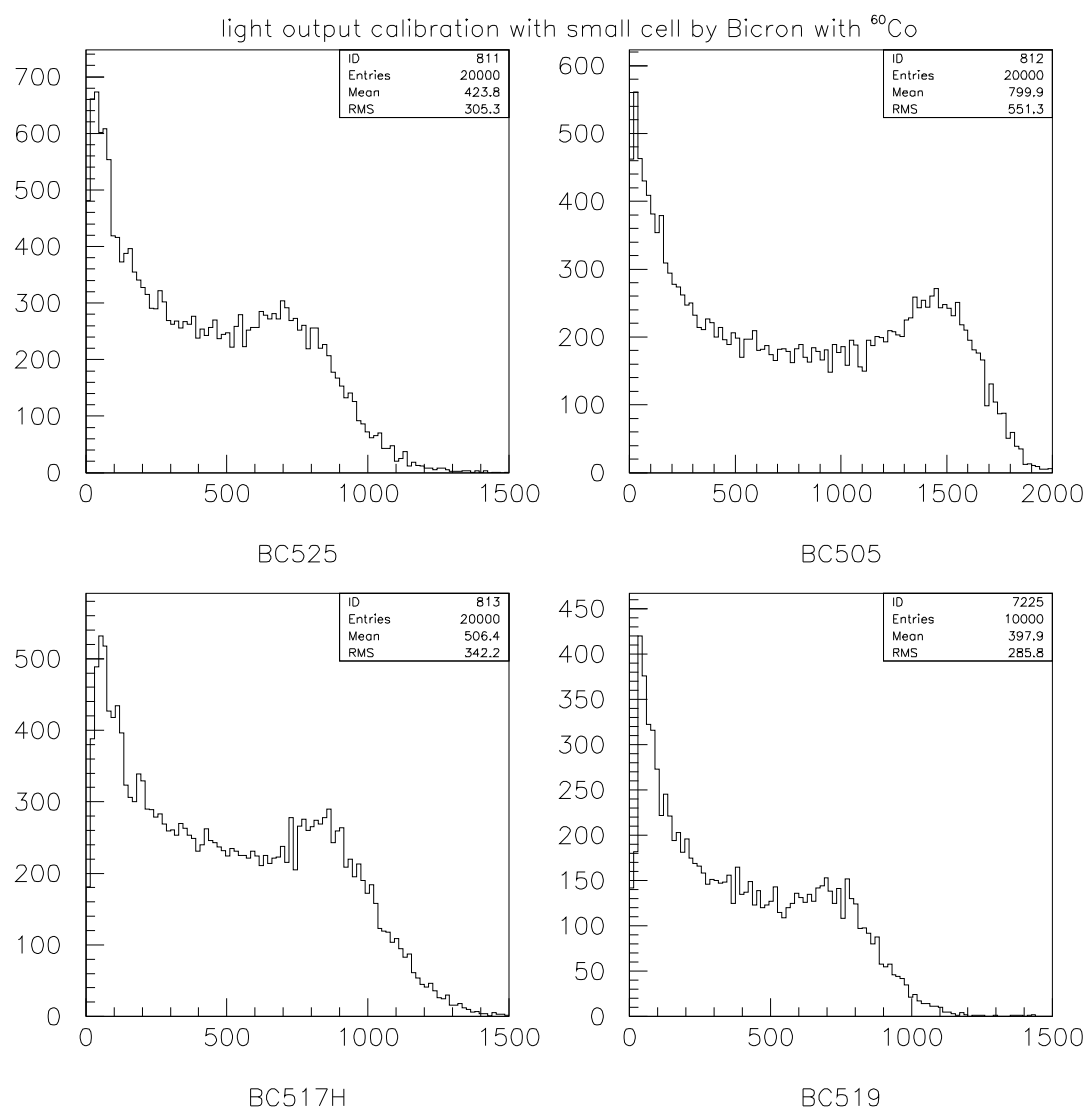


図 3.6: 種々の液体シンチレーターの Compton edge スペクトル

図 3.6からコンプトンエッジを読みとる。下の図 3.7は、ある液体シンチレーターで ^{59}Fe 線源からくる放射線を測定した結果である。横軸はADCのチャンネル番号で、エネルギーの大きさに対応している。このチャンネルの小さいところが、 β 線からの寄与であり、大きくなるに従い、 γ 線の割合が増えてくる。そして、ある点で、分解能程度のなめらかさで計数値が0となる。図に示したように、エッジの強度でちょうど半分になる点のエネルギーは変わらない。これを利用して ^{60}Co のコンプトンエッジスペクトルを、強度の半分になる点（図 3.7に書いてある所）で定義する。

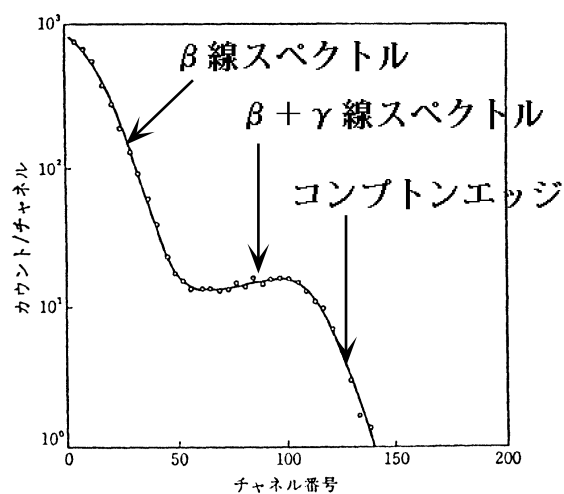


図 3.7: ^{59}Fe の液体シンチレーションスペクトルの例。15ml 程度の容器で測定してあるため、光電効果はほとんど無視される。横軸の小さい部分から、 β 線、 $\beta+\gamma$ 線の寄与があり、図のようにコンプトンエッジを定義する。文献 [16] から引用。

表 3.3が種々の液体シンチレーターについて、コンプトンエッジを読みとった ADC チャンネル数である。

Scintillator	ADC channels of Compton edge spectrum
BC505	1668
BC525	907
BC517H	1040
BC519	950

表 3.3: 種々の液体シンチレーターでの、Compton edge ADC チャンネル数

この結果をグラフにすると、図 3.8のようになる。横軸には、カタログにある発光量をとった。単位はアントラセン結晶の発光量に対する相対的な発光量の比をとる。

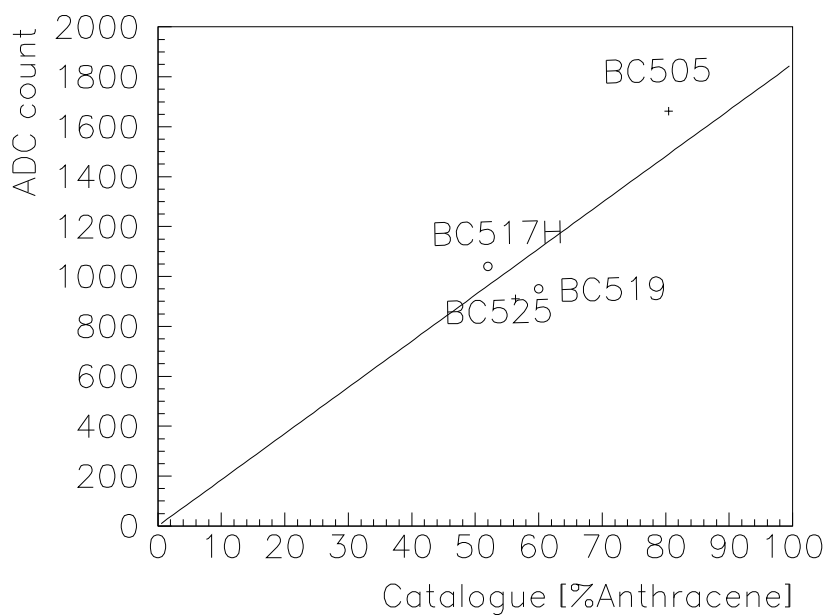


図 3.8: バイクロン容器による光量測定の結果

図 3.8で引かれている直線は、BC505 と BC525 の 2 点から求めた較正直線であり、次のようになった。

$$y = 18.52x \quad (3.3)$$

この 2 つの液体シンチレーターは予め発光量が分かっているため、これから測定する液体シンチレーターの相対的発光量の基準にする。各点はこの較正直線から $\pm 15\%$ 程度のばらつきがあるため、これ以後この較正直線から求める発光量にも $\pm 15\%$ 程度の誤差があるものと思われる。

3.3 窒素バブリング効果

2.3.3章で述べたように、液体シンチレーター中に酸素が溶けこむと、酸素クエンチングにより発光量が減少する。これを避けるため Kam-LAND 実験では、液体シンチレーターに窒素ガスを送り込むことによって溶存酸素を除いた状態で実験を行なう。そのため、この章では、窒素バブリングの効果を確認する。

3.3.1 実験の準備

窒素ガスのバブリングは、以下の図 3.9 のように行なう。

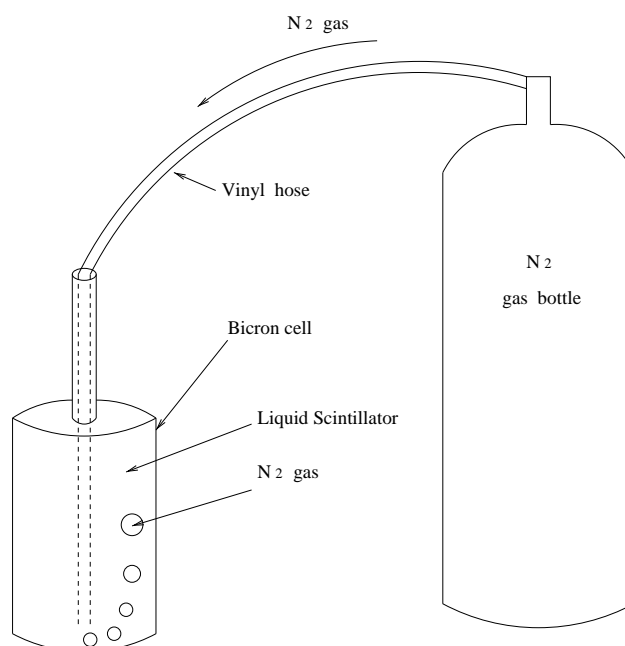


図 3.9: 窒素ガスバブリングの方法

まず、液体シンチレーターをバイクロン容器に入れ、ガスボンベからくるビニールホースを容器の内側に入れる。そして、窒素ガスボンベの栓をひねって液体シンチレーターの中で、窒素ガスを泡立たせる。15ml の液体シンチレーターに対しては 3 分程度のバブリングでほぼ液体シンチレーター内の酸素は取り除くことができるため [16]、この 100ml 容器に対しては 20 分行なう。

窒素バブリングの効果は、発光量がどのように変動したかで調べる。そのため、実験装置は 3.2 章の図 3.4 で用いたものと同様にする。線源には ⁶⁰Co を使い、発光量の比較にはコンプトンエッジを採用する。

3.3.2 結果

窒素バブリングの効果を調べるために、3 つの測定をした。

1. 窒素バブリングを行なった直後の発光量
2. 窒素バブリング後 335 分経ったときの発光量
3. 2. の測定が終わった後、再び窒素バブリングを行なった直後の発光量

その結果を図 3.10 に示す。

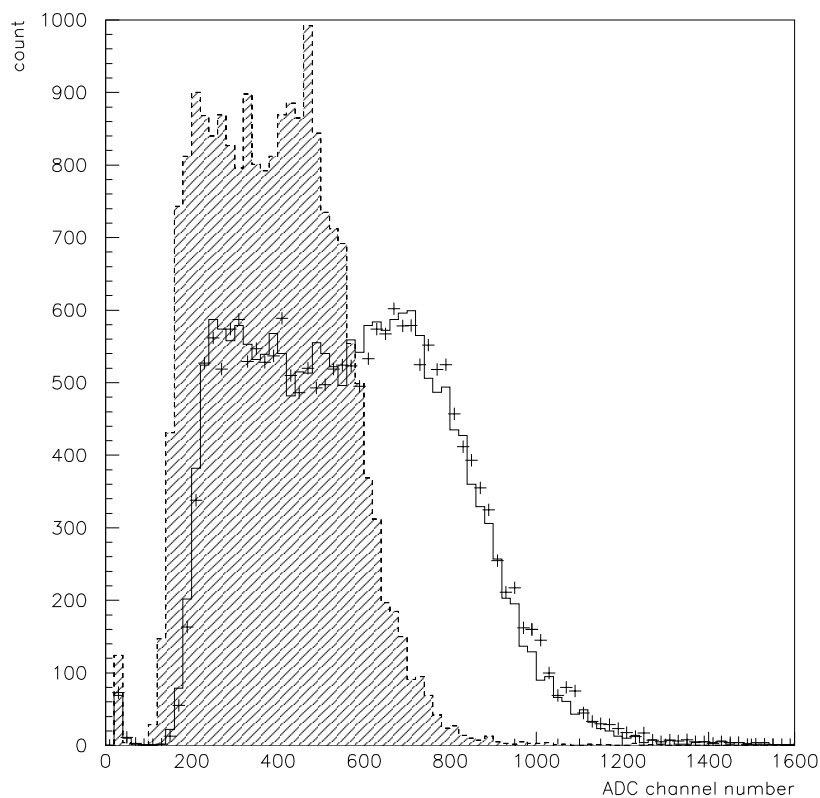


図 3.10: 窒素バブリングの効果。白抜きのヒストグラムは 1. 窒素バブリングを行なった直後の発光量を、斜線部分のヒストグラムは 2. 窒素バブリング後 335 分経ったときの発光量を、+ 印で示した点は 3.2. の測定が終わった後、再び窒素バブリングを行なった直後の発光量を示す。

白抜きのヒストグラムが、測定 1. に対応し、斜線部分が測定 2. である。+ 印の点は測定 3. である。図 3.10 の結果から、バイクロン容器では窒素バブル後 335 分経過すると発光量が 65% になることが分かった。また、発光量が 35% 下がったあとに窒素バブリングをした結果、発光量はもとに戻ることが確認された。

3.4 種々の液体シンチレーターの発光量測定

ここでは、種々の液体シンチレーターにイソパラフィンとして P250 を混ぜていった場合の発光量変化を調べた。多くの種類の液体シンチレーターの発光量を次々に測定するために、3.2章で使った入口の小さいバイクロン社製の容器の代わりにシャーレを使うことにする。シャーレは口が大きいので、洗浄や液体シンチレーターの出し入れがしやすいので便利である。

3.4.1 測定装置

用いたシャーレの模式図を図 3.11 に示す。今回は、バイクロン社製の容器による測定と、できるだけ同条件にしたかったため、シャーレの中に詰める液体シンチレーターの容量は 100ml とする。容器の側面とふたの部分にアルミニウム箔をはり、オプティカルグリースで光電子増倍管に接合する。液体シンチレーターは窒素バブリングしたあと、すぐにシャーレに入れられ、ふたをしてテープで密封する。その周りを暗幕で覆い、測定する。線源は、3.2章と同じく ^{60}Co を用いる。

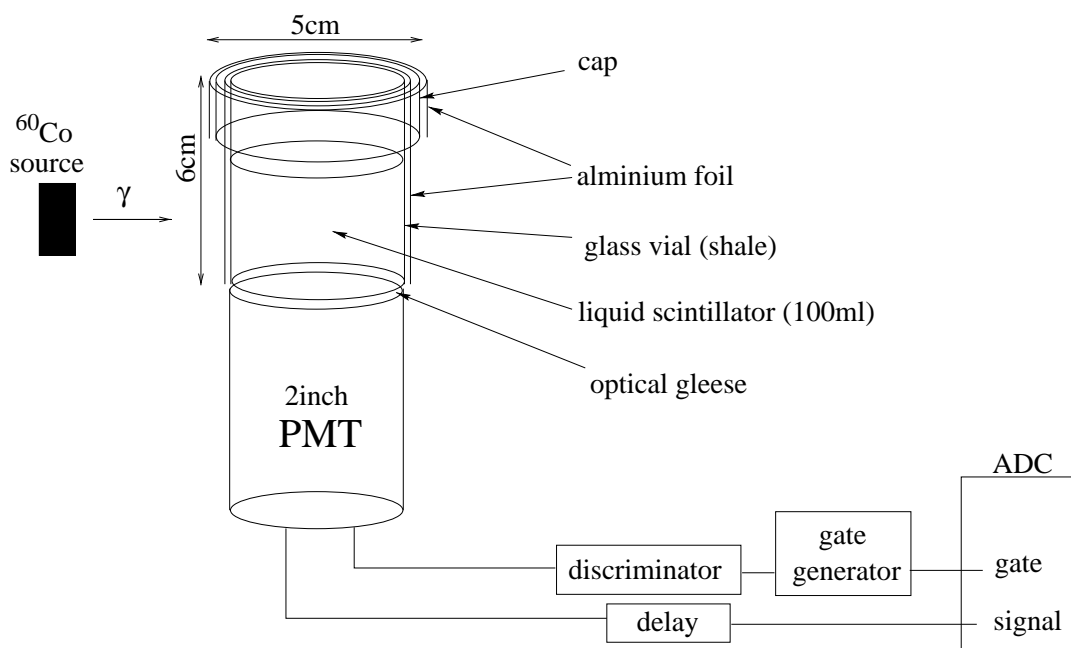


図 3.11: 光量測定に用いた実験装置

3.4.2 測定結果

BC517H、BC519 についてのコンプトンエッジスペクトルの測定結果を示す。測定した液体シンチレーター濃度は、BC517H が 100%、50%、33%、20%、10% で、BC519 が、100%、50%、25%、20%、10% であるが、その典型的な 4 例を載せる。

図 3.12 と 3.13 をまとめて、さらに Pseudocumene+PPO 5g/l+Bis-MSB 0.1g/l という液体シンチレーターの発光量測定結果と合わせると、図 3.14 になる。

