

修士論文

低エネルギー太陽ニュートリノ観測に向けた  
液体シンチレータ純化の研究

東北大学大学院理学研究科  
物理学専攻

小関陽太郎

平成15年

## 概 要

KamLAND 実験は、次の目標として、太陽からの  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノフラックスの実時間測定を目指している。 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノ検出に用いる反応は、液体シンチレーター中の電子との電子散乱反応 ( $\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$ ) である。

ところが、現状においては、液体シンチレーター中に残存する  ${}^{210}\text{Pb}$ ,  ${}^{40}\text{K}$ ,  ${}^{85}\text{Kr}$  等の放射性不純物からのバックグラウンド事象が、観測したい  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノ事象に比べ  $10^4 \sim 5$  倍多く、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノが観測出来ていない。

そのため、液体シンチレーター中から、 ${}^{210}\text{Pb}$ ,  ${}^{40}\text{K}$ ,  ${}^{85}\text{Kr}$  等の放射性不純物をさらに除去し、また、 ${}^{222}\text{Rn}$  の新たな混入を防止しなければならず、KamLAND 実験グループ内で、液体シンチレーター純化に関連した様々な研究開発が行われている。

本研究は、液体シンチレーター中の放射性不純物のうち、 ${}^{210}\text{Pb}$  の除去方法を実験室レベルで探るために行った研究である。なお、本研究においては、 ${}^{210}\text{Pb}$  と  ${}^{212}\text{Pb}$  の化学的性質は同じと考え、 ${}^{212}\text{Pb}$  を多く含む液体シンチレーターを用意し実験を行った。

本研究では、主に

- ${}^{212}\text{Pb}$  がイオンとして存在する場合に有効な、水を使った液液抽出による除去
- 濾紙、 $\text{SiO}_2$  粉末への吸着による除去

の2つの方法で、液体シンチレーター中の  ${}^{212}\text{Pb}$  の除去を試みた。

その結果、

- 水を使った液液抽出による  ${}^{212}\text{Pb}$  の除去は、効率が悪すぎ実用上不可能
- 濾紙や  $\text{SiO}_2$  へ吸着する化学形態の  ${}^{212}\text{Pb}$  が存在する

という事が判明した。

修士論文提出後は、吸着による  ${}^{212}\text{Pb}$  の除去をさらに研究してゆく予定である。

# 目次

1	低エネルギー太陽ニュートリノ観測の意義	1
1.1	太陽ニュートリノとは	1
1.1.1	太陽内部で起こる核融合反応	1
1.1.2	太陽ニュートリノの数とエネルギースペクトル	1
1.2	太陽ニュートリノ問題とLMA解による解決まで	4
1.3	世界各地の低エネルギー太陽ニュートリノ観測計画	7
1.4	KamLAND実験に於ける低エネルギー太陽ニュートリノ観測	8
1.4.1	KamLAND実験の検出器	8
1.4.2	KamLAND実験に於ける低エネルギー太陽ニュートリノ観測	12
1.4.3	KamLAND実験に於ける ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ観測で分かること	14
2	液体シンチレーター純化の目的と概要	16
2.1	低エネルギー太陽ニュートリノ観測の障害	16
2.2	液体シンチレーター中に残留する放射性不純物とその除去方法	16
2.2.1	${}^{238}\text{U}$ , ${}^{232}\text{Th}$ 系列の放射性不純物	16
2.2.2	${}^{40}\text{K}$	17
2.2.3	${}^{210}\text{Pb}$	18
2.2.4	${}^{85}\text{Kr}$ , ${}^{39}\text{Ar}$	18
2.3	液体シンチレーター循環系への ${}^{222}\text{Rn}$ 混入防止策	19
2.3.1	配管接続部の密閉性向上	19
2.3.2	坑内の空気の ${}^{222}\text{Rn}$ 濃度低減	19
2.4	純化に関連するその他の研究開発	20
2.5	液体シンチレーター純化計画	21
2.5.1	液体シンチレーター純化関連装置の配置	21
2.5.2	液体シンチレーター循環系	21
2.5.3	液体シンチレーター純化スケジュール	23
3	液体シンチレーター中の ${}^{210}\text{Pb}$ の除去	24
3.1	${}^{210}\text{Pb}$ 除去のための, ${}^{212}\text{Pb}$ を使った除去実験	24
3.1.1	${}^{210}\text{Pb}$ の代わりに, ${}^{212}\text{Pb}$ を使った理由	24
3.1.2	${}^{212}\text{Pb}$ を使っても問題はないのか	24
3.2	${}^{212}\text{Pb}$ 除去実験の方針	24
3.2.1	液液抽出による除去	24
3.2.2	吸着による除去	25
3.3	${}^{212}\text{Pb}$ 除去実験の手順	26
3.4	濾過による ${}^{212}\text{Pb}$ の除去	31
3.4.1	濾過を行う理由	31

3.4.2	「濾過」が含む2つの過程,「掬い取り」と「吸着」	31
3.4.3	1回濾過してみる実験	31
3.4.4	濾過を繰り返す実験	34
3.4.5	2回目,3回目の濾過の結果	36
3.4.6	今後の方針	37
3.5	液液抽出による $^{212}\text{Pb}$ 除去	38
3.5.1	実験方法	38
3.5.2	実験結果	40
3.5.3	実験結果から分かること	40
3.6	$\text{SiO}_2$ 微粒子への吸着による $^{212}\text{Pb}$ 除去	41
3.6.1	吸着剤として使用した $\text{SiO}_2$ 微粒子" AEROSIL"	41
3.6.2	実験の目的と手順	42
3.6.3	実験結果	44
3.6.4	実験から分かった事と,今後の方針	46
3.7	$^{212}\text{Pb}$ を使った除去実験のまとめと今後	47
3.7.1	実験結果のまとめ	47
3.7.2	実際の除去装置建設へ向けた,実験結果の持つ意味	47
3.7.3	今後の実験	47
3.7.4	除去実験の現状	48
付録A	崩壊系列図,崩壊準位図	49

# 1 低エネルギー太陽ニュートリノ観測の意義

太陽ニュートリノに関する簡単な説明, 太陽ニュートリノ問題の解決までの過程, KamLAND 実験で用いる検出器の概要, KamLAND 実験で  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノを観測する意義について述べる.

## 1.1 太陽ニュートリノとは

### 1.1.1 太陽内部で起こる核融合反応

太陽のエネルギー源は, 中心部で起こっている核融合反応である. 太陽は現在, 水素燃焼と呼ばれる段階にあり, 水素原子核 (陽子) 同士の核融合反応 (陽子-陽子連鎖) が主要なエネルギー源である. また, その核融合反応の過程で, 電子型ニュートリノ ( $\nu_e$  と表記) が生成される. 太陽中心部での核融合反応の概略を述べる.

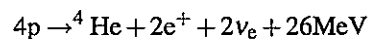
**陽子-陽子連鎖 (proton-proton chain, pp-chain)** 太陽内部で生成されるエネルギーの 98.5% は, 図 1.1 に示すような proton-proton 連鎖反応と呼ばれる過程で生成される. そして, その反応の各段階において, 電子型ニュートリノが生成される. pp-II, pp-III 連鎖への分岐比は, 太陽中心部温度への依存性が大きく, 生成されるニュートリノフラックスの予測値も誤差が大きくなる.

**CNO 循環 (CNO cycle)** 太陽内部で生成されるエネルギーの残りの 1.5% のエネルギーは, 図 1.2 に示すような, CNO 循環と呼ばれる一連の核融合反応によって生成される. 反応循環中で, C, N, O は触媒のような役割をする. この循環反応中の  $\beta^+$  崩壊によっても電子型ニュートリノが生成される.

### 1.1.2 太陽ニュートリノの数とエネルギースペクトル

太陽内部の核融合反応の過程で生成されるニュートリノは, 「太陽ニュートリノ」と呼ばれる. 太陽ニュートリノには, その生成過程に応じた名前が付けられている.

太陽内部の一連の核融合反応において, 正味の反応を,



とまとめる事ができる. 26MeV のエネルギー放出当たり, 2 個の電子型ニュートリノが放出される事になる. 地上で受ける太陽エネルギーは  $8.6 \times 10^{12} [\text{MeV} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}]$  (太陽定数) であるので, 地上でのニュートリノフラックスの総量は  $6.6 \times 10^{10} [\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}]$  となる.

現在の標準太陽模型が予測する, 地表に到達する太陽ニュートリノの数, 太陽ニュートリノのエネルギースペクトルを表 1.1, 図 1.3 に示す.

これらの太陽ニュートリノのうち, エネルギーが 1MeV 以下の太陽ニュートリノ, 特に pp ニュートリノ,  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノが低エネルギー太陽ニュートリノと呼ばれている.

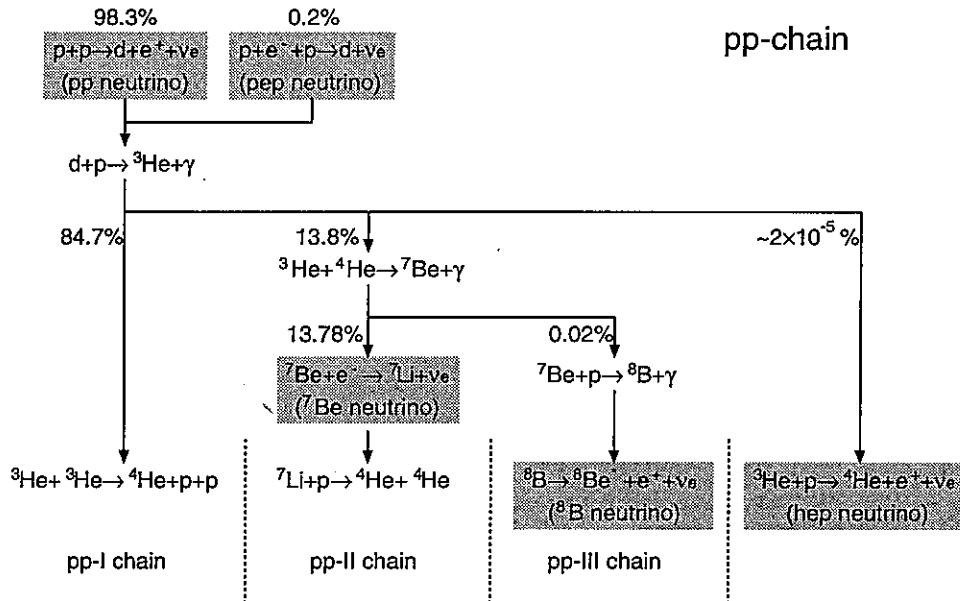


図 1.1: pp 連鎖

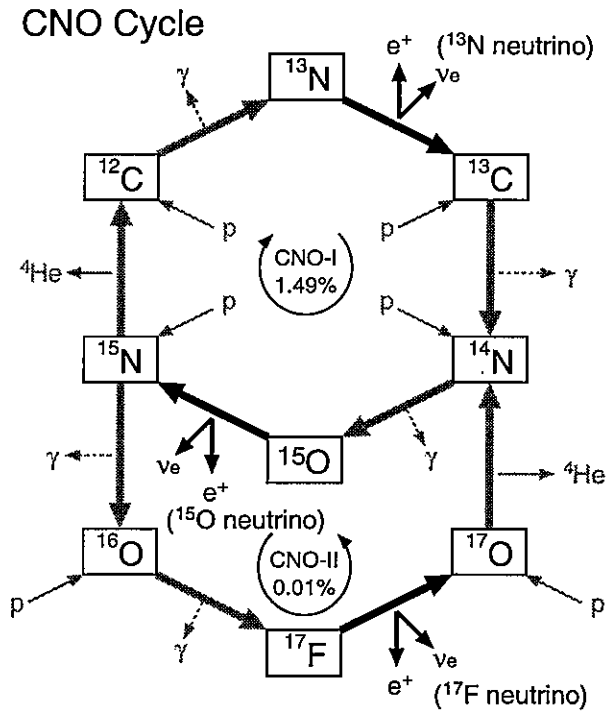


図 1.2: CNO 循環

生成反応		フラックス [ $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ]	フラックスの誤差 ( $1\sigma$ )
pp連鎖	pp	$5.95 \times 10^{10}$	+1%/-1%
	pep	$1.40 \times 10^8$	+1.5%/-1.5%
	hep	$9.3 \times 10^3$	未評価
	$^7\text{Be}$	$4.77 \times 10^9$	+10%/-10%
	$^8\text{B}$	$5.05 \times 10^6$	+20%/-16%
CNO循環	$^{13}\text{N}$	$5.48 \times 10^8$	+21%/-17%
	$^{15}\text{O}$	$4.80 \times 10^8$	+25%/-19%
	$^{17}\text{F}$	$5.63 \times 10^6$	+25%/-25%

表 1.1: 太陽で生成されたニュートリノがそのまま地球まで飛来するとした場合に、地表で観測される各太陽ニュートリノフラックスの標準太陽模型 [1] による予測値

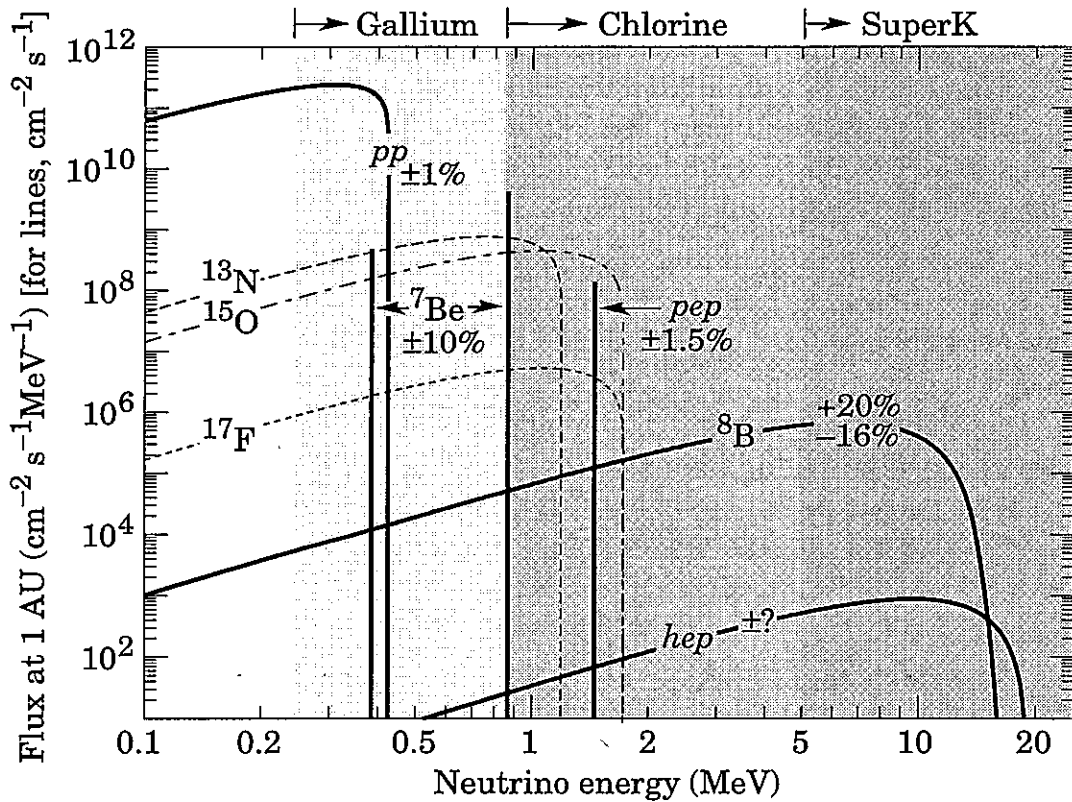


図 1.3: 太陽ニュートリノのエネルギースペクトル [2]

## 1.2 太陽ニュートリノ問題とLMA解による解決まで

広く知られた「太陽ニュートリノ問題」が、ニュートリノ振動が原因で起こっており、その振動パラメータがLMA解である、と分かり解決するまでの過程を振り返る。

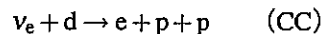
**太陽ニュートリノ問題の提起** 太陽ニュートリノのフラックスを地上で測定する実験が、世界各地で様々な方法で行われたが、図1.4に示すように、どれも実験で観測されたフラックスの値は、太陽模型の予測する値に比べ1/3~1/2程度で、有意に少ないという結果であった。これは太陽ニュートリノ問題と呼ばれ、1968年以降の問題であった。

**太陽模型の不備か?** 当初は太陽模型の不備が疑われ、太陽模型のパラメーター（太陽の中心温度、核融合反応の反応断面積）を調整することで説明する試みが行われたが、パラメーターを妥当な範囲で微調整しても、太陽ニュートリノ問題は説明できなかった。

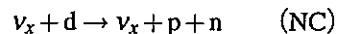
**ニュートリノ振動が原因か?** 太陽からの電子型ニュートリノが、地球に到達するまでに、観測にかからない別の flavor のニュートリノに変身してしまう、と考える事で、太陽ニュートリノ問題を説明する事が考えられた。ニュートリノの世代間に混合があり、かつ、ニュートリノが質量を持っていると、ある flavor で生成されたニュートリノが、飛行中に他の flavor の成分を持ってしまい、再び観測した際に生成時とは違った flavor のニュートリノとして観測されたという現象が起こる。この現象を、ニュートリノ振動と呼ぶ。ニュートリノ振動による flavor 変化が有力と考えられるようになった。

**flavor 転換が原因と判明** カナダで行われたSNO実験 (Sudbury Neutrino Observatory) で、太陽ニュートリノ問題の原因はニュートリノの flavor 転換が原因であることが示された [5]。SNO 実験では、重水を用いることで、荷電カレント (Charged Current) 反応、中性カレント (Neutral Current) 反応、電子散乱 (Electron Scattering) 反応の3種類の反応を検出する事ができる。

荷電カレント反応は、 $\nu_e$  でしか起こらない。



Neutral Current 反応は、 $\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau$  のすべてで同じ反応断面積を持つ。



この2つの反応を用いれば、 $\nu_e$  のみのフラックスと、 $\nu_e + \nu_\mu + \nu_\tau$  のフラックスを比較する事ができる。また、電子散乱反応は、 $\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau$  のすべてで起こるが、 $\nu_e$  の反応断面積が、 $\nu_\mu, \nu_\tau$  の反応断面積に比べ約6倍である。つまり、電子散乱反応では、 $\nu_e + (1/6)\nu_\mu + (1/6)\nu_\tau$  のフラックスを測定することになる。

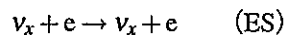


図1.4に示すように、SNO 実験の結果、やはり  $\nu_e$  のフラックスは太陽模型の予測値の約1/3だったが、 $\nu_e + \nu_\mu + \nu_\tau$  のフラックスは太陽模型の予測値と一致した。

これで、太陽ニュートリノ問題の原因は、ニュートリノの flavor が飛行中に転換することが原因であることが明らかになった。

**ニュートリノ磁気モーメントが原因である可能性は?** 太陽内部には強力な磁場が存在するため、ニュートリノの磁気モーメントの値によっては、磁場との相互作用により helicity 転換が起こり、地上での観測の際の反応率が異なってくる事も考えられる [4]。

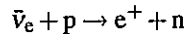


太陽ニュートリノを観測するこれまでの実験では、ニュートリノ磁気モーメントが原因である可能性を否定できなかった。

よって、伝搬経路に強力な磁場が存在しないようなニュートリノ源を使い、ニュートリノ磁気モーメントの影響を受けずに、ニュートリノ振動による flavor 転換のみを観測する実験が必要であった。

**KamLAND 実験で解決** KamLAND 実験 (Kamioka Liquid Sciintillator Anti-Neutrino Detector) では、原子炉からの反電子ニュートリノを観測することにより、振動パラメーターの決定を行う実験である。原子炉をニュートリノ源とするため、ニュートリノ磁気モーメントの影響は受けない。また、CPT 対称性が成立していれば、 $\nu$  と  $\bar{\nu}$  は同じ振動パラメーターを持つ。

反電子ニュートリノの観測には以下のような逆  $\beta$  崩壊反応を用いる。



KamLAND 実験は、原子炉からの  $\bar{\nu}_e$  が、原子炉の運転状況から予測される値の 6 割しか観測できなかった事を示した [6]。

この結果により、ニュートリノ磁気モーメントによる影響がなくても、ニュートリノ振動による flavor 転換によって、ニュートリノフラックスの欠損が起こっている事が示された。

また、ニュートリノ振動の振動パラメーターの内、図 1.6 に示すように、大混合角解 (Large Mixing Angle, LMA 解) と呼ばれる組合せ以外は排除された。

このようにして、SNO 実験と KamLAND 実験により、太陽ニュートリノ問題の解は、ニュートリノ振動であり、その振動パラメーターは LMA 解であることが示された。

なお、KamLAND 実験は今後も原子炉反電子ニュートリノの観測を続け、観測される反電子ニュートリノのエネルギースペクトルの形状から、KamLAND 実験単独での振動パラメーターの決定を目指している。

**Total Rates: Standard Model vs. Experiment**  
Bahcall-Pinsonneault 2000

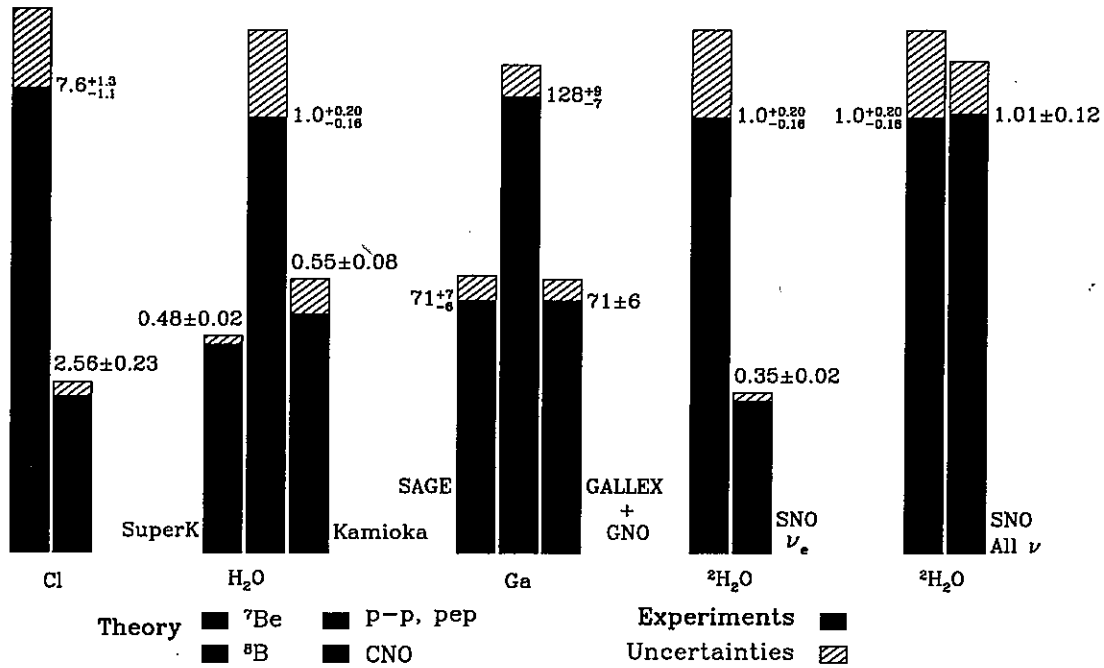


図 1.4: 各太陽ニュートリノフラックス測定実験の結果と、標準太陽模型の予測値との比較 [3].

