

修士論文

反電子ニュートリノ検出に用いる  
波形弁別能力が高いガドリニウム入り  
液体シンチレーターの開発

東北大学大学院 理学研究科  
物理学専攻  
榎崎 哲也

平成 27 年

## 概要

ニュートリノ振動研究において、原子炉ニュートリノを使った振動実験では Gd 入の液体シンチレータを実装した検出器を地下に設置し反電子ニュートリノを検出している。近年この反電子ニュートリノの検出技術を応用した検出器の開発が行われており、そのうちの 하나가原子炉モニター実験である。この原子炉モニターは開発条件としてどこにでも置ける、安価でシンプルな構造という点があり、そのために地上測定が可能で 1 トン程度サイズのものが要求されている。地上測定では地下測定と違い、宇宙線  $\mu$  や宇宙線起源  $\gamma$  線、高速中性子などの背景事象が増え、有意なニュートリノ検出が困難となる。そのため背景事象を取り除き、有意なニュートリノ検出が可能な検出器の R&D が行なわれており、原子炉モニターの開発はチャレンジングなものとなっている。

東北大学では現在新しい原子炉モニターの開発を行なっている。この研究では、2014 年の研究 [1] で新しく波形弁別能力を実装した Gd 入液体シンチレータの開発を行なった。波形弁別能力の実装することによって、遅延同時計測法による高速中性子バックグラウンドを減少させることが可能となる。本研究ではこの液体シンチレータについて、溶質量の最適化や、新しい溶質候補を探すなどさらに改良が加える事ができないかを研究し、その性能の評価を行なった。また開発中の原子炉モニターに実装し、その時の性能の評価も行なった。

# 目次

概要	1
第 1 章 序論	1
1.1 原子炉ニュートリノ振動実験	1
1.2 原子炉モニター実験	1
1.3 反電子ニュートリノの地上測定	1
1.4 世界の原子炉モニター実験	3
1.4.1 SONGS 実験	3
1.4.2 PANDA 実験	4
1.5 東北大学での原子炉モニター開発	4
第 2 章 原子炉ニュートリノと Gd 入液体シンチレータ検出器	5
2.1 原子炉ニュートリノ	5
2.2 反電子ニュートリノの検出原理	6
2.3 遅延同時計測法	8
2.3.1 Gd を利用した反電子ニュートリノ検出	8
2.3.2 地上測定による遅延同時計測法の背景事象	9
第 3 章 東北大学での新型原子炉モニター開発	12
3.1 東北大学における新型原子炉モニター	12
3.1.1 検出器概要	12
3.1.2 内層の液体シンチレータ	12
3.1.3 外層の液体シンチレータ	12
3.1.4 データ取得機器	13
3.1.5 検出器の期待される性能	14
第 4 章 液体シンチレータ	20
4.1 発光原理	20
4.2 発光の時間特性	23
4.3 波形弁別法と Double Gate 法	23
4.4 クエンチング効果	24
4.5 液体シンチレータ開発における要請	26
4.6 ベースオイルの選定	27
4.7 液体シンチレータのサンプル	28
4.8 Gd の混合方法	31
4.8.1 Gd 錯体の作成	31
4.8.2 Gd 錯体の LAB への混合	33
4.8.3 $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$ による作成効率の確認	33

4.9	FADC を使ったデータの取得	36
4.10	PMT での 1 光子 Gain 測定	38
4.10.1	実験方法・セットアップ	38
4.10.2	データ解析	38
4.10.3	結果	40
4.11	発光量測定	41
4.11.1	実験方法とセットアップ	41
4.11.2	データ解析	42
4.11.3	結果	43
4.11.4	考察	44
4.12	TOF による波形弁別能力測定	45
4.12.1	実験方法とセットアップ	45
4.12.2	データ解析	48
4.12.3	結果	49
4.12.4	考察	50
4.13	分光光度計による透過率測定	53
4.13.1	実験手順	53
4.13.2	結果	54
4.13.3	考察	54
4.14	光路長を変化させる減衰長測定	55
4.14.1	実験方法とセットアップ	55
4.14.2	アクリルパイプの作製	59
4.14.3	測定プログラムとオシロスコープでの差	60
4.14.4	データ解析	60
4.14.5	結果	62
4.14.6	考察	64
4.15	波形評価	64
<b>第 5 章</b>	<b>原子炉ニュートリノモニターでの実験データ</b>	<b>66</b>
5.1	原子炉モニターの建設	66
5.2	原子炉ニュートリノ実装用 Gd の量産と導入	73
5.3	$^{137}\text{Cs}$ 線源を発光量経年変化測定	75
5.4	$^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$ による擬似ニュートリノイベントの測定	76
<b>第 6 章</b>	<b>まとめと今後</b>	<b>77</b>
付録 A	TOF による PSD 測定データ	79
付録 A	発光量測定データ	90

# 目次

1.1	$^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ の量の比によってニュートリノレートの変化 [3] . . . . .	2
1.2	Power=3.4GW、TargetVolume=400L、BaseLine=24.5m でのバックグラウンドイベント数とエネルギー分布 (MC) . . . . .	2
1.3	SONGS 実験検出器 [3] . . . . .	3
1.4	PANDA36 検出器 [4] . . . . .	4
1.5	PANDA36 検出器 (2)[4] . . . . .	4
2.1	$^{235}\text{U}$ の核分裂過程[11] . . . . .	6
2.2	典型的な原子炉における主な核の核分裂頻度 ( $^{239}\text{Pu}$ :緑, $^{235}\text{U}$ :黒, $^{238}\text{U}$ :赤, $^{241}\text{Pu}$ :紫) [6] . . . . .	7
2.3	典型的な原子炉における主な核種の 1 分裂あたりの $\bar{\nu}_e$ のエネルギー分布 ( $^{239}\text{Pu}$ :緑, $^{235}\text{U}$ :黒, $^{238}\text{U}$ :赤, $^{241}\text{Pu}$ :紫) [6] . . . . .	7
2.4	(a) は観測される反電子ニュートリノのエネルギー分布、(b) はニュートリノフラックス、(c) は反応断面積を表す。 . . . .	8
2.5	$\bar{\nu}_e$ の遅延同時計測法をつかった検出原理 . . . . .	9
2.6	遅延同時計測法における偶発背景事象。緑部分:Gd 入液体シンチレータ . . . . .	10
2.7	遅延同時計測法における高速中性子背景事象。緑部分:Gd 入液体シンチレータ . . . . .	11
3.1	東北大学での新型検出器 . . . . .	13
3.2	検出器断面図 . . . . .	13
3.3	環境 $\gamma$ 線による偶発同時計測事象の様子。赤:先発信号、青:後発信号、黄:事象発生位置 . . . . .	14
3.4	先発信号と後発信号の再構成事象位置の距離差。黒:ニュートリノ信号、赤:偶発同時計測事象 [1] . . . . .	15
3.5	内層と外層の宇宙線での平均波形。黒:内層液シン、赤:シリコンオイル液シン . . . . .	15
3.6	平均波形における Tail と Total の面積比。黒:内層液シン、赤:シリコンオイル液シン . . . . .	16
3.7	$\gamma$ 線 (黒) と中性子 (赤) による平均波形 . . . . .	17
3.8	平均波形における面積比。 $\gamma$ (赤) 中性子 (青) . . . . .	17
3.9	事象選別後の背景事象 . . . . .	18
3.10	炉からの距離と検出までにかかる時間。赤:SONGS と同じ条件、青:2 倍の背景事象 . . . . .	19
4.1	分子のエネルギー準位と電子遷移 [12] . . . . .	21
4.2	PPO、bis-MSB の構造式 [12] . . . . .	21
4.3	LAB の吸収波長と PPO、bis-MSB の発光波長 [7] . . . . .	22

4.4	異種放射線で励起されたスチルベン中のシンチレーション波形の時間特性 (時間 0 で同じ強度に規格化) [16]	23
4.5	$Q_{total}$ と $Q_{tail}$ の定義 (時間を後で確認、変更)	24
4.6	発光過程におけるクエンチング [12]	24
4.7	ナフタレンによる黄ばみ	26
4.8	LAB(左上)、PXE(右上)、PC(中央下) の構造式	27
4.9	PPO の構造式	28
4.10	bisMSB の構造式	28
4.11	ナフタレンの構造式	28
4.12	DIN の構造式	28
4.13	Gd による波形弁別能力の変化 (PPO 3g/L、bis-MSB 30mg/L)。赤:Gd 無し、青:Gd 有り	29
4.14	Gd による発光量の変化 (PPO 3g/L、bis-MSB 30mg/L)。左:Gd 投入前、右:Gd 投入後	29
4.15	TMHA 構造式	31
4.16	TMHA とアンモニア水の中和	32
4.17	GdCl <sub>3</sub> 水溶液	32
4.18	Gd 錯体生成反応	32
4.19	Gd 錯体生成	32
4.20	アスピレータを使つたろ過の様子	32
4.21	Gd 錯体のろ過抽出	32
4.22	Gd 錯体を溶かした LAB	33
4.23	ろ過後	33
4.24	セットアップ:Gd 作成効率	34
4.25	Gd 作成効率測定の様子	34
4.26	先発信号と後発信号の時間差。黒:データ点、青:フィット結果	35
4.27	時間差の Gd 濃度依存性	35
4.28	FADC で取得した波形データ	36
4.29	変換した波形データ	37
4.30	セットアップ:1pe 測定	38
4.31	パルスジェネレータ	38
4.32	1pe 測定の様子	39
4.33	1 光子 Gain 測定における、各 HV での Q 分布。赤:1 光子ピークを Gaus 関数でフィットした結果	39
4.34	1p.e 測定:フィッティング	40
4.35	セットアップ:発光量測定	41
4.36	光量測定の様子 (手前:NaI シンチ、奥:サンプル)	41
4.37	NaI での Q 分布 (差し替え予定)。赤:NaI シングルトリガー (全吸収)、青:サンプルとのコインシデンストリガー (後方散乱)	42
4.38	サンプルでの Q 分布。赤:サンプルのシングルトリガー、青:NaI とコインシデンスイベント、緑:フィット結果	42
4.39	PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ	43
4.40	発光量の PPO, ナフタレン濃度依存性	44

4.41	発光量の PPO。DIN 濃度依存性	44
4.42	左:DIN なし、右:DIN あり	45
4.43	Cf の崩壊図	46
4.44	セットアップ:PSD 測定	46
4.45	TOF を用いた測定の様子 (右側: 1 LLS、左奥:サンプル)	46
4.46	波形で見た場合の $\gamma$ イベントとイベントでのピークのズレ。上が $\gamma$ 由来信号、 下が中性子信号。黒:サンプル (Trigger)、赤: 1 LLS	47
4.47	PSD 測定におけるイベントセレクション。オレンジ:カットライン (左上:1LLS の Q, 右上:サンプルの p.e vs PSD, 左下:PSD vs $\Delta t$ , 右下:PSD 赤: $\gamma$ , 青:中性子)	48
4.48	$\gamma$ 効率曲線	49
4.49	PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、 右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)	49
4.50	FOM の PPO、ナフタレン濃度依存性	50
4.51	FOM の PPO、DIN 濃度依存性	51
4.52	平均波形:PPO 濃度 3g/L	51
4.53	平均波形:PPO 濃度 7g/L	52
4.54	平均波形:PPO 濃度 10g/L	52
4.55	分光光度計 (U-3900)	53
4.56	透過率。黒 : LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + ナフタレン (50g/L) 、赤 : LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + DIN(50g/L)、緑 : LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + ナフタレン (50g/L) + Gd(0.1w%)	54
4.57	減衰長:LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + ナフタレン (50g/L)	55
4.58	減衰長:LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + DIN(50g/L)	55
4.59	減衰長:LAB+PPO(7g/L)+bisMSB(30mg/L)+ナフタレン (50g/L)+Gd(0.1w%)	55
4.60	セットアップ:アクリルパイプをつかった減衰長測定	56
4.61	セットアップ:アクリルパイプを横から見た図	57
4.62	減衰長測定の様子。暗室から出る部分はブラックシートにより遮光	57
4.63	測定機器 上:AT-120AP、下:AT-100PCC	57
4.64	Xe ランプビーム	57
4.65	測定プログラム	57
4.66	プログラム設定画面	58
4.67	データ取得様子。横軸:ビーム波長、縦軸:Voltage	58
4.68	測定用アクリルパイプ	59
4.69	アクリル底面	59
4.70	アクリル上面取り付けパーツ	59
4.71	アクリル上面取り付け後	59
4.72	波長ごとの PMT 信号値 (光路長:黒:BG、赤:0.4m、緑:0.8m、青:1.2m、黄:1.6m、 マゼンタ:2.0m、シアン:2.4m、抹茶 2.:8m、藍:3.2m)	60
4.73	バックグラウンド除去後	60
4.74	430nm での光路長と PMT 信号値。赤線:フィッティング線	61
4.75	測定結果と減衰長 (黒:LAB、赤:PPO(7g/L)+bis-MSB(30mg/L)、緑:DayaBay タイプ、青:PPO(7g/L)+bis-MSB(30mg/L)+ナフタレン (50g/L)	62
4.76	LAB のオシロデータとプログラムデータによる減衰長	63

4.77	GdCl <sub>3</sub> に含まれる Fe による発光吸収の変化 (黒:Fe なし、緑:Fe0.004%、マゼンタ:緑の 41 日後、赤:緑の 91 日後)[8]	64
4.78	PPO による発光吸収の変化 (マゼンタ:PPO を加えた後、青:純化後)[8]	64
4.79	LAB+PPO(3g/L)+bisMSB(30mg/L) の波形。左:γ 事象、右:中性子事象。黒線:Data、赤線:フィットデータ	65
4.80	LAB+PPO(7g/L)+bisMSB(30mg/L)+ナフタレン (50g/L) の波形。左:γ 事象、右:中性子事象。黒線:Data、赤線:フィットデータ	65
5.1	内層の水張り試験	66
5.2	外層の水張り試験	66
5.3	PMT 動作試験様子 (内部)	67
5.4	PMT 動作試験 (外部)	67
5.5	容器底の鉄シールド	68
5.6	設置後の様子	68
5.7	チムニーの様子	68
5.8	容器内部の様子	68
5.9	攪拌様子	69
5.10	ナフタレンの計量	69
5.11	ブラックライトをあて光の確認	69
5.12	ポンプの様子	70
5.13	アクリル容器に液体シンチレータが入る様子	70
5.14	窒素パブリング	70
5.15	外層にシリコンオイルを入れる様子	71
5.16	アクリル容器の蓋を締めた後	71
5.17	PMT 固定用フレーム	71
5.18	架台の上部フレーム	71
5.19	PMT を固定フレームに載せた様子	72
5.20	上部に取り付けた PMT	72
5.21	PMT の配線	72
5.22	屈折によって PMT がみえる様子	72
5.23	アルミ板の取り付け前	73
5.24	アルミ板取り付け後	73
5.25	高濃度 Gd 液シンの作製	74
5.26	Gd 導入後 1 週間程度置き、不純物が沈殿した様子	74
5.27	検出器データ: <sup>137</sup> Cs	75
5.28	検出器データ: <sup>137</sup> Cs 経年変化	75
5.29	<sup>241</sup> Am/ <sup>9</sup> Be による擬似ニュートリノイベント	76
5.30	<sup>241</sup> Am/ <sup>9</sup> Be による擬似ニュートリノイベント 経年変化	76
6.1	PPO(3g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)	79
6.2	PPO(3g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)	79



6.3	PPO(3g/L)+ナフタレン (100g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、 右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . .	80
6.4	PPO(3g/L)+ナフタレン (150g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、 右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . .	80
6.5	PPO(7g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左 下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . . .	81
6.6	PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、 右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . .	81
6.7	PPO(7g/L)+ナフタレン (100g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、 右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . .	82
6.8	PPO(7g/L)+ナフタレン (150g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、 右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . .	82
6.9	PPO(10g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、 左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . . .	83
6.10	PPO(10g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、 右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . .	83
6.11	PPO(10g/L)+ナフタレン (100g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性 子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)	84
6.12	PPO(10g/L)+ナフタレン (150g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性 子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)	84
6.13	PPO(3g/L)+DIN(50g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . . .	85
6.14	PPO(3g/L)+DIN(100g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右 上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . .	85
6.15	PPO(3g/L)+DIN(150g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右 上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . .	86
6.16	PPO(7g/L)+DIN(50g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . . .	86
6.17	PPO(7g/L)+DIN(100g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右 上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . .	87
6.18	PPO(7g/L)+DIN(150g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右 上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . .	87
6.19	PPO(10g/L)+DIN(50g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右 上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . .	88
6.20	PPO(10g/L)+DIN(100g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右 上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . .	88
6.21	PPO(10g/L)+DIN(150g/L) 結果 (右上:, 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右 上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線) . . . .	89
6.22	PPO(3g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ . . . . .	90
6.23	PPO(3g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデ ンスデータ . . . . .	90
6.24	PPO(3g/L)+ナフタレン (100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	90

6.25 PPO(3g/L)+ナフタレン (150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	90
6.26 PPO(7g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ . . . . .	91
6.27 PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	91
6.28 PPO(7g/L)+ナフタレン (100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	91
6.29 PPO(7g/L)+ナフタレン (150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	91
6.30 PPO(10g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ . . . . .	91
6.31 PPO(10g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	91
6.32 PPO(10g/L)+ナフタレン (100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	92
6.33 PPO(10g/L)+ナフタレン (150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシ デンスデータ . . . . .	92
6.34 PPO(3g/L)+DIN(50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ	92
6.35 PPO(3g/L)+DIN(100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンス データ . . . . .	92
6.36 PPO(3g/L)+DIN(150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンス データ . . . . .	92
6.37 PPO(7g/L)+DIN(50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ	92
6.38 PPO(7g/L)+DIN(100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンス データ . . . . .	93
6.39 PPO(7g/L)+DIN(150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンス データ . . . . .	93
6.40 PPO(10g/L)+DIN(50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンス データ . . . . .	93
6.41 PPO(10g/L)+DIN(100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンス データ . . . . .	93
6.42 PPO(10g/L)+DIN(150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンス データ . . . . .	93

## 表 目 次

3.1	検出器の検出効率 . . . . .	18
4.1	発光剤の特性 . . . . .	22
4.2	LAB,PXE,PC の特性 [1] [17] [18] . . . . .	27
4.3	PSD、発光量測定サンプル . . . . .	30
4.4	減衰長・透過率測定サンプル . . . . .	30
4.5	光路長 40cm でのデータ . . . . .	60
4.6	フィッティングパラメータ . . . . .	65
5.1	溶質量 . . . . .	69



# 第1章 序論

## 1.1 原子炉ニュートリノ振動実験

ニュートリノとは、素粒子の一種であり、電子型、 $\mu$ 型、 $\tau$ 型の3世代ある。その特徴の一つとして、弱い相互作用しかしないため高い貫通力を有している。そのため原子炉から発生するニュートリノを遮蔽物を超えて離れた地点で検出することが可能である。

原子炉ニュートリノを利用し、ニュートリノ振動の実験が行われている。ニュートリノ振動とは、3世代のニュートリノが飛行中に別世代のニュートリノに変化するものである。Double Chooz 実験や Daya Bay 実験などでは Gd 入液体シンチレータを使用し、このニュートリノ振動に関する研究が行われている。

## 1.2 原子炉モニター実験

近年では原子炉ニュートリノ振動実験の検出技術を利用した原子炉ニュートリノを検出する小型の検出器(以下、原子炉モニター)の R&D が世界中で行なわれている。原子炉からは核分裂に伴う  $\beta$  崩壊よりニュートリノが発生している。原子炉運転の出力は一定であるが、 $^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$  の量の比によってニュートリノレートが変化する(図 1.1)。原子炉モニターはニュートリノレートの変化を検出することにより、原子炉が申告する  $^{239}\text{Pu}$  の量が正しいかが確認することができる。 $^{239}\text{Pu}$  は核兵器などに転用されるおそれがあり、 $^{239}\text{Pu}$  量の監視が可能な原子炉モニターは核不拡散につながる為、国際原子力機関 (IAEA) の安全保障制度に役立つと注目されている。実用化に向けて IAEA からの要求として、小型で低コストで 1t 程度のターゲット重量で収まること、基線が数十 m での測定ができ独立性を持っていることや不燃物または法的制限の範囲内での危険物の使用であることなど挙げられる。

## 1.3 反電子ニュートリノの地上測定

これまでの原子炉からの反電子ニュートリノ検出実験では、検出器を地下に設置していた。それは地下に検出器を設置することで宇宙線や宇宙線  $\mu$  起源の放射線、環境  $\gamma$  線などのバックグラウンドを減少させることができるからである。しかし、昨今ではニュートリノ検出を応用した検出器の開発や、原子炉由来ではない反電子ニュートリノ検出の為、地上測定が可能な検出器が必要とされている [1][2]。図 (1.2) は、熱出力 3.4GW、検出ターゲット液体シンチレータの容量 400L、炉から 24.5m の位置で地上測定した場合の MC シミュレーションによる期待されるバックグラウンドである [1]。有意なニュートリノ事象を検出するためには、バックグラウンドを 4 桁程度減少させる必要があり、チャレンジングな部分となっている。

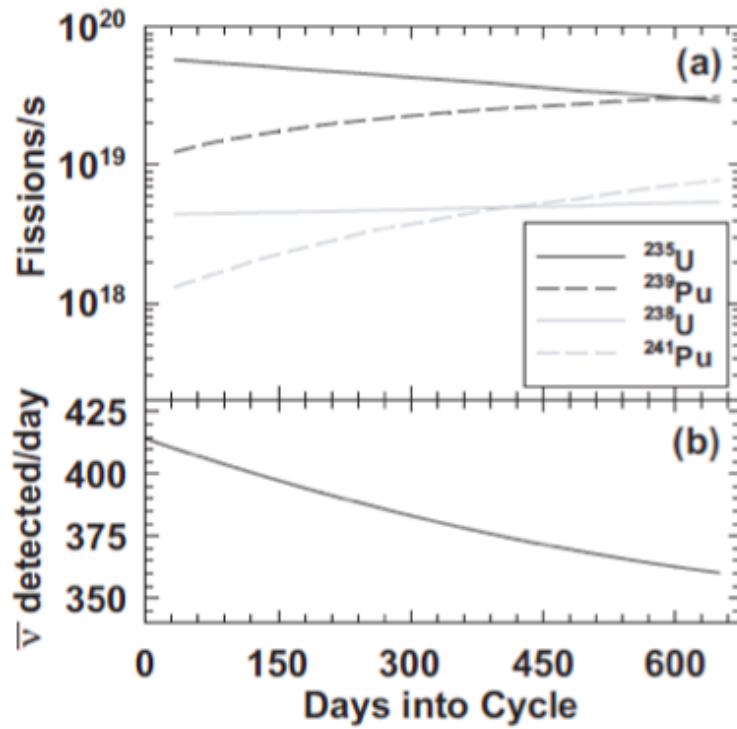


図 1.1:  $^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$  の量の比によってニュートリノレートの変化 [3]

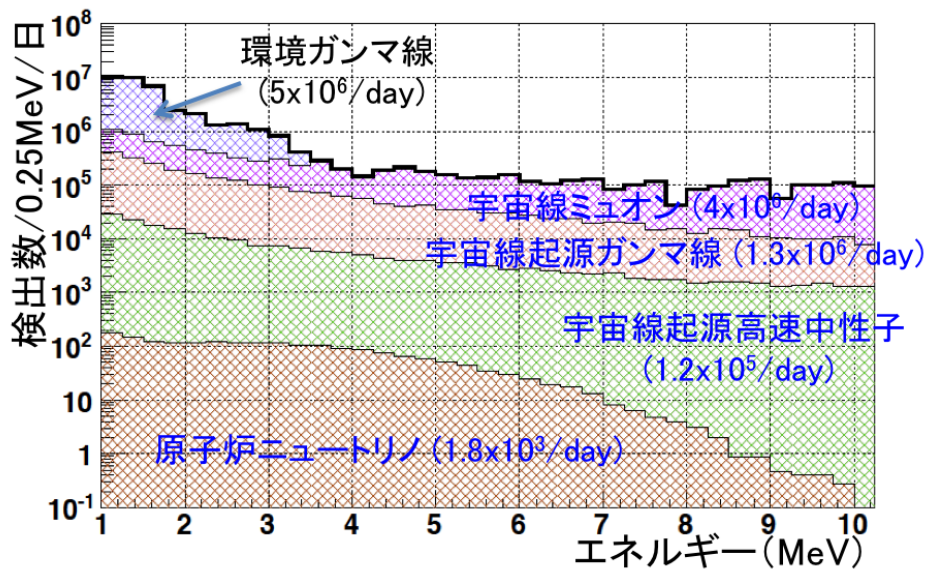


図 1.2: Power=3.4GW、TargetVolume=400L、BaseLine=24.5m でのバックグラウンドイベント数とエネルギー分布 (MC)

## 1.4 世界の原子炉モニター実験

東北大学でも原子炉モニターのR&Dが行なわれている。他にも原子炉モニター実験としてアメリカのSONGS実験や、東京大学のPANDA実験などがあり、これらの紹介をする。

### 1.4.1 SONGS 実験

アメリカのSan Onofre原子力発電所で行なわれたシンプルな構造の検出器を使い2003～2006年まで行なわれた実験。この実験により、ニュートリノ検出による原子炉モニターの实用可能性が示された。検出器は図(1.3)のようになっており、次のような条件で測定が行なわれた[3]。

- 原子炉熱出力:3.4GW
- 原子炉からの距離:24.5m
- 0.64 トンの Gd 入液体シンチレータでの検出
- 50cm 厚のポリエチレンシールド
- 地下 10m での検出

この時測定したニュートリノ事象数は  $459 \pm 16/\text{day}$  であり、期待値であった  $407 \pm 75/\text{day}$  とエラー内で一致した。また、背景事象は偶発同時計測事象が  $3732 \pm 25/\text{day}$  で、高速中性子事象が  $105 \pm 9/\text{day}$  であった。これにより小型の検出器でのニュートリノ測定可能性が示されたが、その検出効率が約 12%と低いことや、地下で測定したこと、2000 万円程度のコストがかかったことが問題点となっており、実用的なものを開発するためにはさらなる改善が必要であった。

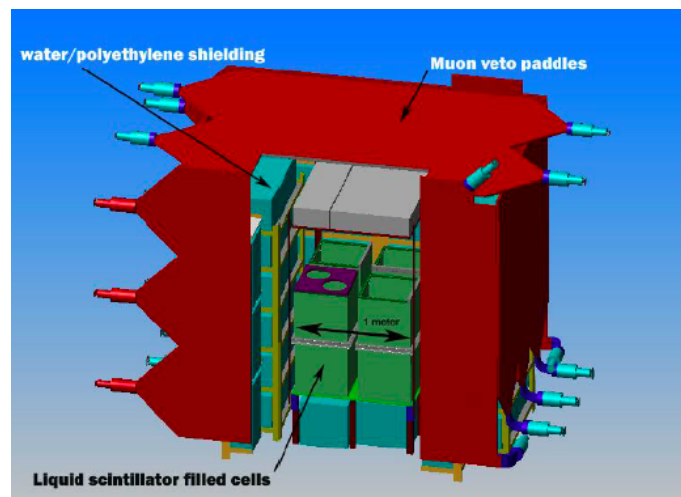


図 1.3: SONGS 実験検出器 [3]

### 1.4.2 PANDA 実験

PANDA 実験は東京大学で行われている原子炉モニター研究であり、プラスチックシンチレータを使ったニュートリノ検出を行なっている。検出器は図(1.4),(1.5)のようにプラスチックシンチレータを36個束ねたものになっている。2011~2012にかけて熱出力が3.4GWの大飯原発で、炉から36m離れた位置での地上測定を行なった。そこでレート  $21.8 \pm 11.4/\text{day}$  でのニュートリノ測定に成功している。しかし、その検出効率は  $3.15 \pm 0.93\%$  と低かった。

そこで現在はシンチレータの数を36個から100個に増やしたPANDA100にアップグレードを行なっている。[4]

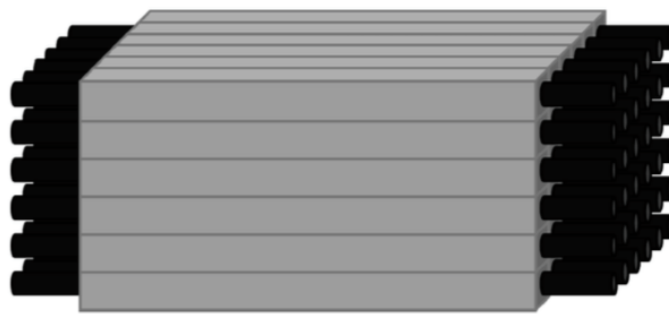


図 1.4: PANDA36 検出器 [4]

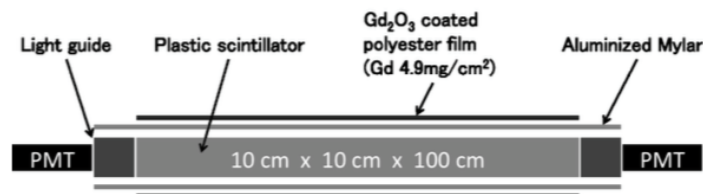


図 1.5: PANDA36 検出器 (2)[4]

## 1.5 東北大学での原子炉モニター開発

東北大学では液体シンチレータを使った原子炉モニターの開発を行なっている [5]。しかし、過去の実験ではバックグラウンドが多いこと、経年劣化が大きいこと、事象位置の再構成性能が低かったことなどから有意なニュートリノ検出ができなかった [5]。そこで新しく開発している検出器では、高い検出効率を確保するために波形弁別法(節 4.3)により高速中性子バックグラウンドを減少させることを考えている。そのために Gd 入りの液体シンチレータに高い波形弁別能力の付与することが必要であり、その研究開発を行なっている。

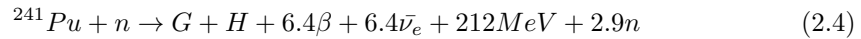
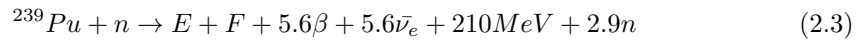
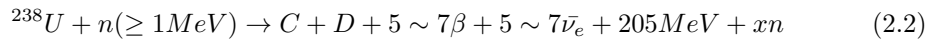
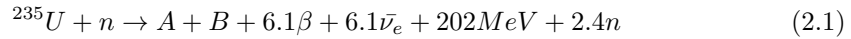
2章では原子炉ニュートリノと Gd 入液体シンチレータについて、3章では東北大学での原子炉モニター開発について、4章では液体シンチレータの性質と研究開発について、5章では東北大学での新型原子炉モニターに実装した時の性能評価について説明する。



## 第2章 原子炉ニュートリノとGd入液体シンチレータ検出器

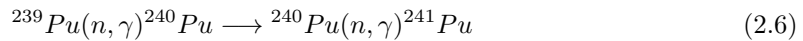
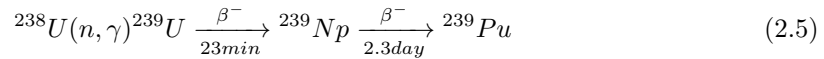
### 2.1 原子炉ニュートリノ

原子炉に使用される核燃料中で、主な核分裂性核種は  $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$  である。原子炉の核分裂性核は中性子を吸収して核分裂を起こし、2~3 個の中性子と 2 個の原子核を生成する。そしてその原子核は  $\beta$  崩壊によって 5~7 個の反電子ニュートリノを放出する。例として原子炉における主な核の核分裂頻度を図 (2.2)、主な核種の 1 分裂あたりの  $\bar{\nu}_e$  のエネルギー分布を図 (2.3) に示す [6]。また、崩壊例の一つとして  $^{235}\text{U}$  の崩壊から反電子ニュートリノ生成までの模式図を図 2.1 に示す。以下にその反応式を示す。



ここで A~H は同位体の核分裂後に生成される原子核である。

ここで発生した中性子は、次の核分裂に使用されるか、以下のような反応で核燃料の物質生成のために使用される。



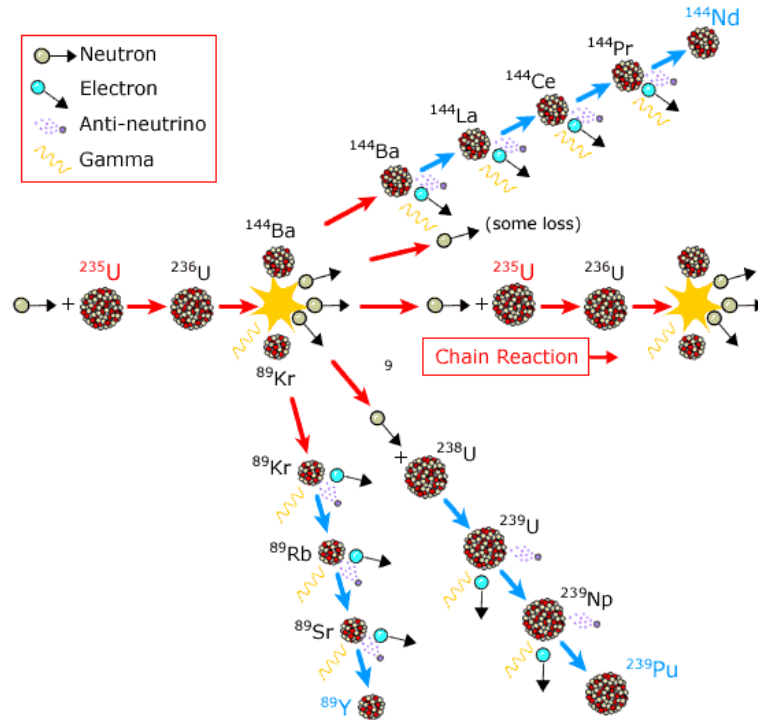
$^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$  の一回の核分裂によって放出されるエネルギーは約 200 MeV である。またその熱量 [kJ] は、

$$1.6 \times 10^{-16} [\text{kJ/MeV}] \times 200 [\text{MeV}] = 320 \times 10^{-16} [\text{kJ}] \quad (2.7)$$