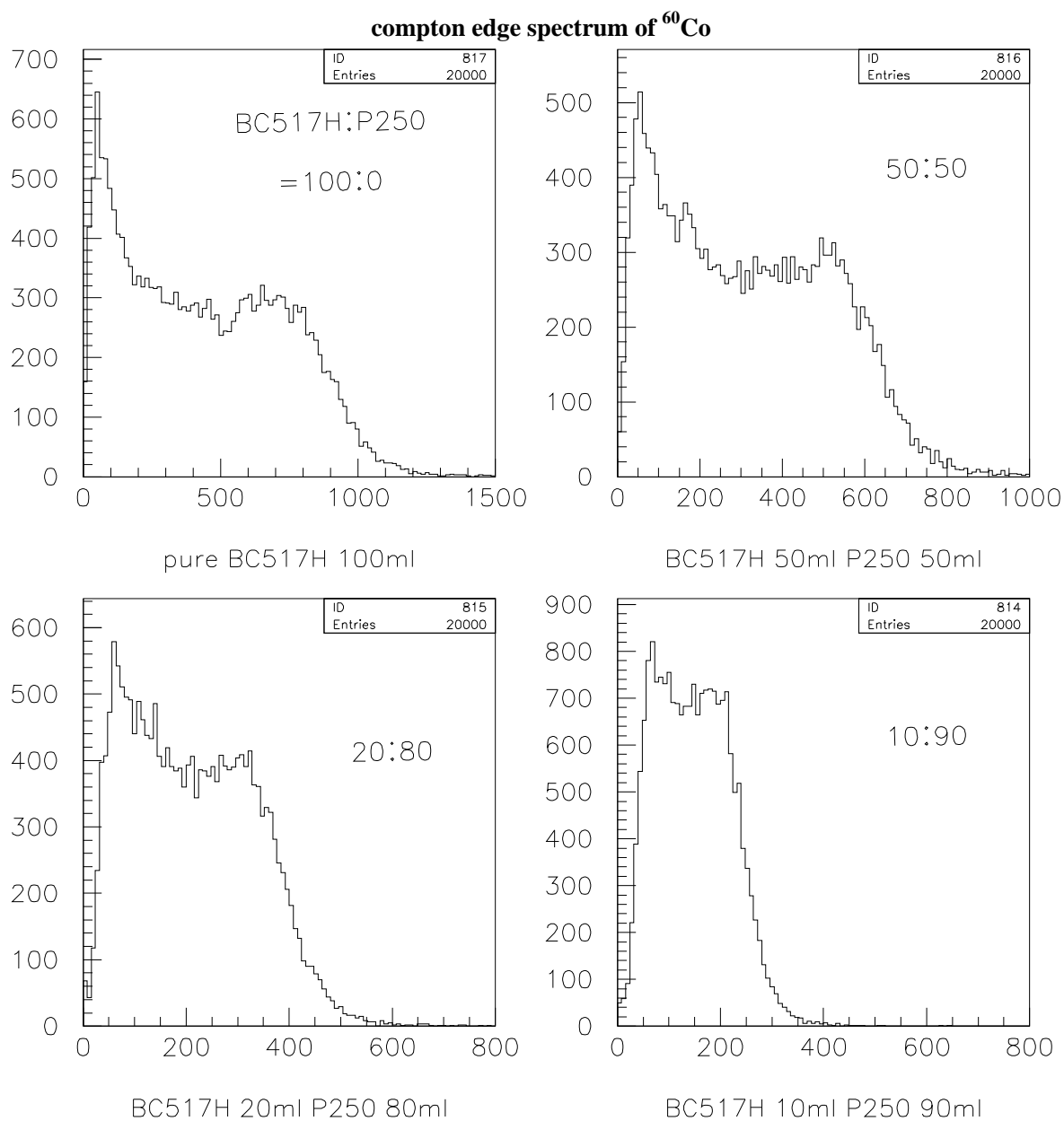


図 3.12: BC517H のコンプトンエッジスペクトル

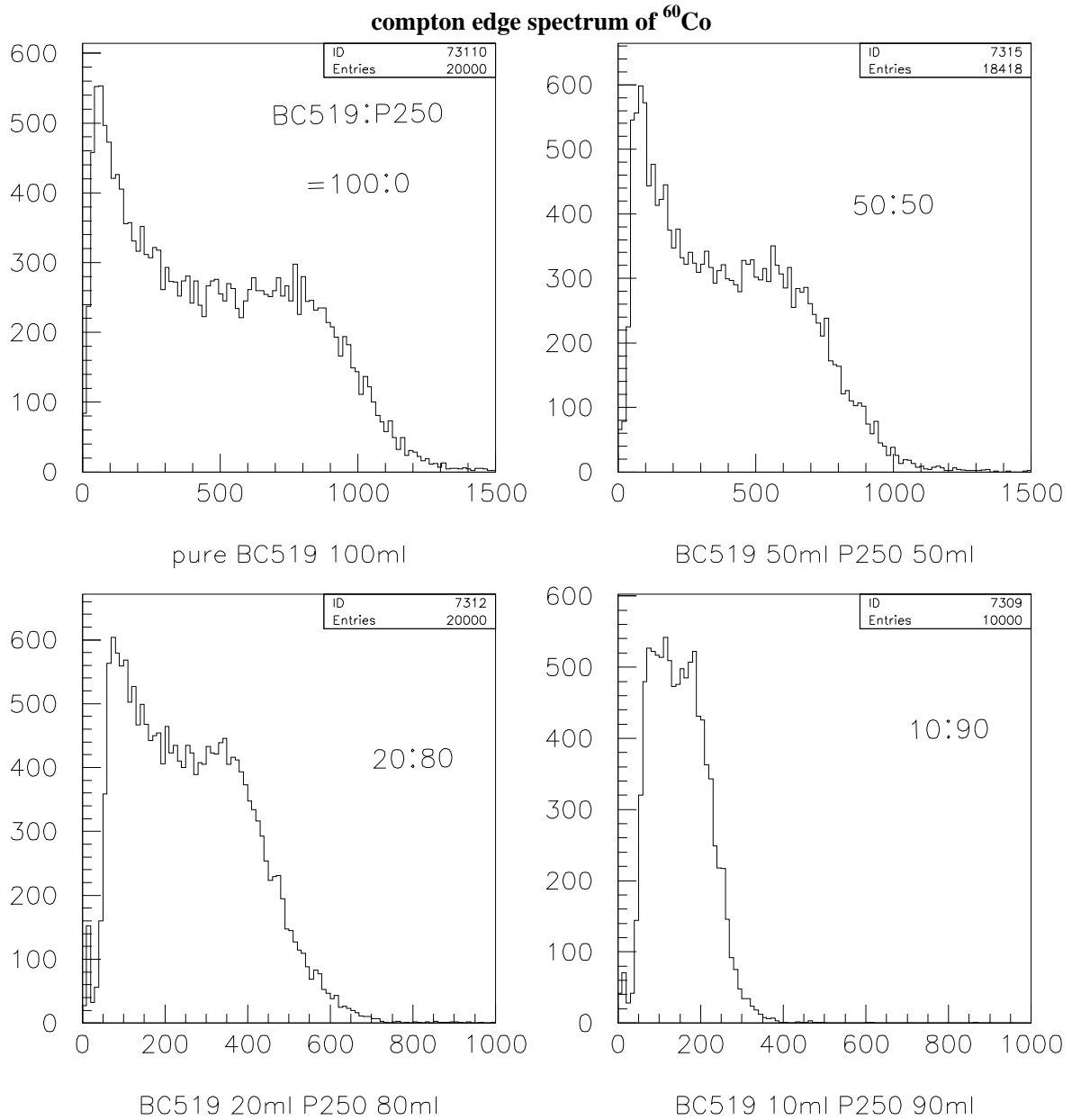


図 3.13: BC519 のコンプトンエッジスペクトル

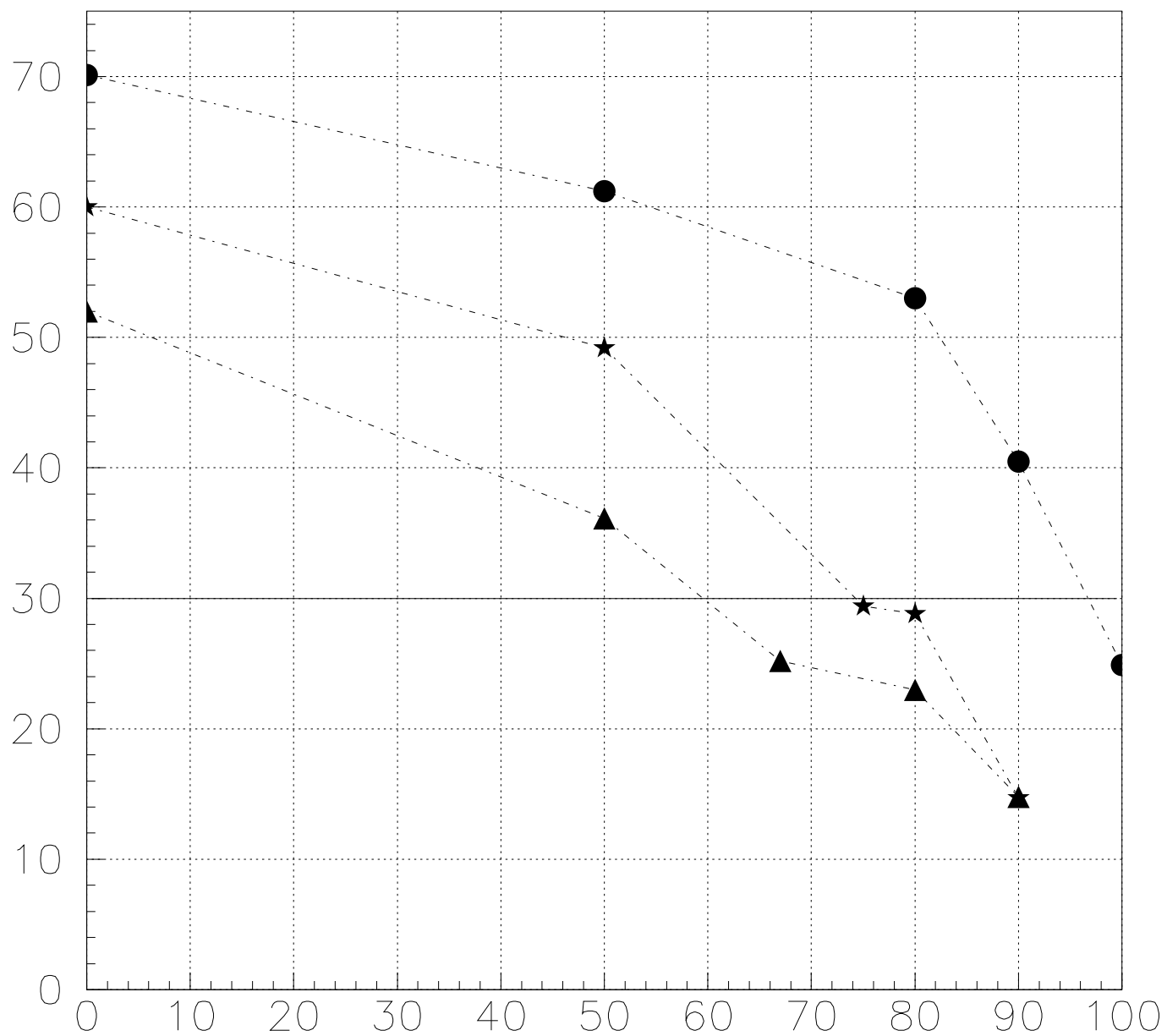


図 3.14: BC519、BC517H と、PC+PPO+Bis-MSB の光量変化

3.5 まとめ

図 3.14から、それぞれ発光量の観点のみから考えると、液体シンチレーターに対する要請が 30% Anthracene であったので、この条件を満たすイソパラフィンの量を知ることができる。その結果 BC517H ではイソパラフィン濃度が 60% 程度以下、BC519 では 75% 程度以下、Pseudocumene では 95% 程度以下が許容範囲であるといえる。以上から発光量の点からみた液体シンチレーターでは、最も Pseudocumene+PPO5g/l+Bis-MSB0.1g/l がイソパラフィンを混ぜることができる。そのため、安価に製造することができ、光の透過率も良くなり、Buffer Liquid 槽の屈折率、密度に近い液体シンチレーターとなる。

第 4 章

種々の液体シンチレーターの信号波形時間特性

この章では、イソパラフィン濃度を変えた種々の液体シンチレーターについて、信号波形の時間特性を調べた。また、実際にイソパラフィン濃度により、信号波形が異なることを確かめた。これは次の章で述べるように、粒子識別の性能にも関係してくる重要な現象である。

4.1 測定装置

測定装置の回路図を図 4.1 に示す。線源には ^{60}Co を用いて、そこから放出される γ 線の信号波形を記録した。また、光電子増倍管には 2 インチ H1161 光電子増倍管を用いて、液体シンチレーターは測定前に窒素バブリングを施した。

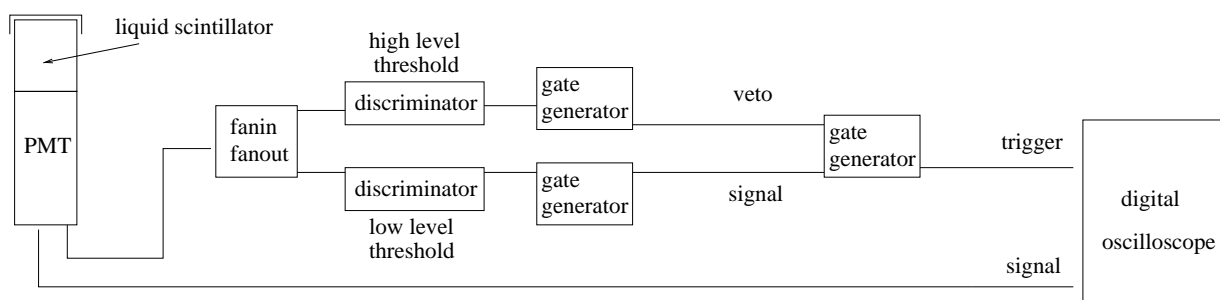


図 4.1: 時間特性の測定回路

まず、光電子増倍管から来る信号のうち、一系統を fanin、fanout で二系統に分割し、それぞれ discriminator に通す。それぞれの discriminator のしきい値を high level、low level と書いてあるが、このしきい値の間にくる信号のみ取り出すため、high level threshold を越えた信号は veto に、low level threshold を越えた信号は signal として gate generator に入力する。このモジュールからでた信号の波形をトリガーにし、光電子増倍管から出てきたもう一つの信号の波形をオシロスコープで記憶する。今回は、オシロスコープの波形コピー機能をいかして、信号波形の時間情報を計算機で読み込んだ。

4.2 測定結果

第3章で測定した、3つの液体シンチレーターごとにイソパラフィン濃度を変えた液体シンチレーター溶液について、信号波形を記録した。結果の波形は以下の通り。

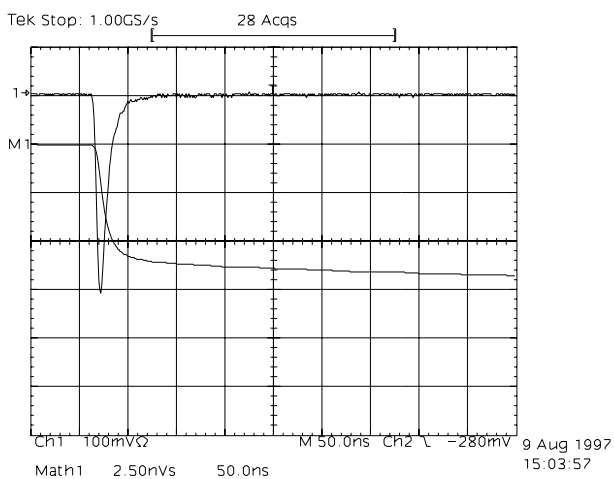


Figure 4.2: BC517H 100% の波形

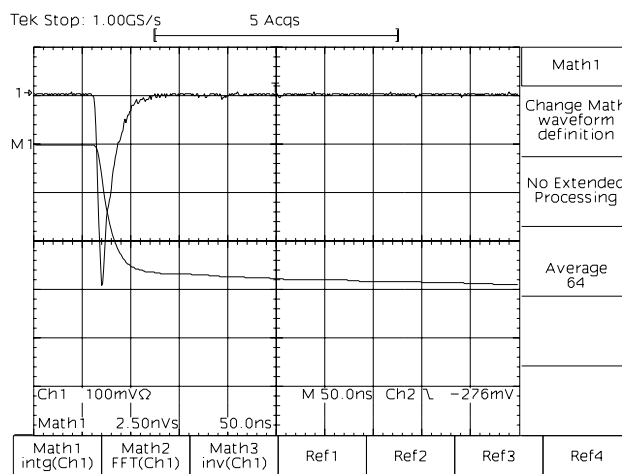


Figure 4.3: BC517H 50% の波形

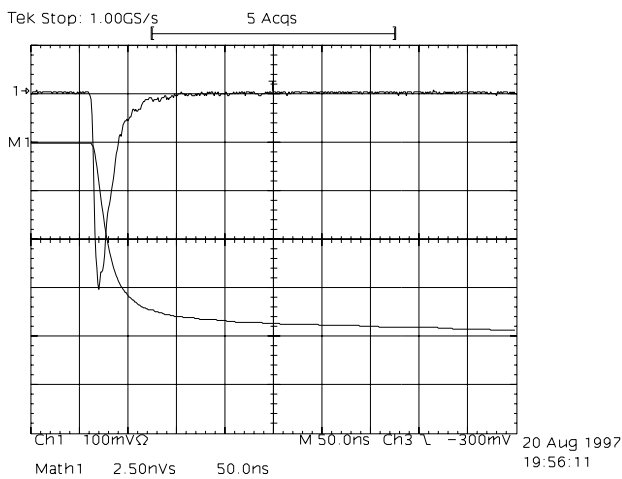


Figure 4.4: BC517H 33% の波形

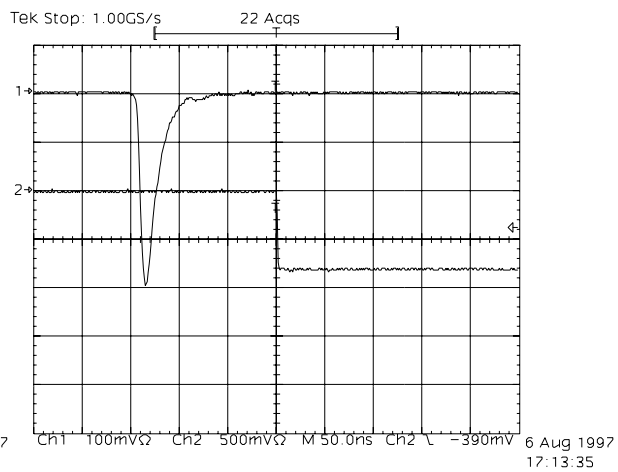


Figure 4.5: BC519 100% の波形

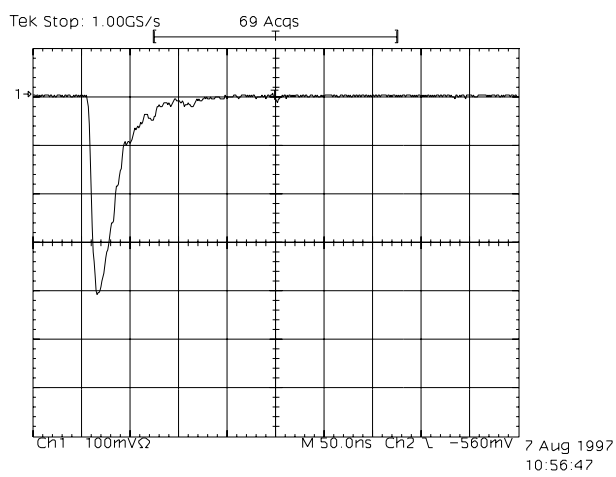


Figure 4.6: BC519 50% の波形

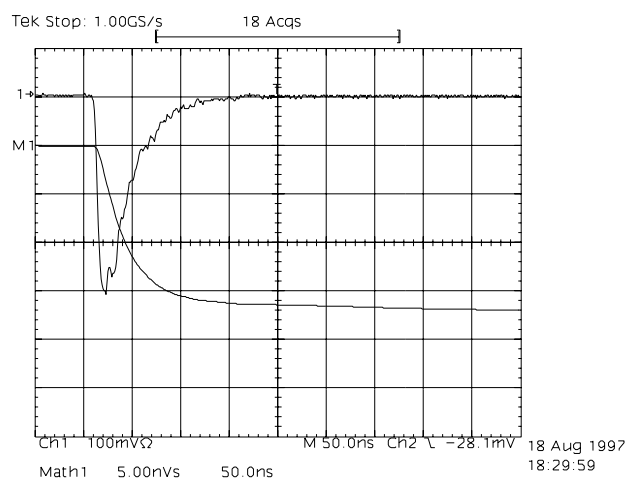


Figure 4.7: BC519 25% の波形

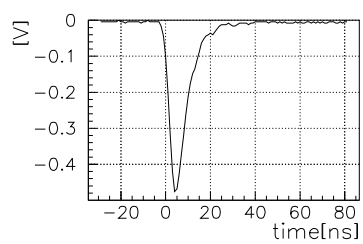


Figure 4.8: Pseudocumene 50% の波形

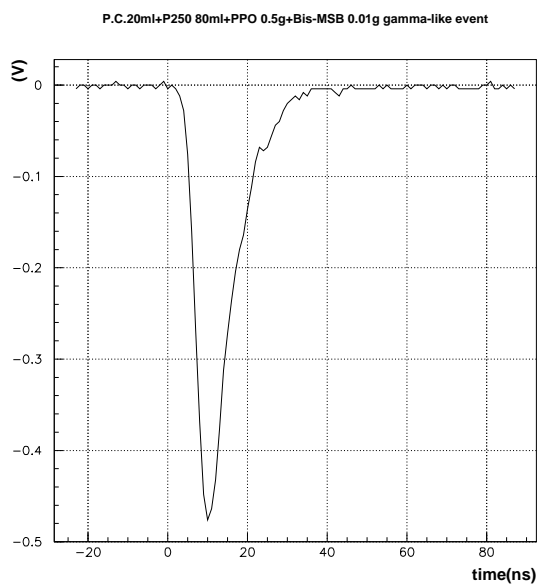


Figure 4.9: Pseudocumene 20% の波形

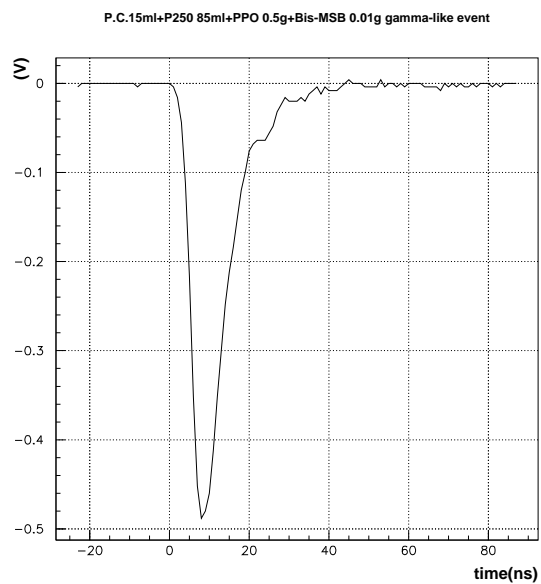


Figure 4.10: Pseudocumene 15% の波形

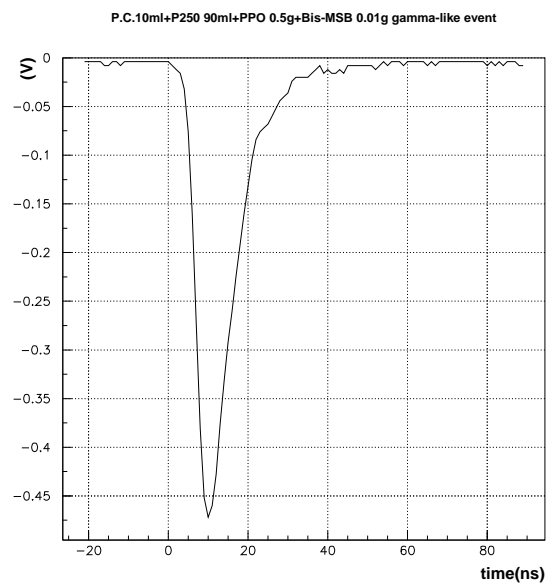


Figure 4.11: Pseudocumene 10% の波形

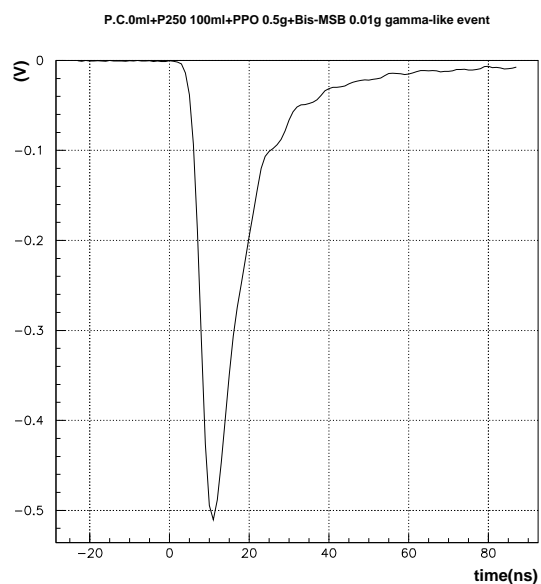


Figure 4.12: Pseudocumene 0% の波形

4.3 考察

種々の液体シンチレーターの時間特性の評価は半波高全幅値（以下、FWHM¹と略す）を用いて比較する。結果は図 4.13 の通り。横軸には、いままでと同様にイソパラフィン濃度を取り、縦軸に波形の FWHM（単位は ns）をとる。

