

修士論文

KamLAND2-Zen 実験で用いる 新液体シンチレータの活性炭による純化

Purification of New Liquid Scintillator
by using Activated Charcoal for KamLAND2-Zen

東北大学大学院 理学研究科

物理学専攻

上澤康平

平成 29 年

概要

ニュートリノ振動の観測でニュートリノが質量を持つことが証明され、ニュートリノ質量を0として構築された素粒子標準理論への修正が必要となった。ニュートリノが質量を持つことでマヨラナ粒子の可能性もあり、世界各地でその検証が行われている。ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の観測がニュートリノのマヨラナ性を証明する唯一の実験であり、KamLAND-Zen 実験は崩壊核 ^{136}Xe を用いてニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊事象の探索を行っている。2016年、 ^{136}Xe の 0ν モードの半減期に $T_{1/2}^{0\nu} > 1.07 \times 10^{26} [\text{yr}]$ (90% C.L.)、ニュートリノのマヨラナ有効質量に $\langle m_{\beta\beta} \rangle < (61 - 165) [\text{meV}]$ (90% C.L.) の制限を与えており、現在までに世界最高の感度を達成している。しかし、未だニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の信号を観測できておらず、マヨラナ性の証明には至っていない。そこで、検出器のエネルギー分解能を向上させることで信号を観測することを目標とした KamLAND2-Zen 実験が計画されている。KamLAND2-Zen 実験では様々な改良を検出器に施す予定であり、その中でも新しい液体シンチレータの使用によって現在の ~ 1.4 程度の集光量改善を目指している。本研究では、新しい液体シンチレータ溶媒の最有力候補である直鎖型アルキルベンゼン (LAB) の研究開発を行った。

LAB には波長 300~400nm の領域に吸光波長を持つ不純物が存在し、液体シンチレータの発光効率と光透過率を低下させることが問題となっている。先行研究では、モレキュラーシーブと呼ばれる吸着剤を用いることで不純物を除去することに成功し、集光量は現在の液体シンチレータと比較して 1.52 ± 0.07 倍と KamLAND2-Zen 実験の目標を達成した。しかし、純化に要する吸着剤量や事前に必要な LAB の液量が膨大となり、KamLAND2-Zen 実験に必要な 1,000ton の液体シンチレータを製成するにはコスト面で非現実的であることが課題として残っている。

本研究では、集光量改善は KamLAND2-Zen の目標値 ~ 1.4 倍程度に維持しつつ、大幅なコスト低減を見込める純化方法を検討した。活性炭を用いた吸着純化を試みたところ、静置法では不純物を 1/50 程度まで除去することに成功し、その結果集光量は 1.38 ± 0.08 倍まで改善した。更に、使用する吸着剤量と事前に必要な LAB の液量も低減することができ、1,000ton の液体シンチレータ製成に要するコストは 0.17 倍程度まで低減すると見込めた。次に、静置法よりも純化時間が速く、吸着剤使用効率の良いカラム法での純化を試みた。活性炭を用いたカラム法でも同様に、不純物を 1/50 程度まで除去することに成功し、集光量は 1.35 ± 0.08 倍まで改善した。使用する吸着剤量は 1/20 程度、事前に必要な LAB の液量は 1/4 程度まで低減された。その結果、1,000ton の液体シンチレータ製成に要するコストは 0.06 倍程度まで低減できると見込まれ、本研究の目標であった集光量 ~ 1.4 倍の改善と大幅なコスト低減を達成することができた。

目次

第1章	ニュートリノ物理学	1
1.1	ニュートリノ	1
1.2	ニュートリノ振動	3
1.2.1	太陽ニュートリノ問題	3
1.2.2	ニュートリノ振動	3
1.3	ニュートリノ質量	5
1.3.1	質量階層構造	5
1.3.2	マヨラナ性とシーソー機構	6
1.4	ニュートリノを伴わない二重 β 崩壊	8
1.4.1	二重 β 崩壊	8
1.4.2	ニュートリノを伴わない二重 β 崩壊	9
1.4.3	ニュートリノのマヨラナ有効質量	10
1.4.4	KamLAND-Zen 以外の二重 β 崩壊探索実験	12
第2章	KamLAND 実験	13
2.1	KamLAND 検出器	13
2.1.1	外部検出器 (Outer Detector)	13
2.1.2	内部検出器 (Inner Detector)	14
2.2	ニュートリノ検出原理	17
2.2.1	逆ベータ崩壊	17
2.2.2	電子との弾性散乱	18
2.3	KamLAND 実験の成果	19
2.3.1	原子炉ニュートリノ振動	19
2.3.2	地球ニュートリノ	19
第3章	KamLAND-Zen 実験	21
3.1	KamLAND 検出器の改良	21
3.1.1	二重 β 崩壊核 ^{136}Xe	21
3.1.2	液体シンチレータ	22

3.1.3	ミニバルーン	22
3.2	KamLAND-Zen 実験のバックグラウンド	23
3.3	KamLAND-Zen 実験の成果	25
3.4	KamLAND-Zen の将来計画	27
3.4.1	KamLAND-Zen 800	27
3.4.2	KamLAND2-Zen	27
第 4 章	液体シンチレータの評価方法と先行研究	29
4.1	液体シンチレータ溶媒の性能評価	29
4.1.1	分光光度計による 9cm 透過率測定	29
4.1.2	パイプとコーナーキューブを用いた減衰長測定	31
4.1.3	液体シンチレータの発光量測定	36
4.1.4	KamLAND 検出器における集光量の見積もり	38
4.2	新液体シンチレータ溶媒の要求事項と候補	39
4.3	先行研究による成果	41
4.3.1	モレキュラーシーブによる吸着純化	41
4.3.2	有機不純物の選定	45
第 5 章	活性炭を用いた新液体シンチレータ溶媒の吸着純化	47
5.1	静置法による吸着純化	47
5.1.1	最適な活性炭の選定と純化パラメータの最適化	47
5.1.2	最適化したパラメータでの静置純化	53
5.2	カラム法による吸着純化	56
5.2.1	純化パラメータの最適化	56
5.2.2	最適化したパラメータでのカラム法による純化	59
5.3	今後の展望	63
第 6 章	結論と課題	67
6.1	活性炭を用いた吸着純化	67
6.2	今後の課題	68

目 次

1.1	標準模型による素粒子の分類	1
1.2	^{14}C の β 崩壊で放出される電子のエネルギースペクトル	2
1.3	ニュートリノの質量階層構造	6
1.4	^{136}Xe の崩壊図	8
1.5	$2\nu 2\beta$ 崩壊と $0\nu 2\beta$ 崩壊の崩壊図	9
1.6	二重 β 崩壊のエネルギースペクトル	10
1.7	ニュートリノのマヨラナ有効質量と質量階層構造	11
2.1	KamLAND 検出器の全体図	13
2.2	KamLAND 検出器の構造	14
2.3	光電子増倍管の構造図	16
2.4	逆ベータ崩壊反応を利用した反電子ニュートリノ検出原理	17
2.5	荷電カレント反応	18
2.6	中性カレント反応	18
2.7	原子炉ニュートリノのニュートリノ振動	19
2.8	KamLAND での地球ニュートリノの観測結果	20
3.1	KamLAND-Zen 検出器の構造図	21
3.2	ミニバルーンの全体図	22
3.3	^{10}C 崩壊イベントとそのタグ付け	23
3.4	^{238}U 系列の崩壊過程	24
3.5	KamLAND-Zen 実験の沿革	25
3.6	KamLAND-Zen 実験 1st phase の結果	26
3.7	KamLAND-Zen 実験 2nd phase の結果	26
3.8	KamLAND-Zen 400 でのニュートリノのマヨラナ有効質量への制限	26
3.9	KamLAND2-Zen 検出器の外観	28
4.1	分光光度計と測定原理	29
4.2	KamLAND-LS の誤差付 9cm 透過率	31

4.3	9cm 透過率から換算した 6.5m 透過率	31
4.4	減衰長測定装置とコーナーキューブの概略	32
4.5	減衰長測定における光軸調節で生じる誤差	33
4.6	空気中での光強度と透過距離の関係	34
4.7	KamLAND-LS の減衰長	35
4.8	減衰長から算出した KamLAND-LS の 6.5m 透過率	35
4.9	発光量測定装置とその概念図	36
4.10	KamLAND-LS の発光量測定で得られた電荷分布図	37
4.11	PPO の発光スペクトル	38
4.12	改良型 PMT の量子効率	38
4.13	KamLAND-LS の 6.5m 透過率	38
4.14	KamLAND-LS と純化前 LAB の透過率改善による集光量	39
4.15	LAB(ロット番号 PC5G7) の 9cm 透過率	41
4.16	濾過を行う前後の LAB の 9cm 透過率	42
4.17	窒素置換を行う前後の LAB の 9cm 透過率	42
4.18	蒸留を行う前後の LAB の 9cm 透過率	43
4.19	モレキュラーシーブで 2 回静置純化した LAB と KamLAND-LS 溶媒の 9cm 透過率	44
4.20	減衰長測定の結果から算出した KamLAND 検出器における集光量	44
4.21	純化後 LAB にオルトニトロアニリンを 1mg/L 溶解させた 9cm 透過率の結果	45
5.1	7 種類の活性炭	48
5.2	7 種類の活性炭を用いて静置純化した LAB の 9cm 透過率	48
5.3	純化時間を変化させて処理した LAB の 9cm 透過率	49
5.4	純化時間を変化させて処理した LAB の波長 348,368,388nm における 9cm 透過率	49
5.5	純化時間と発光量の関係	49
5.6	265nm~320nm に吸光波長を持つ不純物が存在する場合の発光効率低下のイメージ図	50
5.7	吸着等温線の型	51
5.8	388nm に吸光波長を持つ不純物の除去率と吸着剤量の関係	52
5.9	各液体シンチレータ溶媒の 9cm 透過率	53
5.10	各液体シンチレータ溶媒の減衰長	54
5.11	減衰長測定の結果から算出した各液体シンチレータ溶媒の 6.5m 透過率	55
5.12	各液体シンチレータ溶媒の透過率による集光量	55
5.13	固定層式 純化装置の模式図	57
5.14	50ml 間隔で採取した LAB の 9cm 透過率と純化処理量	57

5.15	処理流速を変化させた LAB の 9cm 透過率	58
5.16	処理流速を変化させた LAB の発光量	59
5.17	各液体シンチレータ溶媒の 9cm 透過率の比較	59
5.18	各液体シンチレータ溶媒の減衰長	60
5.19	減衰長測定の結果から算出した各液体シンチレータ溶媒の 6.5m 透過率	61
5.20	各液体シンチレータ溶媒の透過率による集光量	61
5.21	除去率と処理液量の関係	63
5.22	積算吸着量と処理液量の関係	64
5.23	カラム内での吸着進行のイメージ	64
5.24	複数カラムでの吸着進行のイメージ	64
5.25	メリーゴーランド方式のカラム交換サイクル	65
5.26	メリーゴーランド方式の純化装置	65

表 目 次

1.1	$2\nu2\beta$ 崩壊を起こす放射性核種	9
2.1	KamLAND-LS の組成	15
2.2	バッファオイルの組成	16
3.1	Xe-LS の組成表	22
4.1	KamLAND-LS と LAB-LS(未純化) の発光量測定の結果	38
4.2	KamLAND-LS と LAB-LS(未純化) の相対集光量	39
4.3	LAB,N12,PC の物性	40
4.4	モレキュラーシーブの物性	43
4.5	KamLAND 検出器における各液体シンチレータの相対集光量比較	44
4.6	オルトニトロアニリンの物性	45
5.1	純化時間を変化させた LAB-LS の相対集光量	50
5.2	各吸着剤を用いた純化で得られる収液率	52
5.3	各液体シンチレータの波長 400nm,388nm での 9cm 透過率	53
5.4	各液体シンチレータ溶媒の ADC Channel 値と相対集光量	54
5.5	各液体シンチレータ溶媒の相対集光量	56
5.6	各液体シンチレータ溶媒の波長 400,388nm における 9cm 透過率	60
5.7	各液体シンチレータ溶媒の ADC Channel 値と相対発光量	60
5.8	各液体シンチレータ溶媒の相対集光量	62
5.9	各液体シンチレータ溶媒の収液率, 吸着剤量, LAB 量, 価格	62
6.1	各液体シンチレータ溶媒の測定結果	67
6.2	各液体シンチレータ溶媒精製に要する吸着剤量, LAB 量, コスト	67
6.3	活性炭と KamLAND-LS の放射性元素含有量	68

第1章 ニュートリノ物理学

この世の中に存在するあらゆる物質を構成する最小単位の粒子を素粒子と呼び、図 (1.1) に標準模型による素粒子の分類を示す。現在までに 17 個の素粒子が発見されており、主に力を媒介するボソンと物質を構成するフェルミオンに分けられる。さらに、ボソンは 5 種類のゲージ粒子とヒッグス粒子に分けられ、フェルミオンはクォークとレプトンに分けられる。クォークは単独で自然界に存在することはできず、複数のクォークが強い相互作用によって結合して存在している。レプトンは単独で自然界に存在することができる。クォーク、レプトンはそれぞれ 6 種類発見されており、それぞれ 2 個ずつを対にして第 1 世代、第 2 世代、第 3 世代と分類される。20 世紀後半に確立した標準模型によって素粒子は上述のように分類される。本論文の研究対象であるニュートリノはレプトンに分類され、 ν_e, ν_μ, ν_τ の 3 種類存在する。

フェルミオン	ボソン
クォーク	ゲージ粒子
u c t	γ Z^0
d s b	g W^\pm
レプトン	ヒッグス粒子
e μ τ	H
ν_e ν_μ ν_τ	

図 1.1: 標準模型による素粒子の分類

1.1 ニュートリノ

ニュートリノの存在は原子核の β 崩壊におけるエネルギー・角運動量非保存の問題から予言された。その当時、 β 崩壊は原子核中の中性子が電子を 1 つ放出して陽子に崩壊すると考えられていた。

$$n \rightarrow p + e^- \quad (1.1)$$

親核の質量を M_Z , 娘核の質量を M_{Z+1} とすると、放出された電子の運動エネルギーはアインシュタイン方程式 $E = mc^2$ より

$$K = (M_Z - M_{Z+1} - m_e)c^2 \quad (1.2)$$

と線スペクトルとなるはずである。しかし、実際には K を最大値とする連続スペクトルで観測され、エネルギー保存則と角運動量保存則を破る結果となった。図 (1.2) に ^{14}C の β 崩壊で放出される電子のエネルギースペクトルを示す。図 (1.2) の赤線は電子のみが放出された場合の電子のエネルギースペクトルである。

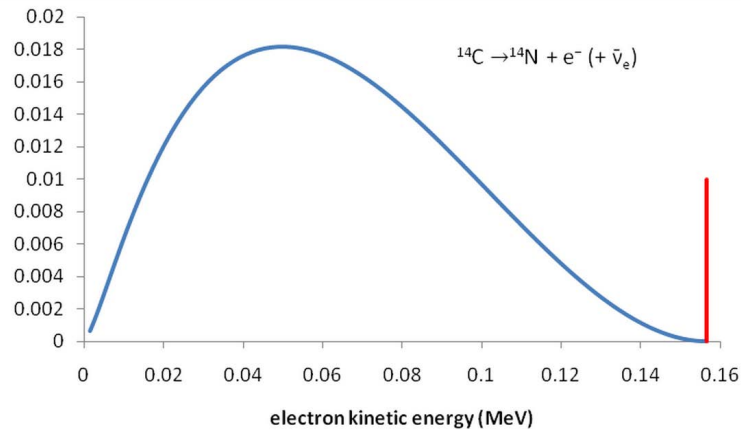


図 1.2: ^{14}C の β 崩壊で放出される電子のエネルギースペクトル [1]

この問題に対して、1930年に W.Pauli は β 崩壊では電子と一緒に放出されるスピン $1/2$ の軽い中性粒子の存在を提唱した。電子と提唱された粒子間で質量差に相当するエネルギーが分割されるため、エネルギー保存則が成り立つ。また、崩壊前後でのスピンは変化しないので角運動量保存則も満たすことができる。この際に予言された粒子がニュートリノである。1934年、E.Fermi によって β 崩壊の理論にニュートリノが組み込まれた。



しかし、ニュートリノの発見には予言から 26 年もの年月を要した。1956年、F.Reines と C.Cowan は塩化カドミウムを溶かした水と液体シンチレータを用いて、原子炉から飛来する反電子ニュートリノを世界で初めて観測した。検出の原理は逆 β 崩壊反応

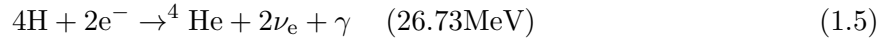


で生じた中性子による γ 線と陽電子による γ 線を同時遅延計測することで反電子ニュートリノだと識別した。翌年 1957 年には Wu が ^{60}Co の β 崩壊で放出される電子が全て左巻きであるという実験結果から弱い相互作用におけるパリティ非保存を証明し、1958 年の Goldhaber らが行ったニュートリノヘリシティ決定実験によってニュートリノには左巻き (反ニュートリノには右巻き) のみが存在することが発見された [2]。更に 1962 年には M.Schwarz らによる μ ニュートリノの発見 [3]、2001 年に DONUT 実験で τ ニュートリノが発見され [4]、ニュートリノには 3 種類 ν_e, ν_μ, ν_τ が存在することが分かった。

1.2 ニュートリノ振動

1.2.1 太陽ニュートリノ問題

太陽では水素 H と電子の核融合反応



によってエネルギー生成と共に電子ニュートリノが放出される。ニュートリノは弱い相互作用のみ働くため、放出された電子ニュートリノは地球上に $6 \times 10^{10} [\text{cm}^2/\text{sec}]$ 程度降り注いでいる。1968年、Davis らは ${}^{37}\text{Cl}$ での逆 β 崩壊反応



を用いて太陽ニュートリノを観測した。観測結果は標準太陽模型で予測されるフラックスの 1/3 程度であった。当初は検出器の問題視や太陽模型の再検討などがされたが解決せず、太陽ニュートリノ問題と呼ばれ 30 年以上も未解決のままであった。その後、重水を用いた SNO 実験では全てのニュートリノフレーバーを観測でき、観測結果は太陽模型での予測フラックスと一致した [5]。太陽から放出された電子ニュートリノが地球まで飛来する間に他のフレーバーに変化する為、Davis らの実験では電子ニュートリノの観測量が減少したと説明できる。素粒子標準理論ではニュートリノ質量は 0 であるが、ニュートリノに質量が存在すると仮定した場合にはニュートリノ振動と呼ばれる現象が許される。太陽ニュートリノ問題は後述する KamLAND 実験で原子炉ニュートリノ振動を観測したことが決め手となって解決された。

1.2.2 ニュートリノ振動

現在ではニュートリノが飛行中に他のフレーバーに変化することでニュートリノ振動が太陽・大気・原子炉・加速器ニュートリノにおいて観測されている。本節ではニュートリノ振動について述べる。

- 2 世代ニュートリノ振動

フレーバー固有状態を $|\nu_\alpha\rangle$ 、混合行列を U 、質量固有状態を $|\nu_i\rangle$ とすると、質量を持つニュートリノでは

$$\begin{aligned} |\nu_\alpha\rangle &= \sum_i U_{\alpha i} |\nu_i\rangle \\ |\nu_i\rangle &= \sum_\alpha (U^\dagger)_{i\alpha} |\nu_\alpha\rangle = \sum_\alpha U^*_{\alpha i} |\nu_\alpha\rangle \end{aligned} \quad (1.7)$$

と表される。また、質量固有状態の時間発展は

$$|\nu_i(x, t)\rangle = e^{-iE_i t} |\nu_i(x, 0)\rangle \quad (1.8)$$

であり、フレーバー α の時間発展は

$$|\nu_\alpha(x, t)\rangle = \sum_i U_{\alpha i} e^{-iE_i t} |\nu_i(x, 0)\rangle = \sum_{i\beta} U_{\alpha i} U_{\beta i}^* e^{i(px - E_i t)} |\nu_\beta\rangle \quad (1.9)$$

となる。フレーバー α からフレーバー β へ変化する確率は

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) = |\langle \nu_\beta | \nu_\alpha(x, t) \rangle|^2 \quad (1.10)$$

$$= \sum_i \sum_j U_{\alpha j}^* U_{\alpha i} U_{\beta j} U_{\beta i}^* e^{-i(E_i - E_j)t} \quad (1.11)$$

$$= \sum_i |U_{\alpha i}|^2 |U_{\beta i}|^2 + 2 \sum_{j>i} U_{\alpha i} U_{\alpha j}^* U_{\beta i}^* U_{\beta j} e^{-i(E_i - E_j)t} \quad (1.12)$$

が得られる。ここでニュートリノ質量が十分小さく、ほぼ光速で運動するので相対論的粒子だとすると、エネルギー E_ν , 運動量 p , 質量 m_i は

$$E_i = \sqrt{m_i^2 + p^2} \simeq p + \frac{m_i^2}{2p} \simeq E_\nu + \frac{m_i^2}{2E_\nu} \quad (1.13)$$

で表され、飛行距離 L と光速 $c(=1)$ の間には

$$L \simeq ct = t(\text{自然単位系}) \quad (1.14)$$

が成り立つので、式 (1.12) は

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) = \sum_i |U_{\alpha i}|^2 |U_{\beta i}|^2 + 2 \sum_{j>i} U_{\alpha i} U_{\alpha j}^* U_{\beta i}^* U_{\beta j} \exp\left(-i \frac{\Delta m_{ij}^2}{2}\right) \frac{L}{E_\nu} \quad (1.15)$$

となる。電子ニュートリノと μ ニュートリノの2世代ニュートリノ振動では、それぞれの固有状態は

$$|\nu_e\rangle = \cos\theta |\nu_1\rangle + \sin\theta |\nu_2\rangle \quad (1.16)$$

$$|\nu_\mu\rangle = -\sin\theta |\nu_1\rangle + \cos\theta |\nu_2\rangle \quad (1.17)$$

であり、式 (1.10) に代入すると

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) = |\langle \nu_\mu(0) | \nu_\mu(t) \rangle|^2 \quad (1.18)$$

$$= |\sin\theta \cos\theta (1 - e^{-i(E_1 - E_2)t})|^2 \quad (1.19)$$

$$\simeq \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m_{12}^2}{4E} L\right) \quad (1.20)$$

$$= \sin^2 2\theta \sin^2\left(1.27 \frac{\Delta m_{12}^2 [\text{eV}^2]}{E [\text{GeV}]} L [\text{km}]\right) \quad (1.21)$$

2世代ニュートリノ振動の公式が導ける。ニュートリノ振動現象が起こるには、フレーバー固有状態は質量固有状態の重ね合わせとなっており ($\theta \neq 0$)、質量差がなければならない ($\Delta m_{12}^2 \neq 0$)。

- 3世代ニュートリノ振動

3世代ニュートリノ振動における混合行列は 3×3 のPMNS行列 (Pontecorvo-Maki-Nakagawa-Sakata 行列) は

$$U = \begin{pmatrix} U_{e1} & U_{e2} & U_{e3} \\ U_{\mu 1} & U_{\mu 2} & U_{\mu 3} \\ U_{\tau 1} & U_{\tau 2} & U_{\tau 3} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & c_{23} & s_{23} \\ 0 & -s_{23} & c_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{13} & 0 & s_{13}e^{-i\delta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -s_{13}e^{i\delta} & 0 & c_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{12} & s_{12} & 0 \\ -s_{12} & c_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.22)$$

$$= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{-i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}c_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.23)$$

と表せる。ただし、 $c_{ij} \equiv \cos \theta_{ij}$, $s_{ij} \equiv \sin \theta_{ij}$ であり、 θ_{ij} は混合角、 δ は CP 位相と呼ばれる。

1998年、Super-Kamiokande 実験が大気ニュートリノでの振動現象を観測し、ニュートリノが質量を持つこと証明した [6]。標準模型ではニュートリノ質量は0とされているため、標準模型を拡張する必要性を示す実験となった。

1.3 ニュートリノ質量

ニュートリノが質量を持つことは証明されたが、ニュートリノの質量は未だ測定出来てない。なぜなら、ニュートリノ振動実験では質量二差 Δm^2 と混合角 θ_{ij} のみが測定可能だからである。しかし、得られたパラメーターから各質量固有状態への制限やニュートリノのマヨラナ性についても議論されている。

1.3.1 質量階層構造

現在までに質量固有状態の質量二乗差 $\Delta m_{12}^2, |\Delta m^2| \equiv \frac{1}{2}((m_3^2 - m_2^2) + (m_3^2 - m_1^2))$ 、混合角度 $\sin^2 \theta_{12}, \sin^2 \theta_{13}, \sin^2 \theta_{23}$ が精度良く測定されている。これらのパラメーターからニュートリノ質量 m_1, m_2, m_3 を求めると、3通りの取り方が可能だと分かっており、

$$m_1^2 < m_2^2 \ll m_3^2 \quad (1.24)$$

$$m_3^2 \ll m_1^2 < m_2^2 \quad (1.25)$$

$$m_1^2 \sim m_2^2 \sim m_3^2 \quad (1.26)$$

である。式 (1.24) を正常質量階層構造 (normal mass hierarchy:NH)、式 (1.25) を逆質量階層構造 (inverted mass hierarchy:IH)、式 (1.26) を準縮退質量構造 (degenerate mass pattern) と呼ぶ。図 (1.3) にニュートリノの質量階層構造を示す。

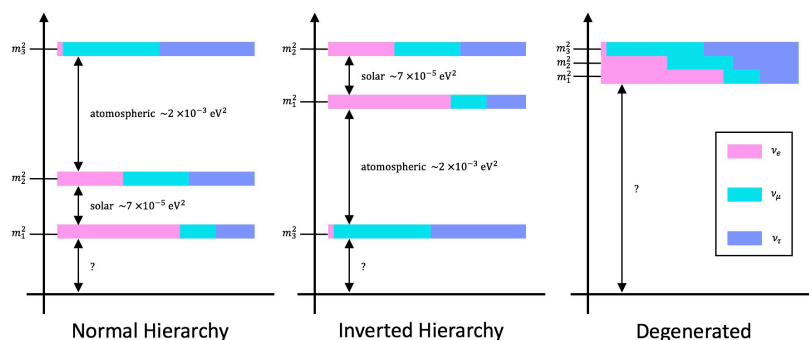


図 1.3: ニュートリノの質量階層構造

ニュートリノの質量階層構造は後述するマヨラナ有効質量に関連するため重要であるが、現在までに決定されておらず様々な実験で検証が進められている。

1.3.2 マヨラナ性とシーソー機構

スピン $1/2$ であるフェルミオンはディラック方程式に従い、スピン方向で 2 成分、粒子反粒子で 2 成分の合計 4 成分を持つ粒子である。ニュートリノは ν_L と $\bar{\nu}_R$ しか観測されていないので、質量 0 で構築された 2 成分のワイル方程式に従うとすれば、 ν_L ($\bar{\nu}_R$) のみが存在することが説明できる。しかし、ニュートリノ振動の発見により、ニュートリノが質量を持つと証明されたことでワイル粒子である可能性は排除された。ニュートリノは電氣的に中性であり、粒子と反粒子が等しいと仮定すると、 $\nu_L, \bar{\nu}_R$ を 2 つのヘリシティー成分にすることでマヨラナ方程式に従い、 ν_L と ν_R で独立な質量を定義することができる。もしニュートリノがマヨラナ粒子であれば、シーソー機構によって他のフェルミオンに比べて極端に質量が小さい理由や右巻きニュートリノがまだ発見されていないことを説明することが可能である。

- ディラック質量

ディラック方程式は、ディラック質量 m_D を用いて

$$(i\gamma_\mu \partial^\mu - m_D)\psi = 0 \tag{1.27}$$

となり、ラグランジアン密度は

$$\mathcal{L} = \bar{\psi}(i\gamma_\mu \partial^\mu - m_D)\psi \tag{1.28}$$

と書ける。質量に関するラグランジアン密度は $\mathcal{L}_D = m_D \bar{\psi}\psi$ である。

ここで $P_{L,R} = \frac{1}{2}(1 \mp \gamma_5)$ を用いると、任意のスピンール ψ, ϕ

$$\begin{aligned} \psi &= \psi_L + \psi_R = \psi P_L + \psi P_R \\ \phi &= \phi_L + \phi_R = \phi P_L + \phi P_R \end{aligned} \tag{1.29}$$