となる。ここで  $1 \text{ MeV} = 1.6 \times 10^{-16} \text{ kJ}$  である。例として熱出力 3 GW の炉を想定した場合、1 秒あたりの核分裂回数は、

$$\frac{3 [\text{GWth}]}{320 \times 10^{-16} [\text{kJ}]} = 9.3 \times 10^{19} [\text{/sec}] \quad (2.8)$$

である。一度の核分裂で約 6 個の反電子ニュートリノが発生するので、1 秒あたり  $5.7 \times 10^{20}$  個の反電子ニュートリノが炉心から放出されていることになる。

図 2.1:  $^{235}\text{U}$  の核分裂過程[11]

## 2.2 反電子ニュートリノの検出原理

反電子ニュートリノは逆  $\beta$  崩壊 (式 2.9) を利用することによって検出することができる。有機シンチレータは多くの自由水素を含み、この自由水素と逆  $\beta$  崩壊反応を起こす。

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \quad (2.9)$$

この逆  $\beta$  崩壊反応を検出することにより  $\bar{\nu}_e$  の測定が可能となる。

逆  $\beta$  崩壊反応の閾値は  $1.8 \text{ MeV}$  で全反応断面積は放出される陽電子のエネルギー  $E_e^{(0)}$  と運動量  $p_e^{(0)} = \sqrt{E_e^{(0)2} - m_e^2}$  を使って次の式で表される。

$$\sigma_{\nu p}^{(0)} = \frac{2\pi^2}{1.7152m_e^5\tau_n} E_e^{(0)} p_e^{(0)} = 9.5 \times 10^{-48} E_e^{(0)} p_e^{(0)} [\text{m}^2] \quad (2.10)$$

ただし  $m_e$  は陽電子の質量、 $\tau_n$  は中性子の寿命を意味する。

検出器で観測される  $\bar{\nu}_e$  のエネルギー分布を図 2.4 に示す。ニュートリノ事象反応頻度はニュートリノフラックス (図 2.4 の (b)) と反応断面積 (図 2.4 の (c)) に比例する。観測される反電子ニュートリノのエネルギー分布 (図 2.4 の (a)) は  $4 \text{ MeV}$  付近にピークを持つ。

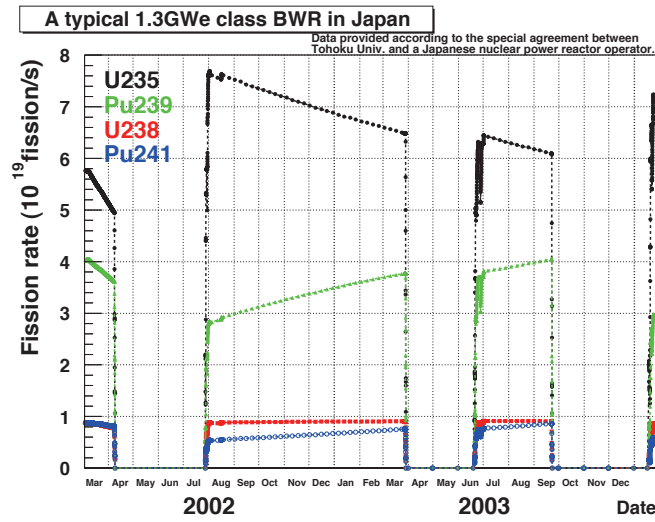


図 2.2: 典型的な原子炉における主な核の核分裂頻度 ( $^{239}\text{Pu}$ :緑,  $^{235}\text{U}$ :黒,  $^{238}\text{U}$ :赤,  $^{241}\text{Pu}$ :紫) [6]

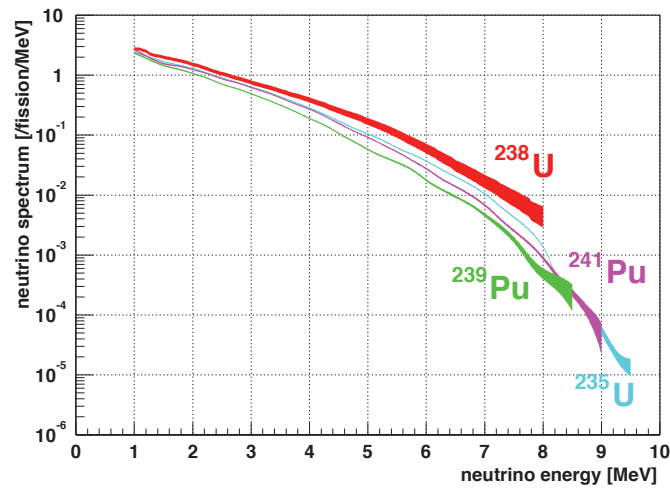


図 2.3: 典型的な原子炉における主な核種の 1 分裂あたりの  $\bar{\nu}_e$  のエネルギー分布 ( $^{239}\text{Pu}$ : 緑,  $^{235}\text{U}$ :黒,  $^{238}\text{U}$ :赤,  $^{241}\text{Pu}$ :紫) [6]

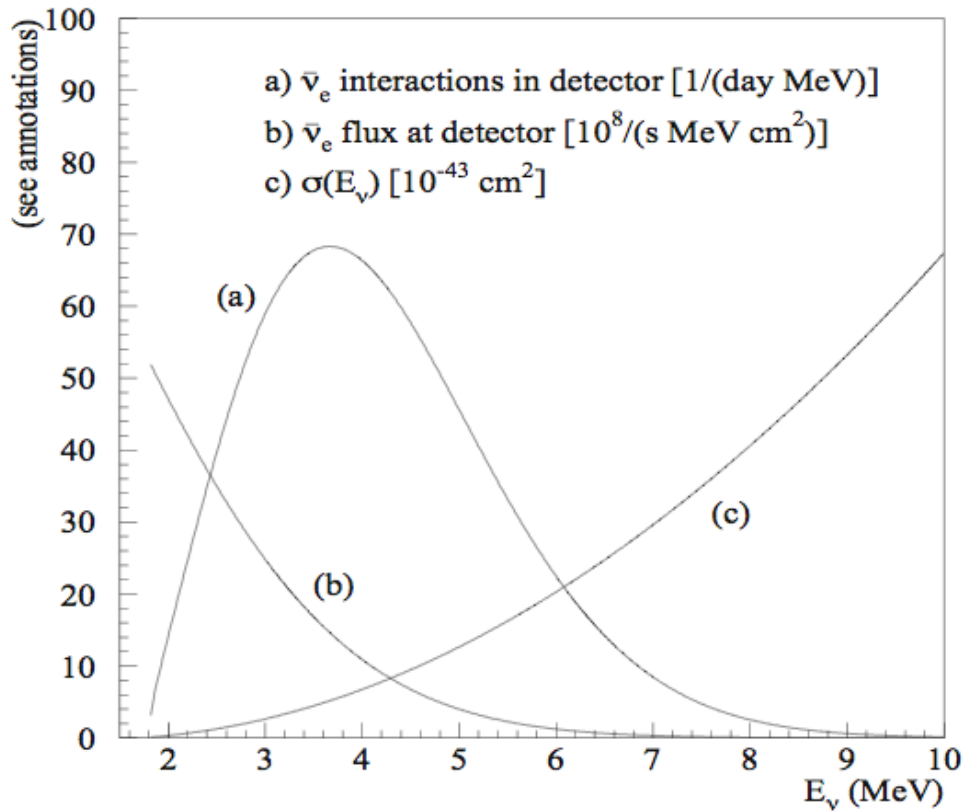


図 2.4: (a) は観測される反電子ニュートリノのエネルギー分布、(b) はニュートリノフラックス、(c) は反応断面積を表す。

## 2.3 遅延同時計測法

### 2.3.1 Gd を利用した反電子ニュートリノ検出

反電子ニュートリノの検出において、背景事象となる環境  $\gamma$  線や、宇宙線  $\mu$  を取り除くために遅延同時計測法がある。これは時間相関のある2つの信号を見ることによって、時間相関のない信号のほとんどを取り除くことができるものである。以下に反電子ニュートリノ検出における Gd をつけた遅延同時計測法の説明をする。またその模式図を図 2.5 に示す。

#### 先発信号

反電子ニュートリノがシンチレータ内の陽子と逆  $\beta$  崩壊を起こした時に生じる陽電子による信号。陽電子は電子と対消滅を起こし、1.022MeV の2本の  $\gamma$  線となる。この先発信号のエネルギーは反電子ニュートリノのエネルギーからその逆  $\beta$  崩壊における閾値 (1.8MeV) を引き、この 1.022MeV を足したものとなる (式 2.11)。

prompt signal

$$E_{prompt} = E - 1.8\text{MeV}(\text{threshold}) + 2m_e(1.0\text{MeV})$$

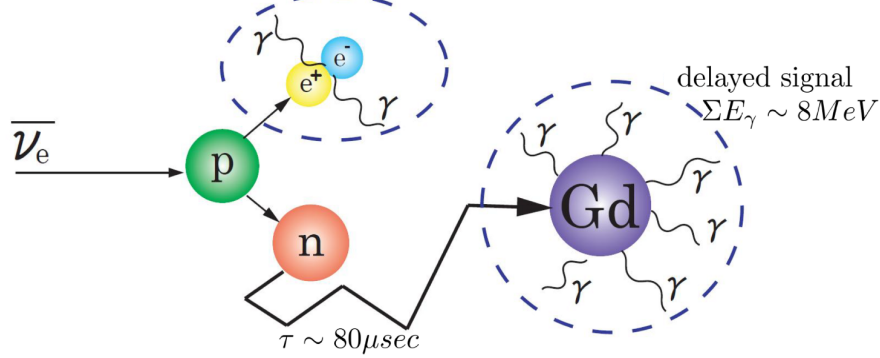


図 2.5:  $\bar{\nu}_e$  の遅延同時計測法をつかった検出原理

$$E_{prompt} = E_{\bar{\nu}_e} - 1.8\text{MeV} + 1.022\text{MeV} \quad (2.11)$$

$$\sim E_{\bar{\nu}_e} - 0.8\text{MeV} \quad (2.12)$$

後発信号

逆  $\beta$  崩壊でできた中性子はシンチレータ中の陽子と衝突を繰り返し熱中性子となる。この熱中性子が反応断面積の大きな Gd に吸収され、合計約 8 MeV の  $\gamma$  線を放出する。

$$E_{delayed} = \Sigma E_{\gamma} \sim 8\text{MeV} \quad (2.13)$$

Gd 以外にも水素に捕縛され 2.2MeV の  $\gamma$  線を放出することもある。

$$n + p \rightarrow d + 2.2\text{MeV} \quad (2.14)$$

この先発信号と後発信号の時間差  $\tau$  はガドリニウムの濃度に依存し、一般的に数十  $\mu\text{sec}$  である。先発信号から後発信号までの中性子捕獲時間  $\tau$  は、

$$\tau = \frac{\Delta t_H^{KamLAND} \times \frac{\rho_H^{KamLAND}}{\rho_H}}{1 + \frac{\rho_{Gd}}{\rho_H} \times \frac{\sigma_{Gd}}{\sigma_H}} \quad (2.15)$$

で示される。ここで  $\rho_H$  は水素原子の密度、 $\rho_{Gd}$  はガドリニウム原子の密度、 $\sigma_H$  は水素原子の中性子捕獲断面積、 $\sigma_{Gd}$  はガドリニウムの中性子捕獲断面積である。また、 $\rho_H^{KamLAND}$  は  $6.6 \times 10^{22} / \text{ml}$ 、 $\Delta t_H^{KamLAND}$  は 211.4  $\mu\text{sec}$  であり、KamLAND グループによって測定された値である [6]。東北大学では Gd0.1w%の液体シンチレータを使用する予定であり、その場合は  $\Delta t \sim 30\mu\text{s}$  となる。

### 2.3.2 地上測定による遅延同時計測法の背景事象

遅延同時計測法により地上測定における数多くの背景事象を取り除くことができる。1章の図(1.2)での背景事象の内、環境  $\gamma$ 、宇宙線  $\mu$ 、宇宙線  $\gamma$  は遅延同時計測法によって二桁程度落とすことが可能である。しかしこの方法では取り除けない背景事象も存在する。ここではその背景事象の発生原理について説明する。

## 2.3.2.1 偶発背景事象

時間相関のない2つの信号が先発信号と後発信号となり、遅延同時計測法の時間幅にトリガーを作る背景事象。先発信号の頻度を  $R_{prompt}[Hz]$ 、後発信号の頻度を  $R_{delayed}[Hz]$  とし、コインシデンス時間幅を  $\tau [sec]$  とすると、偶発背景事象の頻度  $R_{accidental}[Hz]$  は、

$$R_{accidental}[Hz] = R_{prompt}[Hz] \times R_{delayed}[Hz] \times \tau[sec] \quad (2.16)$$

と見積もることが可能である。遅延同時計測法を含むニュートリノセレクションを行った後の背景事象による先発信号は主に環境  $\gamma$  線であり、後発信号は主に宇宙線  $\mu$  による信号である。これは主に Gd を使った遅延同時計測法による先発信号と後発信号のエネルギー領域によって異なる。環境  $\gamma$  線は周辺のコンクリートに起因する。また宇宙線由来の高エネルギー  $\gamma$  線背景事象も存在することがわかっている。その模式図を図 (2.6) に示す。

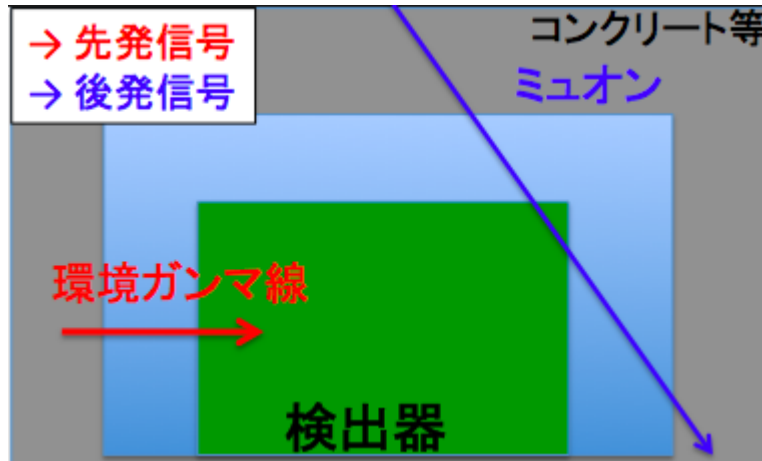


図 2.6: 遅延同時計測法における偶発背景事象。緑部分:Gd 入液体シンチレータ

## 2.3.2.2 宇宙線起源高速中性子事象

高速中性子は宇宙線ミュオンが装置やその周囲にあるコンクリートなどの物質の原子核と衝突して生成される。生成された高速中性子は検出器内に入射し液体シンチレータ中の陽子と衝突を繰り返して熱化する。衝突された陽子がエネルギーを落とすことで液体シンチレータが発光し、先発信号をつくりだす。また、熱化された中性子はガドリニウムに捕獲されることで  $\gamma$  線を放出し、後発信号をつくりだす。中性子が Gd に捕獲されるまでの時間は反電子ニュートリノ検出における遅延同時計測法の時間差  $\tau$  と同じであるためこのイベントが背景事象となってくる。高速中性子背景事象の発生原理の模式図を図 2.7 に示す。

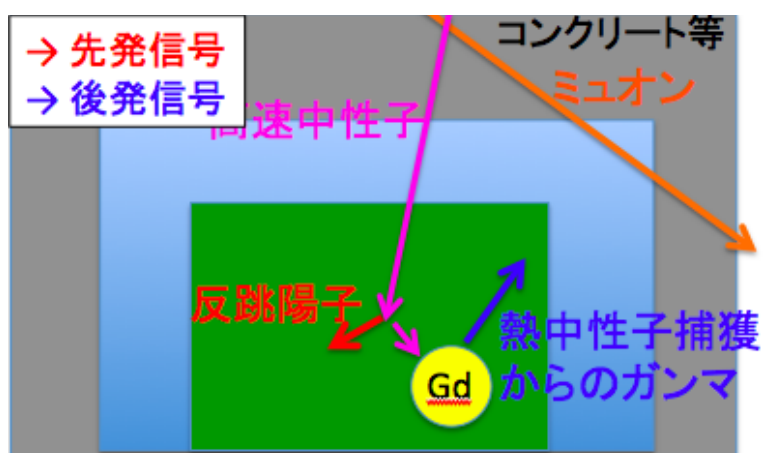


図 2.7: 遅延同時計測法における高速中性子背景事象。緑部分:Gd 入液体シンチレータ

## 第3章 東北大学での新型原子炉モニター 開発

### 3.1 東北大学における新型原子炉モニター

#### 3.1.1 検出器概要

東北大学では図 (3.1)、(3.2) のような構造をした原子炉モニターを開発している。容器には二層の直方体アクリルを使用し、溶液は Gd 入の液体シンチレータ 400L を内層に、シリコンオイルシンチレータ 600L を外層に搭載した計 1 トンのものである。

#### 3.1.2 内層の液体シンチレータ

内層部分の液体シンチレータは Daya Bay 実験で使用されている液体シンチレータをベースに開発を行なった。Daya Bay 実験ではリニアアルキルベンゼン (以下 LAB) に 2.5-diphenyloxazole (以下 PPO) を 3g/L、p-bis-(*o*-methylstyryl)-benzene (bis-MSB) を 15mg/L 加えた液体シンチレータを使用している。

本検出器では波形弁別能力を向上させ、高速中性子事象を減らすため、ナフタレンを加えた。ナフタレンは市販の波形弁別能力をもつ液体シンチレータ (NE213) でも使用されており、波形弁別能力が向上が期待される。最終的には Daya Bay ベースの液体シンチレータの PPO の量を 7g/L、bis-MSB を 30mg/L に増やし、さらにナフタレンを 50g/L 加えたものとなっている。

#### 3.1.3 外層の液体シンチレータ

外層は Veto 層として利用し、液体シンチレータにはシリコンオイル (信越シリコン、KF50-100cs) ベースのものを使用している。Veto 層の液体シンチレータの発光波形が、内層の液体シンチレータの発光波形と差のあるものであれば外層をかすめる宇宙線事象を波形弁別によって取り除くことが可能となる。また、内層に使用している LAB は第三石油類に分類され消防法により 400L 以上使うことが出来ない。このため外層には使用量の制限のない物が必要であった。シリコンオイルは引火点が 300 度以上あり使用量に制限がなく、不揮発性であるため安全面でも問題がなかった。またシリコンオイルは安定な物質である。[10]

実装した外層の液体シンチレータはシリコンオイルに PPO を 3g/L、bis-MSB を 20mg/L、そして dibutylhydroxytoluene (以下 BHT) を加えたものとなっている。[1] このシリコンオイルベースで開発した液体シンチレータを導入している原子炉モニターは東北大学独自のものとなっている。



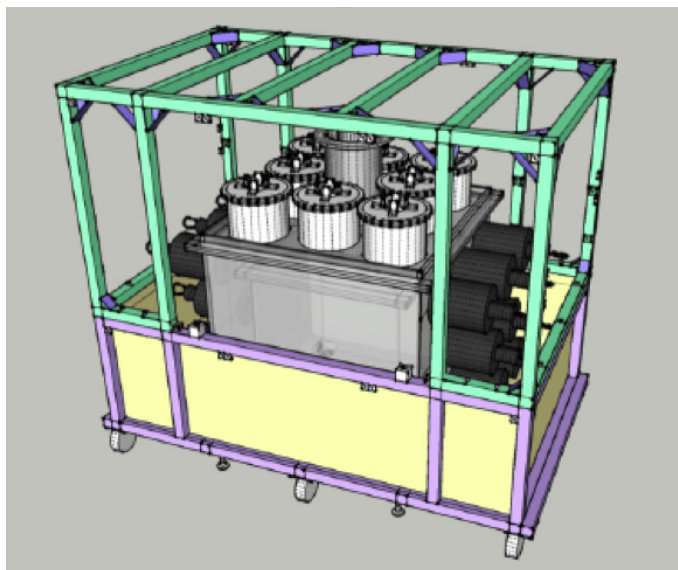


図 3.1: 東北大学での新型検出器

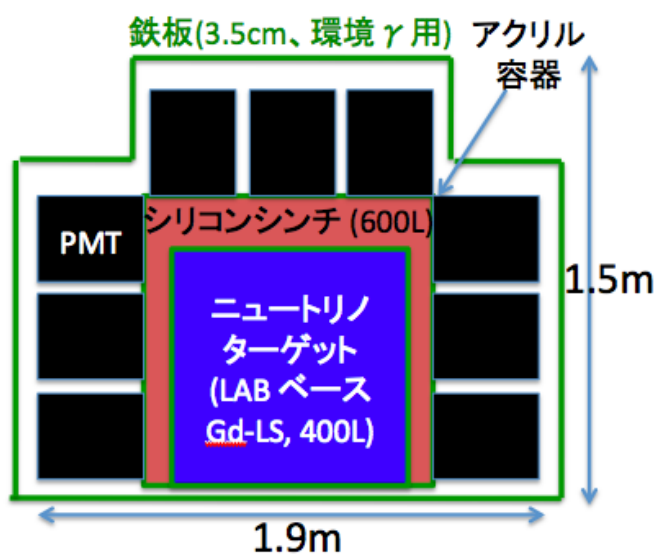


図 3.2: 検出器断面図

### 3.1.4 データ取得機器

液体シンチレータの発光を電気エネルギーに変換し、波形信号として読み取るため本検出器では 8 インチ PMT(浜松ホトニクス R5912) と 10 インチ PMT(浜松ホトニクス R7081) を使い、8 本ずつの PMT をそれぞれ図 (3.1) のように 3 面に設置している。そして、PMT からの波形信号をデータとして取得するために CAEN の Flash Analog to Digital Converter(以下 FADC) の v1730 を使用する。FADC については節 (4.9) で記述する。

### 3.1.5 検出器の期待される性能

背景事象への対策をせず SONGS 実験と同じ条件で測定した場合、1章の図(1.2)程度の背景事象が期待される。有意なニュートリノ検出のためには背景事象を4桁程度抑える必要があり、これらの背景事象の除去方法について記述していく。

背景事象除去の目標は、SONGS 実験より高いニュートリノレートを確保すること、そして1~2日程度の測定でニュートリノの excess が見られることである。

#### 3.1.5.1 偶発同時計測事象への対策

環境 $\gamma$ 線や宇宙線 $\mu$ による偶発同時計測事象を取り除く方法として、本検出器では2つの解析方法により除去している。

##### 信号間事象距離の利用

遅延同時計測法を使ったニュートリノによる事象の場合、先発信号と後発信号の事象発生位置の距離は近いが、偶発同時計測事象の場合は環境 $\gamma$ 線での先発信号と後発信号の事象発生位置には相関がなく、距離は広がることが期待される(図(3.3))。事象発生位置からPMTへの立体角の比を見ることで事象の位置を再構成することができる。立体角の比が光量の比と同じであると仮定し、光量の比を利用し事象の再構成を行なった。MCによって先発信号と後発信号の位置を再構成し、その距離をシミュレートした結果が図(3.4)で、シミュレーションによってニュートリノ事象と偶発同時計測事象で差があることが分かる。この時、ニュートリノ信号効率90%で偶発同時計測事象を90%軽減することが期待できる。

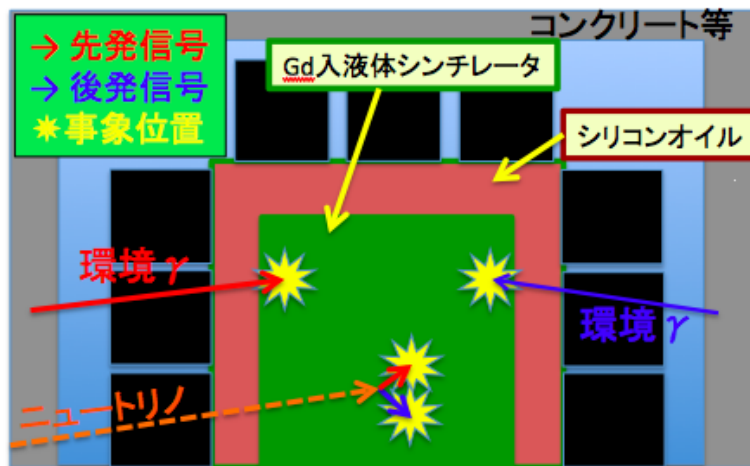


図 3.3: 環境 $\gamma$ 線による偶発同時計測事象の様子。赤:先発信号、青:後発信号、黄:事象発生位置

##### 内層外層間の波形弁別による方法

内層と外層に異なる発光波形をもつ液体シンチレータを採用することによってその波形の違いを利用し宇宙線 $\mu$ を除去する。宇宙線での内層と外層の発光波形は図(3.5)のようになり、差があることが分かる。データは100mlのサンプルをバイアルにいれ、2inchのPMTで読み取り、FADCで取得したものである。発光波形の差を利用する波形弁別法については節4.3で詳しく記述するが、ここで簡単に説明する。波形の後半部分

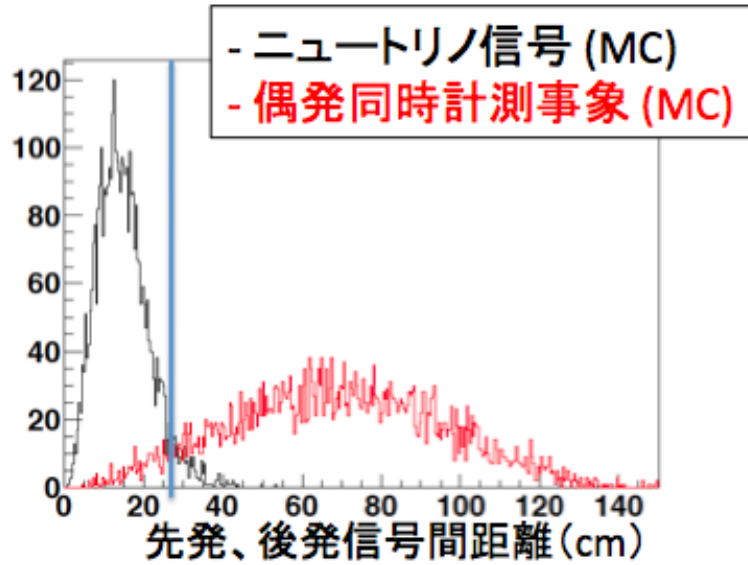


図 3.4: 先発信号と後発信号の再構成事象位置の距離差。黒:ニュートリノ信号、赤:偶発同時計測事象 [1]

(50ns~350ns、以下 Tail) の面積を、波形全体 (以下 Total) の面積で割りその比を見ることによって波形の形による分離をすることができる。横軸にその面積比 (Tail 面積/Total 面積) をとったものが図 (3.6) であり、このパラメータを使うことで宇宙線をほぼ 100% 取り除くことが期待されている。

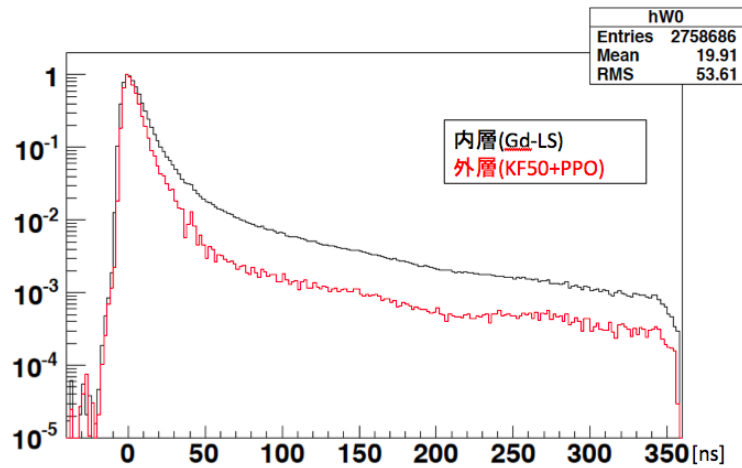


図 3.5: 内層と外層の宇宙線での平均波形。黒:内層液シン、赤:シリコンオイル液シン

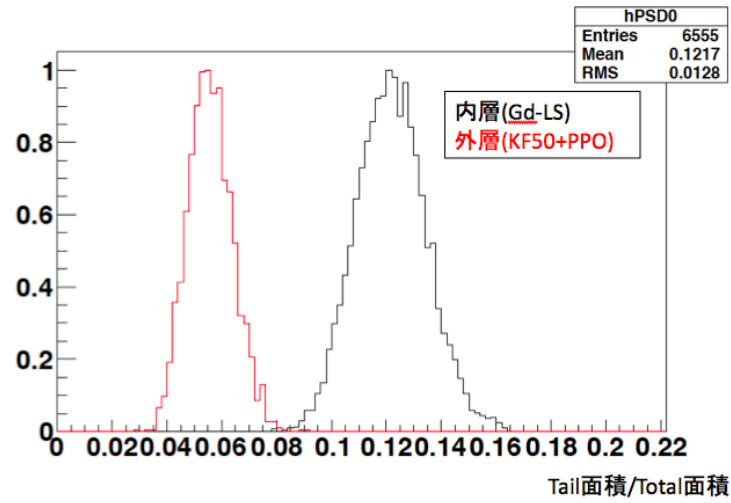


図 3.6: 平均波形における Tail と Total の面積比。黒:内層液シン、赤:シリコンオイル液シン

宇宙線は偶発同時計測事象の 64%相当であり、この 2 つを組み合わせることにより偶発同時計測事象の 96%を取り除く性能をもつことが期待できる。

## 3.1.5.2 高速中性子事象への対策

以下のデータは、100ml のバイアルに 2014 年の研究 [1] で開発されたサンプルを使用し、 $^{252}\text{Cf}$  線源を使い測定したものである。詳しい測定方法については節 (4.12) に記述する。

ニュートリノによる信号と高速中性子による信号では、先発信号での放射線の種類が違っている。例えば図 (3.7) は  $\gamma$  線と中性子による発光波形で、二つの異なる放射線で波形の形が変わることが確認できる。放射線の種類による信号の変化は節 4.2 で詳しく述べる。波形弁別法によって発光波形の差を使い高速中性子事象を取り除くことが可能である。放射線の種類による発光波形の差は液体シンチレータによって違うため、この差が大きい液体シンチレータを開発することによってより効率的に高速中性子事象を取り除くことができる。図 (3.8) は  $^{252}\text{Cf}$  線源を使用したバイアル測定において、2MeV 付近での Tail 部分と Total の面積比を表したものである。バイアルサンプルの測定では、高速中性子事象を 1/100 に軽減させた時に、ニュートリノ信号効率率は 95% 以上となっている。

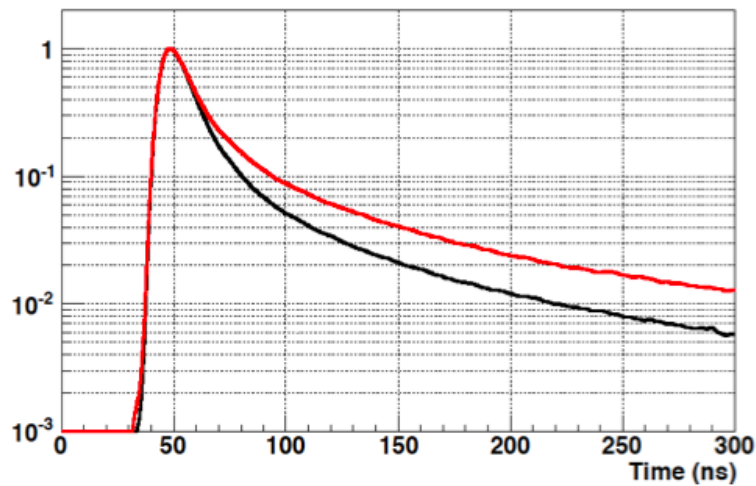


図 3.7:  $\gamma$  線 (黒) と中性子 (赤) による平均波形

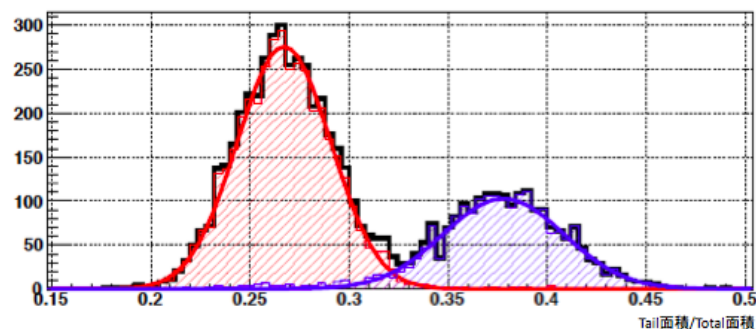


図 3.8: 平均波形における面積比。 $\gamma$  (赤) 中性子 (青)