検出方法	実験プロジェクト名
Cl (塩素実験)	$\nu_e + ^{37}\text{Cl} \rightarrow e^- + ^{37}\text{Ar}$ Homestake 荷電カレント反応. $\nu_e$ のみのフラックスを測定
H <sub>2</sub> O (水 Cherenkov 実験)	$\nu_{e,\mu,\tau} + e^- \rightarrow \nu_{e,\mu,\tau} + e^-$ KAMIOKANDE, Super-Kamiokande 電子散乱反応. $\nu_\mu, \nu_\tau$ への感度が $\nu_e$ への感度に比べ約 1/6.
Ga (Gallium 実験)	$\nu_e + ^{71}\text{Ga} \rightarrow e^- + ^{71}\text{Ge}$ SAGE, GALLEX, GNO 荷電カレント反応. $\nu_e$ のみのフラックスを測定
<sup>2</sup> H <sub>2</sub> O (重水荷電カレント実験)	$\nu_e + d \rightarrow e + p + p$ SNO 荷電カレント反応. $\nu_e$ のみのフラックスを測定
⇒ これらの実験では、標準太陽模型による予測値に比べ実測値が 1/3 ~ 1/2 である。	
<sup>2</sup> H <sub>2</sub> O (重水中性カレント実験)	$\nu_{e,\mu,\tau} + d \rightarrow \nu_{e,\mu,\tau} + p + n$ SNO 中性カレント反応. $\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau$ に対して同じ感度を持ち, $\nu_e + \nu_\mu + \nu_\tau$ のフラックスを測定.
⇒ 測定結果が標準太陽模型の予測値に合致している。	

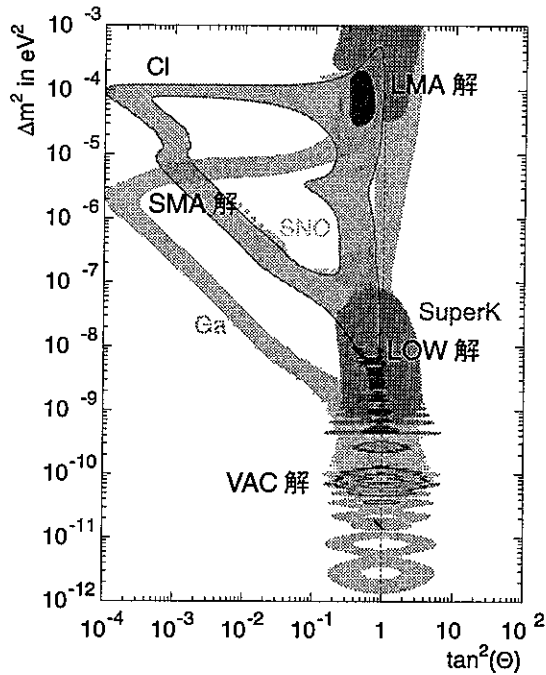


図 1.5: KamLAND 実験の前に許されていた振動パラメーター領域 [7]. 特に, LMA 解が有力であったが, 他の解も 0.27~5%程度で解の可能性があった.

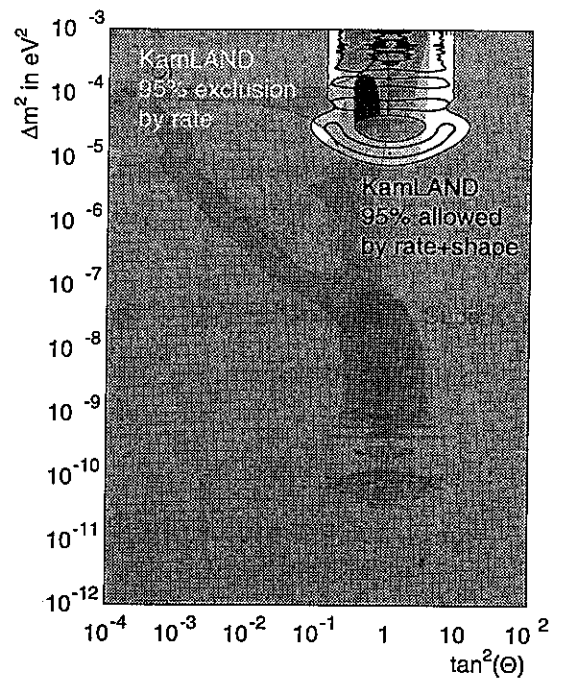


図 1.6: KamLAND 実験の結果によって, 排除された振動パラメーター領域. LMA 解が解であることが確認された [8]. しかし, 混合角の決定精度が悪い.

### 1.3 世界各地の低エネルギー太陽ニュートリノ観測計画

現在, 世界各地で計画されている低エネルギー太陽ニュートリノ観測計画について, 主なものを表 1.2 にまとめる.

実験名称	検出原理	概要
LENS	$\nu_e + {}^{176}\text{Yb} \rightarrow e^- + {}^{176}\text{Lu} + \gamma$	20 トン Yb 含有液体シンチレーター
MOON	$\nu_e + {}^{100}\text{Mo} \rightarrow e^- + {}^{100}\text{Tc}$	3.3 トン ${}^{100}\text{Mo}$ ホイル + プラスチックシンチレーター
BOREXINO	$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$	100 トン液体シンチレーター ( ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのみ)
KamLAND	$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$	1000 トン液体シンチレーター ( ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのみ)
CLEAN	$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$	10 トン液体 He 又は Ne
HERON	$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$	10 トン超流動 He
XMASS	$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$	10 トン液体 Xe シンチレーター

表 1.2: 世界各地の低エネルギー太陽ニュートリノ観測実験 [9]

## 1.4 KamLAND 実験に於ける低エネルギー太陽ニュートリノ観測

表 1.2 のように、KamLAND 実験では、次の目標として、低エネルギー太陽ニュートリノのうち、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの検出を目指している。

KamLAND 実験の検出器の構成と、太陽ニュートリノ観測の方法、KamLAND 実験での  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノ観測で分かる事を述べる。

### 1.4.1 KamLAND 実験の検出器

KamLAND 実験の検出器について、その構造、性能、物理解析の方法の概略のみを述べる。

#### 1.4.1.1 検出器の構造

KamLAND 検出器は、岐阜県吉城郡神岡町<sup>1</sup>の池ノ山（標高 1369m）の山頂直下 1000m に建設された。旧 KAMIOKANDE を解体し、その跡地を利用して建設された。

水換算深度では 2700m となり、宇宙線  $\mu$  粒子事象は検出器全体で毎秒 0.34 事象程度と、地上の  $10^{-5}$  程度までに抑えられる。

**液体シンチレーター (Liquid Scintillator, LS)** 中央にある直径 13 メートルのバルーンに、1000 トンの液体シンチレーターが入れられており、入射放射線と反応しシンチレーション光を発生する。1MeV の物理事象に対し、液体シンチレーターは約 8000 個の光子を発生させる。シンチレーション光の波長は、370nm 付近にピークを持つ。入射放射線の方向とは無関係に、シンチレーション光は等方的に拡散していく。

KamLAND 実験の液体シンチレーターは、Dodecane と Pseudocumene (1,2,4-Trimethylbenzene) をそれぞれ体積比で 80.2%、19.8% 混合した溶媒に、発光剤として PPO (2,5-Diphenyloxazole) を 1.52g/l 混ぜたものである。

液体シンチレーターの入ったバルーンは、EVOH フィルム/Nylon フィルム/EVOH フィルムの順に重ねた厚さ 135 $\mu\text{m}$  の多層構造フィルムから出来ており、EVOH フィルムの低 Rn 透過性、耐薬品性と、Nylon の機械的強度を生かした構造となっている。

**バッファオイル (Buffer Oil) 層** 光電子増倍管表面や、ステンレスタンクに存在する  ${}^{238}\text{U}$  等の放射性不純物に液体シンチレーターが反応するのを防ぐため設けられている。液体シンチレーターバルーンの形状保持のため、Dodecane に Isoparaffin を混合し、液体シンチレーターとの密度差ができるだけ小さくなるように調整されている。

**外水層** 超純水で満たされており、 ${}^{208}\text{Tl}$  からの  $\gamma$  線や、中性子等、検出器周囲の岩盤からの放射能を減衰させる。また、宇宙線  $\mu$  粒子が入射した際の識別のため、外部検出器としての役割を持つ。

**光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube, PMT)** 光電子増倍管は、液体シンチレーターが出す僅かな光を 1 光子レベルで検知し、光電子に変換し増幅、電荷情報に変換する装置である。

液体シンチレーターで発生したシンチレーション光は、等方的に液体シンチレーター、バッファオイル中を伝搬し、光電子増倍管の光電面に達する。バッファオイル層の表面積のうち、光電面が占める割合は 34% である。光電面では、到達した光子の数の 2 割程度の数の光電子が発生する。光電子の数は、約  $5 \times 10^6$  倍に増幅される。

(株) 浜松ホトニクス社製の光電子増倍管、R7250 型と R3600 型が使用されている。

<sup>1</sup>2004 年 2 月 1 日より、神岡町は、吉城郡内の古川町、河合村、宮川村と合併し、「飛騨市」へ移行。

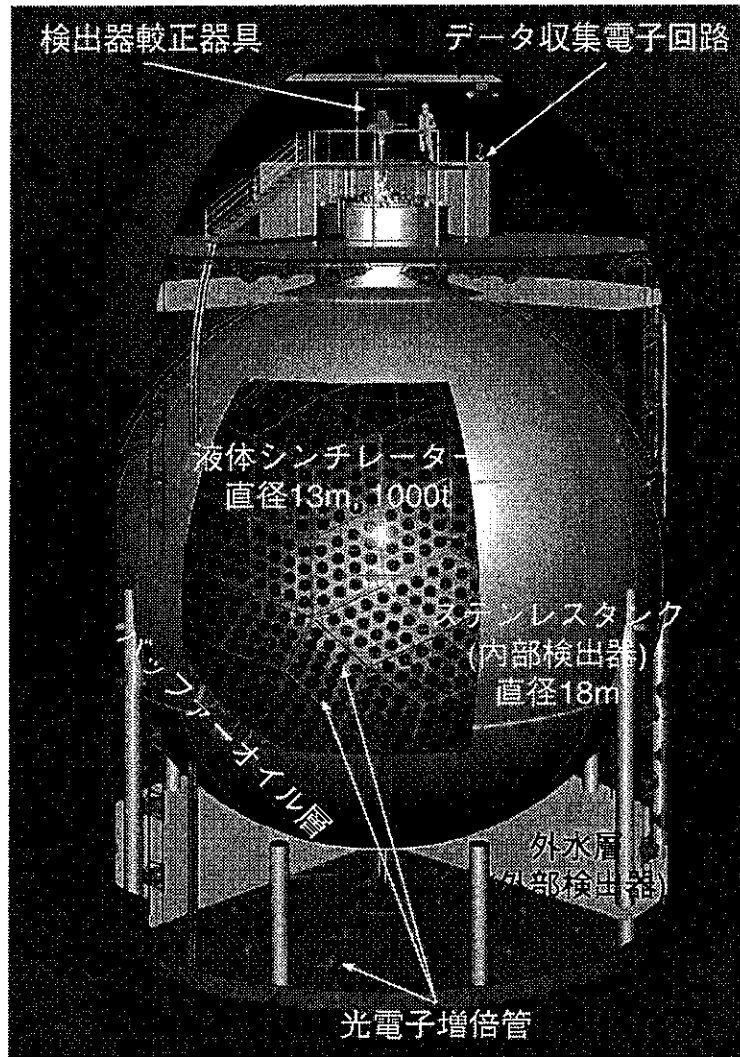


図 1.7: KamLAND 実験で用いられるニュートリノ検出器の概観

R3600 型は、旧 KAMIOKANDE で使用されていたものを再利用したものであり、光電面直径は 20 インチである。

R7250 型は、時間分解能向上を目的に KamLAND 実験のために新たに開発されたものであり、光電面直径は 17 インチである。

バッファオイルの周囲を、R7250 型が 1325 本、R3600 型が 554 本取り囲んでいる。

外水層の周りには、宇宙線  $\mu$  粒子検出のため、R3600 型が 225 本設置されている。

光電子増倍管からの信号処理、記録 光電子増倍管が出す信号は、増幅器で増幅される。1 本の光電子増倍管からの信号は 3 つに分けられ、20 倍、4 倍、1/2 倍の異なる増幅率を持つ増幅器でそれぞれ増幅される。これにより、1~1000 光電子相当光（物理事象のエネルギーでは数百 keV~ 数 GeV に相当）までの広いレンジにわたって信号を観測できる。

増幅された信号は、量子化ビット数 10bit、標準化周波数 670MHz 相当でデジタル化され記録される。1 つの増幅器からの信号を記録するのに、2 つのデジタル記録素子を用い、事象の取りこぼしを減少させている。この結果、1 本の光電子増倍管からの信号がデジタル記録されるまでに、増幅回路の数 3× デジタル

記録回路の数  $2=6$  通りの信号伝達経路が存在する。

#### 1.4.1.2 検出器の性能

KamLAND 実験の検出器の性能は、現状では表 1.3 の様になっている。

	設計精度	実際の精度
事象発生位置分解能	$10\text{cm}/\sqrt{E[\text{MeV}]}$	$\sim 25\text{cm}/\sqrt{E[\text{MeV}]}$
事象エネルギー分解能	$< 10\%/ \sqrt{E[\text{MeV}]}$	$7.5\%/ \sqrt{E[\text{MeV}]}$

表 1.3: KamLAND 実験の検出器の主な性能指標 (R7250 型のみを使用した場合の値)

#### 1.4.1.3 物理解析までの概要

データ収集 KamLAND 実験の検出器から第 1 次的に得られる情報は、各光電子増倍管が返す信号波形である。信号波形を記録するまでの流れを述べる。

1. 液体シンチレーター内で物理事象が発生し、そのエネルギーにはほぼ比例した量のシンチレーション光が発生、液体シンチレーター内を伝搬する。
2. 液体シンチレーターを取り巻く光電子増倍管表面に、光子が入射する。光電面において、入射光子数の 2 割程度の数の光電子が生成される。
3. 各光電子増倍管に取り付けられたディスクリミネーターの閾値 (0.5mV) は、光電面において 1/3 個の光電子が生成された場合の信号波高に設定されている。この閾値を超えた事を、“hit した”，と呼ぶ。
4. 25ns 毎に、直前 125ns の時間間隔中に hit した光電子増倍管の数を数える。125ns あれば、直径 13m の液体シンチレーターバルーン中で発生した光子はすべて光電子増倍管へ到達できるからである。この、125ns 中の hit の数の総和を、“Nsum”と呼ぶ。
5. Nsum が、指定した閾値を越えた場合は、各光電子増倍管が返す信号波形を記録する。

#### オフラインのデータ解析

1. 記録された各光電子増倍管の信号波形から、各光電子増倍管への入射光子の数、入射時間が分かる。これから、液体シンチレーター内での事象発生位置、事象発生時間、事象の種類を再構成する。ここまでの過程で、単一事象についての再構成が終る。単一事象の頻度は、約 20 事象 /s であり、50ms に 1 事象程度である。
2. さらに、特徴的な崩壊連鎖等を持つ物理事象の同定を行う場合は、単一事象間の位置相関、時間相関について選択条件を設けて遅延同時計数を行う事で、物理過程を推定する事も出来る。

#### 1.4.1.4 検出器の較正

検出器の較正のうち、主な 3 つについてその概要を述べる。

前述のように、1 本の光電子増倍管について、その信号がデジタル記録されるまでに、6 通りの信号伝達経路が存在する。その 1 つ 1 つを「チャンネル」と呼ぶ。

各チャンネルについて、利得較正、時間較正を行い、検出器の反応の変動を取り払い、物理的意味のある解析を行える様になっている。

その上で、放射線源を使い検出器全体のエネルギー較正を行っている。

**利得較正** 光電子増倍管自体の利得は、印加電圧の変化に敏感である。印加電圧は 2000V 前後であるが、高電圧電源装置自体が数 V 幅で変動する。

出力信号に関しては、信号ケーブルや増幅回路、A/D 変換回路のインピーダンス変化等の要因で変動が考えられる。

そのため、光電子増倍管の返した波形から 1 光電子事象を選び出し、1 光電子事象に対する出力電荷から、各チャンネルの利得変動を把握する。

その結果に基づき、高電圧電源を調整したり、解析の際にソフトウェア的に補正することによって対処している。

この較正は、常時行われている。

**時間較正** 光電面に光子が入射してから、光電子増倍管が信号を出すまでの時間は、各光電子増倍管によってばらついている。また、光電子増倍管の信号ケーブルの長さ、信号処理回路の応答時間差が存在する。

反応点の再構成のためには、この応答時間差を知っておく必要がある。

そのため、液体シンチレーターの中央から等方的に同じ時間で入射した光子に対し、各チャンネルが信号を出すまでの時間を調べる。

等方的な光を発生させるには、液体シンチレーター中央に、光ファイバーのつながった光拡散ボールを挿入し、レーザー光を入射させ、光ファイバーの先端の光拡散ボールでレーザー光を等方的に拡散させることで発生させる。

この較正は 3ヶ月に一度行われている。

**エネルギー較正**  $^{203}\text{Hg}$  (279.1967keV),  $^{68}\text{Ge}$  (1.022MeV),  $^{65}\text{Zn}$  (1.11552MeV),  $^{60}\text{Co}$  (2.506MeV), Am/Be (4.438MeV) 等の放射線源を、図 1.7 中に示されるような装置で液体シンチレーターバルーン内に挿入し、検出器全体についてエネルギー較正を行っている。エネルギー較正の結果は、データ解析プログラムに反映される。

この較正は、毎週行われている。

## 1.4.2 KamLAND 実験に於ける低エネルギー太陽ニュートリノ観測

### 1.4.2.1 検出に用いる反応

KamLAND 実験での太陽ニュートリノ検出には、次式で示される、液体シンチレーター中の電子との電子散乱反応を用いる。

$$\nu_e + e \rightarrow \nu_e + e$$

この反跳電子を検出する。ニュートリノのエネルギーを  $E_\nu$  とすると、反跳電子のエネルギー  $T_e$  は、

$$0 \leq T_e \leq \frac{2E_\nu^2}{2E_\nu + m_e}$$

の範囲で分布する。

### 1.4.2.2 観測可能な太陽ニュートリノ

図 1.8 に、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノ観測のための液体シンチレーターの純化達成後のバックグラウンド事象のエネルギー分布と、太陽ニュートリノによる電子散乱事象のエネルギー分布を示す。

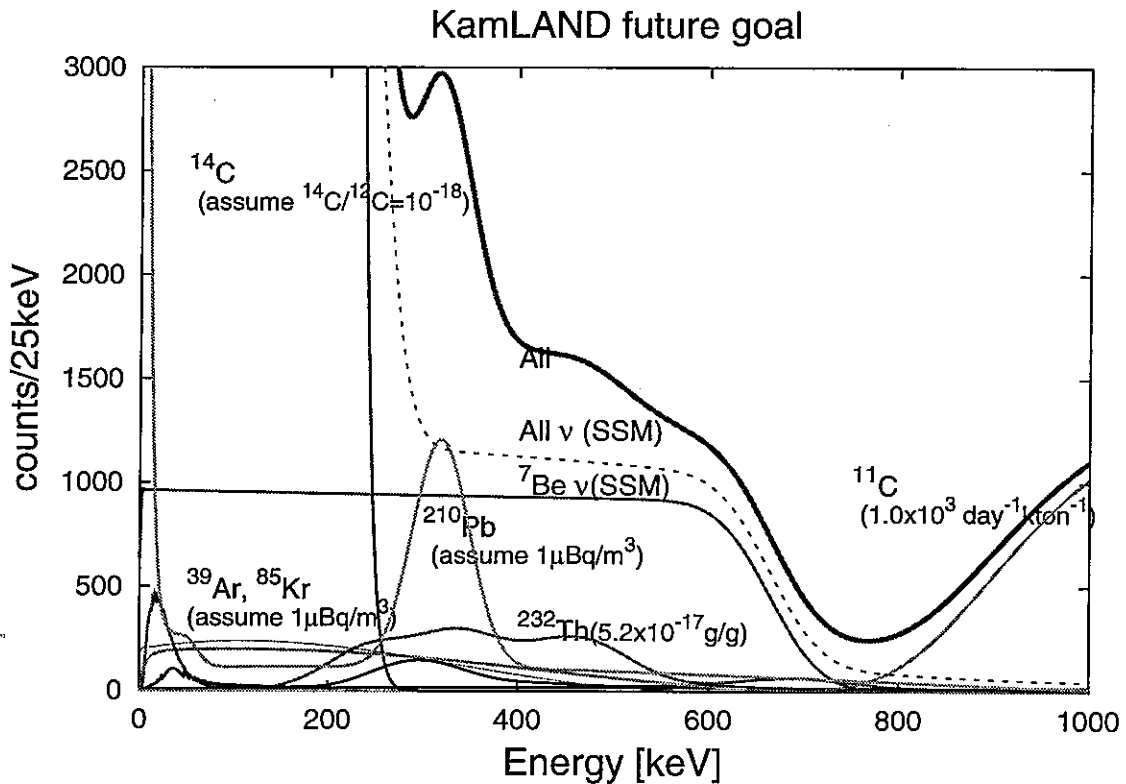


図 1.8: 純化目標達成後の、低エネルギー領域での単一事象のエネルギースペクトル。 [10]

この図から、pp ニュートリノは、 ${}^{14}\text{C}$  によるバックグラウンドにより観測は不可能である。観測可能な低エネルギー太陽ニュートリノは、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノのみである。



1.4.2.3  $^7\text{Be}$  ニュートリノ事象の分離方法

KamLAND で3年間  $^7\text{Be}$  ニュートリノを観測した際に得られる、単一事象のエネルギースペクトルを図 1.9[11] に示す. このように、実際の観測では、 $^7\text{Be}$  ニュートリノ事象に加え、他 (pep,  $^8\text{B}$ ) の太陽ニュートリノ事象、そしてバックグラウンドによる単一事象も含んだエネルギースペクトルが得られる事になる.