に対して

$$\begin{aligned}\bar{\psi}_L\phi_L &= \bar{\psi}P_R P_L\phi = 0 \\ \bar{\psi}_R\phi_R &= \bar{\psi}P_L P_R\phi = 0\end{aligned}\quad (1.30)$$

となる。質量に関するラグランジアン密度 \mathcal{L}_D は

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_D &= m_D\bar{\psi}\phi \\ &= m_D((\bar{\psi}_L + \bar{\psi}_R)(\phi_L + \phi_R)) \\ &= m_D(\bar{\psi}_L\phi_R + \bar{\psi}_R\phi_L)\end{aligned}\quad (1.31)$$

で表せる。右巻きと左巻きが混合しているため、右巻きと左巻きで別々の質量を与えることができない。

- マヨラナ質量

電荷が中性であるニュートリノに対しては、マヨラナ条件

$$\psi_L = (\psi_R)^c \quad (1.32)$$

により4成分を2成分に減らすことができる。ここでCは荷電共役演算子である。 $\frac{1}{2}(\bar{\psi}\psi + \psi^c\psi + h.c)$ がローレンツ不変量となる。左巻きスピノール ψ_L と右巻きスピノール ψ_R を用いると、質量に関するラグランジアン密度は

$$\mathcal{L} = m_D(\bar{\psi}_L\psi_R + h.c) + \frac{1}{2}m_L(\bar{\psi}_L^c\psi_R + h.c) + \frac{1}{2}m_R(\bar{\psi}_R^c\psi_L + h.c) \quad (1.33)$$

となる。第1項はディラック質量項であり、第2,3項はマヨラナ質量項と呼ばれる。マヨラナ条件を課すことで ν_L と ν_R を2つのヘリシティ成分にし、 ν_L と ν_R で独立に質量を与えることができる。

ここで、 N_1, N_2 を

$$N_1 = \frac{\psi_L + \psi_L^c}{\sqrt{2}}, \quad N_2 = \frac{\psi_R^c + \psi_R}{\sqrt{2}} \quad (1.34)$$

と定義すると、

$$\begin{aligned}\bar{N}_1 N_1 &= \frac{\bar{\psi}_R^c \psi_L + h.c}{2} \\ \bar{N}_2 N_2 &= \frac{\bar{\psi}_L^c \psi_R + h.c}{2} \\ \bar{N}_1 N_2 + \bar{N}_2 N_1 &= \bar{\psi}_L \psi_R + h.c\end{aligned}\quad (1.35)$$

となり、式(1.33)は

$$\mathcal{L} = (\bar{N}_1, \bar{N}_2) \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} N_1 \\ N_2 \end{pmatrix} \quad (1.36)$$

と書き直せる。左巻きニュートリノ質量を非常に軽く ($m_D \gg m_L \sim 0$)、右巻きニュートリノは非常に重いため ($m_D \ll m_R \equiv M$) 観測できていないと仮定すると、(1.36) の行列は

$$\begin{pmatrix} 0 & m_D \\ m_D & M \end{pmatrix} \quad (1.37)$$

とかけ、この行列の固有値は

$$\begin{aligned} m_1, m_2 &= \frac{1}{2}(m_R \pm \sqrt{m_R^2 + 4m_D^2}) \\ &\sim m_R, -\frac{m_D^2}{m_R} \end{aligned} \quad (1.38)$$

となり、観測できていない右巻きニュートリノの質量 m_R 非常に大きくすることで、左巻きニュートリノが非常に軽いということを自然に説明することができる。この機構はシーソー機構と呼ばれ、柳田, Gell-mann らによって提唱された。ニュートリノがディラック粒子の場合だと小さい質量を自然に説明することは難しく、ニュートリノはマヨラナ粒子だとする議論が有力である。ニュートリノがマヨラナ粒子かを現実的に証明するには、ニュートリノを伴わない二重 β 崩壊の探索実験が唯一の方法である。

1.4 ニュートリノを伴わない二重 β 崩壊

1.4.1 二重 β 崩壊

崩壊核によっては娘核のエネルギー準位の方が高い為に β 崩壊を起こせない。この場合、式 (1.39) のように2つの中性子が陽子に崩壊し、2つの電子と2つの反電子ニュートリノを放出する。この現象を二重 β 崩壊と呼ぶ。



この二重 β 崩壊をニュートリノを伴わない二重 β 崩壊と区別するために、 $2\nu 2\beta$ とする。図 (1.4) は本研究で使用する ^{136}Xe の崩壊図である。

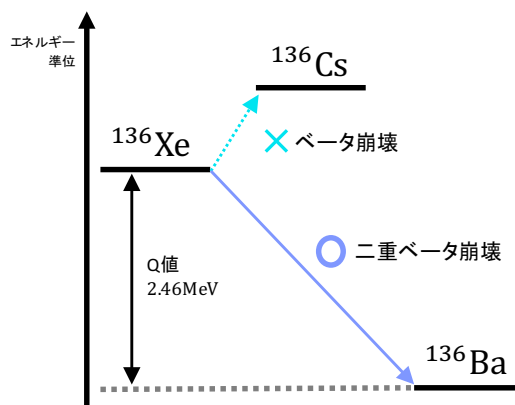


図 1.4: ^{136}Xe の崩壊図

$2\nu 2\beta$ を起こし得る放射性同位体は多数存在するが、非常に稀な現象なのでバックグラウンドに埋もれてしまう。その為、 $2\nu 2\beta$ 崩壊事象が観測されている核種は表 (1.1) の 10 種類のみである。

放射性核種	Q 値 [keV]	$2\nu 2\beta$ 半減期 $T_{1/2}^{2\nu}$ [yr]	天然存在比 [%]
^{48}Ca	4274 ± 4	$(4.4_{-0.5}^{+0.6}) \times 10^{19}$	0.187
^{76}Ge	2039.04 ± 0.16	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^{21}$	7.8
^{82}Se	2995.5 ± 1.3	$(0.92 \pm 0.07) \times 10^{20}$	9.2
^{99}Zr	3347.7 ± 2.2	$(2.3 \pm 0.2) \times 10^{19}$	2.8
^{100}Mo	3034.40 ± 0.17	$(7.1 \pm 0.4) \times 10^{18}$	9.6
^{116}Cd	2809 ± 4	$(2.8 \pm 0.2) \times 10^{19}$	7.5
^{130}Te	2527.01 ± 0.32	$(6.8 \pm 1.2) \times 10^{20}$	34.5
^{136}Xe	2457.83 ± 0.37	$(2.11 \pm 0.21) \times 10^{21}$	8.9
^{150}Nd	3367.7 ± 2.2	$(8.2 \pm 0.9) \times 10^{18}$	5.6
^{238}U	1146	$(2 \pm 0.6) \times 10^{21}$	99.284

表 1.1: $2\nu 2\beta$ 崩壊を起こす放射性核種 [7], [8]

1.4.2 ニュートリノを伴わない二重 β 崩壊

ニュートリノをマヨラナ粒子だと仮定すると、片方の中性子から放出された左巻き電子ニュートリノ ν_e^L を右巻き反電子ニュートリノ $\bar{\nu}_e^R$ と見なせ、もう片方の中性子から放出される左巻き電子ニュートリノ ν_e^L と原子核内で対消滅する可能性がある。原子核からニュートリノが放出されないので、崩壊式は

$$2n \rightarrow 2p + 2e^- \tag{1.40}$$

となり、ニュートリノを伴わない二重 β 崩壊 ($0\nu 2\beta$) と呼ばれる。図 (1.5) に $2\nu 2\beta$ 崩壊と $0\nu 2\beta$ 崩壊のファインマン図を示す。

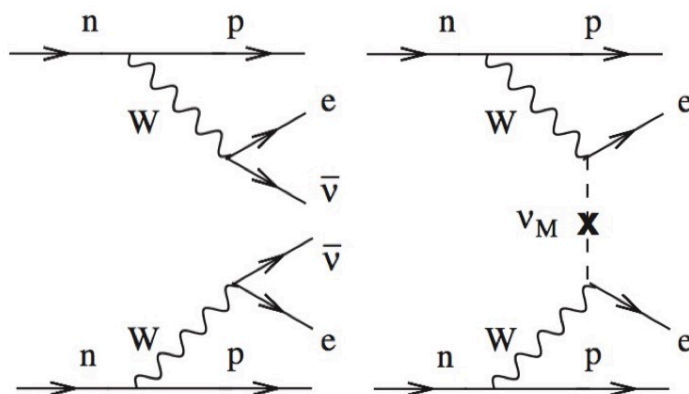


図 1.5: $2\nu 2\beta$ 崩壊 (左図) と $0\nu 2\beta$ 崩壊 (右図) の崩壊図 [9]

$0\nu 2\beta$ 崩壊では、2 個の電子のみが放出されるので観測されるエネルギースペクトルは連続的

なものではなく、 Q 値に対応した線スペクトルとなる。しかし、検出器のエネルギー分解能には有限であるため、実際に観測されるスペクトルは図 (1.6) のようにエネルギー分解能の分だけ幅を持つ。

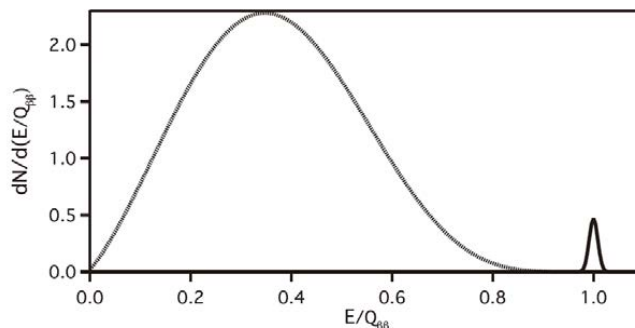


図 1.6: 二重 β 崩壊のエネルギースペクトル [10]

1.4.3 ニュートリノのマヨラナ有効質量

原子核の Q 値と陽子数 Z で与えられる位相空間因子 $G^{0\nu}(Q, Z)$, 核行列要素 $M_{0\nu}$, ニュートリノのマヨラナ質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ を用いると $0\nu 2\beta$ 崩壊の崩壊率 $(T_{1/2}^{0\nu})^{-1}$ は

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = G^{0\nu}(Q, Z) |M_{0\nu}|^2 \langle m_{\beta\beta} \rangle^2 \quad (1.41)$$

で表せる。ニュートリノのマヨラナ有効質量は、ニュートリノ混合行列 U_{ei} , ニュートリノ質量 m_i を用いて

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle = \left| \sum_i^3 m_i U_{ei}^2 \right| \quad (1.42)$$

と書けるので、 $0\nu 2\beta$ 崩壊の半減期 $(T_{1/2}^{0\nu})$ を測定することでニュートリノのマヨラナ有効質量に換算できる。更に、ニュートリノのマヨラナ有効質量はその質量階層構造によって値が変化するため、質量階層構造に制限を与えることができる。ただ、核行列要素 $M_{0\nu}(Q, Z)$ の計算には様々なモデルが存在するためその不定性は大きく、得られるマヨラナ有効質量は幅を持った値となる。図 (1.7) にニュートリノのマヨラナ有効質量と質量階層構造の関係を示す。赤色斜線領域は逆階層構造を、青色斜線領域は正常階層構造を表しており、 m_{min} は3つの質量固有状態で最も軽い質量、 $\sum_{i=1}^3 m_i$ は3つ質量固有状態の質量の和、 m_β は通常の β 崩壊の電子のエネルギーを精密測定することで得られるニュートリノの平均質量を表している。 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ は式 (1.42) のようにニュートリノ混合行列 U_{ei} が関与しているため、マヨラナ CP 位相の不定性によって $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ は幅を持った値になる。シーソー機構を提唱した柳田によって理論計算からマヨラナ有効質量が予想されている。2つの重い右巻きニュートリノモデルを仮定して、使用されるパラメータの値を最小かつニュートリノ振動の観測データと照らし合わせることでマヨラナ有効質量は 47 ± 1 [meV] だと得られた。これを柳田予測と呼び、図 (1.7) の緑線である [17]。また、水色領域は二重 β 崩壊実験によりニュートリノマヨラナ有効質量を 0.32 ± 0.03 [eV] と報告した KK claim である [14]。

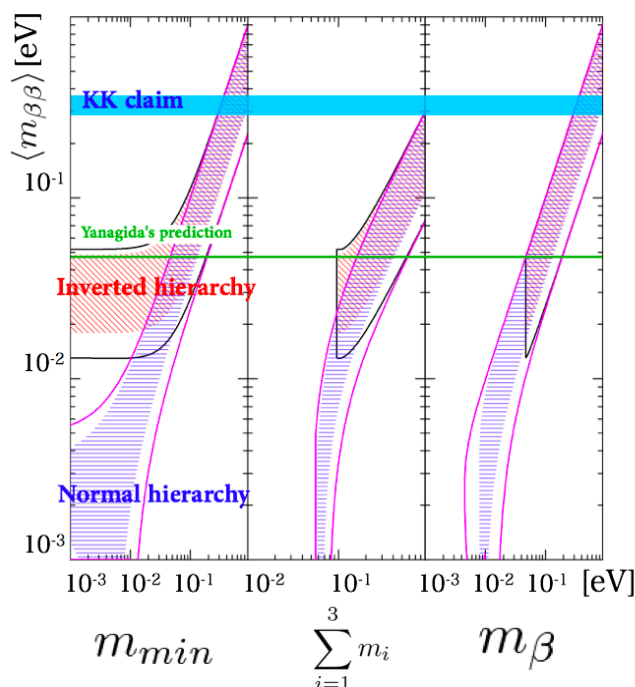


図 1.7: ニュートリノのマヨラナ有効質量と質量階層構造 [11]

二重 β 崩壊実験では間接的にニュートリノマヨラナ質量を測定しているが、ニュートリノ質量を直接的に測定する実験も存在する。宇宙全体の物質の平均密度よりも大きい場所や小さい場所が存在し、これを宇宙の密度ゆらぎと呼ぶ。ニュートリノは密度ゆらぎに影響を与えるため、宇宙の密度ゆらぎを観測することでニュートリノ質量に制限を与えることができる。Planck 衛星による宇宙背景放射 (Cosmic Microwave Background) の観測では3つのニュートリノ質量固有状態の和に対して

$$m_{tot} = \sum_i m_i < 0.23[\text{eV}] \quad (95\% \text{C.L.}) \quad (1.43)$$

の上限值を得ている [12]。

また、通常の二重 β 崩壊で放出される電子のエネルギースペクトルを精密することでニュートリノ質量を測定する実験がある。ニュートリノ質量 $m_\nu = 0$ であればエネルギースペクトルの最大エネルギー付近が直線になるが、 $m_\nu \neq 0$ であると静止質量分だけ直線からずれる。そのため最大エネルギー付近を精密測定することでニュートリノ質量を求めることができる。Troitsk 実験ではトリチウム ^3H の崩壊を測定することで、反電子ニュートリノの質量に対して

$$\langle m_\beta \rangle = m_{\bar{\nu}_e} < 2.05[\text{eV}] \quad (95\% \text{C.L.}) \quad (1.44)$$

の上限值を得ている [13]。

1.4.4 KamLAND-Zen 以外の二重 β 崩壊探索実験

- Heidelberg-Moscow

Heidelberg-Moscow はイタリアにあるグラン・サッソ国立研究所で行われた実験であり、86% に濃縮された ^{76}Ge 結晶は崩壊核と半導体検出器として使用されているので、高エネルギー分解能を持つ。2011年には、 ^{76}Ge の $0\nu 2\beta$ 崩壊の半減期及びマヨラナ有効質量を

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.9 \times 10^{25} [\text{yr}] \quad , \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle < 350 [\text{meV}] \quad (90\% \text{C.L.}) \quad (1.45)$$

と報告した。また、2006年には一部のコラボレータが 6σ の精度で $0\nu 2\beta$ 崩壊を観測したと主張し、半減期及びマヨラナ有効質量を

$$T_{1/2}^{0\nu} = 2.23_{-0.31}^{+0.44} \times 10^{25} [\text{yr}] \quad , \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle = 0.32 \pm 0.03 [\text{eV}] \quad (68\% \text{C.L.}) \quad (1.46)$$

だと報告した [14]。しかし、この実験結果はバックグラウンド算出に疑問を持つ研究者が多く、KKclaim と呼ばれている。

- EXO-200

EXO-200 はアメリカにある WIPP(Waste Isolation Pilot Plant) で行われた実験であり、175kg の液体 ^{136}Xe を用いた検出器である。TPC(Time Projection Chamber) 方式によりシンチレーション光と荷電粒子の軌跡を捉えることができるので、高エネルギー分解能を持つ。2017年には ^{136}Xe の $0\nu 2\beta$ 崩壊の半減期及びマヨラナ有効質量を

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.8 \times 10^{25} [\text{yr}] \quad , \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle < 147 - 398 [\text{meV}] \quad (90\% \text{C.L.}) \quad (1.47)$$

と報告した [15]。

- CUORE

CUORE はイタリアのグラン・サッソ国立研究所で行われている実験であり、崩壊核は ^{130}Te 、検出器にはボロメータを使用することで高エネルギー分解能を持つ。2017年からは 206kg の ^{130}Te を使用し、現在までに ^{130}Te の $0\nu 2\beta$ 崩壊の半減期及びマヨラナ有効質量を

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.5 \times 10^{25} [\text{yr}] \quad , \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle < 140 - 400 [\text{meV}] \quad (90\% \text{C.L.}) \quad (1.48)$$

と報告している。[16]。

上記以外にも ^{130}Te を用いた SNO+ や ^{48}Ca を用いた CANDLES など世界でニュートリノを伴わない二重 β 崩壊実験が行われている。

第2章 KamLAND 実験

2.1 KamLAND 検出器

KamLAND(Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector) 検出器は、岐阜県神岡鉱山内のカミオカンデ跡地に建設されたニュートリノ検出器である。検出器は地下 1,000m に位置するため、ニュートリノ観測のバックグラウンドとなる宇宙線が地上の約 10 万分の 1 に低減されている。図 (2.1) に KamLAND 検出器の全体図を示す。

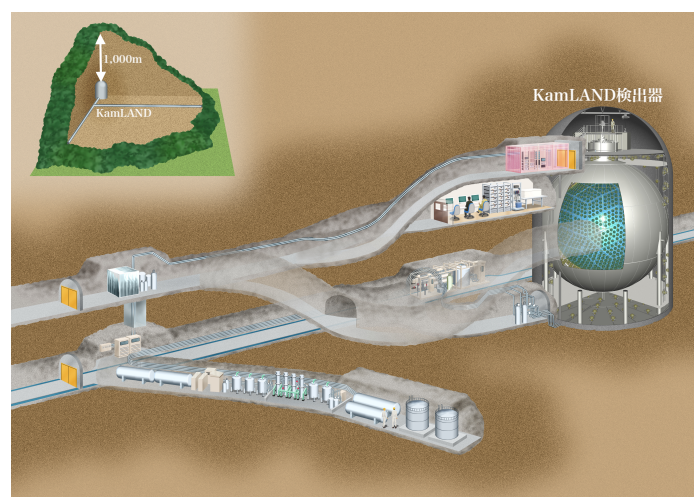


図 2.1: KamLAND 検出器の全体図

KamLAND 検出器は円筒型水槽とその内部に設置されたステンレス製球形タンクで構成されており、球形タンクの内側を内部検出器 (Inner Detector)、外側を外部検出器 (Outer Detector) と呼ぶ。図 (2.2) に KamLAND 検出器の構造を示す。

2.1.1 外部検出器 (Outer Detector)

直径 20m、高さ 20m の円筒型水槽と球形ステンレスタンクの間を外部検出器 (Outer Detector : OD) と呼び、3,200ton の純水で満たすことで岩盤由来の放射線を吸収する役割がある。また、円筒型水槽の壁面には 225 本の光電子増倍管が設置されており、池の山の岩盤を通過した宇宙線によるチェレンコフ光を検出することで宇宙線バックグラウンドと他の物理事象を区別することができる。

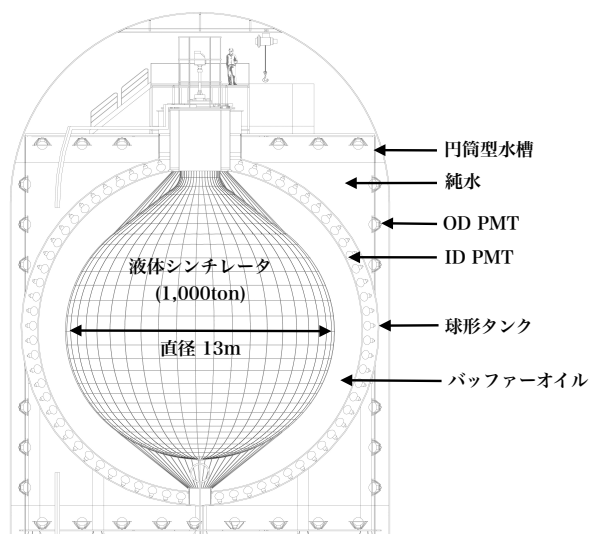


図 2.2: KamLAND 検出器の構造

2.1.2 内部検出器 (Inner Detector)

内部検出器 (Inner Detector : ID) は直径 18m の球形ステンレスタンク内部を指し、バルーンによってバッファーオイル層と液体シンチレータ層に分けられている。また、球形ステンレスタンクの内壁には光電子増倍管が設置されており、液体シンチレータによるシンチレーション光を検出する。以下に内部検出器の詳細を述べる。

● 液体シンチレータ

液体シンチレータ (liquid scintillator:LS) とは、放射線での励起によって蛍光を発する液体であり、一般的に有機溶剤 (溶媒) と発光剤 (溶質) から成る。シンチレーション光は以下のエネルギー移行にて放出される。

1. 溶媒分子が放射線によって電離される。
2. 電子との再結合で励起状態となり、脱励起する際に一次シンチレーション光が放出される (輻射的エネルギー移行)。

また、分子振動などでエネルギーを発光剤に受け渡す非輻射的エネルギー移行も存在し、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依存する。溶質が低濃度の場合は輻射的エネルギー移行が優勢となるが、濃度が高くなるにつれて非輻射的エネルギー移行が支配的になる。
3. 1次シンチレーション光が溶質に吸収され、発光剤は励起状態となる。
4. 発光剤が脱励起する際に2次シンチレーション光が放出される。

上述の発光過程では放射線エネルギーの全てが光エネルギーへ移行するとしたが、クエンチング(消光)効果によって光以外のエネルギーに移行し、観測される発光量が減少することがある。このクエンチング効果は代表的なもので5つに分類され、以下にその詳細を述べる。

1. 化学クエンチング

発光過程の中でも特に溶媒分子と発光剤との間でエネルギーが移行する際に生じ、その影響の大きさは液体シンチレータの化学的特性に関係している。

2. 色クエンチング

シンチレーション光の発光波長付近に吸光波長を持つ物質が液体シンチレータに存在すると、シンチレーション光の一部が液体シンチレータ自身に吸収されることで生じるクエンチング。原因となる吸光物質を除去することでクエンチングを低減できる。

3. 酸素クエンチング

液体シンチレータ中に酸素が溶存することで、溶媒分子の励起エネルギーが発光剤ではなく酸素分子に吸収されて生じるクエンチング。窒素ガス等を用いて液体シンチレータ中の酸素を追い出すことでクエンチングを抑えることができる。

4. 濃度クエンチング

液体シンチレータ中の発光剤濃度が低い場合は、濃度を大きくすると発光量もそれに伴い増加するが、ある一定の濃度をを超えると発光剤自身が吸光をしてしまいクエンチングが生じる。特に発光剤の発光波長と吸光波長が重なる場合に顕著に現れる。

5. 電離クエンチング

液体シンチレータ中を α 線などの電離能の大きな粒子が通過すると、電離分子や励起分子が高密度になる領域が形成され、発光効率が低下することでクエンチングが生じる。特に α 線によって生じる場合を α クエンチングと呼ぶ。

KamLAND 検出器で使用される液体シンチレータ (KamLAND-LS) は上述のクエンチングを考慮し、溶媒にドデカン (N12) と 1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)、溶質に 2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO) で構成される。KamLAND-LS でのシンチレーション過程は、PC から 1 次シンチレーション光が放出され、PPO から 2 次シンチレーション光が放出される。N12 は発光には関与せず、液体の密度と光透過率の調整で使用されている。表 (2.1) に KamLAND-LS の組成を示す。

成分	組成式	密度	組成割合
ドデカン (N12)	$C_{12}H_{26}$	0.749g/cm ³	80%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C_9H_{12}	0.875g/cm ³	20%
2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	$C_{15}H_{11}NO$	-	1.36g/L
KamLAND-LS	-	0.777g/cm ³	-

表 2.1: KamLAND-LS の組成

KamLAND-LS は 350~500nm に発光波長を持ち、発光量は 8,300 photon/MeV である。KamLAND 検出器の 17inch PMT を使用した際の集光量は約 300p.e/MeV となる [18]。

• バッファーオイル

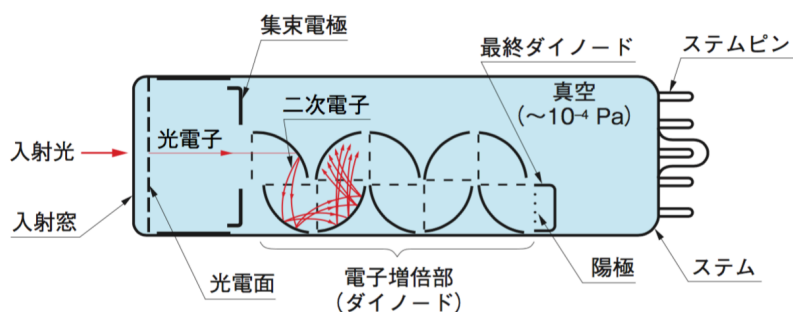
バッファーオイルはドデカン (N12) とイソパラフィンから成り、KamLAND-LS の密度よりも 0.04% だけ小さくすることで内側のバルーンが浮かないようにする役割を持つ。また、バッファーオイルと接触するステンレスタンクや PMT はその素材に放射性不純物を含むため、シンチレーション光を発しないような組成にすることで、放射性不純物による発光を防いでいる。表 (2.2) にバッファーオイルの組成を示す。

成分	組成式	密度	組成割合
ドデカン (N12)	$C_{12}H_{26}$	0.749g/cm ³	53%
イソパラフィン	C_nH_{2n+2}	0.795g/cm ³	47%
バッファーオイル	-	0.7769g/cm ³	-

表 2.2: バッファーオイルの組成

• 光電子増倍管 (PMT)

光電子増倍管 (photomultiplier tube : PMT) とは、シンチレーション光やチェレンコフ光などの入射光子を電気信号に変換して出力する光検出器である。光電面に入射した光子は光電効果によって光電子に変換され、高電圧が掛けられたダイノードにて次々に増幅される。増幅された光電子は最終的に陽極にて電流として出力される。KamLAND 検出器の球形ステンレスタンク壁面には 1,879 本の光電子増倍管 (PMT) が設置されており、1,325 本の 17-inch と 554 本の 20-inch から成る。17-inch PMT は KamLAND 実験の為に新調されたもので、時間分解能とエネルギー分解能に優れているボックス・アンド・ラインフォーカス型を採用している。20-inch PMT はカミオカンデ実験で使用していたものを改良しており、長期間の使用に信頼性があるベネチアンブラインド型である。図 (2.3) に光電子増倍管の構造図を示す。



THBV4_0201JA

図 2.3: 光電子増倍管の構造図

2.2 ニュートリノ検出原理

前節では液体シンチレータによる発光を光電子増倍管で検出すると述べたが、ニュートリノが液体シンチレータ溶媒を励起させ、シンチレーション光を放出している訳ではない。ニュートリノと液体シンチレータ溶媒の構成元素が反応する際に生じるガンマ線や荷電粒子が液体シンチレータを発光させている。

2.2.1 逆ベータ崩壊

KamLAND 検出器では逆 β 崩壊 (inverse beta decay) を用いて反電子ニュートリノを検出している。飛来した反電子ニュートリノは液体シンチレータ内の陽子との逆ベータ崩壊反応により、陽電子と中性子を放出する。



