# 修士論文

# カムランド禅用ミニバルーンの開発研究

# 東北大学大学院理学研究科

# 物理学専攻

# 中田 貴広

## 平成23年度

#### 概要

我々の研究グループでは、液体シンチレータ反ニュートリノ検出器 KamLAND を 用いて、<sup>136</sup>Xe の二重ベータ崩壊観測実験 (KamLAND-Zen 実験) を 2011 年 9 月より 開始した。

二重ベータ崩壊とは2つの核子が同時にベータ崩壊し、エネルギー的により安定な 原子核へ変化する現象である。この二重ベータ崩壊には2つのモードが考えられ、一 方は2個の反電子ニュートリノが放出される場合(2*ν*モード)であり、もう一方は ニュートリノが放出されない場合(0*ν*モード)である。

 $2\nu: (A, Z) \quad (A, Z+2) + 2e^- + \overline{\nu}$  (1)

$$0\nu: (A,Z) \quad (A,Z+2) + 2e^{-}$$
 (2)

二重ベータ崩壊の崩壊モードのうち、0*ν* モードを観測することはニュートリノがマ ヨラナ粒子であることの証明となり、ニュートリノの絶対質量や質量構造を解明する と共に、レプトン数非保存やシーソー機構、レプトジェネシスの検証等、標準理論を 越える物理への足がかりとなる。0*νββ*の半減期は原子核によるものの10<sup>21</sup>~10<sup>25</sup>年 以上と予想されており、非常に長い。また、崩壊エネルギーも数MeV と低いため、大 量の原子核を低バックグラウンドで測定する必要がある。その点で、KamLAND検出 器は既に世界最高水準の低バックグラウンド環境を実現しており、また既存の装置で あるため、非常に安価で実験を開始することが出来る。

本研究で用いる<sup>136</sup>Xeは同位体存在比が大きい(9%)こと、濃縮手法が確立されてお り高純度の<sup>136</sup>Xeが容易に得られること、希ガスであるため化学的に安定であり、更 に液体シンチレータに容易に溶解するため実験装置の大型化も可能である等多くの利 点を持つ。

KamLAND-Zen 実験ではこれまでの KamLAND 実験で培われた極低放射能環境・高 分解能検出器のノウハウを活かし、<sup>136</sup>Xe を溶かした新組成液体シンチレータを miniballoon と呼ばれる容器を用い導入する。この mini-balloon は 24 枚のフィルムを溶着 したものを用いるが、そのフィルムには様々な条件が要求され、特に

・光透過度等の光学的特性

・放射性不純物の含有量

は実験感度に関わる重要なパラメータである。

本研究では、実際の mini-balloon に用いるフィルムの選定・決定のために行った実験、その構造について、そして実際の製作過程など、mini-balloon の完成までを詳細

にまとめた。

以上の研究によって、mini-balloonの製作が完了し、KamLAND 検出器へのインストールが成功したことにより、KamLAND-Zen 実験を開始した。

# 目 次

第1章	はじめに								
1.1	ニュートリノ	1							
1.2	太陽ニュートリノ問題								
1.3	ニュートリノ振動............................	4							
笂り音		7							
<b>布</b> 4 早		-							
2.1		7							
2.2	二重ベータ崩壊の2つのモード $(2\nu$ モード、 $0\nu$ モード)	9							
2.3	それぞれのモードの半減期とニュートリノの有効質量	10							
2.4	二重ベータ崩壊が起こる原子核	11							
2.5	様々な二重ベータ崩壊探索実験	13							
	2.5.1 これまでに行われてきた探索実験	15							
	2.5.2 現在計画中、または実験準備中の探索実験	16							
第3章	KamLAND 検出器	20							
3.1	KamLAND とは	20							
	3.1.1 実験の概要	20							
	3.1.2 検出器の構造	21							
	3.1.3 液体シンチレータ (LS) とバッファーオイル	23							
3.2	KamLAND における反電子ニュートリノの検出原理.......	25							
	3.2.1 反電子ニュートリノ検出	25							
	3.2.2 光電子増倍管 (PMT)	26							
第4章	KamLAND-Zen 実験	28							
4.1	実験の概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	28							
4.2	二重ベータ崩壊核 <sup>136</sup> Xe の特徴	29							
4.3	<sup>136</sup> Xe 含有液体シンチレータ	30							
4.4	mini-balloon	31							
4.5	バックグラウンド	34							

わり早	mini-balloon のためのフィルムの選定と開発 38								
5.1	概要								
5.2	フィルムに対する要求項目........................	38							
5.3	選定を行うフィルム								
5.4	破断強度測定	42							
	5.4.1 <b>実験手順</b>	42							
	5.4.2 実験結果と考察	43							
5.5	放射性不純物の含有量測定..........................	45							
	5.5.1 <b>測定方法</b>	45							
	5.5.2 結果	45							
5.6	光透過度測定	47							
	5.6.1 実験手順	47							
	5.6.2 実験の精度と留意点	48							
	5.6.3 測定結果とその評価方法	50							
5.7	Xe バリアー性測定	57							
	5.7.1 実験手順	58							
5.8	結果のまとめ	60							
5.0	溶差を供った字								
5.9	<b>冷有示けの次正</b>	63							
5.9 第6章	<sup>A</sup> 看示叶の決定 mini-balloon に付属する部品の選定	63 67							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1	<sup>A</sup> 看示叶の決定 mini-balloon に付属する部品の選定 概要	63 <b>67</b> 67							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2	<sup> 合有示叶の決定</sup> mini-balloon に付属する部品の選定 概要 吊り紐 	63 <b>67</b> 67 67							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2	A 宿 示 H の 次 正 … … … … … … … … … … … … …	63 67 67 67 67							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2	<ul> <li> 哈福示叶の決定 </li> <li> mini-balloon に付属する部品の選定 </li> <li> 概要 </li> <li> 吊り紐 </li> <li> 6.2.1 吊り糸 (スーパー繊維) </li> <li> 6.2.2 放射性不純物の含有量 </li> </ul>	63 67 67 67 67 68							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2	冷看示叶の決定	63 67 67 67 67 68 68							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2	<sup>合</sup> 看示叶の決定           mini-balloon に付属する部品の選定             概要           …             吊り紐           …             6.2.1           吊り糸 (スーパー繊維)             6.2.2         放射性不純物の含有量               6.2.3           吊りベルト (ナイロンフィルム)             6.2.4           吊り糸 (スーパー繊維)	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>68</li> <li>68</li> <li>69</li> </ul>							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2	A音示叶の決定       mini-balloon に付属する部品の選定         概要	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> </ul>							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2 6.3	Aaasthouxe       mini-balloon に付属する部品の選定         概要	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> <li>74</li> </ul>							
5.9 第 <b>6章</b> 6.1 6.2 6.3 6.4	Aaasthorke       mini-balloon に付属する部品の選定         概要	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> <li>74</li> <li>76</li> </ul>							
5.9 第6章 6.1 6.2 6.3 6.4 第7章	A音示叶の決定       mini-balloon に付属する部品の選定         概要	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> <li>74</li> <li>76</li> <li>79</li> </ul>							
5.9 第6章 6.1 6.2 6.3 6.4 第7章 71	冷有示けの決定       …         mini-balloon に付属する部品の選定         概要       …         吊り紐       …         6.2.1       吊り糸 (スーパー繊維)         6.2.2       放射性不純物の含有量         6.2.3       吊りベルト (ナイロンフィルム)         6.2.4       吊り糸 (スーパー繊維)の強度         6.2.5       ベクトランの耐 LS 性         ナイロンコルゲート管       …         PEEK 製接続管       …         mini-balloon の製作         概要	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> <li>74</li> <li>76</li> <li>79</li> <li>79</li> </ul>							
5.9 第6章 6.1 6.2 6.3 6.4 第7章 7.1 7.2	A音示叶の決定       mini-balloon に付属する部品の選定         概要	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> <li>74</li> <li>76</li> <li>79</li> <li>79</li> <li>79</li> </ul>							
5.9 第6章 6.1 6.2 6.3 6.4 第7章 7.1 7.2 7.3	冷看示叶の床座	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> <li>74</li> <li>76</li> <li>79</li> <li>79</li> <li>81</li> </ul>							
5.9 第6章 6.1 6.2 6.3 6.4 第7章 7.1 7.2 7.3 7.4	A音示叶の決定	<ul> <li>63</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>71</li> <li>74</li> <li>76</li> <li>79</li> <li>79</li> <li>81</li> <li>82</li> </ul>							

第9章	結論 1	100
	8.3.4 Xe 入り液体シンチレータの送液	99
	8.3.3 ダミー液シンの送液と循環	99
	8.3.2 mini-balloon 本体のインストール	98
	8.3.1 カメラと照明の設置	97
8.3	KamLAND 検出器へのインストール	97
	8.2.2 インストールテスト	95
	8.2.1 インストールの条件	93
8.2	インストールの様々な条件とインストールテスト	93
8.1	概要	93
第8章	mini-balloon のインストールと現在の状況	93
	7.6.3 製作まとめ	92
	7.6.2 補修作業	90
	7.6.1 接着剤の選定	86
7.6	補修作業.................................	86
7.5	ヘリウムによるリークテスト......................	84

謝辞

102

# 図目次

1.1	pp チェインと CNO サイクル	3
1.2	既知のニュートリノ振動パラメータ....................	6
2.1	ニュートリノ振動から予想される質量構造	7
2.2	ディラックニュートリノとマヨラナニュートリノ	8
2.3	$2\nu$ モードと $0\nu$ モード	9
2.4	二重ベータ崩壊のエネルギースペクトルと、ニュートリノの質量構造	11
2.5	二重ベータ崩壊のエネルギー準位図	12
3.1	KamLAND <b>エリアの全体図</b>	20
3.2	$\operatorname{KamLAND}$ の反電子型ニュートリノの $\operatorname{L/E}$ 分布と、その他の過去の原	
	子炉ニュートリノ実験	21
3.3	KamLAND 検出器概略図	22
3.4	液体シンチレータ構成物	24
3.5	KamLAND での反電子ニュートリノ検出の原理	25
3.6	光電子増倍管の概略図	27
3.7	KamLAND で用いている 17inchPMT の量子効率	27
4.1	KamLAND-Zen 実験の概要	28
4.2	KamLAND-LS 組成	30
4.3	<sup>136</sup> Xe 含有液体シンチレータ組成	30
4.4	ハンドリングシステム	30
4.5	バルーンの構造図と実寸大バルーン	32
4.6	mini-balloon $\exists \mathcal{P}$	33
4.7	KamLAND-Zen 実験におけるエネルギースペクトル	34
4.8	$^{238}$ U系列の $^{214}$ Bi Tagging	35
4.9	有効体積と <sup>238</sup> U 含有量依存性	37
4.10	年間に測定するイベント数の予想	37
5.1	エージングの手順...............................	43

5.2	実験に用いたフォースゲージ ZP-200N	43
5.3	分光光度計とその構造	48
5.4	シクロヘキサンの測定データ......................	49
5.5	酸素による Xe-LS の光透過度の劣化	49
5.6	様々なフィルムの光透過度........................	50
5.7	EVOH フィルムの光透過度	51
5.8	ナイロンフィルムの光透過度.......................	51
5.9	フィルムの溶け出しによる光透過度の低下	53
5.10	EVOH 溶け出しの光透過度の fitting 結果	54
5.11	ナイロン溶け出しの光透過度の fitting 結果 ..........	55
5.12	初期型フィルム保持装置	57
5.13	改良型フィルム保持装置	57
5.14	完成版フィルム保持装置............................	58
5.15	TCD ガスクロマトグラフィーの構造	59
5.16	filler <b>無しフィルム自身の光透過度</b>	61
5.17	filler 無しフィルムの溶け出しによる光透過度へのダメージ	61
5.18	溶け出しの fitting 結果	62
5.19	溶着の様子と溶着線	64
5.20	リークテストの方法	64
5.21	溶着の概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	65
6.1	バルーンの構造図.............................	67
6.2	ナイロンフィルムで作成した吊りベルト	69
6.3	ベクトランの強度測定	70
6.4	ダメージを受けた LS の光透過度	72
6.5	ベクトランと洗浄の様子	73
6.6	未洗浄と洗浄後の LS の光透過度	74
6.7	ナイロン製とテフロン製コルゲート管............	75
6.8	PEEK 製接続管の概要	76
6.9	ペレット状の PEEK 材	77
6.10	PEEK <b>材を入れた</b> LS の光透過度	77
6.11	接続管と mini-balloon の接続図	78
6.12	接続管の断面図と完成写真・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	78
7.1	クリーンルーム内部	80

7.2	超音波洗浄、窒素乾燥とピンホールチェック	81
7.3	フィルムの切り出しの様子.......................	82
7.4	溶着作業.................................	83
7.5	へリウムで膨らんだ mini-balloon とヘリウムリークディテクター...	84
7.6	リークの多かった箇所	85
7.7	mini-balloonの南極部	85
7.8	レゾルシノールによるフィルム溶着テスト	87
7.9	アロンアルファの耐 LS 性	88
7.10	補修作業................................	90
7.11	補修作業の様子	91
7.12	梱包作業により mini-balloon が詰められた密封箱	92
8.1	KamLAND ドームエリアに設置されたクリーンルーム	93
8.2	1/4スケール mini-balloon のテスト	95
8.3	東北大体育館でのヘリウム+N2ガスによる膨らませテスト	96
8.4	1回目の実寸大バルーンテスト	96
8.5	2回目の実寸大バルーンテスト	97
8.6	KamLAND 装置に投入された照明とカメラ...........	97
8.7	カメラによって写されたインストール時の mini-balloon	98
8.8	KamLAND 開口部への mini-balloon 投入と開口部から見た KamLAND	
	内部	98

# 第1章 はじめに

## 1.1 ニュートリノ

ニュートリノという粒子の存在は 1930 年 W.pauli により初めて提唱されたもので ある。[1]

それよりも更に 30 年前の 20 世紀初頭、1 個の中性子が陽子と電子に崩壊する中性子 のベータ崩壊が初めて測定された。

$$n \quad p + e^{-} \tag{1.1}$$

この際ベータ崩壊は原子核中に閉じ込められた電子が飛び出すと考えられており、 原子核は陽子と電子からできていると考えられた。しかし、この崩壊に伴うベータ線 のエネルギースペクトルを測定した結果、電子のエネルギーは(1.1)の2体崩壊から予 想される一定のエネルギーではなく、予想されたエネルギーよりいつも小さいもので あった。つまりエネルギー及び運動量保存則を満たしていないものであったのである。 また、中性子は半整数、陽子と電子も半整数のスピンを持っているため、反応の前後 ではスピンが半整数から整数へと変化してしまい、角運動量保存則を破るものである が、実験の結果とは矛盾を起こしたのである。W.Pauliがニュートリノという粒子を 予言した理由のひとつがこの問題を解決するためであった。そして E.Fermi によって ニュートリノがベータ崩壊理論に組み込まれ、ニュートリノはエネルギー、運動量、 スピン 1/2を持つが、電荷を持たず、質量もほとんどない粒子であると推定したので ある。[2]

$$n \quad p + e^- + \overline{\nu}_e \tag{1.2}$$

ただし、この時 Fermi はニュートリノの質量は0 と仮定していた。

こうして導入されたニュートリノという粒子が実際に初めて観測されたのは 1956 年 F.Raines と C.Cowan ら [3] によってである。彼らは原子炉から来る電子型反ニュー トリノ ( $\overline{\nu}_e$ )を用いて逆ベータ崩壊の観測に成功した。

その後 1962 年には Brookhaven 国立研究所で Schwarz らによりミュー型ニュート リノ ( $\nu_{\mu}$ )の存在が確認され [4]、1975 年に  $\tau$  粒子が発見され存在が予想されていたタ ウ型ニュートリノ  $(\nu_{\tau})$ は 2000 年に DONUT 実験により初めて実験的に観測された。 [5] これらの素粒子の観測によって物質を構成する素粒子が全て発見された。

標準理論において物質を構成する基本粒子はクォークとレプトンである。どちらも スピン 1/2 のフェルミオンで、電荷が1 だけ異なる対が3世代、合計6種類ずつ存在 する。

	電荷	第1世代	第2世代	第3世代
クォーク	+2/3	u	с	t
	-1/3	d	s	b
レプトン	-1	е	$\mu$	au
	0	$ u_e $	$ u_{\mu}$	$ u_{ au}$

表 1.1: クォークとレプトン

## 1.2 太陽ニュートリノ問題

太陽内部の反応過程は太陽エネルギーの 98.5%を占める pp チェインと呼ばれる陽 子の連続核融合反応と、CNO サイクルと呼ばれる炭素-窒素-酸素のサイクルの2つの 過程によって行われている。ここで太陽の核融合反応式は次のように書ける。

$$4p \quad {}^{4}\text{He} + 2e^{+} + 2\nu_{e} + 26.73\text{MeV} - \text{E}_{\nu} \tag{1.3}$$

この時生成されたニュートリノは非常に透過力が強い性質を持つことから、太陽の 内部には留まらずエネルギーを伴って太陽の外へと放射されるため、そのニュートリ ノは地球においても観測可能である。ここで太陽標準模型というモデルを用いると太 陽から地球に降り注ぐニュートリノのスペクトルを計算することが出来る。

最初の太陽ニュートリノ観測は、1968 年 Davis らの太陽から来る電子ニュートリ ノの検出である。<sup>37</sup>Cl が $\nu_e$ によって逆ベータ崩壊反応を起こし、<sup>37</sup>Ar が生成される レートを測定する事によって太陽から飛来する $\nu_e$ を観測した。この結果によれば太陽 標準模型で期待されるよりも少ない値であることが分かった。[6]

Homestake 実験の結果:観測値/理論値=0.34 ± 0.03

この問題は太陽ニュートリノ問題と呼ばれ、この実験から 30 年に渡って様々な検証が されたが、どの実験でも予想されたニュートリノの flux より少ないことが分かった。



図 1.1: pp チェインと CNO サイクル

## 1.3 ニュートリノ振動

三種類のニュートリノ ( $\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau$ ) は弱い相互作用で荷電レプトンと対になって生成 される。これを弱相互作用もしくはフレーバーの固有状態といい一般に質量固有状態 と同一であるとは限らない。同一でなく混合がある場合、フレーバーの固有状態 ( $\nu_\alpha$ ) は質量固有状態 ( $\nu_i$ )の重ね合わせとなる。

$$|\nu_{\alpha}\rangle = \sum_{j} U_{\alpha j} |\nu_{j}\rangle \tag{1.4}$$

この場合生成されたニュートリノが伝搬するとき各質量固有状態は別々の時間発展 をするので、混合比が変わり別のフレーバーの状態が混入する。この現象をニュート リノ振動と呼ぶ。*v<sub>j</sub>*は安定であるとし質量が小さい事を考慮すると、フレーバーの時 間発展は

$$|\nu_{\alpha}(t)\rangle = \sum_{j} U_{\alpha j} |\nu_{j}\rangle e^{-iE_{j}t}, \qquad E_{j} = \sqrt{p^{2} + m_{j}^{2}} \simeq p + \frac{m_{j}^{2}}{2E}$$
(1.5)

と表される。ニュートリノは3世代あるが、簡単のため2世代とすると、独立な混合 行列要素はただ1つのみとなるので、混合角*θ*を用いて次のように表せる。

$$|\nu_e\rangle = \cos\theta |\nu_1\rangle + \sin\theta\nu_2\rangle$$
  
$$|\nu_\mu\rangle = -\sin\theta |\nu_1\rangle + \cos\theta |\nu_2\rangle$$
(1.6)

従って t=0 で  $\nu_e$  であったものが時刻 t で  $\nu_\mu$  に変化する確率は

$$P(\nu_{e} \ \nu_{\mu}; t) = |\langle \nu_{e}(0) | \nu_{\mu}(t) \rangle|^{2} = |\sin\theta\cos\theta(1 - e^{-i(E_{1} - E_{2})t})|^{2}$$
  

$$\simeq \sin^{2}2\theta\sin^{2}(\frac{\Delta m^{2}}{4E}L) = \sin^{2}2\theta\sin^{2}(1.27\frac{\Delta m^{2}(eV)^{2}}{E(GeV)}L(km))(1.7)$$
  

$$\Delta m^{2} = m_{2}^{2} - m_{1}^{2}, \quad L = ct \qquad (1.8)$$

この式からも分かる通りニュートリノ振動は混合があり  $(\theta \neq 0)$ 、かつ質量差があるとき ( $\Delta m^2 \neq 0$ )のみ発生する。 $\nu_e$ が生き残る確率は

$$P(\nu_{e} \quad \nu_{e}; t) = 1 - P(\nu_{e} \quad \nu_{\mu}; t)$$
(1.9)