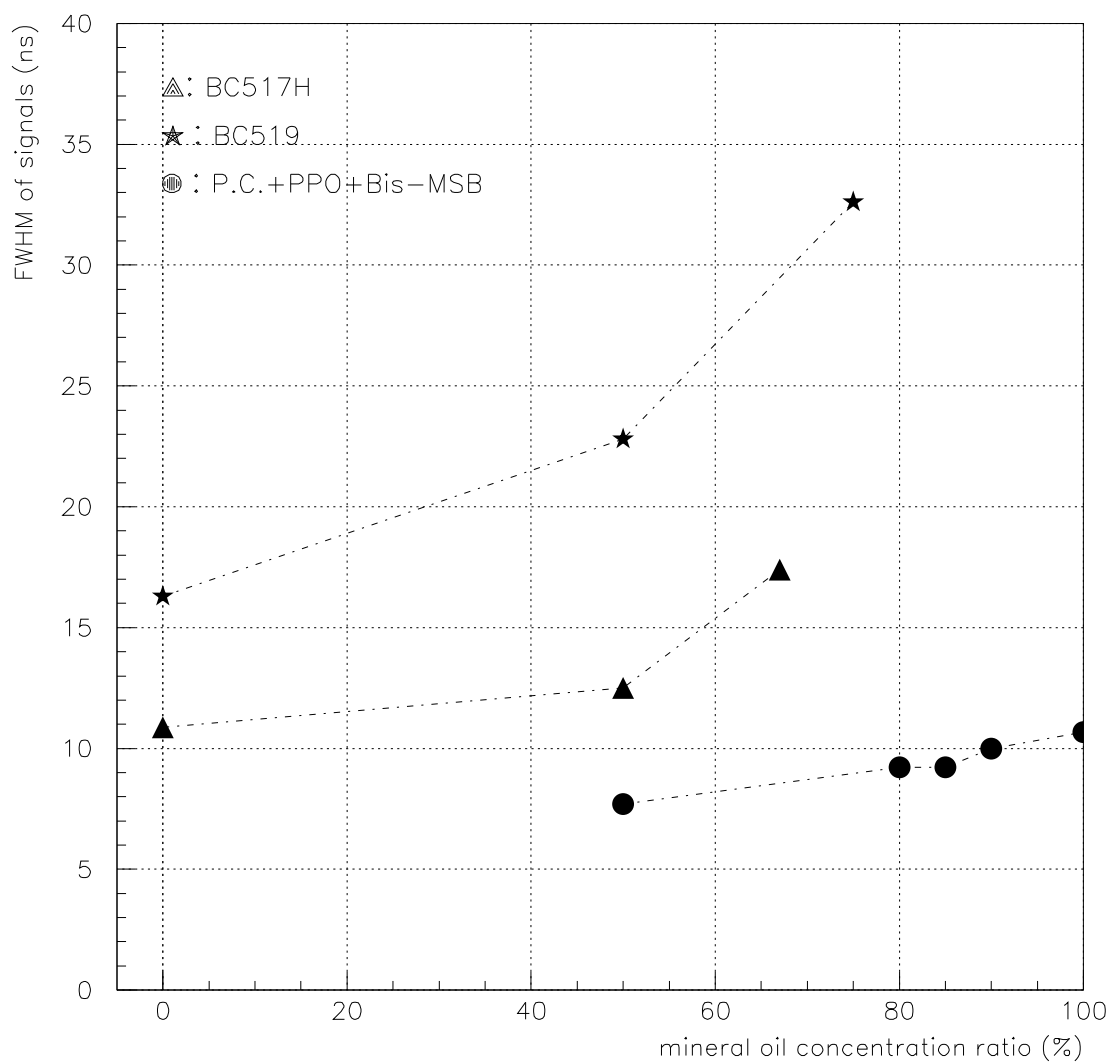


図 4.13: 種々の液体シンチレーターの時間特性

¹Full Width at Half Maximum

これより、それぞれの液体シンチレーターにおいて、イソパラフィン濃度を増やすと信号波形の FWHM の値が大きくなる、つまり信号波形の時間特性は悪くなるという結果が得られた。特に、バイクロン社製の液体シンチレーター BC517H と BC519 においてこの傾向が顕著に見られた。BC519 ではイソパラフィン濃度が 75% のとき、純粋な BC519 の FWHM の値に対して約 2 倍、BC517H ではイソパラフィン濃度が 67% のとき、純粋な BC517H に対して約 1.5 倍となった。それに対し、Pseudocumene に発光剤を混ぜた液体シンチレーターでは、ミネラルオイル濃度が 50% から 100% までの変化の場合に、約 1.4 倍になった。また、3 種類の液体シンチレーターの信号の波形時間特性を比較すると、Pseudocumene ベースの液体シンチレーターが最も FWHM の値が小さく、10ns 前後であるのに対し、BC517H では、イソパラフィン濃度が 67% のときに 17ns 程度、BC519 にいたっては 75% のときに 32ns となった。

4.4 まとめ

図 4.13 から、種々の液体シンチレーターごとに波形の時間特性は異なり、またイソパラフィン濃度によっても異なることが分かった。現在の時点で波形の時間特性が良いのは、イソパラフィン濃度を変えてもあまり FWHM の値が変わらず、また FWHM の値が小さい Pseudocumene ベースの液体シンチレーターである。

今後、正確に液体シンチレーターの発光波形の時間特性を測定するためには、光電子増倍管自身の時間特性も考慮に入れる必要がある。また、入射重粒子、軽粒子により波形も異なるために、中性子、 α 粒子などの信号波形も必要である。これらの波形を正確に測定することは、Kam-LAND 実験での実際の事象をシミュレーションするためにも必要となり、不可欠な測定である。

第 5 章

粒子識別能測定

この章では、今回の主題のうちの一つである粒子識別特性について、特に（中性子・ α 線）と、（ γ ・ β 線）の分離について述べる。まず、5.1章で粒子識別の必要性、5.2章で粒子による液体シンチレーターの波形の違いの原理、5.3章で粒子識別の方法について述べる。そのあと、5.4章で n/γ 粒子識別の結果を、5.5章で、 α/γ 粒子識別の結果を示す。測定した液体シンチレーターは第3章で使用したものと全く同じ物である。発光量の場合と同じく、イソパラフィン混ざり液を混ぜていったときに粒子識別特性がどうなるかを調べ、どの液体シンチレーターがイソパラフィンを最大に混ぜられ、その上粒子識別能が良いかを決定する。

5.1 重粒子 / 軽粒子分離の必要性

本研究では重粒子と軽粒子の分離が非常に重要となる。Kam-LAND 実験では電子型反ニュートリノ検出が主な目的であるが、高速中性子に起因するイベントは電子型反ニュートリノと混同する可能性があるからである。

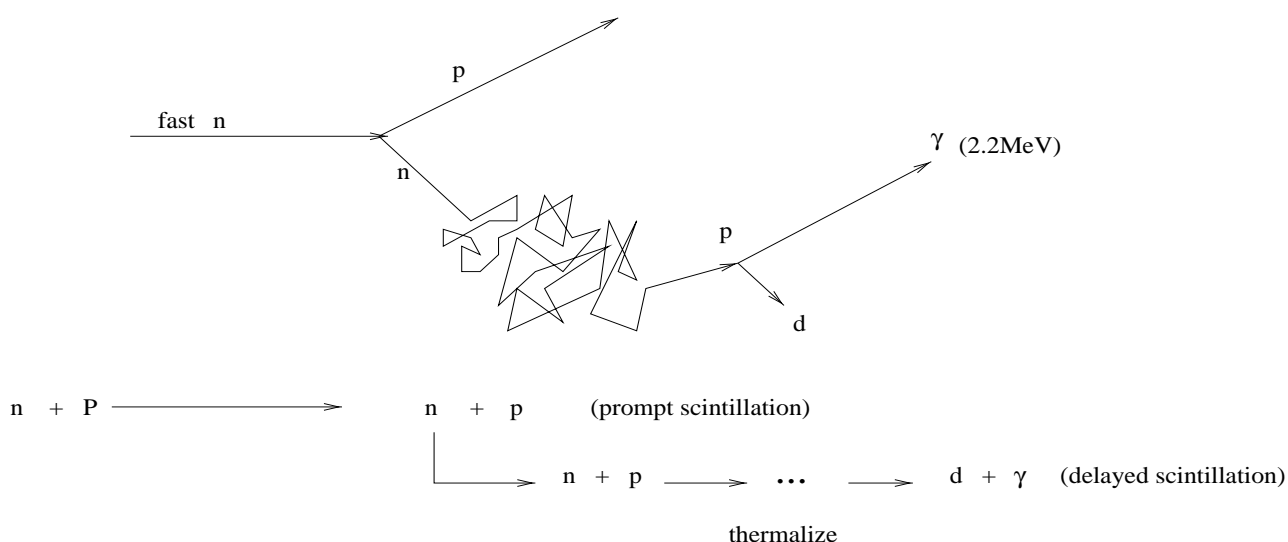


図 5.1: 中性子の液体シンチレーター中での反応

10MeV 程度の高速中性子 (n) が液体シンチレーターに入射すると液体シンチレーター中の水素原子核 (p) と弾性散乱し、反跳水素原子核がシンチレーション光を発する。これが prompt signal となる。

散乱された中性子は陽子と弾性散乱を繰り返し、最後に陽子に吸収されて重陽子 (d) になり、そのときに 2.2MeV のガンマ線を放出する。これが delayed signal を生成する。このため、中性子に起因するシンチレーション光とガンマ線に起因するシンチレーション光を区別出来なければ、電子型反ニュートリノイベントを同定できない。

3,000 トン検出器を構成する実験室空洞、純水、液体シンチレーター中にはウラン (^{238}U)、トリウム (^{232}Th)、ラジウム (^{226}Ra)、ラドン (^{222}Rn) など崩壊系列に属するものやカリウム (^{40}K) など系列に属さない放射性元素などが含まれていて、放射性元素の崩壊から α 、 β 、 γ 線、自発核分裂から中性子などが放出される。

これらのバックグラウンドイベントは、遅延同時計数回路によって取り除かれるはずであるが、必ず偶発バックグラウンド計数率は起こる。重粒子に起因した場合の同時計数を識別することが可能であれば、これら偶発バックグラウンド計数率は格段に下がるはずである。

以上述べたように重粒子と軽粒子の弁別能は、バックグラウンドを取り除いて Kam-LAND 実験のデータの正当性を証明するためには欠くことの出来ない重要な要素となる。

5.2 重粒子、軽粒子による液体シンチレーターの出力波形の違い

2.2.5 章で述べたように放射線の種類により速い成分と遅い成分の相対的強度が異なる。この性質を利用して重粒子と軽粒子の区別をし、バックグラウンドとなる重粒子に起因するイベントを取り除くことを考える。

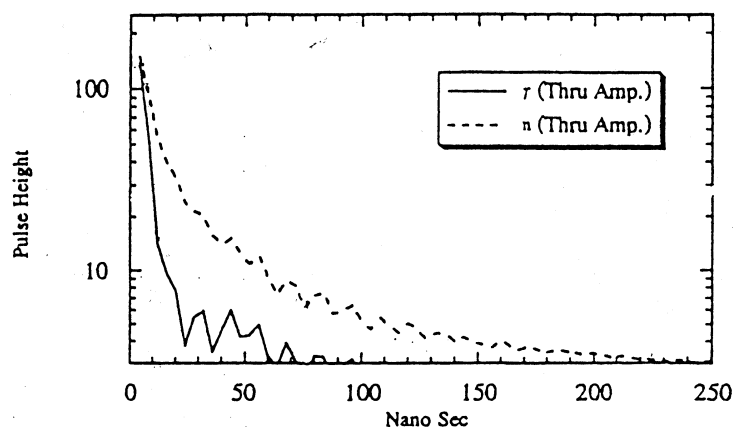


図 5.2: 中性子, ガンマ線の液体シンチレーター中での典型的な発光波形 [19]

図 5.2 は NE213 という Nuclear Enterprise 社製造の液体シンチレーター中での中性子とガンマ線の発光波形の例である [19]。比較のため、中性子とガンマ線の波形は立ち上がりのピーク位置で規格化してある。図をみれば明らかなように、中性子とガンマ線の波形には減衰時間に差がある。さらに、図 5.3 [20] は、Borexino の C.T.F.¹ で用いられた液体シンチレーターにおける α 粒子と β 粒子の波形を表している。こちらも、 α 粒子と β 粒子の波形をピーク位置で規格化している。この α 粒子と β 粒子の波形でも、同様の違いがみられている [21]。これは、以下のように考えられている。まず、液体シンチレーターの減衰時間には様々な減衰定数を持つ要素がある。そのうち、早い成分の発光量は入射する粒子のエネルギー損失 (dE/dx) に非常に関係があり、エネルギー損失の量が多い粒子が入ってくるほど発

¹the Counting Test Facility

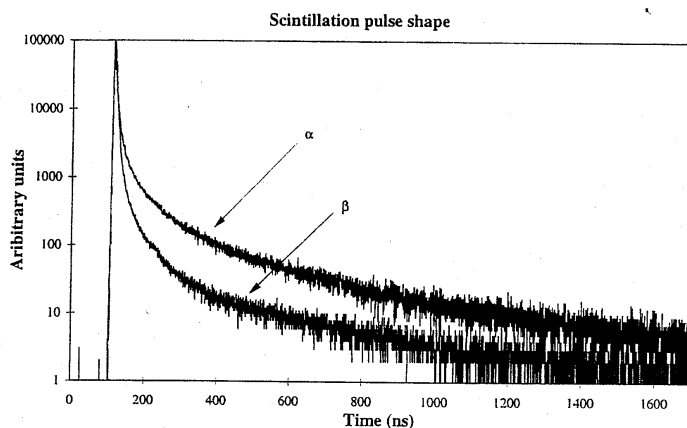


図 5.3: α , β 線の液体シンチレーター中での典型的な発光波形 [20]

光量は落ちる。一般に、発光量を L 、入射する粒子のエネルギーを E とすると、液体シンチレーターの単位エネルギー当たりの発光量は、

$$dL/dE = S/(1 + kBdE/dx) \quad (5.1)$$

で表されることが知られている [22]。ここで、 S はシンチレーション効率、 kB は、Birks' 定数である。上式をみると、単位エネルギー当たりの発光量が、 dE/dx が大きくなるほど小さくなる、ということが読みとれる。ここで、早い成分のみこの式に関わり、遅い成分はエネルギー損失の量に関わらず一定だとすると、重粒子の遅い成分が軽粒子に比べて大きいという現象が理解できる。現在早い成分の発光量が dE/dx の大きい物質で少なくなることは、電離クエンチング作用から理解されている (第 2.3.5 章参照)。

5.3 波形弁別法 (Pulse Shape Discrimination Method)

我々は、重粒子、軽粒子を区別するために、波形弁別法 (Pulse Shape Discrimination 法)[17][19][23] というものを用いる。これは、全電荷量と、tail の部分の電荷量をそれぞれの波形で測定し、その比を入射粒子に応じて直接比較するものである。この実験では、反跳陽子及び電子からの光パルスのなかで、全光量と tail 部分の光量を測定する。図 5.4 に、シンチレーションパルスと、ADC (Analogue to Digital Converter) のゲートの時間的な関係の例を示す。この図のようにして、全光量と tail の光量を測定する。initial delay というのは tail の部分を、波形の立ち上がりから数えてどのタイミングで定義するか、という時間の遅れを表している。initial delay 値は、実際に測定して、粒子識別能の最も良くなる値が採用される。第 4 章からわかるように、シンチレーターの種類、イソパラフィンの濃度が異なると、波形の時間特性が変わる。そのため、シンチレーターの種類、イソパラフィン濃度が変わるたびに、initial delay の最適値も変わる。

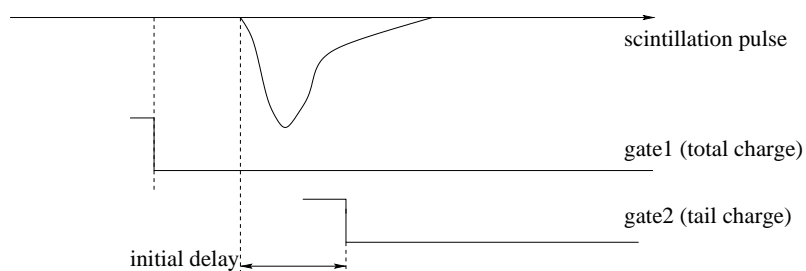
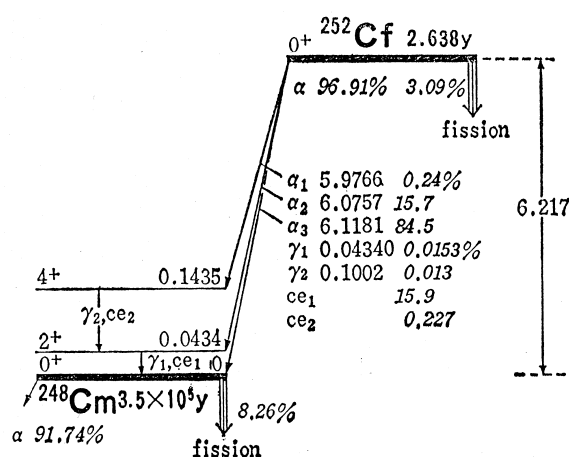


図 5.4: シンチレーションパルスと ADC のゲートの timing の関係

5.4 n/γ 粒子識別

5.4.1 実験の前準備

線源には ^{252}Cf を用いる。この線源からは自発核分裂により、中性子と γ 線が放出される。図 5.5 に ^{252}Cf の崩壊図を、図 5.6 に、 ^{252}Cf 、 $^{241}\text{Am/Be}$ から放出される中性子、 γ 線のエネルギースペクトルを示す。

図 5.5: ^{252}Cf の崩壊図 [26]

シンチレーターは BC517H、BC519 と、Pseudocumene+PPO+Bis-MSB にそれぞれイソパラフィン を混合したものである。この液体シンチレーターを光量測定の場合と同じく、外側をアルミニウム箔 で覆ったガラス製のシャーレに入れて、測定する。測定開始前には、窒素バブリングを 30 分実施し、液 体シンチレーター内の酸素を取り除く。光電子増倍管は H1161 浜松フォトニクス社製の 2 インチ光電子 増倍管を用いる。

5.4.2 測定回路

測定回路の図は図 5.7 に示す。

光電子増倍管からの信号は fan-in、fan-out で分割され、全光量測定の場合はさらにゲート内に信号 が収まるよう、delay にかけて、ADC の信号部分に入力される。光電子増倍管から取り出されたも

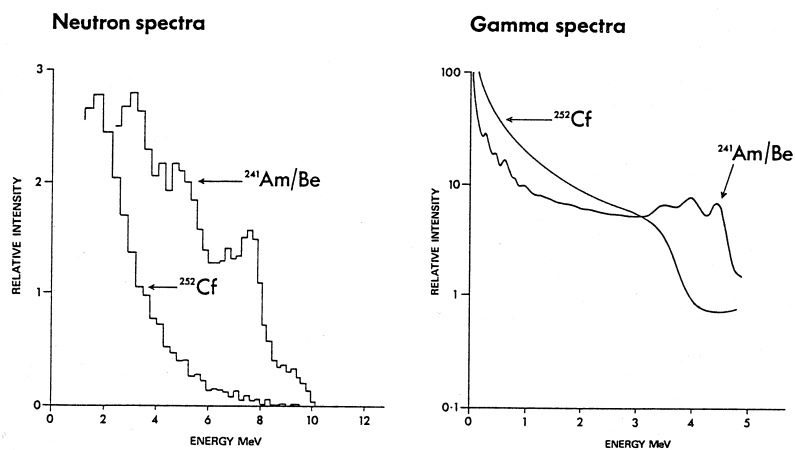


図 5.6: ^{252}Cf から放出される中性子、 γ 線のエネルギースペクトル [24]