生成された陽電子は電子と直ぐに対消滅を起こし、 0.511MeV の γ 線を2本放出する。一方、生成された中性子は周囲の原子核との非弾性散乱によって熱中性子となり、平均 $\sim 210\mu\text{s}$ で陽子に捕獲され重陽子と γ 線が生じる。熱中性子捕獲により放出される γ 線のエネルギーは、捕獲時の熱中性子の運動エネルギーを無視すると、 2.22MeV となる。陽電子及び対消滅の γ 線が先発信号 (prompt signal)、熱中性子による 2.22MeV の γ 線が後発信号 (delayed signal) となり、2つの信号が時間差で検出された際に反電子ニュートリノによる事象だと判別している。図 (2.4) に KamLAND における反電子ニュートリノの検出原理の概要図を示す。

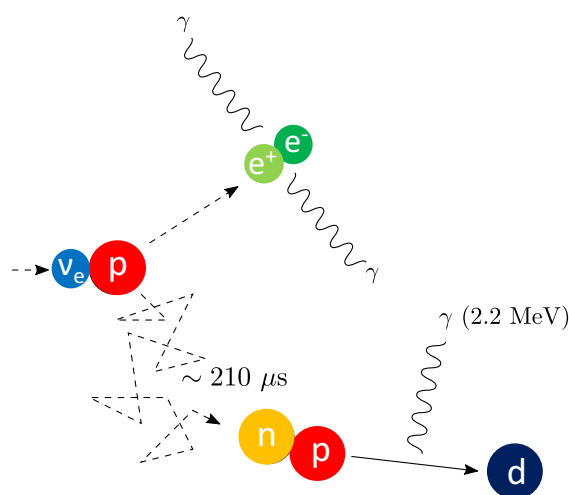


図 2.4: 逆ベータ崩壊反応を利用した反電子ニュートリノ検出原理

観測された反電子ニュートリノのエネルギーは、中性子の運動エネルギー $K_n \simeq 0$ と近似す

ると逆ベータ崩壊反応のエネルギー・運動量保存より

$$\begin{aligned}
 E_{\bar{\nu}_e} &= K_{e^+} + K_n + (m_e + m_n - m_p) \\
 &\simeq (K_{e^+} + 2m_e) + (m_n - m_p - m_e) \\
 &\simeq E_{prompt} + 0.78[\text{MeV}]
 \end{aligned}
 \tag{2.2}$$

となり、検出した先発信号のエネルギーから飛来した反電子ニュートリノのエネルギーを得られる。

2.2.2 電子との弾性散乱

逆ベータ崩壊反応では反電子ニュートリノのみ観測可能だが、電子との弾性散乱では電子ニュートリノ、ミューニュートリノ、タウニュートリノを原理的には観測することが可能である。

$$e^- + \nu_\alpha \rightarrow e^- + \nu_\alpha \quad (\alpha = e, \mu, \tau)
 \tag{2.3}$$

電子との弾性散乱には、 W^- ボソンを媒介して反応する荷電カレント (charged current:CC) と Z^0 ボソンを媒介して反応する中性カレント (neutral current:NC) の2種類が存在する。中性カレントでは全てのフレーバーで反応するが、観測したニュートリノのフレーバーを判別することはできない。荷電カレントでは電子ニュートリノのみ反応するが、その反応断面積はミュー・タウニュートリノと比較して約6倍大きい。図(2.5),(2.6)に荷電カレント反応と中性カレント反応のファインマン図を示す。

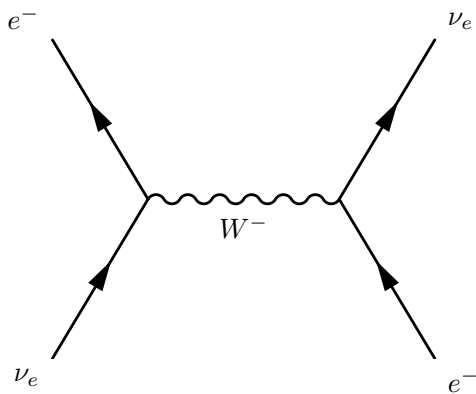


図 2.5: 荷電カレント反応

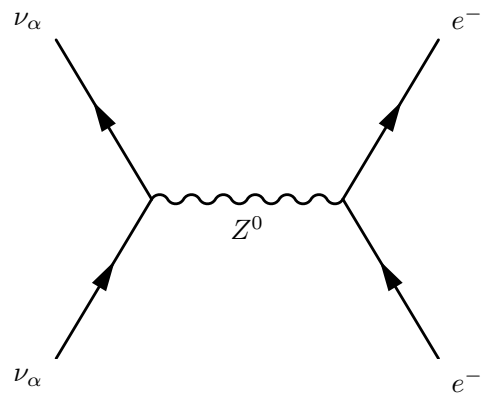


図 2.6: 中性カレント反応

太陽内部では ^8B が β^+ 崩壊を起こす際に電子ニュートリノを放出するため、太陽ニュートリノは後述するKamLAND2-Zenのバックグラウンドとなる。詳細は§3で述べる。

2.3 KamLAND 実験の成果

KamLAND 実験は低エネルギーのニュートリノも観測することができる液体シンチレータの特徴と、極低放射能環境を活かして重大な成果を挙げてきた。本節では、原子炉ニュートリノ振動と地球ニュートリノの観測について述べる。

2.3.1 原子炉ニュートリノ振動

核分裂反応を利用して発電を行う原子炉からは大量の反電子ニュートリノが放出される。原子炉の稼働状況などから飛来する反電子ニュートリノのエネルギーや発生量を算出できるため、これまでに様々な実験で観測が行われてきた。KamLAND は周囲に存在する高出力原子炉と極低バックグラウンド環境を活かして 2002 年に原子炉ニュートリノの精密測定を開始した。その結果、原子炉由来の反電子ニュートリノが期待値の約 6 割しか観測されず、原子炉ニュートリノ振動の証明に成功した [19]。図 (2.7) に KamLAND 実験で得られた原子炉ニュートリノ振動の観測結果を示す。

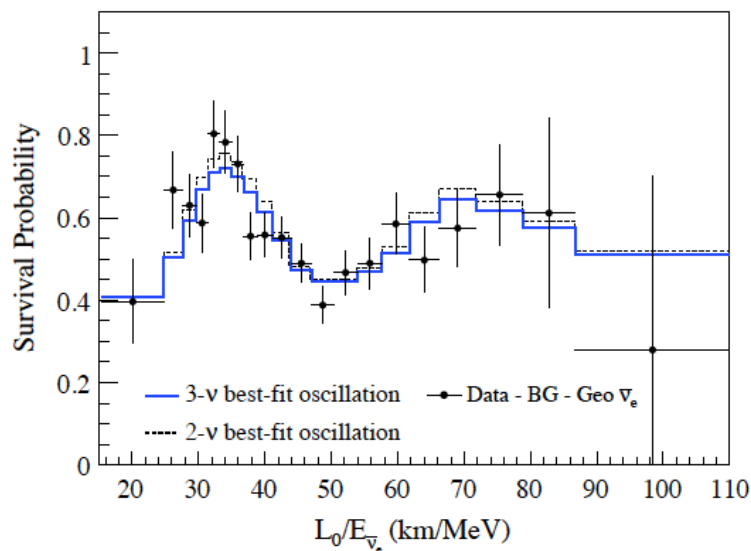
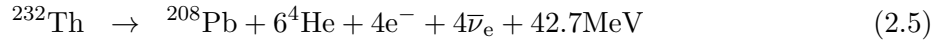
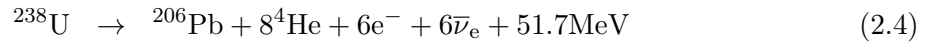


図 2.7: 原子炉ニュートリノのニュートリノ振動

2.3.2 地球ニュートリノ

地球の熱モデルは U, Th, K など半減期の長い原子核が放射性崩壊を起こすことで持続的に発生していると考えられているが、観測の難しさからエネルギー量などは正確に検証されていなかった

た。U,Th,K は以下のような放射性崩壊を起こし、反電子ニュートリノを放出する。



KamLAND は 2005 年に世界で初めて U,Th 由来の反電子ニュートリノを観測することに成功した。その結果、放射性崩壊によって生じる熱は 21TW と地熱エネルギーの約半分程度だと見積もられ、地球物理によって算出された予測値とほぼ一致した [20]。KamLAND の成果によって、ニュートリノ地球物理学と呼ばれる新たな研究分野が開拓され、現在もその研究は進められている。図 (2.8) に KamLAND 実験で得られた地球ニュートリノの観測結果を示す。

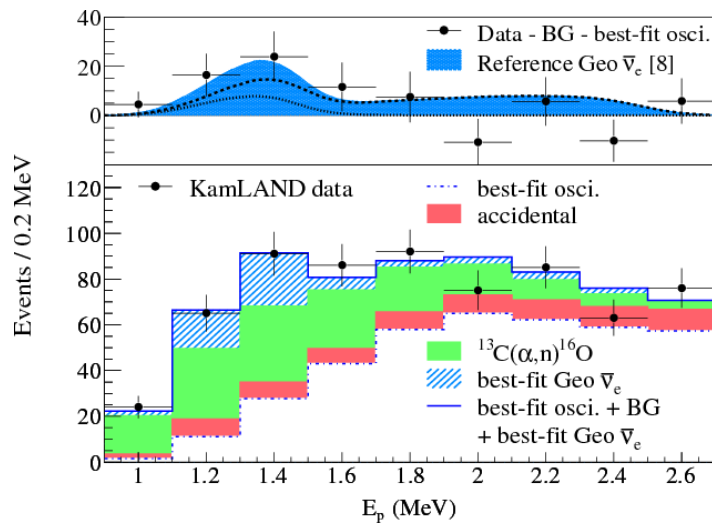


図 2.8: KamLAND での地球ニュートリノの観測結果

第3章 KamLAND-Zen実験

KamLAND-Zen(KamLAND Zero neutrino double beta decay search) 実験は崩壊核 ^{136}Xe を用いてニュートリノを伴わない二重 β 崩壊事象 ($0\nu 2\beta$) の探索を目的として2011年9月に開始した。 $0\nu 2\beta$ 崩壊の観測によって、マヨラナ性の証明や宇宙の物質優勢の謎を解明できるのではないかと期待されており、他の $0\nu 2\beta$ 探索実験の中でも世界最高の感度を報告している。図(3.1)に KamLAND-Zen 検出器の構造図を示す。

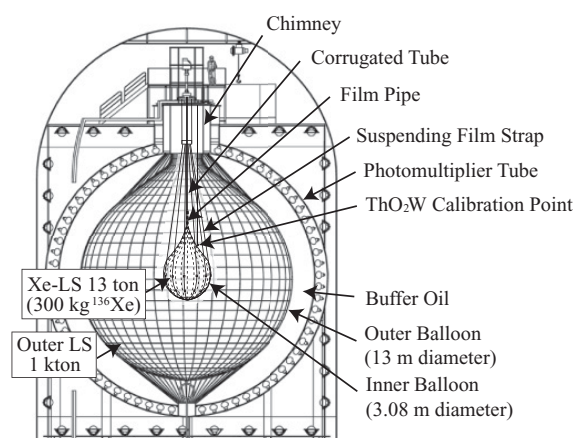


図 3.1: KamLAND-Zen 検出器の構造図

3.1 KamLAND 検出器の改良

3.1.1 二重 β 崩壊核 ^{136}Xe

KamLAND-Zen 実験では様々な二重 β 崩壊核の中でも ^{136}Xe を液体シンチレータに溶解させて使用している。 ^{136}Xe は安定な希ガスのため液体シンチレータへの溶解や回収が容易であり、液体シンチレータやバルーンへの影響が少ない。また同位体の自然存在比が高く、工業的にも濃縮方法が確立されている為、比較的安価に大量の $2\nu 2\beta$ 崩壊核を得られる。取り扱いや価格の点だけでなく、観測の点においても他の崩壊核よりも優れている。 ^{136}Xe の Q 値は 2.458MeV と環境放射線のエネルギーよりも高いので、 $0\nu 2\beta$ 信号を低バックグラウンドで観測することが可能である。また、崩壊核の Q 値は $0\nu 2\beta$ 崩壊の半減期に関係している。 $0\nu 2\beta$ の半減期は式(3.1)で表され、位相空間因子 $G^{0\nu}(Q, Z)$ は原子核が作る場を非相対論的な Coulomb 場と見なす Primakoff-Rosen 近似を用いると

$$G^{0\nu} \sim \left(\frac{Q^5}{30} + \frac{2Q^2}{3} + Q - \frac{2}{5} \right) \propto Q^5 \quad (3.1)$$

となる [21]。 ^{136}Xe は Q 値が大きいので $0\nu 2\beta$ 崩壊の半減期が小さく、観測の点でも優れている。

3.1.2 液体シンチレータ

KamLAND-Zen 実験で使用する液体シンチレータ (Xe-LS) は主成分に N-10(デカン) を使用することで ^{136}Xe を溶解した際に生じる密度変化を調節し、KamLAND-LS の密度 0.777 g/cm^3 に揃えている。また、 ^{136}Xe を液体シンチレータに溶解させると発光量が低下する為、発光剤 PPO を KamLAND-LS の約 2 倍である 2.7 g/L に増加させることで発光量を保っている [22]。表 (1.3) に Xe-LS の組成を示す。

物質名	組成式	密度	体積比
N-10(デカン)	$\text{C}_{10}\text{H}_{22}$	0.735 g/cm^3	82.3%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	0.875 g/cm^3	17.7%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	$\text{C}_{15}\text{H}_{11}\text{NO}$	-	2.7 g/L
^{136}Xe	-	-	3.0wt%
Xe-LS	-	0.777 g/cm^3	-

表 3.1: Xe-LS の組成表

3.1.3 ミニバルーン

KamLAND-LS と Xe-LS を分ける役割として、KamLAND 検出器の中心にはミニバルーンが存在する。ミニバルーンは液体シンチレータへの耐性、光透過率、放射性不純物含有量などの条件を満たしたナイロンフィルムが使用されており、厚さ $25\mu\text{m}$ 、直径 3.08 m の零型をしている。クリーンルーム内でミニバルーン作成作業を行うことで極低バックグラウンドを実現している。図 (3.2) にミニバルーンの全体図を示す。

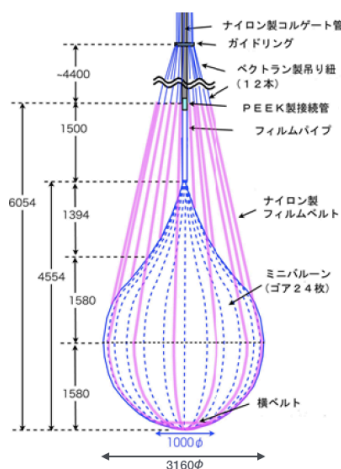


図 3.2: ミニバルーンの全体図

3.2 KamLAND-Zen 実験のバックグラウンド

- ^{136}Xe の $2\nu 2\beta$ 崩壊イベント

$0\nu 2\beta$ 崩壊事象の探索には必然的に $2\nu 2\beta$ 崩壊の信号がバックグラウンドとなる。 $0\nu 2\beta$ 崩壊の信号は Q 値に線スペクトルとして観測される一方、 $2\nu 2\beta$ 崩壊の信号は連続スペクトルを取る。理想的な検出器であれば2つのスペクトルを判別することが可能だが、実際にはエネルギー分解能は有限であるためにスペクトルは幅を持ち、 $0\nu 2\beta$ 信号と $2\nu 2\beta$ 信号には重なりが生じる。 $2\nu 2\beta$ 信号によるバックグラウンドを低減するにはエネルギー分解能を向上させる必要がある。 $0\nu 2\beta$ 信号に重なる $2\nu 2\beta$ 信号数 $N_{2\nu}$ とエネルギー分解能 ΔE は

$$N_{2\nu} \propto \left(\frac{\Delta E}{E}\right)^{5.8} \quad (3.2)$$

で表される [23]。エネルギー分解能を向上させ、 $2\nu 2\beta$ 信号によるバックグラウンドを低減させるために KamLAND2-Zen 実験が計画されている。

- 原子核破碎で生じる ^{10}C

液体シンチレータ中に高エネルギー宇宙線ミュオンが飛来すると、液体シンチレータ溶媒の主成分である ^{12}C の原子核が破碎されて ^{10}C が生成される。 ^{10}C は 27.8sec で崩壊する不安定核であり、その Q 値は 3.65MeV と $0\nu 2\beta$ 信号のバックグラウンドになる。KamLAND 内では 21.1 ± 1.8 events/day/kton の割合で生成され、その原理を図 (3.3) に示す。 ^{10}C 生成と同時に 90% の確率で中性子が生成され、 $\sim 210\mu\text{sec}$ 後に陽子に捕獲される際に 2.22MeV の γ 線を放出する。一方、 ^{10}C は β^+ 崩壊の際に放出した陽電子が電子と対消滅を起こすことで 0.511MeV の γ 線を 2 本放出する。同時遅延計測で宇宙線ミュオンによる発光イベントを Tag1、中性子捕獲による発光イベントを Tag2、 ^{10}C 崩壊による発光イベントを Tag3 とタグ付けすることで、このイベントを識別している。

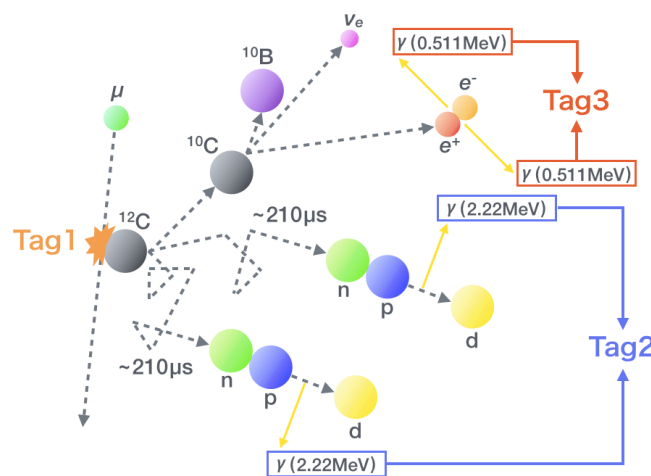


図 3.3: ^{10}C 崩壊イベントとそのタグ付け

● ^{214}Bi の崩壊事象

^{238}U 系列の崩壊娘核である ^{214}Bi は液体シンチレータ中やミニバルーンに付着しており、その Q 値は 3.272MeV と $0\nu 2\beta$ 信号のバックグラウンドになる。図 (3.4) に ^{238}U 系列の崩壊過程を示す。KamLAND-Zen 実験では連続崩壊 ^{214}Bi - ^{214}Po の同時遅延計測を用いて、 ^{214}Bi の崩壊イベントを識別している。 ^{214}Bi の娘核である ^{214}Po は短い半減期 0.164msec で α 崩壊を起こすので、液体シンチレータ中の ^{214}Bi 崩壊イベントは高確率で識別することが可能である。ミニバルーンに付着したもしくは付近で生じたイベントに関しては、 ^{214}Po からの α 線エネルギーの一部がミニバルーンを透過する際に損失されてしまい、タギング効率が低下してしまう。エネルギー閾値を低く設定すると後発信号を検出することも可能だが、データ取得が追い付かなくなる。その為、ミニバルーン中心から半径 1.35m の領域を有効体積と設定している。KamLAND-Zen 実験の ^{214}Bi 崩壊イベントの検出効率は 52.5% と見積もられている [24]。

^{214}Bi の親核である ^{214}Pb との連続崩壊を同時遅延計測し、 ^{214}Bi の崩壊イベントを識別する方法もある。 ^{214}Pb から ^{214}Bi へと崩壊する際に 1.023MeV の β 線を放出する。 β 線は透過力が高いのでミニバルーン付近で生じた場合でも先発信号として検出することができ、後発信号から 1 時間遡って先発信号を探索することでタギングすることができる。ここで探索時間を 1 時間としたのは、 ^{214}Pb の半減期が 26.8min と長いためである。しかし、この探索時間内に 1.023MeV 程度のエネルギーを持つイベントが生じると、 ^{214}Pb 崩壊と誤認してタギングすることができない。 ^{40}K の β 崩壊 (Q 値 1.311MeV) や ^{210}Bi の β 崩壊 (Q 値 1.162MeV) などの信号が ^{214}Bi 崩壊と誤認する可能性がある。現在の KamLAND-Zen 実験では ^{210}Bi が Xe-LS 中に存在している影響で ^{214}Pb - ^{214}Bi 連続崩壊をタギングすることができず、 ^{214}Bi - ^{214}Po 連続崩壊のタギングのみを使用している。

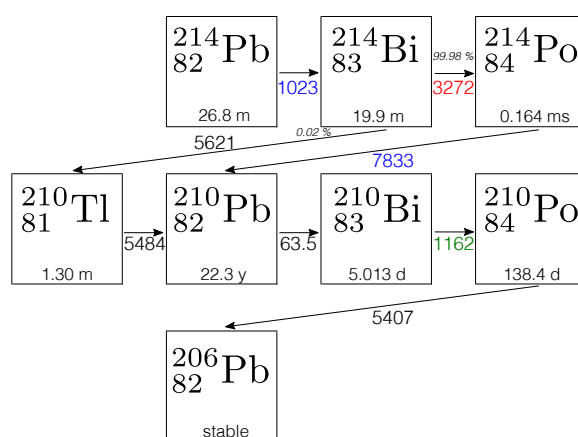


図 3.4: ^{238}U 系列の崩壊過程

- ^{110m}Ag の崩壊事象

^{110m}Ag は 249.79 日の半減期で β 崩壊をし、その Q 値は 3.01MeV であるので $0\nu 2\beta$ 信号のバックグラウンドになる。この ^{110m}Ag は天然に存在しないため混入の経路は不明であるが、2011 年 3 月の福島第一原発事故由来でミニバルーンに付着した可能性や ^{136}Xe を輸送する際に宇宙線での原子核破砕によって生成された可能性が考えられる [25]。KamLAND-Zen 実験では 2012 年から 2013 年にかけて Xe-LS の純化作業を行い、 ^{110m}Ag 量を 10 分 1 以下にまで除去した [26]。

- 太陽ニュートリノ

太陽内部では ^8B が β^+ 崩壊反応



によって電子ニュートリノを放出する。§2.2.2 で述べた電子との弾性散乱によって電子ニュートリノを観測することが可能であり、 $\sim 11[\text{MeV}]$ と幅広いエネルギーを持つ太陽ニュートリノも $0\nu 2\beta$ 信号のバックグラウンドになり得る。

3.3 KamLAND-Zen 実験の成果

2011 年から開始した KamLAND-Zen 実験は 2012 年 6 月までの 1st phase と 2013 年 11 月から 2015 年 10 月までの 2nd phase に分けられ、1st phase と 2nd phase を合わせた期間を KamLAND-Zen 400 と呼ぶ。図 (3.5) に KamLAND-Zen 実験の沿革を示す。

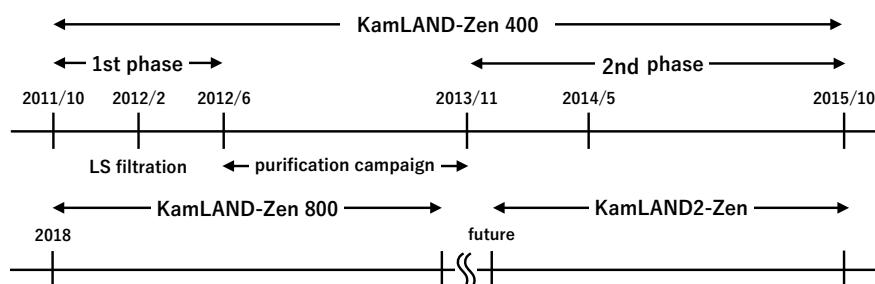


図 3.5: KamLAND-Zen 実験の沿革

1st phase では当初予期していなかった ^{110m}Ag の混入が確認され、2012 年 2 月に液体シンチレータの濾過作業が行われた。図 (3.6) は 1st phase での KamLAND-Zen 実験の結果である (濾過前:DS-1, 濾過後:DS-2)。 ^{110m}Ag イベントに $0\nu 2\beta$ 信号が埋もれており、濾過作業では ^{110m}Ag を除去することが出来なかった。そこで 2012 年 6 月から 2013 年 11 月まで蒸留と液液抽出での液体シンチレータ純化作業を行った。純化作業後、再びデータ取得を開始した 2nd phase での結果を図 (3.7) に示す。

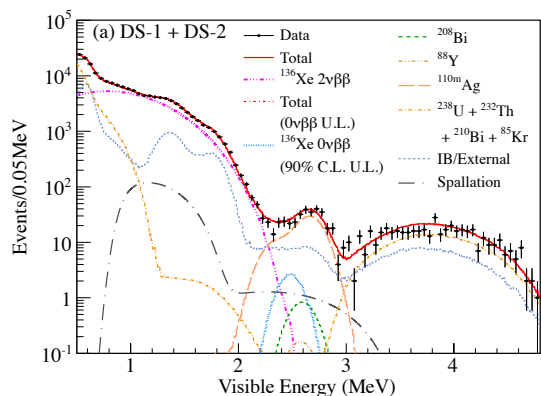


図 3.6: KamLAND-Zen 実験 1st phase の結果

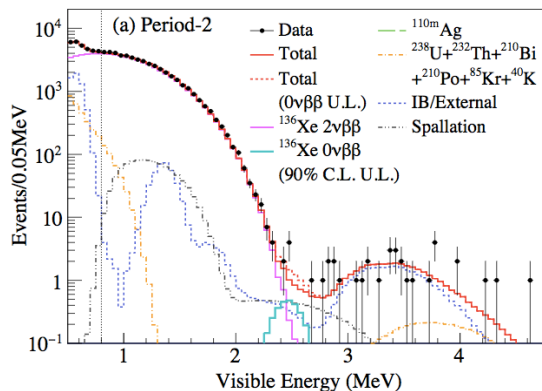


図 3.7: KamLAND-Zen 実験 2nd phase の結果

1st phase の結果と比較すると、2.2~3.0MeV 付近のバックグラウンドとなるイベントが減っており、長期間の純化作業により ^{110m}Ag によるバックグラウンドを低減することに成功した。2016 年には 1st phase と 2nd phase のデータを元に KamLAND-Zen 400 の結果を報告し、 ^{136}Xe の $0\nu 2\beta\beta$ の半減期が $T_{1/2}^{0\nu} > 1.07 \times 10^{26} \text{yr}$ (90% C.L.)、ニュートリノのマヨラナ有効質量が $\langle m_{\beta\beta} \rangle < (61 - 165) \text{meV}$ (90% C.L.) と、現在までに世界最高の感度となっている [27]。図 (3.8) に KamLAND-Zen 400 でのニュートリノのマヨラナ有効質量を示す。

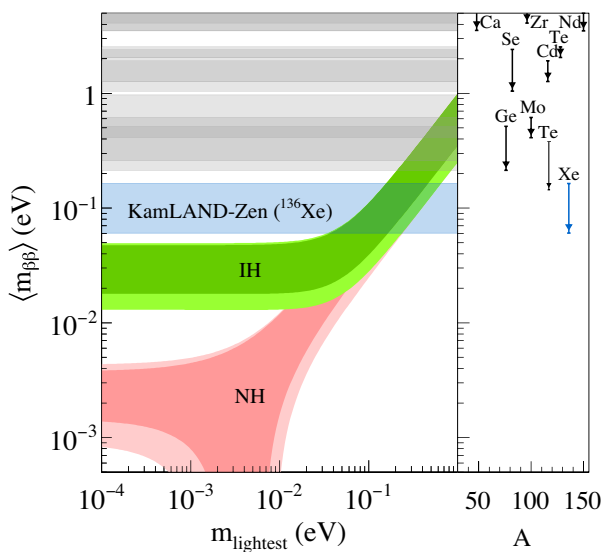


図 3.8: KamLAND-Zen 400 でのニュートリノのマヨラナ有効質量への制限。横軸は 3 つの質量固有状態の中でも最も軽い質量を表している。

3.4 KamLAND-Zen の将来計画

現在までに世界最高の感度を達成しているが、逆階層構造までには到達していない。更なる感度向上を目指して研究開発が進められており、§3.4 では直近の計画である KamLAND-Zen 800 と将来計画である KamLAND2-Zen について述べる。

