

ニュートリノレス2重ベータ崩壊観測のための
液体シンチレータ開発

加藤 領

平成二十四年度

概要

ニュートリノはパウリの仮説から生まれ、ライネスとコーワンの液体シンチレータとPMTと原子炉を用いた観測から実際にあるということが明らかとなった。この液体シンチレータとPMTを用いたニュートリノ観測実験は、リアルタイムによる観測で逆ベータ反応を用いて反電子ニュートリノが識別でき、そのエネルギーが分かる点で極めて優れており、現在でも、KamLANDを始めとしてDouble ChoozやRENOなど様々な実験が行われている。

そのニュートリノの性質を調べる実験にKamLANDを用いた実験で、KamLAND-Zen実験がある。この実験は0二重崩壊と呼ばれる現象を観測するための実験であり、ニュートリノの質量や性質など、多くの謎に答えを出せると期待されている。0二重崩壊とは通常のベータ崩壊がエネルギー的に禁止されており、2つ原子番号が変わる崩壊のみが起きる状態において稀に起きる現象である。前述の条件でニュートリノが2つ放出され原子番号が2つ変わる、2二重崩壊と呼ばれる現象が起きるが、この時に生じるはずのニュートリノが生じない反応が起きる可能性があり、この現象を0二重崩壊と呼ぶ。この現象の観測に成功すると、ニュートリノがマヨラナ粒子であり、荷電レプトンやバリオンなどのディラック粒子とは異なる粒子であると解明できると考えられている。また、ニュートリノがマヨラナ粒子であることが判明すれば、レプトジェネシスやレプトン数の非保存、シーソー機構、ニュートリノの絶対質量、ニュートリノの質量構造など様々な謎に対する答えが得られると期待されている。

0ν 二重ベータ崩壊を観測するための実験であるKamLAND-Zen実験は、液体シンチレータに0二重ベータ崩壊を起こす候補となっている ^{136}Xe を液体シンチレータに溶かしミニバルーンに入れKamLANDに投入し、二重ベータの線をKamLANDで観測する。 ^{136}Xe が選ばれた理由は、Xeは液体シンチレータに非常によく溶け、2二重崩壊が比較的寿命が長く0二重ベータ崩壊観測の際のバックグラウンドが低いからである。このKamLAND-Zen実験の次期フェーズに加圧実験を行うというものがある。一般的に液体に溶解する気体の量は圧力に比例するため、ミニバルーン内に加圧状態で ^{136}Xe で飽和させた液体シンチレータを投入することで、KamLAND-Zen実験の初期の1.8倍以上の ^{136}Xe を投入し観測実験を行うというもので、非加圧実験と比較しサイズの小さいバルーンで実験が可能で、さらにS/N比の高い実験が可能と期待されている。以前の研究から、Xeの溶解度や温度依存性などについては求められており、この加圧実験において他に液体シンチレータに求められるのは、KamLAND液体シンチレータと密度差が0.1%以下であること、そして発光量が90%以上であることである。これらの条件を液体シンチレータが満たすことは、次期フェーズである加圧実験、KamLAND2-Zen実験において重要となるため、これらの課題解決が本研究の骨子である。

目次

第1章	第1章はじめに	3
1.1	ニュートリノ	3
1.2	ニュートリノ振動	4
1.3	CP非対称性	7
1.4	質量階層構造	8
1.5	ニュートリノの質量	9
1.6	宇宙論的制限	10
第2章	ニュートリノレス	
	二重ベータ崩壊	11
2.1	マヨラナ粒子とディラック粒子	11
2.2	シーソー機構	11
2.3	2ν 二重ベータ崩壊	12
2.4	0ν 二重ベータ崩壊	12
2.5	現在行われている	
	0ν 二重ベータ崩壊観測実験と計画中的実験	15
第3章	KamLAND-Zen 実験	17
3.1	KamLAND の紹介	17
3.1.1	概要	17
3.1.2	構造	18
3.1.3	検出原理	19
3.1.4	KamLAND の実績	20
3.2	KamLAND-Zen 実験	24
3.2.1	概要	24
3.2.2	バックグラウンド	25
3.2.3	バルーン	26
3.2.4	液体シンチレータ	27
3.3	KamLAND-Zen 将来計画	28
第4章	Xe 溶解度分布測定	31
4.1	概要	31
4.2	要求性能	33

4.2.1	装置設計	33
4.2.2	性能検証	36
4.3	測定方法	40
4.3.1	測定結果	41
4.4	考察	44
第5章	Xe 加圧下における 液体シンチレータへの影響	45
5.1	概要	45
5.2	装置説明	45
5.3	Xe 溶解度の圧力依存性測定	50
5.3.1	概要	50
5.3.2	実験手順	50
5.3.3	実験結果	51
5.4	発光量の Xe 溶解度依存性測定	52
5.4.1	概要	52
5.4.2	実験手順	52
5.4.3	実験結果	54
5.5	考察	56
第6章	Xe 溶解時液体シンチレータの発光量回復	57
6.1	概要	57
6.2	実験目標	57
6.3	実験方法	58
6.3.1	発光量の PPO 濃度依存性	59
6.3.2	発光量の PC 割合依存性	61
6.3.3	発光量の Bis-MSB 依存性	63
6.4	各種 MO を用いた密度および発光量調整	64
6.4.1	概要	64
6.4.2	解析	65
6.5	加圧実験用液体シンチレータ Xe 溶解度	68
6.5.1	実験結果	68
6.6	実験結果まとめ	69
6.7	考察	69
第7章	結論	70
7.1	謝辞	71

第1章 第1章はじめに

1.1 ニュートリノ

ニュートリノは1930年にW.Pauliによって初めて提唱された粒子である。1930年以前のベータ崩壊の観測実験において、ベータ崩壊前の質量が、ベータ崩壊後の質量と電子の運動エネルギーの和と比較して大きいということがわかっていった。エネルギー保存則が成り立つ際、ベータ崩壊とその際に放出される電子のエネルギーは以下のように表され、この電子の持つエネルギー分布は下図のようになる。

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

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

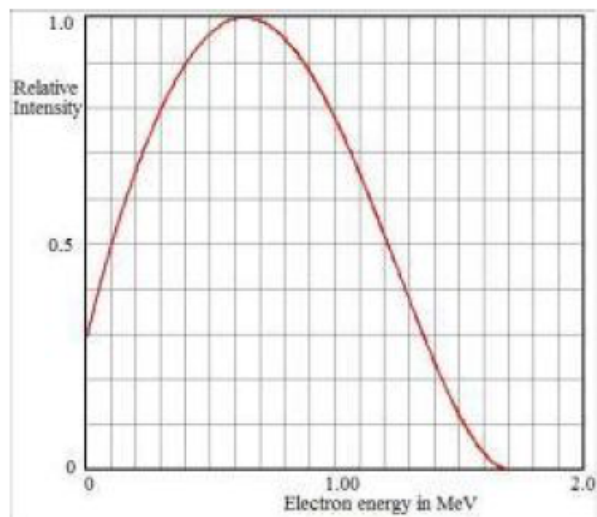


図 1.1: ベータ崩壊エネルギー分布

図のエネルギー分布は(1.1)式で表される運動エネルギーと矛盾しており、この理由をW.Pauliは未知の粒子がエネルギーを取り去っているためだと考え、その未知の粒子をニュートリノ(ν)と名付けた。このニュートリノを含めた考えた際、(1.1)式と(1.2)式はそれぞれ以下のように書き換えられる。

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu} \quad (1.3)$$

$$K = (M_Z - M_{Z+1} - m_e - E_\nu) \quad (1.4)$$

ベータ崩壊の際のエネルギーの総和の矛盾が発見されニュートリノが考案されたのは1930年であるが、この粒子は質量が非常に小さく電荷を持たないため、検出は1956年のF.ReinesとC.L.Cowanの実験が初めてだった。彼らの実験はサドバリー原子炉の近くに液体シンチレータとPMTを使い、陽電子の検出を通じた反ニュートリノを検出するというものだった。これは逆ベータ崩壊を利用したニュートリノの測定であり、(1.3)式を変形することで

$$\bar{\nu} + p \rightarrow n + e^+ \quad (1.5)$$

のように書ける。その後、レーダーマンのAGSを用いた実験からミューニュートリノが、フェルミ研究所のDONUT検出器を用いた実験からタウニュートリノが発見され、ニュートリノは3つの世代を持ち、それぞれ反粒子をもつレプトンであるということが証明された。そのため、ニュートリノについて世代ごとにまとめると、以下の表のようになる

	lepton number 1	mass	lepton number -1	mass
generation 1	ν_e	$>2.2\text{eV}$	$\bar{\nu}_e$	$>2.2\text{eV}$
generation 2	ν_μ	$>170\text{keV}$	$\bar{\nu}_\mu$	$>170\text{keV}$
generation 2	ν_τ	$>15.5\text{MeV}$	$\bar{\nu}_\tau$	$>15.5\text{MeV}$

1.2 ニュートリノ振動

電子などと同様に3つの世代を持つニュートリノであるが、このニュートリノの観測において奇妙な実験結果がKamiokandeの結果から得られていた。それは大気ニュートリノの天頂角分布である。電子ニュートリノの観測結果は予測通りであったのに対し、ミューニュートリノの観測結果は上向きの方角のものに対して半分程度しか観測されなかった。この原因はニュートリノが地球を貫通していく仮定で別のフレーバー、世代に変化したためであると考えられ、この現象をニュートリノ振動という。

このニュートリノ振動が起きる原因は、3種類のニュートリノのフレーバー固有状態とニュートリノの質量固有状態が混合角 θ_{ij} を持ち一致していないためである。簡略化のため e と μ の2つのフレーバーについて考え、2つの混合角を θ とす

ると以下のように書くことができる。

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

このようにフレーバーは質量混合状態が混じった形として表わせ、質量固有状態 ν_i は、 $E_i = \sqrt{p^2 + m_i^2}$ ($i=1,2$) を用いて、

$$\begin{cases} \nu_{1(t)} = \nu_{1(0)} e^{-ip_{1\mu} t} \\ \nu_{2(t)} = \nu_{2(0)} e^{-ip_{2\mu} t} \end{cases} \quad (1.7)$$

(1.6) 式を用いてフレーバーについて書くと

$$\begin{cases} \nu_1 = \nu_e \cos \theta - \nu_\mu \sin \theta \\ \nu_2 = \nu_e \sin \theta + \nu_\mu \cos \theta \end{cases} \quad (1.8)$$

となるから、 $t=0$ のとき $\nu_{e(0)} = 0$ 、 $\nu_{\mu(0)} = 1$ と仮定すると、

$$\begin{cases} \nu_{1(0)} = -\nu_{\mu(0)} \sin \theta \\ \nu_{2(0)} = \nu_{\mu(0)} \cos \theta \end{cases}$$

と表すことができる。よって (1.7) 式より $\frac{\nu_{\mu(t)}}{\nu_{\mu(0)}}$ について求めると

$$\begin{aligned} \nu_{\mu(t)} &= \nu_{\mu(0)} (\cos^2 \theta e^{-iE_1 t} + \sin^2 \theta e^{-iE_2 t}) \\ \Leftrightarrow \frac{\nu_{\mu(t)}}{\nu_{\mu(0)}} &= \cos^2 \theta e^{-iE_1 t} + \sin^2 \theta e^{-iE_2 t} \equiv A_\mu \end{aligned}$$

となり、これは t 秒後の ν_μ の確率振幅となる。ここから t 秒後に ν_μ が別のフレーバーに変化しない確率 P_μ は、

$$P_\mu = A_\mu^* A_\mu = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \frac{E_1 - E_2}{2} t \quad (1.9)$$

と書くことができる。ニュートリノの速度を光速 c 、状態 1-2 間の質量差を Δm_{12} (eV)、飛行距離を L (km)、ニュートリノのエネルギーを E (GeV) とすると、(1.9) 式は

$$P_\mu = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{1.27 \Delta m_{12}^2 (\text{eV}^2)}{E (\text{GeV})} L (\text{km}) \right) \quad (1.10)$$

と表せる。このとき単位系が自然単位系から SI 単位系に変わっている。

この (1.10) 式を見てみると、ニュートリノ振動が起きるということはニュートリノのフレーバー間に質量差が存在することを表しており、ニュートリノに質量が存在するというを表している。この 1-2 間のニュートリノ振動の式を 3 つの

フレーバーについて書くと、以下のようになる。なお、ニュートリノの固有状態を $|\nu_k\rangle$ ($k = e, \mu, \tau$) とし、 c は \cos , s は \sin を、 δ は CP 位相を表す。

$$|\nu_k\rangle = \sum_i U_{ki} |\nu_i\rangle \quad (1.11)$$

$$U = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{-i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}c_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.12)$$

本章に直接の関係は無いが、この大気ニュートリノの測定結果から見積もられたニュートリノの混合角と質量差については、以下のような結果だった。

$$\begin{aligned} \sin^2(2\theta_{23}) &= 0.92 - 1 \\ \Delta m_{23}^2 &= (1.6 - 3.9) \times 10^{-3} eV^2 \end{aligned}$$

この結果から 2-3 間の混合角は最大値に近い値であった。

現在のところ分かっている質量二乗差と混合角は以下の表と図のようになっている。

parameter	value
$\sin^2(2\theta_{12})$	$= 0.87 \pm 0.03$
δm_{21}^2	$= (7.59 \pm 0.20) \times 10^{-5} eV^2$
$\sin^2(2\theta_{23})$	> 0.92
δm_{32}^2	$(2.43 \pm 0.13) \times 10^{-3} eV^2$
$\sin^2(2\theta_{13})$	$< 0.15 (C.L. = 90\%)$

以上のような性質をもつニュートリノであるが、静止質量や θ_{13} 角など、様々な性質が未だに明らかとなっていない。

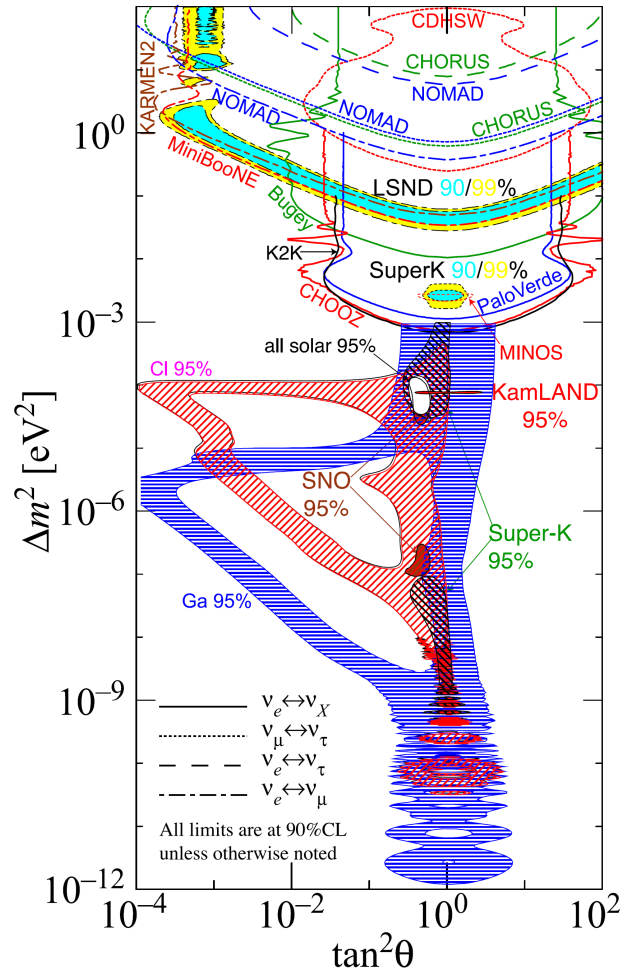


図 1.2: 質量自乗差および混合角の実験的な制限

1.3 CP 非対称性

(1.11) 式において CP 位相 δ という値が出てきたが、これは複素位相角であり、これが 0 でないとき、CP の保存則が破れる。CP 保存則は、電荷 (Charge) とパリティ (Parity) が反転した場合でも同じ物理法則が成り立つというものである。ニュートリノセクターの CP の破れは、後の宇宙論的制限においても説明するが、宇宙に反物質がほとんど存在しない事実を規定していると考えられており、この測定は素粒子物理および宇宙物理において非常に重要である。CP 位相角の測定を目指す実験は J-PARC とスーパーカミオカンデを用いた実験が計画されており、さらなる発見が期待されている。なお、実際の観測にかかる非対称性パラメータ A_{CP} は CP 位相角を含む以下の式で表される。

$$A_{CP} = \frac{P_{\nu_\mu \rightarrow \nu_e} - P_{\bar{\nu}_\mu \rightarrow \bar{\nu}_e}}{P_{\nu_\mu \rightarrow \nu_e} + P_{\bar{\nu}_\mu \rightarrow \bar{\nu}_e}} \times \frac{\Delta m_{12}^2 L \sin 2\theta_{12}}{4E_\nu \sin \theta_{13}} \sin \delta \quad (1.13)$$

式から分かるように、各ニュートリノの振動確率や混合角が CP 対称性の破れの観測において重要であり、今後ニュートリノ観測を通じて CP 対称性の非対称性パラメータが明らかになることが期待される。

1.4 質量階層構造

ニュートリノの質量が 0 でないことは、ニュートリノ振動の観測により証明された。しかし、ニュートリノ振動の実験では各フレーバーのニュートリノの質量二乗差しかわからず、静止質量の絶対値については 0.04eV 以上という下限がつくだけで、絶対値は未だにわかっていない。また、質量の固有値の関係も、互いの質量差が殆ど無い縮退構造 (degenerate) か、あるいは順階層 (normal hierarchy; $m_1 < m_2 < m_3$) か、逆階層 (inverse hierarchy; $m_3 < m_1 < m_2$) なのか未だにわかっていない。この関係性を表した図が下図である。

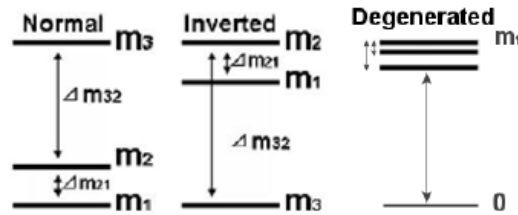


図 1.3: 各質量階層構造

このニュートリノの質量問題は現在の私達が受け入れている標準理論では解明することができない。したがって、ニュートリノの質量を実験的あるいは観測的に決めることが出来れば標準理論を超える素粒子の統一理論に対する大きなヒントとなる。この問題の解決において期待されているのが後述の θ_{13} 二重崩壊観測実験であり、宇宙論である。

詳しくは後の章で述べるが、質量構造はニュートリノの質量と深い関係があり、ニュートリノの質量、および各フレーバーの質量二乗差、混合角などの精密測定や θ_{13} 二重ベータ崩壊観測により、それらの問題解決が行われることが期待されている。

1.5 ニュートリノの質量

ニュートリノの質量二乗差や質量構造に触れて説明したが、根本的な謎、ニュートリノの静止質量については未だに上限値を与えるのみで、下限値などについてはまだ制限が加えられていない。これはニュートリノの質量が軽すぎるため、未だに実験から質量を特定できていないからである。

ニュートリノの質量は1962年の牧-中川-坂田行列が提唱される以前は無いことが自然だと考えられていた。これはニュートリノには右巻きのニュートリノが未だに観測されていないからである。1957年のGoldhaberらの実験から、原子核のベータ崩壊からくるニュートリノのヘリシティがすべて左巻きであることがわかった。その後の実験でも右巻きのニュートリノは見つかっておらず、ニュートリノの質量は存在せず、よって右巻きニュートリノは存在しないと考えられていた。

しかし、MNS行列の考案とニュートリノ振動の発見からニュートリノに質量が存在することが明らかとなった。このことから右巻きのニュートリノが存在するかもしれないということがわかり、その質量が非常に高く、そのため左巻きニュートリノの質量が非常に軽いものとなっているということが考えられるようになった。この質量の機構を説明するのが、シーソー機構であり、これについては次の章で説明を行う。

理論モデルに関係なくニュートリノの質量を測る実験に、KATRIN実験がある。これは三重水素の崩壊のエネルギーからニュートリノが持ち去るエネルギーを測ることでニュートリノの質量を調べる実験である。この実験は0 二重 β 崩壊観測実験などと較べると調べられるエネルギーの範囲は小さいが、質量のモデルがどのようなものであるのかという不定性にかかわらないからである。

