

修士論文

加圧環境下におけるニュートリノレス二重
ベータ崩壊探索の高感度化に向けた開発研究

東北大学大学院理学研究科

物理学専攻

松田 涼太

平成 25 年

概要

$0\nu\beta\beta$ 崩壊の観測はニュートリノのマヨラナ性を検証出来る唯一現実的な実験手法であり、その崩壊レートよりニュートリノの有効質量を求める事が出来る事からも非常に注目され、世界中でその探索実験が行われている。

KamLAND-Zen は KamLAND の極低バックグラウンド環境を利用した ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験である。KamLAND-Zen は、第 1 フェイズにおいて世界最高感度の質量上限値を得、さらに ^{76}Ge の $0\nu\beta\beta$ 崩壊を発見したという主張 (KK claim) の排除に成功しており、現在は想定外のバックグラウンドである ^{110m}Ag の除去作業を終えて Xe 導入量を増やした上で第 2 フェイズとしてデータ収集を行っている。

KamLAND-Zen では更なる高感度での質量上限値を得るため、バックグラウンドの増加を抑え、もしくは減少させた上で Xe 導入量を増加させる将来計画の検討をしているが、その稼働を実現するためには解決しなければならない問題も多く残っている。本論文では比較的早期に実現する可能性の高い KamLAND-Zen 800kg フェイズ、及び加圧フェイズの持つ問題解決に取り組んだ結果について報告する。

KamLAND-Zen 800kg フェイズは mini-Balloon を大きく新しいものに作り替える事で、Xe 導入量を増加させようというものである。mini-Balloon の材料であるフィルムの強度は変更する事なく、体積が倍になるため、mini-Balloon 内外の液体シンチレータの最大密度差は現在の 0.1% から 0.05% へと制限が厳しくなる。本研究では、mini-Balloon の置かれる加圧環境を再現した上で Xe-LS の密度を測定出来る装置の開発を行い、密度変化の圧力依存性について調べた。その結果、密度増加の傾向を掴む事に成功した。

KamLAND-Zen 加圧フェイズは加圧環境を利用し、Xe を加圧しながら溶解する事で mini-Balloon を現在の大きさから変更する事なく Xe 導入量を増加させようというものである。Xe-LS の体積は変わらず Xe の導入量が増加するため、mini-Balloon 内部の密度が外部より重くなり、現在の液体シンチレータが使用出来ないという問題が生じる。本研究では、加圧フェイズに向けた新しい液体シンチレータ開発とその性能評価を行った。その結果、発光量や透過率などの諸条件を満たしたイソパラフィンを用いた液体シンチレータが適している事を明らかにし、シミュレーションにより加圧フェイズにおいては、5 年の実験稼働で $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 40\text{meV}$ の探索が可能である事を明らかにした。

目次

第1章 ニュートリノ物理学	1
1.1 ニュートリノ	1
1.2 ニュートリノ振動	3
1.3 ニュートリノ質量	4
1.3.1 ニュートリノの質量階層構造	4
1.3.2 マヨラナ性とシーソー機構	4
1.4 ニュートリノレス二重 β 崩壊	6
1.4.1 二重 β 崩壊とは	6
1.4.2 ニュートリノレス二重 β 崩壊	7
1.4.3 主な二重 β 崩壊探索実験	10
第2章 KamLAND-Zen 実験	14
2.1 KamLAND 実験	14
2.1.1 OD(外部検出器)	15
2.1.2 ID(内部検出器)	15
2.2 検出原理	18
2.3 KamLAND 実験の成果	19
2.3.1 原子炉ニュートリノ振動	19
2.3.2 地球ニュートリノ	20
2.4 KamLAND-Zen 実験	21
2.4.1 崩壊核 ^{136}Xe	21
2.4.2 検出器の改良	22
2.4.3 KamLAND-Zen 実験の成果と現状	23
2.4.4 KamLAND-Zen で考慮すべきバックグラウンド	25
2.4.5 KamLAND-Zen 実験の将来計画と本研究の動機	27
第3章 加圧環境下における Xe 含有液体シンチレータの密度変化	31
3.1 概要	31
3.2 測定装置	31

3.2.1	測定装置に要求される性能	31
3.2.2	測定装置構造	33
3.2.3	密度計キャリブレーション	36
3.2.4	測定手順とデータ解析方法	38
3.3	実験結果	40
3.4	まとめ	44
第 4 章	加圧フェイズに向けた新しい液体シンチレータ開発 I	45
4.1	概要	45
4.2	液体シンチレータへの要求と素材選定	46
4.3	新しい液体シンチレータの組成決定	48
4.4	透過率測定	49
4.4.1	使用機材	49
4.4.2	実験精度と測定方法	51
4.4.3	実験結果	52
4.5	発光量測定	54
4.5.1	測定原理	54
4.5.2	測定手法	55
4.5.3	実験結果	57
4.6	まとめ	57
第 5 章	加圧フェイズに向けた新しい液体シンチレータ開発 II	59
5.1	概要	59
5.2	Xe 溶解用液体シンチレータ	59
5.2.1	NewXe-LS の組成決定	59
5.2.2	透過率の測定と評価	60
5.2.3	発光量の測定と評価	61
5.3	Outer-LS	62
5.3.1	液体シンチレータへの要求と素材選定	62
5.3.2	NewOuter-LS の組成決定	63
5.3.3	透過率の測定と評価	65
5.3.4	発光量の測定と評価	66
5.4	Buffer-Oil	69
5.4.1	Buffer-Oil への要求と素材選定	70
5.4.2	NewBuffer-Oil の組成決定	70

5.4.3	透過率の測定と評価	71
5.5	まとめ	72
第 6 章	新しい液体シンチレータの感度に対する評価と議論	74
6.1	概要	74
6.2	加圧フェイズにて変更となったシミュレーション条件	74
6.3	感度導出手法	76
6.4	結果	83
6.5	まとめ	86
第 7 章	結論と今後の課題	87

目次

1.1	β 崩壊における電子のエネルギースペクトル	1
1.2	3種類のニュートリノ質量階層構造	5
1.3	^{136}Xe の崩壊図	6
1.4	二重 β 崩壊の2つのモード $2\nu\beta\beta$ (左)と $0\nu\beta\beta$ (右)	8
1.5	二重 β 崩壊における電子のエネルギースペクトル	8
1.6	ニュートリノ有効質量と各パラメータの関係 [7]	9
2.1	KamLAND エリアの全体図	14
2.2	KamLAND 構造図	15
2.3	17-inch PMT(左)と 20-inch PMT(右)の構造	17
2.4	KamLAND における反電子ニュートリノ検出原理	19
2.5	KamLAND による原子炉ニュートリノ振動精密測定	20
2.6	KamLAND による地球ニュートリノ検出	21
2.7	KamLAND-Zen 構造図	22
2.8	KK claim の排除	24
2.9	KamLAND-Zen 第1フェイズにて得られたエネルギー分布	25
2.10	KamLAND2-Zen の概要	30
3.1	測定装置の概略図	33
3.2	LS 容器と熱交換器 (上図)と 送液ポンプとミニフローライン (下図)	34
3.3	振動式密度計 DM8(左図)とその表示板 (右図)	35
3.4	LabView にて得られた密度情報	36
3.5	誤差の評価方法	37
3.6	密度計校正	38
3.7	Xe 溶解状態 Xe-LS の密度測定データ	39
3.8	Xe 溶解状態 Xe-LS の密度の圧力依存性	40
3.9	Xe-LS の密度増加率の圧力依存性	42
3.10	Xe-LS の密度増加率の圧力依存性の比較	42
3.11	密度増加率に対する基準密度変化の与える影響	43

4.1	Xe 溶解度の圧力依存性 [21]	45
4.2	発光量の Xe 溶解度依存性 [21]	46
4.3	分光光度計 (左図) とその構造 (右図)	50
4.4	サンプル用 100mm セル (左) とリファレンス用 10mm セル (右)	51
4.5	シクロヘキサンによる誤差検証	51
4.6	各 Mineral Oil の透過率	52
4.7	各液体シンチレータの透過率	53
4.8	mini-Balloon 半径長における各液体シンチレータの透過率	54
4.9	発光量測定装置 (左図) とその原理、構造 (右図)	55
4.10	発光量測定結果の解析	57
5.1	1.58m における NewXe-LS の透過率	61
5.2	新しい N-12 の透過率	64
5.3	各 Mineral Oil の透過率	65
5.4	4.92m における NewOuter-LS の透過率	66
5.5	分光蛍光光度計 (左図) とその構造 (右図)	67
5.6	Outer-LS と PXE-LS の発光スペクトル	68
5.7	Isoparaffin-LS の発光量の PPO 濃度依存性	69
5.8	パラオール 850 の透過率	71
5.9	1.75m における NewBuffer-Oil の透過率	72
5.10	決定した加圧フェイズ構成要素	73
6.1	0 ν のエネルギースペクトルとフィッティングの様子	77
6.2	¹⁰ C の生成、崩壊過程	78
6.3	²¹⁴ Bi の崩壊イベントのタグging方法	79
6.4	正規分布関数と 90%C.L. 領域	81
6.5	90%C.L. Confidence Belt と質量上限値計算方法	82
6.6	各バックグラウンドレート (左)、Figure Of Merit(右)	83
6.7	1 年間の観測で期待されるイベント数	84
6.8	0 ν 信号領域におけるバックグラウンドレートの比較	84
6.9	加圧フェイズにおいて得られる質量上限値	85
6.10	得られる質量上限値の比較	86

第1章 ニュートリノ物理学

1.1 ニュートリノ

ニュートリノは1930年にW.Pauliによって原子核の β 崩壊におけるエネルギー非保存問題を解決するために提唱された粒子である。 β 崩壊とは、原子核中の中性子が電子を1つ放出して陽子に変化する現象であり、以下のように表される。



崩壊の前後でエネルギーは保存するため、電子の持つ運動エネルギーは崩壊前の原子核の静止質量から崩壊後の原子核の静止質量(M_Z, M_{Z+1})、電子の静止質量(m_e)を引いた

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

のように表す事が出来る。(1.2)式より電子の運動エネルギーはある決まった値を取るはずであるが、実際に測定された電子のエネルギー分布はこの値を上限とする連続分布であった(図1.1)。

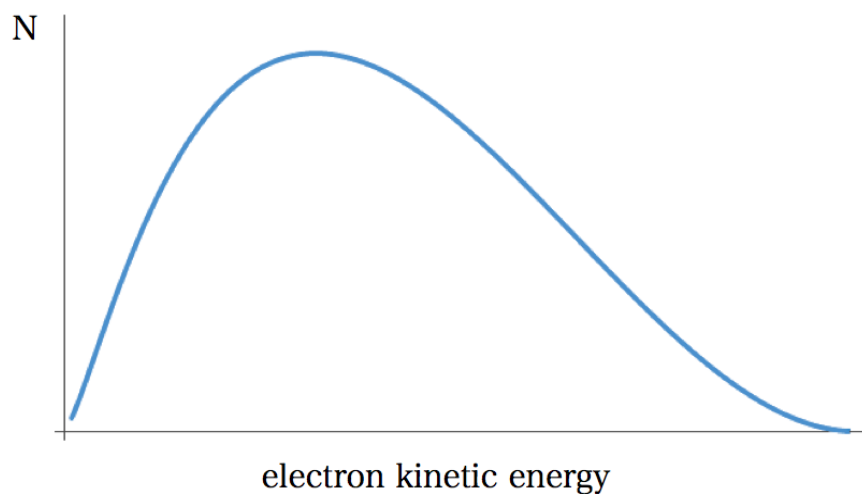


図 1.1: β 崩壊における電子のエネルギースペクトル

この測定結果は β 崩壊が崩壊の前後でエネルギー、運動量の保存を破っている事を示しており、また、中性子と電子、陽子は半整数のスピンを持っているため崩壊の前後でスピン、つまり角運動量の保存も破っている事になる。これらの矛盾を解決するために提唱されたのが電荷が0でスピンの半整数の粒子、ニュートリノである。W.Pauliによってニュートリノの存在が提唱されてから3年、E.Fermiによってニュートリノと物質の相互作用を表す方程式が構築され、 β 崩壊は以下のように表される。

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

この時、E.Fermiは β 崩壊における電子のエネルギースペクトルからニュートリノの質量は0、もしくは非常に小さいと考えていた。

ニュートリノは電氣的に中性であるため電磁相互作用をせず、また、強い相互作用もしない。弱い相互作用でしか反応しないため実験的にその存在を証明するには困難を極めた。ニュートリノの観測に初めて成功したのはF.ReinesとC.L.Cowanの実験である。1956年彼らは原子炉で作られた反ニュートリノを塩化カドミウムを溶かした水を用い、陽子と引き起こす逆 β 崩壊という反応を利用して検出した [1]。その後、1962年にBrookhaven国立研究所でミューニュートリノ [2]、2001年にフェルミ研究所のDONUT実験でタウニュートリノが発見され [3]、それまでに見付かっていたクォーク、レプトン同様に3つの世代を形成していることが確認された。(表 1.1)

	電荷	第1世代	第2世代	第3世代
クォーク	+2/3	u	c	t
	-1/3	d	s	b
レプトン	-1	e	μ	τ
	0	ν_e	ν_μ	ν_τ

表 1.1: 物質を構成する素粒子

1.2 ニュートリノ振動

ニュートリノには e, μ, τ の3種類のフレーバー、それぞれの反粒子を含め計6種類があり、標準理論においてニュートリノは質量を持たないとされていた。しかし、もしニュートリノに質量があった場合、フレーバー固有状態 (ν_α) は質量固有状態 (ν_j) の重ね合わせとして線形結合で書ける。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_{j=1}^3 U_{\alpha j} |\nu_j\rangle \quad (\alpha = e, \mu, \tau) \quad (1.4)$$

ここで U は MNS 行列 (Maki-Nakagawa-Sakata 行列) と呼ばれ以下のように表される。

$$U = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{-i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{-i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.5)$$

このニュートリノが伝搬する時、それぞれの質量固有状態が別々に時間発展するため混合の割合が変わり、フレーバーが変化する。フレーバー状態の時間発展は

$$|\nu_\alpha(t)\rangle = \sum_j U_{\alpha j} |\nu_j\rangle e^{-iE_j t} \quad (1.6)$$

$$E_j = \sqrt{p^2 + m_j^2} \simeq p + \frac{m_j^2}{2p} \quad (1.7)$$

のように表され、簡単のため、ニュートリノの世代を2世代と考えると混合角 θ を用いると

$$|\nu_e\rangle = \cos\theta |\nu_1\rangle + \sin\theta |\nu_2\rangle \quad (1.8)$$

$$|\nu_\mu\rangle = -\sin\theta |\nu_1\rangle + \cos\theta |\nu_2\rangle \quad (1.9)$$

$t=0$ において ν_e の状態であったものが時刻 t で ν_μ の状態に変化する確率は

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu, t) = |\langle \nu_e(0) | \nu_\mu(t) \rangle|^2 \quad (1.10)$$

$$= \left| \sin\theta \cos\theta (1 - e^{-i(E_1 - E_2)t}) \right|^2 \quad (1.11)$$

$$\simeq \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{\Delta m^2}{4E} L \right) \quad (1.12)$$

$$= \sin^2 2\theta \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m^2 [eV^2]}{E [GeV]} L [km] \right) \quad (1.13)$$

$$\Delta m^2 = m_2^2 - m_1^2, L = \text{飛行距離} \quad (1.14)$$

となる。フレーバー状態の存在確率が飛行距離により波打つような振る舞いをするためこの現象はニュートリノ振動と呼ばれている。1998年、スーパーカミオカンデが大気ニュートリノが ν_μ から ν_τ への振動を観測することに成功し、ニュートリノ振動が存在し、またニュートリノが質量を持つ事を実験的に証明した [4]。

1.3 ニュートリノ質量

前節で記述したニュートリノ振動の観測によりニュートリノが質量を持つことが明らかとなった。しかし、ニュートリノ振動実験から測定出来るパラメータは3つの質量固有状態の質量二乗差と混合角のみであり、質量そのものを直接測定する事は未だに出来ていない。

1.3.1 ニュートリノの質量階層構造

ニュートリノ振動実験より3つの質量固有状態の質量二乗差が求められており、これより現在、各ニュートリノ質量の相対関係には3種類の階層構造モデルが考えられている(図 1.2)。1つ目は正常階層構造 (Normal Hierarchy) と呼ばれるものであり、相対関係は $m_1 \sim m_2 \ll m_3$ のようになっている。2つ目は逆階層構造 (Inverted Hierarchy) と呼ばれるもので、 m_2 が一番大きい $m_3 \ll m_1 \sim m_2$ という構造を取る。3つ目は縮退構造 (Degenerated) と呼ばれるもので、正常階層、逆階層構造とは異なり各ニュートリノ質量がほぼ同程度となる構造である。

1.3.2 マヨラナ性とシーソー機構

素粒子標準理論において全ての素粒子はディラック粒子として扱われており、電荷の正負が異なる以外、全く同様の性質を持つ反粒子が存在している。ディラック粒子はその質量を左巻きと右巻き成分の混合によって得ている粒子であり、実験的にも左巻きと右巻きの粒子の存在が確認されている。

前節で述べたニュートリノ振動実験によりニュートリノは質量を持っている事が分かっているため、相対論的に光速で運動する事は出来ず、これを追い抜く系が存在する。すなわち、ある左巻きのニュートリノをニュートリノを追い越す系から観測すると、スピンの方向が不変のまま運動方向が反対になり、右巻きのニュートリノとして観測される。つまりニュートリノは左巻き、右巻きの成分両方を持っている事になる。

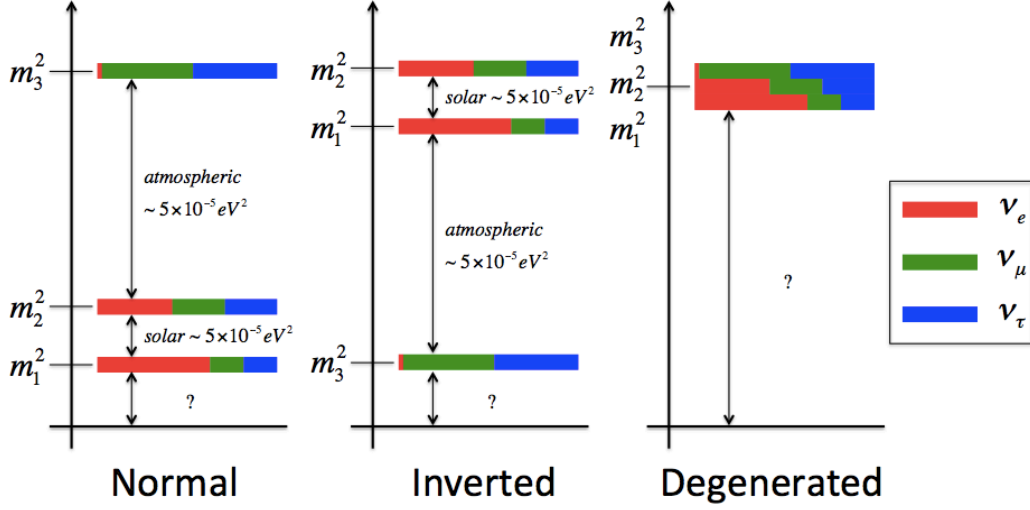


図 1.2: 3 種類のニュートリノ質量階層構造

しかし、実験観測よりニュートリノと反ニュートリノは、それぞれ左巻き、右巻きスピ
ン成分しか持たない事が分かっている [5]。この矛盾はニュートリノと反ニュートリノ
の違いがスピンの向きだけであり、2つが同一の粒子であると考えれば説明する事が
出来、このような粒子はマヨラナ粒子と呼ばれている。これは電氣的に中性なニュー
トリノだけにのみ導入出来る考えである。

ニュートリノがマヨラナ粒子であった場合、ラグランジアンに現れる左巻きニュー
トリノの質量項 L_{mL} は

$$L_{mL} = -\frac{m_L}{2}\bar{\psi}_L^c\psi_L + h.c. \quad (1.15)$$

と書く事が出来る。右巻きの質量項も同様に独立に表す事が出来るため、マヨラナ粒
子では左巻きニュートリノと右巻きニュートリノで異なる質量を持つ事が可能となる。
これを利用してニュートリノの絶対質量が他の素粒子に比べて極端に小さい事を説明
しようとする理論が柳田、Gell-mann などにより提案されたシーソー機構である。観
測にかからないような重い右巻きニュートリノ M_R を導入する事でディラック粒子 m_D
よりも非常に軽い左巻きニュートリノ m_L を以下のように自然に説明する。

$$m_L \sim \frac{m_D^2}{M_R} \quad (1.16)$$

1.4 ニュートリノレス二重 β 崩壊

ニュートリノの質量に関しては現在まで様々な実験により検証が行われてきた。しかし、ニュートリノ振動実験からは質量二乗差しか分からず、直接質量を測定する事は出来ない。 β 崩壊からは $\langle m_{\beta} \rangle^2 < 2\text{eV}$ 程度の上限值が得られているが [6]、これは運動学的に求められる値なのでディラック型かマヨラナ型の質量なのかは判断出来ない。本節ではこれらのニュートリノ質量に関する疑問に回答を与える事が出来ると考えられているニュートリノレス二重 β 崩壊という現象について述べる。

1.4.1 二重 β 崩壊とは

不安定な原子核は原子核中の中性子が陽子に変わり、電子と反電子ニュートリノを放出する β 崩壊過程を経ることで原子番号が一つ大きい安定な原子核へとその状態を移行する。しかし、核種によっては娘核の方がエネルギー準位が大きいため β 崩壊を起こすことが出来ない場合がある。その場合、2つの β 崩壊が同時に起こる事でより安定な原子番号が2つ大きい原子核へと移行する事がある。この極めて稀な現象は二重 β 崩壊と呼ばれる。ここでは例として本研究で使用されている ^{136}Xe の崩壊図を示す(図 1.3)。

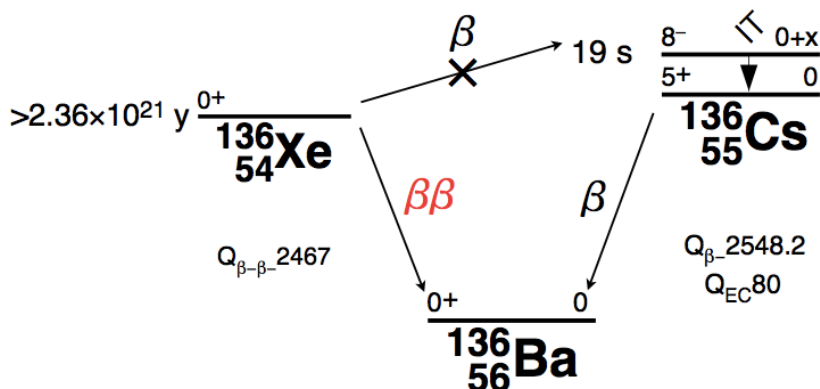


図 1.3: ^{136}Xe の崩壊図

二重 β 崩壊を起こす可能性のある放射性同位体は非常に多いが、崩壊自体が極めて稀な現象であるためバックグラウンドに埋もれてしまい観測する事が非常に困難である。現在、二重 β 崩壊が実際に観測されている核種は10種類のみである(表 1.2)。

Nuclears	$T_{1/2}^{0\nu}$ (50meV)	$T_{1/2}^{2\nu}$ (year)	Nat Abundance (%)	Q-value (keV)
$^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{48}\text{Ti}$		4.4×10^{19}	0.19	4273.6
$^{76}\text{Ge} \rightarrow ^{76}\text{Se}$	0.86×10^{27}	1.55×10^{21}	7.6	2039.0
$^{82}\text{Se} \rightarrow ^{82}\text{Kr}$	2.44×10^{26}	9.6×10^{19}	8.7	2995.5
$^{96}\text{Zr} \rightarrow ^{96}\text{Mo}$	0.98×10^{27}	2.35×10^{19}	2.8	3347.7
$^{100}\text{Mo} \rightarrow ^{100}\text{Ru}$	2.37×10^{26}	7.11×10^{18}	9.4	3034.4
$^{116}\text{Cd} \rightarrow ^{116}\text{Sn}$	2.86×10^{26}	2.8×10^{19}	7.5	2813.5
$^{130}\text{Te} \rightarrow ^{130}\text{Xe}$	2.16×10^{26}	7.0×10^{20}	34.1	2527.0
$^{136}\text{Xe} \rightarrow ^{136}\text{Ba}$	4.55×10^{26}	2.3×10^{21}	8.9	2457.8
$^{150}\text{Nd} \rightarrow ^{150}\text{Sm}$	2.23×10^{25}	9.11×10^{18}	5.7	3371.4

表 1.2: 二重 β 崩壊を起こす核種

1.4.2 ニュートリノレス二重 β 崩壊

二重 β 崩壊には南部-Goldstone ボソンであるマヨロンを放出する過程など、理論上ではいくつかの崩壊過程が存在すると考えられているが、ほとんどの実験では以下に述べるような軽いマヨラナニュートリノの交換によって引き起こされる崩壊過程の探索が主流となっている。

二重 β 崩壊は通常の β 崩壊が2回同時に起こる反応であるため、崩壊時に電子と反電子ニュートリノが2つずつ放出される。しかし、もしニュートリノがマヨラナ粒子であった場合、二重 β 崩壊によって放出された2つの反電子ニュートリノが仮想的に対消滅を起こす事で崩壊時には電子二つしか放出されないという反応が起こり得る。これを通常の二重 β 崩壊 ($2\nu\beta\beta$) に対してニュートリノレス二重 β 崩壊 ($0\nu\beta\beta$) と呼ぶ。

以下に2種類の崩壊過程の反応式と崩壊の様子を表した図を示す (図 1.4)。

$$2\nu\beta\beta : (A, Z) \rightarrow (A, Z + 2) + 2e^- + 2\bar{\nu}_e \quad (1.17)$$

$$0\nu\beta\beta : (A, Z) \rightarrow (A, Z + 2) + 2e^- \quad (1.18)$$

式 (1.18) を見ての通り、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊はレプトン数を保存しない、標準理論では説明出来ない現象である。

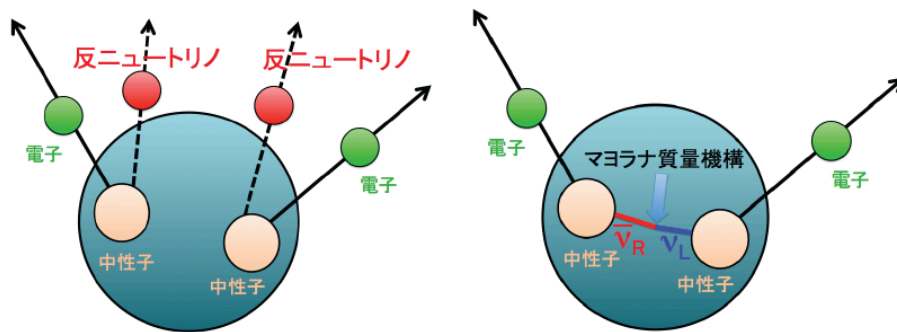


図 1.4: 二重 β 崩壊の 2 つのモード $2\nu\beta\beta$ (左) と $0\nu\beta\beta$ (右)

以下に二つのモードの二重 β 崩壊における電子のエネルギースペクトルを示す (図 1.5)。 $2\nu\beta\beta$ は通常の β 崩壊が 2 回同時に起こる反応であるため、 β 崩壊と同様に、ニュートリノがエネルギーの一部を持ち出す事で放出される電子のエネルギーは連続スペクトルとなる。一方、 $0\nu\beta\beta$ はエネルギーを持ち出すニュートリノは放出されないため、観測される 2 つの電子のエネルギーの総和は Q 値と呼ばれる一定の値に決まる。この線スペクトルを観測する事が出来れば $0\nu\beta\beta$ を観測したと言える事となる。

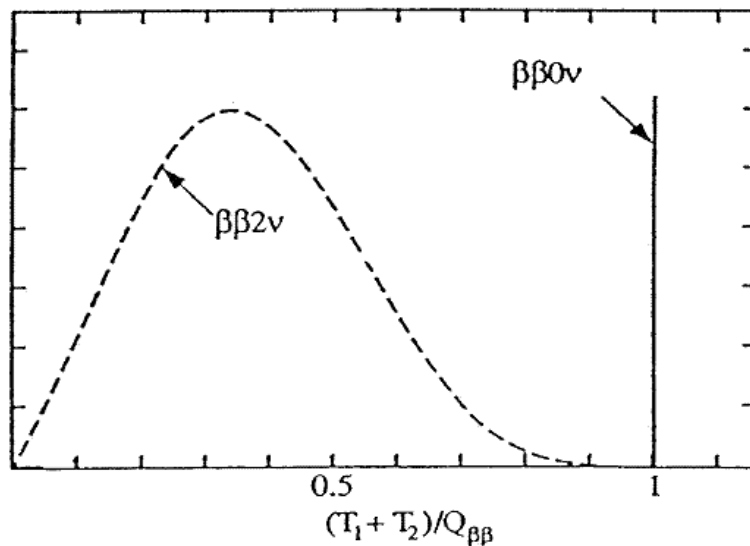


図 1.5: 二重 β 崩壊における電子のエネルギースペクトル

$0\nu\beta\beta$ における原子核の半減期は位相空間因子を $G^{0\nu}(Q, Z)$ 、核行列要素を $M^{0\nu}$ と

すると以下のように表される。

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = G^{0\nu}(Q, Z) |M^{0\nu}|^2 \langle m_{\beta\beta} \rangle^2 \quad (1.19)$$