3.4.1 KamLAND-Zen 800

KamLAND-Zen 800 では ^{136}Xe 量を約 750kg に増量し、現在よりも大きい直径 3.84m のミニバルーンを使用する。KamLAND-Zen 400 では放射性不純物 ^{214}Bi がミニバルーンに付着していたため、ミニバルーン全体積の 30% 程度しかデータ取得に使用されていなかった。更なる感度向上には ^{136}Xe の増量だけでなく、ミニバルーンに付着する ^{214}Bi 量を低減する必要がある。KamLAND-Zen 400 で作成した際よりも更に埃や塵などの付着に配慮することで、2018 年中のインストールに向けてよりクリーンなミニバルーンの作成が現在行われている。KamLAND-Zen 800 ではニュートリノのマヨラナ有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle > 50\text{meV}$ の感度到達が期待されている。

3.4.2 KamLAND2-Zen

ニュートリノの質量階層構造の決定やマヨラナ有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle \simeq 50\text{meV}$ を提唱した柳田予想 [17] の検証には更なる感度向上が必要となる。不可避なバックグラウンドである $2\nu 2\beta$ 信号の $0\nu 2\beta$ 信号への染み出しを抑えるにはエネルギー分解能の向上が必須であり、KamLAND-Zen 800 のように ^{136}Xe の増量や長期観測だけでは感度の改善に限度がある。そこで、検出器のエネルギー分解能向上を目標とする KamLAND2-Zen と呼ばれる将来計画があり、以下に KamLAND2-Zen での改善点を述べる。

- ^{136}Xe の増量 $\sim 1,000\text{kg}$
崩壊核を増加させ、 $0\nu 2\beta$ 崩壊寿命の感度を向上させる。
- 大発光量, 高透過率な液体シンチレータの使用
現在使用している KamLAND-LS よりも大発光量, 高透過率な液体シンチレータを使用することで集光量を向上させる。KamLAND2-Zen では KamLAND-LS に対して ~ 1.4 倍の集光量改善を目標としており、リニアアルキルベンゼン (LAB:Linear Alkyl-Benzene) が候補に挙がっている。この LAB には精製過程で混入した不純物が含まれており、本論文では活性炭を用いた不純物除去について述べる。
- 改良型高量子効率の PMT の使用
改良型の高量子効率 PMT を使用することで集光量を現在の 1.9 倍に向上させる。
- 集光ミラーの使用
KamLAND 検出器の PMT 光電面被覆率は約 34% であり、被覆率向上に伴い集光量も向上する。そこで、PMT に集光ミラーを装着することで、集光量を現在の 1.8 倍に向上させる [28]。

検出器に上記の改造を行うことで、集光量が5倍程度改善される。その結果、 ^{136}Xe の Q 値 2.46MeV でのエネルギー分解能は 2.5% 以下にまで改善され、5年間の観測でマヨラナ有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 20\text{meV}$ の感度が期待される。上記の改造以外にも、メタルスカベンジャーによる液体シンチレータ中に含まれる ^{210}Pb の除去や発光性バルーンフィルムなどを用いることで有効体積を増加させ、更なる感度向上が期待できる。図 (3.9) に KamLAND2-Zen 検出器の外観を示す。

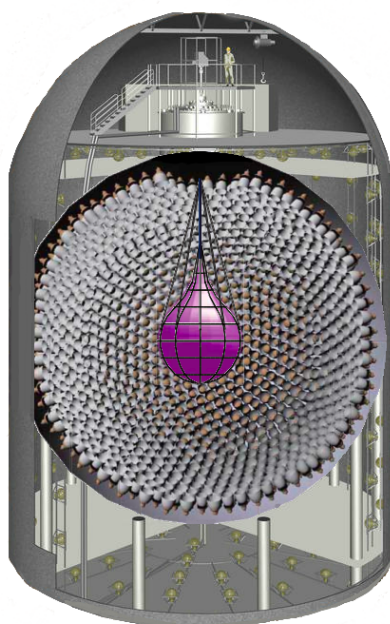


図 3.9: KamLAND2-Zen 検出器の外観

第4章 液体シンチレータの評価方法と先行研究

4.1 液体シンチレータ溶媒の性能評価

各液体シンチレータの集光量を算出するには透過率と発光量の測定が必要となる。本節では上記パラメータの測定方法と先行研究による成果・問題点について述べる。

4.1.1 分光光度計による 9cm 透過率測定

有機不純物による透過率の低下が最大の問題点であり、本研究では分光光度計 (日立ハイテク社製ダブルビーム型分光光度計 U-3900) を用いて LAB の純化前後における透過率を評価した。

● 実験原理

分光光度計は主に紫外から可視波長の入射光に対して吸光強度を測定する装置であり、図 (4.1) に分光光度計と測定原理を示す。



図 4.1: 分光光度計と測定原理

光源には可視領域でハロゲンランプ、紫外領域で重水素ランプを用いており、分光器には全波長均一に光が分散する回折格子を用いて単色光に分光する。分光器から出た光は回転式の反射ミラーで2光束に分け、サンプルとリファレンスに照射し、透過した光を検出する。本研究ではサンプル用に 10cm、リファレンス用に 1cm の石英セルを使用することでセル表面での光反射、吸収の影響による光量損失を無視できる。10cm と 1cm の透過光強度をそれぞれ $I_{10\text{cm}}$ 、 $I_{1\text{cm}}$ とすると、光路差 (10-1=9cm) を透過する間に減衰した光量の相対値は、

$$T_{9\text{cm,relative}} = \frac{I_{10\text{cm}}}{I_{1\text{cm}}} \quad (4.1)$$

となる。

ここで、短距離で光透過率がほぼ 100%である物質で基準値 (base-line) を取れば、サンプルの光

透過率の絶対値が得られる。9cm 光透過率の絶対値 T_{9cm} は

$$\begin{aligned} T_{9cm}[\%] &= \frac{T_{9cm,relative(sample)}}{T_{9cm,relative(baseline)}} \times 100 \\ &= \frac{I_{10cm(sample)}/I_{1cm(sample)}}{I_{10cm(baseline)}/I_{1cm(baseline)}} \times 100 \end{aligned} \quad (4.2)$$

となる。光は屈折率 n の異なる物質の境界面では入射光の一部は反射し、一部は透過する。このときの反射率 R は

$$R = \left(\frac{1-n}{1+n} \right)^2 \quad (4.3)$$

で表せるので、基準値となる物質と測定サンプルの屈折率 n は同程度が望ましい。本研究では、屈折率 n が液体シンチレータ溶媒と比較的近い $n=1.42$ であるシクロヘキサン (cyclohexane) を基準値として用いた。

- 実験方法

1. 分光光度計本体と PC の電源を入れ、測定プログラムを起動する。
2. 30 分以上運転させ、光源を安定させる。
3. アセトンとケイドライを用いてセル洗浄後、両セルにシクロヘキサンを入れて基準値を取る。
4. セル洗浄後、測定サンプルを両セルに入れる。安定化の為、5 分以上置いてから測定を行う。
5. 1 サンプルにつき 3 回測定を行い、その結果の平均値を透過率測定の結果とした。

- 測定誤差

先行研究では 1 回の測定で 0.6% 程度、3 回の測定で 0.3% 程度の誤差が生じると見積もられ [29]、図 (4.2) に KamLAND-LS の透過率に 0.3% の誤差を考慮したものを示す。

9cm セルでの透過率測定結果を用いて、KamLAND 検出器での集光量を見積もると以下の問題が生じる。KamLAND 検出器中心で発光したとすると、内部検出器面に装着された光電子増倍管へ到着するまでに 6.5m の距離を伝搬することになる。伝搬する間に減衰する光強度は液体シンチレータの 6.5m 透過率 $T_{6.5m}$ に依存する。6.5m 透過率 $T_{6.5m}$ と 9cm 透過率 t_{9cm} を

$$\begin{aligned} t_{9cm} &= t_0 \pm \delta t \\ T_{6.5m} &= T_0 \pm \delta T \end{aligned} \quad (4.4)$$

とすると、2つの関係式は

$$T_0 = t_0^{\frac{650}{9}}, \quad \delta T = \frac{650}{9} \times \frac{|T_0|}{|t_0|} \times \delta t \quad (4.5)$$

となる。式 (4.5) を用いて、9cm 透過率から 6.5m 透過率を求めたものが図 (4.3) である。

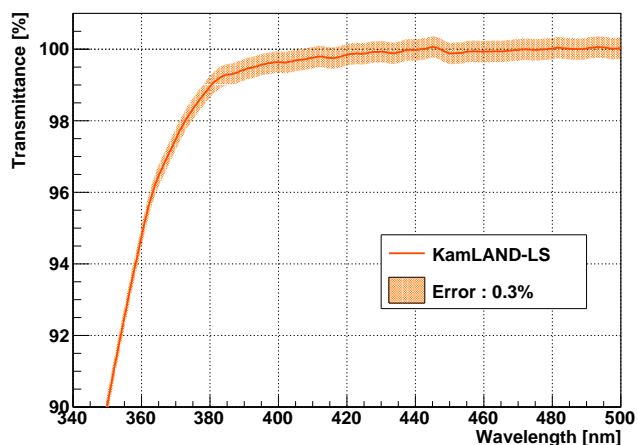


図 4.2: KamLAND-LS の誤差付 9cm 透過率

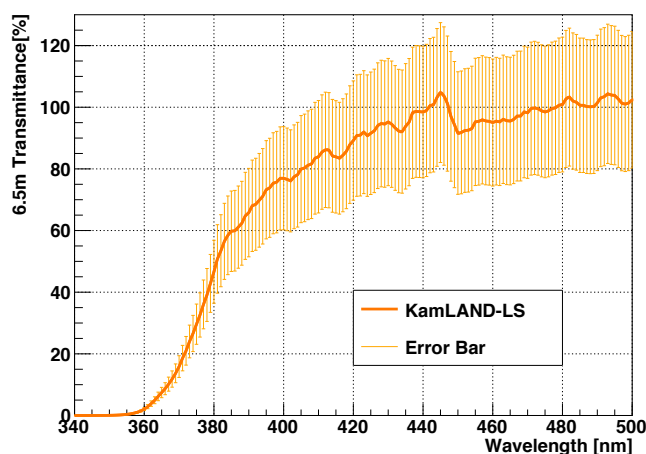


図 4.3: 9cm 透過率 (図 4.2) から式 (4.5) を用いて換算した 6.5m 透過率。

9cm 透過率では 400nm 付近において 99.2%程度であるが、6.5m 透過率に換算すると 75%程度に減少してしまう。また、誤差についても 9cm 透過率では 0.3%程度であったが、6.5m 透過率では 400nm 付近において 17%と大きな誤差が生じてしまう。その為、9cm 透過率測定では KamLAND 検出器における集光量を正確に評価することができない。本研究では 6.5m 透過率を評価する際に、§4.22 で後述するパイプとコーナーキューブを用いた透過距離 2m での減衰長測定を行った。

4.1.2 パイプとコーナーキューブを用いた減衰長測定

本小節では、パイプとコーナーキューブを用いた透過距離 2m での減衰長測定の方法とその測定結果を用いた 6.5m 透過率の算出について述べる。

- 実験原理

ニュートリノ観測実験では一般的に減衰長 (attenuation length) を用いて水や液体シンチレータなどの透過率を評価する。減衰長は入射光が物質中を透過した際に、その光強度が e^{-1} となる距離で定義され、

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{x}{L}\right) \quad (4.6)$$

と表せる。また、透過距離 x [m] での透過率 T_x はその定義から

$$T_x = \exp\left(-\frac{x}{L}\right) \quad [\%] \quad (4.7)$$

と表せる。つまり、透過距離 x [m] での検出された光強度 I から減衰長 L を求め、減衰長 L と透過距離 $x = 650$ を式 (4.7) に代入することで 6.5m 透過率 $T_{6.5m}$ を算出することができる。9cm では透過距離が短いために 6.5m 透過率の誤差が大きくなる問題が生じたが、 $\mathcal{O}(1m)$ の透過距離で測定することで改善が期待できる。本実験ではパイプとコーナーキューブを用いて透過距離 2m での減衰長測定を行った。

光源のキセノンランプから出た光は回折格子によって 1nm 単位で分光され、レンズによってパイプ方向に反射させる。ハーフミラーでパイプ内に反射させる直前に絞りをういて直径 5mm のビームとした。アクリル窓を通過してパイプ内に入射したビームは糸で吊るされたコーナーキューブで鉛直下向きに反射される。反射されたビームは再びアクリル窓とハーフミラーを透過して積分球で収集される。光学ファイバーを用いて積分球と光電子増倍管を接続することで、積分球に入射した光強度を光電子増倍管の出力電圧として取得した。

コーナーキューブは 3 枚の反射面から成り、入射角度が一定未満である光を全て平行に反射することができる。このような反射を再帰反射と呼び、プリズムの境界で 2 回反射することで起きる。プリズム境界面が空気と接する際には全反射により 100% の反射率となるが、空気よりも屈折率の大きい液体の場合には反射率が低下するため、本実験ではプリズム反射表面に銀コートを塗付した。

減衰長を測定したい試料をパイプに入れ、コーナーキューブの高さを変えるとで様々な透過距離 x [m] での光強度 I を測定する。式 (4.6) を用いて、取得した光強度をフィッティングすることで減衰長 L [m] が得られる。測定装置とコーナーキューブの概略を図 (4.4) に示す。

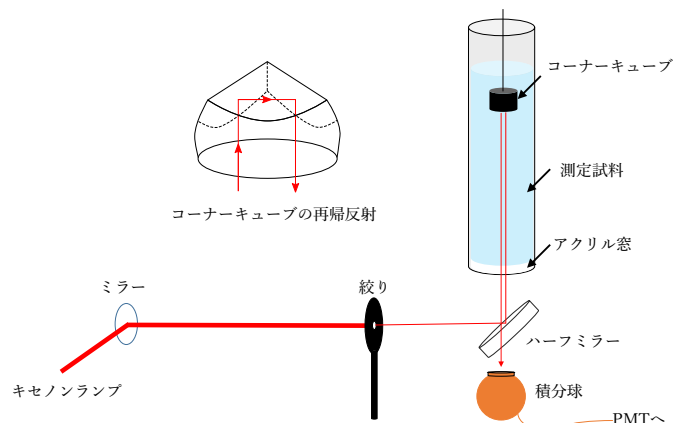


図 4.4: 減衰長測定装置とコーナーキューブの概略

- 実験方法

1. 測定試料をパイプ内に入れて、6時間以上待つ。気泡などが生じると測定の誤差になる。
2. キセノンランプ、分光器の電源を入れて1時間以上待つ。先行研究では1時間以上経過した後に測定することで光源が安定し、系統誤差は1%と見積もられている [29]。
3. 測定したい高さにコーナーキューブを固定し、波長 300~600nm の範囲で測定する。
4. コーナーキューブの高さを変化させ、3. を繰り返す。
5. 取得したデータを式 (4.6) を用いてフィッティングし、減衰長 $L[m]$ を求める。

- 測定誤差

1回の測定の度に光軸をずらし、再調節して測定を行う操作を10回繰り返すことで光軸調節の際に生じる誤差も含めて測定誤差を見積もった。この際、コーナーキューブの高さは0cmに固定した状態で測定を行った。得られた光強度の標準偏差 I_{SD} を光強度の平均値 I_{Ave} で割った値 I_{SD}/I_{Ave} を測定誤差とし、図 (4.5) にその結果を示す。

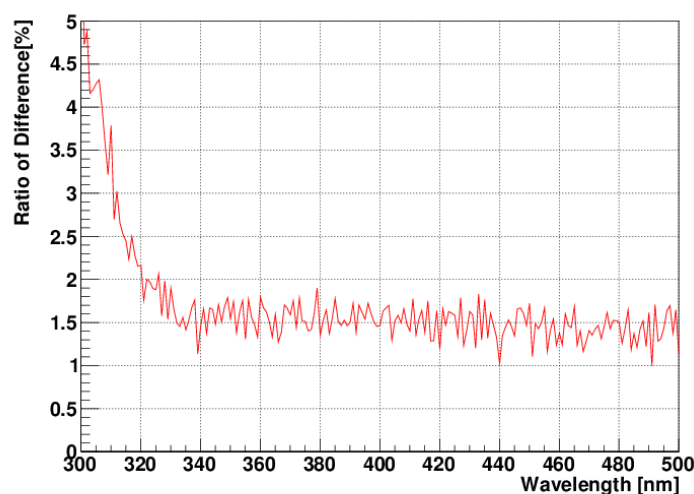


図 4.5: 光軸調節で生じる誤差

集光量の見積もりに影響する波長 330nm~480nm での誤差は 1.9% 程度であり、この誤差は光源の安定性による系統誤差も含まれているので、減衰長測定の測定誤差は 1.9% と見積もった。

次に測定装置パイプ内に試料は入れず、空気の減衰長を測定した。また、本実験ではアクリル窓を付けずに測定を行った。図 (4.6) に波長 350nm, 400nm, 450nm についての光強度と透過距離の関係を示す。

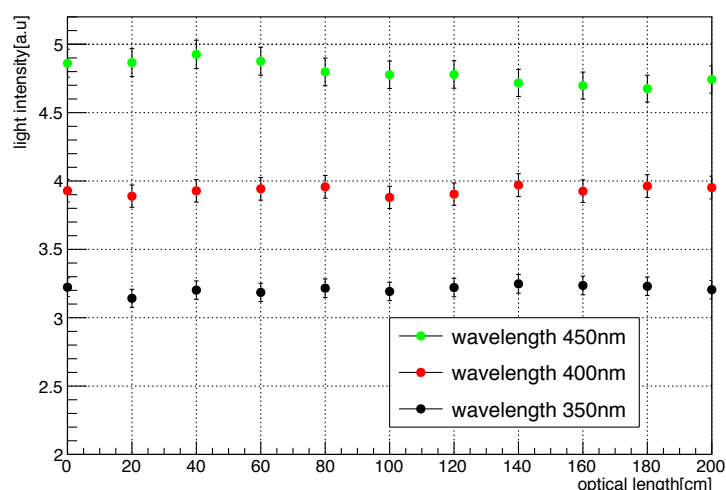


図 4.6: 空気中での光強度と透過距離の関係

各波長で光強度にばらつきが生じているのは、コーナーキューブの高さを变化させた際に光軸が多少ずれてしまい、修正を加えたことが原因だと考えられる。しかし、透過距離 0[cm] と 200[cm] の光強度は誤差の範囲で一致している。先行研究では原因不明の吸光によって波長 400nm では空気の減衰長が 24.5[m] と求められたが [31]、本実験では空気の減衰長が 2.3×10^8 [m] となり大幅な減衰が生じていない。空気中の減衰による影響が試料の減衰長に影響するか確認するために、2つの関数

$$I = A \exp\left(-\frac{x}{L}\right) \quad (4.8)$$

$$I = A \exp\left(-\left(\frac{x}{L} + \frac{x}{\lambda}\right)\right) \quad (4.9)$$

でフィッティングを行った。ここで I は光強度、 x は透過距離、 λ は空気の減衰長、 L は減衰長、 A はフィッティングパラメータである。空気の減衰長 $\lambda = 2.3 \times 10^8$ [m] を用いて後述する KamLAND-LS の減衰長を式 (4.8), (4.9) でフィッティングしたところ、どちらも波長 400nm では 11.9 ± 0.8 [m] と得られたので空気による減衰の効果は無視することができる。

● 測定結果

KamLAND-LS の減衰長を測定することで、先行研究の結果と矛盾せず測定が行えているかを確認した。アクリル窓による二次以上の反射光によって透過距離 0[cm] で光強度が増大するため、本実験では透過距離 0[cm] はフィッティングの範囲に含めずに減衰長 L を求めた。図 (4.7) に測定した光強度と透過距離のデータをもとに算出した KamLAND-LS の減衰長を示す。

測定の結果、KamLAND-LS の波長 400nm での減衰長は 11.9 ± 0.8 [m] と求められ、先行研究の測定結果 13.3 ± 0.2 [m] と同等程度であることから [31]、本測定の妥当性を確認できた。第5章では様々な試料の減衰長を測定することで KamLAND 検出器における集光量の見積もりを行った。

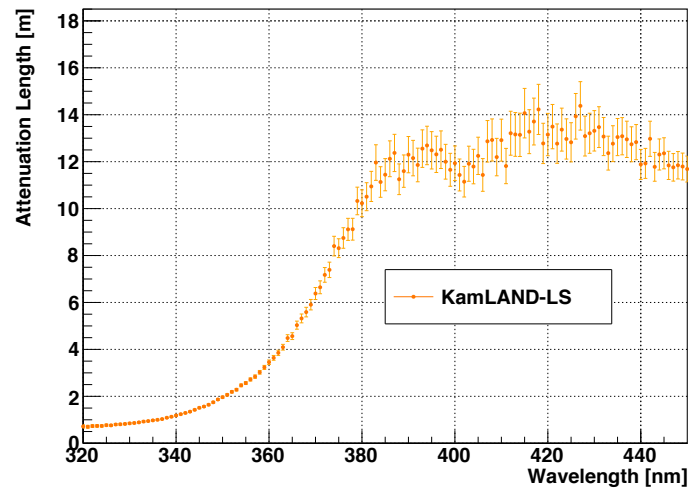


図 4.7: KamLAND-LS の減衰長

- 6.5m 透過率の算出

測定した減衰長 L を 6.5m 透過率に換算するには式 (4.7) で $x = 6.5$ を代入した

$$T_{6.5m} = \exp\left(-\frac{6.5}{L}\right) \quad (4.10)$$

を用いる。減衰長 L が ΔL だけ誤差を持つ場合、6.5m 透過率の誤差 $\Delta T_{6.5m}$ は

$$\Delta T_{6.5m} = \left| \frac{\partial T_{6.5m}}{\partial L} \right| \Delta L = \frac{6.5}{L^2} \exp\left(-\frac{6.5}{L}\right) \Delta L \quad (4.11)$$

で与えられる。減衰長 L が大きいほど 6.5m 透過率 $T_{6.5m}$ は小さくなる。パイプとコーナーキューブを用いた減衰長測定の結果もとに KamLAND-LS の 6.5m 透過率 $T_{6.5m}$ を算出したのが図 (4.8) である。

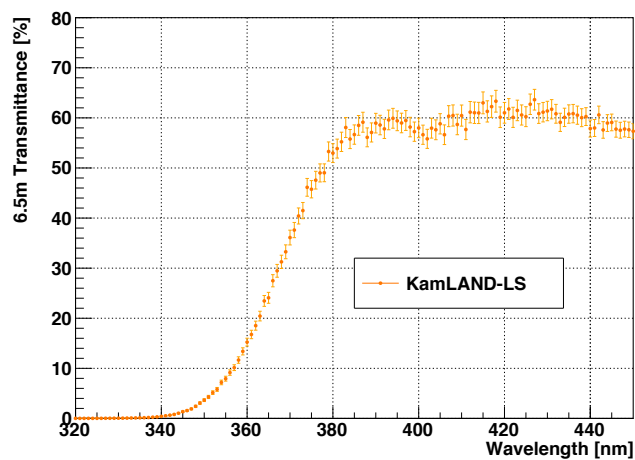


図 4.8: 減衰長から算出した KamLAND-LS の 6.5m 透過率

図(4.8)と9cm透過率 $T_{9\text{cm}}$ で算出した6.5m透過率 $T_{6.5\text{m}}$ (図4.3)を比較すると、波長400nmは75%から60%と低下した。これは式(4.5)で算出したことで本来の6.5m透過率 $T_{6.5\text{m}}$ よりも大きく算出されてしまい、正確に評価することができないことを意味している。また、その誤差は17%から2%まで低減することができ、長距離測定で取得した減衰長 L を用いることで $T_{6.5\text{m}}$ をより厳密に評価することができる。

4.1.3 液体シンチレータの発光量測定

KamLAND2-Zen 実験に向けた集光量の改善には液体シンチレータの発光量も重要なパラメータである。本小節では、放射線源を用いた液体シンチレータの発光量測定の方法について述べる。

● 測定原理

^{137}Cs 線源が崩壊時に放出する662keVの γ 線を用いて液体シンチレータの発光量を測定した。光電効果、コンプトン散乱、電子陽電子対生成の3種類が γ 線と物質との相互作用として挙げられる。物質の種類と γ 線のエネルギーで発生する相互作用が異なり、液体シンチレータの主な構成元素である炭素と ^{137}Cs から放出される662keVの γ 線との反応ではコンプトン散乱が支配的である。

コンプトン散乱は光子が物質内の電子との衝突時にエネルギーの一部を電子に与え、電子を反跳し、光子が散乱される現象である。反跳電子のエネルギー E_e はエネルギー保存則、運動量保存則を用いて

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos \theta)} \quad (4.12)$$

となる。電子の静止質量(0.511MeV)を $m_e c^2$ 、 γ 線のエネルギーを E_γ と置いた。 γ 線が後方に散乱される場合($\theta = 180^\circ$)、反跳電子のエネルギー E_e は

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2E_\gamma}{m_e c^2}} \quad (4.13)$$

より最大値447keVとなり、後方散乱された γ 線のエネルギーは185keVとなる。本研究では、447keVの反跳電子による液体シンチレータの発光と185keVの γ 線によるNaI(Tl)シンチレータの発光を同時遅延計測することで、後方散乱以外のイベントを除去して測定を行った。

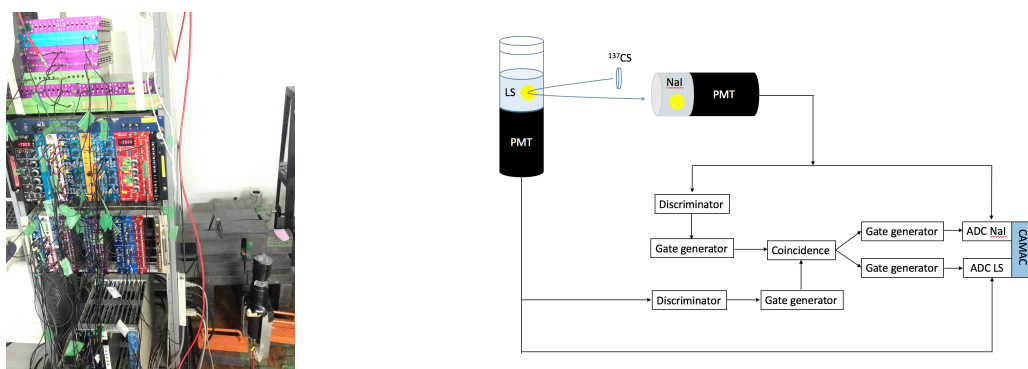


図 4.9: 発光量測定装置 (左図) とその概念図 (右図)

- 測定方法

液体シンチレータ中に溶存する酸素が液体シンチレータ溶媒分子の励起状態を失活させることで、消光効果を引き起こす。特に酸素による消光効果を酸素クエンチングと呼ぶ。本実験では、酸素クエンチングを除去するために液体シンチレータの窒素置換を行ったサンプルを発光量測定に用いた。

1. 液体シンチレータ溶媒 100ml に PPO を適量混ぜる。(KamLAND-LS:1.36g/L, LAB:2.0g/L)
2. 酸素濃度 1%以下のグローブボックス内にて流量 550ml/min で窒素置換を 3 分間行う。
3. パイアルの底面、側面を洗浄し、測定装置に設置する。
4. LS 側の PMT には 1800V、NaI 側の PMT には 750V の高電圧を印加し、2 時間測定する。

- 測定結果

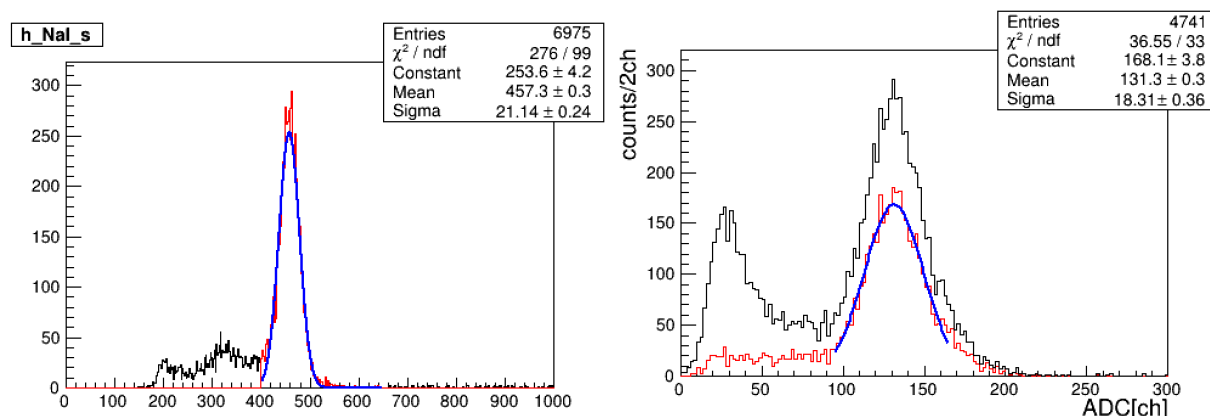


図 4.10: KamLAND-LS の発光量測定で得られた電荷分布図。左図は NaI 側の PMT で得られた電荷分布、右図は LS 側の PMT で得られた電荷分布図。右図の赤線ヒストグラムは NaI 側の電荷分布を用いてセレクションされた 447keV の反跳電子による発光イベントである。