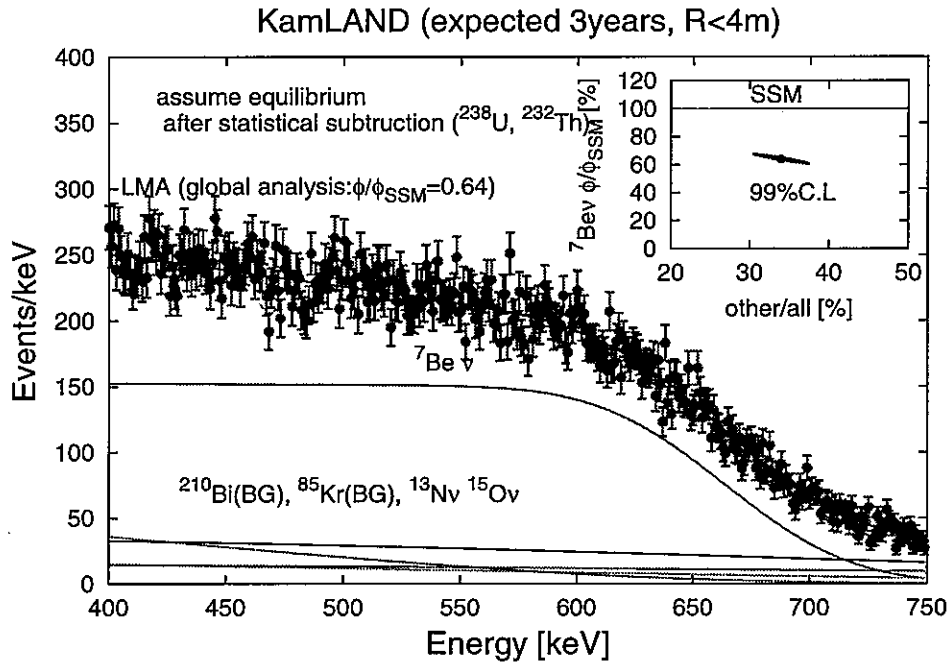


図 1.9: 純化目標達成後に3年間観測した場合に期待される  $^7\text{Be}$  ニュートリノ事象. 多く打ってある点が実際に観測されるエネルギースペクトルで、全ての単一事象のエネルギースペクトルの和になっている. その中に占める  $^7\text{Be}$  ニュートリノによる反跳電子事象の寄与も示してある.

全太陽ニュートリノ事象を分離 観測される全単一事象エネルギースペクトルから、太陽ニュートリノによる電子散乱事象を取り出すには、地球の公転軌道が楕円であるため、太陽ニュートリノフラックスが季節変動する事を利用する.

図 1.10[12] のように、実測された事象数と、そのときの地球と太陽間の距離  $L$  とをプロットし、 $L \rightarrow \infty$  と外挿することでバックグラウンド事象が求まる.

こうして、太陽ニュートリノによる事象のみが選択される.

$^7\text{Be}$  ニュートリノ事象のみを分離 さらに、 $^7\text{Be}$  ニュートリノは、861keV の単一エネルギーであり、反跳電子の最大エネルギーは 665keV であることを利用し、pep ニュートリノ、 $^8\text{B}$  ニュートリノによる事象の寄与を取り除く.

このようにして、 $^7\text{Be}$  ニュートリノのみを分離したフラックス測定が可能となる.

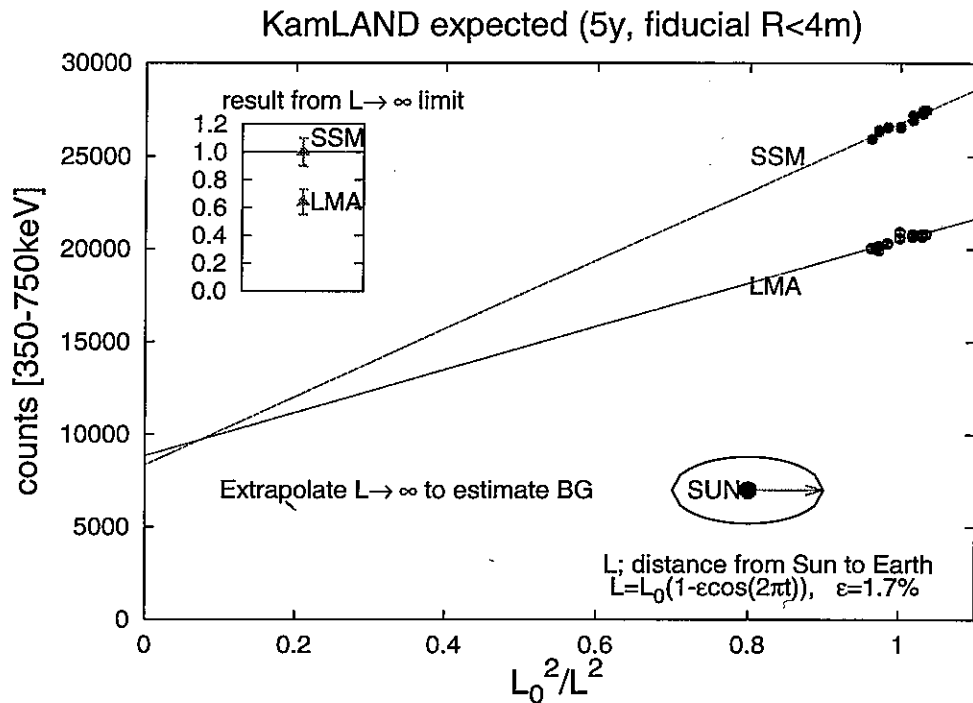


図 1.10: 350～750keV のエネルギー領域で検出される事象数と、太陽と地球間の距離  $L$  の関係 [12].  $L \rightarrow \infty$  とした場合の事象数が、バックグラウンド事象数に相当する. ニュートリノ振動が無いとした場合 (SSM) と, LMA 解の場合について描いてある.

### 1.4.3 KamLAND 実験に於ける ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ観測で分かること

#### 1.4.3.1 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノフラックスのみの分離測定

図 1.4 に示されたこれまでの太陽ニュートリノ実験では、低エネルギー太陽ニュートリノの実時間測定 の例は無く、積分測定のみで、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノフラックスのみを分離した測定も無かった.

KamLAND 実験によって、初めて  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノフラックスのみを分離し、且つ時間情報を失わない 測定が可能となる.

KamLAND で  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノを観測することで、ニュートリノフラックスから、図 1.11 のように、 ニュートリノ振動のパラメーターである混合角  $\theta_{12}$  が決定できる. pp ニュートリノの観測には及ばないも のの、図 1.6 のような原子炉反電子ニュートリノの観測よりは、 $\theta_{12}$  の決定精度は向上する.

#### 1.4.3.2 大混合角解 (Large Mixing Angle) の検証

KamLAND 実験が原子炉反電子ニュートリノで示した大混合角解を、太陽からの電子ニュートリノで直 接検証できる.

#### 1.4.3.3 標準太陽模型の検証

太陽ニュートリノのフラックスの7%を占め、予測値の不定性が比較的少ない  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノのフラッ クス測定により、標準太陽模型の検証の説得力が増す.

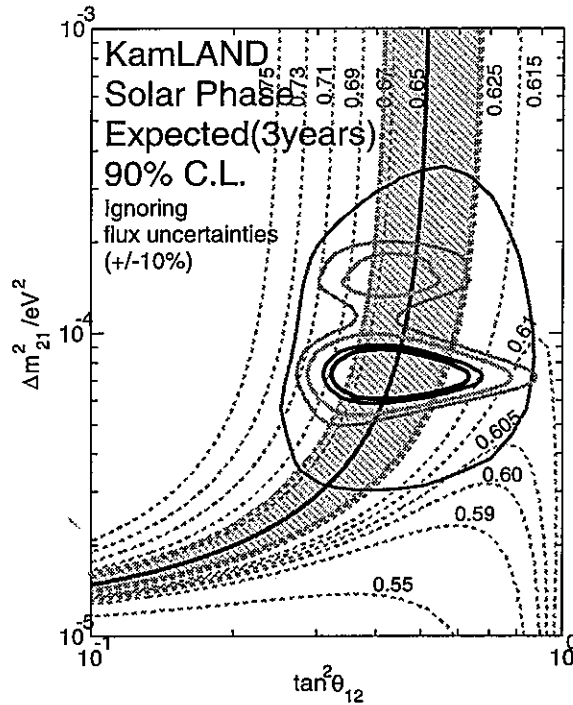


図 1.11: KamLAND で測定される  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノフラックスと、混合角  $\theta_{12}$  の関係。図中の曲線毎に描かれた数字は、ニュートリノフラックスの実測値の標準太陽模型に対する比を表す。

#### 1.4.3.4 ニュートリノ磁気モーメントの測定

ニュートリノが質量を持つ事は、ニュートリノが磁気モーメントを持つ事を意味する。ニュートリノと電子の電子散乱反応 ( $\nu_x + e \rightarrow \nu_x + e$ ) の微分反応断面積は、

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{G_F^2 m_e}{2\pi} \left[ g_L^2 + g_R^2 \left( 1 - \frac{T}{E_\nu} \right)^2 + g_L g_R \frac{m_e T}{E_\nu} \right] + \frac{\pi \alpha^2}{m_e^2} \left( \frac{\mu_\nu}{\mu_B} \right)^2 \frac{1 - T/E_\nu}{T}$$

のように表される [13]。ここで、

$G_F = 1.16639 \times 10^{-11} [\text{MeV}^{-2}]$	Fermi 結合定数	$T$	反跳電子の運動エネルギー
$m_e = 0.511 [\text{MeV}]$	電子質量	$E_\nu$	ニュートリノのエネルギー
$\alpha = 1/137$	微細構造定数	$\mu_\nu$	ニュートリノ磁気モーメント
$\sin^2 \theta_W = 0.2317$	Weinberg 角	$\mu_B$	Bohr 磁子

$\nu_e$  では、 $g_L = 2 \sin^2 \theta_W + 1$ ,  $g_R = 2 \sin^2 \theta_W$   
 $\nu_\mu, \nu_\tau$  では、 $g_L = 2 \sin^2 \theta_W - 1$ ,  $g_R = 2 \sin^2 \theta_W$

である。

ニュートリノと電子の電子散乱反応の反応断面積のうち、ニュートリノ磁気モーメントを含む項の寄与は、ニュートリノのエネルギーが小さい程大きくなるため、低エネルギーのニュートリノによって散乱された反跳電子のエネルギースペクトルから、ニュートリノ磁気モーメントの測定が行える。

## 2 液体シンチレーター純化の目的と概要

本研究は、液体シンチレーター中の $^{210}\text{Pb}$ の除去方法を探る研究であるが、まず、 $^{210}\text{Pb}$ に限らず、将来の $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測のために、KamLAND実験グループ内で行われている液体シンチレーター純化のための様々な研究開発の概要を述べる。

### 2.1 低エネルギー太陽ニュートリノ観測の障害

現在、KamLAND実験の検出器の液体シンチレーター中には、 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ 等の放射性不純物が残留している。これらの放射性不純物は、原子炉反電子ニュートリノの観測には支障を来さない程度である。ところが、KamLAND実験の次のターゲットである、太陽からの $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測にとっては、放射性不純物によるバックグラウンド事象が、観測したい $^7\text{Be}$ ニュートリノ事象に比べ $10^{4\sim5}$ ほど大きく、 $^7\text{Be}$ ニュートリノが観測できていない。

そのため、液体シンチレーター中から放射性不純物を除去、また、新たな混入を防止しなければならない。目標とする純化レベルは、 $^7\text{Be}$ ニュートリノ事象が確認できるレベル、図1.8の様なレベルである。

### 2.2 液体シンチレーター中に残留する放射性不純物とその除去方法

現在、KamLANDの液体シンチレーター内に残留している主な放射性不純物を、表2.1に示す。

放射性不純物	溶存量測定方法	現状の残留量	目標とする残留量
$^{238}\text{U}$	$^{214}\text{Bi}$ - $^{214}\text{Po}$ 連鎖崩壊事象検出(放射平衡を仮定)	$3.5 \times 10^{-18} \text{g/g}$	$10^{-16} \text{g/g}$ (既に達成済)
$^{232}\text{Th}$	$^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$ 連鎖崩壊事象検出(放射平衡を仮定)	$5.2 \times 10^{-17} \text{g/g}$	$10^{-16} \text{g/g}$ (既に達成済)
$^{40}\text{K}$	$^{40}\text{K}$ 電子捕獲事象検出	$2.7 \times 10^{-16} \text{g/g}$	$10^{-18} \text{g/g}$ 以下
$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Bi}\beta$ 崩壊事象検出(放射平衡を仮定)	$10^{-20} \text{g/g}$	$5 \times 10^{-25} \text{g/g}$
$^{85}\text{Kr}$	$^{85}\text{Kr}\beta$ 崩壊事象検出	$0.7 \text{Bq/m}^3$	$1 \mu\text{Bq/m}^3$
$^{39}\text{Ar}$	$^{85}\text{Kr}$ との存在比から推定	$0.7 \text{Bq/m}^3$	$1 \mu\text{Bq/m}^3$

表2.1: 液体シンチレーター中に残留する主な放射性不純物

各放射性不純物について、混入経路、除去方法、溶存量測定方法の概略を述べていく。

#### 2.2.1 $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 系列の放射性不純物

混入経路 液体シンチレーターの原料であるDodecane, Pseudocumene, PPO購入時に、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ はそれぞれ $10^{-13} \text{g/g}$ 程度含まれていた。

除去方法  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  系列中の放射性核種のうち、イオンとして存在していた核種は、液体シンチレーターをバルーンに注入する際に、純水を使った液液抽出を行う事で除去された。

溶存量測定方法 崩壊系列中の  $^{214,212}\text{Bi}$ - $^{214,212}\text{Po}$  連鎖崩壊を KamLAND 実験の検出器自体で同定する。連鎖崩壊同定条件は以下の通りである。

$^{238}\text{U}$ 系列連鎖崩壊事象検出条件				
崩壊連鎖	$^{214}\text{Bi}$	$\xrightarrow[\beta]{3.3\text{MeV}}$	$^{214}\text{Po}$	$\xrightarrow[\alpha]{7.8\text{MeV}}$ $^{210}\text{Pb}$
半減期			164 $\mu\text{s}$	
先発事象発生位置条件	$R < 4\text{m}, \rho > 2\text{m}$			
先発遅発事象時間間隔条件	5 ~ 1000 $\mu\text{s}$			
先発 $\beta$ 崩壊エネルギー条件	$\leq 1.3\text{MeV}$			
遅発 $\alpha$ 崩壊エネルギー条件	0.3 ~ 1.0MeV			
$^{232}\text{Th}$ 系列連鎖崩壊事象検出条件				
崩壊連鎖	$^{212}\text{Bi}$	$\xrightarrow[\beta(64\%)]{2.3\text{MeV}}$	$^{212}\text{Po}$	$\xrightarrow[\alpha]{9.0\text{MeV}}$ $^{208}\text{Pb}$
半減期			0.3 $\mu\text{s}$	
先発事象発生位置条件	$R < 4\text{m}, \rho > 2\text{m}$			
先発遅発事象時間間隔条件	0.4 ~ 1.0 $\mu\text{s}$			
先発 $\beta$ 崩壊エネルギー条件	1.0 ~ 2.0MeV			
遅発 $\alpha$ 崩壊エネルギー条件	0.3 ~ 1.0MeV			

ここで、表中の  $R$  は、球状の液体シンチレーターバルーンを中心からの距離。液体シンチレーターバルーンの半径は 6.5m である。 $\rho$  は、液体シンチレーターバルーンを中心を通る垂線からの距離。垂線に沿って温度計が吊下げられているため、また、較正用器具を出し入れするため、垂線付近はバックグラウンド事象が多くなる。そのため、解析の際は除外する場合がある。

上記の条件で同定された事象数と事象選択効率から、液体シンチレーター中の  $^{238}\text{U}$  と  $^{232}\text{Th}$  の量を求めた結果、既に純化目標を達成していることが分かっている。

### 2.2.2 $^{40}\text{K}$

混入経路 液体シンチレーターの原料である Dodecane, Pseudocumene, PPO 購入時に、 $^{40}\text{K}$  は  $10^{-14}\text{g/g}$  程度含まれていたが、液体シンチレーターをバルーンに注入する際に、純水を使った液液抽出を行う事で除去された。

現在液体シンチレーター中に残留する  $^{40}\text{K}$  は、主に図 1.7 中に示されている、液体シンチレーターの入ったバルーンを吊っている KEVLAR<sup>®</sup><sup>1</sup> 紐からの放出によるもの、また、光電子増倍管のガラスからも放出されている。

除去方法  $^{40}\text{K}$  はイオンである事が分かっているため、純水を使った液液抽出によって効率的に除去できる筈である。

溶存量測定方法  $^{40}\text{K}$  の電子捕獲反応後に放出される 1.46keV の  $\gamma$  線を、KamLAND 実験の検出器自体で検出する。

<sup>1</sup>KEVLAR<sup>®</sup> は、Dupont 社のアラミド繊維の登録商標

$^{40}\text{K}$ 事象検出条件				
崩壊連鎖	$^{40}\text{K}$	$\xrightarrow[2.3\text{MeV}]{\text{EC}}$	$^{40}\text{Ar}^*$	$\xrightarrow[1.46\text{MeV}]{\gamma(10.7\%)}$ $^{40}\text{Ar}$
事象発生位置条件	$R < 4.0\text{m}, \rho > 1.2\text{m}$			
エネルギー条件	1.46 ~ 1.65MeV			

### 2.2.3 $^{210}\text{Pb}$

**混入経路** KamLAND 実験の検出器を建設する際、液体シンチレーターを入れるバルーンの形状を保持するため、窒素ガスを入れながら液体シンチレーターをバルーン内に注入していった。その際、窒素ガス中の  $^{222}\text{Rn}$  が液体シンチレーターに混入し、崩壊し  $^{210}\text{Pb}$  となって残留している。

また、純化のために液体シンチレーターを循環させた際、循環系の配管の隙間からの  $^{222}\text{Rn}$  の侵入による、新たな混入も問題である。

**除去方法** 後述するように、純水を使った液液抽出法では、等量の水を用いても、2割弱しか水相へ移行せず、液液抽出法による除去は難しい事が明らかとなっている。

現在は、 $\text{SiO}_2$  等へ吸着させる方法、蒸留して除去する方法等が実験室レベルで模索されているが、実用化の可能性は未知数である。

つまり、除去方法の原理そのものが未だ確立されていない段階である。当然具体的な除去装置の設計までには至っていない。

**溶存量測定方法** 崩壊系列中の  $^{210}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$  崩壊連鎖を KamLAND 実験の検出器自体で同定する。

$^{210}\text{Pb}$ 事象検出条件						
崩壊連鎖	$^{210}\text{Pb}$	$\xrightarrow[63.5\text{keV}]{\beta}$	$^{210}\text{Bi}$	$\xrightarrow[1.2\text{MeV}]{\beta}$	$^{210}\text{Po}$	$\xrightarrow[5.3\text{MeV}]{\alpha}$ $^{206}\text{Pb}$
半減期	22.3y		5.0d		138d	stable
事象発生位置条件	$R < 4.0\text{m}, \rho > 1.2\text{m}$					
エネルギー条件	0.9 ~ 1.3MeV					