波長は

$$\lambda = \frac{4\pi E}{\Delta m^2} = \frac{2.5 \text{E(GeV)}}{\Delta m^2 (\text{eV})^2} \tag{1.10}$$

と求められる。

振動が顕著である領域は  $\sin^2(\Delta m^2 L/4E)=1$  つまり  $\Delta m^2 L/4E=\pi/2$  で与えられるの で、L/E を適切に選ぶことで広い範囲の  $\Delta m^2$ の探索が可能になる。

1980年代から加速器や原子炉を用いる実験でニュートリノ振動探索が次々と行われ、1998年のスーパーカミオカンデによる大気ニュートリノ、2002年のSNOによる太陽ニュートリノ、そして同年 KamLAND による原子炉ニュートリノの観測結果より、ニュートリノ振動の存在が明確になり、その混合角や質量の二乗差が明らかになった。ニュートリノ振動の観測によって、ニュートリノに有限の質量があることは確実になった。しかし、質量の絶対値やそれぞれの質量固有状態の大小の順序は不明である。これらの疑問に直接回答を与える可能性があるのが、次章に述べるニュートリノの出ない二重ベータ崩壊である。



図 1.2: 既知のニュートリノ振動パラメータ

# 第2章 二重ベータ崩壊

### **2.1** 0*ν* 二重ベータ崩壊反応の観測意義

二重ベータ崩壊は原子核の2つの核子が同時にベータ崩壊し、エネルギー的により 安定な原子核へ変化する現象である。原子核の二重ベータ崩壊は電弱標準模型の枠を 超えた新しい物理の発見の可能性を秘めた現象である。特に0ル崩壊モードの過程は、 ニュートリノが有限な質量を持ち反ニュートリノがニュートリノに等しい粒子(マヨ ラナ粒子)でなければ起こらない過程で、電弱相互作用の標準模型のもとでは禁止さ れる。

既に、ニュートリノが質量を持つことははっきりしているのだが、これまで分かっているのはニュートリノ振動実験から求められる異種ニュートリノの質量固有状態の 自乗差  $\Delta m^2$  だけである。一方で二重ベータ崩壊から得られるのはニュートリノの混 合振幅を含めた有効質量  $< m_{\nu} >$  である。もしこの有効質量に上限が与えられれば各 ニュートリノ質量の相対関係が分かることになり、ニュートリノの絶対質量の特定へ の道が大きく開かれる。



図 2.1: ニュートリノ振動から予想される質量構造:これまでの実験の結果から質量 固有状態の差は分かっているが、その質量の順序(階層構造)は未だ分かっていない。 1 つだけが重いものを標準階層構造(normal hierarchy)、2 つ重いものを逆階層構造 (inverted hierarchy)、3 つとも重いものを縮退構造(degenerated)と呼ぶ。

また、原子核の二重ベータ崩壊反応はニュートリノがディラック粒子であるかマヨ ラナ粒子であるかを判定出来る最も有力な手段である。ここでマヨラナニュートリノ とディラックニュートリノの違いについて述べる。

今、有限な質量を持った左巻き (ヘリシティが負)のニュートリノ $\nu_L$ があるとす る。CPT 不変性から、 $\nu_L$ の存在はその CPT 鏡像である右巻き (ヘリシティが正)の 反ニュートリノ $\overline{\nu}_R$ の存在を意味する。有限な質量を持った $\nu_L$ は光速より遅く運動 するので、それより早く動く座標系から見ると、このニュートリノは逆向きに運動し ている。しかし、ニュートリノのスピンの向きは変わらない。すなわち、ニュートリ ノより速く動く座標系への Lorentz の変換は、左巻きの $\nu_L$ を右巻きの $\nu_R$ に変える。 この $\nu_R$ が $\nu_L$ の CPT 鏡像である $\overline{\nu}_R$ と違う場合には $\nu_R$ の CPT 鏡像である $\overline{\nu}_L$ が存 在し、合わせて4つの状態があることになる。このようなニュートリノをディラック ニュートリノという。

一方、Lorentz 変換によって得られた  $\nu_R$  が  $\nu_L$  の CPT 鏡像である  $\overline{\nu}_R$  と同じなら ば、2 つの状態しかないことになる。このようなニュートリノをマヨラナニュートリ ノという。[7]



図 2.2: ディラックニュートリノとマヨラナニュートリノ

ここで、マヨラナ粒子を持つ可能性がある粒子というのは粒子数の保存則を破る。 また、他の素粒子である荷電レプトンやクォークの場合は電荷を持っているので、電荷 の保存則によってマヨラナ性を禁止される。よってマヨラナ性を持つ可能性はニュー トリノだけに許される。

ニュートリノがマヨラナ粒子であることはニュートリノの質量が他の粒子と比べて 非常に軽いことを説明するシーソー機構の前提になっており、このシーソー機構は現 在の宇宙が物質優勢であることの説明を与えるレプトジェネシスの前提ともなってい る。もしニュートリノがマヨラナ粒子であることが証明できれば、これらの理論を支 持する根拠となる。そのため、ニュートリノのマヨラナ性を検証できる二重ベータ崩 壊反応の探索の必要性が非常に高まっているのである。 2.2 二重ベータ崩壊の2つのモード  $(2\nu モード, 0\nu モード)$ 

二重ベータ崩壊は原子核中の中性子が陽子に変わり、電子と反ニュートリノを放出 する過程が2度起こる過程である。この時、2個のニュートリノが原子核の外に放出 される二重ベータ崩壊を2νモードという。一方、1つの中性子から放出されたニュー トリノが別の中性子に吸収される二重ベータ崩壊を0νモードという。このモードに おいてはニュートリノは原子核の外に放出されない。

$$2\nu: (A,Z) \quad (A,Z+2) + 2e^- + \overline{\nu}$$
 (2.1)

 $0\nu: (A,Z) \quad (A,Z+2) + 2e^-$  (2.2)



図 2.3: 2*v* モードと 0*v* モード

電弱相互作用の標準模型によれば、原子核の電荷が変化するベータ崩壊は、弱い相 互作用を媒介する荷電 Wボソンを経由して起こる。中性子を構成する d クォークが u クォークとなり、この荷電クォークカレントが W<sup>--</sup> ボソンと結合する。W<sup>--</sup> ボソンは 荷電レプトンカレントと結合し、電子とニュートリノが放出される。ここで 0ν モー ドは標準模型のもとでは禁止される過程なため、標準模型の枠を超えて次のことが必 要である。

i) ニュートリノがマヨラナ粒子であること。

ニュートリノは電気的に中性な素粒子である。標準模型では中性のベータ崩壊で放出 される方を反ニュートリノ、中性子に吸収される方をニュートリノとしているが、電 荷を含めてニュートリノと反ニュートリノを区別する方法がない。仮にディラック粒 子であった場合、0v モードのように一方から出たニュートリノ( $\overline{\nu}$ )はもう一方に吸収 されない(吸収されるのは $\nu$ )。 ii) ニュートリノにヘリシティ混合があること。

標準模型ではニュートリノに質量がなく、ベータ崩壊を引き起こす弱相互作用は左巻 きなので、 $\nu$ は左巻き(-1のヘリシティ)、 $\overline{\nu}$ は右巻き(+1のヘリシティ)と決まって いる。しかし、上図で示したように放出される $\overline{\nu}$ が100%右巻きでそれが吸収される 時の弱相互作用が100%左巻きでは、このような反応は起こらない。よって、ニュー トリノ放出と再吸収が起こる0 $\nu$ モードが許されるためにはヘリシティの条件が満た される必要がある。このためには次のような条件も必要とされる。

iii)ニュートリノ質量と右巻きの弱相互作用

ニュートリノに有限の質量があれば、ニュートリノは光速よりも遅く運動すると考え られている(ただし、ニュートリノが光速より早いという結果を出した実験グループ もある)ので、わずかにヘリシティの混合ができ、0ルモードの振幅が存在することに なる。一方、弱相互作用が左巻き成分だけでなく、右巻き成分を持てば右巻きのアも 吸収可能で、ヘリシティの条件が満たされる。

### 2.3 それぞれのモードの半減期とニュートリノの有効質量

2*ν* モードは標準理論の枠内で許される反応であるが、弱い相互作用の二次の摂動で あるため、その半減期は非常に長い。2*ν* モードの半減期は次式で表される。

$$(T_{1/2}^{2\nu})^{-1} = G^{2\nu} |M^{2\nu}|^2$$
(2.3)

ここで *G<sup>2ν</sup>* は位相空間要素、*M<sup>2ν</sup>* は核行列要素である。また、このモードにおいて はニュートリノにエネルギーが配分されるため、観測されるスペクトルは最大が Q 値 の連続スペクトルとなる。

一方、0*v*モードの半減期はニュートリノの質量に比例し、次式で表される。

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 \langle m_{\nu}^2 \rangle \tag{2.4}$$

ここで G<sup>0ν</sup> は位相空間要素、M<sup>0ν</sup> は核行列要素、m<sub>ν</sub> はニュートリノの有効質量で、 二重ベータ崩壊で観測できる質量である。ただし、ニュートリノの核行列要素には様々 な計算モデルがあり、計算が難しく不定性が大きいことにより、得られる有効質量に も影響を及ぼすことも考慮する必要がある。

このモードにおいては観測されるスペクトルは、連続スペクトルではなく Q 値におけ るピークとなる。2*v* モードの半減期は一般的に 10<sup>19</sup> 年以上と非常に長い。しかし 0*v*  モードはそれよりも長い半減期を持っていると考えられており、5桁から6桁程度長 いと考えられている。これはニュートリノの有効質量の二乗のファクターがかかって いるためである。

またニュートリノの有効質量は次式のように表される。

$$\langle m_{\nu} \rangle = |\sum_{i} |U_{ei}|^2 m_{\nu_i} e^{i\alpha_i}| \tag{2.5}$$

ここで U は種類間の混合行列、α はマヨラナ位相である。この有効質量は主に電子 ニュートリノの質量になるが、種類間の混合を考慮してこのような式で表される。二 重ベータ崩壊で観測できる有効質量はニュートリノの質量のパターンによっている。



図 2.4: (左図):二重ベータ崩壊のエネルギースペクトル (右図):ニュートリノの質量 構造の予想値

## 2.4 二重ベータ崩壊が起こる原子核

二重ベータ崩壊は半減期が極めて長く、最も短い核種でも 10<sup>19</sup> 年程度と、現在観測 されている自然界で最も稀な崩壊過程である。287 種の安定同位体(自然界に常に一 定の割合で存在する原子核)のうち 66 種類の原子核は二重ベータ崩壊による崩壊が可 能である。同じ質量数を持つ原子核の中では、同種粒子間の対相互作用が強い引力で あるので、陽子数と中性子が共に偶数である偶々核が奇々核よりも安定である。例と して <sup>136</sup>Xe を挙げる(図 2.5)。KamLAND-Zen 実験において用いられる予定の <sup>136</sup>Xe は偶々核であり、図からも分かる通り通常のベータ崩壊が起こらず、二重ベータ崩壊 のみが許される。



図 2.5: 二重ベータ崩壊のエネルギー準位図

核種	Process	Transition	$Q_{\beta\beta}[\text{keV}]$	$T_{1/2}^{2\nu}(y)$	$T_{1/2}^{0\nu+2\nu}(\mathbf{y})$
$^{48}$ Ca	$2\beta^-$	$0^+ 0^+$	4271	$(4.3\pm2.3)\times10^{19}$	
$^{76}\mathrm{Ge}$	$2\beta^-$	$0^+ 0^+$	2039	$(1.3\pm0.4)\times10^{21}$	
$^{82}\mathrm{Se}$	$2\beta^{-}$	$0^+ 0^+$	2995	$(9.2\pm0.8)\times10^{19}$	
$^{96}\mathrm{Zr}$	$2\beta^{-}$	$0^+ 0^+$	3351	$(2.0\pm0.4)\times10^{19}$	
$^{100}\mathrm{Mo}$	$2\beta^-$	$0^+ 0^+$	3034	$(7.0\pm0.4)\times10^{18}$	
$^{100}\mathrm{Mo}$	$2\beta^-$	$0^+ 0^+_1$	2339	$(5.7\pm1.4)\times10^{20}$	
$^{100}\mathrm{Mo}$	$2\beta^-$	$0^+ 0^+_1$	2339		$(6.1\pm0.2)\times10^{20}$
$^{116}\mathrm{Cd}$	$2\beta^{-}$	$0^+ 0^+$	2805	$(3.0\pm0.3)\times10^{19}$	
$^{128}\mathrm{Te}$	$2\beta^{-}$	$0^+ 0^+$	867		$(3.5\pm2.0)\times10^{24}$
$^{130}\mathrm{Te}$	$2\beta^{-}$	$0^+ 0^+$	2529	$(6.1 \pm 4.8) \times 10^{20}$	
$^{130}\mathrm{Ba}$	$2\beta^-$	0+ 0+	2620		$(2.2\pm0.5)\times10^{21}$
$^{150}\mathrm{Nd}$	$2\beta^-$	0+ 0+	3367	$(7.9 \pm 0.7) \times 10^{18}$	
$^{150}\mathrm{Nd}$	$2\beta^-$	$0^+ 0^+_1$	2692		$(1.4\pm0.5)\times10^{20}$
$^{238}\mathrm{U}$	$2\beta^-$	$0^+ 0^+$	1144		$(2.0\pm0.6)\times10^{21}$

表 2.1: 二重ベータ崩壊核の半減期のうち既に測定されている核種 [8]

## 2.5 様々な二重ベータ崩壊探索実験

これまでに、二重ベータ崩壊の探索のために様々な実験が行われてきたが、その実 験手法は大きく2種類の手法に分けられる。

1つ目は間接的な測定法である地球化学測定法である。この方法は地球にある鉱石 などの経過時間を利用して、親核の鉱石の中の娘核の数を質量分析等で測定する方法 である。この方法の特徴としては2<sup>ν</sup>二重ベータ崩壊と0<sup>ν</sup>二重ベータ崩壊の区別がつ かないことにある。また、2<sup>ν</sup>モードのイベントを直接捕らえることはできないので、 半減期を直接には測定できず下限値を与えるのみに留まる。

また同じような間接的測定方法として放射化学測定がある。この方法は二重ベータ 崩壊によってできる娘核を数年から数十年に渡って蓄積し、その数を数えて半減期を 求めるもので、地球化学測定法と比べて、親核のある環境や原子核数、蓄積の時間を 自由に決められるというメリットがある。しかし蓄積の時間は大幅に減ってしまうた め、測定できる崩壊核には制限がかかる。勿論この方法でも半減期を直接測定する訳 ではなく全ての崩壊モードを含んでいる。

2つ目は直接測定法である。この測定においては崩壊モードの区別が可能であるため、現在二重ベータ崩壊実験の主流はこちらの方法である。測定原理としてはゲルマニウム検出器による方法、シンチレータによる方法等の崩壊核が線源と検出器を兼ねるタイプのものと、飛跡検出器による方法等線源と検出器が独立なタイプのものに分けられる。0*ν* モードの測定はこの直接測定法によってのみ可能であるが、非常に技術的に難しいものを要求されるという特徴がある。以下に要求項目を示す。

・エネルギー分解能

- ・バックグラウンド(環境バックグラウンド、2vイベント)
- ・崩壊核種の量(多い方が有利)
- ・崩壊核種のQ値(大きい方が有利)

現在、 $0\nu\beta\beta$ の探索を目的とする実験計画は世界各地で急激に増えており、様々な 核種、様々な実験手法を用いての実験が行われる予定である。以下に、これまでに行 われてきたいくつかの  $0\nu\beta\beta$ 探索実験と、現在計画中、実験準備中の探索実験を紹介 する。

核種	$Q_{\beta\beta}[\text{keV}]$	Natural abundance(%)	$T_{1/2}^{2\nu}(y)$	$T_{1/2}^{0\nu}(50 \mathrm{meV})$
$^{48}$ Ca	4271	0.19	$4.3 \times 10^{19}$	
$^{76}\mathrm{Ge}$	2039	7.8	$1.3{ imes}10^{21}$	$8.6  imes 10^{26}$
$^{82}\mathrm{Se}$	2995	9.2	$9.2{ imes}10^{19}$	$2.4 \times 10^{26}$
$^{96}\mathrm{Zr}$	3351	2.8	$2.0{ imes}10^{19}$	$1.0 \times 10^{26}$
$^{100}\mathrm{Mo}$	3034	9.6	$7.0{\times}10^{18}$	$2.3 \times 10^{26}$
$^{116}\mathrm{Cd}$	2805	7.5	$3.0{ imes}10^{19}$	$2.8 \times 10^{26}$
$^{128}\mathrm{Te}$	867	31.7	$3.5{\times}10^{24}$	$4.5  imes 10^{27}$
$^{130}\mathrm{Te}$	2529	34.5	$6.1 \times 10^{20}$	$2.1 \times 10^{26}$
$^{136}\mathrm{Xe}$	2476	8.9	$2.1 \times 10^{21}$	$4.55{ imes}10^{26}$
$^{150}\mathrm{Nd}$	3367	5.6	$7.9{ imes}10^{18}$	$2.2{\times}10^{25}$

表 2.2: 二重ベータ崩壊核の比較

### 2.5.1 これまでに行われてきた探索実験

#### •Heidelberg-Moscow

イタリアの LNGS(Gran Sasso underground laboratory)(3,500 [m.w.e.]) にて高純度 の <sup>76</sup>Ge(Q 値:2.04[MeV]) を含むゲルマニウム結晶を用いて行われた実験である。この 結晶 <sup>76</sup>Ge は 86%に濃縮され 11.5kg 分に相当する。また、崩壊ソースと半導体検出器 として用いているため、エネルギー分解能が非常によい (4.23[keV] @2039[keV]) とい う特徴を持つ。2001 年に <sup>76</sup>Ge の  $0\nu\beta\beta$  の半減期、有効質量の上限値を得た。

 $T_{1/2}^{0\nu} > 1.9 \times 10^{25} [\text{year}], \langle m_{\nu} \rangle < 0.35 [\text{eV}]$  [9]

#### •KKDC claim

Heidelberg Moscow 実験のコラボレーター 4 人が、唯一 0v モードを観測したという 解析結果を主張している。半減期と有効質量は以下の通りである。

$$T_{1/2}^{0\nu} = 2.23 \times 10^{25} [\text{year}], \langle m_{\nu} \rangle = 0.32 [\text{eV}][10]$$

この結果を 6o の統計精度で検出したと主張している。現在までにニュートリノの 有効質量を具体的に特定した唯一の報告であるが、この実験結果には多くのバックグ ラウンドが含まれており、この結果に懐疑的な意見が多いため、追証実験が待たれて いる。

•DAMA

LNGS にて行われた実験で、クリプトンフリー  $^{134}$ Xe17.1%及び  $^{136}$ Xe 68.8%の濃縮キ セノンを用いた実験である。この実験ではいずれの  $0\nu\beta\beta$  崩壊も検出できなかった。 それぞれの半減期、有効質量の上限値は次の通りである。

$$T_{1/2}^{0\nu}(^{134}\text{Xe}) > 5.8 \times 10^{22} \text{[year]}, T_{1/2}^{0\nu}(^{136}\text{Xe}) > 1.2 \times 10^{24} \text{[year]}$$
  
 $\langle m_{\nu} \rangle = 1.1 - 2.9 \text{[eV]}(90\% C.L.)$ [12]

#### •Cuoricino

この実験も LNGS(3,100[m.w.e]) にて <sup>130</sup>Te(Q 値:2.52[MeV]) の二重ベータ崩壊の探索 実験を行ったものである。40.7kg の TeO<sub>2</sub> 結晶 (<sup>130</sup>Te 換算だと 11.3kg) を極低温環境 下 10mK 程度まで冷却し、 $0\nu\beta\beta$ のエネルギーによる温度上昇を測ることでこの現象 を観測する。検出器のエネルギー分解能は 7[keV](@2615[keV]) である。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 2.8 \times 10^{24} [\text{year}] (90\% C.L.), \langle m_{\nu} \rangle < 300 - 710 [\text{meV}] [11]$$

•NEMO-3

フランスの Frejus underground laboratory(4,800[m.w.e]) で行われている実験で、 <sup>100</sup>Mo や <sup>82</sup>Se を中心とする 7 種もの核種の  $0\nu\beta\beta$  の検出を目的としている。この実 験では 25Gauss の磁場をかけて  $0\nu\beta\beta$  の電子をプラスチックシンチレータとドリフト チェンバーを用いて検出する。