以上の解析方法を取ることによって、背景事象は図 (3.9) のようになり、 $10^{-4}$  程落とすことが可能となった。

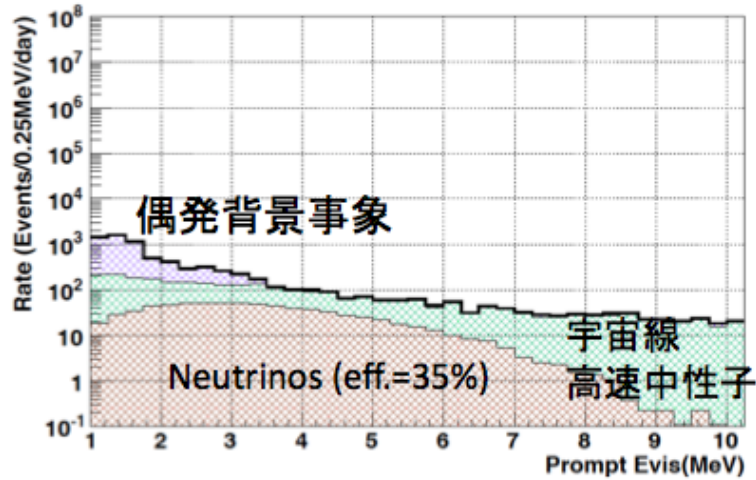


図 3.9: 事象選別後の背景事象

### 3.1.5.3 ニュートリノレートの推定

1日あたりのニュートリノイベントの数は次の式で表すことができる。

$$\nu \text{ rate[event/day]} = \text{Num of } \nu \text{ reaction[event/day]} \times \varepsilon_{dc} \times \varepsilon_{recon} \times \varepsilon_{veto} \times \varepsilon_{PSD} \quad (3.1)$$

ここで、 $\varepsilon_{dc}$  は遅延同時計測法のセレクション効率、 $\varepsilon_{recon}$  は事象位置再構成による除去効率、 $\varepsilon_{veto}$  は Veto による宇宙線除去効率、 $\varepsilon_{PSD}$  は波形弁別による中性子除去効率を表す。 $\varepsilon_{dc}$  には 0.43、 $\varepsilon_{recon}$  に 0.9、 $\varepsilon_{veto}$  に 1.0、 $\varepsilon_{PSD}$  に 0.9 を代入することで、そのニュートリノレートは 35%程度となった。また、SONGS 実験と比較を (表 3.1) で示す。

本検出器は地上測定であり検出器体積は小さいが、SONG 実験と比べてニュートリノ検出効率と S/N を向上させることができ、現在のデザインでニュートリノの実測が可能であると期待される。

表 3.1: 検出器の検出効率

	SONGS	TohokuReactor
内層体積	640L	400L
検出器深さ	10m( $\mu$ flux $\sim 1/7$ )	0m
シールド	Water/Polyethylene(50cm)	VetoLS(15cm)/Lead(2.5cm)
背景事象 (fast n)	105/day	1390/day
背景事象 (偶発)	1390/day	960/day
ニュートリノ反応数	3800/day	1800/day
ニュートリノレート(効率)	459/day (12%)	624/day (35%)
S/N	1/8.4	1/3.8

### 3.1.5.4 ニュートリノ excess 観測までにかかる時間

以上の結果から、ニュートリノの excess を検出するまでの時間を MC で見積もった。[1] SONGS 実験と同じ、熱出力 3.4GWth の炉での検出において、Off Data を 30 日分もっていると仮定すると、その検出までの時間は図 (3.10) のようになる。ここから、SONGS 実験と同

じ条件においては1時間程度、背景事象が倍になっても2時間程度の測定でニュートリノの検出ができることが期待される。

東北大学ではまだ原子炉モニターによるニュートリノの検出に成功していない。その為、1～2日程度で検出が可能であることが目標となっており、そのレベルに十分達していると考えられる。

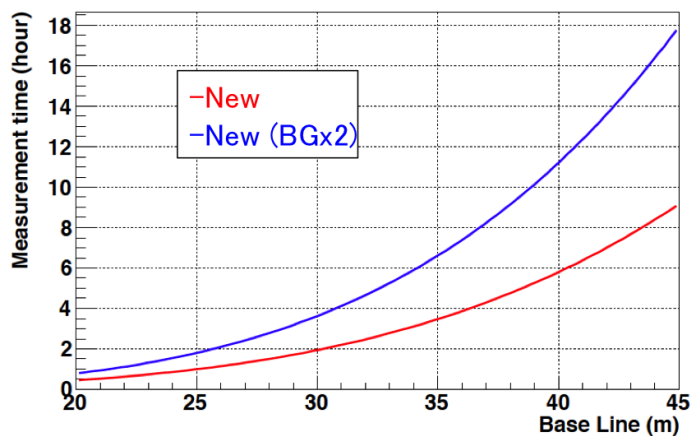


図 3.10: 炉からの距離と検出までにかかる時間。赤:SONGS と同じ条件、青:2 倍の背景事象

## 第4章 液体シンチレータ

放射線を観測する有機シンチレータには固体シンチレータと液体シンチレータの2種類がある液体シンチレータのメリットとしては、

- 一般に固体シンチレータよりも安価であること。
- 検出器の形状によらず使用できること。
- 改良が容易で、検出したいものに合わせた液体シンチレータを作ることができる。

などがあげられる。しかし、デメリットとして

- 発光機構が複雑である。
- 検出器に使用できる素材に限られる。
- 可燃性で取り扱いが難しい。

などもある。

### 4.1 発光原理

液体シンチレータは溶媒と溶質 (主に発光剤) からなり、複雑な発光機構は以下のようにして理解されている。また、エネルギー準位と電子の遷移の模式図は図 (4.1) のようである。

1. 溶媒分子が放射線のエネルギーを吸収して励起。
2. 溶媒分子間でのエネルギー移行。
3. 励起した溶媒分子から溶質 (発光剤) へのエネルギー移行。
4. 励起した溶質が遷移し発光。

液体シンチレータの発光には、蛍光を発する主成分である一次発光剤と、その光の波長を変換することで溶媒による再吸収を防ぐための二次発光剤がある。一次発光剤としてよく用いられるものはPPOであり、二次発光剤としては bis-MSB がよく用いられており、原子炉ニュートリノ測定を行なっている DoubleChooz 実験 [14] や DayaBay 実験 [15] でも使用されているものである。図 (4.3) で LAB の吸収波長と、PPO、bis-MSB の発光波長を示す。



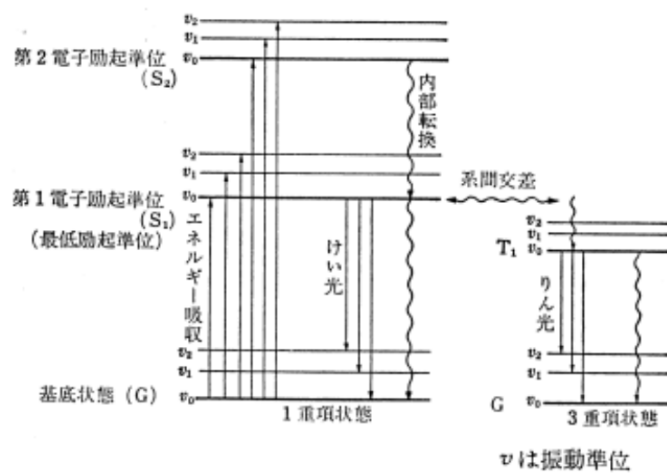


図 4.1: 分子のエネルギー準位と電子遷移 [12]

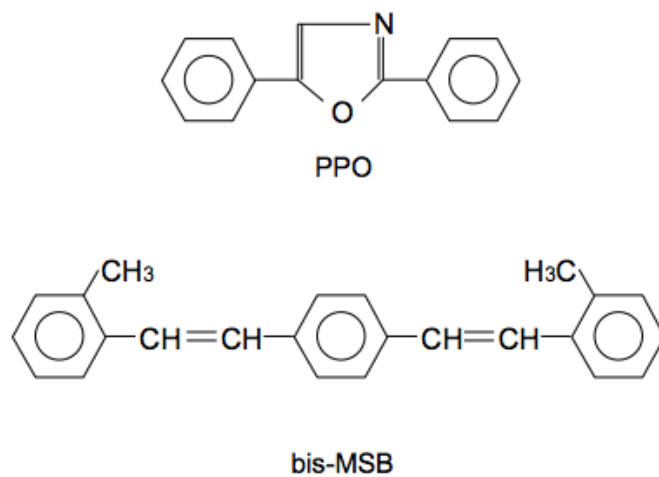


図 4.2: PPO、bis-MSB の構造式 [12]

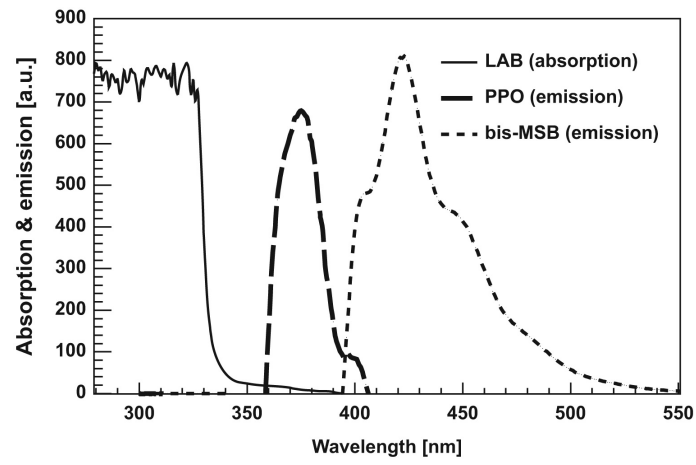


図 4.3: LAB の吸収波長と PPO、bis-MSB の発光波長 [7]

表 4.1: 発光剤の特性

	分子量	吸収スペクトル (nm)	発光スペクトル (nm)	減衰時間 (ns)
PPO	221	303	370	1.6
bis-MSB	310	347	422	2.0

## 4.2 発光の時間特性

溶質の発光は複数の過程が存在するが、観測する発光は図 4.1 の一重項間の輻射的遷移によって生じる蛍光であり、 $10^{-8} \sim 10^{-9}$ sec の励起寿命をもつ。この蛍光は数 nsec 以内に生じ、シンチレーション光の速い成分となる。他方で三重項は一重項に比べて寿命が長く、三重項間の過程による発光がシンチレーション光の遅い成分となる。この速い成分と遅い成分の比率は放射線の電離能に依存しているため、放射線の種類の違いによって発光波形が変わってくる(図 4.4)。

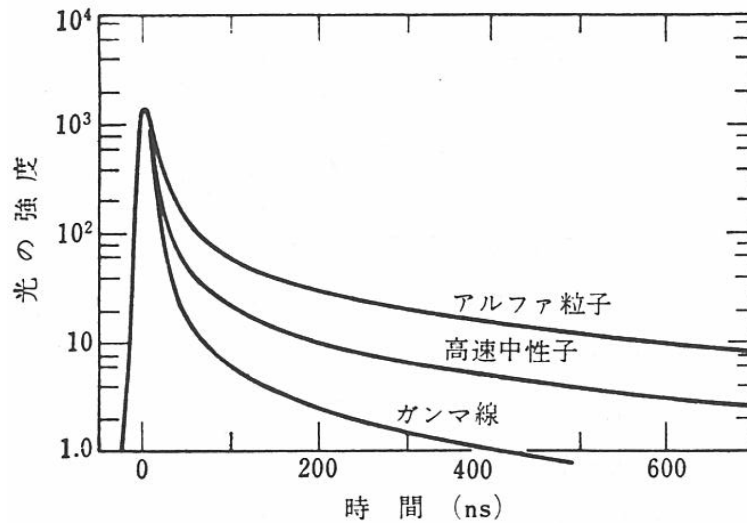


図 4.4: 異種放射線で励起されたスチルベン中のシンチレーション波形の時間特性 (時間 0 で同じ強度に規格化) [16]

## 4.3 波形弁別法と Double Gate 法

前節で述べたように、放射線 (粒子) の種類によって発光波形が変わってくる。よってその波形から粒子を識別する方法がある。それを波形弁別法 (Pulse Shape Discrimination、以下 PSD) という。この方法により、シンチレータ中での発光が  $\gamma$  線由来のものか  $\alpha$  線または中性子由来のものなのかということを知ることができる。

この PSD の解析方法として Double Gate 法というものを使用した。 $Q_{total}$  と  $Q_{tail}$  を図 (4.5) の Total、Tail 部分を積分した値と定義する。発光波形の違いによりこれら二つの比率が変わってくるため、

$$PSD = Q_{tail}/Q_{total} \quad (4.1)$$

というパラメータを使用するとこの値が波形の種類により変わってくるのが分かる。例えば中性子であれば遅い成分がの割合が多いため、 $\gamma$  線に比べると PSD の値が大きくなる。本研究ではこの値を液体シンチレータ開発における性能評価するパラメータとして使用する。

本研究ではこの高速中性子による Correlated バックグラウンドを波形弁別法によって取り除くことが可能な液体シンチレータを開発することがメインであり、次章ではその開発について記述する。

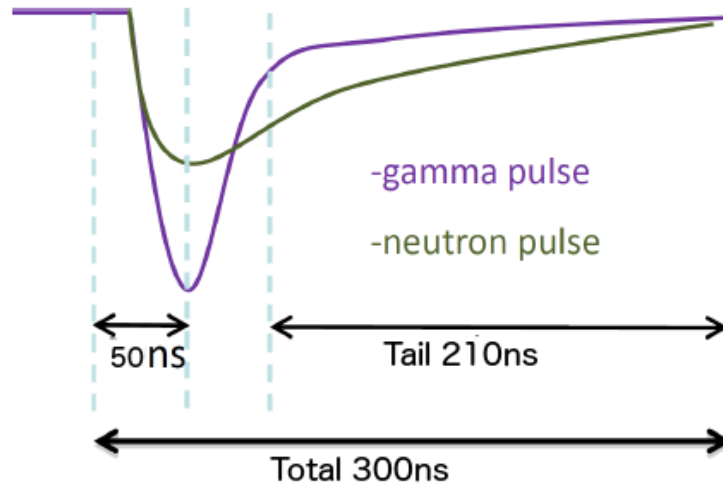


図 4.5:  $Q_{total}$  と  $Q_{tail}$  の定義 (時間を後で確認、変更)

#### 4.4 クエンチング効果

液体シンチレータの発光過程において、放射線のエネルギーが光に変わらず液体に吸収されてしまうものがある。それをクエンチング効果という。発光でのエネルギー移行の過程におけるクエンチングは図 4.6 のようである。これらについて簡単に説明をしていく。今回の研究においては、主に酸素クエンチングと濃度クエンチングの影響が考えられる。

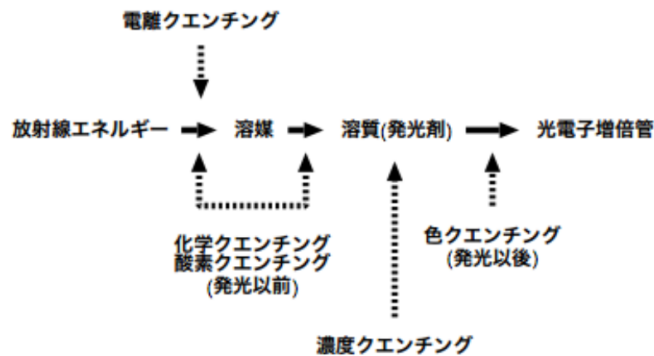


図 4.6: 発光過程におけるクエンチング [12]

##### 電離クエンチング

電離能の大きな粒子がシンチレータを通過する時、その道筋には電離、励起分子の密度の高い部分ができる。それにより蛍光効率が低下するもの。

##### 化学クエンチング

放射線のエネルギーが、溶媒分子の励起エネルギーがから溶質分子へとエネルギー移行する過程でおこるクエンチング。物質の化学的性質によってきまる。

##### 酸素クエンチング

液体シンチレータ中の溶存酸素によるクエンチングで化学クエンチングの一部。このク

エンチング効果を取り除くために液体シンチレータを窒素ガスやアルゴンガスでバブリングを行なうなどする。

#### 濃度クエンチング

液体シンチレータの発光量は溶質分子の濃度に依存している。濃度が低い場合は濃度が上がるほど発光量が増えていくが、一定量まで達すると濃度が増すごとにクエンチングがおこる。これは溶質分子の自己吸収によるものであると考えられている。

#### 色クエンチング

溶質分子の発光スペクトル波長において、その発光スペクトル波長と重なる吸収スペクトルをもつ物質が液体シンチレータに入っている場合生じるクエンチング。

## 4.5 液体シンチレータ開発における要請

今回の液体シンチレータ開発は、過去に行なわれた研究 [1] で開発された液体シンチレータをベースに行なった。過去の研究では溶質の量が最適化されていないことや、ナフタレンを加えたことによる酸化のため黄ばんでしまう事 (図 (4.7)) や Gd を溶かす方法が確立していないなどの問題点があった。よって溶質の量を見直し、酸化を抑えるためにナフタレンの量を減らすことが可能であるか、またナフタレンに変わる溶質は候補の有無などの研究をおこなった。また、透過率や安定性の測定も行なった。そして Gd を溶かす方法の研究を行なった。



図 4.7: ナフタレンによる黄ばみ

開発する液体シンチレータに必要とされる条件は

- 閾値である 2MeV 程度のエネルギーにおいて高速中性子事象を 99%取り除いた時に、ニュートリノ信号効率が 95%以上
- 十分な発光量 (10photon/KeV 前後)
- 長い減衰長
- 長期安定性がある
- 安全である

となっている。一般に、エネルギーが高いほど波形弁別による分離がよくなるため閾値付近での弁別能力をみる。これらの条件を試験するために、

- $^{252}\text{Cf}$  を使った波形弁別能力試験
- $^{137}\text{Cs}$  と NaI シンチレータを使った発光量測定
- 透過率・減衰長の測定
- 原子炉モニターに入れた時の発光量経年変化測定

を行なった。

## 4.6 ベースオイルの選定

ベースオイル候補には、Gd を溶かすことのできるプソイドクメン (PC)、リニアアルキルベンゼン (LAB)、フェニルキシリルエタン (PXE) を検討した。これらは KamLAND 実験や Daya Bay 実験、Double Chooz 実験で使用された実績がある。それぞれの構造式と性質を図 (4.8) と表 (4.2) に記す。

PC は波形弁別能力は良いがその低い引火点から第二石油類に分類され、使用量が 200L に制限されてしまうため事象位置の再構成能力が下がってしまう。また、PXE は減衰長がとても低いという問題点もある。そして東北大学での原子炉モニターでは、衝撃などの安全性から液体シンチレータの容器にアクリルを使用したいため、PC、PXE ではなく LAB を使用することとなった [1]。この LAB には、Daya Bay 実験において安定して Gd を溶かしこむことに成功している。しかし、Daya Bay で使用されている LAB+PPO(3g/L)+bis-MSB(15mg/L)+Gd(0.1w%) という構成でその弁別能力を試験したところ、閾値である 2MeV 程度のエネルギーにおいて高速中性子事象を 99%取り除いた時に、ニュートリノ信号効率は 56%程度と低くそのままでは使用することはできなかった。そのため溶質を加える事で波形弁別能力を向上させ、ニュートリノ信号効率の向上を期待している。

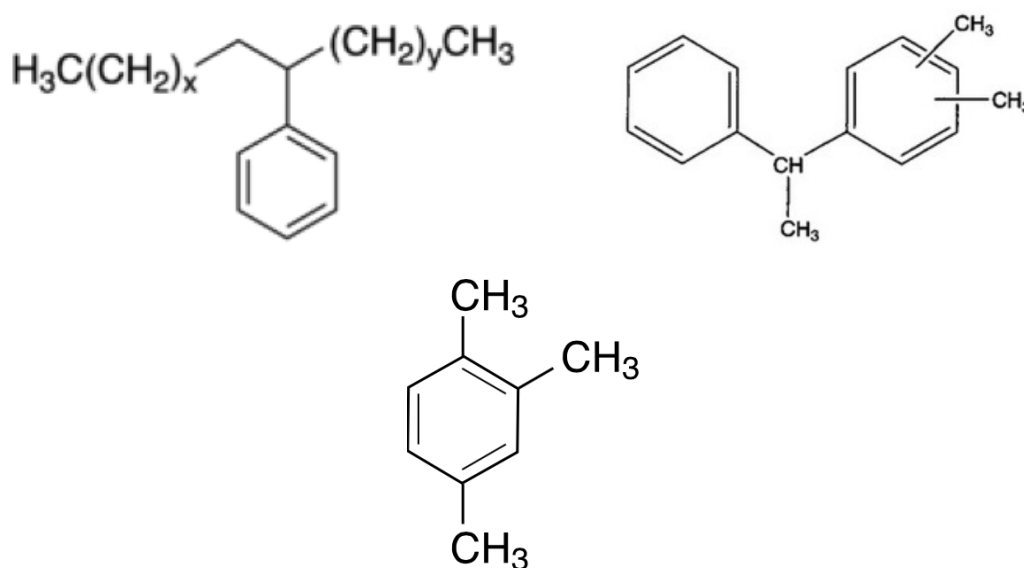


図 4.8: LAB(左上)、PXE(右上)、PC(中央下) の構造式

表 4.2: LAB,PXE,PC の特性 [1] [17] [18]

	分子式	引火点 [ ]	減衰長 ( =430nm)	PSD 能力	アクリル耐性
PC	$C_9H_{12}$	48	5.43	○	×
LAB	$C_6H_5C_nH_{2n+1}$	130	19.44	△	○
PXE	$C_{16}H_{18}$	145	0.99	○	×

## 4.7 液体シンチレータのサンプル

LAB に一次発光剤である 2,5-diphenyloxazole(以下 PPO) を 3g/L、二次発光剤 (波長変換剤) として p-bis-(o-methylstyryl)-benzene(bis-MSB) を 15mg/L を溶かした Daya Bay タイプの液体シンチレータを基本として PPO の濃度依存性を試験した。そして市販の波形弁別能力をもつ NE213 に含まれるナフタレンや、同じく波形弁別能力のある Ulutima Gold AB(Perkin Elmer 社) で使用されている di-isopropyl-naphthalene(DIN) を加え波形弁別能力の向上を試みた。ただし、Ulutima Gold AB で使われている DIN は液体状のものであるが、国内での入手が困難であったため固体である 2,6-di-isopropyl-naphthalene を使用した。bis-MSB の濃度は 30mg/L で固定した [1]。

波形弁別能力、発光量測定においては Gd を溶かししていないサンプルを使用した。これは、Gd を 0.1w% で溶かしたサンプルと、溶かしていないサンプルで波形弁別能力に大きな変化がなかったためである (図 (4.13))。発光量は 15% 程減少したが、このサンプルは十分な純化を行っていないため透過率が悪かったためであると考えられる (図 (4.14))。ここでは 15% の減衰を考慮して目標値である 10photo/keV 前後を見据えて測定を行なった。減衰長・透過率測定では Gd による減衰長の低下が効いてくると考えられるため、Gd を溶かしたもので測定を行なった。減衰長・透過率測定ではろ過による純化を行なった。Gd を LAB に溶かす方法もこの節で扱う。

各溶質の構造式は以下の図 4.9 ~ 図 4.12 に示す。また表 (4.3)、(4.4) に測定したサンプルをリストアップした。表 (4.4) の何も入っていないサンプルは、何も溶かしていない純粋な LAB である。

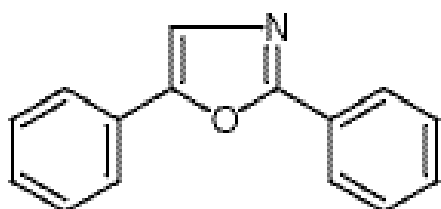


図 4.9: PPO の構造式

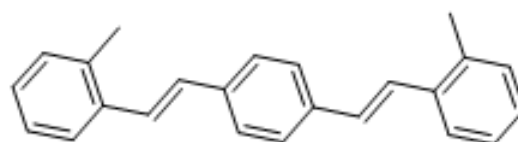


図 4.10: bisMSB の構造式

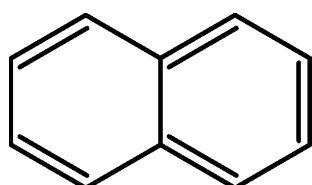


図 4.11: ナフタレンの構造式

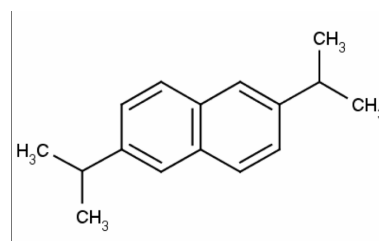


図 4.12: DIN の構造式

これらのサンプルはバイアルに 100mL の LAB を用意し、直接加えて攪拌機で混ぜることで容易に溶かすことができる。その後の測定では、酸素クエンチング効果を減らすために窒素によるバブリングを 200ml/min を 15 分した後に行なった。



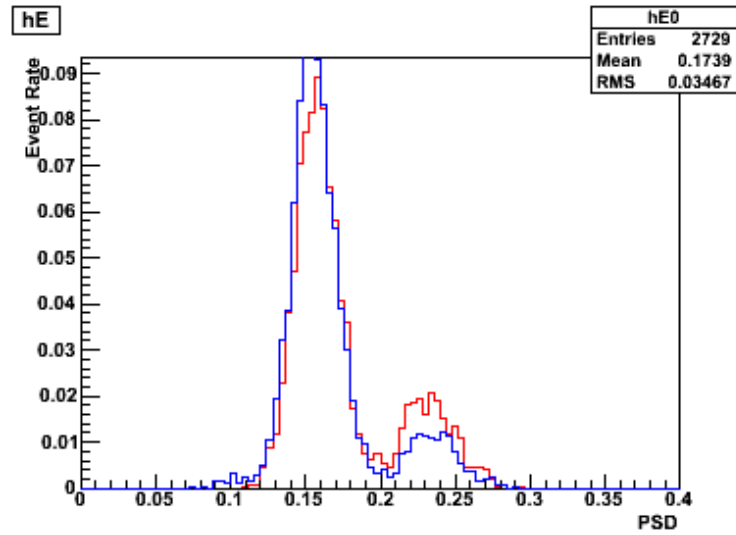


図 4.13: Gd による波形弁別能力の変化 (PPO 3g/L、bis-MSB 30mg/L)。赤:Gd 無し、青:Gd 有り

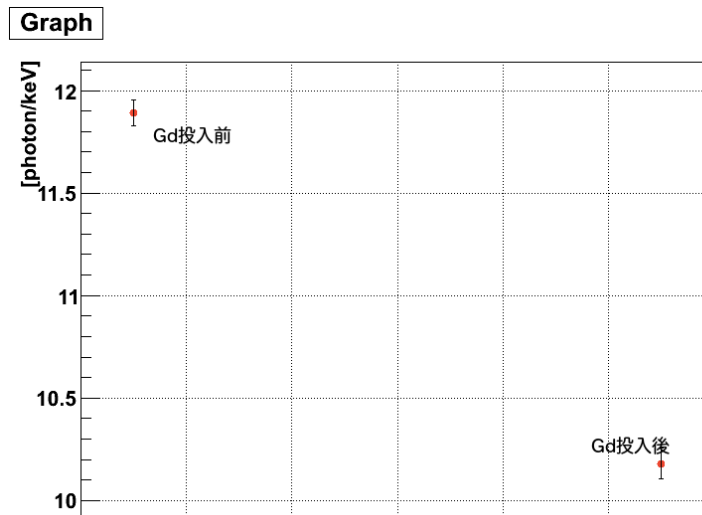


図 4.14: Gd による発光量の変化 (PPO 3g/L、bis-MSB 30mg/L)。左:Gd 投入前、右:Gd 投入後

PPO[g/L]	ナフタレン [g/L]	DIN[g/L]
3		
3	50	
3	100	
3	150	
3		50
3		100
3		150
5		
5	50	
5	100	
5	150	
5		50
5		100
5		150
7		
7	50	
7	100	
7	150	
7		50
7		100
7		150

表 4.3: PSD、発光量測定サンプル

PPO[g/L]	ナフタレン [g/L] or DIN[g/L]	Gd[w%]
7	50(ナフタレン)	
7	50(DIN)	
3		0.1
7	50(ナフタレン)	0.1

表 4.4: 減衰長・透過率測定サンプル

## 4.8 Gd の混合方法

有機液体シンチレータには Gd などの金属をそのまま溶かすことは困難である。一方、LAB を使用している Double Chooz 実験や Daya Bay 実験では Gd 錯体を作成することで安定して溶かすことに成功している。本実験においても Gd 錯体を作成し、新しく作った液体シンチレータに安定して溶けるか、そして期待した量の Gd が溶けているかの試験を行なった。

### 4.8.1 Gd 錯体の作成

Gd 錯体を作るとき、その配位子のキレート試薬として 3,5,5-trimethyl hexanoic acid(TMHA) を使用した。TMHA を使い、以下の反応によって Gd 錯体を生成する。TMHA の構造式は図 (4.15) のようである。

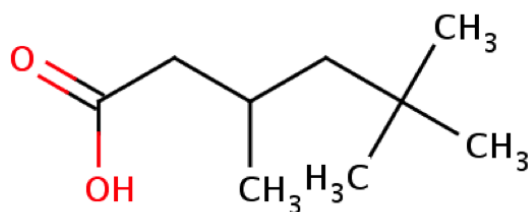
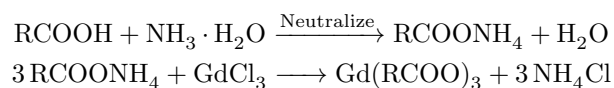


図 4.15: TMHA 構造式

作成の手順は次のようにした。

1. TMHA(1mol) とアンモニア水 (1mol) で中和反応を起こさせる (図 (4.16))
2. GdCl<sub>3</sub>(固体)(1/3mol) を水に溶かし (図 (4.17))、1. の中和水溶液と混ぜる (図 (4.18))
3. 白い固体 (Gd 錯体)(1mol) ができるので (図 (4.19))、ろ過をおこない固体を抽出する。 (図 (4.20),(4.21))
4. 固体を 2 週間程度自然乾燥させる

ろ過にはアスピレーターを使用し吸引ろ過を行なった。



図 4.16: TMHA とアンモニア水の中和

図 4.17: GdCl<sub>3</sub> 水溶液

図 4.18: Gd 錯体生成反応

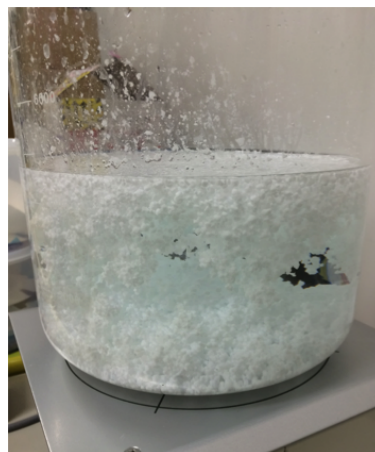


図 4.19: Gd 錯体生成



図 4.20: アスピレータを使ったろ過の様子



図 4.21: Gd 錯体のろ過抽出

### 4.8.2 Gd 錯体の LAB への混合

作成した Gd 錯体を LAB に入れることで Gd を LAB に混ぜることができる。溶かすのには 1 日程攪拌を続けなければ行けないが、図 (4.26) のように混ぜたあとの LAB は白濁しているため液体シンチレータとして使用できない。Daya Bay 実験では Gd 錯体を純水で洗浄することで Gd 錯体に付いている汚れや  $\text{NH}_3\text{Cl}$  を取り除いている。今回は溶液をろ過を何度もすることにより純化をおこない、図 (4.27) のように透明な Gd 入の LAB を作った。



図 4.22: Gd 錯体を溶かした LAB



図 4.23: ろ過後

### 4.8.3 $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$ による作成効率の確認

#### 4.8.3.1 実験方法とセットアップ

ろ過後に  $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$  線源を使っでの Gd 作成効率の検証実験を行なった。 $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$  は  $^{241}\text{Am}$  から出る  $\alpha$  線を  $^9\text{Be}$  が取り込み、その時  $^{12}\text{C}^*$  と中性子がでる。この  $^{12}\text{C}^*$  が 4.4MeV の  $\gamma$  を放出し、先発信号を作る。その後中性子が Gd に捕獲されて合計 8MeV の  $\gamma$  を放出し後発信号をつくる。そのため  $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$  線源は擬似的なニュートリノ事象となり、先発信号と後発信号の時間差をみることで Gd 濃度の推定を行なうことができる。