### 2.2.4 $^{85}\text{Kr}, ^{39}\text{Ar}$

**混入経路**  $^{222}\text{Rn}$  と同様、配管接続部の僅かな隙間から液体シンチレーター中に混入する。

**除去方法** これら希ガスの放射性不純物は、窒素パージによって除去できる。

しかし、旧来の窒素パージ塔は、単純に窒素を液体シンチレーター中にバブリングするだけであったため除去効率が低く、十分な除去ができなかった。

今度新たに開発する窒素パージ塔では、液体シンチレーターを霧状にして窒素ガス中を通すため、旧来の窒素パージ塔に比べ高い除去効率が期待されている。

液体シンチレーターと窒素の最適流量を決定する実験が進められている。

なお、旧来の窒素パージ塔は、液液抽出後の液体シンチレーター中の水分を除去する目的で今後も引続き使用される。

**溶存量測定方法** ( $^{85}\text{Kr}$ )  $^{85}\text{Kr}$  の溶存量は、 $^{85}\text{Kr}$  の  $\beta$  崩壊事象を KamLAND 検出器自体で同定することで検出する。

<sup>85</sup> Kr 系列連鎖崩壊事象検出条件					
崩壊連鎖	<sup>85</sup> Kr	$\xrightarrow[173\text{keV}]{\beta(0.434\%)}$	<sup>85</sup> Rb*	$\xrightarrow[514\text{keV}]{\gamma}$	<sup>85</sup> Rb
半減期	10.8y		1.0 $\mu$ s		
先発事象発生位置条件	$R < 6.5\text{m}$				
先発遅発事象時間間隔条件	0.65 ~ 2.65 $\mu$ s				
先発 $\beta$ 崩壊エネルギー条件	78 ~ 162keV				

溶存量測定方法 (<sup>39</sup>Ar) <sup>39</sup>Arについては、最大エネルギーが565keVの $\beta$ 崩壊のみで、特徴的な崩壊連鎖は無いため、<sup>39</sup>Arの量を分離して求めることは出来ない。そのため、<sup>85</sup>Krとの存在比から推定する。

## 2.3 液体シンチレーター循環系への<sup>222</sup>Rn 混入防止策

KamLAND 実験の検出器、液体シンチレーター純化装置が設置される坑道内は、岩盤がむき出しになっており、岩盤からの湧水から<sup>222</sup>Rn ガスが放出され滞留しているため、坑道内の<sup>222</sup>Rn 濃度は、高いところで3000Bq/m<sup>3</sup>にも達する。

そのような条件下で、液体シンチレーター循環系への<sup>222</sup>Rn 混入を防ぐために行われた対策を述べる。

### 2.3.1 配管接続部の密閉性向上

配管接続部をアクリルカバーで覆う事で、接続部の隙間からの<sup>222</sup>Rn 混入量が100分の1以下にまで抑えられる事が判明した。今後、液体シンチレーター配管接続部はアクリルカバーで覆われる事になる。

### 2.3.2 坑内の空気の<sup>222</sup>Rn 濃度低減

配管接続部の密閉性を向上しても侵入してくる<sup>222</sup>Rn の混入量を許容量以下に抑えるには、KamLAND 実験エリア内、とりわけ、液体シンチレーター純化装置を設置する場所の空気中の<sup>222</sup>Rn 濃度を、外気と同程度の40Bq/m<sup>3</sup>まで低減させなければならないことが判明した。

そのため、以下のような対策が検討されている。

**低<sup>222</sup>Rn 濃度空気の取り入れ** まず外気を取り入れ、粉塵除去、除湿、冷却が行われた空気を、Rn 透過性の低いポリエチレン製の配管で、跡津坑口から KamLAND 実験区域まで坑道内を約2200m 引き回し、KamLAND 実験区域内の必要な場所に通気する。

**岩盤を Rn 透過性の低い樹脂で覆う** 液体シンチレーター純化装置を設置する場所の岩盤を、岩盤から放出される<sup>222</sup>Rn ガスの侵入を防ぐため、また、湧水を防ぐため、図2.1のように岩盤にアンカーボルトを打ち込み不織布を張り付けて、その上から Rn 透過性の低い樹脂を塗布する作業が行われた。

Rn 透過性の低い樹脂とは、ポリウレタン樹脂を塗布可能にした MINEGUARD<sup>TM2</sup> と呼ばれる樹脂であり、塗布厚1mmで、99.85%の Rn を阻止できる。樹脂の厚さが2mm以上になるように塗布された。

また、タンク、配管、搬入物の表面の埃を、濡れ雑布で拭き取る作業も行われた。

<sup>2</sup>Urylon Plastics 社の商標



図 2.1: MINEGUARD™ を塗る準備

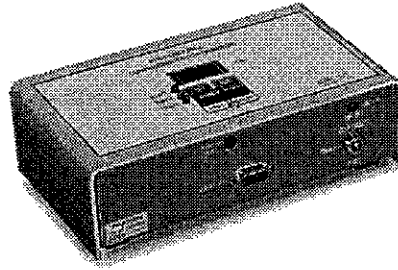


図 2.2: KamLAND 実験区域内 12 箇所に設置されている Rn 検出器 (Sun Nuclear 社 Radon Monitor 1027 型)

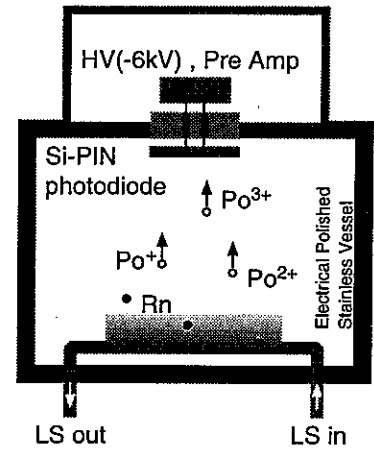


図 2.3: 現在開発中の、液体シンチレーター中  $^{222}\text{Rn}$  濃度測定器の概略図

## 2.4 純化に関連するその他の研究開発

**超高純度窒素ガス製造** 新たに開発する窒素パージ塔で使用する窒素ガスは、当然 Rn, Ar, Kr 濃度の極めて低い超高純度ものでなければならず、超高純窒素ガス製造装置の開発が行われている。

**超純水製造**  $^{40}\text{K}$  を液体シンチレーター中から除去するためには純水を用いた液液抽出法が有効であるが、当然、液液抽出に使う純水中の放射性不純物も除去されていなくてはならない。

坑内の湧水を原水とし、精密濾過、逆浸透膜、イオン交換膜、紫外線殺菌装置を組み合わせる事で、必要とする超純水が得られる。

**Rn 濃度監視** 図 2.2 に示すような Rn 濃度測定器が、KamLAND 実験区域内に図 2.4 のように 12 箇所設置され、1 時間毎に Rn 濃度がオンラインで監視されている。

**$^{222}\text{Rn}$  濃度測定器開発** 液体シンチレーター純化装置から出て来た液体シンチレーターを液体シンチレーターバルーンに戻す前に、液体シンチレーター中の  $^{222}\text{Rn}$  濃度を測定し、純化状態を監視するため、図 2.3 のような構成の Rn 濃度測定器の開発が進められている。必要とされる検出感度は、液体シンチレーター  $1\text{m}^3$  当たり  $1\mu\text{Bq}$  である。Super-Kamiokande で開発されたものがベースとなっており、Si-PIN フォトダイオードを用いる。

液体シンチレーター中の  $^{222}\text{Rn}$  濃度を検出するには、液体シンチレーターを極低  $^{222}\text{Rn}$  空気に接触させ、空気と液体シンチレーター間での  $^{222}\text{Rn}$  濃度平衡移動を利用し、液体シンチレーター中に溶存する  $^{222}\text{Rn}$  を空気中に放出させる。

$^{222}\text{Rn}$  の娘核種  $^{216}\text{Po}$  は、真空中で  $^{216}\text{Po}^+$ ,  $^{216}\text{Po}^{2+}$ ,  $^{216}\text{Po}^{3+}$  のように陽イオンとして存在するため、フォトダイオード表面に高電圧を印加し、静電補集することで検出効率を上げる事ができる。

如何に効率良く液体シンチレーター中の  $^{222}\text{Rn}$  を空気中に放出させるかが課題である。



## 2.5 液体シンチレーター純化計画

### 2.5.1 液体シンチレーター純化関連装置の配置

現在の計画では、低エネルギー太陽ニュートリノ観測に向けた液体シンチレーター純化装置の構成は、図 2.4 のようになっている。

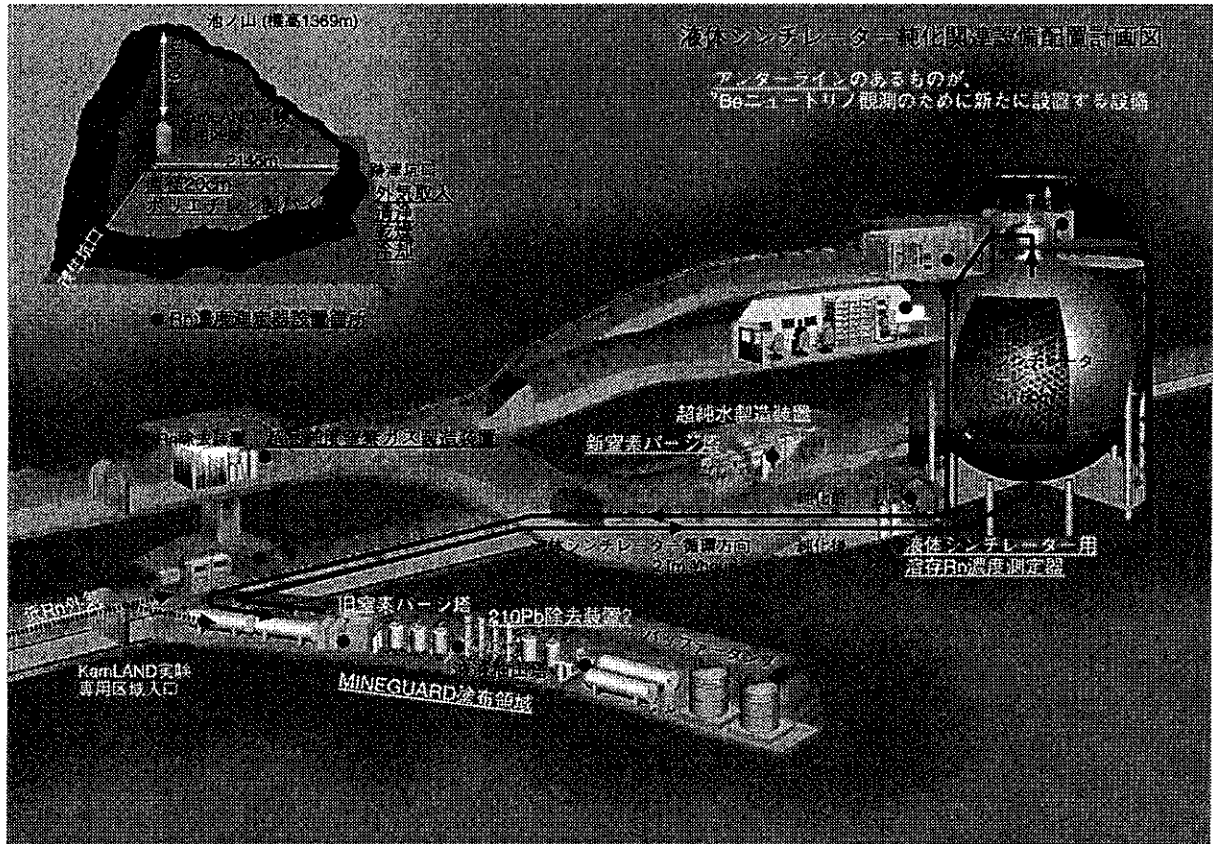


図 2.4: KamLAND 実験専用区域内の液体シンチレーター純化関連設備配置計画図

### 2.5.2 液体シンチレーター循環系

液体シンチレーター純化の中核となる、液体シンチレーター循環系の主な装置とその役割を述べる。現在 (2004年2月) の計画では、図 2.5 のような構成が考えられている。1時間あたりの流量は  $2\text{m}^3$  を目標としている。

**液液抽出塔** イオン性の放射性不純物である  $^{40}\text{K}$  の除去に用いられる。また、 $^{210}\text{Pb}$  の除去にも使えらると思われていたが、後述するように、 $^{210}\text{Pb}$  の除去効率は低すぎて使えないことが分かった。

**$^{210}\text{Pb}$  除去装置**  $^{210}\text{Pb}$  除去のための装置であるが、 $^{210}\text{Pb}$  除去の方法を実験室レベルで模索している状況であるため、どのような装置になるかは不明である。

**旧窒素パージ塔** クエンチングの原因となる酸素、液液抽出後に残留する水分、そして、希ガスの放射性不純物 ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ) の除去のために設計されたものであるが、 $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  の除去効率が悪かったため、今後は、純水を使った液液抽出後の液体シンチレーターに残留する水分の除去のため使用される事になる。

**新窒素パージ塔** 旧窒素パージ塔で充分除去できなかった  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  の除去のために用いられる。

**溶存 Rn 濃度測定器** 液体シンチレーターバルーンに戻す直前の液体シンチレーター中の Rn 濃度を計測する装置である。

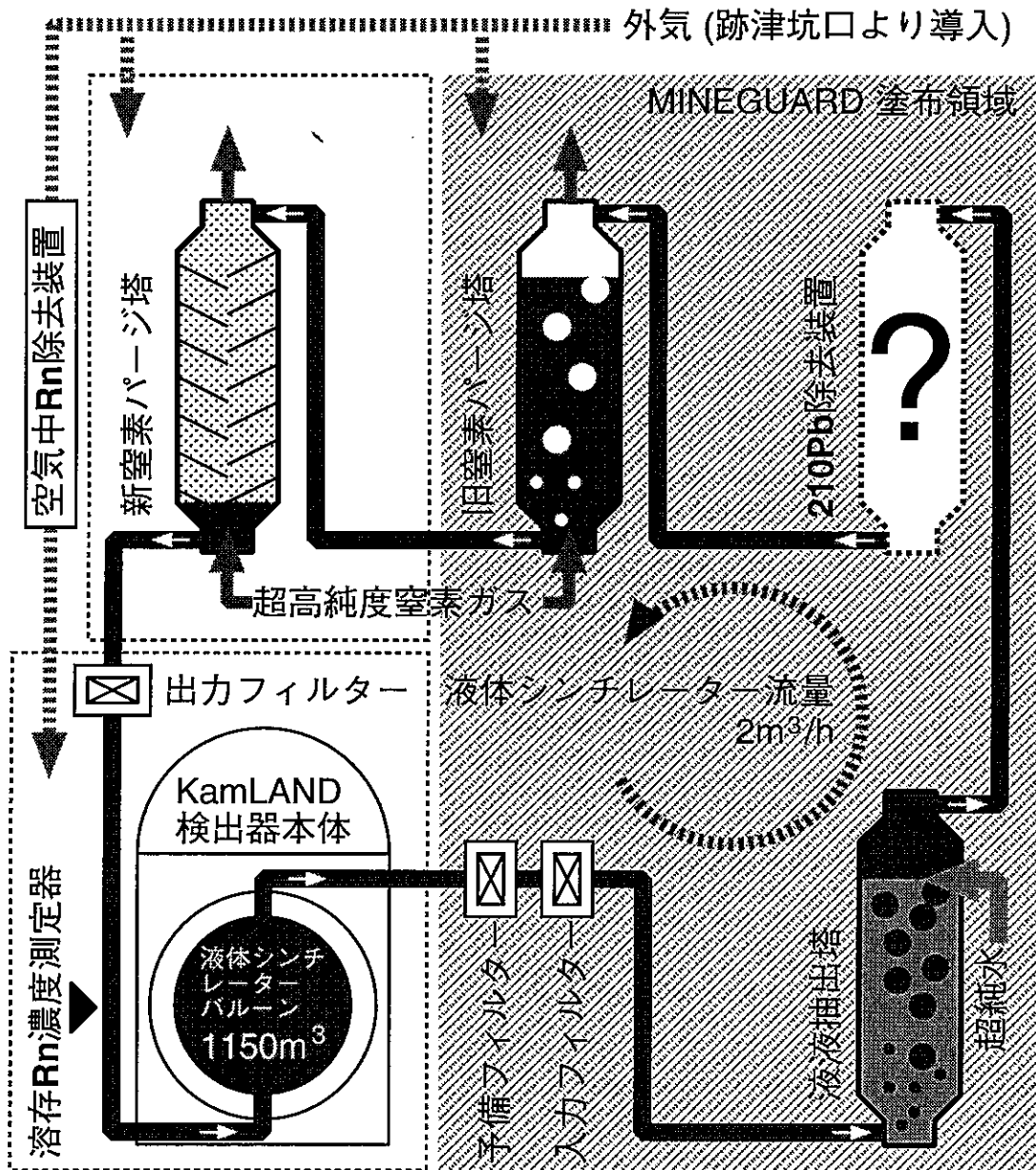


図 2.5: 液体シンチレーター循環系概念図

### 2.5.3 液体シンチレーター純化スケジュール

液体シンチレーターの純化装置の開発から純化装置建設，純化達成， $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測開始，物理的成果を出すまでの，現在（2004年1月）予定されているスケジュールを述べる。

**研究開発（現在～2004年?）** 液体シンチレーター中の各種放射性不純物の除去方法を実験レベルで模索する，または，実際の純化装置建設を想定した中規模の実験装置でテストする。

**純化装置建設（2004～2005?）** KamLAND 実験専用区域内に，実際に使用する純化装置，関連設備を建設する。建設と並行して，完成した部分については試運転も行っていく。

**純化装置試運転（2005～2006?）** 純化装置完成後，試運転を行い，要求される純化性能が得られているかを確認していく。

**純化装置本運転（2006～2007?）** いよいよ液体シンチレーターの純化に突入する。液体シンチレーターの純化は，純化設備の性能にも依るが，最低1～2年はかかると考えられている。液体シンチレーターを循環させることで，液体シンチレーターバルーン内に温度，密度の不均一が生じると考えられるため，純化中は，原子炉反電子ニュートリノの解析は中断する可能性もある。

**純化完了， $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測へ（2008～2011?）** ようやく，目的の $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測を開始する。3～5年の観測で最初の物理的結果が出せる。

## 3 液体シンチレーター中の $^{210}\text{Pb}$ の除去

液体シンチレーター中に残留する $^{210}\text{Pb}$ を除去する方法を、実験室レベルで探るために行った実験について述べる。

### 3.1 $^{210}\text{Pb}$ 除去のための、 $^{212}\text{Pb}$ を使った除去実験

#### 3.1.1 $^{210}\text{Pb}$ の代わりに、 $^{212}\text{Pb}$ を使った理由

この実験は、液体シンチレーター中から、 $^{238}\text{U}$ 系列の放射性鉛 $^{210}\text{Pb}$ （半減期 22.3 年）をどれだけ除去できるかを調べ、除去方法を探るための実験であるが、 $^{232}\text{Th}$ 系列の放射性鉛である $^{212}\text{Pb}$ （半減期 10.64 時間）を用いて実験を行った。

その理由は、 $^{212}\text{Pb}$ の方が同じ濃度で、22.3 年 / 10.64 時間  $\sim 1.8 \times 10^4$  倍の高い放射能を持っているため、液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ 量の測定をしやすいためである。

#### 3.1.2 $^{212}\text{Pb}$ を使っても問題はないのか

本来、液体シンチレーター中から除去したいのは、 $^{210}\text{Pb}$ であるのに、その除去方法を探るために、 $^{212}\text{Pb}$ を使って実験を行った。

図 A.2, A.1 に示されているように、 $^{210}\text{Pb}$ も、 $^{212}\text{Pb}$ も、どちらも $\alpha$ 崩壊後に生成される核種であるため、化学的性質は同じであると考えられるため、問題は無いと考えられる。

### 3.2 $^{212}\text{Pb}$ 除去実験の方針

$^{212}\text{Pb}$ 除去実験を行うにあたって、以下のような方針を立て実験を行った。

#### 3.2.1 液液抽出による除去

液体シンチレーター中に存在する $^{212}\text{Pb}$ がイオンである場合に有効である、蒸留水を使った液液抽出を試みた。

液液抽出（溶媒抽出）とは、互いに混ざり合わない二つの液相を混合させ、一方の液相中の特定の溶質を、溶解度の差を利用して他方の液相に移す操作である。

液体シンチレーターの純化においては、イオンとして存在する放射不純物の除去に、水を使った液液抽出は有効な方法である。KamLAND 実験の液体シンチレーターは、有機溶媒に発光剤を混ぜたものであり、溶媒と考えれば無極性溶媒である。一方、イオンの溶解度は、極性溶媒である水の方が桁違いに大きい。そのため、液体シンチレーターと水を混合攪拌すると、液体シンチレーター中に含まれるイオン性の放射性不純物は水の方へ移る。

今回の実験では、蒸留水を使った液液抽出によって、どれだけ液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ が除去できるかを調べた。

また、一般に、液液抽出において、水相と有機相（液体シンチレーター）の間の分配比は、水相の pH に大きく依存することが知られているため、酸性、アルカリ性の水を使った液液抽出も行った。

- 蒸留水を使った液液抽出による除去実験 ⇒3.5
- 酸性、アルカリ性の水を使った液液抽出による除去実験 ⇒3.5

### 3.2.2 吸着による除去

#### 3.2.2.1 吸着による $^{212}\text{Pb}$ 除去の可能性

分析化学において、鉛イオンは、化学操作に用いる容器への吸着が激しいことが知られている。逆に考えれば、鉛イオンは吸着によっても除去できることになる。

また、一般的な化学的定量法の適用が難しくなる極微量濃度の物質の溶媒中での挙動は、コロイドのような性質（吸着、沈降等）を示す事が知られている。

極微量濃度でコロイドのような性質を示すのは放射性核種特有の性質なのか、非放射性核種でも同じなのかは不明であるが、極微量濃度での定量は、放射性核種であるから可能となるため、溶媒中に極微量濃度で存在しコロイドのような性質を示している放射性物質を、ラジオコロイド (radiocolloid) と呼ぶ。