図 (4.10) は KamLAND-LS の発光量測定によって得られた電荷分布図である。ADC(Analog to Digital Converter) を用いて PMT からの出力電荷量をデジタル・チャンネル数 (ADC 値) に変換している。NaI 側の PMT で得られた電荷分布 (左図) のうちガウス関数で fitting したスペクトルは 185keV の γ 線によるイベントを表している。LS 側の PMT で得られた電荷分布 (右図) のうち、黒線は全事象の分布を、赤線は NaI 側で選択した 185keV の γ 線によるイベントを用いて、447keV の反跳電子によるイベントをセレクションした分布を表している。赤線の電荷分布をガウス関数で fitting して得られたスペクトルの中央値 (Mean) を発光量とし、この中央値を比較することで様々な液体シンチレータの発光量を評価した。先行研究では、発光量測定の系統誤差は 1.6% と見積もられている [30]。表 (4.1) は KamLAND-LS と後述する KamLAND2-Zen 実験で使用予定の新液体シンチレータ溶媒の発光量測定の結果である。

液体シンチレータ	ADC 値	相対発光量
KamLAND-LS	133.8 ± 2.2	1.000
LAB-LS(未純化)	140.5 ± 2.2	1.050 ± 0.024

表 4.1: KamLAND-LS と LAB-LS(未純化) の発光量測定の結果

4.1.4 KamLAND 検出器における集光量の見積もり

KamLAND 検出器における集光量の見積もりは、透過率の改善と発光量の改善を掛け合わせた数値で評価をした。透過率による集光量への影響は、

$$Y(\lambda) = \epsilon_{PPO}(\lambda) \cdot Q_{PMT}(\lambda) \cdot T_{6.5m}(\lambda) \tag{4.14}$$

で与えられる。KamLAND 検出器における集光量を $Y(\lambda)$ 、PPO の発光スペクトルを $\epsilon_{PPO}(\lambda)$ 、PMT の量子効率を $Q_{PMT}(\lambda)$ 、液体シンチレータの 6.5m 透過率を $T_{6.5m}(\lambda)$ と置いた。

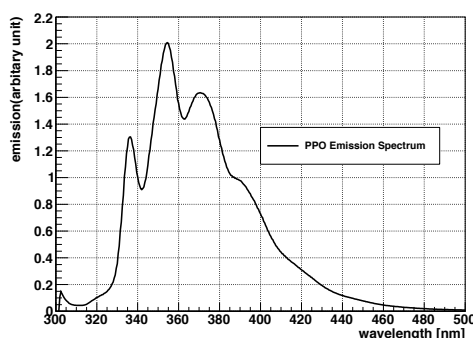


図 4.11: PPO の発光スペクトル

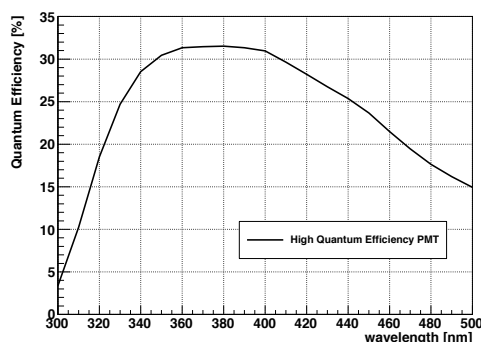


図 4.12: 改良型 PMT の量子効率

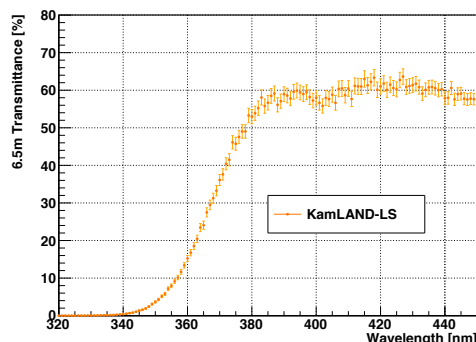


図 4.13: KamLAND-LS の 6.5m 透過率

図 (4.11) は PPO の発光スペクトル、図 (4.12) は PMT の量子効率、図 (4.13) は 6.5m 透過率、図 (4.14) は式 (4.14) で算出した KamLAND 検出器における透過率による集光量を表している。ここで、PPO の発光スペクトルにはシクロヘキサンに PPO を溶解させ、280nm の励起光で発光させたスペクトルを用いた。また、PMT の量子効率には KamLAND2-Zen 実験で使用予定の改良型高量子効率の PMT(浜松ホトニクス製 R12860) を用いた。

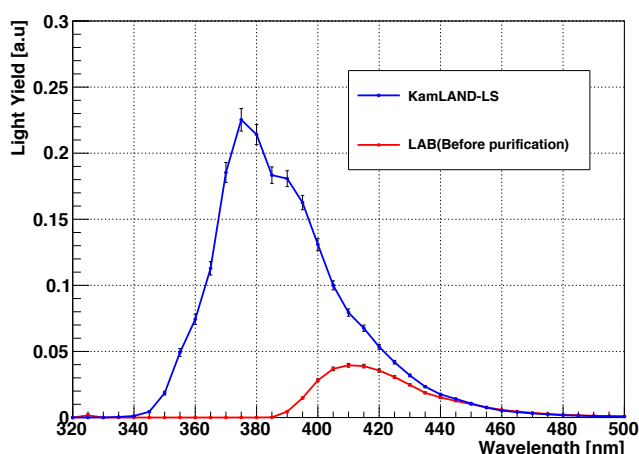


図 4.14: KamLAND-LS と純化前 LAB の透過率改善による集光量

図 (4.14) のスペクトルを各波長で積分した値が透過率による集光量となり、透過率による集光量と相対発光量を掛け合わせた数値が最終的な相対集光量となる。表 (4.2) に KamLAND-LS と LAB-LS(未純化) の KamLAND 検出器における相対集光量を示す。相対発光量は §4.1.3 で測定した数値を用いた。

液体シンチレータ	透過率による集光量	相対発光量	相対集光量
KamLAND-LS	1	1	1
LAB-LS(未純化)	0.169 ± 0.013	1.050 ± 0.024	0.18 ± 0.04

表 4.2: KamLAND-LS と LAB-LS(未純化) の相対集光量

本研究では各液体シンチレータの相対集光量を比較して、KamLAND2-Zen 実験の目標値に対してどの程度改善することが出来たかを評価した。

4.2 新液体シンチレータ溶媒の要求事項と候補

本節では、KamLAND2-Zen 実験で使用予定である新液体シンチレータ溶媒の紹介と 9cm 透過率測定によって判明した LAB の問題点について述べる。

KamLAND2-Zen 実験で用いる新液体シンチレータ溶媒には以下の性能が要求される。

1. 大発光量

エネルギー分解能の向上には集光量を改善する必要があり、集光量は発光量・透過率・PMT の量子効率の数値に影響される。その為、エネルギー分解能を向上させるには高い発光量が要求される。

2. 高透過率

シンチレーション光は液体シンチレータ中を伝搬する際に減衰するので、入射光が試料を通過する割合を示す透過率が集光量に影響する。その為、液体シンチレータ溶媒には高い透過率が要求される。

3. 低価格

KamLAND 検出器では約 1,000 トンの液体シンチレータを用いて実験を行う為、低価格でなければ大量生産は不可能である。

4. 高引火点

実験の安全や消防法での取り扱い上、引火点の高い液体シンチレータ溶媒がよい。

5. 化学的安定性

KamLAND2-Zen 実験では 5 年間の観測で目標感度到達を目指す為、化学的に安定な必要がある。またバルーンへの影響も考慮する必要があり、化学的な非侵食性も要求される。

以上の要求を満たし、液体シンチレータ実験で世界的に広く使用されている溶媒として直鎖型アルキルベンゼン (Linear Alkyl-Benzene : LAB) が挙げられる。先行研究では LAB を最有力候補として研究が行われた。LAB は直鎖アルキル基 (C_nH_{2n+1}) がベンゼン環に結合した構造を持つ有機溶媒であり、一般的に LAB のアルキル基の長さは $n=10 \sim 16$ 程度である。他実験では LAB が高発光量、高透過率であることが報告されており [32–34]、価格も 150 円/L 程度と十分安価である。また引火点は 150~200 程度と高く、化学的に安定で侵食性も低い。表 (4.3) に LAB, N12, PC の物性を示す。

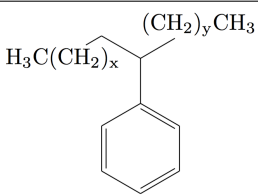
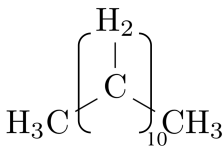
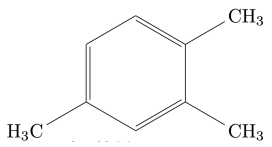
	リニアアルキルベンゼン (LAB)	ドデカン (N12)	プソイドクメン (PC)
化学式	C_mH_{2m-6}	$C_{12}H_{26}$	C_9H_{12}
化学構造式			
密度 (常温常圧)	0.86 g/cm ³	0.75 g/cm ³	0.88 g/cm ³
引火点	~ 150	74	44
発光波長	283nm	発光しない	290nm

表 4.3: LAB, N12, PC の物性 [35–38]

先行研究では JX 日鉱日石エネルギー社製の LAB(ロット番号 PC5G7 : 2015 年 8 月納品) を用いて新液体シンチレータ開発を行った。図 (4.15) は納品された LAB の 9cm 透過率を測定した結果である。

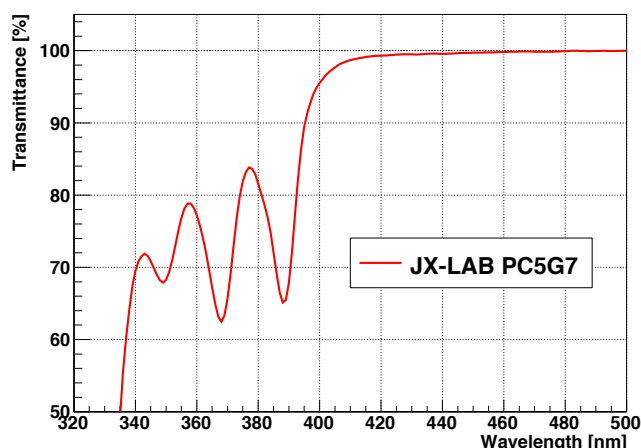


図 4.15: LAB(ロット番号 PC5G7) の 9cm 透過率

工業的に生産された LAB には製造上の有機不純物が含まれる可能性があり、348,368,388nm の吸光ピークはその有機不純物が原因だと考えられる。先行研究ではこの有機不純物を取り除き、透過率・発光量を向上させる研究が行われた。

4.3 先行研究による成果

本節では、先行研究で新たに開発したモレキュラーシーブを用いた吸着純化と 388nm に吸光ピークを作る不純物の選定について述べる [29]。

4.3.1 モレキュラーシーブによる吸着純化

- 既存の装置による純化

現在の KamLAND 検出器には濾過法、純水を用いた液液抽出法、蒸留法による純化設備が存在する。先行研究では既存の純化方法で LAB 中に含まれる不純物を除去できるか試みた。

まずは濾過法を行った。濾過法の特徴は純化速度が速く、液体シンチレータの組成を変化させずに不純物を除去できることである。しかし、フィルターの濾過精度 (粒子保留径) よりも小さな粒子は除去できない。KamLAND 検出器では濾過精度 50nm のテフロン材フィルターを用いており、それと同等の性能を持つ濾過精度 50nm の PTFE フィルターを用いて LAB の濾過を行った。図 (4.16) に濾過前後の LAB の 9cm 透過率を示す。測定の結果、濾過前後で透過率の変化は見られず、波長 348nm,368nm,388nm に吸光波長を持つ不純物の分子径は 50nm より小さいと考えられる。

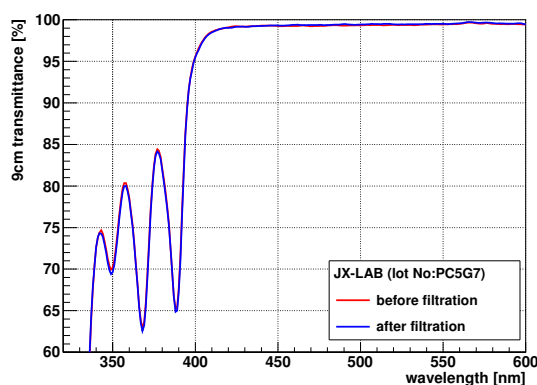


図 4.16: 濾過を行う前後の LAB の 9cm 透過率

次に純水を用いた液液抽出法を行った。液液抽出は液体シンチレータに純水を混合させることで親水性を持つ不純物が純水に溶け出す。液体シンチレータは無極性有機溶剤なので純水とは2層に分かれ、液体シンチレータと純水を分離することで親水性を持つ不純物を除去することができる。分離した液体シンチレータには微量の水分が含まれるので、窒素ガスにて残存水分を吹き飛ばす必要がある。図(4.17)に液液抽出、窒素置換前後の LAB の 9cm 透過率を示す。測定の結果、純化前後での透過率に変化は見られず、波長 348nm, 368nm, 388nm に吸光波長を持つ不純物は親水性を持たないと考えられる。

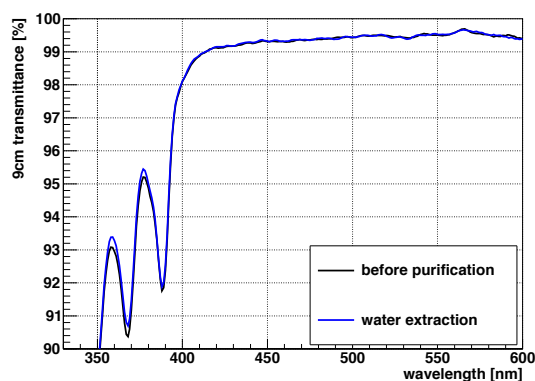


図 4.17: 窒素置換を行う前後の LAB の 9cm 透過率

最後に蒸留法を行った。蒸留は溶液を蒸発、凝縮させることで沸点の異なる成分を分離することができる。KamLAND では真空状態にすることで物質の沸点を下げ、常圧よりも低温で蒸留を行っている。図(4.18)に蒸留前後の LAB の 9cm 透過率を示す。赤線は蒸留した LAB の低沸点成分を、青線は蒸留した LAB の高沸点成分を表している。低沸点成分では吸光ピークが確認できないまで純化できているのに対し、高沸点成分では 388nm に吸光ピークが確認できる。蒸留によってある程度純化することに成功したが、幾つかの問題点がある。1点目に、蒸留後の LAB は低沸点成分と高沸点成分を合わせても 20%程度しか回収することが出来なかった。これでは 1,000ton の純化済液体シンチレータを用意するには 5,000ton もの LAB が必要になり、現実的に不可能である。2点目に、KamLAND 実験の保有する蒸留装置では沸点の高い LAB を蒸留することができず (LAB : $\sim 150^{\circ}\text{C}$, N12 : 65.0°C , PC : 26.6°C (0.3kPa での沸点))、蒸留装置を大幅に改造す

る必要がある。そこで、先行研究ではモレキュラーシーブと呼ばれる吸着剤を用いた不純物の除去を試みた。

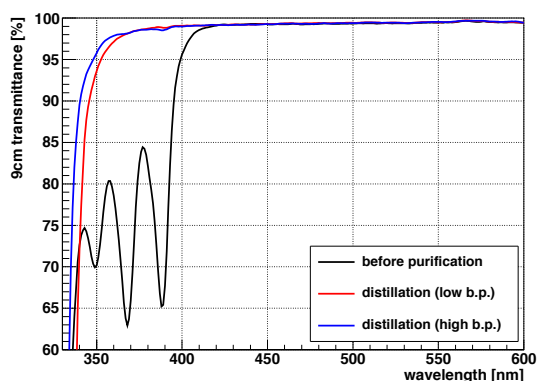


図 4.18: 蒸留を行う前後の LAB の 9cm 透過率

- モレキュラーシーブによる純化

先行研究では、溶媒の不純物除去や空気の乾燥などで広く利用されているモレキュラーシーブを用いた吸着純化を試みた。表 (4.4) にモレキュラーシーブの物性を示す。

吸着剤	モレキュラーシーブ
組成式	$M_x(AlO_2)_y(SiO_2)_z \cdot H_2O$
細孔径	0.3 ~ 1.0nm
液体への親和性	親水性
吸着質の選択性	極性分子
高温での使用	比較的高い吸着能力
備考	金属陽イオン M の種類で細孔が異なり、極めて均一な細孔を持つので決まった不純物を選択的に吸着可能。

表 4.4: モレキュラーシーブの物性

波長 388nm に吸光ピークを持つ不純物が 0.65nm 程度の分子径を持つと §4.3.2 で推定した為、金属陽イオン M が Na、細孔径が 1.0nm のモレキュラーシーブ 13X 1/8(ユニオン昭和社製、寸法:3.2mmφ) を使用した。100ml の LAB にモレキュラーシーブ 13X 1/8 を 65.9g 混ぜ、1 日以上攪拌しながら純化を行った(静置純化)。その後、ADVANTEC 社製の濾紙 5 種 C(保留粒子径 1μ) を用いて LAB と吸着剤を分離した。上記純化サイクルを 2 回行って不純物を除去した LAB について性能評価を行った。図 (4.19) はモレキュラーシーブで 2 回純化した LAB と KamLAND-LS 溶媒の 9cm 透過率を比較したものである。また、図 (4.20) は純化前 LAB と純化後 LAB、KamLAND-LS 溶媒の減衰長測定の結果を式 (4.10)、(4.14) を用いて KamLAND 検出器における透過率による集光量を算出したものである。

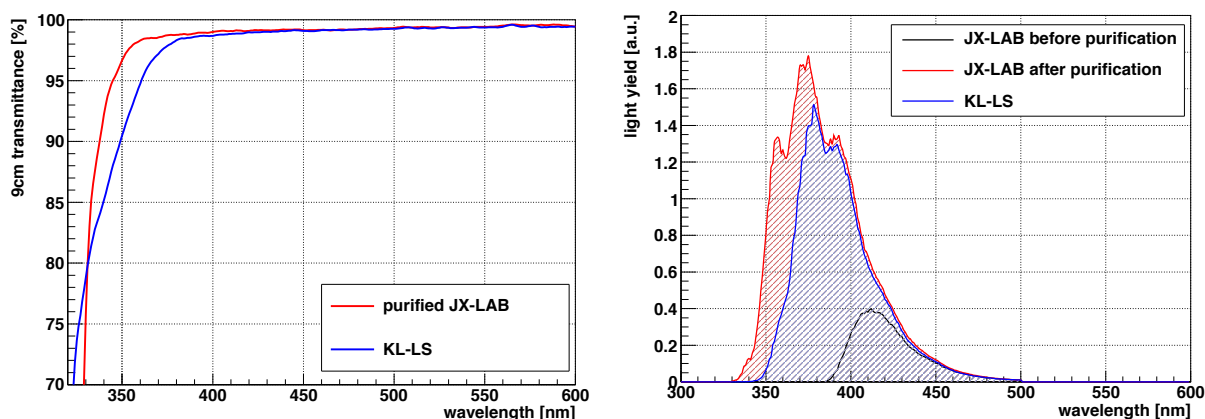


図 4.19: モレキュラーシープで2回静置純化した JX-LAB と KamLAND-LS 溶媒の 9cm 透過率
 図 4.20: 減衰長測定の結果から算出した KamLAND 検出器における集光量

図 (4.19) から、モレキュラーシープで2回純化することで問題となっていた吸光ピークを作る不純物を完全に除去することに成功し、KamLAND-LS 溶媒の 9cm 透過率を上回る結果となった。更に、減衰長測定の結果から KamLAND 検出器における集光量を算出すると、KamLAND-LS に比べて 1.38 倍程度上回る結果となった。この数値は透過率による改善だけを考慮したものであり、発光量の改善による集光量の向上も含めたものが最終的な KamLAND 検出器における集光量となる。各液体シンチレータ溶媒の発光量測定の結果を含めた KamLAND 検出器における集光量を表 (4.5) に示す。

液体シンチレータ溶媒	透過率改善による集光量	相対発光量	相対集光量
KamLAND-LS	1	1	1
LAB-LS(未純化)	0.237 ± 0.012	1.053 ± 0.013	0.25 ± 0.013
LAB-LS(モレキュラーシープ純化)	1.38 ± 0.07	1.102 ± 0.013	1.52 ± 0.07

表 4.5: KamLAND 検出器における各液体シンチレータの相対集光量比較

最終的な相対集光量を比較すると、モレキュラーシープで2回純化した LAB-LS は KamLAND-LS の 1.52 ± 0.07 倍にまで改善され、KamLAND2-Zen 実験での目標値 1.4 倍を大きく上回る結果となった。先行研究の成果により KamLAND2-Zen 実験が現実可能に思われたが、モレキュラーシープでの純化には大きな問題点が存在する。

100ml の LAB を 1 回純化するのに使用するモレキュラーシープの質量は 65.9g であり、純化液の収率は約 50% である。2 回目の純化では 50ml の LAB を純化するのにモレキュラーシープは約 32.95g、得られる純化液は 25ml 程度である。つまり純化された LAB を 100ml 得るには、約 400ml の LAB と約 400g のモレキュラーシープが必要になる。KamLAND 検出器では 1000ton の純化済 LAB が必要になり、その為には約 4,000ton の LAB と約 4,700ton のモレキュラーシープが必要だと見積もれる。純化方法を静置純化ではなく、より効率良く純化することができるカラムプロセス純化にすることで必要量をある程度低減させたり、加熱再生によるモレキュラーシープの再利用なども考えられるが、それでもモレキュラーシープを用いて 1,000ton の LAB を純化すること

は困難である。そこで、本研究ではモレキュラーシーブの代わりに活性炭を用いることで集光量だけでなく、コスト面の課題も解決することを目指した。第5章では活性炭を用いた吸着純化について述べる。

4.3.2 有機不純物の選定

先行研究では KamLAND 実験における関心波長領域の付近である 388nm に吸光ピークを持つ物質の特定を行った。下記の理由から、様々な不純物候補の中からオルトニトロアニリン (o-nitroaniline) だと推定した。表 (4.6) にオルトニトロアニリンの物性を、図 (4.21) に純化後 LAB にオルトニトロアニリンを溶解させた液の 9cm 透過率を示す。

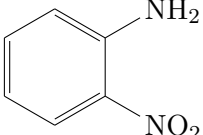
オルトニトロアニリン	
化学構造式	
分子式	$C_6H_4NO_2NH_2$
常温形体	赤黄色結晶 (固体)
溶解性	水に不溶性、有機物に可溶性

表 4.6: オルトニトロアニリンの物性

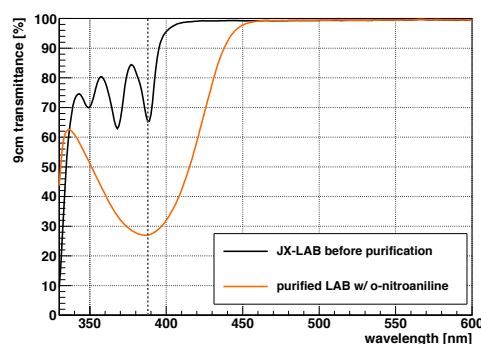


図 4.21: 純化後 LAB にオルトニトロアニリンを 1mg/L 溶解させた 9cm 透過率の結果

1. 吸光波長

数種類の不純物候補の中でも、理論計算により算出された LAB 溶媒中でのオルトニトロアニリンの吸収波長は 393nm である。これは現在問題になっている 388nm に非常に近い。

2. 分子径

先行研究で使用したモレキュラーシーブ 13X は 1nm の微細孔を持つ。物理吸着では吸着剤の微細孔よりも吸着質の分子径の方が小さく、更に微細孔と分子径が同じであるほど強い吸着力を示す。オルトニトロアニリンの分子径は約 0.65nm であり、モレキュラーシーブにより効率良く除去出来たと考えられる。

3. 液体に対する親和性

純水を用いた液液抽出は液体シンチレータ中に含まれる親水性を持つ不純物を取り除くことができる。先行研究では液液抽出による純化では吸光ピークを作る不純物を取り除くことができなかった。この結果は、オルトニトロアニリンが水にほとんど不溶で有機物に可溶という物性と一致している。

4. 官能基の極性

モレキュラーシーブの表面は極性を持つため、極性分子をを分離・吸着することができる。

オルトニトロアニリンは極性分子であるニトロ基-NO₂を持つため、モレキュラーシーブによって除去できたと考えられる。

5. 常温での物質状態

液体シンチレータに窒素置換を行うと、窒素の分圧上昇により揮発性の物質を追い出すことができる。先行研究では窒素置換で除去出来なかったことから、常温で安定な固体だと推測できる。オルトニトロアニリンはこの物性と一致している。

6. 沸点

先行研究では真空蒸留による除去を試みたが、完全には除去することが出来なかった。これはオルトニトロアニリンの減圧下での蒸気圧が 104.6°C(0.1kPa)、135.7°C(0.7kPa)、150.4°C(1.3kPa) であり、LAB の沸点が ~140°C(0.3kPa) と非常に近いこと原因だと考えられる。

先行研究では上記の理由により、388nm 付近に吸光ピークを持つ不純物がオルトニトロアニリンだと推定した。

第5章 活性炭を用いた新液体シンチレータ溶媒の吸着純化

第5章では活性炭を用いたLAB中に含まれる不純物の吸着純化について述べる。§5.1では静置法での純化について、§5.2ではカラム法での純化について、§5.3ではKamLAND検出器で使用する為のカラム形状の見積もりについて述べる。

5.1 静置法による吸着純化

- 吸着純化

吸着とは固-気相、固-液相など様々な組合せの系における界面現象であり、吸着する物質を吸着剤、吸着される物質を吸着質という。吸着はファンデルワールス力 (Van der Waals) などによる物理吸着と共有結合などの化学的相互作用による化学吸着に分けられる。物理吸着は非選択的に物質を吸着するが、吸着速度が速く、真空引きなどで容易に吸着質を脱着できる。一方、化学吸着は選択的に物質を吸着するが、吸着速度が遅く、加熱で脱着可能な吸着剤もあるが脱着不可の場合もある。本研究では、活性炭を用いて物理吸着にて不純物の純化を試みた。

5.1.1 最適な活性炭の選定と純化パラメータの最適化

- 活性炭

活性炭は木材、ヤシ殻炭、石炭などの炭素物質を原料とし、薬品やガスと一緒に高温で反応させることで生成される。この過程を賦活と呼び、炭素内部に網目状の微細孔が作られることで吸着能力が飛躍的に向上する。薬品賦活では木材(おが屑、木材チップ等)と塩化亜鉛やリン酸などが用いられ、ガス賦活に比べて比較的大きな細孔が作られる。ガス賦活では炭化した原料(ヤシ殻や石炭等)と水蒸気や二酸化炭素が用いられ、活性炭製造の主流を占めている。活性炭にはその用途に応じて粉末状、粒状、破碎状など様々な形状が存在し、本研究では表(5.1)に示す7種類の活性炭を用いて不純物の吸着を行った。

まずは静置法による純化にて7種類の吸着能力を評価し、最適な形状の活性炭を選定した。以下に静置純化の方法を示す。

1. LAB:100ml(86g)に活性炭:8.6gを混ぜる。
2. 12時間毎に攪拌しながら、72時間純化する。
3. ADVANTEC社製の濾紙5種C(保留粒子径 $1\mu\text{m}$)を用いてLABと活性炭を分離する。

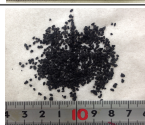
形状	サイズ	原料	賦活方法	外観
粉末状	20 μ m	ヤシ殻	ガス賦活	
	75 μ m	おが屑	薬品賦活	
	150 μ m	おが屑	薬品賦活	
破碎状	0.9 - 1.1mm	石炭	ガス賦活	
	1.2 - 1.4mm	石炭	ガス賦活	
	0.5 - 1.7mm	ヤシ殻	ガス賦活	
粒状	3.35 - 4.75mm	石炭・ヤシ殻	ガス賦活	