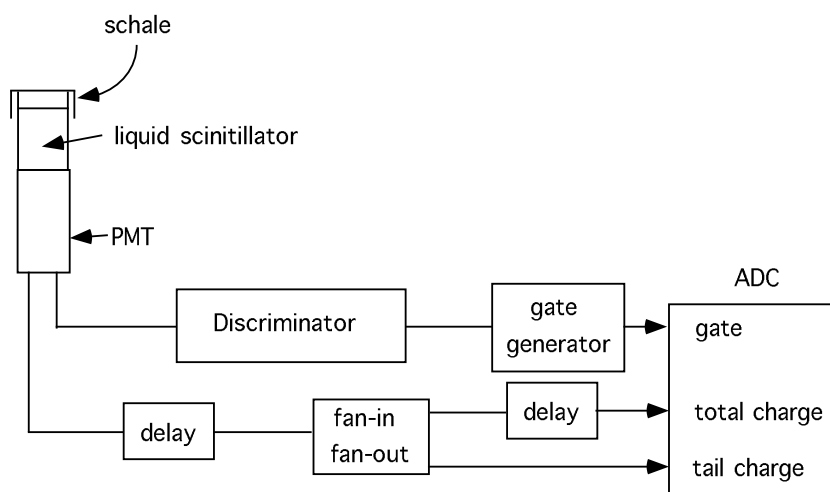


図 5.7: 測定回路図

う一つの信号は、discriminator、gate generator を通過して、ADC のゲートとして入力される。

5.4.3 γ 線だけの信号と (γ 線 + 中性子) 信号の比較

この章では、線源に ^{60}Co を用いて γ 線だけの信号を測定した場合と、 ^{252}Cf を用いて γ 線と中性子の混じった信号を測定する。そのとき、全光量に対する tail 部分の光量の比をとった結果のグラフを利用して、γ 線だけの結果と比較して γ 線と中性子の混じった信号のなかに、正確に中性子の信号が増えているかどうかを検証をする。

まず、図 5.8 が、線源に ^{60}Co を用いた場合の γ 線信号の全光量と tail 部分の光量の 2 次元プロットである。この結果の (tail 部分)/(全光量) を計算して 1 次元ヒストグラムに直したのが図 5.9 である。

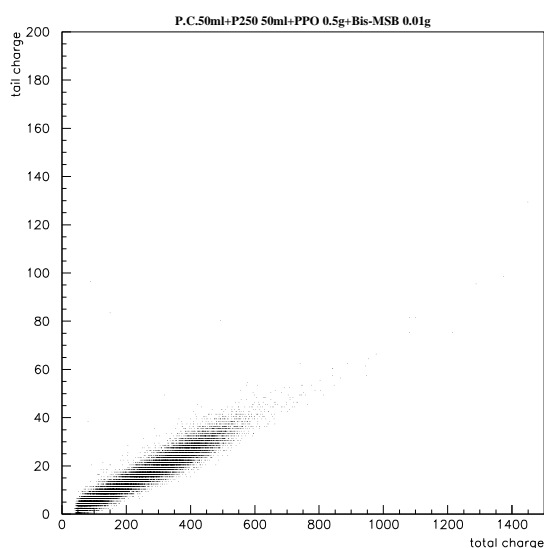


Figure 5.8: ^{60}Co 線源入射による γ 線の全光量と tail 部分の光量の 2 次元プロット

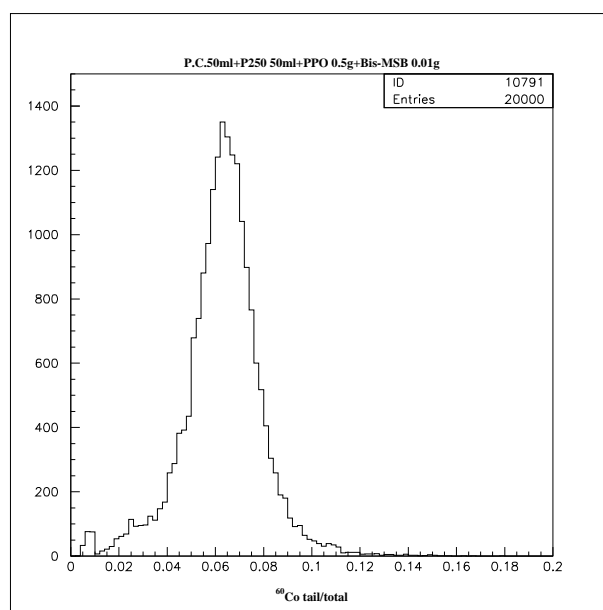


Figure 5.9: 全光量に対する tail 部分の光量の比の分布

次に、 ^{252}Cf 線源を用いて中性子と γ 線を同時に入射させた場合の全光量と tail 部分の光量の 2 次元プロットを図 5.10 に、その比の分布を図 5.11 に示す。

図 5.9 と図 5.11 を同じグラフ上に並べることにより、中性子が検出できているかどうか検証することができる。図 5.12 にその結果を示す。ヒストグラムは図 5.11 の結果であり、中性子と γ 線が混じっている。+ 印で示した点が図 5.9 の γ 線だけの結果である。

図 5.12 の結果から、γ のみの結果と比べて増えているところは確かに中性子であると結論出来る。この実験により、中性子を検出していることは確認されたため、以下の章で n/γ 粒子識別能の測定を行なう。

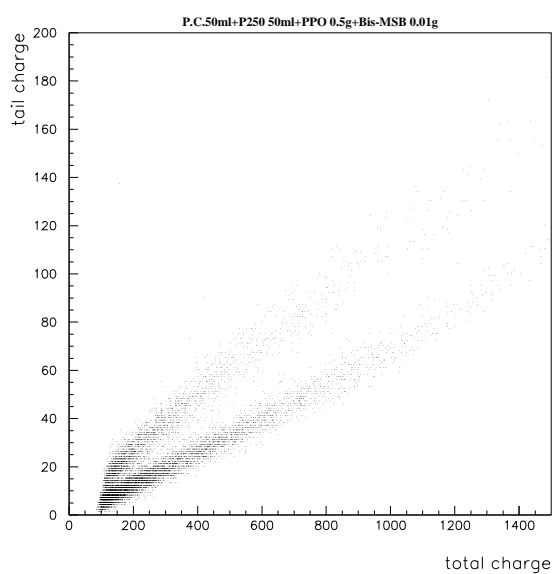


Figure 5.10: ^{252}Cf 線源入射による中性子と γ 線同時の全光量と tail 部分の光量の 2次元プロット

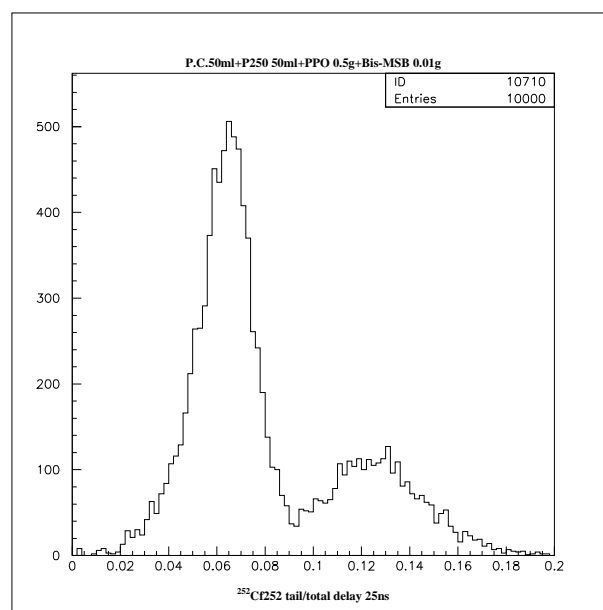


Figure 5.11: 全光量に対する tail 部分の光量の比の分布

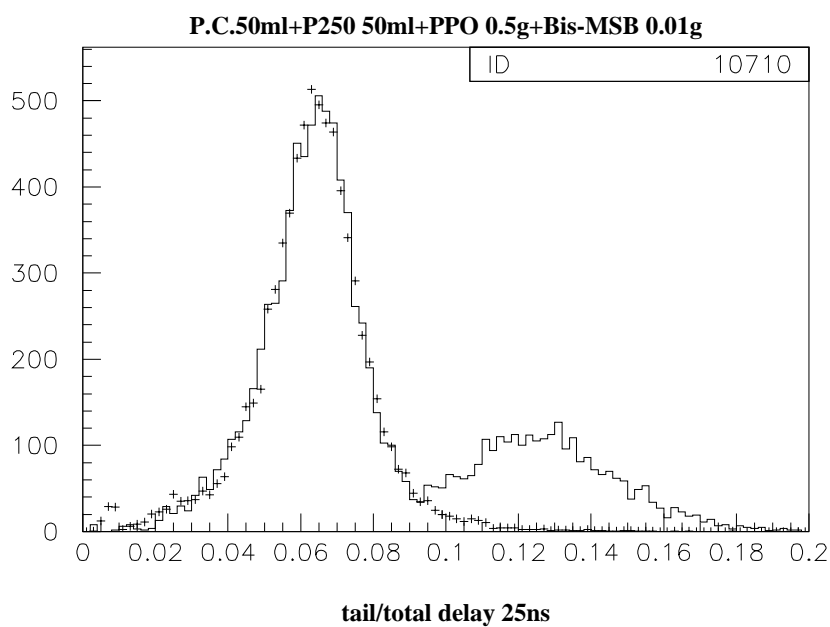
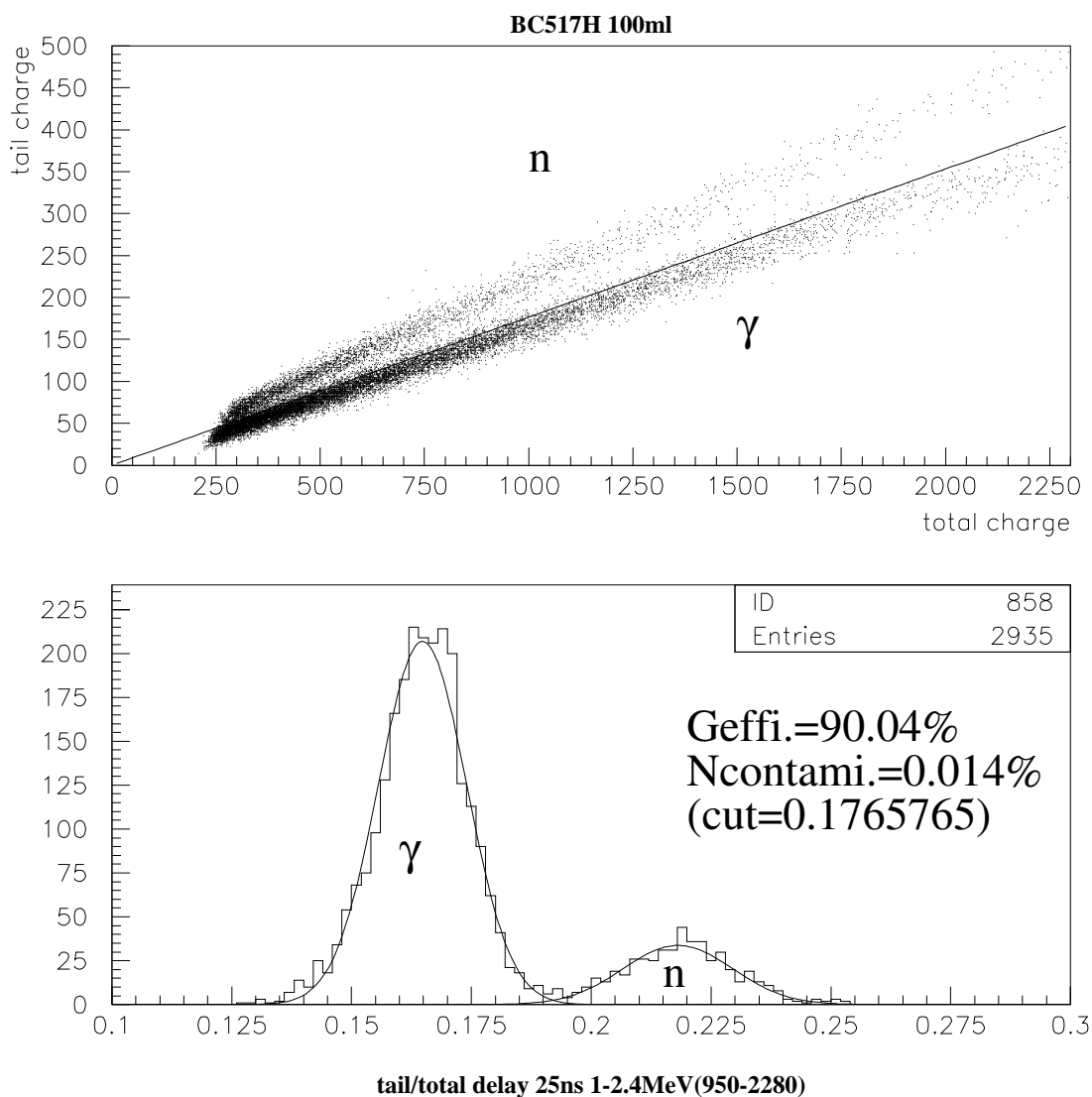


図 5.12: γ 線のみと、 γ + 中性子の tail/total 分布の比較

5.4.4 市販の液体シンチレーターの n/γ 粒子識別能測定の結果

この章では、バイクロン社製の液体シンチレーターにイソパラフィンを混ぜたシンチレーターの、 n/γ 識別能の結果の図を示す。図 5.13~5.15までが BC517H をベースに、図 5.16~5.18までが BC519 ベースの液体シンチレーターに、イソパラフィン濃度を変えたときのそれぞれの n/γ 粒子識別能の結果を示す。それぞれの図で、上のグラフは横軸に全光量、縦軸に tail 部分の光量をとって2次元プロットしたものである。下のグラフは、上のグラフからそれぞれの点で $\text{ratio} = \text{tail charge} / \text{total charge}$ を計算し、ratio を1次元のヒストグラムにしたものである。このとき、全てのグラフについて、比較可能なために、1~2.4MeV までのデータを選択している。また、 n/γ 粒子識別能の結果のグラフは全て、initial delay の値を最適化している。メーカー製造の液体シンチレーターの利点は、長期安定性が高いなど信頼性がおける点である。

図 5.13: BC517H 100% の n/γ 粒子識別能

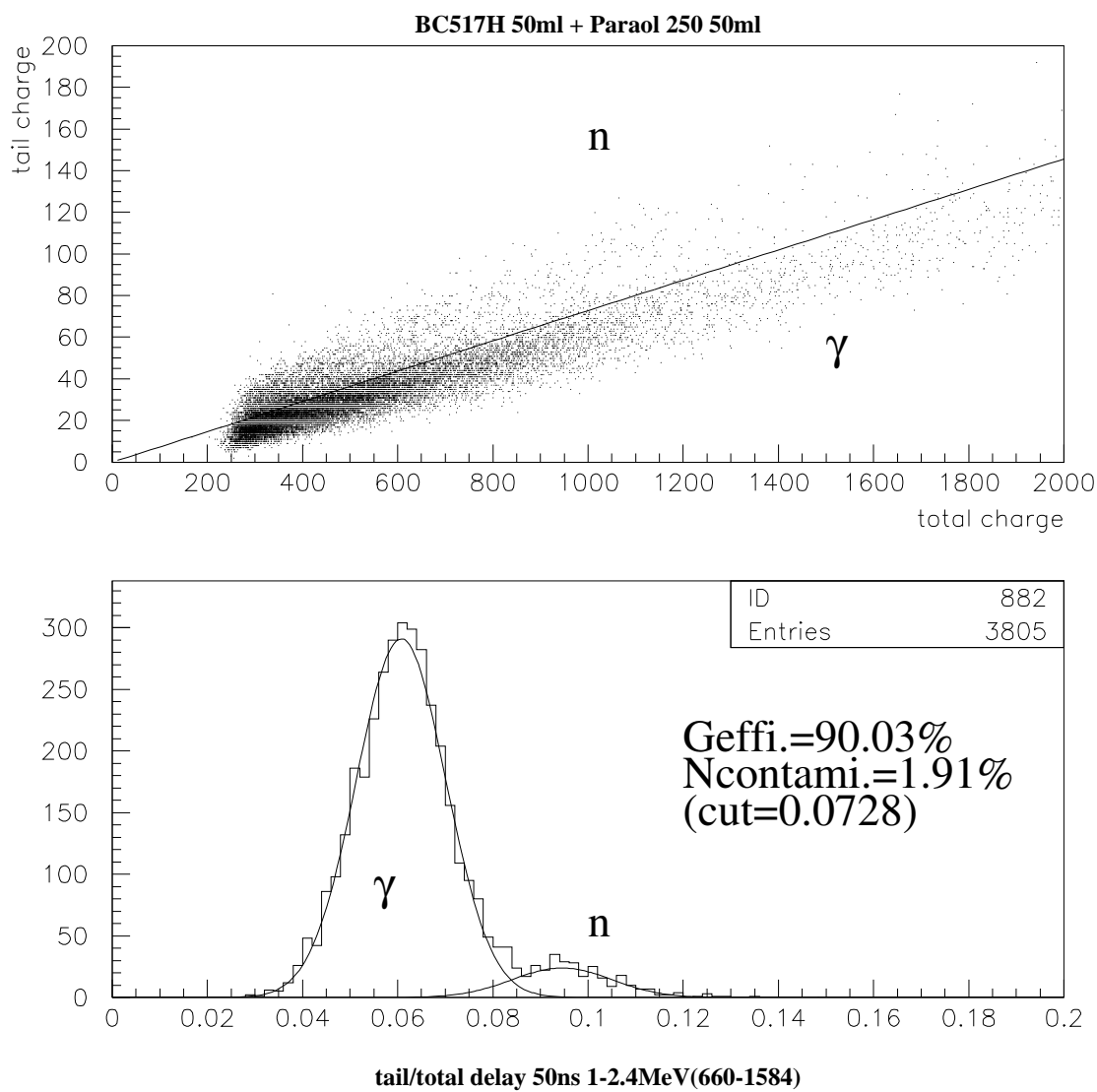
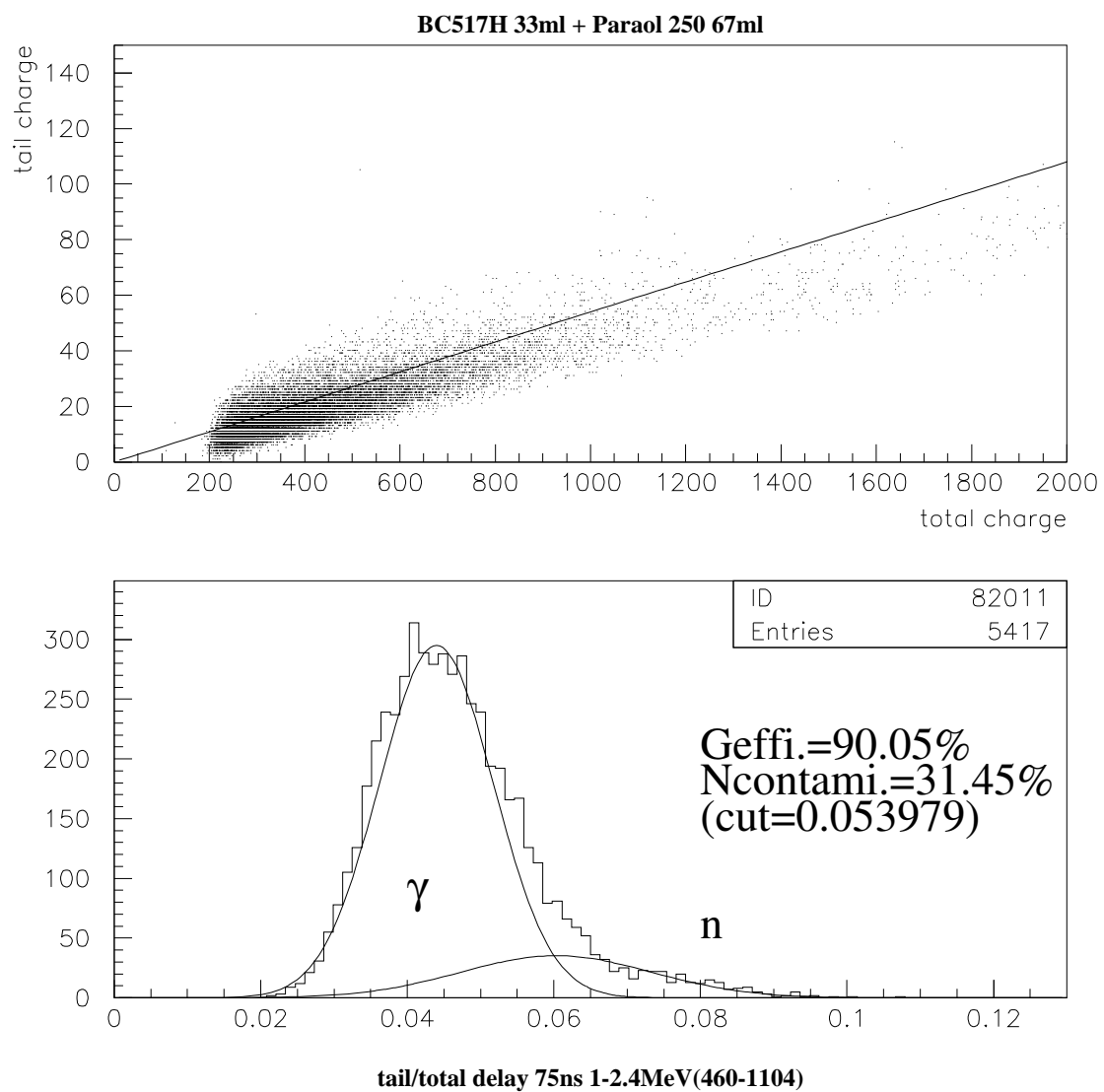