セットアップは図 (5.14) で示し、様子は図 (4.25) となっている

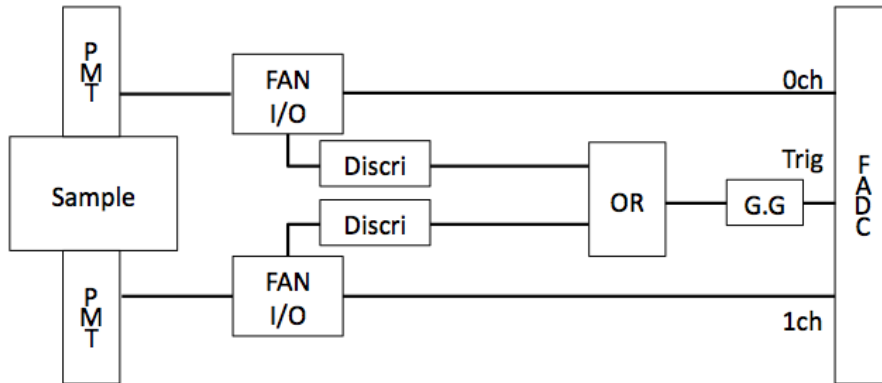


図 4.24: セットアップ:Gd 作成効率

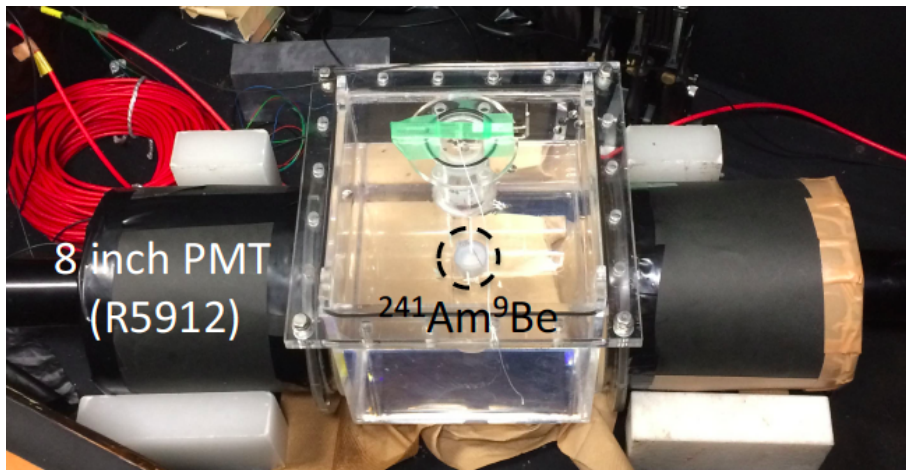


図 4.25: Gd 作成効率測定の様子

## 4.8.3.2 結果

結果は以下のようになった。詳しい解析については第5章で記述する。結果より LAB に Gd が溶解しており、その作製効率は 87% 程度あることがわかった。

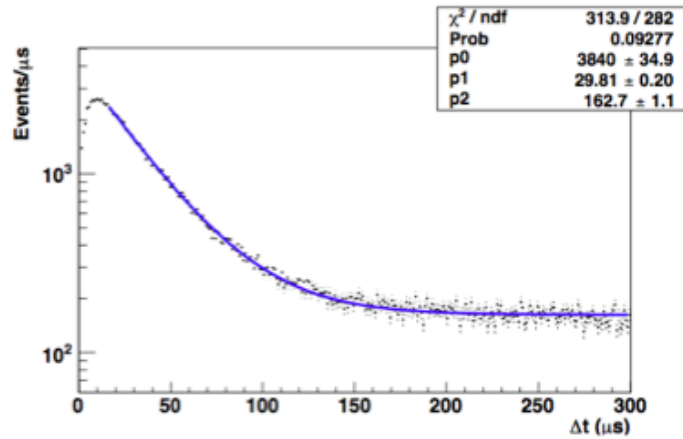


図 4.26: 先発信号と後発信号の時間差。黒:データ点、青:フィット結果

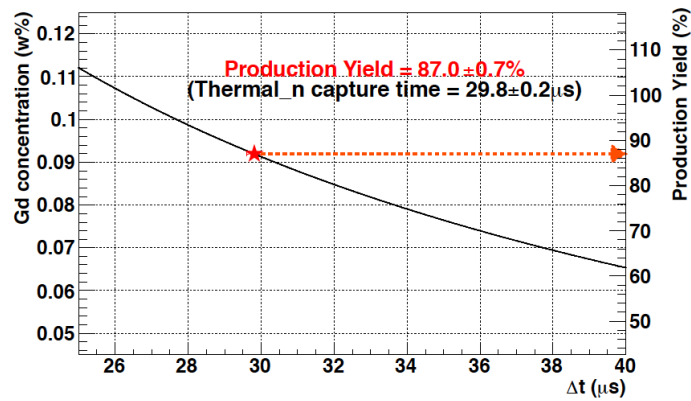


図 4.27: 時間差の Gd 濃度依存性

## 4.9 FADCを使ったデータの取得

本実験ではバイアルに 100ml のサンプルをいれ、2inch の PMT を使い発光を読み取り、CAEN 社製の Flash Analog to Digital Converter(以下 FADC) を使用してデータを取得した。使用するものは v1730 で、14bit のデータをサンプリングレート 500MHz で取得することができ、2ns おきにデータを取れる。

この FADC を利用することによって、図 (4.28) のように波形を取得することができる。まず各測定でのピークの位置を読み取り、ピークが 50ns になるよう調整する。これは、波形弁別法を利用するために定義するパラメータの基点となるピーク位置を揃えるために行なった。その後、波形の 0~15bin までの FADC 値 (縦軸) の平均をとり、その値から測定データを引く事によって図 (4.29) のように波形データを変換することができる。

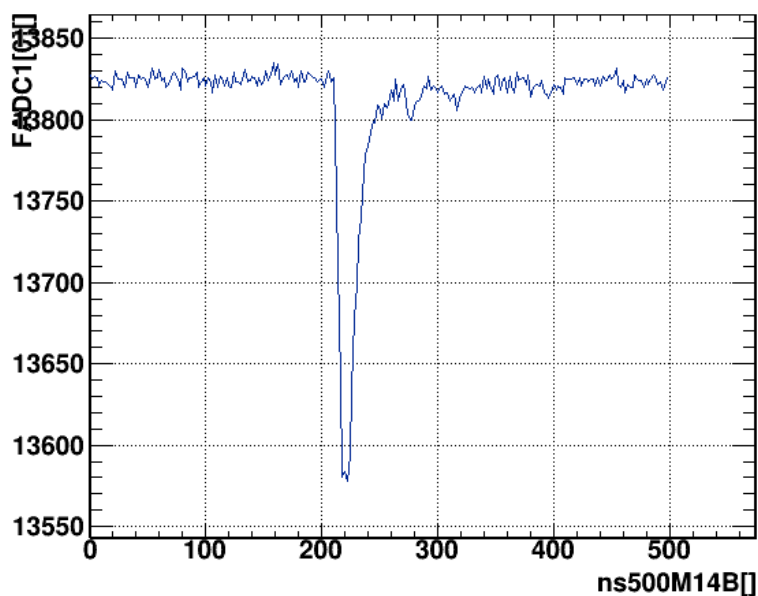


図 4.28: FADC で取得した波形データ

ここから、解析するパラメータとして

- $Q_{total}$ : 波形の 0~300ns までを積分した値
- $Q_{tail}$ : 波形の 90~300ns までを積分した値
- Pulse Hight(PH): ピークの高さ [mV]
- MaxBin(MB): 変換前のデータでのピークの ch

を使用していく。



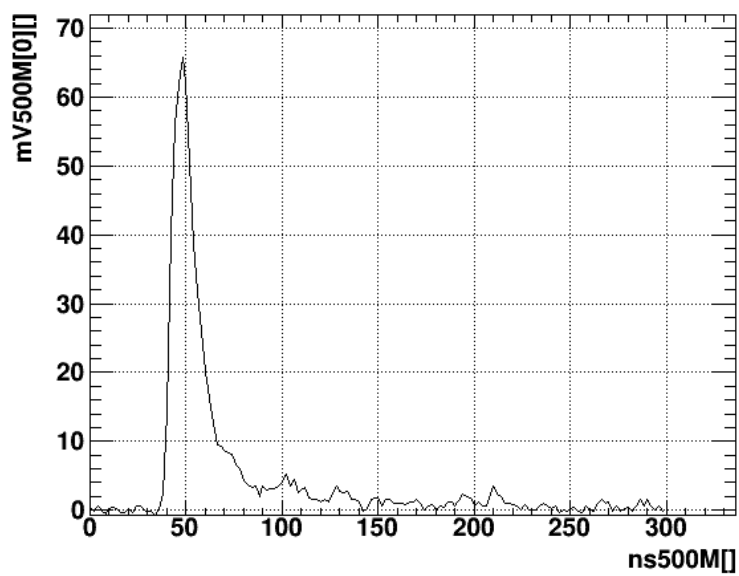


図 4.29: 変換した波形データ

## 4.10 PMTでの1光子Gain測定

波形データを積分した面積 ( $Q$ ) を photo electron に変換するため、1光子あたりの  $Q$  の値を測定した。

### 4.10.1 実験方法・セットアップ

一定間隔で矩形波を送ることのできるパルスジェネレータ (IWATU,PG-230, 図 4.31) を使用し、PMT に LED を近づけ 1photon のみが入るように光量を調節し、図 (4.30) のセットアップで測定を行った。PSD 測定や光量測定では、液体シンチレータを測定する PMT の HV を  $-1800\text{V}$  で固定しているが、 $-1800\text{V}$  では  $Q$  のヒストグラムを見た時 1p.e のピークが小さくノイズに埋もれてしまっている。したがって、 $-1800\sim -2200\text{V}$  までを  $50\text{V}$  刻みで測定し、フィッティングによりそのピーク位置を出した。

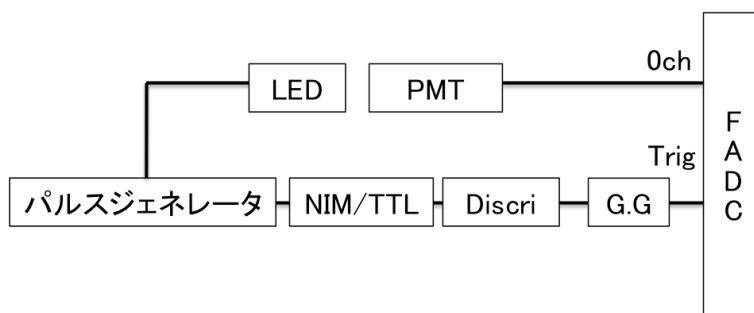


図 4.30: セットアップ:1pe 測定



図 4.31: パルスジェネレータ

### 4.10.2 データ解析

横軸に  $Q$  をとったヒストグラムを図 (4.33) に示す。この図ではピークが二つみえるが、グラフの左側の  $Q$  が低い部分にあるピークはペDESTALであり、もう一つのピークが1光子によるピークであると考えられ、各 HV において、1photon のピークをガウス関数でフィッティングし1光子あたりの  $Q$  の値を計算した。また、PMT の HV によるゲインの変化は

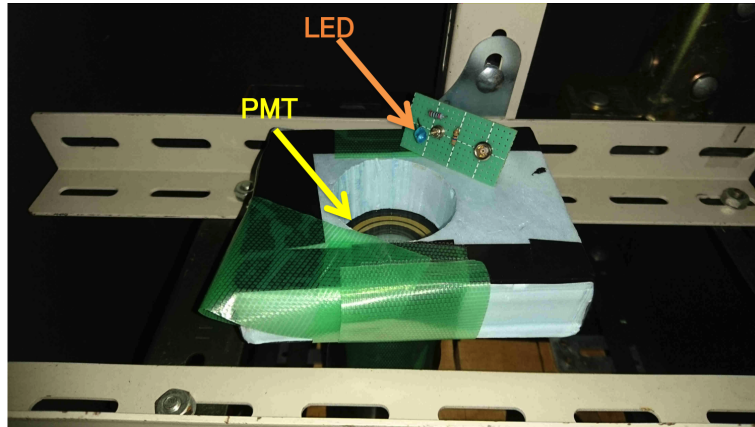


図 4.32: 1pe 測定の様子

$$Q = A \times HV^B + C \quad (A, B, C : \text{定数}) \quad (4.2)$$

によって表すことができるため、この関数 4.2 で各 HV におけるガウスフィットの Mean 値を使いフィッティングを行なった。以後の測定では PMT の印加電圧を -1800V にして行なったため、-1800V で Q の 1Ch あたりが何 1p.e になるかを計算した。-1800V では 1p.e のピークが埋もれかかっているため、フィット範囲からはずした。

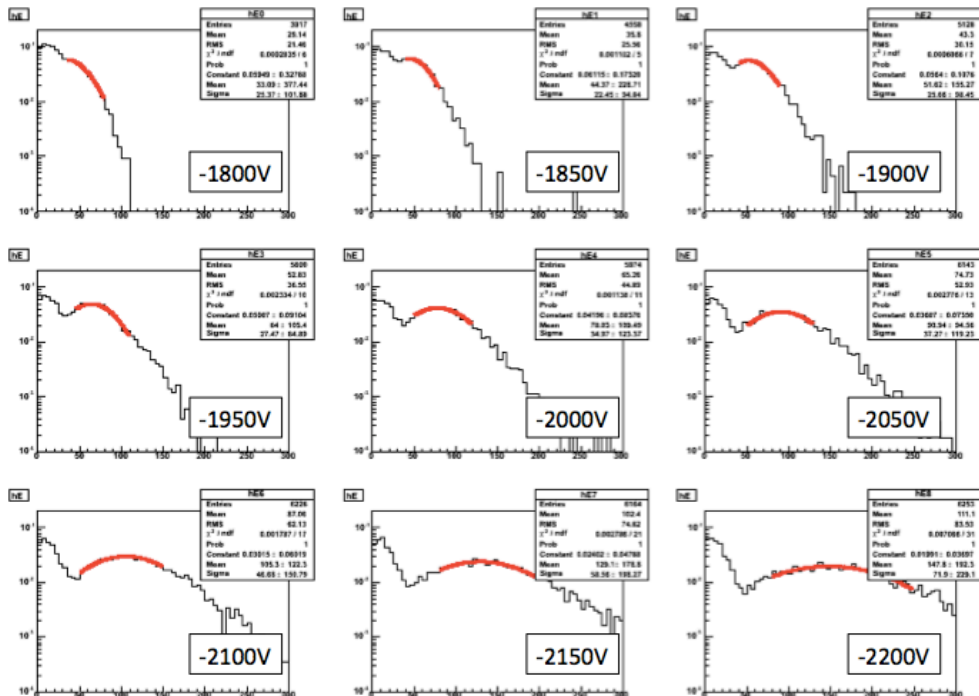


図 4.33: 1 光子 Gain 測定における、各 HV での Q 分布。赤:1 光子ピークを Gaus 関数でフィットした結果

## 4.10.3 結果

フィッティング結果は図(4.34)のようになった。この結果から、Qの約33chが1p.eに相当することが分かった。

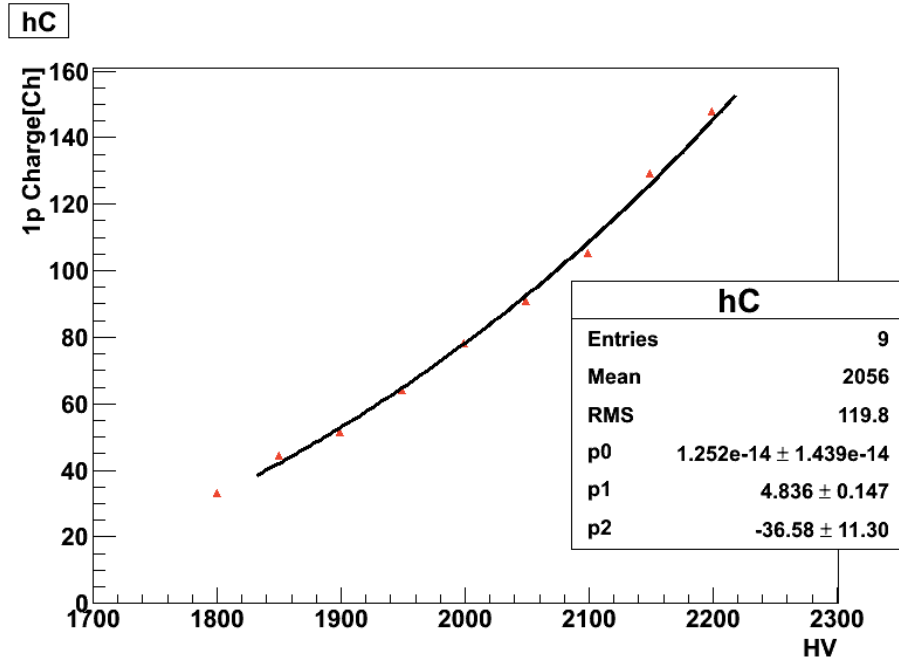


図 4.34: 1p.e 測定:フィッティング

## 4.11 発光量測定

### 4.11.1 実験方法とセットアップ

発光量の測定は  $^{137}\text{Cs}$  と NaI シンチレータを用いた後方散乱実験を行なって測定した。測定回路は図 4.35 で示し、測定の様子を図 4.36 で示す。発光量が既知の KamLAND 検出器の液体シンチレータも同様に測定し、その発光量 (8.3[photon/keV]) との相対比較により絶対光量を見積もった。

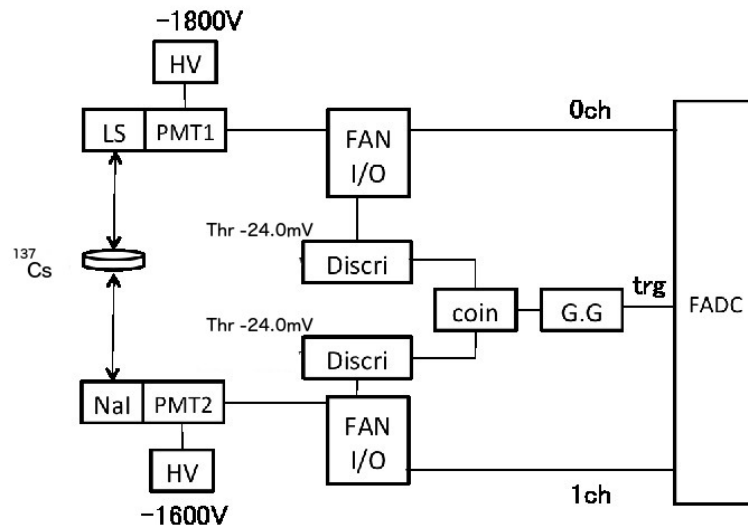


図 4.35: セットアップ:発光量測定

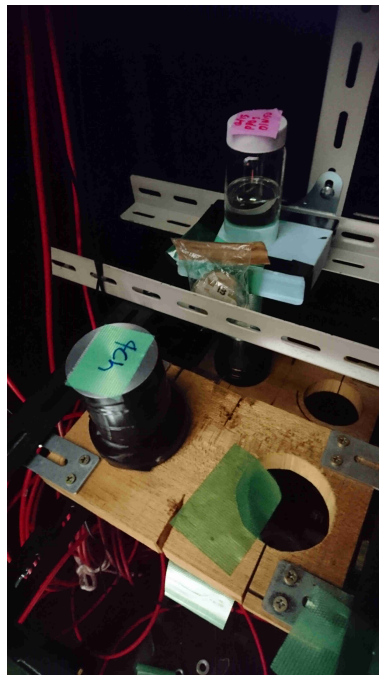


図 4.36: 光量測定の様子 (手前:NaI シンチ、奥:サンプル)

## 4.11.2 データ解析

データの解析は以下の手順で行なった。

1. NaI 後方散乱ピークのイベントを選択 (80000~100000ch)
2. 1 のカットをかけたあとのサンプル Q 分布において、後方散乱によるピークをガウス関数でフィット
3. KamLand 液シンとのフィッティングパラメータ比較

NaI シンチレータと液体シンチレータで測定したエネルギー分布を図 4.38 と図 4.37 に示す。図 4.37 の左にあるピークは、サンプルでトリガーをかけているため線源によるデータの入っていないものである。赤線の右側のピークは、Cs の全吸収ピーク (0.662MeV) である。青線のピークは後方散乱ピーク (0.184MeV 付近) である。図 4.38 の赤線はシングルトリガーで取得した分布で、青線は NaI とのコインシデンスイベントである。

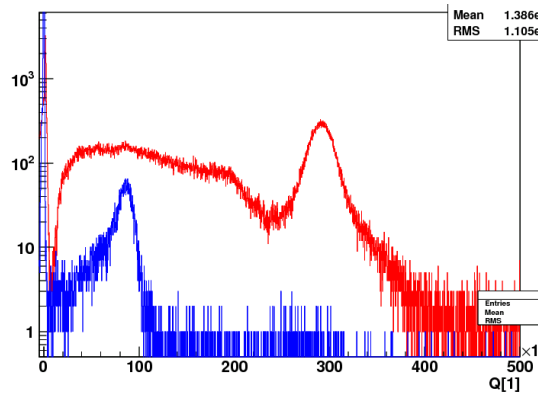


図 4.37: NaI での Q 分布 (差し替え予定)。赤:NaI シングルトリガー (全吸収)、青:サンプルとのコインシデンストリガー (後方散乱)

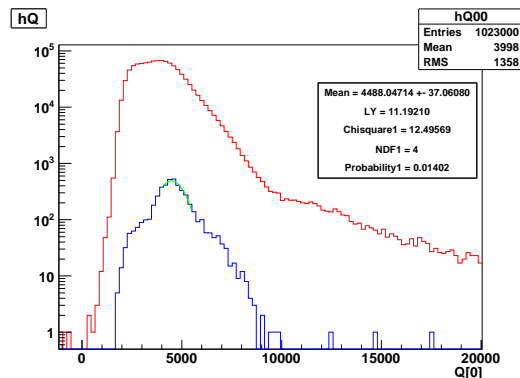


図 4.38: サンプルでの Q 分布。赤:サンプルのシングルトリガー、青:NaI とコインシデンスイベント、緑:フィット結果

## 4.11.3 結果

各サンプルでQ分布とフィッティングの様子は付録Bに記載する。以下は例として、PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L) のサンプルを示す。赤は事象選別前のサンプルのQ分布で、青はNaIシンチレータで測定した $^{137}\text{Cs}$ の後方散乱ピークとのコインシデンスイベントを選択したものである。また KamLAND 液シンとの比較から計算した発光量を図 (4.40) に示す。

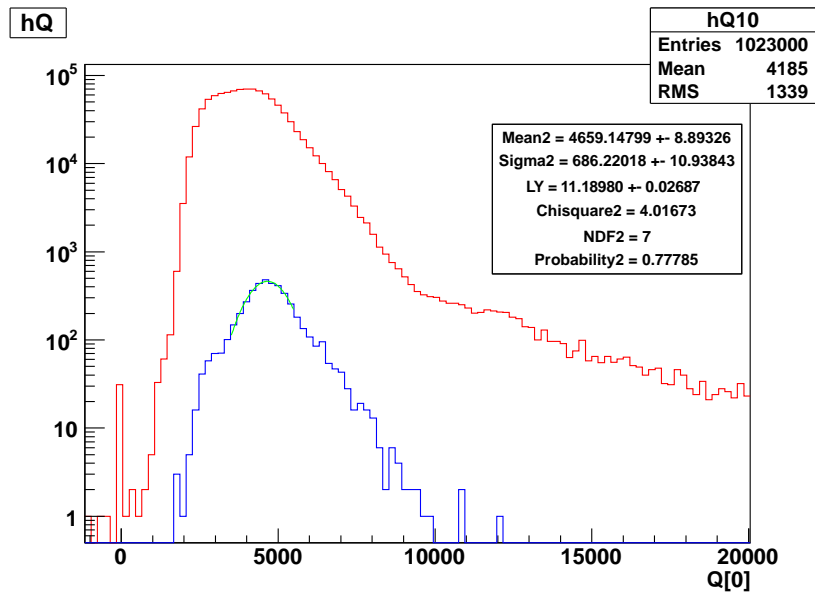


図 4.39: PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

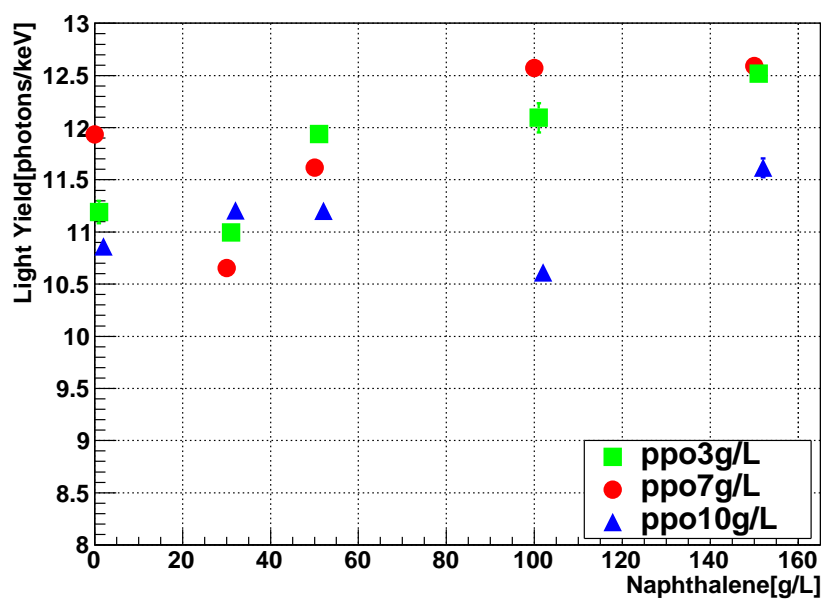


図 4.40: 発光量の PPO, ナフタレン濃度依存性

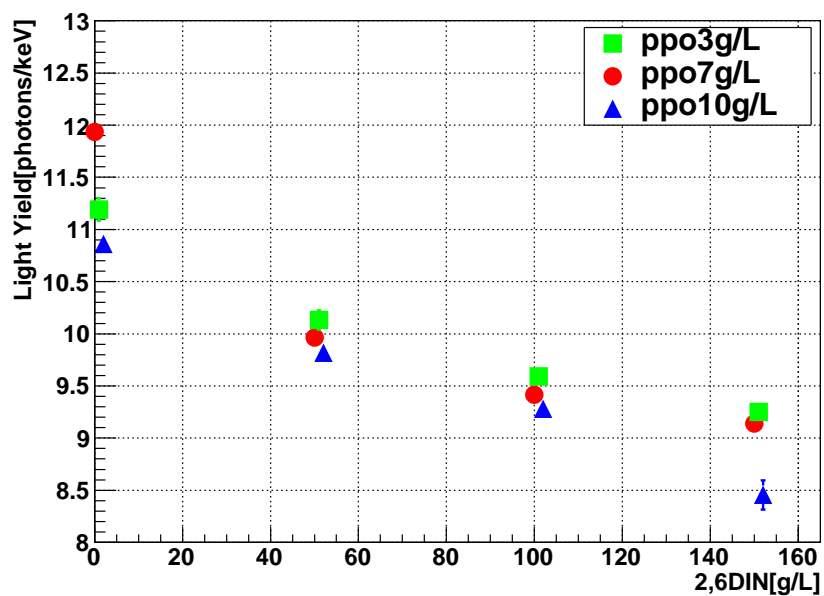


図 4.41: 発光量の PPO。DIN 濃度依存性

#### 4.11.4 考察

発光量はナフタレン濃度が増加することで大きくなる傾向があるが、ある濃度で一瞬発光量が落ちる。PPO7g/Lではナフタレンの濃度が30g/L付近で落ちているのが確認でき、10g/L



ではナフタレン 100g/L で落ちている。詳しい原理はわかっていないが、PPO 濃度が上昇するにつれ発光量の減衰する谷部分がナフタレンの高濃度側にシフトしているように見える。これはナフタレンと PPO が反応を起こす可能性などが考えられる。また、PPO10g/L で発光量が 7g/L よりも低い要因として濃度クエンチング効果が考えられる。

DIN は溶かすと液シンが若干黄色くなる(図(4.42))。このため濃度をあげることでより液シンの黄ばみが強くなり、発光量が落ちてくるものと考えられる。

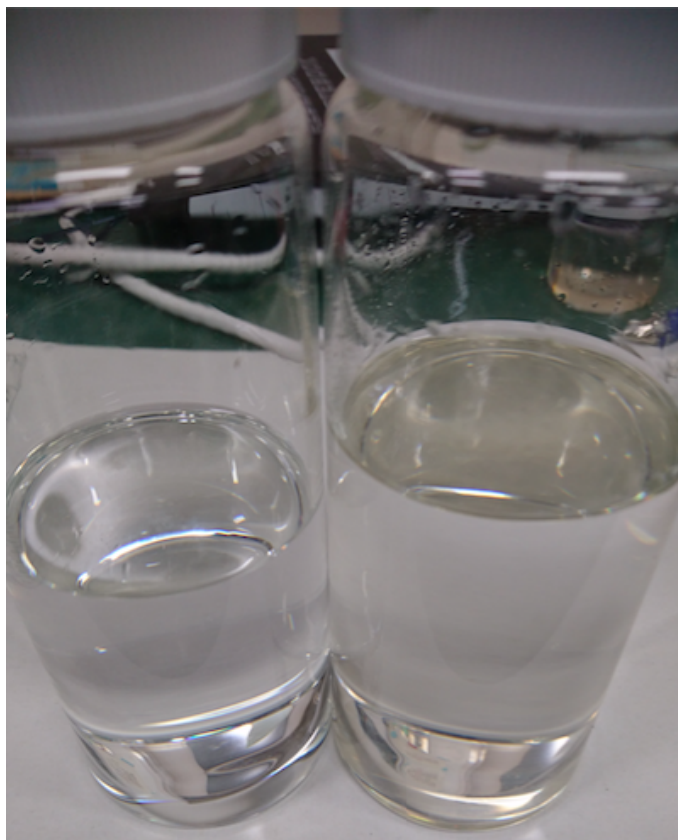


図 4.42: 左:DIN なし、右:DIN あり

## 4.12 TOF による波形弁別能力測定

### 4.12.1 実験方法とセットアップ

波形弁別能力をみる実験には線源に  $^{252}\text{Cf}$  を使用した。 $^{252}\text{Cf}$  は自発核分裂により  $\gamma$  線と中性子線の両方を放出する。 $^{252}\text{Cf}$  の崩壊図は図 4.43 に示す。測定は図 4.44 のような回路を組み、その様子は図 4.45 で示す。実験は Time Of Flight(TOF) による解析の為 2 つの液体シンチレータを使って測定した。解析の為の 1 LLS は、タイミングを見るための液体シンチレータであり今回は LAB に PPO(3g/L) を溶かしたものを使用した。

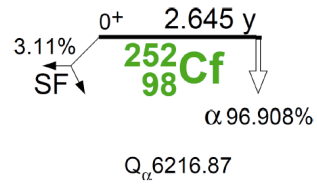


図 4.43: Cf の崩壊図

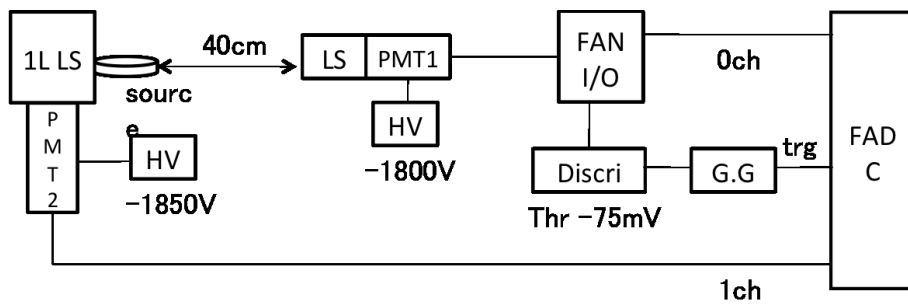


図 4.44: セットアップ:PSD 測定

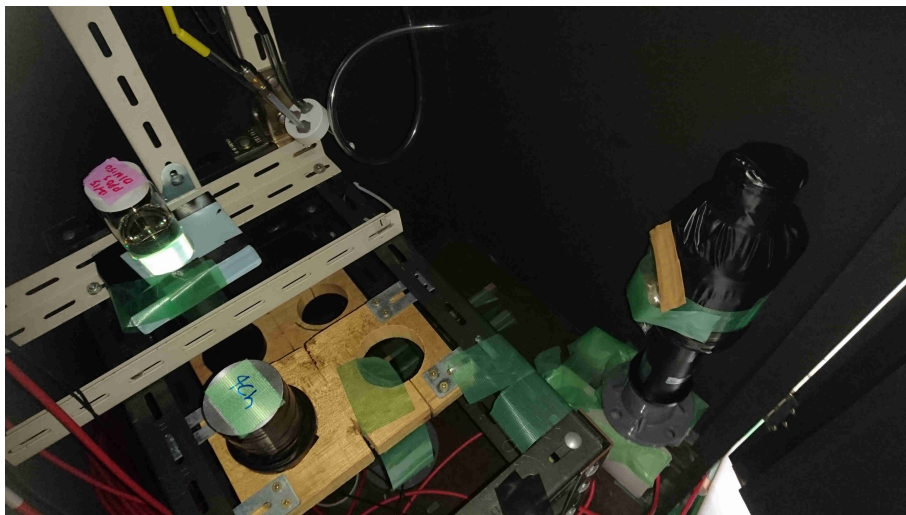


図 4.45: TOF を用いた測定の様子 (右側: 1 LLS、左奥: サンプル)