ラジオコロイドは、化学操作に用いるガラス容器や濾紙への吸着する。また、溶液を静置しておくとも沈降する場合もある。

液体シンチレーター中に溶存する  $^{212}\text{Pb}$  の化学形態は不明であるが、ラジオコロイドを形成していれば、濾紙、ガラスへの吸着によって  $^{212}\text{Pb}$  を除去できる可能性があるため、濾紙、 $\text{SiO}_2$  粉末への吸着による除去実験を行った。

- 濾過の繰り返しによる除去実験（濾紙への吸着実験） ⇒3.4
- 粉末状  $\text{SiO}_2$  への吸着による除去実験 ⇒3.6

### 3.3 $^{212}\text{Pb}$ 除去実験の手順

#### Step.1 $^{212}\text{Pb}$ を多く含む液体シンチレーターの用意

$^{212}\text{Pb}$  を多く含む液体シンチレーターは、図 3.1 のような装置を用いて、顆粒状の  $\text{ThO}_2$  から放出される  $^{220}\text{Rn}$  を液体シンチレーターにバブリングし溶解させて用意する。

バブリングの時間は半日～2日程度で、バブリングの際の  $^{220}\text{Rn}$  を含む空気の流量を揃えることはしなかったため、液体シンチレーター中に含まれる  $^{212}\text{Pb}$  の量は、用意する度にバラバラであるが、 $^{212}\text{Pb}$  濃度が  $10^{-16}\text{g/g}$  程度の液体シンチレーターが用意できている。

#### Preparation of $^{212}\text{Pb}$ Rich LS/MO

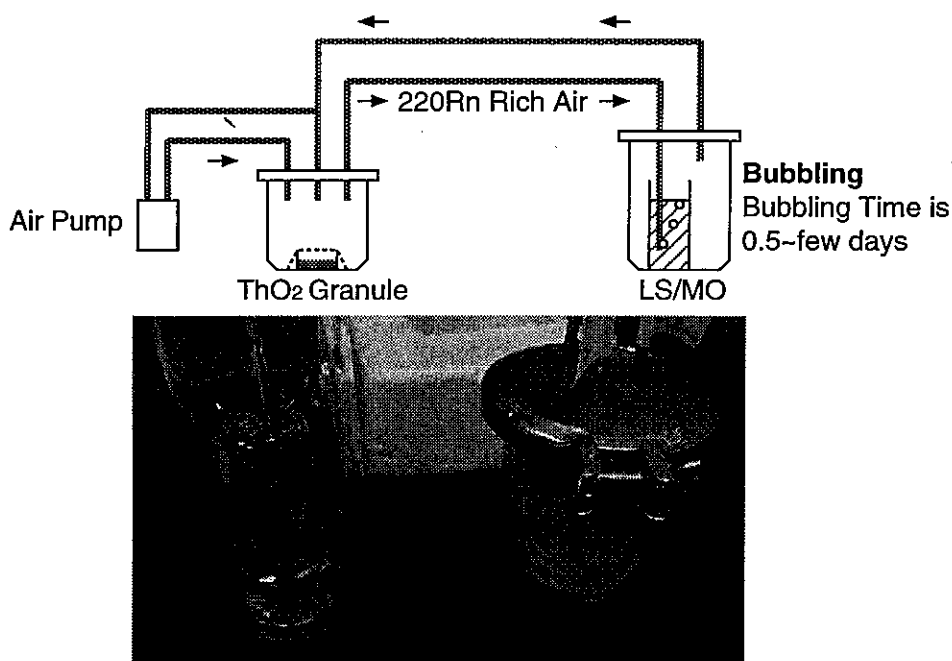


図 3.1: バブリング装置の構成と、バブリングの様子

#### Step.2 化学操作を加え、試料を作る

Step.1 で用意した  $^{212}\text{Pb}$  を多く含む液体シンチレーターに、 $^{212}\text{Pb}$  を除去するための様々な化学操作を加え、試料を作る。今回の実験で行った化学操作は、

- 濾過の繰り返し (3 回まで)
- 濾過 1 回 → 蒸留水による液液抽出
- 濾過 1 回 → 酸性、アルカリ性の水による液液抽出
- 濾紙 1 回 → 粉末状  $\text{SiO}_2$  への吸着

である。

これらの化学操作の詳細については、それぞれの実験結果の所で示す。

作成した試料は、容量 150ml のガラス製バイアルに入れる。試料の体積は 40~50ml である。

また、比較用に、何も化学操作を加えない試料も作り、濾過に使った濾紙、吸着に使った  $\text{SiO}_2$  粉末も捨てずに試料とする。



図 3.2: 1 回の実験で作った試料の例。左から、1. バブリング後何も化学操作をしなかった試料、2. 濾過後に  $\text{SiO}_2$  粉末に吸着させた試料、3. 濾過のみ行った試料、4. 濾過に使った濾紙を 0.1mol/l 硝酸中で粉碎した試料、5. 吸着後の  $\text{SiO}_2$  粉末

### Step.3 各試料中の $^{212}\text{Pb}$ 量を計測する

試料中の  $^{212}\text{Pb}$  の量は、HPGe 半導体検出器で  $^{212}\text{Pb}$  からの 75,78keV の X 線、239keV の  $\gamma$  線、 $^{212}\text{Pb}$  の娘核種の  $^{208}\text{Tl}$  からの 511, 583keV の  $\gamma$  線の各ピークを計測することで測定する。

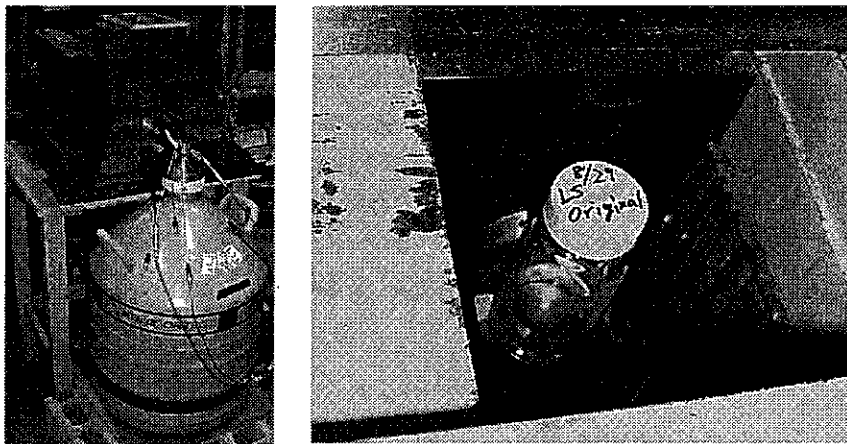


図 3.3: HPGe 検出器への試料のセット、測定の様子

図 3.4 に、ある試料の測定例を示す。一回の測定時間は 600~900 秒である。

放射能の強さは、各ピークについて、ピークの下バックグラウンドを差し引いたピークの面積、つまり、正味の計数率 (net counting rate) で測定する。

このようにして、一つの試料に対して、Step.1 においてバブリングを停止してからの最初の数時間の間に 4 回程度測定を行い、120 時間程経過し放射能が落ち切ってから 1, 2 回バックグラウンドの測定を行う。次に、各ピークについて、正味の計数率の時間変化を次の式でフィットする。

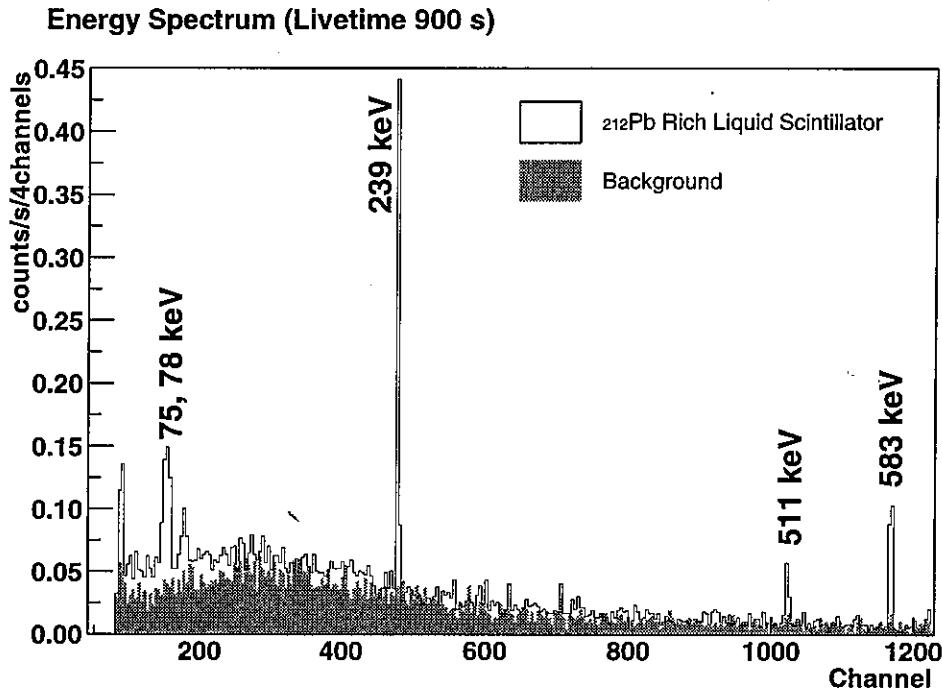


図 3.4: ある試料からの X 線,  $\gamma$  線スペクトルの測定例

$$\text{各ピークの正味の計数率 } (t) = A_{\text{each peak}} \exp\left(-\frac{\ln 2}{10.64[\text{hour}]} \times t[\text{hour}]\right) + C_{\text{each peak}}$$

この式で,  $A_{\text{each peak}}$  が試料に含まれる  $^{212}\text{Pb}$  量に相当する量であり, 我々の実験における HPGe 検出器の検出効率を掛けることによって, 試料中の  $^{212}\text{Pb}$  の絶対量を求めることもできる.  $C_{\text{each peak}}$  はバックグラウンドに相当し,  $t$  は Step.1 においてバブリングを停止してから, 一回の測定 (600~900 秒) の中間までの経過時間である. 10.64 時間は,  $^{212}\text{Pb}$  の半減期である.

データ解析の際は, 統計を稼ぐため, 75, 78keV, 239keV, 511keV, 583keV の, 4つのピークについて求められた  $A_{\text{each peak}}$  値の和  $A = A_{75,78\text{keV peak}} + A_{239\text{keV peak}} + A_{511\text{keV peak}} + A_{583\text{keV peak}}$  を, ある試料中の  $^{212}\text{Pb}$  量としている.

図 3.5, 図 3.6 に, ある試料 2 つについての例を示す.

#### Step.4 $^{212}\text{Pb}$ の除去効率を求める

Step.3 で求めた各試料中の  $^{212}\text{Pb}$  量から, 各化学操作による  $^{212}\text{Pb}$  の除去効率を求める.

**除去効率・除去量の定義** ある化学操作 X によって, 液体シンチレーターから取り除かれた  $^{212}\text{Pb}$  の割合を除去効率とし, 次のように定義している.

$$\begin{aligned} \text{化学操作 X による除去効率} &\equiv 1 - \frac{\text{化学操作 X を行った後の試料中の } ^{212}\text{Pb 量}}{\text{化学操作 X を行う前の試料中の } ^{212}\text{Pb 量}} \\ &= 1 - \frac{A_{\text{after X}}}{A_{\text{before X}}} \end{aligned}$$



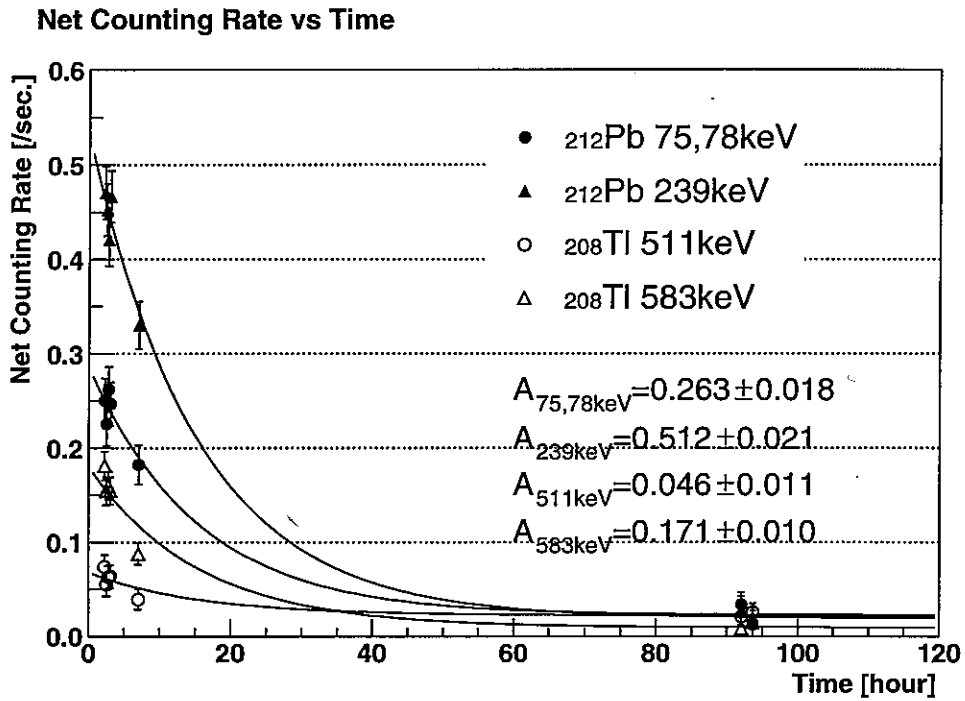


図 3.5: 試料の正味計数率の時間変化の計測, フィットの例 1 (濾過のみ行った試料)  
 ↓ 濾過後,  $\text{SiO}_2$  粉末を混ぜ吸着させると……

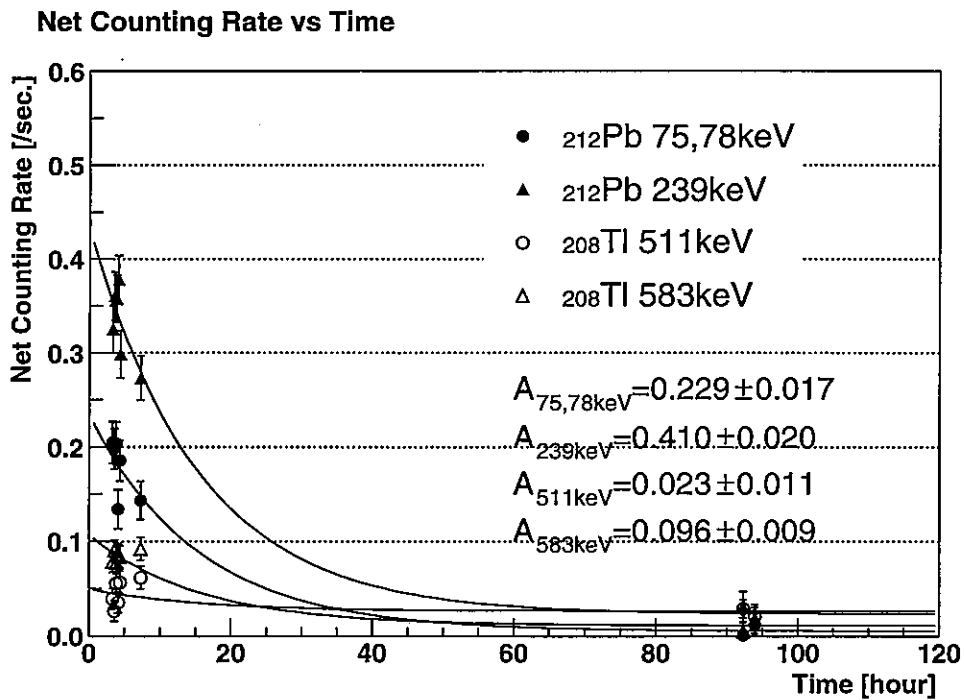


図 3.6: 試料の正味計数率の時間変化の計測, フィットの例 2 (濾過後,  $\text{SiO}_2$  粉末へ吸着させた試料). 図 3.5 に比べ, 若干放射能が弱くなっている事から,  $^{212}\text{Pb}$  が除去出来ている事が分かる.

また、化学操作 X が除去した<sup>212</sup>Pbの絶対量を考える場合は、除去した<sup>212</sup>Pbの量を以下の様に定義している。

$$\begin{aligned} \text{化学操作 X が除去した } ^{212}\text{Pb 量} &\equiv \text{化学操作 X を行う前の液体シンチレーター中の } ^{212}\text{Pb 量} - \text{化学操作 X を行った後の液体シンチレーター中の } ^{212}\text{Pb 量} \\ &= \frac{V_{\text{operation X}}}{V_{\text{sample}}} \times (A_{\text{before X}} - A_{\text{after X}}) \end{aligned}$$

ここで、

$A_{\text{before X}}$	化学操作 X を行う前の試料の A の値
$A_{\text{after X}}$	化学操作 X を行った後の試料の A の値
$V_{\text{operation X}}$	化学操作 X が行われた液体シンチレーターの体積 (40~240 ml)
$V_{\text{sample}}$	試料として放射能を測定した体積 (40 または 50 ml)

であり、

化学操作 X とは、濾過、液液抽出、SiO<sub>2</sub> 粉末への吸着、の内のいずれか 1 つのことである。

計算例 除去効率、除去した<sup>212</sup>Pbの絶対量を、SiO<sub>2</sub> 粉末への吸着を行った図 3.5 と図 3.6 で示した例について具体的に計算してみる。

SiO<sub>2</sub> 粉末へ吸着させる前の試料の<sup>212</sup>Pb量は、

$$0.263 \pm 0.018 + 0.512 \pm 0.021 + 0.046 \pm 0.011 + 0.171 \pm 0.010 = 0.992 \pm 0.031$$

SiO<sub>2</sub> 粉末へ吸着させた後の試料の<sup>212</sup>Pb量は、

$$0.229 \pm 0.017 + 0.410 \pm 0.020 + 0.023 \pm 0.011 + 0.096 \pm 0.009 = 0.758 \pm 0.030$$

よって、SiO<sub>2</sub> 粉末への吸着による除去効率は、

$$\begin{aligned} \text{除去効率} &= 1 - \frac{\text{SiO}_2 \text{ 粉末への吸着を行った後の試料中の } ^{212}\text{Pb 量}}{\text{SiO}_2 \text{ 粉末への吸着を行う前の試料中の } ^{212}\text{Pb 量}} \\ &= 1 - \frac{0.758 \pm 0.017}{0.992 \pm 0.018} \\ &= 1 - 0.764 \pm 0.039 = 0.236 \pm 0.039 = 24 \pm 4[\%] \end{aligned}$$

であり、

SiO<sub>2</sub> へ吸着した<sup>212</sup>Pb量は、SiO<sub>2</sub> 粉末と混ぜた液体シンチレーターが 90ml、SiO<sub>2</sub> 粉末を分離後、試料として測定した液体シンチレーターの体積が 50ml だったので、

$$\begin{aligned} \text{吸着量} &= \frac{90\text{ml}}{50\text{ml}} \times (0.992 \pm 0.031 - 0.758 \pm 0.030) \\ &= 0.421 \pm 0.078 \end{aligned}$$

となる。

液体試料の体積が多いため  
Ge検出器の位置関係の誤差が大きいため、計測数の不確かさが大きい  
約 50ml 程度。

### 3.4 濾過による $^{212}\text{Pb}$ の除去

#### 3.4.1 濾過を行う理由

濾過によって  $^{212}\text{Pb}$  を除去できるのではないかと思った理由は、液体シンチレーター中に存在する  $^{212}\text{Pb}$  が、ラジオコロイドを形成しているのではないかと、という理由がまず第一である。

また、もう一つの理由は、バブリングによって  $^{212}\text{Pb}$  を多く含む液体シンチレーターを用意しているわけであるが、バブリングすることによって、空気中の埃や、顆粒状の  $\text{ThO}_2$  からの飛散物、また、それらの微粒子を核に放射性物質が凝集し、液体シンチレーター中に存在しているのではないかと考えたからである。このような「ゴミだらけ」の液体シンチレーターは、実際の KamLAND 内の液体シンチレーターの状態を再現しているとは考えにくい。

したがって、濾過という操作（特に1回目の濾過）は、 $^{212}\text{Pb}$  の除去のための操作、というよりは、 $^{212}\text{Pb}$  を多く含む液体シンチレーターを準備する、実験準備の最後の過程、と考えた方が適切かも知れない。

#### 3.4.2 「濾過」が含む2つの過程、「掬い取り」と「吸着」

濾過という過程は、図3.7のように、2つの異った過程が含まれている。

1つ目は、濾紙の孔径より大きな粒子は濾紙を通過できないため除去できる、という、ザルで掬い取る事と同じ過程であり、この過程は本質的に繰り返しの効果は無い。

2つ目に、濾紙内部への吸着という過程がある。この過程では、濾紙の孔径より小さな粒子であっても濾紙の内部に付着して除去される、という効果が期待できる。

そのため、今回の実験では、濾過を繰り返す実験も行った。

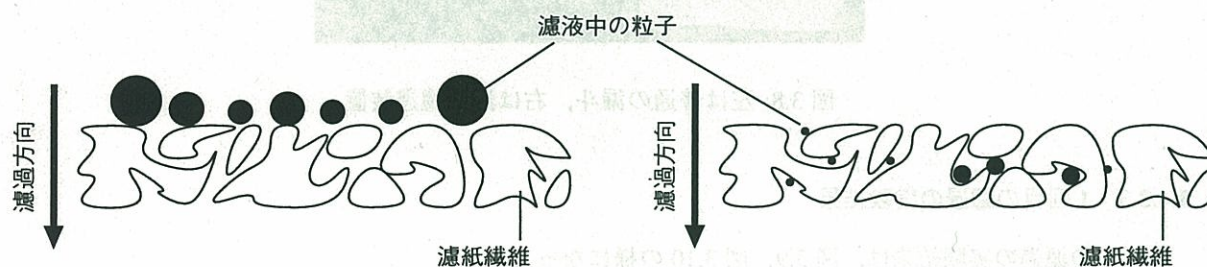


図3.7: 「濾過」が含む2つの異った過程。左が「掬い取り」、右が「吸着」

#### 3.4.3 1回濾過してみる実験

##### 3.4.3.1 使用した濾紙

使用した濾紙は、

メーカー	濾紙の種類, 型番	孔径
ADVANTEC	分析用定量濾紙	5A 7 $\mu\text{m}$
〃	〃	5B 4 $\mu\text{m}$
〃	〃	5C 1 $\mu\text{m}$
MILLIPORE	親水性 PTFE メンブレンフィルター	JG 0.2 $\mu\text{m}$