ここで $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ はニュートリノの有効質量である。つまり $0\nu\beta\beta$ を観測し、その半減期を測定する事に成功すれば、ニュートリノがマヨラナ粒子である事を証明するだけでなく、その質量のスケールを直接的に測定することが出来る。

ニュートリノの有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ は

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle \equiv \left| \sum_{i=1}^3 U_{ei}^2 m_i \right| \quad (1.20)$$

のように3つの質量固有状態の混合により定義されており、そのため有効質量はニュートリノの質量階層構造によってその取り得る値に制限が掛かっている (図 1.6)。

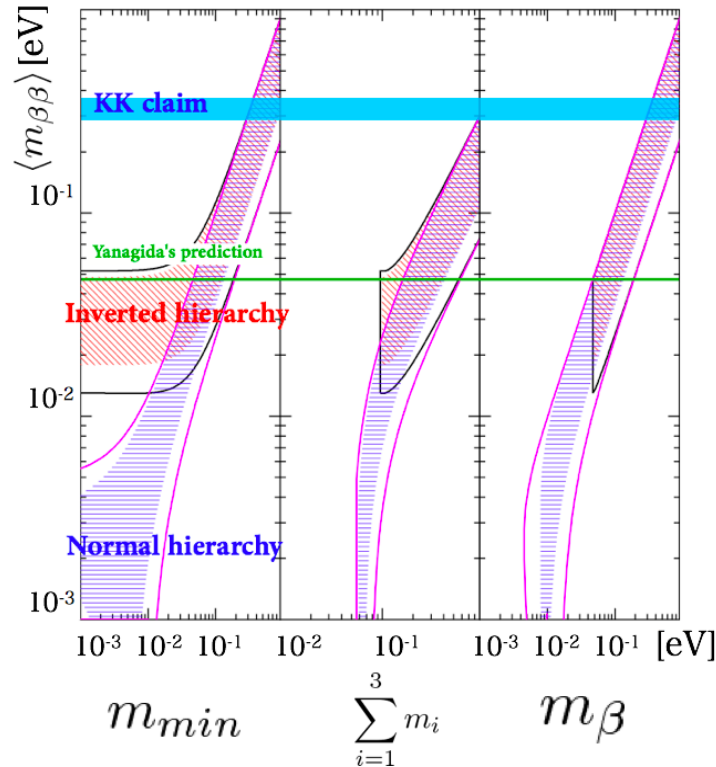


図 1.6: ニュートリノ有効質量と各パラメータの関係 [7]

赤と青の斜線領域はニュートリノの質量階層構造がそれぞれ、逆階層構造と正常階層構造であった場合に許される領域であり、領域の幅は (式 1.20) 中の U_{ei} に含まれる

マヨラナ CP 位相による不定性を表している。また、実線は振動パラメータのエラー (3σ) を考慮した場合に得られる領域を表している。ここで、 m_{min} は3つの質量固有状態の中で最も軽いものの質量、 $\sum_{i=1}^3 m_i$ は3つの質量固有状態の質量和、 m_β は通常のベータ崩壊時に放出される電子のエネルギーの精密測定から求められるニュートリノの平均質量である。

$\sum_{i=1}^3 m_i$ や m_β は3つの固有状態の混合質量であり、最も軽い状態の質量 m_{min} を0と考えると、振動パラメータより残りの2状態は0以外の値を持つため下限値が設定される。対して、二重 β 崩壊実験より得られる有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ は U_{ei} に含まれる位相の値によっては相殺が生じるため、実効的に小さくなり得る。

図中緑線で示された Yanagida's prediction は理論より計算されるニュートリノの有効質量で $47 \pm 1 [\text{meV}]$ と予測されており、ニュートリノの質量階層構造は逆階層構造となっている [8]。柳田予測では2つの重い右巻きニュートリノモデルに対し、現れるパラメータを最小限まで減少させ、ニュートリノ振動の観測データと照合する事でニュートリノの有効質量を計算している。

水色で示された領域の KK claim は二重 β 崩壊実験で得られたニュートリノの有効質量で $0.32 \pm 0.03 [\text{eV}]$ と求められている。詳細は次節にて述べる。

1.4.3 主な二重 β 崩壊探索実験

前節で述べたようにニュートリノレス二重 β 崩壊の観測はニュートリノ有効質量の直接測定とニュートリノのマヨラナ性を検証する事の出来る唯一現実的な実験であり、世界中でその探索実験が行われている。ここでは主なニュートリノレス二重 β 崩壊探索実験について紹介する。

Heidelberg-Moscow (KK claim)

Heidelberg-Moscow はイタリアの Gran Sasso underground laboratory (LNGS) で行われているゲルマニウム結晶 (崩壊核である濃縮 ^{76}Ge を 11kg 含有) を用いた探索実験である。崩壊核が検出器の役割も担っているためエネルギー分解能が良いという利点を持っている。2001年にその $0\nu\beta\beta$ 半減期の下限値を以下のように得ている [9]。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.9 \times 10^{25} [\text{year}] \quad (1.21)$$

一方で、2006年にコラボレータ数名が 6σ の精度で $0\nu\beta\beta$ を観測したと主張している [10]。求められた半減期とニュートリノ有効質量は以下の通りである。

$$T_{1/2}^{0\nu} = 2.23_{-0.31}^{+0.44} \times 10^{25}[\text{year}], \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle = 0.32 \pm 0.03[\text{eV}] \quad (1.22)$$

この実験結果には多くのバックグラウンドシグナルが含まれているため $0\nu\beta\beta$ の発見には懐疑的な意見も多い。この発表以後、 $0\nu\beta\beta$ 探索実験はまずこの主張(KK claim)の検証を行うことが最初のステップとなっている。

NEMO3(Super-NEMO)

NEMO3(Neutrino Ettore Majorana Observatory 3)はフランスのFrejus Underground Laboratoryで行われている ^{150}Nd , ^{82}Se を主とした9種類の崩壊核(Cu, ^{nat}Te はバックグラウンド測定用)についての探索実験である。25Gaussの磁場がかかっておりトラッキングチェンバーやカロリメーターを用いているため粒子識別能力に優れている。 $0\nu\beta\beta$ の存在は観測されていないが ^{100}Mo と ^{82}Se についてその半減期の下限値を90%C.L.で以下のように得ている [11]。

$$^{100}\text{Mo} : T_{1/2}^{0\nu} > 1.1 \times 10^{24}[\text{year}], \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle < 0.45 \sim 0.93[\text{eV}] \quad (1.23)$$

$$^{82}\text{Se} : T_{1/2}^{0\nu} > 3.6 \times 10^{23}[\text{year}], \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle < 0.89 \sim 2.43[\text{eV}] \quad (1.24)$$

Super-NEMOはNEMO3を大型化した実験で崩壊核をおよそ10倍の100~200kgに増やす事でニュートリノ有効質量の目標観測感度を $\langle m_{\beta\beta} \rangle < 50\text{meV}$ としている。

EXO-200

EXO(Enriched Xenon Observatory)はアメリカのWIPP laboratoryで行われている ^{136}Xe を用いた探索実験である。液体XeとTPC(Time Projection Chamber)、APD(Avalanche PhotoDiodes)から構成され、荷電粒子とシンチレーション光を捕らえる事で高いエネルギー分解能を実現している。2012年7月に $0\nu\beta\beta$ 半減期の下限値を90%C.L.で以下のように得ている [12]。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.6 \times 10^{25}[\text{year}], \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle < 140 \sim 380[\text{meV}] \quad (1.25)$$

今後はRnバックグラウンドの抑制やデータ収集機器のアップデートを行い4年の測定で $<75\sim 200\text{meV}$ の感度達成を目指している。

GERDA

GERDA(GERmanium Detector Array experiment) はイタリアの LNGS で行われている検出器の役割も担った ^{76}Ge 半導体を用いた探索実験である。Heidelberg-Moscow 実験と同じ崩壊核、ほぼ同じ検出器を用いているため KK claim の検証を直接的に行える実験として非常に重要である。現在 Phase I のデータを取得しているが Q 値付近にピークは示唆されておらず、 ^{76}Ge における $0\nu\beta\beta$ 発見の主張が支持されるような結果は出ていない。実験より得られた半減期の下限值は以下の通りである [13]。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 2.1 \times 10^{25}[\text{year}] \quad (1.26)$$

Phase II では崩壊核を増やし、バックグラウンドを低減させる事で到達感度は1年で $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 100[\text{meV}]$ に達すると期待されている。

CUORE

CUORE(The Cryogenic Underground Observatory for Rare Events) はイタリアの LNGS で行われている ^{130}Te を用いた探索実験である。検出器はエネルギー分解能の良いボロメータであり、その素材に TeO_2 を使用し崩壊核と検出器を同一のものとする事で、より良いエネルギー分解能を実現している。CUORE では TeO_2 ボロメータモジュールを 13 層積み重ねた塔を 19 塔用意する事で 203kg の ^{130}Te について $0\nu\beta\beta$ 探索を行う予定である。2 年で $T_{1/2}^{0\nu} \sim 10^{26}[\text{year}]$ の感度に到達し、予想される最終感度は以下のようにになっている。

$$T_{1/2}^{0\nu} = 1.6 \times 10^{26}[\text{year}], \quad \langle m_{\beta\beta} \rangle = 41 \sim 95[\text{meV}] \quad (1.27)$$

その他 (CANDLES、SNO+、DCBA/MTD)

CANDLES はシンチレータとしての能力を持つ CaF_2 結晶を用いた、自然界に存在する崩壊核の中で最も高い Q 値を持つ ^{48}Ca の $0\nu\beta\beta$ 探索実験で、現在稼働中である。

SNO+ は地下 2,000m 世界最深のニュートリノ検出器を利用した ^{150}Nd の $0\nu\beta\beta$ 探索実験で、1 年間の稼働で到達感度は $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 150[\text{meV}]$ になると予想されている。現在は検出器の中身を純水から液体シンチレータに入れ替える作業を行っている。

DCBA/MTD は磁場中に設置したドリフトチェンバーにより発生した電子の螺旋運動を 3次元でトラッキング出来る DCBA を用いた ^{150}Nd の $0\nu\beta\beta$ 探索実験で、現在は R&D 中であるが、その到達感度は $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 50[\text{meV}]$ に達すると見込まれている。

その他にも現在 R&D 中の $0\nu\beta\beta$ 探索実験は数多く存在する。

次章では現在我々が行っている、KamLAND 検出器の極低バックグラウンド環境を利用した ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 探索実験である KamLAND-Zen について紹介する。

第2章 KamLAND-Zen実験

2.1 KamLAND実験

KamLAND(Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector)は、カミオカンデ跡地に作られたニュートリノ観測装置である(図2.1)。KamLANDは岐阜県飛騨市神岡町の池ノ山山頂下1,000mに位置しており、宇宙線ミュオンのレートが地上のおよそ10万分の1となるため宇宙線起源のバックグラウンドが非常に少ないニュートリノ観測に適した環境に設置されている。KamLAND実験では、1,000tの液体シンチレータ(LS:Liquid Scintillator)によるシンチレーション光を光電子増倍管(PMT:PhotoMultiplier Tube)で検出する事で、反電子ニュートリノを観測している。

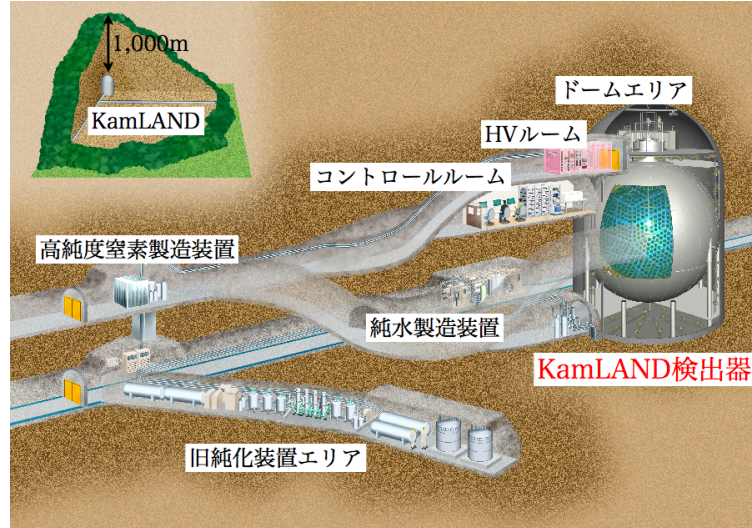


図 2.1: KamLAND エリアの全体図

KamLAND 検出器は(図2.2)に示すように、円柱タンク内部に球形のステンレス製タンクが設置された構造となっており、球形タンクの外側は外部検出器(OD:Outer Detector)、内側は内部検出器(ID:Inner Detector)と呼ばれている。ID内部はバルーンによって更に2層に区切られている。

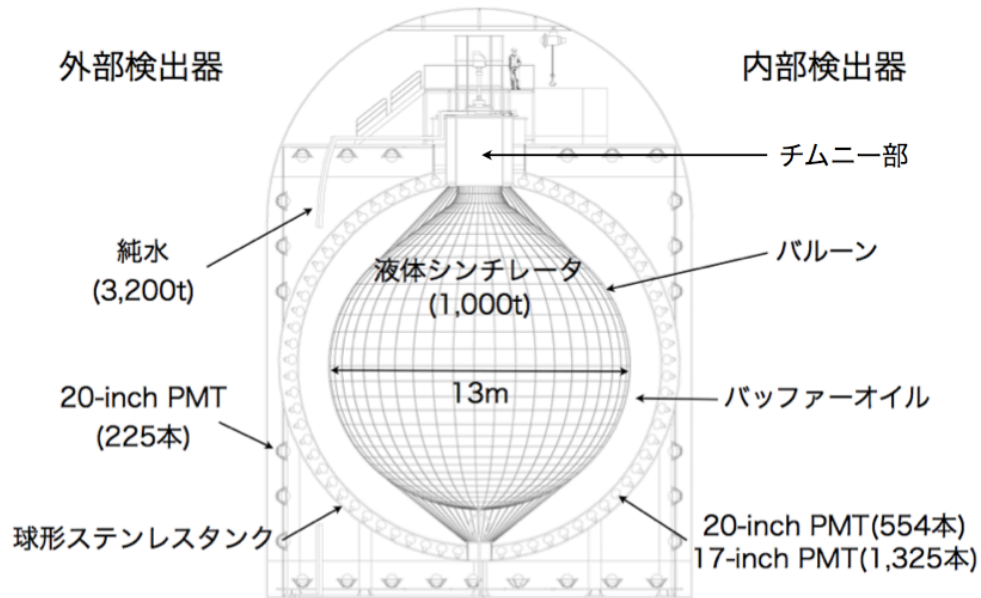


図 2.2: KamLAND 構造図

2.1.1 OD(外部検出器)

ODは直径20m、高さ20mの円柱タンクと球形ステンレスタンクの間を指しており、宇宙線バックグラウンドをタギングする事を目的とした部分である。OD内部は3,200tの純水で満たされており、荷電粒子が発するチェレンコフ光を円柱タンク壁面に取り付けられた225本のPMTによって検出している。また、外部からの γ 線や岩盤からの中性子を吸収する役割も担っている。

2.1.2 ID(内部検出器)

IDは、ニュートリノ反応の信号観測を目的とした部分である。ID内部はバルーンによってさらに2層に区切られており、外部はBuffer-Oil(BO)、内部は液体シンチレータによって満たされている。液体シンチレータによって発せられたニュートリノイベントのシンチレーション光は球形ステンレスタンク壁面に取り付けられたPMTによって検出される。

液体シンチレータ (LS)

KamLAND最大の特徴は、スーパーカミオカンデのように水チェレンコフ光ではなく、エネルギーの低い反電子ニュートリノの検出に特化した液体シンチレータ

によるシンチレーション光を用いている点である。液体シンチレータとは放射線に反応して発光する液体であり、主に有機溶剤と発光剤によって構成され、特に低エネルギーの放射線の測定に使用される。液体シンチレータには、発光量が大きい事、透過率が良い事、長期安定でバルーンへのダメージが小さい事など多くの事が要求され、現在 KamLAND では以下の組成のものが使用されている (表 2.1)。

物質名	組成式	密度	体積組成
N-12(ドデカン)	$C_{12}H_{26}$	0.749g/cm ³	80%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	0.875g/cm ³	20%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	$C_{15}H_{11}NO$	-	1.36g/l
LS	-	0.77721g/cm ³	-

表 2.1: KamLAND 液体シンチレータ (LS) の組成

主成分となっている N-12 は直鎖状の構造を持つパラフィンオイルである。組成式が C_nH_{2n+2} で表されるパラフィンオイルはシンチレーション光の波長領域に対する透過率が高いため希釈剤として使用されている。また H/C 比 (炭素数に対する水素数の比) が高いため陽子数が多く、後述する反電子ニュートリノの逆 β 崩壊反応が多くなるという利点もある。PC(Pseudocumene : 1,2,4 トリメチルベンゼン) は液体シンチレータの発光能力を高めるために使用されており、放射線のエネルギーを吸収して励起し、発光剤に伝達している。PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール) は発光剤として使用されており、PC により伝達された放射線エネルギーを受け発光する。現在は、後述する KamLAND-Zen 実験が稼働しているため、mini-Balloon 内部の Xe 含有液体シンチレータ (Xe-LS) に対し KamLAND-LS と呼ばれているが、本論文では Outer-LS と記述する。

バルーン (Outer-Balloon)

バルーンは 44 枚の舟形シートを溶着する事でその球形を形作られている。舟形シートは 3 層のナイロンを EVOH(エバル:エチレン-ビニルアルコール共重合体) で挟み込んだ 5 層構造、135 μ m のフィルムである。極性の低い気体に対する遮蔽率が非常に高いエバルをフィルムの両端に配置する事で十分な強度、透過率 (400nm の光に対して約 96%) を保ったまま外部からのラドンの混入を防止している。バルーンは KamLAND 上部のチムニー部からケブラーと呼ばれる非常に強度が高い素材で作られたロープで吊るされている。このロープはそれぞれロードセルに接続されており、重量を常に監視されている。

バッファオイル (Buffer-Oil)

Buffer-Oil はバルーンが常にその位置を保てるようにする容器の役割と、外部からの γ 線が液体シンチレータ内に侵入するのを防ぐ役割および、放射線強度の高い壁側での発光を防ぐ事でイベントレート低下させ、エネルギー閾値を下げる役割を担っている。その組成はバルーンが浮いてしまわないよう液体シンチレータより 0.04% だけ密度が小さくなるように透過率の高い N-12 とイソパラフィン を混合している (表 2.2)。イソパラフィンには昭和シェル石油株式会社製「パラオール 250」を用いている。

物質名	組成式	密度	体積組成
N-12(ドデカン)	$C_{12}H_{26}$	$0.749g/cm^3$	53%
イソパラフィン (パラオール 250)	C_nH_{2n+2}	$0.795g/cm^3$	47%
Buffer-Oil	-	$0.77690g/cm^3$	-

表 2.2: Buffer-Oil の組成

光電子増倍管 (PMT)

PMT は球形ステンレスタンクの壁面に 17-inch(1,325 本) と 20-inch(554 本) の 2 種類が取り付けられている。17-inch PMT は KamLAND 実験用に新調されたもので、20-inch PMT はカミオカンデで使用されていたものを改良したものである。17-inch PMT は時間分解能の低下を引き起こしていた光電面の端をマスクして遮光しているため、本体のサイズは 20-inch であるものの、光電面は 17-inch となっている。また、このおかげで 17-inch PMT ではダイノード構造を大口径に向いていたベネチアンブラインド型からよりエネルギー、時間分解能の良いラインフォーカス型を採用する事が出来るようになった (図 2.3)。

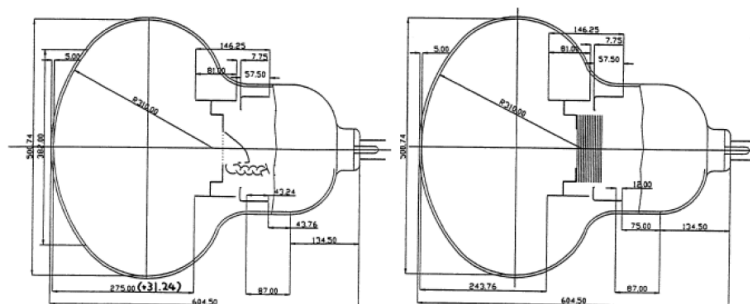


図 2.3: 17-inch PMT(左) と 20-inch PMT(右) の構造

2.2 検出原理

KamLAND では、逆 β 崩壊を利用して反電子ニュートリノを観測している。逆 β 崩壊では飛来した反電子ニュートリノが液体シンチレータ中の陽子と相互作用し、中性子と陽電子を放出する。

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow n + e^+ \quad (2.1)$$

反電子ニュートリノの反応ターゲットは液体シンチレータ中に含まれる大量のパラフィンオイル由来の水素原子である。逆 β 崩壊により放出される陽電子は液体シンチレータ中で発光を引き起こし、さらに液体シンチレータ内の電子との対消滅により放出される 2 本の γ 線によって発光する。一方、放出された中性子は周囲の原子核と弾性散乱を繰り返しながら、室温における原子の熱運動と熱平衡状態に達した熱中性子と呼ばれる中性子となり、 $210\mu\text{s}$ の寿命で陽子に捕獲される中性子捕獲反応を起こし γ 線を放出する (式 2.2)。熱中性子の運動エネルギーは 0 と近似して良く、エネルギー保存則から、放出される γ 線は 2.22MeV と求められる。

$$p + n \rightarrow d + \gamma \quad (2.2)$$

時間と空間に相関を持ったこれら 2 つの信号について遅延同時計測を行う事によって、バックグラウンド中からの反電子ニュートリノイベントの同定を可能にしている (図 2.4)。また、 $m_p < (m_n + m_e)$ であるため、逆 β 崩壊反応が起こるための反電子ニュートリノ運動エネルギーには閾値が存在する。ここで m_p は陽子、 m_n 、 m_e は中性子、電子の質量である。相対論的効果を考慮すると、エネルギー閾値は以下のように表される。

$$E_{\bar{\nu}_e}^{\text{threshold}} = \frac{(m_n + m_e)^2 + m_p^2}{2m_p} = 1.806\text{MeV} \quad (2.3)$$

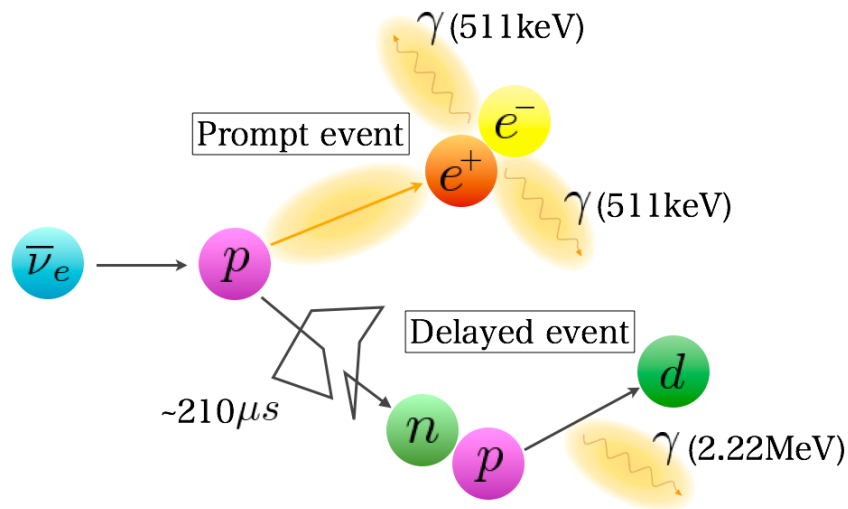


図 2.4: KamLAND における反電子ニュートリノ検出原理

2.3 KamLAND 実験の成果

KamLAND は液体シンチレータを用いているため低エネルギーのニュートリノ観測に優れており、また、世界トップクラスの低バックグラウンド環境を活かした観測により大きな成果を挙げて来た。本節では特に重要な二つの成果について紹介する。

2.3.1 原子炉ニュートリノ振動

原子炉では U や Pu の核分裂を用い、この反応から生じた熱を利用して発電を行っている。この核分裂反応の際、反電子ニュートリノが放出される。原子炉由来のニュートリノは原子炉の稼働状況からその量、エネルギーを知る事が出来るため、KamLAND 以前から盛んにその解析が行われて来た。しかし、検出器のサイズが小さいため観測が行える距離、エネルギーに制限が掛かり数 km を超える長基線測定は行われて来なかった。

KamLAND は多数の出力の高い原子炉に囲まれており、また極低バックグラウンド環境を活かす事で、ニュートリノ振動の式のパラメータである L/E について広い範囲に渡り原子炉ニュートリノ振動の精密測定を行い、2 周期分のニュートリノ振動を観測する事に成功した [14](図 2.5)。

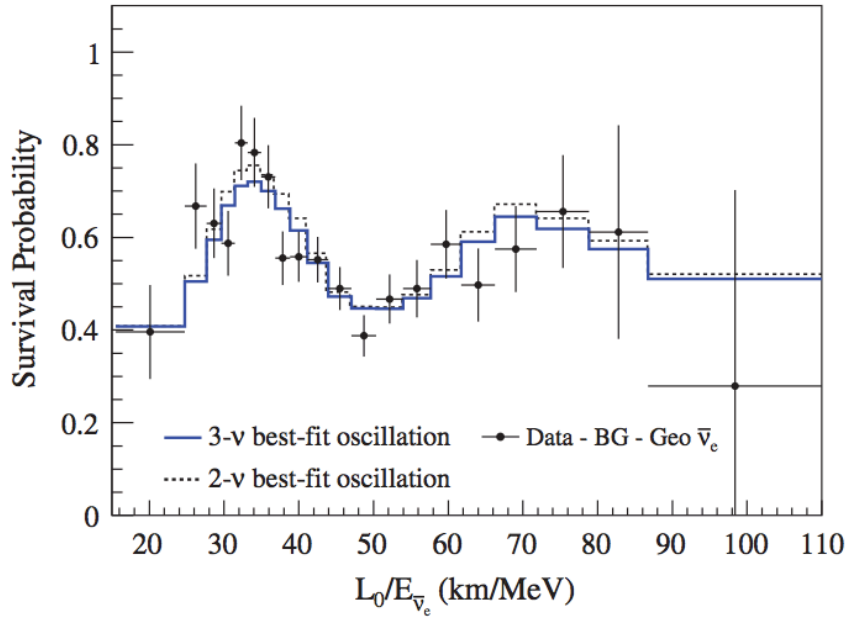
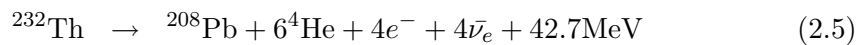
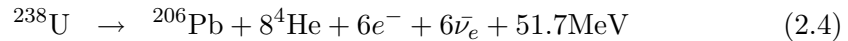


図 2.5: KamLAND による原子炉ニュートリノ振動精密測定

2.3.2 地球ニュートリノ

地球内部に存在する U, Th, K などの原子核は放射性崩壊を次々に起こし、熱を放出しながら最終的には安定な原子核へと遷移して行く (式 2.1~3)。



地球の放射性崩壊による熱生成に関しては、隕石の成分分析や地質学による調査などから様々なモデルが提唱されて来たが、この地球内部の核反応は観測することが非常に難しく直接的な観測はそれまでなされたことがなかった。

KamLAND は U, Th 由来の反電子ニュートリノを直接的に観測する事に成功し、また、観測された地球反電子ニュートリノの解析結果より、44TW 程と見積もられている地熱のうち約半分の 21TW が放射性崩壊による熱であると結論付けた [15](図 2.7)。この値は地球物理によって予想される値と一致しており、ニュートリノ地球物理学という新たな学問を開拓した。

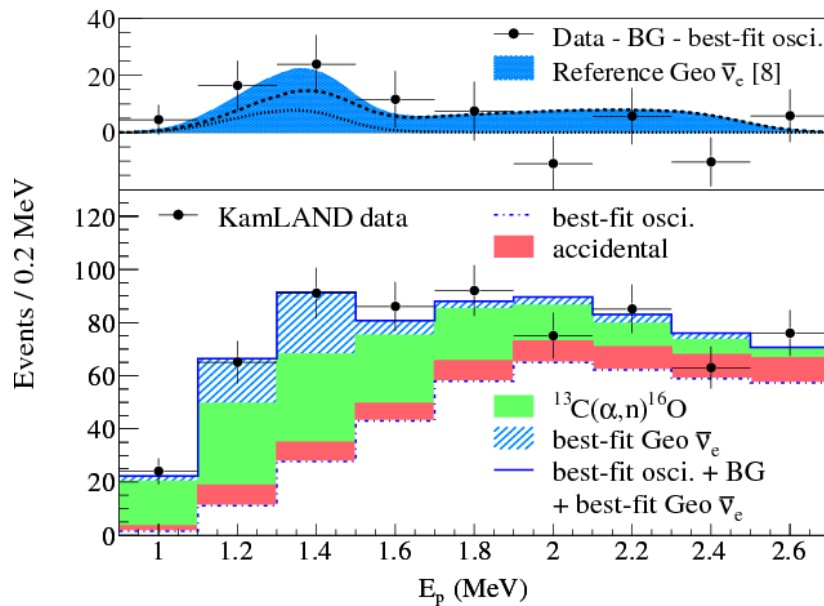


図 2.6: KamLAND による地球ニュートリノ検出

2.4 KamLAND-Zen 実験

KamLAND-Zen(KamLAND Zero neutrino $\beta\beta$ -decay search experiment) 実験は、KamLAND 検出器を用いてニュートリノレス二重 β 崩壊を検出する事によってニュートリノのマヨラナ性を証明し、質量階層構造を解明する事を目的とした実験である。本実験では二重 β 崩壊ターゲットとして数多くある崩壊核種の中から希ガスである ^{136}Xe を用いている。