上記の回路図のようなセットアップを組むと、線源から2つの液体シンチレータまで距離の差ができる。線源を TOF 用の 1 LLS 横に付けると、 $\gamma$  線は 40cm を約 1.3[ns] で飛行するのに対し、数 MeV の中性子は約 10[ns] ほどかかる。このようにして、TOF は波形のピーク位置の差をみることで粒子の同定ができる。このピーク位置の差を  $\Delta t$  とする。このズレを表した波形を図 (4.46) で示す。

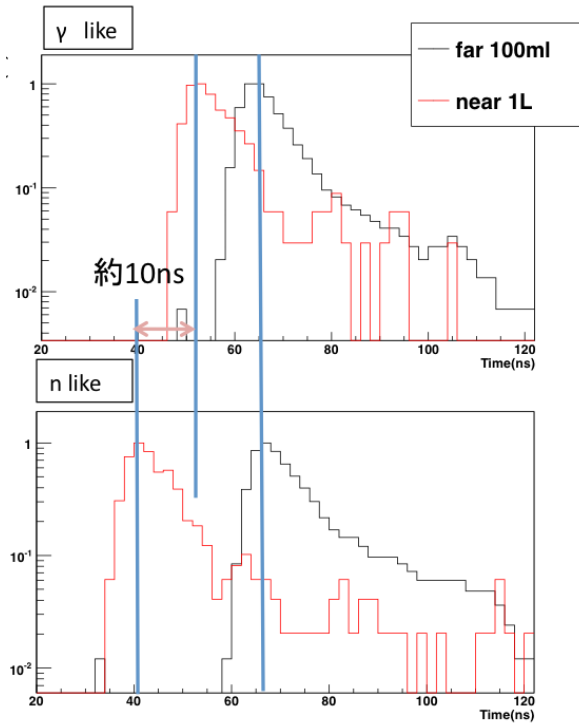


図 4.46: 波形で見た場合の  $\gamma$  イベントとイベントでのピークのズレ。上が  $\gamma$  由来信号、下が中性子信号。黒:サンプル (Trigger)、赤: 1 LLS

## 4.12.2 データ解析

解析には以下の手順でデータのセレクションを行なった。

データ取得のトリガーが測定サンプルのバイアルでかけているため、1 LLS には線源による波形データが入っていないイベントがある。そのため 1LLS の  $Q_{total}$  (以下  $Q$ )  $> 150$  [ch] を選択した。このイベントを取り除くためのセレクションが 1 回目のセレクション (図 (4.47) 右上) である。2 回目のセレクションでは検出の閾値 2 MeV 相当の部分を選択した。これは 300~500 p.e 部分に相当するためその部分を選択した (図 (4.47) 左上)。ここで PSD のパラメータは 4.1 の式による。3 回目のセレクションでは、TOF による事象選別を行なった (図 (4.47) 左下)。縦軸は

$$\Delta t = \text{MaxBin}(\text{サンプル}) - \text{MaxBin}(1\text{LLS}) \quad (4.3)$$

で定義している。そのため  $\Delta t$  の値が大きい物が中性子で、小さいものがガンマ線によるものだとなる。また節 4.3 で述べたように中性子のほうがガンマ線にくらべて PSD の値は大きくなるため、右上のクラスタが中性子、左下のクラスタがガンマ線の信号であることが確認できる。ここでは  $\Delta t = 42$  を境にガンマ事象と中性子事象が分かれているため、その境界で分離させた。

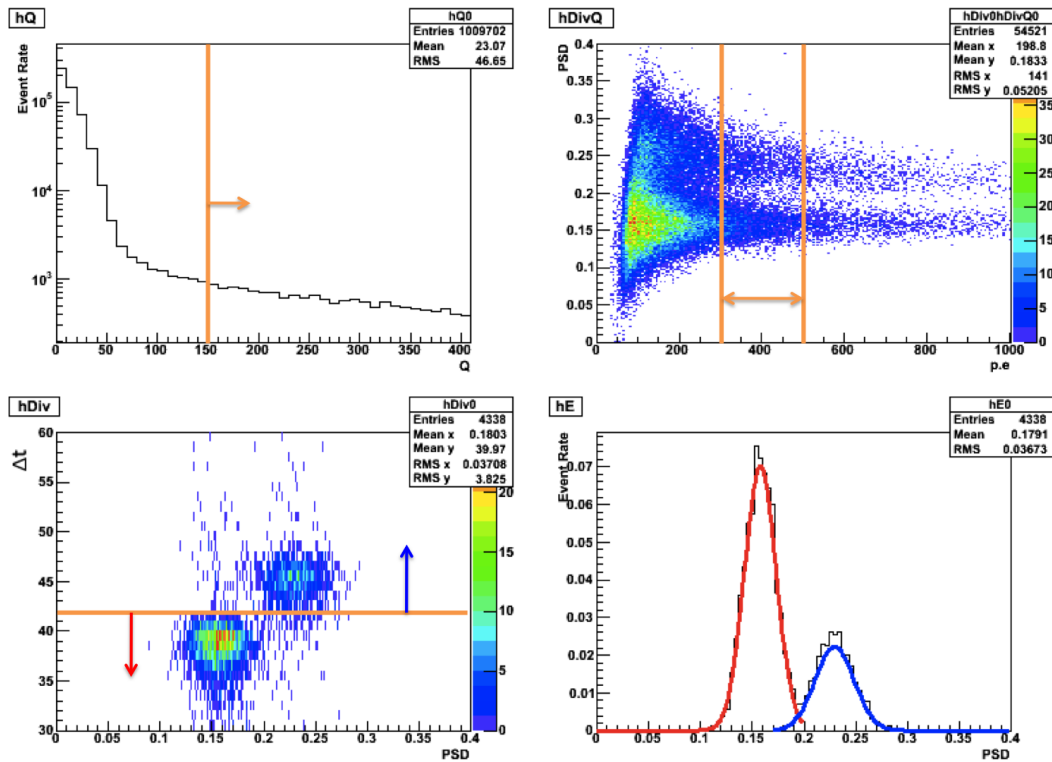
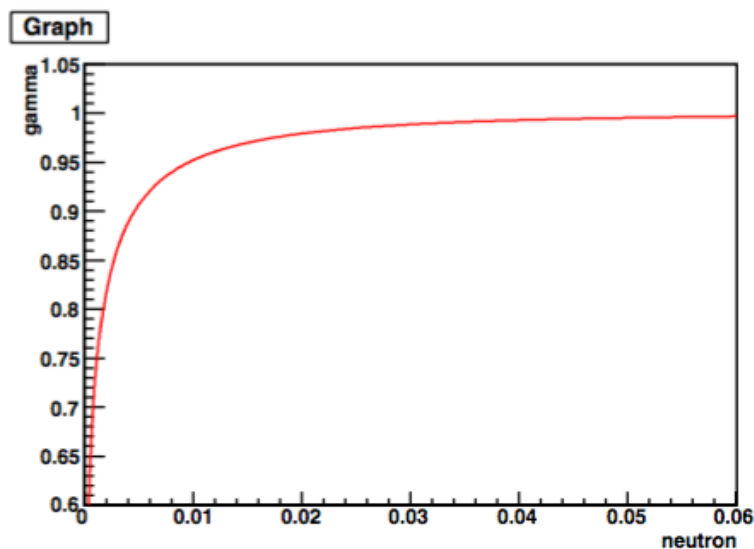


図 4.47: PSD 測定におけるイベントセレクション。オレンジ:カットライン (左上:1LLS の  $Q$ , 右上:サンプルの p.e vs PSD, 左下:PSD vs  $\Delta t$ , 右下:PSD 赤: $\gamma$ , 青:中性子)

ここで TOF による事象選別からそれぞれのイベントを分け、ガウス分布でフィッティングし、それぞれを積分した時の割合をみてその信号効率曲線を描いた。信号効率曲線は図 (4.48) のようになっており、x 軸が中性子の割合となっている。この時 x 軸が 0.01、つまり中性子事象が 99%除去された時の y 軸が  $\gamma$  検出効率となる。

図 4.48:  $\gamma$  効率曲線

## 4.12.3 結果

各サンプルでの平均波形、p.e vs PSD 分布図、PSD 分布、信号効率曲線は結果は付録 A に記載する。例として図 (4.49) は PPO(7g/L)、ナフタレン (50g/L) のサンプルを示す。また、これらの FOM 分布図を図 (4.50)、図 (4.54) に示す。

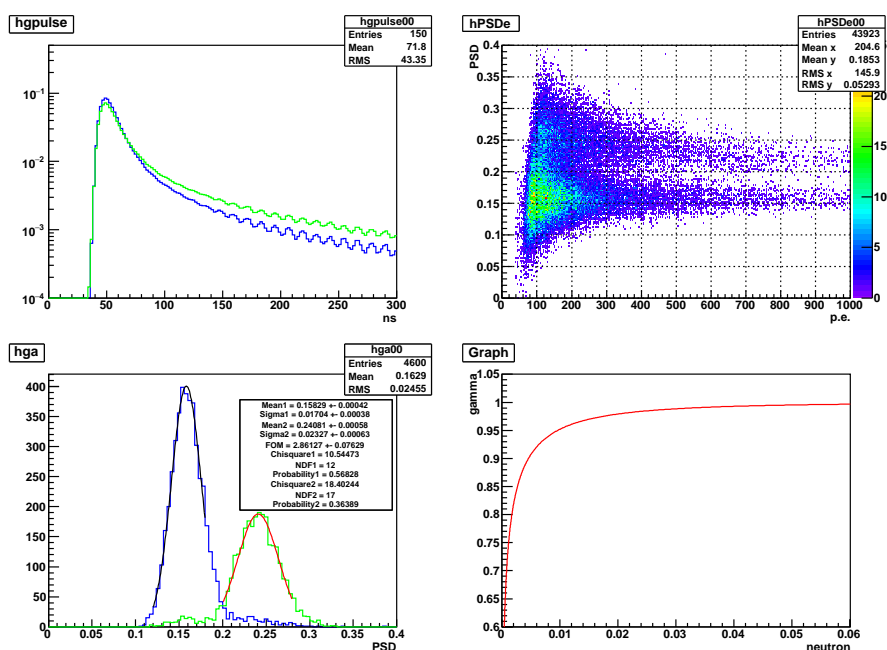


図 4.49: PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上: p.e vs PSD、左下: PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下: 効率曲線)

## 4.12.4 考察

以上の結果より PPO7g/L+ナフタレン 50g/L 以上で中性子事象を 99%取り除いた時、 $\gamma$  線効率を 95%以上確保することが可能であるとわかった。また、DIN においても十分な PSD 能力を実装することが可能であることがわかった。

PPO の量が増えることで PSD 能力が向上する傾向が見えるが、ナフタレン、DIN 濃度が高くなると 10g/L のサンプルでは 7g/L のサンプルよりも悪くなっているのがわかる。これは濃度クエンチングの影響が考えられる。また、ナフタレン、DIN は多く溶かすほど PSD 能力が向上することがわかった。対して PPO は、ナフタレン濃度が低い時は PPO 依存性があるように見えるが、DIN では PPO 依存性があまりなかった。

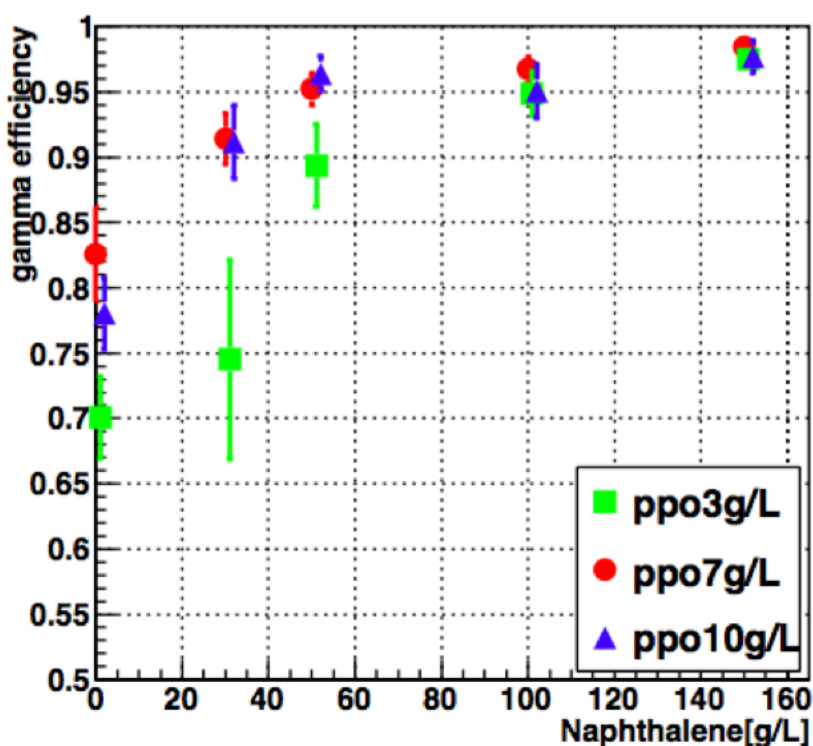


図 4.50: FOM の PPO、ナフタレン濃度依存性

次にこれらの波形データを見ると、DIN サンプルでは PPO の濃度によらず波形の形は余り変わらないがナフタレンのサンプルではナフタレンを加えると波形が一度膨らみ、濃度をあげると膨らみが減ってくる様子が見てとれる。ここからナフタレンと PPO で何か反応が起きている可能性が考えられる。

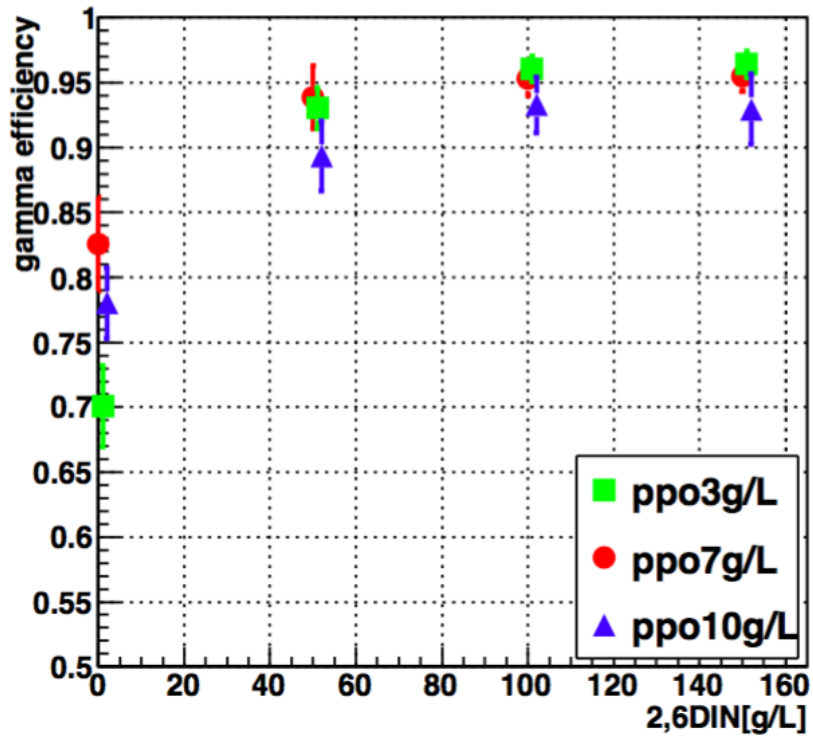


図 4.51: FOM の PPO、DIN 濃度依存性

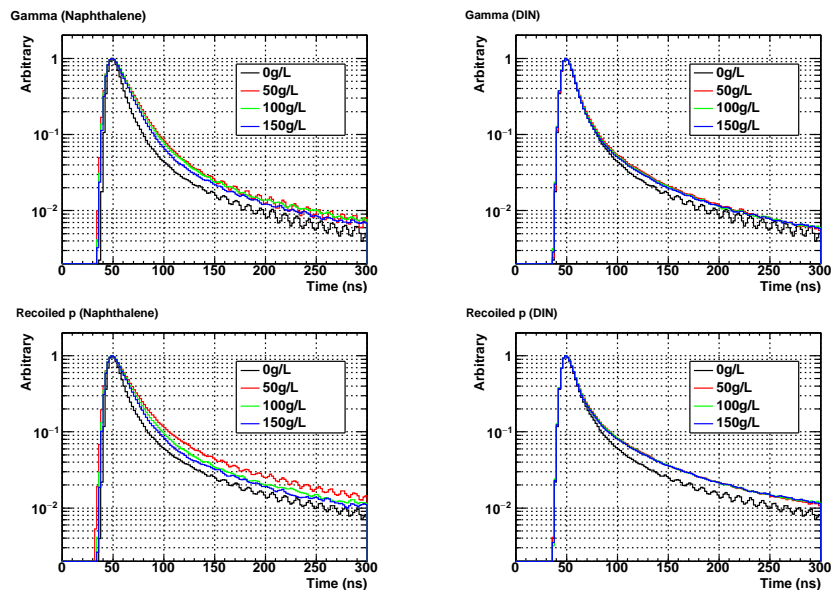


図 4.52: 平均波形:PPO 濃度 3g/L

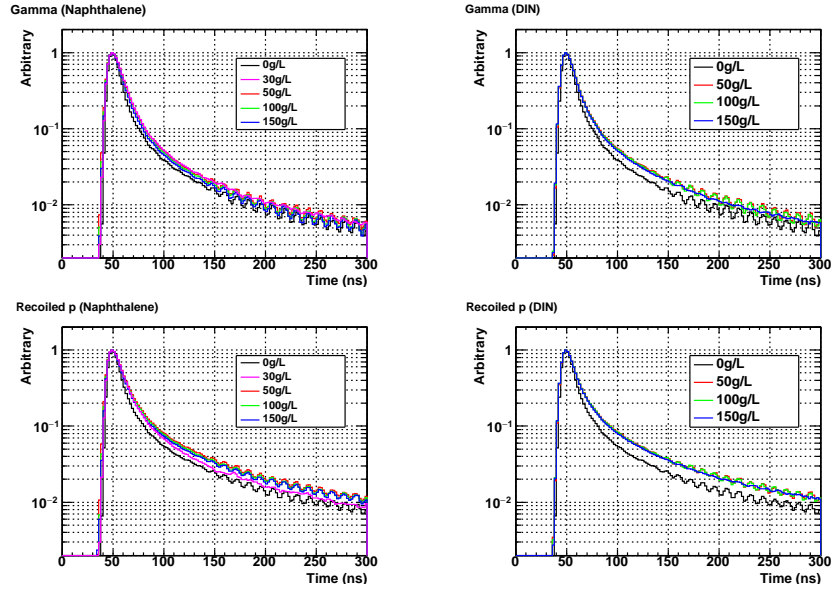


図 4.53: 平均波形:PPO 濃度 7g/L

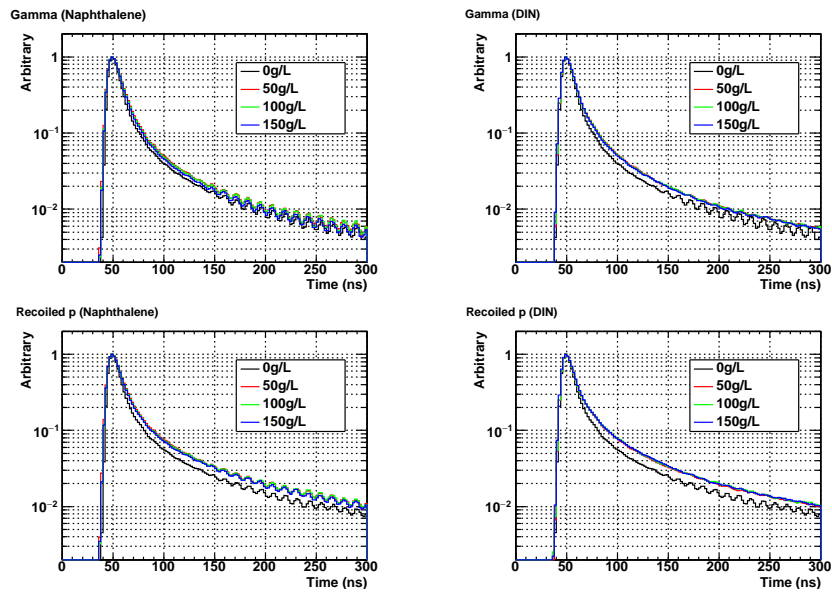


図 4.54: 平均波形:PPO 濃度 10g/L



## 4.13 分光光度計による透過率測定

液体シンチレータの減衰長が短いと大きい検出器では離れた PMT まで届かない光が出てくることが、事象位置の再構成の精度が悪くなってしまふ、減衰長の測定を行なった。ここでは分光光度計を使用し、透過率の測定を行なった

### 4.13.1 実験手順

分光光度計 (HITACHI U-3900) (図 4.55) を用いて液体シンチレータの透過率の測定を行なった。1cm と 10cm の二つの石英ガラスセルを使って実験を行なう。二つの異なる光路長の光の比率を見ることでその透過率を測定するものである。



図 4.55: 分光光度計 (U-3900)

測定はシクロヘキサンを基準 (Base) とした。シクロヘキサンは U-3900 分光光度計の測定感度波長内に吸収ピークを持たず透過率が非常に良いため、空気ベースラインを取るよりも精度よく測定が可能である。これにより、

$$\text{透過率 } T[\%] = \frac{10\text{cm}(\text{sample})/10\text{cm}(\text{base})}{1\text{cm}(\text{sample})/1\text{cm}(\text{base})} \times 100 \quad (4.4)$$

と書くことができる。

この透過率測定では、セルの汚れなどにより透過率は大きく変わってしまうおそれがある。そのため測定の際は次の手順を踏むことでエラーを可能な限り減らしている。また、一度空気ベースで取ることによって測定毎の誤差を減らしている。

1. セルの入っていない状態で一度ベース (空気) を取る。
2. アセトンとケイドライを使って限りセルの汚れを落とす。
3. 1cm のセルのみを分光光度計に入れ、なにも液体が入っていない状態で透過率を毎回同じ値に合わせる。
4. 10cm のセルを入れ透過率の値を毎回同じにする。
5. シクロヘキサンを入れベースをとる。

6. 手順 2~4 を再度おこなう。
7. サンプルが入っていない状態での透過率が測定毎に同じであることを確認し、ピペットでサンプルをセルに入れていく。
8. サンプルを入れた後、中のゴミなどを沈めるため 5 分 ~10 分程度置いてから測定をする。

#### 4.13.2 結果

結果は図 (4.56) のようになった。横軸が入射光の波長、縦軸は 9cm の光路長での透過率である。測定の光路長は 9cm であるためエラーが大きいという点に注意する。また、測定エラーは 0.3 % とした [9]。透過率から減衰長 ( $X[m]$ ) へは

$$\text{透過率 } T[\%] = e^{-\frac{0.09}{X[m]}} \quad (4.5)$$

を使い、逆関数を解いた。結果は図 (4.57)~(4.59) に示す。縦の幅はエラーを表す。

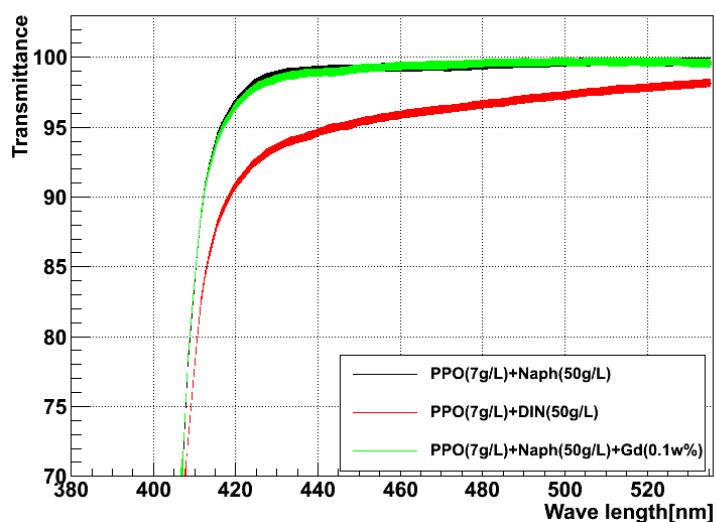


図 4.56: 透過率。黒 :  $LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + \text{ナフタレン}(50g/L)$ 、赤 :  $LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + DIN(50g/L)$ 、緑 :  $LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + \text{ナフタレン}(50g/L) + Gd(0.1w\%)$

#### 4.13.3 考察

DIN が溶けたサンプルは減衰長がとても低いことがわかった。これは発光量測定で説明した黄ばみによるものだと考えられる。ナフタレンが入っているサンプルは透過率は落ちるが使用可能なレベルであることがわかった。また、Gd が溶けることで透過率は落ちたが 5m 程あることがわかり、原子炉モニターサイズでは十分使用できるものであった。

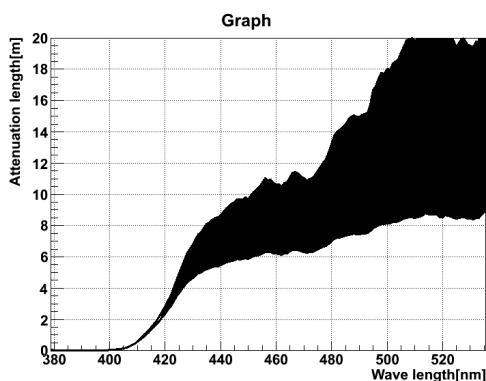


図 4.57: 減衰長:LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + ナフタレン (50g/L)

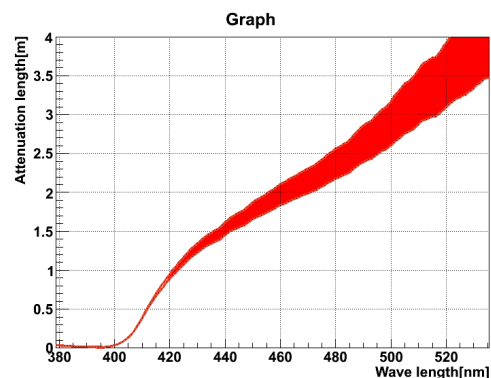


図 4.58: 減衰長:LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + DIN(50g/L)

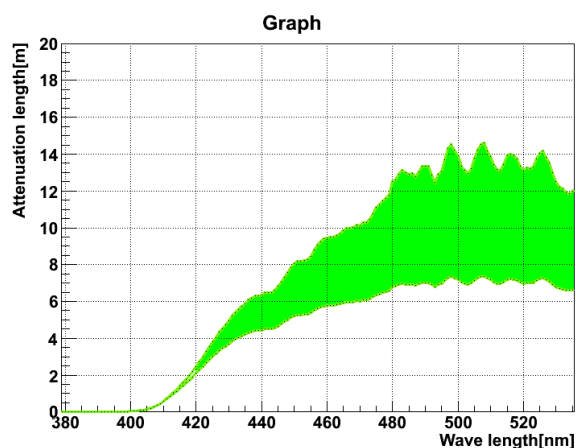


図 4.59: 減衰長:LAB + PPO(7g/L) + bisMSB(30mg/L) + ナフタレン (50g/L) + Gd(0.1w%)

## 4.14 光路長を変化させる減衰長測定

分光光度計での透過率測定はセルの洗浄具合に依存することや、ベースのシクロヘキサンを元に透過率の計算を行なっているため相対的な値となってしまう。ここでは光路長を変化させることにより絶対的な減衰長の測定を行なった。

### 4.14.1 実験方法とセットアップ

液体シンチレータの入ったアクリルパイプに Xe ランプビーム (浜松ホトニクス, C7535) を照射し、内部に吊るしたコーナーキューブから反射した光を PMT で読み取りその強度をみる。コーナーキューブは自由に動かすことができるため光路長を変化させることが出来、絶対的な光路長を測定することができる。セットアップは図 (4.60), (4.61) のように組み、その様子を図 (4.62) で示す。AT-120AP(島津製作所) では PMT の設定をおこない、AT-100PCC(島津製作所) ではビームの波長の切り替えをおこなっている。

測定は図 (4.65) のプログラムを使用した。このプログラムでビームの波長を 1ns 毎に変化させ、その時の PMT が受け取る信号の強さを V にして記録する。この V を使用し解析を行なった。

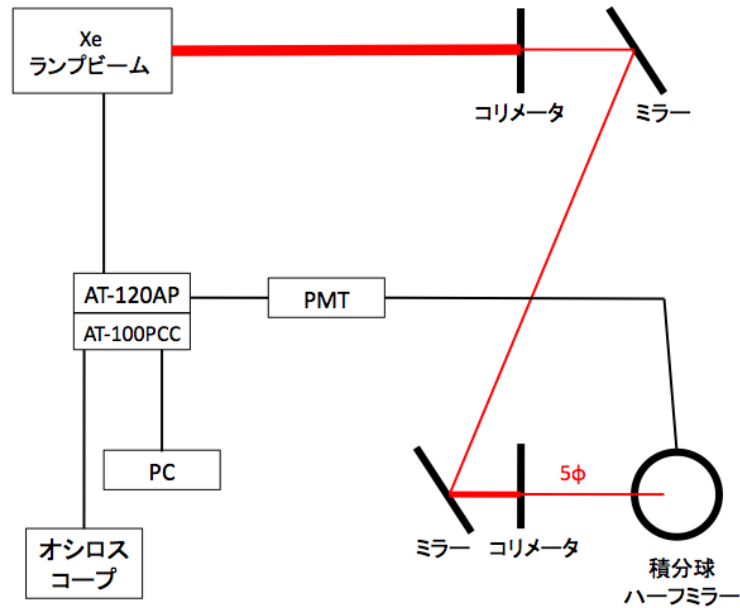


図 4.60: セットアップ:アクリルパイプをつかった減衰長測定

測定は以下の手順で行なった。

1. 装置の電源を入れ、ビーム強度の温度依存性をなくすため冷房で室温を下げ一定になるように 1 時間程度おく
2. ハーフミラーの角度を変え、光が積分球に入るように調整する。この時底面アクリルからの反射が入るが、コーナーキューブによる光と反射光が両方入るようにする。
3. プログラムの Initialize を押し、ビームの波長の校正を行なう
4. 測定波長を 300~600nm、PMT ゲイン 20、PMTHV - 520 に設定する (図 (4.66))
5. Start を押し測定を開始する (図 (4.67))
6. 一つの光路長に対して 3 回測定を行なう。測定毎にビームの波長がずれることがあるため毎回 Initialize を行なう。
7. コーナーキューブを移動させ光路長を変化させ同様に測定をする。基準となる位置に対して、20cm 刻みで光路長 300cm まで測定した。また、底面のアクリルによる反射などのバックグラウンドを解析で取り除くため、コーナーキューブを外した状態での測定もおこなった。

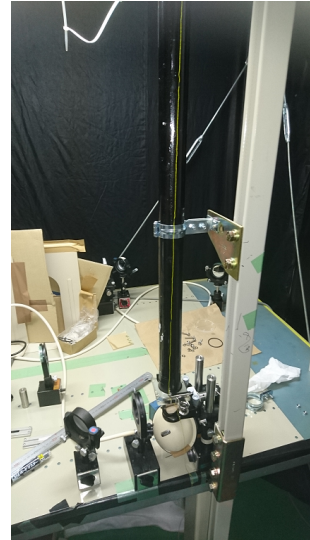
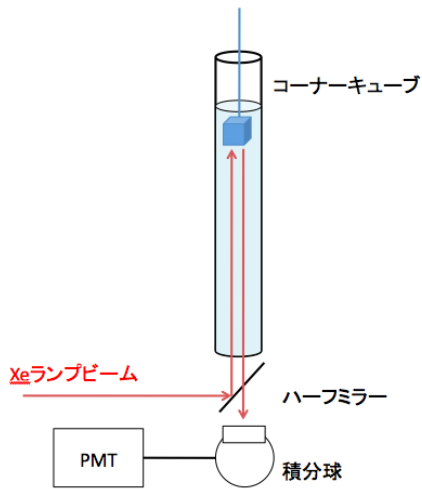