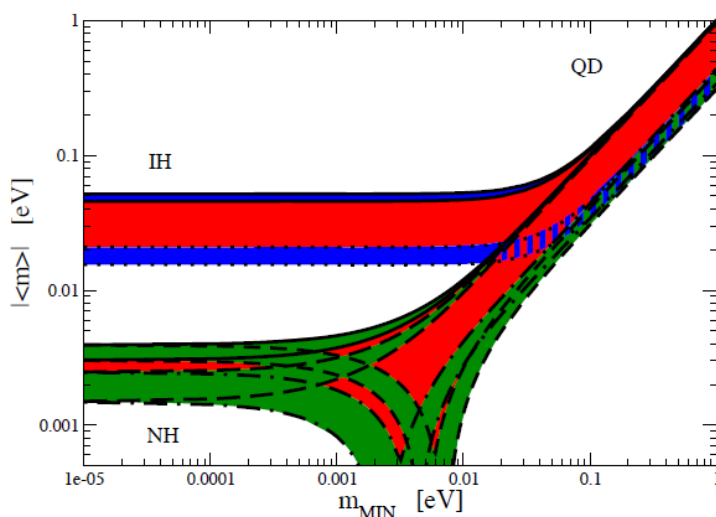


図 1.4: マヨラナ質量と質量階層構造の関係

1.6 宇宙論的制限

地上実験ではニュートリノがマヨラナ粒子である場合、有効質量で 0.03eV 程度までの探索のめどが立っているが、CP 位相などの影響を受けずに絶対質量を測定することは難しい。そこで、宇宙探索を通じたニュートリノ質量の決定が注目を集めている。本節ではその一部について述べる。

宇宙背景放射

初期宇宙においてニュートリノは他の粒子と熱平衡にあったが、温度が 1.5MeV 程度のところに他の粒子との相互作用を断ち自由に運動するようになった。これをニュートリノ脱結合という。さらに温度が 0.5MeV 以下に下がると、電子陽電子が非相対論的になり対消滅を起こし、これらのエントロピーは光子だけに流れる。この前後のエネルギー密度 $\rho_\gamma = aT^4$ (a はステファン・ボルツマン定数) とすると、

$$\rho_{e^-} = \rho_{e^+} = \frac{7}{8}\rho_\gamma$$

$$\left(a^3 \frac{e^- + \rho_{e^+} + \rho_\gamma}{T}\right)_{before} = \left(a^3 \frac{\rho_\gamma}{T}\right)_{after}$$

これから電子陽電子消滅後、ニュートリノの温度は光子より $(4/11)^{1/3}$ だけ低くなる。この結果、現在の宇宙マイクロ波背景放射 (CMB) の温度が 2.725 度であるのに対して宇宙背景ニュートリノの温度は 1.95 度となる。

また、ニュートリノのフリーストリーミングの端数スケールはだいたい非相対論的になる時点までに光速度で走る距離で与えられるが、正確には以下の式で与えられる。

$$k_{fs,i}(z) \sim \frac{0.677}{(1+z)^{1/2}} \left(\frac{m_{\nu,i}}{1[eV]}\right) \Omega_m^{1/2} h Mpc^{-1}$$

このフリーストリーミングスケールより小さなスケールのニュートリノの密度ゆらぎ ($k > k_{fs,i}$) は成長することができず、ニュートリノのパワースペクトルは $k > k_{fs,i}$ の小スケールでは指数関数的に減衰する。これはすべての種類のニュートリノの質量の総和ではなく各々の質量に依存するので、パワースペクトルを精度よく測ることが出来ればすべての種類のニュートリノの質量だけでなく、原理的には各種のニュートリノ質量の関係の情報も得ることができる。仮にニュートリノ質量が 1eV とすると、 $z=6$ で $k_{fs} = 0.096 Mpc^{-1}$ 、 $z=1$ で $k_{fs} = 0.179$ と、ちょうど銀河サーベイで測定可能な値となる。

第2章 ニュートリノレス 二重ベータ崩壊

前章でニュートリノの概要について説明したが、このニュートリノの性質でたびたび質量の話が出てきた。ニュートリノの質量構造、静止質量、右巻きニュートリノの存在とは相互に深く関係する話題であり、これらの研究は様々な実験により行われている。

本章では 崩壊の中でも特殊な崩壊、 $0 \nu \beta\beta$ 二重ベータ崩壊についてニュートリノの性質に触れながら観測の意義について述べる。

2.1 マヨラナ粒子とディラック粒子

粒子には大雑把に分けて2つあり、マヨラナ粒子とディラック粒子に分けられる。ディラック粒子とは自分の鏡写しとなる反粒子が存在する粒子であり、多くのレプトンやクォークがこれに当たる。それに対して、マヨラナ粒子は反粒子が自分自身である粒子であり、光子がこれに当たる。そしてニュートリノについてであるが、レプトン数が逆の反ニュートリノは存在するが、ニュートリノの反粒子が自分自身である可能性、つまりニュートリノがマヨラナ粒子である可能性がある。

仮にニュートリノがマヨラナ粒子であるとき、ニュートリノの質量モデルの点で様々な点があきらかになると考えられていて、これがニュートリノの他の素粒子と比べても非常に軽い質量を説明していると考えられている。また、仮にニュートリノがマヨラナ粒子である場合は特殊な減少、ニュートリノ同士が衝突して消滅するという現象が考えられ、この反応のことを $0 \nu \beta\beta$ 二重ベータ崩壊反応と呼ぶ。この $0 \nu \beta\beta$ 崩壊観測が成功した場合、ニュートリノはマヨラナ粒子である証拠であると考えられており、様々な実験がこの現象の観測のために行われている。

2.2 シーソー機構

ニュートリノがマヨラナ粒子である場合、ニュートリノの軽い質量は大統一理論に基づくシーソー模型で理論的に説明できる。

質量 M を持つ新粒子 N を考え、これが標準理論の群に破れるとき、この質量は

マヨラナ型の質量を持ち、この大きさは大統一理論のスケールである 10^{16}GeV 程度であると考えられる。この時、左巻きニュートリノ ν と新粒子 N は以下のような 2 行 2 列の質量マトリックスを構成する。

$$\begin{pmatrix} 0 & m \\ m & M \end{pmatrix} \quad (2.1)$$

この質量マトリックスの対角化を通して左巻きニュートリノ ν は小さなマヨラナ型の質量 $\frac{m^2}{M}$ を持つ。このためニュートリノがマヨラナ質量を持ち右巻きニュートリノの質量が大きい時、左巻きニュートリノ ν の質量は非常に小さい値となる。

このシーソー機構はニュートリノがマヨラナ粒子であった場合に前述のレプトン数の非保存を予言し、その代表的な例が $0 \nu\nu$ 二重ベータ崩壊である。

2.3 2ν 二重ベータ崩壊

2ν 二重ベータ崩壊反応とは、一度の崩壊反応がエネルギー的に禁止されているが原子番号が 2 つ異なる原子核の基底状態のエネルギーが十分に低いと 2 個の崩壊が同時に起こることが許されるという現象である。

$$(A, Z) \rightarrow (A, Z + 2) + 2e^- + 2\bar{\nu}_e$$

この現象がおきると考えられている粒子は多いが、未だにこの現象が観測されていない原子核も多い。

2ν 二重ベータ崩壊は偶々核の原子核のみに起き、2 つのニュートリノと電子線を放出する。多くの 2ν 二重ベータ崩壊の寿命は長く、次節の表にまとめられているように多くが 10^{20} 年近くとなっている。この 2ν 二重ベータ崩壊を起こす原子核はニュートリノが有限質量を持ちマヨラナ型であれば $0 \nu\nu$ 二重ベータ崩壊という特殊な崩壊を起こすと考えられている。

2.4 $0 \nu\nu$ 二重ベータ崩壊

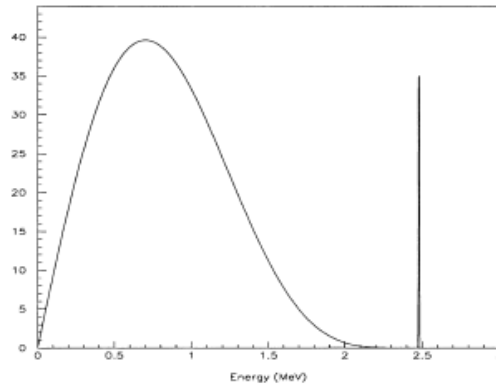


図 2.1: 二重ベータ崩壊における電子のエネルギー

前節で説明した 2ν 二重ベータ崩壊の際に、ニュートリノが放出されない崩壊があり、この現象のことを 0ν 二重ベータ崩壊と呼ぶ。この減少は、本来エネルギーを持ち去るはずの2つのニュートリノが存在しないため、電子のエネルギーのピークが非常に鋭いものとなるという特徴を持つ。

この 0ν 二重ベータ崩壊で重要となる点は、ニュートリノ自身がニュートリノの反物質として振る舞うという点と、レプトン数の変化である。ニュートリノ自身が自分の反粒子として振舞った結果、本来生じる筈だった2つのニュートリノは消失し、反応の前後ではレプトン数が2増えたことが分かる。この反応では明らかにレプトン数の保存が破れている。この現象が起きるためにはニュートリノがマヨラナ粒子である必要があり、もしこれが成り立つならマヨラナ粒子において粒子と反粒子は進行方向に対するスピンの向きで決まるため、ニュートリノに質量があれば右巻きニュートリノが存在しニュートリノの生じない二重ベータ崩壊が起きる。

このニュートリノの生じない二重ベータ崩壊を観測した信頼のある実験は今まで

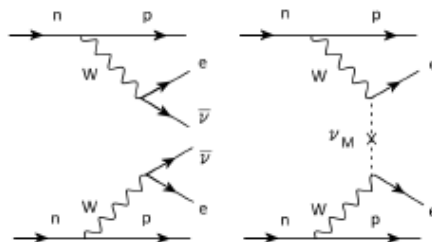


図 2.2: 二重ベータ崩壊ファインマン図

存在せず、この現象の観測はニュートリノの質量構造、静止質量、マヨラナ性の証明など様々なニュートリノの謎についての答えを与えられると期待されている。そのため、次の節で述べるように観測のために様々な実験が行われている。この

ニュートリノを生じない2重ベータ崩壊を起こすと考えられている原子核は、次の表のようになる。

Nucleas	$T_{1/2}^{0\nu}(50meV)$	$T_{1/2}^{2\nu}$ measured(year)	Nat Abundance(%)	Q-value
$^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{48}\text{Ti}$		$(4.2^{+2.1}_{-1.0}) \times 10^{19}$	0.19	4271
$^{76}\text{Ge} \rightarrow ^{76}\text{Se}$	0.86×10^{27}	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^{21}$	7.8	2039
$^{82}\text{Se} \rightarrow ^{82}\text{Kr}$	2.44×10^{26}	$(0.92 \pm 0.07) \times 10^{20}$	79.2	2995
$^{96}\text{Zr} \rightarrow ^{96}\text{Mo}$	0.98×10^{27}	$(2.0 \pm 0.3) \times 10^{19}$	2.8	3351
$^{100}\text{Mo} \rightarrow ^{100}\text{Ru}$	2.37×10^{26}	$(7.1 \pm 0.4) \times 10^{18}$	9.6	3034
$^{116}\text{Cd} \rightarrow ^{116}\text{Sn}$	2.86×10^{26}	$(3.0 \pm 0.2) \times 10^{19}$	7.5	2805
$^{128}\text{Te} \rightarrow ^{128}\text{Xe}$	4.53×10^{27}	$(2.5 \pm 0.3) \times 10^{24}$	31.7	867
$^{130}\text{Te} \rightarrow ^{130}\text{Xe}$	2.16×10^{26}	$(0.9 \pm 0.1) \times 10^{21}$	34.5	2529
$^{136}\text{Xe} \rightarrow ^{136}\text{Ba}$	4.55×10^{26}	$(2.11 \pm 0.25) \times 10^{21}$	8.9	2476
$^{150}\text{Nd} \rightarrow ^{150}\text{Sm}$	2.23×10^{25}	$(7.8 \pm 0.6) \times 10^{18}$	5.6	3367

0ν 二重ベータ崩壊の実験については過去の実験で Heidelberg-Moscow グループによる実験で発見が報告されているものがある。これはイタリアのグランサッソ地下で行われた実験であり、10.9kgの ^{76}Ge を使い、Ge検出器を用いて 0ν 二重崩壊の観測を目的としていた。この実験の結果は以下の図のようになり、この観測結果から実験の一部メンバーは 0ν 二重崩壊の観測に成功したと主張している。

彼らが主張している情報を信じると、 $T_{1/2}^{0\nu}(^{76}\text{Ge}) = 2.23_{0.31}^{+0.44}$ 年であり、 $m_{\beta\beta} = 0.32 \pm 0.03 \text{ eV}$ 、統計誤差が 6σ であるというもので、この主張のことを KKDC claim と呼ぶ。しかしバックグラウンドなどの問題からこの結果については懐疑的な意見もあり、追加検証が求められている。

2.5 現在行われている

0 二重ベータ崩壊観測実験と計画中的実験

0ν 二重ベータ崩壊の観測実験は、崩壊を起こした際の飛跡を記録し測定する実験、反応の際に生じる電子のエネルギーを観測することにより測定を行う実験、崩壊の際に生じる熱量により測定を行う実験の3つに分けられる。そして、電子のエネルギーを測定する実験も、液体シンチレータを用いた実験と半導体検出器を用いた実験と分けることができ、さまざまなアプローチにより 0 二重ベータ崩壊の観測実験は行われている。下表はその各国で行われている実験、およびこれから計画されている実験である。

表 2.1: 現在/過去行われてきた 0ν 探索実験

Experiment	Isotope	$T_{1/2}^{0\nu}$ (yr) (target sensitivity)	$ m_{\beta\beta} $ (eV)	Technique
Heidelberg-Moscow [29]	^{76}Ge	$> 1.9 \times 10^{25}$	< 0.35	ionization
Klapdor et. al. [29]	^{76}Ge	2.23×10^{25}	$< .32 \pm 0.03$	ionization
IGEX [32]	^{76}Ge	$> 2.23 \times 10^{25}$	$0.33 - 1.35$	ionization
DAMA [28]	^{136}Xe	$> 1.2 \times 10^{24}$	$1.1 - 2.9$	scintillator
Nemo3 [31]	^{100}Mo	$> 5.8 \times 10^{23}$	$< 0.6 - 1.3$	tracking
	^{82}Se , etc.	$> 2.1 \times 10^{21}$	$< 1.2 - 2.2$	
CUORICINO [37]	^{130}Te	$> 2.23 \times 10^{25}$	$0.33 - 1.35$	ionization
EXO-200,1000 [27]	^{136}Xe		$0.15 \rightarrow 0.04$	tracking
KamLAND-Zen [26]	^{136}Xe	$> 1.14 \times 10^{24}$	$0.06 \rightarrow 0.025$	scintillator

表 2.2: 現在計画されている 0ν 探索の将来実験

Experiment	Isotope	$ m_{\beta\beta} $ (eV)	Technique
GERDA 2 [39]	^{76}Ge	< 0.11	ionization
MAJORANA [25]	^{76}Ge	0.1	ionization
CUORE [36]	^{130}Te	0.047 – 0.053	bolometric
Super NEMO [31]	$^{100}\text{Mo}, ^{82}\text{Se}, \text{etc.}$	0.04 – 0.14	tracking
DCBA-T2,T3 [35]	^{150}Nd	?	tracking
NEXT-100 [30]	^{136}Xe	0.1	tracking
SNO+ [33]	^{150}Nd	0.1 \rightarrow 0.04	scintillator
CANDLES [34]	^{48}Ca	0.4	scintillator

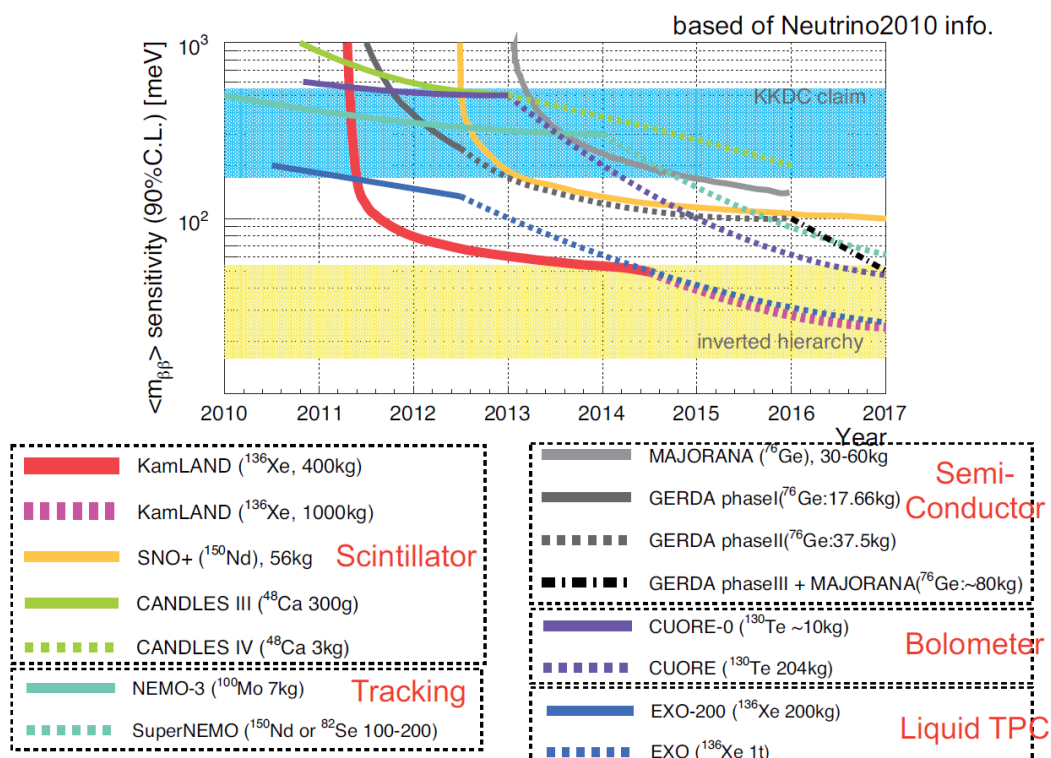


図 2.3: 0ν 二重ベータ崩壊観測実験と到達目標感度

第3章 KamLAND-Zen実験

3.1 KamLANDの紹介

3.1.1 概要

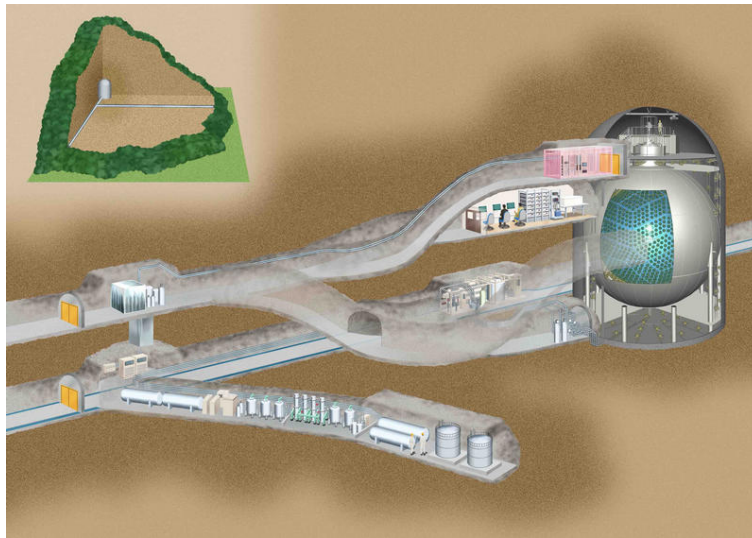


図 3.1: KamLAND 全体

KamLAND(Kamioka Liquid-scintillator AntiNeutrino Detector) は世界でも最大の大型の液体シンチレータ型ニュートリノ観測装置である。岐阜県飛騨市神岡町の池ノ山山頂下 1,000m に設置された 1,000 トン液体シンチレータ型反電子ニュートリノ検出器である。岩盤に覆われた地下に設置することで、水深換算で 2,700m の深さに設置したの同程度の宇宙線遮蔽効果を得られ、宇宙線ミュオンにおいては地上の 10 万分の 1 まで低減することに成功している。KamLAND は超新星ニュートリノバーストの世界初の検出に成功したことで知られる Kamiokande の跡地に設置されている。

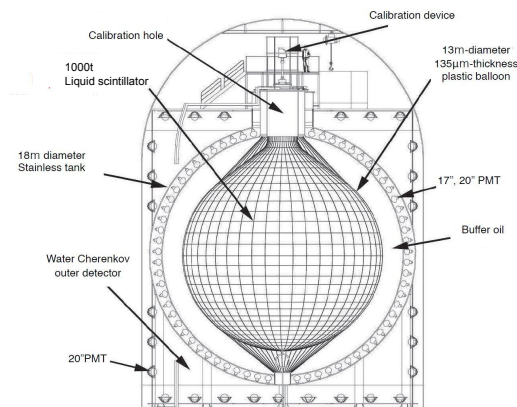


図 3.2: KamLAND 検出器

3.1.2 構造

KamLAND は主に、1879 本の光電子増倍管 (PMT) と 1000 トンにもおよぶ液体シンチレータ、直径 13m 厚さ $135\mu\text{m}$ の EVOH-ナイロン多層膜で構成されている。大型の液体シンチレータ型ニュートリノ検出器であり、近いサイズの液体シンチレータ型検出器は 2012 年現在は Borexino のみである。バルーンの内部に液体シンチレータが閉じ込められ、その周りはバッファオイルで満たされ PMT が設置されている。特に低エネルギーのニュートリノ観測に優れており、高いバックグラウンド性を有している。