 $T_{1/2}^{0\nu}(^{100}\text{Mo}) > 1.0 \times 10^{24} \text{[year]}(90\% C.L.), \langle m_{\nu} \rangle < 310-960 \text{[meV]}$ 

$$\begin{split} T_{1/2}^{0\nu}(^{82}\text{Se}) &> 3.2 ~ \times ~ 10^{23} \text{[year]}(90\% C.L.) \\ \langle m_{\nu} \rangle &< 940{-}1710 \text{[meV]}[13], \langle m_{\nu} \rangle &< 2600 \text{[meV]}[14] \end{split}$$

#### 2.5.2 現在計画中、または実験準備中の探索実験

•EXO

ニューメキシコ州の WIPP laboratory(1,600[m.w.e]) において、80.6%に濃縮された 液体の<sup>136</sup>Xe(-106) を175kg 用いた TPC(Time Projection Chamber) 方式の検出器 が建設され (EXO-200)、2011 年 5 月よりデータ取得を開始した。希ガスである Xe を 用いているため、濃縮が容易であったり、実験中の再精製が容易であるなどのメリッ トがある。この実験は将来計画として 1-10t スケールの実験 (Full-EXO) も構想されて おり、ここでは <sup>136</sup>Ba のバックグラウンドを低減させるバリオンタギングを行うこと で、更に高感度の実験を行うことも計画されている。

$$\langle m_{\nu} \rangle \sim 100 [\text{meV}] (\text{EXO-200}), \langle m_{\nu} \rangle \sim 5 - 20 [\text{meV}] (\text{Full-EXO}) [15]$$

•NEXT

スペインの Laborator io Subterraneo deCanfranc(2500m.w.e) において、90%以上に 濃縮された 100-150kg の <sup>136</sup>Xe 高圧ガスを用いた TPC 方式の検出器による実験が計 画されている。エネルギー分解能は 662[keV] において 1%程度と想定されている。な お、この実験は 2014 年からのデータ取得を目標としている。[16]

•CUORE

Cuoricino 実験に引き続く実験で、装置に様々な改良がなされており、<sup>130</sup>Te が 206kg まで増え、バックグラウンドは 10 分の 1 以下となっている。装置のエネルギー分解 能も 7[keV] から 5[keV] まで改善されている。5 年間の測定での到達感度は以下の通り であり、2015年からのデータ取得を目標としている。

 $T_{1/2}^{0\nu} > 1.6 \times 10^{26} [\text{year}](1\sigma), \langle m_{\nu} \rangle \sim 40 - 90 [\text{meV}][11]$ 

#### •SuperNEMO

NEMO-3 実験に引き続く実験で、主に <sup>82</sup>Se の  $0\nu\beta\beta$  の探索を目的としている。改良 点としては、崩壊核となる Se は 100kg を超える量を用い、エネルギー分解能を 8%か ら 4%(@3[MeV]) にまで向上し、更に <sup>82</sup>Se に含まれる放射性不純物を少なくする等に より、感度の向上を計っている。この実験は 2014 年からのデータ取得を目標として いる。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1 \times 10^{26} [\text{year}], \langle m_{\nu} \rangle \sim 40 - 100 [\text{meV}] [17]$$

#### •GERDA

GERDA は Heidelberg Moscow 実験と同じく LNGS で行われている実験であり、同 実験で用いられた 5 つの <sup>76</sup>Ge 検出器 (11.3kg) 及び、IGEX 実験で用いられた検出器 (6.3kg) の計 17.6kg を高純度の液体アルゴンに沈めて  $0\nu\beta\beta$  を探索しようとするもの である。更に、この装置は Phase II への移行も計画されており、こちらでは約 20kg の 濃縮 Ge 検出器を追加し、合計 37.5kg の Ge に増やしての実験が行われる予定である。

 $T_{1/2}^{0\nu} > 2.0 \times 10^{25} [\text{year}], \langle m_{\nu} \rangle < 270 [\text{meV}]$  @phaseI

 $T_{1/2}^{0\nu} > 1.4 \times 10^{26} [\text{year}], \langle m_{\nu} \rangle < 110 [\text{meV}] \text{ @phaseII[18]}$ 

#### •MAJORANA

サウスダコタ州の Sanford underground laboratory(地下 1478m) で行われる予定の実 験で 86%に濃縮された <sup>76</sup>Ge 検出器を用いて KKDC claim の到達を目標としている。 また更に 1t スケールの検出器による実験を 2016 年以降に始動する計画である。現在 はそのデモンストレータとして MAJORANA DEMONSTRATOR が建設中であり、 濃縮方法の確立や低バックグラウンドの測定を可能にするために様々な研究が進めら れている。[19]

 $\bullet$ SNO+

SNO は、カナダのサドベリーにある Creighton mine(地下 2073m) に重水を用いた水 チェレンコフニュートリノ検出器として知られ、太陽ニュートリノ問題の解明で有名で ある。この検出器内部の水をネオジム 1t を含む液体シンチレータと入れ替えて 0νββ の探索に用いようというのが SNO+実験である。液体シンチレータの精留やエレクト ロニクスの改良を行うことで、100[meV]の感度への到達を目標としている。この実 験は 2013 年のデータ取得を目標としている。[20]

#### •CANDLES

大阪大学を中心に進められている実験で、 $CaF_2$ 結晶を検出器としてその中に含まれる  $^{48}Ca \circ 0\nu\beta\beta$ の探索を目標としている。 $^{48}Ca \circ Q$ 値は 4.27[MeV] と二重ベータ崩壊を起こす全ての原子核中で最大であり、自然放射性のガンマ線、ベータ線の最大エネルギーがそれぞれ 2.6[MeV]、3.3[MeV] であることから、原理的にバックグラウンドのない測定が可能であるという長所を持つ。

この実験に先立ち、CaF<sub>2</sub>(Eu) 結晶 6.7kg を用いた ELEGANT VI 実験によって有効 質量に 3.5[eV] の上限値を与えている。CANDLES では、装置の大型化やエネルギー 分解能の向上、更に地下実験施設に装置をおくことで感度の向上を目指している。現 在 CANDLES III まで実験が進んでおり、CaF<sub>2</sub> 結晶 190kg を用いて 0.5eV に到達す る予定である。最終的に CANDLES V では 100t クラスの検出器を建設し、30[meV] の質量領域の探索を目標としている。[21]

#### •DCBA-T2,T3

Drift Chamber Beta-ray Analyzer の略で、日本の KEK 富士実験棟で建設が進めら れている飛跡検出型の実験装置である。 $0\nu\beta\beta$  によって放出される電子を一様な磁場 中でらせん運動させ、その飛跡から運動量・エネルギーを求める。ガンマ線などの電 荷をもたない放射線がノイズとならないためにバックグラウンドが低く、構造が単純 なため大量の  $0\nu\beta\beta$  を起こす親原子を装 置に組み込むことができる。現在は小型の DCBA-T2 によって <sup>100</sup>Mo ソースプレートを用いた 技術検証が行われており、その 発展形である T3 実験装置も建設中である。将来的にはここで 得られた技術を用いて 600kg の <sup>150</sup>Nd(80%濃縮) 等を導入し、ニュートリノの有効質量 20[meV] までの探索 を目標としている。[22]

DCBA [22]	CANDLES [21]	MAJORANA [19]	GERDA [18]	SuperNEMO [17]	CUORE [11]	NEXT $[16]$	EXO [15]		Nemo-3 $[14]$	Cuoricino [11]	DAMA [12]	KKDC claim [10]	Heidelberg-Moscow [9]		Experiment
$^{100}Mo,  ^{150}Nd$	$^{48}Ca$	$^{76}\mathrm{Ge}$	$^{76}\mathrm{Ge}$	$^{82}\mathrm{Se}$	$^{130}\mathrm{Te}$	$^{136}\mathrm{Xe}$	$^{136}\mathrm{Xe}$		$^{100}Mo, ^{82}Se etc.$	$^{130}\mathrm{Te}$	$^{136}\mathrm{Xe}$	$^{76}\mathrm{Ge}$	$^{76}\mathrm{Ge}$		Isotope
3034	4271	2039	2039	2995	2529	2476	2476	Futu	3034	2529	2476	2039	2039	Prese	$Q_{etaeta}[{ m keV}]$
I	I	I	I	I	I	I	$2.1 \times 10^{21}$	re experiments	$7.7 \times 10^{18} (^{100}\text{Mo})$	$> 1.3 \times 10^{23} [23]$	$> 1.0 \times 10^{22}$	I	$1.78 \times 10^{21}$	nt experiments	$T_{1/2}^{2\nu}$ (year)
I	$> 1.3 \times 10^{23}$	I	1	1	I	I	I		$> 1.0 \times 10^{24} (^{100}Mo)$	$> 2.8 \times 10^{24}$	$> 1.2$ × $10^{24}$	$2.23 \times 10^{25}$	$> 1.9 \times 10^{25}$		$T^{0 u}_{1/2}( ext{year})$
1	0.2  0.05	0.1  0.005	0.27  0.11	0.04 - 0.1	0.04 - 0.09	1	0.1  0.005		< 0.31-0.96 ( <sup>100</sup> Mo)	< 0.30-0.71	< 1.1-2.9	0.32	< 0.35		$m_{etaeta}(\mathrm{eV})$

表 2.3: 主な  $0
u\beta\beta$ 崩壊探索実験

# 第3章 KamLAND 検出器

## 3.1 KamLANDとは

### 3.1.1 実験の概要

KamLAND 実験とは、Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector の略称 であり、岐阜県飛騨市神岡町の池の山山頂下 1,000m に設置された 1,000 トン液体シ ンチレータ反電子ニュートリノ検出器 KamLAND を用いた実験である。

地下深くに設置することにより宇宙線 µ 粒子によるバックグラウンドイベントを抑制 することが可能であり、地表から検出器までの岩盤の遮蔽により水換算にして 2,700m 厚の遮蔽と同程度の効果が得られ、宇宙線強度を地上の約 10 万分の 1 に低減出来る。 KamLAND は 1997 年より東京大学の Kamiokande 観測装置の跡地に建設を開始し、 2002 年から観測を開始した。



図 3.1: KamLAND エリアの全体図

この装置は特に 100keV 領域までの低エネルギーニュートリノの観測に特化してお り、多目的なニュートリノ研究を目指している。これまでには原子炉から飛来する ニュートリノの観測に成功し [24]、原子炉ニュートリノ振動の精密測定 [25] を行った 他、地球内部起源のジオニュートリノの検出に成功し、地球ニュートリノ物理学とい う分野を開拓、更に地球の誕生・発展の理論や現在の地球のダイナミクスの理論に対して直接的な測定による強い裏付けを与え、地熱の生成源を全て放射性物質に求める 理論 (fully radiogenic model)の排除にも成功している。[26]



図 3.2: KamLAND の反電子型ニュートリノの L/E 分布と、その他の過去の原子炉 ニュートリノ実験:L は原子炉からの平均距離を 180km としている。データは振動パ ターンを 2 周期分再現しており、ニュートリノ振動の存在を決定づけた。[25]

#### 3.1.2 検出器の構造

KamLAND 検出器の主要部は直径 18m の 3000m<sup>3</sup> のステンレス製の球形タンクと、 その内部に存在するバルーン、また球形タンクの外側には円筒状のタンクの 3 つの構 造からなる。ここで球体タンクの内側を内部検出器 (ID)、その外である円筒形タンク の部分を外部検出器と呼んでいる。その構造は非常にシンプルではあるが、巨大な検 出器であるため、検出部各部において大型または多数の要素から成り立っている。こ れからその役割について述べる。

内部検出器(ID)

KamLAND 検出器の中心部には、ニュートリノを検出するための標的である 1000 トンの超高純度液体シンチレータがあり、この液体シンチレータはナイロンとエバー ル (EVOH:ポリビニルアルコール) の 5 層のフィルム (厚さ 135µm) で作成されたバ ルーン内に満たされている。その外は厚さ約 2.5m の光を出さないパラフィンオイル のバッファーオイル層となっていて、バルーンはそのオイルの中で紐で吊るされてい るという構造である。

このバルーンには KamLAND 検出器の超高感度実験を可能にするため様々な特徴 がある。バルーンのフィルムが合計 5 層の積層構造 (EVOH/Ny/Ny/Ny/EVOH) に



図 3.3: KamLAND 検出器概略図

なっているのは放射性ガスである Rn の遮蔽能力に優れているエバールを表面にする ためで、両面がエバールになっており、その中には光透過度が良く更に強度が非常に 強いナイロンを挟んでいるからである。これによりフィルムは 400nm の光に対して 96%の光透過度という高い光透過度を保ちつつ、十分な強度を持つ。

バルーンを検出器内に上部から吊り下げている44本のロープはケブラーと呼ばれる 繊維でスーパー繊維の一種であり、防弾チョッキにも使われる程の強靭さを持つ。こ れを縦糸と横糸で編み込み、そこにバルーンが収められている。

バルーンにかかる重量は内側の液体シンチレータと外側のバッファーオイルの密度 差によって決まる。その密度差は0.01%まで制御が可能である。実際には0.04%の密 度差で稼働しており、出来るだけバルーンやケブラーロープにかかる負担を最小限に 抑えているため、バルーン全体にかかる重量は430kg程度となっている。

更にバッファーオイル層の外側には直径 16.5m、厚さ 3mm 透明なアクリルの板が取 り付けられており、光電子増倍管のガラスとステンレスタンクに含まれる微量のウラ ンの崩壊によって放出される Rn を遮蔽する役割を担っている。アクリル板の内側には 1,879 本の光電子増倍管が備え付けられている。このうち 554 本は旧 Kamiokande で使 われていた 20inch の PMT、残る 1325 本は KamLAND の為に新開発された 17inch の PMT である。この光電子増倍管の光電面カバー率 (photocoverage) は 17inch で 22%、 20inch で 12% の合計 34% になっている。 外部検出器 (OD)

ステンレスタンクの外側には直径 20m、高さ 20m の空間があり 3,200 トンの超純水 で満たされている。この超純水は地下実験室内の水源から得られる水から有機物、無 機イオン、各種放射性不純物をフィルタリング、逆浸透膜 (RO 膜) 等を用いて除去す ることにより製造されている。また、OD の外壁である岩盤からのラドンの溶け込み を防ぐため、岩盤表面はポリウレタン樹脂で覆われている。

超純水は周辺の岩盤から来る環境放射性を遮蔽すると共に、水チェレンコフ検出器 として検出器内に飛来してくるミューオンなどの veto カウンターとしての役割を担っ ている。KamLAND のような大量のターゲットを用いた実験では特に外部からの宇 宙線ミューオンが主なバックグラウンド源となるため、このチェレンコフ光を用いて バックグランドの識別を行っている。なおこのチェレンコフ光の観測は旧カミオカン デから譲り受けた 225 本の 20 inchPMT、8 本の 8 inchPMT、6 本の 5 inchPMT に よりモニタリングされている。

更にこの超純水は、周辺の岩盤からの γ 線や中性子を減衰させることにより環境放 射線を遮蔽する役割も持つ共に、超純水製造装置により鉱山内の地下水 10 程度の ものを 8 トン/hour の流量で供給することにより、PMT 等の発熱から装置全体を冷 却、また一定温度に保つ役割も負っている。

3.1.3 液体シンチレータ (LS) とバッファーオイル

KamLAND の最大の特徴として、シンチレーション光を検出しているということ が挙げられる。これは、Super-Kamiokande のような水チェレンコフ光よりもエネル ギーの低いニュートリノの観測が可能であり、それに加え、同じエネルギーのニュー トリノに対してシンチレーション光はチェレンコフ光に比べて約100倍の発光量を持 ち、KamLAND 検出器では約400p.e./MeV に相当するため、高いエネルギー分解能 の検出が可能である。

KamLAND では電子型反ニュートリノの標的として、検出器中心部に 1,000 トンの液体シンチレータを使用している。組成は次の通りである。

ドデカン ( $C_{12}H_{26}$ ) 80.2% (0.7526g/ $cm^3$  at 15 )

プソイドクメン (1,2,4 トリメチルベンゼン  $C_9H_{12}$ ) 19.8% (0.8796g/cm<sup>3</sup> at 15 )

PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール C<sub>15</sub>H<sub>11</sub>NO) 1.36g/l



図 3.4: 液体シンチレータ構成物

液体シンチレータは荷電粒子が通過すると励起され、そのエネルギーがシンチレー ション光として放出される。KamLANDではこの光を信号として捕らえているため、 液体シンチレータには高い発光量、透過率、低放射性不純物量、そして長期安定性が 要求される。これらの条件を満たすように研究がなされた結果、上記のような組成の 液体シンチレータが開発され使用されている。特に放射性不純物の量は実験感度にも 関わる重要な要件であるため、KamLANDでは純化装置によるLSの純化を行うこと により含有量を低減させた。この作業後の液体シンチレータ内の主な放射性不純物の 含有量は以下の通りである。[28]

$^{238}\mathrm{U}$	$3.5 \times 10^{-18} \text{g/g}$
$^{232}$ Th	$5.2 \times 10^{-18} \text{g/g}$
$^{40}$ K	$2.7 \times 10^{-16} \text{g/g}$
$\rm ^{85}Kr$ , $\rm ^{210}Pb$	$< 0.1 \mathrm{mBq}/m^3$

表 3.1: LS 中の放射性不純物の含有量

バッファーオイルはドデカンとイソパラフィンをほぼ 1:1 の割合で混合した液体で ある。パラフィンオイルのみの組成のため高い光透過性を持ちシンチレーション光の 発光能力も持たない。このバッファーオイルは光検出器やその他周囲のバックグラウ ンド源による粒子の液体シンチレータ層への到達を防ぎ、また液体シンチレータとの 密度差を付け、ID 中に浮かべるための役割を担っている。

## 3.2 KamLANDにおける反電子ニュートリノの検出原理

#### 3.2.1 反電子ニュートリノ検出

KamLANDでは、液体シンチレータ中の陽子と反電子型ニュートリノによる逆ベー タ崩壊反応(3.1)の検出により、電子型反電子ニュートリノの観測を行っている。シン チレーション光を利用した電子型反ニュートリノの検出は低エネルギー領域の観測に おいて優れた感度を有しており、チェレンコフ光検出では不可能だった原子炉反ニュー トリノや地球内部由来の地球ニュートリノの観測を可能にしている。

$$\overline{\nu}_e + p \quad e^+ + n \tag{3.1}$$

この反応によって生まれる陽電子と中性子は時間差を持ってそれぞれシンチレーション光を発する。

まず、陽電子は電子と対消滅を起こすことで 2本の 0.511MeV の  $\gamma$  線を放出する。 これらの陽電子と 2本の  $\gamma$  線が放出したエネルギーがシンチレーション光となり先発 信号を形成する。

次に中性子が液体シンチレータ中で弾性散乱を繰り返してからエネルギーを落とし、 最終的に熱中性子化して中性子捕獲され重水素になる。その際に 2.2 MeV の  $\gamma$  線を放 出する、これにより後発信号を形成する。

これらの2つの信号には位置と時間に相関性があるため、これを捕らえることで精 度よく検出を行うことが出来る。この検出法を遅延同時計測法という。



図 3.5: KamLAND での反電子ニュートリノ検出の原理

#### 3.2.2 光電子増倍管 (PMT)

光電子増倍管は微弱な光を電子に変換し、その電子数を倍増させて電気信号として 取り出す検出器である。光電子増倍管の主な構成要素は真空管中の光電面、電子増倍 部 (ダイノード)、陽極 (アノード)、ブリーダー回路である。なお、KamLAND で用 いている光電子増倍管は LS の発光波長のピーク付近 (350-400nm) で量子効率約 22% を実現している。

● 光電面

入射した光により電子を放出する役割を持つ。光電面のガラスの内側には、光電効 果を起こしやすいアルカリ金属を主としたバイアルカリ (Sb-K-Cs) がコーティングさ れている。この光電面から放出された光電子は次に内部の印可している電場によりダ イノードへと集まる。

● 電子増倍部 (ダイノード)

光電面から電場によりダイノードへと収束された光電子は、ここで新たに数個の2次電子を放出する。この電子を倍増するダイノードは10段あり、次々と電子の数は増幅される。20 inchPMT にはヴェネチアン・ブラインド型のダイノードを使用しているのに対し、17 inchPMT は時間分解能の向上のため新たに開発されたライン・フォーカス型のダイノードを使用している。