図 4.61: セットアップ:アクリルパイプを横から見た図

図 4.62: 減衰長測定の様子。暗室から出る部分はブラックシートにより遮光

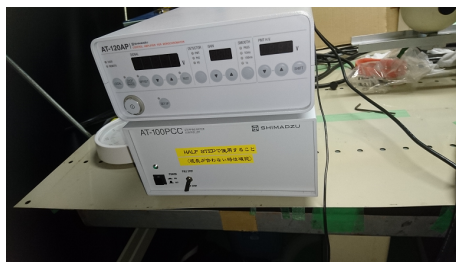


図 4.63: 測定機器 上:AT-120AP、下:AT-100PCC



図 4.64: Xe ランプビーム

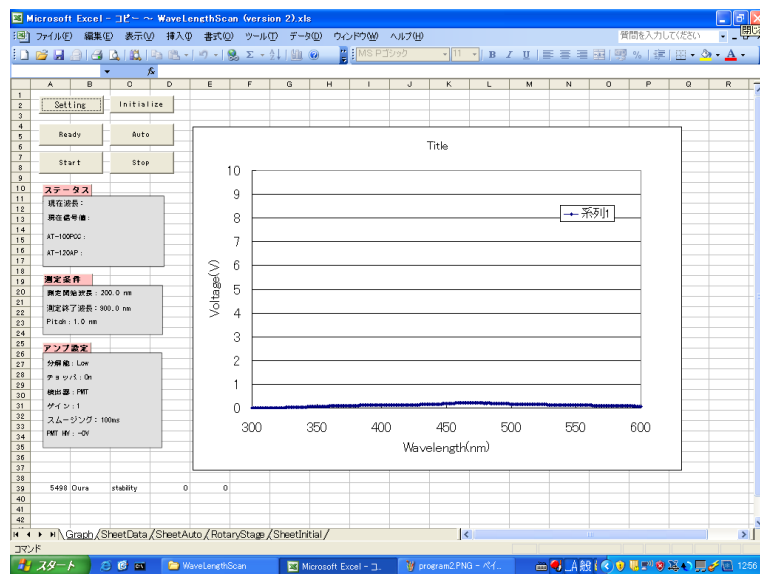


図 4.65: 測定プログラム



図 4.66: プログラム設定画面

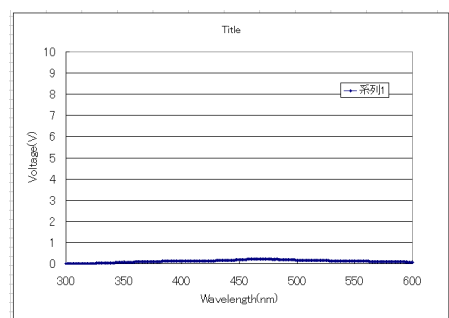


図 4.67: データ取得様子。横軸:ビーム波長、縦軸:Voltage

## 4.14.2 アクリルパイプの作製

アクリルパイプは長さ 2m、内径 48 のものを使った。光漏れや反射を防ぐためアクリルパイプを黒のペンキで塗った。その後、上面に図 (4.70) の用に加工したアクリルをアクリダインを使い接着させた。底面のアクリルには紫外線透過型アクリルを接着した。底面は液体シンチレータの重みによる負荷がかかるので、安全のためアクリダインで接着したあとにエポキシ樹脂でさらに周りを固めた。



図 4.68: 測定用アクリルパイプ

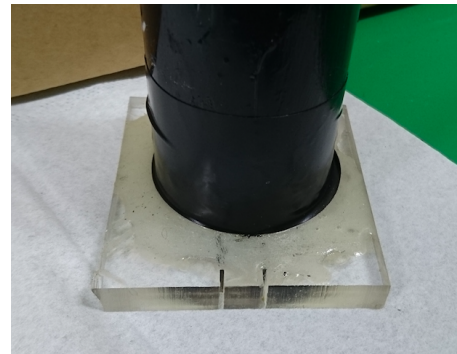


図 4.69: アクリル底面

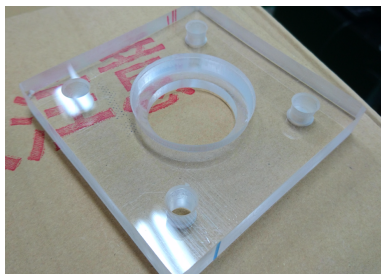


図 4.70: アクリル上面取り付けパーツ

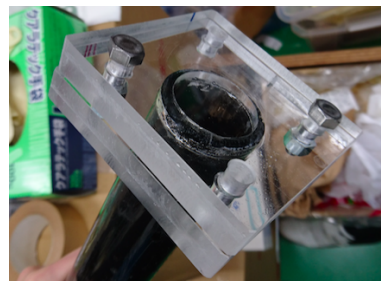


図 4.71: アクリル上面取り付け後

#### 4.14.3 測定プログラムとオシロスコープでの差

プログラムでの測定が正しく行なわれているかを AT-120AP にオシロスコープをつなげて確認した。すると、測定されプログラム上で表示される値と、オシロスコープで読み取れる値が一致していないことがわかった表 (4.5)。

減衰長の測定を行なう際、光路長 40cm おきに波長を 300~600nm の間を 50nm 刻みで変化させ、その時のオシロスコープでの数値を記録した。この数値でも解析をおこない減衰長の測定を行なった。

波長 [nm]	プログラム上での値 [V]	オシロスコープでの値 [V]	Ratio(プログラム/オシロ)
300	0	0	1
350	0.049	0.02	2.45
400	0.282	0.14	2.01
450	1.501	0.72	2.08
500	1.328	0.64	2.07
550	0.946	0.46	2.06
600	0.57	0.28	2.04

表 4.5: 光路長 40cm でのデータ

#### 4.14.4 データ解析

純粋な LAB を例として、取得したデータは図 (4.72) のようになった。横軸が波長、縦軸は V(PMT からの信号値) である。各測定からバックグラウンドを差し引いたものが図 (4.73) となっている。この差し引いたデータの各波長で、図 (4.74) のように横軸光路長、縦軸を V でプロットし、

$$Ae^{-\frac{L}{x}} \quad (4.6)$$

でフィッティングを行なう。ここで A は定数、L は光路長、 $x$  が減衰長となっている。

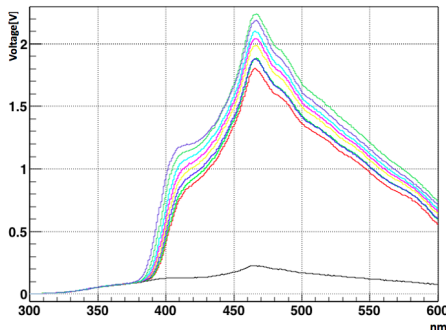


図 4.72: 波長ごとの PMT 信号値 (光路長 : 黒:BG、赤:0.4m、緑:0.8m、青:1.2m、黄:1.6m、マゼンタ:2.0m、シアン:2.4m、抹茶 2:.8m、藍:3.2m)

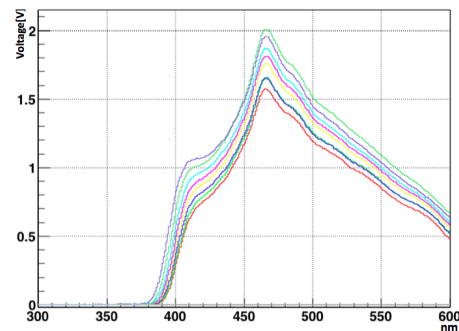


図 4.73: バックグラウンド除去後



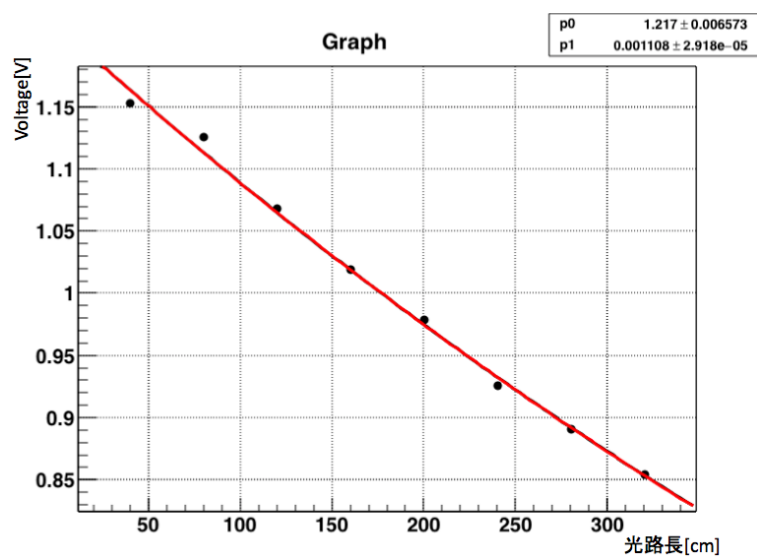


図 4.74: 430nm での光路長と PMT 信号値。赤線:フィッティング線

## 4.14.5 結果

測定の結果は図(4.75)のようになった。LABの減衰長はPMTの感度がある430nmで11m近く有ることがわかった。これはDayaBayの結果よりも低いが、ろ過以外蒸留などの特別な純化作業を行っていないため妥当であると考えられる。また、図(4.76)に於いて、赤点がオシロスコープで取得データから計算した減衰長、黒線はプログラムから取得したデータから計算した減衰長である。オシロスコープで測定した数値から計算される減衰長は、プログラムが測定する数値から計算される減衰長とエラーの範囲内で一致しているため測定において問題がないことがわかった。下段中央、下段右の図はそれぞれ波長430nm、550nmでのデータ点とそれをフィッティングした様子である。

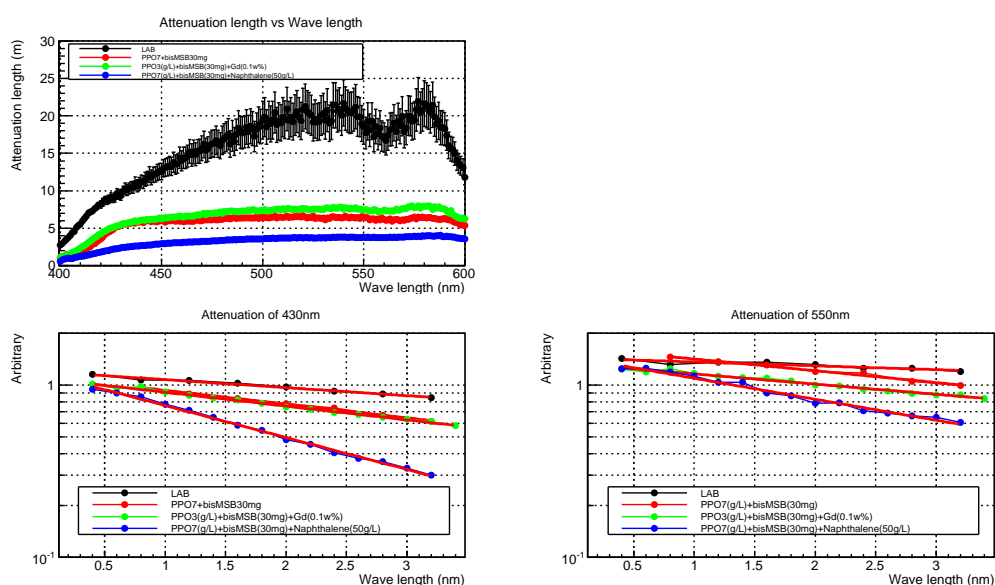


図 4.75: 測定結果と減衰長 (黒:LAB、赤:PPO(7g/L)+bis-MSB(30mg/L)、緑:DayaBay タイプ、青:PPO(7g/L)+bis-MSB(30mg/L)+ナフタレン (50g/L))

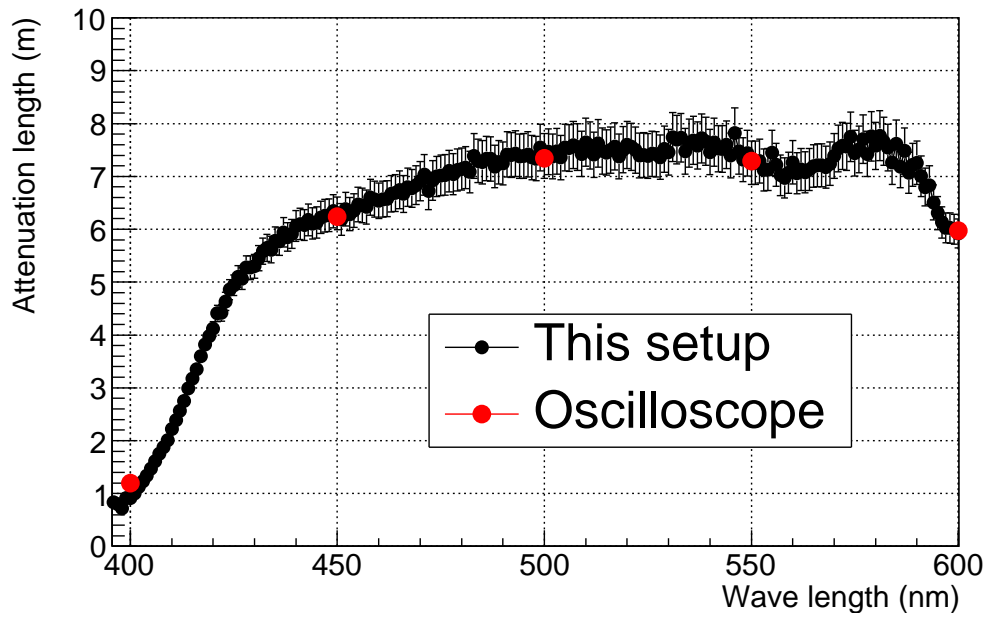


図 4.76: LAB のオシロデータとプログラムデータによる減衰長

#### 4.14.6 考察

Daya Bay 実験での純化作業による減衰長の変化は図のようにになっている。純粋な LAB では 430nm で 14.1m となっており、Gd を加える事で 10.5m まで落ちている。Gd 錯体を作製するために使用する  $GdCl_3$  に含まれる Fe によって図 (4.77) のように発光の吸収が増え、減衰長がおちてしまう。また、PPO も埃などの汚れがついてる場合があり、純化作業をしなければ図 (4.78) の様に減衰長が下がる。この結果から、今回の測定では蒸留などの本格的な純化を行っていないため測定結果は妥当な数字であると考えられる。

ナフタレン入りのサンプルは減衰長が 2m 程度であった。これは分光光度計による相対比較からみても予想より低い値であった。考えられる要因としては、測定が数時間にわたって行なわれたため酸化してしまった、若しくは実際に低いなどがあげられる。

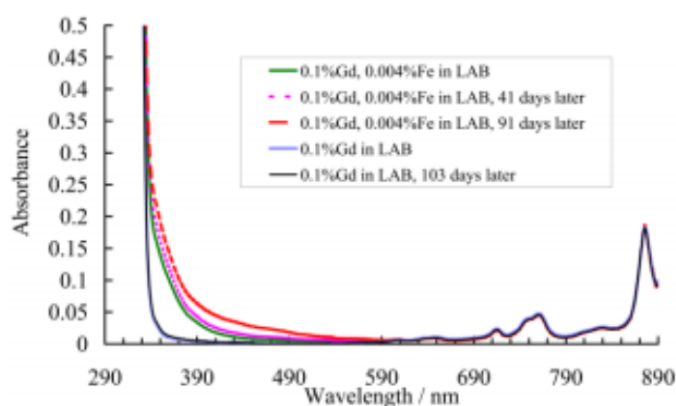


図 4.77:  $GdCl_3$  に含まれる Fe による発光吸収の変化 (黒:Fe なし、緑:Fe0.004%、マゼンタ:緑の 41 日後、赤:緑の 91 日後)[8]

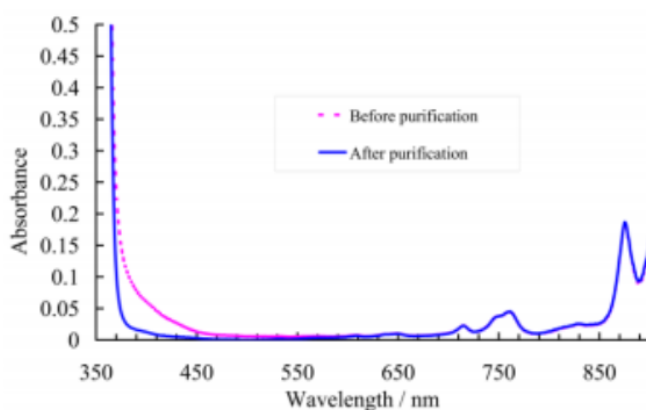


図 4.78: PPO による発光吸収の変化 (マゼンタ:PPO を加えた後、青:純化後)[8]

#### 4.15 波形評価

以上の結果から、DIN は減衰長が低く使用することが難しいとわかった。また、2014 年の原子炉モニター研究からナフタレンの量を減らした LAB+PPO(7g/L)+bisMSB(30mg/L)+

ナフタレン (50g/L) (以下、Target LS) の組成が最適であると判断し、Daya Bay タイプの液体シンチレータとの波形差を比較した。

波形は

$$f(x) = R_1 \times e^{-\frac{\tau_1}{x}} \times R_2 \times e^{-\frac{\tau_2}{x}} \times R_3 \times e^{-\frac{\tau_3}{x}} \quad (4.7)$$

の 3 つの指数関数によりフィッティングを行い評価した。ここで  $\tau_1, \tau_2, \tau_3$  は発光時定数、 $R_1, R_2, R_3$  はそれぞれの Ratio を表す。 $\tau_1, \tau_2, \tau_3$  は  $\gamma$  事象と中性子事象で同じ値を使用し、Ratio を変化させてフィッティングした。フィット結果は以下の図ようになった。また、それぞれのパラメータは表 4.6 に示す

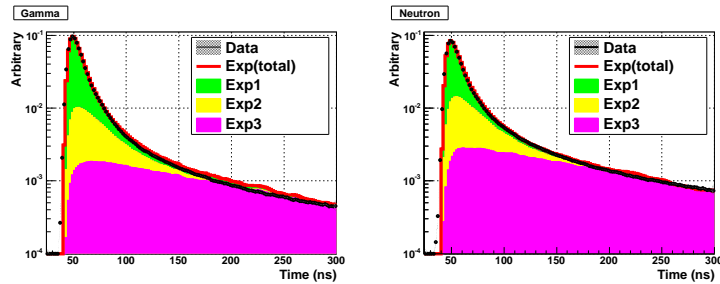


図 4.79: LAB+PPO(3g/L)+bisMSB(30mg/L) の波形。左: $\gamma$  事象、右:中性子事象。黒線:Data、赤線:フィットデータ

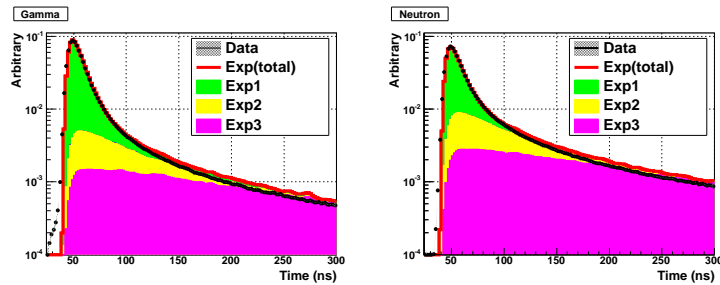


図 4.80: LAB+PPO(7g/L)+bisMSB(30mg/L)+ナフタレン (50g/L) の波形。左: $\gamma$  事象、右:中性子事象。黒線:Data、赤線:フィットデータ

サンプル		$\tau$ [ns]	Ratio	$\gamma$ 事象 (割合)	中性子事象 (割合)
Daya Bay Type	$\tau_1$	4.29	$R_1$	0.700	0.569
	$\tau_2$	19.3	$R_2$	0.155	0.208
	$\tau_3$	147.4	$R_3$	0.144	0.222
Target LS	$\tau_1$	5.81	$R_1$	0.759	0.571
	$\tau_2$	37.5	$R_2$	0.103	0.175
	$\tau_3$	195.3	$R_3$	0.138	0.253

表 4.6. フィッティングパラメータ

以上から、今回開発した液体シンチレータは PPO を増やしナフタレンを加えたことによって遅い成分の時定数が増加することがわかった。また、Target LS は Daya Bay タイプの液体シンチレータに比べて  $\tau_2$  の  $\gamma$  成分が大幅に減ったこと、全体的に  $\gamma$  と中性子の Ratio 差が大きくなったことがわかった。

## 第5章 原子炉ニュートリノモニターでの実験データ

### 5.1 原子炉モニターの建設

2015年の夏頃から東北大学での原子炉モニター建設が始まった。以下では建設の様子と手順を記述していく。詳しい原子炉モニターの設計については2014年の論文を参照 [1]。

#### アクリル容器の水貼り試験

内層用と外層用のアクリルそれぞれに水を入れ1日ほどおき、液漏れが無いかの確認を行なった。



図 5.1: 内層の水張り試験

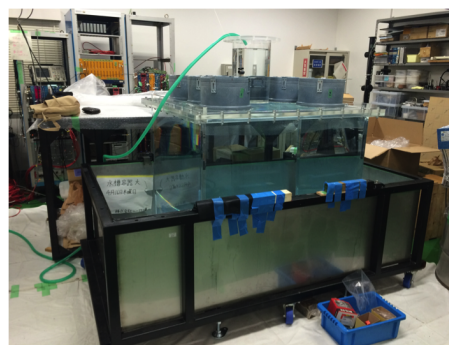


図 5.2: 外層の水張り試験

光電子増倍管の動作テスト

使用する PMT を検出器の中に入れ、暗室にした状態で LED を発光させ PMT の動作確認を行なった。

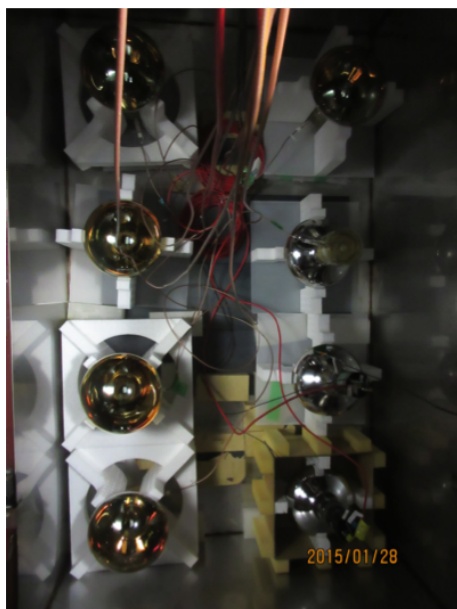


図 5.3: PMT 動作試験様子 (内部)



図 5.4: PMT 動作試験 (外部)

### アクリル容器の導入

アクリル容器を架台に設置した(図(5.6))。アクリル容器の下にはガンマ線を遮断するために鉄のシールドが敷かれている(図(5.5))。上部のチムニーからは液の出し入れや窒素パブリングが可能であり、中央に線源などでデータが取れるよう空洞がある(図(5.7))。また、容器の内部には2層構造のため内層が浮かないようウェイトを設置してある(図(5.8))。

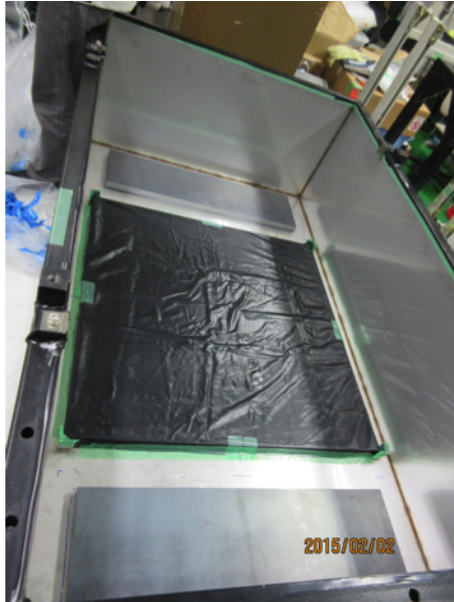


図 5.5: 容器底の鉄シールド

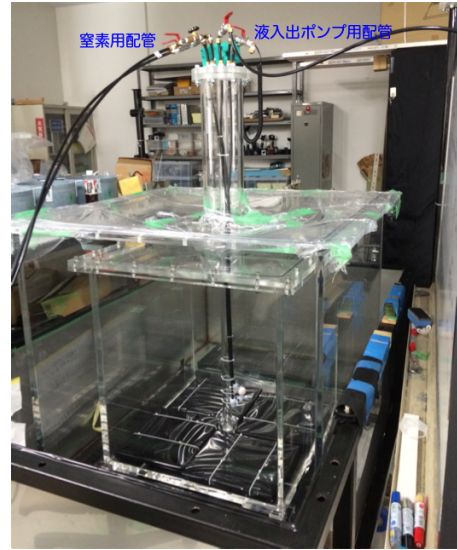


図 5.6: 設置後の様子

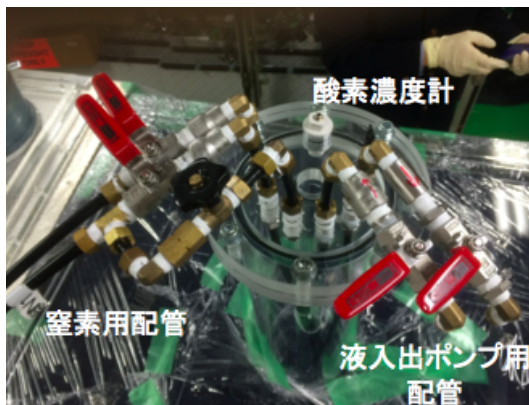


図 5.7: チムニーの様子

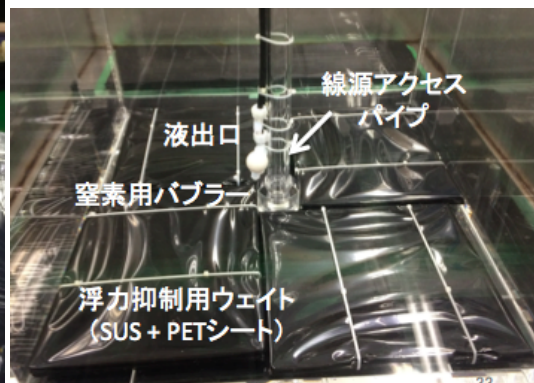


図 5.8: 容器内部の様子



## 液体シンチレータの作製

溶質の重さを測りながら 200L ずつ LAB に溶質を攪拌をしていった。攪拌タンク (直径 70 cm、深さ 75 cm) にモーターで回転する攪拌ブレード (佐竹化学機械工業株式会社、ポータブルミキサー A520) を取り付け回転させることで攪拌を行なった。下図はナフタレンを混ぜている様子である。攪拌後の内層液体シンチレータにブラックライトを当てるとシンチレーション光が確認できる。また、Gd を後から溶かし入れるため、ナフタレンを溶かす前の PPO(7g/L)、bis-MSB(30mg/L) を加えた LAB を 80L 程別に保存した。これはナフタレンを入れたことによる酸化の影響を Gd を溶かす工程でなくすためである。外層に入れるシリコンオイルは攪拌後もともと入っていた容器に戻した。これは外層を先に入れてしまうと内層容器に圧力と浮力がかかってしまうためである。この時入れた溶質の量は次の表の通りである。

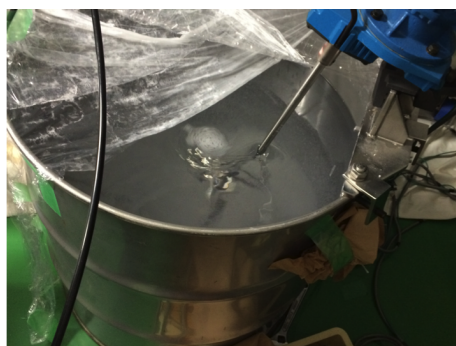


図 5.9: 攪拌様子



図 5.10: ナフタレンの計量

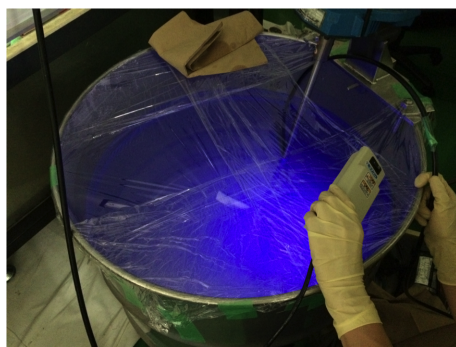


図 5.11: ブラックライトをあて光の確認

表 5.1: 溶質量

	溶質量	濃度
LAB	383.5[L]	
PPO	2619.64[g]	6.83[g/L]
bis-MSB	11.51[g]	30.00[mg/L]
ナフタレン	19.16[kg]	49.96[g/L]