液体シンチレータ

液体シンチレータとは、放射線に反応して光る液体である。主に有機溶媒と発光物質で構成され、特にエネルギーの低い放射線の測定に用いられる。これを用いた放射線測定は、バックグラウンドが低く、係数効率が高いという特徴がある。医療や生理化学の分野でも広く使われており、類似のものに乳化シンチレータ、プラスチックシンチレータ等がある。

この放射線に反応して光子を放出するという性質を生かし、後述の PMT と組み合わせて低エネルギーの放射線測定に主に使われる。KamLAND ではこの液体シンチレータを 1,000 トン用いることで、非常に反応性が低いニュートリノと液体シンチレータの間で反応が起きるようにしている。

光電子増倍管

光電子増倍管 (PMT) は光を検出する装置であり、光子一個でさえ検出が可能であるという特徴を持つ。光と金属面の衝突の際に光電効果で放出された電子を

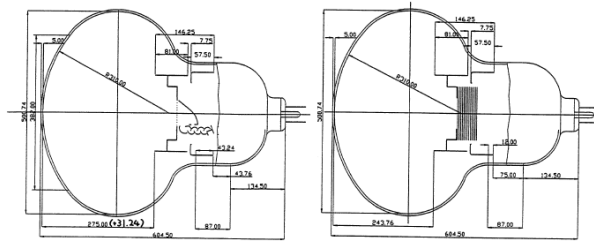


図 3.3: 17inch PMT (左) 20inch PMT (右)

増幅し、増幅された電子を測定することで光を検出している。高い感度を持つため、光の検出が必要となる様々な実験に用いられている。

KamLAND では計 1879 本、そのうちの 1325 本は 17inch の新型 PMT、554 本は旧 Kamiokande で用いられていた 20inch の PMT である。17inch の PMT は Super-Kamiokande 検出器に使われている 20inch のものを改良しエネルギーと時間分解能を向上させたものである。これは旧 Kamiokande のものとは異なり、ダイノード構造部初段がボックス型、後段がライン・フォーカス型のダイノードの多段構造となっている。PMT の端では時間応答と光電子収集率の悪化が見られるため、光電面の外側をマスクし、17inch に制限されている。このため、大きさは 20inch であっても 17inch の PMT と呼称している。これらの PMT による KamLAND の光電面被覆 (Photo Coverage) は 34%、エネルギー分解能は $(\Delta E/E) = 6.4\% \sqrt{E}(eV)$ となっている。

バルーン

KamLAND で用いられているバルーンは $135\mu\text{m}$ の EVOH-ナイロン多層膜により作られている。高い光透過性 (94%以上) と機械的強度を持ち、鉱山の空気中に含まれるラドンの検出器内への侵入を抑えるバリア性を持つ。このバルーンは Kevlar のロープにより支えられ、液体シンチレータとバッファオイル (光らないミネラルオイル) の密度差 ($\Delta\rho/\rho = 0.04\%$) からくる負荷を抑えている。また低エネルギーニュートリノ観測の邪魔にならないよう、材料は支えるロープまでもが低放射性同位体のものをしようしているため、低バックグラウンドを実現している。

3.1.3 検出原理

液体シンチレータは基本的には荷電粒子や線の測定しか行えないが、ニュートリノは液体シンチレータ中で反応や散乱を引き起こすことがあり、その反応を検出することで中性粒子であるニュートリノを観測できる。

反電子ニュートリノは、液体シンチレータ中の陽子と逆ベータ反応を起こす。こ

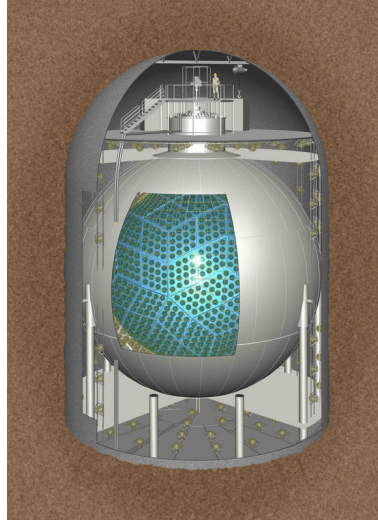


図 3.4: KamLAND 検出器

の際に中性子と陽電子が放出され、陽電子は先発信号として放出され対消滅を起こし、 γ 線を放出する。それに $200\mu\text{s}$ 遅れて中性子が熱中性子となり液体シンチレータ中を走り、中性子捕獲を起こして 2.2MeV の γ 線を放出する。この2つの信号を観測することで、KamLAND は反ニュートリノの観測を行なっている。この検出方法を遅延同時計測と呼び、他の宇宙線ミュオンなどのバックグラウンドと逆ベータ反応を区別して観測することができる。

また、ニュートリノの液体シンチレータ中電子との電子散乱を利用し、検出を行うことも可能である。このとき反応の前後で粒子の種類は変わらないが、反跳電子に与えられたエネルギーによる発光を KamLAND では観測することができる。

3.1.4 KamLAND の実績

KamLAND の功績は低エネルギー領域のニュートリノ観測で著しく、特に列挙すると以下の成果があげられる。

- 原子炉ニュートリノ振動の1周期分のニュートリノ振動観測
- 世界初の地球ニュートリノ観測
- 太陽ニュートリノの ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^7\text{B}$ の観測による太陽の標準模型解析

KamLAND では低エネルギーのニュートリノ観測に優れ、世界トップの低バックグラウンドを生かした観測により、上記のような成果を上げ、ニュートリノ物理において高い評価を得ている。

原子炉ニュートリノ振動

原子炉はUやPuの核分裂を利用し、生じた熱を用いて発電を行なっている。ここで使われる原子は中性子過剰核であるため、中性子ベータ崩壊を伴って安定核に転換し、このときに反電子ニュートリノが放出される。そのため、多くの反電子ニュートリノが原子炉から放出されており、このニュートリノの解析が様々な実験により行われている。この原子炉反電子ニュートリノ解析はKamLAND以前から盛んに行われていたが、検出器のサイズが小さいため測定が行えるエネルギーや距離の範囲が制限されていた。

KamLANDの周囲には出力の高い原子炉が多く存在するため、これを活かし原子炉反電子ニュートリノの振動解析を行った。今までは原子炉反電子ニュートリノの飛行距離が非常に短く、ニュートリノ振動の式のパラメータ L/E が小さい範囲しか測定できなかったが、KamLANDの観測はこのパラメータの非常に広い範囲の測定が可能であったため、原子炉からのニュートリノの振動において、ニュートリノが減少しその後増加に転じるというニュートリノ振動の一周期分の観測に成功した。

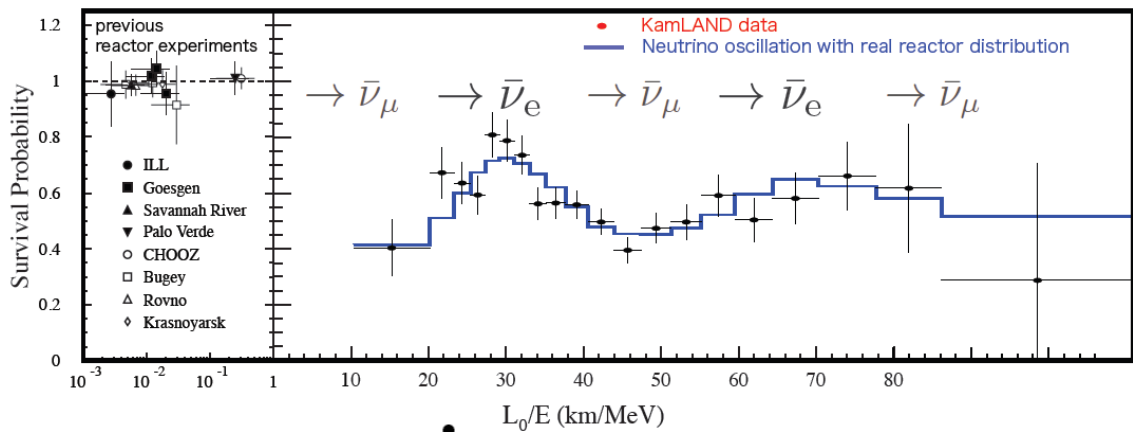


図 3.5: 原子炉ニュートリノ振動

地球ニュートリノ観測

地球内部でU、Th、 ^{40}K などの原子核が崩壊やベータ崩壊などを起こすことで熱が放出されていることは、古くから知られていた。しかし、この地球内部の核反応は観測することが難しく、地球内部の構造や地球の熱史は謎に包まれていた。

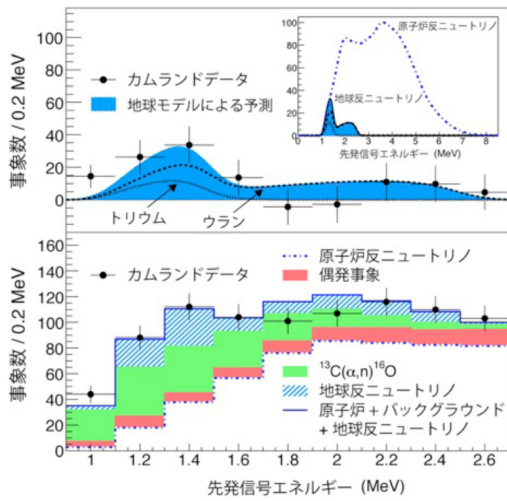


図 3.6: 地球ニュートリノ

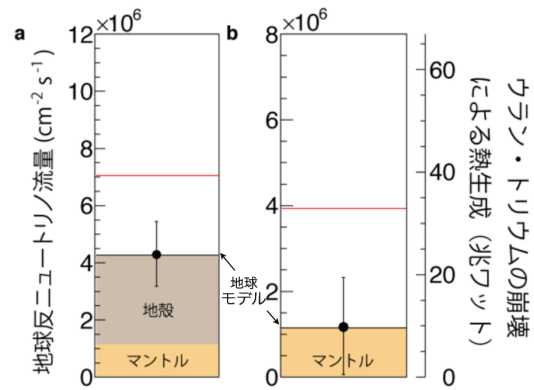
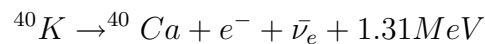
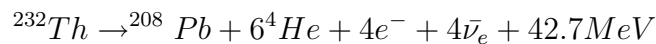
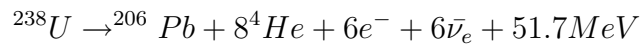


図 3.7: 地球ニュートリノ (熱量)



KamLAND は低エネルギーの観測と低バックグラウンドを活かし地球内部からの式で示された反電子ニュートリノの観測に世界で初めて成功し、地球の放射性起源の熱生成が 21TW と標準地球模型からの予測と良く一致していること、それが地球表面の熱流量 44.2TW の半分程度ということを実証した。また、このことから地球の熱の半分近くは地球形成時の熱が残っているということを明らかにした。

太陽ニュートリノ

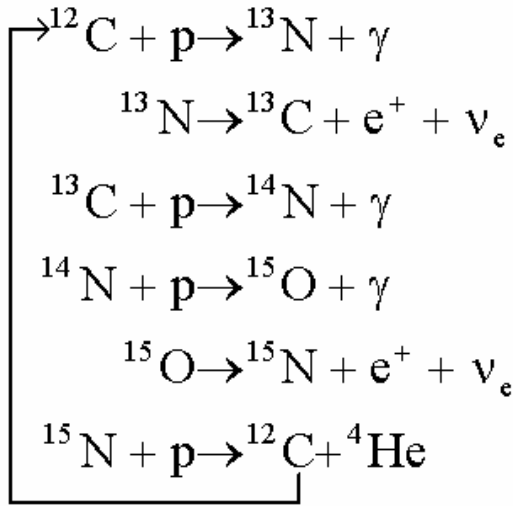


図 3.8: CNO サイクル

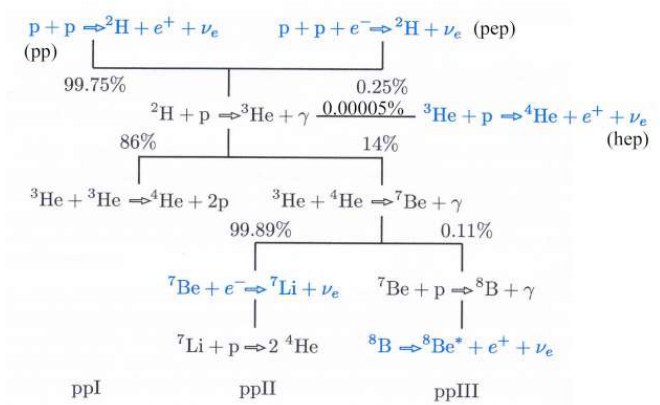


図 3.9: pp チェーン

太陽は核融合により熱を生成しており、内部では上図のような pp チェーンと呼ばれる一連の反応と、少量の炭素、窒素、酸素の原子核が触媒的に作用する CNO サイクルと呼ばれる反応の 2 つの核融合反応によって主に成り立っている。しかし、この太陽からのニュートリノ観測の結果は予想よりも少ない値となっており、標準太陽モデルとの違いが指摘されていた。

しかし、ニュートリノ振動による観測データの説明には不定性が大きく、許されるニュートリノ振動のパラメータ領域は LMA 解、SMA 解、LOW 解、just-so 解のうちどれなのかわからなかった。

KamLAND はこの原子炉ニュートリノの解析と太陽ニュートリノの ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^7\text{B}$ の解析により、LMA 解が最も有力な候補であり、他の SMA 解などである可能性は 1%未満でしかありえないことを明らかにした。

3.2 KamLAND-Zen 実験

3.2.1 概要

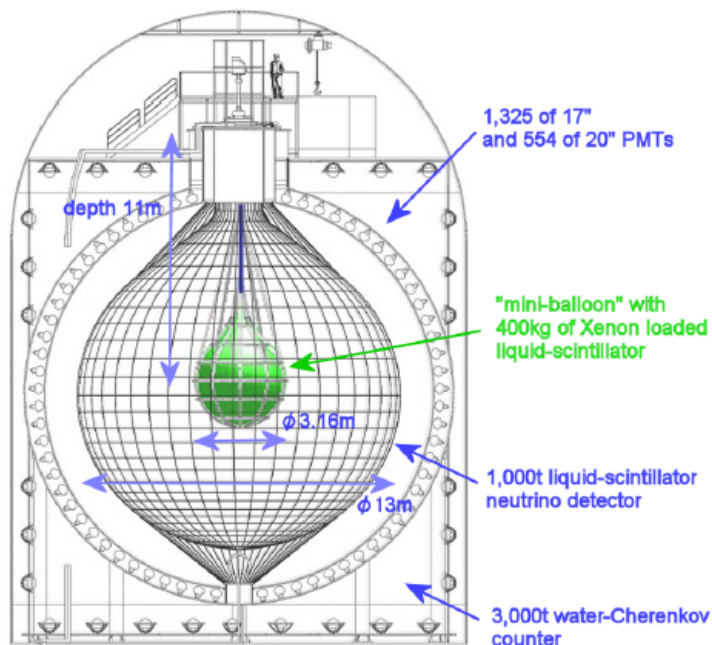


図 3.10: KamLAND-Zen 簡易図

KamLAND-Zen (Zero Neutrino Double Beta Decay Experiment) 実験とは、KamLAND を用いた 0ν 二重ベータ崩壊観測のための実験である。KamLAND 内部に直径 3.16m のミニバルーンを投入し、内部に ^{136}Xe を飽和させた液体シンチレータで満たすことで、ミニバルーン内部の反応を KamLAND で観測するというものである。

KamLAND-Zen 実験において ^{136}Xe を液体シンチレータに溶かして 0ν 二重ベータ崩壊観測を行うのには、以下の 6 つの理由がある。

1. 0ν 二重ベータ崩壊が起きる
2. Q 値が比較的高く、 2ν 二重ベータ崩壊の発生率が低い
3. 同位体の自然存在比率が高い
4. 同位体の濃縮が容易である
5. 希ガスであり、安定で反応性が低い
6. 液体シンチレータに容易に多く溶け、回収も容易

1 から 5 について、前章でもあるように、 ^{136}Xe は 0ν 二重ベータ崩壊を起こしやすく、 2ν 二重ベータ崩壊と 0ν 二重ベータ崩壊の起きやすさの比が $T^{0\nu}/T^{2\nu}=2.16\times 10^5(\text{year})$ と小さい。このため、他の原子核と比べるとバックグラウンドになる 2ν 二重ベータ崩壊が起きにくい。また、常温で気体であり希ガスであるから容易に同位体濃縮でき、他の物質と化合物を作らないため KamLAND に対してダメージを与えないという利点がある。

また、希ガスは有機液体に大量に可溶である。このため、KamLAND の内部には非常に多くの ^{136}Xe を投入することができる。また、実験後には使用した Xe を回収し、再利用することも可能であり、次期実験などにおいて低コストを実現させることができる。

これらの理由から ^{136}Xe を用いた実験は、高い検出感度を低コストで実現できるというメリットを実現することができる。

ここで、単純に KamLAND の液体シンチレータに直接 ^{136}Xe を溶かさな理由は、そうした場合は単位体積あたりの ^{136}Xe が少なくなってしまう、バックグラウンドの影響に 0ν 、 2ν の崩壊の信号が隠れてしまうからである。そのため、単位体積あたりの ^{136}Xe の量を増やすため、高濃度の ^{136}Xe 飽和液体シンチレータをミニバルーンに投入することにより、高い S/N 比を得られる実験を行うことができる。この実験はミニバルーンからのバックグラウンドや、ミニバルーン自体が反応の障害物になり得るため、バルーンは薄く光透過度の高い素材が使われている。

3.2.2 バックグラウンド

0ν 二重ベータ崩壊観測の際に障害となるバックグラウンドは、KamLAND-Zen 実験に多いては以下のようなになる。バックグラウンドについては、 ^{10}C は新開発

表 3.1: 一年で期待されるバックグラウンドと 0ν のイベント数

$^{136}\text{Xe } 2\nu$	^{208}Ti	^{214}Bi	^{10}C	^{11}Be	^8B	Total	$^{136}\text{Xe } 0\nu$
1.93 ± 0.15	1.18×10^{-2} $\pm 0.12 \times 10^{-2}$	3.15 ± 0.01	2.44 ± 0.01	0.20 ± 0.01	1.18 ± 0.02	8.93 ± 0.21	17.79 ± 0.02

のデットタイムフリー回路 (MoGURA) により 90%除去でき、ミニバルーン内部に含まれるバックグラウンドである ^{214}Bi もバルーン内の不純物を除去することにより実験に問題ないレベルを達成できる。

しかし、実験計画当初は DAMA 実験から ^{136}Xe の 2ν 二重崩壊の半減期を 1.2×10^{24} 年以上と見積もっていたが、2011 年 11 月に EXO-200 実験の論文から ^{136}Xe の半減期が $2.11 \pm 0.04(\text{stat}) \pm 0.21(\text{sys}) \times 10^{21}$ であると発表され、この結果がバックグラウンドにどのように影響するのか注意が必要である。