図 5.14: BC517H 50% P250 50% の n/γ 粒子識別能

図 5.15: BC517H 33% P250 67% の n/γ 粒子識別能

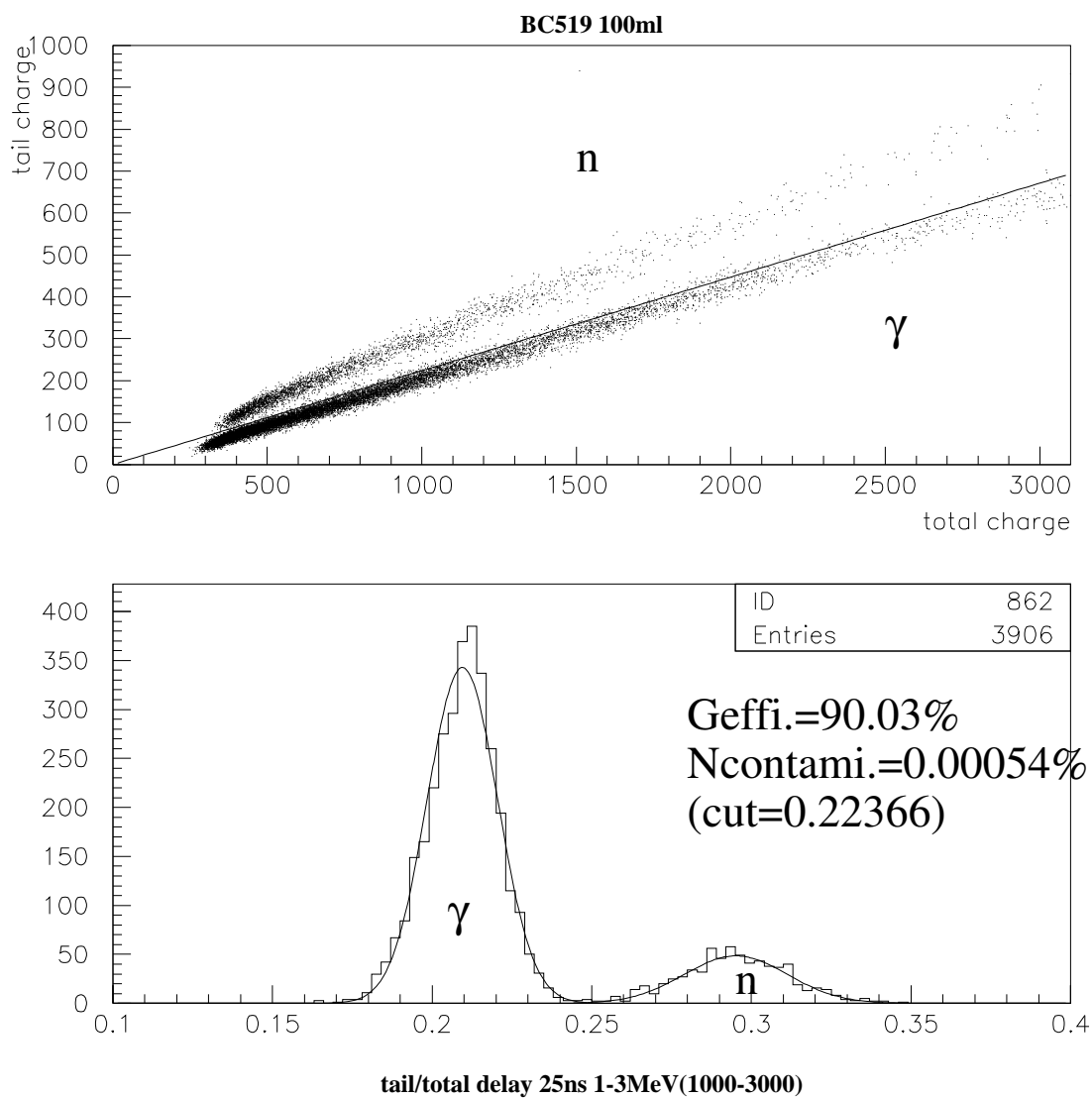
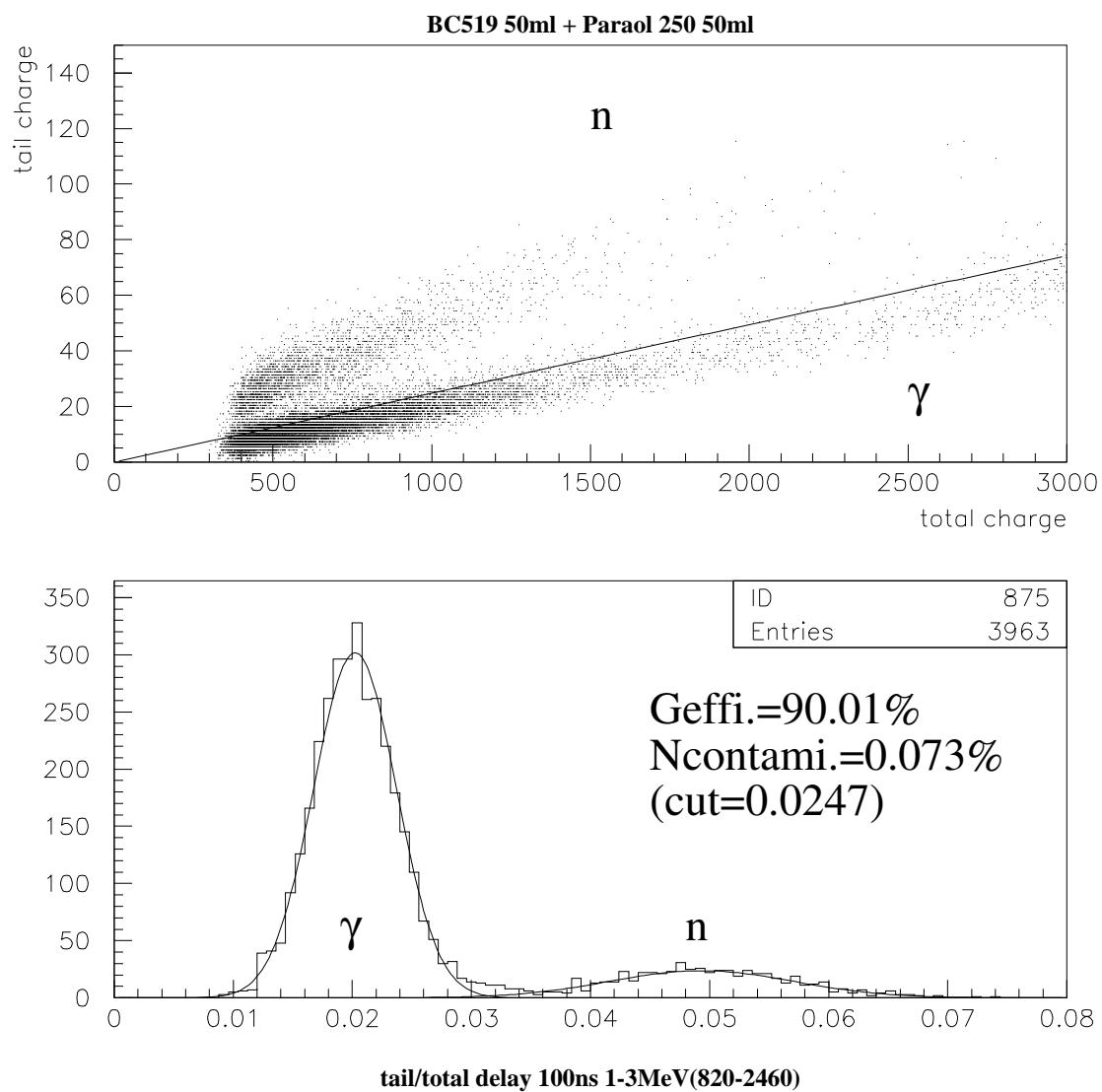


図 5.16: BC519 100% の n/ γ 粒子識別能

図 5.17: BC519 50% P250 50% の n/γ 粒子識別能

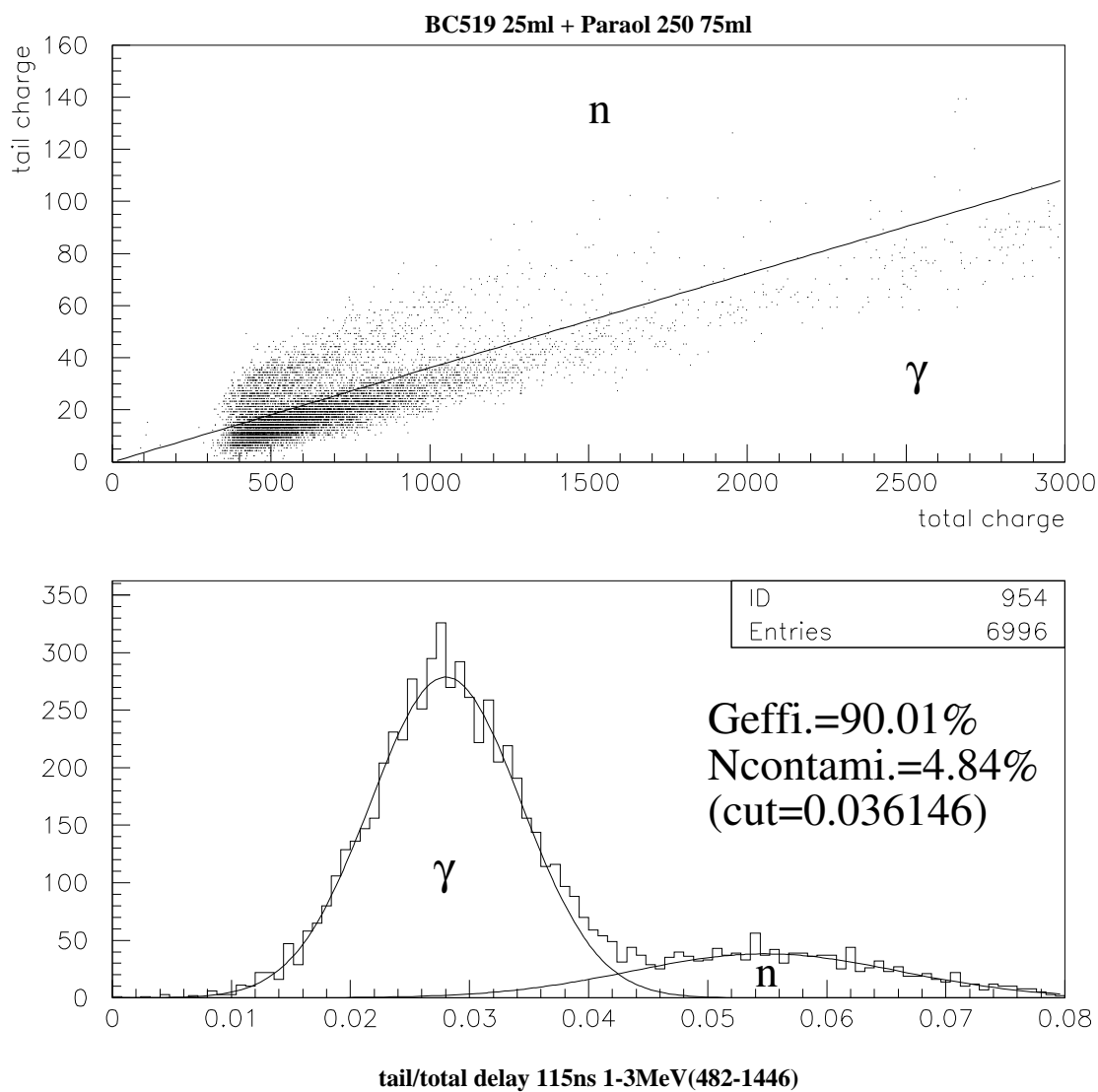


図 5.18: BC519 25% P250 75% の n/γ 粒子識別能

5.4.5 試作した液体シンチレーターの n/γ 粒子識別能測定の結果

この章では、自分達で液体シンチレーターの構成物質を購入し、調合した液体シンチレーターの n/γ 粒子識別能の結果を示す。図 5.19~5.23が Pseudocumene ベースの液体シンチレーターにおける n/γ 粒子識別能の結果である。自分達で調合する利点はなによりも、安価で都合のよい液体シンチレーターが製作できることにある。