● 陽極 (アノード)

陽極 (アノード) とは、多段のダイノードで増幅された2次電子を収集し、外部へ電 流として取り出す電極である。陽極は一般的には線状や平板状あるいは網状電極など で作られでおり、設計上特に重要なのは、空間電荷効果を防ぐために最終段ダイノー ドと陽極間に一定以上の電位差を設けてなるべく大きな電流出力を得ることである。

●ブリーダー回路

外部電源から供給される高電圧を光電面、ダイノード、陽極面に分配する回路をブ リーダー回路という。20inchPMTのブリーダー回路が、電圧分配が一定の等分割ブ リーダー回路であるのに対し、17inchPMTでは最終段付近で前段から後段に向かって 電圧を上げていくテーパーブリーダー回路を使用している。これにより、17inchPMT は大光量のイベントでも飽和が起きず、ダイナミックレンジを大きくすることが出来 る。ブリーダー回路は10段あり、印加電圧は約1700V、電流増幅率は5.0 × 10<sup>6</sup>程度 である。



図 3.6: 光電子増倍管の概略図 左: 20 inchPMT 右: 17i nchPMT



図 3.7: KamLAND で用いている 17inchPMT の量子効率。実線は平均値を表し、点線は最大値、最小値を表す。破線は平均値から  $1\sigma$ 離れた位置を表す [29]
## 第4章 KamLAND-Zen実験

## 4.1 実験の概要

KamLAND-Zen 実験は KamLAND 検出器を用いた<sup>136</sup>Xe のニュートリノレス二重 ベータ崩壊探索のための実験である。この実験は KamLAND 検出器の液体シンチレー タ層に、検出器上部のチムニー部から直径 3.16m の mini-balloon をインストールし、 その中に<sup>136</sup>Xe 400kg を溶かした新型液体シンチレータを満たす。<sup>136</sup>Xe の二重ベー タ崩壊の際の電子による液体シンチレータの発光を観測し、そのエネルギースペクト ルを作成することで 0ν モードのピーク探索を行う。

本実験は 2011 年 9 月から稼働を開始したが、現在 2 年間の観測を行う予定でこれ を 1st phase とし有効質量 80[meV] までの探索を行う。その後の 2nd phase はまだ詳 細は決まっていないものの、加圧キセノンを用いて Xe をより多く溶かすことで感度 を向上させる計画や、Winston cone を用いることで集光効率を上げる計画などがあ り、有効質量 20-30[meV] 程度までの探索が可能である。 本論文では 1st phase に焦点を当てて実験を論ずる。



図 4.1: 左図: 1st phase の概要

## **4.2** 二重ベータ崩壊核<sup>136</sup>Xeの特徴

KamLAND-Zen 実験では様々ある崩壊核種の中から希ガスである<sup>136</sup>Xeを利用している。選定された理由としては次のような利点がある。

●Q 値が比較的高く、2*ν* モードの半減期が長い

多くの環境放射線のエネルギーよりもQ値が高いため、低バックグラウンドでの観測 が可能である。また  $2\nu$  モードが早いと観測に高分解能が必要となるが、 $2\nu$  モードが 遅い ( $T^{0\nu}/T^{2\nu}$  が小さい) と高分解能でなくてもよい。それは半減期が短い場合には  $2\nu$  モードのイベント数が極端に増えてしまうためである。KamLAND 検出器は半導 体検出器と比べエネルギー分解能の低い観測方法であるシンチレーション検出器を用 いているが、その問題も解消される。

液体シンチレータによく溶ける。

一般的に希ガスは有機溶媒によく溶けることが知られており、液体シンチレータに対しても高い溶解度を持つことが期待された。このことはKamLANDの液体シンチレータ1000t全てを用いてキセノンを導入してやれば20t以上という桁違いの崩壊核を観測することを示唆している。

●同位体の天然存在比が高く、濃縮法が確立されている。

<sup>136</sup>Xeは自然存在比が8.87%と比較的高く、また常温で気体であることから遠心分離 等の同位体濃縮方法が確立されている。また純化が容易であるという利点もある。

●希ガスであり、取り扱いが容易であること。

キセノンは無色透明で化学的に安定な希ガスである。そのため液体シンチレータやバ ルーン、金属などを腐食せず、また劣化も起こりにくいことから取り扱いが容易であ る。

●カムランド検出器が既存であること。

世界でも稀な極低放射能環境・巨大検出器を運用する経験を持つ KamLAND においては、大きな改造を施すことなく比較的安価にかつ速やかに実験を開始することが可能である。また、液体シンチレータ開発に関しては KamLAND 建設の際の経験があり、ハンドリングに関しても二度の純化を経験するなど既知の技術であることも利点である。

上記の理由からターゲット核種として<sup>136</sup>Xeが最適であるという結論に達した。

## **4.3** <sup>136</sup>Xe 含有液体シンチレータ

KamLAND-Zen 実験の心臓部といえるのが、90%に濃縮された 400kg の <sup>136</sup>Xe を含 む新型液体シンチレータである。

液体シンチレータの体積に比例して増えるバックグラウンドの存在のため、観測対象 となる液体シンチレータは出来るだけ少ない方がいい。即ち、液体シンチレータに対 する Xe の溶解度は出来るだけ高い必要がある。また、<sup>136</sup>Xe 含有液体シンチレータの 密度は、mini-balloon の強度の問題からバルーン内外の密度差をある程度押さえる必 要がある。

これまでの研究により<sup>136</sup>Xe 含有液体シンチレータの組成は、デカンとプソイドクメン、PPOと決定した[30]。その後の研究により、実際に使用する液体シンチレータの 組成が上記の要求を満たすように決定された。

ドデカン	80%
プソイドクメン	20%
PPO	1.36%
密度	0.77721g/cm <sup>3</sup>

デカン	82%
プソイドクメン	18%
PPO	2.7%
密度	$0.77752 \mathrm{g/cm^3}$
<sup>136</sup> Xe 溶解度	$3.0 \mathrm{wt}\%$

図 4.2: KamLAND-LS 組成

図 4.3: <sup>136</sup>Xe 含有液体シンチレータ組成

実際に<sup>136</sup>Xe 含有液体シンチレータを作成する際は、下記のようなハンドリングシ ステムを用いて、密度や溶解度などのコントロールをリアルタイムに行った。また、 Xe 回収のシステムも備え、ロスなく<sup>136</sup>Xe を使えるようにした。



図 4.4: ハンドリングシステム

## 4.4 mini-balloon

KamLAND-Zen 実験において、観測対象となる液体シンチレータが増えるのと比 例してバックグラウンドが増えるため、用いる液体シンチレータは出来るだけ少な い方が望ましい。そのため、<sup>136</sup>Xe を液体シンチレータに飽和近くまで溶かす必要が あった。そのため、KamLANDの液体シンチレータ全体に<sup>136</sup>Xe を溶かすのではな く、mini-balloon内の液体シンチレータのみに<sup>136</sup>Xe を溶かすことでその問題を解決 した。また、mini-balloonによって二重ベータ崩壊実験の領域を制限することで、地 球ニュートリノ観測をKamLAND-Zen実験と継続して行うことが出来る。そのため、 mini-balloonを用いて<sup>136</sup>Xe 含有液体シンチレータを導入することとなった。

mini-balloonの大きさは主に<sup>136</sup>Xe 含有液体シンチレータの溶解度によって決定される。先述の研究により半径 1.58m、体積 16.5m<sup>3</sup>の涙型のバルーンを製作することに決定した。mini-balloonの素材となるフィルムについては以下のような項目が要求される。

- ・光透過度
- ・破断強度
- ・Xe バリアー性
- ・放射性不純物の含有量
- ・液体シンチレータに対する耐性

要求項目について選定を行った結果ナイロンフィルム (25µm厚)に決定した。選定の 詳細は5章にて述べる。

mini-balloonの基本デザインは次図に示すように各部分に分かれており、上からコル ゲート管、接続管、mini-balloon本体である直管部・コーン部・バルーン部となって いる。そしてこれらの重さを支えるために吊り紐を用いている。



図 4.5: バルーンの構造図と実寸大バルーン(バルーンのみの写真)

#### mini-balloon 本体

フィルム1枚から涙型の mini-balloon を成形するのは困難であるため、24枚のゴ アを溶着して製作を行う。24枚にしたのはいくつか理由があり、元のフィルム幅が約 60cm であったため、そこから切り出すのに適した幅であった事が1つ、またゴアの枚 数が少ないと1つ1つのゴアの曲率が大きくなり、フィルムの切り出しが困難になる ことが1つ、また溶着装置が約30cmの直線でしか使えないため、できるだけ曲率を 小さくしたかったのが1つ、またあまりにゴアの枚数が増えると溶着線の数も増え、 Xe 漏れのリスクが高まること等の理由から24枚に決定した。

mini-balloonの形が涙型になったのは、ラッパ型のコーン部を用意する事で出来るだけ力が集中する事の無いようにするためである。また、mini-balloonには南極部が用意されている。これは溶着不良の原因となる複数枚同時の溶着を避けるためである。



図 4.6: 写真左がゴア1枚。写真右側はゴアの型取りのための紙

また、

接続部

接続部は長さ 7m 以上と非常に長いため、バルーンに近い部分は 1.5m のフィルム パイプを製作し直管部とし、それ以外の部分はナイロン製のコルゲート管を使用する 事にした。本来は全てフィルム製パイプを用いた方がクリーン度という面ではいいの だが、強度の関係と製作の困難さ、また実際に mini-balloon をインストールする際に 空間的な制限により接続部を曲げる必要があるためにコルゲート管を用いている。

#### 吊り紐

バルーンの重さを支えるための紐で、12本の紐を使っている。ただし、全て糸状の 紐を使っている訳ではなく、直管部から上はベクトランというスーパー繊維を使い、 mini-balloon 近傍の紐はフィルムから作ったベルトを使っている。全ての部分をベク トラン紐にしなかったのは、スーパー繊維の選定の中で放射性不純物の含有量の要求 をクリア出来るものが無かったためである。そのため mini-balloon 本体に近い部分は 放射性不純物の少ないミニバルーン本体と同じフィルムで吊りベルトを作成し用いた。 吊り紐の選定等詳しい内容については6章を参照の事。

## 4.5 バックグラウンド

KamLAND-Zen 実験で観測されると予想されるエネルギースペクトルを以下に示す。ここでシミュレーションのパラメータとしていくつかの仮定を用いている。

mini-balloon に含まれる放射性不純物 ( $^{238}$ U, $^{232}$ Th, $^{40}$ K) = ( $3.0 \times 10^{-12}$ g/g, $3.0 \times 10^{-12}$ g/g, $2.4 \times 10^{-11}$ g/g)

 $2\nu$  モードの半減期  $T_{1/2}^{2\nu} = 2.11 \times 10^{21}$  year ニュートリノの有効質量  $\langle m_{\nu} \rangle = 150$ [meV]



図 4.7: KamLAND-Zen 実験におけるエネルギースペクトル

 $^{136}$ Xeの $0\nu$ モード崩壊のエネルギー領域 $(Q_{\beta\beta} = 2.47 [MeV])$ にはいくつかのバッ クグラウンドが存在する。

2νモードの二重ベータ崩壊

宇宙線ミューオンの原子核破砕による放射性元素<sup>10</sup>C,<sup>11</sup>Beの崩壊

<sup>10</sup>C 太陽ニュートリノのイベント

mini-balloon 起源の放射性不純物<sup>208</sup>Tl,<sup>214</sup>Biの崩壊

これらのバックグラウンドの中では特に  $2\nu$  モード、 $^{10}$ C、 $^{214}$ Bi の寄与が非常に大きい。本論文では、mini-balloon 起源である  $^{214}$ Bi についての詳細を記す。

 $^{214}Bi\beta^{-}$ 崩壊

<sup>214</sup>Biは<sup>238</sup>U系列の崩壊核であり、<sup>238</sup>U系列の放射性元素は、その崩壊過程で<sup>218</sup>Po、
 <sup>214</sup>Pb、<sup>214</sup>Bi、<sup>214</sup>Po、<sup>210</sup>Pbという一連の崩壊を約 50 分程度で起こす。この際、親核・娘核の崩壊との位置相関、時間相関などから (遅延同時計測) この信号を識別して
 (tagging) 除去することが可能である (Tag1,Tag2)。



図 4.8: <sup>238</sup>U系列の <sup>214</sup>Bi Tagging

•Tag1:<sup>214</sup>Bi/<sup>214</sup>Po **遅延同時計測** 

<sup>214</sup>Biの娘核である<sup>214</sup>Poは、半減期が非常に短いことから、限られた数の偶発イベントの混入だけで遅延同時計測が可能であり、ごく一般的に用いられる手法である。 ここで問題となってくるのは、α線である。具体的にはα線は飛程が非常に短いため、 放射角やミニバルーンの膜厚によっては、液体シンチレータまで到達せずシンチレー ション光を発しない場合があることであることと、エネルギー損失により KamLAND 検出器のエネルギー閾値を超えられずに信号が取得できない可能性があることである。 以上のことより、 $^{214}$ Poの $\alpha$ 崩壊イベントを検出できる確率は $\alpha$ 線がバルーンを通 過する確率  $\varepsilon_a$ とエネルギー閾値を超える確率  $\varepsilon_b$ との積で表されることになる。

よって Tag1 を効率よく行うためには、mini-balloon のフィルム厚を薄くすることが必要となる。以下に Tag1 の効率とフィルム厚依存性をまとめる。

フィルム厚	$\varepsilon_a$	$\varepsilon_b$	Tag1 <b>効率</b>
$50 \mu { m m}$	0.586	0.498	0.292
$25 \mu { m m}$	0.801	0.655	0.525
$15 \mu { m m}$	0.888	0.723	0.642

表 4.1: フィルム厚と Tag1 効率の関係

•Tag2: <sup>214</sup>Pb/<sup>214</sup>Bi **遅延同時計測** 

<sup>214</sup>Pb の半減期は先述の <sup>214</sup>Po と比較すると非常に長いため(図 4.8 参照)、偶発 イベントの混入が多くなり、Tagging の精度が下がってしまう。そのため、位置相関 (Vertex セレクション)をイベントからの半径 40cm、時間相関 (タイムウィンドウ)を 1時間で取り、イベントの選定を行い低バックグランド環境を実現する必要がある。ま た、偶発イベントに関しては混入を 10%以下にするために mini-balloon 中の <sup>40</sup>K の許 容量が決定された。

$$X[Bq/m^3] \times 4\pi/3(40 \text{cm})^3 \times 3600[\text{sec}] < 0.1[\text{event}]$$
 (4.1)

以上の計算により Tag2 の効率は 1 時間のタイムウィンドウで <sup>214</sup>Bi を捕獲する確率 と <sup>214</sup>Bi 崩壊がエネルギー閾値を超える確率との積で表されることになる。それぞれ の確率は 87.6%、77.4%となるため、最終的には Tag2 の効率は 67.8%となる。

<sup>214</sup>Bi のタグ効率

以上の Tag1、Tag2 による遅延同時計測から 84.7%のイベントが Tagging により除去 できることになる。

次に Tagging を行った場合に KamLAND-Zen 実験がどこまでの感度に到達できるか のシミュレーション結果を示す。ここでは mini-balloon に含まれる<sup>238</sup>U の含有量と 有効体積の相関性を示している。

この結果から有効体積を 100% 使うためには <sup>238</sup>U の含有量は、Tag ありの場合でお よそ 2.0 × 10<sup>-12</sup>g/g、Tag なしの場合だとおよそ 6.0 × 10<sup>-13</sup>g/g と Tag の有無でか かる制限に大きな違いがある事が分かる。



図 4.9: 有効体積と<sup>238</sup>U 含有量依存性

<sup>214</sup>Bi 以外の様々なバックグラウンドについては、それそれ tagging や新開発のエレ クロトニクスによってバックグラウンドの低減に成功している。以下は予測されてい る年間イベント数である。ただし、0<sup>*v*</sup> モードの二重ベータ崩壊のイベント数は、有効 質量 150[meV] であると仮定してある。また、tag2 の有無でどれだけイベント数が変 わるかを示すために、tag2 無しの場合と tag2 有りの場合の 2 通りの予測数を示す。

<sup>136</sup> Xe (2ν)	208 <b>T</b> I	<sup>214</sup> Bi	10 <b>C</b>	<sup>11</sup> Be	<sup>8</sup> B	Total	<sup>136</sup> Xe (0ν)
8.55 ±0.67	6.97×10 <sup>-3</sup> ± 0.93×10 <sup>-3</sup>	8.55 ±0.06	1.85 ±0.01	0.15 ±0.01	0.93 ±0.02	19.53 ±0.67	14.59 ±0.02
<sup>136</sup> Xe (2ν)	<sup>208</sup> TI	<sup>214</sup> Bi	10 <b>C</b>	<sup>11</sup> Be	<sup>8</sup> B	Total	<sup>136</sup> Xe (0ν)

図 4.10: 年間イベント数の予想:上が tag2 無しの場合、下が tag2 有りの場合

KamLAND-Zen 実験で予想されるイベント数

# 第5章 mini-balloonのためのフィルムの 選定と開発

## 5.1 概要

前章に述べたように KamLAND-Zen 実験を行うにあたって、液体シンチレータの 組成や体積、また実験感度の要求等から、mini-balloon に用いるフィルムの選定は最 重要課題となっている。更に、mini-balloon の形に成形するためにはフィルムの溶着 が必須であり、これを含めた全ての条件で要求をクリアすることが必須となっている。

本研究では数多くのサンプルフィルムについて幅広い詳細なデータを集めることで、 実際の mini-balloon 製作に用いたフィルムを選定するまでの過程で行った諸研究につ いて述べる。

## 5.2 フィルムに対する要求項目

ここでは、フィルムに要求される様々な項目を列挙すると共に、その項目が要求さ れる様々な背景について述べる。

#### 光透過度

これまでに述べた通り、KamLANDではPMTによるシンチレーション光の検出を 行ってきており、KamLAND-Zenにおいても同様の方法でデータ収集を行う。この際 LS やフィルムにおける光透過度のロスは出来るだけ軽減されることが望まれている。 ただし、PMTの集光性能やLSの発光性能から特に 370nm から 450nm の範囲での光 透過度が保証されていればよいこととする。

光透過度は主にフィルムの種類に因る所が大きい事が分かっている。

#### 破断強度

mini-balloonの破壊は絶対に避けることであり、そのためには破断強度が出来るだけ 大きい事が望まれる。破断強度の要求は、mini-balloonには内外の密度差  $\Delta \rho = 0.04\%$  に 応じた力がかかるためこれに耐えうることが最低条件であるが、更に安全な $\Delta \rho = 1.0\%$ に応じた力にあたる 10N/cm を目標値として定めた。

Xe バリアー性

mini-balloon 内部には Xe-LS を満たすが、mini-balloon に Xe バリアー性がなかった場合、内部の LS に溶けている Xe が外側の LS に染み出る事になる。これは、標的となる Xe が減り実験感度の低下に繋がるほか、KamLAND-LS 全体に Xe が溶ける事により回収が困難となり、非常に高価な Xe をロスする事になる。

Xe バリアー性はフィルムの溶着条件に因る所が大きく、僅かな条件の差により Xe バリアー性に大きな違いが見られるため、詳しく検証を行った。なお要求としては 5 年間の実験で全体の Xe の 1%以下 (4kg 以下)を目標値として定めた。

#### 放射性不純物の含有量

フィルムにはほんの僅かではあるが放射性不純物が含まれている。KamLAND内で は超低バックグラウンド環境下で超高感度実験が行われているが、そのような環境下 では、僅かな放射性不純物でも重大なバックグラウンド源となり、実験感度に与える 影響は非常に大きいものとなる。

mini-balloon 起源の放射性不純物のうち、特にバックグラウンド源となるのは <sup>238</sup>U、 <sup>232</sup>Th、<sup>40</sup>K がある。これらのバックグラウンド信号は前章に述べた tagging を用いて ある程度の除去は可能となるが、完全に除去しきれないため、出来るだけ放射性不純 物の含有量を減らす事が望まれる。ここで、含有量の要求は既にシミュレーションに よって計算されており、それぞれ  $3.0 \times 10^{-12}$ g/g, $3.0 \times 10^{-12}$ g/g, $2.4 \times 10^{-11}$ g/g と なっている。この要求を実現するためにフィルムの選定を行った。