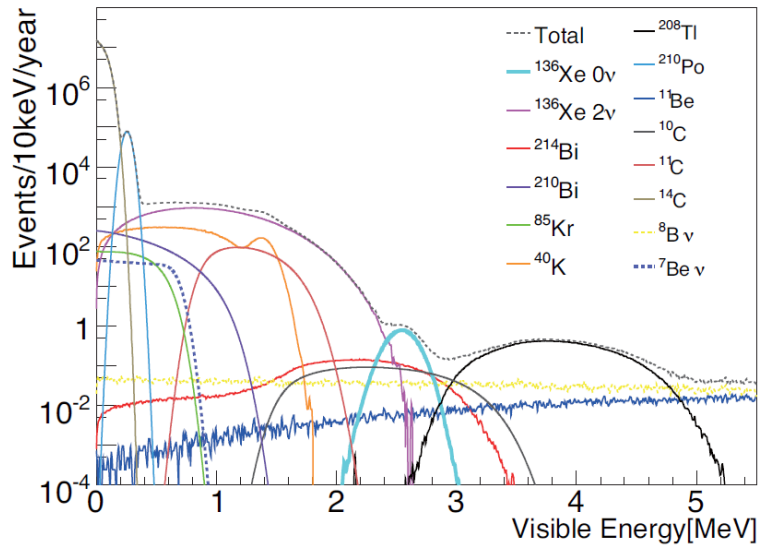


図 3.11: 予測されるバックグラウンドと信号

3.2.3 バルーン

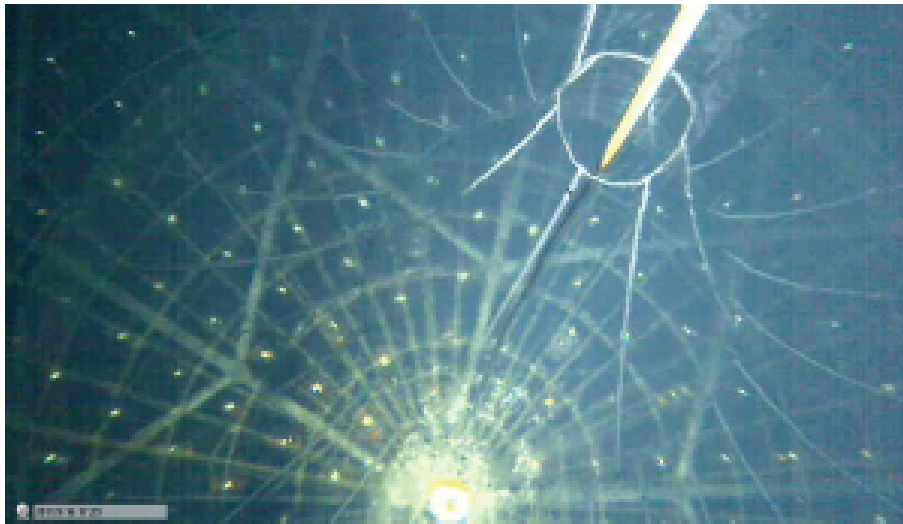


図 3.12: KamLAND-Zen 内部ミニバルーン

KamLAND-Zen で用いているバルーンは、直径 3.14m のしずく型であり、材質は $25\mu\text{m}$ のナイロンであり、24 枚のゴアを溶着し、しずく型のミニバルーンを形作っている。

ナイロンを用いた理由は、機械的強度が高く、光透過度に優れ、優れた Xe バリア性をもち放射性同位体が少ないからである。Xe のバリア性については EVOH の方が優れているが、放射性同位体の含有量と機械的強度の観点から断念した。

ナイロン同士の溶着にはインパルス溶着を用いており、短時間で高い熱をナイロンに加えて溶着を行なっている。一般的なナイロンの溶着には超音波溶着が使われているが、こちらは溶着部のXeバリア性が低いため不採用となった。また、Borexinoでは膜の溶着にレゾルシノールという接着剤を用いているが、これは球の法線方向に対する機械的強度が弱いため長期間の実験においては不安が残り使わなかった。

3.2.4 液体シンチレータ

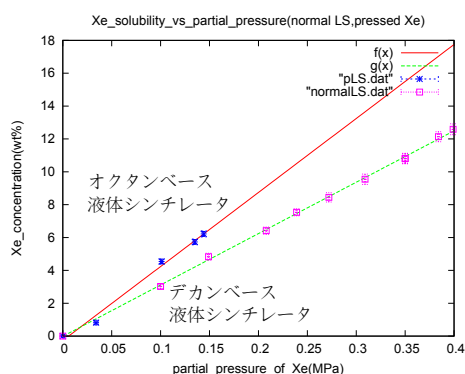


図 3.13: 液体シンチレータの発光

液体シンチレータとは、放射線に反応して光る液体である。主に有機溶媒と発光剤で構成され、特にエネルギーの低い放射線の測定に用いられる。これを用いた放射線測定は、宇宙線からのバックグラウンドが低く、係数効率が高いという特徴がある。医療や生理化学の分野でも広く使われており、類似のものに乳化シンチレータ、プラスチックシンチレータ等がある。

KamLAND-Zen 実験で用いられている液体シンチレータは、KamLAND で以前用いていた液体シンチレータと組成が異なり、Xe を溶かしていない状態では密度が 3wt% 近く軽い。これは Xe を溶かした際に、ミニバルーンの内部と外部で密度差がなるべく小さい値にするためである。各液体シンチレータの組成は、下の表のようになる。

KamLAND 液体シンチレータと比べると、Xe 用液体シンチレータはベースとなるミネラルオイル (MO) がドデカン (N-12) からデカン (N-10) に、発光剤である PPO の濃度が 1.26g/L から 2.7g/L となっている。これは Xe を液体シンチレータに溶かすと発光量が下がるということが分かっているためである。その発光量減少を補い密度の差をなるべく小さくするため、より密度の軽いデカンを用い、PPO の量が増えている。この点については 5 章でより詳しく述べている。

表 3.2: 各液体シンチレータ組成

Liquid scintillator	material	ratio
KamLAND Liquid scintillator	N-12	80%
	PC	20%
	PPO	1.26g/L
Liquid scintillator for Xe	N-10	82.3%
	PC	17.7%
	PPO	2.7g/L

3.3 KamLAND-Zen 将来計画

KamLAND における 0 二重崩壊観測実験の精度をより高めるために、様々な方法が考案されている。大まかに分けると 3 つであり、以下のようになる。

- 加圧 Xe を用いた KamLAND-Zen 実験
- KamLAND-Zen2
- Super KamLAND-Zen

加圧 Xe を用いた KamLAND-Zen 実験とは、加圧状態で液体シンチレータに ^{136}Xe を溶かすことで、大気圧下より大量の ^{136}Xe をミニバルーン内の液体シンチレータに投入する実験である。より大型のミニバルーンを必要とせず、高い S/N 比で高精度の実験を行うという利点があり、比較的少ない改良で Xe の投入量を増やすことができる。ただしミニバルーンのサイズなどの点での限界がある。

KamLAND2-Zen とは、KamLAND の改造を行うことで、PMT、バルーンを大幅に改良し 0 二重崩壊の観測を行う実験である。KamLAND の内部点検の際に、PMT に Winstone corne を取り付け光収集率を高め、上部チムニーを改造しより大型のバルーンを投入できるようにする。この際に用いる ^{136}Xe の量は 1000kg であり、逆階層構造の領域のみではなく標準階層構造の領域までニュートリノの質量構造について調べることができる。

KamLAND2-Zen

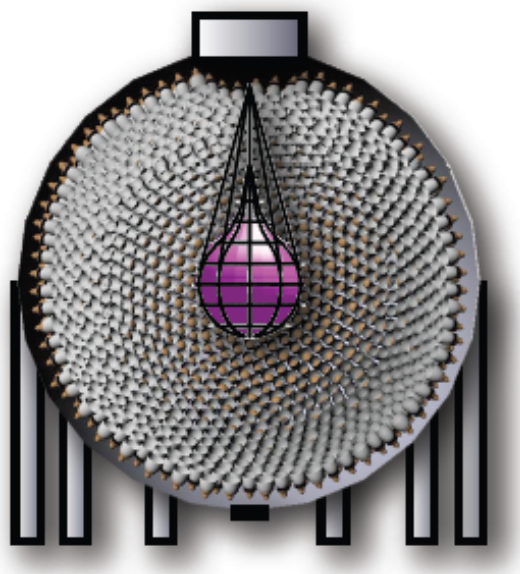
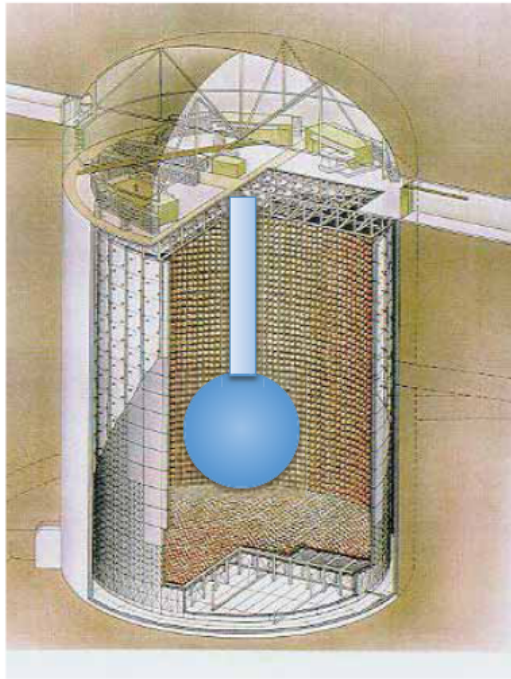


図 3.14: KamLAND2-Zen

Super KamLAND-Zen とは前述の 2 つの実験とは異なり、KamLAND ではなく Super Kamiokande を用いた実験である。ここに KamLAND2-Zen で用いたバルーンを投入し、4 気圧で ^{136}Xe を加圧して溶かした液体シンチレータを投入して行う実験である。これは Super Kamiokande を用いることで、より多量の液体シンチレータをミニバルーン内に入れ、高い感度での実験が可能となる。しかし、改造にかかる費用や研究など様々な問題が残っている。



☒ 3.15: Super KamLAND-Zen

第4章 Xe溶解度分布測定

4.1 概要

KamLAND-Zen 実験において、ミニバルーン内の液体シンチレータは ^{136}Xe で飽和させる予定である。この Xe で飽和した液体シンチレータは Xe をとかしていない液体シンチレータと比較すると 3 % ほど重量が重くなる。液体シンチレータの密度は 0.77721g/ml であり、仮に外部の液体シンチレータとの密度差が 1% となると、バルーン境界面で生じる圧力差は $1.01 \times 10^{-2}(\text{kgf/cm})$ となる。ここで疑問となるのは、Xe の溶解度が液体シンチレータの深さで異なる状態になってしまった場合、バルーンはその圧力差に耐えられるのかという問題である。

まずは、圧力差がバルーンにどのような形で影響するのかを計算する。これに

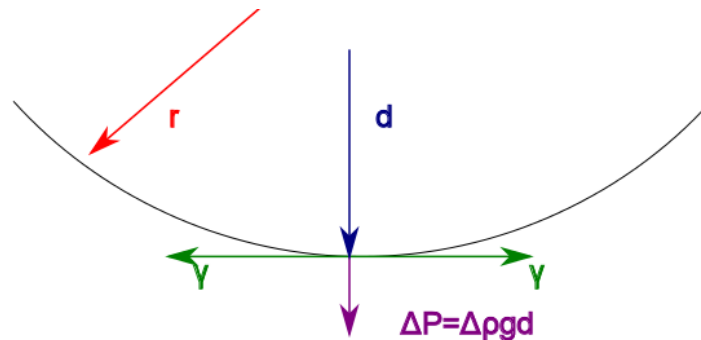


図 4.1: 密度差とバルーン界面の張力

ついては、ヤング・ギブスの法則から圧力差が表面の張力にどのように影響するのかを求めた。まず、単位長さ当たりの張力を γ 、圧力差を δp 、密度差 $\Delta\rho$ 、深さ d 、円の半径を r とする。球の内部の液体と、それを表面の張力で吊り上げてる力は釣り合ってるので、

$$\begin{aligned} 2\pi r\gamma &= \pi\Delta\rho dr^2g \\ \leftrightarrow \gamma &= \frac{\Delta\rho rh}{2} \end{aligned} \quad (4.1)$$

という形で単位長さ当たりの張力を導出することができる。次に圧力差と深さの関係は

$$\Delta p = \Delta\rho gd$$

となるから、2式より圧力 δp を消去し、

$$\Delta \rho g d = \frac{2\gamma}{r} \quad (4.2)$$

が成り立ち、密度差とバルーン境界面にかかる張力について求まる。この式から、バルーンの強度から求まる液体シンチレータの許容密度差を求めることができ、そこから許容溶解度差について求められる。

この式からバルーンが耐えられる限界の密度差を求めると、この実験で用いるミニバルーンの材質は 1cm の小片で 20N までの重量に耐えることができるため、

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = 2.52\% \quad (4.3)$$

とわかる。通常、液体に溶ける気体の量は圧力に比例する。そのためミニバルーン底部はミニバルーン最上部と比較して 1.5 倍近く気体が溶けやすいことになる。そのため Xe が底部に高い溶解度の溜りを作ってしまうとバルーンが変形するおそれがある。そのため、Xe の溶解度分布がどのように移り変わるのかが実際に実験を行い確かめる必要がある。

液中の気体溶解度分布については、熱力学的な計算から理論的に求めることもできる。導出方法については、海洋中のイオン濃度分布について述べた論文 [7] に詳しく述べられているので、ここでは細かい計算は省略する。以下のような数を用いて導出を行う。

R; 気体定数	T; 絶対温度	m_{depth} ; 深さ d の溶解度
$m_{surface}$; 表面での溶解度	M; 溶液の密度	g; 重力加速度
\bar{v} ; 偏比重	ρ ; 溶媒の密度	d; 深さ

$$RT \log_{10} \frac{m_{surface}}{m_{depth}} = Mg(1 - \rho \bar{v})d \quad (4.4)$$

$$\leftrightarrow \frac{m_{surface}}{m_{depth}} = 10^{\frac{Mg(1-\rho\bar{v})d}{RT}} \quad (4.5)$$

ここで、偏比重が 2011 年の修士論文で研究が行われた [6] 液体シンチレータの膨張率から求めることができ、よって深さ d の違いによって生じる Xe 溶解度の差 $\Delta_d m_{Xe}$ は偏比重が 5.76(ml/g) であることから、KamLAND の内部の温度が 15 °C、深さがミニバルーンの直径 3.16m で計算を行い、

$$\frac{m_{depth} - m_{surface}}{m_{surface}} = \Delta_d m_{Xe} \quad (4.6)$$

$$\Delta_d m_{Xe} = 4.48 \times 10^{-7} (wt\%) \quad (4.7)$$

となる。の計算式は熱力学からの導出であるため、理論的には液体シンチレータ中の安定な溶解度分布についても Xe 溶解度が過剰でない限り（上部の気相部の圧力で一様に Xe ガスを溶かした場合）適用できると考えられる。しかし、論文は海中のイオン濃度を求めるためのものであり、液体シンチレータ中の希ガスの溶解度分布の実験については行われていない。そのため、溶解度分布の測定について本実験により新たに行う。

4.2 要求性能

液中の気体の溶解度分布測定については、専門の実験器具は販売されておらず、実験室における実験も行われていない。そのため、測定のためには専用の実験器具の制作が必要となった。設計の際には性能や機能などの様々な要素が求められ、本項ではその要素について説明する。

4.2.1 装置設計

安全ファクターを 10 倍に設定し、許容密度差について求めると (4.3) の 10 分の 1 であるから

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} \doteq 0.252\% \quad (4.8)$$

このため性能については最低限この Xe 溶解度差を測定できる性能をもつ液中の気体濃度測定装置を用いる必要がある。加えてミニバルーン中の Xe 溶解度分布を再現するために、器具の全長は最低 3m が望ましい。さらに KamLAND の内部の温度分布を再現するために、器具の温度分布は上下差が 1 度未満で無くてはいけない。そして、分布を測定するために最低 3 箇所の高さから液体シンチレータ中の Xe 溶解度分布を測定できるデザインでなくてはいけない。当然、器具の内部のガスが外部に漏れるような性能では測定はできない。まとめると、以下のようなことが求められる。

- Xe 溶解度測定分解能 0.1 以上
- 器具全長 3m 以上
- 温度差 1 度未満
- サンプリングポート 3 つ箇所以上
- 気密性良好

以上の要求から、装置は次のような形となった。

全体設計



図 4.2: Xe 溶解度分布測定装置



図 4.3: Xe 溶解度分布測定装置

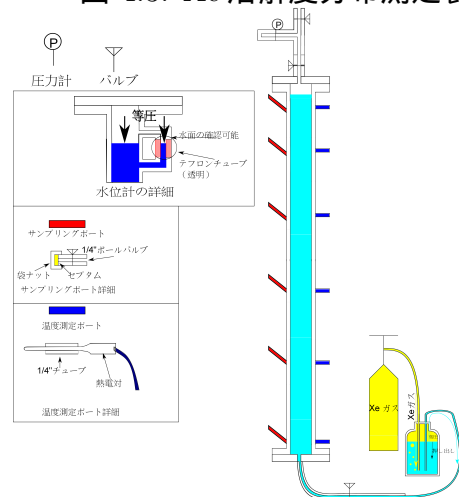


図 4.4: Xe 溶解度分布測定装置略図

器具の冷却には株式会社エスケーで販売されている熱交換チューブと冷却水循環装置を用い、内部を冷却する構造となっている。上部にはマンメーターと圧力開放弁を設置し、ガスのコントロールを行う。上部に圧力差を利用した液面計を設置しており、常に液面が確認できる設計となっている。液体シンチレータは上部下部両側から投入することができ、最下部ポートからガスを流すことができる。

ポート部設計



図 4.5: ポート部拡大



図 4.6: 熱電対 (温度ポート内部)

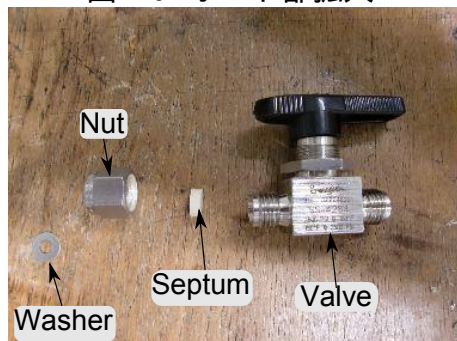


図 4.7: サンプルングポート構造

サンプルの採取を行う箇所の温度は常に記録し、採取した点の温度が分かる構造となっている。サンプルの採取の際にXeが外部に漏れないよう、ポート部はバルブとセプタムの二重密閉を行い、サンプルの採取の際にはセプタムに直接シリンジを突き刺し採取する。サンプルのXe溶解度はTCDガスクロマトグラフィー(後述)を用いる。この測定精度については次のセクションで説明を行う。なおセプタムとはシリンジを通して自然に穴が塞がるゴムであり、ガスクロマトグラフィーのサンプル注入口などに使われる。

4.2.2 性能検証

装置の設計は前セクションのようになってきたが、これらが測定において十分な性能を有しているか実験を行う前に確かめる必要がある。この章では、各性能についての検証について説明する。検証の内容は以下に記す。

1. Xe 溶解度分布測定能力
2. ガス密閉性
3. 温度安定性

Xe 溶解度測定- TCD ガスクロマトグラフィー-

高さの違うポートから直接サンプル中のXe溶解度測定を行うという必要性から、測定にはTCDガスクロマトグラフィーを用いる。TCDガスクロマトグラフィーとは、液体サンプルに含まれるガスの分析を行う実験装置である。ガスの電気伝導率の違いとクロマトグラフ中の流速の違いを利用し、サンプル中のガスを分離し各ガスの量を測定できる。



図 4.8: TCD ガスクロマトグラフィー写真

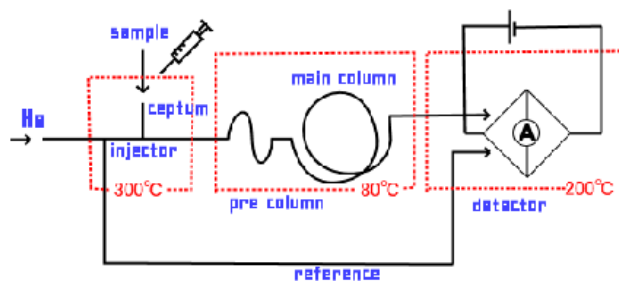


図 4.9: TCD ガスクロマトグラフィー概略図

この器具を用いて測定を行う理由は、測定に必要なサンプル量が非常に少ないことと、高い精度で Xe の溶解度を測定することの 2 点である。測定時間が若干長めではあるが、目的が液体中ガスの安定的な溶解度分布であり、内部の対流は冷却水で抑えるので問題が無いと判断した。

TCD ガスクロマトグラフィーの性能および特徴は以下に示す。

- 溶解度測定誤差 $< 1.45 \times 10^{-2} wt\%$
- 最小感度 $= 7.54 \times 10^{-3} wt\%$
- 測定に必要な試料の量 $= 1 \mu l$
- 測定時間 $= 15$ 分

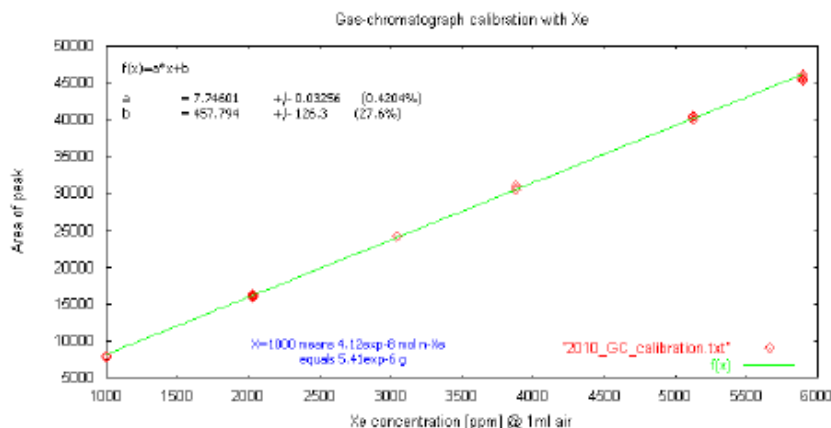


図 4.10: TCD ガスクロマトグラフィー校正曲線

気密性 -ガスリークチェック-

気体の装置からのガスの漏れ量の見積もりには、ヘリウムリークテストを用いた。この方法は、器具の内部にヘリウムを密閉し、外部からヘリウムリークディテクターを用いてヘリウムの漏れ量を図るという方法である。ヘリウムは分子が非常に小さく、使用予定圧力より若干高圧で試験を行えば Xe の漏れ量の上限值を与えられると考え、この試験を行った。