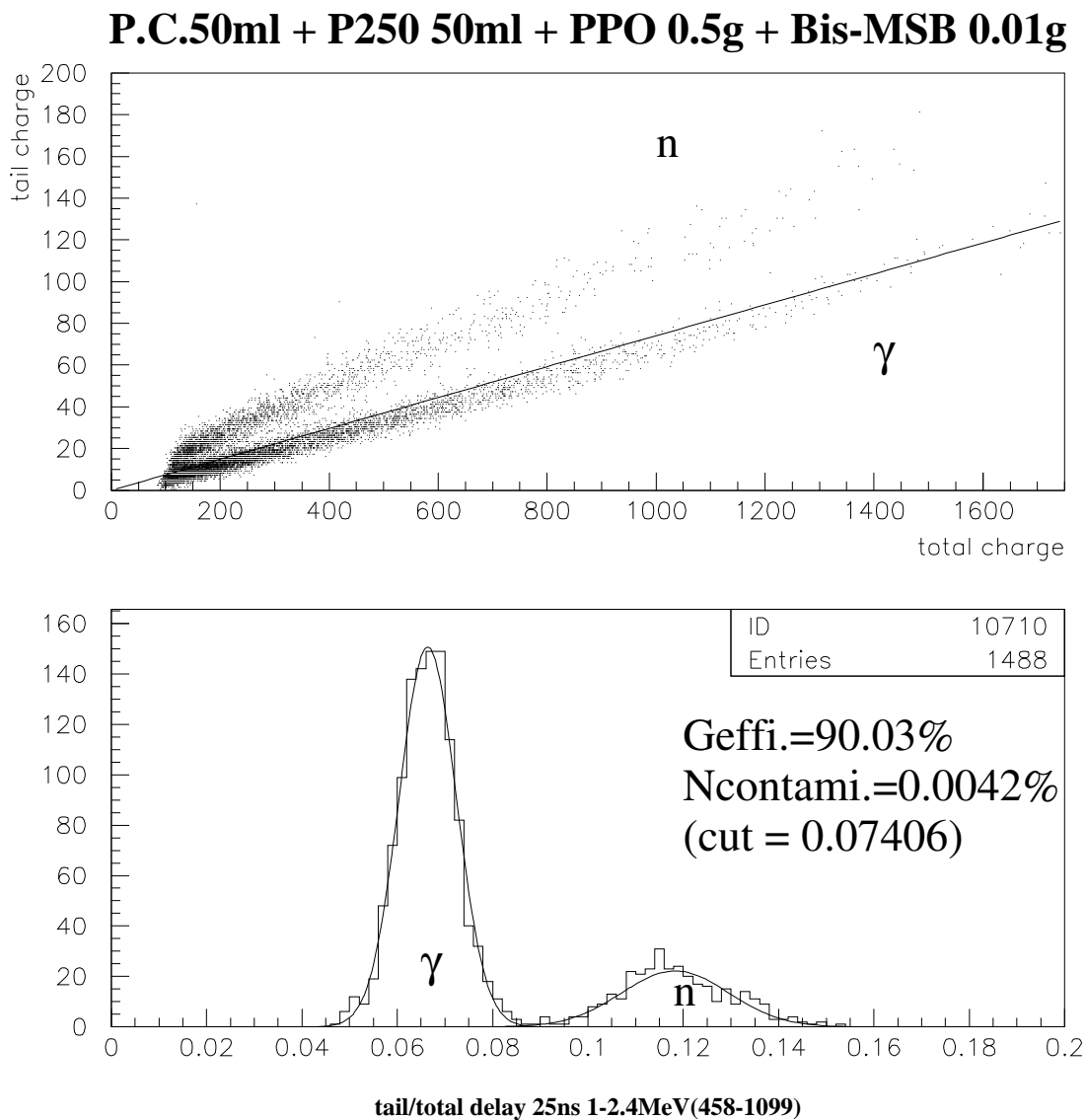


図 5.19: P.C.50% P250 50% PPO Bis-MSB の n/γ 粒子識別能

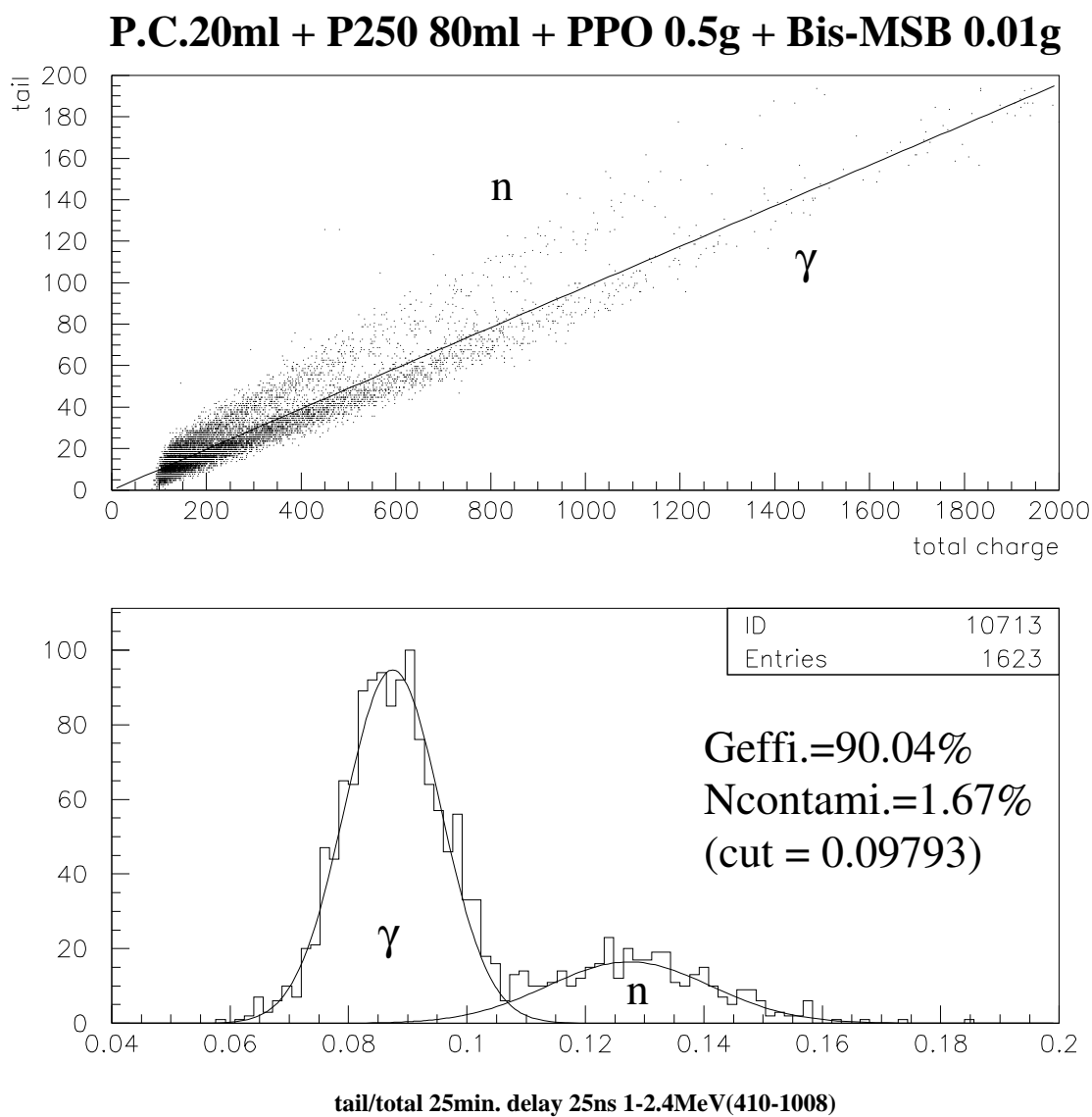
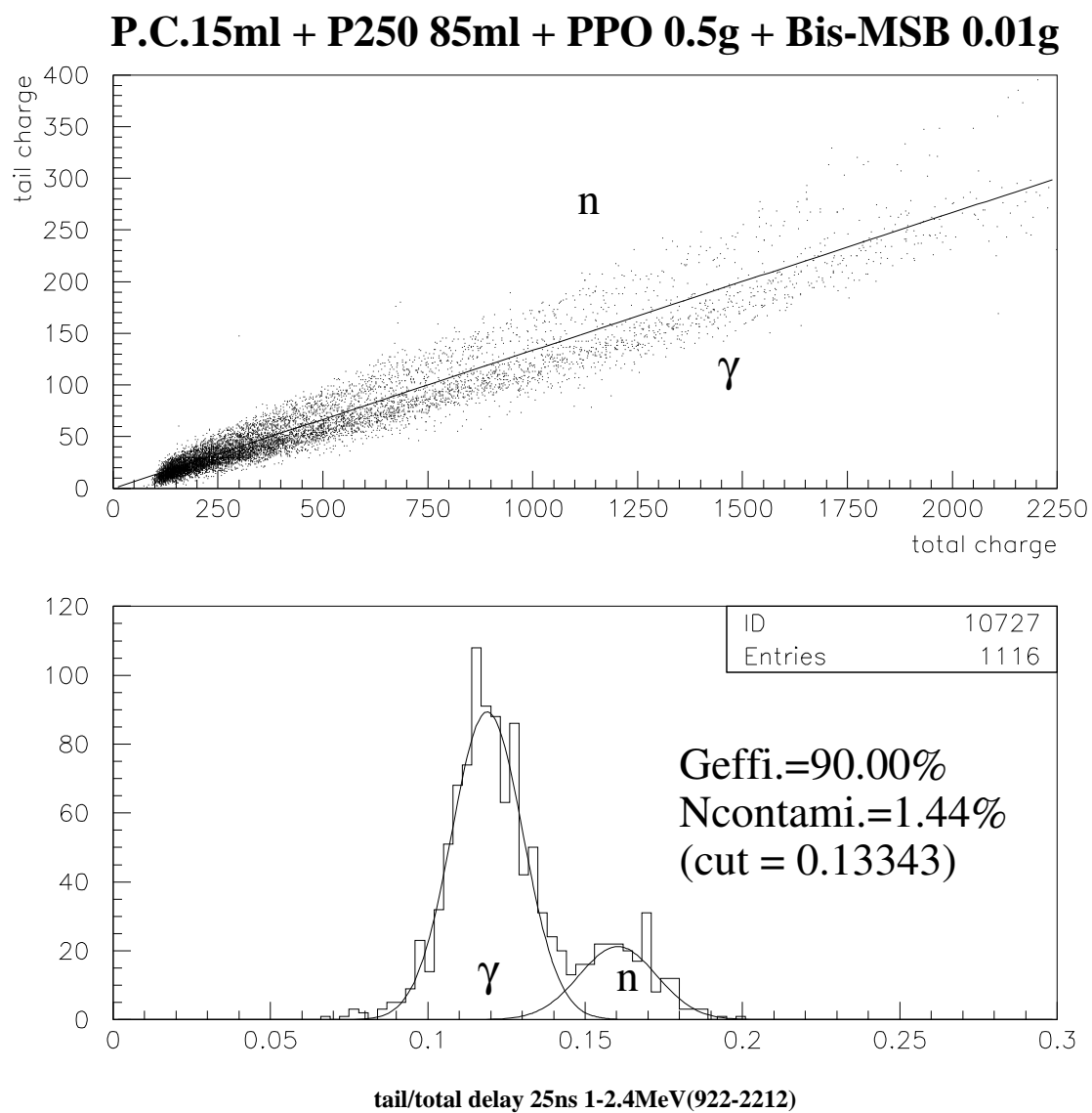


図 5.20: P.C.20% P250 80% PPO Bis-MSB の n/γ 粒子識別能

図 5.21: P.C.15% P250 85% PPO Bis-MSB の n/γ 粒子識別能

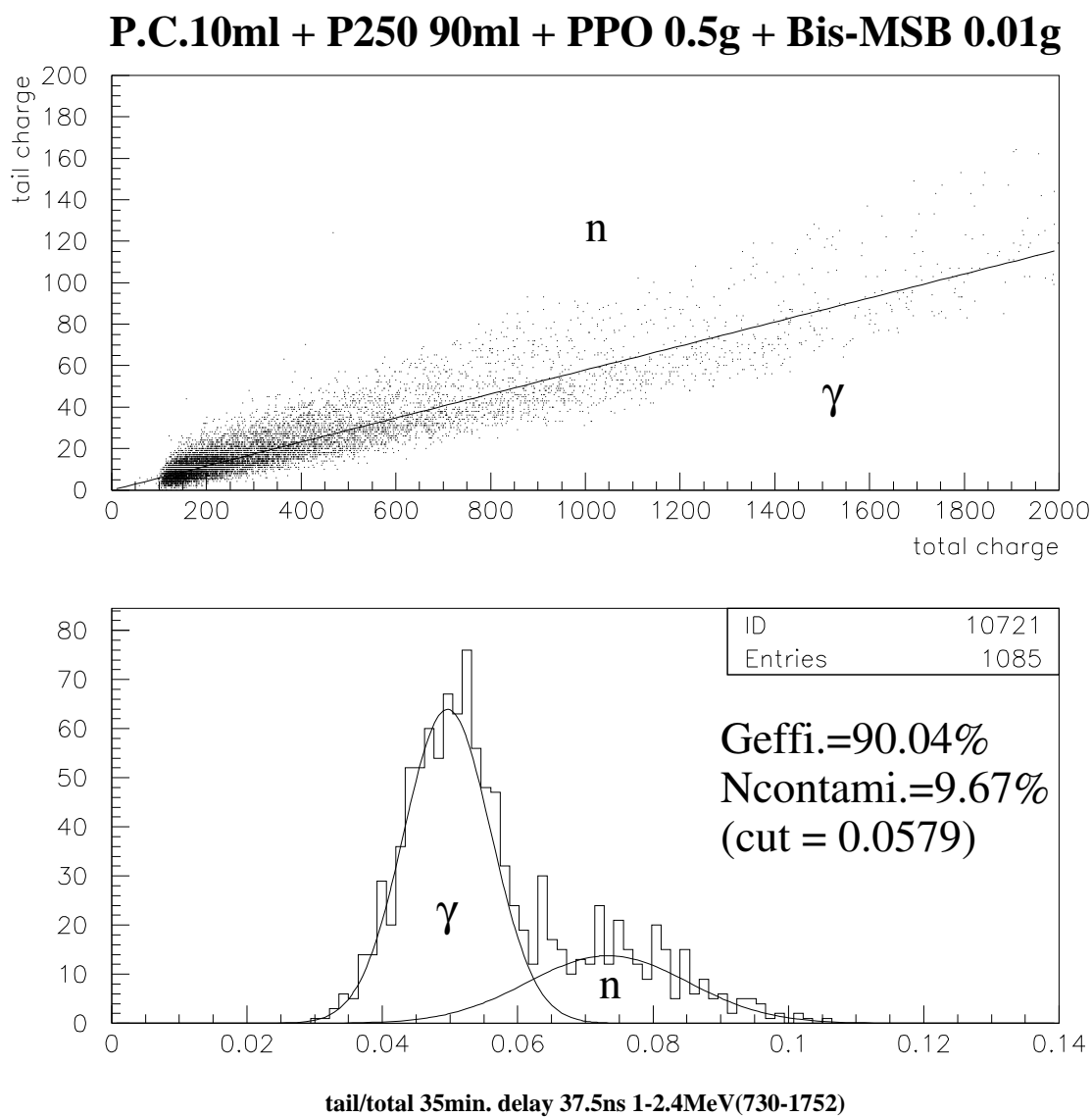
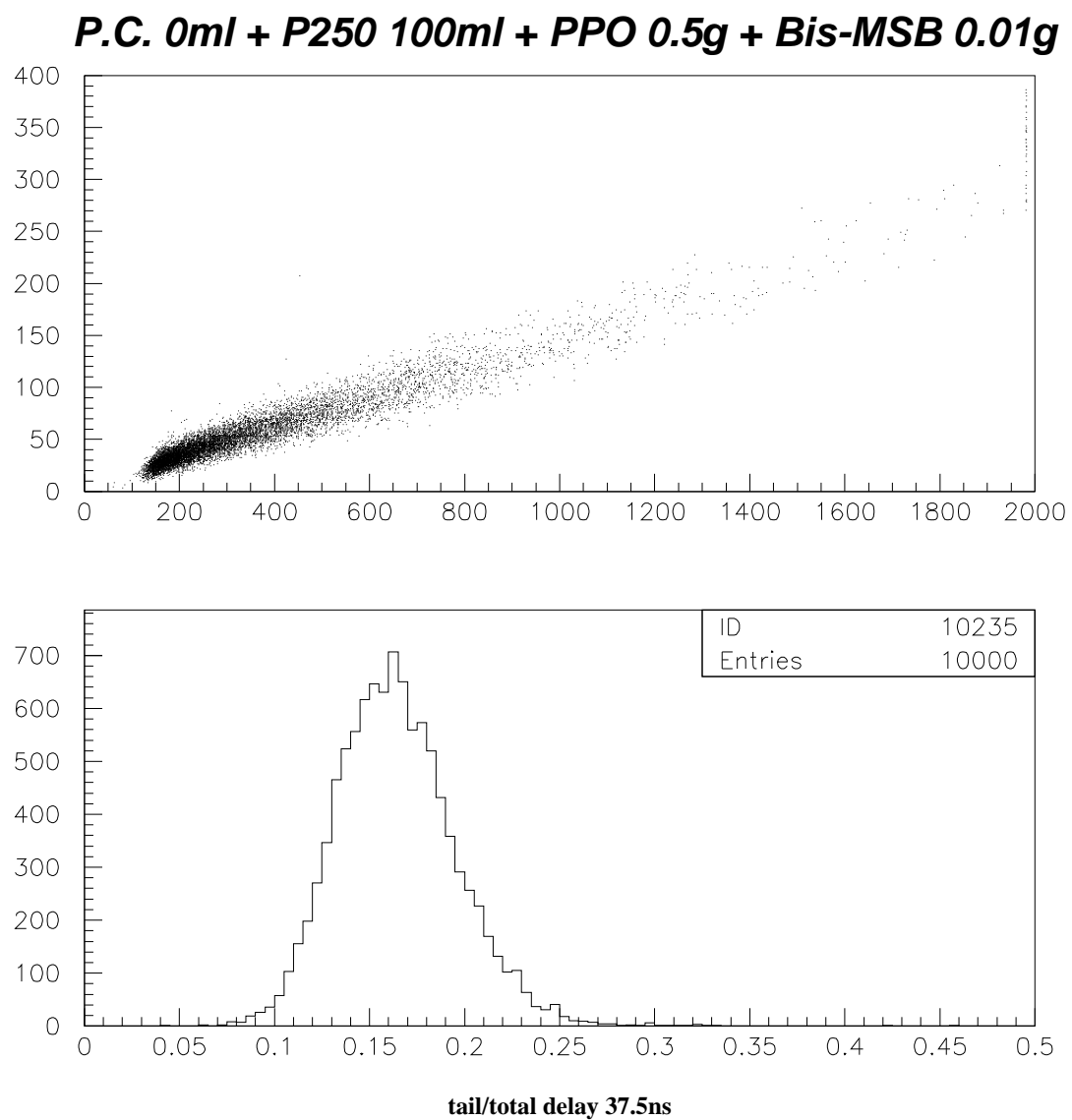


図 5.22: P.C.10% P250 90% PPO Bis-MSB の n/γ 粒子識別能

図 5.23: P250 100% PPO Bis-MSB の n/γ 粒子識別能

5.4.6 γ 線検出効率 (γ efficiency)

図 5.13~5.23の結果を用いて、それぞれの液体シンチレーター自身の粒子識別能の評価、可能なイソパラフィン濃度の最大値を求める。まず、それぞれの図の下の方に相当する ratio のヒストグラムを二つのガウス分布 G_γ 、 G_n の和の関数 G_s でフィッティングする。

$$G_s = G_\gamma + G_n \quad (5.2)$$

$$G_\gamma = p(1) \cdot \exp \frac{(x - p(2))^2}{2 \cdot p(3)^2} \quad (5.3)$$

$$G_n = p(4) \cdot \exp \frac{(x - p(5))^2}{2 \cdot p(6)^2} \quad (5.4)$$

$p(i)(i = 1, \dots, 6)$ は定数、また、 $p(2) < p(5)$ とする。このうち、 γ 線に起因する反跳電子の信号は tail charge が小さく、中性子に起因する反跳陽子の信号は tail charge が大きいため、それぞれ G_γ が反跳電子、 G_n が反跳陽子に対するガウス分布を表している。この、 G_γ 、 G_n のガウス分布を図 5.13~5.23 のそれぞれ下の図に示してある。この図を用いて中性子、 γ 線を識別する。我々は、遅延同時計数法を用いる場合、目的とする事象は先発信号も遅延信号もともに軽粒子による信号である。そのため、軽粒子と重粒子の信号が混じっている場合には、その中から軽粒子に起因する事象だけを取り出す必要がある。そこで、 γ 線の信号を採用し、中性子からの信号を取り除く識別点を決定する方法を述べる。今回は、全ての γ 線信号のうち、その 90% を含むような識別点を cut と定義し、その値以上の信号は中性子であるとして除去する。その cut の値は、ガウス分布 G_γ の総面積に対する面積比が 90% となる x 軸 (tail/total ratio) の値で定義され、

$$G_{\text{eff}} = \int_0^{\text{cut}} G_\gamma dx / \int_0^\infty G_\gamma dx = 0.9 \quad (5.5)$$

となる。この cut 以上の点を除去した場合に、除去された信号のなかにも γ 線が入っている割合は 10% ある。このとき一般的に、 γ 線を識別できた割合が 90% である、という意味で、 γ 線の検出効率 (efficiency) が 90% である、という。この x 軸の点、cut の値を中性子、 γ 線を分けるしきいにする。この値は、図の上側のグラフでは直線の傾きに相当するため、しきい値に相当する直線をプロットしてある。

5.4.7 中性子混入率 (neutron contamination)

γ 線を識別し選び出すしきいを決めた場合に、その選ばれた γ 線のなかには必ず中性子が混入している。その混入した中性子の、全体の中性子に対する割合を中性子混入率 (neutron contamination) とし、以下の式で定義する。

$$N_{\text{contami}} = \int_0^{\text{cut}} G_n dx / \int_0^\infty G_n dx \quad (5.6)$$

本来の中性子混入率という定義は、選択された γ 線の中に入ってくる中性子の、すべての γ 線の数に対する割合で定義されるが、今回は液体シンチレーターの性能を比較するという目的のため、このように中性子混入率を定義した。当然であるが、この中性子混入率の値が小さい方が粒子識別能のよい液体シンチレーターであり、今回求める液体シンチレーターとなる。

5.4.8 考察

種々の液体シンチレーターの n/γ 粒子識別能は、前章で説明した中性子混入率の値で評価した。結果は図 5.13~5.23 の下のヒストグラム上に示してある。 G_{eff} が γ 線検出効率、 $N_{\text{contami.}}$ が中性子混入率、 cut が中性子、 γ 線の識別点を表している。そのまとめを図 5.24 に示す。

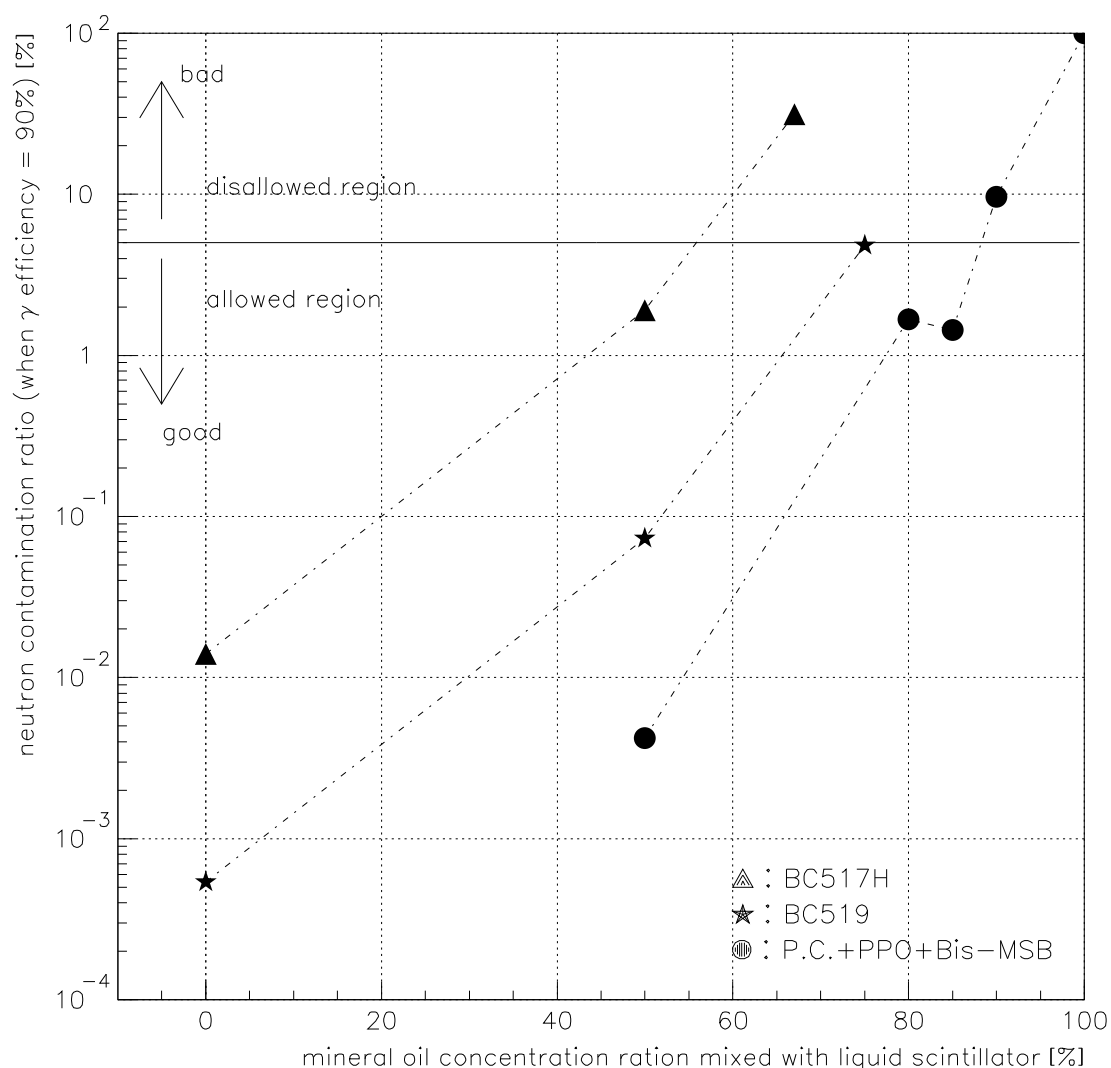


図 5.24: 粒子識別の可能な液体シンチレーターの開発と可能なイソパラフィンの最大量の決定

横軸には液体シンチレーターに混ぜたイソパラフィン濃度の割合を % で示し、縦軸には上述の中性子混入率の値を示す。

Kam-LAND 検出器の要請は中性子混入率の値が 10% である。Kam-LAND 検出器は液体シンチレーター槽が 1,000 トンであるため、粒子識別性能は悪くなることが予想される [23]。そこで今回は、中性子混入率の値が 5% 以下を目標にする。図に示した 5% の横軸の直線よりも下にくる液体シンチレーターが、実際に使用する液体シンチレーターの候補に挙げられる。

5.5 α/γ 粒子識別

この章では、 α/γ 粒子識別能の測定をした。解析方法などは、 n/γ 粒子識別の場合と類似している。

5.5.1 実験方法

α 線源として、 ^{241}Am を用いる。崩壊図は以下の通りで、この線源からは 5.49MeV の α 線が 85.2%、5.44MeV が 13.1% 放出される。

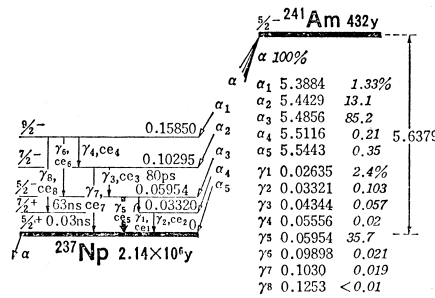


図 5.25: ^{241}Am の崩壊図 [26]

さらに、 β 線源として、前述の ^{60}Co を用いる。

実験装置は以下の図 5.26 のように、 ^{241}Am 線源を 30 μm の厚さのポリエチレンの袋に入れ、液体シンチレーターの中に沈める。 ^{60}Co 線源は容器の外側から照射する。