2.4.1 崩壊核 ^{136}Xe

我々が KamLAND-Zen 実験において二重 β 崩壊核として ^{136}Xe を用いるのには以下のような理由があり、KamLAND に適した崩壊核であると言える。

- ・ Q 値が比較的高く、 $2\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期が長い
- ^{136}Xe は Q 値が多くの環境放射線のエネルギーよりも高く、低バックグラウンドでの観測が可能である。また、 $2\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期が長いので Q 値付近における 2ν イベントが少なく、半導体検出器と比較してエネルギー分解能が悪いシンチレーション検出器においても 0ν イベントとの区別が可能である。

- ・安定な希ガスであり、取扱いが容易かつ安全である

キセノンは化学的に安定な希ガスであるため液体シンチレータ、バルーンなどを傷付ける事なく劣化もしにくいので取扱いが容易である。

- ・液体シンチレータによく溶け、回収も容易である

希ガスは一般的に有機溶媒に溶け易いとされているため液体シンチレータに対しても多く溶解する事が出来ると期待される。また、Xeを回収、再利用する事が出来るため導入後に純化作業を行う場合や、次期計画の際に低コストを実現する事が出来る。

- ・同位体の自然存在比率が高く、濃縮法が確立されている

^{136}Xe は自然存在比が 8.87% と比較的高く、常温で気体であるため遠心分離による同位体濃縮法が確立されており、容易に高濃度の ^{136}Xe を用意出来る。また、遠心分離による他の放射性元素の除去も期待出来る。

2.4.2 検出器の改良

KamLAND-Zen 第1 フェイズでは、KamLAND 検出器バルーン内部に半径 1.58m の小さいバルーン (mini-Balloon) を用意し、その中に Xe 320kg を飽和させた液体シンチレータ (Xe-LS) を導入している (図 2.7)。

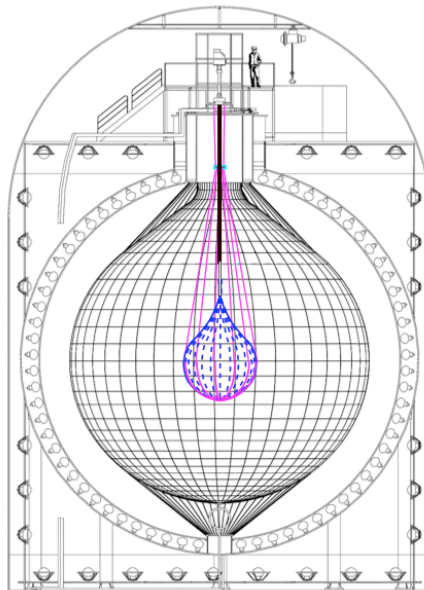


図 2.7: KamLAND-Zen 構造図

^{136}Xe 含有液体シンチレータ (Xe-LS)

KamLAND-Zen 実験で mini-Balloon 内部に導入される液体シンチレータは、KamLAND で用いられている液体シンチレータ (Outer-LS) とは組成が異なっており、Xe を飽和していない状態においてその密度が Outer-LS と比べて 3% 程軽いものとなっている。これは Xe を飽和させた際、mini-Balloon 内部と外部の密度差を小さくするためである。現在 KamLAND-Zen 実験において使用されている Xe-LS の組成は以下の通りである (表 2.3)。

物質名	組成式	密度	体積組成
N-10(デカン)	$\text{C}_{10}\text{H}_{22}$	$0.735\text{g}/\text{cm}^3$	82.3%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	$0.875\text{g}/\text{cm}^3$	17.7%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	$\text{C}_{15}\text{H}_{11}\text{NO}$	-	2.7g/l
Xe	-	-	3.0wt%
Xe-LS	-	$0.76068\text{g}/\text{cm}^3$	-

表 2.3: Xe 含有液体シンチレータの組成

主成分である N-10 は Outer-LS に使用されている N-12 同様、ニュートリノターゲットとなる水素原子数を担う透過率の高いパラフィンオイルであるが、密度を軽くする目的により密度の小さいものを使用している。発光剤である PPO は Outer-LS と比べ、 $1.36\text{g}/\text{l}$ から $2.7\text{g}/\text{l}$ と約 2 倍になっているが、これは液体シンチレータに Xe が 3wt% 溶解すると発光量が 15% 程減少してしまうため [16]、それを補う目的により増量されており、窒素飽和状態で Outer-LS よりおよそ 11% 高い発光量を持っている。

mini-Balloon

mini-Balloon は、24 枚の舟形フィルムを熱溶着して形作られた球状部とコーン状の上部より成る雫状で、Xe-LS を保持するための容器である。フィルムは強度、光透過率などの条件からナイロン製で、厚さは放射性不純物の含有量を目標値内に抑えるため $25\mu\text{m}$ となっている。また、溶接部における Xe バリアー性を高めるために 2 枚のナイロンフィルムを同時に溶着している。

2.4.3 KamLAND-Zen 実験の成果と現状

KamLAND-Zen 実験は 2011 年 9 月から稼働しており、 ^{136}Xe について $0\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期に対する下限値、ニュートリノの有効質量に対する上限値を 90% C.L. で以下

の通り求めている。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.9 \times 10^{25} [\text{year}] \quad (2.7)$$

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle < 160 \sim 330 [\text{meV}] \quad (2.8)$$

さらに、同じく ^{136}Xe を用いた $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験である EXO-200 との統計結果を足し合わせた制限は以下の通りである。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 3.4 \times 10^{25} [\text{year}] \quad (2.9)$$

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle < 120 \sim 250 [\text{meV}] \quad (2.10)$$

この結果と、GCMやNSMなど各理論値による計算結果とを比較する事で、長い間検証がなされてこなかった KK claim を 97.5% C.L. で排除することに成功している (図 2.8) [17]。

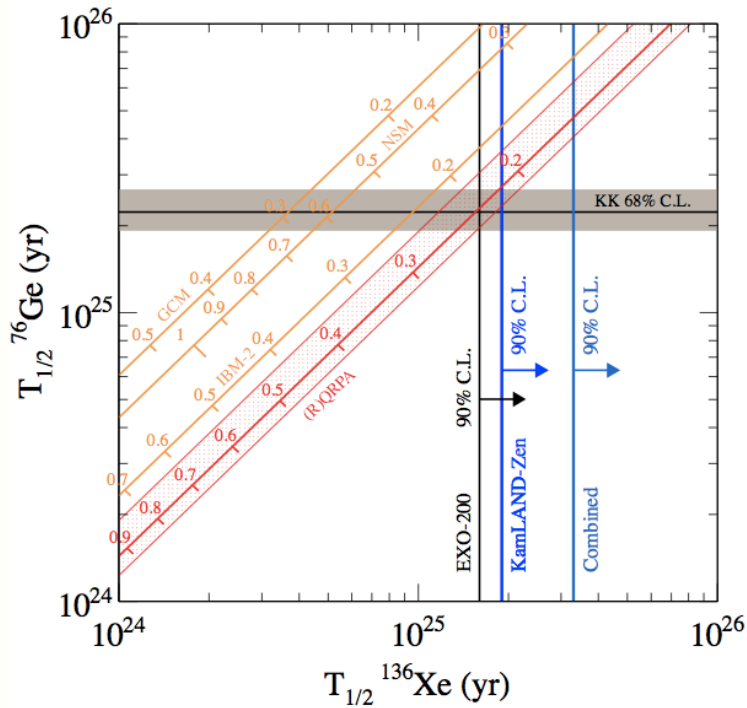


図 2.8: KK claim の排除

2.4.4 KamLAND-Zen で考慮すべきバックグラウンド

以下に KamLAND-Zen 第1 フェイズにて得られたエネルギー分布を示す (図2.9) [17]。

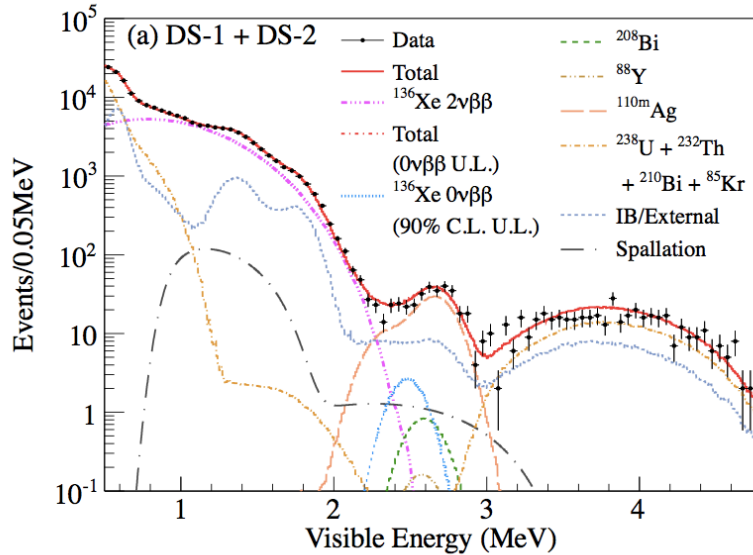


図 2.9: KamLAND-Zen 第1 フェイズにて得られたエネルギー分布

KamLAND-Zen 第1 フェイズでは既知のバックグラウンドに加え ^{110m}Ag など想定外のバックグラウンドの影響が大きかった。第2 フェイズに移行するにあたり、これらバックグラウンドに対する理解を深める事は非常に重要である。ここでは、KamLAND-Zen 第2 フェイズにおいて考慮すべきバックグラウンドについて述べる。

KamLAND-Zen における 0ν 信号領域にかかるバックグラウンドはその起源から大きく分けて、3 種類とその他に分類される。

mini-Balloon の放射性不純物 (^{214}Bi , ^{208}Tl)

mini-Balloon には自然放射線である ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K 系列の放射性不純物が混入、付着している。中でも $2.2 < E < 3.0\text{MeV}$ において分布している ^{238}U 系列崩壊核 ^{214}Bi によるイベントは 0ν 信号の大きなバックグラウンドとなっている。この ^{214}Bi イベントは現在、 ^{214}Bi の娘核である ^{214}Po の寿命が短い事を利用した親核の崩壊イベントとの遅延同時計測によるタグgingと、 ^{214}Bi の親核である ^{214}Pb の崩壊イベントの同定によるタグgingの2種類のタグgingによりそのバックグラウンドを除去している。タグgingの詳細は6章にて述べる。また、 ^{232}Th 系列崩壊核である ^{208}Tl によるイベントも $3.2 < E < 4.6\text{MeV}$ に分布し、 0ν 信号のバックグラウンドとなっている。

るが、これは放出される β 線と γ 線の同時計測により検出可能であり、よく知られたバックグラウンドである。これら mini-Balloon 由来のバックグラウンドは、放射性不純物含有量の少ない綺麗な mini-Balloon への再作製や mini-Balloon を大きくする事、また、mini-Balloon 付近のイベントをあまり使用しないように有効体積を小さくする事で低減する事が出来る。

Xe-LS 中の放射性不純物 (^{208}Tl)

Xe-LS は mini-Balloon 内にインストールされるまで蒸留作業やフィルターに通すなど不純物を取り除く努力がなされているが、それでも自然放射線の混入は防ぎきれない。しかし、mini-Balloon と異なり輸送中に付着した可能性などが無い分、その寄与は小さく無視出来るものとなっている。

宇宙線ミュオンによる原子核破碎生成核 (^{10}C)

KamLAND は神岡鉱山地下 1,000m に位置し、大部分の宇宙線を岩盤により遮蔽した極低バックグラウンド環境を実現しているが、それでも $\sim 0.3\text{Hz}$ で検出される宇宙線ミュオンにより液体シンチレータの主成分である ^{12}C の原子核破碎が起こる。 ^{12}C の原子核破碎により生成される核種で 0ν 信号領域にかかるバックグラウンドとなって来るのが ^{10}C である。 ^{10}C は図 2.9 の Spallation の線が示すように 0ν 信号領域にとって非常に深刻なバックグラウンドとなっている。現在はこの ^{10}C によるイベントを除去するために ^{10}C タギングというバックグラウンド除去手法が確立されており、その除去効率はおよそ 90% となっている。タギングの詳細は 6 章にて述べる。 ^{10}C や前項で述べた ^{208}Tl など Xe-LS 中に存在するバックグラウンドは Xe-LS の体積を減少する事で低減する事が出来る。

その他 ($^{136}\text{Xe } 2\nu\beta\beta$, ^{110m}Ag , $^8\text{B}\nu$)

前章の図 1.5 で示した通り、 0ν 信号は連続スペクトルである 2ν 信号の終点エネルギーを持つ線スペクトルとして観測される。しかし、実際はエネルギー分解能の影響により 0ν 信号は幅を持つため、 2ν 信号の 0ν 信号領域へのしみ込みは避ける事が出来ないバックグラウンドとなっている。 0ν と 2ν はエネルギーによってのみ分別する事が出来るため、エネルギー分解能の改善が非常に有効なバックグラウンド除去の手段となっている。

また、KamLAND-Zen 第 1 フェイズでは当初想定されていなかったバックグラウンド ^{110m}Ag が存在していた。この ^{110m}Ag の混入経路としては、 ^{136}Xe が地上を輸送されている間に宇宙線ミュオンにより原子核破碎を起こした可能性と、福島第一原

発の事故によって生成された ^{110m}Ag が mini-Balloon に付着した可能性がある。この ^{110m}Ag については 2012 年から 2013 年にかけて ^{136}Xe と液体シンチレータの純化作業を行う事でバックグラウンド除去を図った。

さらに、太陽内部における核融合連鎖反応により生成される ^8B が、逆 β 崩壊を起こす事で放出される電子ニュートリノも 0ν 信号のバックグラウンドとなっている。このニュートリノイベントを選択的に除去する事は非常に困難であるが、現在の mini-Balloon の体積においては無視出来る値となっている。ただし、Outer-Balloon ほどの大きさになった場合は考慮する必要が出て来る。

2.4.5 KamLAND-Zen 実験の将来計画と本研究の動機

KamLAND-Zen 第 1 フェイズでは KK claim を排除する事に成功しているものの、逆階層構造の探索に入る事は出来ていない。前節で述べた通り、KamLAND-Zen ではまだ低減する事の出来るバックグラウンドが数多く存在しており、現在 KamLAND-Zen では、第 1 フェイズで問題となっていた ^{110m}Ag を除去するための純化作業を行い、Xe 導入量を約 383kg に増加させた上で KamLAND-Zen 第 2 フェイズとして順調にデータ収集を行っている。また、バックグラウンドの増加を抑えながら、もしくは減少させた上で Xe 導入量を増加させる事で感度向上を目指した将来計画の検討も進んでいる。検討中の計画は、現在の KamLAND-Zen の延長上にあるものから大掛かりな検出器の改造を伴うものまで数種類ある。本節では検討中の計画を紹介すると共に、本研究の動機について述べる。

KamLAND-Zen 600kg フェイズ

このフェイズは mini-Balloon を綺麗で大きいものに作り替える事で、mini-Balloon が含有する放射性不純物を低減させながら Xe 導入量を現在の約 383kg から 600kg に増加させようというものである。第 1 フェイズで最も大きなバックグラウンドとなっていた ^{110m}Ag を純化作業により低減した第 2 フェイズでは、mini-Balloon 由来の ^{214}Bi が深刻なバックグラウンドとなる。このフェイズでは、 ^{214}Bi のバックグラウンドイベントを mini-Balloon の放射性不純物含有量を少なくし、さらに Xe-LS の体積を大きくする事で Xe-LS に対する mini-Balloon の表面積を小さくし低減する。しかし、 ^{10}C や ^8B など体積膨張に伴うバックグラウンド増加が避けられないのが欠点である。また、mini-Balloon を大きくするものの、材料であるフィルムの強度は同じであるため、mini-Balloon 内外の液体シンチレータの密度差に起因する圧力をより小さくする必要はある。

600kg フェイズは KamLAND-Zen 第 2 フェイズの次のフェイズとして稼働する事

が決定しており、現在 Xe の調達や mini-Balloon 再作製の準備などを進めている最中である。

以下に 600kg フェイズ以降のフェイズとして検討されている計画について述べる。

KamLAND-Zen 800kg フェイズ

このフェイズは mini-Balloon をさらに大きく新しいものに作り替える事で、Xe 導入量を 800kg まで増加させようというものである。mini-Balloon 由来のバックグラウンドを低減しながら Xe 導入量を増加出来るという利点と、体積膨張に伴うバックグラウンド増加が避けられないという欠点は 600kg フェイズと同様であるが、800kg フェイズでは mini-Balloon がさらに大きくなるため、より精密な密度コントロールを行う必要がある。具体的には現在の mini-Balloon 内外の最大密度差は 0.1% 未満であるが、800kg フェイズでは 0.05% 未満にしなければならない。

現在、mini-Balloon は KamLAND 検出器の中心部水深 10m に位置しており、周りの液体シンチレータの密度を考慮すると 1.8 気圧の環境下にある。KamLAND-Zen 第 1 フェイズでは Xe を 1 気圧飽和した Xe-LS をこの加圧環境下に導入した事で圧縮され、密度が重くなってしまい、mini-Balloon とロードセルに想定外の負荷を掛ける結果となってしまった。800kg(600kg) フェイズでも同様に、Xe1 気圧飽和 Xe-LS を加圧環境下に導入する計画となっている。本研究では mini-Balloon 内外の密度差に起因する圧力をより小さくするために加圧環境下における Xe 溶解 Xe-LS の密度の振る舞いを調べた。詳細は 3 章で述べる。

KamLAND-Zen 加圧フェイズ

このフェイズは mini-Balloon の置かれている加圧環境を利用する事で mini-Balloon を現在の大きさから変更する事なく Xe 導入量を増加させ、高い S/N 比による高感度の探索実験を行おうというものである。mini-Balloon の大きさを変更しないため Xe-LS の体積に比例する ^{10}C や $^8\text{B}\nu$ などのバックグラウンド増加を抑える事が出来る。しかし、mini-Balloon に由来するバックグラウンドも低減する事は出来ないため、引き続きタギングなどによるバックグラウンド除去の努力が必要である。

また、このフェイズでは Xe-LS の体積を変更する事なく Xe の導入量を増加させるため、mini-Balloon 内部の密度は外部より重くなってしまう。そのため mini-Balloon 内外の密度差に起因する圧力により mini-Balloon が破損してしまうのを防ぐため、液体シンチレータを変更する必要がある。本研究ではこの新しい液体シンチレータの開発とその性能評価を行った。詳細は 4~6 章で述べる。

KamLAND2-Zen

このフェイズは検出器の改造を行うことにより 2ν 信号の 0ν 信号領域へのしみ込みの影響を低減するために必要なエネルギー分解能の向上を図ろうというものである(図 2.10)。エネルギー分解能の向上は集光量を増やす事で実現する事が出来、集光量増加に向けて以下のような改造が行われる計画となっている。

- ・崩壊核数の増加による寿命の感度向上を図る

- ・大発光量の液体シンチレータを導入する

大発光量の液体シンチレータを導入する事で集光量の増加を図る。KamLAND2-Zen で使用される液体シンチレータの光量は現在の 1.5 倍が目標とされており、現在、シンチレータ実験において世界的に広く使用、研究されているリニアアルキルベンゼン (LAB : Linear Alkylbenzene) がその候補として挙がりその性能評価が行われている [18]。

- ・ウィンストンコーンを取り付ける

KamLAND における PMT の光電面被覆率はおよそ 34% である。集光ミラーを取り付ける事で事実上の被覆率が向上すれば、集光量は倍増する事となる。現在、20-inch PMT, 17-inch PMT 用のウィンストンコーンの形状、使用される素材が決定し、その性能評価が行われている [18]。

- ・高量子効率の PMT を導入する

光電面材料の変更と、有効光電面が 17-inch から 20-inch へと拡大する事により、量子効率が現在使用している 17-inch PMT の 21% から 29% へと向上する事が見込まれている。高量子効率タイプの PMT はベネチアンブラインド型のダイノード構造しか存在しないが、ラインフォーカス型の物も開発中である。

以上のような改良を行う事で、KamLAND2-Zen におけるエネルギー分解能は現在の 4%(2.6MeV) から 2.5% 以下へと向上し、ニュートリノ有効質量に対する感度は 5 年間の稼働で $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 20\text{meV}$ になると見込まれている。感度が 20meV まで到達すると逆階層構造まで質量構造を検証する事が出来るようになり、もし、ニュートリノの質量構造が逆階層構造であった場合、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊を発見する事が可能となる。

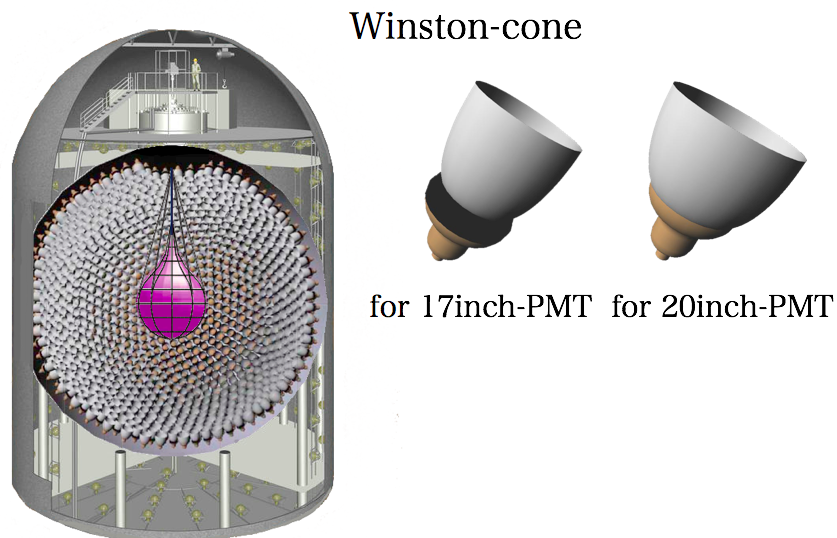


図 2.10: KamLAND2-Zen の概要

KamLAND-Zen + imaging device

^{10}C , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ などの多くのバックグラウンドは $2\nu\beta\beta$ のようなシングルイベントとは異なり γ 線を含んだマルチイベントであり、 γ 線を含んだバックグラウンドイベントは発光位置に広がりを持ったものとして検出される。このフェイズではイメージ検出器を KamLAND 中に導入する事でその広がりを捕らえ、バックグラウンドを選択的に除去し $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索の感度を向上させようというものである。原理的には可能である事が確認されており、現在は KamLAND2-Zen フェイズでの導入も視野に入れながらイメージ検出器の開発を行っている [19]。

以上、KamLAND-Zen の次期計画は複数検討されているが、本論文では、より短期間での実現性が高いと考えられる KamLAND-Zen 800kg フェイズ、および加圧フェイズにおける問題解決と研究開発についての成果について述べる。

第3章 加圧環境下におけるXe含有液体シンチレータの密度変化

3.1 概要

2011年9月KamLAND検出器の内部にmini-Balloonがインストール、Xe含有液体シンチレータ(以下Xe-LS)が導入されKamLAND-Zen実験が稼働を開始した。その際、Xe-LSはmini-Balloonが浮いてしまわないように0.035%だけOuter-LSよりも密度を重くして導入された。しかし、実際は0.1%重くなっており、mini-Balloonに想定外の負荷が掛かる結果となってしまった。この想定外の密度変化は、Xe含有液体シンチレータが、加圧環境下に置かれた事により圧縮され、体積が減少した事で引き起こされたと考えられている。mini-Balloon内外の密度差に起因する圧力を極力軽減し、安全に実験を稼働させるためにも、加圧環境下におけるXe-LSの密度の振る舞いを理解しておく事は非常に重要となる。

本章では現在KamLAND-Zenにて使用されているXe 3wt%飽和Xe-LSの密度の圧力依存性を測定を行う事で、KamLAND-Zen 800kgフェイズにおいても安全にXe-LSをインストールするための助けとした。

3.2 測定装置

液体の密度を測定する方法はいくつも存在するが、本研究では少なくとも、KamLAND-Zen稼働時に問題となったXe-LSの体積膨張圧縮効果による想定外の密度変化を余裕を持って測定出来る精度がある方法を選択しなければならない。さらに、加圧環境に耐性を持っている事が要求されるとなると密度測定方法は限られてくる。本節では上記の要求を満たす測定装置の開発過程を述べる。

3.2.1 測定装置に要求される性能

密度測定精度

Xe-LSはmini-Balloonが浮力を得て動いてしまわないようにOuter-LSより0.035%密度を重くして導入されたが、実際は0.1%重くなっていた。この密度増加はXe-LS

が加圧環境下に置かれた事により圧縮され、その体積が小さくなったためだと考えられている。この予想外の密度増加 0.065% は Outer-LS の密度が $0.77721\text{g}/\text{cm}^3$ であることから、 $5.1 \times 10^{-4}\text{g}/\text{cm}^3$ であると計算出来る。この密度変化を余裕を持って測定するためには少なくとも $1.0 \times 10^{-4}\text{g}/\text{cm}^3$ の測定精度が要求される。

圧力耐性

本研究は mini-Balloon の置かれている加圧環境、およそ 1.8 気圧の圧力下における液体シンチレータの密度の振る舞いを調べるものであるため、耐圧性を確保する事が必要である。

温度管理

実験室内の温度はおよそ 22°C である。KamLAND-Zen 実験において Xe を液体シンチレータに溶解する装置は冷却機能を持っていないものの、最高で 20°C 程度までしか上昇しない。液体シンチレータに対する Xe 溶解度の温度依存性については過去に調べられており [20]、1 気圧で飽和させた時の Xe 溶解度 (wt%) を y 、温度 ($^\circ\text{C}$) を x とすると、

$$y = \exp\left(A + B \times \frac{(273.15 - 165.1)}{x} + C \log \frac{x}{(273.15 - 165.1)}\right) \quad (3.1)$$

$$A = 0.655409 \pm 0.1649 \quad (3.2)$$

$$B = -0.00747077 \pm 0.01252 \quad (3.3)$$

$$C = -0.265653 \pm 0.1295 \quad (3.4)$$

と表す事が出来、実験室温 22°C においては KamLAND 内の温度である 15°C と比べ、Xe 溶解度がおよそ 0.3wt% 低下してしまう。本研究では Xe 溶解部から密度測定部までを $15 \pm 0.5^\circ\text{C}$ に保てるような温度管理機構を備える事を目標とした。

気密性

液体シンチレータに Xe を溶解する際、元から溶解していた空気を追い出すために一度真空引きを行うため、気密性のある容器および配管が必要である。

加圧機構

Xe の溶解度を 3wt% に保ったまま 1.8 気圧の圧力を Xe-LS に加える事は非常に困難である。通常、液体に圧力を加える手法としては窒素などによる加圧が考えられるが、その場合、分圧に比例して窒素が液体シンチレータに溶解し、その分 Xe が揮発

してしまう。また、Xeで加圧を行った場合はXeがさらに溶解してしまう事でXe溶解度3wt%を保てなくなってしまう。以上の理由よりXe-LSの加圧機構には気相部が存在しないものを考案しなければならない。

3.2.2 測定装置構造

前節で述べた条件を満たすものとして、以下のような測定装置を考案した。

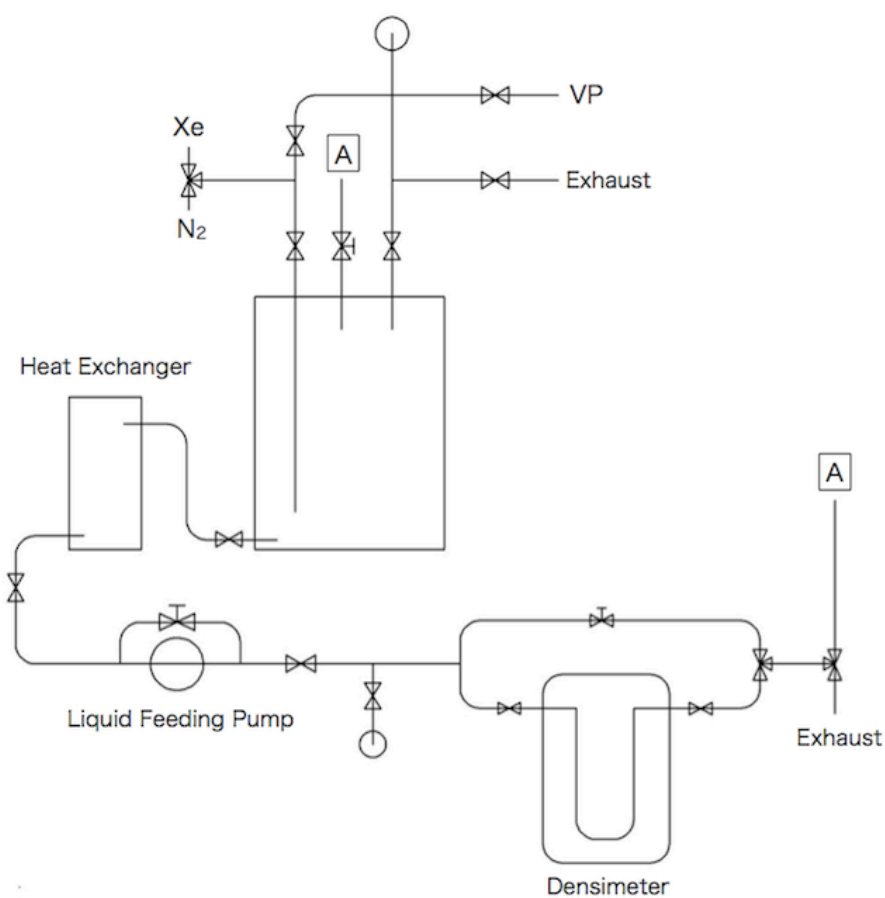


図 3.1: 測定装置の概略図

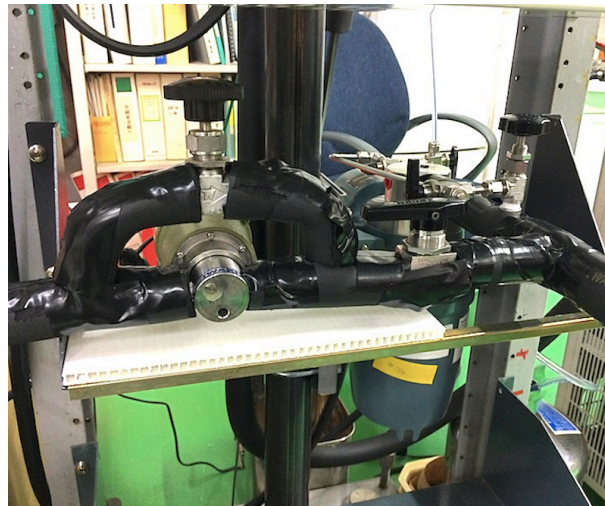
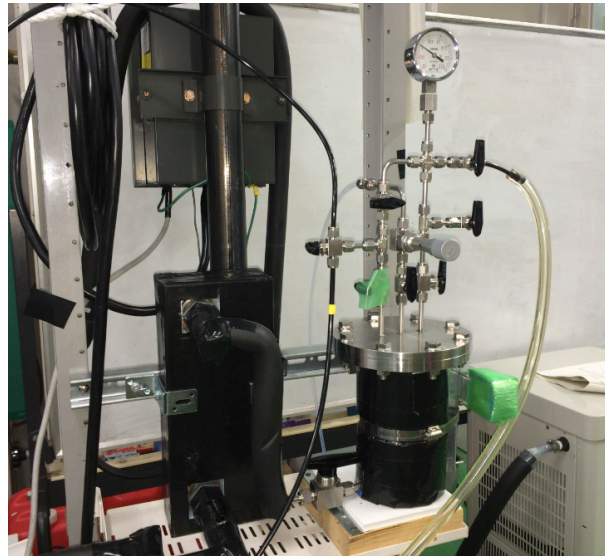