具体的には、各ポート部をナイロンの袋で覆い、その袋の内部にスニッファーというディテクターを繋ぎ、各部の漏れ量を見積もった。測定の結果は最下部と水位計からのリーク量が大きかった。各ポートからの Xe 漏れは小さい値に抑えられ、結果は以下のようになった。(単位 $Pa m^3/s$)



図 4.11: ヘリウムリークディテクター

$$\begin{aligned}
 BG &= 6.5 \times 10^{-7} \\
 \text{ポート部平均} &= 6.5 \times 10^{-7} \\
 \text{水位計} &= 1.0 \times 10^{-6} \\
 \text{器具最下部} &= 1.0 \times 10^{-6} \\
 \text{合計} &= 7.0 \times 10^{-7} = 16.94(\text{ml/month})
 \end{aligned}
 \tag{4.9}$$

ただし、製作時に発泡試験からポートの付け根部より発泡が見られたため、今後同型の測定器を作る際には注意が必要となる。

温度安定性

KamLAND の内部は対流が生じないように温度管理が行われている。この環境を本試験においても再現することは重要であり、液体シンチレータ中 Xe 溶解度分布に偏りが無い場合にそれが対流の影響でないと証明する必要がある。そのために器具の温度分布もまた KamLAND の温度分布よりも差が小さくしなければならない。

温度の安定化のためには、前項でも説明したとおり、冷却水循環装置と熱交換チューブを用いることで、冷却を行った。この際に二重管（二重構造の管。外側に冷却水、内側に試料を入れる）を用いなかった理由は、側面部にポートを作るため測定難易度が高かったため、工場では制作が難しかったからである。冷却管の巻き方については、螺旋巻きや二重巻きなどの試行を行ったが、冷却器の性能上から単純に器具に縦に沿わせるだけのものが最も温度分布差が低かった。また、器具と冷却管の間にナイロンテープを挟み、巻回数を変えることで温度の微調整を行った。温度分布の測定結果は以下ようになった。

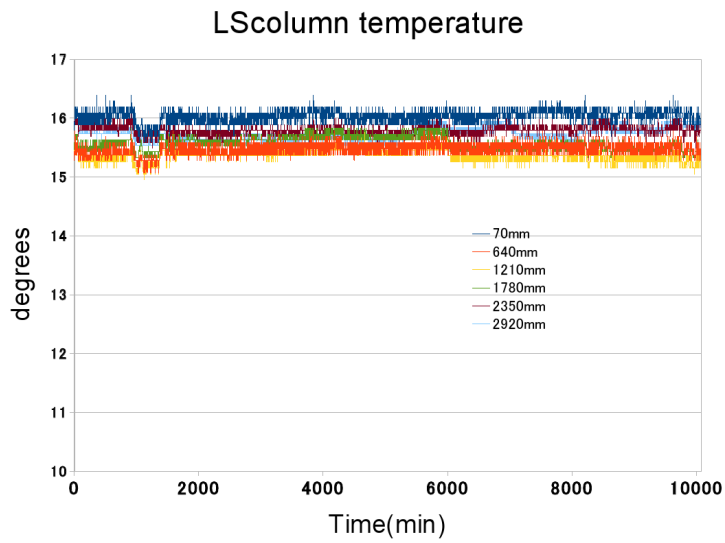


図 4.12: 器具内温度分布日数変化

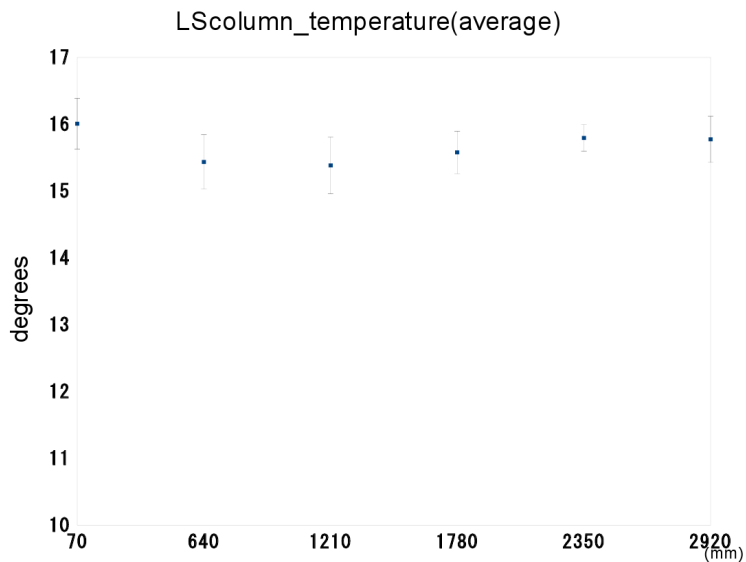


図 4.13: 器具内温度分布の各ポート平均

以上の結果から、器具内の温度分布差および時間変化は非常に小さく、KamLAND 内部の環境を再現しているため、測定において問題が無いということがわかった。次章からは測定の結果について述べる。

4.3 測定方法

実験の目的は、Xe 溶解度が上下で一定の濃度となった後にどのような安定状態になるのか、という点を知ることにある。そのため、測定は数日おきに分けて測定を行う。具体的には以下のように行う。

初回準備

1. 実験器具の内部を Xe で満たす。この時、内部のガスを TCD ガスクロマトグラフィーで測定し、内部のガスが Xe で置換されていることを確認する。
2. 液体シンチレータを 15 度に冷やし、Xe でバブリングを行い飽和させる。



図 4.14: バブリング・液送用ボトル

3. 2 で用いたボトルを使い、液体シンチレータを Xe で押し出して実験器具の内部に押し出す。この際、上下フランジにはバルブを装着し、液体シンチレータを充填した後に密閉できるようにする。
4. 液体シンチレータを器具内部に詰めた後、横にした状態で Xe 溶解度を測定する。この Xe 溶解度が一定になっていることを確認し、器具を縦に立てる。なお、器具から Xe 溶解度の測定を行う方法は、次項の測定方法に記載する。

測定

1. サンプルポートのバルブの先に、しっかりとセプタムがナットにより設置されていることを確認する。
2. 温度が各ポート間で一様であることを確認する。
3. バルブを開き、ポートからマイクロシリンジを用いてサンプリングを行い、TCD ガスクロマトグラフィーで測定を行う。サンプリング後はバルブを閉じる。
4. (3) の測定を各ポートに対して行い、すべてのポートの Xe 溶解度を測定する。
5. 1 から 4 の操作を数日おきに行い、2ヶ月にわたり測定を行う。

この測定結果は次章の測定結果の章で説明する。

4.3.1 測定結果

測定は 59 日間行った。気密性の章でも述べたように、器具には若干のリークがある。そのリーク量から見積もられる器具内の Xe 量の減少量と、各ポート間の Xe 溶解度平均から見積もられる器具内 Xe 量を比較し、測定中に Xe 漏れが起きていないかについて調べる。結果は以下のグラフのようになった。

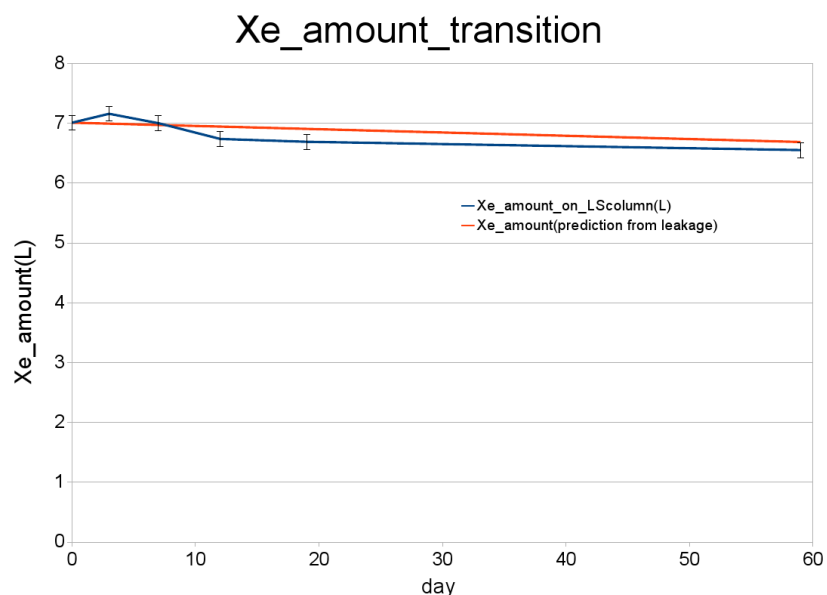


図 4.15: 平均 Xe 溶解度の推移

このグラフから、器具内のXe量の減少は器具のリークから見積もられる量から大きく外れる値ではなく、Xeが器具から有意に漏れていないということが分かる。

次に、各ポートのXe溶解度の推移について調べる。各ポートのXe溶解度がどのように移り変わっていったのかは、特定のポートのXe溶解度分布が高くなりやすいのかを知るために必要な情報である。結果は以下ようになった。

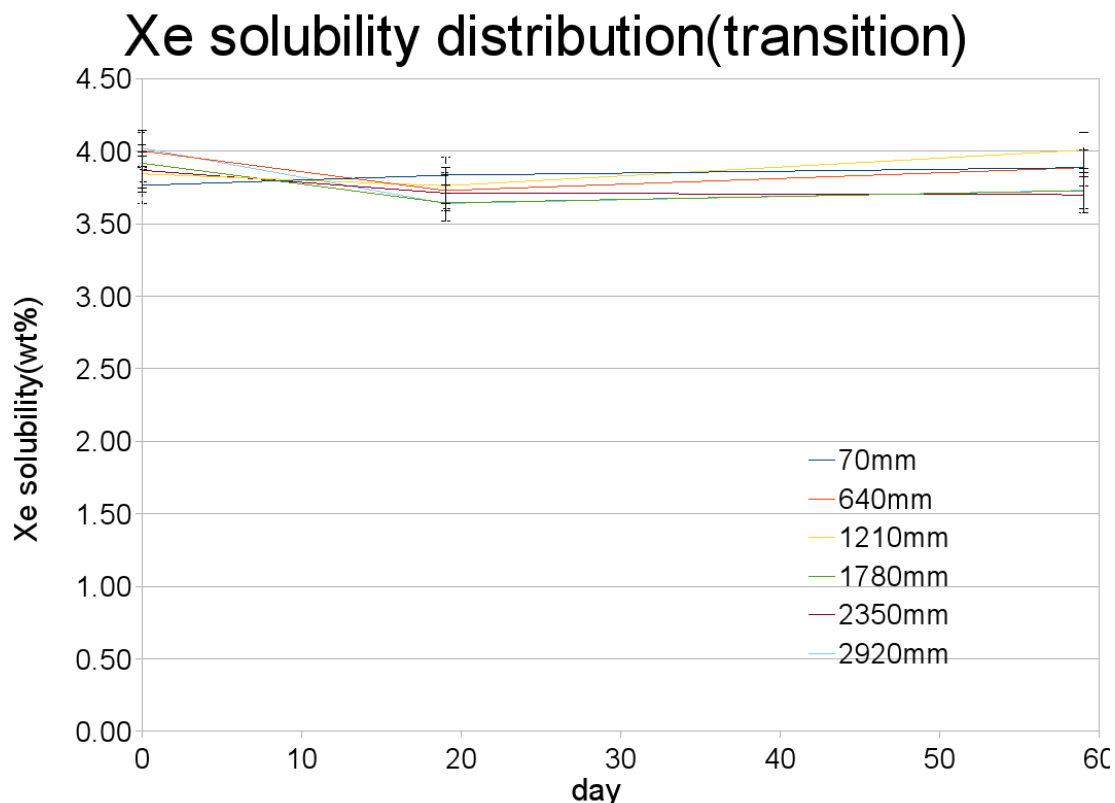


図 4.16: Xe 溶解度のポートごと日数変化

このグラフから、特定のポート、特に最下部のポートのXe溶解度分布が明らかに増加していく傾向も、最上部のポートのXe溶解度分布が明らかに低くなっていく傾向も見られなかった。

次に、Xe溶解度分布の経過日数毎の違いを見る。こちらは、特定のポートのXe溶解度に偏りが見られるのかを調べるためのものであり、前のグラフを日にちごとに見やすくしたものである。

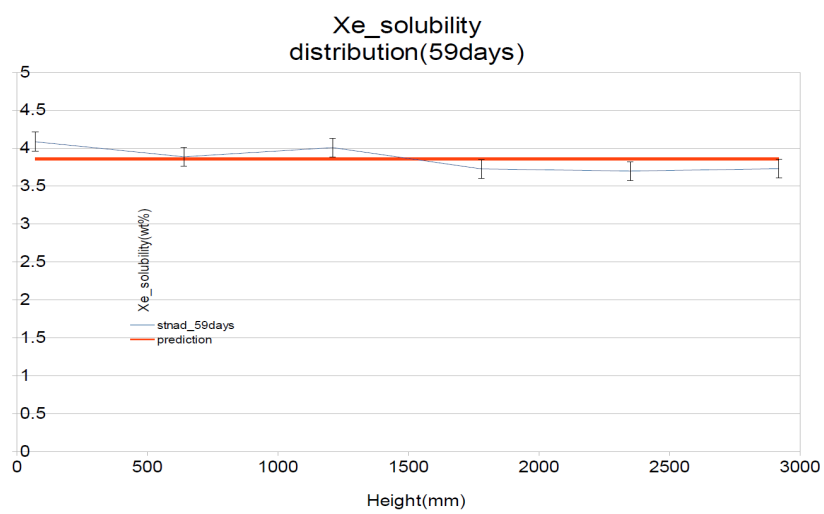
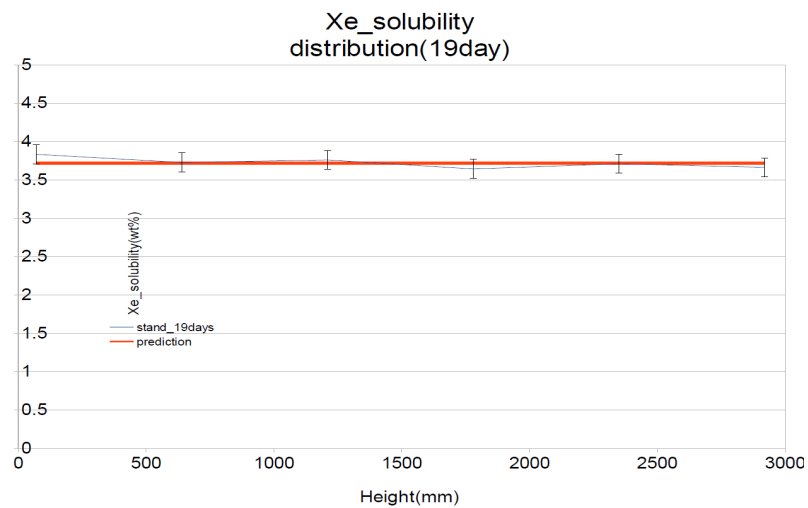
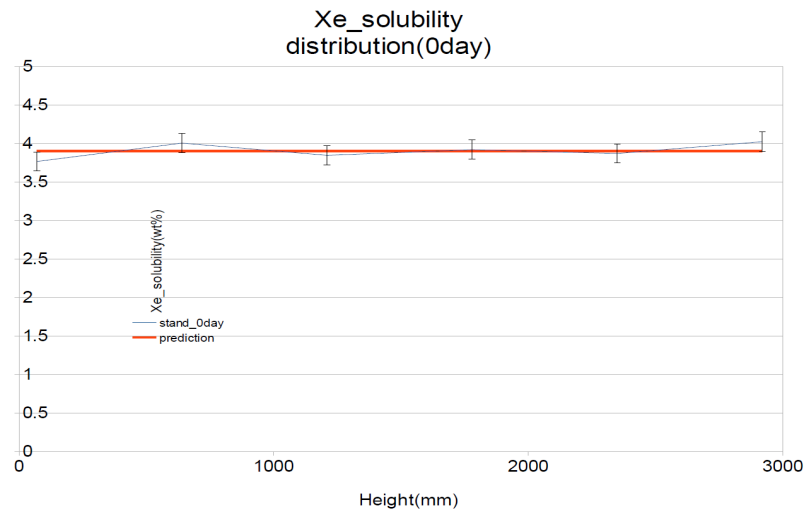


図 4.17: Xe 溶解度の分布変化

これらの結果から、どの日のデータも誤差範囲で一致しており、明確な Xe 溶解度の差は生じ得ないことがわかった。また、Xe 溶解度分布については生じ得る最大の Xe 溶解度の差は、実験結果より

$$\Delta_d w_{Xe} = 1.70 \times 10^{-1} (wt\%) \quad (4.10)$$

となることがわかった。

4.4 考察

実験結果から求められる、生じうる Xe 溶解度差から生じる密度差は $1.70 \times 10^{-1} (wt\%)$ であるから、予定してたほどの精度は得られなかったものの明確な密度差は生じず、実験を行ううえで明らかな不都合は起きないと考えられる。明らかな不都合とは、バルーンの変形、 ^{136}Xe 崩壊反応の偏り、などである。

なお、この実験結果は大気圧下による測定であるので、加圧実験においても同様であるかは追加の実験が必要となると予測される。

第5章 Xe加圧下における 液体シンチレータへの影響

5.1 概要

KamLAND-Zen 実験の次期フェイズにおいては、加圧実験が行われる予定である。単純に考えた場合は、加圧したことにより単位体積中に溶ける Xe 量が増え S/N 比が増加するため、観測上で入り込むノイズ等が減りより高精度かつ高感度な実験ができるということになる。しかし、実際に Xe を液体シンチレータに溶かした際にどのような影響が生じるかについての研究は少なく、加圧した際の振る舞いについては全く研究は行われていない。そのため、実際に加圧実験を行った際にどのような影響が生じるのか、その影響は KamLAND-Zen の加圧フェイズにおいてどのように関わるのかについて調べる必要がある。

加圧した際に生じる影響として重要な点は2つあり、溶解度と発光量である。前者は加圧実験を行うことによる利点、つまり加圧によりどれだけ溶かせる Xe の量が変わるかを明確にするためのものである。後者はその逆で欠点、Xe を溶かすことでどの程度発光量が変化するかという点について調べるためのものである。本章ではこの2点を中心として液体シンチレータに高圧で Xe を溶かした時の影響についてまとめる。

なお、以下の章で $LY\ rate$ という値が出るが、実際の KamLAND の液体シンチレータの発光量を基準とし $LY_{KamLAND}$ 、測定した発光量を LY_{sample} とすると、

$$LYrate = \frac{LY_{sample}}{LY_{KamLAND}} \quad (5.1)$$

とする。

5.2 装置説明

発光量の測定には後方散乱測定を行うが、従来の測定器具ではバイアルを用いるため、高圧状態にサンプルを保ちながら発光量の測定をすることは難しい。そのため、測定のための装置を作成した。

測定のために必要な装置は、液体シンチレータを高圧に保ちながら Xe で飽和さ

せることができる容器であり、その液体シンチレータ中の Xe 溶解度を知るための機能も必要となる。また、実験室の温度は 22 であり、KamLAND の内部の温度の 15 と比べるとだいぶ高くなっている。この温度の影響は 2011 年の修士論文 [6] で行われており、温度差の影響をこの式を用いて校正を行った場合、Xe 溶解度を $m(t)$ 、温度を t (K) とするとこれは関数を用いて、

$$m(t) = b \exp\left(\frac{a}{t}\right) \quad a : 1.19 \times 10^3 \pm 21.81 \\ b : 5.29 \times 10^{-2} \pm 3.99 \times 10^{-3}$$