これまで述べた条件と密接に関わるのがフィルム厚と Xe-LS への耐性である。 まずフィルム厚については、厚さが厚いと破断強度や Xe バリアー性にとって有利と なり、薄ければ光透過度と放射性不純物の含有量にとって有利となる。

Xe-LS への耐性であるが、mini-balloon が KamLAND の LS 層に投入され、それに加 え内部には Xe-LS を満たす事から、フィルムが LS からダメージを受ける事により要 求項目に影響を及ぼす可能性がある。また、長期間の実験を想定していることから、 Xe-LS への耐性を見るために経年変化の測定も行った。

選定方針としては、フィルムの種類とフィルム厚の選定を平行して行い、各々のフィ

ルムでテストを行うという方針を取った。また、溶着条件については、フィルムの種類が決まってから条件の選定を行うものとした。ただし、1つの要求項目をテストした時点であまりに不適合な場合には選定の簡略化のため他のテストについては行っていないものもある。

## 5.3 選定を行うフィルム

ここでは、選定を行ったフィルムとその性質について述べる。

EVOH フィルム(エチレンビニルアルコール共重合体)

エチレンビニルアルコール共重合体 (EVOH) は、エチレンと酢酸ビニル共重合物の 加水分解により得られる。特徴としては、ガスバリア性が非常に優れており、高い透 明性を持つ。また、有機溶剤に抜群の耐性を示す。今回選定を行ったのはクラレ社製 のエバールフィルムである。

PVDF フィルム(ポリフッ化ビニリデン)

ポリフッ化ビニリデンは高耐性、高純度な熱可塑性フッ素重合体のひとつである。 機械的強度に優れているが、一部の薬品に対して化学的耐性が悪い。また、透明性も 若干悪い。この選定を行ったのは ARKEMA 社製の KYNAR フィルムである。

ETFE フィルム (エチレン・テトラフルオロエチレン共重合体)

ETFE は熱可塑性フッ素樹脂の一つである。ETFE は代表的なフッ素樹脂である PTFE(テフロン) に匹敵する対薬品性を保持しつつ、容易な成形加工性を兼ね備える 等バランスの取れたフッ素樹脂である。

ナイロンフィルム

ナイロンはポリアミド系樹脂の一つである。強度・摩耗に非常に強く、透明性も十 分にあるが、薬品に侵されやすいという特徴を持つ。

これらの他にも様々なフィルムを重ねて作られた多層型フィルムも存在する。この 多層型フィルムはそれぞれの層に用いるフィルムが変わると特性が変わるのは勿論の 事、層ごとの厚さによっても細かく特性が変化する。

HEPTAX フィルム (多層型フィルム)

HEPTAX はナイロンフィルムに別のフィルムを共押し多層型にすることで、ナイ ロンフィルムに様々な機能を付与している。3層型と5層型のものがあり、それぞれ の層の厚さを変えることで、物性が細かく変化させることが出来る。多層型のため非 常に優れたガスバリア性と、ピンホール耐性を持つが、その反面透明性が悪いという 欠点を持つ。

ここからはフィルムに対する要求をテストするために行った実験の詳細を示す。

#### 5.4 破断強度測定

#### 5.4.1 実験手順

破断強度はフォースゲージを用いての測定を行った。具体的にはフィルムを小片に 切り刻み(幅1cm)、それを破断させるまで引っ張り続け、破断した時の値を測定す るという方法をとった。また Xe-LS によってフィルムがダメージを受け、破断強度が 下がる可能性があるため、フィルムを Xe-LS に浸してエージングした後のフィルムの 破断強度も測定を行った。エージングの方法については全て同じ方法で統一した。以 下にその方法を示す。

(1) Xe-LS と測定を行うフィルムを用意する。ただし、ここで準備する Xe-LS には Xe を溶かしていない。それはフィルムと Xe が反応し、測定に影響を与えるファク ターはほとんど無視できると考えたからである。Xe が溶けていない以外は組成通り に Xe-LS を作製した。

またこの時点で初期状態のフィルムの破断強度を測定することで、経年変化の有無が 出来るようにした。

(2) 150cc バイアルに Xe-LS とフィルムを投入する。この際 Xe-LS とフィルムの投入 量はきちんと管理をすることで、測定の誤差を出来るだけ減らし実験の精度を上げる。

(3) Xe-LS に対して窒素バブリングを行う。流量を 200ml/min と決め 10 分間流す ことで、十分に他の気体を追い出したものとする。この窒素バブリングには大きく 2 つの目的があり、1 つ目が全てのサンプルの初期条件を揃えること、2 つ目が Xe-LS を劣化させると考えられる酸素を出来るだけ LS から追い出すことである。

(4) 準備したバイアルのふたにテフロンテープを巻き付け、出来るだけ酸素の混入 を防ぐ処置をする。バイアルを 45 の恒温槽に入れ長期間保存した後に、もう一度 同じ測定を行う。

ここで恒温槽環境を用いたのは全てのバイアルで劣化する速度を均一にするためと、 温度を上昇させると化学反応の速度が早くなることが知られているため、それを利用 して加速実験を行い、十分測定値は上限値であるということを立証するために45 と いう環境を用いた。よってこれから示すエージング測定の結果には加速効果の見積も りは無いものの、実際のエージング効果よりも大きく見えていることが予想される。



図 5.1: エージングの手順

#### フォースゲージ

フィルムの破断強度を測定するためにイマダ社のフォースゲージ ZP-200N を用いた。使用最大荷重としては 200N まで耐えられるため、今回の実験においては十分使用に足るものであった。この試験機にフィルムの小片 1cm 幅を掴み手で挟み、引っ張ることで破断強度の測定を行った。



図 5.2: 実験に用いたフォースゲージ ZP-200N

#### 5.4.2 実験結果と考察

それぞれのフィルムの破断強度の測定結果を以下に示す。ただし、この測定を行っ た全ての試験サンプルが、掴み手のエッジ部分で破断してしまった。つまりこの結果 は実際の破断強度ではなく、サンプルを挟んだことによりちぎれてしまったと考えら れるため、実際の破断強度は測定値よりも高い値であることが予想される。そのため、

#### 結果は全て破断強度の下限値であると考えた。

フィルムの種類	<b>エージング前</b> [N/cm]	備考
EVOH-XL <b>タイプ</b> ,12µm	$\geq 8.4 \pm 0.7$	_
EVOH-HS <b>タイプ</b> ,30µm	$\geq 14.4 \pm 1.2$	_
KYNAR, $35\mu m$	$\geq 18.4 \pm 2.7$	3 倍程度に伸び、15N/cm 付近に降伏点あり
KYNAR, $60\mu m$	測定不能	長さが元の3倍以上に伸びる
$\mathrm{ETFE},\!25\mu\mathrm{m}$	$\geq 11.6 \pm 1.7$	2 倍程度に伸び、9N/cm 付近に降伏点あり
Nylon, $25\mu m$	$\geq 34.3 \pm 4.9$	
HEPTAX-HF1 <b>タイプ</b> ,15µm	$\geq 13.6 \pm 1.3$	
HEPTAX-HPX タイプ,25µm	$\geq 28.2 \pm 3.0$	

表 5.1: エージング前の初期状態のフィルムの破断強度

フィルムの種類	エージング日数 (day)	エージング前 [N/cm]
EVOH-XL タイプ,12µm	40	$\geq 10.0 \pm 2.8$
EVOH-HS <b>タイプ</b> ,30µm	8	$\geq 16.4 \pm 2.7$
KYNAR, $35\mu m$	-	-
KYNAR, $60\mu m$	-	-
$\mathrm{ETFE},\!25\mu\mathrm{m}$	-	-
Nylon, $25\mu m$	50	$\geq 30.7 \pm 2.3$
НЕРТАХ-НF1 <b>タイプ</b> ,15µm	8	$\geq 11.3 \pm 1.1$
HEPTAX-HPX タイプ,25µm	40	$\geq 26.5 \pm 3.8$

表 5.2: エージング後のフィルムの破断強度

KYNAR、ETFE フィルムについては破断強度に至る前に降伏点 (物体に力を加え た際に、物体の変形が急激に増加し、元に戻らなくなる時の力の大きさ)が存在し、更 に伸び率が非常に大きいため、mini-balloon として使うのは不適合だと判断し、エー ジング測定は行わなかった。

EVOH-XL タイプを除いて目標である10N/cm を上回る値を測定した。破断強度の大きさはフィルムの種類による所が大きく、フィルム厚とも関係があることも確認された。

また全てのフィルムにおいてエージングによる破断強度の有意な変化は見られなかった。

## 5.5 放射性不純物の含有量測定

#### 5.5.1 測定方法

放射性不純物含有量の測定は外部の測定機関に依頼した。分析方法は<sup>238</sup>U,<sup>232</sup>Th に ついては ICP-MS(高周波誘導結合プラズマ質量分析計)、<sup>40</sup>K については炎光分析に て測定した。

#### $\operatorname{ICP-MS}$

プラズマで物質をイオン化させ質量分析を行う超高感度な分析機器。具体的にはア ルゴンのプラズマをイオン化源とし、プラズマに導入された試料は過熱分解されイオ ン化される。このイオンをイオンレンズで収束し、その質量/電化数に応じて質量検 出器において分離した後検出器で計測する。この測定法は複数元素の同時測定が可能 で、測定範囲が広いという特長を持つ。

#### 炎光分析

炎色反応を利用した分析法である。具体的には、試料をバーナーの炎で熱し、試料 中に含まれる原子、分子、イオンなどが高熱により励起されて発する炎色スペクトル を利用し、波長ごとに発光量を観測することで、試料中の元素の質量を計測する、特 に励起エネルギーが小さいアルカリ金属、アルカリ土類金属の分析に適する。

#### 5.5.2 結果

測定結果を以下に示す。ただし、フィルムのみではなく、その原料となっているペレット状態のものについても含有量の測定を行っている。

 $^{238}$ U、 $^{232}$ Th、 $^{40}$ Kの目標値はそれぞれ $3.0 \times 10^{-12}$ g/g, $3.0 \times 10^{-12}$ g/g, $2.4 \times 10^{-11}$ g/g となっているが、それを全て満たす可能性のあるものは EVOH ペレット以外には無かった。また、フィルム厚と放射性不純物の含有量には相関性があることも分かった。

ここまでの破断強度と放射性不純物含有量の測定から、mini-balloonのフィルム候補として主にEVOHとナイロンを中心に選定を行うこととした。理由としてはEVOHはペレットの放射性不純物含有量から、ナイロンは破断強度の強さからである。いずれのフィルムも放射性不純物の目標値に達していないが、フィルムに含まれているfillerと呼ばれる添加剤を使用しないフィルムにおいて、放射性不純物の含有量の減少が確

フィルムの種類	$^{238}U(10^{-12}g/g)$	$^{232}$ Th $(10^{-12}$ g/g $)$	$^{40}$ K(10 <sup>-11</sup> g/g)
EVOH-XL <b>タイプ</b> ,12µm	< 40	< 30	130
EVOH-XL <b>タイプ</b> ,15µm	-	-	140
EVOH-HS <b>タイプ</b> ,30µm	-	-	260
EVOH ペレット	< 5	< 5	< 0.12
ETFE ペレット	17	78	1.2
ナイロン,25µm	150	590	14
ナイロンペレット	22	94	< 1.2
НЕРТАХ-НРХ <b>タイプ</b> ,25µm	95	900	2.3

## 表 5.3: 放射性不純物の含有量

認された。この filler 無しのフィルムの測定に関しては、後ほど詳細を述べるものとする。

#### 5.6 光透過度測定

#### 5.6.1 実験手順

この測定では分光光度計を用いて2つの項目のテストを行った。1つ目はフィルム 自身の光透過度の測定、2つ目はXe-LSへの耐性を測定するためにフィルムがXe-LS に溶け出して光透過度に影響を与えないかの測定である。この際、どちらの項目につ いてもエージングの効果の測定を行った。

(1) Xe-LS と測定を行うフィルムを用意する。ただし、ここで準備する Xe-LS には Xe を溶かしていない。この時点で初期状態のフィルムと Xe-LS の光透過度を測定す ることで、経年変化の有無が出来るようにした。

(2) 150cc バイアルに Xe-LS とフィルムを投入する。

(3) Xe-LS に対して窒素バブリングを行う。流量 200ml/min で 10 分間流す。

(4) 準備したバイアルのふたにテフロンテープを巻き付け、出来るだけ酸素の混入 を防ぐ処置をする。バイアルを 45 の恒温槽に入れ長期間保存した後に、もう一度 フィルムと Xe-LS の光透過度を測定する。

以下にこの実験に用いた装置についての詳細を述べる。

#### ダブルビーム型分光光度計

日立ハイテク社のダブルビーム型分光光度計 U-3900 を用いた。分光光度計はシン グルビーム型、ダブルビーム型の2種類存在しており、それぞれに長所がある。シン グルビーム型は、サンプルと同じセル(液体を入れる入れ物)を用いてリファレンスの 測定ができるため、測定セルの個体差に起因する測定誤差を無くす事ができる、また 装置自体が安価である等の長所を持ち、ダブルビーム型は、リファレンスとサンプル が同時に測定できるため、時間変動に起因するノイズ(光源の安定性など)を少なく できる、また光源が同一である事から測定精度が非常に高い等の長所を持つ。この測 定においてはダブルビーム型の物を使用した。分解能は0.1%と若干粗いが、精度も同 じく 0.1%である。

セルには石英セルを用いた。石英セルは高価ではあるが、紫外領域での波長の測定 が可能であるという特徴を持つ。リファレンス側は1cmのセル、サンプル側は10cm のセルを用いることで液長にして9cm分の光透過度の変化を測定することが出来る。 ここでリファレンスを用いるのは、セル面の反射やその他セルへの入光によるファク



図 5.3: 分光光度計(左写真)とその構造(右図)

#### ターを取り除くためである。

この装置では液体以外の光透過度の測定が不可能であるため、フィルムの光透過度を 測定する際には、セル内に Xe-LS とフィルムの両方を入れ測定し、そこから Xe-LS の ファクターを取り払うことで間接的にフィルムのみの光透過度を測定した。

(フィルムの光透過度) = (フィルム + Xe-LS の光透過度) - (Xe-LS のみの光透過度)(5.1)

#### 5.6.2 実験の精度と留意点

分光光度計の精度

光透過度実験では精度の向上のために1つのサンプルごとに3回の測定を行い、その平均値を取ることで、分解能の粗さを補うことにした。また、装置の測定精度の確認のために、光透過度が非常に安定している光学用シクロヘキサンの測定を行ったところ、確かに0.1%の精度を実現しているのを確認した。

#### 測定精度

この実験において、特に人の手による誤差として挙げられるのが、セルの洗浄の際 の埃等の汚れの付着による光透過度の低下である。これはセルの洗浄を同じプロセス で行うことと、洗浄の慣れによりかなりの高い精度で測定を行うことが可能となった。 具体的には先述の分光光度計の精度と含めて、0.3%の精度を実現することができた。



図 5.4: シクロヘキサンの測定データ: 3回とも同一条件で測定したものである。

#### バイアルの気密性

バイアルの気密性も測定の精度に大きな影響を及ぼす。Xe-LS は主に酸素と反応し劣 化することで、光透過度を低下させることが分かっている。そのためバイアルの蓋に テフロンテープを巻くことで可能な限り酸素の混入を防いでいるが、それでも完全に 防ぎきれてはいない。そこで、Xe-LS のみを入れたバイアルを長期的保存しその光透 過度の低下を前もって測定することで、酸素によるファクターを見積もり、実際の測 定値にそのファクターを反映させた。



図 5.5: 酸素による Xe-LS の光透過度の劣化: 横軸は経過した日数、縦軸が光透過度 であり、日数が経つに従って光透過度が低下しているのが分かる。

#### 5.6.3 測定結果とその評価方法

まず、一般的にフィルムの光透過度がどの程度なのかを把握するために、様々なフィ ルムの光透過度を測定した結果を示す。グラフの通り、フィルムの種類によって光透 過度は大きく異なる。また、実際に目で見た印象の透明度と光透過度の値には相関性 があった。HEPTAX フィルムは見た目が若干白く、光透過度が低いことが予想され たが、実際の値もその通りとなった。HEPTAX フィルムの光透過度が悪かった理由 は多層膜であることと、ガスバリア性や取扱いやすさを向上させるための表面処理が 施されているためではないかと考えられる。



図 5.6: 様々なフィルムの光透過度

この結果を踏まえた上で、EVOH-XL タイプ ( $15\mu$ m) とナイロンフィルム ( $25\mu$ m) についての測定を行った。またエージングを行った後の測定結果も共に記す。



図 5.7: EVOH フィルムの光透過度:赤線がエージング前で、青線がエージング後の 測定結果である。



図 5.8: ナイロンフィルムの光透過度

エージング前後では、後の方がフィルムがダメージを受けることによってフィルムの光透過度が低下すると予想していたが、EVOHフィルムに関してはエージング前の方が光透過度が悪いという測定結果が得られた。この結果については原因は不明である。

また、ナイロンフィルムに関してはエージングにより 0.3%から 0.5%の低下が見られ るが、ほとんどエージングの効果はなかったという結果が得られた。

フィルムの Xe-LS への耐性 (フィルムの溶け出し)

フィルムがダメージを受けるとそれが Xe-LS に溶け出し、光透過度の劣化を起こす と考えられる。この劣化を分光光度計の 9cm の光路差を利用して、9cm あたりの光透 過度の変化を見る形で耐性を調べることにした。

こちらの測定はバイアルに入れる Xe-LS とフィルムの量で実験感度を稼ぐことが出来 る。つまり、少ない Xe-LS の中にフィルムを大量に入れることで、溶け出しのファク ターを効率よく見ることが出来る。なお、バイアルでのフィルムの表面積と Xe-LS の 体積比は、実際の KamLAND-Zen 装置の 190.2 倍である。

バイアル:フィルムの表面積 540cm<sup>2</sup> Xe-LS の体積 150cm<sup>3</sup> KamLAND-Zen:フィルムの表面積 31.73m<sup>2</sup> Xe-LS の体積 16.52m<sup>3</sup>

また、光透過度の低下は非常に小さいことが予想されるため、より厳密に測定結果 を評価するため波長ごとに fitting を行うこととした。ここでは光透過度の低下は一次 関数的であると考え、波長ごとにその傾きを計算し、最も大きく低下する波長を用い て光透過度の低下の計算を行った。その結果を以下に示す。



図 5.9: フィルムの溶け出しによる光透過度の低下 上図: EVOH-XL タイプ 下図: ナイロン



図 5.10: 上図 : EVOH の結果を Xe-LS の光透過度を波長ごとに 1 次関数で fitting した時の傾きのグラフ。縦軸は 1 日あたりの光透過度の低下 [%/day] である。下図 : 400nm 波長での fitting 結果。この fit 結果の傾きが上の図の縦軸の値となる。



transmissivity slope vs wave length

図 5.11: ナイロン溶け出しの光透過度の fitting 結果 上図:ナイロンの結果 下図: 400nm 波長での fitting 結果

以上の結果から、フィルムの溶け出しによる LS の光透過度の低下が分かった。この値を使い、実際の KamLAND-Zen 装置の系に換算した。なお、溶け出しはによる 光透過度の低下は KamLAND-Zen の LS 全体に均一に起こっているものとした。

フィルムの種類	<b>測定値</b> (%/day,)	実際の装置系での換算値 (%/year)
EVOH-XL タイプ,15µm	$0.022 \pm 0.015$	$0.042 \pm 0.029$
ナイロン,25µm	$0.035 \pm 0.016$	$0.067 \pm 0.030$

#### 表 5.4: フィルムの溶け出し試験結果

EVOH-XL、ナイロンフィルムの両方ともに、フィルムの Xe-LS への溶け出しは大 きくないことが分かった。実際の LS の透過長にも大きな影響を及ぼす値ではないた め、フィルムの溶け出しのファクターはほとんど無視することが出来るという結論に 至った。

## 5.7 Xeバリアー性測定

この実験ではフィルムから漏れる Xe ガスの量を測定するために、独自に製作した フィルム保持装置と TCD ガスクロマトグラフィーを用いての実験を行った。保持装置 は技官さんにお願いして製作を行った。最初に作った装置には、様々な問題点があっ たため、2 度の改良を重ねて最終的な装置が完成した。



図 5.12:初期型:液を入れた2つの装置の間にフィルムを挟むという方針で装置を製作した。実験原理としては、片方に Xe を溶かした LS を入れ、もう片方に Xe を溶かしていない LS を入れる。

仮にフィルムが Xe を透過した場合、Xe が溶けた LS 側から溶けていない LS 側へと 移動し、Xe を入れていない LS 側から Xe が検出されるはずである。