図 3.2: LS 容器と熱交換器 (上図) と 送液ポンプとミニフローライン (下図)

密度計

密度計は測定法によっていくつかの種類に分類されている。

浮子式密度計は浮ひょうの浮き沈みから液体の密度を測定するもので、構造が簡単かつ精密測定が可能という特徴を持っている。しかし、浮ひょうの位置を目盛りの目視により測定する形式であり、要求される測定精度を達成するのは不可能である。また、この測定法では気相部が存在してしまうため、Xe-LS の Xe 溶解度を 3wt% に保ったまま 1.8 気圧の圧力を加える事が不可能であるため本実験に用いるには不適切である。

放射線式密度計は γ 線が液体を透過する際の減衰がその液体の密度により変化する事を利用し測定するもので、既存の配管に外部から取り付ける事が出来るため、耐圧性などの他の要求を満たした装置を先に設計する事が可能である。しかし、測定精度は $1.0 \times 10^{-3} \text{g/cm}^3$ と要求精度に届かず、また、非常に高価であるため本実験に導入するのは困難と判断された。

振動式密度計はU字管の固有振動数が試料を含めたU字管の質量により決定される事から密度を測定するもので、非常に高精度での密度測定が短時間で行え、温度校正機能が付いているという特徴を持つ。耐圧性を備えたタイプが存在する事からも要求を満たせるものと判断し、本実験では振動式密度計を採用する事とした。使用する密度計は横河電機株式会社製振動式液体密度計 DM8 である (図 3.3)。

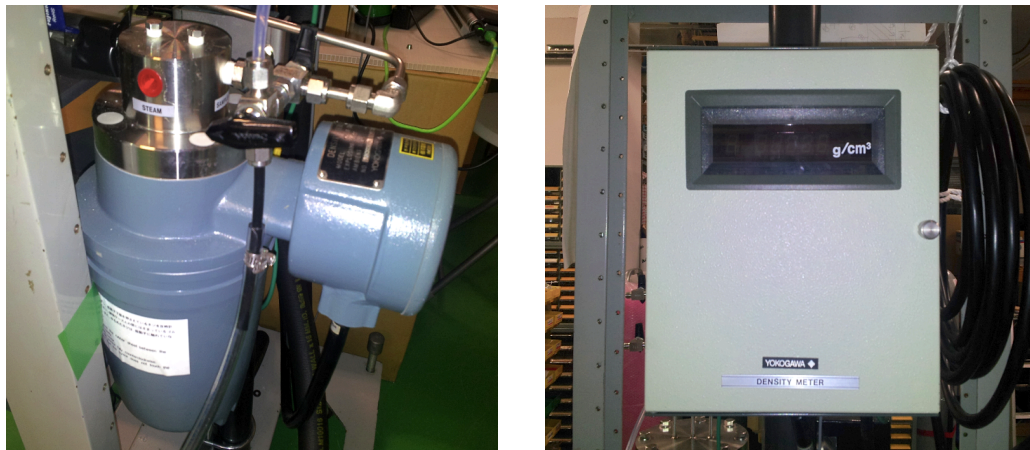


図 3.3: 振動式密度計 DM8(左図) とその表示板 (右図)

測定液圧力は 2.0MPa までと、使用圧力である 0.18MPa を十分に超えるものとなっている。また、 $1.0 \times 10^{-4} \text{g/cm}^3$ まで表示板には値が表示され、要求を満たすものであるが、固有振動数を測定することで得られた電圧を LabView にて読み込む事で $1.0 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ まで値を知る事が出来るようにした。

温度管理、気密性

温度管理については冷却水循環装置と熱交換器を使用することにより、目標である $15 \pm 0.5^\circ \text{C}$ を維持出来るようにした。また、装置の気密性についてもヘリウムリークチェックにより問題ない事が確認された。

加圧機構

真空引き、Xeの溶解作業があることからXe-LS作製部には気相部が必ず存在してしまうため、加圧、密度測定部はXe-LS作製部と切り離された構造でなければならない。本実験装置では、作製したXe-LSを密度測定部に送液ポンプで送液する際、密度計からの出口を絞る事でXe-LS作製部内のXe分圧を1気圧に保ったまま、密度計内のXe-LSに圧力を加える事を可能とした。

3.2.3 密度計キャリブレーション

本実験において使用している振動式密度計は横河電機株式会社立ち会いのもと、密度とその時の固有振動数測定により得られる電圧に関してキャリブレーションを行っている。しかし、本実験ではより精密な測定を行う目的で、得られた電圧をLabViewにて読み込んでいる。また、測定を行う密度の範囲はXe溶解前のXe-LSの密度(およそ 0.760g/cm^3)からXe溶解後の加圧により増加した密度(およそ 0.778g/cm^3)までと比較的狭くなっている。そこで、LabViewにて読み込んだ電圧と密度に関して再度精密なキャリブレーションを行う必要がある。本節ではLabViewにて得られたデータの取り扱いとそれを踏まえた上での密度計キャリブレーションについて述べる。

まず、以下にLabViewのデータ取得画面と実際にXe-LSの密度を測定した時のデータを示す(図3.4)。



図 3.4: LabView にて得られた密度情報

図 3.4 の通り、測定された密度の値は周期的に振動している事が分かる。これは振

動式密度計が取得した電圧情報自体が持っている振動によるものであり取り除く事は出来ない。そこで、値が安定した時の1周期に関して、値の平均を取ったものをその状態においてLabViewが取得した値とする事とした。取得したデータは既に記述した通り周期的に振動しているが、その大きな周期振動以外にも細かく値が変動している。その細かい変動による値の不確定性を評価するため、以下のように誤差を考慮した(図3.5)。

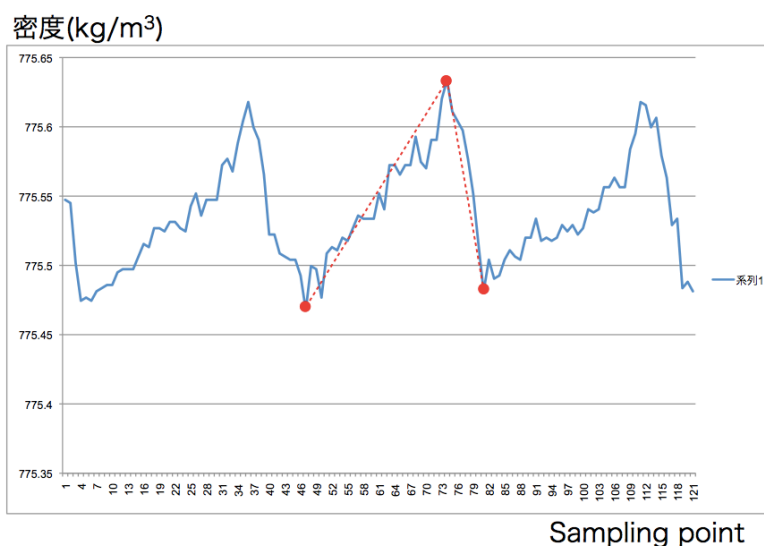


図 3.5: 誤差の評価方法

図 3.5 において赤い点で示した、値を求める際に使用した1周期に関してその始まりとピーク、終わりの3点を通る線の平均値を求め、その値と測定値との差を本実験における誤差と定義した。

以上のデータ解析方法を用いて振動式密度計から得られる電圧と密度についてキャリブレーションを行った。密度計は内部の液体の粘性によってその測定値が変化してしまうため、キャリブレーションには実験に用いる Xe-LS と同様の構成素材である、N-10 と PC の配合割合を変更する事で密度を調整した液体を用いる事とした。

以下にキャリブレーションの結果を示す(図 3.6)。フィッティングに用いた関数は $f(x) = p_0 + p_1x$ である。ここで、キャリブレーションに用いた卓上振動式密度計は KamLAND、KamLAND-Zen の液体シンチレータの密度測定に用いるもので、 $1.0 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ の精度で密度を測定出来る装置であるが、圧力耐性がない事と気密性がない事から本実験での使用が見送られている。

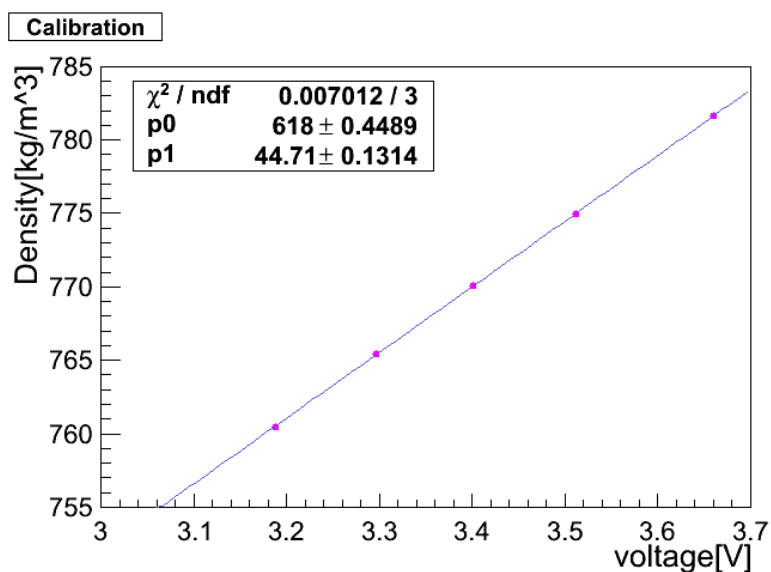


図 3.6: 密度計校正

3.2.4 測定手順とデータ解析方法

本節では本実験の測定手順と、Xe が溶解した事により生じた取得データの取り扱い方法の変更点について述べる。これより、便宜上 Xe の溶解していない Xe-LS を N10-LS、Xe を 1 気圧で飽和させた Xe-LS を Xe-LS と呼ぶ事とする。

まず、以下に本実験の測定手順を示す。

1. N10-LS を作製し容器内に入れ、密封する
2. N10-LS を循環させ、Xe 溶解前の密度を測定する
3. N10-LS 内に溶存している空気を脱気するため真空引きを行う

真空ポンプは液体シンチレータに対して耐性を持っていないため、N10-LS が逆流してしまわないように液中に挿入されているパイプのバルブが閉じている事を必ず確認する。振動式密度計は肉薄の U 字管の固有振動を検出する事で精密に密度を測定するものであるため、U 字管が変形してしまわないようになるべく負圧にならないようにしなければならない。そこで密度計内の N10-LS の脱気は、密度計出口のバルブを絞りを、送液ポンプにより圧力を加え正圧を保ちながら真空引きする事とする。

4. 真空ポンプを止め、放置する

N10-LS 内に空気が溶存していた場合、液中からその空気が出てくる事で装置内

の圧力が上昇してくるため、もう一度真空引きを行う。真空ポンプを止めて時間が経っても圧力が上昇して来なくなるまでこの操作を繰り返す。

5. Xe を溶解する

装置内の温度が $15 \pm 0.5^\circ\text{C}$ を保っている事を確認し、装置内の圧力が 1 気圧になるまで Xe を流し、放置する。Xe が N10-LS に溶解すると装置内の圧力が低下するので、その際は適宜 Xe を追加する。時間が経っても装置内の圧力が 1 気圧から低下しなくなれば Xe-LS の作製が完了となる。

6. Xe-LS を循環させ、密度を測定する

Xe-LS の密度測定は装置内の温度が $15 \pm 0.5^\circ\text{C}$ において安定したのを確認し、加わえた圧力を記録した上で密度測定を行う。

7. 密度計出口のバルブを絞り密度計内の圧力を調整し、その時の密度を測定する。

8. Xe-LS に加える圧力が比較的安定している 0.15MPa 付近まで圧力を加えながら数点について測定を行う。

以上の手順で Xe-LS の密度測定を行う。取得データの解析については測定値の決定方法や誤差決定方法など基本的にはキャリブレーション時に行った方法と同様であるが、Xe を溶解した事により生じた問題がいくつかあり、測定値の決定に使用出来る周期に制限が掛かっている。以下に Xe-LS の密度を測定した時の取得データを示す (図 3.7)。

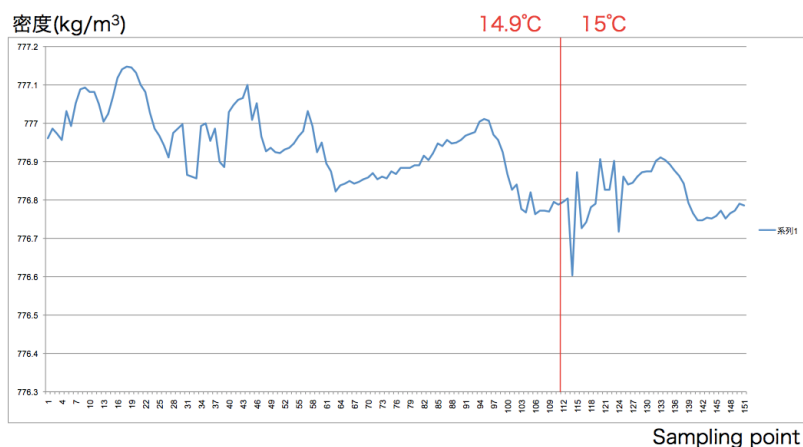


図 3.7: Xe 溶解状態 Xe-LS の密度測定データ

本実験にて使用している振動式密度計は校正液を基準とした温度校正機能が付いており、測定した密度を 15°C における値に変換して電圧を出力している。そのため N10-LS など通常の液体に関しては実際の液温を 15°C に合わせる事なく 15°C にお

る値を測定する事が出来る。しかし、Xe-LS に関しては、図 3.7 に示した通り、温度が上昇するにつれて溶解していた Xe が抜けてしまい、密度が軽くなっている事が分かる。そのため、Xe-LS について測定する際は、実際に液温を 15°C にする必要がある。さらに、図 3.7 に赤線で示した 14.9°C から 15°C への温度上昇を境に値が不安定になっているのが分かるが、これは温度が 15°C 以上の状態から冷却して測定を行った場合も、15.1°C から 15°C に温度低下した際に確認されてるため、密度計が測定値を 15°C における値に校正する場合と、温度校正を行う必要のない場合で取得した電圧情報に掛けられる因子が変化するためだと考えられる。

以上を考慮して、Xe-LS の密度を測定する際は液温を 15°C 以下に冷却した状態から温度を上昇させ、15°C 境界において値が不安定になる直前の 14.9°C における 1 周期を測定値決定に使用する事とし、その 1 周期が不安定であった場合は再度測定を行う事とした。

3.3 実験結果

以下に前節で決定した測定手順、データ解析方法を用いて Xe-LS 密度の圧力依存性について測定した結果を示す (図 3.8)。

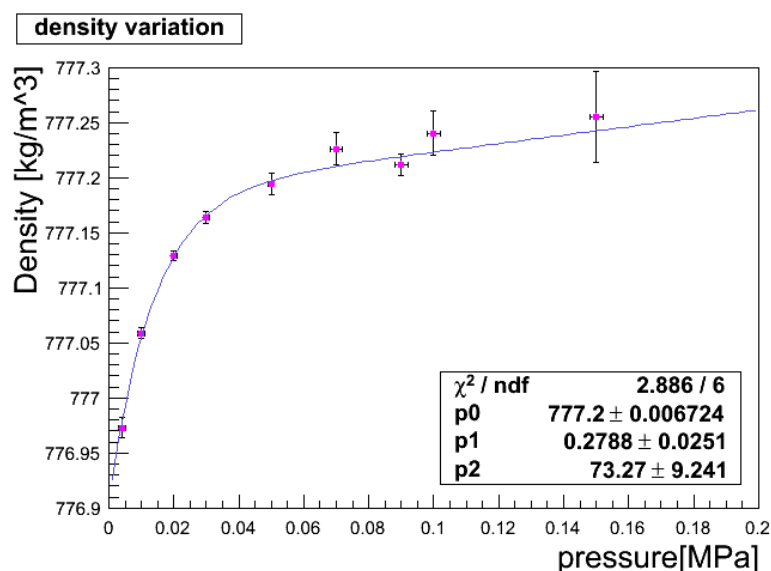


図 3.8: Xe 溶解状態 Xe-LS の密度の圧力依存性

図 3.8 のように、Xe-LS の加圧による密度増加現象を確認する事が出来た。さらに、密度増加率の圧力依存性を調べるため、以下のように値を変換する。

Xe-LSの密度は低圧による加圧でも大きく増加してしまう傾向にあるため、密度増加率の圧力依存性を調べるためには加圧されていないXe-LSの密度を知る事が必須である。しかし、Xe-LSは装置内を循環する際、送液ポンプのミニフローラインを全開にしてもおよそ0.004MPa程度の圧力が加わえられている。この送液ポンプによるXe-LSの加圧は循環させながら密度を測定する装置の機構上避けられないため、加圧されていないXe-LSの密度は測定する事が出来ない。そこで、本実験では図3.8で求められたデータをフィッティングし、求められた関数から加圧されていないXe-LSの密度を求める事とした。通常、ほとんどの液体は非圧縮性流体として考える事が出来、N10-LSについても同様である。しかし、本実験においては $1.0 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ の精度での測定を必要としているため、溶解しているXeの圧縮による密度増加とは別に溶媒であるN10-LSの圧縮による密度増加も考慮しなければならない。N10-LSの圧縮率を通常のオイルと同等の $5.0 \times 10^{-10} [\text{Pa}^{-1}]$ と仮定すると、N10-LSを1MPa加圧する毎に体積が 5.0×10^{-4} 倍分だけ圧縮され、密度に直すと、 $(\frac{1}{1-5.0 \times 10^{-4}} - 1) \times 100 = 0.05\%$ 増加する事となる。N10-LSの密度は測定の始めに測定してあり、今回の場合は $763.716 \pm 0.0173 \text{kg/m}^3$ と求められているため、1MPaの加圧毎に 0.3818kg/m^3 ずつその値が増加する事になる。これを考慮し、また、溶解しているXe量は溶媒と比較し十分少なく、高圧になるほどXeが圧縮される事による密度増加の全体に与える影響は小さくなっていくと考え、フィッティングに用いた関数は $f(x) = p_0 - p_1 \exp(-p_2x) + 0.3818x$ とした。

以下にフィッティングにより求められた加圧されていないXe-LSの密度を基準とした時の密度増加率と、加えた圧力の関係を示す(図3.9)。フィッティングに用いた関数は、N10-LSが1MPaの加圧毎に0.05%密度増加を起こす事から $f(x) = p_0 - p_1 \exp(-p_2x) + 0.05x$ とした。赤い線はN10-LSの圧縮による密度増加の効果を表す項 $f(x) = 0.05x$ である。

図3.9より、0.06MPa以下の低圧領域においては溶解しているXeの圧縮による密度増加が支配的であるが、それ以降の圧力領域においてはXeの圧縮される体積は小さくなりN10-LSの圧縮による効果が見えるようになって来ている。フィッティングの結果から溶解しているXeによる密度増加率の最大値は0.035%程である。また、ここで、誤差が大きくなっているのは加圧されていないXe-LSの密度の決定誤差を含んでいるためである。

再現性の確認のため、同様の実験を行った結果を以下に示す(図3.10)。赤い線が追実験の結果である。

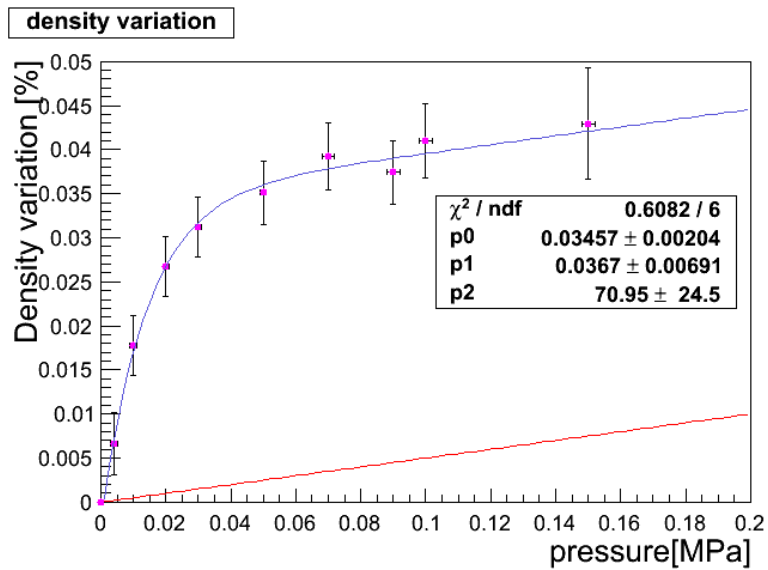


図 3.9: Xe-LS の密度増加率の圧力依存性

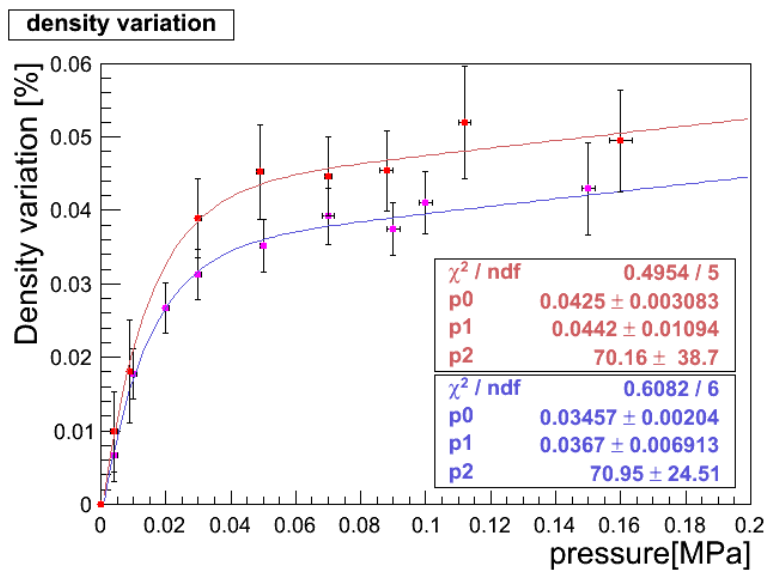


図 3.10: Xe-LS の密度増加率の圧力依存性の比較

低圧では Xe 圧縮による密度増加の影響が顕著であり、高圧では N10-LS 圧縮による密度増加の影響が現れて来る傾向は再現されているが、Xe 圧縮による密度増加率の最大値には若干のずれがある事が確認された。原因として考えられるのは、密度増加率を計算する際に使用した、基準となる加圧されてない Xe-LS の密度である。加圧されていない Xe-LS の密度は記述した通り、測定する事が出来ず、密度の圧力依存性データのフィッティングにより求められている。このフィッティング結果により密度増加率の最大値は大きく変化してしまう。

フィッティングにより求められる加圧されていない基準密度の変化が密度増加率に及ぼす影響を調べるため、実験結果の低圧2点について、加えた圧力の値を誤差の範囲内である 0.001MPa だけずらして密度増加率を求めた。以下にその結果を示す (図 3.11)。赤い線が圧力ずらしにより基準密度を変化させた結果である。

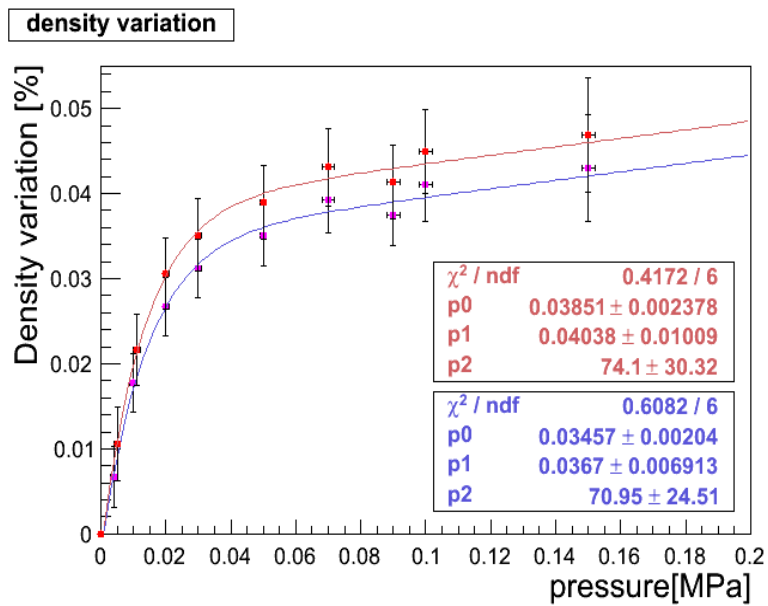


図 3.11: 密度増加率に対する基準密度変化の与える影響

低圧の2点の圧力を誤差の範囲内である 0.001MPa ずらしただけで Xe による密度増加率の最大値はおよそ 0.004% 上昇した。このように圧力管理の正確性により密度増加率の値は幅を持つ事が判明した。しかし、KamLAND-Zen 実験稼働時に起きた 0.08MPa 加圧環境下における 0.065% の密度増加と隔たりのあるものと同じオーダーの結果を得る事が出来た。これから圧力、温度管理の対策を施す事でより精密な結果が得られると考えられる。

3.4 まとめ

本章では、KamLAND-Zen 実験稼働時における Xe-LS インストールの際に起きた想定外の密度増加の原因であると考えられる加圧環境を再現し、加圧による Xe-LS の密度の振る舞いを調べた。

結果は図 3.9 に示した通り、0.06MPa 以下の加圧においては溶解している Xe の圧縮による密度増加が顕著であり、それ以降は Xe の圧縮による密度増加の影響は小さくなり、N10-LS の圧縮による効果が現れるという傾向がある事を明らかにした。この傾向は同様の実験を行い、確かである事が確認出来ている。Xe-LS 圧縮による密度増加率は KamLAND-Zen 実験稼働時に問題となった想定外の密度増加の値と隔たりがあるものの、同じオーダーのものを再現する事に成功しており、今後 ^{136}Xe を用いて追実験を行うのに十分な装置の開発、及び測定手順の確立が出来たと考えられる。

これからは測定結果の不定性を減らすべく、より精密な温度、圧力管理が必要となって来る。また、本実験で使用している Xe は KamLAND-Zen 実験で使用されている ^{136}Xe ではなく、分子量の異なる ^{nat}Xe であるため、実際に ^{136}Xe を用いて実験を行う必要もある。

第4章 加圧フェイズに向けた新しい液体シンチレータ開発I

4.1 概要

KamLAND-Zen 加圧フェイズは mini-Balloon が KamLAND 検出器の中心部水深 10m に位置し、周りの液体シンチレータから約 1.8 気圧の圧力を受けている事に注目し、その加圧環境を利用することで mini-Balloon を大きくする事なく大量の Xe を溶解した高感度実験を行おうというものである。現在 KamLAND-Zen では Xe を大気圧で飽和させた Xe 3wt% 含有 Xe-LS を使用している。過去の研究により Xe はヘンリーの法則に従って液体シンチレータに溶解する事が分かっており、1.8 気圧の加圧環境下においては 1.8 倍、即ち 5.4wt% の Xe を溶解する事が可能となる [21](図 4.1)。