と表すことができるとわかっており、これから校正の際に入り込む誤差を求めると

$$error = \frac{m(15)_{max} - m(15)_{min}}{m(22)} \times 100 = 33.4\%$$

となり、生じる誤差が大きなものとなる。よって、温度の校正では Xe 溶解度を正確に知ることができないため、実際に温度を 15 にする必要がある。

1. 気密性
2. 発光量の測定
3. Xe 溶解度の測定
4. 温度安定化

以上の特徴を満たす実験装置を設計した所、以下のような形となった。



図 5.1: 加圧試験容器外観

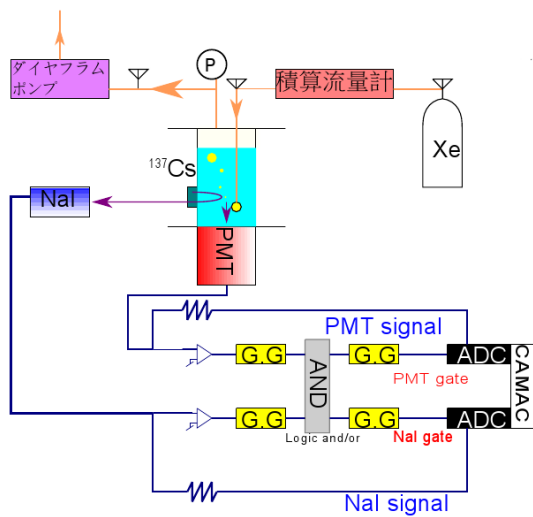


図 5.2: 加圧試験装置略図

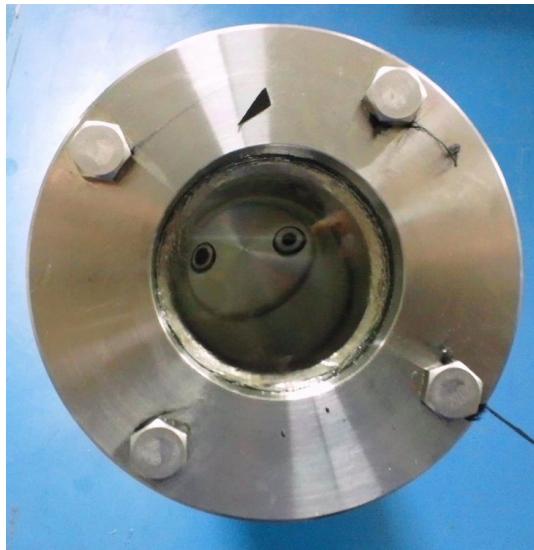


図 5.3: 加圧試験容器内部

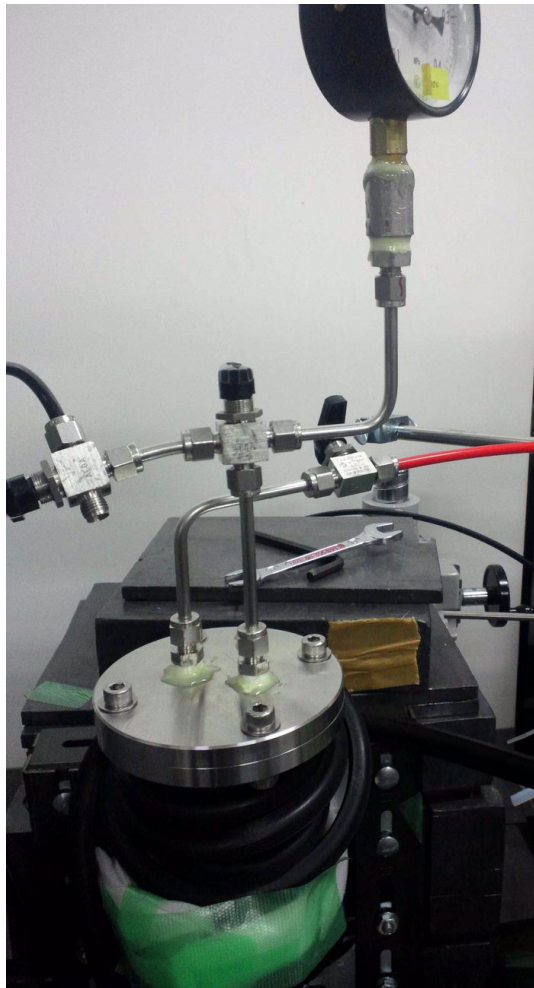


図 5.4: 加圧試験容器測定セットアップ

耐圧性は、安全情報センターの基準に従い計算を行った。圧力容器の底部のガラスは石英製であり、直径 60mm 厚さ 5mm なので、ガラス板厚さを $t(\text{mm})$, 最高使用圧力を $P(\text{MPa})$, 許容曲げ応力 (素材に固有のもの) を σ_b , ガラス板の面積を A とすると、許容曲げ応力は曲げ強さの $\frac{1}{10}$ で与えられ、石英ガラスの曲げ強さは 69MPa であるから

$$t = 5\sqrt{\frac{PA}{\sigma_b}} \quad (5.2)$$

$$\leftrightarrow P = \frac{t^2\sigma_b}{25A} = 6.1\text{MPa} \quad (5.3)$$

となる。これは Super KamLAND-Zen で要求されている圧力の 20 倍であり、加圧実験のみならず、さらなる将来計画において必要となる値を測定することができる。なお、使用圧力の 2 倍の 0.6MPa に耐えられるようにする場合、必要な石英ガラスの厚さは 1.57mm である。

容器が使用圧力に耐えられることはわかり、次の問題は容器からのリーク量の見積もりである。上部フランジ部はヴァイトンのゴムパッキンを用いているが、下部フランジのガラスと穴あきフランジの接続は液体シンチレータへの溶け出しの問題からパッキンを用いることができない。そのため、この部分からのリークの恐れがある。

この部分の接合についてはボルトを用いて接合を行い、締め具合の調整を行いながら、リーク量の測定を行った。リーク量の測定は前章と同様にヘリウムリークテストを行った。微調整は石英ガラスの破損を避けるためである。この最終的なリーク量 L は、以下ようになった。

$$L = 9.75 \times 10^{-2} (\text{mL/hr})$$

この量は容器内部の液体シンチレータに大気圧かで溶けると予測される Xe 量の 10 万分の 1 であり、長期間の測定においても問題が起こらないということがわかった。

Xe 溶解度の測定については、高圧条件での測定の性質から TCD ガスクロマトグラフィーでの測定は難しい。使用圧力が 0.15MPa を超えると、容器からサンプリングする際に大気圧に戻った瞬間に液体シンチレータが沸騰し、正しく Xe 溶解度が計れなくなってしまうため、TCD ガスクロマトグラフィー以外の測定方法を考える必要が生じた。

この測定については、積算流量計と圧力計の併用で Xe 溶解度を計算する方法を採用した。気密性が高い容器を用いているため、流入量と圧力で十分な精度の Xe 溶解度を導出することができる。

温度の安定化については前章と同様に冷却水循環装置と熱交換チューブを用い

ることとした。発光量の測定については、底面が石英ガラスであるから問題なく測定ができる。以上の結果から、設計した装置を用いた測定は問題が無いということがわかった。

ダイヤフラムポンプ



図 5.5: ダイヤフラムポンプ

ダイヤフラムポンプとは容積移送式ポンプの一種であり、小型で強力で、外気が実験室系に混入し難いという特徴を持つ。このため本実験で液体シンチレータ中のガスの真空引きに用いた。真空引きを行う理由は、後述の積算流量計と圧力計を用いて Xe 溶解度を算出する上で、器具内に投入し液体シンチレータに溶ける Xe の量を正確に知る必要があるからである。

積算流量



図 5.6: 積算流量計

積算流量計とは、器具に流れた気体の体積の合計を記録できる器具である。本実験で用いたのはコフロック製 MODEL8500 マスフローコントローラー。500SCCM(Standard Cubic Centimeter per Minute) の流量に対して $\pm 0.1\%$ の精度でキセノンの流量を計測できるように較正されている。なお、ここでの SCCM は温度 20 のとき

の値 31(ANR;Atmosphere Normale de Reference) を基準としている。

この流量計は熱式質量流量計といい、発熱体にサンプルの気体を流し、その質量流量に応じた発熱体の抵抗変化を測定することで気体流量を測定している。最大 10,000cc までの測定で 10cc 以下の精度を持つ。

5.3 Xe 溶解度の圧力依存性測定

5.3.1 概要

一般的に液中の気体溶解度はヘンリーの法則に従い、圧力と溶解度は比例の関係にある。しかし、気体分子の大きさによっては有機物の内部に入り込み、正比例ではない関係を示すこともある。そのため、実際にどのような関係性になるのか測定を行った。

Xe 溶解度の計算については、圧力と流入 Xe 量と液体シンチレータ量の 3 つの組み合わせに加え、Xe を液体シンチレータに溶かしたことによる体積膨張を用いて計算を行った。計算式は、下のとおりである。

$n_{Xe\ w/o\ exp}$; 体積膨張を無視した Xe 溶解度

$n_{Xe\ w/z\ exp}$; 体積膨張を含めた Xe 溶解度

ΔV ; Xe を溶かした時の体積膨張

$\Delta n_{Xe\ w/o\ exp}$; ΔV が生じた時の膨張率を無視した Xe 溶解度

ρ_{LS} ; 液体シンチレータ密度, V_{LS} 液体シンチレータ体積, m_{Xe} ; 溶けた Xe 重量

$$\frac{\Delta V}{\Delta n_{Xe\ w/o\ exp}} = 0.351\%$$

$$n_{Xe\ w/o\ exp} = \frac{m_{Xe}}{\rho_{LS}V_{LS} + m_{Xe}}$$

$$n_{Xe\ w/z\ exp} = \frac{n_{Xe\ w/o\ exp}}{1 + n_{Xe\ w/o\ exp} \frac{\Delta V}{\Delta n_{Xe\ w/o\ exp}}}$$

5.3.2 実験手順

実験手順は以下の順番で行う。

1. 液体シンチレータを容器に入れ、密閉する。液体シンチレータの量は 200ml で、実験をやり直す際は同じ量を用いる。密閉性の確認には、窒素を高圧で流し発泡試験によって行う。
2. ダイアフラムポンプを用いて真空引きを行う。ダイアフラムポンプの出力ではマイナス 0.089MPa までの減圧が限界であり、Xe 溶解度の算出の際には、

これを考慮して計算を行う。また、ダイヤフラムポンプは液体シンチレータに対する耐性が無いため、液体シンチレータが流れ込まないように注意をする必要がある。そのため真空引きの際は、必ずポンベ側のガスラインのバルブが閉じていることを確認する。

- 十分に時間が経過した後（8時間程度）、バルブを閉め放置。圧力が上昇した場合は再び2の操作を行う。器具には微小であるがリークがあるため、放置時間は2時間を目安とした。
- 冷却水循環装置を起動させ容器を冷やし、容器にXeを流し目標の量を容器に投入後、バルブを閉め放置。圧力が安定した時の圧力とXe流入量を記録し、Xe溶解度を記録する。Xe流入量は積算流量計を用いて行い記録する。
- 4の操作を0.4MPaに到達するまで繰り返し行い、値を記録する。実験は短時間であることが望ましいが、それが難しい場合は液体シンチレータを入れ替えて再び実験を行うことでリーク由来の誤差の軽減を図る。

この操作をXe用液体シンチレータ(N-10:82.3% PC:17.7% PPO:2.7(g/L))に対して行い、圧力とXe溶解度の関係性について詳細に調べた。

5.3.3 実験結果

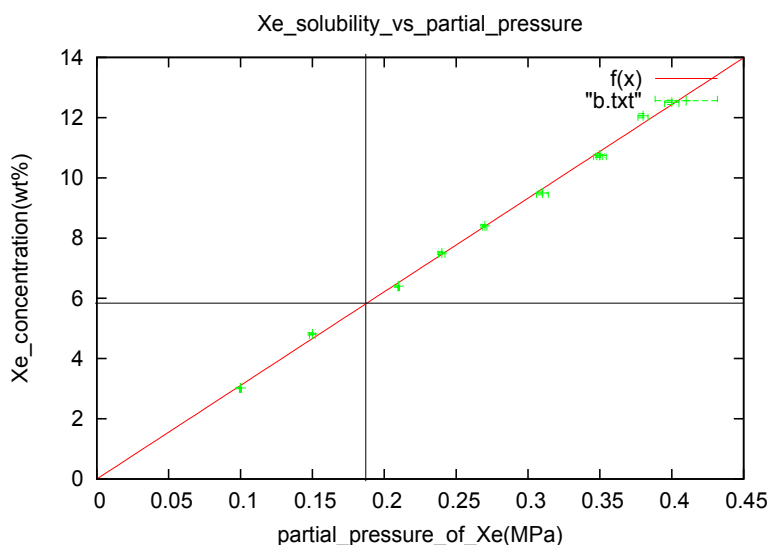


図 5.7: Xe 溶解度と圧力の関係性について

実験の結果は図のようになった。この図から分かるように、Xe溶解度は圧力とほぼ正比例の関係にあり、Xe溶解からくる体積膨張率の影響は非常に小さく正比例の関係を崩すものではなかった。この結果から次期計画の加圧実験では単純

に加圧を行うことで Xe の溶解度を高めることができるということが明らかになった。Xe 溶解度と圧力の関係については、下の式で表される。

$$f(x); Xe \text{ 溶解度}, x; Xe \text{ 分圧 (MPa)}$$

$$f(x) = ax + b$$

$$a = 31.2354 \pm 0.4816$$

$$b = -0.04796 \pm 0.1406$$

5.4 発光量の Xe 溶解度依存性測定

5.4.1 概要

以前の KamLAND-Zen 用液体シンチレータ開発についての研究である 2011 年および 2009 年における液体シンチレータ開発の修士論文 [8][9] で述べられている実験に、大気圧中 Xe 飽和液体シンチレータの発光量についての研究が行われている。これらの研究で Xe が溶解した液体シンチレータは、N₂ で飽和した液体シンチレータよりも発光量が低いことが分かっている。しかし、これらの研究で行われた Xe 溶解度の測定や圧力についての研究については不十分であり、本研究では高圧時の Xe 溶解度と発光量について測定を行い関係性について調べる。

本実験の目的は、KamLAND-Zen 実験の加圧実験を行う際に使用可能な Xe 溶解液体シンチレータの開発である。シミュレーションの結果から、発光量については現在の KamLAND で用いられている液体シンチレータの 90 % 以上の発光量が必要ということがわかっている。そのため、本章では KamLAND で用いられているドデカンベースの液体シンチレータと比較してどの程度の違いが見られるのかという点を中心にまとめる。

液体シンチレータの発光過程については第 3 章でも言及しているが、Xe などの許容比較的高い原子番号の重原子が液体シンチレータ中に存在すると、クエンチングが起こり発光量が減少する。これは、スピン-軌道相互作用が引き起こされ、本来の発光剤としての機能を溶質が保てなくなることが原因である。このことは、液体シンチレータ中の Xe 溶解度が増加すると発光量が減少することを示唆している。そのため、高圧における発光量の測定は重要なものとなる。

5.4.2 実験手順

実験には前述の装置を用い、Xe 溶解度と発光量について同時に調べた。操作については前節の実験とほぼ同じである。

1. 液体シンチレータを容器に入れ、密閉する。液体シンチレータの量は 200ml で、実験をやり直す際は同じ量を用いる。密閉性の確認には、窒素を高圧で流し発泡試験によって行う。
2. ダイアフラムポンプを用いて真空引きを行うダイアフラムポンプの出力では 0.089MPa までの減圧が限界であり、Xe 溶解度の算出の際には、これを考慮して計算を行う。
また、ダイアフラムポンプは液体シンチレータに対する耐性が無いため、液体シンチレータが流れ込まないように注意をする必要がある。そのため、必ずポンベ側のガスラインのバルブが閉じていることを確認する。
3. 十分に時間が経過した後（8時間程度）、バルブを閉め放置。圧力が上昇した場合は再び 2 の操作を行う。器具には微小であるがリークがあるため、放置時間は 2 時間を目安とした。
4. 冷却水循環装置を起動させ容器を冷やし、容器に Xe を流し目標の量を容器に投入後、バルブを閉め放置。圧力が安定した時の圧力と Xe 流入量を記録し、Xe 溶解度を記録する。Xe 流入量は積算流量計を用いて行い記録する。
5. 4 の操作を 0.4MPa に到達するまで繰り返し行い、値を記録する。実験は短時間であることが望ましいが、それが難しい場合は液体シンチレータを入れ替えて再び実験を行うことでリーク由来の誤差の軽減を図る。

この操作をデカン (N-10) ベース液体シンチレータ (N-10:82.3% PC:17.7% PPO:2.7g/L) に対して行い、圧力と Xe 溶解度の関係性について詳細に調べた。

5.4.3 実験結果

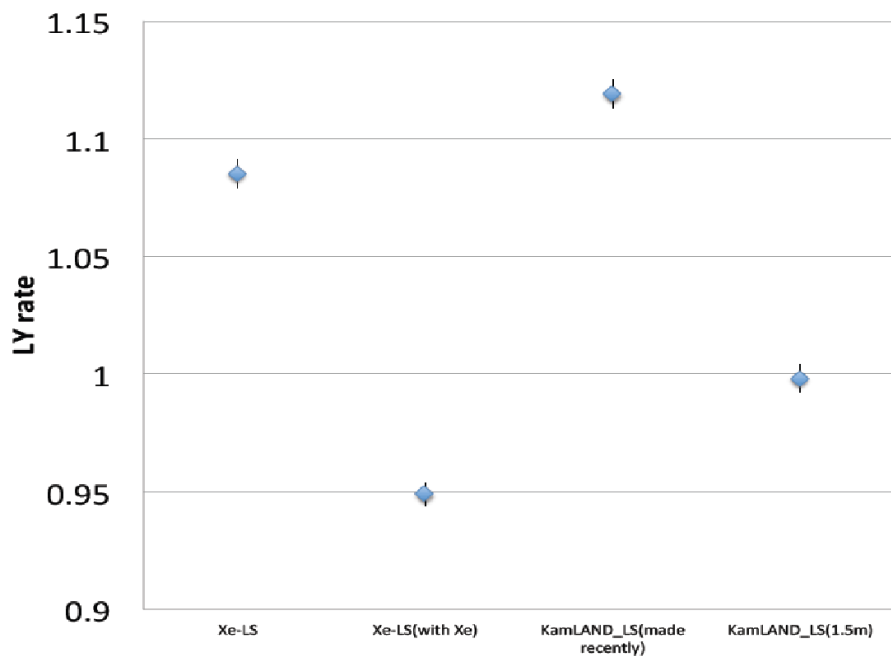


図 5.8: 各種液体シンチレータの発光量比較
Xe partial pressure vs light yield

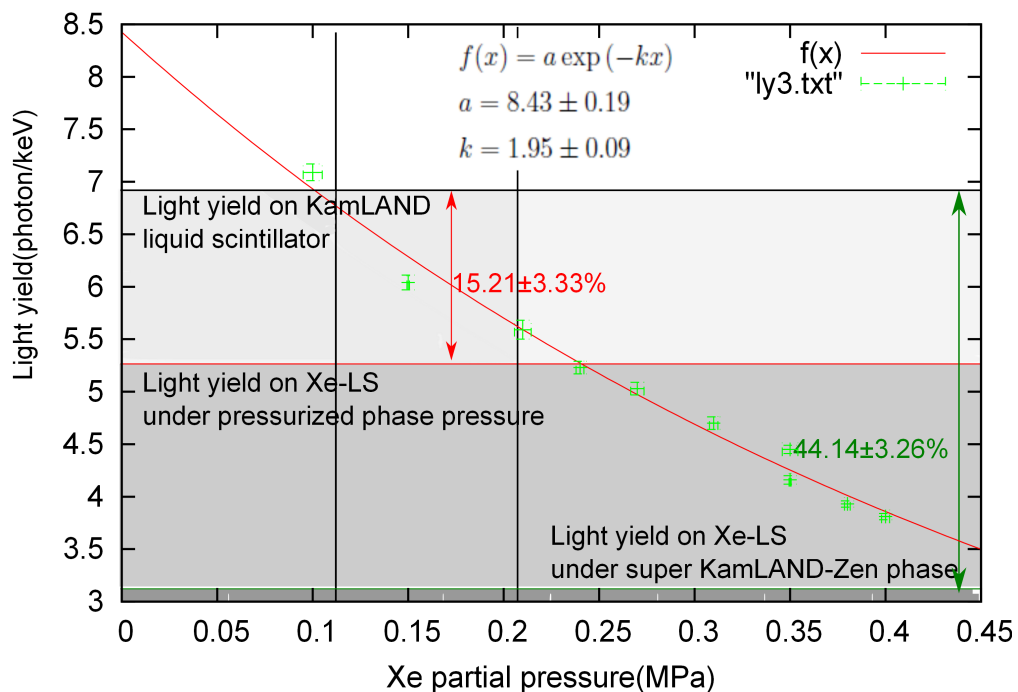


図 5.9: Xe 溶解時圧力と発光量の関係

圧力と発光量の関係性の式は以下ようになる。なお、縦軸に用いたLY rateとは実際の KamLAND の液体シンチレータの発光量を基準の1とし $LY_{KamLAND}$ で表し、測定した発光量を LY_{sample} とすると、

$$LYrate = \frac{LY_{sample}}{LY_{KamLAND}} \quad (5.4)$$

とした値である。Xe-LS は KamLAND-Zen 実験で用いる液体シンチレータであり、with Xe は 1atm で Xe を溶かしたサンプル。KamLAND LS recently は実験室で製作した KamLAND 液体シンチレータサンプル、KamLAND LS (1.5m) は KamLAND の深さ 1.5m の点から採取した液体シンチレータサンプルである。