## 内層への液入れ

ポンプ (NIKUNI : IS-NPD02A) を使い、攪拌機からアクリル容器に液体シンチレータをうつした。



図 5.12: ポンプの様子

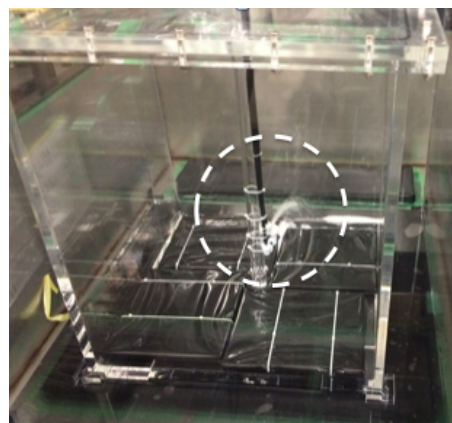


図 5.13: アクリル容器に液体シンチレータが入る様子

## 窒素バブリング

ナフタレンが入った影響による酸化を防ぐため、液入れ後すぐに窒素バブリングによる脱酸素をおこなった。下図の白くなっているのは窒素の気泡である。

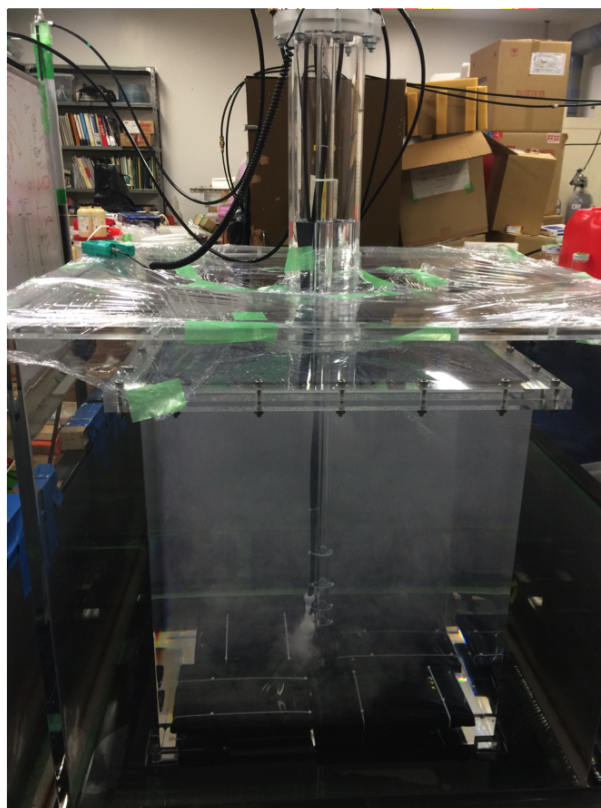


図 5.14: 窒素バブリング

## 外層の液入れ

シリコンオイルは、缶から直接外層へ流し込んだ。その後アクリル容器の蓋を締めた。



図 5.15: 外層にシリコンオイルを入れる様子

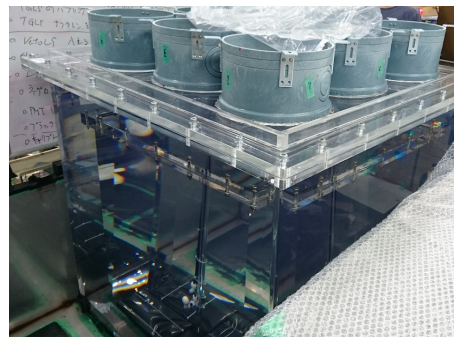


図 5.16: アクリル容器の蓋を締めた後

## PMT 固定フレーム、外枠の取り付け

液入れが終わった後、PMT 固定用のフレームと外枠をとりつけた。

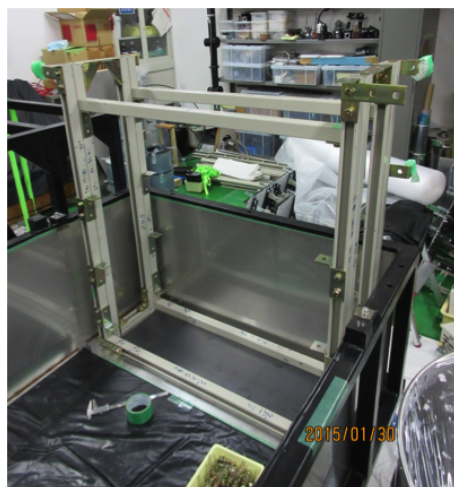


図 5.17: PMT 固定用フレーム

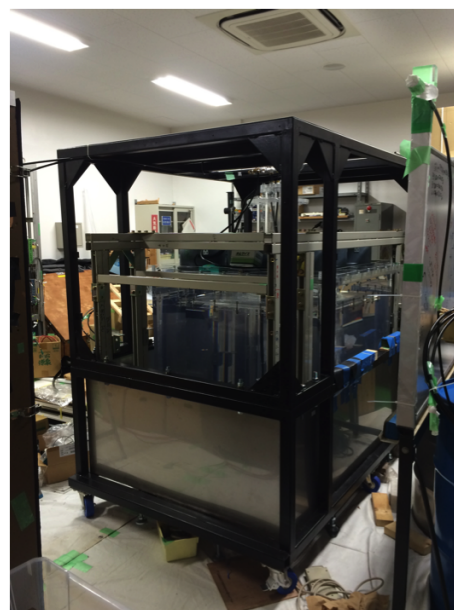


図 5.18: 架台の上部フレーム

## 光電子増倍管の取り付け

アクリル容器の向かい合う 2 面と、その上部の計 3 面の PMT を取り付けた。

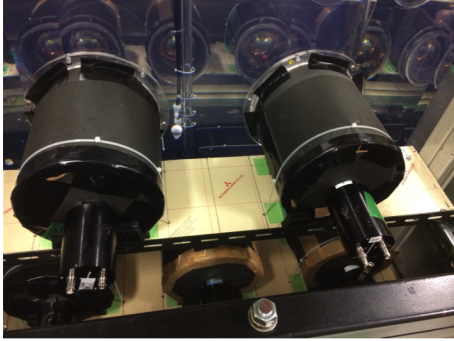


図 5.19: PMT を固定フレームに載せた様子

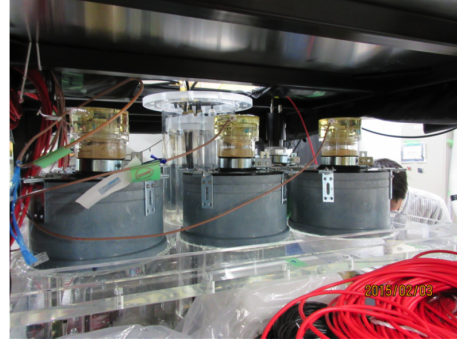


図 5.20: 上部に取り付けた PMT

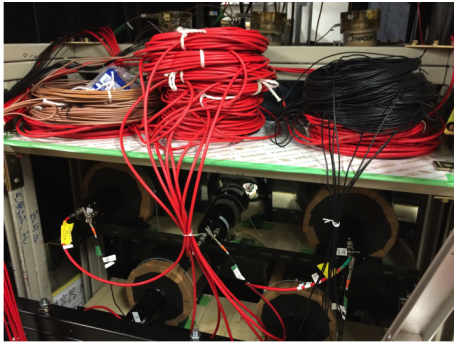


図 5.21: PMT の配線

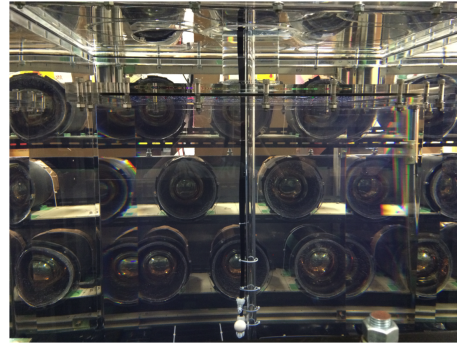


図 5.22: 屈折によって PMT がみえる様子

## 外装の取り付け

検出器を暗箱状態にするためアルミ板を枠にとりつけた。その後ブラックシートを下ろして検出器は完成した。

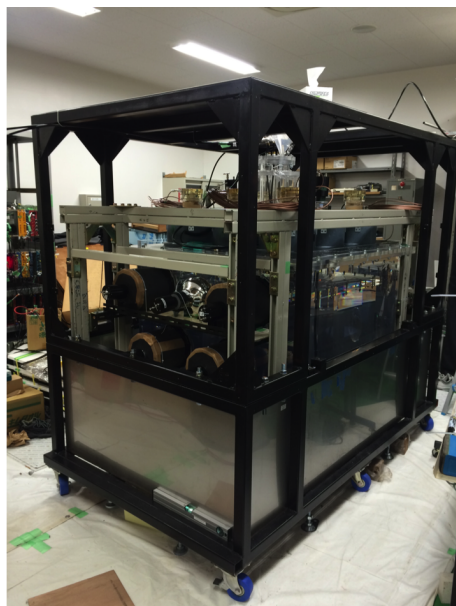


図 5.23: アルミ板の取り付け前

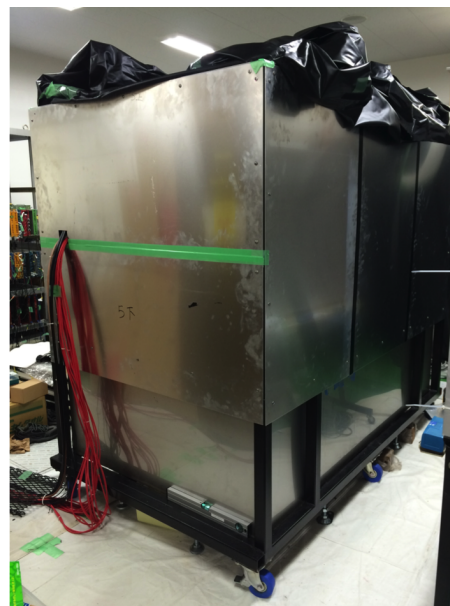


図 5.24: アルミ板取り付け後

## 5.2 原子炉ニュートリノ実装用 Gd の量産と導入

内層の液体シンチレータに 0.1w% の Gd を加えるために Gd 錯体を混ぜる必要があるが、溶かす作業とろ過作業に長い時間が必要なため、これらの作業に手を加える事で時間短縮をした。

まず液シンを 10L 取り出し、Gd の濃度を 0.1w% ではなく、0.5w% になるように溶かす作業を計 8 回行なった (図 (5.25))。Gd 錯体を溶かすのに有する時間は約 1 日であり、これにより Gd を実装するための時間を大幅に減らすことが可能となった。

次にろ過作業を行なった。高濃度な Gd 液シンのため普段よりもろ過に時間がかかってしまいが、混ぜてから 1 週間程度時間を置くことで図 (5.26) のように不純物が沈殿することがわかった。この上澄み部分を汲み、ろ過を行なった。その後節 5.4 で行なった時と同様に Gd 濃度の測定を行った結果、期待値に近い値の Gd が含まれていることが確認できた。そのため Gd を混ぜた液シンを量産したのち、時間を置いて上澄みだけ汲んでろ過を行なっていった。



図 5.25: 高濃度 Gd 液シンの作製

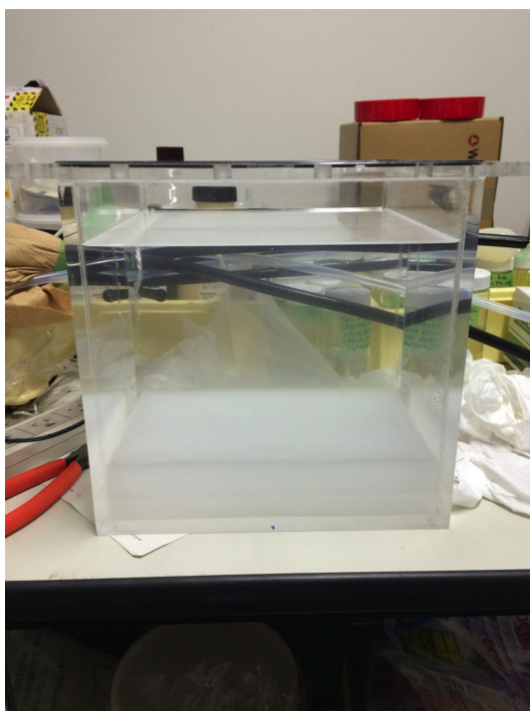


図 5.26: Gd 導入後 1 週間程度置き、不純物が沈殿した様子

### 5.3 $^{137}\text{Cs}$ 線源を発光量経年変化測定

検出器の線源アクセスパイプから  $^{137}\text{Cs}$  を吊るしデータの取得を行なった。結果は図 (5.27) のようになった。24 本の PMT で読み取り FADC で取得したデータの Q(Charge) を足し合わせたもの、昨年行なった PMT の 1p 測定を元に光電子数に直したものを横軸にとった。赤が取得したデータ、黒が背景事象、青が赤から黒を引いた  $^{137}\text{Cs}$  の excess となっている。ここで  $^{137}\text{Cs}$  による 0.662MeV のピークが確認することができ、この検出器でのデータ取得が可能であることがわかった。また、ピーク位置の経年変化は図 (5.28) のようになった。2ヶ月程度では有意な変化は見られていない。

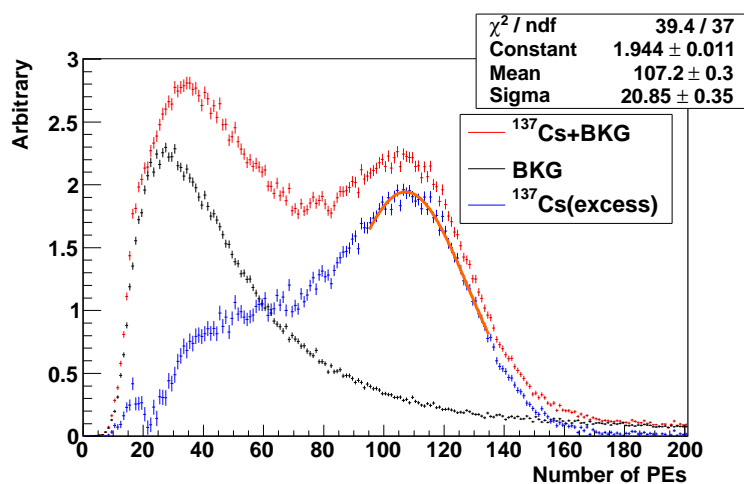


図 5.27: 検出器データ: $^{137}\text{Cs}$

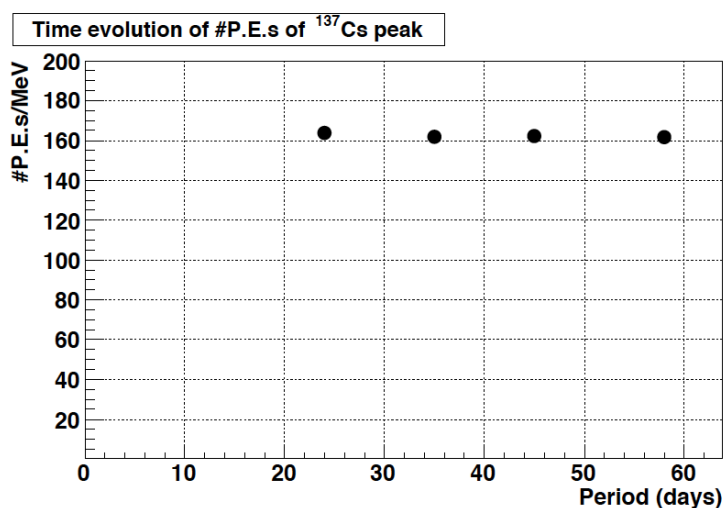


図 5.28: 検出器データ: $^{137}\text{Cs}$  経年変化

## 5.4 $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$ による擬似ニュートリノイベントの測定

$^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$  を使った擬似ニュートリノイベントの測定を行なった。 $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$  については節を参照。結果は図 (5.29) のようになった。黒が偶発背景事象、赤が時間相関のある事象と偶発背景事象で、青が赤から黒を引いたものとなっている。ここで赤のデータは一つのイベントを取得した後  $\sim 1000\text{ns}$  までの間に後発信号イベントのあるデータ、偶発背景事象である黒は  $1000\sim 2000\text{ns}$  に後発信号のあるデータを使い背景事象とした。

先発信号のエネルギー分布図 (図 (5.29) 左下) では  $4.4\text{MeV}$  の  $\gamma$  と反跳陽子のエネルギーが合わさったピークが  $5\text{MeV}$  付近でみえている。また後発信号のエネルギー分布図 (図 (5.29) 中央下) では H 捕獲ピークの  $2.2\text{MeV}$  と、Gd の捕獲による  $8\text{MeV}$  付近の信号が見えている。この時の時定数  $\delta t$  は  $34.84 \pm 0.30$  となった。溶かした Gd の濃度から期待される時定数から、Gd の作製効率は  $80\%$  であった。また、この Gd 濃度の経年変化は図 (5.30) のようになった。

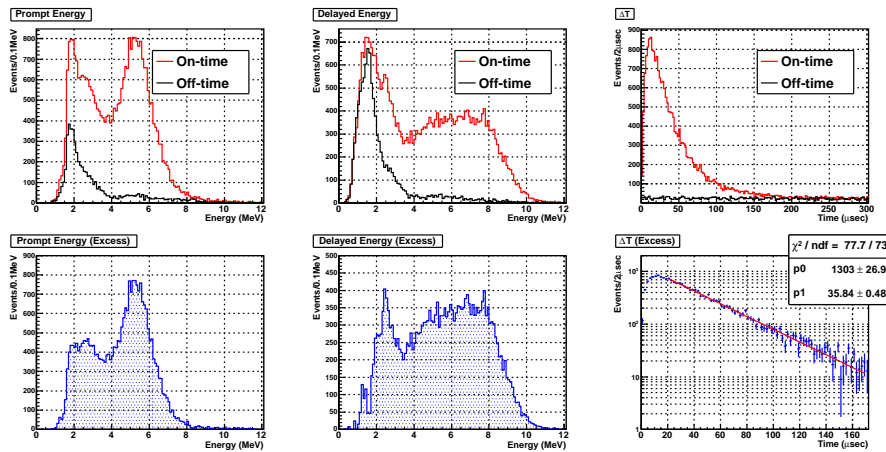


図 5.29:  $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$  による擬似ニュートリノイベント

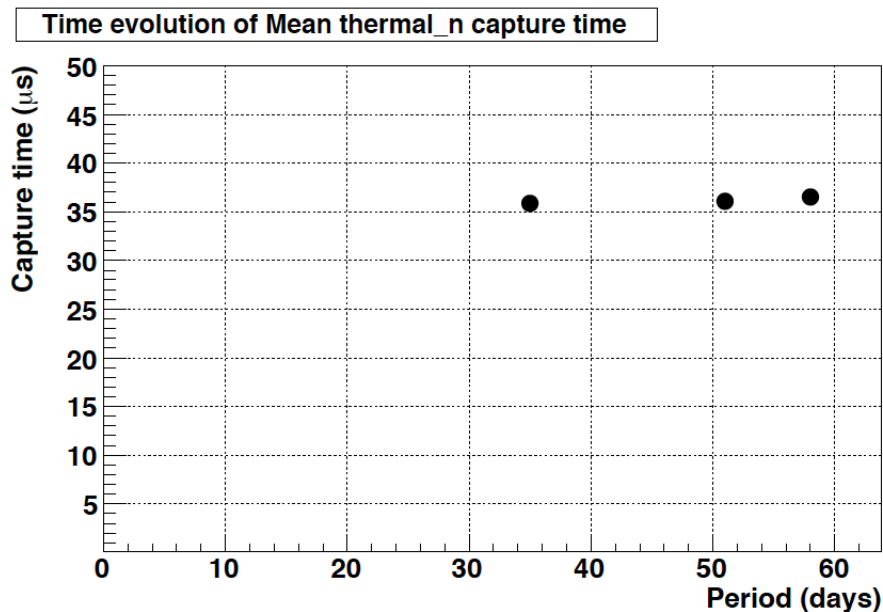


図 5.30:  $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$  による擬似ニュートリノイベント 経年変化



## 第6章 まとめと今後

昨年度の東北大学での原子炉モニター研究で開発していた液体シンチレータは、ナフタレンにより黄ばむという問題点があった。また、Gdを溶かす方法が確立できていなかった。そのため液体シンチレータの最適化やナフタレンに変わる候補の試験とGdをLABに溶かす方法の確立を行なった。

液体シンチレータは発光量、波形弁別能力、透過率の測定をおこない、*LAB+PPO(7g/L)+bisMSB(30mg/L)+ナフタレン(50g/L)*という組成に決定した。また、ナフタレンに代わる溶質候補であったDINは発光量、透過率が悪いいため使用できなかった。また、Daya Bay実験で行われているGdを溶かす方法により、ナフタレン入りの液体シンチレータにGdを溶かしこむことが出来た。

原子炉モニターを組み立て、完成させた。開発した新しい液体シンチレータを実装し、 $^{137}\text{Cs}$ と $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$ を使用しデータを取得した。 $^{241}\text{Am}/^9\text{Be}$ を使った測定によりGdが液体シンチレータに溶けていることが確認できた。

今後は開発した液体シンチレータの長期経年変化測定を行なっていく必要がある。また、原子炉モニターでの波形弁別能力測定がまだできていないためこちらも解析を進めていく必要性が有る。

## 謝辞

大学院の修士課程における本研究活動及び修士論文の執筆にあたり、非常に多くの方々から御指導、ご協力をいただきました。この場をお借りして感謝の意を表します。

指導教官である末包准教授には本研究における様々な角度からの助言を初め、プレゼンテーション方法や論文の製作や実験における心構えなど多くの御指導を頂きまして誠に感謝しています。

研究員である古田氏には研究にあたり、実験を行なう際の基本事項や考えかた、解析方法などについて丁寧に御指導頂きました。また学会発表や本論文の執筆においても多くのアドバイスを頂き、無事修士課程を終えることができたのは古田氏のおかげだと考えています。

研究員の Thiago 氏には力仕事を手伝ってもらうことや、測定用のソフト面での環境を整えて頂き研究にあたりとても助かりました。また、もう一人の研究員である Emmanuel 氏と3人でフランスの Double Chooz 実験へ行き PMT のケーブリング作業を行ないました。慣れない外国の地での生活を助けて頂き感謝申し上げます。

Double Chooz Japan グループの方々には毎回の Double Chooz Japan Collaboration Meeting において、本研究に関する助言を頂きました。また、フランスの Chooz へ行かせて頂きとても良い経験になりました。

後輩の桐生くんには多くの実験を手伝って頂き、またとても物覚えもよく解析なども手伝って頂いて非常に助かりました。来年度の試験が良い結果になることをお祈りします。

ニュートリノ科学研究センターの同期の大浦には実験器具を借りることや、その原理などについて何度も聞きに行き、その度に対応してもらい感謝しています。また、技術職員の方々には測定に使用する器具の切り出しや案などを数多く頂き、そのお陰で実験が成功に繋がりました。ありがとうございました。先輩や他の同期、後輩達とも学生生活において多くの助力を頂きました。

大学院での生活及び論文を製作するにあたり、多くの方々に支えていただきまして再度感謝の意を表したいと思います。ありがとうございました。

## 付録A TOFによるPSD測定データ

付録はまだ全てのデータを出していない

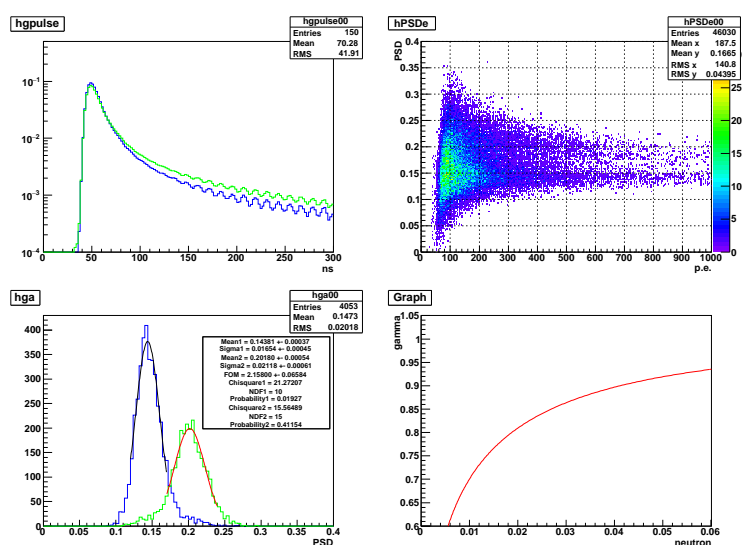


図 6.1: PPO(3g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

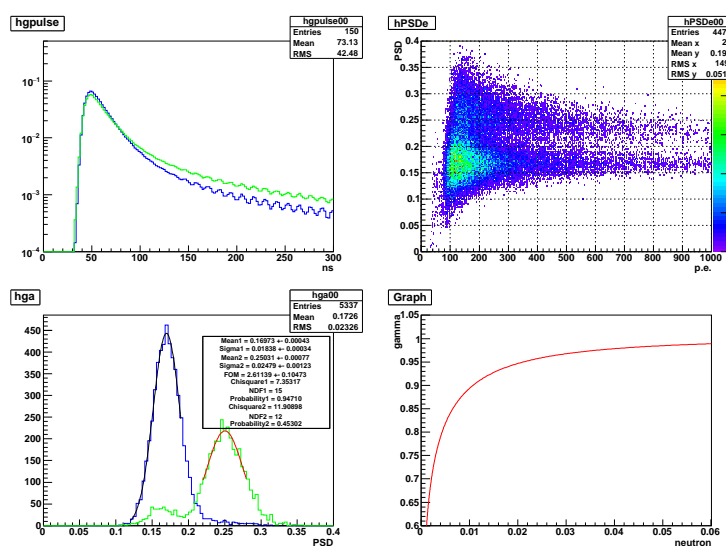


図 6.2: PPO(3g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

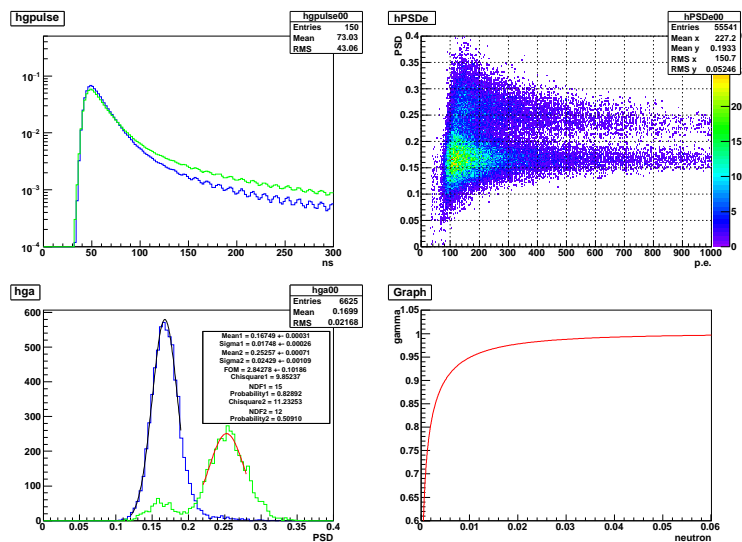


図 6.3: PPO(3g/L)+ナフタレン (100g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

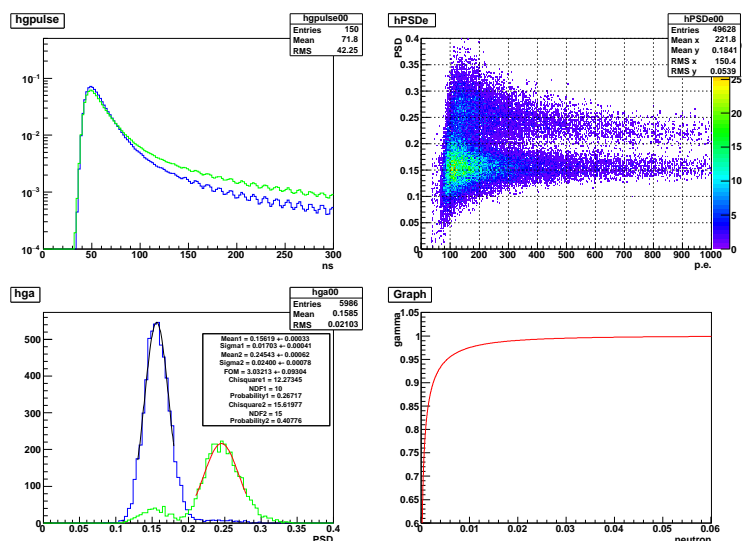


図 6.4: PPO(3g/L)+ナフタレン (150g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

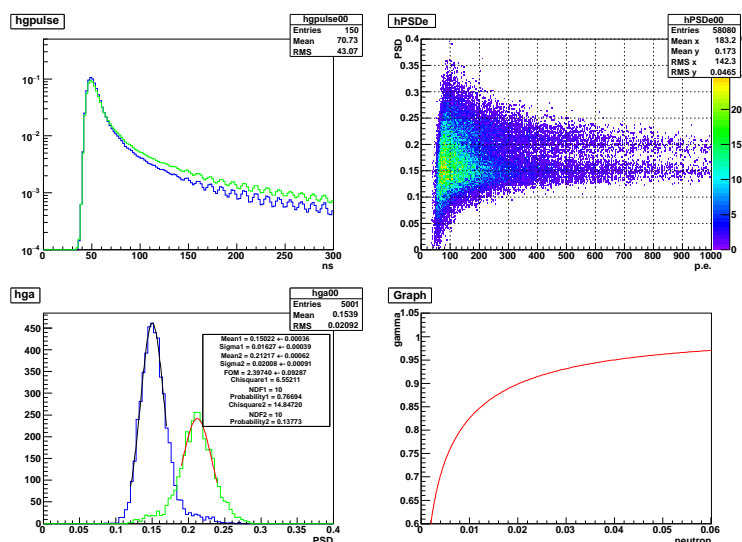


図 6.5: PPO(7g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

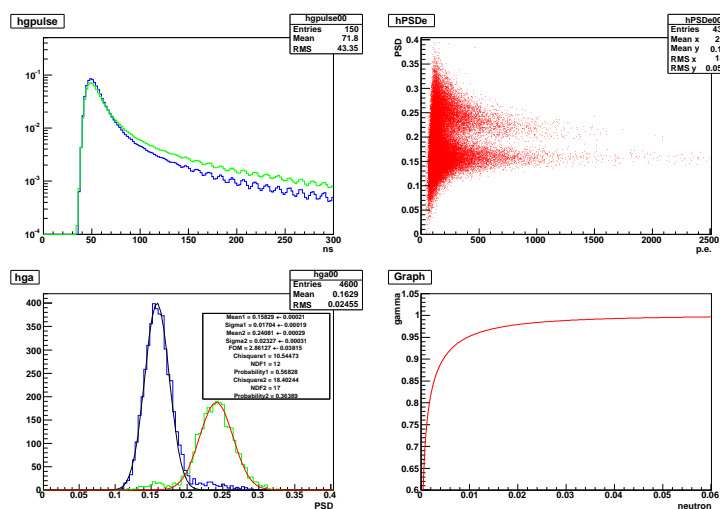


図 6.6: PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

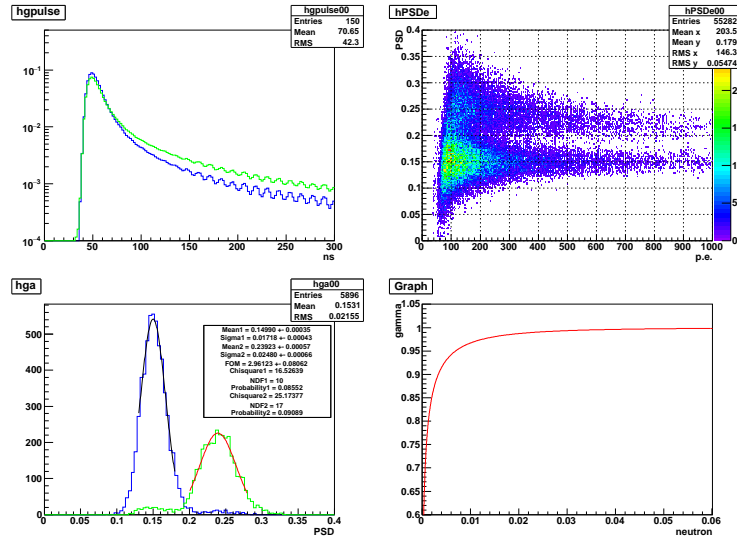


図 6.7: PPO(7g/L)+ナフタレン (100g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

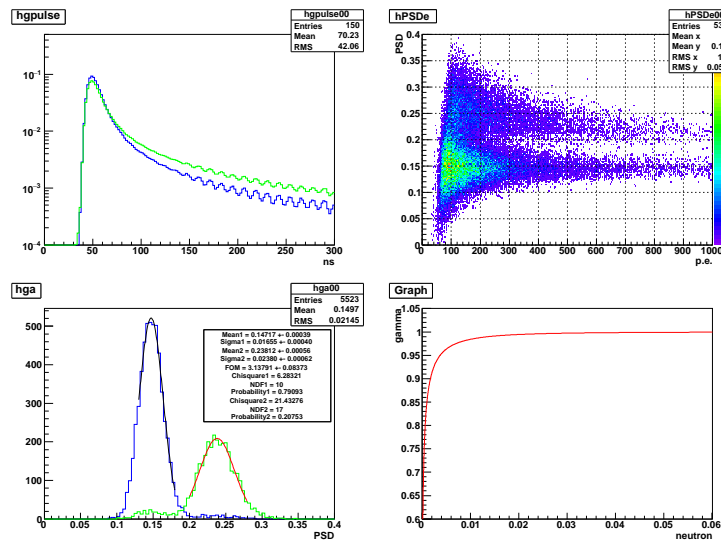


図 6.8: PPO(7g/L)+ナフタレン (150g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

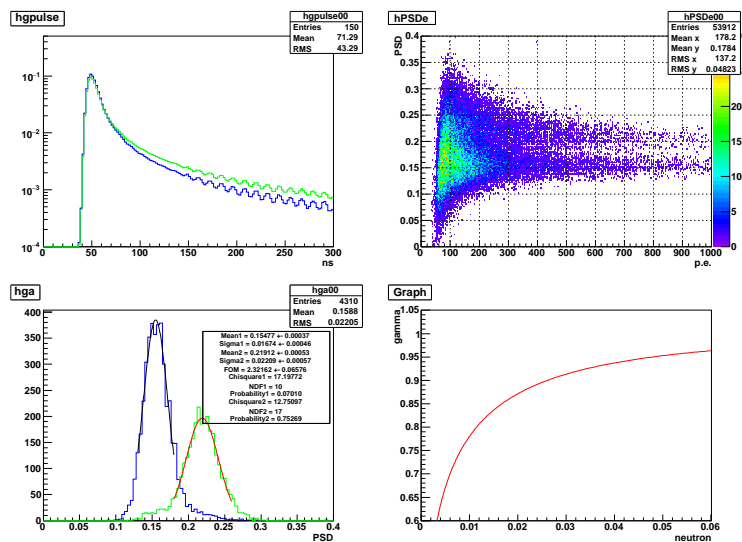


図 6.9: PPO(10g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右: p.e vs PSD、左下: PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下: 効率曲線)

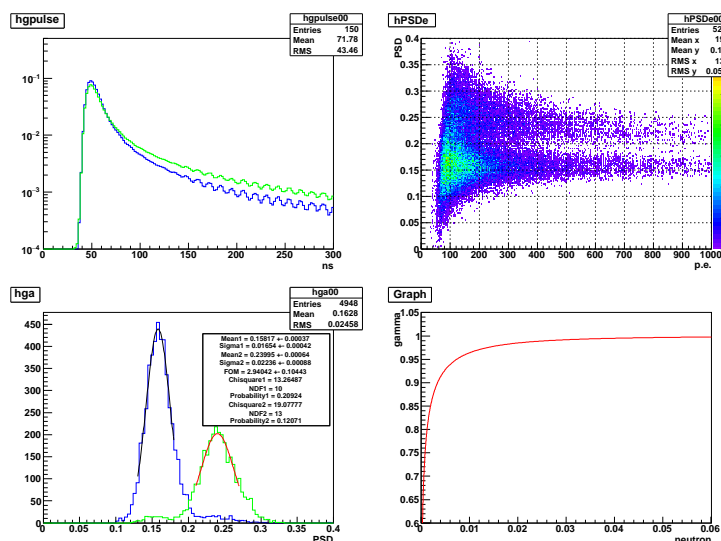


図 6.10: PPO(10g/L)+ナフタレン (50g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右: p.e vs PSD、左下: PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下: 効率曲線)

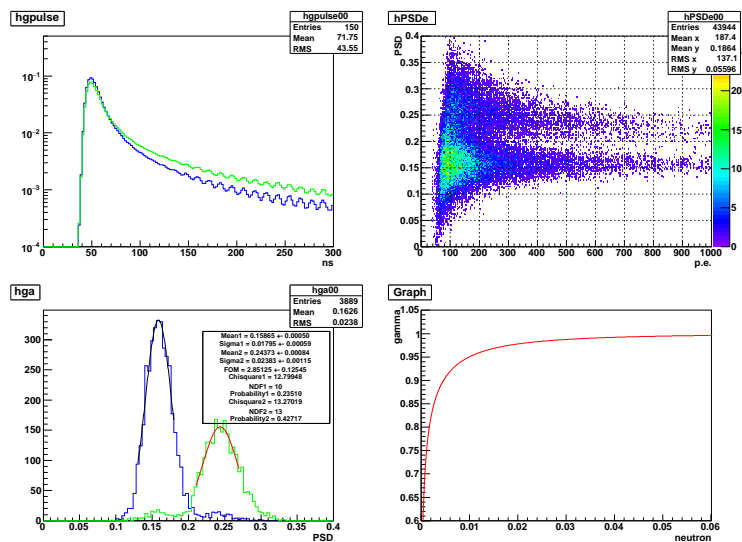


図 6.11: PPO(10g/L)+ナフタレン (100g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