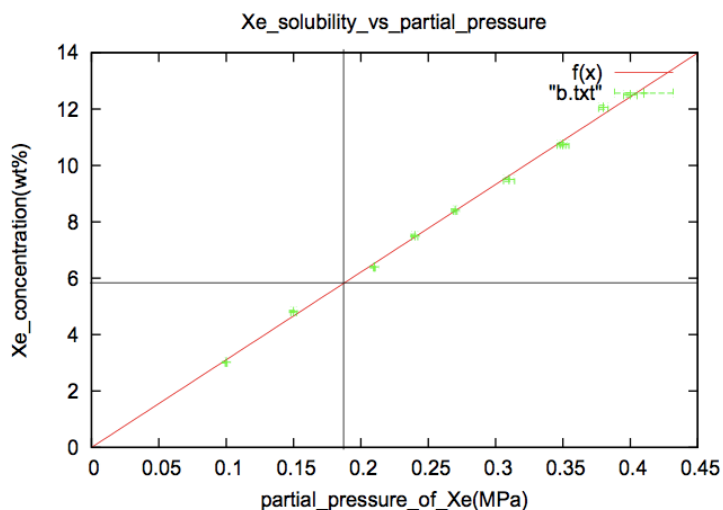


図 4.1: Xe 溶解度の圧力依存性 [21]

しかし、Xe がより溶解する事で Xe-LS の密度が増加する事は明らかであり、単純に現在の Xe-LS を加圧フェイズの液体シンチレータとして用いると Outer-LS との密度差より、mini-Balloon への負荷が増加し破損してしまう恐れがある。また、Xe 溶解量が増加すると発光量が減少してしまう事も過去の研究より分かっている [21](図 4.2)。

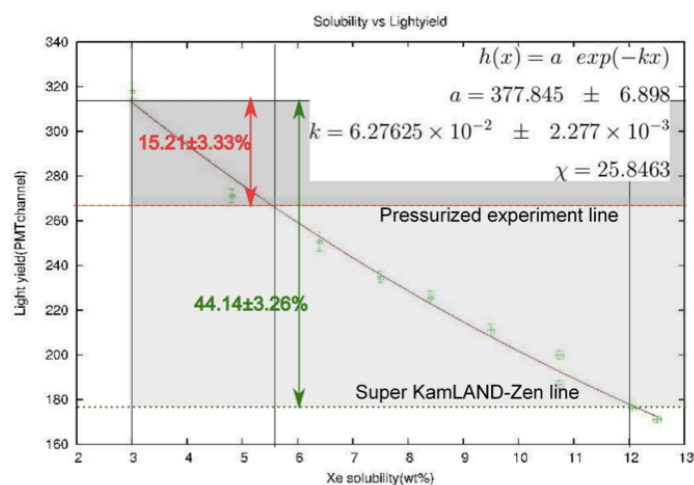


図 4.2: 発光量の Xe 溶解度依存性 [21]

Xe 溶解量増加により大きくなる密度を抑える目的で Xe-LS の配合割合を変更した場合、密度の重い PC の割合を減らさなければならなく、発光量は回復するどころか減少方向へと向かってしまう事になる。本研究ではこの密度増加と発光量低下の問題を解決すべく、十分な集光量を持ち、Xe 5.4wt% 溶解状態において Outer-LS との密度差を最小限に抑えるために密度を軽くした新しい液体シンチレータの開発、評価を行った。

4.2 液体シンチレータへの要求と素材選定

新しい液体シンチレータを開発するにあたり要求される事は多く、今回重視している密度の軽さや集光量に関する発光量や透過率の他にも、Xe 溶解度が高い事などがある。以下に本液体シンチレータ開発において要求される項目を挙げる。

密度

密度はこの素材選定において最も重要なパラメータである。Xe 溶解量増加に伴って重くなる液体シンチレータの密度を、Outer-LS との密度差が $\Delta\rho/\rho < 0.1\%$ に収まるように合わせるには、使用する素材を密度の軽いものにしなければならない。加圧フェイズにおいても液体シンチレータの発光能力を高める溶媒としてはコストの面を考慮して、現在と同様 PC を用いる予定なので、Xe-LS に使用されている希釈剤である N-10 をより密度の軽い希釈剤に変更しなければならない。

発光量

すでに記述した通り、液体シンチレータに Xe を溶解すると発光量が減少する事が判明している。具体的には、Xe-LS は窒素飽和状態 (N10-LS) から Xe を 3wt% 溶解させた場合、発光量は 15% 程低下し、1.8 気圧で Xe を 5.4wt% 溶解した場合はさらに 15% 発光量が低下してしまう。また、mini-Balloon 内外で液体シンチレータの発光量に差が存在すると不都合が生じてしまう。mini-Balloon 内の発光量が mini-Balloon 外の発光量に対して低い場合、エネルギー分解能が低下し、2 μ 信号が 0 μ 信号領域にしみ込んできてしまう。逆に mini-Balloon 内の発光量が高い場合は、イベント再構成の際に見かけ上のエネルギー差が生じ、²⁰⁸Tl などのバックグラウンドが 0 μ 信号領域に入り込んでしまう。そのため、mini-Balloon 内外の液体シンチレータの発光量差は $\pm 10\%$ 以内にしなければならない。発光量には PC と PPO の量に関係しており、本液体シンチレータ開発においても十分な PC 配合割合と PPO 濃度を確保しなければならない。

透過率

透過率は集光量を向上させる上で非常に重要である。液体シンチレータによって発生したシンチレーション光は液体シンチレータ内を伝播し、PMT にて検出される。この際、シンチレーション光の損失は極力避けなければならない。そのため、希釈剤候補は PPO の発光波長である 400nm 付近に光吸収がなく、mini-Balloon 半径 (1.58m) に換算した時の透過率が N-10 と比べ十分良いものを選定しなければならない。

Xe 溶解度

1.8 気圧の加圧環境下で Xe が 5.4wt% 溶解するというのは現在の Xe-LS についての値である。新しい液体シンチレータについても Xe が同等以上溶解するものを開発しなければならない。

バルーン腐食性

mini-Balloon が破損してしまうと実験が成り立たなくなってしまうため、mini-Balloon 素材に対し化学的に腐食性および浸食性のない有機溶剤を選定しなければならない。

コストおよび調達の手易さ

10t から数 10t の液体が必要となるため、可能な限り安価、かつ大量に入手する事が可能である必要がある。

純化のし易さ

現在使用している LS の原料はすべて蒸留を用いて放射性不純物を除去している。このため、蒸留が可能なもの、もしくは他の純化方法のあるものや、元々²³⁸U、²³²Th、⁴⁰K などの放射性不純物を含んでいないものが好ましい。

現在使用されている Xe-LS は Outer-LS との密度差を合わせるために上記の要求を考慮した上で、希釈剤として N-12 の代わりに分子量の小さい同じパラフィンオイルである N-10 を使用している。本研究では N-10 と性質が似通っており、更に分子量の小さいパラフィンオイルである N-8(オクタン)と N-9(ノナン)に注目し、新しい液体シンチレータの素材として使用出来るか研究を行った。

4.3 新しい液体シンチレータの組成決定

新しい液体シンチレータの組成を決定するにあたり、重要となってくるのが密度と発光量である。密度は各素材の配合割合を変更する事で簡単に調整出来るが、その際、液体シンチレータの構成溶媒はパラフィンオイルと PC の 2 成分であるため、その配合割合は一意的に定まってしまう。PC の割合が少ないと発光量が減少してしまうため、前節で述べた要求を満たせなくなってしまう。発光量の要求を満たすためにも PC の割合は 20% 前後を確保出来ている事が前提となる。

新しい液体シンチレータの密度は Xe を 5.4wt% 溶解した時の密度増加と Xe 溶解によって引き起こされる体積膨張を考慮して設定される。Xe を 1.0wt% 溶解するごとに液体シンチレータの体積が 0.37% 膨張する事から [22]、計算より目標密度は 0.74835g/cm^3 と求められ、N-8、N-9 をベースとした新しい液体シンチレータ (以下それぞれを N8-LS、N9-LS とする) の組成が以下のように決定した (表 4.1)。

密度の制約から決定されたこれらの新しい液体シンチレータは、要求通り PC の割合を 20% 前後確保する事が出来ている。これら新しい液体シンチレータについて性能評価を行っていく。測定項目は透過率と発光量である。

N8-LS

物質名	組成式	密度	体積組成
N-8(オクタン)	C ₈ H ₁₈	0.702g/cm ³	76.2%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C ₉ H ₁₂	0.875g/cm ³	23.8%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	C ₁₅ H ₁₁ NO	-	2.7g/l
N8-LS	-	0.74835g/cm ³	-

N9-LS

物質名	組成式	密度	体積組成
N-9(ノナン)	C ₉ H ₂₀	0.717g/cm ³	83.5%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C ₉ H ₁₂	0.875g/cm ³	16.5%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	C ₁₅ H ₁₁ NO	-	2.7g/l
N9-LS	-	0.74835g/cm ³	-

表 4.1: 新しい液体シンチレータの組成

4.4 透過率測定

発光量が大きくても PPO の発光波長における光透過率が悪いと PMT に届くシンチレーション光は減少し、エネルギー分解能が悪くなってしまうため、透過率は液体シンチレータに要求される性能の中でも重要である。新しい液体シンチレータの組成について Xe-LS との違いは、密度を軽くするためにパラフィンオイルを変更した点である。パラフィンオイルは液体シンチレータにおいて透過率を向上させるための希釈剤として用いられているため、新しい液体シンチレータと Xe-LS の性能で最も変化があるのはこの透過率であると考えられる。本節では透過率の測定方法と新しい液体シンチレータの透過率測定結果について述べる。

4.4.1 使用機材

分光光度計

分光光度計にはシングルビーム型とダブルビーム型の 2 種類が存在する。シングルビーム型は液体を入れる容器であるセルが 1 つでリファレンスとサンプルの測定が行えるため、セルの個体差や、セル洗浄に起因する測定誤差がなくなるという長所がある。また、光学系が単純であるため安価である。それに対してダブルビーム型はリファレンスとサンプルの測定を同時に行えるため、時間変動に起因する不定性(液体サンプル状態、光源の安定状態)を排除する事が可能である。また、同一の光源からの光をハーフミラーにより分岐し、リファレンスセルとサンプルセルに照射しているため

測定精度が非常に高いという長所を持っている。本実験においては測定精度の良さからダブルビーム型の日立ハイテク社製日立分光光度計 U-3900 を使用する事とした。

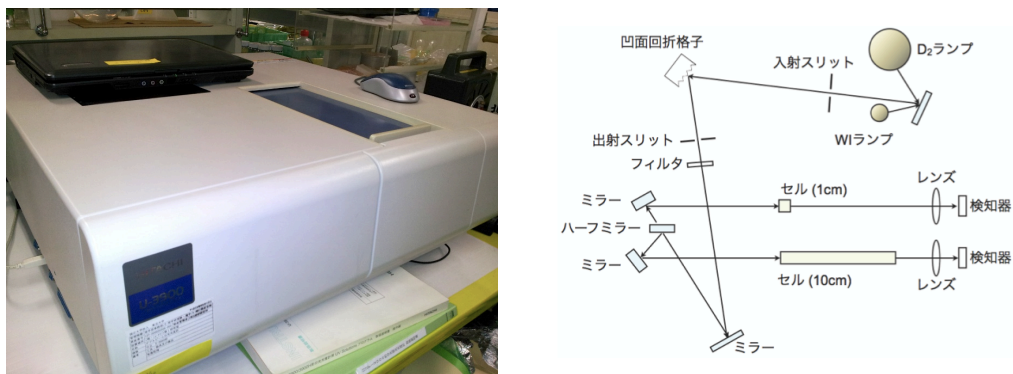


図 4.3: 分光光度計 (左図) とその構造 (右図)

セル

セルも目的に沿った種類 (材質、光路長など) を選定する必要がある。セルの材質は測定を行う波長において吸収がない事が求められ、一般的にはガラス製や石英製が用いられる。本実験では多少高価ではあるものの、広範囲に渡り吸収がなく、高い透過率を持っている石英製セルを使用する事とした。また、測定する液体シンチレータは透過率が非常に高く、減衰長が10mを超えるものである。そのためセルの光路長が短い場合、十分な吸光度が得られず比較が困難となってしまう。そこで本研究では、主に使用される10mm 光路長セルではなく、100mm 長光路長セルを使用する事とした。同じく光路長確保の理由からリファレンス用セルには10mm を使用する (図 4.4)。これら10mm リファレンス用セルと100mm サンプル用セルの2つのセルを使用する事でセル表面、裏面における光反射、吸収の影響をなくし液長90mmにおける透過率を測定する事が出来る。



図 4.4: サンプル用 100mm セル (左) とリファレンス用 10mm セル (右)

4.4.2 実験精度と測定方法

本実験における最大の誤差は人の手によるセル洗浄に起因する誤差である。セルは毎回の測定ごとに洗浄する必要があるが、セル洗浄専用の機材などは存在せず、人の手により洗浄しなければならない。この誤差については洗浄方法を毎回同一のものとし、回数をこなす事で技術を身に付ける他、低減させる方法はない。本実験においては洗浄技術を身に付ける事で $\pm 0.2\%$ の精度で測定を行う事に成功している (図 4.5)。

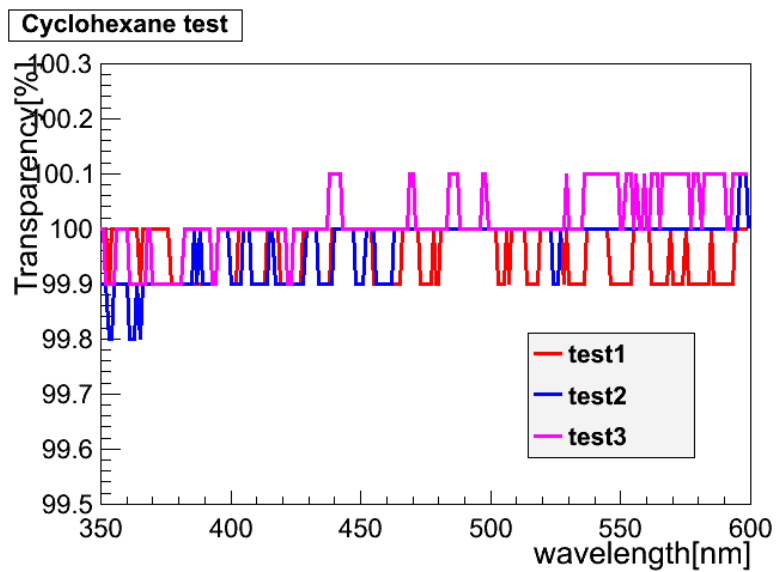


図 4.5: シクロヘキサンによる誤差検証

また、分光光度計自体にも測定誤差が存在する。測定誤差の見積りのため、光透過率が高く非常に安定している光学用シクロヘキサンを用い、セル洗浄を挿まず何度か連続測定を行った。その結果、分光光度計には $\pm 0.1\%$ の測定誤差がある事が確認され、洗浄に起因する誤差を含めて本実験では $\pm\sqrt{0.2^2 + 0.1^2} = \pm 0.22\%$ の測定誤差がある事が判明した。

以下に測定誤差を最小限に抑えるために確立した測定手順を示す。

1. 分光光度計の電源を入れ、光源安定のため30分以上運転させる
2. 光学用シクロヘキサンを用いてベースラインを取る
3. ケイドライを用いてアセトンでセルを洗浄する
4. 10mmセルは3ml、100mmセルは30mlに液量を固定してサンプルを滴下する
5. サンプル安定のため5分置いた後、測定を行う

測定ミスによる誤った結果を使用してしまわないためにも、1サンプルにつき3回の測定を行い、測定ミスがない事を確認してから3回の結果の平均値を取りサンプルの透過率測定結果とする事とした。

4.4.3 実験結果

まず、液体シンチレータの透過率を測定する前に、各液体シンチレータに使用されているMineral Oilの透過率を測定した(図4.6)。

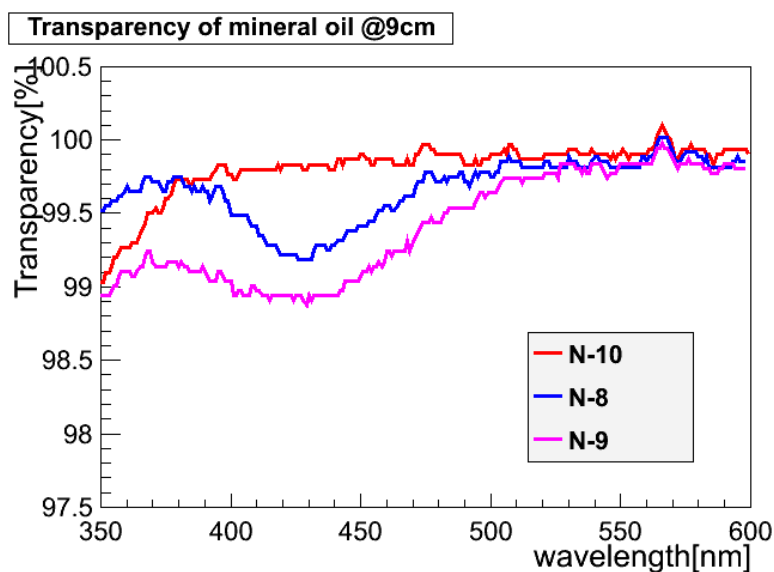


図 4.6: 各 Mineral Oil の透過率

N-8、N-9はN-10と同じパラフィンオイルであり、密度が軽いため、光透過率は良いものであると想像されたが、結果は共に波長 430nm 付近に光吸収が見られた。しかし、N-8についてはPPOの発光波長である 400nm 付近でN-10とほぼ同等の透過率を持っている事が判明した。

ここで、波長 570nm 付近において各 Mineral Oil の透過率が 100% を超えているが、これは、ベースラインとして使用しているシクロヘキサンの透過率がこの波長における Mineral Oil の透過率よりも悪いため引き起こされたものである。

以下に、各液体シンチレータの透過率を測定した結果を示す (図 4.7)。

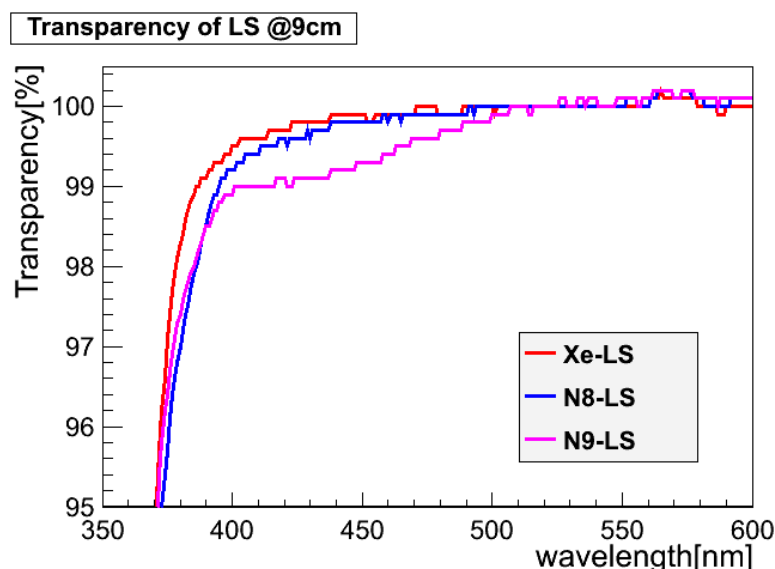


図 4.7: 各液体シンチレータの透過率

この透過率の値は液長 9cm におけるものであり、実際に mini-Balloon に導入された際、どれほど影響があるのかを考察するのは困難である。そこで、この透過率の値を mini-Balloon 半径である 158cm に変換する事で比較を行った (図 4.8)。mini-Balloon 半径長、9cm における透過率をそれぞれ $T_{158\text{cm}}$ 、 $T_{9\text{cm}}$ とすると、変換式は以下の通りである。

$$T_{158\text{cm}} = T_{9\text{cm}}^{\frac{158}{9}} \quad (4.1)$$

図 4.6 で確認された、波長 430nm 付近における N-8 の光吸収は PC と PPO を混ぜ合わせ N8-LS とした時には見られなくなっている。N9-LS については Mineral Oil と同様に波長 430nm 付近の光吸収が見られることから、N8-LS では透過率の悪い PC の割合が多いため、N-8 の光吸収が埋もれてしまったのではないかと考えられる。

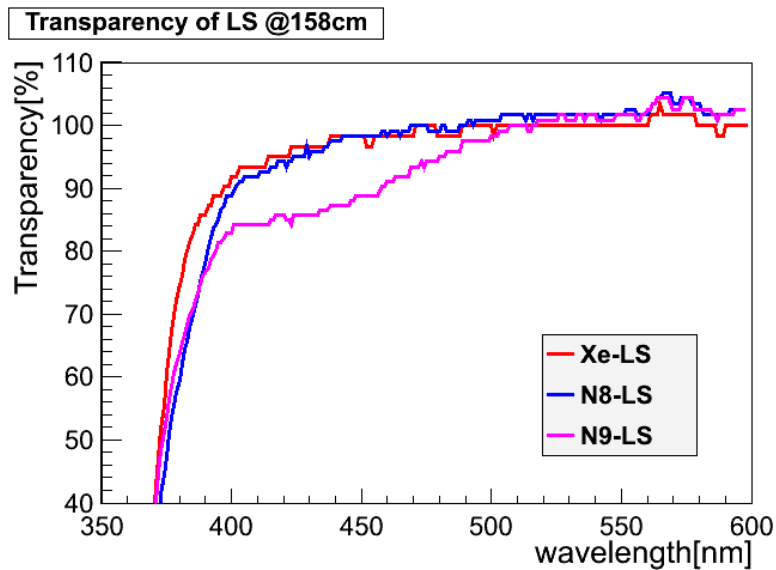


図 4.8: mini-Balloon 半径長における各液体シンチレータの透過率

PPO の発光波長である 400nm において N8-LS は Xe-LS と同等の透過率を持っている事が判明し、発光量の回復次第では加圧フェイズで使用する液体シンチレータになり得る事が判明した。

4.5 発光量測定

N8-LS は現在の Xe-LS と同等の透過率を持っている事が確認され、集光量の改善を図るためには発光量向上が必須である事が判明した。本節では新しい液体シンチレータについて、パラフィンオイルを変更し、密度を軽くした事により変化した PC の配合割合が発光量にどのような影響を及ぼすのかを測定、評価した。

4.5.1 測定原理

発光量の測定には ^{137}Cs の後方散乱を用いている。 γ 線と物質との相互作用には光电効果、コンプトン散乱と電子対生成の 3 種類が存在するが、 ^{137}Cs から放出される 662keV の γ 線と液体シンチレータの主な構成元素である炭素の反応においてはコンプトン散乱が支配的である。

コンプトン散乱は光子が電子と衝突し、エネルギーの一部を電子に与える事で電子が散乱される現象であり、入射する γ 線の持つエネルギーを E_γ 、電子の静止質量を

$m_e c^2 (=0.511\text{MeV})$ とすると、反跳電子のエネルギー E_e は以下のように書ける。

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos \theta)} \quad (4.2)$$

E_e は $\theta = 180^\circ$ (後方散乱) の時最大となり、以下のように書ける。

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2E_\gamma}{m_e c^2}} \quad (4.3)$$

本実験においては ^{137}Cs から放出された γ 線の後方散乱による 477keV の反跳電子を液体シンチレータで、後方に散乱された 185keV の γ 線を NaI シンチレータで同時計測する事でバックグラウンドを取り除き、後方散乱イベントのみの検出を可能にしている。

4.5.2 測定手法

後方散乱を検出する装置の構造を以下に示す (図 4.9)。液体シンチレータ側と NaI シンチレータ側、それぞれの PMT から検出された信号はまず 2 つに分けられる。片方は ADC を通して CAMAC に転送される生のデータであり、もう片方はコインシデンス用のゲートを作るために使用される。

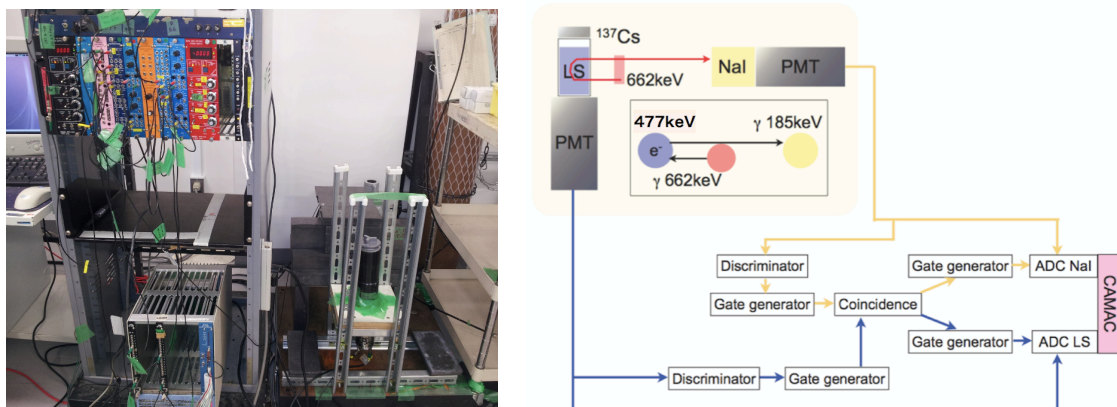


図 4.9: 発光量測定装置 (左図) とその原理、構造 (右図)

測定方法

発光量を測定する際の問題点はクエンチングである。クエンチングとは消光現象の事で、計測数の低下やシンチレーションスペクトルの変化を引き起こすため、対策を施さなければならない。クエンチングにはその発生過程によりいくつかに分類されるが、本実験にて特に注意しなければならないのは酸素クエンチングである。液体シン

チレータ中の溶存酸素に起因するクエンチングであるため、測定手法に溶存酸素を取り除く過程を組み込まなければならない。

以下に酸素クエンチングへの対策である窒素パージを組み込んだ測定手順を示す。

1. 洗浄したバイアルに測定サンプル 150ml を入れ密封する
2. グローブボックス内で窒素により 550ml/min で 5 分間パージを行う
3. バイアル表面、特に底面をエタノール洗浄し、測定装置内に入れる
4. 後方散乱により データを 7200 秒間測定する

窒素パージの時間と発光量の相関については以前に研究がなされており、液体シンチレータの体積の約 15 倍の窒素でパージを行うとクエンチングの効果が測定誤差の範囲内に収まるとの結果がある [18]。本実験では 150ml の液体シンチレータを使用するため、550ml/min で 5 分間と設定してある。

解析方法

測定データ解析によって得られる図を以下に示す (図 4.10)。それぞれのグラフについて、左上が液体シンチレータの発光イベント、右上が NaI シンチレータの発光イベント、左下が液体シンチレータと NaI シンチレータの発光イベントの相関を示している。発光量を求める解析に使用するのは液体シンチレータの発光イベントのグラフであり、横軸が発光量に相当する ADC-channel 数を、縦軸に 2bin ごとのイベント数を取ったものである。ペDESTALを差し引いた後、液体シンチレータ発光イベントに fitting を施し、ピーク位置の ADC-channel 数を求める事で発光量の比較が可能となる。同条件での連続測定より、この測定装置の統計誤差は $\pm 1 \sim 1.5\%$ である事が判明している。

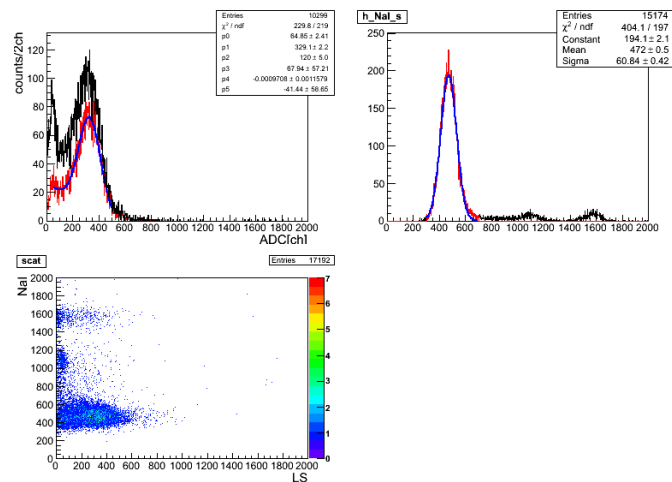


図 4.10: 発光量測定結果の解析

4.5.3 実験結果

前節で述べた測定装置、方法により各液体シンチレータの発光量を測定、比較した(表 4.2)。

液体シンチレータ	ADC-channel	発光量 (Xe-LS 比)
Xe-LS	329.1	1.0
N8-LS	342.3	1.040
N9-LS	315.6	0.959

表 4.2: 各液体シンチレータの発光量

PPO の量は全ての液体シンチレータで 2.7g/l としており、発光能力を高める目的で使用される PC の配合割合もおよそ 20% 前後となっているため、大きな差は見られなかった。PC の配合割合の多い N8-LS が Xe-LS よりも発光量が 4% 程高くなっているが、Xe を 5.4wt% 溶解した際、発光量が 3wt% 溶解時よりもさらに 15% 低下するため、その発光量は Outer-LS の 83% となり光量差の許容範囲内である $\pm 10\%$ まで回復する事は出来ず、PPO 濃度を増加させても発光量を回復させる事は出来なかった。

4.6 まとめ

本章では KamLAND-Zen 実験加圧フェイズに向け、mini-Balloon 内外で液体シンチレータの密度を合わせながら、大量の Xe を導入するため、mini-Balloon 内の Xe 溶解用液体シンチレータである Xe-LS を密度の軽い新しいものに変更するというアプ

ローチ方法を取った。密度の制約から、現在 Xe-LS に使用されているパラフィンオイルである N-10 と似通った性質を持ち、密度の軽い N-8 と N-9 をベースとした新しい液体シンチレータを考案し、その性能評価を行った。

透過率について N-8、N-9 は共に波長 430nm 付近に光吸収が見られたが、N8-LS に関しては PC と混ぜ合わせたことでその光吸収が無視出来る程度となり、PPO の発光波長である 400nm 付近において Xe-LS と同程度の透過率を保持している事が判明した。