Xe 溶解時圧力と発光量の関係の横軸は実験時の Xe 分圧であり、実験時の圧力とは異なる。

$$\begin{aligned} f(x) : & \text{Light yield}(\text{photon}/\text{keV}), x : \text{Pressure}(\text{MPa}) \\ f(x) = & a \exp(-kx) \\ a = & 8.43 \pm 0.19 \\ k = & 1.95 \pm 0.09 \end{aligned} \quad (5.5)$$

実験結果は以上のようになった。各種液体シンチレータの発光量比較を見ると、KamLAND のドデカン (N-12) ベース液体シンチレータの発光量が、直接サンプリングしたものと新しく作ったものでは大きく異なっていることが分かる。これは KamLAND の液体シンチレータは放射性同位体の除去のために蒸留を繰り返し行っており、その影響から発光量が減少したと考えられる。

Xe で飽和したデカンベース液体シンチレータ、つまりミニバルーン内部の液体シンチレータと外部のドデカンベース液体シンチレータの発光量は、ミニバルーン内の側が 5%ほど小さいことがわかった。これは発光量にプソイドクメン (PC) の比率が関わり、Xe 用液体シンチレータは PC の比率が KamLAND 液体シンチレータに比べて低いからであると考えられる。

Xe 溶解度が増えるに従い、発光量にも明らかな減少が見られた。1.85MPa 加圧した場合の液体シンチレータの発光量は、加圧していない状態のデカンベース液体シンチレータの発光量が KamLAND のドデカンベース液体シンチレータの 5%減であり、1.85MPa 加圧したものと加圧していないものでは 15%ほど発光量が低くなるため、計 20%ほど発光量が低くなる計算となる。この減少幅は無視できない大きさであるため、次加圧フェイズではこの発光量の低下をカバーすることのできる液体シンチレータの開発が必要となる。

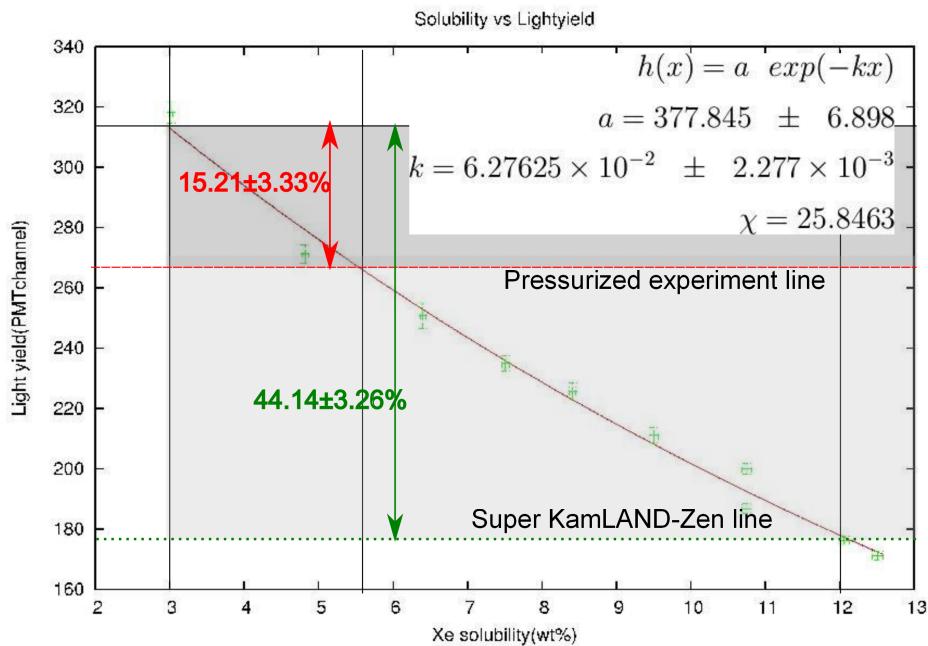


図 5.10: Xe 溶解度と発光量の関係性

5.5 考察

本章の研究から、加圧実験を行うことにより順当に単位体積あたりの液体シンチレータ中 Xe 量を増加させることができることがわかった。しかし、発光量の減少が大きいため単純に PC を減らして密度を減少させ、増加分の Xe 重量分をカバーするという手法を取ることは難しいということがわかった。

今後は PC : N10 の比率や別の発光剤、ミネラルオイル (MO) などを用いて調整を行い、密度の軽さと発光量の両方のバランスがとれた液体シンチレータの開発が求められる。

第6章 Xe溶解時液体シンチレータの 発光量回復

6.1 概要

前章の研究で明らかになったように、現行の液体シンチレータは発光量が低く、さらに プソイドクメン (PC) の比率を落として密度を調整すると、加圧実験で十分な発光量が得られない。そのため、現行の液体シンチレータよりも軽く発光量の大きい液体シンチレータの開発が必要となることがわかった。しかし、発光量はPCの比率が高く発光剤であるPPO濃度が高いほど発光量が大きくなることが知られている。そのため、単純に発光量の回復を求めると密度の増加は避けられない。

以上の理由から液体シンチレータの発光量がPCやPPO、他の発光剤とどのような関係にあるのかということをより詳細に調べ、液体シンチレータの構成について研究を行う必要性が生じた。

本章では、液体シンチレータの発光量のPC比率、PPO溶解度との関係性についてしらべ、発光量の最適化を試みる。その後、Bis-MSB等の波長変換剤による発光量の回復や、デカン(N-10)、ドデカン(N-12)以外のミネラルオイル(MO)を用いた時の利点と欠点についてまとめる。

6.2 実験目標

以下、LY rate という値が出るが KamLAND 液体シンチレータの発光量を基準とし $LY_{KamLAND}$ 、測定した発光量を LY_{sample} とすると、

$$LY_{rate} = \frac{LY_{sample}}{LY_{KamLAND}}$$

とする。前章の実験から、Xe溶解時の発光量の減少のために発光量の回復が必要となったことがわかった。具体的には、1.85気圧、つまりミニバルーンを球とした時の頭頂部の位置においてXeを飽和させた時、発光量の減少は

$$\Delta LY_{(1atm \rightarrow 1.85atm)} = 15.21 \pm 0.33\%$$

であり、また 1 気圧で Xe を液体シンチレータに飽和させた時と、窒素を飽和させた時の発光量の違いは

$$\Delta LY_{(N_2 \ 1atm \rightarrow Xe \ 1atm)} = 4.91 \pm 0.10\%$$

液体シンチレータの許容発光量は KamLAND の液体シンチレータの 90% であるから、必要となる発光量 $LY(target)$ は $LYrate$ で表すと、

$$LYrate(target) = 110.12\% \quad (6.1)$$

となる。またこの圧力で液体シンチレータに ^{136}Xe を溶かしたとき、Xe 溶解度 $n_{^{136}Xe}$ は

$$n_{^{136}Xe(1atm)} = 3wt\% \rightarrow n_{^{136}Xe(1.85atm)} = 5.4wt\%$$

となるから、目標となる液体シンチレータの加圧実験における ^{136}Xe を除いた密度は、 ^{136}Xe を含めた目標密度が $0.77721(g/mL)$ であることから、

$$\rho_{LS(1atm)} = 0.74278(g/mL) \quad (6.2)$$

となる。

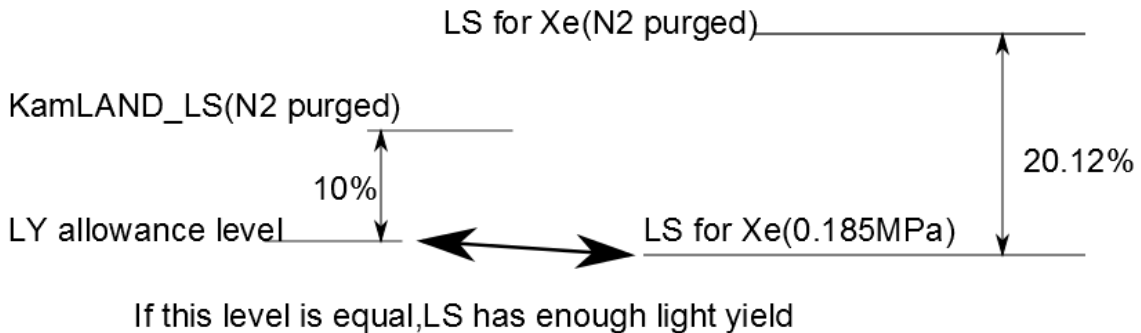


図 6.1: 発光量の目標設定

6.3 実験方法

測定には前章と同様の測定装置、測定器具を用いる。PPO の溶解度分布測定においては、デカンベースの液体シンチレータから PPO を除いたものを用意し (N-10 82.3%、PC17.7%)、PPO の濃度を徐々に変えて測定を行った。具体的には各節で説明する。

6.3.1 発光量の PPO 濃度依存性

概要

PPO は液体シンチレータで一般的に多く使われる発光剤であり、非常に多くの量が液体シンチレータに溶けることが知られている。しかし、発光量とこの PPO の濃度の関係は単純な正比例の関係ではない。PPO の濃度が一定以上になると、液体シンチレータの発光量は徐々に下がるという性質があり、この PPO 濃度と発光量の関係については今までは狭い範囲のみしか測定を行なってきた。

本研究ではこの PPO の濃度と発光量の関係についてより詳細に行うことにより、発光量が PPO の濃度によりどの程度まで上がるのか、またその関係はどのような関数で表せるのか調べた。

実験方法

実験方法は以下のように行う。なお、度々窒素によるバブリングを行うのは、液体シンチレータが酸素と結びつくことによるクエンチング（消光）を抑え、発光量と PPO の濃度のみの関係を調べるためである。

1. 液体シンチレータを第 5 章で用いたボトルに入れる。この際、液体シンチレータは PPO の濃度が 0 のものを用意する。
2. PPO の濃度を FID ガスクロマトグラフィーを用いて測定する。
3. 容器を密封し、窒素で 200(mL/min) で 20min バブリングを行う。
4. 液体シンチレータの発光量を後方散乱測定により行う。この際のセットアップは 5 章と同じ物を用いた。
5. 測定後に FID で再び PPO 濃度の測定を行い、PPO 濃度の変化が無いことを確認し PPO を追加する。
6. 2 の操作から再び繰り返し測定を行う。これを 5.0(g/L) の濃度まで行う。

実験結果

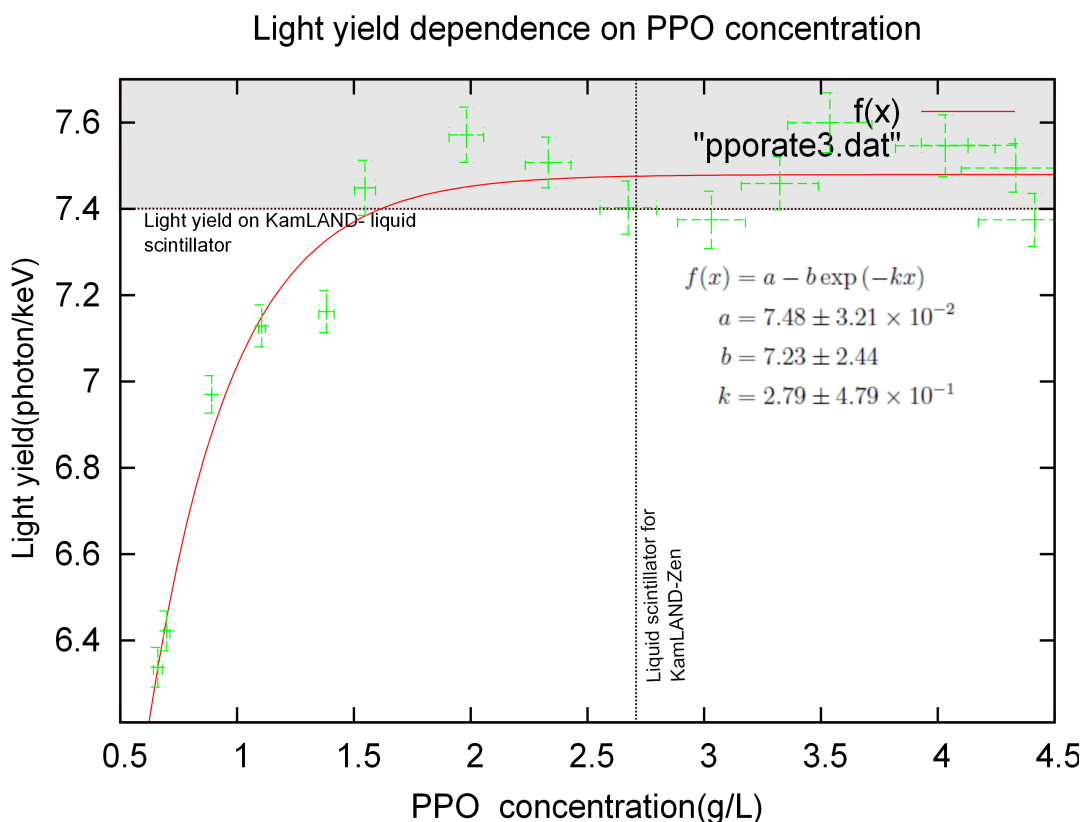


図 6.2: 液体シンチレータの発光量における PPO の依存性

$$f(x); \text{Light yield}(\text{photon}/\text{keV}), x; \text{PPO concentration}(\text{g}/\text{L})$$

$$f(x) = a - b \exp(-kx)$$

$$a = 7.48 \pm 3.21 \times 10^{-2}$$

$$b = 7.23 \pm 2.44$$

$$k = 2.79 \pm 4.79 \times 10^{-1}$$

PPO 濃度と発光量の関係性については濃度クエンチングという一定以上の濃度で発光量の減少が見られることが知られているが、本実験の際に測定を行った PPO 濃度では濃度クエンチングは見られなかった。

また発光量の増加の限界自体は早い段階で見られ、現在の Xe 用液体シンチレータ以上の発光量は PPO の濃度を増加することでは大きくは期待できないことがわかった。

なお、液体シンチレータ測定法 [19] によると、濃度クエンチングはキシレンベースの液体シンチレータにおいては 5(g/L) 周辺で起きると記述がある。

6.3.2 発光量の PC 割合依存性

概要

液体シンチレータの発光量には、PPO のような発光剤だけではなく、放射線標的となる水素原子をもつ芳香族の有機溶媒、Xe 用液体シンチレータにおいてはブソイドクメン (PC) の濃度が発光量に大きく関係していることが知られている。本実験は、その PC の MO (N-10、N-12 など) に対する割合と発光量の関係性について調べた。

実験方法

実験方法は以下のように行う。なお、度々窒素によるバブリングを行うのは、液体シンチレータが酸素と結びつくことによるクエンチング (消光) を抑え、発光量と PC の割合のみの関係を調べるためである。

1. PPO 濃度が 2.7(g/L) の N-10 と PC を用意する。
2. 2つを混合し液体シンチレータを作成し、PC 割合の異なる液体シンチレータを作る。
3. 作成した液体シンチレータの発光量の測定を行う。容器に液体シンチレータを投入し、容器を密封し、窒素で 200(mL/min) で 20min バブリングを行う。
4. 液体シンチレータの発光量を後方散乱測定により行う。この際のセットアップは 5 章と同じ物を用いた。
5. 測定を行ったサンプルを取り出し、別の作成したサンプルについての発光量の測定を行う。具体的には 3 から 5 までの操作をすべてのサンプルについて行う。

実験結果

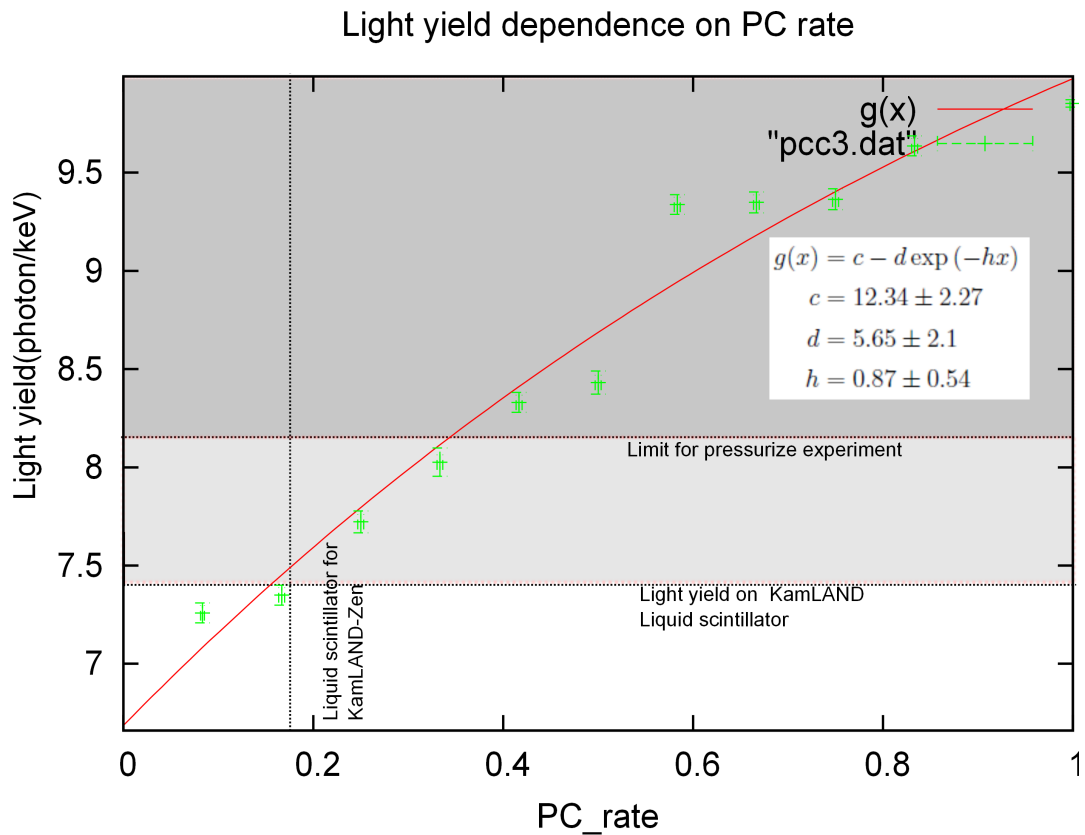


図 6.3: 液体シンチレータの発光量における PC の依存性

$$g(y); \text{Light yield}(\text{photon}/\text{keV}), y; \text{PC rate}$$

$$g(y) = c - d \exp(-hy)$$

$$c = 12.34 \pm 2.27$$

$$d = 5.65 \pm 2.1$$

$$h = 0.87 \pm 0.54$$

グラフをみて分かるように、液体シンチレータの PC の濃度による変化は大きい。しかし、密度増加における影響も大きいため、PC 濃度を減少させて密度調整を行うと、液体シンチレータの発光量は不十分なものになってしまうことが明らかとなった。

6.3.3 発光量の Bis-MSB 依存性

概要

PPO のような第一溶質に対して、Bis-MSB のような波長変換剤という発光剤がある。これは波長変換剤であり、特定の波長の光を吸収し、別の波長の光として放出する発光剤である。本来はシンチレーション光の波形の変換に使われるが、発光量の増加にも効果があるため測定を行った。この発光剤は非常に微量でも効果があり、一般的には 1wt% 程度付加する。

実験方法

Bis-MSB は波長変換剤であり、少量で大きな効果があるため 3 点のみの測定を行った。

1. 液体シンチレータを容器に入れ、Bis-MSB を 0.01(g/L) 投入する
2. 容器を密封し、窒素で 200(mL/min) で 20min バブリングを行う。
3. 後方散乱測定により発光量の測定を行う。
4. 容器を開け、0.01(g/L) だけ Bis-MSB を投入し、1 からの測定を 0.03(g/L) まで測定を行う。