図 5.1: 7 種類の活性炭

静置純化させた LAB の 9cm 透過率を測定することで各活性炭の吸着能力を比較した。図 (5.2) に 9cm 透過率測定の結果を示す。

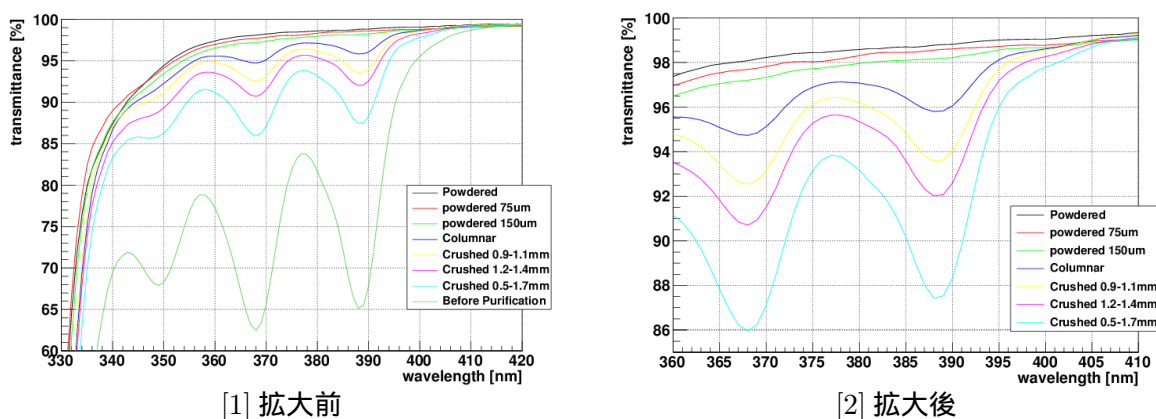


図 5.2: 7 種類の活性炭を用いて静置純化をした LAB の 9cm 透過率

測定の結果、粉末状の活性炭では吸光ピークが確認できなくなる程に不純物を除去することが出来た。これは破碎状と粒状に比べて、LAB と接触する表面積が非常に大きいことだと考えられる。特に、ヤシ殻を原料とする粉末状の活性炭が最も効果的であると分かり、以降本論文ではこの活性炭を用いて研究を行った。

- 吸着時間の最適化

物理吸着は化学吸着に比べると吸着速度は非常に速いが、純化時間が短いと不純物を十分に吸着できない可能性がある。そこで、活性炭が LAB 中の不純物を吸着するのに最適な純化時間を検証した。本実験では 150ml の LAB に 12.9g の活性炭を混ぜ、6 時間から 168 時間 (7 日間) まで純化時間を変化させて静置純化を行った。その後、9cm 透過率測定と発光量測定を用いて各溶媒を評価した。図 (5.3) に 9cm 透過率測定の結果を示す。また、図 (5.4) に波長 348, 368, 388nm における 9cm 透過率と純化時間の関係を示す。赤点は波長 388nm, 緑点は 368nm, 青点は 348nm を、各色の網掛けは最も透過率が高かった点での誤差範囲を表している。

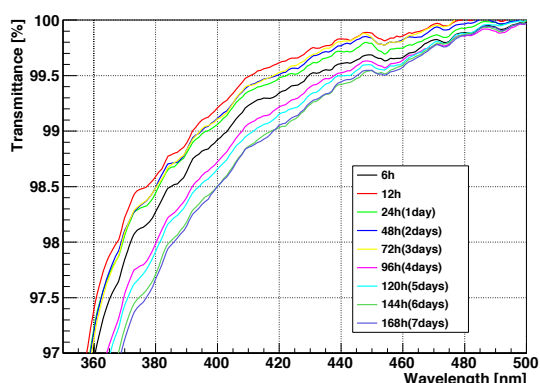


図 5.3: 純化時間を変化させて処理した LAB の 9cm 透過率

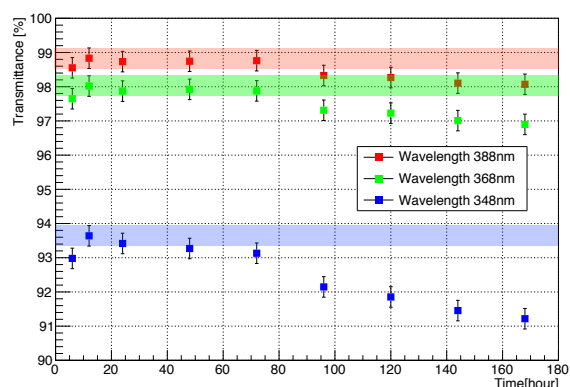


図 5.4: 純化時間を変化させて処理した LAB の波長 348,368,388nm における 9cm 透過率

図 (5.4) において、24~72 時間の透過率は誤差の範囲内ではあるが 12 時間吸着が最も透過率が高い。6 時間吸着の透過率が低いのは、純化時間が短った為に対象とする不純物を吸着し切れなかったと考えられる。また、純化時間が 72 時間を超えると徐々に透過率が低下することが分かった。図 (5.3) で比較すると全波長的に低下していることから、活性炭を生成する際に使用した薬品が LAB 中に溶解している可能性が考えられる。

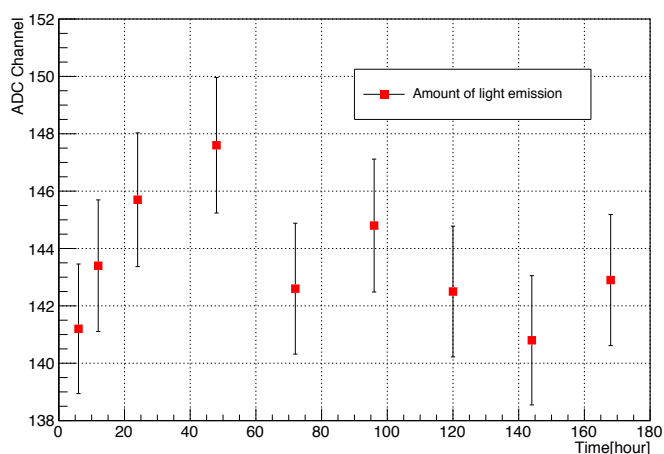


図 5.5: 純化時間と発光量の関係

図 (5.5) に発光量測定の結果を示す。時間経過と共に発光量が増加し、48 時間で最大の発光量となるが 72 時間以降は急激に発光量が低下する結果となった。短時間領域で時間と共に発光量が増加する原因は、348nm、368nm、388nm に吸光波長を持つ不純物が優先的に吸着され、透過率測定では確認できない 265nm~320nm に吸光波長を持つ不純物を短時間では吸着できなかったと考えられる。265nm~320nm に吸光波長を持つ不純物が残存している場合、LAB から放出される 1 次シンチレーション光が PPO ではなく不純物に吸収されてしまい、発光効率が低下する可能性が考えられる (図 5.6)。

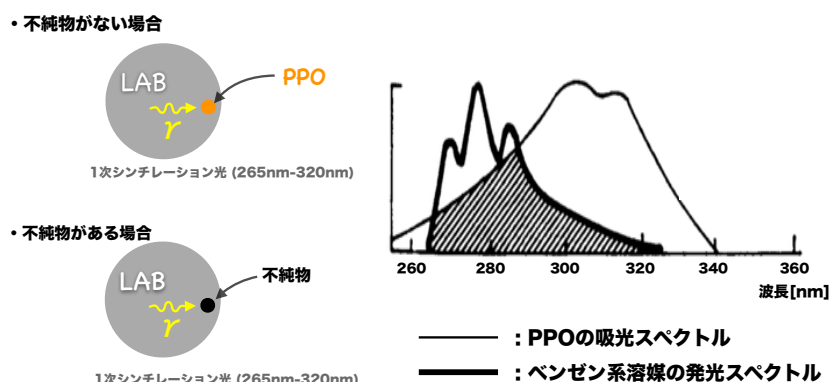


図 5.6: 265nm~320nm に吸光波長を持つ不純物が存在する場合の発光効率低下のイメージ図

72 時間以降での発光量低下は、透過率の低下タイミングと一致していることから活性炭由来の不純物が影響している可能性が考えられる。

最終的には KamLAND 検出器における集光量を比較することで最適な純化時間を決定した。表 (5.1) は 9cm 透過率測定の結果と発光量測定の結果から換算した KamLAND 検出器における相対集光量を表している。

液体シンチレータ	透過率改善	発光量改善	相対集光量
KamLAND-LS	1	1	1
LAB (6hours)	0.94 ±0.31	1.055 ±0.024	0.99 ±0.33
LAB (12hours)	1.18 ±0.38	1.072 ±0.025	1.27 ±0.41
LAB (24hours)	1.06 ±0.35	1.089 ±0.025	1.15 ±0.38
LAB (48hours)	1.15 ±0.37	1.103 ±0.025	1.27 ±0.41
LAB (72hours)	1.08 ±0.35	1.066 ±0.025	1.15 ±0.38
LAB (96hours)	0.79 ±0.26	1.082 ±0.025	0.86 ±0.28
LAB (120hours)	0.74 ±0.24	1.065 ±0.024	0.79 ±0.26
LAB (144hours)	0.66 ±0.22	1.052 ±0.024	0.69 ±0.23
LAB (168hours)	0.64 ±0.21	1.068 ±0.025	0.68 ±0.23

表 5.1: 純化時間を変化させた LAB-LS の相対集光量

純化時間が異なる液体シンチレータの相対集光量をそれぞれ比較すると、12 時間と 48 時間が特に有効だと分かる。12 時間純化は透過率の改善が大きく影響しており、48 時間は発光量の改善が大きく影響している。しかし、透過率による改善は 9cm 透過率を 6.5m 透過率に換算した際に生じる誤差により、比較する際に多少の差異が多大な差異となってしまう。そこで本研究では、透過率改善よりも発光量改善が大きく影響している 48 時間を最適な純化時間として選定した。

- 吸着剤量の最適化

一般的に物質が固体へ吸着される量は吸着等温線で表すことができ、現在では図 (5.7) のように

6種類に分類することができる。活性炭のような微細孔を持ち、外部表面積が内部表面積よりも極

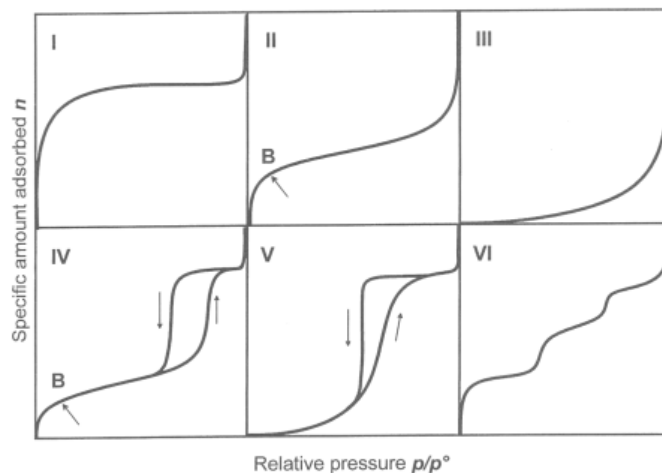


図 5.7: 吸着等温線の型 [39]

端に小さい物質ではモデルIのような吸着等温線が得られる。低圧部での急激な吸着は微細孔への吸着が起こり、その後は外部表面で吸着される。モデルIを表す式をラングミュアの吸着等温式と呼び、

$$W = \frac{KW_s C}{1 + KC} \quad (5.1)$$

である。ここで吸着量を W , 飽和吸着量を W_s , 濃度を C , 吸着平衡定数を K とした。希薄溶液では $C \sim 0$ として

$$W = KW_s C \equiv K_c C \quad (5.2)$$

となり、この式をヘンリーの吸着等温式、 K_c をヘンリー定数と呼ぶ。ここで、吸着剤量を M , 液体シンチレータの体積を V , 除去率を α , 純化前の不純物濃度を C_0 とおくと、吸着量 W と濃度 C は

$$W = \frac{VC_0\alpha}{M}, \quad C = (1 - \alpha)C_0 \quad (5.3)$$

で表されるので、式 (5.2) は

$$\alpha = 1 - \frac{1}{1 + K_c \frac{M}{V}} \quad (5.4)$$

で表せる。更に、除去率 R は 9cm 透過率 T_{9cm} を用いて

$$R = 1 - \frac{100 - T_{\text{purification}}}{100 - T_{\text{before}}} \quad (5.5)$$

で表せる。つまり、純化前後の透過率を測定して除去率を算出することで必要な吸着剤量 $\frac{M}{V}$ を見積もることができる。

最適化した 48 時間純化という条件のもと、LAB 中の不純物を効果的に除去する為に必要な活性炭量の最適化を試みた。100ml の LAB(86g) に対して、活性炭の量を 1/5(17.2g)、1/10(8.6g)、1/20(4.3g)、1/50(1.72g)、1/100(0.86g) と変化させ、その除去率を 9cm 透過率測定の結果を用い

て計算した。図(5.8)に測定で得られた9cm透過率(388nm)を用いて計算した除去率と吸着剤量の関係を示す。赤色点線は活性炭での純化で得られた除去率をフィッティングしたものを、青色点線はモレキュラーシーブでの純化で得られた除去率をフィッティングしたものを表している。

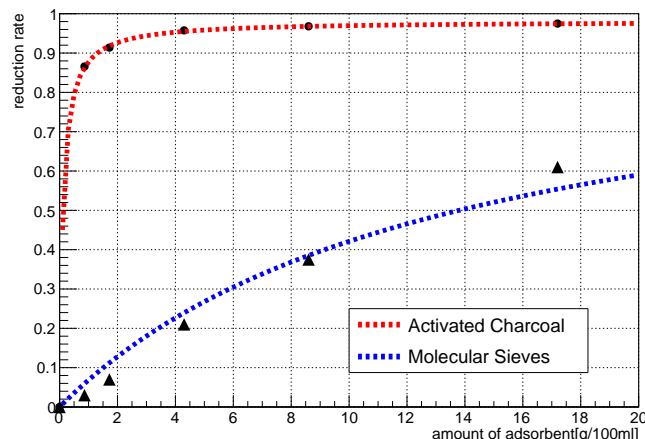


図 5.8: 388nm に吸光波長を持つ不純物の除去率と吸着剤量の関係

色点線はモレキュラーシーブでの純化で得られた除去率をフィッティングしたものを表している。フィッティング関数には式(5.4)より、 $R = a\left(1 - \frac{1}{1 + bM/V}\right)$ (a :飽和除去率)を採用した。実験で得られた飽和除去率 a とフィッティングで得られた b を用いて除去率 $R < 0.972$ (波長 388nm で透過率 99% 以上) の条件に必要な吸着剤量を算出すると、モレキュラーシーブでは $a = 0.9857, b = 0.0756 \pm 0.007$ を用いて

$$0.972 > R = a\left(1 - \frac{1}{1 + bM/V}\right)$$

$$M_{ms} \simeq 94.6 \text{ [g/100ml]} \tag{5.6}$$

活性炭では $a = 0.9811, b = 8.48 \pm 0.18$ を用いて

$$0.029 > R = a\left(1 - \frac{1}{1 + bM/V}\right)$$

$$M_{ac} \simeq 12.4 \text{ [g/100ml]} \tag{5.7}$$

と見積もられた。100ml の LAB を純化するのにモレキュラーシーブでは 94.6g が必要であるのに対して、活性炭では 12.4g と約 1/8 に抑えられることが分かった。活性炭とモレキュラーシーブでは 100g 当たりの価格は同等程度なので、必要なコストに関しても約 1/8 に抑えられる。また、見積もった吸着剤量を使用して純化した後に得られる LAB の収液率を表(5.2)に示す。

液体シンチレータ	必要な吸着剤量	純化後の収液率
モレキュラーシーブ	94.6 [g/100ml]	50%
活性炭	12.4[g/100ml]	85%

表 5.2: 各吸着剤を用いた純化で得られる収液率

収液率に関しても活性炭の方がモレキュラーシーブの約 1.7 倍優れることが分かった。これはモレキュラーシーブが LAB を大量に吸収してしまうためである。各吸着剤を用いて静置純化を 2 回行う場合、100ml の純化済 LAB を得るために必要な吸着剤量と LAB の量は、モレキュラーシーブでは吸着剤 : 140g , LAB : 400ml、活性炭では吸着剤 : 22.9g , LAB : 140ml と見積もれる。活性炭を用いて純化すると吸着剤で約 1/6 倍、事前に必要な LAB で約 1/3 倍コストを抑えることが可能である。KamLAND 検出器は 1,000ton もの純化済液体シンチレータが必要となるので、活性炭でのコスト低減は KamLAND2-Zen 実験の実現に対して非常に魅力的である。しかし、コスト面の改善だけでなく、集光量も KamLAND-LS に対して 1.4 倍程度の改善が必要である。そこで、§5.1.2 では最適化したパラメータで純化した LAB-LS の集光量をモレキュラーシーブや KamLAND-LS と比較することで評価した。

5.1.2 最適化したパラメータでの静置純化

§5.1.1 で最適化した活性炭の吸着パラメータで 2 回静置純化を行い、モレキュラーシーブを用いて純化した LAB や KamLAND-LS と比較した。各液体シンチレータ溶媒の 9cm 透過率測定の結果を図 (5.9) に示す。赤線はモレキュラーシーブで純化した LAB を、青線は活性炭で純化した LAB を、黒線は KamLAND-KS 溶媒であり、点線は 1 回静置純化をした LAB、実線は 2 回静置純化をした LAB を表している。また、各液体シンチレータの波長 400nm, 388nm での 9cm 透過率を表 (5.3) に示す。

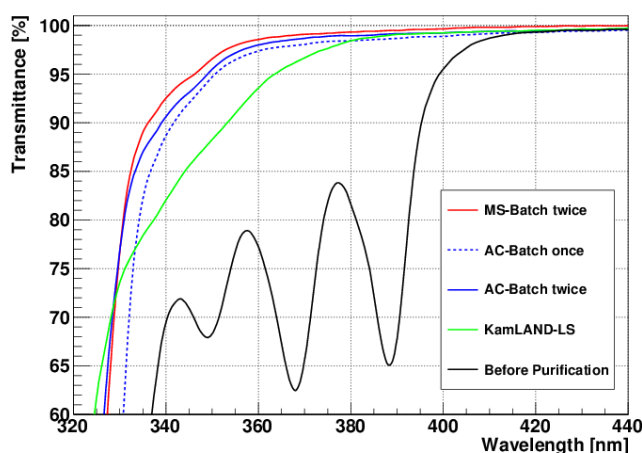


図 5.9: 各液体シンチレータ溶媒の 9cm 透過率

液体シンチレータ	9cm 透過率 [%]	
	波長 400nm	波長 388nm
LAB-LS(MS×2 回)	99.6 ± 0.3	99.5 ± 0.3
LAB-LS(AC×1 回)	98.9 ± 0.3	98.6 ± 0.3
LAB-LS(AC×2 回)	99.2 ± 0.3	99.1 ± 0.3
KamLAND-LS	99.2 ± 0.3	99.0 ± 0.3

表 5.3: 各液体シンチレータの波長 400nm, 388nm での 9cm 透過率

活性炭による1回純化と2回純化の透過率を比較すると2回純化の方が高いことから、1回目の純化では不純物を全て除去出来ていないと考えられる。先行研究で高い透過率が得られたモレキュラーシーブでの2回純化に対しては僅かに劣る結果となったが、KamLAND-LS に対しては波長 330nm~400nm と広い波長領域で優れており、透過率に関しては活性炭での純化が効果的であると分かった。

次に、最適パラメータで2回純化した LAB-LS の発光量を測定し、各液体シンチレータ溶媒と比較した。発光量測定の結果を表 (5.4) に示す。

液体シンチレータ	ADC-channel	相対発光量
KamLAND-LS	133.8 ± 2.2	1
LAB-LS(MS×2回)	148.0 ± 2.4	1.106 ± 0.026
LAB-LS(AC×1回)	146.4 ± 2.3	1.094 ± 0.025
LAB-LS(AC×2回)	145.1 ± 2.3	1.085 ± 0.025
LAB-LS(未純化)	140.5 ± 2.2	1.050 ± 0.024

表 5.4: 各液体シンチレータ溶媒の ADC Channel 値と相対集光量

測定の結果、活性炭による1回純化よりも2回純化の方が発光量は低下しており、上述の活性炭由来の成分が影響している可能性が考えられる。モレキュラーシーブを用いた純化液よりも劣る結果となったが、KamLAND-LS よりも 8.5% 程度優れる結果が得られた。純化前後で発光量が改善しているのは、PPO の発光 (発光波長の中央値 370nm) が不純物によって吸光される色クエンチングを低減できたと考えられる。9cm 透過率測定と発光量測定の結果、活性炭はモレキュラーシーブの代わりに吸着剤になり得ることが分かった。以下、特に記載がない限りはモレキュラーシーブで2回純化した LAB を LAB(MS)、活性炭で2回純化した LAB を LAB(AC-Batch) とする。

9cm 透過率の結果では相対集光量を精度良く評価することができないので、パイプとコーナーキューブを用いて減衰長の測定を行った。図 (5.10) に各液体シンチレータ溶媒の減衰長測定の結果を示す。赤色は LAB(MS)、緑色は LAB(AC-Batch)、青色は KamLAND-LS を表している。

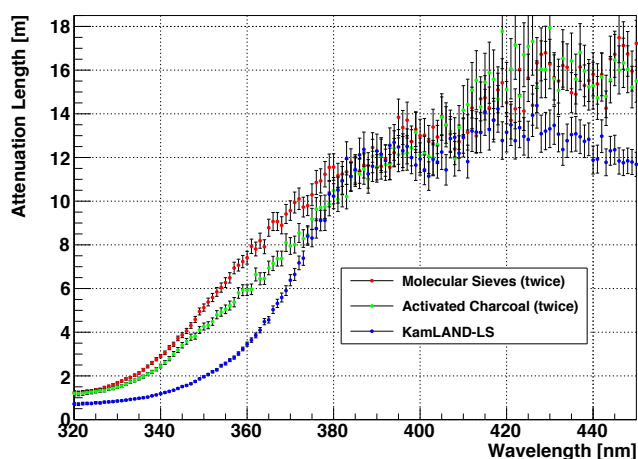


図 5.10: 各液体シンチレータ溶媒の減衰長

波長 400nm で各液体シンチレータ溶媒の減衰長を比較すると、LAB(MS) は 13.0 ± 0.8 [m]、LAB(AC-Batch) は 12.1 ± 0.8 [m]、KamLAND-LS は 11.9 ± 0.8 [m] となった。先行研究では波長 400nm におけるモレキュラシープでの純化 LAB の減衰長は 10.4 ± 0.4 [m] と 2.6m 程度短い、KamLAND-LS との差は 1.1m 程度と本研究の結果と一致している [29]。また、380nm 以下の低波長領域では 9cm 透過率の結果と矛盾しておらず、測定結果は妥当だと考えられる。減衰長測定の結果から式 (4.10),(4.11) を用いて算出した 6.5m 透過率の結果を図 (5.11) に示す。

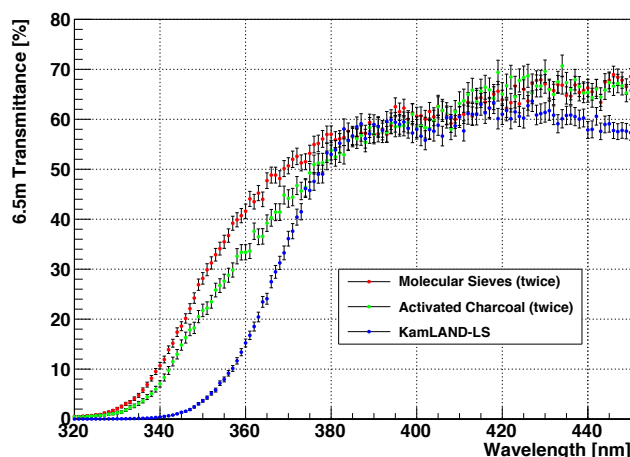


図 5.11: 減衰長測定の結果から算出した各液体シンチレータ溶媒の 6.5m 透過率

図 (5.11) で求めた 6.5m 透過率と式 (4.14) を用いて算出した KamLAND 検出器における透過率による相対集光量を図 (5.12) に示す。各液体シンチレータの集光量を比較すると、波長 ~ 380 nm での 6.5m 透過率の差が相対集光量に顕著に表れており、LAB(MS)、LAB(AC-Batch)、KamLAND-LS の順に大きなスペクトルが得られた。このスペクトルの積分値が透過率による相対集光量となる。表 (5.5) に各液体シンチレータ溶媒の透過率による相対集光量、相対発光量、最終的な相対集光量を示す。

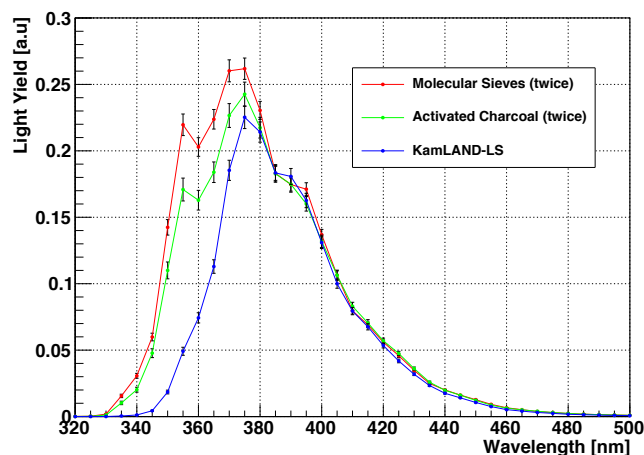


図 5.12: 各液体シンチレータ溶媒の透過率による集光量

先行研究では LAB(MS) の透過率、発光量、最終的な相対集光量は 1.38 ± 0.07 、 1.102 ± 0.013 、

1.52±0.07 であり、本研究の測定結果と一致している [29]。LAB(AC-Batch) の最終的な相対集光量は 1.38±0.08 と KamLAND2-Zen の目標値 1.4 倍に非常に近い結果を得られた。

液体シンチレータ	透過率改善	発光量改善	相対集光量
KamLAND-LS	1	1	1
LAB-LS(MS×2回)	1.40 ± 0.07	1.106 ± 0.026	1.55 ± 0.09
LAB-LS(AC×2回)	1.27 ± 0.07	1.085 ± 0.025	1.38 ± 0.08

表 5.5: 各液体シンチレータ溶媒の相対集光量

集光量では LAB(MS) に及ばないものの、コスト面では LAB(MS) の約 1/6 倍に、集光量では KamLAND-LS の約 1.38 倍に改善される。しかし、静置純化法で 1,000ton もの純化 LAB を得ることは時間、労力を考慮すると非現実的である。そこで §1.2 では静置純化法よりも効率的に純化することができるカラム法での LAB 純化を試した。

5.2 カラム法による吸着純化

§5.1 では粉末状の活性炭が吸着剤の有力候補であったモレキュラーシーブの代わりに十分なり得ることを述べた。本節では、1,000ton スケールの液量を効率的に純化する方法であるカラム法での吸着純化について述べる。

5.2.1 純化パラメータの最適化

- カラム法

§5.1 で行った静置法は吸着剤の選定などのスクリーニングに適しているが、大量の液を処理するには必要以上に吸着剤量や吸着時間が掛かるため適していない。工業分野では一般的に、静置法に比べて純化に要する時間や吸着剤量を抑えることができるカラム法を用いて大量の液を処理している。カラム法とは吸着剤を充填したカラムに液を連続的に流す方法であり、活性炭を使用した吸着装置には固定層、移動層式、多段流動層式などがある。固定層式は最も多く使用されており、カラム内に充填してある活性炭が吸着飽和に達すると、カラム内の活性炭を全て新炭または再生炭に取り替える方法である。吸着層高が低いときは活性炭の利用効率が低下する為、活性炭層を長くする必要がある。移動層式は、カラム塔の上部から新炭を間欠に投入し、下部から劣化炭を引き抜く方法である。多段流動層は、カラム塔内が多孔板などで仕切られており、上部から投入された活性炭は各仕切板を通して徐々にカラム塔を落下することで劣化炭と新炭を交換する方法である。新炭の供給と劣化炭の排出を連続的に行うので、活性炭の利用効率は高い。本研究では、装置構造が比較的簡単な固定層式カラム法を用いて純化を行った。