透過率が良く、また PC の配合割合が高いため発光量の回復が見込まれた N8-LS は加圧フェイズにおける新しい液体シンチレータの有力候補となったが、実際に発光量を測定した結果、Xe-LS より約 4% 増光するに留まり、5.4wt% の Xe を溶解した際のおよそ 28% の発光量低下を補える程の回復には至らなかった。また、N-8 の引火点は 13°C と非常に低く、KamLAND の地下実験施設という閉塞された空間で取り扱うには安全上問題があると考えられた。

以上より、mini-Balloon 内部の液体シンチレータを密度の軽い新しいものに変更するのは現実的でなく、別のアプローチが必要であるという事が判明した。

第5章 加圧フェイズに向けた新しい液体シンチレータ開発Ⅱ

5.1 概要

前章で示した通り、密度を軽くした新しい液体シンチレータでは Xe を溶解した事による発光量低下を補う事は困難であり、また、候補素材である N-8 は引火点が低く、安全に取り扱う事が困難である事からも mini-Balloon 内部の Xe-LS を新しいものに変更し大量の Xe を溶解しようというアプローチ方法は現実的ではないという事が判明した。

本章では、加圧フェイズに向け、発光量回復という厳しい制限の掛かった mini-Balloon 内部の液体シンチレータを始めに決定し、それと密度を合わせるように Outer-LS、Buffer-Oil の組成を変更していくアプローチ方法を取った。

5.2 Xe 溶解用液体シンチレータ

本章における液体シンチレータ開発では、mini-Balloon 内部の Xe 溶解用液体シンチレータ (以下、NewXe-LS) をまず始めに決定し、それに新しい Outer-LS の密度、発光量などを合わせて行く手法を取るため、NewXe-LS は高い透過率を保ちながら発光量の回復が成されていれば密度などに制限は掛かっていない。本節では上記の要求を満たした NewXe-LS の組成決定から、性能評価までを述べる。

5.2.1 NewXe-LS の組成決定

Xe の溶解度の各パラメータにおける依存性を始めとして、多くの重要な特性が既に研究されている事から、NewXe-LS は現在と同じく N-10 をベースとした物である事が望ましい。発光量の回復には PC 配合割合の増加と PPO 濃度の増加などがある。PPO 濃度の増加によるこれ以上の発光量回復は過去の研究により不可能な事が判明しているため [21]、本実験では PC 配合割合を増加させる事により発光量を回復させる事とした。過去の研究より、Xe の溶解度は N-10 と PC の配合割合により変化し、PC 割合が高い程 Xe 溶解度は悪くなる事が知られている [20]。1 気圧において 3.0wt%

の Xe 溶解度を確保出来るのは PC 割合がおよそ 35% までであるため、本実験ではこの割合まで PC を増加させた液体シンチレータを NewXe-LS とする事とした。その組成と、1.8 気圧において Xe を 5.4wt% 溶解させた場合の密度は以下の通りである (表 5.1)。また、密度の計算には Xe 溶解時の体積膨張による密度減少も考慮している。

物質名	組成式	密度	体積組成
N-10(デカン)	$C_{10}H_{22}$	$0.735g/cm^3$	65%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	$0.875g/cm^3$	35%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	$C_{15}H_{11}NO$	-	2.7g/l
Xe(1.8atm)	-	-	5.4wt%
NewXe-LS(Xe5.4wt% 溶解時)	-	$0.812g/cm^3$	-

表 5.1: NewXe-LS の組成

この NewXe-LS について性能を評価して行く。評価項目は透過率と発光量であるが、NewXe-LS に関しては発光量が回復出来ている事を確認する事が重要である。

5.2.2 透過率の測定と評価

透過率は前章で述べた通り、 $0\nu\beta\beta$ と $2\nu\beta\beta$ を区別するために重要となってくるエネルギー分解能に直結してくるパラメータであるため重要である。NewXe-LS は発光量回復の目的で PC の配合割合を増加しているため透過率は低下する事が予想される。本測定では NewXe-LS の透過率が現在使用されている Xe-LS と比較して有意な光吸収をもっていない事と、mini-Balloon 半径において十分な透過率を持っている事を確認する必要がある。

NewXe-LS の透過率を測定し、現在使用されている Xe-LS と比較した。mini-Balloon 半径である 1.58m に換算した透過率を以下に示す (図 5.1)。測定方法は 4 章における測定方法と同じである。

透過率の悪い PC の配合割合が多くなっているため 450nm より短波長側においてその影響が出て来ている。PPO の発光波長である 400nm 付近における透過率は現在使用している Xe-LS と比べ、約 4% 低下している。透過率は PC の配合割合を減少させる事で簡単に回復させる事が出来るが、本章における液体シンチレータ開発では発光量の回復が急務とされているため、発光量の測定結果を受けてから配合割合を変化させるか決定する事とした。

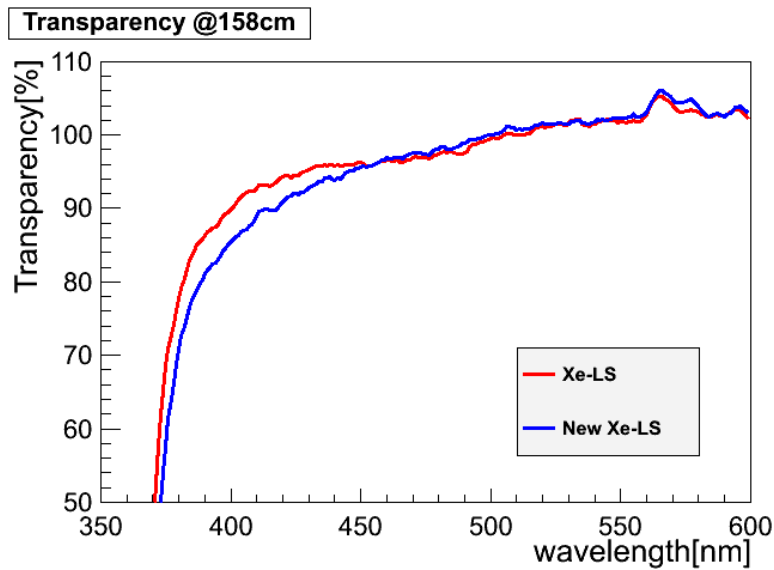


図 5.1: 1.58m における NewXe-LS の透過率

5.2.3 発光量の測定と評価

NewXe-LS の発光量回復は本章での液体シンチレータ開発において最も重要な要求である。Xe-LS は Xe3.0wt% 溶解時に窒素飽和時より発光量が 15% 低下し、加圧により Xe 溶解量を 5.4wt% まで増加させた場合はさらに 15% 低下する事が判明している。Xe5.4wt% 溶解時において Outer-LS との光量差 $\pm 10\%$ 以内に抑える必要があるため、NewXe-LS の Xe 溶解による発光量減少率も Xe-LS と同等であると仮定すると、窒素飽和時の NewXe-LS の発光量は Outer-LS 比で 125~152% に収まっていれば良い。

これを踏まえて NewXe-LS の発光量を測定、比較した (表 5.2)。測定方法、条件は 4 章におけるものと同じである。

液体シンチレータ	ADC-channel	発光量 (Outer-LS 比)	発光量 (Xe5.4wt%)
Outer-LS	187.7	1.0	-
Xe-LS	206.4	1.100	0.795
NewXe-LS	236.2	1.258	0.909

表 5.2: 各液体シンチレータの発光量

PC 割合を増加した事による発光量回復は効果が大きく、Outer-LS 比で 125.8% まで発光量を回復する事が出来た。Xe5.4wt% 溶解時に Outer-LS の 90.9% と許容光量

差の範囲内にある事が判明したが、この値は許容範囲内に抑えられるほぼ限界値であり、これ以上発光量が低下してしまうと許容範囲から出てしまう。そのため、透過率回復のために PC の配合割合を減少させる事はせず、この NewXe-LS を加圧フェイズに使用する Xe 溶解用液体シンチレータとする事とした。透過率減少による実験への影響は次章に述べるシミュレーションで考察して行く。

5.3 Outer-LS

前節の結果より、NewXe-LS は Xe 溶解度を 1.8 気圧で 5.4wt% 確保しながら、発光量を Xe 溶解時で Outer-LS のおよそ 91% と、許容発光量差の範囲内まで回復する事が出来た。本節ではこの NewXe-LS を加圧フェイズで用いる mini-Balloon 内部の Xe 溶解用液体シンチレータとし、Xe を加圧環境下にて 5.4wt% 溶解した状態の密度と合わせるように新しい Outer-LS(以下 NewOuter-LS) の組成を決定し、その性能を評価して行く。

5.3.1 液体シンチレータへの要求と素材選定

NewOuter-LS 開発において要求される項目は、基本的に 4 章における液体シンチレータ開発にて要求された項目と同じであるが、重要視しなければならない項目などが異なってくる。

最も重要なのが密度である。NewXe-LS は発光量回復のため PC の配合割合を増加させており、また、Xe を現在よりも多量の 5.4wt% 溶解するため、その密度は現在使用されている Outer-LS と比べかなり重いものとなっている。そこで密度を合わせるためにも NewOuter-LS には現在の Outer-LS に使用されている N-12 よりも密度の重い素材を選定しなければならない。

次いで重要なのが透過率である。Outer-LS が導入されている Outer-Balloon は直径 13m あり、mini-Balloon 内で起こったイベントによるシンチレーション光は PMT で検出されるまでに Outer-LS 内を最短で (Outer-Balloon 半径 - mini-Balloon 半径) = 4.92m にわたり伝播する事となる。長距離伝播する程透過率の影響は大きくなるため Outer-LS の組成決定には透過率が良い事が条件となる。

また、4 章における液体シンチレータ開発で問題となった引火点も非常に重要であり、神岡坑内における室温よりも十分に高い引火点を持つものでなくてはならない。

以上の要求を満たす素材候補としてイソパラフィンと PXE が挙げられた。素材候補それぞれの特性などを以下に挙げる。

イソパラフィン (パラオール 250)

イソパラフィン (パラオール 250) は現在 KamLAND にて Buffer-Oil を構成する素材として使用されている。その組成式は C_nH_{2n+2} であり、側鎖を持った飽和炭化水素がいくつかの炭素数について混合されている。密度は 0.795g/cm^3 と N-12 より重く、引火点は 92°C と十分高いものとなっている。また、Buffer-Oil に使用されていることから、透過率が非常に良いという事が分かっており、さらにバルーンへの腐食性など重要な特性が既に研究されているという点で導入し易いものである。

PXE

PXE(Phenylxylylethane) は非常に重い密度と高い引火点を持ったオイルであり、組成式は $C_{16}H_{18}$ である。密度は 0.984g/cm^3 とほぼ水と同等の値を持っており、引火点は 145°C とイソパラフィンよりも高く非常に安全である。この重い密度により、少量の PXE を加えるだけで現在使用している Outer-LS の密度を目標とする値まで増加させる事が出来るため、非常に経済的である。また、PXE は同じく液体シンチレータを用いたニュートリノ検出実験である Borexino 実験で、発光能力を高める溶媒である PC の代わりになり得る素材として研究されていた事もあるため、今回 NewOuter-LS の構成素材に組み込む事で発光量の増加が期待される。

5.3.2 NewOuter-LS の組成決定

密度は Xe5.4wt% 溶解時の NewXe-LS の値である 0.812g/cm^3 に合わせなければならない。また、発光量は現在使用されている Outer-LS を基準として NewXe-LS の発光量が許容発光量差の範囲内にあると判断したため、NewOuter-LS は現在の Outer-LS と同等の発光量を持っていないなければならない。そこで、PC 配合割合と PPO 濃度は同じに設定する。以上の条件下でイソパラフィンと PXE を用いた NewOuter-LS(以下 Isoparaffin-LS、PXE-LS) の組成を以下のように決定した(表 5.3)。厳密には、各 Outer-LS 候補の密度は目標密度と少しずれているが、実際の液体シンチレータ導入オペレーションの際はロードセルに加わる負荷をリアルタイムで確認しながらその配合を微調整していくためおおよその配合割合を決定した。

ここで、PXE-LS に使用されている N-12 は、現在 Outer-LS に使用されている JX 日鉱日石エネルギー株式会社製「ノルマルパラフィン N12D」と同商品であるが、2013 年春より触媒が新しい物に交換されているため純度が高く、透過率が非常に良いものになっている(図 5.2)。NewOuter-LS の性能を評価する際はこれを考慮して、Outer-LS

Isoparaffin-LS

物質名	組成式	密度	体積組成
イソパラフィン (パラオール 250)	C_nH_{2n+2}	0.795g/cm ³	80%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	0.875g/cm ³	20%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	$C_{15}H_{11}NO$	-	1.36g/l
Isoparaffin-LS	-	0.8124g/cm ³	-

PXE-LS

物質名	組成式	密度	体積組成
PXE	$C_{16}H_{18}$	0.984g/cm ³	15%
N-12(ドデカン)	$C_{12}H_{26}$	0.750g/cm ³	65%
PC(1,2,4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	0.875g/cm ³	20%
PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール)	$C_{15}H_{11}NO$	-	1.36g/l
PXE-LS	-	0.8115g/cm ³	-

表 5.3: NewOuter-LS の組成

には現在 KamLAND で使用している Outer-LS を再現するために触媒交換前の N-12 を、PXE-LS には触媒交換後の N-12 を使用する事とした。

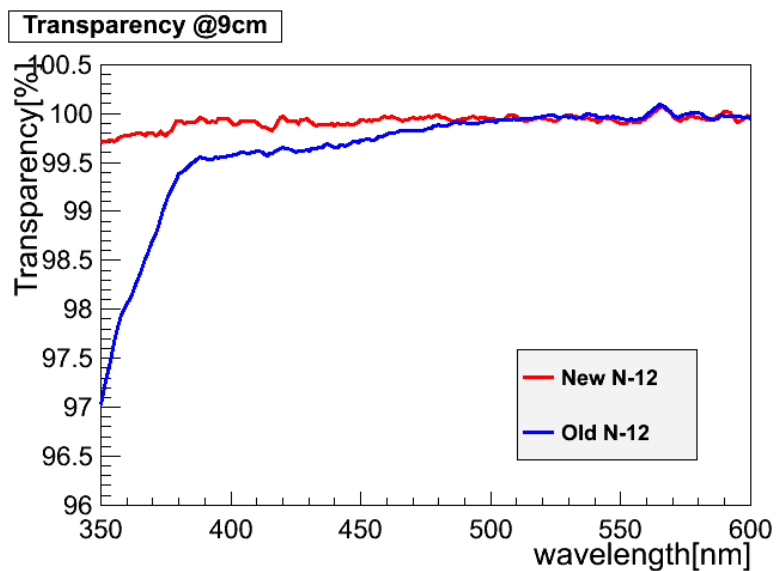


図 5.2: 新しい N-12 の透過率

5.3.3 透過率の測定と評価

mini-Balloon 内で発生したシンチレーション光は PMT にて検出されるまでに Outer-LS 内を最も長く伝播するため Outer-LS の透過率は良くなければならない。本測定では PPO の発光波長である 400nm 付近において光吸収がない事を確認するのはもちろん、シンチレーション光が Outer-LS 内を伝播する最短距離である (Outer-Balloon 半径 - mini-Balloon 半径) = 4.92m での透過率を比較し、十分な透過性を持っているかを評価する。

各 Outer-LS の測定を行う前に素材であるイソパラフィンと PXE の透過率を測定した (図 5.3)。測定方法は 4 章における測定方法と同じである。

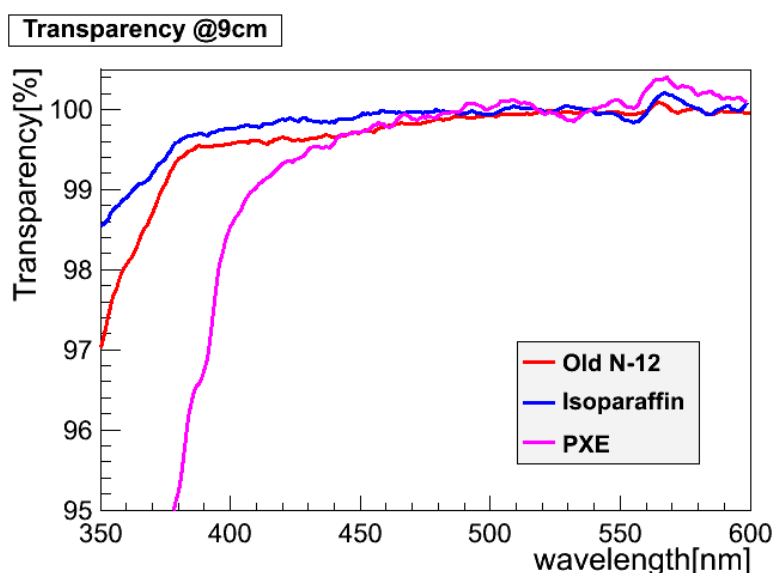


図 5.3: 各 Mineral Oil の透過率

各素材について有意な光吸収は見られなかった。イソパラフィンの透過率は非常に良く、これを用いた Isoparaffin-LS の透過率も良くなる事が予想される。PXE の透過率は悪い値を示しているが、その配合割合は少なく、透過率の良い NewN-12 の配合割合の方が多いため、PXE-LS の透過率はそこまで悪いものにならないと期待出来る。

これを踏まえた上で NewOuter-LS の透過率を測定し、現在の Outer-LS と比較した。シンチレーション光が Outer-LS 内を伝播する際の最短距離である (Outer-Balloon 半径 - mini-Balloon 半径) = 4.92m に換算した透過率を以下に示す (図 5.4)。

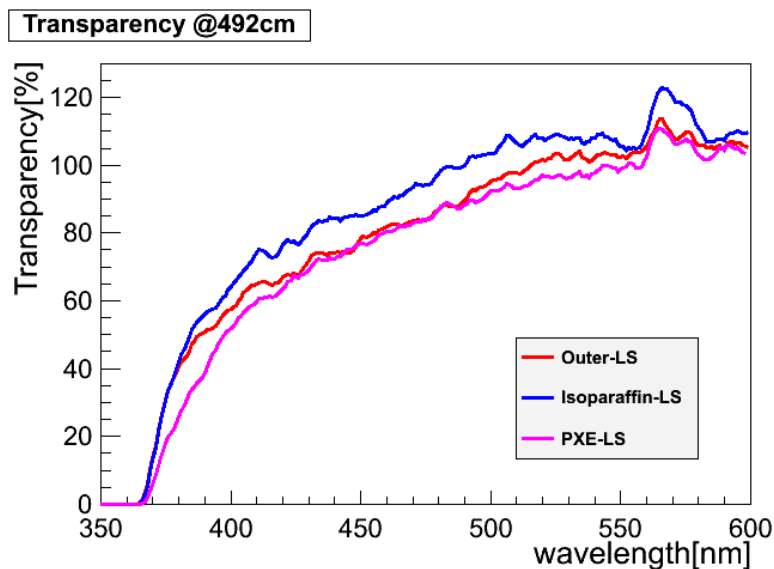


図 5.4: 4.92m における NewOuter-LS の透過率

Mineral Oil の透過率測定の結果から予想された通り、Isoparaffin-LS の透過率は非常に良く、PPO の発光波長である 400nm 付近において現在使用している Outer-LS と比べ、およそ 8% 上昇している。PXE-LS は透過率の悪い PXE の配合割合が少なく、透過率が非常に良い触媒交換後の N-12 の配合割合が多い事から透過率が回復する事が期待されたが、低波長側における PXE の透過率が非常に悪く、十分な回復とはならなかった。実験に及ぼす透過率の影響は、次章にてシミュレーションにより全体を評価して行く事とする。

5.3.4 発光量の測定と評価

NewXe-LS の発光量は現在の Outer-LS の発光量を元に比較され、許容光量差の範囲内に入っているかどうかの判断を行ってきた。しかし、実際に加圧フェイズにおいて NewXe-LS を使用する場合には NewOuter-LS との光量差が $\pm 10\%$ 以内に収まっている必要があり、NewOuter-LS の組成はそれを考慮して PC の配合割合を現在の Outer-LS と同じ 20% とし、決定されている。本測定では NewOuter-LS の発光量が現在の Outer-LS と同等の発光量を持っており、NewXe-LS との光量差が $\pm 10\%$ 以内に収まっている事を確認する。

発光量を測定する前にまず、PXE-LS について、発光過程に関係する PXE を配合した事で発光スペクトルに変化がないか確認を行った。現在 KamLAND で使用されている液体シンチレータは PMT の量子効率が良い波長に発光ピークを持つように発光剤の PPO を溶媒である PC に溶解している。発光剤を同じ PPO としているため発光スペクトルに変化はないと考えられるが、念のため確認を行った。

発光スペクトルの測定には日立社製 F-2000 形分光蛍光光度計を使用した。以下に分光蛍光光度計と、その構造を示す (図 5.5)。光源であるキセノンランプから照射された光は分光され 10mm の石英セルに入れられた試料に照射される。試料から放射された蛍光は分光され、光電子増倍管によりその強度が測定される。

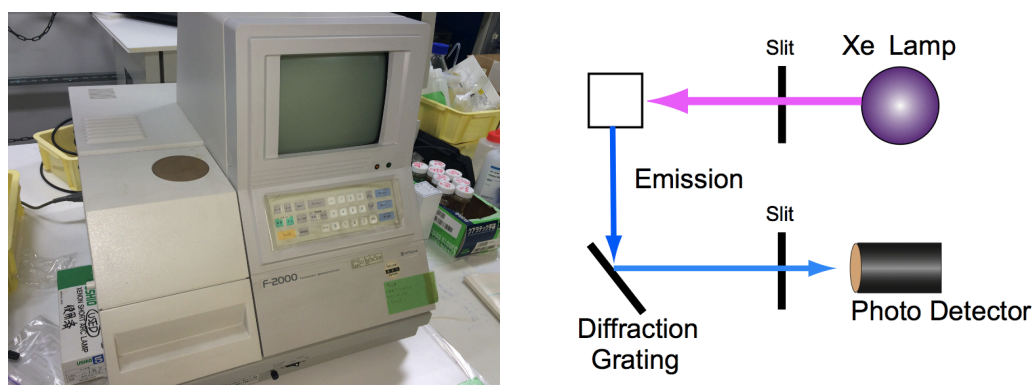


図 5.5: 分光蛍光光度計 (左図) とその構造 (右図)

上記の測定装置を用いて Outer-LS と PXE-LS の発光スペクトルを測定、比較した (図 5.6)。発光スペクトルを比較するため、どちらの液体シンチレータについても発光ピークにおける値を 100 に規格化している。

溶質に放射線のエネルギーを伝達する溶媒が PC のみから PC と PXE に変化しても蛍光を放射するのは溶質である PPO であり、これは Outer-LS、PXE-LS でも同じであるので発光スペクトルに有意な変化は見られなかった。

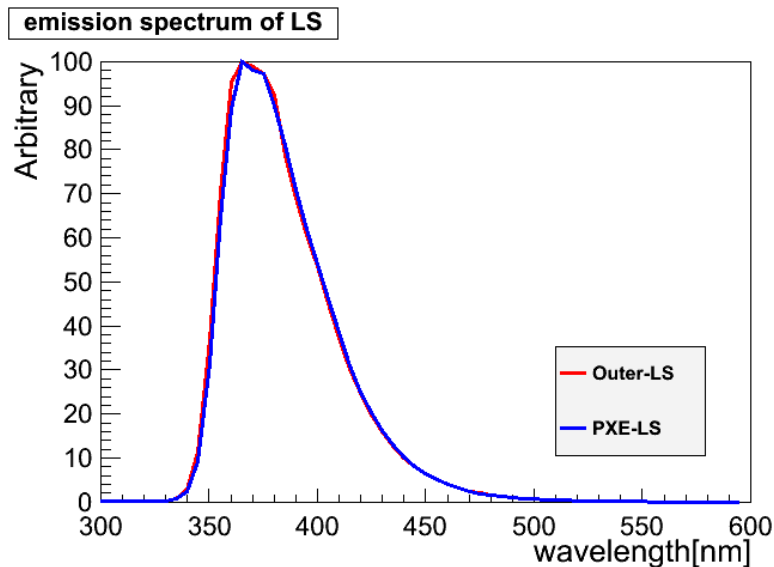


図 5.6: Outer-LS と PXE-LS の発光スペクトル

これを踏まえた上で NewOuter-LS の発光量を測定、比較した (表 5.4)。測定方法、条件は 4 章におけるものと同じである。

液体シンチレータ	ADC-channel	発光量 (Outer-LS 比)
Outer-LS	197.6	1.0
Isoparaffin-LS	164.0	0.830
PXE-LS	218.5	1.106

表 5.4: NewOuter-LS の発光量

Isoparaffin-LS の発光量は悪く、現在の Outer-LS の 83% しかなく、mini-Balloon 内部の発光量の方が高くなってしまいが、Isoparaffin-LS の発光量を基準とした Xe5.4wt% 溶解時の NewXe-LS の発光量は 109.5% と $\pm 10\%$ の許容光量差の範囲内には収まっている。また、PXE は PC 同様、発光能力を高めるための溶媒として液体シンチレータに広く使用されている事から予想された通り、PXE-LS の発光量は現在の Outer-LS の 110.6% と発光量が高くなっていた。これを基準とした Xe5.4wt% 溶解時の NewXe-LS の発光量は 82.2% と許容光量差の範囲から大きく外れてしまっている。

Isoparaffin-LS の発光量が許容光量差の範囲内に収まっているとはいえ、現在の KamLAND-Zen 実験における光量差である、およそ 5% と比較すると大きくなっている。光量差を小さくするためにも発光量の回復は必要である。以下に密度を変化させ

ずに発光量回復を図るために行った、発光量の PPO 濃度依存性の測定結果を示す (図 5.7)。フィッティングの関数には $f(x) = p_0 - p_1 \exp(-p_2x)$ を用いている。

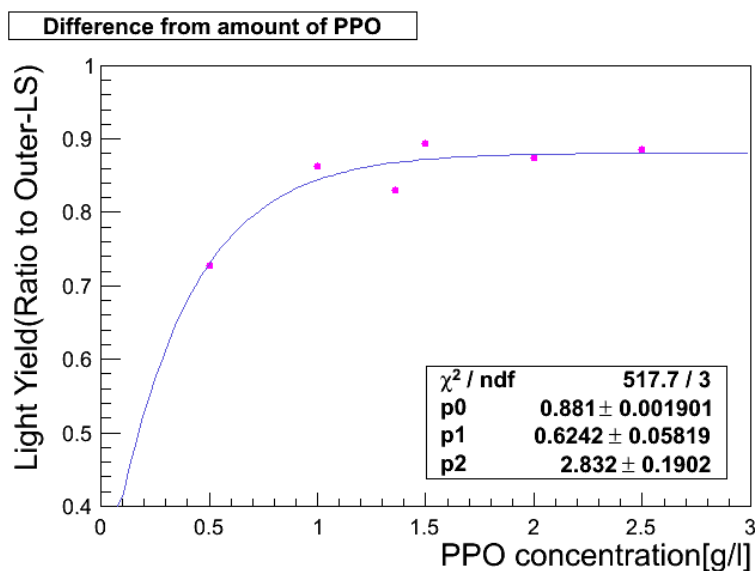


図 5.7: Isoparaffin-LS の発光量の PPO 濃度依存性

1.0g/l 付近からは PPO 濃度を増加しても有意な発光量増加は見られなかったため、PPO 濃度増加による透過率への影響や新たに PPO を購入するコストを考慮して現在と同じ 1.36g/l のまま変更しない事とした。光量差が大きくなった事による実験への影響は次章のシミュレーションにより議論する事とする。

以上の透過率と発光量の測定より NewOuter-LS としては Isoparaffin-LS がふさわしいものであると結論付いた。

5.4 Buffer-Oil

前節までの結果より、Xe 溶解により減少する発光量を補いながら加圧環境下で 5.4wt% の Xe 溶解度を確保出来る NewXe-LS の組成が決定し、その密度に値を合わせながら光量差を許容範囲内に抑え、透過率も十分なものである NewOuter-LS の組成も決定した。本節ではこれら NewXe-LS、NewOuter-LS の密度と合わせるように新しい Buffer-Oil(以下 NewBuffer-Oil) の組成を決定して行く。

5.4.1 Buffer-Oil への要求と素材選定

Buffer-Oil は放射線強度が高い壁側での発光を防ぐ事でイベントレートを減少させ、エネルギー閾値を下げる役割を担っているため、液体シンチレータのように発光剤である PPO や、発光能力を高めるための溶媒である PC などはその組成に含まれておらず、現在の Buffer-Oil はほぼ同量の N-12 とイソパラフィン (パラオール 250) で構成されている。NewBuffer-Oil 開発では、その目標密度が現在の Buffer-Oil 構成素材よりも重いものであるため、配合割合を変更する事での密度調整は不可能である。新しい構成素材に要求される項目は、密度が重い事と透過率が良い事である。

この条件より、素材候補として昭和シェル石油株式会社製「パラオール 850」が挙げられた。パラオール 850 は現在使用されている Buffer-Oil の構成素材であり、Isoparaffin-LS の素材でもあるパラオール 250 と同様のイソパラフィンであるが、炭素数の多いものの配合割合が高く、密度が 0.830g/cm^3 と重くなっている。

5.4.2 NewBuffer-Oil の組成決定

NewBuffer-Oil の密度は Outer-Balloon が浮いてしまわないように NewOuter-LS より 0.04% 軽く設定されるため、本実験で目指すべき NewBuffer-Oil の密度は 0.8116g/cm^3 と計算される。パラオール 850 と共に NewBuffer-Oil を構成する素材には現在 Buffer-Oil の構成素材として使用されているパラオール 250 と N-12 が候補として挙げられた。密度の制約から、パラオール 250、N-12 とパラオール 850 を使用した NewBuffer-Oil (以下 Paraol-BO、N12-BO) の組成を以下のように決定した (表 5.5)。ここで N12-BO に使用している N-12 は透過率の良い触媒交換後の NewN-12 としている。