この装置の問題点は、装置に入る液量が少ないため、実験感度を稼げなかったことと、 液漏れが発生し、定量的な測定が行えなかったことである。



図 5.13: 改良後:装置の系を大きくすることで、装置に入る液量が増えたため実験感度が向上し、液漏れの問題も無くなった。しかし、液を取り出すチムニー部の口径が大きすぎるため、液を取り出したり Xe を溶かしたりする際に、Xe が大気に出てしまうロスが生まれてしまうことが分かった。



図 5.14: 完成版 : 液を出し入れする部分の口径を小さくすることで Xe のロスが減り、 精度よい測定が行えるようになった。

5.7.1 実験手順

(1) LS に Xe バブリングを行い、飽和状態になるまで十分に Xe を溶かす。

(2) フィルム保持装置を準備し、一方に Xe の溶けた LS、もう一方に Xe の溶けて いない LS を入れる。

(3) 45 の恒温槽環境で長期保存を行う。

(4)保存した後に Xe の溶けていない方の LS をシリンジで採取し、ガスクロマトグ ラフィーに注入し Xe 成分を分析する。これにより Xe がフィルムを通過していないか を調べる。

以上の手順で実験を行った。

TCD ガスクロマトグラフィー

Xe バリアー性を測定するためにジーエルサイエンス社の TCD ガスクロマトグラ フィーGC-4000を用いた。ガスクロマトグラフに使用される検出器は様々あるが、TCD ガスクロマトグラフィーは熱伝導度検出器を使用している (TCD: Thermal conductivity detector)。図 5.15 に基本的な構造を示す。

マイクロシリンジで採取された試料がセプタムを通じてインジェクターに入れられ ると、その高温のため瞬時に気化し、カラム内に充填された molecular sieves とよば れる多孔質の素材によって吸着・分離を繰り返しながらキャリアーガスによって運搬



図 5.15: TCD ガスクロマトグラフィーの構造

される。この際、試料成分の分子量、大きさ、極性等の特性により、カラムを通過す るまでの時間 (保持時間) は各成分固有の値となる。保持時間を経過した試料は順次 TCD 検出器の抵抗に到達し、キャリアーガスよりも熱伝導度が低いために、抵抗値 を上げる。このとき電流計に流れる電流値を測定することで、試料中にどのような成 分がどれだけ含まれていたかを明らかにすることができる。

熱伝導の低いヘリウムをキャリアーガスとし、試料が混入すると熱伝導度が低下するのを測定しており、その際にキャリアガス以外の成分を全て検出できることが特徴である。そのため希ガスである Xe の検出も可能となっている。

なお、ガスクロマトグラフィーの検出限界は 10[ppm] である。[28] 測定結果を以下に示す。

フィルムの種類	<b>保存日数</b> (day)	実際の装置系での Xe 漏れ (kg/year)
EVOH-XL タイプ, $12\mu m$	63	< 0.054
EVOH-HS タイプ,30µm	11	< 0.44
ナイロン,25µm	63	< 0.08

#### 表 5.5: Xe 漏れ量の測定結果

目標値は1年間で1kg以内であった。EVOHに関してはガスバリア性が高い事からXe漏れの量も少ないと考えられていたが、実験においてもXeの漏れは確認出来ず上限値を与える結果になった。ナイロンに関しても漏れは確認されず上限値が与えられた。

## 5.8 結果のまとめ

ここまでに述べた測定により、様々なフィルムの特徴が明らかになった。以下にその結果を示す。

		EVOH-XL タイプ	ナイロン,25μm
<b>フィルムの光透過度</b> (%,@400nm)		99.1 $(15\mu m)$	96.0
LS への溶け出	日し (%/year/9cm)	$0.042 \ (15 \mu m)$	0.067
破断強	度 (N/cm)	$\geq 8.4 \; (12 \mu \mathrm{m})$	$\geq 34.3$
Xe 漏れ	し量 (g/year)	$< 0.054 \ (12 \mu m)$	< 0.08
放射性不純物	$^{238}\mathrm{U}(10^{-12})$	$< 40 \; (12 \mu {\rm m})$	150
の含有量	$^{232}$ Th $(10^{-12})$	$< 30 \ (12 \mu m)$	590
(g/g)	$^{40}$ K(10 <sup>-11</sup> )	$130 \ (12 \mu m)$	14

表 5.6: 測定結果まとめ

この 2 つ比較すると EVOH 膜は <sup>40</sup>K が非常に多く、ナイロンに比べて破断強度小 さいことから候補から除かれた。よって mini-balloon に用いるフィルムとしては、ナ イロンフィルム (25µm 厚) が第一候補となった。

放射性不純物の項目を満たすフィルムは存在していないため、放射性不純物の項目を クリアするために、フィルムに何らかの改善を行う必要がある。そこで、フィルムに 含まれている filler に注目した。

フィルムに含まれる添加剤 (filler)の有無

一般的に市販されているフィルムのほとんどには、filler と呼ばれる添加剤が含まれ ている。その理由は汎用性を高めるために扱い易さを重視してフィルムを作るためで ある。この filler はペレットからフィルムを製造する際に混入するものである事が分 かったため、filler 無しのフィルムを製造しようとすると、ペレットの段階から製造す る必要がある。

今回の我々の実験では、その汎用性は必要ないため、少々の扱いにくさがあっても filler 無しのフィルムの方が mini-balloon に用いるフィルムとして適していると考えた。そ こで企業にお願いして、生産ラインを mini-balloon フィルムの製作だけのために貸し 切り、filler 無しのフィルムを製作し、改めて全ての測定項目に対してテストを行うこ とになった。以下がそのテスト結果である。



図 5.16: filler 無しフィルム自身の光透過度



図 5.17: filler 無しフィルムの溶け出しによる光透過度へのダメージ





		filler 有り	filler 無し
フィルムの光透過度 (%,@400nm)		96.0	99.1
LSへの溶け出し (%/year/9cm)		0.067	< 0.0057
破断強度 (N/cm)		$\geq 34.3$	$\geq 20$
Xe 漏れ量 (g/year)		< 0.22	< 0.08
放射性不純物	$^{238}\mathrm{U}(10^{-12})$	150	1.9
の含有量	$^{232}$ Th $(10^{-12})$	590	4.9
(g/g)	$^{40}$ K(10 <sup>-11</sup> )	14	0.56

表 5.7: filler 無しナイロンフィルム 25µm の測定結果

filler 有りのフィルムと比較すると、破断強度以外の項目で改善が見られた。特に光 透過度と放射性不純物含有量の向上が大きく、含有量の方は目標値にかなり近づける 事が出来た。その一方で破断強度は若干小さくなってしまったが、これでも目標値で ある 10N/cm は十分にクリアしている。

以上の結果から mini-balloon に用いるフィルムは filler 無しのナイロンフィルム  $25\mu m$  に決定した。

## 5.9 溶着条件の決定

mini-balloon に用いるフィルムが決定したため、そのフィルムを溶着する方法を決 定する必要がある。

今回使用するナイロンフィルムには、接着剤を使用せずに熱溶着するのが難しいとい う欠点があり、そもそもナイロン単膜で使用する事はほとんどないとの事だった。(ち なみに同じような balloon を使用している Borexino グループでは接着剤を使用してい る。これはフィルムの厚さが 125µm と非常に厚いためである。使用している接着剤は resorcinol である。)そこで mini-balloon 製作を依頼していた会社に問い合わせた所、 ナイロンの融点である 225 度以上を設定する溶着機械を特注すれば溶着可能であると の結論に至った。そこで、あらかじめその要求を満たす溶着機械を特注しておいた。

溶着条件の決定に際しては溶着したフィルムが溶着無しのものと同じ性能(要求項目は5.2節を参照のこと)を維持することが必要であった。ここで溶着によって性能が 変化すると考えられる項目は破断強度とXeバリアー性である。 溶着温度の条件は数 変化しただけでフィルムの性能が変わることが分かったため、


図 5.19: 溶着の様子と溶着線

慎重に選定を行った。本来溶着を行ったサンプル全てに対して、破断強度試験と Xe バリアー試験の測定を行わなくてはならないのだが、サンプル数が多すぎるという問 題があったため、破断強度に関しては人の手により引っぱりを行い強度を確認し、Xe バリアーに関してはシールチェッカーと呼ばれるスプレーを用いて漏れが無いか確認 する試験で代用した。

シールチェッカー

Xe バリアー性の確認のための簡易試験として、三菱ガス化学株式会社製のエージ レスシールチェッカーを用いて試験を行った。このシールチェッカーは目視しただけ では分からない漏れ(数ミクロンの部位)を確認する事が出来る。使用方法としては 溶着したサンプルの上からスプレーを噴霧し、溶着不良があればその箇所から染み出 してくるというものである。この方法の利点は、漏れの箇所がピンポイントで分かる 事で、それを基に溶着条件の問題も詳細に調べる事が出来る。

なおこの方法によるリーク測定は、mini-balloon製作の章に述べるヘリウムによるリーク測定と同程度にある事非常に高感度な測定であることが分かった。



図 5.20: リークテストの方法

このリークテストの結果、以下の溶着手順が最も適しているという事が分かった。

(1)237 まで溶着装置の温度を上げる

(2)3.5 秒間溶着を行う

(3)100 まで温度を下げる

また、溶着線には溶着するフィルムに加えて2枚のフィルムを同時に溶着する事で、 リーク数が減少した。以下に溶着線の図を示す。



図 5.21: 溶着の概要

溶着性 (Xe バリアー性)	溶着性 (強度)	取り扱い易さ	${ m ^{40}K(10^{-11}g/g)}$	$^{232}{ m Th}(10^{-12}{ m g/g})$	$^{238}$ U $(10^{-12}$ g/g $)$	Xe バリアー性	LS 耐性	光透過度 (%,@400nm)	破断強度 (N/cm)		測定項目	
I	I	I	$\geq 2.4$	$\geq 3.0$	$\geq 3.0$	I	I	I	$\geq 10$		目標値	
	×		$130(12\mu\mathrm{m})$	$< 30(12 \mu { m m})$	$< 40(12 \mu { m m})$			$99.1(15\mu\mathrm{m})$	$\geq 8.4 \pm 0.7 \; (12 \mu { m m})$	$15\mu m \text{ or } 12\mu m$	EVOH-XL	
1	1	×	I	I	1	×	I	97.9	$\geq$ 18.4 $\pm$ 2.7	$35 \mu { m m}$	PVDF	
I	I		1.2	78	17	I	I	94.8	$\geq 11.6 \pm 1.7$	$25 \mu { m m}$	ETFE	選定を行っ
			2.3	900	95			88.4	$\geq\!28.2\pm3.0$	$25 \mu { m m}$	HEPTAX	たフィルム
			14	590	150			96.0	$\geq 34.3 \pm 4.9$	$25 \mu { m m}$	Nylon(Filler 有)	
			0.56	4.9	1.9			99.1	$\geq \! 19.6 \pm 2.5$	$25 \mu { m m}$	Nylon(Filler <b>無</b> )	

表 5.8: 測定結果まとめ

# 第6章 mini-balloon に付属する部品の 選定

# 6.1 概要

mini-balloonの構造は大きく mini-balloon本体、それを吊るすための吊り紐、そして接続部の3パートからなる。mini-balloon本体に用いるフィルムの選定は終わったため、吊り紐(吊り糸と吊りベルト)と接続部に用いるものの選定を行う必要がある。



図 6.1: バルーンの構造図

# 6.2 吊り紐

6.2.1 吊り糸 (スーパー繊維)

バルーンの重さを支えるための吊り紐で、耐LS性と十分な強度が要求される。耐LS性を保つ事は勿論の事、mini-balloonの重さは6kg程度になる事が予想されるため

それを支える強度が必要とされる。吊り紐の本数は、インストールの際に吊り紐が多 すぎると絡まってしまう事、また少なすぎても重さを支えきれなくなる事から12本と 設定された。これにより、仮にmini-balloonの重さが6kgであるとすれば吊り紐1本 あたり500g程度の負荷がかかることが予想されるが、安全ファクターを10倍取り、 1本あたりの強度が5kgの負荷に耐えられるような吊り紐を選定する必要があった。 この耐LS性と強度を考慮した時に候補としてあがったのがスーパー繊維と呼ばれる 糸である。スーパー繊維とは厳密な定義は無いものの、一般的に高強度、高弾性率の 性能を有する繊維がスーパー繊維と呼ばれている。スーパー繊維は化学的耐性が強く、 強度が非常に強いが、摩擦に弱く結び目が切れやすいという特徴を持っている。この スーパー繊維はKamLAND内の13mバルーンを吊るす時にも使用されており、十分 な実績があることから今回は様々なスーパー繊維の中から使用する紐を選定する事に なった。

#### 6.2.2 放射性不純物の含有量

選定の中で、最も重要なのが糸に含まれる放射性不純物の含有量である。これはフィ ルムの含有量と同じ理由で限りなく少ない事が望まれる。以下に様々なスーパー繊維 の放射性不純物の含有量について示す。

スーパー繊維の種類	$^{238}U(10^{-12}g/g)$	$^{232}$ Th $(10^{-12}$ g/g)	$^{40}$ K(10 <sup>-11</sup> g/g)
Kevlar( <b>未洗浄</b> )	490	74	140
Technora( <b>未洗浄</b> )	37000	81000	210
Dyneema( <b>未洗浄</b> )	72	87	1100
Vectran( <b>未洗浄</b> )	140	280	3400
Vectran(洗浄済み)	190	440	540

#### 表 6.1: 放射性不純物の含有量

以上の結果からも分かる通り、全体的に放射性不純物の含有量が多い事が判明した。

6.2.3 吊りベルト (ナイロンフィルム)

前節で述べたようにスーパー繊維は放射性不純物の含有量が多いため、mini-balloon の近傍で使うとバックグラウンド源となるため、代わりの吊り紐として mini-balloon 近傍では mini-balloon に用いるフィルムをベルト状にして吊り紐にする事にした。そ して、スーパー繊維は mini-balloon の近くには用いず、直管部より上の部分で用いる 事となった。これであれば強度、放射性不純物の問題は気にする事無くバルーンの重 さを支える事が出来る。

ただ、全ての部分でナイロンのベルトを用いないのは、投入の際に吊り紐を巻き上げ る作業があるため、糸状の方が利便性が高いためである。



図 6.2: ナイロンフィルムで作成した吊りベルト

これによりスーパー繊維の選定は放射性不純物の含有量という点ではある程度まで 許される事になった。これにより主に強度と耐LS性によって決定される事となった。 この時点でテクノーラに関してはあまりにも含有量が多く、KamLAND装置の内部に 入れる事が憚られたため候補から除外した。

6.2.4 吊り糸 (スーパー繊維)の強度

吊り糸の強度の要件として、伸びない事、回らない(ほどけない)事、そして切れない事が必要とされた。これらの要件ははそれぞれ寸法安定性(クリープ特性)、より糸でなく編み糸であること、引っぱり強度によって決定される。

クリープ特性

まずクリープ特性についてであるが、そもそもクリープ特性とはある材料に長時間荷 重を加えると大部分の変形は短時間で起きるが、そのまま荷重を加え続けると単位時 間あたりの変形量は小さくなるが、長時間連続的に変形は続く。これがクリープ現象 であり、これに対する耐性の尺度がクリープ特性である。一般的にスーパー繊維のよ うな糸では荷重をかけた時に伸びが起こるが、その伸び率が小さい方がよりクリープ 特性がよいという事になる。吊り紐に使う糸は長時間(最低でも2年)バルーンの重さ を支える事になるため、長期的にクリープ特性がよいことが必要とされる。 候補となっているスーパー繊維のクリープ耐性を調べた所、ベクトランのクリープ特性が非常によい事が分かった。他のスーパー繊維だと30日を超えたあたりから伸び率の値が増える傾向があったのだが、ベクトランに関しては200日以上経過しても伸び率の値に増加の傾向は見られなかった。これにより、吊り糸の第一候補をベクトランとし、ベクトランに関する詳細なテストを行った。

より糸と編み糸

今回選定を行ったスーパー繊維は、強度を増すために1本の糸ではなく、数本の糸を 編んだ構造になっている。その際より糸は編み方がシンプルであるため、荷重をか けると糸が回転してしまうという欠点がある。吊り紐が回転するような事があると mini-balloonにも影響を及ぼす可能性があるため、それを避ける必要があった。その ため、複雑な編み方をしている編み糸型のものを使用する事になった。これ以降テス トを行っているベクトランは全て編み糸型のものである。

引っ張り強度

引っ張り強度であるが、一般的にスーパー繊維は非常に強度が強いものであり、目標 となる 5kg はほぼ全ての吊り紐でクリア出来る事が分かっていた。そのため、出来る だけ細い糸を使う事で、放射性不純物の量を減らす事にした。

ベクトランでは太さが4号(直径0.331mm)あれば5kgの強度が十分に保てる事が分かり、それが実際に長期的に強度が保たれるのかを確認するため以下の図のような実験を行った。



図 6.3: ベクトランの強度測定

方法は非常にシンプルで、ベクトランに重りを吊るし、長期間切れることがないか をテストした。この測定の結果 5kg の重りを吊るした場合に 200 日を経過しても糸は 切れる事がなかった。

以上の結果から、ベクトランは強度面の要求項目を満たしている事が確認された。 次に耐 LS 性について詳細に測定を行うことにした。

6.2.5 ベクトランの耐 LS 性

ベクトランの耐 LS 性を調査するため、2 つの実験を行うことにした。1 つ目が LS に侵されたベクトランに強度の調査、2 つ目がベクトランを LS に浸した後にその LS の光透過度を測定することで、ベクトランが何か LS にダメージを与えてないかを調査する事である。

LS に侵されたベクトランの強度測定

LS に浸したベクトランの強度を測定するため、先ほどの強度測定の方法に更にベクトランに LS を垂らすという行程を加えて実験を行った。これにより、ベクトランが LS に侵されて強度が落ちないかという事をテスト出来る。

このテストの結果、LS に侵されたベクトランは、少なくとも 20 日間は 4kg の重りを 吊るすことが出来た。この際糸に特に大きな変化が見られる事は無かったため、強度 の面では問題が無い事が分かった。

ベクトランの LS への溶け出し

ベクトランのLSへの溶け出しを測定するため、以下のような手順で測定を行った。 なお、測定を行うベクトランは一般的なコーティングありのものではなく、コーディ ング加工がなされていないものを用いる事とした。それはコーティング剤によってLS へのダメージが深刻になる可能性があったためである。

(1) バイアルに LS とベクトランを投入する

(2) 45 の恒温槽環境で保存を行う。

(3) バイアルに入っている LS の光透過度を分光光度計により測定を行う。

もし、ベクトランが溶け出していれば光透過度は落ち、これに加えて保存日数が増 えれば、LSのダメージも増え、更に光透過度が悪くなる事が予想される。測定の結果 を以下に示す。



図 6.4: ダメージを受けた LS の光透過度

この結果を見ると、保存した日数が2時間と4日間の結果の間に差異が見られない。 これはベクトランがLSに溶け出しているのではなく、ベクトラン糸についた汚れ等 が落ちた事により光透過度の低下が見られているという可能性がある。そのことを確 認するため、ベクトラン糸を綺麗にするために洗浄を行った後にLSに浸し、洗浄無 しのものと洗浄有りのもので比較する事にした。

洗浄は超音波洗浄機を用いて行った。手順については以下の通りである。

(1) 50 のエタノールで 10 分間洗浄

- (2) KamLAND-LS(PPO は入っていない) で20分間洗浄
- (3) 室温のエタノールで10分間洗浄
- (4) 超純水で10分間洗浄
- (5) 窒素ガスにて乾燥

この手順で洗浄したベクトラン糸を LS に浸し、2 時間経過した後に光透過度を測 定した。以下にその結果を示す。





KamLAND LS

図 6.5: ベクトランと洗浄の様子



図 6.6: 光透過度測定結果: blank(赤線)が元々のLSの光透過度、cleaning(青線) が洗浄後のベクトランを投入したLS、not cleaning(紫線)は比較のために洗浄して いないベクトランを投入した場合の光透過度である。

この結果を見ると、元々のLSの光透過度と洗浄を行ったベクトランを投入したLS の光透過度はほぼ一致し、比較のために洗浄を行っていないベクトランを投入したLS の光透過度の値との違いは歴然であった。よって、ベクトラン糸は適切な洗浄を行う ことによって、LSの光透過度にダメージを与えなくなる事が分かった。この結果によ り吊り紐に用いるスーパー繊維は洗浄を行った編み糸型のベクトランで太さが4号の ものを使用する事に決定した。