Light yield dependence on Bis-MSB

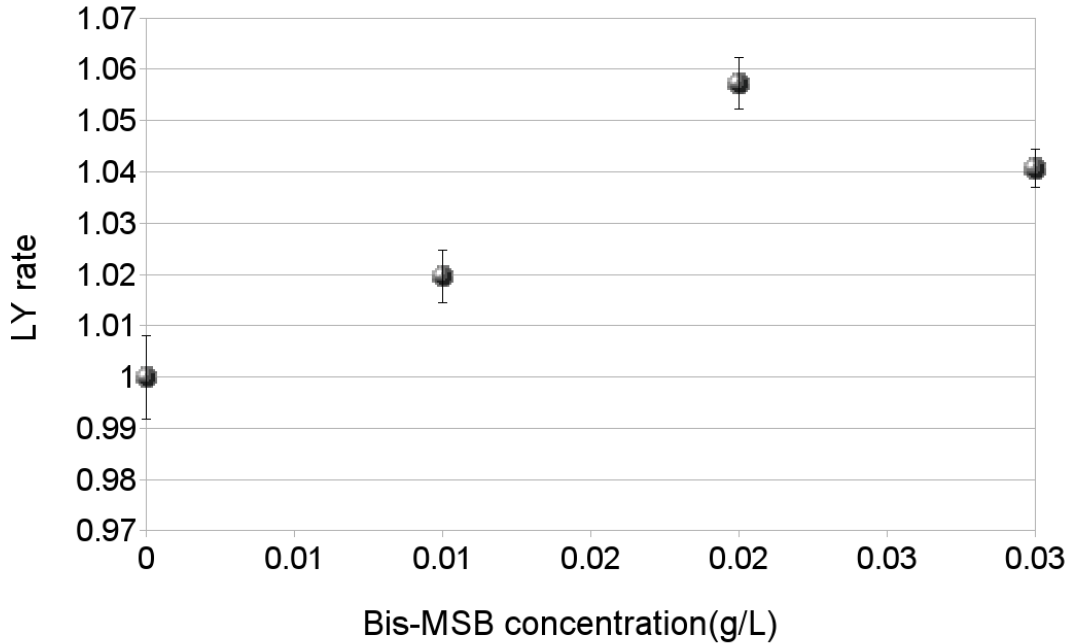


図 6.4: 液体シンチレータの発光量における Bis-MSB の依存性

実験結果は以上のようになり、Bis-MSB の発光量は PPO の量が多い時に影響が大きくなるが、PPO 濃度が 2.7(g/L) の条件では発光量に対する影響は非常に小さいものにとどまり、Bis-MSB の濃度が 0.03(g/L) 以上になると発光量が低下した。なお、KamLAND 液体シンチレータの LYrate である 1 は、7.40(photon/keV) にあたる。

本測定では Bis-MSB が 0.02(g/L) のとき発光量の増加が最大になり、5%の発光量増加が見られたが、この値は前節の 2 つとあわせても十分な発光量の回復には至らなかった。

6.4 各種 MO を用いた密度および発光量調整

6.4.1 概要

発光量の PC/PPO/Bis - MSB 依存性を調べた所、Xe を溶解させた時の発光量の低下を補うことは困難であることがわかった。そのため、発光量を保ちつつ液

体シンチレータの密度を軽くするために、N-10 以外のミネラルオイル (MO) を用いることを考えた。

本章では Xe 溶解による液体シンチレータの発光量の低下を補う場合、液体シンチレータの組成はどのようになるのか、もしくはバルーンのサイズを変更して加圧実験における予定量の Xe を投入する際、バルーンの大きさはどのようになるのか計算を行った。

6.4.2 解析

密度の決定

液体シンチレータの発光量の目標が定まり、密度の調整を実際に行う上で PPO 濃度と Bis-MSB の濃度により 3 つの条件に分けて計算を行った。条件は以下のようになる。

1. PPO 2.7(g/L)
2. PPO 4.5(g/L)
3. PPO 4.5(g/L) Bis-MSB 0.02(g/L)

密度調整の計算にはデカン (N-10)、ノナン (N-9)、オクタン (N-8)、ヘプタン (N-7) が候補となる。まず目標密度についてであるが、これには 0.185MPa つまり現在の KamLAND 内に設置されたミニバルーンの、バルーン部とナイロン製コルゲート管の接続部までの深さでかかる圧力で ^{136}Xe を溶かすとした。

飽和溶解度まで溶かした場合、水圧を現在の Xe 用液体シンチレータで計算すると $0.77721(\text{g}/\text{cm}^3) \times 11\text{m} = 0.185\text{MPa}$ であるから、

$$n_{\text{Xe}} = 5.4(\text{wt}\%)$$
$$\rho_{\text{target}} = 0.74835(\text{g}/\text{ml})$$

となる。よって、この密度で発光量の条件を満たす液体シンチレータを作ると、以下の表のようになる。なお、計算に用いる際の発光量は MO の種類によらず一定であると仮定した。これは液体シンチレータの発光過程に MO は寄与しないからである。

表 6.1: 液体シンチレータ組成候補

Base	PC	MO	PPO	Bis-MSB	LY
Decane(N-10)	6.28%	93.72%	2.7g/L	0	×
	5.03%	94.97%	4.5g/L	0	×
	5.01%	94.99%	4.5g/L	0.02g/L	×
Nonane(N-9)	16.63%	83.37%	2.7g/L	0	×
	15.51%	84.49%	4.5g/L	0	×
	15.49%	84.51%	4.5g/L	0.02g/L	×
Octane(N-8)	24.74%	75.26%	2.7g/L	0	×
	23.72%	76.28%	4.5g/L	0	×
	23.71%	76.29%	4.5g/L	0.02g/L	○
Heptane(N-7)	32.05%	67.95%	2.7g/L	0	○
	31.13%	68.87%	4.5g/L	0	○
	31.12%	68.88%	4.5g/L	0.02g/L	○

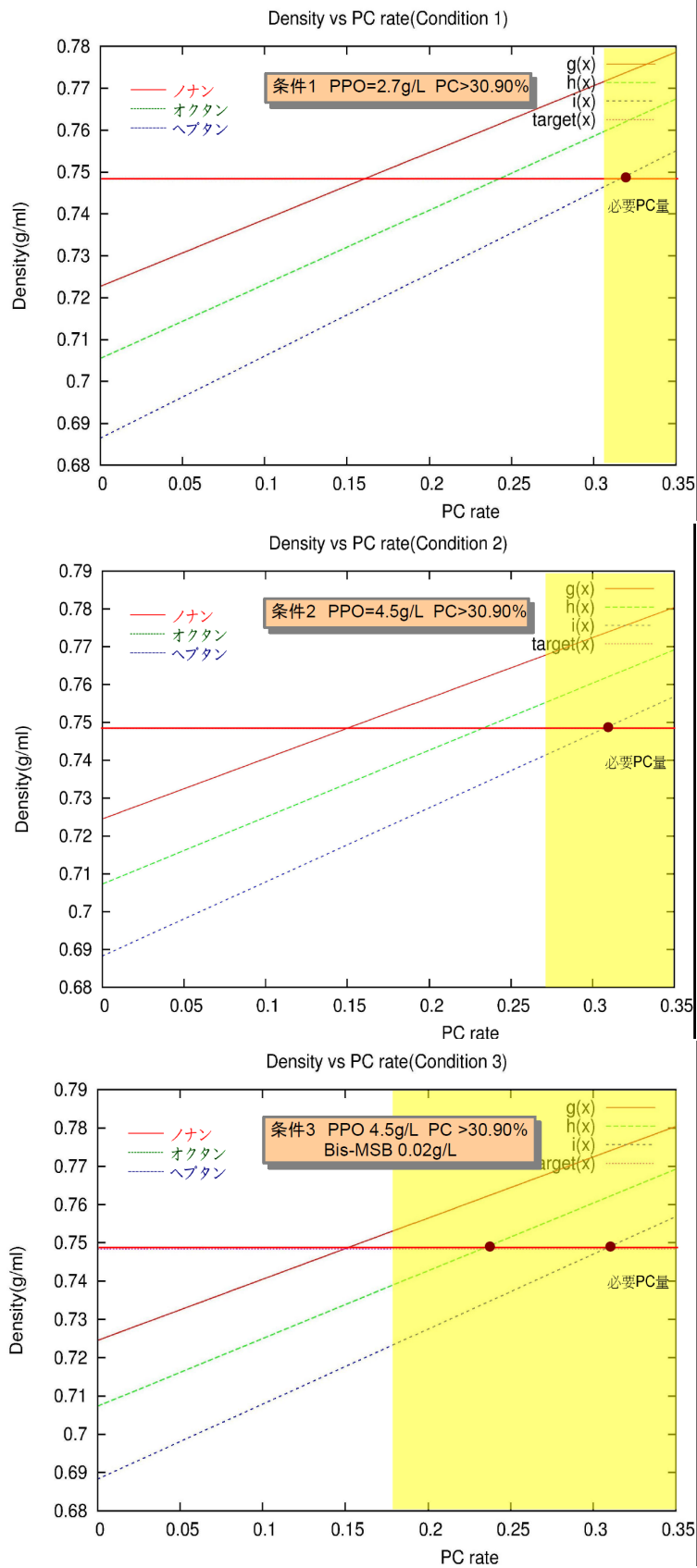


図 6.5: 各液体シンチレータの発光量と必要 PC 量

以上の結果から、デカンとノナンは加圧実験時の液体シンチレータの候補から外れ、オクタンとヘプタンが候補として残った。また、オクタンについては今回の条件で目標に到達するサンプルは一つ、ヘプタンについては3つという結果に落ち着いた。

ヘプタンは引火点がマイナス4 と非常に低く、蒸気密度が空気比で 3.46 なので下に溜まり、自然発火温度が 220 と危険性の高い有機溶媒である。そのため、この有機溶媒を用いる際には慎重な取り扱いが求められる。

6.5 加圧実験用液体シンチレータ Xe 溶解度

Xe 溶解度は前章で圧力と比例関係にあることを示した。この比例関係が前節で加圧実験用の液体シンチレータ候補となったオクタンベースの液体シンチレータで、圧力と溶解度の関係はどのようになるのかを調べた。

この測定では、5章における圧力と液体シンチレータへの Xe 溶解度の実験をデカン、オクタン、オクタンベース液体シンチレータについて行った。

6.5.1 実験結果

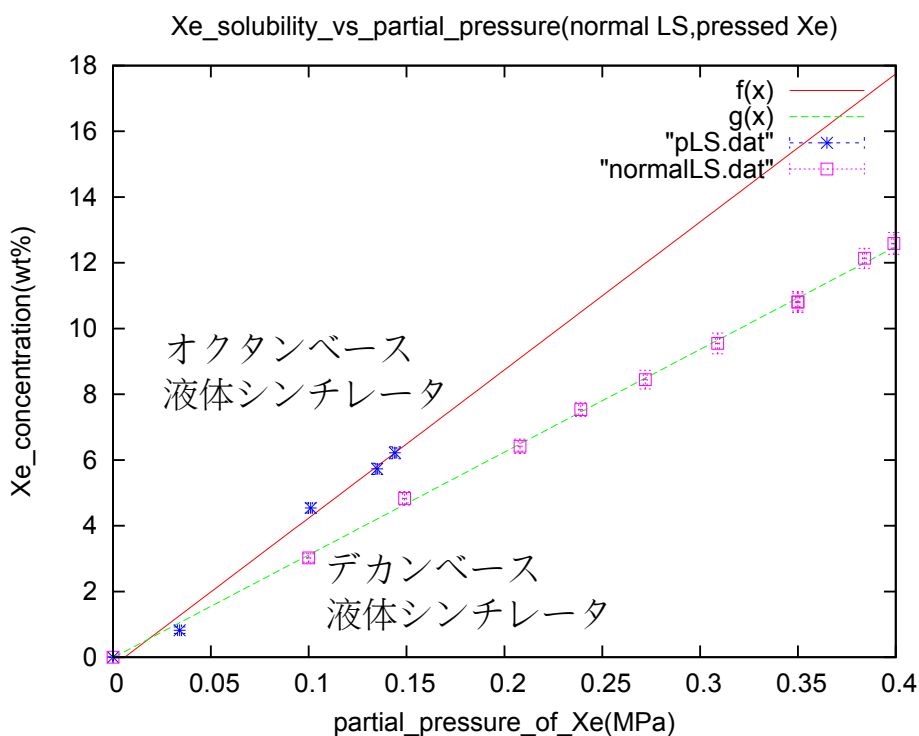


図 6.6: オクタンベース液体シンチレータと KamLAND-Zen 用液体シンチレータ Xe 溶解度圧力依存

$f(x)$; Xe solubility on OctanebasedLS(wt%) , x ; partial pressure (MPa)

$$f(x) = ax + b$$

$$a = 45.04 \pm 2.67$$

$$b = -2.67 \times 10^{-1} \pm 0.27$$

$g(x)$; Xe solubility on KamLAND – ZenLS(wt%) , x ; partial pressure (MPa)

$$g(x) = cx + d$$

$$c = 31.27 \pm 0.30$$

$$d = -1.49 \times 10^{-2} \pm 0.08$$

以上の結果から、オクタンはデカンよりも多く Xe を溶かすことが分かった。また、前章の実験結果から、デカンを用いた液体シンチレータと比較し 1.44 倍近く Xe を溶かしやすいことがわかった。これらの結果から、加圧実験時にオクタンを原料とした液体シンチレータはより低い圧力で Xe を多量に溶かすことができる事がわかった。この圧力は水頭圧と比べても十分に小さく、実験を行う上で有利に働くと考えられる。

6.6 実験結果まとめ

これらの結果から、加圧実験時の液体シンチレータの発光量損失は PC の比率や PPO の調整だけでは補えないことがわかった。そのため、液体シンチレータの密度調整のためには KamLAND-Zen の通常フェイズで使われるデカンではなく、他の MO を使う必要があるとわかった。

また、発光量損失を補うことのできる PC 比率、PPO 濃度にする、MO の候補はオクタンとヘプタンであり、それ以上に軽い MO では引火点が -20 と非常に危険であるため候補から外れる。そのため、今回の実験により MO の候補を 2 つ上げることに成功した。

6.7 考察

Xe 溶解時の発光量減少は今後も大きな問題となることが予想されるため、加圧実験時の圧力を低くし、ミニバルーンの巨大化をはかることや PC ではなく別のベースの液体シンチレータの探索などの必要が出る可能性がある。

特に Super KamLAND-Zen の際には密度調整の MO が存在しなくなるため（大気圧で気体のものしかなくなるため）バルーンのサイズは 1 トンフェイズの実行の際には加圧実験の圧力設定とあわせて調整が必要となる。

第7章 結論

本研究において、加圧試験時に用いる液体シンチレータの候補の選出が終了し、実際にテストを行い次は安全性のチェックなどの段階に入った。また、発光量のPPO/PCの依存性がわかったため、今後の液体シンチレータの製作は簡略化が行えることとなった。

これまでの結果をまとめると、1.85気圧で加圧実験を行うと、1000kg フェイズは直径3.5m程度バルーンを用いることで実験を行うことができ、順階層構造の質量階層構造まで調べることができる。現在のKamLAND-Zen実験は予定では ^{136}Xe を400kg溶解させる予定であったが、溶解時の体積増加の問題により、飽和せず8割程度しか液体シンチレータ中に ^{136}Xe は入らなかった。同様に飽和せずに ^{136}Xe が飽和溶解度の8割程度しか入らなかった場合、直径を3.75mにすれば順階層構造までの実験を行うことができる。

今後はバルーンのサイズの決定や、圧力の調整といったアプローチが求められる事となり、本研究はその要求に合致した液体シンチレータの作成の際に大きく役立つと考えられる。

7.1 謝辞

本研究においては指導教官である白井先生には、実験の基礎や目的など、多くの点で御指導頂き、研究にも限らず学生生活や進路などで大変お世話になりました。また、現在は宇宙線研究所に移られた岸本先生には、設計から測定といった具体的な技術以外にも、研究に対する心構えや、問題解決のための手法など非常に多くの事を学ばせて頂き、非常に感謝しております。古賀先生や三井先生については論文の審査でもお世話になり、丸藤先生や清水先生、池田先生には電子回路の組み立ての際に大変お世話になりました。他にも、中村先生、上島先生、玉江先生、市村様、事務の方々、GCOEの方々など多くの人にお世話になりました。技官の高山さん、中嶋さん、根本さん、鈴木さんには頻りに実験器具の事でお世話になり、難しい相談にも乗っていただいたことに感謝しております。

実際の実験を行う際には、同級生の中田君や新里君、古田君に手伝って頂き、後輩の松田君も積極的に手伝ってくれ、感謝しています。時には深夜での作業もありましたが、そういったときも快く協力してくれた事については言葉ありません。

実験器具の製作においては、東北大学機器開発研修室の方々に大変お世話になりました。特に設計した器具を実際に作っていただく段階においては、難しい要求にも答えて頂きありがとうございました。物品の発注においては、東北化学薬品の加藤晶様に特にお世話になりました。曖昧な要求や急な発注にも答えて頂き、感謝しております。

大学4年で配属になり、あわせて3年間の間ニュートリノ科学研究センターにお世話になりました。その間、多くの事を学ばせていただき、他では決して学べない経験をさせていただきました。お世話になった皆様に、ありがとうございました。

関連図書

- [1] 日本物理学会誌 58(2003)314 戸塚洋二
- [2] Neutrino Physics <http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino>
- [3] Particle data group 2010, Neutrino mass, mixing and oscillation
- [4] Observation of two-neutrino double-beta decay in ^{136}Xe with EXO-200
- [5] 表面張力 共立出版 小野周
- [6] 籾本洋 東北大学理学研究科 修士論文 2011
- [7] Variation of solubility with depth in the ocean;a thermodynamic analysis ;Irving M. Klotz
- [8] 寺島亜寿紗 東北大学理学研究科 修士論文 2009
- [9] CHATWIN-DAVIS A Emile KamLAND weekly hardware meeting 2010
- [10] 岸本康宏 personal communication 2010
- [11] IUPAC Solubility Data Series, Vol. 2
- [12] H. V. KLAPDOR-KLEINGROTHAUS et al. "THE EVIDENCE FOR THE OBSERVATION OF 0 DECAY:THE IDENTIFICATION OF 0 EVENTS FROM THE FULL SPECTRA " Physics Letters A Vol. 21, No. 20 (2006) 1547-1566
- [13] Ettore Fiorini "NEUTRINOLESS DOUBLE BETA DECAY " Nuclear Physics B (proc. Suppl.) 168(2007) 11-16
- [14] R.Bernabei et. al. "Investigation of 0 decay modes in ^{134}Xe and ^{136}Xe " Physics letter B 546 (2002)
- [15] F.Reines, C.L. Cowan, Jr.,Nature 178,446-449 (1956)
- [16] B. Caccianigaa and M. G. Giammarchi Neutrinoless double beta decay with Xe-136 in BOREXINO and the BOREXINO Counting Test Facility Astroparticle Phys.14 (2000)15

- [17] M.Jafee and L.A.Ford: Int. J. Appl. Radia. Isotope, 21, 49 (1970)
- [18] 安全衛生情報センター ボイラーおよび圧力容器安全規則
<http://www.jaish.gr.jp/anzen/hor/hombun/hor1-2/hor1-2-17-m-0.htm>
- [19] 最新液体シンチレーション測定法 石河 寛昭 南洋堂
- [20] ニュートリノと宇宙 二間瀬敏史 井上邦雄 日本物理学会誌 2009年1月
 第64巻
- [21] IUPAC Solubility Data Series, Vol. 2
- [22] R. Bernabei et al. "Investigation of $0\nu\beta\beta$ decay modes in ^{134}Xe and ^{136}Xe "
 Physics letter B 546 (2002)
- [23] DOUBLE BETA DECAY W. C. HAXTON Physics and Theoretical Divisions,
 Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM 87545, U.S.A.
- [24] 基礎分析化学 本浄高治 化学同人 1998
- [25] Majorana experiment homepage <http://majorana.npl.washington.edu/>
- [26] 2010年CRC将来計画 カムランドの将来計画 井上邦雄
- [27] Observation of Two-Neutrino Double-Beta Decay in Xe-136 with EXO-200
- [28] New DAMA dark-matter window and energetic-neutrino searches
- [29] H. V. KLAPDOR-KLEINGROTHAUS et al. "THE EVIDENCE FOR THE
 OBSERVATION OF $0\nu\beta\beta$ DECAY: THE IDENTIFICATION OF $0\nu\beta\beta$
 EVENTS FROM THE FULL SPECTRA" Physics Letters A Vol. 21, No.
 20 (2006) 1547-1566
- [30] Markus Ball "NEXT: A Neutrinoless Double Beta Decay Experiment" IEEE
 Nuclear Science Symposium Conference Record 2009
- [31] L. Simard The NEMO-3 experiment and the SuperNEMO project Progress
 in Particle and Nuclear Physics Volume 64, Issue 2, April 2010, Pages 270-272
- [32] THE IGEX ^{76}Ge NEUTRINOLESS DOUBLE-BETA DECAY EXPER-
 IMENT: PROSPECTS FOR NEXT GENERATION EXPERIMENTS
 Aalseth et al. (IGEX Collaboration)
- [33] SNO collaboration, Phys. Rev. Lett. 89 (2002) 011301

- [34] 岸本忠史二重ベータ崩壊と CANDLES 実験高エネルギーニュース第 24 巻 3 号 2005
- [35] 石原信弘二重ベータ崩壊実験 DCBA の現状と将来高エネルギーニュース研究紹介 Vol26No2- 2007.7.8.9
- [36] Neutrino-less Double Beta Decay, Dark Matter and Axion Searches with CUORE Lucia Canonica 23rd Rencontres de Blois - Particle Physics and Cosmology Blois June 1, 2011
- [37] Results from the Cuoricino (Zero-Neutrino Double Beta) Decay Experiment LLNL-JRNL-408037
- [38] The search for neutrinoless double beta decay arXiv:1109.5515v1
- [39] The GERDA Neutrinoless Double Beta-Decay Experiment Bela A. Majorovits for the GERDA collaboration Max Planck Institut fur Physik, Fohringer Ring 6, 80805 Miinchen, Germany