Paraol-BO

物質名	組成式	密度	体積組成
イソパラフィン (パラオール 250)	$\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$	0.795g/cm^3	53%
イソパラフィン (パラオール 850)	$\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$	0.830g/cm^3	47%
Paraol-BO	-	0.8115g/cm^3	-

N12-BO

物質名	組成式	密度	体積組成
N-12(ドデカン)	$\text{C}_{12}\text{H}_{26}$	0.750g/cm^3	23%
イソパラフィン (パラオール 850)	$\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$	0.830g/cm^3	77%
N12-BO	-	0.8116g/cm^3	-

表 5.5: NewBuffer-Oil の組成

5.4.3 透過率の測定と評価

Buffer-Oil において最も重要な性能は透過率である。本測定では PPO の発光波長である 400nm 付近において光吸収がない事を確認するのはもちろん、シンチレーション光が Outer-LS 内を伝播する最短距離である (球形ステンレスタンク半径 - Outer-Balloon 半径) = 1.75m での透過率を比較し、NewBuffer-Oil が十分な透過性を持っているかを評価する。

各 Buffer-Oil の測定を行う前に素材であるパラオール 850 の透過率を測定した (図 5.8)。測定方法は 4 章における測定方法と同じである。

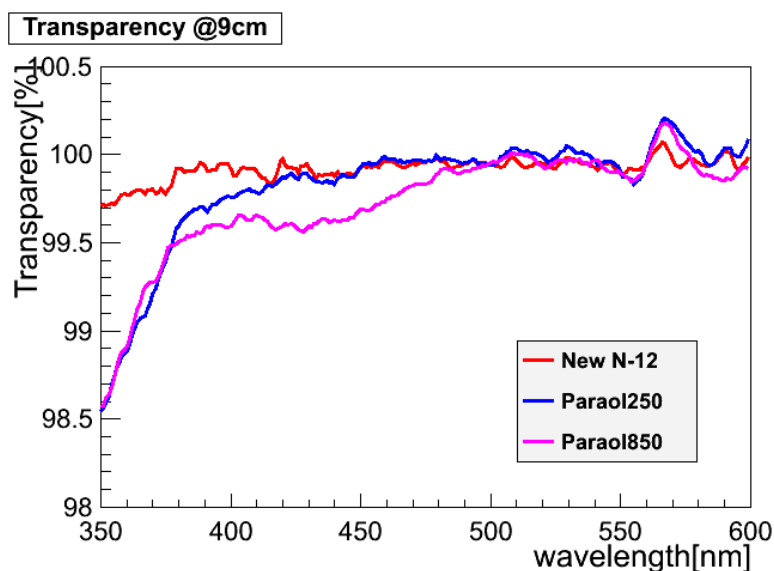


図 5.8: パラオール 850 の透過率

400~500nm にかけて若干の光吸収が見られたが、値自体はそこまで悪いものではなく、パラオール 850 と共に NewBuffer-Oil を構成するパラオール 250、NewN-12 の透過率が非常に良い事からも、NewBuffer-Oil の透過率が悪くなるような心配はないと考えられる。

これを踏まえた上で NewBuffer-Oil の透過率を測定し、現在使用されている Buffer-Oil と比較した。シンチレーション光が Buffer-Oil 内を伝播する際の最短距離である (球形ステンレスタンク半径 - Outer-Balloon 半径) = 1.75m に換算した透過率を以下に示す (図 5.9)。

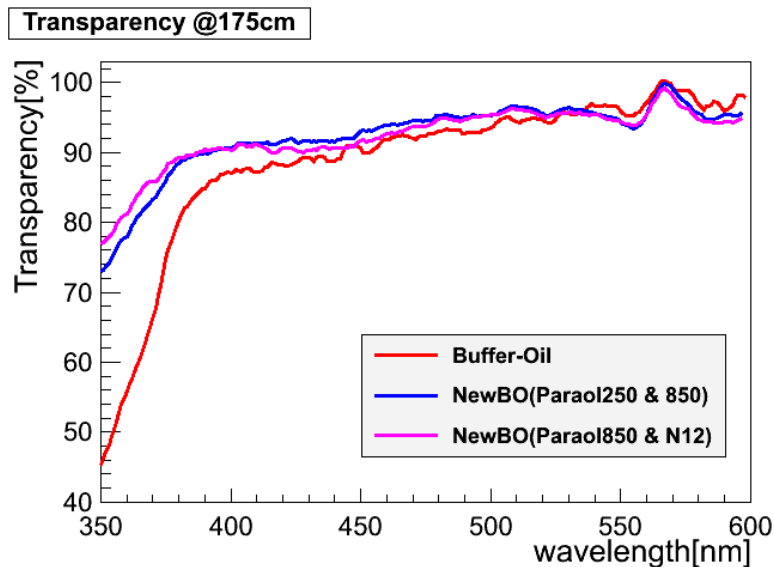


図 5.9: 1.75m における NewBuffer-Oil の透過率

NewBuffer-Oil は現在使用されている Buffer-Oil と比較し、特に PPO の発光波長領域において非常に良い透過率を持っている事が判明した。N12-BO に関しては、パラオール 850 の配合割合が多いため 400~500nm にかけてのパラオール 850 に見られた光吸収の影響が少し現れ、Paraol-BO より若干透過率が悪くなっているが、400nm 以下の波長領域においては透過率の良い N-12 の影響が現れ、Paraol-BO よりも値が良くなっている。

しかし、どちらの NewBuffer-Oil も現在使用されている Buffer-Oil より非常に透過率が良く、その値に大きな差は見られなかったため、NewOuter-LS に使用する素材がパラオール 250 である事を考慮し、NewBuffer-Oil には Paraol-BO を用いるのが適切であると考えられる。

5.5 まとめ

本章では KamLAND-Zen 加圧フェイズに向け、Xe 溶解により低下する発光量を補うという厳しい制限の掛かった mini-Balloon 内部の液体シンチレータを始めに決定し、それと密度を合わせるように Outer-LS、Buffer-Oil の組成を変更して行くというアプローチ方法を取った。Xe 溶解度など諸特性が良く研究されている事から、mini-Balloon 内部には現在と同じ N-10 をベースとし、PC の配合割合を増加させる事で発光量回復を図った NewXe-LS を用いる事とした。次に密度の制約から、現在 Buffer-Oil に使用されているイソパラフィン (パラオール 250) と、非常に密度の重い PXE を使用した NewOuter-LS を考案し、その性能評価を行った。

透過率について Isoparaffin-LS は現在使用されてる Outer-LS と比べ非常に良い値を持っている事が判明し、PXE-LS は透過率の悪い PXE の影響で PPO の発光波長領域における値が非常に悪いものである事が判明した。

Isoparaffin-LS の発光量は測定した結果、現在の Outer-LS のおよそ 83%であった。しかし、Isoparaffin-LS を基準にした時の NewXe-LS の相対発光量は 109.5%と、mini-Balloon 内外の許容発光量差である 10%の範囲内に収まっている事が確認された。全体的に KamLAND-Zen よりも発光量が減少しているが、透過率が非常に良い事からこの低い発光量の影響を補えると考え、NewOuter-LS には Isoparaffin-LS を用いる事とした。

これら NewXe-LS、NewOuter-LS に密度を合わせつつ、透過率も非常に良い値を持つ NewBuffer-Oil の組成も決定した事で、加圧フェイズにおける検出器構成要素のすべてが揃った (図 5.10)。

次章ではこれら新しい液体シンチレータの感度に対して、定量的な評価をする事で加圧フェイズの持つ有意性について議論する。

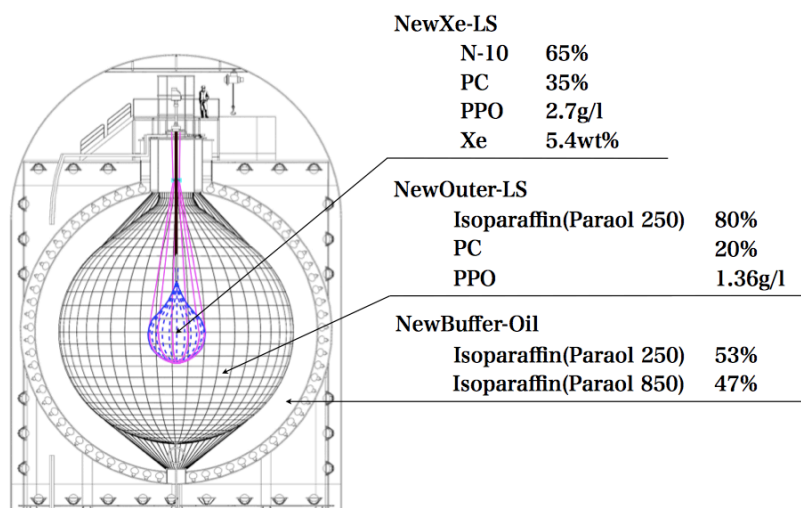


図 5.10: 決定した加圧フェイズ構成要素

第6章 新しい液体シンチレータの感度に対する評価と議論

6.1 概要

前章では KamLAND-Zen 加圧フェイズに向けた液体シンチレータ開発を行い、その性能評価を行った。その結果、図 5.10 に示したような構成要素が加圧フェイズにおける要求を満たすものであると判明した。しかし、前章における各要素の性能評価は定性的であり、実験の感度を判断する事は困難である。

本章では前章で測定した各要素の透過率と発光量の値をもとに実際に加圧フェイズを稼働させた場合、どれほどの質量上限値を得る事が出来るのかを調べる事で定量的な評価を下し、議論して行く。

6.2 加圧フェイズにて変更となったシミュレーション条件

感度の導出は、GEANT4(ver4.9.1) で再現された KamLAND-Zen 検出器におけるイベントを用いて行われている。Balloon の形状や、その材料など変更しない条件が多いが、加圧フェイズでは mini-Balloon 内外の液体シンチレータ、Buffer-Oil を新しいものにするため、以下のような条件を変更した。

液体シンチレータの密度

液体シンチレータの密度は Xe 導入量や、放射性不純物の含有量に関係してくるため、この数値を反映させた。加圧フェイズにおける液体シンチレータの密度は KamLAND-Zen の約 0.777g/cm^3 から 0.812g/cm^3 になっている。

Xe 溶解度

加圧フェイズでは Xe 溶解度が増加しており、それがこのフェイズを行う最も重要な動機である。液体に溶解する気体はヘンリーの法則より圧力に比例するため、加圧フェイズでは 1.8 気圧の加圧環境を利用する事で 5.4wt% の Xe が溶解する。

エネルギー分解能

KamLAND-Zen においてエネルギー分解能は ThO_2W 線源を用いたキャリブレーションにより求められており、 $6.6\%/\sqrt{E}$ という visible energy E の関数となっている [23]。そこで、 E が集光量 n とほぼ比例関係にある事を利用して、KamLAND-Zen と加圧フェイズの集光量比から求めた E の変化率から加圧フェイズにおけるエネルギー分解能を計算する事とした。

集光量の計算には前章で測定した各要素の透過率、mini-Balloon 内の液体シンチレータの発光量とそのスペクトル、PMT の量子効率を用いる。発光量の重みを掛けた各波長 λ における発光スペクトルを $N_{emit}(\lambda)$ 、透過率を $T(\lambda)$ 、PMT の量子効率を $Q(\lambda)$ として、集光量 n を以下のように定義する。

$$n = \sum_{\lambda} N_{emit}(\lambda) \times T(\lambda) \times Q(\lambda) \quad (6.1)$$

実際は透過率が Xe-LS、Outer-LS、Buffer-Oil でそれぞれ異なるため、シンチレーション光の発生点と伝播経路に依存するが、ここでは mini-Balloon 中心で発生したイベントを仮定して計算を行う事とする。すると KamLAND-Zen における集光量 n_{zen} は

$$n_{zen} = \sum_{\lambda} N_{emit \text{ Xe-LS Xe3.0wt}\%}(\lambda) \times T_{zen}(\lambda) \times Q(\lambda) \quad (6.2)$$

$$T_{zen}(\lambda) = T_{\text{Xe-LS 1.58m}}(\lambda) \times T_{\text{Outer-LS 4.92m}}(\lambda) \times T_{\text{Buffer-Oil 1.75m}}(\lambda) \quad (6.3)$$

のように表せる。 n_{zen} を基準とした場合、加圧フェイズにおける集光量 n_{press} は 1.099 と計算され、 $1/\sqrt{E_{press}} = 1/\sqrt{1.099E} = 0.954/\sqrt{E}$ つまり、加圧フェイズにおけるエネルギー分解能は $6.3\%/\sqrt{E}$ と求められた。

Xe を 5.4wt% 溶解した事により、New-Xe-LS による発光量の波長依存性 $N_{emit \text{ NewXe-LS Xe5.4wt}\%}(\lambda)$ は現在の Xe-LS による $N_{emit \text{ Xe-LS Xe3.0wt}\%}(\lambda)$ と比較して減少しているが、Isoparaffin-LS と Paraol-BO の PPO 発光波長における透過率が現在の Outer-LS、Buffer-Oil の値より非常に良い値を持っている事から、発生したシンチレーション光の損失を抑える事が出来、集光量は加圧フェイズにおける値の方が良くなっている。

位置分解能

KamLAND-Zen では ^{136}Xe $2\nu\beta\beta$ のイベントと mini-Balloon に付着する ^{134}Cs のスペクトルフィットの再現性から位置分解能を $15\text{cm}/\sqrt{E}$ と求めている [23]。加圧フェイズにおける位置分解能はエネルギー分解能と同様に集光量から計算し、その値は

14.31cm/ \sqrt{E} となっている。

相対発光量

位置分解能により、mini-Balloon 表面付近になると Xe-LS 内で発生したイベントが Outer-LS によるイベントとして再構成される事が起きるようになる。そのため、mini-Balloon 内外での発光量の差を理解しておく事がエネルギー計算の際に重要となってくる。現在 KamLAND-Zen では Outer-LS の方が Xe-LS より 5%高い発光量を持っている。本シミュレーションではこの相対発光量を

$$\alpha = \frac{\text{Light Yield of Xe-LS}}{\text{Light Yield of Outer-LS}} \quad (6.4)$$

と定義する事とし、加圧フェイズにおける相対発光量は前章での測定結果から $\alpha = 1.0952$ と求められた。

6.3 感度導出手法

感度の導出には、考慮すべき各バックグラウンドのイベントレートや、 $\beta\beta$ 崩壊のイベントレートなど必要な情報が数あり、多くの手順を踏む必要がある。本節では感度導出の手法を順を追って説明し、その段階毎に使用しているパラメータや条件などについて述べる。

1. 各バックグラウンドのイベント情報作製

考慮すべき各バックグラウンドについて、エネルギー分解能、位置分解能、相対発光量の条件をもとに GEANT4 によってランダムに発生させた 1,000,000 のイベントからエネルギースペクトルと、mini-Balloon 表面からの距離の情報を作製する。エネルギースペクトルは 0ν 信号領域に入って来るバックグラウンドレート、mini-Balloon 表面からの距離は Fiducial Volume cut を決定するために使用する。ここで、考慮したバックグラウンドは ^{208}Tl (mini-Balloon 内、Xe-LS 中、Outer-LS 中)、 ^{214}Bi 、 ^{10}C 、 ^{11}Be 、 ^8B 太陽 ν 、 $^{136}\text{Xe}2\nu$ である。

2. 0ν energy window の設定

0ν 信号についても段階 1 と同様に、ランダムイベントからエネルギースペクトルと mini-Balloon からの位置情報を作り出す。ただし、ニュートリノの有効質量は 150meV を仮定している。得られたスペクトルについて 2.3~2.8MeV の領域で gaussian フィットを行う事で、バックグラウンドのイベントレートを求めるための 0ν energy

windowの範囲を決定する。範囲はピークより低エネルギー側においては 2ν 信号のしみ込みの影響がある事を考慮して $-1\sigma \sim +2\sigma$ としている。以下に加圧フェイズにおける条件を用いて得られた 0ν のエネルギースペクトルとフィッティングの様子を示す(図6.1)。

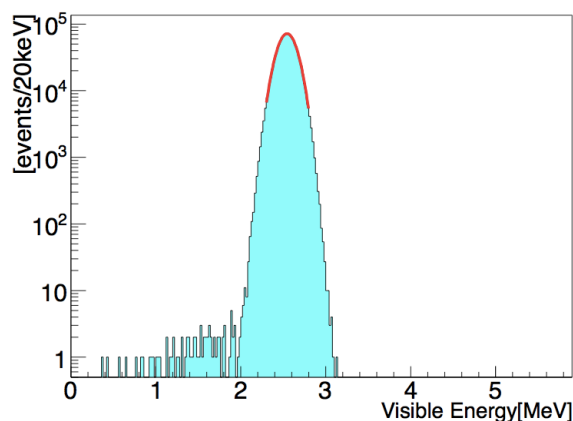


図 6.1: 0ν のエネルギースペクトルとフィッティングの様子

2MeV以下にしみ出しが見られるが、これは mini-Balloon 外に出て行ったイベントについてエネルギーを再構成する際に、Outer-LS 中で落としたエネルギーによる発光は相対発光量 α の因子を掛ける事で考慮されるのに対し、mini-Balloon のフィルムの中に落としたエネルギーは発光せず考慮されないためである。

3. Fiducial Volume の最適化

mini-Balloon には放射性不純物が含有、または付着しているため、mini-Balloon 表面付近のイベントを選択的に排除 (vertex cut) する事で、一様に発生する 0ν 信号に対する mini-Balloon 由来のバックグラウンド (主に ^{214}Bi) を低減させる事が可能である。本シミュレーションでは、 S (0ν 信号数) と B (予想される 0ν energy window 内のバックグラウンド信号数) で

$$\text{Figure of Merit} = \frac{S}{\sqrt{B+S}} \quad (6.5)$$

のように定義される Figure of Merit (FOM) を求め、その値が最大となるような有効体積を使用する事で最も高感度の結果を得る事が出来る。

本段階では段階 1 で作製した各バックグラウンド、 0ν 信号のイベント情報にそのイベントレートを決定するために必要な諸条件を付ける事で S と N の値を計算し、Figure of Merit を求める。以下に本段階で各バックグラウンドのイベントレートを求

める際に考慮する条件について述べる。

- 0ν 、 2ν イベントレート

2ν のイベントレートの計算には Xe の導入量及び、KamLAND-Zen の測定結果から得られた半減期 2.3×10^{21} [year] [17] を用いる。また、後述するグラフに用いている 0ν のイベントレートには核行列要素の中で広く使用されている QRPA (Quasi Random Phase Approximation) モデルを仮定し [24]、半減期を 1.14×10^{24} [year] としている。

- ^{10}C のタギング

2章 4.4 節で述べた通り、宇宙線ミュオンによる原子核破碎で生成された ^{10}C の崩壊イベントはニュートリノを含む 3 体崩壊であるため、放出される γ 線の持つエネルギーは広い幅を持ち、 0ν 信号の大きなバックグラウンドとなっている。以下に ^{10}C の生成、崩壊過程を示す (図 6.2)。

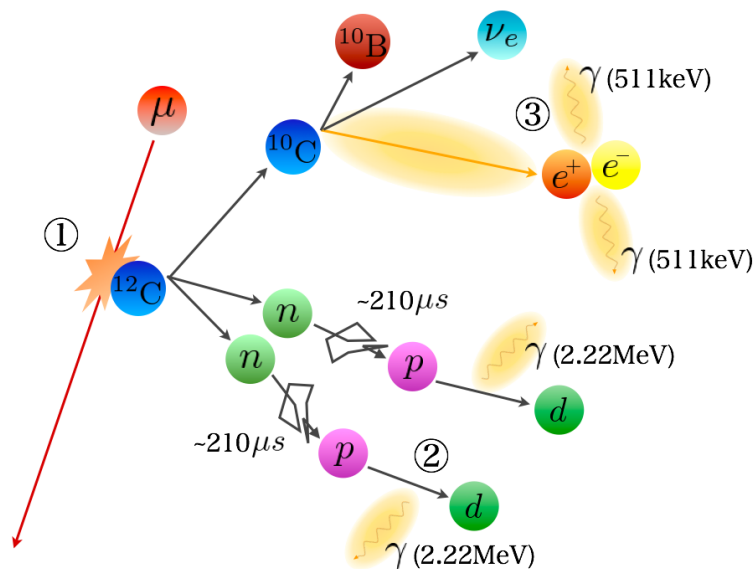


図 6.2: ^{10}C の生成、崩壊過程

- ①宇宙線ミュオンによる ^{12}C の原子核破碎で ^{10}C が生成される。
- ② ^{12}C の原子核破碎で放出された 2 つの中性子が熱中性子化した後、 $210\mu\text{s}$ の寿命で陽子に捕獲され 2.22MeV の γ 線を放出する。
- ③生成された ^{10}C は 27.8sec の寿命で ^{10}B に逆 β 崩壊し、 γ 線を放出する。

現在 KamLAND-Zen では、デッドタイムフリーデータ収集回路 MoGURA を用いて、これら3つのイベントの空間的・時間的相関からの遅延同時計測により ^{10}C のタギングを行っている。本シミュレーションではこの ^{10}C のタギング効率を 90% としている。

● ^{214}Bi のタギング

mini-Balloon の含む放射性不純物によるバックグラウンドの中で最も深刻なのが ^{238}U 系列崩壊核 ^{214}Bi による崩壊イベントである。以下に ^{238}U の崩壊過程において ^{214}Bi を含んだ一連の崩壊過程を示す (図 6.3)。

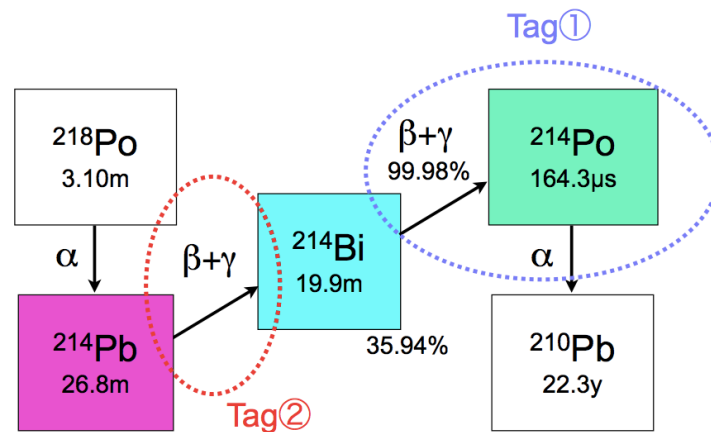


図 6.3: ^{214}Bi の崩壊イベントのタギング方法

KamLAND-Zen では ^{214}Bi の娘核である ^{214}Po の寿命が短い事を利用した ^{214}Bi の崩壊イベントとの遅延同時計測によるタギング (Tag1) と、親核である ^{214}Pb の崩壊イベントの同定によるタギング (Tag2) の、2種類のタギングを行う事でそのバックグラウンドレートを低減している。

Tag1

図 6.3 の通り、 ^{214}Bi の娘核である ^{214}Po の崩壊イベントは α 崩壊である。 α 線は電離作用が強く透過力が低いため、Tag1 の効率は mini-Balloon 内部で発生した α 線が mini-Balloon 外部に出る割合に依存している。加圧フェイズでは mini-Balloon の形状、材料は KamLAND-Zen と同様のものを想定しているため、ナイロン製 $25\mu\text{m}$ フィルムにおける α 線の透過割合は 80.1% である [25]。

また、mini-Balloon を透過した α 線がエネルギー閾値を超えていない場合も観測する事が出来ないため、 α 線がエネルギー閾値を超える割合も考慮する必要がある。 α 線がエネルギー閾値を超える割合は、感度導出手法の段階 1 で行っ

た加圧フェイズにおけるイベント情報の作製を ^{214}Po の崩壊イベントについて行う事で 83.4% と求められた。ここで、エネルギー閾値は高く設定するとタギングの効率が悪くなる一方、低過ぎるとイベントレートが多くなりエレクトロニクスによるデータ取得が追い付かなくなるため、0.2MeV と設定してある。

以上より加圧フェイズにおける Tag1 の効率は 66.8% と求められた。

Tag2

図 6.3 の通り、 ^{214}Bi の親核である ^{214}Pb の寿命は長いため、その同定には ^{214}Bi の崩壊イベント発生から広い time window と探索範囲を設定しなければならない。 ^{214}Pb の崩壊イベントと ^{214}Bi の崩壊イベントの時間相関と空間相関から、time window は 1 時間、vertex selection は 40cm と設定されており、この ^{214}Pb 同定効率は 87.6% となっている [25]。また、Tag1 と同様にして、エネルギー閾値 (0.2MeV) を超えるタギング可能なイベントの割合は 94.6% と求められたため、加圧フェイズにおける Tag2 の効率は 82.9% と求められた。

しかし、このタギングは時間空間共に広範囲に渡るイベント探索を行っているため、バックグラウンドの影響を受けやすい。最大のバックグラウンドは ^{40}K であり、この ^{40}K のイベントレートが多くなり過ぎるとタギングが出来なくなってしまふ。そこで、本シミュレーションでは ^{214}Pb イベント探索範囲内に現れる ^{40}K のイベントレートの制限から、mini-Balloon 中の ^{40}K 含有量が $1.0 \times 10^{-9}(\text{g/g})$ 以上の場合はタギングが出来ないものとし、Tag2 の効率を 0% としている。

Tag1、Tag2 により、加圧フェイズにおいて ^{214}Bi の崩壊イベントは 94.3% 除去可能 (mini-Balloon 中の ^{40}K 含有量が $1.0 \times 10^{-9}(\text{g/g})$ 以下の場合) と判明した。

● mini-Balloon に含まれる放射性不純物の量

2 章 4.4 節で述べた通り、mini-Balloon には自然放射線である ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 系列の放射性不純物が混入、付着している。 ^{238}U の含有量は、Tag1 で用いた ^{214}Po の崩壊により放出される 7.687MeV の α 線を用いた解析から、 $3.1 \times 10^{-12}(\text{g/g})$ と判明している [23]。 ^{232}Th の含有量は ICP-MS(高周波誘導結合プラズマ質量計)にて $(3.1 \pm 0.6) \times 10^{-12}(\text{g/g})$ と求められている。 ^{40}K の含有量は mini-Balloon に使用しているナイロンフィルムのサンプルを分析会社により超音波洗浄後、測定していただいたところ、 $2.0 \times 10^{-12}(\text{g/g})$ であるという事が判明した [26]。

以上より、本シミュレーションでは mini-Balloon に含有している放射性不純物の量を (^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K)= $(3.0 \times 10^{-12}, 3.0 \times 10^{-12}, 2.0 \times 10^{-12})(\text{g/g})$ とする

事とした。また、mini-Balloon 中の ^{40}K 含有量が $1.0 \times 10^{-9}(\text{g/g})$ 以下である事から ^{214}Bi の Tag2 が行える事も判明した。

- $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の取り扱い

KamLAND-Zen 第 1 フェイズで問題となった $^{110\text{m}}\text{Ag}$ であるが、2013 年に完了した液体シンチレータ及び、 ^{136}Xe の純化作業により全てが取り除かれたと仮定し、本シミュレーションにおいてはその寄与を 0 としている。

4. Upper Limit の計算

質量上限値の計算は統計学の片側検定を用いて見積もる事とした。手順は以下の通りである。

- i. 90% C.L. 領域の決定

感度導出の段階 3 で求めた 1 年間で得られる 0ν 信号数 (N_{signal}) とバックグラウンド数 (N_{BG}) を足し合わせた N_{Tot} を平均とした、イベント数に関する正規分布関数を作製する (図 6.4)。

$$f(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left\{-\frac{(N - N_{\text{Tot}})^2}{2\sigma^2}\right\}, \quad \sigma = \sqrt{N_{\text{Tot}}} \quad (6.6)$$

片側検定を行うために、正規分布関数の左側に面積割合 10% の領域を図 6.4 の通り N_{Left} によって設定する。片側検定は、ランダムに抽出したサンプルの持つイベント数が N_{Left} 以下だった場合、そのサンプルが N_{Tot} の作る正規分布に属するという仮定を棄却し、 N_{Tot} 以下の作る正規分布に属すると導くものである。

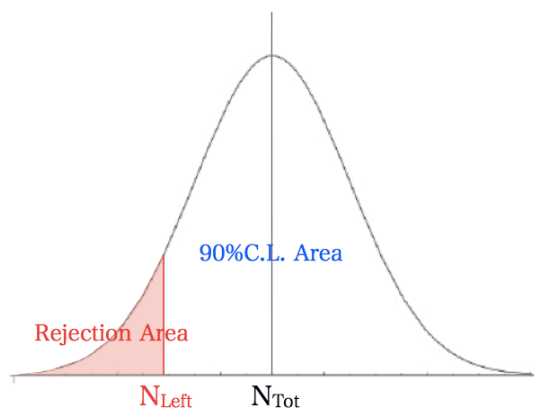


図 6.4: 正規分布関数と 90% C.L. 領域

ここで、この正規分布関数は $\langle m_{\beta\beta} \rangle = 150 \text{meV}$ と仮定して得られた 0ν 信号数

(N_{signal}) を使用して作製されたものである。質量上限値を求めるには各ニュートリノ有効質量の作る正規分布関数も作製しなければならないが、これは、 0ν 信号のイベントレートがニュートリノ有効質量の関数として表される事を利用して N_{Tot} を計算する事で作製出来る。各ニュートリノ有効質量の作る正規分布に対しても棄却領域をそれぞれ N_{Left} によって設定する (図 6.5)。