の4種類である。

ここで、PTFEメンブレンフィルターとは、Poly Tetra Fluoro Ethylene (テフロン) 製精密濾過膜のことである。

#### 3.4.3.2 実験方法

実験手順は、バブリング後の液体シンチレーターを濾過するだけである。

但し、孔径 $7\mu\text{m}$ 、 $4\mu\text{m}$ 、 $1\mu\text{m}$ の分析用定量濾紙での濾過の際は漏斗を使い、孔径 $0.2\mu\text{m}$ のメンブレンフィルターについては減圧濾過装置を使った。

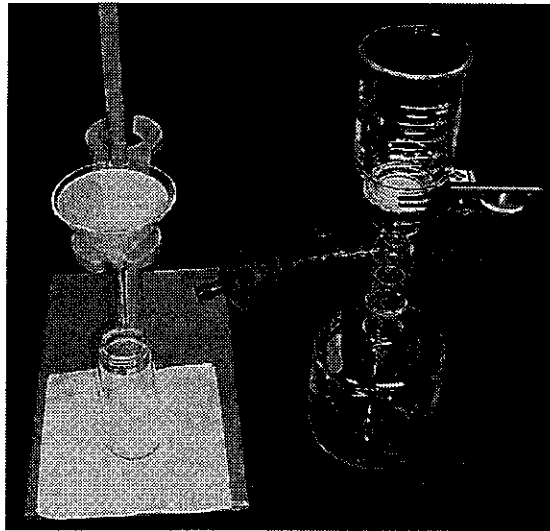


図 3.8: 左は普通の漏斗, 右は減圧濾過装置

#### 3.4.3.3 1回目の濾過の実験結果

1回目の濾過の実験結果は、図 3.9, 図 3.10 の様になった。

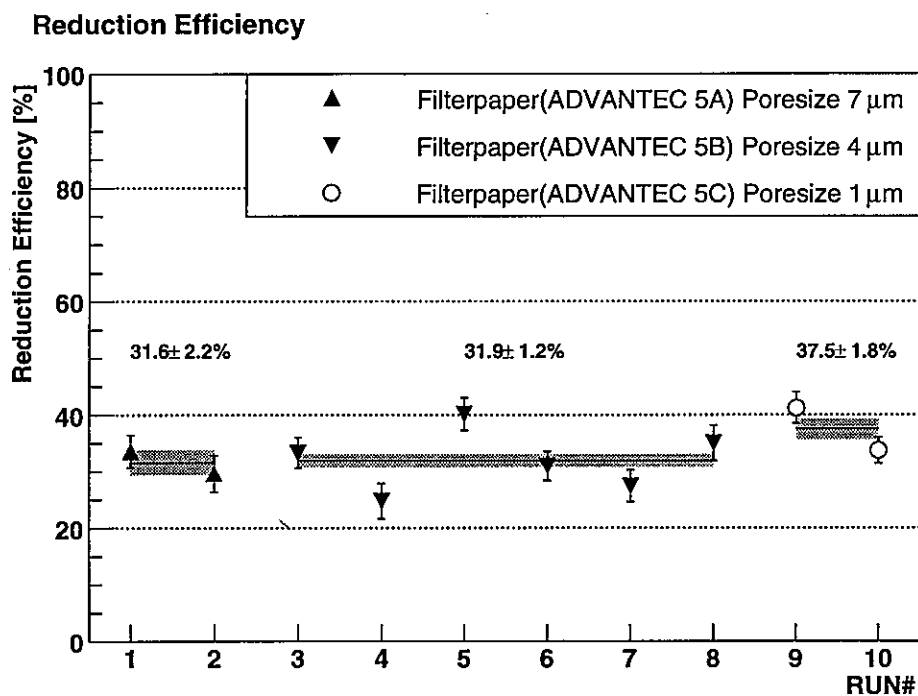


図 3.9: 孔径 7, 4,  $1\mu\text{m}$  の濾紙による 1 回目の濾過による除去効率

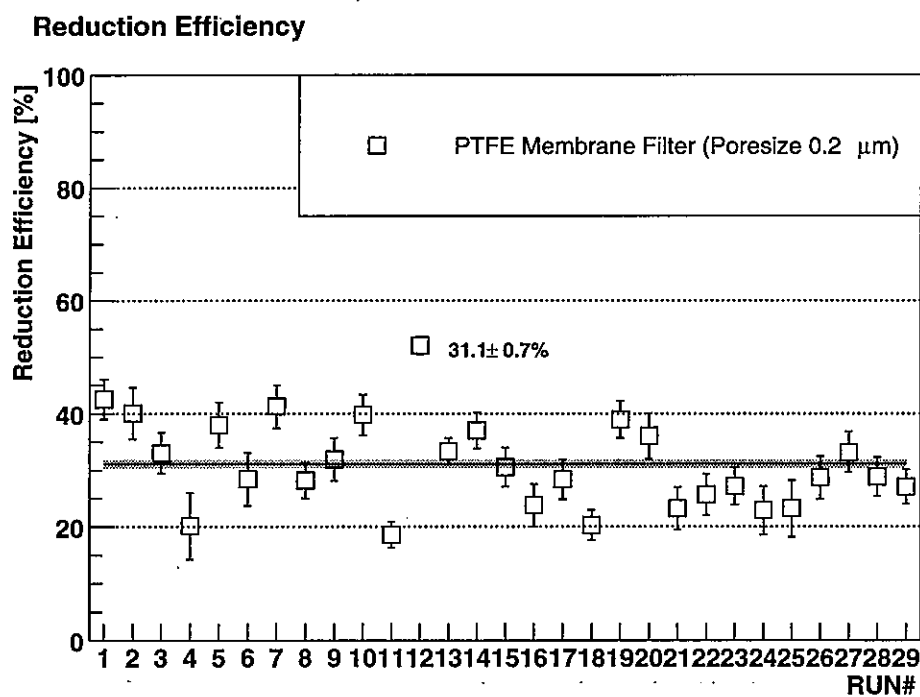


図 3.10: 孔径  $0.2\mu\text{m}$  のフィルターによる 1 回目の濾過による除去効率

Radioactivity Loss vs Radioactivity Before Filtration

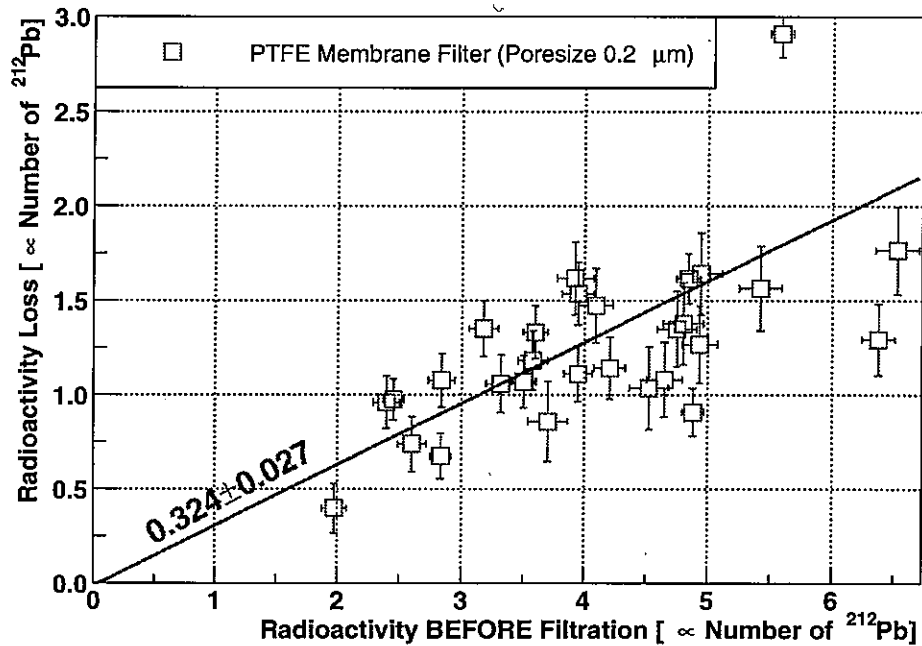


図 3.11:  $^{212}\text{Pb}$  の絶対量から求めた除去効率. 縦軸: 孔径  $0.2\mu\text{m}$  のフィルターによる 1 回目の濾過によって除去できた  $^{212}\text{Pb}$  の量, 横軸: 濾過前の  $^{212}\text{Pb}$  量. 数字はフィットで得られた直線の傾きで, (原点を通れば) 除去効率を表し, この場合は  $32 \pm 3\%$  となっている.

縦軸は, 除去効率, 横軸は, 実験回数である.

3 割程度の  $^{212}\text{Pb}$  が, 濾過によって除去できている事が分かる.

濾過によって取り除ける  $^{212}\text{Pb}$  の割合は, 孔径が  $0.2\mu\text{m}$ ,  $1\mu\text{m}$ ,  $4\mu\text{m}$ ,  $7\mu\text{m}$  の場合には有意な差が見られなかった. そのため, 濾過で取れるような成分は, 少なくとも  $7\mu\text{m}$  よりは大きいと考えられる.

また, 図 3.11 のように, 割合ではなく, フィルターを通った  $^{212}\text{Pb}$  の絶対量と, 除去できた  $^{212}\text{Pb}$  の絶対量の関係には, 良い相関が見られる. 液体シンチレーター中の  $^{212}\text{Pb}$  のうち, 濾過で除去できる成分がほぼ一定の割合 ( $32 \pm 3\%$ ) で含まれる事が示されている.

今回の実験で, バブリングによって用意した  $^{212}\text{Pb}$  を多く含む液体シンチレーターの中には, 濾過で取り除ける  $^{212}\text{Pb}$  が存在することが分かった. 但し, 実際の KamLAND の液体シンチレーターの中に残留している  $^{210}\text{Pb}$  に, 濾過によって取り除ける成分があるかは不明である.

### 3.4.4 濾過を繰り返す実験

#### 3.4.4.1 使用した濾紙

使用した濾紙は, ADVANTEC の分析用定量濾紙 5A, 5B, 5C タイプの 3 種類であり, 孔径はそれぞれ  $7\mu\text{m}$ ,  $4\mu\text{m}$ ,  $1\mu\text{m}$  である.

#### 3.4.4.2 実験方法

実験は, 濾過を繰り返すだけであり, 図 3.12 のような手順で行った.

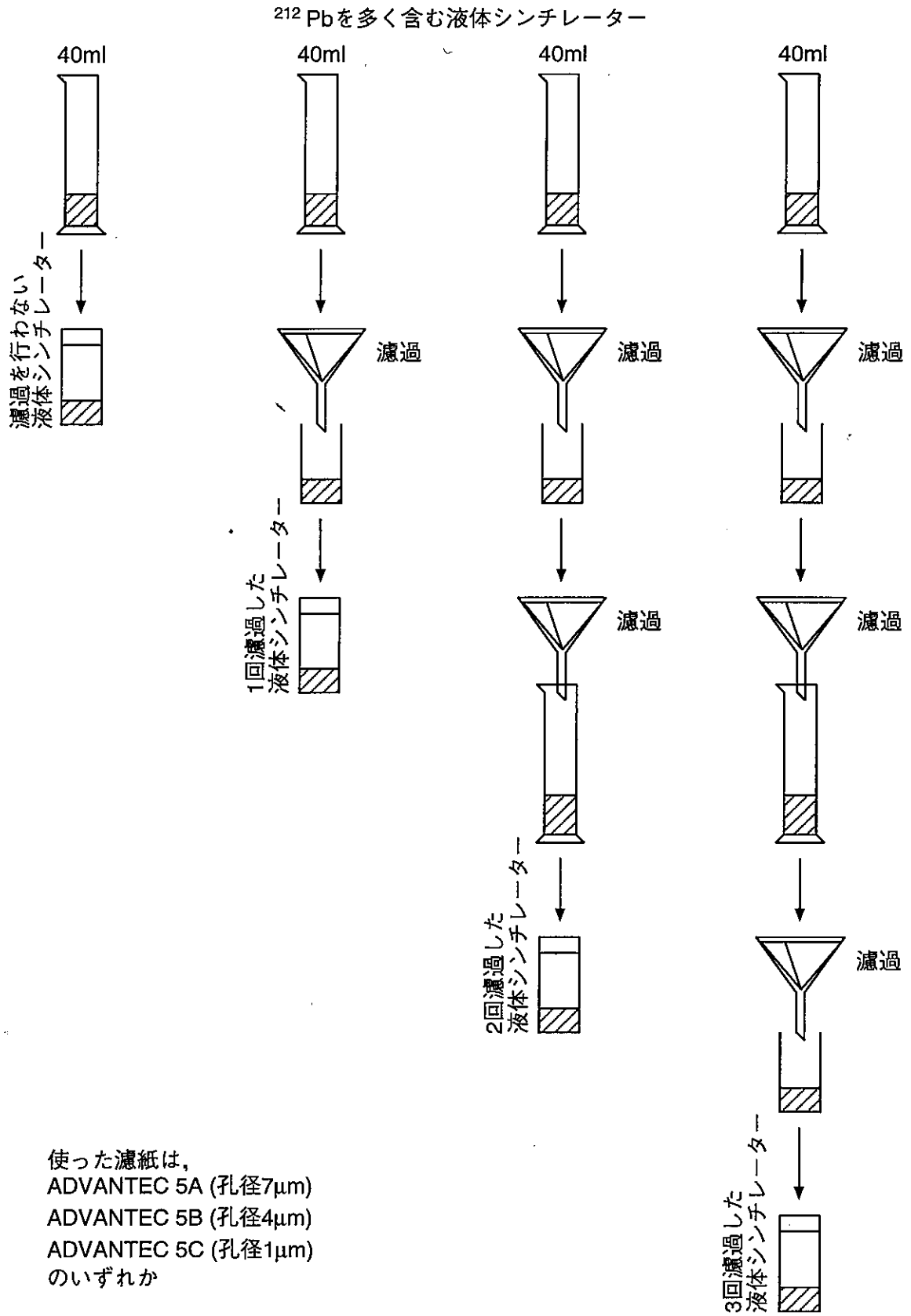


図 3.12: 濾過を繰り返す実験の手順

## 3.4.5 2回目, 3回目の濾過の結果

2回目, 3回目の濾過の実験結果は, それぞれ図 3.13, 図 3.14 のようになった。

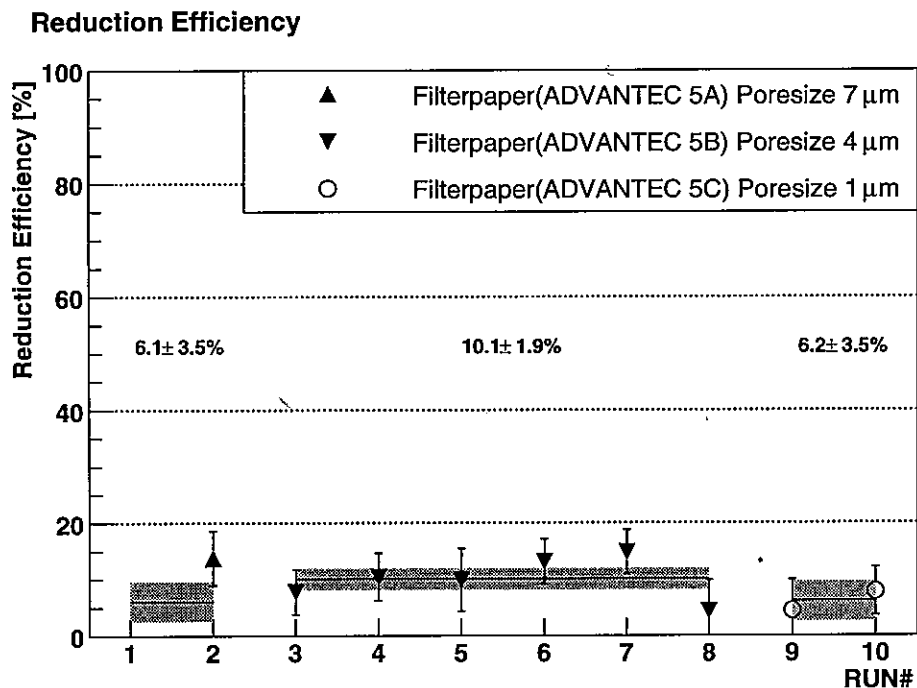


図 3.13: 2 回目の濾過による除去効率

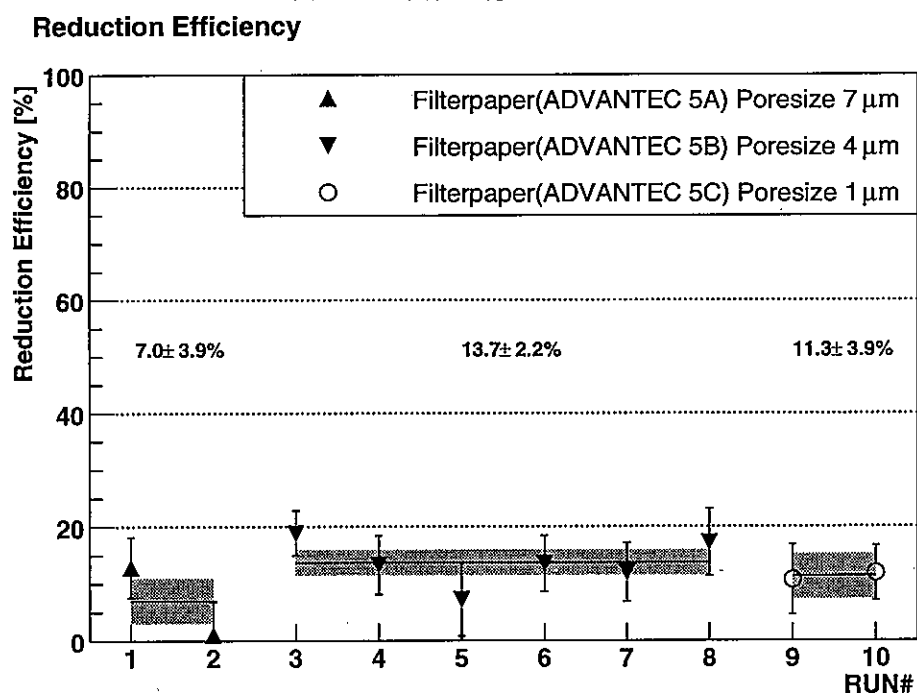


図 3.14: 3 回目の濾過による除去効率

縦軸は, 除去効率である. この除去効率は, 濾過 1 回当たりについての除去効率である. つまり, 2 回目の濾過の除去効率とは, 1 回目の濾過を行った液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ の量を 100[%] として計算



した除去効率である。

同様に、3回目の濾過の除去効率とは、2回目の濾過を行った液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ の量を100[%]として計算した除去効率である。

横軸は、実験回数である。

2回目、3回目の濾過によっても、 $^{212}\text{Pb}$ は少ないながらも除去できている。

濾紙の孔径を $1\mu\text{m}$ 、 $4\mu\text{m}$ 、 $7\mu\text{m}$ と変えてみても、濾過によって取れる成分の割合は変わらなかった。

### 3.4.6 今後の方針

今回の実験によって、濾過の繰り返しによって、僅かではあるが $^{212}\text{Pb}$ が減っている傾向が見られたことから、濾紙への吸着という過程の寄与があると考えられる。

そのため、図3.15のような装置で液体シンチレーターを循環させることにより、濾過を数万回繰り返す実験を行うことを計画している。

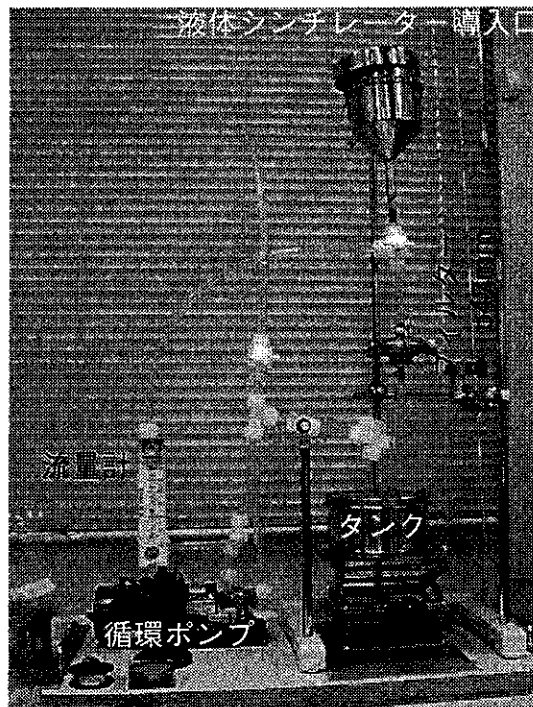


図 3.15: 液体シンチレーターを循環させ、濾過を繰り返す装置

### 3.5 液液抽出による $^{212}\text{Pb}$ 除去

#### 3.5.1 実験方法

実験は、図 3.16 のような流れで行った。

なお、バブリングしただけの液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ の3割は、濾過によって除去出来ているので、一度濾過を行ってから、液液抽出を行った。