- 固定層式 純化装置

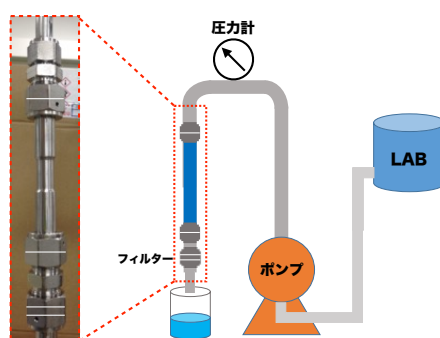


図 5.13: 固定層式 純化装置の模式図

本実験で使用したカラム法による純化装置を図(5.13)に示す。送液ポンプ(株式会社タクミナ社, 最大吐出圧力:2.0[MPa])を用いて活性炭が充填されているカラム(長さ:10cm, 内径:1.0cm ϕ)に液を送り、圧力を掛けながら活性炭での処理を行った。粒子保留系 $1\mu\text{m}$ のステンレス製フィルターをカラム上部に1つ、カラム下部に3つ設置することで、高圧時に活性炭がフィルターを通り抜けて液に混入することを防いだ。

- 吸着飽和に達する液量

静置法で最適な吸着剤量を $12.4[\text{g}/100\text{ml}]$ と見積もったのと同様に、カラム法でも吸着剤量を最適化する必要がある。固定層式では一般的に、吸着層高が低い場合には活性炭の利用効率が低下するため、本実験では吸着剤量はカラム10cm分の 3.25g で固定し、活性炭 3.25g で純化できる液量を見積もった。流量 $2.0[\text{ml}/\text{min}]$ で液をカラム内に送り込み、活性炭層とフィルターを通過した液を50mlの間隔で連続的に800mlまで採取した。採取したLABの9cm透過率と純化処理量の関係を図(5.14)に示す。赤点は波長388nm, 緑点は368nm, 青点は348nmを表している。

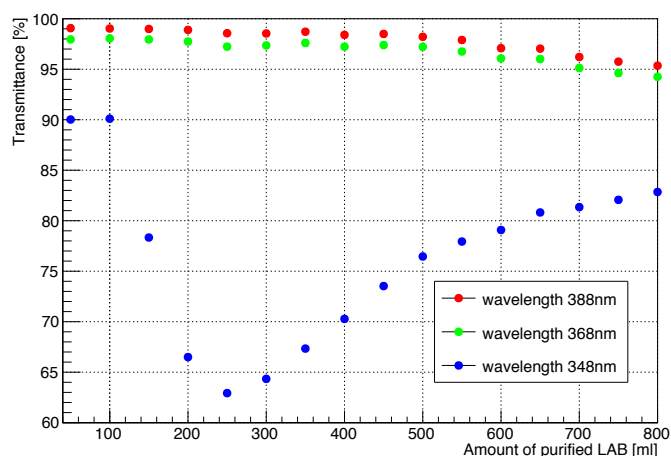


図 5.14: 50ml 間隔で採取した LAB の 9cm 透過率と純化処理量

波長368nm,388nmの9cm透過率は緩やかに低下しているが、波長348nmでは100ml~250mlの間に急激な低下が確認でき、この間に吸着飽和が生じていると考えられる。活性炭のような物

理吸着では飽和状態は吸着が停止するのではなく、吸着質が吸着剤から離れる脱着と不純物の吸着を繰り返す平衡状態である。その為、波長 368nm, 388nm で急激な透過率の低下が見られないのは、不純物_{348nm} が脱着されて不純物_{368nm, 388nm} が吸着されたと考えられる。実際に、純化前 LAB の波長 348nm での 9cm 透過率は 68.3 ± 0.3 [%] であるのに対し、200ml~350ml の 9cm 透過率はこれを下回る数値となっており、不純物_{348nm} が脱着されていると説明できる。また、不純物_{348nm} よりも不純物_{368, 388nm} の方が活性炭の細孔サイズに近く、優先的に吸着されると推測できる。100ml 前後で吸着平衡状態が生じていると考えられるので、カラム 10cm 分の 3.25g で 50ml の LAB を純化処理する事が可能だとし、これ以降はこの操作で純化液を採取した。

● 流量の最適化

次に、静置法での吸着時間に対応する処理流速の最適化を行った。流速が遅ければ高い透過率と発光量が期待できるが純化処理には時間が掛かる為、大きい流速かつ透過率と発光量が高くなることが望ましい。カラム 10cm 分の活性炭 3.25g で 50ml 採取という条件のもと、処理流速を $0.13 \sim 6.4$ [cm/min] (流量 $0.1 \sim 5.0$ [ml/min] に相当) で変化させて純化し、9cm 透過率測定と発光量測定を用いて各純化液を評価した。図 (5.15) に流速を変化させて処理した LAB の 9cm 透過率測定の結果を示す。赤点は波長 388nm, 緑点は 368nm, 青点は 348nm を表している。また、実際に 1,000ton を純化するオペレーションを考慮すると、流量 1.0 [m^3/h] 以上の処理速度が必要となる。更に、使用するカラムは直径 1.0 [m] 以下のものが一般的に使用されており、この 2 つの条件で算出した流速の範囲を示したのが灰色の網掛けとなっている。

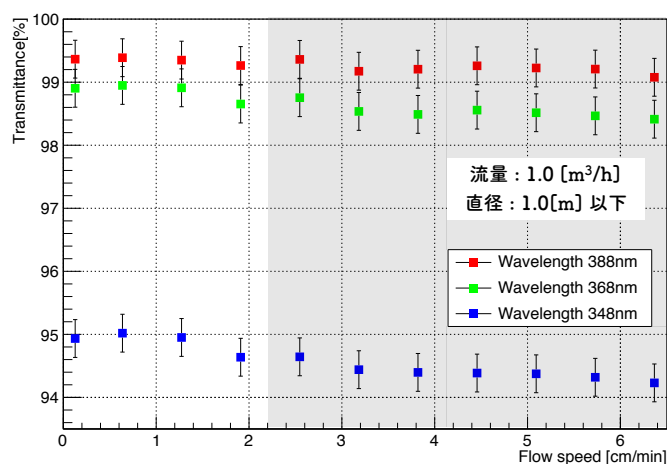


図 5.15: 処理流速を変化させた LAB の 9cm 透過率

測定の結果、波長 348, 368, 388nm における透過率は 3 つとも緩やかな低下が見られた。特に波長 348nm は波長 368, 388nm よりも低下割合が大きく、上述の不純物_{368, 388nm} が優先的に吸着されていると考えられる。関心波長である 368, 388nm では透過率の大幅な低下が見られなかった為、流速への制限は発光量測定の結果で与えることにした。

次に、純化流速を変化させて処理した LAB の発光量測定結果を図 (5.16) に示す。赤色の網掛けは最も発光量が高かった点での誤差範囲を表している。

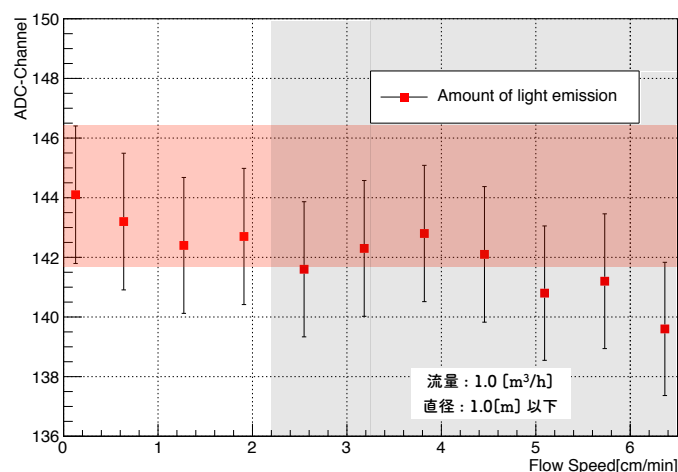


図 5.16: 処理流速を変化させた LAB の発光量

測定の結果、処理流速を大きくするにつれて発光量が徐々に低下する結果が得られた。これは §5.1 で純化時間を変化させた LAB の発光量測定において短時間純化では発光量が低下する結果と一致しており、発光量に影響を与える不純物_{265~320nm}を吸着するにはある程度の時間が必要だと推測できる。流量とカラム直径から算出された範囲の中でも、大きな流速かつ高い発光量になる流速は 3.8[cm/min] であり、これを最適な処理流速として選定した。流速 3.8[cm/min] で純化処理した LAB の発光量は 142.8 ± 2.2 であり、KamLAND-LS に対して 1.068 ± 0.035 倍に向上している。

5.2.2 最適化したパラメータでのカラム法による純化

§5.2.1 で最適化した流速 3.8[cm/min]、活性炭 3.25g での処理液量 50ml で純化した液を §5.1 で評価した液体シンチレータ溶媒と比較した。以下、特に記載が無い限りは最適化したパラメータによるカラム法で純化した LAB を LAB(AC-Column) とする。図 (5.17) に各液体シンチレータ溶媒の 9cm 透過率の結果を示す。赤線は LAB(MS)、緑線は LAB(AC-Batch)、青線は LAB(AC-Column)、黒線は KamLAND-LS を表している。また、各液体シンチレータ溶媒の波長 400,388nm における 9cm 透過率を表 (5.6) に示す。

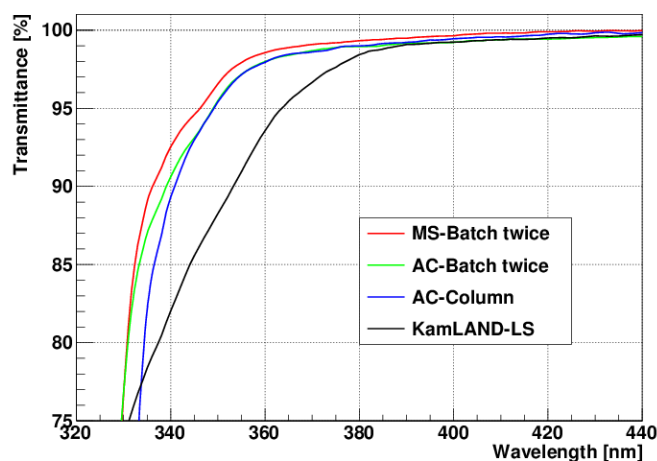


図 5.17: 各液体シンチレータ溶媒の 9cm 透過率の比較

液体シンチレータ	9cm 透過率 [%]	
	波長 400nm	波長 388nm
LAB-LS(MS)	99.6 ± 0.3	99.5 ± 0.3
LAB-LS(AC-Batch)	99.2 ± 0.3	99.1 ± 0.3
LAB-LS(AC-Column)	99.4 ± 0.3	99.2 ± 0.3
KamLAND-LS	99.2 ± 0.3	99.0 ± 0.3

表 5.6: 各液体シンチレータ溶媒の波長 400,388nm における 9cm 透過率

LAB(AC-Batch) と比較すると波長 388nm,400nm とともに透過率は高く、静置純化よりも純化時間が短いカラム法でも十分に不純物を除去できることが確認できる。しかし、波長 350nm 以下では LAB(AC-Batch) の方が透過率は高く、純化時間による影響が出ていると考えられる。

次に、LAB(AC-Column) の発光量を測定し、各液体シンチレータ溶媒と比較した。発光量測定の結果を表 (5.7) に示す。

液体シンチレータ	ADC-channel	相対発光量
KamLAND-LS	133.8 ± 2.2	1
LAB-LS(MS)	148.0 ± 2.4	1.106 ± 0.026
LAB-LS(AC-Batch)	145.1 ± 2.3	1.085 ± 0.025
LAB-LS(AC-Column)	142.8 ± 2.3	1.068 ± 0.025

表 5.7: 各液体シンチレータ溶媒の ADC Channel 値と相対発光量

LAB(AC-Batch) と比較すると 1.7% 程度低下しており、カラム法の純化時間による影響が発光量にも表れている。また、活性炭では静置法、カラム法ともにモレキュラーシーブで純化した LAB(MS) に劣っていることから、クエンチングの原因となる不純物を活性炭では除去できない可能性も考えられる。KamLAND-LS と比較すると 6.8% 程度向上しており、活性炭を用いたカラム法での純化が効果的だと分かった。

9cm 透過率の結果では相対集光量を精度良く評価することができないので、パイプとコーナーキューブを用いて減衰長の測定を行った。図 (5.18) に各液体シンチレータ溶媒の減衰長測定の結果を示す。赤色は LAB(MS)、緑色は LAB(AC-Batch)、橙色は LAB(AC-Column)、青色は KamLAND-LS を表している。

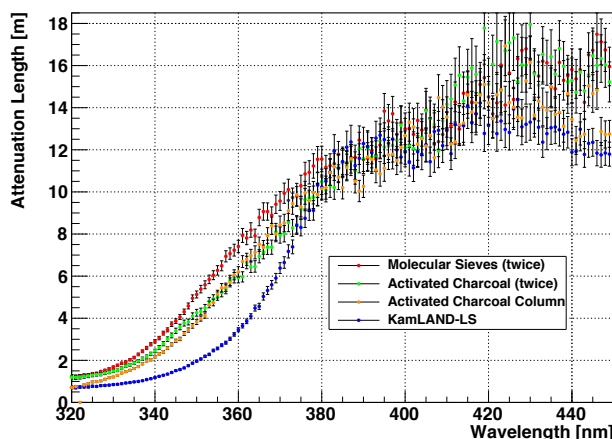


図 5.18: 各液体シンチレータ溶媒の減衰長

波長400nmにおけるLAB(AC-Batch)の減衰長を比較すると、LAB(AC-Batch)は 12.1 ± 0.8 [m]、LAB(AC-Column)は 12.6 ± 0.8 [m]となり、9cm透過率においてLAB(AC-Column)が優れていることと一致している。また波長350nm以下でLAB(AC-Batch)が上回り、これも9cm透過率の結果と一致しているため、本測定の結果は妥当であると考えられる。減衰長測定の結果から式(4.10),(4.11)を用いて算出した6.5m透過率の結果を図(5.19)に示す。

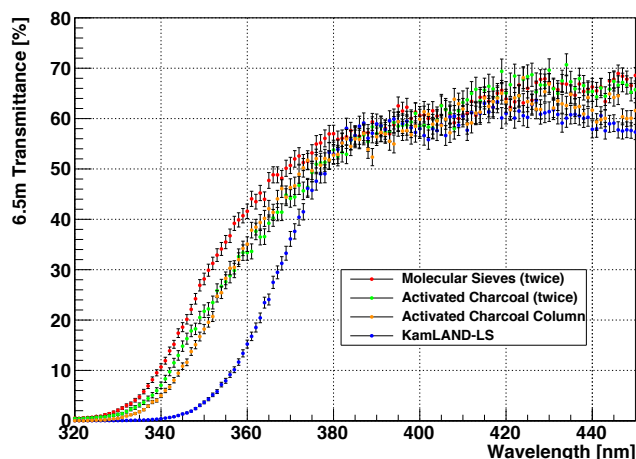


図 5.19: 減衰長測定の結果から算出した各液体シンチレータ溶媒の6.5m透過率

求めた6.5m透過率(図(5.19))と式(4.14)を用いて算出したKamLAND検出器における透過率による相対集光量を図(5.20)に示す。LAB(AC-Batch)と比較すると、波長355~400nmでは僅かに上回っているが、波長330~355nmでは僅かに下回る結果となった。このスペクトルの積分値が透過率による相対集光量となり、表(5.8)に各液体シンチレータ溶媒の透過率による相対集光量、相対発光量、最終的な相対集光量を示す。

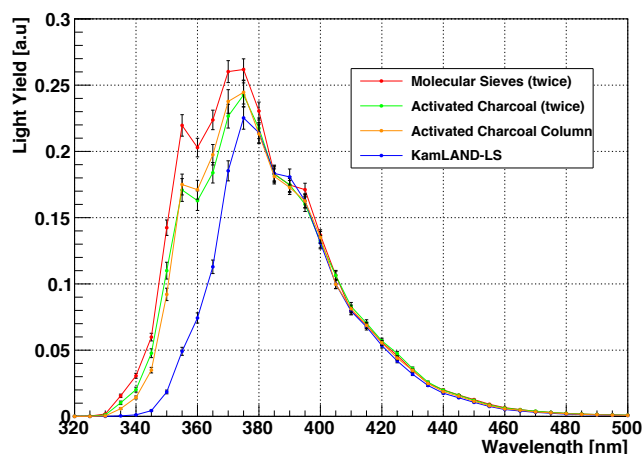


図 5.20: 各液体シンチレータ溶媒の透過率による集光量

LAB(AC-Column)の透過率による相対集光量は 1.26 ± 0.07 でLAB(AC-Batch)と同等程度だが、最終的な相対集光量では3%程度劣る結果となった。これは純化時間の短いカラム法では発光量が改善されなかったことが大きな要因であるが、モレキュラーシーブと活性炭を組み合わせ

て純化することでこの問題を解決できる可能性がある。

液体シンチレータ	透過率改善	発光量改善	相対集光量
KamLAND-LS	1	1	1
LAB-LS(MS)	1.40 ± 0.07	1.106 ± 0.026	1.55 ± 0.09
LAB-LS(AC-Batch)	1.27 ± 0.07	1.085 ± 0.025	1.38 ± 0.08
LAB-LS(AC-Column)	1.26 ± 0.07	1.068 ± 0.025	1.35 ± 0.08

表 5.8: 各液体シンチレータ溶媒の相対集光量

活性炭を用いたカラム法では KamLAND2-Zen 実験の目標値 1.4 倍には及ばなかったものの、モレキュラーシープや活性炭を用いた静置法よりもコスト面で大きく改善することができた。表 (5.9) に LAB(MS), LAB(AC-Batch), LAB(AC-Column) の集光量と純化済 LAB 100ml に要する吸着剤量, LAB 液量、純化済 LAB 1,000ton に要する価格を示す。ただし、純化済 LAB 1,000ton に要する価格は LAB(MS) を 1 とした相対値である。収液率 Y は、静置法では純化前の液量 $L_{\text{純化前}}$ と純化後に採取できた液量 $L_{\text{純化後}}$ を用いて

$$Y = \frac{L_{\text{純化後}}}{L_{\text{純化前}}} \times 100 \quad [\%] \quad (5.8)$$

で計算している。また、カラム法では純化前の活性炭重量 $M_{\text{純化前}}$ 、純化後の活性炭重量 $M_{\text{純化後}}$ 、LAB の密度 $0.86[\text{g}/\text{cm}^3]$ を用いて

$$Y = \frac{M_{\text{純化前}} - M_{\text{純化後}}}{0.86} \times \frac{1}{50} \times 100 \quad [\%] \quad (5.9)$$

で計算している。ここでは純化した液量 50ml 当たり活性炭が吸収した液量を計算しており、カラム法で生じる廃液は含めていない。

液体シンチレータ	相対集光量	収液率	吸着剤量	LAB 量	価格
LAB(MS)	1.55 ± 0.09	50%	142g	400ml	1
LAB(AC-Batch)	1.38 ± 0.08	85%	22.9g	140ml	0.17
LAB(AC-Column)	1.35 ± 0.08	92%	6.5g	116ml	0.06

表 5.9: 各液体シンチレータ溶媒の収液率, 吸着剤量, LAB 量, 価格

モレキュラーシープを用いた静置法と比較すると、活性炭を用いたカラム法により純化済 LAB 100ml に要する吸着剤量は 6.5g, LAB 液量は 116ml まで低減することができた。吸着剤量と LAB 液量の改善を考慮して純化済 LAB 1,000ton に要する価格を見積もると、LAB(MS) の 0.06 倍程度まで抑えることができる。モレキュラーシープでは大量の LAB を純化することが不可能であったが、活性炭を用いたカラム法で LAB を純化することにより KamLAND2-Zen 実験の実現がより現実的になり、本研究の目的を達成できたと考えられる。

5.3 今後の展望

活性炭を用いたカラム法によって純化コストを 0.06 倍まで低減することができた結果、モレキュラーシーブ純化では不可能であった KamLAND2-Zen 実験の実現も可能となった。しかし、1,000ton を実際に純化するオペレーションは企業に委託する予定であることから純化コストは高まると予想できる。そこで、本小節では今後の更なるコスト低減について述べる。本研究ではカラム 10cm 分の活性炭 3.25g で 50ml の液量を純化可能だと最適化した。この条件ではまだ吸着能力の残っている活性炭も使用せずに廃棄している可能性がある。§5.2 ではカラムを交換せずに 800[ml] まで純化を行ったが、本小節では 6,100[ml] まで 500[ml] 間隔で 50ml ずつ採取し、活性炭の不純物吸着量を算出した。その後、純化した LAB の 9cm 透過率 $T_{9\text{cm}}$ を測定し、式 (5.10) を用いて除去率 R に変換した。

$$R = 1 - \frac{100 - T_{9\text{cm,After}}[\%]}{100 - T_{9\text{cm,Before}}[\%]} \quad (5.10)$$

図 (5.21) は式 (5.10) を用いて算出した除去率と処理液量の関係であり、赤色は波長 388nm、緑色は 368nm、青色は 348nm を表している。また、各色の点線は関数 $R = ax + b$ でフィッティングしたものである。

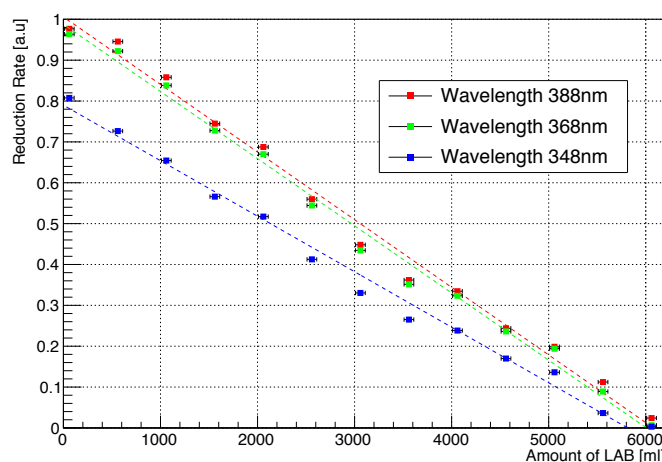


図 5.21: 除去率と処理液量の関係

フィッティングにより、各波長のパラメータ a, b は以下のように求められた。

$$\begin{aligned} \text{波長 388nm} : a &= (-1.65 \pm 0.01) \times 10^{-4}, b = 1.006 \pm 0.004 \\ \text{波長 368nm} : a &= (-1.64 \pm 0.01) \times 10^{-4}, b = 0.988 \pm 0.004 \\ \text{波長 348nm} : a &= (-1.36 \pm 0.01) \times 10^{-4}, b = 0.789 \pm 0.003 \end{aligned} \quad (5.11)$$

吸着剤量を M 、液体シンチレータの体積を V 、除去率を α 、純化前の不純物濃度を C_0 とおくと、活性炭が吸着した不純物量 W は

$$W = \frac{VC_0}{M} \alpha \quad (5.12)$$

と表され、 M, V, C_0 は一定であるので吸着量 W は除去率 α に依存する。そこで、フィッティングで得られた除去率の関数を処理液量に関して積分することで積算吸着量を算出した。図 (5.22) は

積算吸着量と処理液量の関係であり、赤色は波長 388nm, 緑色は 368nm, 青色は 348nm, 橙色は 3 波長 total の積算吸着量を表している。

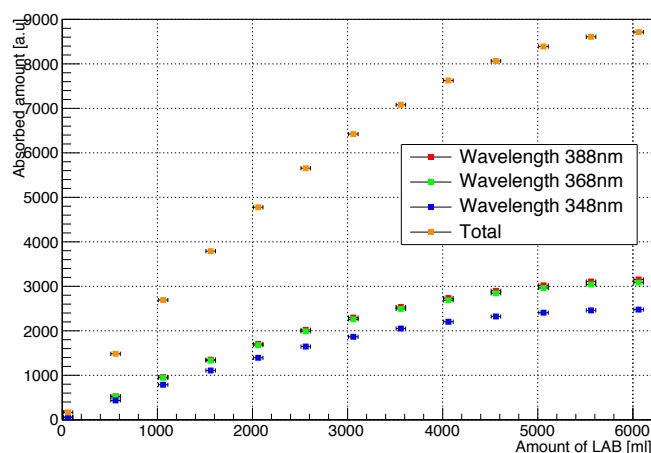


図 5.22: 積算吸着量と処理液量の関係

6,100[ml] で吸着飽和が起きたとするとその最大吸着量は 8715 であるのに対し、本研究で最適化した 50[ml] では 166 であった。これは最大吸着量の 1.9% 程度であり、活性炭を十分に使用できていないことが分かる。通常、活性炭を充填したカラムに液を流し込むと入り口側から吸着が進み、ある時点では図 (5.23) のように吸着飽和層, 吸着層, 未吸着層に分けられる。吸着層, 未吸着層は吸着能力が残っているにも関わらず、本研究では透過率の低下により全体の 1.9% 程度の活性炭しか使用できなかったと考えられる。

●：吸着飽和層，●：吸着層，○：未吸着層

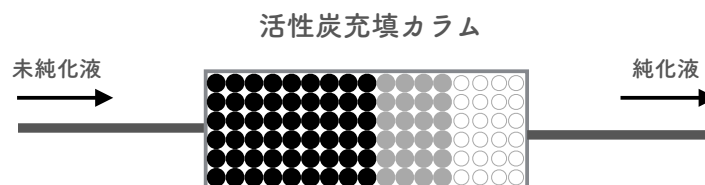


図 5.23: カラム内での吸着進行のイメージ

高透過率という条件の下、単一のカラムでは充填された活性炭の全てを吸着飽和まで使用するの難しいが、図 (5.24) のように複数のカラムを直列に繋げることで可能となる。

●：吸着飽和層，●：吸着層，○：未吸着層

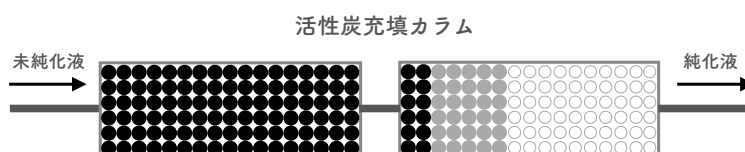


図 5.24: 複数カラムでの吸着進行のイメージ

本研究では全体の1.9%程度しか活性炭を使用できていなかったことから、複数カラムにより活性炭全てを吸着飽和まで使用できれば、更に活性炭のコストが最大で1/50倍まで低減できる。実際に、工場での水処理など大型な純化装置ではメリーゴーランド方式と呼ばれる純化方法が採用されている。メリーゴーランド方式では複数のカラム塔を直列に使用することで吸着剤の使用効率を高めるだけでなく、予備塔を設けることで吸着飽和に達した吸着剤の交換時間を抑えることができる。図(5.25),(5.26)にメリーゴーランド方式の概略を示す。