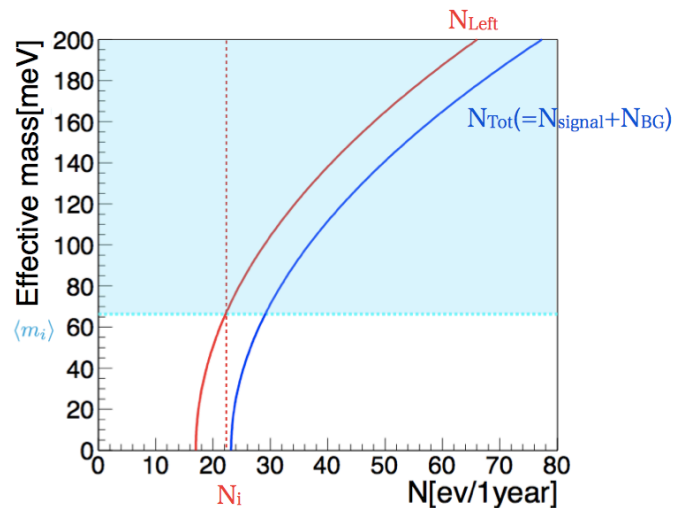


図 6.5: 90% C.L. Confidence Belt と質量上限値計算方法

ii. 検定のためのランダムデータ作製

片側検定に使用するランダムデータを作製する。検定に使用するランダムデータは、実際に取得されたデータは 0ν 信号が含まれていないものとして取り扱う事を考慮し、バックグラウンド数 (N_{BG}) を平均とする正規分布関数から抽出する。このようにバックグラウンドのみのデータを使用して検定を行う事で、 0ν 信号は観測されなかったがニュートリノ有効質量はこの値以下であるという上限値を求める事が出来る。ここで、抽出は 100,000 回試行する。

iii. 質量上限値の計算

ii. で i 番目に抽出されたデータの持つイベント数を N_i とする。例えば図 6.5 に示した通り、 N_i が 22 (Events/year) であったとすると、ニュートリノ有効質量 65 meV 以上の領域 (水色の領域) においては $N_i < N_{\text{Left}}$ であり、90% C.L. の領域から外れるため、「この抽出データは、あるニュートリノ有効質量 (この場合は 65 meV 以上) が作る正規分布に属する」と仮定した場合、その仮定が棄却される事になる。よって、「この抽出データが 0ν 信号を含み、あるニュートリノ有効質量が作る正規分布に属する」という仮定が採択されるにはニュートリノ有効質量は 65 meV 未満でなければならないため、この i 番目に抽出されたデー

タにより得られる質量上限値は 65meV となる。同様の試行を 100,000 回すべてのランダムデータに対して行い、その平均値を求める事で 1 年間の観測での質量上限値が計算される。観測期間を変更する場合は手順 i. で使用した、1 年間で得られる 0ν 信号数 (N_{signal}) とバックグラウンド数 (N_{BG}) をそれぞれその稼働期間で得られるイベント数に変更し、同様の試行を行う事により得られる。

6.4 結果

前節で述べた感度導出手法、条件を用いて加圧フェイズを実際に稼働した際に得られる質量上限値を計算した。

まず、以下に KamLAND-Zen 実験における 0ν 信号領域にかかるバックグラウンドレート、Figure of Merit についての結果 (図 6.6) と、1 年間の観測で予想されるイベント数を示す (図 6.7)。

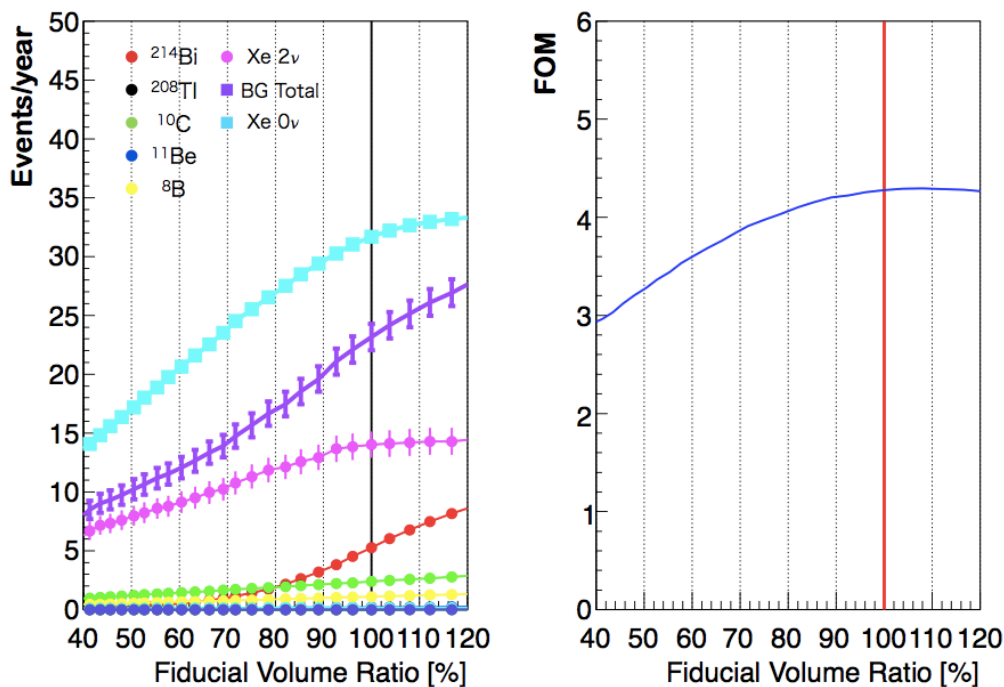


図 6.6: 各バックグラウンドレート (左)、Figure Of Merit(右)

図 6.6 左のバックグラウンドレートより、加圧フェイズにおける最大のバックグラウンドは ^{136}Xe の起こす $2\nu\beta\beta$ である事が分かる。他のバックグラウンドが純化作業や、タギングによって低減出来るのに対し、 $2\nu\beta\beta$ はエネルギー分解能を向上させる事でしか低減出来ず、加圧フェイズにおいてエネルギー分解能は KamLAND-Zen の

6.6%/√E から 6.3%/√E とあまり向上していない。しかし、バックグラウンドレートに対する $0\nu\beta\beta$ 信号数が多く、また、mini-Balloon 付近に存在する ^{214}Bi のイベントをタグgingにより低減させる事が出来ているため、有効体積を 100% 使用する事が可能であると図 6.6 右の Figure of Merit からも判明した。

有効体積を 100% 使用した際に 1 年間の稼働で観測が期待される 0ν 信号とバックグラウンドのイベント数は以下の通りとなっている (図 6.7)。

^{208}Tl	^{214}Bi	^{10}C	^{11}Be	^8B	Xe 2ν	Total	Xe 0ν
9.75×10^{-3} $\pm 1.10 \times 10^{-3}$	5.27 $\pm 1.77 \times 10^{-2}$	2.38 $\pm 1.10 \times 10^{-3}$	1.94×10^{-1} $\pm 6.80 \times 10^{-3}$	1.10 $\pm 2.42 \times 10^{-2}$	14.0 ± 1.13	23.16 ± 1.13	31.68 $\pm 3.61 \times 10^{-2}$

図 6.7: 1 年間の観測で期待されるイベント数

以下に、同様の手法により求められた KamLAND-Zen の 0ν 信号領域におけるバックグラウンドレートと比較したものを示す (図 6.8)。Xe 導入量の増加と液体シンチレータ変更による影響を確認するために、KamLAND-Zen においても $^{110\text{m}}\text{Ag}$ は含有されていないと仮定している。

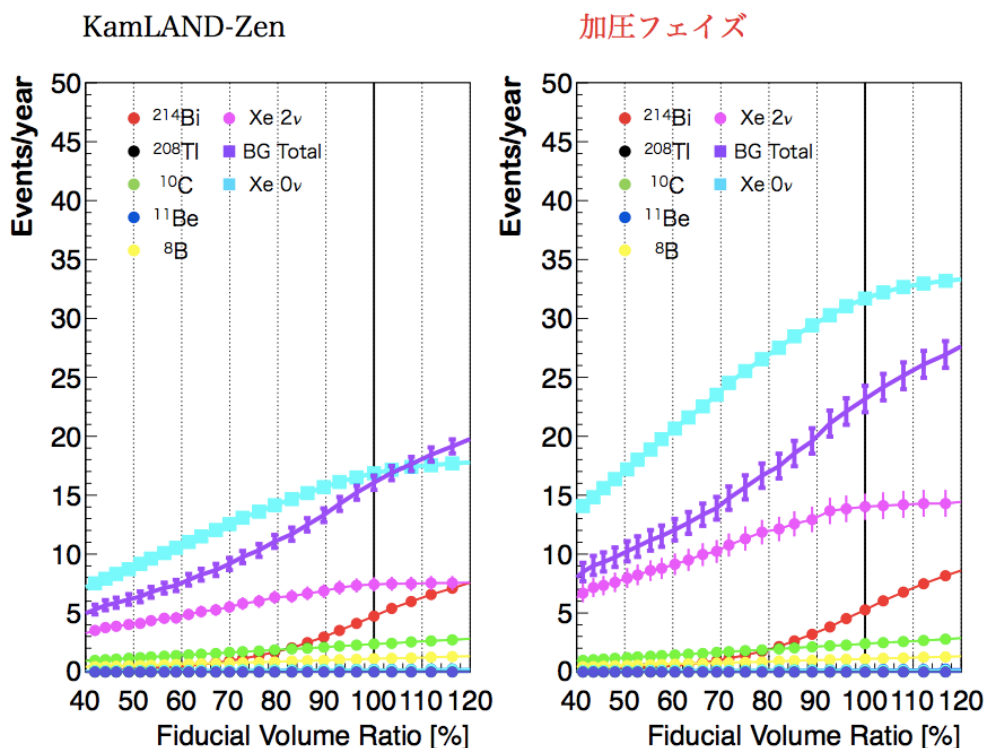


図 6.8: 0ν 信号領域におけるバックグラウンドレートの比較

加圧フェイズにおいてXe導入量が1.8倍になった事による効果が $0\nu\beta\beta$ と $2\nu\beta\beta$ のイベント数の違いから読み取れる。その他のバックグラウンドに関しては、エネルギー分解能などが変わっているためスペクトルが変化しているものの、放射性不純物の含有量、タギング効率などの条件がほぼ同じであるため、大きな変化は見られなかった。ここで、Figure of MeritはKamLAND-Zenに関しても有効体積100%で最大となっている。

Figure of Meritが最大になるような有効体積を使用した場合に、1年間で得られる $0\nu\beta\beta$ とバックグラウンドのイベント数から、実験稼働によって得られる質量上限値を計算した結果を以下に示す(図6.9)。

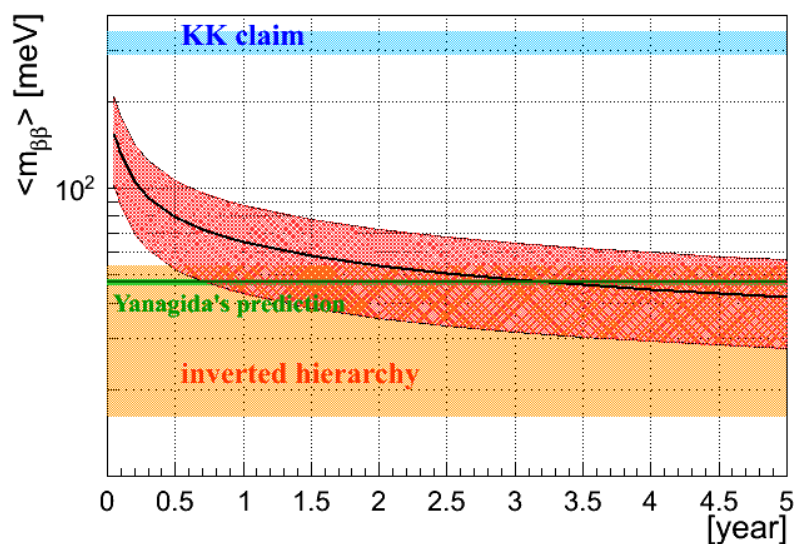


図 6.9: 加圧フェイズにおいて得られる質量上限値

黒線が得られる質量上限値であり、赤で示された領域は計算に使用している核行列要素のモデルであるQRPAモデルによる不定性を表している。加圧フェイズでは2年の稼働で逆階層構造(橙色の領域)の探索が可能となり、約3年半で柳田予測の検証を行う事が出来、5年の稼働で得られる質量上限値は $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 42\text{meV}$ となる事が判明した。以下に示したのは得られた質量上限値を現在のKamLAND-Zenと比較したものである(図6.10)。

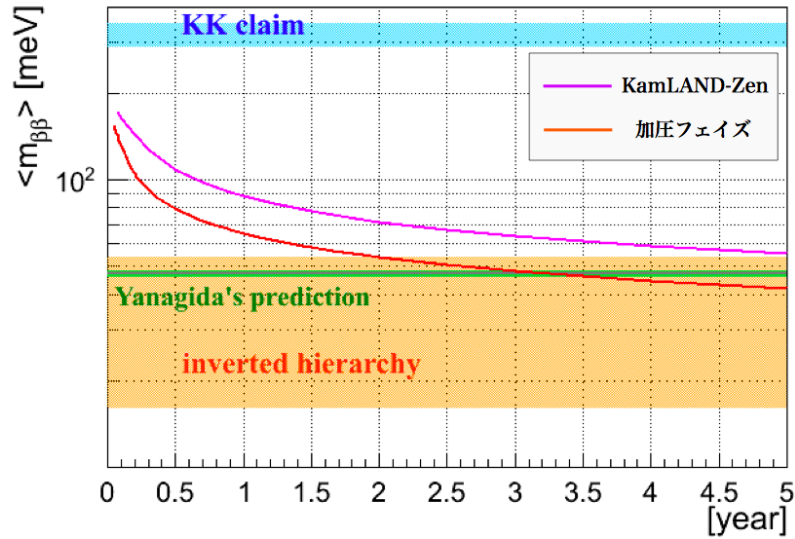


図 6.10: 得られる質量上限値の比較

6.5 まとめ

本章では、前章で開発した、加圧フェイズにおける密度と発光量に掛けられる制限を満たした新しい液体シンチレータの性能を評価するため、実際に加圧フェイズを稼働した場合に得られるニュートリノ有効質量の上限値をシミュレーションにより求めた。

結果は $2\nu\beta\beta$ を除いたバックグラウンドのイベントレートを現在の KamLAND-Zen と同等に保ちながら、Xe 導入量を増加させた事で $0\nu\beta\beta$ イベント数をおよそ 1.8 倍に増加させる事が出来ると判明した。Xe 導入量増加に伴い $2\nu\beta\beta$ イベント数も増加し、最大のバックグラウンドとなっているが、これについてはエネルギー分解能の向上が必要となる。また、有効体積も 100% 使用する事が可能であると分かった。

実験稼働により得られる質量上限値を求めた結果、KamLAND-Zen では 5 年の稼働でも探索する事の出来ない逆階層構造の探索に加圧フェイズでは 2 年で斬り込み、約 3 年半の稼働で柳田予測の検証を行う事が出来、5 年の稼働で得られる質量上限値は $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 42\text{meV}$ となる事が判明した。

第7章 結論と今後の課題

^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験である KamLAND-Zen では、バックグラウンドの増加の抑制、もしくは減少させた上で崩壊核 ^{136}Xe の導入量増加による感度向上を目指す将来計画の検討が進んでる。本研究では比較的早期に実現する可能性の高い KamLAND-Zen 800kg フェイズ、及び加圧フェイズの持つ問題解決に臨んだ。

800kg フェイズ

800kg フェイズでは mini-Balloon の強度は変更する事なく、大きいものに作り替えられる予定である。そのため、mini-Balloon 内外の液体シンチレータの最大密度差はこれまでの 0.1% から 0.05% へと制限が厳しくなる。また、KamLAND-Zen の導入作業の経験より、大気圧下と mini-Balloon の置かれる 1.8 気圧の加圧環境下における Xe 溶解 Xe-LS の密度が異なると考えられているため加圧環境を実現した上で密度を測定出来る装置の開発と測定を行った。その結果、加える圧力と密度増加の傾向を明らかにする事が出来、その値は KamLAND-Zen 稼働時に観測された値と隔たりがあるものの同じオーダーで再現する事に成功した。しかし、本実験は高価で使用出来る量に限りがあるという理由から、KamLAND-Zen で使用している ^{136}Xe ではなく ^{nat}Xe を使用している。分子量や Xe-LS に溶解した際の体積膨張率に違いがあるため、今後 ^{136}Xe を用いた詳細な実験をこれから行い、800kg フェイズを実現するための情報を取得する必要がある。

加圧フェイズ

加圧フェイズでは mini-Balloon の置かれる加圧環境を利用し、Xe を加圧しながら Xe-LS に溶解する事で mini-Balloon の大きさを変更する事なく Xe 導入量を増加させる予定である。そのため、mini-Balloon 内部の液体シンチレータの密度は現在よりも重くなる事は避けられない。本研究では加圧フェイズにおいても mini-Balloon 内外の液体シンチレータの密度差をなくすために新しい液体シンチレータの開発とその性能評価を行った。Xe を溶解する事により発光量が低下してしまう問題を解決するために、PC の配合割合を増加させた N-10 ベースの NewXe-LS を開発し、この NewXe-LS に密度を合わせるように透過率が非常によいイソパラフィンを用いた NewOuter-LS、

NewBuffer-Oil を開発した。これら新しい液体シンチレータを用いて加圧フェイズを稼働させた場合に得られる質量上限値をシミュレーションにより求める事で定量的な評価を行った。結果は2年で逆階層構造での探索に入り、3年半で柳田予測の検証を行う事が可能であり、5年で得られる質量上限値は $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 42\text{meV}$ というものであった。これからは透過率変化の測定を中心とした液体シンチレータの経年変化など実用に向けた研究開発が必要となって来る。

謝辞

本論文の執筆、及び大学院での2年間の研究生活にあたり、多くの方々からご指導とご協力を頂きました。この場をお借りして厚く御礼申し上げたいと思います。

教員・研究員の方々

まず、指導教官である井上先生にはニュートリノセンターという非常に恵まれた環境で研究を行う機会を与えて頂きました。また、大変多忙であるにも関わらず何度も発表練習に付き合ってくれ、毎回スライドの構成など細かい箇所まで助言を頂きました。話し易い人柄と統率力の高さに大変感動し、就職活動の面接で尊敬する人を聞かれた際、先生について熱く語った程です。

白井先生には発表練習にて多くの質問をして頂きました。その質問はどれも私の勉強不足な点を突いて来るもので、発表会本番においても、厳しい質問がなく何とかなるかもしれないと思っていた矢先の強烈な質問で冷や汗をかかせて頂きました。勉強しておきます。

三井先生には主に4年生の時からセミナーでお世話になりました。理解の出来ない点をすぐに見抜いて指摘してくれるため非常に勉強のしがいがありました。後輩たちにも同様、鋭い指摘をたくさんして行って頂きたいと思っております。

古賀さんとは仙台でお会いする機会はあまりありませんでしたが、神岡出張の際は毎回お世話になりました。古賀さんとの会話と番屋のすしを目的に神岡に行ったと言っても過言ではありません。発表会後のお寿司は幸せでした。

健悟さんには神岡シフトで非常にお世話になりました。毎回とても丁寧に基礎から指導してくれるので、初めての作業を行う際には1stシフトを希望し健悟さんと組む確率を高める様にしていました。

丸藤さんには本研究全てにおいて直接指導をして頂きました。実験結果が出る度に意見を伺いに行き、次のステップへのGOサインをもらう事が実験追い込み期の精神安定剤でした。また、本論文の執筆においても非常にお世話になり、添削をお願いすると翌日には論文が訂正で真っ赤に染まって返って来ました。スペルミスなど細かい箇所まで精読し訂正して頂いた事、本当に感謝しております。おかげで満足の行く論文を書き上げる事が出来ました。それにしても何故、丸藤さんが進捗状況を訪ねて来

るのはほぼ 100% 研究合間の漫画を読んでいる時なのではないでしょうか。サボり過ぎのイメージが付いてないか心配です。

池田さんにはよく院生部屋の方に足を運んで、雑談の相手をして頂きました。研究の話からスポーツの話まで幅広い話題を持ち、いくら話しても飽きず、中でもネコの可愛さについて語っている時間は非常に幸せで午後の研究時間が消える事も多々ありました。本研究では 3 章 密度測定装置の LabView の設定をやって頂きました。

清水さんとは TA の仕事に話をすることが多くあり、毎回研究に対する姿勢に感心させられていました。修論執筆期には「清水さんまだ残ってるしもう少し頑張るか」と、気付けば朝になっている事もありました。過労には気を付けて頂きたいです。

石徹白さんは学生の研究ほとんどに関わっている印象で(最近では上手く他の人に仕事を振り分けているようですが)、そのハングリー精神は今後見習って行きたいと考えております。あ、ベテルギウス撮影用にカメラ買しましょう！Photoshop も！

上島さんとはよく神岡シフトで一緒になり、毎回シフト内容を一から丁寧に教えて頂きました。また、話題提供能力に非常に優れており、今後適度に見習って行きたいと考えております。結婚のご報告楽しみに待っています。

渡辺さんには本論文 6 章 感度に対するシミュレーションにて非常にお世話になりました。プログラムが苦手だったにも関わらず、シミュレーションをやりたいなどと M2 後期に言い出し、毎晩のように山内さん、白旗さんとローテーションを組んで質問責めにしてしまった事本当に申し訳ありませんでした。

玉江さんにはコンピュータ関係で非常にお世話になりました。パソコンを買い替えたり、何か問題が発生したらとりあえず玉江さんの所に行けば何とかなんと頼りつきりでしたが、今後はそうも行かないので基礎から勉強し直します。

寺島さんは研究者、社会人の鏡的な存在でした。夜型の多いニュートリノセンターでお昼頃には研究室に来て仕事をさくさく、午後にお茶を飲みながらみんなと団欒。もうひと頑張りしても日は跨がない。来年からそうありたいと考えております。

本木さんは非常に話し易く、学生を除けば最も雑談をした相手だと思います(もちろん研究の話もしました)。テニスの腕もちょうどいいレベルで一緒にいて楽しく、研究の事を忘れてしまう程でした(もちろん研究しろと叱咤激励も頂きました)。来年からは神奈川県民になるので暇な時には遊んで頂きたいものです。

先輩方

竹本さんは D 論の執筆で忙しいにも関わらず、よく構って頂きました。研究室に来ると机の上にネコの本、漫画が置かれているという罫が仕掛けられ研究時間が潰れる事は日常茶飯事でした。また、後輩が困っていると自分の仕事を置いてでも助けてく

れるといういい人っぷりで、無事に一緒に卒業出来る事嬉しく思っております。

吉田(学)さんは非常に要領が良く、苦勞している姿を見る事なくD論を書き上げてしまいました。しかし実際は禁酒生活を行う(吉田さんが禁酒!そんな事出来るのか!?)と感じました)など意志を強く持っており尊敬すべき先輩、青森県の誇りと感じております。

Bendaも仕事が非常に早く、午前中から仕事をするニュートリノセンターにはなかなかいない珍しいタイプでした。日本語が上手く普通に会話が成り立ってしまうので、基本日本語での会話になってしまって申し訳ないなあと。

松田さんには神岡でのエキスパートの仕事から解析の仕事と、来年からのKamLANDグループを引っ張って行くための頑張りをいつも見せつけてもらっていました。これが博士に進むという事なのだなあと松田弟として誇らしく思っています。

この他にも卒業して行った先輩には非常にお世話になりました。本研究で使用した測定装置の測定原理や使用法などは全て卒業された先輩方に教えて頂きました。また、就職活動におけるアドバイスを頂いたり、愚痴を聞いて頂いたりと感謝し尽くせません。ありがとうございました。

同期達

大木くんは席が隣という事もあり、ふと思いついたしょうもない話題や疑問などを大木くんが研究中であろうと関係なしに取り敢えず振っていました。正直めんどくさいなあとと思う事も多くあったはずですが、毎回全力でリアクションしてくれて非常に楽しかったです。そして、その全力リアクションを逆にめんどくさいなあとと思い無視してしまった事もよくあり本当に申し訳なく思っています。これからも同じ関東圏での就職なので飲みなり麻雀なりと遊んでもらえればなあと思っています。

山内さんとは就活、修論期の精神擦り切れ仲間として常にお互いを励まし合っていました。また、女の子を紹介してもらったりと研究外でも大変お世話になりました。ほんとと頭上がらないです。夕方に研究室に来て、朝を迎えてから帰るという異常な生活リズムでがんがん研究を進めるスタイルは爆発力があるけど当然健康的じゃないので、上手く体調コントロールしながら会社のエースとして頑張ってもらいたいものです。あと、関東圏の知り合い紹介よろしく願います。

石川くんには同期の中でのネタ提供係として働いてもらいました。挙動一つ一つに笑いが含まれており、石川くんのいない時もそれをネタにずいぶんと楽しませてもらいました。また、どんな時だろうとマイペースを崩さない姿勢には限度があるものを見習う所があり、来年からは石川くんのようにNoと言える社会人になれるように頑

張ります。これからもニュートリノセンターのいただきます、ごちそうさまを管理して行って下さい。

江澤くん、鎌田くん、帰ってこい。

後輩達

後輩達にも非常にお世話になりました。尊敬されているのか良く分からないような扱いを受ける事が多々ありましたが修論が忙しかろうと構わず話しかけてくれたので嫌われてはなかったはずです。後輩達との思い出は数え切れない程ありますが、残念ながら時間と気力がありませんので割愛させていただきます。

来年は mini-balloon 再作製などの作業があり自分の研究と両立するのは大変かもしれませんが、あの松田さんでも卒業出来たのだから何とかなるさ、と焦らずに学生である期間を楽しみながら頑張ってください。

技術職員、事務職員の皆様

技術職員の方々には本研究全てにおいて非常にお世話になりました。実験に必要な機器の購入などをスムーズに行え、何不自由なく研究をする事が出来たのは全て技術職員の方々をサポートしてくれたおかげであると思っております。特に中嶋さんには3章 密度測定装置の設計から作製までサポートして頂きました。曖昧な要求や改良する度に発覚する新しい問題など、常に中嶋さんの頭を悩ませてしまいましたがとても頼もしかったです。

事務職員の方々には出張、書類提出の度にお世話になっていました。毎回提出が遅れ催促のメールを送らせたりなどたくさん迷惑をお掛けしました。特に海外出張での旅費申請の際は非常に助かりました。M2 一同感謝しております。

最後に、常にサポートしてくれた家族や友人に感謝の意を表すと共に、皆様のこれからのご活躍をお祈り申し上げます。

参考文献

- [1] C.L.Cowan, J.F.Reines. et al. Science 124(1956)103
- [2] G.Danby, et al. Phys.Rev.Lett. 9(1962)36
- [3] K.Kodera, et al. Phys.Lett.B 504(2001)218
- [4] Y.Hukuda. et al Phys.Rev.Lett. 81(1998)1562-1567
- [5] M. Goldhaber, L. Grodzins, and A. W. Sunyar, Phys. Rev. 109, 1015 (1958)
- [6] K. Nakamura et al. (Particle Data Group), J. Phys. G 37 (2010).
- [7] Particle Data Group 2013
- [8] K.Harigaya, M.Ibe and T.T.Yanagida Phys. Rev. D 86, 013002 (2012)
- [9] H. V. Klapdor-Kleingrothaus et al., Eur. Phys. J. A 12, 147 (2001).
- [10] H. V. Klapdor-Kleingrothaus, and I. V. Krivosheina, Mod. Phys. Lett. A 21, 1547 (2006).
- [11] A. S. Barabash, and V. B. Brudanin (NEMO Collaboration), Phys. At. Nucl. 74, 312 (2011).
- [12] M. Auger et al. (EXO Collaboration), Phys. Rev. Lett. 109, 032505 (2012).
- [13] M. Agostini et al. (GERDA Collaboration), Phys. Rev. Lett. 111, 122503 (2013)
- [14] A. Gando et al. (The KamLAND Collaboration), Phys. Rev. D 83, 052002 (2011).
- [15] A. Gando et al. (The KamLAND Collaboration), Nature Geoscience 4, 647-651 (2011).
- [16] CHATWIN-DAVIS A Emile (private communication)

- [17] A.Gando et al. (The KamLAND-Zen Collaboration) Phys.Rev.Lett.110, 062502 (2013)
- [18] 小畑 旭 修士論文「Xeを用いた二重ベータ崩壊実験のための集光ミラーと大光量液体シンチレータの開発」 東北大学 平成 24 年度
- [19] 花籠 紘 修士論文「KamLAND 用高位置分解能イメージング検出器の開発」 東北大学 平成 24 年度
- [20] 藪本 洋 修士論文「ニュートリノレス二重 β 崩壊探索のためのキセノン含有液体シンチレータの特性研究」 東北大学 平成 23 年度
- [21] 加藤 領 修士論文「ニュートリノレス 2 重ベータ崩壊探索のための液体シンチレータ開発」 東北大学 平成 23 年度
- [22] K.Ueshima, S.Yoshida (private communication)
- [23] 松田 さゆり 修士論文「第一期 KamLAND-Zen 実験における ^{136}Xe のニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊に対する制限」 東北大学 平成 24 年度
- [24] V.A. Rodin et al. Nucl.Phys. A766 (2006) 107-131
- [25] H.Watanabe (private communication)
- [26] 丸藤 祐仁, 井上 邦雄 (2011) 「KamLAND-Zen 実験」『高エネルギーニュース』第 30 巻 3 号