1.  $^{212}\text{Pb}$ を多く含む液体シンチレーターを、孔径 $1\mu\text{m}$ の濾紙、または $0.2\mu\text{m}$ の親水性 PTFE メンブレンフィルターによって濾過する。
2. 濾過後の液体シンチレーター 60ml と、蒸留水 60ml をポリエチレン製分液漏斗に入れ、5 分間手で振盪する。
3. 振盪後、10 分程静置して、液体シンチレーター相と水相が分離するのを待つ。
4. 分液漏斗のコックをひらき、水相、液体シンチレーター相をそれぞれ 50ml ずつ採取し、試料とする。

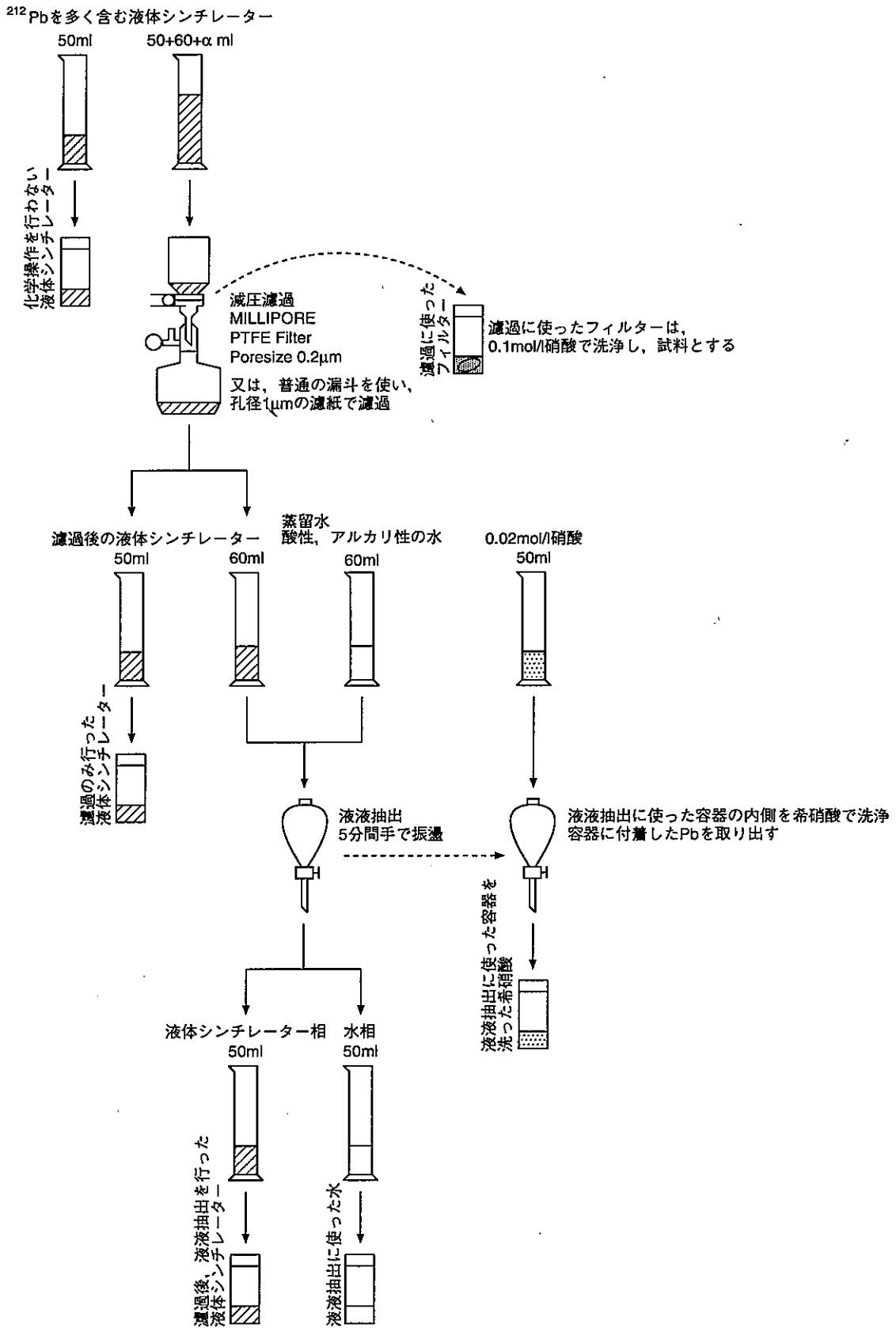


図 3.16: 蒸留水、酸性、アルカリ性の水を使った液液抽出実験の手順

### 3.5.2 実験結果

蒸留水、酸性、アルカリ性の水を使った液液抽出実験の結果は、図 3.17 のようになった。

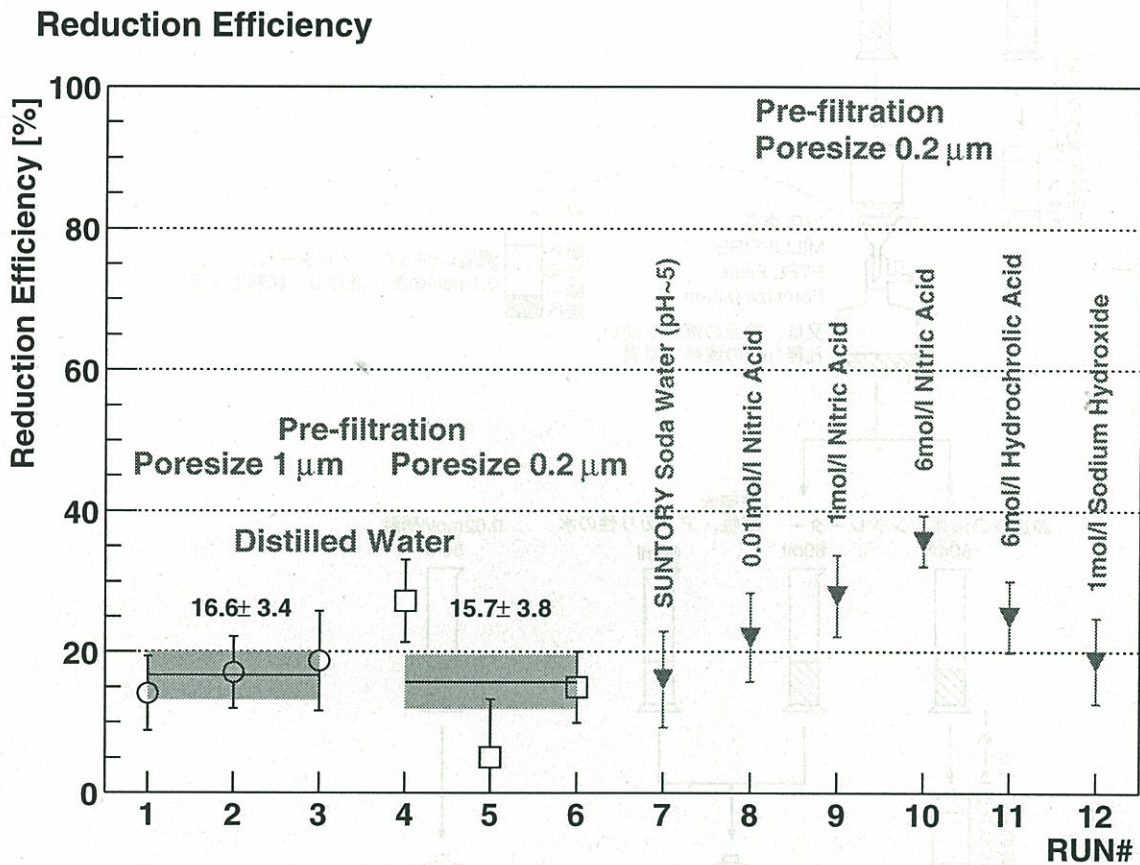


図 3.17: 液液抽出実験の結果. 各回の実験における除去効率

縦軸は除去効率である。ここで、除去効率は、1回濾過した液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ 量を100[%]として求めている。

横軸は実験回数である。

蒸留水を使った場合については、液液抽出前の濾過の際のフィルターの孔径が $1\mu$ の場合と $0.2\mu$ の場合についてそれぞれ3回ずつ行った。除去効率は、それぞれ $17\pm 3\%$ 、 $16\pm 4\%$ であった。

また、酸性、アルカリ性の水を使った場合でいくつか実験を行ったが、除去効率の改善はあまり見られなかった。

強い酸性、アルカリ性の水を使った場合は、液体シンチレーターがうっすらと白濁し、放置してもそのまま、明らかに変質していた。

### 3.5.3 実験結果から分かること

水相へ移った $^{212}\text{Pb}$ は、2割弱にとどまった。水と液体シンチレーターを混合振盪していた時間は5分間であり、分配平衡に達するには十分な時間である。にも関わらず $^{212}\text{Pb}$ が水相へ殆ど移らなかった事は、液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ が単純なイオンではない事を示している。水相のpHを変えても除去効率の改善は殆ど見られなかったことから、水を使った液液抽出による、 $^{212}\text{Pb}$ の除去は、効率が悪いと考えられる。

### 3.6 SiO<sub>2</sub> 微粒子への吸着による <sup>212</sup>Pb 除去

#### 3.6.1 吸着剤として使用した SiO<sub>2</sub> 微粒子”AEROSIL”

AEROSIL<sup>®</sup> という、表面積の大きい SiO<sub>2</sub> 粉末を吸着剤として用いて除去を試みた。

“AEROSIL”とは、本来ドイツの Degussa 社の登録商標であるが、無定形コロイド状シリカを表す物質名として定着している。

AEROSIL には、比表面積、表面の親水性等によって様々な種類があり、比表面積を [m<sup>2</sup>/g] で表した数字や、表面の特性を表すアルファベットで区別されている。

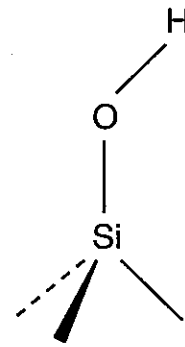
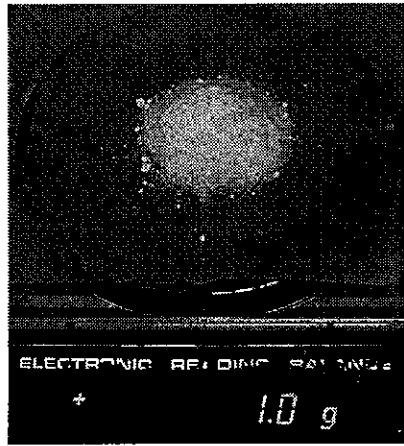
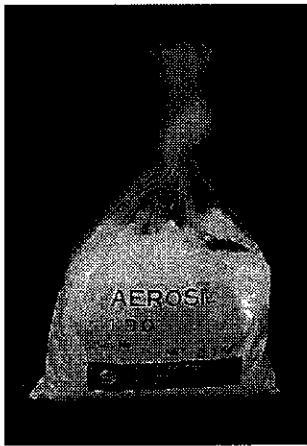


図 3.18: AEROSIL (#130) が 100 グラム入った袋と、1g 取り出した 図 3.19: AEROSIL 表面の SiOH 基様子

この実験においては、表面積が 1g 当たり 130m<sup>2</sup> で、表面が親水性の AEROSIL (#130) を用いた。

SiO<sub>2</sub> 粒子の形状はほぼ球形で、直径は平均 14nm である。そして、粒子同士が凝集し数十 μm の大きさの 2 次粒子を形成している。

吸着に関与するのは、図 3.19 に示すような、SiO<sub>2</sub> 表面の SiOH 基（シラノール基）である。AEROSIL 表面の SiOH 基密度は、比表面積によらず、2.5 個 /nm<sup>2</sup> である。今回実験に使用した AEROSIL (#130) は、1g 当たりの表面積が 130m<sup>2</sup> であるので、AEROSIL (#130) の 1g 当たりの SiOH 基の数は、 $2.5 \times 10^{18} \times 130 = 3.25 \times 10^{20}$  個となる。

### 3.6.2 実験の目的と手順

#### 3.6.2.1 目的

今回の実験では、AEROSIL が $^{212}\text{Pb}$ をどの程度の量吸着するのか（量的依存性）と、吸着量が AEROSIL との接触時間に依存するのか（時間依存性）を調べるため、液体シンチレーター 70~90ml に混ぜ合わせる AEROSIL の量については、0.5g, 1g, 2g の 3 つの場合について行い、液体シンチレーターと AEROSIL の混合物を振盪する時間については、10 分、3 時間、6 時間と 3 つの場合について行った。

#### 3.6.2.2 手順

実験は、図 3.20 のような流れで行った。

なお、バブリングしただけの液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ の 3 割は、濾過によって除去出来ているので、一度濾過を行ってから、AEROSIL への吸着を行った。

1.  $^{212}\text{Pb}$ を多く含む液体シンチレーターを用意する
2. 孔径  $0.2\mu\text{m}$  の PTFE メンブレンフィルターで、バブリング後の液体シンチレーターを濾過する。
3. 濾過した液体シンチレーター 70~90ml に、AEROSIL を 0.5~2g 混ぜ、電動振盪器にセットし、10分~6 時間振盪する。
4. 振盪後、液体シンチレーターと AEROSIL の混合物を 50ml バイアルに小分けし、遠心分離器にかけ分離する。
5. 分離後、上澄みを 50ml 取り、測定試料とする。

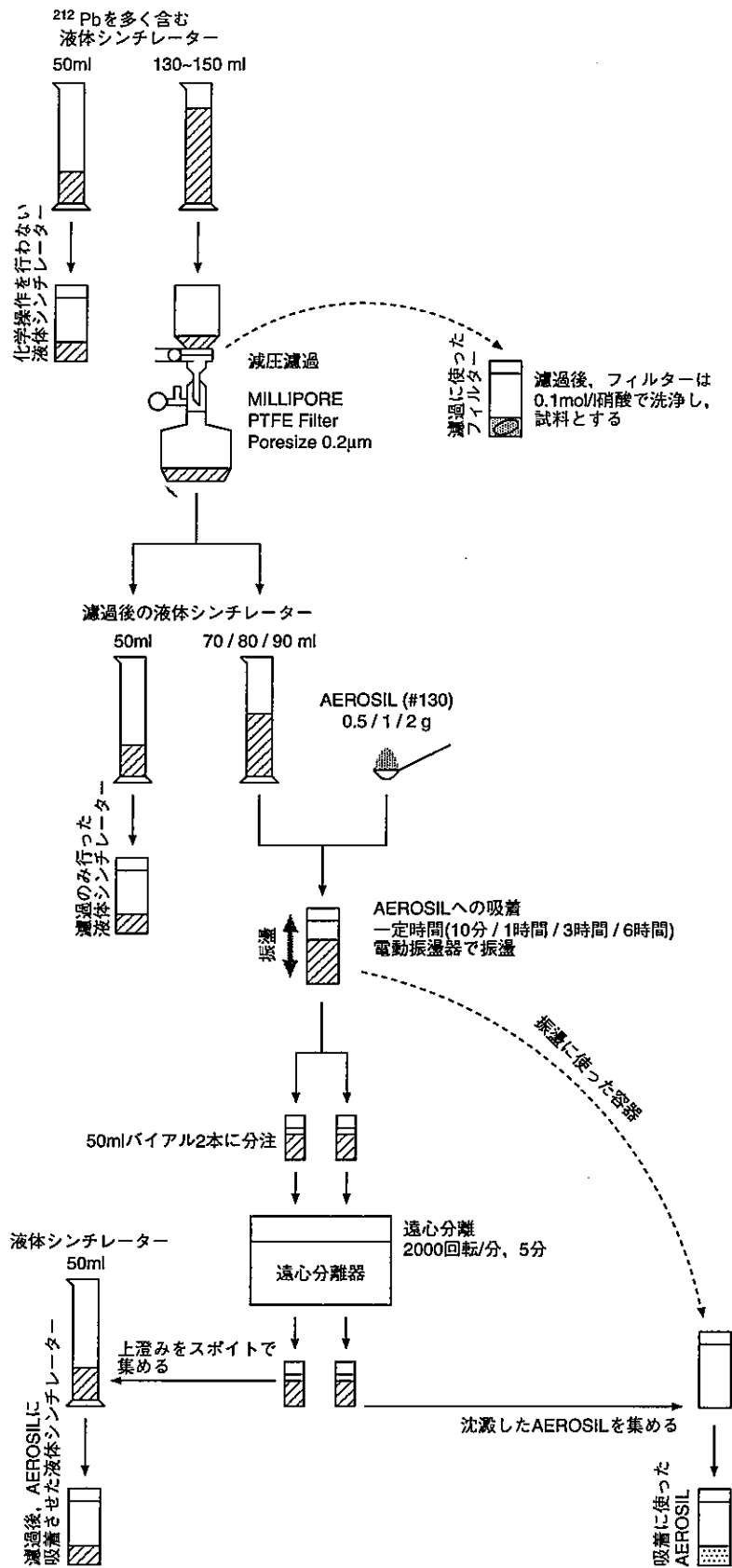


図 3.20: AEROSIL への吸着実験の手順

### 3.6.3 実験結果

#### 3.6.3.1 除去効率で見た、接触時間依存性と AEROSIL 量依存性

液体シンチレーターと AEROSIL との接触時間依存性についてと、液体シンチレーターに混ぜる AEROSIL 量依存性について、除去効率で見てみると、図 3.21 のような結果となった。

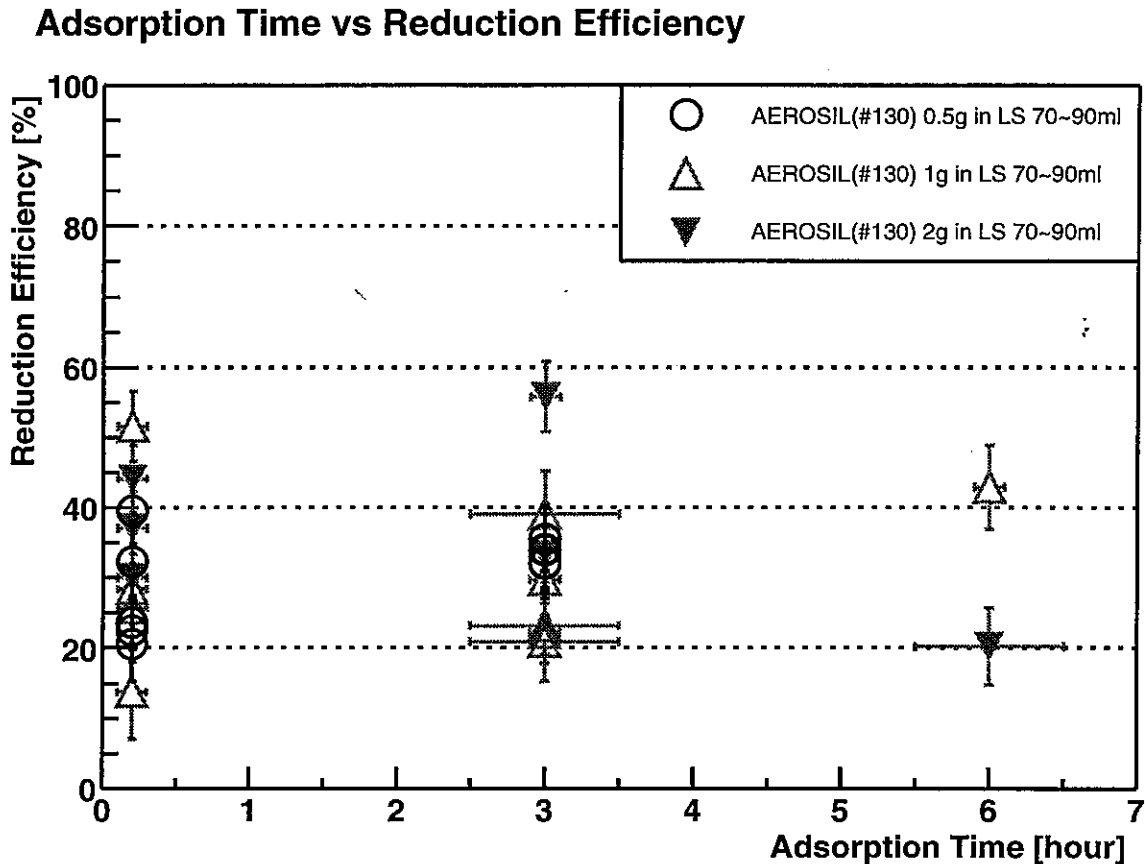


図 3.21: 液体シンチレーターと AEROSIL の接触時間と除去効率の関係

縦軸は除去効率である。ここで、除去効率は、1回濾過した液体シンチレーター中の $^{212}\text{Pb}$ 量を100[%]として求めている。

横軸は、AEROSIL と液体シンチレーターの接触時間である。接触時間は、AEROSIL と液体シンチレーターを混ぜてから、吸着後分離するまでの時間であり、

- 振盪している時間 (10分, 3時間, 6時間)
- AEROSIL と液体シンチレーターの分離にかかる時間 (遠心分離の場合5分, 減圧濾別の場合約30分)
- 液体シンチレーターをスポイトで分注したり, 電動振盪器へサンプルをセットしたり等, ハンドリングにかかる時間 (10分程度)