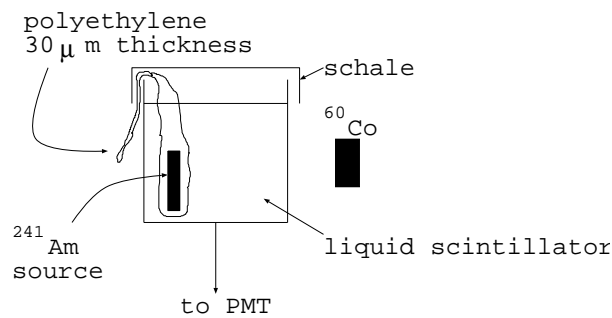


図 5.26: α/β 粒子識別能測定装置図

測定回路は、 n/γ 識別のときの図 5.7 と同様である。

測定する液体シンチレーターは 2 種類とする。1 種類は BC519 25% に P250 75% を混ぜたものである。これは、テストベンチで使用する予定であるために選択した。また、もう 1 種類は Pseudocumene 20%、P250 80% に、発光剤として PPO 0.5g と Bis-MSB 0.01g を混ぜたものを選んだ。この液体シンチレーターは、実際の Kam-LAND 実験に使用される可能性が最も高いために測定する。測定前に、窒素バブリングを施した。initial delay の最適値は BC519 ベースの液体シンチレーターの場合が 150ns で、Pseudocumene ベースの液体シンチレーターが 25ns となった。

5.5.2 α 粒子のみの信号と (α 粒子 + β 粒子) 信号の比較

この章では、実験装置が α/γ 粒子識別能の測定に適しているかどうかを調べる。具体的には、 α 粒子と β 粒子を正しく検出しているか、tail/total ratio のヒストグラムがガウス分布でフィット可能かどうかの2点に絞って測定する。まず、図 5.26 の検出装置で、 ^{60}Co 線源を用いず ^{241}Am 線源だけを液体シンチレーターに入射させる。そのときの、tail/total ratio のグラフを図 5.27 に示す。

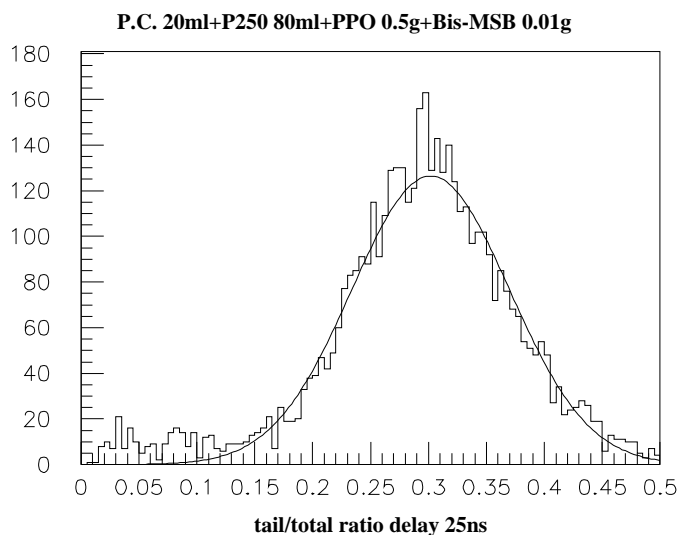


図 5.27: P.C.20ml+P250 80ml+PPO 0.5g+Bis-MSB 0.01g 液体シンチレーターにおける α 粒子検出の tail/total ratio 結果

図上の曲線は、ガウス分布のフィットを表す。この図をみると、 α 粒子はきれいにガウス分布上に乗っている。

つぎに、 ^{60}Co 線源と ^{241}Am 線源の両方とも液体シンチレーターに入射する。その tail/total ratio の結果を図 5.28 に示す。この結果には、2つのガウス分布の和の関数でフィッティングする。また、それぞれ2つのフィッティング関数の結果もグラフ上に記した。

最後に上2つの結果をまとめて、 α 粒子、 β 粒子を間違えずに認識しているかを調べる。図 5.28 と同様に、tail/total ratio のヒストグラムが、線源として2つ設置した場合のグラフである。さらに、+印で示した点は、図 5.27 の、 α 粒子のみ入射させた場合のスペクトルである。これをみると、 α 粒子のみの場合の分布は、 α 粒子と β 粒子を同時に入射させた場合の α 粒子の分布と非常に一致していた。そのため、我々は α 粒子、 β 粒子を正しく検出していると結論する。

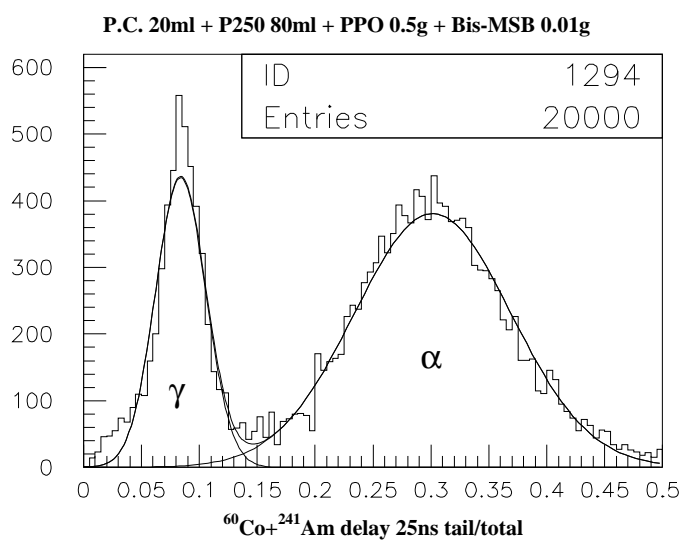


図 5.28: Pseudocumene 20%+P250 80%+PPO 0.5g+Bis-MSB 0.01g の液体シンチレーターにおける α 、 γ 粒子へのガウス分布フィッティング結果

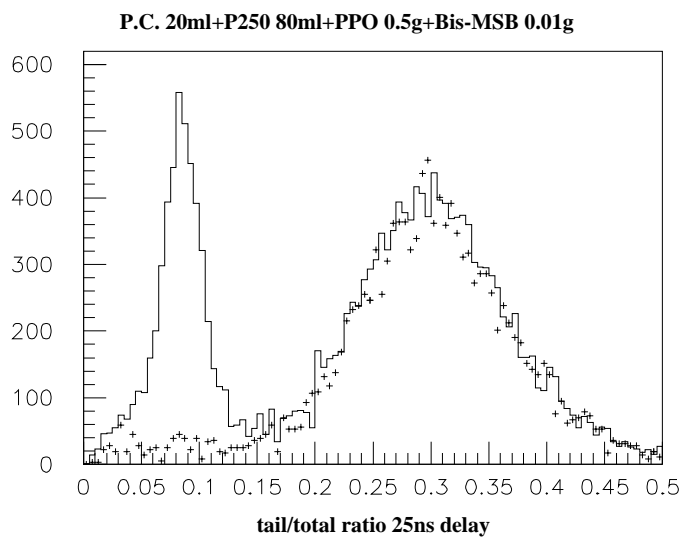


図 5.29: Pseudocumene 20%+P250 80%+PPO 0.5g+Bis-MSB 0.01g の液体シンチレーターにおける α 、 γ 粒子入射の場合と、 α 粒子のみ入射の場合の比較

5.5.4 考察

n/γ 粒子識別の場合と同様に、1次元ヒストグラムの図に α 粒子と γ 粒子の分布をガウス分布でフィットする。その結果は BC519 ベースの液体シンチレーターについて、

$$G_{\alpha}(\text{BC519}) = 388.65 \times \exp(-(x - 0.284847)^2/0.0124127) \quad (5.7)$$

$$G_{\gamma}(\text{CB519}) = 499.9 \times \exp(-(x - 0.05469)^2/0.00048672) \quad (5.8)$$

となり、Pseudocumene ベースの液体シンチレーターについては、

$$G_{\alpha}(\text{P.C.}) = 380.6 \times \exp(-(x - 0.301511)^2/0.00916114) \quad (5.9)$$

$$G_{\gamma}(\text{P.C.}) = 434.5 \times \exp(-(x - 0.08398)^2/0.000942579) \quad (5.10)$$

となった。

式 (5.7)~(5.10) から、

$$G_{\text{eff}} = \int_0^{\text{cut}} G_{\gamma} dx / \int_0^{\infty} G_{\gamma} dx = 0.9 \quad (5.11)$$

を満たす cut の値は BC519 ベースについて 0.0747、Pseudocumene ベースについては 0.1119 となった。これらの点が、 γ 線検出効率が 90% となる α/γ 粒子識別の識別点となる。このとき、 α 粒子混入率 A_{contami} は、

$$A_{\text{contami}}(\text{BC519}) = \int_0^{0.0747} G_{\alpha} dx / \int_0^{\infty} G_{\alpha} dx = 0.0037 \quad (5.12)$$

$$A_{\text{contami}}(\text{P.C.}) = \int_0^{0.1119} G_{\alpha} dx / \int_0^{\infty} G_{\alpha} dx = 0.0025 \quad (5.13)$$

となり、BC519 ベースの液体シンチレーターの α/γ 粒子識別能は 0.37%、Pseudocumene ベースの場合は 0.25% と求まった。

但し、 α のエネルギーが小さく quench 量が大いので、ここでは $E > 0\text{MeV}$ のデータを使用した。なお、このデータから、quench 量は BC519 ベースが 1/30、Pseudocumene ベースが 1/17 で、期待される 1/10 より有意に小さくなったが、測定方法に問題がある可能性があり、今後の課題である。

5.6 まとめ

図 5.24 から、イソパラフィン濃度が同程度の液体シンチレーターの中で比較すると、我々が調合した Pseudocumene ベースの液体シンチレーターが、最も n/γ 粒子識別性能のよい液体シンチレーターであることがわかった。

さらに、種々の液体シンチレーターそれぞれに対して、混ぜられる最大のイソパラフィン量を決定することができた。それぞれ、BC517H ベースの液体シンチレーターではイソパラフィン濃度が 55% 程度、BC519 では、75% 程度、Pseudocumene ベースでは 85% 程度である。以上から、現在では Pseudocumene ベースの液体シンチレーターが粒子識別能の点から最も優れた液体シンチレーターである、と結論できる。また、この Pseudocumene に PPO、Bis-MSB を混ぜた液体シンチレーターは、イソパラフィン濃度を 80% にして引火点をサン分析センターという会社に測定してもらった結果、62.5°C となった。Kam-LAND 実験では、引火点はできるだけ高いほうが好ましいが、現在の時点では、危険物第 4 類第 2 石油類でも使用できる可能性があるため、本番用の液体シンチレーターの候補として挙げられている。

図 5.30 と 5.31 の結果は、 n/γ 粒子識別に比べて α/γ 粒子識別能は良い、ということを示している。実際、BC519 が 25%、P250 が 75% の液体シンチレーターにおいて、 n/γ 粒子識別能の中性子混入率は 4.84% であるのに対し、 α/γ 粒子識別能の α 粒子混入率は 0.37% と格段に識別能が良い。同様に、Pseudocumene が 20%、P250 が 80% に発光剤が入った液体シンチレーターにおいては、 n/γ の中性子混入率が 1.67% に対して α/γ の α 粒子混入率が 0.25% である。これは、液体シンチレーターの粒子識別能が粒子の電離能に支配されていると考えた場合の結論と一致している。 α 粒子の電荷は +2 であるのに対し、中性子に散乱された反跳陽子の電荷は +1 である。また、質量が 4 倍であるため同じエネルギーで比較した場合速度が遅くなる。その 2 つの理由から、電離能は α 粒子のほうが高くなる。そのため、クエンチ量が α 粒子のほうが大きくなり、その結果、波形も相対的により遅い成分が大きくなったものになると考えられる。

発光量測定の結果とこの章の粒子識別能の測定からテストベンチに使用する液体シンチレーターは BC519 となり、イソパラフィン濃度は 75% に決まった。この濃度の液体シンチレーターは発光量が約 30%、粒子識別能が n/γ において 4.84%、 α/γ において 0.37% と、我々の要求を満たしている。さらにメーカー製造のため、長期安定性などに信頼がおけ、さらに引火点もサン分析センターで測定してもらった結果、71°C となり、求める第 4 類第 3 石油類の液体となったためである。今後は、テストベンチでこの液体シンチレーターの総合的な特性を評価することが大切である。

第 6 章

結論

本論文では、液体シンチレーターの特性を総合的に評価した。まず、第 3 章で発光量を、第 4 章で時間特性を、そして、第 5 章で粒子識別能を調べた。その結果をそれぞれの液体シンチレーターについてまとめる。BC519 液体シンチレーターについては、表 6.1 に、BC517H については表 6.2、Pseudocumene + PPO + Bis-MSB については表 6.3 に示す。

以上により、次の 2 点が本研究の結論である。

1. Kam-LAND 実験に使用可能な液体シンチレーターの製作

Pseudocumene 20%、P250 80%、PPO 5g/l、Bis-MSB が 0.1g/l 入った液体シンチレーターが非常に良い性能を発揮することがわかった。発光量が 53% アントラセン、 n/γ 粒子識別が 1.67%、 α/γ 粒子識別が 0.25% と、テストベンチに用いる液体シンチレーターよりも良い結果が得られた。また、この液体シンチレーターは、時間特性も他の液体シンチレーターが 10ns 以上の FWHM をもっているのに対して 10ns 前後と、波形の減衰時間が短い。このことは、実際の Kam-LAND 実験を行なうときの vertex resolution を決定する時などに非常に有利に働くため、必要な条件である。ただし、この濃度の液体シンチレーターは、引火点が 62.5°C と、第 4 類第 3 石油類に属さなかった。つまり、テストベンチに使用する予定である 1500 リットルの容量は、この液体シンチレーターでは扱うことが出来なかった。また、自分達で調べたために長期安定性などはデータがなく、現在実験中である。Kam-LAND 実験では、安全面を強化することにより、引火点が 70° 未満でも使用可能となっている。また、自分達で調べると、メーカー製造の液体シンチレーターをベースにするよりも安価に大量生産が可能になる。そのため現段階では、この液体シンチレーター (Pseudocumene 20%+P250 80%+PPO 5g/l+Bis-MSB 0.1g/l) が、本番で使用する可能性の最も高い液体シンチレーターである。

2. テストベンチに使用する液体シンチレーターの決定

BC519 に P250 を 75% 混ぜた液体シンチレーターでは、発光量が約 30% アントラセン、粒子識別は、 n/γ 粒子識別が 4.84%、 α/γ 粒子識別が 0.37% となり、我々の要求を満たす可能性がある。さらに、引火点は企業に測定してもらった結果 71°C となった。BC519 という液体シンチレーターは、バイクロン社が製造しているために、長期安定性など信頼できるため、今回はテストベンチにこの濃度 (BC519 が 25%、P250 が 75%) の液体シンチレーターを用いることが決まった。

BC519 の濃度 (%)	発光量 (% Anthracene)	時間特性 (FWHM,ns)	粒子識別 $N_{\text{contami}}(\%)$
100	60.0	16.3	0.00054
50	49.2	22.8	0.073
25	29.4	32.6	4.84
20	28.8		
10	14.7		

表 6.1: BC519 液体シンチレーターにイソパラフィンを混ぜたシンチレーター溶液の、種々の特性

BC517H の濃度 (%)	発光量 (%Anthracene)	時間特性 (FWHM,ns)	粒子識別 $N_{\text{contami}}(\%)$
100	52.0	10.9	0.014
50	36.1	12.5	1.91
33	25.2	17.4	31.45
20	23.0		
10	14.8		

表 6.2: BC517H 液体シンチレーターにイソパラフィンを混ぜたシンチレーター溶液の、種々の特性

Pseudocumene の濃度 (%)	発光量 (%Anthracene)	時間特性 (FWHM,ns)	粒子識別 $N_{\text{contami}}(\%)$
100	70.1		
50	61.2	7.7	0.0042
20	53.0	9.2	1.67
15		9.2	1.44
10	40.5	10.0	9.67
0	24.9	10.7	100

表 6.3: Pseudocumene+PPO(5g/l)+Bis-MSB(0.1g/l) 液体シンチレーターにイソパラフィンを混ぜたシンチレーター溶液の、種々の特性

第 7 章

今後の課題

本研究により、Kam-LAND 実験に使用する候補の液体シンチレーターと、テストベンチ実験に使用する液体シンチレーターが決まった。液体シンチレーターに関する今後の課題は、

1. 大容量液体シンチレーターにおける粒子識別能力の研究
2. 重粒子によるシンチレーターの波形の取得
3. α 粒子の β 粒子に対する発光量の比 (α quenching 量の測定)
4. 液体シンチレーターの透過率の測定
5. 新しい液体シンチレーターの探索
6. 長期安定性の試験

などが挙げられる。特に項目 1 は、テストベンチ実験で試験する予定である。項目 2 は、第 4 章でも述べたように、光電子増倍管の時間特性も考慮に入れた測定をする必要がある。現在、フラッシュ・アナログ・デジタル・コンバーター (FADC) というモジュールを準備し、波形を 1ns 間隔で取得する予定である。

付録 A

ニュートリノ振動

ニュートリノが質量の固有状態とフレーバーの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 ν_e, ν_μ, ν_τ は質量の固有状態の重ね合わせとなる。もしニュートリノ質量がゼロでなければ、時間の経過につれてあるニュートリノが別のニュートリノに変化（振動）する。

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。

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

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、

$$|\nu_i(t)\rangle = e^{-iE_i t} |\nu_i(0)\rangle \quad (\text{A.2})$$

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、

$$|\nu_l(t)\rangle = \sum_i U_{li} |\nu_i(t)\rangle \quad (\text{A.3})$$

$$= \sum_i U_{li} e^{-iE_i t} |\nu_i(0)\rangle \quad (\text{A.4})$$

となり、フレーバー固有状態の時間発展を表す式は、

$$|\nu_l(t)\rangle = U_{li} e^{-iE_i t} U_{il}^\dagger |\nu_l(0)\rangle \quad (\text{A.5})$$

となる。

ここで、簡略化のため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

$$U = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \quad (\text{A.6})$$

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

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_e) = |\langle \nu_e(0) | \nu_e(t) \rangle|^2 \quad (\text{A.7})$$

と表されるため、これに式 (A.5)、 (A.6) を代入して計算すると、

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_e) = \left| \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-iE_1 t} & 0 \\ 0 & e^{-iE_2 t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta \\ \sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \right|^2 \quad (\text{A.8})$$

$$= |e^{-iE_1 t} \cos^2\theta + e^{-iE_2 t} \sin^2\theta|^2 \quad (\text{A.9})$$

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、

$$E_i = (p^2 + m_i^2)^{1/2} \quad (\text{A.10})$$

$$\approx p + \frac{m_i^2}{2p} \quad (\text{A.11})$$

が成立する。このことを利用して式 (A.9) をさらに計算すると

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_e) = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \frac{m_1^2 - m_2^2}{4p} t \quad (\text{A.12})$$

$$\approx 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 1.27 \frac{\Delta m^2 (\text{eV}^2) L(\text{m})}{E(\text{MeV})} \quad (\text{A.13})$$

が得られる。

結局ニュートリノ振動とは質量の固有状態が異なった速度で伝播するため、各状態の位相がずれて来る。従って、伝播するにつれて元とは異なったフレーバーの部分が出現することである。

付録 B

液体シンチレーター内に混入する放射性核種によるバックグラウンド

液体シンチレーター内に混入している U、Th、K、Rn からのバックグラウンドイベント数を計算する。

B.1 accidental background

先発信号の検出器全体の single rate を n_a 、遅発信号のを n_b とすると、偶然同時計数率は、

$$n_{\text{acci}} = \frac{n_a}{1,200} \times \frac{n_b}{1,200} \times \text{gatewidth} \times \frac{1,200}{4} = n_a \times n_b \times 1.6 \times 10^{-6} \text{ [/s]} = 0.13 \times n_a \times n_b \text{ [/day]} \quad (\text{B.1})$$

となる。上式 (B.1) で、gatewidth は現在 $500\mu\text{sec}$ で考えている。これから、それぞれの原子ごとに、予想されるバックグラウンド率を計算する。

B.1.1 U

^{238}U からの single event が支配的であるとすると、 ^{238}U の半減期は $4.5 \times 10^9 \text{ year}$ であり、 1g の ^{238}U の崩壊率は、

$$\frac{1}{238} \times 6.02 \times 10^{23} \times \frac{\ln 2}{4.5} \times 10^9 \frac{1}{365.25 \times 86,400} \text{ [/s]} = 1.2 \times 10^4 \text{ [Bq]} \quad (\text{B.2})$$