## 6.3 ナイロンコルゲート管

ミニバルーン最上部のナイロンコルゲート管(フレキ管)は、空間的な制限によりイ ンストール時に曲げる必要があるため使用されている。また、液面との境目で内外の 圧力差に耐えるのに十分な強度を持ち、ミニバルーンの吊り紐の方向を変えるガイド リングなどが取り付けられている。 コルゲート管は 7m もの長さを用いるため重量と しては大きい。そのため放射性不純物の観点から有効体積付近まで使用することは出 来ない。

コルゲート管の材質の候補としてはナイロン製以外にもテフロン製のものがあったが、 テフロン製のものは強度は十分であるものの、簡単に曲げられる事が出来なかったた め、インストールに不向きである事から候補からは除外された。 以下にナイロン製コルゲート管についてのデータを示す。比較のためにテフロン製の



図 6.7: ナイロン製とテフロン製コルゲート管

コルゲート管のデータも示す。

	ナイロン	テフロン
内径 [外径] (mm)	91.9 [106.0]	$95 \ [125]$
耐 LS 性	わずかに溶けるが問題無し	影響無し
Xe バリアー性	非常によい	よい
<sup>238</sup> U (× $10^{-12}$ g/g)	190	< 5
<sup>232</sup> Th ( × $10^{-12}$ g/g)	400	7
$^{40}$ K (× 10 <sup>-11</sup> g/g)	0.39	< 0.01
重さ (kg/7m)	4.7	14
曲げやすさ [曲率半径](cm)	21	40

表 6.2: コルゲート管の様々なデータ

この結果を見ると、放射性不純物の含有量という点ではテフロンの方が優れており、 重さや曲げやすさという点でナイロンが優れている事が分かる。今回はインストール 時の要求からナイロン製のものに決定した。

# 6.4 PEEK 製接続管

PEEK 製接続管はコルゲート管と mini-balloon の最上部を接続するために使用す る。実験の構想時にはコルゲート管と mini-balloon は直接接続しようとしていたが、 コルゲート管は基本的に凹凸があり、接続に不向きであったため、PEEK 製の接続管 を介して接続を行うことになった。



図 6.8: PEEK 製接続管の概要

PEEK とは PolyEther-Ether-Ketone の略で優れた機械的特性を合わせ持つ結晶性 の熱可塑性樹脂である。耐熱性・耐疲労性・耐衝撃性・耐クリープ性に優れ、耐薬品 性では濃硫酸以外は使用可能であり、ガス・金属イオンの溶出が少ないクリーンな材 料である。また溶接加工も可能な材料で、金属や他の材料の代替品として幅広い用途 に使用されている。

PEEK 材が接続管として使用出来るかどうかを確認するため、PEEK 材の溶け出しに よって LS の光透過度に与えるダメージを測定した。手順としては以下の通りである。

(1) バイアルに LS と PEEK 材 (ペレット状のもの)を投入する

(2) 45 の恒温槽環境で10日間保存を行う。

(3) バイアルに入っている LS の光透過度を分光光度計により測定を行う。

光透過度測定の結果を以下に示す。



図 6.9: ペレット状の PEEK 材

PEEK 材を入れた事により、LSの光透過度は最大で約3%程度低下した。ただし、 この測定は実際の KamLAND の系よりもS/V比が非常に大きいためかなり感度よい 測定が出来ている。具体的にはS/V比で約10000倍である。そのため、1年間で予想 される光透過度の低下は約0.01%程度となり、実験には全く支障のでないレベルとな る。これにより、接続管としてPEEK 材を使用出来る事が確認された。



図 6.10: PEEK 材を入れた LS の光透過度

これにより接続部とフィルムの最上部を PEEK 製接続管で接続することになったため、どのような方法で接続を行うかを決定する必要があった。この際接続管に必要と

される要件としては LS が漏れないのは勿論のこと、Xe も漏れないようにすることで あった。ナイロンコルゲート管と PEEK 製接続管の接続は接続管を適切な大きさで設 計する事で十分なシール性が得られる事が分かった。しかし接続管と mini-balloon 本 体は接続管の適切な設計だけではシール性を得る事が出来なかったため、以下のよう な機構で接続を行うことにした。



図 6.11: 接続管と mini-balloon の接続図



図 6.12: 接続管の断面図と完成写真

以上により、mini-balloon に付属する部品の選定が終了した。

# 第7章 mini-balloonの製作

フィルム選定の研究開発によって、mini-balloon に用いるフィルムは、ナイロンフィ ルム (厚さ  $25\mu$ m,filler 無し) に決定した。その次の phase として mini-balloon の成形 を行った。この章ではその製作の詳細について述べる。

#### 7.1 概要

mini-balloonの製作を行うにあたって、その成形のために様々な要求が挙げられる。 特にフィルムの溶着条件は、Xe バリアー性に関わる重要な案件である。本番用 miniballoon製作に先駆けて行われたテスト用 mini-balloon製作で培ったノウハウを活か し、いかに mini-balloonをクリーンかつ Xe 漏れの無いものに仕上げるかが焦点となっ た。

製作はニュートリノ科学研究センターのメンバーと balloon 作りの職人 2 人によって 進められ、本章で述べる研究等によりクリーン度を保ち Xe 漏れもない mini-balloon の製作が約 80 日で終了した。

#### 7.2 製作手順

製作を行うにあたり、要求される項目は以下の通りである。

フィルムのクリーン度の維持

前章の選定により、フィルムの放射性不純物の含有量は限りなく抑えることが出来 た。しかし、製作の段階においてそのフィルムに放射性不純物を含んだ埃やちり等の ゴミが付着すると、選定を行った意味が無くなってしまうため、製作を行う環境は埃 やちりの少ない非常にクリーンな環境を準備する必要があった。

クリーンルームを探した結果、東北大学西澤潤一記念研究センターにあるスーパーク リーンルームが製作に非常に適した環境であったため、そこをお借りして mini-balloon の製作を行うことになった。

環境の詳細であるが、クリーンルームの大きさは高さ 3.8m、奥行き 14m、幅 3.6m と

作業スペースは十分確保出来る大きさであり、特筆すべきは内部の環境が0.1μmの大きさの埃やちりが、1立方フィートの中に1つ以下(クリーン度がクラス1以下)の 極めて清浄な環境ということである。また、内部の温度は常に21 から22 と安定 した環境であるが、湿度に関しては外の天気によって若干の変動があった。



図 7.1: クリーンルーム内部

このような環境においては人間が一番の汚染源であるため、クリーンスーツやク リーンパックされた手袋するのは勿論の事、バルーンフィルムを触る時には必ず超純 水で手を洗い、窒素で水を吹き飛ばしてから作業を行うという手順を取った。また mini-balloon インストールに使用する道具・部品も全て洗剤での油除去を行った後、 エタノール拭き、超純水での洗浄を行う手順を徹底した。この際に使った洗剤は市販 されているマジックリンであるが、これは10年前のKamLAND 建設の際にも同じも のを使っており、現在まで特に問題も起こっていない事から十分実績があると判断し 使用した。

Xe バリアー性

前章の選定により、フィルム生地においては Xe バリアー性が十分であると確認された。しかし、mini-balloon を成形するためにはフィルム同士を溶着する必要がある。 溶着するという事はフィルムを一度溶かすことになるため、その溶着した場所における Xe バリアー性は約束されるものではない。 結果や詳細は後述する。

以上の要求を踏まえた上で製作を行った。手順については次の通りである。

- (1) フィルムの洗浄と切り出し
- (2) フィルムの溶着
- (3) ヘリウムによるリークテスト
- (4) 補修作業

# 7.3 フィルムの洗浄と切り出し

まず最初にフィルムを適当な大きさに切り分けフィルムに対して純水による超音波 洗浄を行った。これは純水洗浄を行った場合に放射性不純物の含有量が減るという事 が判明したためである。以下に超音波洗浄する前とした後での含有量の変化について 示す。<sup>238</sup>Uに関してはあまり変化は見られなかったが、<sup>232</sup>Thで約30%減、<sup>40</sup>Kは1/3 まで低減に成功している。これにより、更に KamLAND-Zen 実験の感度向上が見込 まれる。

	洗浄前			平均	洗浄後			平均
$^{238}U(10^{-12})$	2.0	2.0	1.8	1.9	3.0	1.7	1.1	1.9
$^{232}$ Th $(10^{-12})$	5.8	4.4	4.5	4.9	3.7	2.5	3.1	3.1
$^{40}$ K(10 <sup>-11</sup> )	0.5	0.5	0.7	0.6	0.3	0.3	0.1	0.2

表 7.1: 超音波洗浄の有無による放射性不純物含有量の変化

超音波洗浄を行ったフィルムは、乾燥させるため窒素を用いて水分を飛ばした。そ して乾燥し終わった後にフィルム全体にライトを当てながらキズやピンホール、ゴミ の付着等が無いかの確認を徹底して行った。ここで mini-balloon のフィルムとして使 うか使わないかの選択を行っている。



図 7.2: 左から順に超音波洗浄、窒素による乾燥、キズやピンホールのチェック

フィルムの切り出しについてはフィルム上に型紙をおき、これに沿って青いサイン ペンを用いて線を引き、それに従って切り取るという方法で行った。この際用いたサ インペンのインクに含まれる放射性不純物の含有量は、測定を行った結果ごく僅かで あり十分に無視出来るレベルだった。ただし、影響が無いとはいえなるべくペンのイ ンクを取り除くために、あとに残ったインクについてはイソプロピルアルコール拭き によって出来る限り取り除く作業を行っている。





図 7.3: フィルムの切り出しの様子

### 7.4 フィルムの溶着

フィルムの準備が完了したため、次にフィルムを mini-balloonの形に成形する phase に進んだ。溶着条件は前章で決定したものを用いた。

溶着作業は数十日に渡るため、常に溶着が上手くいっているかを何らかの方法で確認 する必要があった。そのため、毎日 mini-balloon の溶着作業に入る前にテストサンプ ルにて溶着を行い、そのサンプルに対してシールチェッカーによるリークチェックテ ストを行った。そこで多数のリークが見つかった場合には溶着装置の溶着部にあるニ トフロンテープの貼り替えをし、リークが無くなるまでテストサンプルへのテストを 続け、リーク無しの溶着ができ次第、溶着作業を行うという行程を徹底した。 24 枚のゴアを mini-balloon に成形するため、まずゴア同士を溶着し、24 枚のゴアを 12 枚にした。次に同じように 12 枚のゴアを 6 枚、6 枚のゴアを 3 枚と溶着していき、

最終的に1つの mini-balloon になった。なおバルーンが球形である事と、直径3m以上という大きさになるため据え付けの溶着装置を使用する事が出来なかったため、溶 着装置に職人さんが体重をかけて溶着を行った。



図 7.4: 溶着作業: 職人さんの一人が溶着線にあわせて溶着装置をセットし、もう一 人の職人さんが溶着を行った

# 7.5 ヘリウムによるリークテスト

溶着作業が終了したことにより、フィルムは mini-balloon の形に成形された。次に 溶着が上手くいったかどうかを確認するため、バルーンにヘリウムを入れリークテス トをフィルムの全表面及び溶着部について行った。

ヘリウムリークチェッカーの感度は約 $1.0 \times 10^{-7}$ [Pa・ $m^3/s$ ] であり、クリーンルーム 内のヘリウム濃度は $5.0-10.0 \times 10^{-7}$ [Pa・ $m^3/s$ ] であった。今回のヘリウムリークテ ストではフィルムの全表面にヘリウムリークチェッカーを当て、ヘリウム濃度の値に 増加があった場合を溶着不良箇所としてカウントした。



図 7.5: ヘリウムで膨らんだ mini-balloon とヘリウムリークディテクター

リークが多いと予想されている部分は主に構造的に2回以上溶着する必要のある箇 所、入り組んでいて溶着装置の一部分だけを使用する必要のある箇所等であった。こ れは特にバルーンの首の部分と南極部が該当しており、mini-balloonの設計上その部 分にある程度のリークがある事は事前のリークチェッカーによるテストで予想されて いた。結果としてはmini-balloonのフィルム本体についてのリーク箇所は無かったも のの、溶着部分で無視出来ないリークが発見された。ただし、このリークがあった箇 所の数はリークチェッカーで予想されていたリークの数とほぼ一致した。 このヘリウムリークテストによって発見されたリーク箇所は全て詳細なデータを取り、

そのリークの大きさに応じて、適宜接着剤による補修を行うことにした。



図 7.6: リークの多かった箇所: 青線が溶着線であり、特に首の部分と南極部分に青線が集中しているのが分かる。



図 7.7: バルーンの南極部: 24本のゴアが南極部に集中するため、非常に複雑な構造 をしており、溶着線が集中しているのが分かる。

#### 7.6 補修作業

補修作業はリークのあった箇所に対して、接着剤を用いてナイロンフィルムのパッ チをあてる作業を行った。まず、用いた接着剤の選定について詳細を述べる。

7.6.1 接着剤の選定

接着剤の選定基準としては速乾性、耐LS性、接着力が挙げられる。今回の用途に おいて、接着力の面ではナイロンの接着が出来るかが問題となる。速乾性、耐LS性 に関しては測定を行う必要があったため、いくつかの接着剤の候補で測定を行った。 以下に候補となった接着剤の詳細を述べる

セメダイン

セメダインはセメダイン株式会社が販売している接着剤で、日本における化学接着 剤の草分け的存在である。その特徴として耐水性、耐熱性、速乾性がよいという特徴 を持つ。

セメダインは10分程度で乾くという速乾性の面で優れていたものの、ナイロンフィル ムの接着が出来ないという致命的な欠陥があったため、候補からは外れる事となった。

レゾルシノール

レゾルシノールはホルムアルデヒド系接着剤であり、BOREXINO実験の実験のナ イロン製バルーンの接着に使用されているという実績がある。比較的高価で、接着面 が汚くなるという点はあるものの、耐久性に優れているという特徴を持つため一般的 には合板や木工製品等の構造材料に利用される。

ナイロンフィルムの接着が可能かどうかレゾルシノールでフィルム同士を接着させて みた所、フィルムが溶けてしまい穴が空いてしまった。BOREXINO実験では数百μm の厚さのナイロンフィルムを接着しているためレゾルシノールで問題無かったが、我々 の実験では厚さ25μmの薄いフィルムを使っているため、使用に耐える事は出来なかっ た。そのため、候補からは外れる事になった。



図 7.8: レゾルシノールによるフィルム溶着テスト

#### アドコート

アドコートはウレタン系接着剤であり、2液混合型の接着剤である。2液混合型の接 着剤は主剤と硬化剤を混合する事で反応効果が起きる。一般的な接着剤と比較すると 弾性のある強靭な皮膜を形成し、接着力は高レベルを達成し、また耐久性、対薬品性 が良好である。

アドコートはナイロンフィルムにも強い接着力を持ち、候補として非常に期待された が、速乾性が悪く、硬化までに室温では10日以上、高温環境(70 以上)でも最低3 時間以上かかることから、実際の作業に使用するには問題がある事が判明したため補 修作業には使用しなかった。(ただし、接続管とmini-balloonの接着等、補修以外の 用途では使用した)

アロンアルファ

アロンアルファはシアノアクリレート系接着剤であり、日本では瞬間接着剤の代名 詞となっている。空気中の水分により急速に硬い皮膜状に硬化・接着し、作業性に優 れた1液型・常温硬化型接着剤である。また、粘度が低いため塗布が容易であるが、 対衝撃性や耐熱性に劣るという欠点も持っている。

アロンアルファはナイロンフィルムに強い接着力を持ち、速乾性も硬化までに室温で 1分未満と優れた性能を持っていた。そのため、接着剤の中では補修作業に最も適し ていると考えられた。そこで耐LS性と放射性不純物含有量の測定を行った。なお今 回候補としてアロンアルファ201号と202号についての測定をする。 耐LS性については以下の手順で測定を行った。 (1) ナイロンフィルムにアロンアルファを 30cm<sup>2</sup> 塗布したものを準備する

(2) バイアルに LS100ml と (1) で準備したフィルムを投入する

(3) 恒温槽環境(45)) で 30 日間保存する

(4)LS の光透過度を測定し、アロンアルファが溶け出していないかを確認する 以下に光透過度の測定結果を示す。





結果を見るとアロンアルファの溶け出しにより光透過度が低下しているのが分かる。 特に 202 型アロンアルファではその傾向が顕著である。ただし、この測定は非常に高 感度な実験であったため、実際の KamLAND-Zen の LS の系に換算すると 202 型アロ ンアルファでも1年間で約 5.0 × 10<sup>-3</sup>%の低下とほとんど無視出来るレベルであった ため、201 型、202 型どちらのタイプでも使用が可能である事が分かった。 次に接着剤によって補修されたフィルムの破断強度についても測定を行った。

保存後のフィルムでは誤差が大きくなったが、これは接着剤の塗り方にムラがあった ためであると考えられる。誤差を考慮すれば破断強度にほとんど変化は見られなかっ た。また放射性不純物の含有量についても測定を行い、実験の使用に支障がない事を 確認した。

	201型 (N/cm)	202型 (N/cm)				
補修前	$19.7{\pm}2.4$					
補修後	$21.4{\pm}4.1$	22.3±4.3				

表 7.2: アロンアルファ補修による破断強度の変化

	201 型	202 型
$^{238}$ U (× 10 <sup>-12</sup> g/g)	< 5.0	< 5.0
$^{232}$ Th ( × 10 <sup>-12</sup> g/g)	< 5.0	< 5.0
$^{40}$ K (× 10 <sup>-11</sup> g/g)	< 1.2	< 1.2

表 7.3: アロンアルファの放射性不純物含有量

以上の研究により、アロンアルファの 202 型を補修用接着剤として用いる事になった。202 型は耐 LS 性で 201 型に若干劣るものの十分に実験に使用出来るものである こと、そして粘度が 201 型よりも高く取り扱い易かったために 202 型に決定した。 7.6.2 補修作業

補修はヘリウムリーク検出器によって、 $15.0 \times 10^{-7}$ [Pa・ $m^3/s$ ] 以上のリークが発見された箇所全てに対して行われた。補修の手順は以下の通りである。

(1) リークがあった箇所のリークの大きさに応じてナイロンフィルムのパッチの大きさを決定する。大部分のパッチは 10mm × 70mm の幅のものを用いた。

(2) アロンアルファとパッチを用いて補修を行う。詳細は図を参照の事。

(3) アロンアルファが固まった後、補修した場所に対し再度ヘリウムリークテスト を行う。リークが無くなっていない場合には再度パッチをあてる。



図 7.10: 補修作業の概要: 溶着が図のような構造になっており、リークがおこってい ると思われる溶着線の端部分と真上部分にアロンアルファを流し込む、その上からナ イロンフィルムのパッチをあてる。溶着線に漏れがある場合、バルーン内部までアロ ンアルファが流し込まれてしまう可能性があったため、それを防ぐためにバルーン内 部にテフロンシートを入れ、直接バルーンにくっついてしまうのを避けた。

以上の作業の後、ヘリウムリークテストを行った所全てのリーク箇所でリークが無 くなる事を確認した。



図 7.11: 補修作業の様子:上がアロンアルファをリーク箇所に塗布する作業。直接ア ロンアルファを流し込むと量の調整が出来ないため、ピンセットに僅かにアロンアル ファを付けて、それを流し込んでいる。下はナイロンフィルムのパッチを貼付けた後 に押し付けている様子。

#### 7.6.3 製作まとめ

- (1) フィルムの洗浄と切り出し
- (2) フィルムの溶着
- (3) ヘリウムによるリークテスト
- (4) 補修作業

約3ヶ月にわたる作業により以上の工程が全て終了した。mini-balloon は梱包作業 によりクリーンな箱に入れられ、更に窒素によって密封された袋に詰められて搬送さ れた。



図 7.12: 梱包作業により mini-balloon が詰められた密封箱

# 第8章 mini-balloonのインストールと現 在の状況

#### 8.1 概要

KamLAND-Zen 実験では、今ある KamLAND 検出器の中に<sup>136</sup>Xe を溶かした液体 シンチレータを導入した mini-balloon を設置する。インストールにあたっては様々な 条件があったが、3度に渡るインストールテストでそれらの条件をクリアすることを確 認した後、実際のインストールを行い、KamLAND-Zen 実験を開始する事が出来た。