から成っている。

グラフからは、除去できる $^{212}\text{Pb}$ の割合が、接触時間に依存しない事が分かる。

つまり、吸着平衡に達する時間は10分よりは短い事が分かる。

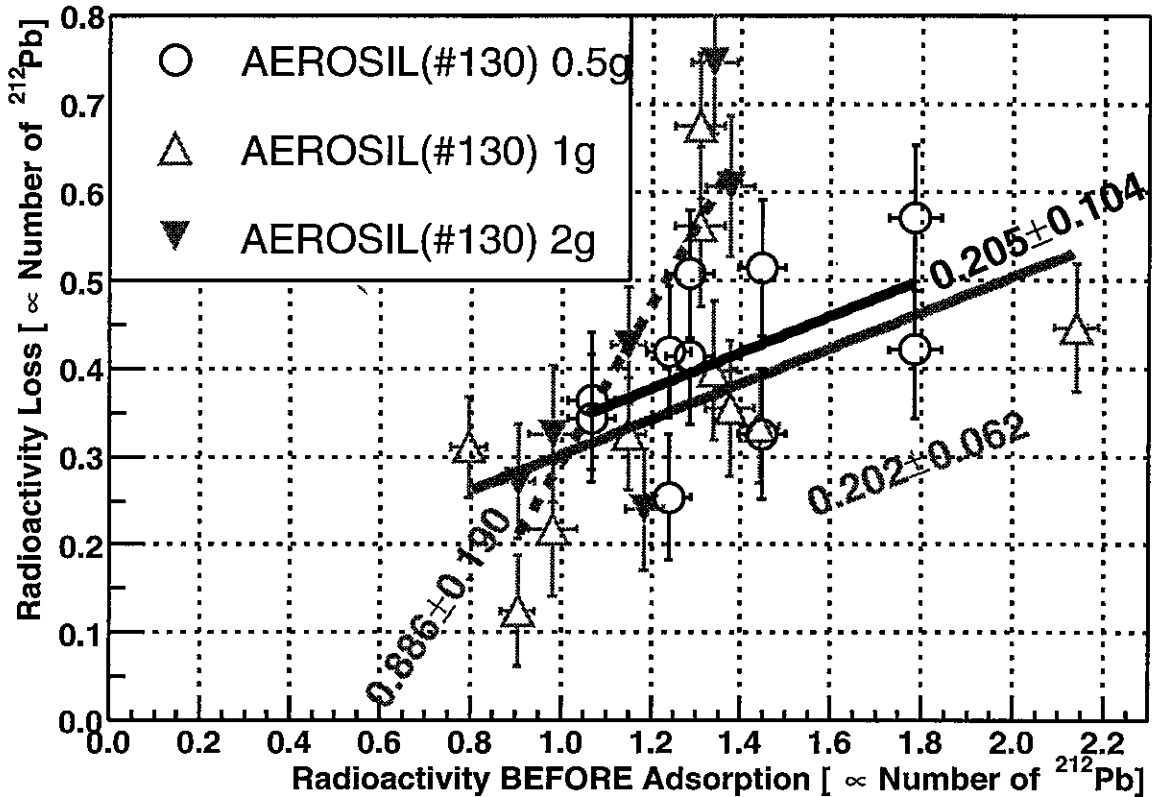
また、混ぜた AEROSIL の量に関しても、0.5g, 1g, 2g の範囲では、有意な差は認められない。



## 3.6.3.2 吸着量で見た、混ぜる AEROSIL の量への依存性

AEROSIL 量への依存性について、液体シンチレーターに混ぜる AEROSIL の量と、除去できた <sup>212</sup>Pb 量の関係を見てみると、図 3.22 のような結果となった。

Radioactivity Loss vs Radioactivity Before Adsorption

図 3.22: 液体シンチレーターに混ぜた AEROSIL の量と、除去できた <sup>212</sup>Pb の量の関係

横軸は、吸着前の液体シンチレーター中の <sup>212</sup>Pb の量に相当する。

縦軸は、吸着後による液体シンチレーター中の <sup>212</sup>Pb の減少分に相当する。

また、AEROSIL 量が 0.5g, 1g, 2g のそれぞれの場合について、直線でフィットした際の傾きを、図中に示してある。この図においては、傾きが大きい程、多くの <sup>212</sup>Pb を吸着していることになる。フィットした直線が原点を通るのであれば、傾きは除去効率を表している。しかし、現状ではデータ点が足りない。

図 3.22 からは以下の事が読み取れる。

- 吸着前の <sup>212</sup>Pb の量が多い程、減った <sup>212</sup>Pb の量も多い。
- 加えた AEROSIL の量が 0.5~2g の範囲では、減った <sup>212</sup>Pb の量に有意な差は認められない。

つまり、液体シンチレーター中に溶存する <sup>212</sup>Pb のうち、AEROSIL へ吸着する化学形態で存在する割合はほぼ一定で、90ml 中に 0.5g の AEROSIL があれば、AEROSIL へ吸着する化学形態の <sup>212</sup>Pb はすべて取り尽されている、と考えられる。

### 3.6.4 実験から分かった事と、今後の方針

#### 3.6.4.1 実験結果の示すこと

この実験結果から、

- 液体シンチレーター中に存在する $^{212}\text{Pb}$ には、ほぼ一定の割合で、AEROSILへ吸着する化学形態の $^{212}\text{Pb}$ が存在する。
- AEROSILへ吸着する化学形態の $^{212}\text{Pb}$ の、AEROSILとの吸着平衡時間は短い。

という事が分かる。

#### 3.6.4.2 今後調べるべき事

今回の実験では、実験の目的の一つである、吸着量のAEROSIL量への依存性は求められなかった。

加えるAEROSILの量をさらに少なくしていった場合、逆に極端に多い場合について調べる必要がある。

今回の実験で使ったAEROSILは粉末状であるため、AEROSIL1gにつき、液体シンチレーターを10ml程度吸ってしまう。現在の分離方法（遠心分離、減圧濾別）では、液体シンチレーターとAEROSILを完全に分離できないため、混ぜるAEROSILの量をあまり増やせない。そのため、効率の良い分離方法を考える。

## 3.7 $^{212}\text{Pb}$ を使った除去実験のまとめと今後

### 3.7.1 実験結果のまとめ

今回の実験の結果をまとめると、

まず、バブリングしただけの液体シンチレーターについては、

- バブリングしただけの液体シンチレーター中の  $^{212}\text{Pb}$  のうち、約 3 割は 1 回の濾過で除去できる
- 濾過で除去できる  $^{212}\text{Pb}$  の割合は、濾紙の孔径が  $0.2\mu\text{m}\sim 7\mu\text{m}$  の範囲では差が無かった。

1 回の濾過で取り除ける成分を取り除いた後、

- 蒸留水を使った液液抽出では、除去効率は 2 割弱
- 水の pH を変えても、除去効率は殆ど改善しない
- 濾過の繰り返しによって、 $^{212}\text{Pb}$  はわずかながら除去できている。
- $\text{SiO}_2$  微粒子への吸着によって、 $^{212}\text{Pb}$  は 3 割前後除去できている。

となる。

### 3.7.2 実際の除去装置建設へ向けた、実験結果の持つ意味

実際に KamLAND の 1000 トンにもなる液体シンチレーター中の  $^{210}\text{Pb}$  を除去する装置を製作することを考え、今回の実験結果が持つ意味を検討してみる。

#### 3.7.2.1 水を使った液液抽出法について

今回の実験で、液体シンチレーターと同じ量の水を使った場合の除去効率が 2 割弱であることが分かったわけだが、単純に考えると、約 1000 トンの水を用意しても 2 割しか  $^{210}\text{Pb}$  が除去できない、ということになる。

現実的な純水製造、供給能力からいって、除去効率は低すぎて実用化は難しいと考えられる。

#### 3.7.2.2 濾過の繰り返し、 $\text{SiO}_2$ への吸着

今回の実験においては、濾過の繰り返しや  $\text{SiO}_2$  への吸着による方法に先がありそうな感触が得られたため、今後も研究を続けていく。

しかし、実際にこの方法で除去装置を製作できるかは未知数である。

### 3.7.3 今後の実験

それぞれの除去方法について、今後何を調べるべきかを検討していく。

#### 3.7.3.1 液液抽出による除去

液液抽出法は、無限拡散過程であり、原理的には、繰り返せばいくらでも除去できる。液体シンチレーターと水を混ぜれば、一定の割合で  $^{212}\text{Pb}$  がイオンになってくれるのであれば、水さえ用意できれば、液液抽出を繰り返すことで除去できることになる。

しかし、液液抽出を繰り返す実験は行っておらず、繰り返しによる効果の有無を確かめる実験が必要である。

### 3.7.3.2 吸着による除去

濾過の繰り返し 濾過の繰り返しについては、効果があることが分かったため、図 3.15 のような装置で、数万回の濾過を行う。

#### $\text{SiO}_2$ 粉末への吸着

- 液体シンチレーターと AEROSIL の量的関係を、より広い範囲で調べる
- 比表面積の異なる AEROSIL による実験
- シリカゲルを吸着剤とした実験

その他の吸着剤 ゼオライト、 $\text{TiO}_2$  粉末等に吸着させる実験も必要である。

### 3.7.3.3 その他の方法による除去

原理的には、以下のような除去方法も考えられるため、実現の可能性を探っていく。

蒸留法 KamLAND 実験の液体シンチレーターの成分である Dodecane の沸点は  $83^\circ\text{C}$ 、Pseudocumene の沸点は  $54^\circ\text{C}$  である。液体シンチレーターを加熱し、蒸留させる事で、 $^{212}\text{Pb}$  の化学形態によらずに、原理的にはすべての  $^{212}\text{Pb}$  を除去できる。蒸留による  $^{212}\text{Pb}$  除去実験では、実に 99% 以上の  $^{212}\text{Pb}$  が除去出来ていると報告されている。

但し、蒸留装置が大がかりになってしまうこと、有機溶媒を蒸留する事になるため、鉱業関連法規の規制による制約を受ける、といった不利な点もある。

紫外線照射 液体シンチレーターに紫外線を照射し、溶存する放射性鉛をイオン化し、水を使い液液抽出する方法。

同位体置換 安定な鉛を用意し、安定な鉛を液体シンチレーターに溶かし、放射性鉛と置換させる方法。

## 3.7.4 除去実験の現状

以上で述べたように、除去実験の現状は、実験室内でとにかく  $^{212}\text{Pb}$  を除去できる方法がないか、もっと効率良く除去できる方法がないか探っている、という状況である。

実際の  $^{210}\text{Pb}$  除去装置建設に向けた、具体的なエンジニアリングの問題に踏み込めるまでには至っていないというのが現状である。

# 付録A 崩壊系列図，崩壊準位図

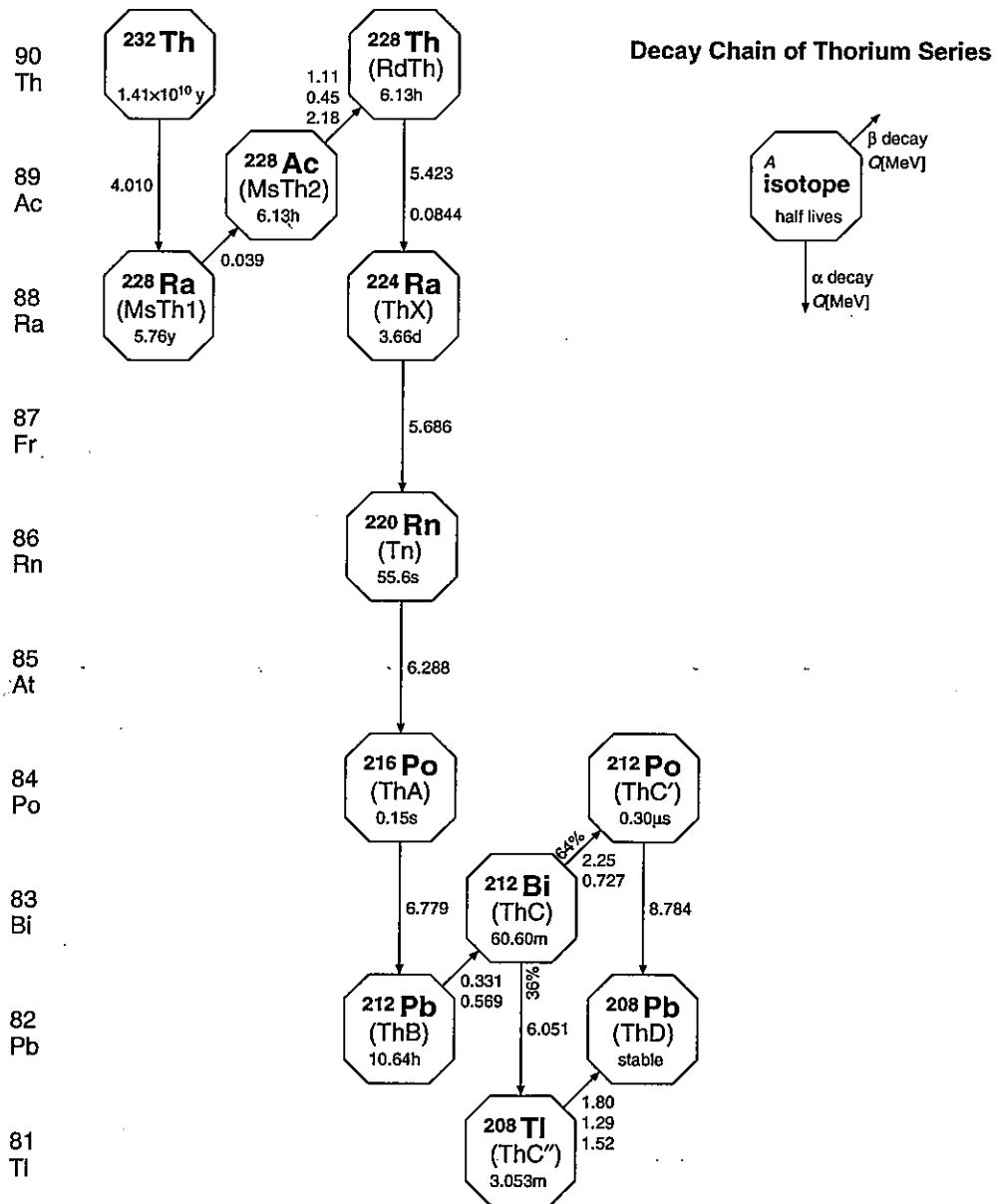


図 A.1:  $^{232}\text{Th}$  崩壊系列図

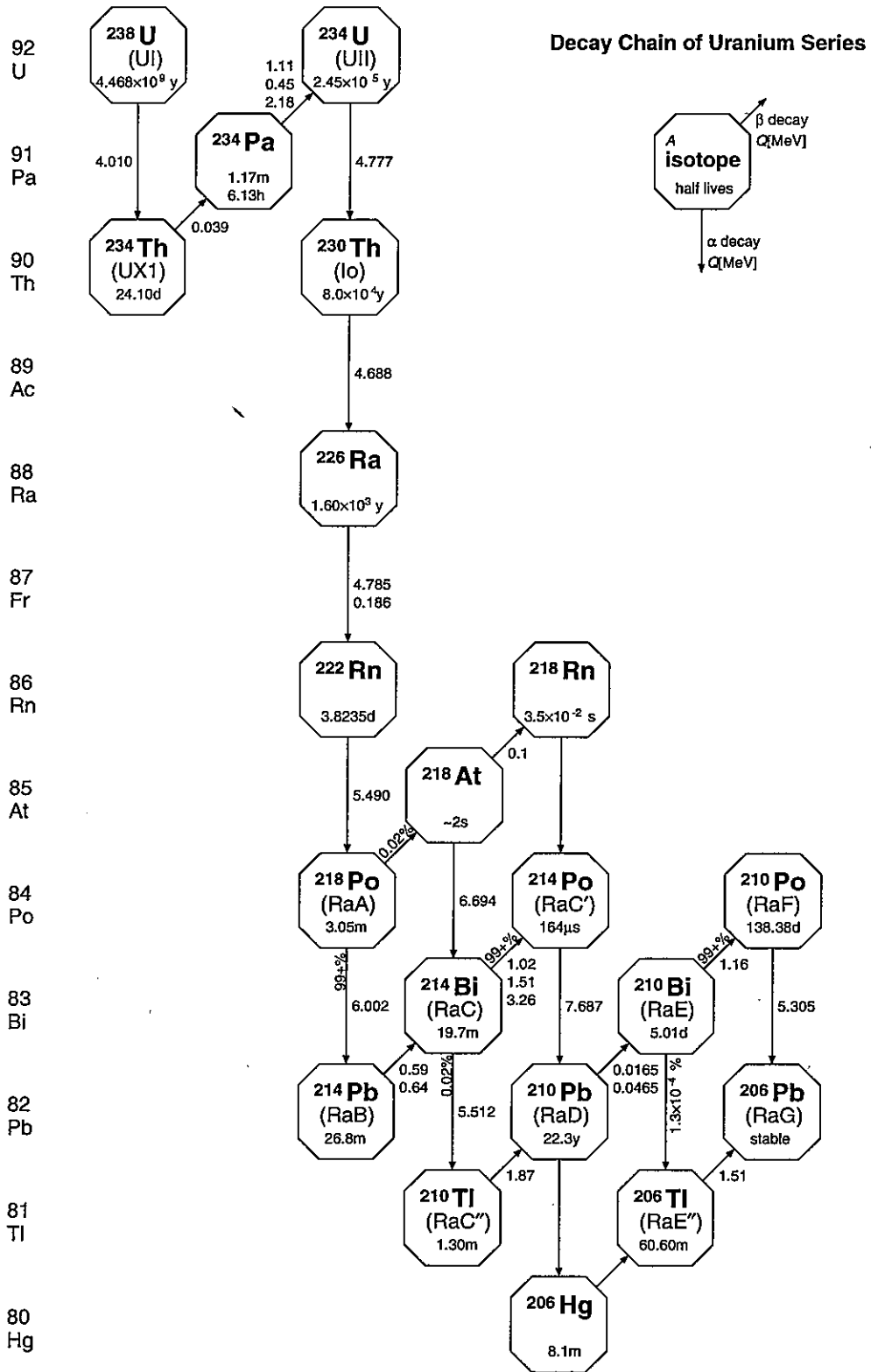


図 A.2:  $^{238}\text{U}$  崩壊系列図

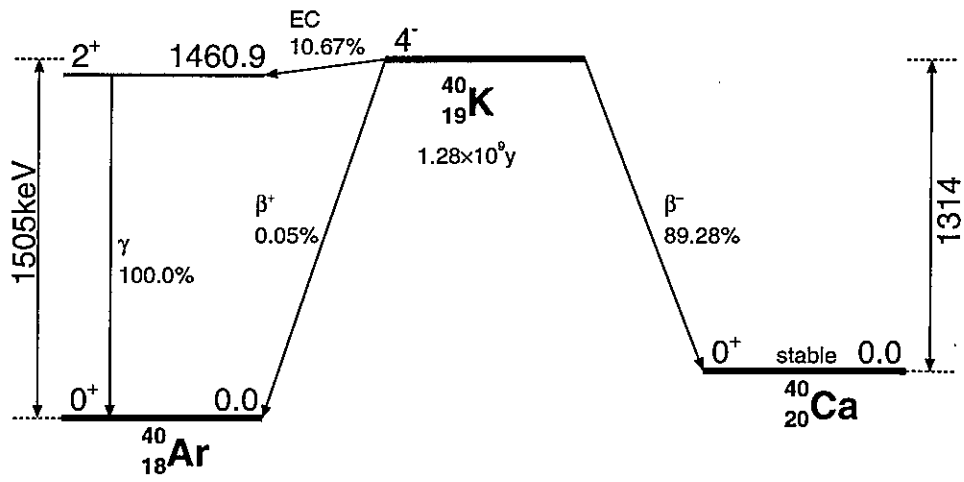


图 A.3:  $^{40}\text{K}$  崩壊図

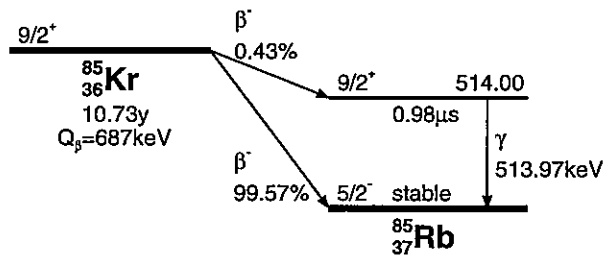


图 A.4:  $^{85}\text{Kr}$  崩壊図

## 参考文献・引用図表

- [1] J. N. Bahcall, M. H. Pinsonneault and S. Basu, "Solar models: Current epoch and time dependences, neutrinos, and helioseismological properties," *Astrophys. J.* **555**, 990 (2001) [arXiv:astro-ph/0010346].
- [2] [http://pdg.lbl.gov/2002/solar\\_nu\\_s005313.ps](http://pdg.lbl.gov/2002/solar_nu_s005313.ps)
- [3] <http://www.sns.ias.edu/~jnb/SNviewgraphs/Introduction/theoryvsexperiment.ps>
- [4] J. Pulido and E. K. Akhmedov, "Resonance spin flavor precession and solar neutrinos," *Astropart. Phys.* **13**, 227 (2000) [arXiv:hep-ph/9907399].
- [5] Q. R. Ahmad *et al.* [SNO Collaboration], "Measurement of the charged current interactions produced by B-8 solar neutrinos at the Sudbury Neutrino Observatory," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 071301 (2001) [arXiv:nucl-ex/0106015].
- [6] K. Eguchi *et al.* [KamLAND Collaboration], "First results from KamLAND: Evidence for reactor anti-neutrino disappearance," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 021802 (2003) [arXiv:hep-ex/0212021].
- [7] <http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino/allsolar.eps>
- [8] <http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino/allsolar+reactor1.eps>
- [9] 中畑雅行, 鈴木洋一郎, 日本物理学会誌 **57** (2002)
- [10] Y. Kishimoto, presented at the KamLAND Collaboration Meeting, Sendai, 2003.
- [11] Y. Kishimoto, presented at the KamLAND Collaboration Meeting, Sendai, 2003.
- [12] Y. Kishimoto, presented at the LowNu2003, Paris, 2003.
- [13] J. Bernabeu, S. M. Bilenky, F. J. Botella, J. A. Penarrocha and J. Segura, "Neutrino Mass And Magnetic Moment From Neutrino - Electron Scattering," arXiv:hep-ph/9406358.