となる。U の decay chain の中には先発信号の条件を満たす可能性のあるものは α 粒子が 4 つ、 β 粒子が 4 つある。 α の場合、粒子識別能から α rejection が 90% 以上の確率であるはずであるので重みを 0.1、 β 粒子の場合は連続スペクトルであるので 2MeV 以上の 2 event には重みを 1、 1MeV 程度の 2event には重みを 0.5 かける。そうすると、 ^{238}U の崩壊 1 つあたり、先発信号が 3.4 個程度生じることになる。同様に、遅発信号の条件を満たす可能性のある event は、 β 粒子で 2 つあるため、重みを 0.5 として約 1event 生じる。今、液体シンチレーターの中に、 ^{238}U が 10^{-14}g/g 入っているとすると、検出器全体で $10^{-14}\text{g/g} \times 10^9\text{g} = 0.01\text{mg}$ 混入していることになる。 $^{238}\text{U} 1\text{g}$ で $1.2 \times 10^4 \text{ Bq}$ あるため、 0.01mg の混入から先発信号は $1.2 \times 10^4 \text{ Bq} \times 0.01 \times 10^{-3} \text{g} \times 3.4 = 0.4/\text{s}$ となる。遅発信号は $0.12/\text{s}$ となり、式 (B.1) から全体での偶然同時計数は、

$$0.4 \times 0.12 \times 0.13 \text{ [/day]} = 0.006 \text{ [/day]} \quad (\text{B.3})$$

となり、真の event が 1event/day であるのに対して小さい。

B.1.2 Th

^{232}Th が dominant である場合を計算する。 ^{232}Th の半減期は 1.4×10^{10} year であるので、1g の ^{232}Th の崩壊率は、

$$\frac{1}{232} \times 6.02 \times 10^{23} \times \frac{\ln 2}{1.4} \times 10^{10} \frac{1}{365.25 \times 86,400} \text{ [s]} = 4.1 \times 10^3 \text{ [Bq]} \quad (\text{B.4})$$

となる。U と同様にして、decay chain の中に、 n_a をみたすものは 2.5 個、 n_b を満たすものは 1.2 個となる。この場合、液体シンチレーター中に ^{232}Th が 10^{-14} g/g 混入していると、 n_a が 0.1/s、 n_b が 0.05/s となり、全体での偶然同時計数は

$$0.1 \times 0.05 \times 0.13 \text{ [/day]} = 0.00065 \text{ [/day]} \quad (\text{B.5})$$

となる。

B.1.3 K

自然界に存在する K は 0.0117% の ^{40}K を含む。 ^{40}K の半減期は 1.277×10^9 year で、ベータ崩壊 (89.3%, $Q=1.31\text{MeV}$) と EC (10.7%, $Q=1.50\text{MeV}$) を起こす。1g の K は、

$$\frac{1}{39.1} \times 6.02 \times 10^{23} \times 1.17 \times 10^{-4} \times \frac{\ln 2}{1.277 \times 10^9} \frac{1}{365.25 \times 86,400} \text{ [s]} = 73.5 \text{ [Bq]} \quad (\text{B.6})$$

の崩壊率をもっている。ベータ崩壊、EC とともに、先発信号の条件を満たすとすると、混入率を 10^{-11} g/g とした場合、 $73.5\text{Bq} \times 0.01 = 0.735/\text{s}$ となる。このとき、他の放射性核種から遅発信号が 0.5/s で来ていた場合にも、

$$0.735 \times 0.5 \times 0.13 \text{ [/day]} = 0.05 \text{ [/day]} \quad (\text{B.7})$$

となる。

B.1.4 Rn

^{222}Rn が支配的である場合を計算する。 ^{222}Rn の半減期は 3.82day であるから、1g の ^{222}Rn の崩壊率は

$$\frac{1}{222} \times 6.02 \times 10^{23} \times \frac{\ln 2}{3.82} \times \frac{1}{86,400} = 5.7 \times 10^{15} \text{ [Bq]} \quad (\text{B.8})$$

である。 ^{222}Rn の decay chain 当たり先発信号にかかる数は 2.4 個、遅発信号は 0.5 個となるため、0.79 Bq 以下である場合、 ^{222}Rn からの同時計数は

$$0.79 \times 2.4 \times 0.79 \times 0.5 \times 0.13 \text{ [/day]} = 0.1 \text{ [/day]} \quad (\text{B.9})$$

となる。この要請は $0.79\text{Bq}/1,200\text{m}^3 = 0.66\text{mBq}/\text{m}^3$ に相当する。ちなみに、神岡実験の水中の ^{222}Rn の量は $0.5\text{Bq}/\text{m}^3$ であったことを考えると、1,000 倍の改善が必要となる。但し、スーパー神岡実験では、水中の ^{222}Rn 量は $0.5\text{mBq}/\text{m}^3$ であるため、スーパー神岡実験の成果と同じレベルを要請する。

神岡検出器付近の空気中の ^{222}Rn の量は、 $2,400\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度である。この密度程度の Rn が液体シンチレーターに混入すると、我々の要請 $0.66\text{mBq}/\text{m}^3$ のレベルになるまでに T 日かかるとすると、

$$\frac{0.66 \times 10^{-3}}{2.4 \times 10^3} = \exp\left(-\frac{\ln 2 \times T}{3.82}\right) \quad (\text{B.10})$$

という式が成り立つ。これを解くと、 $T=83$ 日となる。

B.2 correlated background

この章では、遅延同時計数法の先発信号と遅発信号を連続して生成するようなバックグラウンド (correlated background と呼ばれる) を計算する。

B.2.1 U の自発核分裂

自発核分裂が生じると、平均 200MeV のエネルギーが解放され、中性子が約 2.5 個放出される。この場合のエネルギー解放による信号が、0.7~7MeV に見えたならば、この自発核分裂は correlated background になりうる。ここで最悪の場合を考え、生じた核分裂がすべて correlated background になるとする。 ^{238}U の核分裂の確率は、 5.45×10^{-7} であるから、1g の ^{238}U の崩壊率は、

$$12,000 \times 5.45 \times 10^{-7} = 6.5 \times 10^{-3} \text{ [Bq]} \quad (\text{B.11})$$

となる。今、液体シンチレーター中の ^{238}U の混入量が 10^{-14}g/g であるとする、correlated background は、

$$10^{-14} \times 10^9 \times 6.5 \times 10^{-3} \times 86,400 = 0.005616 \text{ [/day]} \quad (\text{B.12})$$

となり、accidental background とほぼ同程度である。

B.2.2 Th の自発核分裂

^{232}Th の核分裂の確率は、 1.8×10^{-11} 以下。ゆえに、崩壊率が、

$$4,100 \times 1.8 \times 10^{-11} = 7.38 \times 10^{-8} \text{ [Bq]} \quad (\text{B.13})$$

で、液体シンチレーター中の ^{232}Th の混入量が 10^{-14}g/g であるときの 1 日の correlated background 事象は、

$$10^{-14} \times 10^9 \times 7.38 \times 10^{-8} \times 86,400 = 6.38 \times 10^{-8} \text{ [/day]} \quad (\text{B.14})$$

と、 ^{238}U に比べて約 10^{-5} 倍である。

B.2.3 ^{238}U 崩壊系列の correlated background

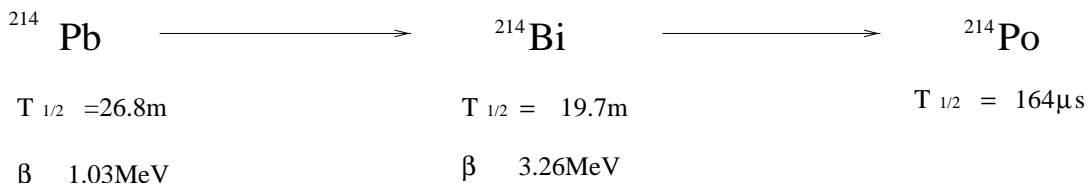


図 B.1: ^{238}U の correlated decay chain

図 B.1は、 ^{238}U 崩壊鎖からの correlated background を示す。この 2 つのベータ線が $500\mu\text{sec}$ 以内に生じると correlated background になる。生じる確率は、 $500 \times 10^{-6}\text{s} / (20 \times 60\text{s} / \ln 2) = 2.9 \times 10^{-7}$ 。さらに、1.03MeV のベータ線が先発信号にかかる割合を 0.5、3.26MeV のベータ線が遅発信号にかかる割合を 0.5 とする。 ^{222}Rn の寿命は ^{214}Pb に比べて十分長いため、 ^{222}Rn の崩壊数が ^{214}Pb 事象の数

に等しいとする。今、B.1.4章の要請からきた Rn 量 0.79Bq が存在しているとすると、1日にこの correlated background が生じる数は、

$$0.79 \times 2.9 \times 10^{-7} \times 0.5 \times 0.5 \times 86,400 = 0.0049 \text{ [/day]} \quad (\text{B.15})$$

となる。これは、accidental background の量よりも少ない。

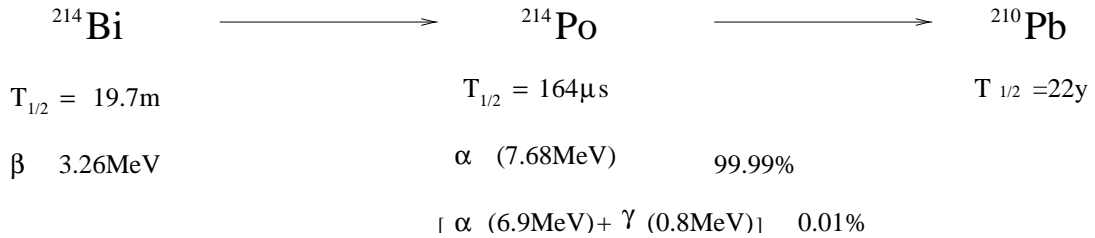


図 B.2: ^{238}U のもうひとつの correlated decay chain

図 B.2のような correlated background もある。先発信号のベータ線はほとんどエネルギーカットの条件をみだす。 α 粒子の 6.9MeV と γ 線の 0.8MeV は、合わせて 1.7MeV 程度に見える。また、 α 粒子と γ 線のエネルギーがほぼ同程度であるため、 α 粒子識別もかなり難しい。この崩壊鎖のバックグラウンドは、今回も ^{222}Rn で考えると要請である 0.79Bq に対して、1日の崩壊数は、

$$0.79 \text{ [Bq]} \times 10^{-4} \times 86,400 \text{ [s]} = 6.8 \text{ [/day]} \quad (\text{B.16})$$

となる。これは真の反ニュートリノ事象よりも多い。

7.68MeV の α 粒子の場合は、quench により 1MeV 程度に見える。先発信号のしきい値は 1.7MeV であるため、 7σ 離れている。また、 α 粒子識別で、さらに 1/10 になる。

B.2.4 ^{232}Th 崩壊系列の correlated background

^{232}Th 系列の崩壊鎖にも correlated decay chain になりうるものがある。以下の図 B.3に、その例を示す。ただし、計数率は ^{238}U 系列に比べて少ない。

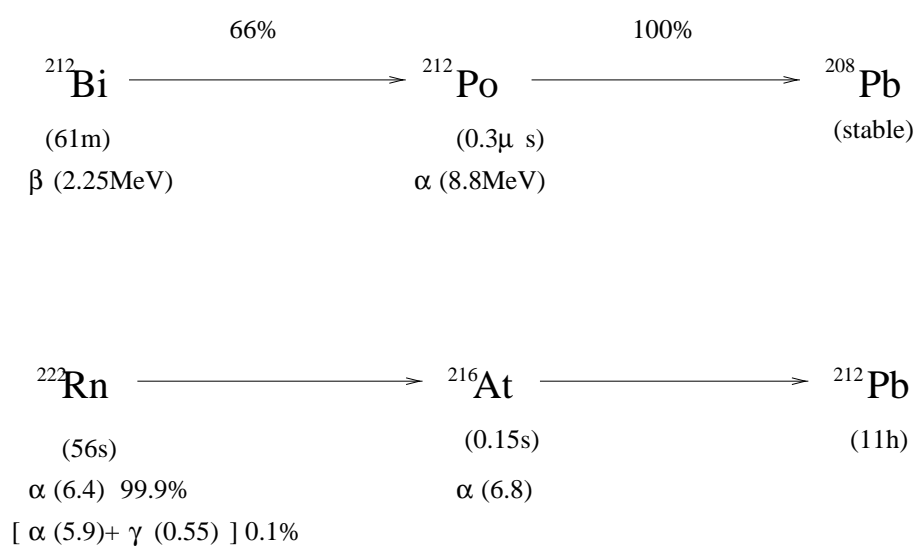


図 B.3: ${}^{232}\text{Th}$ の correlated decay chain

付録 C

宇宙線によるバックグラウンド

C.1 correlated cosmic ray background

宇宙線 μ 粒子による ^{12}C の原子核粉碎反応により、 $Z=6$ 、 $N=6$ までの原子核が生成される可能性がある。核粉碎の反応断面積は正確には知られておらず、1桁程度の不確かさがある。いままでに、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ 反応では、反応断面積 $\sigma=4,500\mu\text{b}$ 、 $^{12}\text{C}(\gamma, \alpha)^7\text{Be}$ 反応では、 $\sigma=500\mu\text{b}$ などのデータが知られている。 $\sigma=4,500\mu\text{b}$ の場合、 μ による ^{11}C の生成率は液体シンチレーターの密度を仮に $1\text{g}/\text{cm}^3$ とし、水素と炭素の混入比 $r_{\text{H}/\text{C}}$ を 1.7 とすると、

$$\frac{4,500 \times 10^{-6} \times 10^{-24} [\text{cm}^2] \times 6.02 \times 10^{23} \times 1 [\text{g}/\text{cm}^3]}{1.00794 \times 1.7 + 12.011 [\text{g}]} = 0.019 [\text{/m}] \quad (\text{C.1})$$

となる。一方、 ^7Be の生成率は $0.002/\text{m}$ である。これより、各元素の生成率は $0.02/\text{m}$ として計算する。

Kam-LAND 検出器では、 $1/600[\text{/s}/\text{m}^2]$ のフラックスで宇宙線 μ 粒子がくるため、原子核粉碎反応により生成される元素の数は 1 日で、

$$0.02 [\text{/m}] \times \frac{1}{600} [\text{/s}/\text{m}^2] \times 1,000 [\text{m}^3] \times 86,400 [\text{s}/\text{day}] = 2,880 [\text{/day}] \quad (\text{C.2})$$

となる。以上のように生成された核種のなかに、ベータ崩壊とともに中性子を放出する核種が存在する。これは、correlated event となり、遅延同時計数法のバックグラウンドに成り得る。その核種は、 ^8He と ^9Li であり、それぞれ branch が 12%、35% の確率で中性子を放出する。また、半減期は 0.12s 、 0.178s である。これを、 μ 通過後、 3s の dead time を設けることにより取り除くことを考えた場合、1日に起こるバックグラウンド事象は、

$$3,000 \times 0.12 \times 2^{-\frac{3}{0.12}} + 3,000 \times 0.35 \times 2^{-\frac{3}{0.178}} = 0.00886 [\text{/day}] \quad (\text{C.3})$$

となり、真の信号に対して $1/100$ 程度になる。

C.2 dead time からくる検出効率の減少

次に、 μ 粒子通過後、 3s の dead time を設けることによる検出効率の減少を考える。 μ 通過後、3秒間 μ の飛跡に沿って、半径 1m の dead volume を設けると、検出器を一辺 10m の立方体と考えて、

$$\frac{\pi \times 1^2 \times 10 [\text{m}^3]}{1,000 [\text{m}^3]} \times 10^2 [\text{m}^2] \times \frac{1}{600} [\text{/s}/\text{m}^2] \times 3 [\text{s}] = 0.0157 \quad (\text{C.4})$$

となり、有効体積の 1.57% を失うことになる。仮に、 μ の飛行位置を測定できない場合、dead volume は

$$\frac{1}{600} [\text{/s/m}^2] \times 100 [\text{m}^2] \times 3 [\text{s}] = 0.5 \quad (\text{C.5})$$

となり、50%の有効体積を失ってしまう。そのため、 μ の通過位置を知ることが重要になる。

参考文献

- [1] B.Achkar et al., Nucl.Phys.B374(1996)243
- [2] C.Athanassopoulos et al., Phys.Pev.Lett.75(1995)2650
- [3] C.Athanassopoulos et al., nucl-ex/9709006(1997)
- [4] K.Eitel, hep-ex/9706023(1997)
- [5] E.Ables et al., P-875:A Long-baseline Neutrino Oscillation Experiment at Fermilab, Feb(1995)
- [6] K.Nishikawa, Nucl.Phys.B(Proc.Suppl.)59(1997)289
- [7] B.Achkar et al., Nucl.Phys.B434(1995)503
- [8] Brian M. Cook (Cal Tech), Ph.D.Thesis. Development and Testing of a Detector to Study Neutrino Oscillations at Palo Verde (Scintillator,Positrons), (1996)
- [9] M.Apollonic et al. , hep-ex/9711002(1997)
- [10] C.Rothschild et.al, Antineutrino Geophysics with Liquid Scintillator Detectors, nucl-ex/9710001 15 Oct(1997)
- [11] John N.Bahcall , Neutrino Astrophysics, Cambridge Univ.Press(1989)
- [12] Y.Declais et al., Phys.Lett.B338(1994)383
- [13] K.Schreckenbach et al., Phys.Lett.160B(1985)325
- [14] A.A.Hahn et al., Phys.Lett.B218(1989)365
- [15] L.M.Krauss, S.L.Glashow & D.N.Schramm, Nature310(1984)191
- [16] 石河寛昭 : 液体シンチレーション測定法 (南山堂)
- [17] F.D.Brooks, Nucl.Instr.Meth.162(1979)477
- [18] 山崎文男 : 実験物理学講座 26 放射線 (共立出版)
- [19] N.Matsufuji et.al., Digital Wave Processing for Studying Characteristics of the Pulse Shape Discrimination of Liquid Scintillation Detectors, 放射線 Vol.19, No.2(1993)
- [20] F.Elisei et al., Nucl.Instr.Meth.A400(1997)53
- [21] Gioacchino Ranucci et al., Nucl.Inst.Meth.A350(1994)338

- [22] W.R.Leo, Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments, A how to approach
- [23] M. Moszynski, Nucl.Instr.Meth.A350(1994)226
- [24] Amersham international pic., Technical bulletin, 76/7
- [25] R.A.Reeder et al., Nucl.Instr.Meth.A334(1993)353
- [26] 村上愔紀雄ほか：放射線データブック（地人書館）
- [27] Particle Data Group, Phys.Rev.D50(1994)1173

謝辞

本論文をまとめるにあたり、私が属していた東北大学泡箱写真解析施設の諸先生方には常日頃大変お世話になりましたことを深く感謝致します。

まず指導教官である鈴木厚人先生には、神岡実験グループ、Kam-LAND 実験グループに参加する機会を、そして本研究内容を与えて頂き、感謝しています。この実験を通じていろいろな事を学ぶことが出来ました。また適宜貴重なアドバイスを頂きました。

また、修士2年時からは末包文彦先生に実験全般にわたり適切な指導を頂きました。特に、液体シンチレーターや、Kam-LAND 実験のバックグラウンドなどについてのいろいろな議論、また御指導を頂き、ありがとうございました。

白井淳平先生にも修士2年時からお世話になりました。日頃の実験、テストベンチについてなど、いろいろ教えて頂きました。

長谷川琢哉先生には物理の話しから種々の実験グループの話しなど多岐にわたり教わりました。また、本論文の間違いや物理的な内容について詳細にチェックして頂き、こうして論文をまとめることができました。

古賀さんには物理の話しからPMT、コンピューターの使い方など初歩からいろいろなことを教わりました。崑山さんにはソフト面でいろいろ教わりました。藤田さんには物理のことなどわかりやすく教えて頂きました。また、衛藤さんには神岡に滞在しているときなど困ったときにはいつも助けて頂いたり大変お世話になりました。どうもありがとうございました。

同期の小川君、津島君、長谷川君にはいろいろな面で楽しませてもらいました。おかげで楽しい研究生生活を送れたことを感謝します。

また、北垣先生、湯田先生、山口先生、阿部先生、長嶺先生、林野先生、古野さん、玉江さん、高山さん、花田さん、中島隆さん、中島實さん、大学さん、猪股田さん、管井さん、蜂谷さん、柿沼さん、田口さん、有美さん、根市さん、松本さん、成田さん、八島さん、蓮子さん、丸山さん、一野瀬さん、加賀さん、杵渕さん、斉当さん、出崎さん、難波さん、山鹿君、山田君、高木君、榎本君、沖君、河上さん、増子君には、いろいろな面で助けて頂きました。大変感謝しております。

スーパー神岡実験グループの皆様には、シフトのときなど大変お世話になりました。どうもありがとうございました。

東京大学宇宙線研究所の戸塚洋二先生、鈴木洋一郎先生、梶田隆章先生、中畑雅行先生には、たくさんの貴重な意見を頂きました。

また、東京大学宇宙線研究所の伊藤先生、井上先生、小汐先生、塩沢先生、竹内先生、福田先生、三浦先生、K.Marten さん、早川さん、春日さん、石野さん、石原さん、奥村さん、市原さん、太田さん、桶田さん、亀田君、櫻井君、大阪大学の山口さん、草野さん、吉田君、新潟大学の石塚さん、岡澤さん、高旗さん、古賀さん、北口さん、東海大学の根本さん、東京工業大学の早戸さん、金谷君には、いろいろな面で助けて頂きました。大変感謝しております。

他の泡箱写真解析施設、神岡実験グループの皆さんにも大変お世話になりました。どうもありがとうございました。

そして最後に、常に私をささえてくださった両親、姉に心から感謝します。