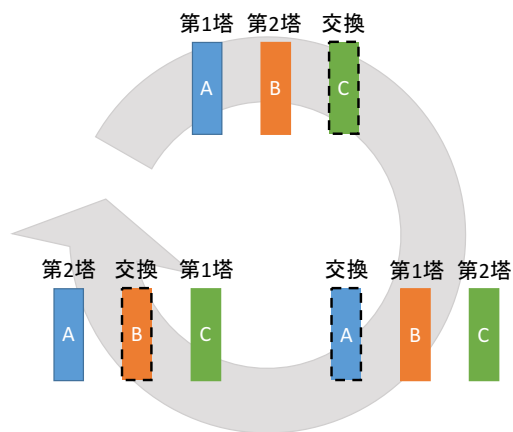


図 5.25: メリーゴーランド方式のカラム交換サイクル

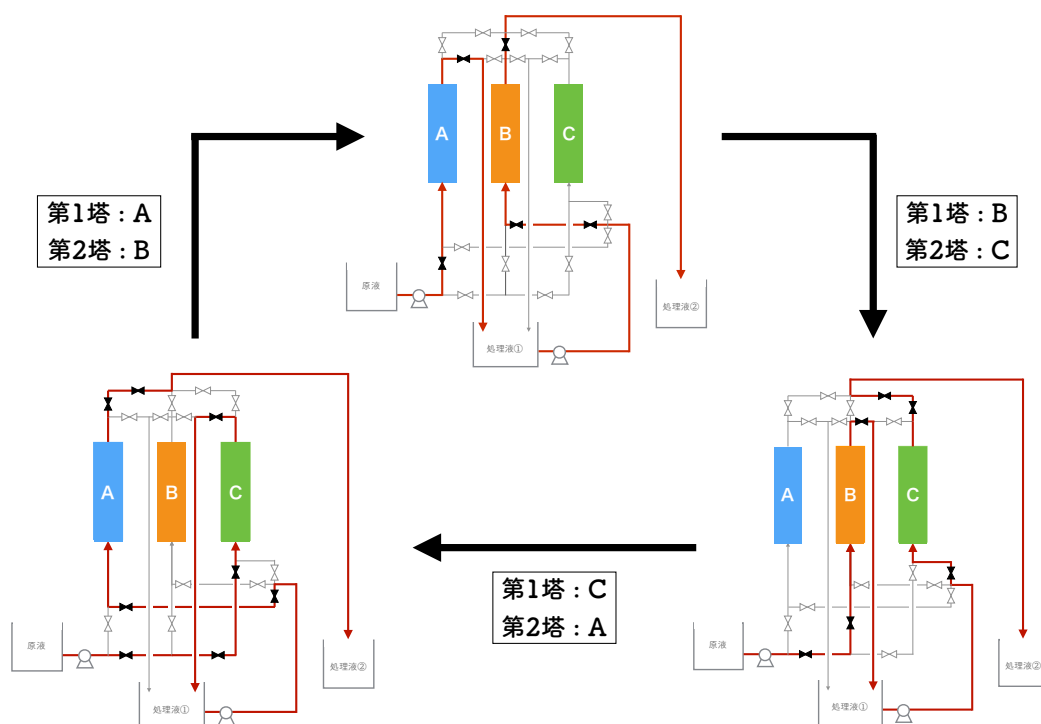


図 5.26: メリーゴーランド方式の純化装置

例えば、図(5.26)のように配管を組み、第1塔をA、第2塔をB、予備塔をCとなるようにバルブを調節して純化を行ったとする。ある時点でA塔が吸着飽和に達したとすると、バルブを調節するだけで第1塔をB、第2塔をCと切り替えることができる。1つのカラム塔だけでは活性炭の使用効率が低下するだけでなく、廃炭交換の際にオペレーション停止時間が長くなってしまう。一方、メリーゴーランド方式では第1塔目の活性炭を吸着飽和まで使用出来るだけでなく、予備塔を設けたことで短いオペレーション停止時間で廃炭交換が行える。図(5.26)のようなメリーゴーランド方式を採用して活性炭使用効率を高めることで、更に1/50倍のコスト改善が期待できる。しかし、実際にどの程度までコスト改善が見込めるかはカラム形状、カラム塔数、処理液量などを最適化する必要がある。その為、今後は実験室サイズでメリーゴーランド方式の純化装置を開発し、純化パラメータの最適化を行うことが検討されている。

本研究では活性炭使用条件を最適化したことにより、集光量、コスト共に本研究の目標を達成し、モレキュラーシーブ純化では不可能であったKamLAND2-Zen実験の実現が可能となった。しかし、純化コストの面では更なる低減が望ましく、活性炭とメリーゴーランド方式を組み合わせることでKamLAND2-Zen実験がより現実的になると期待できる。

第6章 結論と課題

6.1 活性炭を用いた吸着純化

本研究では活性炭を用いた静置法とカラム法で LAB の純化を行い、吸光の原因となる不純物を除去することができた。表 (6.1) に本章で述べた各液体シンチレータ溶媒の減衰長 (400nm), 相対発光量, 相対集光量を示す。

液体シンチレータ	減衰長 (400nm)	相対発光量	相対集光量
KamLAND-LS	11.9 ± 0.8 [m]	1	1
LAB-LS(MS)	13.0 ± 0.8 [m]	1.106 ± 0.026	1.55 ± 0.09
LAB-LS(AC-Batch)	12.1 ± 0.8 [m]	1.085 ± 0.025	1.38 ± 0.08
LAB-LS(AC-Column)	12.6 ± 0.8 [m]	1.068 ± 0.025	1.35 ± 0.08

表 6.1: 各液体シンチレータ溶媒の測定結果

活性炭を用いて LAB を純化することで KamLAND-LS よりも減衰長, 発光量が上回り、相対集光量は LAB(AC-Batch) で 1.38 ± 0.08 倍, LAB(AC-Column) で 1.35 ± 0.08 倍にまで改善することができた。先行研究のモレキュラーシープで純化した LAB には及ばなかったが、純化に要する吸着剤量と LAB 量では大幅に改善した。表 (6.2) に各液体シンチレータ溶媒の収液率, 純化済 LAB 100ml に要する吸着剤と LAB 量, 純化済 LAB 1,000ton に要するコストを示す。

液体シンチレータ	収液率	吸着剤量	LAB 量	1,000ton 純化コスト
LAB-LS(MS)	50 [%]	142 [g/100ml]	400 [ml]	1
LAB-LS(AC-Batch)	85 [%]	22.9 [g/100ml]	140 [ml]	0.17
LAB-LS(AC-Column)	92 [%]	6.5 [g/100ml]	116 [ml]	0.06

表 6.2: 各液体シンチレータ溶媒精製に要する吸着剤量, LAB 量, コスト

活性炭で純化することで使用する吸着剤量と LAB 量は大幅に改善され、純化済 LAB 1,000ton に要するコストはモレキュラーシープの 0.06 倍にまで低減することができた。集光量を KamLAND2-Zen の目標値 1.4 倍程度に維持しつつ、純化に要するコストを大幅に低減するという本研究の目的を達成できたと考えられる。

活性炭を用いたカラム法による液体シンチレータの集光量改善 (集光量 1.35 倍) に光電子増倍管の集光ミラー装着 (集光量 1.8 倍) と改良型高量子効率の光電子増倍管の使用 (集光量 2.1 倍) 加味す

ると、集光量は5.1倍になり、 ^{136}Xe の二重ベータ崩壊のQ値2.46MeVでのエネルギー分解能は

$$\frac{6.6\%}{\sqrt{E[\text{MeV}]}} \times \frac{1}{\sqrt{5.1}} \simeq \frac{3.4\%}{\sqrt{E[\text{MeV}]}} \quad (6.1)$$

になると期待される。更に1,000kgの ^{136}Xe を用いて5年間観測を行うことでマヨラナ有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 20 \text{ meV}$ の感度到達を目指す。

6.2 今後の課題

- 発光量の改善

本研究では、活性炭を用いて純化したLABに対して大幅な発光量の改善が見られなかった。特に、カラム法で純化したLABは未純化LABと比較して2.6%程度しか改善されていない。流速を遅くすることで多少の改善は見込めるが、モレキュラーシーブによる純化までは期待できない。メリーゴーランド方式で更なるコスト改善が可能となった場合、モレキュラーシーブなど他の吸着剤と組み合わせて使用することで発光量を改善できると考えらえる。

- 活性炭の放射性不純物含有

KamLAND2-Zen実験は極低放射能環境で $0\nu 2\beta$ 崩壊事象の探索を行う為、活性炭を用いて純化することでLAB中に放射性不純物が溶け出すと実験に使用することはできない。本実験で使用した活性炭のICP-MSによる放射性元素含有量の分析結果とKamLAND-LSの放射性元素含有量を表(6.3)に示す。

	^{40}K [g/g]	^{232}Th [g/g]	^{238}U [g/g]
活性炭(ヤシ殻, 粉末状)	1.0×10^{-8}	1.5×10^{-7}	5.0×10^{-8}
KamLAND-LS	2.7×10^{-16}	$(5.7 \pm 0.8) \times 10^{-17}$	$(3.4 \pm 0.4) \times 10^{-18}$

表 6.3: 活性炭と KamLAND-LS の放射性元素含有量

活性炭はKamLAND-LSに比べて $10^8 \sim 10^{10}$ 程度多く含有しており、LAB中に溶け出す可能性は十分にあり得る。仮に溶け出しが確認された場合は、放射性元素含有量が極度に低い活性炭の使用もしくはその他の純化を施す必要があり、今後の課題である。

参考文献

- [1] T2K <http://t2k-experiment.org/ja/neutrinos/a-brief-history/>.
- [2] M. Goldhaber, L. Grodzins, and A. W. Sunyar, *Phys. Rev.* 109, 1015 (1958)
- [3] “ Observation of High-Energy Neutrino Reactions and the Existence of Two Kinds of Neutrino ”, G. Danby et al, *Phys.Rev.Lett.* 9 (1962) 36
- [4] “ Observation of tau neutrino interactions ”, K. Kodama et al (DONUT Collaboration), *Phys.Lett.B* 504 (2001) 218-224
- [5] K. A. Olive et al., Particle Data Group, “ Review of Particle Physics ”, *Chin. Phys. C*, Vol. C38, p. 090001 (2014).
- [6] Y.Hukuda. et al *Phys.Rev.Lett.* 81(1998)1562-1567
- [7] K. Zuber, *Neutrino Physics*, Second Edition, Series in High Energy Physics, Cosmology and Gravitation, CRC Press, 2 edition (2011).
- [8] J. Gomez-Cadenas et al., “ The search for neutrinoless double beta decay ”, arXiv:1109.5515 (2011).
- [9] “ Double beta decay, Majorana neutrinos, and neutrino mass ”, F. T. Avignone III et al., *Rev.Mod.Phys.*, 80, 481 (2008)
- [10] “ Neutrinoless Double-Beta Decay ”, A. Giuliani and A. Poves, *Advances in High Energy Physics*, Volume 2012, Article ID 857016, 2001
- [11] Particle Data Group 2013
- [12] “ Planck 2013 results. XVI. Cosmological parameters ”, P. A. R. Ade et al. (Planck Collaboration), *Astronomy and Astrophysics*, Vol. 571, A16, 2014
- [13] “ Upper limit on the electron antineutrino mass from the Troitsk experiment ”, V. N. Aseev et al., *Phys.Lett.D*, Vol. 84, 112003 (2011)
- [14] H. V. Klapdor-Kleingrothaus, and I. V. Krivosheina, *Mod. Phys. Lett. A* 21, 1547 (2006).
- [15] “ Search for Neutrinoless Double-Beta Decay with the Upgraded EXO-200 Detector ”, J.B. Albert et al. (EXO Collaboration), arXiv:1710.07670 (2017).

- [16] "First Results from CUORE: A Search for Lepton Number Violation via $0\nu 2\beta$ Decay of ^{130}Te ", C. Alduino et al. (CUORE Collaboration), arXiv:1710.07988 (2017).
- [17] 柳田勉, 「ニュートリノの質量と素粒子論」, 日本物理学会誌, 第 58 巻, 第 5 号, 2003
- [18] O. Tajima, "Measurement of Electron Anti-Neutrino Oscillation Parameters with a Large Volume Liquid Scintillator Detector, KamLAND", Ph.D. thesis, Tohoku univ. (2003).
- [19] 鈴木 厚人 「原子炉反電子ニュートリノ消失現象の検出」 日本物理学会誌 vol.58, No.5, 2003
- [20] A. Gando et al. (The KamLAND Collaboration), Nature Geoscience 4, 647-651 (2011).
- [21] J. Gomez-Cadenas et al., "The search for neutrinoless double beta decay", arXiv:1109.5515 (2011).
- [22] CHATWIN-DAVIS A Emile (private communication)
- [23] "Double Beta Decay Experiments", A. Piepke, Nucl. Phys. A 752 (2005) 42c-52c
- [24] H. Yoshida, "Limit on Majorana Neutrino Mass with Neutrinoless Double Beta Decay from KamLAND-Zen", Ph.D. thesis, Tohoku univ. (2014).
- [25] "FIRST RESULT FROM KamLAND-Zen Double Beta Decay with ^{136}Xe ", A. Gando for the KamLAND-Zen Collaboration, Rencontres de Moriond EW 2012, Proceedings, 2012, arXiv:1205.6130[hep-ex]
- [26] K. Asakura et al. (The KamLAND-Zen Collaboration), "Results from KamLAND-Zen", AIP Conference Proceedings, Vol. 1666, p. 170003 (2015).
- [27] "Search for Majorana Neutrinos Near the Inverted Mass Hierarchy Region with KamLAND-Zen", A. Gando et al. (KamLAND-Zen Collaboration), Phys.Rev.Lett., PRL 117, 082503 (2016)
- [28] 小畑 旭 修士論文「Xe を用いた二重ベータ崩壊実験のための集光ミラーと大光量液体シンチレータの開発」 東北大学 平成 24 年度
- [29] 大浦智也 修士論文「KamLAND2-Zen に向けた新液体シンチレータの純化」 東北大学 平成 27 年度
- [30] 寺岡夕里 修士論文「金属スカベンジャーによる KamLAND-Zen の低放射能化に関する研究」 東北大学 平成 28 年度
- [31] 藪本 洋 修士論文「ニュートリノレス二重 β 崩壊探索のためのキセノン含有液体シンチレータの特性研究」 東北大学 平成 22 年度
- [32] M.C.Chen, "Geo-neutrino in SNO+", Earth, Moon, and Planets, Vol.99, No.1-4, pp 221-228(2006).

- [33] G. Lond et al. "Attenuation length measurements of a liquid scintillator with Lab-VIEW and reliability evaluation of device" *Chin, Phys C* , Vol.37, No.7 , p.076001(2013).
- [34] M. Wurm et al. "The next-generation liquid-scintillator neutrino observatory LENA" *Astroparticle Physics*, Vol. 35, No. 11, pp. 685-732 (2012).
- [35] 日本化学会 (編), 化学便覧 基礎編, 丸善, 改訂 4 版 (1993).
- [36] 浅原 照三 他 (編), 溶剤ハンドブック, 講談社 (1976).
- [37] M.Wurm, "Cosmic background discrimination for the rare neutrino event search in Borexino and LENA" ,Ph.D. thesis, Technische Universität München (2009).
- [38] 石河 寛昭, 最新液体シンチレーション測定法, 南山堂 (1992).
- [39] 近藤精一 他, 吸着の科学, 丸善, 第 2 版 (2001).

謝辞

本論文の執筆や2年間の研究生生活にあたり、様々な方々からご指導、ご協力を頂きました。この場をお借りして深く感謝を申し上げます。

教員・研究員の方々

井上邦雄先生には、他大学からの進学を希望していた私に対して世界最高の実験グループにて研究する機会を与えて頂きました。ニュートリノセンターでの研究生生活は考え方や実験への姿勢など、元々の大学では経験できないような非常に貴重な体験をさせて頂き感謝申し上げます。先生の豊富な知識や親しみやすい人柄には大変感動し、理想のリーダー像として今後の人生で目指していきたいと思えます。

白井淳平先生には発表練習の際に、他の先生よりも多くご指摘頂きました。どのご指摘も解決しなければならぬ点多く、今後の研究課題へと繋がりました。本年度でご退職されると伺い、先生の最後の学生として学べたことを非常に嬉しく思います。

三井唯夫先生にはお忙しい中、幾度も発表練習にお付き合い頂きました。定義式とデータの不一致など、私では到底考えつかないようなご指摘を頂き、大変参考になりました。研究以外では飲み会の際に、娘さんの教育方法について熱く議論したのが記憶にあり、私も参考にさせて頂きたいと思えました。

古賀真之先生には修士論文やGSAの発表練習など大変多くのご指摘を頂きました。古賀先生は教育的なご質問が多く、勉強不足を再認識する機会を頂き感謝しております。入学当初は先生の厳しさに少し怖気付いていましたが、段々と学生思いの教育的な厳しさだと気付き、先生にご指摘頂けるのが非常に嬉しかったです。今後もその愛のある厳しさで学生の指導をして頂けたらと思えます。

清水格先生には担当教官として直接ご指導頂きました。ご多忙にも関わらず、発表スライドや修士論文等の添削をして頂き誠に有難う御座います。修士論文に関しては訂正箇所が多く、ご迷惑お掛けし申し訳御座いませんでした。2年間の研究生生活が終わり、その日々を振り返って見ると清水先生に担当して頂いてたからこそ最後まで研究を進めることが出来たと思えます。先生と議論したことは私の人生において貴重な時間であり、私も指導する立場になった際には清水先生のような人間になりたいと思えました。今後、活性炭を用いた純化方法でKamLAND2-Zenが実現することを願っております。清水先生の生徒で本当に良かったと思える大学院生活2年間であり、感謝の言葉しかありません。有難う御座いました。

玉江京子先生には自然科学総合実験だけでなく、日頃から研究の事を気に掛けて頂き感謝しております。修士論文の発表前日、質問対策に少し焦っていた私に対して声を掛けて頂いたことで緊張が解れたのを覚えております。また他2人のTAと一緒に飲みに行き、沢山のお話を伺えたのが非常に嬉しかったです。社会人になってからも仙台に戻ってきた際には、先生とお酒を飲めることを楽しみにしています。

丸藤祐二先生にはコラボレーション期間中に Rn free air 装置の故障で大変お世話になったのを記憶しております。様々なことを検証し、故障原因を突き止める姿勢には非常に勉強になりました。修士論文の執筆にあたり、バルーン作業を途中でお手伝い出来なくなり申し訳御座いませんでした。今回こそ問題なくインストールが完了し、実験を開始できることを願っております。

池田晴雄先生には研究の合間に自動車やサッカーのことで楽しくお話しさせて頂きました。特にサッカーに関しては2回のスタジアム観戦だけでなく、ACL 優勝と一緒に分かち合ったことを非常に嬉しく思います。埼玉スタ or 日産スタジアムに観戦する機会がありましたら、是非ご連絡下さい!!また一緒に応援しに行きましょう!!

石徹白晃治先生には修士1年次のセミナーでお世話になりました。また、コラボや学会発表の資料、修士論文などの進捗状況を気に掛けて頂き、身が引き締まる思いを抱いていたのを覚えています。お気遣い頂き有難う御座いました。

上島考太先生には飲み会などで大変楽しくお話しさせて頂きました。特に、上島さん、細川さん、白幡さん、尾崎さん達と飲むと面白いことばかり起こってましたね。これからもお酒での失態が皆に愛される上島さんのご活躍を願っております。

渡辺寛子先生にはミニバルーン作業の際に大変お世話になりました。特に、MoGURA 部屋でテフロンシートの切り出しを手伝わせて頂いた際には研究の事から先生の事までお話しさせて頂き、非常に楽しく作業を進めることが出来たのが記憶に残っております。お子さんも生まれ、忙しい日々をお過ごしかと思います。これらものご活躍を願っております。

寺島亜寿紗先生にはミニバルーン作業の際に大変お世話になりました。作業を進める中で研究や私生活の事などでお話しさせて頂き、寺島さんと一緒のシフトになると時間があっという間に過ぎていくのを覚えています。また、修論でミニバルーン作業にご迷惑をお掛けしているのも関わらず、修論発表後にはお疲れ様と声を掛けて頂いたのが非常に嬉しかったです。これからも頑張ってください!!

細川佳志先生には研究からプライベートな事まで相談に乗って頂き、一番学生と距離の近かった先生でした。特に、細川さんがいるお酒の席ではくだらない事から下品な事まで盛り上がり、非常に楽しかったのが記憶に残っています。これからも学生と親近感のある先生として指導や細川さん自身のご活躍を願っています。

技術職員・事務職員の方々

技術職員の方々には本研究全てにおいて大変お世話になりました。実験器具の購入など技術職員の方々のサポートのおかげで本研究をまとめることが出来たと思います。特に鈴木さんには日頃から”必要な物が無いか、サポートできることは無いか”など気遣って頂くだけでなく、くだらない会話にまで付き合ってくれて頂き非常に感謝しております。

事務職員の方々には出張、書類提出の度に大変お世話になりました。毎度報告が遅れてしまい、ご迷惑をお掛けし申し訳御座いませんでした。M2 一同感謝しております。

先輩方

小原さんは途中までお隣の席だったこともあり、何気ない会話で楽しませて頂いたのを覚えております。豊富な知識と大人な雰囲気を持ちながらも、気さくに話し掛けてくれる人柄が非常に魅力的な先輩でした。京都に行っても小原さんのご活躍を願っております。

林田さんはマンションが一緒ということもあり、不思議と親近感がありました。林田さんの優しく、相手の事を受け入れ、謙虚な人柄が非常に好きでした。また、一緒にお酒を飲むと楽しそうに上島さんや尾崎さんの話をしているのが記憶に残っており、そんな林田さんの姿を見てこちらも何故だか嬉しい気分になりました。これからもそんな素敵な林田さんで研究頑張ってください!!

蜂谷さんには研究でお世話になるだけでなく、テニスやスノボなどのスポーツも一緒に楽しませて頂きました。特に、テニスでは蜂谷と練習する度に成長していくのが楽しかったです。蜂谷さんは研究での疑問点に対する回答やテニス指導が非常に分かりやすく、尊敬する先輩の1人です。仙台に帰って来た時などでまたお会いできるのを楽しみにしています。

白旗さんは先輩方の中でも一番本音を言える方でした。研究の質問やプライベートな話題に対しても先輩振ることなく友達のように話してくれる姿が凄いい好きでした。HUBで尾崎さんと3人で飲んでいる時、白旗さんは酔っていて覚えていないかもしれませんが、M2の良さについて話してくれたことが非常に嬉しく、今でも忘れられない思い出です。これからも良い意味でテキトーな白旗さんで頑張ってください。リクルーターとして仙台戻ってくると思うので、その時は女の子紹介してください(笑)

尾崎さんは、入学してから一番最初にお世話になった先輩です。人手が不足、急遽神岡に行くことになった時に車で送迎や買い物に連れてってくれました。そんな優しい先輩がお酒を飲むとダメ人間になるということを知り、ガッカリしたのを覚えています(笑)。ただそんな姿も尾崎さんの魅力の1つだと思います。週末は何度もフットサルをし、その後色々なラーメンを食べに行きましたね。普段はちょっと抜けているのけど、研究のことになると知識が豊富で凄いなと思います。またいつかフットサルからのラーメン行きましょう!!

同期達

渋々にはプライベートなことからくだらない事、下ネタで困惑させてたりと迷惑を掛けてばっかでした。入学当初は、頭も良く人柄も良く話しやすく凄いなコイツ!!と思いましたが、段々と馬脚を現し今ではスッカリいじられキャラとして見えています(笑)。渋々の魅力は何と言っても、誰とでも楽しく会話できる事であり、中々出来る事じゃないと思います。社会人となり、渋々とくだらないテキトーな会話が出来なくなるのが残念ですが、また同期で集まったりするのを楽しみにしています。会社の人で可愛い子いたら紹介してね(笑)。渋々の更なるご活躍を願っています!!

相馬くんには本当にくだらない話題に付き合ってもらい感謝しています。入学当初、相馬くんと話をして驚きました。なんじゃこのイケメンで、人の話を聞きて、真面目な奴は!!と思いました。それは、渋々と違って馬脚現すこともなく、今でもそのままの印象です(笑)。相馬くんは他2人と違って計画性があり、こーゆー人が仕事が出来て出世するんだろうなーと感じていました。また、相馬くんが聞き上手であった為に、それに甘えてこっちが話し過ぎたりしたのを少し反省しています。それでも、相馬くんとはゴルフやテニス、カラオケなど色々な事で遊んだ貴重な思い出があり、就職しても定期的集まりたいなと本気で思います。2年間楽しみつつも頑張れたのは、研究でもスポーツやカラオケでも相馬くんになんか負けたくないなと思えたからだと思います。これからも誰から見ても魅力的な相馬くんが社会人生活頑張ってください!!誘わないと折角の縁が切れちゃいそうだから、無理にでも静岡行くから

ね(笑)

本田くんは真面目そうに見えて、ダメ人間なところが凄い好きです。意外とテキトーなのに、なんやかんや上手くやってるのが本田くんの良さだと思います!!(褒めてます笑)。本田くんは自分の事よりも人の事を優先できる優しさを持っており、一緒に過ごすだけでこちらにも優しい人間になれた気がします。また、人の話を正面から頷いて聞いてくれて、不思議と もっと聞いてもらいたくなっちゃうんです。凄い魅力だと思います。そんな本田くんが一番笑ったのは、ドミで飲んでトイレで潰れて、モズアパに帰る途中でキラキラしたものが口から発射したことかな(笑)。あと、ハワイで真っ赤になってたのも笑ったな~!!本田くんには癒されたり、笑わせてもらったりでお世話になってばかりでした。そんな本田くんと過ごせなくなるのが残念ですが、これからも頑張ってください!!社会人になったら、ちゃんと朝出勤しなきゃダメだからね(笑)

日野くんには劣等感ばかり感じたのを覚えています。頭も良くて、かっこ良くて、バク転出来て、ツンデレで(笑)、同じ他大から来たのにこっちが恥ずかしくなるくらいです。グループが違って飲み会とかでしか話せなかったけど、そのツンデレさが日野くんの魅力だと思います。アカデミックの道で活躍する日野くんの噂を聞けることを願っています。頑張ってください!!

後輩達

太田くんはお世辞抜きで、本当に良い後輩だなと思います。話していても申し訳なく思うくらい先輩を立ててくれるだけでなく、自分の意見も持っているのが凄いと思います。研究やコルゲート管で忙しいかと思いますが、太田くんの魅力なら問題なく希望の会社に就職できると思います。そんなポテンシャルを持っているからこそ、誰よりも成功して欲しいと願っています。

大塚くんはホントできるよね~と他のM2によく漏らしています(笑)。甘いフェイスだけでなく、相手の話も引き出せ、誰とでもコミュニケーションできるのが大塚くんの魅力だと思います。更に、真面目で頑張り屋さんなのが凄いです。頑張り過ぎないように気を付けて、これからも頑張ってください!!

大野くんはもう就活も研究も大丈夫そうだから心配ないです(笑)。大野くんとは一緒にフットサルして、もっと上手になりたいな~と思ったキッカケを作ってくれて感謝しています。スポーツできで、頭良くて、英語喋れて、優秀な後輩を持つと先輩の肩身が狭いです(笑)。大野くんの良さは芯の強さだと思うので、これからもプレずに頑張ってください!!

木下くんは液シン仲間として色々手伝ってくれてありがとうございます。木下くんの研究を楽しむように取り組む姿勢に頭が下がるばかりです。私が途切れさせた液シングループの専攻長賞を、木下くんがまた再開してくれることを期待しています!!

佐藤くんにはミニバルーンシフトの洗浄中に見っともない姿を披露してしまったのを覚えています。正直硬いイメージを持っていいのですが、相馬くんとのおくだらない下ネタに対して少し笑ってくれたのがなんだか嬉しかったです(笑)。他の人にあまり言われなくてもいいのですが、佐藤くんは視野の広さが魅力だと思います。冷静に一步引いて周りを見渡す力はあると思うので、それを行動に生かせるのもっと凄くなると思います。頑張ってください!!

竹内くんは凄い優秀にも関わらず、謙虚な姿勢が印象に残っています。竹内くんと話して

いると自然とこちらも謝りたくなります(笑)。そんな竹内くんに驚いたのは仙台で行ったコラボでの発表です。流暢に話している姿に思わず見とれてしまい、ほんとに凄いな~と感じたのを覚えています。アカデミックの道に進むと聞いて、竹内くんなら大丈夫だと率直に思いました。これからも頑張ってください!!

ラストは亀井くんだね。亀井くんは当初は真面目に見えて、いや~優秀だな~と思っていましたが、飲み会での言動や机の汚さアイドルのポスター(まなったん可愛いよね~笑)など段々とかっこ側の人間の印象が変わってきてなんだか嬉しいです(笑)。1学年に1人は必要だと思うので、そのまま突き進んで欲しいです!!徹夜し過ぎて体調崩すのだけは気を付けて、これからも頑張ってください!!

4年生の皆さんとは一緒に過ごす事が少なかったですが、こんなテキトーだった上澤でも卒業できたので、もっと頑張ればもっと素晴らしい印象で卒業できると思います!!優秀な先輩ばかりなので、皆さんに頼りつつ自分の研究を頑張ってください!!

最後になりますが、他大学から進学してきた私を支えて頂いた先生・スタッフの方々、先輩方、同期、後輩の皆さん、本当にお世話になりました。リクルーターとしてセンターにお邪魔させて頂くかもしれませんが、その際は構って頂けると嬉しいです。2年間本当に有難う御座いました。