# 8.2 インストールの様々な条件とインストールテスト

8.2.1 インストールの条件

インストールにあたっては、様々な検討の結果以下のような条件が必要である事が 分かった。

 (1) インストールの際に mini-balloon にちりや埃がつく事は出来るだけ避ける必要 がある。そのため、現在の KamLAND 装置の上部ドームエリアにクリーンルームを 設置し、クラス 100 以下の超クリーン環境を保つ必要がある。



図 8.1: KamLAND ドームエリアに設置されたクリーンルーム

(2)KamLAND 装置の内部は光学的に外界と切り離されているため、内部では光量 が足らず、何も見えない状態である。しかし、インストールの際には mini-balloon に 破損がおこらないようにし、更に mini-balloon に液体シンチレータを送る際にも膨ら むのを確認する必要がある。そのために作業の最初に照明とカメラを KamLAND 内 部に投入する。

(3)mini-balloon 投入時、内部には微量の窒素が存在し、浮力の元となる。しかし miniballoon 自体を真空引きする事は出来ないため何らかのおもりによって mini-balloon を沈める必要がある。具体的には少しだけ重い液体シンチレータを投入する事でおも り代わりとする。

(4)mini-balloon をインストールする際に破損がおこる可能性がある。そこで、何ら かの方法で破損が無いかを確認する必要がある。しかし、実際の KamLAND 装置内 は非常に暗く、また液体シンチレータは無色であるために目視ではリークを確認出来 ない。そのため挿入の際には一度<sup>136</sup>Xe を溶かしていない液体シンチレータ(通称: ダミー液シン)を送液し、一度データを取った後<sup>136</sup>Xe 入り液体シンチレータと入れ 替える必要がある。

(5) ダミー液シンと<sup>136</sup>Xe入り液体シンチレータを入れ替える際に、その2つが混 ざり合う事があってはならない。そのため、密度が僅かに異なる重い液を底部に注入 し、液体シンチレータに層を作りながら入れていくが、その際密度の違う液同士が混 ざらないようにする必要がある。 8.2.2 インストールテスト

まず始めに、1/4 スケールのポリエチレン製バルーンを用いて (5) の条件である液体シンチレータの層作りが出来るか確認を行った。その結果 0.02%程度の密度差で層が出来ることが確認された。



図 8.2: 1/4 スケール mini-balloon のテスト: 2010 年 2 月に東北大学内で行われた。 この際バルーンのフィルムにはポリエチレン 80µm を用いている。このテストの結果 により、基本的なインストール手順についての検討を行った

本番では送液速度などの条件の違いがあり、また、条件(3)、(5)については具体的 な値(おもりとなる液体シンチレータの重さや層を作るための密度差)を決定する必 要があった。それに加え、実際のインストール手順を経験する必要もあったことから、 実物大のテストバルーンを用いたリハーサルを行うことにした。この時点ではまだフィ ルムの選定が済んでいなかったため、ポリエチレン 80µm 厚フィルム製の mini-balloon を用いて、mini-balloonの基本的なデザインの確認と挿入テストを行った。

まず東北大体育館でのヘリウム $+N_2$ ガスによる膨らませテストを行った。これにより 吊り紐の基本的なデザインの確認と、mini-balloonのハンドリングを習得した。

このテストが成功したことにより、次に柏市の株式会社アトックス・技術開発センター にある、原子炉圧力容器の一部を模した模擬ウェルと呼ばれるプールを使用し水中で 実寸大 mini-balloon の1回目のテストを2010年5月に行った。

その後、1回目の結果を元に様々な準備を進め、2010年12月に2回目のリハーサル を行った。こちらでは本番と同じナイロンフィルム25µmフィルム製 mini-balloonを 用いた。この結果0.02%の密度差を設定すれば層作りには問題無いというテスト結果 を得られた。

これによりインストールを次節のような手順で行うことにした。



図 8.3: 東北大体育館でのヘリウム+N<sub>2</sub> ガスによる膨らませテスト



図 8.4: 1回目の実寸大バルーンテスト (ポリエチレン製 80µm): 写真はカメラによっ て監視されている mini-balloon の様子。バルーン内の水に赤色が付いているのは、色 を付けることでバルーンの様子を見易くするためである。また、密度差の層テストを 行う時には水の密度によって色を変えることで層が出来ているかを確認することが出 来る。



図 8.5: 2回目の実寸大バルーンテスト (ナイロン製 25µm):上部の赤色は±0.0%、中部の透明な部分は+0.02%、下部の青色は+0.04%の密度差を付けている。このテストでは、吊り紐とロードセルの調整方法のテスト、半分の吊り紐で荷重を支えるテスト、疑似キャリブレーション装置の挿入テスト、緊急時に使用するポンプの種類のテストなど実際のインストールに備えて様々なテストが平行して行われた。

## 8.3 KamLAND 検出器へのインストール

#### 8.3.1 カメラと照明の設置

今回 KamLAND 内部に投入するカメラと照明は、液体シンチレータに浸されるこ とから、シーリングを完璧にし、カメラと照明本体には液体シンチレータが触れない ようにする必要があった。そこで、次図のようにアクリルによって封じることにした。 この照明とカメラによって液体シンチレータ送液時のバルーンの拡張が確認出来るよ うになり、更に KamLAND 開口部から目視で内部の様子が見えるようになったため、 インストール作業がより安全に出来るようになった。



図 8.6: Web カメラを 2 台使用し、側面と底面を確認出来る監視装置 (左) と、アクリ ルで封じられた LED ライト (右)



図 8.7: カメラによって写されたインストール時の mini-balloon

### 8.3.2 mini-balloon 本体のインストール

mini-balloonのインストールは、mini-balloon本体がコルゲート管や接続管を含め ると全長14mと非常に長いため、十数人のメンバーがmini-balloon本体を支え、有 機ガスマスクを付けた開口部周辺のメンバーが内部挿入の速度をコントロールし、後 方のメンバーが移動と送液のコントロールを行いながらインストール作業を進めた。 mini-balloon本体には吊り紐を始めとして、様々な部品が取り付けられているため、 慎重に作業を進めていった。



図 8.8: KamLAND 開口部への mini-balloon 投入と開口部から見た KamLAND 内部

なおインストールの際、mini-balloon内部には窒素ガスが残存していると考えられるため、KamLAND内部に沈めるためにおもり代わりの0.4%の密度差をつけた液体

シンチレータを5リットルずつ送液し、徐々に沈める方法でインストール作業を行った。

またインストールが終わった後、mini-balloonの重量の変化の確認や、吊り紐の破断の 確認に使用するためのロードセルを装置に取り付けた。このロードセルの巻き取りの部 分が第6章で選定を行ったベクトランである。なお、KamLAND内部のmini-balloon 本体間際はナイロンフィルムベルトを用いている。

#### 8.3.3 ダミー液シンの送液と循環

mini-balloon インストールと各種装置等の取り付けが終わった後、ダミー液シンの 送液を行った。mini-balloon の様子を見ながら送液をし、24時間体制でシフトを組 み監視を行った結果、状況によって様々な微調整はあったものの、最終的に+0.15% の密度差の液体シンチレータを 17m<sup>3</sup> 送液し、無事に拡張する事が出来た。 なおこのダミー液シンの投入が終了した後、データ収集を行った。具体的には miniballoon 内部にはステンレス配管表面から流入してくるラドンがわずかに含まれてい るため、そのラドン事象を確認する事で、mini-balloon の形やダミー液シンの流れが 把握出来る。この結果によれば mini-balloon において明確なリークは確認されなかっ たため、最後の段階であるダミー液シンを Xe 入り液体シンチレータとの入れ替え作

業を行った。

#### 8.3.4 Xe入り液体シンチレータの送液

Xe入り液シンは150l/hrの流量で投入され、KamLAND液シンとの密度差が+0.035% であり、ダミー液シンとの密度差が0.02%である。このXe入り液シンはmini-balloon 下部から送液、上部からダミー液シンが排液を行うという方法で入れ替えが行われた。 この際mini-balloon内部から戻ってきたダミー液シン中のキセノンガス濃度をガスク ロマトグラフィーによって測定した所、徐々にキセノンガスが増えている事が確認さ れた。そのため、予定では400kgのキセノンを溶かすつはずだったが、実際には330kg が導入される事となった。残りの60kgのキセノンはダミー液シンにあった。そのた めダミー液シンからキセノンを回収し、今後計画されている実験(KamLAND2-Zen 等)で使用する予定となっている。この送液により、全てのインストール工程が終了 し、KamLAND-Zenのデータ収集が開始された。
## 第9章 結論

本論文によって示された結論を以下に述べる。まず mini-balloon に用いるフィルム の選定に関しては、光透過度測定、放射性不純物含有量測定などの結果により、ナイロ ンフィルム 25µm で filler を含まない特注品で製作を行うことに決定した。また溶着条 件についても様々な選定テストを経て条件を決定した。これにより、KamLAND-Zen 実験で十分な感度を得るために設定された様々な目標値をクリアしたフィルムを選定 する事が出来た。

また、mini-balloon に付属する部品の選定も、主に放射性不純物の含有量、そしてその部品に要求される様々な項目をクリアしたものを選定する事が出来たため、mini-balloon 製作のための開発が終了し、製作の段階に進む事となった。

mini-balloonの製作では、限りなくクリーンなバルーン、そして Xe リークの無いバ ルーンを製作するため、選定段階で決定した溶着条件やリークテスト方法等を駆使す ることで mini-balloon を完成させる事が出来た。

そのバルーンは KamLAND 内部にインストールされ、更に Xe 入り液体シンチレータ を導入する事で、KamLAND-Zen 実験を開始する事が出来た。

## 参考文献

- [1] W.Pauli. Letter to L.Meitner and her colleagues (letter open to the participants of the conference in Tubingen)(1930)
- [2] E.Fermi. Z.Physik. 88 161 (1934)
- [3] F.Reines and C.L.cowan. Nature 178 (1956)
- [4] G.Danby, et al. Phys.Rev.Lett. 9 36 (1962)
- [5] K.Kodama, et al. DONUT collaboration. Phys.Lett. 504 218 (2001)
- [6] R.Davis, Harmar, and Hoffman. Phys. Rev. Lett 20 (1968)
- [7] www.th.phys.titech.ac.jp Muto.lectures INP02 chapter10
- [8] B.Pritychenko. BNL Report-91299-2010 (2010)
- [9] K.Kleingrothaus and H.V.et al., Eur.Phys.J.A12 (2001)
- [10] H.V. KLAPDOR-KLEINGROTHAUS *et al.* THE EVIDENCE FOR THE OB-SERVATION OF  $0\nu\beta\beta$  DECAY : THE IDENTIFICATION OF  $0\nu\beta\beta$  EVENTS FROM THE FULL SPEC-TRA Phy.Lett. A Vol. 21, No. 20 (2006)
- [11] Tom Banks. The CUORE Neutrinoless Double Beta Decay Experiment. at DBD11 workshop (2011)
- [12] R.Bernabei. Results on Dark Matter and beta decay modes by DAMA at Gran Sasso. arXiv:0704.3543v2 (2007)
- [13] QPRA M.Kortelainen nad J.Suhonen, Phys.Rev C 75 (2007)
- [14] E.Caurrier et al., Phys.Rev.Lett 100 (2008)
- [15] Jesse Wodin Observation of  $2\nu\beta\beta$  in <sup>136</sup>Xe with EXO-200 at DBD11 workshop (2011)
- [16] J.J. Gomez Cadenas. The NEXT experiment. at DBD11 workshop (2011)

- [17] Stefano Torre. Double beta decay with NEMO3 and SuperNEMO. at DBD11 workshop (2011)
- [18] Bela Majorovits. Status of the GERDA Experiment. at DBD11 workshop (2011)
- [19] Ryan Martin. The MAJORANA DEMONSTRATOR. at DBD11 workshop (2011)
- [20] R. Helmer. Progress on SNO+. at DBD11 workshop (2011)
- [21] Umehara Saori. CANDLES for the study for Double Beta Decay of <sup>48</sup>Ca. at DBD11 workshop (2011)
- [22] K.Iwase. Present Status of the DCBA Experiment. at DBD11 workshop (2011)
- [23] S.Di Domizio. CUORICINO: final results. at TAUP 2011 (2011)
- [24] K.Eguchi et al. First Results from KamLAND: Evidence for Reactor Antineutrino Disappearance. Phys.Rev.Lett. 90 (2002)
- [25] S.Abe *et al.* Precision Measurement of Neutrino Oscillation Parameters with KamLAND. arXiv:0801.4589v2 (2008)
- [26] The KamLAND collaboration. Nature Geoscience 4, 647-651 (2011)
- [27] The KamLAND collaboration. Nature 436, 499-503 (2005)
- [28] 薮本 洋 修士論文「ニュートリノレス二重 β 崩壊探索のためのキセノン含有液 体シンチレータの特性研究」 東北大学 平成 22 年度
- [29] 田頭 健司 修士論文「高精度17インチ光電子増倍管の性能計測研究」 東北大学 平成11年度
- [30] 寺島 亜寿紗 修士論文「KamLAND を用いた二重ベータ崩壊実験における液体 シンチレータの開発」 東北大学 平成 20 年度

## 謝辞

本論文執筆にあたり、多くの方々からの御指導、御協力を頂きました。この場を借 りて厚く御礼申し上げます。

井上先生には大変恵まれた環境で研究出来る機会を与えて頂きました。非常に多忙な 中、学会等の発表練習にお付き合い頂き、多くの御指導を頂きました。また、先生の 暖かなお人柄と研究に対する意欲のおかげで、現在のニュートリノセンターの雰囲気 も非常に良く、自由な雰囲気で研究に打ち込めることが出来ました。本当にありがと うございました。白井先生にはミニバルーン製作グループとして、数々の場面で熱心 な御指導を頂きました。本研究の実験は、ほとんど全て御指導のもと行った結果であ り、先生の存在無しでは本論文は完成しませんでした。先生の居室を訪ね、実験結果 を毎日のように議論した時には、その議論が白熱して長時間になることもありました が、非常に有意義な時間でした。また進路相談などの重要な相談も親身に受けて頂き、 非常に心強かったです。三井さんには4年生の時からセミナーで御指導を頂き、また、 ミニバルーン製作グループでもお世話になりました。同じグループでご一緒させて頂 く中で、実験の非常に細部の所まで神経を使う繊細さと、実際の作業の際の意思決定 の迅速さ、大胆な姿勢を両立出来ており、自分も見習う所が多いなと実感させられま した。

池田さんには研究のことは勿論のこと、様々なことを質問し、教えて頂きました。よ く院生部屋を徘徊していることが多かったので、池田さんの都合も考えず長々と質問 してしまいましたが、嫌がっている素振りを見せつつも、丁寧に教えて頂いたことに 非常に感謝しております。また、池田さんに神岡行ったら一度は食べておけと薦めら れていた島田食堂でオムライス特大を完食しておきました。またお勧めのお店があっ たら紹介して下さい。丸藤さんにはミニバルーン製作グループでお世話になりました。 自分の中では丸藤さんは記憶力が凄いという印象があり、よく院生部屋に来ていたの で声もかけ易かったことからミニバルーンのことを聞くならいつも丸藤さんに質問さ せて頂いていました。また、修論執筆の際には、どこまで書いた?と毎日のようにお 声をかけて頂き、そのおかげか誰よりも早く修論を完成させることが出来ました。清 水さんには4年生のセミナーでお世話になり、また TA として働く機会を与えて頂き ました。私が駐車場を見ると常に清水さんの車があるので、いつ睡眠を取っているの だろうと思うと共にその研究への熱意に非常に感銘を受けました。また、自分と趣味 が完全に一致したのは清水さんが初めてで、お聞きした時にはとても驚いたのを覚え ております。今度ぜひ雑談する機会があればと思っています。玉江さんには4年生の パソコン講習の時にお世話になりました。院試前の不安の相談、院試後どんな研究を したらいいかという相談を受けて頂きました。あの時相談に乗ってもらえなかったら、 もしかしたらこの研究室に居らず、全く違う人生を歩んでいたかもしれません。今こ うして研究を行えているのは玉江さんの一言がきっかけだったと思っております。本 当にありがとうございました。

岸本さんにはハードウェアミーディングでお世話になりました。岸本さんがする質問

はいつも的確なものばかりで、自分に新たな問題を発見させてくれる手掛かりとなっ ていました。また、装置の組み立てや装置系のことについて相談する機会もあり、何 も知らない自分に論理的かつ適切なアドバイスをして頂きありがとうございました。 吉田斉さんにはガスクロ関係の指導をして頂きました。吉田さんは、よく人を見てい るなと感じることが多く、実際にも自分が研究のことで気落ちしている時に明るく声 をかけて頂き非常に嬉しかったのを覚えています。これからは自分も吉田さんのよう に人に気遣いの出来るようになりたいと思います。古賀さんと健悟さんには神岡でお 世話になりました。特に GSA の時には、自分の準備不足によりご迷惑をおかけしま したが、叱咤激励により1日でスライドを完成させることが出来ました。この経験か ら人間は必死になれば何でも出来るんだということを学ばせて頂きました。上島さん と山田さんはこの一年神岡にいる時間が長く、あまりお話しする機会はありませんで したが、これからの KamLAND グループを新しい力で引っ張って頂きたいと思って おります。

職員の方々、また技官の方々には研究に必要な実験器具の購入や事務手続き、また 実験器具の設置や製作などで大変お世話になりました。何不自由無く実験を進められ る環境で研究が出来たのは皆様のお陰です。またニュートリノセンターにいらっしゃ る多くの先生方にも様々な場でお世話になることがありました。本当にありがとうご ざいました。

竹本さんは本当に誰にも優しく、皆にとってのお兄さんのような存在だったと思い ます。また、常に自分の心配よりも他の人の心配をしているような方で、自分も気づ かぬうちに多々ご心配おかけたしたのではないかと思います。本当にお世話になりま した。寺島さんは対面に座っていたこともあり、日常生活の中でふと分からないこと があると寺島さんに質問していた気がします。また、柏での1回目のバルーンインス トールテストの時の飲み会で愚痴を言いまくってしまったことがとても記憶に残って います。あの時は酔っぱらいの愚痴を聞いて頂いてありがとうございました。渡辺さ んはいつも仕事に熱中している姿が印象に残っています。何時やったのだろうと思う ほどの仕事量をテキパキとこなす姿勢はとても尊敬しています。将来自分もこんな風 に仕事のできる人間になりたいなあと思っております。吉田学立さんは、一番年齢が 近い身近な先輩として色々お世話になることが多かったです。よく一緒に外にご飯を 食べに行きましたが、一番星の存在は吉田さんに教えて頂かなかったら出会うことは 無かったと思います。自分は汁無し大盛りは至高の一品だと思っています。ベンダは 自分と同じ年の夏に留学生としてやってきましたが、あっという間に優秀な研究者と して研究しているのを見てただただ驚いていました。これからも KamLAND で頑張っ て欲しいと思います。

同期の皆さん、この3年間、楽しく充実した日々を送れたのは皆さんのおかげです。 大野君はとてもおおらかな人で、一度も怒っている姿を見たことがありませんでした。 加藤君は掴みどころの無い性格で、いつも意外性を求めている姿が印象的でした。新 里君はニュートリノセンター M2 の2枚看板の1人として常に笑顔を提供してくれる 存在でした。古田君はこんな個性的な M2 をまとめるリーダーとして中心的な存在と して無くてはならない存在であり、また新里君と共に所属しているグループが違うに も関わらず、自分の研究についての様々なアドバイス、知見を与えてくれました。思 い出は多いのでここでは語りきれませんが、この場を借りて感謝いたします。本当に ありがとう。

澤村君は違うグループではあったものの、修論を書いている時期にはよく雑談をす る機会がありました。その誠実さと真面目さは見た目から滲み出るほどでした。その 誠実さと真面目な姿勢で今後の研究を頑張って下さい。大木君、小畑君、花篭君、松田さんは特に最後の1年間、様々な場所で一緒に作業することが多く、話す機会もとても多かったと思います。皆さんにはよくいじり倒され、自分も先輩としての威厳は無かったかもしれませんが、一緒に楽しい時間を過ごせたと思っています。来年は修論を書く立場になり、非常に大変な思いをすると思うので、私を修論のことでいじり倒したことを反省するといいと思います。ともあれ、KamLAND-Zen実験がついに始動し、これから1年間が正念場となると思いますが、同期同士協力して頑張って下さい。

最後に、いつも自分を支えてくれた父、母、妹に心から感謝します。並びに友人達 を初め、自分に関わって下さった方全てに感謝します。皆さん本当にありがとうござ いました。