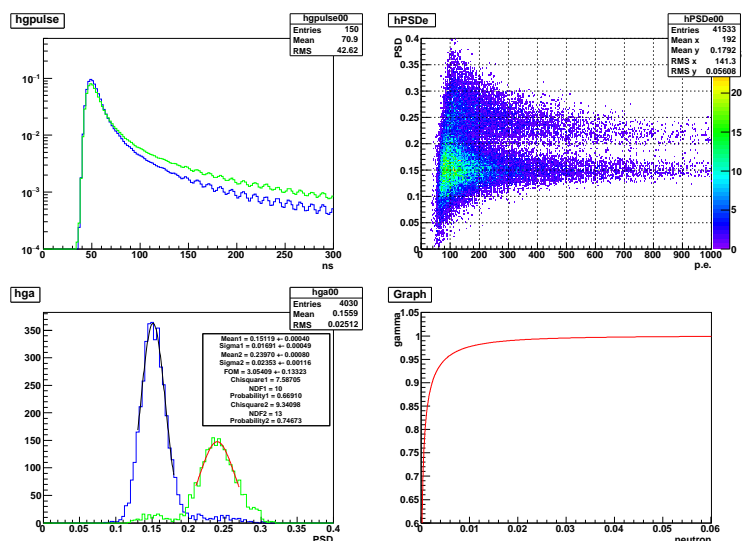


図 6.12: PPO(10g/L)+ナフタレン (150g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)



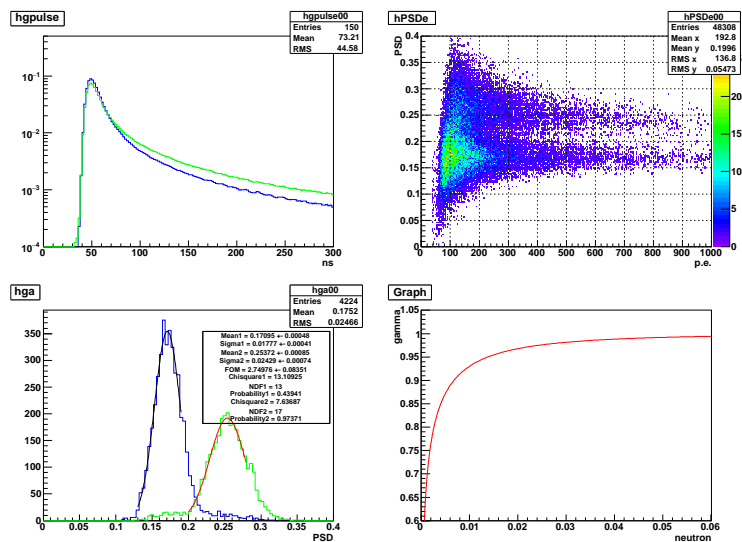


図 6.13: PPO(3g/L)+DIN(50g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

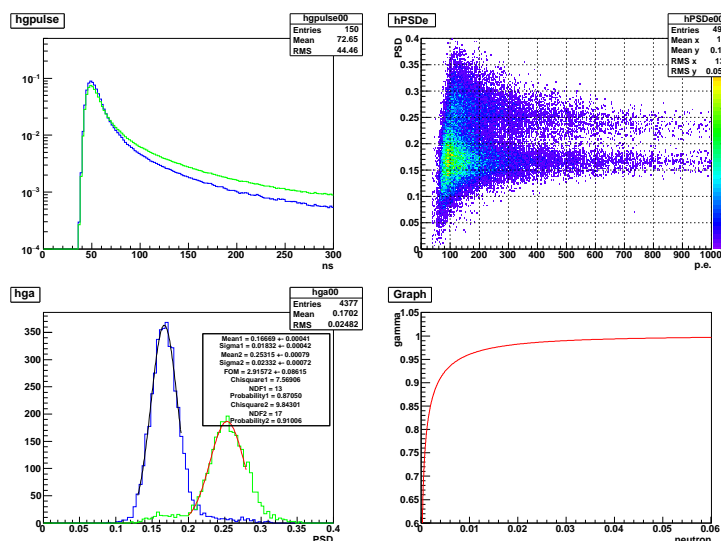


図 6.14: PPO(3g/L)+DIN(100g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

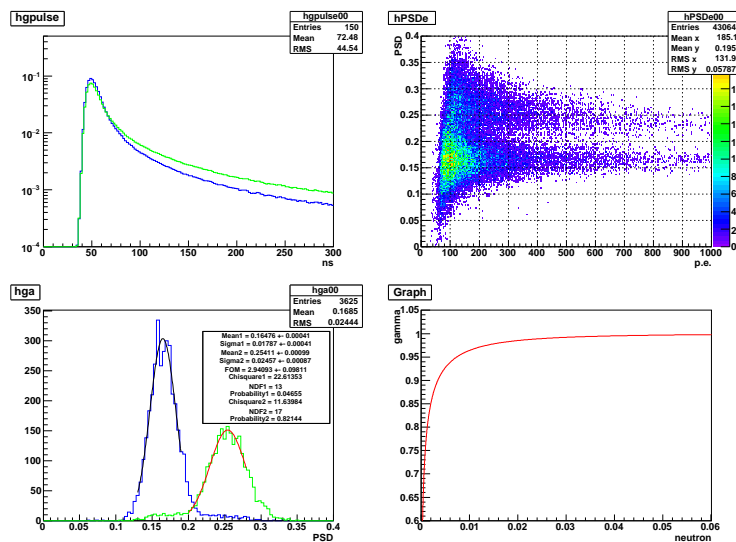


図 6.15: PPO(3g/L)+DIN(150g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

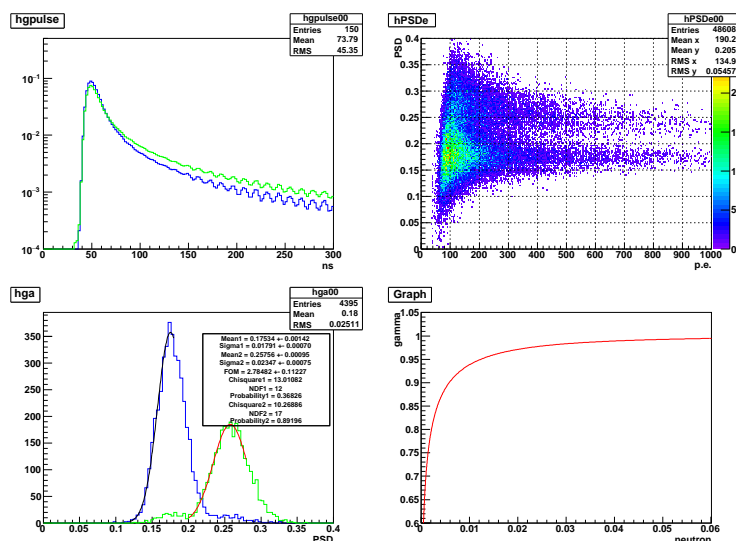


図 6.16: PPO(7g/L)+DIN(50g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

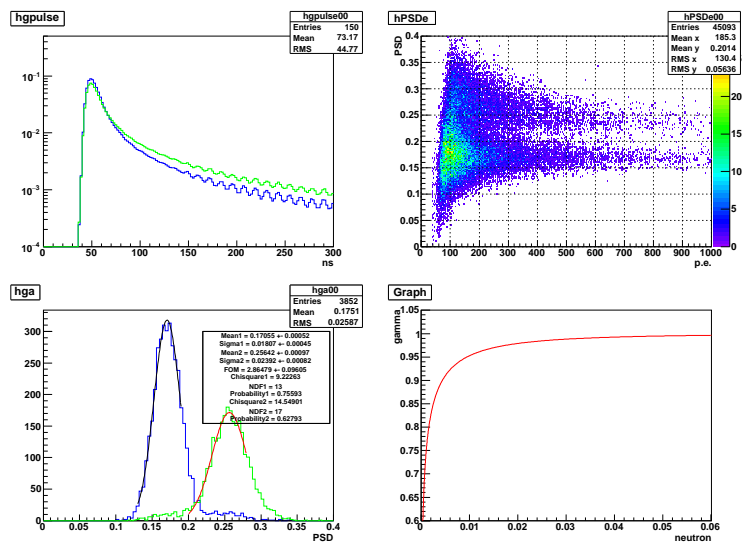


図 6.17: PPO(7g/L)+DIN(100g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

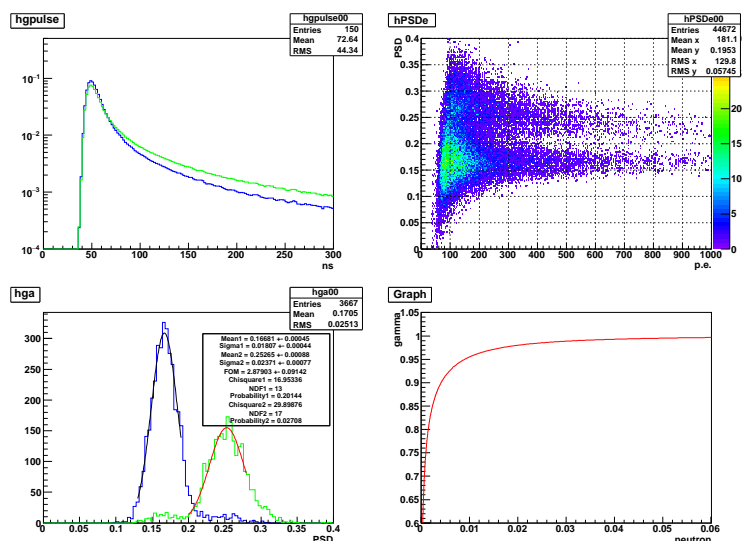


図 6.18: PPO(7g/L)+DIN(150g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

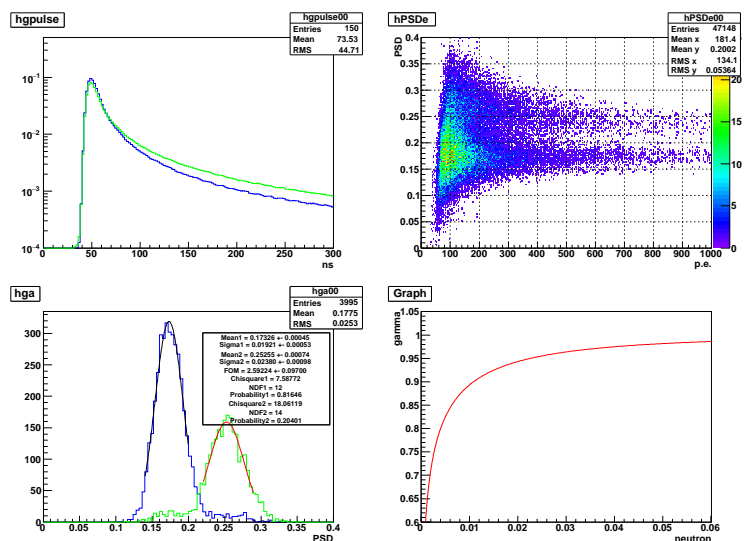


図 6.19: PPO(10g/L)+DIN(50g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

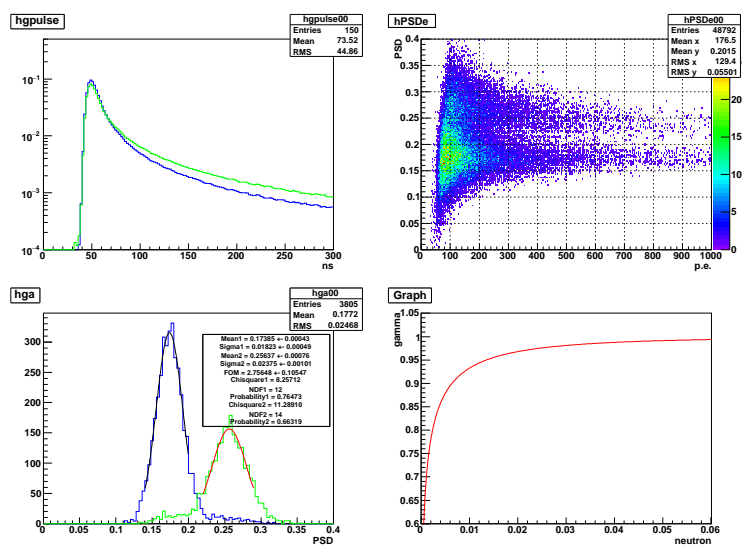


図 6.20: PPO(10g/L)+DIN(100g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

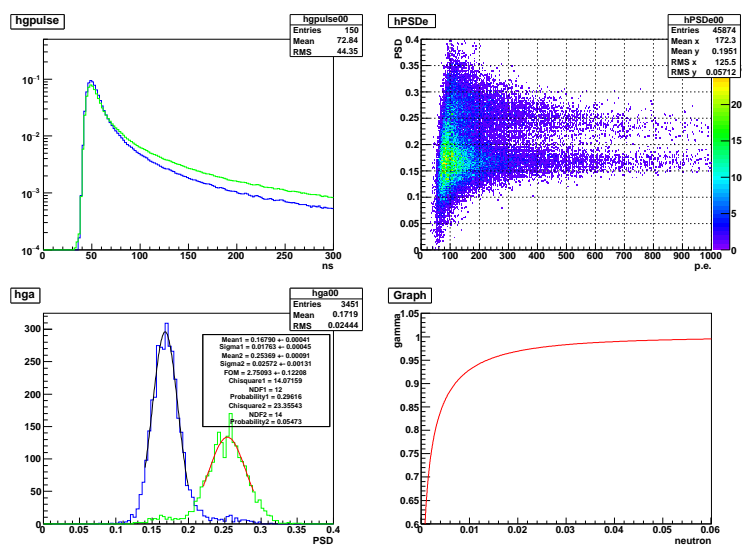


図 6.21: PPO(10g/L)+DIN(150g/L) 結果 (右上: 平均波形 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右上:p.e vs PSD、左下:PSD 分布 (赤:ガンマ, 青:中性子)、右下:効率曲線)

## 付録 B 発光量測定データ

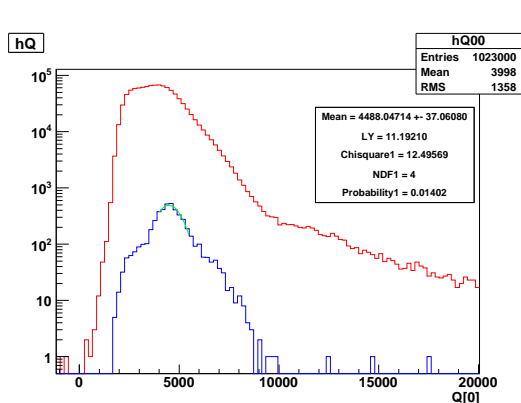


図 6.22: PPO(3g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

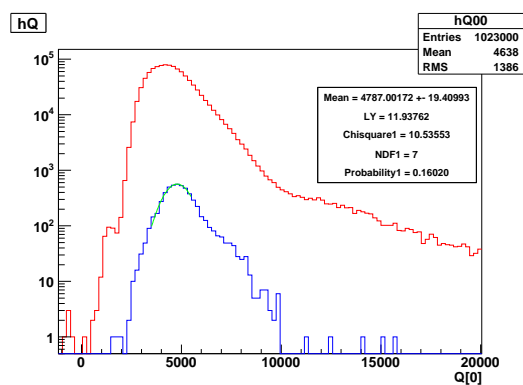


図 6.23: PPO(3g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

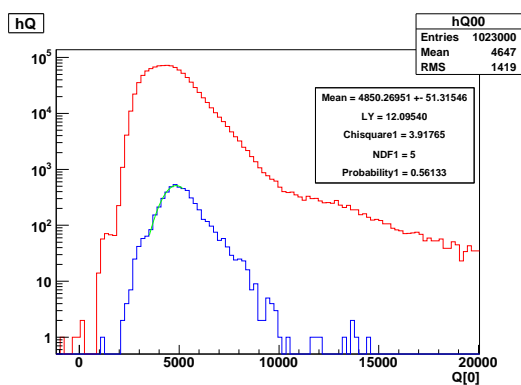


図 6.24: PPO(3g/L)+ナフタレン (100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

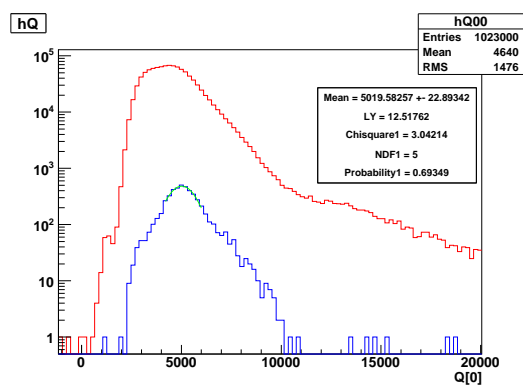


図 6.25: PPO(3g/L)+ナフタレン (150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

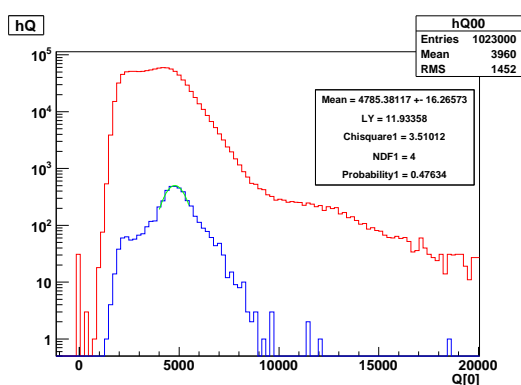


図 6.26: PPO(7g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

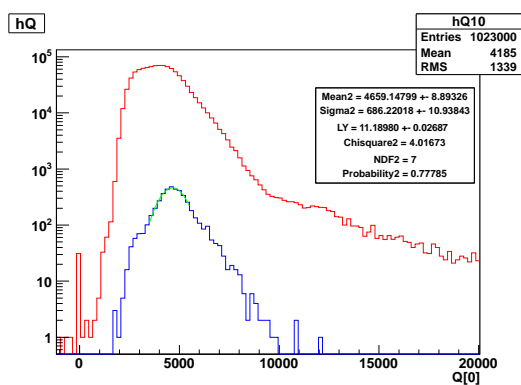


図 6.27: PPO(7g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

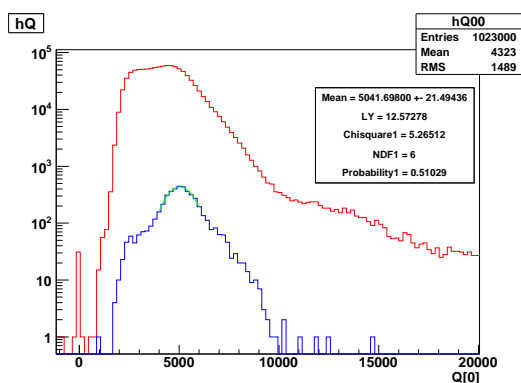


図 6.28: PPO(7g/L)+ナフタレン (100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

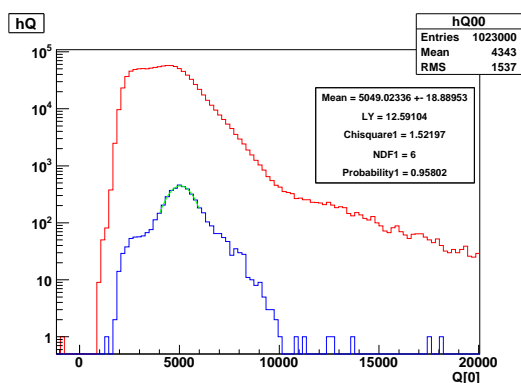


図 6.29: PPO(7g/L)+ナフタレン (150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

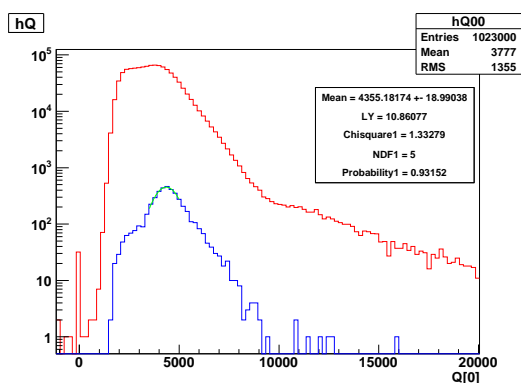


図 6.30: PPO(10g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

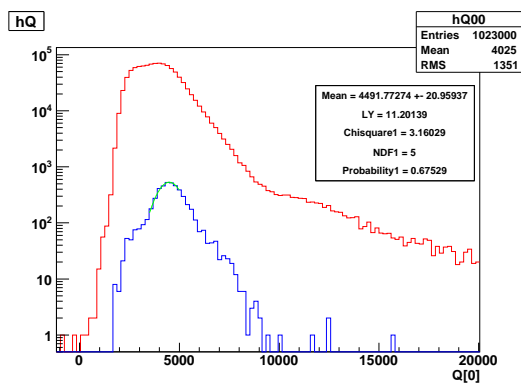


図 6.31: PPO(10g/L)+ナフタレン (50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

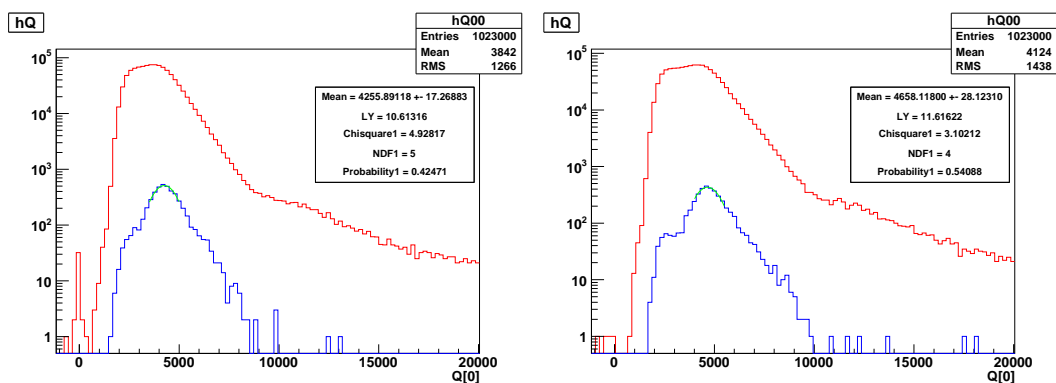


図 6.32: PPO(10g/L)+ナフタレン (100g/L)。図 6.33: PPO(10g/L)+ナフタレン (150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

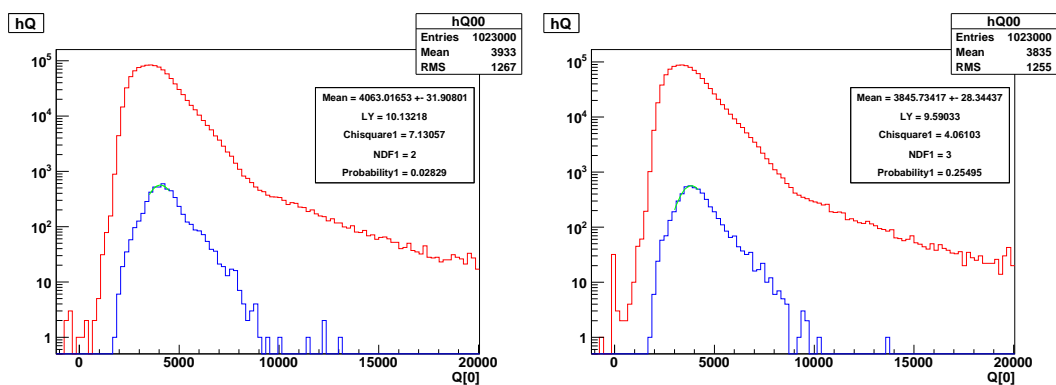


図 6.34: PPO(3g/L)+DIN(50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

図 6.35: PPO(3g/L)+DIN(100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

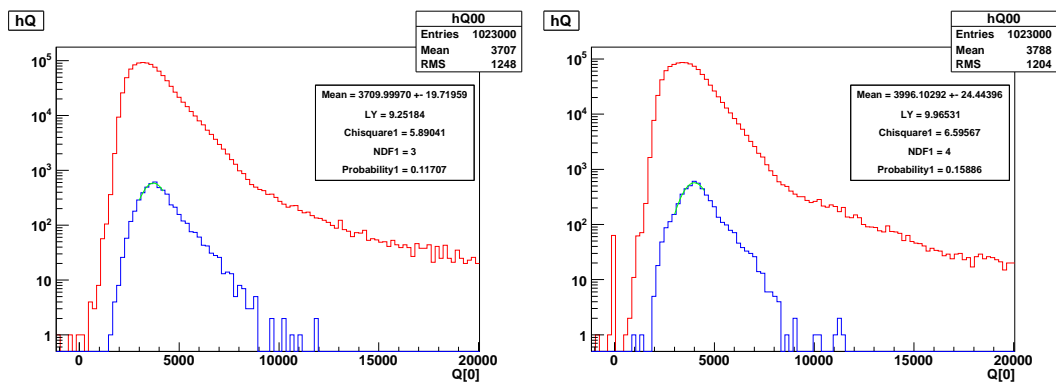


図 6.36: PPO(3g/L)+DIN(150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

図 6.37: PPO(7g/L)+DIN(50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ



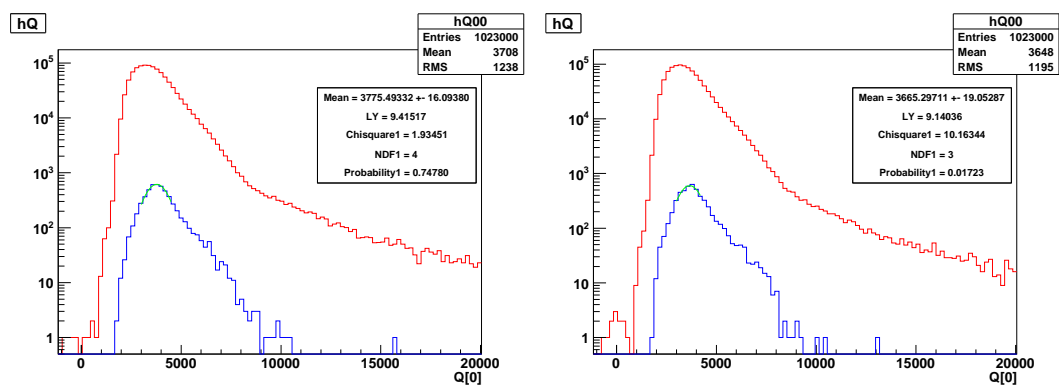


図 6.38: PPO(7g/L)+DIN(100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ 図 6.39: PPO(7g/L)+DIN(150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

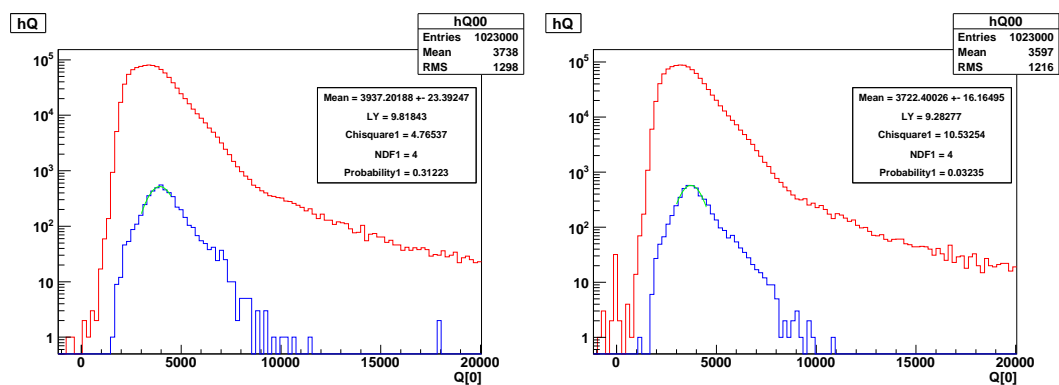


図 6.40: PPO(10g/L)+DIN(50g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ 図 6.41: PPO(10g/L)+DIN(100g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

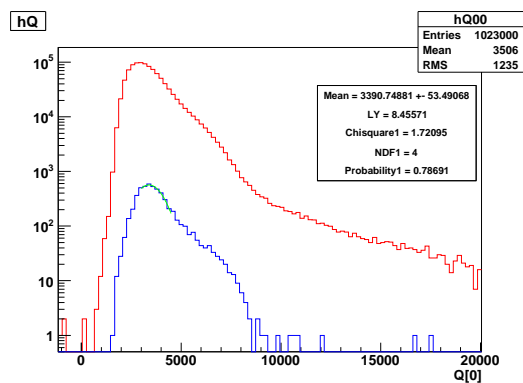


図 6.42: PPO(10g/L)+DIN(150g/L)。赤:シングルトリガーデータ、青:コインシデンスデータ

## 参考文献

- [1] T.Enomoto, Master Thesis, Tohoku University(2015)
- [2] H.Sakai, Master Thesis, Tohoku University(2015)
- [3] A. Bernstein, G. Baldwin, B. Boyer, M. Goodman, J. Learned, J. Lund, D.Reyna, R. Svoboda, Nuclear Security Applications of Antineutrino Detectors :Current Capabilities and Future Prospects (2009)
- [4] S. Oguri, Y. Kuroda, Y. Kato, R. Nakata, Y. Inoue, C. Ito, M. Minowa, Reactor antineutrino monitoring with a plastic scintillator array as a new safeguards method(2014)
- [5] H. Furuta, Doctor Thesis, Tokyo Institute of Technology University (2009)
- [6] I .Shimizu, PhD thesis, Tohoku University (2004)
- [7] J.S. Parka, J. Leeb, I.S. Yeod, W.Q. Choia, J.K. Ahnj, J.H. Choif, S. Choia, Y. Choig, H.I. Jangk, J.S. Jangd, E.J. Jeonb, K.K. Jood, , B.R. Kimd, H.S. Kime, J.Y. Kimd, S.B. Kima, S.Y. Kimj, W. Kimh, Y.D. Kimb, J.H. Leec, J.K. Leej, I.T. Limd, K.J. Mab, M.Y. Pacf, I.G. Parki, K.S. Parkl, K. Siyeonc, S.H. Sod, S.S. Stepanyanh, I. Yug, Production and optical properties of Gd-loaded liquid scintillator for the RENO neutrino detector. A707 (2013) 45-53
- [8] Wanda Beriguetea, Jun Caob, Yayun Dingb\*, Sunej Hansa, Karsten M. Heegerc,d,Liangming Hua, Aizhong Huange, Kam-Biu Lukf,g, Igor Nemchenokh, Ming Qii,Richard Roseroa, Hansheng Sunb, Ruiguang Wangb, Yifang Wangb, Liangjian Wenb,Yi Yangb, Minfang Yeha\*\*, Zhiyong Zhangb, Li Zhou, Production of Gadolinium-loaded Liquid Scintillator for the Daya Bay Reactor Neutrino Experiment
- [9] H.Tachibana, Master Thesis, Tohoku University(2015)
- [10] シリコンオイルの特性, <https://www.silicone.jp/products/type/oil/detail/about/index2.shtml>
- [11] [http://www.nobelprize.org/educational/physics/energy/fission\\_2.html](http://www.nobelprize.org/educational/physics/energy/fission_2.html)
- [12] K.Owada, Master Thesis, Tohoku University(2003)
- [13] 石河寛昭, 液体シンチレーション測定法 (南山堂)
- [14] Maury Goodman Thierry Lasserre, Double Chooz, A Search for the Neutrino Mixing Angle theta-13(2006)
- [15] Wanda Beriguete, Jun Cao, Yayun Ding, Sunej Hans, Karsten M. Heeger, Liangming Hu, Aizhong Huang, Kam-Biu Luk, Igor Nemchenok, Ming Qi, Richard Rosero, Hansheng Sun, Ruiguang Wang, Yifang Wang, Liangjian Wen, Yi Yang, Minfang Yeh,

Zhiyong Zhang, Li Zhou, Production of Gadolinium-loaded Liquid Scintillator for the Daya Bay Reactor Neutrino Experiment(2014)

- [16] Grenn F. Knoll 著、木村逸郎、阪井英次 訳、放射線計測ハンドブック第三版 (2001)
- [17] M. Yeh, A. Garnov, R.L. Hahn, Gadolinium-loaded liquid scintillator for high-precision measurements of antineutrino oscillations and the mixing angle, 13, Nucl.Instrum.Meth. A578 (2007) 329-339
- [18] L. Gao, BX. Yu, YY. Ding, L. Zhou, LJ. Wen, YG. Xie, ZG. Wang, X. Cai, XL. Sun, J. Fang, Z. Xue, AW. Zhang, QW. LÜ, LJ. Sun, YS. Ge, YB. Liu, SL. Niu, T. Hu, J. Cao, JG. LÜ, Attenuation length measurements of liquid scintillator with LabVIEW and reliability evaluation of the device(2013)